

平成 30 年 6 月 14 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05121

研究課題名(和文) コヒーレントフォノン生成機構における過渡的準粒子描像の定量的検証

研究課題名(英文) Quantitative Inspection of the Transient Quasiparticle Picture on the Coherent Phonon Generation Mechanism

研究代表者

日野 健一 (HINO, Ken-ichi)

筑波大学・数理工学系・教授

研究者番号：90228742

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：コヒーレントフォノン(CP)は、超短パルスレーザーを半導体に照射した際に誘起される典型的な超高速過程である。本研究では、これまで未踏である初期時間領域(パルス照射後100fs程度までの時間領域)に内在するCP起因の物理を明らかにする。照射パルスの強度に関する非摂動的な理論モデルを構築し、CP生成機構の理解を行った。さらに、過渡的Fano効果の発現、プラズモンと縦光学フォノンの共鳴相互作用に起因するCP時間信号の不規則振動パターンおよび対応する周波数スペクトルにおける非対称プロファイル、初期位相のパルス強度に対するRabi振動等を見出し、実験との比較を行い有為な一致を得た。

研究成果の概要(英文)：Coherent Phonon (CP) is one of the representative ultrafast phenomena generated by the irradiation of ultrashort pulse lasers on semiconductors. This study is aimed at understanding the underlying physics of CP in the early time region that has still remained unexplored; this is the time region extended till approximately 100 fs after the irradiation of the pulse laser. The non-perturbative theoretical model with respect to the intensity of irradiated pulse laser is constructed, and is applied to the present physical system to understand the generation mechanism of CP. Further, we obtain the following results as manifestation of a transient Fano effect, irregular oscillatory patterns of CP time signals due to a resonant coupling between plasmon and longitudinal-optical phonon and asymmetric spectral profiles in the associated CP spectra, a Rabi-oscillatory pattern of CP initial phases, and so on. These results are in harmony with experimental ones.

研究分野：光物性理論

キーワード：コヒーレントフォノン 超短パルスレーザー 超高速過程 ファノ共鳴 プラズモン-フォノン相互作用  
用 ラビ振動 ボゾン化法 非線形光学過程

### 1. 研究開始当初の背景

高強度超短パルスレーザーを半導体に照射すると、高密度電子励起に伴い時・空間的に位相が揃った縦光学フォノンが瞬時に一斉に励起され、巨視的物理量の統計平均を取っても位相情報が相殺されない顕著な振動現象が現れる。このようなフォノンをコヒーレントフォノン(CP)と呼ぶ。この現象は典型的な超高速光学過程の一つであり、励起光のパルス時間幅がフォノンの1周期(50fs程度)より十分短い場合に発現する。パルス照射後100fs程度までの時間領域(「初期時間領域(ETR)」と呼ぶ)において、CP時間信号には、通常不規則な非周期的振動パターンが現れる。これは照射レーザー光の非線形光学的干渉による”coherent artifact”として理解されてきたため、ETRはCP生成の議論の対象から除外されてきた未踏な研究領域であった。

しかるに、CP生成は、ETRにおいて光・電子・縦光学フォノンが動的に相互作用する量子力学的機構によると考えられる。更に、この領域では、光ドープされた*n*型Siにおいて量子干渉効果であるFano共鳴に特有の非対称スペクトルが観測されている。このように、ETRには新規な量子力学的現象が、未開のまま隠されている可能性がある。

### 2. 研究の目的

(1)上記のFano共鳴特有の非対称スペクトルの発現は、「強結合したポーラロニックな過渡的準粒子生成の痕跡」であると示唆されている。そこで、ポーラロニック準粒子生成に基づく量子ダイナミクス理論を構築することで、CP生成機構の解明を行う。

(2)この理論模型に基づき、過渡的Fano共鳴の物理的起因を解明する。

(3)様々なパルスレーザー照射条件下でCPの振動パターンや関連する周波数スペクトルの挙動を精査し、未開な現象の解明を行う。さらに、実験データとの比較を行うことで、当該理論の定量的なレベルでの妥当性の検証を行う。

### 3. 研究の方法

当該の過渡的なポーラロニック準粒子描像に基づく量子ダイナミクス理論は、各時刻での光・電子・縦光学フォノンの全断熱Hamiltonianの解を基底とする断熱展開法に基づいた理論である。これを以下のようなステップで構築する。

まず、このHamiltonianのうち電子・正孔を表す部分にDysonのボゾン化法を適用すると、

各時刻で個別励起モード(連続状態)および集団励起モード(プラズモン)を記述する擬ボゾン演算子を得ることができる。次に、これらと縦光学フォノンの線形結合を表す演算子(ポーラロニック準粒子演算子)を導入し、これに対する運動方程式を求める。断熱近似を適用することにより、これの数値解を求める。このようにして得られた断熱状態がポーラロニック準粒子状態である。一旦、全ての断熱状態に対するポーラロニック準粒子演算子が得られれば、直截に対応する遅延Green関数を求めることが出来る。さらに、これを用いて過渡的な誘電関数や他の物理量(後述)を記述することが出来るので、CP生成の実験データとの比較が可能になる。

さらに、当該模型において、ポーラロニック準粒子状態の構成要素となる擬ボゾンモード(個別・集団励起モード)および縦光学フォノンモードの断熱エネルギーの時間変化を得ることが出来る。これによって、ETRにおけるCPダイナミクスの定性的な理解が容易になる。図1に各モードの断熱エネルギー曲線の模式図を示す。青のグラデーションは、個別励起モードにおける電子・正孔対の分布を表す(グラデーションが濃いほど励起密度が高い)。緑および赤の実線は、それぞれプラズモンおよび縦光学フォノンのエネルギー変化を表す。

これによると、ETRにおいて電子・正孔の連続状態に縦光学フォノンの離散状態が埋もれていることが分かる。これは、ETRにおいてFano型の相互作用が発現し得ることを示している。また、励起パルス光の強度が高くなると、プラズマ振動数も大きくなるので、ETRにおいて縦光学フォノンモードの断熱エネルギーと交差し、プラズモン・縦光学フォノンの非断熱的な相互作用が引き起こされ得ることを示している。

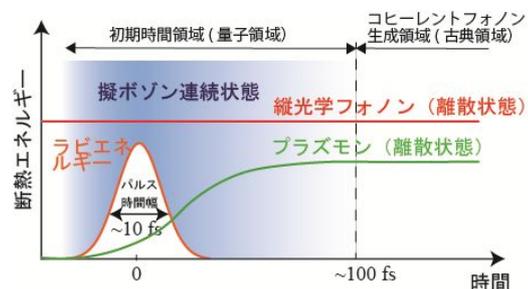


図1. 断熱エネルギー曲線の模式図

### 4. 研究成果

#### 研究の主な成果

ここでは、2項の各研究の目的に対応した

成果を述べる。

(1) 3項で記述した方法により、目的とするポーロニック準粒子模型を構成した。これによると、CP生成は照射パルスレーザーとキャリアの相互作用が繰り込まれた擬ボゾン準粒子(個別・集団励起モード)と縦光学フォノンの相互作用により引き起こされると理解される。特に、非極性半導体である非ドープ Si 結晶においては、空間群に基づく考察により、高密度キャリア励起による対称性の低下に起因して、中心対称性を有する Si 結晶の縦光学フォノン状態からの光放出が許容になることが理解される。この対称性の低下の程度は、励起キャリアの非均一な空間分布(誘起電荷密度分布)の程度であり、極性である GaAs 結晶に比して著しく小さい。しかるに、この誘起電荷密度が Si の CP 生成において重要な役割を果たしていることが分かった。

(2) CP 生成に付随して発現する Fano 型の共鳴機構は、図 2 のように、離散状態である縦光学フォノンと連続状態に対応する擬ボゾン状態間の量子力学的干渉として理解できる。

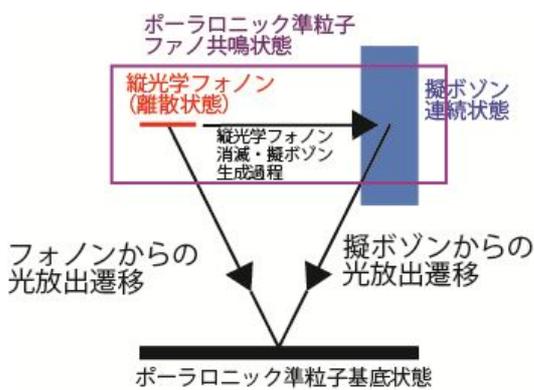


図 2. ポーロニック準粒子のファノ型相互作用の模式図

ここでは、比較的弱いパルス励起領域(励起キャリア密度: 数  $10^{17}/\text{cm}^3$  のオーダー)において、非極性半導体である非ドープ Si 結晶および極性半導体である GaAs 結晶における CP 生成に伴う過渡的光放出スペクトルを計算し、励起パルスレーザー照射後、15fs、65fs および 100fs におけるスペクトル形状を調べた。これによると、Si 結晶においては、65fs において非対称な Fano スペクトル形状が発現し、励起キャリアの緩和が支配的になる 100fs において、その形状は対称になっていくことが分かった。一方、GaAs 結晶においては、スペクトル形状は常に対称であり、

Fano 型の共鳴が発現しないことが分かった。

これらの相違は、電子・正孔の個別励起モード及びプラズモンと縦光学フォノンの実効的な相互作用の結合定数の位相に起因することを突き止めた。すなわち、この結合定数は、Si 結晶においては電子・縦光学フォノン相互作用が変形ポテンシャル相互作用であることを反映して実数であるが、GaAs 結晶においては Fröhlich 相互作用が支配的であることを反映して純虚数である。

さらに、この数値計算の結果は、開閉の散乱チャンネル間の結合を複素相互作用とする Shore の共鳴散乱模型に基づいて、整合的に説明ができる。

(3) CP 信号の振幅および位相のずれ(漸近的には初期位相に対応)に対する励起パルスレーザーの強度(クーロン補正を無視したラビ振動数に対応)依存性を調べた。これによると、励起パルスレーザーの強度がある程度大きくなり、プラズモンと縦光学フォノンの断熱エネルギーが共鳴して両者間の結合による反交差が生じる際、CP 信号に顕著な変化が発現することが分かった。さらに、過渡的な励起キャリア密度の増加に応じて、CP 信号の振幅および位相のずれが Rabi 振動に従う変化を示すことを見出した。

さらに、強パルス励起領域(励起キャリア密度: 数  $10^{19}/\text{cm}^3$  のオーダー)下の非ドープ Si 結晶において、これらの信号に対する励起パルスレーザーの離調(照射パルスレーザーの中心周波数と - 間のエネルギーギャップの差)依存性を調べた。ETR において、不規則振動を有する CP 信号の振幅が極端に増大し、その周波数スペクトル分布が非対称性を示すことを見出された。これは前述の Fano 共鳴とは異なる効果であり、ETR におけるプラズモンと縦光学フォノンの過渡的相互作用に起因する。図 1 に示すように、励起キャリア密度が大きくなると、これらのモードの断熱エネルギーは、交差したり、縮退(共鳴)したりする。その際、両モードはそれぞれ Landau-Zener 型および Rosen-Zener 型の間の結合をすると理解される。とりわけ、後者の相互作用は CP 周波数スペクトル形状に大いに影響を及ぼすことが分かった。実験値との精緻な比較を行い、有意な一致を見出した。

#### 国内外における位置づけとインパクト

CP は典型的な超高速光学過程の一つであるにもかかわらず、これまでその生成機構および付随する Fano 型共鳴の発現機構を統一的に理解する定量的な理論的枠組みは皆無

であった。特に、ETR における豊饒な物理はほとんど未開な状況であった。従来の理論モデルのほとんどはパルスとキャリアの相互作用に関する摂動理論に基づくものであるため、高密度キャリア励起を伴う条件下で行われてきた実験との比較が困難であった。

本研究で構築したポーラロニック準粒子モデルは、励起キャリア密度の大小には依存しない非摂動理論である。照射パルスの任意の条件下で引き起こされる CP ダイナミクスに適用することができる。これにより、CP 生成機構、Fano 共鳴機構、さらには高キャリア密度領域における CP スペクトルの特異性等を、単一の理論モデルで明らかにすることに成功し、実験との定量的なレベルでの比較研究が可能になる。この意味で、一連の当該研究は、CP 研究におけるマイルストーンとなるものと期待される。

#### 今後の展望

・励起パルスの強度および離調（中心周波数に対応）に対する CP 時間信号の振幅および位相のずれの変動パターンを、Rosen-Zener 結合に基づいて精査する。

上述の主な成果成果(3)で言及したように、これらは Rabi 振動に対応して変調をすることが予見された。これに関する実験的な検証が必要である。さらに励起パルスの強度と離調を調整すると、複数の章動周波数下（最小のパルス面積は 以下で、その他は（2 を法として） 以上）で同一の励起キャリア密度を実現できるため、プラズモンと縦光学フォノンとは同一の Rosen-Zener 結合を行うことになる。このような状況下で CP 生成ダイナミクスも複製されるか否か調べる。

・当該の物理系に更に cw の THz 波を照射することでフォノン系（縦および横光学フォノン）の光着衣状態を形成し、CP 生成機構を制御する研究を展望する。この光着衣状態は Floquet 状態になるため、Floquet サイドバンド起因の CP 周波数は CP 高調波成分に対応する。このような背景を基に、THz 波の強度変化に対する CP 生成機構の制御および CP 高次高調波発生の可能性を調べる。

#### 当初予期しない知見

当初理論モデルの単純化のために取り入れた照射パルス光に対する回転波近似は、CP の過渡的な超高速ダイナミクスを断熱理論に基づき理解する可能性を開いた。「超高速」と「断熱」という概念は通常相反する印象を有するが、これは当該系を回転系で観測する

ことに対応し、断熱エネルギー曲線の時間変動などを調べることでその妥当性が確認できた。

これにより、当該系をゆっくりと時間変動する物理系として断熱理論に基づき扱うことが可能になった。とりわけ、プラズモンと縦光学フォノンの断熱エネルギー曲線における反交差や Rosen-Zener 結合による ETR における不規則な CP 変調パターンは、断熱理論からの典型的な知見である。

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計7件)

Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, "Irregular oscillatory patterns in the early-time region of coherent phonon generation in silicon", *Phys. Rev. B* **96**, 125204\_1-6 (2017).

doi.org/10.1103/PhysRevB.96.125204

査読有

Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, "Polaronic quasiparticle picture for generation dynamics of coherent phonons in semiconductors: Transient and non-linear Fano resonance", *Phys. Rev. B* **95**, 014301\_1-16 (2017).

doi.org/10.1103/PhysRevB.95.014301

査読有

Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, "Quantum Generation Dynamics of Coherent Phonons: Analysis of Transient Fano Resonance", *Journal of Physics: Conf. Series* **864**, 1012079\_1-4 (2017).

doi:10.1088/1742-6596/864/1/012079

査読有

[学会発表](計16件)

Ken-ichi Hino, "Quantum Dynamics of Coherent Phonon Generation in Semiconductors" (BIT's 4th Annual World Congress of Smart Materials-2018, Osaka, 2018).

林田信明, 渡辺陽平, 日野健一, 長谷宗明, 前島展也, 半導体、コヒーレントフォノン生成のパルスレーザー依存性(日本物理学会 2017年秋季大会、岩手大学、2017)。

渡辺陽平, 日野健一, 長谷宗明, 前島展也, コヒーレントフォノン生成初期時間

領域における異常振動型の発現（日本物理学会 2017 年秋季大会、岩手大学、2017）。

Ken-ichi Hino, “Quantum-Mechanical Effects Induced in Coherent Phonon Generation” (EMN Meeting on Terahertz 2017, Honolulu, Hawaii, USA, 2017).

Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, “Quantum Generation Dynamics of Coherent Phonon in Semiconductors: Analysis of Pulse-laser Dependence”, (American Physical Society March Meeting 2017, New Orleans, LA, USA, 2017).

渡辺陽平, 日野健一, 長谷宗明, 前島展也、コヒーレントフォノン生成量子ダイナミクスにおけるパルスレーザー依存性（日本物理学会 2016 年秋季大会、金沢大学、2016）。

Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, “Quantum generation dynamics of coherent phonon: Analysis of transient Fano resonance”, (International Conference on Physics of Semiconductors (ICPS2016), Beijing, China, 2016).

Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, “Quantum Generation Dynamics of Coherent Phonon in Semiconductors: Transient and Nonlinear Fano Resonance”, (American Physical Society March Meeting 2016, Baltimore, MD, USA, 2016).

渡辺陽平, 日野健一, 長谷宗明, 前島展也、コヒーレントフォノン生成量子ダイナミクス III：過渡的非線形 Fano 共鳴のパルスレーザー依存性（日本物理学会第 71 回年次大会、東北学院大学、2016）。

渡辺陽平, 日野健一, 長谷宗明, 前島展也、コヒーレントフォノン生成量子ダイナミクス II：過渡的な非線形 Fano 共鳴効果の解析（日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、2015）。

日野健一, 渡辺陽平, 長谷宗明, 前島展也、コヒーレントフォノン生成量子ダイナミクス I：過渡的準粒子病像に基づく理論構築（日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、2015）。

Ken-ichi Hino, Yohei Watanabe, Nobuya Maeshima and Muneaki, "Laser-Induced Fano Resonance in Condensed Matter Physics" in "Resonance", edited by Jan Awrejcewicz, 総頁数 243 頁, ISBN 978-953-51-3633-0 (InTech, Croatia, 2017) Chapt. 11 (pp.209-232).

〔その他〕

#### 報道関連情報

筑波大学 注目の研究(プレスリリース)

「超短パルスレーザーに誘起された特異な格子振動パターンの理論的予見 ~半導体におけるプラズモンと格子の超高速共鳴相互作用の解明~」(2017.9.21)

<http://www.tsukuba.ac.jp/attention-research/p201709211400.html>

筑波大学 注目の研究(プレスリリース)

「超短パルスレーザーに誘起される特異な共鳴現象の理論的解明 ~半導体におけるポロロニック準粒子生成モデルの検証~」(2017.1.10)

<http://www.tsukuba.ac.jp/attention-research/p201701101400.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

日野 健一 (HINO, Ken-ichi)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：90228742