

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 7 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K22141

研究課題名（和文）超高速量子経路干渉計の開発による光励起経路の選別

研究課題名（英文）Ultrafast quantum path interferometry for optical excitation path selection

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） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：相対位相および偏光を制御したフェムト秒パルス対を用いて、物質中の光励起過程での複数の量子力学的な遷移経路の干渉の様子を計測する超高速量子経路干渉測定法を開発した。GaAs単結晶を用いた平行偏光パルス対照射では電子干渉とフォノン干渉が観測されるのに対して、直交偏光パルス対照射ではフォノン干渉だけが観測された。電子フォノン相互作用の偏光依存性を考慮した量子経路干渉の理論モデルを構築し、誘導ラマン過程での量子経路干渉で実験結果をよく再現することができた。GaAs/AlGaAs量子井戸におけるエキシトン量子ビートでは光吸収過程の経路干渉に対応する干渉パターンを得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した超高速量子経路干渉計法により、光励起過程の終状態の解析だけでは知ることのできない凝縮系物質内の光遷移過程での量子経路を、干渉縞のパターンから選別することができた。量子経路干渉の様子の計測は、現象を量子力学的な立場から理解する上で必要不可欠である。これにより、支配的な経路の同定やどの経路の干渉が量子力学特有の現象を引き起こしているのかの情報を与えるものである。この方法は、量子経路まで含めた新しい物質科学への応用が期待される技術である。

研究成果の概要（英文）：We developed an ultrafast quantum path interferometry to measure the interference of multiple quantum mechanical paths during optical excitation in materials using femtosecond pulses with controlled relative phase and polarization. While both electronic and phonon interferences were observed in parallel polarization pulse pair irradiation on GaAs, only phonon interferences were observed in orthogonal polarization pulse pair irradiation. We developed a theoretical model of quantum path interference with the polarization dependence of electron-phonon interactions and reproduced the experimental results in quantum path interference in the induced Raman process. In exciton quantum beats in GaAs/AlGaAs quantum wells, interference patterns corresponding to path interference in the optical absorption process were obtained.

研究分野：量子光物性物理

キーワード：量子経路干渉 フェムト秒 量子コヒーレンス コヒーレントフォノン

1. 研究開始当初の背景

量子経路の干渉は、光や電子の2重スリット実験にもみられるように、量子力学における本質的な現象である。しかしながら、多数の量子経路が可能な場合に、どの経路が支配的な経路であるのか、またどの経路の干渉が量子力学特有の現象を引き起こしているのかを、終状態を解析するだけでは知ることができない。支配的経路の同定や干渉の様子を計測することは、現象を量子力学的な立場から理解する上で必要不可欠である。こうした量子経路干渉は、アト秒パルス発生のための高次高調波発生過程や化学反応素過程など原子分子系で観測され、その重要性が指摘されているが、凝縮系物質内での量子経路干渉についての研究は行われていなかった。

これまでに我々は、ポンププローブ型の過渡反射率計測法によりコヒーレントに励起された光学フォノン振動の研究を行ってきた。とくに、2つのポンプパルスを用いることでフォノン波束の干渉の様子を明らかにしている。科学研究費補助金(B)「干渉型過渡反射率測定による電子・フォノン結合系のコヒーレント制御(2017-2019年度)」として電子・フォノン結合系の量子波束制御の研究を行った。この研究の中で、コヒーレントフォノン強度には途中の遷移過程に隠れている量子経路自体の干渉が起こっていることに思い至った。

2. 研究の目的

本研究の目的は、「フェムト秒パルス対を用いて、物質の光励起過程に存在する複数の量子力学的な遷移経路の干渉の様子を計測する、超高速量子経路干渉計を開発し、その実用性を実証する」ことである。超高速量子経路干渉計の開発には、測定のための実験系構築に加えて、理論モデル構築も含む。

3. 研究の方法

相対位相を制御したフェムト秒パルス対を用いたポンププローブ型の過渡反射光強度変化の計測を行う。特に、ポンプパルス間の光位相はアト秒の時間精度で精緻に制御し、その位相情報は一次光学干渉および周波数分解自己相関計測により常時計測し、量子経路干渉との比較の参照データとする。位相制御パルス対を発生させる干渉計内の分岐した各経路には波長板と偏光子のペアを設置し、パルスの偏光角度と強度を独立に制御できるようにする。光学系から空気の流れを極力排除し、長時間の安定性を確保する。試料は振動を抑える改良を行なった、極低温冷凍機で 10K まで冷却できるようにした。これによりコヒーレントフォノンの温度依存性や低温で安定化するエキシトンの計測を行う。

4. 研究成果

1) 偏光を含めて相対位相制御したパルス列による量子経路干渉計測

n 型 GaAs(001)単結晶をサンプルとして、相対位相制御励起パルス対を用いたポンププローブ型の過渡反射率計測により、量子経路干渉の測定を行なった。励起パルス対の相対偏光角度を、平行偏光、直交偏光の場合について調べた。試料は極低温冷凍機を用いて 90 K に冷やした。約 50fs パルス幅のフェムト秒パルス励起により、縦波光学(Longitudinal Optical: LO)フォノン振動が観測される。平行偏光パルス対照射測定では、約 116 fs 間隔のフォノン干渉による干渉縞に重畳して約 2.7 fs 間隔の電子干渉による干渉縞が得られる。一方、直交偏光パルス照射測定では、励起光パルスの偏光を GaAs 結晶軸の $[-1 -1 0]$ 方向と $[-1 1 0]$ 方向に設定して実験を行なった。この条件では、電子干渉による干渉縞のないフォノン干渉だけの干渉縞パターンが観測された。(この結果は、Solid State Commun. 327(2021) 114215 に掲載)

実験で得られた量子経路干渉パターンに関する、励起パルス偏光依存性を説明できるように、理論モデルの改良を行なった。これまでの偏光を考慮しないモデルでは、電子基底状態と電子励起バンドの電子 2 状態を用いていた。ここでは、電子励起状態が方向依存性を持つように、x 方向と y 方向に方向依存性を持つ縮退した 2 準位($|e_{>x}\rangle$, $|e_{>y}\rangle$)を考

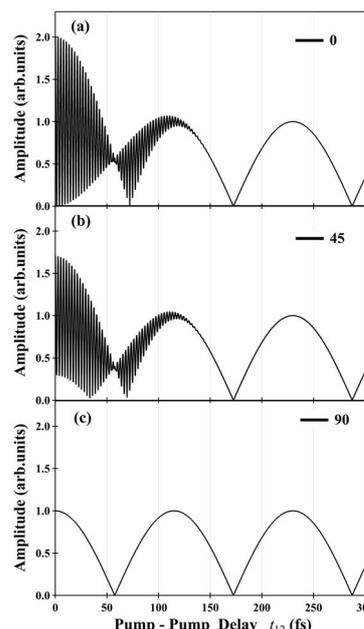


図 1 光偏光を考慮したコヒーレントフォノン強度の励起パルス遅延時間依存性の理論計算：(a) 平行偏光，(b) 45 度偏光，(c) 直交偏光

え

た。電子フォノン相互作用には、ラマンテンソルを考慮して、対角成分および非対角成分の効果を区別して取り扱えるようにした。電子励起状態においてフォノン生成消滅過程が起こるものとした。このとき、ラマンテンソルの非対角項による相互作用では、フォノン生成消滅の際に電子状態の偏光方向が変化する。フォノンには調和振動子モデルを用いた。光と電子の相互作用には双極子相互作用と回転波近似を用い、光電場の偏光と電子状態の偏光を取り込んだ。このモデルハミルトニアンを用いて量子リウビル方程式を光電場との相互作用に対する二次摂動を用いて計算した。平行偏光パルス対照射および直交偏光パルス対照射の場合のL0フォノン生成のパルス遅延時間依存性は、誘導ラマン散乱過程に關与する量子経路の干渉を用いて計算することで再現された(図1)。構築した理論モデルでは、任意の偏光角度での計算ができるようになったので、励起パルス対の相対偏光角度が45度の場合における量子経路干渉の計算を行なった。この場合には、電子フォノン相互作用の対角および非対角要素の両方の成分の寄与が大きく関わっていることが示された。特に、電子コヒーレンスの干渉縞に平行偏光の場合には見られなかったスプリットングが起こることが理論的に示された(図1)。(この結果は、Physical Review B 104 (2021) 134301 に掲載)

2) ダイヤモンド中のコヒーレントフォノンでの量子経路干渉

コヒーレントフォノン生成において、光吸収過程がほぼ無視でき、ラマン散乱過程が支配的な系として、800 nm 中心の近赤外領域でのフェムト秒パルス(パルス幅 10 fs 以下)でのダイヤモンド励起を行なった。この光のエネルギーは 1.55 eV 近傍であり、ダイヤモンドのバンドギャップエネルギーの半分にも満たなく、光吸収は無視できる。平行偏光での相対位相制御ダブルパルスを用いた量子経路干渉の実験では、25 fs 周期の光学フォノンの干渉縞が観測された。励起パルス対の遅延時間がゼロ付近では、約 2.7 fs 周期の干渉パターンが観測されるが、これは励起パルス対自身の光干渉によるものであることが分かった。(この結果は、Physical Review B 101 (2020) 174301 に掲載)

3) GaAs/AlGaAs 多重量子井戸におけるエキシトン量子ビートの量子経路干渉

構築した理論で予測される光吸収過程での量子経路干渉パターンが実際に観測されるのかを調べるために、GaAs/AlGaAs 多重量子井戸を試料とした実験を行なった。GaAs/AlGaAs 多重量子井戸は一点においても軽い正孔(LH)と重い正孔(HH)の準位が分裂する。極低温では、バンドギャップ近傍の光吸収により生成した電子は正孔と結合し、二種類のエキシトン(LH エキシトンと HH エキシトン)を生成する。800nm 中心のスペクトルを持つフェムト秒パルス光照射により、基底状態(|G>)から LH エキシトン状態(|L>)と HH エキシトン(|H>)状態の両方の状態に光励起することができる。この状態で過渡反射率計測を行うと、|H>と|L>の間隔に相当する振動数でのコヒーレントな振動が観測され、量子ビートと呼ばれている。こうした過程は、|G>, |H>, |L>の3準位系として取り扱うことができ、GaAs のコヒーレントフォノン生成で用いた4準位モデルの中の電子基底状態と、電子励起状態でのゼロフォノンと1フォノン状態の3準位間の遷移とよく似た取扱ができる。特に、エキシトン量子ビート生成経路は、コヒーレントフォノン生成の光吸収経路に対応するものになる。そのため、エキシトン量子ビートを用いて、光吸収過程に対応する量子経路干渉パターンの確認ができる。

10K に冷却したサンプルに対して、シングルパルス励起で過渡反射率計測を行うと、|H>-|L>間のエネルギー間隔に対応する 3.3 THz のコヒーレント信号(量子ビートシグナル)が観測された。その減衰の寿命は約 300 fs であった。相対位相制御パルス対励起すると、励起パルス時間遅延に応じて量子ビートシグナル強度が変化する。この強度変調パターンには、量子ビート振動の破壊的干渉のタイミングでの強度の浮き上がりが見られず、2倍の振動数で振動するパターンが得られた。これは、3準位系を用いて光吸収経路に支配されたとして計算される量子経路干渉パターンに対応するものであった。

4) SnSe サンプルでの量子経路干渉

位相制御パルス対を用いた量子経路干渉法の応用として、SnSe 単結晶の格子振動のコヒーレント制御を行なった。SnSe は熱電材料として応用されている物質である。シングルパルス励起の過渡反射率計測では Ag(0)モード(29.7 cm⁻¹)と Ag(1)モード(67.5 cm⁻¹)の振動が観測される。Ag(1)モードは光励起後に振動数の高振動側へのシフトが観測され、Cmcm 構造から Pnma 構造に 3 ps 以内に対称性のスイッチングが起こることが分かった。(この結果は、Journal of Physical Chemistry Letters 13 (2022) 422 に掲載)

ダブルパルス励起では、二つの振動モードの強度比を選択的に制御することができた。また、励起光パルスの重なった時間領域では、光干渉が建設的干渉の時にはフォノン強度が小さく、光干渉が破壊的干渉の時にはフォノン強度が大きくなることが分かった。(この結果は、Journal of Physical Chemistry Letters 13 (2022) 2584 に掲載)

5) コヒーレントフォノン生成に関する摂動法を超えた理論計算

GaAs 試料のコヒーレント光学フォノン生成の理論計算において、量子リウビル方程式を解く際に、摂動法を用いない方法を試みた。状態ベクトルを4準位(電子2準位、フォノン2準位)

を基底状態として展開し、その展開係数に関する連立微分方程式をたて、数値的に解いた。シングルパルス励起におけるコヒーレントフォノン生成の計算に応用し、励起パルス強度の小さい場合には、これまでの二次摂動計算と同じ結果が得られることを確かめた。この方法では、生成するコヒーレントフォノンの励起パルス強度依存性の計算が可能となり、強励起条件では生成するフォノン強度が光強度に比例する直線的变化からずれて飽和傾向を示した。実験では n 型 GaAs(001) のシングルパルス励起での過渡反射率測定で、コヒーレントフォノン生成に対する光パワー依存性を測定し、40 mW 程度の光照射で直線性からのずれを確認した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Matsumoto Hiromu, Kitashima Takashi, Maruhashi Tsukasa, Takagi Itsuki, Kayanuma Yosuke, Nakamura Kazutaka G.	4. 巻 327
2. 論文標題 Coherent control of optical phonons in GaAs by relative-phase-locked optical pulses under perpendicularly polarized conditions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Solid State Communications	6. 最初と最後の頁 114215-1(1-6)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ssc.2021.114215	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 Kimata Tetsuya, Yoda Kazuma, Matsumoto Hana, Tanabe Hiroyuki, Minami Fujio, Kayanuma Yosuke, Nakamura Kazutaka G.	4. 巻 101
2. 論文標題 Coherent control of 40-THz optical phonons in diamond using femtosecond optical pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174301-1(1-5)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.174301	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 Kimata Tetsuya, Yoda Kazuma, Matsumoto Hana, Tanabe Hiroyuki, Minami Fujio, Kayanuma Yosuke, Nakamura Kazutaka G.	4. 巻 102
2. 論文標題 Erratum: Coherent control of 40-THz optical phonons in diamond using femtosecond optical pulses [Phys. Rev. B 101, 174301 (2020)]	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 179903-1(1,2)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.102.179903	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 Itsuki Takagi, Yosuke Kayanuma, Kazutaka G. Nakamura	4. 巻 104
2. 論文標題 Theory for coherent control of longitudinal optical phonons in GaAs using polarized optical pulses with relative phase locking	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134201(1-10)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.134301	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 Han Yadong, Yu Junhong, Zhang Hang, Xu Fang, Peng Kunlin, Zhou Xiaoyuan, Qiao Liang, Misochko Oleg V., Nakamura Kazutaka G., Vanacore Giovanni M., Hu Jianbo	4. 巻 13
2. 論文標題 Photoinduced Ultrafast Symmetry Switch in SnSe	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 442 ~ 448
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.1c03704	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 Yu Junhong, Han Yadong, Zhang Hang, Misochko Oleg V., Nakamura Kazutaka G., Hu Jianbo	4. 巻 13
2. 論文標題 Attosecond-Resolved Coherent Control of Lattice Vibrations in Thermoelectric SnSe	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 2584 ~ 2590
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.2c00426	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15件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 高木一旗、丸橋司、須田匡紀、萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 GaAsにおけるLOフォノン のコヒーレンス制御に対する偏光依存性
3. 学会等名 第31回光物性研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 須田匡紀、丸橋司、高木一旗、木全哲也、中村一隆
2. 発表標題 50-keV炭素イオン照射GaAs単結晶におけるコヒーレントフォノン 計測
3. 学会等名 第31回光物性研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 八木涼子、古庄裕也、丸橋司、須田匡紀、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 GaAs量子多重井戸の励起子量子ビートのコヒーレント制御
3. 学会等名 第31回光物性研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 古庄裕也、八木涼子、丸橋司、須田匡紀、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 GaAs/AlGaAs多重量子井戸における励起子量子ビートのコヒーレント制御
3. 学会等名 第68回応用物理学春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. G. Nakamura and Y. Kayanuma
2. 発表標題 Ultrafast quantum-path interferometry using phase-locked femtosecond pulses
3. 学会等名 Conference on Laser and Synchrotron Radiation Combination Experiment 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松本啓、丸橋司、萱沼洋輔、胡建波、中村一隆
2. 発表標題 4H-SiC低周波数モードコヒーレントフォノンの計測と制御
3. 学会等名 第67回応用物理学春季学術講演会 (開催中止のため要旨のみ発表)
4. 発表年 2020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 高井僚太、須田匡紀、高木一旗、萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 GaAs単結晶中のコヒーレントフォノンに対する光強度依存性
3. 学会等名 第32回光物性研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大山将冨、八木涼子、古庄裕也、須田匡紀、高木一旗、高井僚太、南不二雄、萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 GaAs/Al _{0.3} Ga _{0.7} As多重量子井戸における量子ビートの励起強度依存性
3. 学会等名 第32回光物性研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤太一、高木一旗、須田匡紀、中村一隆
2. 発表標題 i-GaAsのコヒーレントLOフォノンダイナミクス
3. 学会等名 第32回光物性研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高木一旗、萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 相対位相と偏光を制御した光パルス対による電子 フォノン結合系のコヒーレント制御
3. 学会等名 第 8 2 回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. G. Nakamura, I. Takagi, M. Suda, and Y. Kayanuma
2. 発表標題 Measuring quantum coherence in a GaAs crystal
3. 学会等名 The 12th International Conference on Science and Technology for Advanced Ceramics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Furusyo, R. Yagi, M. Suda, I. Takagi, Y. Kayanuma, F. Minami, and K.G. Nakamura
2. 発表標題 Ultrafast quantum-path interferometry for quantum beats of excitons in GaAs multi quantum well
3. 学会等名 The 12th International Conference on Science and Technology for Advanced Ceramics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 I. Takagi, Y. Kayanuma, and K. G. Nakamura
2. 発表標題 Coherent control theory for optical phonons in a crystal using polarized femtosecond pulses with relative phase locking,
3. 学会等名 The 12th International Conference on Science and Technology for Advanced Ceramics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 古庄裕也、八木涼子、丸橋司、須田匡紀、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 GaAs/AlGaAs多重量子井戸における励起子量子ビートのコヒーレント制御
3. 学会等名 第68回応用物理学春季学術講演会
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------