

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02797

研究課題名(和文) 干渉型過渡反射率測定による電子・フォノン結合量子系のコヒーレント制御

研究課題名(英文) Coherent control of electron-phonon coupled quantum system using 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) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：アト秒精度で位相制御したパルス対を用いた干渉型過渡反射率計測によりGaAs単結晶における、電子フォノン結合系における量子コヒーレンスの計測と制御を行った。90Kにおいてn-GaAs(100)中に電子コヒーレンスが50フェムト秒以上保持されることを明らかにした。観測された電子コヒーレンスの消失と復活の振る舞いは、構築した量子理論モデル計算による計算結果との比較から瞬時的誘導ラマン過程における量子経路干渉であることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子コヒーレンスは固体では直ぐに消失することは知られているが、その保持時間の定量的な評価が困難であった。本研究により、アト秒精度で位相制御したパルス対を用いた干渉型過渡反射率計測をバルク固体中で量子コヒーレンスの保持時間の定量的な評価を可能となったことは、量子物理学において学術的な意義が大きいとともに、固体をベースとした量子デバイス開発にも有用な情報を与えるものである。

研究成果の概要(英文)：Quantum coherence in an electron-phonon coupled system of a GaAs single crystal is measured and controlled using interferometric transient reflectivity measurement with relative phase-locked optical pulses. The pulse is controlled with attosecond precision. We observe that the electronic coherence is preserved more than 50 femtoseconds in n-GaAs(100) at 90 K. The observed collapse and revival feature in the electronic coherence is found to be due to a quantum-path interference in the impulsive stimulated Raman scattering process by the comparison the experimental results and quantum model calculation.

研究分野：量子光物性

キーワード：コヒーレント制御 量子コヒーレンス コヒーレントフォノン 位相制御パルス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

物質に光パルス照射すると、光の持つコヒーレンスが物質中の量子状態の位相(量子コヒーレンス)として記憶される。孤立した原子・分子では、この量子コヒーレンスは長時間維持される。しかし、固体系では多体原子系の電子・フォノンなど多様な相互作用により、非常に短い時間で消失する。バルク固体中における量子コヒーレンスの保持およびその消失過程(デコヒーレンス)を検出することは、物質中で量子状態がそのように古典的な状態に変化していくかを解明することにもつながるものであり、物質科学だけでなく量子情報技術および量子力学基礎においても重要な研究課題である。

これまで固体中の量子コヒーレンスの検出にはフェムト秒光パルスが用いられ、四光波混合法を用いた電子状態のコヒーレンス計測や過渡反射率測定を用いたフォノン量子状態のコヒーレンス計測が行われてきた。しかしながら、電子とフォノンのコヒーレンス保持時間のスケールが大きく異なるために、それらの同時計測および電子とフォノンの結合系での計測を行うことはできなかった。これまで申請者は、フェムト秒光パルスを用いた過渡反射率計測により、半導体や半金属におけるコヒーレントなフォノン振動の実時間計測および光パルス列を用いたフォノンのコヒーレント制御の研究を行ってきた。こうした研究の中で、光パルスの位相を含めてアト秒の時間精度で制御した光パルス列照射を用いた過渡反射率計測(干渉型反射率計測)を用いればフォノンだけでなく、「電子とフォノンの結合したハイブリッド量子系の量子コヒーレンスを計測し、光制御できる」ことを思いついた。

この発想に基づき、挑戦的萌芽研究(H27-28)「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計測」を行い、基本装置を開発すると共に、室温および85Kでの半導体GaAs固体における電子・フォノン結合系での量子コヒーレンスを検出できることを実証した。また、フェムト秒パルス励起によるコヒーレントなフォノン発生に関する量子モデルを作成し、不透明領域では光吸収過程とラマン過程が共存することを明らかにした。

本研究では、これらの実験・理論研究をそれぞれ発展させ、20K-300Kの温度範囲で電子・フォノンハイブリッド量子系での量子コヒーレンスの計測と制御を行う。

2. 研究の目的

アト秒の時間精度で位相制御した光パルス列を用いた過渡反射率計測(干渉型過渡反射率計測)により、電子とフォノンの結合したハイブリッド量子系のコヒーレンスの計測と制御の研究を行う。物質内の量子干渉と光の干渉とを詳細に判別できるように、励起パルス列のスペクトル干渉、線型光学干渉および二次非線形光学干渉を反射率計測と同時に計測する。試料には、現有しているフェムト秒レーザーの発振波長(中心波長800nm = 1.55 eV)とバンドギャップのエネルギーが近いことからGaAs単結晶(バンドギャップ=1.42 eV)を用いる。低振動型の冷凍機クライオスタットを導入して、20-300Kの温度範囲で低音域から室温領域において量子コヒーレンス保持時間を計測し、デコヒーレンスの温度依存性を調べる。理論研究では、現在の2準位モデルをより現実的なバンドモデルに拡張する。さらに、電子・フォノン結合系とフェムト秒パルスの照射されていない環境系との相互作用を確率過程として導入し、密度行列形式の時間発展を計算し、実験結果を解析する。これらの、理論・実験との比較から、「量子コヒーレンスがどのくらいの時間保持されるのか」、また「どうやって量子コヒーレンスが消失するのか」を解明することを目的とした。

3. 研究の方法

光パルスの位相を含めてアト秒の時間精度で制御したフェムト秒パルス列を用いた過渡反射率計測(干渉型過渡反射率計測)を改良して用いることで、バルク固体中の電子・フォノン結合系における量子コヒーレンスを計測する。GaAsを主要試料として、温度可変型無冷媒低振動型冷凍機を導入し20-300Kの温度範囲で量子コヒーレンスを計測する。また、フェムト秒パルス列による電子・フォノン結合系のコヒーレント制御を行う。電子・フォノン結合系の量子モデルを構築し、密度行列の時間発展を計算することで計測結果の理論モデルを構築し、実験結果との比較を行う。

4. 研究成果

(1) 単結晶GaAs中の量子コヒーレンス計測と制御実験

干渉型過渡反射率計測装置の改良:

アト秒精度で相対位相を制御したフェムト秒パルス対(パルス1とパルス2)を用いた過渡反射率計測装置(干渉型過渡反射率計測装置)を用いて、単結晶GaAs(100)の電子・フォノン系でのコヒーレンス計測と制御を行った。二次の非線形光学干渉である周波数分解自己相関計測系を実験システムに組み込み、マイケルソン型干渉計から出射した相対位相制御パルス対の位相安定性、チャープ効果やパルス時間幅を反射率計測と同時に測定できるようになった。中心波長800nmの光パルスを用いた際に、パルス対の相対位相安定性は0.049と見積もられた。独自に開発したマイケルソン型干渉系において、パルス1とパルス2を制御する二つのアームには、それぞれ波長板と偏光子のペアを組み込むことで、各パルスの偏光角度を独立に制御できるよう

になった。使用したパルス光はチタンサファイアレーザーから発振する近赤外光パルス(中心波長約 800nm、パルス幅約 50fs)である。励起パルス(パルス 1 と 2)の間隔(t_{12})は 0.3fs ステップで変化させて測定を行った。過渡反射率測定では、3 番目のパルス(パルス 3)を検出光として用いるポンプ・プローブ時間分解法を用いた。ポンプ光とプローブ光のパルス間隔(t_{13})はスキャンディレイ装置で制御した。試料から反射したパルス 3 の計測には、約 10nm 幅を持つ光バンドパルフィルタを用いることで、波長選別した計測もできるようになった。フォノン・キャリア相互作用の影響を調べるために、ドーパントの異なる試料(n-型 GaAs、p-型 GaAs、ノンドーブ GaAs)を用いた計測も行った。温度可変型無冷媒低振動型冷凍機を用いることで、極低温で長時間(48 時間以上)の連続計測を実現した。これらの装置改良により、光パルス条件をモニターしながら、長時間測定を行うことができるようになり、測定データの再現性の確認が可能になった。

n-GaAs(100)での量子コヒーレンス計測と制御

シリコンドーブ($9.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)の n-GaAs(100)を試料として、平行偏光パルス対を用いた干渉型過渡反射率計測を行った。試料温度は、20K-室温の温度範囲内でいくつか設定したが、90K において最も安定した繰り返し実験を行うことができた。 t_{12} を固定して t_{13} を -1 から 8ps の範囲でスキャンすると、過渡率強度変化に周期的な振動が観測され、フーリエ変換から振動数 8.7THz を持つ GaAs の縦モード光学フォノン(L0 フォノン)と振動数 7.7THz を持つ L0 フォノンとプラズモンの結合した振動(LOPC モード)がコヒーレントに励起されることがわかる。 t_{12} を 0.3fs ステップで 300fs まで変化させ、各パルス間隔 t_{12} において、パルス 2 照射以後にコヒーレントに励起された L0 フォノンの強度と、LOPC の強度を求めた。L0 フォノ強度と LOPC 強度の t_{12} に対する依存性を図 1 に示す。

位相制御パルス対の時間間隔によって、L0 フォノ強度および LOPC 強度の両方がコヒーレントに制御されていることが分かる。これは、パルス 1 によって励起された電子フォノン結合系の量子状態と、パルス 2 によって励起された量子状態が、パルス間隔に応じて、建設的あるいは破壊的に干渉しているためと考えられる。干渉縞には、約 120fs 周期のもの、約 2.7fs 周期のもの 2 種類があり、前者は L0 フォノン(あるいは LOPC)の干渉であり、後者は電子状態の干渉によるものである。従って、約 2.7fs 周期の振動が観測されている間(約 130fs)は、電子コヒーレンスとフォノンコヒーレンスの両方バルク GaAs 固体中で保持されていることを意味している。また、振幅強度に違いはあるものの、電子コヒーレンスの振る舞いの傾向は L0 フォノンおよび LOPC のどちらの場合でも大きな違いは無かった。

過渡反射率計測と同時計測したパルス 1、2 の光学干渉と比べると、L0 フォノンの電子コヒーレンスによる干渉縞は、光パルス自体の干渉の保持時間よりも 50fs 以上長くなっており、バルク GaAs 固体が 90K において電子コヒーレンスを 50fs 以上保持していることが分かる。周波数分解自己相関測定を同時に行い、チャープ効果によってパルスの延長が起こっていないことを確認している。本実験結果は、再現性の確認実験において、使用するレーザーパルス幅を 40fs-60fs 程度の間で変化しても、この傾向があることを観測している。

観測された電子コヒーレンスの干渉縞は、50fs 近傍でいったん振幅がゼロになり、その後 75fs 近傍まで大きくなるという、コヒーレンスの消失と復活が見られた。これは、量子モデル計算との比較から、コヒーレントフォノン生成過程における量子経路干渉によるものであることが分かった。特に観測された時間変化形状は ISRS 過程に起因するものであることが分かった。

パルス 1 とパルス 2 の偏光を直交にした干渉型過渡反射率計測も行った。このとき、プローブ

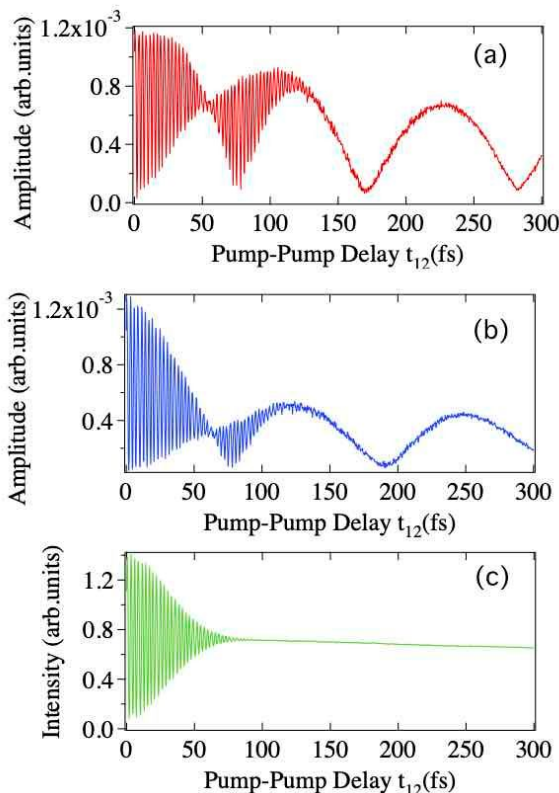


図 1 (a) L0 フォノン強度のポンプパルス間隔依存性、(b) LOPC 強度のポンプパルス間隔依存性、(c) 位相制御ポンプパルス対の光学干渉 (Fig.3 of the paper of K. G. Nakamura et al., Phys. Rev. B99, 180301(R)(2019).)

光の偏光はパルス 1 とパルス 2 の偏光の真ん中に来るように設定した。この実験では L0 フォノンおよび LOPC の強度におけるフォノン干渉による干渉縞は、平行偏光条件と同様に観測されたが、電子干渉については観測されなかった。

p-GaAs(100)および試料とした実験では、L0 フォノンの生成強度が小さく、LOPC は L0 フォノン強度に比べてさらに小さかった。L0 フォノン強度に見られる、電子コヒーレンスの振る舞いについては、n-GaAs(100)の場合に比べて顕著な違いは観測されなかった。

(2) 電子フォノン結合系でのコヒーレント制御理論

電子状態を 2 バンドとするモデルを考え、系のハミルトニアンを

$$H = \{\varepsilon_g + \hbar\omega b^\dagger b\}|g\rangle\langle g| + \sum_k \{\varepsilon_k + \hbar\omega b^\dagger b + \alpha(b + b^\dagger)\}|k\rangle\langle k| \quad (1)$$

とした。ここで、 $|g\rangle$ はエネルギー ε_g を持つ電子基底状態、 $|e\rangle$ はエネルギー ε_k を持つ電子励起状態であり、 ω はフォノンの角振動数、 b^\dagger と b はフォノンの生成消滅演算子である。また、 α は電子フォノン相互作用を表す定数で、波数 k に依存しないものとした。光パルスとの相互作用は双極子相互作用を考え、2 パルス励起でのコヒーレントフォノン生成過程を密度演算子形式の運動方程式を解いて計算した。この際に、各光パルスにはガウスパルスを仮定し、2 次の摂動計算を行った。フォノン生成プロセスでは、フォノン生成の終状態が電子励起状態である瞬間的吸収過程 (Impulsive Absorption: IA) 過程と電子基底状態でフォノンが生成する瞬間的誘導ラマン散乱 (Impulsive Stimulated Raman Scattering: ISRS) 過程に分けて計算した。また、各過程では、フォノン生成がパルス 1 あるいはパルス 2 のどちらか一方との相互作用で起こる量子経路とパルス 1 とパルス 2 の両方との相互作用で起こる量子経路が混在する。後者は、例えばパルス 1 との相互作用で電子分極励起とパルス 2 との相互作用での電子分極の脱励起のような経路である。また、これらの過程を二重ファインマンダイアグラム (double sided Feynman diagram) によって表現した。位相制御パルス対で制御したコヒーレントフォノン振幅 (A_i ; $i=IA, i=ISRS$) は

$$A_i(t_{12}) = L_i(0) + e^{i\omega t_{12}} L_i(0) + e^{-i[\Omega_0 - (\frac{\omega}{2})]t_{12}} L_i(t_{12}) + e^{i[\Omega_0 - (\frac{\omega}{2})]t_{12}} L_i(-t_{12}) \quad (2)$$

$$L_{ISRS}(x) = 2i \int_0^\infty du g(u-x) \sin \frac{\omega u}{2} e^{i\Omega_0 u} F(u) \quad (3)$$

$$L_{IA}(x) = \int_{-\infty}^\infty du g(u-x) e^{i[\Omega_0 - (\omega/2)]u} F(u) \quad (4)$$

である。ここで、 $g(u) = e^{-u^2/(2\sigma)^2}$ であり $x = 0, t_{12}, -t_{12}$ である。反射率変化はフォノン振幅の絶対値に比例する。ここで $F(t)$ は電子の応答関数であり、バンド形状に関連し、実際の吸収スペクトル形状から算出できるものであるが、ここではローレンツ形状を仮定して計算した。IA 過程と ISRS 過程の式はよく似ているが、IA 過程では積分範囲が $-\infty$ から ∞ であるのに対して ISRS 過程では積分範囲が 0 から ∞ となっている。これは ISRS 過程では電子励起と脱励起過程の順序を入れ替えることができないためである。n-GaAs の実験のパルス幅やバンドギャップ条件などを考慮して計算した結果を図 2 に示す。

IA 過程および ISRS 過程のどちらにおいても、約 2.7 fs の電子コヒーレンスによる干渉縞と約 120 fs のフォノンコヒーレンスによる干渉縞が得られた。また、実験結果から得られた、電子コヒーレンスの消失と復活の振る舞いは、ISRS 過程だけで起こることが分かった。電子状態の緩和を考慮しない、コヒーレント生成の量子論モデル計算 (K. G. Nakamura et al., Phys. Rev. B92, 144304(2015)) では、IA 過程と ISRA 過程は共存し、不透明領域では IA 過程が支配的であることが示唆されているにもかかわらず、実際の GaAs のコヒーレントフォノン計測では ISRS 過程によるフォノンのみが

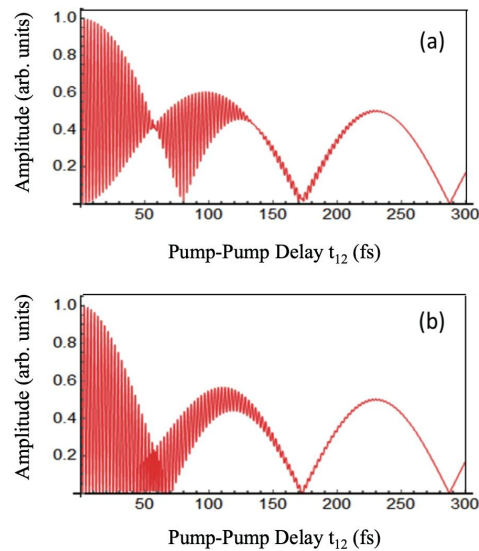


図 2 L0 フォノン振動振幅の理論計算結果: (a) ISRS 過程、(b) IA 過程 (Fig.5 of the paper of K. G. Nakamura et al., Phys. Rev. B99, 180301(R)(2019).)

優先的に観測されていることが分かった。

我々のモデルでは位相緩和過程を組み込んではいないが、励起パルスのバンド幅からくる不均一幅広がり効果による電子コヒーレンスの消失が主要効果となっていることが分かった。そのため、研究計画時に予定していた確率過程を組み込んだモデルを用いなくても実験結果を良く説明することができた。

通常、過渡反射率計測における GaAs のコヒーレントフォノン生成過程では、表面近傍の空乏層での空間チャージの変化によるフォノン駆動が議論されている。この研究では、励起状態におけるポテンシャル変位に加えた、空間チャージによるポテンシャル変形を線形の形で組み込んだ有効ポテンシャルの変化を電子フォノン相互作用として取り込むことができている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

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 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 180301(1-5)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB99.18301	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 Hu Jianbo, Zhang Hang, Sun Yi, Misochko Oleg V., Nakamura Kazutaka G.	4. 巻 97
2. 論文標題 Temperature effect on the coupling between coherent longitudinal phonons and plasmons in n-type and p-type GaAs	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 165307(1-5)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.97.165307	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

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 6件/うち国際学会 8件）

1. 発表者名 K. G. Nakamura
2. 発表標題 Coherent control of electron-phonon coupled states in GaAs using relative phase-locked femtosecond pulses
3. 学会等名 International Conference of Mater and Radiation in Extreme（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 古庄裕也、笹瀬悠斗、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 GaAs/AlGaAs量子井戸中の励起子コヒーレント過渡過程
3. 学会等名 第30回光物性研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 萱沼洋輔、北島誉士、松本啓、中村一隆
2. 発表標題 量子経路干渉分光法による誘導ラマン散乱強度の飽和効果
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 丸橋司、萱沼洋輔、松本啓、木全哲也、鹿野豊、山本春也、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 イオン照射GaAs単結晶における電子フォノン結合系の量子コヒーレンス計測
3. 学会等名 第30回光物性研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三島遊、北島誉士、萱沼洋輔、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 超格子GaAs/AlAsにおける電子フォノン結合系の量子コヒーレンス計測
3. 学会等名 第66回応用物理学春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松本啓、北島誉士、三島遊、萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 GaAs結晶での過渡反射率計測における光応答のプロープ偏光角度依存性
3. 学会等名 第79回応用物理学学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 北島誉士、三島遊、松本啓、菅沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 交差偏光パルス対を用いたGaAs単結晶フォノンのコヒーレント制御
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 笹瀬悠斗、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 GaAs中の光学フォノンの二次元コヒーレント分光
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Kayanuma and K.G. Nakamura
2. 発表標題 Dual-pulse quantum path interference reveals the generation dynamics of coherent phonons in GaAs
3. 学会等名 The 9th Shanghai Tokyo Advanced Research on Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中村一隆
2. 発表標題 超短パルスレーザーを用いた原子運動の実時間計測
3. 学会等名 光・量子ビーム科学合同シンポジウム2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Nakamura
2. 発表標題 Coherent control of optical phonons using femtosecond pulses
3. 学会等名 Conference on Laser and Synchrotron Radiation Combination Experiment LSC 2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018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 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. G. Nakamura, R. Kase, Y. Okuda, T. Kitashima, Y. Mishima, F. Minami, Y. Kayanma, and Y. Shikano
2. 発表標題 Coherent control of electron-phonon coupled states in a GaAs crystal using phase-locked femtosecond pulses
3. 学会等名 QNO 2108 International Conference on Quantum & Nonlinear Optics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018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 アト秒例御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 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1 . 発表者名 K. G. Nakamura, R. Kase, Y. Okuda, F. Minami, Y. Shikano, and Y. Kayanuma
2 . 発表標題 Time-domain interference of electron-phonon coupled states in n-type GaAs using relative phase locked femtosecond pulses
3 . 学会等名 10th International Symposium of Science and Technology for Advanced Ceramics (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 Y. Kayanuma, K. Yokota, 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 2017 CLEO Pacific Rim Conference (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 Attosecond coherent control of electron-phonon coupled systems with dual optical pumping
3 . 学会等名 The 8th Shanghai Tokyo Advanced Research on Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 Yutaka Shikano
2 . 発表標題 Quantum Phase through Quantum Tunneling
3 . 学会等名 3rd International Conference on Quantum Foundations (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Kazutaka Nakamura	4. 発行年 2019年
2. 出版社 Springer-Nature Switzerland AG	5. 総ページ数 142
3. 書名 Quantum Phononics: Introduction to Ultrafast Dynamics of Optical Phonons	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>超短パルス光を用い固体中の量子経路干渉を観測 https://www.titech.ac.jp/news/2019/044341.html</p>
--

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
研究分担者	鹿野 豊 (Shikano Yutaka) (80634691)	慶應義塾大学・理工学研究科(矢上)・特任准教授 (32612)	
研究協力者	萱沼 洋輔 (Kayanuma Yosuke)	東京工業大学	
研究協力者	南 不二雄 (Minami Fujio)	東京工業大学	