

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13377

研究課題名(和文) 干渉型過渡反射率測定による固体中の量子コヒーレンス検出

研究課題名(英文) Detection of quantum coherence in a bulk solid using the interferometric transient reflectivity measurement

研究代表者

中村 一隆 (Nakamura, Kazutaka)

東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授

研究者番号：20302979

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：アト秒の時間精度で位相制御した光パルス列を用いて時間差をつけて固体内部に生成する量子状態間の干渉(量子コヒーレンス)を過渡反射率計測により検出する新しい方法(干渉型過渡反射率計測法)を開発した。半導体(GaAs)結晶を用いて電子フォノン結合系における量子コヒーレンス計測を行い、90Kの試料温度において50fs程度のあいだ電子コヒーレンスが保持されていることを明らかにした。電子2準位系と調和振動子ポテンシャルを用いたモデル系を用いて、コヒーレントフォノン生成過程の量子力学的理論を開発した。系の時間発展は時間依存シュレディンガー方程式を2次の摂動論により計算し、密度演算子形式を用いて求めた。

研究成果の概要(英文)：We developed a new technique to measure quantum coherence in a bulk solid using a pair of phase-locked femtosecond pulses and a pump-pump-probe type transient reflectivity measurement (interferometric transient reflectivity measurement). Using this technique, we measured the quantum coherence in electron-phonon coupled states in a semiconductor GaAs crystal and found that the electronic coherence is preserved during approximately 50 fs at 90 K. We also developed the theory for generation mechanism of the coherent phonons by using a simple model with two electronic states and harmonic potentials. We calculated time evolution of the states by solving the time-dependent Schrodinger equation with a density matrix formalism and second-order perturbation.

研究分野：光物性

キーワード：量子コヒーレンス コヒーレントフォノン フェムト秒パルス 過渡反射率計測

### 1. 研究開始当初の背景

量子状態間の可干渉性を顕す量子コヒーレンスは、量子力学における最も特徴的な性質であり、新しい量子情報通信や量子デバイス開発の根本となる性質である。孤立した原子や分子では、この量子コヒーレンスは長い時間保持されるが、バルク固体中ではすぐに失われてしまい、「いったいどの位の時間保持されるのか？」また「その消失プロセスはどうなっているのか？」についてはいまだ良く分かっていない。こうした問題の答える得ることは量子技術応用開発のみならず、量子力学基礎理論にも重要である。

### 2. 研究の目的

(1) 本研究では、アト秒の時間精度で位相制御した光パルス列を用いて時間差をつけて固体内部に生成する量子状態間の干渉(量子コヒーレンス)を過渡反射率計測により検出する新しい方法を開発することを目的とした。この方法は、これまでと違いフォノン強度に分極情報を焼き付けて計測することで、時間スケールの異なる電子およびフォノンのコヒーレンスを同時に計測でき、その結合系でのコヒーレンス計測を可能にするものである。

(2) 実験的に量子コヒーレンスを計測する手法を開発するとともに、その結果の解析および理論づけを行うことが必要である。本研究では、コヒーレントフォノンの生成・検出メカニズムおよびコヒーレント制御に関する量子論的な理論構築を目的とする。

### 3. 研究の方法

(1) 近赤外光パルス(中心波長 800nm、パルス幅 50fs)を用いたポンプ・プローブ型の過渡反射率計測を行った。ポンプパルスはホームメイドのマイケルソン型干渉計により、光振動電場の相対位相をロックしたパルスペアにした。パルス対の位相関係は、1次の光学干渉とフリンジ分解自己相関測定により評価した。試料として半導体単結晶 GaAs(100)を用いた。低振動型に改良した冷凍機クライオスタットを用いて、試料は主に 90K-300K の温度でコントロールした。ポンプパルスとプローブパルスの時間間隔は、振動ステージを用いてコントロールした。反射光は Electro-optic 測定配置を用いてヘテロダイン測定した。

(2) 理論研究では、電子 2 準位と変位した調和振動子を用いた系を用いて、時間依存シュレディンガー方程式を 2 次の摂動計算で解いた。光と物質系との相互作用には双極子相互作用を考え、回転波近似を用いて計算することにした。励起光パルスには、ガウス関数型波形を考え、フーリエ変換限界パルスを

仮定して、解析的な解を求めた。

### 4. 研究成果

(1) 半導体単結晶 n 型 GaAs(100)を試料にして、ポンプパルス的一方だけを用いてフェムト秒時間分解過渡反射率計測を行うと、スパイク状の応答の後にコヒーレントな振動変調が観測された(図 1)。

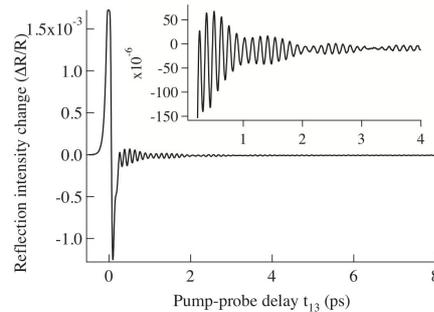


図 1 フェムト秒過渡反射光強度変化

ここで、励起パルスを二連パルスにして過渡反射率測定を行うと、励起パルス対間隔によって、変調強度の変化が観測された。試料温度 90K の場合の測定結果を 2 次元表示した図を図 2 に示す。

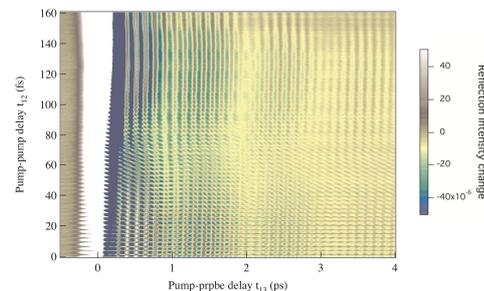


図 2 ダブルパルス励起時の過渡反射光強度変化(横軸がポンプ・プローブ遅延時間、縦軸がダブルポンプ時間間隔)

コヒーレントな振動の強度のパルス対時間間隔依存性を調べるために、ポンプ・プローブ時間に対して高速フーリエ変換を行った(図 3)。8.8THz と 7.8THz にピークがあることが分かり、それぞれ Longitudinal Optical (LO) フォノンと LO フォノンとプラズモンの結合した (LO phonon-plasmon coupled mode: LOPC) 振動と帰属できる。LO フォノンおよび LOPC のピーク強度をポンプパルス対時間間隔の関数としてプロットしたものが図 4 である。ここでは比較のためにポンプパルスの 1 次光学干渉(図 4(a)) も一緒に示した。LO フォノンには約 116fs の遅い周期と約 3fs の速い周期の干渉縞が観測され、それぞれフォノン干渉と電子状態の干渉と同定できる。この電子状態の干渉は光パルスペアによって GaAs の電子状態に焼き付けられたコヒーレ

ンスを意味している。ポンプパルスの1次干渉のシグナルと比べると、GaAs 固体に電子コヒーレンスが 50fs 程度の時間保持されていることが分かった。

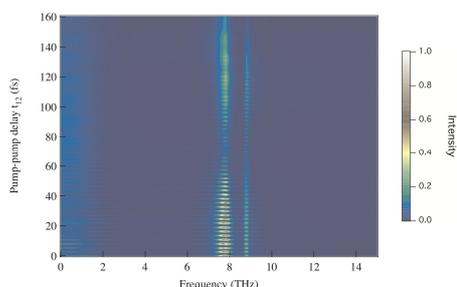


図3 LO フォノン振動 (7.8THz) と LOPC (8.8THz) 振動の強度のポンプパルス対間隔依存性。図2の横軸を高速フーリエ変換して求めた。

特に、電子コヒーレンスのフリッジ強度が約 60fs の遅延時間のときに最小になったあと再度大きくなり、見かけ上コヒーレンスの消失と回復現象に対応している。

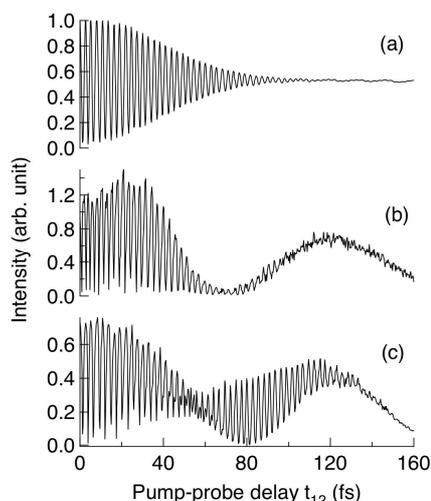


図4 フォノン強度およびポンプ光強度のダブルポンプパルス時間間隔依存性。(a) パルスペアの1次光学干渉強度、(b) LOPC シグナル強度、(c) LO フォノン強度。

(2) 理論研究では、フェムト秒光パルスによるコヒーレントフォノン生成とパルスペアを用いたフォノンのコヒーレント制御に関して、量子力学的取扱いを行った。

コヒーレントフォノンは、フォノンの振動周期よりも短い光パルスを試料に照射することで発生でき、その運動の様子をポンプ・プローブ型過渡反射光測定によって実時間

で計測することができる。これまで、コヒーレントフォノンの発生メカニズムは大別して2つのメカニズムで説明されていた。ひとつは、透明領域における瞬間的誘導ラマン散乱 (Impulsive Stimulated Raman Scattering: ISRS) 過程で、もう一方は不透明領域における変位誘起 (Displacement Enhanced Coherent Phonons: DECP) 過程である。その理論的説明は、ほとんどが古典的な現象論に基づくものであった。本研究では、電子2準位系と変位した調和振動子型ポテンシャルで構成されるモデル系を用いて、ラマン過程と光吸収過程によるコヒーレントフォノン生成過程を統一的に扱える量子力学的理論構築を行った。系のハミルトニアンは

$$H_0 = H_g |g\rangle\langle g| + (\mathbf{e} + H_e) |e\rangle\langle e|$$

$$H_g = \hbar \omega b^\dagger b$$

$$H_e = \hbar \omega b^\dagger b + \mathbf{a} \hbar \omega (b^\dagger + b)$$

とした。また光は双極子相互作用を考え、回転波近似を用いることで相互作用ハミルトニアンを

$$H_I(t) = m E_0 f(t) (e^{-i\Omega t} |e\rangle\langle g| + e^{i\Omega t} |g\rangle\langle e|)$$

とした。ここで  $|g\rangle$  と  $|e\rangle$  はそれぞれ電子基底状態と励起状態を表す。は電子励起状態における調和振動子ポテンシャルの変位を表すパラメータである。このハミルトニアンを用いて時間依存のシュレディンガー方程式を2次の摂動計算で解き、密度演算子の時間発展を求めた。コヒーレントフォノン生成は光吸収経路とラマン散乱経路に分けて計算した。過渡反射光計測の場合には、電子励起状態にフォノン生成したか、電子基底状態にフォノン生成したか判別できず両方が寄与する。

光エネルギーが電子準位間に共鳴した場合のコヒーレントフォノン振幅の期待値を、ガウス型波形値のパルスに対して求めた結果、光吸収の場合 ( $\langle Q_A \rangle$ ) とラマン過程の場合 ( $\langle Q_R \rangle$ ) それぞれ以下のように解析解を求めることができた。

$$\langle Q_A(t) \rangle = 2a \sqrt{\hbar / 2\omega} \left( e^{-s^2 \omega^2 / 4} \cos \omega t - 1 \right)$$

$$\langle Q_R(t) \rangle = A \sin \omega t$$

$$A = 2a \sqrt{\hbar / 2\omega} \frac{4}{\sqrt{p}} e^{-s^2 \omega^2 / 4} \int_0^{s\omega/2\sqrt{2}} e^{t^2} dt$$

この結果は、光吸収過程ではコサイン型の振動であり、ラマン過程の場合にはサイン型の振動を示している。ただし、量子力学的にこのふたつの遷移経路は共存しているため、実際のフォノン振幅振動の期待値はパルス幅に依存して初期依存が変化することが分かった。各過程のフォノン振幅のパ

ルス幅依存性を図5に示す。

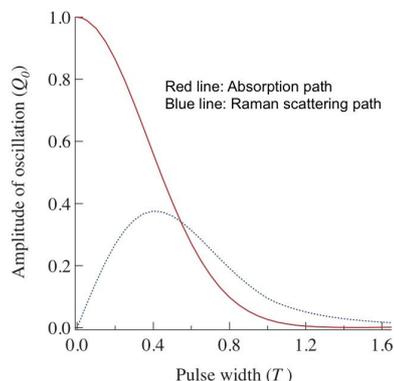


図5 フォノン振幅期待値のルス幅依存性

このモデルはダブルルス励起の場合にも拡張可能なものであり、その場合にはフォノンの干渉および電子干渉の様子もシミュレートすることができた。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計3件)

Y. Kayanuma and K. G. Nakamura: Dynamical Jahn-Teller view point for generation mechanism of asymmetry modes of coherent phonons, Phys. Rev. B 95 (2017) 104302. (9 pages) (査読有)

K. G. Nakamura, K. Ohya, H. Takahashi, T. Tsuruta, H. Sasaki, S. Uozumi, K. Norimatsu, M. Kitajima, Y. Shikano, and Y. Kayanuma: Spectrally resolved detection in transient reflectivity measurements for coherent optical phonons in diamond, Phys. Rev. B 94 (2016) 024303 (7 pages) (査読有)

K. G. Nakamura, Y. Shikano, and Y. Kayanuma: Influence of pulse width and detuning on coherent phonon generation, Phys. Rev. B 92, 144304 (2015). (7 pages) (査読有)

[学会発表](計22件)

K. G. Nakamura, et al., Coherent control of electron-phonon coupled states in a GaAs crystal using phase-locked femtosecond pulses, QNO 2108 International Conference on Quantum & Nonlinear Optics (2018). (国際会議、招待講演)

Y. Kayanuma and K. G. Nakamura:

Attosecond coherent control of electron-phonon coupled systems with dual optical pumping, The 8<sup>th</sup> Shanghai Tokyo Advanced Research on Intense Laser Science (2017) (国際会議、招待講演)

K. G. Nakamura: Quantum Phononics in Condensed Matter, International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science, (2016). (国際会議、招待講演)

K. G. Nakamura: Quantum phononics in diamond using femtosecond optical pulses, The 7<sup>th</sup> Shanghai Tokyo Advanced Research on Intense Laser Science (2016). (国際会議、招待講演)

K. G. Nakamura: Spectrally resolved detection of coherent optical phonons in diamond, The 6<sup>th</sup> Shanghai Tokyo Advanced Research on Ultrafast Intense Laser Science (2015) (国際会議、招待講演)

[その他]  
ホームページ等  
<http://www.knlab.msl.titech.ac.jp>

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

中村 一隆 (NAKAMURA Kazutaka)  
東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授  
研究者番号: 20302979

##### (2) 連携研究者

鹿野 豊 (SHIKANO Yutaka)  
慶應義塾大学・理工学部・特任准教授  
研究者番号: 80634691

萱沼 洋輔 (KAYANUMA Yosuke)  
東京工業大学・科学技術創成研究院・特任教授  
研究者番号: 80124569