

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05396

研究課題名(和文) 光をツールとする固体電子および電子・フォノン結合系の量子駆動理論

研究課題名(英文) Theory for quantum driving of electrons and phonons in solids with laser field as a tool

研究代表者

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：さまざまな物質におけるコヒーレントフォノンの生成・観測過程について理論研究を行った。とくにn型GaAs単結晶において相対位相ロック2連パルス励起法で測定された、フォノン振動強度の遅延時間依存性に見られる電子状態由来の干渉縞とフォノン由来の干渉縞のパターンが、同一の終状態に至る二つの量子遷移経路間の干渉(干渉縞同志の干渉)に起因するものであることを示した。さらに、その特異な形状からGaAs結晶においては、バンド端より上の励起エネルギーにも関わらずコヒーレントフォノン生成機構としては、これまで考えられてきた瞬間的光吸収ではなく、瞬間的誘導ラマン過程が支配的であることを初めて明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

未来の量子情報処理媒体として、固体結晶中の素励起(量子力学的な基本単位となる物質中の励起のこと。電子励起、フォノン励起など)が候補とされている。これらの素励起を超高速で操る手段としては超短パルスレーザーが有力視されるが、光は電子励起を介してフォノンを励起するため、結合した素励起間の光照射下での振る舞いの解明が基本的な課題となる。量子力学では状態に付随した「位相」の存在が本質的に重要である。本研究では、「絡み合った」素励起間の位相干渉効果が、どのように素励起の生成・消滅を支配しているかを理論的に解き明かしている。

研究成果の概要(英文)：I studied theoretically various aspects in the generation and detection processes of coherent phonons in solids. Especially, it was clarified that the peculiar interference fringe in the delay-time dependence of the phonon amplitude observed in the phase-locked double-pulse excitation in GaAs crystals is due to the quantum-path interference between the two transition paths to arrive at a final state. Furthermore, the observed apparent collapse and revival in the interference fringe originated from the electronic interference is a signature indicating the fact that the generation mechanism of the coherent phonons is definitely the impulsive stimulated Raman scattering, and not the impulsive absorption process even though the photon energy is in the opaque region of GaAs.

研究分野：物性理論

キーワード：量子経路干渉 位相ロック2連パルス コヒーレントフォノン

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、高強度で包絡線波形や位相のよく制御されたレーザーパルスを発生する技術が成熟期を迎え、レーザーを物質中の電子状態などの情報を得るための手段として用いるだけでなく、電子や様々な素励起の運動状態を積極的に制御し駆動することを目的とした研究が急展開を見せている。その典型例の一つがいわゆる化学反応の「コヒーレント制御」である。コヒーレント制御では、化学反応にかかわる複数の経路間の量子位相干渉を光で制御して、自発的には到達しえない、または効率の低い反応生成物を得ることを目的としていた。コヒーレント制御は、物質創成の工業的手段としては限界があったが、レーザー技術による物質探求の新たな基本概念として、物理および化学の広い分野に影響を与えている。

本研究者は、早い時期から固体電子の光励起状態で起きる動的量子過程に興味を持ち、理論研究を進めてきた。電子励起状態では、一般に複数の量子状態が近接して存在し、光電場に駆動されて準位交差や経路干渉などが頻繁におきる。このような動的問題を理解するために、数値計算の技法とともに新たな理論的枠組みの展開が求められていた。

2. 研究の目的

本研究課題では、バルク固体中のブロッホ状態にある電子を対象として、波形と位相の制御された光電場がこれを駆動すると考え、新奇な量子応答を見出すことを目的とした。また、電子状態だけでなく固体中のフォノンやスピン自由度などと言った応答時定数の大きく異なる素励起との結合を考えることで、新たな局面を見出すことも目指した。

3. 研究の方法

本研究者は理論研究者ではあるが「理論のための理論」ではなく、生の実験データの中から新しい理論的課題を見出し、実験の解析と現象の理解に役立てることを常に目指している。幸い本研究課題の初期の段階で、所属する研究施設(東京工業大学フロンティア材料研究所)内の超高速光物性研究グループにおいて、電子・フォノン結合系(コヒーレントフォノン)の超高速ダイナミクスに関連して興味深いデータが得られ始めたので、その解析のためのモデル提案と数値計算に集中した。

4. 研究成果

本研究課題の初期においては、グラフェンにおけるディラック電子の電子バンド(ディラック・コーン)の形状を、直線偏光や円偏光照射によってさまざまに変化させる理論を提案し、国際会議などで発表済みである。しかし、3の項で述べたように、コヒーレントフォノン生成・観測に関連して、緊急に解析を要する実験データが出始めたため、研究期間の大半をそのための理論形成に費やすことになった。ここではその中心的研究成果について述べる。

結晶表面に、パルス時間幅が数10フェムト秒(1フェムト秒 = 10^{-15} 秒)以下の超短パルスレーザー(ポンプ光)を照射すると、数ピコ秒(1ピコ秒 = 10^{-12} 秒)という比較的長い時間にわたって、結晶の反射率や透過率が振動する現象が数多く観測されている。これはポンプ光が電子を励起し、その結果、結晶中に時間的にも空間的にも位相のそろった格子振動(コヒーレントフォノン)が生成されるためである。コヒーレントフォノンは、結晶中の典型的な素励起であるフォノンの特性(振動数や寿命)を実時間で観測できること、また2連パルス励起の手法でコヒーレント制御可能なことなどから興味をもたれ、多くの実験的研究がなされてきた。

コヒーレントフォノンが生成されるミクロな機構としては、瞬間的光吸収機構(IA)と瞬間的誘導ラマン散乱機構(ISRS)が知られている。IA機構では価電子帯の電子がパルス光を吸収して、突然伝導帯に励起される結果、断熱ポテンシャルの「ずれ」を感じて電子励起状態でフォノンの一斉振動が始まる。ISRS機構では、強いパルス電場内での電子励起とそれに引き続くラマン散乱によって、電子の基底状態でコヒーレントな振動が誘起される。フォトンエネルギーがバンドギャップエネルギーを超えない透明域励起の際はISRS機構がほとんど唯一の可能性と考えられる。しかし、不透明域励起の場合は原理的に両方が可能のため、どちらが支配的であるかについては長い間決め手を欠いていた。

中村一隆氏の研究室では、GaAs単結晶を対象として2連パルス励起によって発生するコヒーレントフォノン強度の遅延時間依存性の測定を開始した。従来の数多くある「フォノンのコヒーレント制御実験」との違いは、一つの光パルスからマイケルソン干渉計によって作られる双子の光パルス間の相対的位相差(パルス時間差)を数アト秒(1アト秒 = 10^{-18} 秒)の精度で制御したことである。これにより、LOフォノン(励起エネルギー36meV, 時定数115fs)のみならず電子励起状態(励起エネルギー1.55eV, 時定数2.67fs)のコヒーレント制御まで可能となった。2連パルス励起後に遅延時間をかけてプローブパルスを照射し、その反射率変化をポンプ・ポンプ遅延時 t_{12} とポンプ・プローブ遅延時間 t_{13} の関数として記録する。

Fig.1(a)はデータ処理をして得られた測定結果の例である。ただし、縦軸はLOフォノンの振動周期で振動する過渡反射率変調の大きさ、横軸はポンプ・ポンプ遅延時間 t_{12} である。対象は90Kのn型GaAs結晶、Tiサファイアレーザーのパルス全幅は約50fsである。

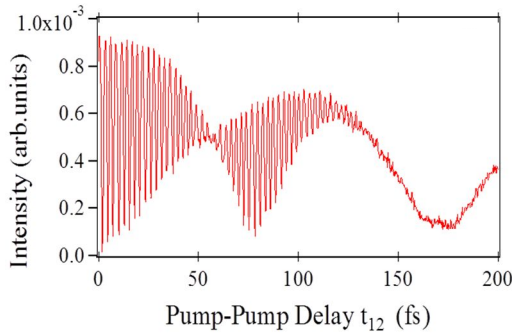
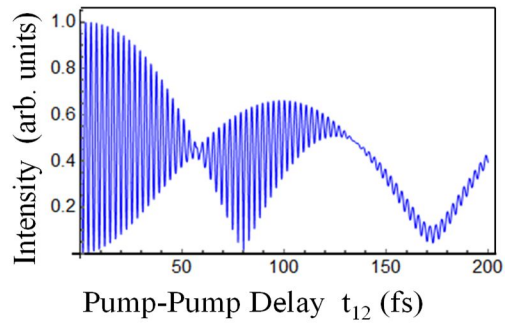


Fig.1 (a) 反射率変調の遅延時間依存性(実験)



(b) 反射率変調の遅延時間依存性(理論)

Fig.1(a)は速い振動成分と遅い振動成分の「唸り」からなっている。速い振動は、その周期が光の振動周期(2.7fs)と一致しており、かつポンプ光の重なりのない時間領域まで延びていることから、光の位相情報を電子励起状態が記憶したことによる干渉縞であることがわかる。すなわち、電子状態のコヒーレント制御ができています。一方、遅い振動の周期はLOフォノンの振動周期と同じであり、いわゆる「コヒーレントフォノンのコヒーレント制御」にほかならない。この速い電子の干渉縞は、50fsあたりで見かけ上消えるが、その後、回復しているように見える。Fig.1(b)はGaAsのバンドギャップと線形電子フォノン相互作用を仮定して計算した遅延時間依存性の理論値であるが、実験データの特徴をよく再現している。とくに、50fs近傍での電子干渉縞の「消失と再生」をよく再現する。

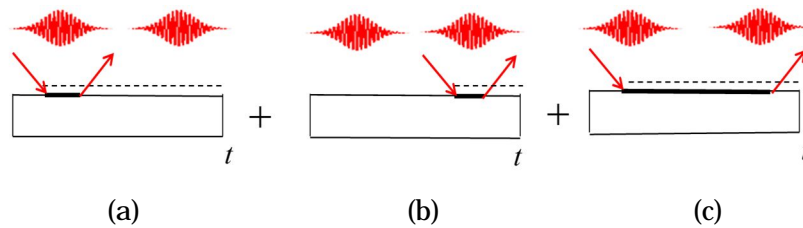


Fig.2 2連パルス誘導ラマン散乱過程のファインマン図形

この特徴的な干渉縞のパターンは、誘導ラマン散乱過程 (ISRS) における量子経路干渉の結果であることが理論的に示された。Fig.2は2連パルスによる誘導ラマン散乱過程の密度行列を模式的に表すファインマン図形である。横軸は遅延時間、図中の細線は電子基底状態、太線は励起状態、破線は1-フォノン状態である。(a)と(b)とはそれぞれ同一パルス内の電子励起・脱励起であるため、光振動の位相情報は含まず、ただ遅延時間だけがフォノンの振動位相に記憶される。(c)は二つのパルスにまたがる励起・脱励起であるため、光の振動位相が電子状態に記憶される。ただし、コヒーレントフォノンの振動振幅は、(a)+(b)+(c)の絶対値に比例するが、(c)単独では位相情報は消えてしまうため、速い振動が観測されるためには(a)+(b)との積の項が必要になる。すなわち、フォノンの振動が破壊的干渉のため(a)+(b)=0となる遅延時間には、電子干渉の振動項も消失する。これは光散乱過程に固有の現象であって、もう一つの量子経路である瞬時的光吸収(IA)では起きない。なお、遅延時間が150fsを越えると速い電子位相の干渉縞が消えるのは、バンド励起状態のエネルギー広がりによる不均一位相緩和のためである。

このように、アト秒制御の2連パルス励起では、電子状態に記憶された位相の干渉縞とフォノン状態に起因する干渉縞が同時に観測されるが、本研究者の提案した理論により、その干渉パターンが、異なる複数の量子遷移経路に起因するものであることが明らかになった。この結果は、国内外の学会で講演され、2019年発行のPhysical Review B (Rapid)に公表されている。なお、この論文はEditor's Suggestionに選ばれた。

2連パルスによるコヒーレントフォノン生成実験は、ダイヤモンドやSiCのようなワイドギャップ物質にも拡張されている。また、GaAsに関しては2連パルスの直線偏光を平行偏光から直交偏光に拡張したり、ポンプ光強度依存性からラマン散乱の飽和効果を見出すなどの実験が行われ、理論計算との良い一致が得られている。これらの研究成果は学会発表済みで、論文取りまとめ中である。

さらに、フォノンに限らず電子励起状態が比較的低エネルギーの副準位(スピンやRabi分裂など)を持つ系は多くあり、それらの超高速ダイナミクスを研究する上で、アト秒制御の2連パルスポンプ・プローブ分光法および量子経路干渉効果が威力を発揮することが期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 H. Sasaki, R. Tanaka, Y. Okano, F. Minami, Y. Kayanuma, Y. Shikano, K. G. Nakamura	4. 巻 8
2. 論文標題 Coherent Control Theory and Experiment of Optical Phonons in Diamond	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 9609, 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-018-27734-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 M. Hada, K. Norimatsu, S. Tanaka, S. Keskin, T. Tsuruta, K. Igarashi, T. Ishikawa, Y. Kayanuma, R. J. D. Miller, T. Sasagawa, S. Koshihara, and K. G. Nakamura	4. 巻 145
2. 論文標題 Bandgap Modulation in Photoexcited Topological Insulator Bi ₂ Te ₃ via Atomic Displacements	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 J. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 024504(9pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4955188	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 K. G. Nakamura, K. Ohya, H. Takahashi, T. Tsuruta, S. Uozumi, K. Norimatsu, Y. Shikano, and Y. Kayanuma	4. 巻 94
2. 論文標題 Spectrally Resolved Detection of Transient Reflectivity Measurement for Coherent Optical Phonons in Diamond	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 024303 (7pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.94.024303	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Y. Kayanuma and K. G. Nakamura	4. 巻 95
2. 論文標題 Dynamic Jahn-Teller Viewpoint for Generation Mechanism of Asymmetric Modes of Coherent Phonons	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 104302 (9pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.95.104302	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. G. Nakamura, K. Yokota, Y. Okuda, R. Kase, T. Kitashima, Y. Mishima, Y. Shikano and Y. Kayanuma,	4. 巻 99
2. 論文標題 Ultrafast Quantum-path Interferometry Revealing the Generation Process of Coherent Phonons,	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 180301 (5pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.180301	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計21件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Y. Kayanuma and K. G. Nakamura
2. 発表標題 Ultrafast Quantum-Path Interferometry by Phase-Locked Dual-Pulse Pumping in n-GaAs
3. 学会等名 The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (EXCON2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Kayanuma
2. 発表標題 Dual-Pulse Quantum Path Interference Reveals the Generation Dynamics of Coherent Phonons
3. 学会等名 The 9th Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Laser Science (STAR9) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Kayanuma
2. 発表標題 Spin-Twisted Ring Current Driven by Berry Phase
3. 学会等名 The 37th JSST Annual International Conference on Simulation Technology (JSST2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Kayanuma and K. G. Nakamura
2. 発表標題 Quantum Path Interference by Dual-Pulse Pumping reveals the Generation Dynamics of Phonons in Solids
3. 学会等名 International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Kayanuma
2. 発表標題 Intense-Field Stabilization in the Quantum Elevator Model
3. 学会等名 International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 萱沼洋輔
2. 発表標題 SU(2), q-変形SU(2) 模型による外場中Bloch電子のシミュレーション
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 萱沼洋輔
2. 発表標題 強いパルスレーザー場によって駆動される電子応答の計算手法とその応用
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 相川和磨, 野場賢一, 萱沼洋輔
2. 発表標題 量子エレベータモデルにおける干渉効果と電子の局在性
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Kayanuma and K. G. Nakamura
2. 発表標題 Attosecond Coherent Control of Electron-Phonon Coupled System with Optical Dual Pumping
3. 学会等名 8th Shanghai Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Y. Kayanuma and K. G. Nakamura
2. 発表標題 Sub-Femtosecond Coherent Control of Electron-Phonon Coupled State in GaAs by Phase-Locked Dual Pulse
3. 学会等名 CLEO-PR2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 萱沼洋輔、奥田悠貴、加瀬麟太郎、中村一隆
2. 発表標題 アト秒制御2連パルスによるコヒーレントフォノン生成における量子遷移経路干渉
3. 学会等名 2017年秋の物理学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 萱沼洋輔、山根秀勝、田中智
2. 発表標題 動的局在と量子ゼノン効果：二つの局在
3. 学会等名 2017年秋の物理学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 萱沼洋輔
2. 発表標題 アト秒制御2連パルスを用いた複合量子系のコヒーレント制御
3. 学会等名 第4回複合量子系の結合・干渉ダイナミクス研究会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 萱沼洋輔
2. 発表標題 固体における硬X線光電子分光と電子の局在
3. 学会等名 第12回次世代先端光科学研究会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 北島誉士、萱沼洋輔、奥田悠貴、加瀬麟太郎、三島遊、鹿野豊、南不二雄、
2. 発表標題 GaAs単結晶における電子フォノン結合系のフェムト秒時間領域干渉計測
3. 学会等名 第28回光物性研究会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 萱沼洋輔
2. 発表標題 動的過程における量子経路干渉
3. 学会等名 弱値・弱測定、エンタングルメント、量子コヒーレンスの新地平
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 位相ロック 2 連パルス励起で見たコヒーレントフォノン生成の新しい描像
3. 学会等名 2018年春の物理学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鹿野豊、佐々木寛弥、田中利歩、岡野泰彬、南不二雄、萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 コヒーレントフォノンのコヒーレント制御に関する理論
3. 学会等名 2018年春の応用物理学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Kayanuma and K. G. Nakamura
2. 発表標題 Ultrafast write-and-read process of quantum coherence for electron-phonon coupled system in solids
3. 学会等名 15th International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 後藤賢一、萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 バンドモデルにもとづく電子フォノン結合系のコヒーレント制御理論
3. 学会等名 日本物理学会 2016 年秋季大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 動的ヤーンテラ-描像による非対称モードコヒーレントフォノンの生成機構
3. 学会等名 日本物理学会第72回年次大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----