

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
～半導体におけるポーラロニック準粒子生成モデルの検証～

研究成果のポイント

1. 半導体に高強度超短パルスレーザーを照射することで起こるコヒーレントフォノン^[注 1]現象をめぐる未解決の問題を理論的に解明することに成功しました。
2. コヒーレントフォノン生成の前駆過程として瞬時に発現し消失する特異なファノ共鳴^[注 2]現象は、過渡的に形成されるポーラロニック準粒子^[注 3]を介して発現するという実験的に提案されていたモデルを、理論的に定式化してその妥当性を検証することに成功しました。
3. ファノ共鳴特有の非対称なスペクトル形状が非極性半導体においてのみ観測され、極性半導体では観測されていないという実験結果を初めて再現し、その物理的起因を解明することに成功しました。
4. 今回構築した理論は、コヒーレントフォノン生成に内在する物理の更なる解明および他の光誘起超高速ダイナミックスの理解の進展に役立つことが期待されます。

国立大学法人筑波大学数理物質系の日野健一教授、長谷宗明教授、数理物質科学研究科大学院の渡辺陽平氏(D2)、計算科学研究センターの前島展也講師は、半導体に高強度超短パルスレーザーを照射直後に瞬時に発現・消失する特異なファノ共鳴現象を理論的に解明することに成功しました。

パルス照射により駆動される位相の揃った格子振動であるコヒーレントフォノンは約四半世紀に亘り重点的に研究されてきましたが、それが生成する前の 100 フェムト秒程度の時間領域における非平衡量子系の超高速ダイナミックスは、永らく未解決のままでした。

この過渡的ファノ共鳴は、パルスにより高密度励起されたキャリアと縦光学フォノンが強く結合して纏いつきあい、両モードの複合量子状態であるポーラロニック準粒子が一時的に形成された痕跡であるという仮説が、以前の実験において提唱されていました。本研究では、このモデルを理論的に定式化して、その妥当性を検証しました。さらに、ファノ共鳴特有の非対称なスペクトル形状が Si のような非極性半導体においてのみ観測され、GaAs のような極性半導体では観測されていないという実験結果を初めて再現し、その物理的起因を解明しました。

今回構築した理論が、コヒーレントフォノン生成に内在する物理の更なる解明のみならず、光・電子・フォノンが瞬時に互いに強く相互作用することにより引き起こされる多様な光誘起超高速ダイナミックスの理解の進展に役立つことが期待されます。さらに、過渡的なファノ共鳴は、通常の定常状態におけるファノ共鳴とは一線を画する稀有な現象であり、今後様々な非平衡系ダイナミックスにおいて新たな研究対象となることが期待されます。

本研究成果は、「Physical Review B」に 1 月 3 日付で掲載されました。

* 本研究成果は、JSPS 科研費 JP23540360、JP15K05121 の助成を受けたものです。

研究の背景

近年、レーザーの短パルス化、高強度化、多彩なパルス波整形など目覚ましい技術の進歩により、超高速時間領域における光と物質の相互作用が引き起こす新規な現象が、物理学と化学の多様な分野で観測されています。高強度でかつ 10 フェムト秒(fs)程度の時間幅を有する超短パルスレーザー^[注 4]を半導体に照射すると、位相がそろった縦光学フォノン^[注 5]が瞬時に励起され、巨視的物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ます(図 1)。このようなフォノンはコヒーレントフォノンと呼ばれ、Si(シリコン)、Ge(ゲルマニウム)や GaAs(ガリウム砒素)などの半導体のほかに、金属/半金属、誘電体、高温超伝導体など様々な物質で観測されています。コヒーレントフォノンは、固体における格子の振動制御やフォノンダイナミクスの詳細な理解、固体相変態や化学反応ダイナミクスへの応用など、様々な観点からの展開が期待されています。

従来、コヒーレントフォノンの振動パターンは、パルス照射後から 100 fs 程度以降の時間領域(コヒーレントフォノン生成領域)において発現し、古典力学に基づく減衰強制振動モデル^[注 6]により理解されてきました。しかしながら、それ以前の時間領域(初期時間領域)においては、高密度キャリア励起により引き起こされる複雑な量子力学的効果が観測されています(図 2)。これらはもはや古典力学モデルでは説明できず、未解決のまま、もしくは議論の対象外にありました。詳細な実験解析^[参考文献 1]によると、量子力学的干渉効果であるファノ共鳴が発現している可能性が見出されました。さらに、このような共鳴効果が引き起こされるためには、励起キャリアと縦光学フォノンが強く結合する必要があるため、これらが互いに纏いつきあいながら複合量子状態であるポーラロニック準粒子(Polaronic Quasiparticle, PQ)が過渡的に生成している可能性(PQ モデル)が示唆されていました。一方、現在まで、このような過渡的なファノ共鳴は非極性半導体である Si および Bi(ビスマス)、Zn(亜鉛)のような金属/半金属でのみ観測されており、極性半導体である GaAs などでは観測されていません。

研究内容と成果

実験的に提案されていた前述の PQ モデルを、ボゾン化法^[注 7]に基づき定式化しました。これによると、PQ は電子・正孔対に対応する擬ボゾン^[注 3]モードと縦光学フォノンモードから構成され、初期時間領域において両モードが強く結合して複合量子状態を形成します。時間経過と共にこの相互作用は漸次弱くなり、コヒーレントフォノン生成領域では PQ は縦光学フォノンに移行します。各時間での擬ボゾンの断熱エネルギーを調べると、パルス照射直後に、縦光学フォノンの離散化準位が擬ボゾンの個別励起モードに対応する連続状態とエネルギー的に縮退する様子が確認できます。これは重要な知見であり、擬ボゾンの個別励起モードと縦光学フォノンモードが共鳴的に結合して、PQ が過渡的なファノ状態を形成する可能性を示しています。

当該系の初期時間領域での非平衡系量子ダイナミクスを調べるために、PQ モデルに基づきパルス照射後の時間 t_p における過渡的な誘起発光スペクトル分布を数値計算しました。ここで、 $t_p=65$ および 100 fs における Si と GaAs のスペクトルが図 3 です。この計算結果は、ファノ共鳴は非極性半導体において過渡的に発現することを示しており、実験の測定結果を初めて再現するもので、これにより PQ モデルの妥当性が検証されたと考えられます。

さらに、このような Si 系と GaAs 系で相違が現れることの物理的起因を解明しました。数値計算および解析的なモデル計算を行うことにより、これらの相違は PQ を構成する擬ボゾンと縦光学フォノンの間の有効相互作用の位相因子に依存することを突き止めました(図 2)。実際、電子・正孔と縦光学フォノンの相互作用は、非極性半導体では短距離力に対応する変形ポテンシャル相互作用に支配され実数であるが、極性半導体では長距離力に対応するフレールリッヒ相互作用^[注 8]に支配され虚数になります。この相違が擬ボゾンと縦光学フォノンの量子干渉の帰結であるファノ共鳴のスペクトル形状に顕在化されたと考えられます。

今後の展開

従来のコヒーレントフォノンの研究は、古典力学の減衰強制振動モデルに基づく振動パターンに組み込まれた位相のずれを解析することによって、その生成ダイナミクスを理解しようとするものがほとんどでした。しかるに、現象論的なレベルでの理解に留まっているのが実情です。今回構築したPQモデルに基づく理論を適用することによって、非経験的なレベルで位相のずれを評価することが可能になり、コヒーレントフォノン生成に内在する物理現象のさらなる解明が可能となります。

さらに、この理論は、光・電子・フォノンが瞬時に互いに強く相互作用することにより引き起こされる多様な光誘起超高速ダイナミクスに適用することが可能であり、それらの理解の進展に役立つことが期待されます。また、過渡的なファノ共鳴は、通常の定常状態におけるファノ共鳴とは一線を画する稀有な現象であり、様々な非平衡系ダイナミクスにおいて発現する可能性があるため、今後新たな研究対象となることが期待されます。

参考図

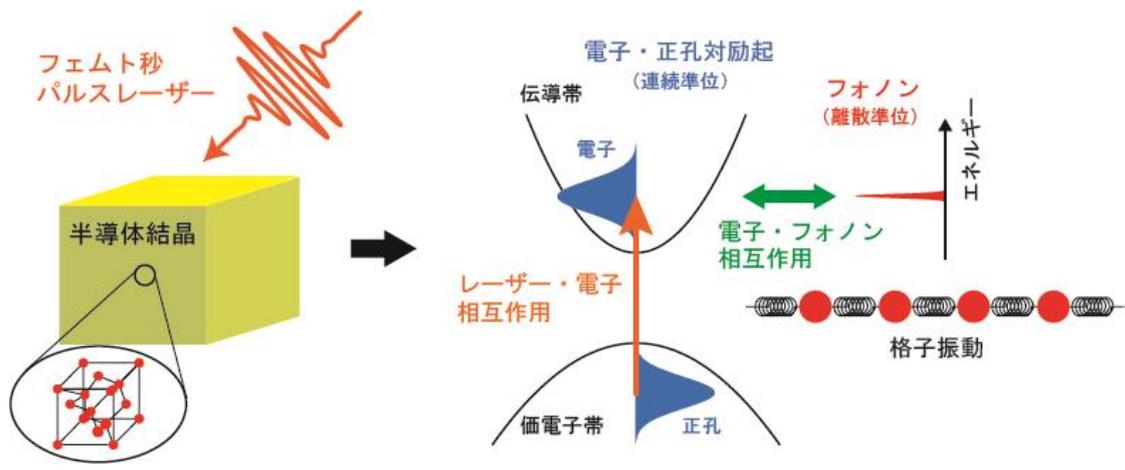


図 1. 当該系量子ダイナミクスにおける相互作用の模式図。フェムト秒パルスレーザーを半導体結晶に照射することで、レーザー・電子相互作用によって電子・正孔対励起が引き起こされる。さらに、誘起された電子がフォノンと相互作用することによって、フォノン(格子振動)が励起される。

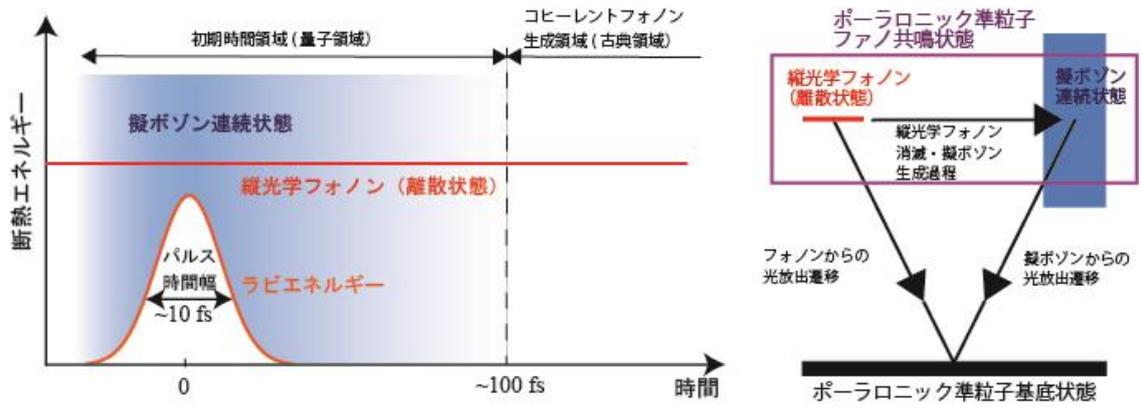


図 2. 当該系量子ダイナミクスの断熱エネルギーの時間変化の模式図(左図)とポラロニック準粒子ファノ共鳴状態からの過渡的誘起発光過程の模式図(右図)。パルス照射直後に電子・正孔対が励起され擬ボゾン(連続準位、青グラデーションは誘起電子密度の大きさを示す)を形成する。初期時間領域において、擬ボゾンと縦光学フォ

ノン(離散準位、赤)が相互作用し、ポーラロニック準粒子ファノ共鳴状態を形成する。この状態からの過渡的な誘起発光過程では、フォノンから直接光放出遷移する経路と擬ボゾンの連続状態への遷移を介して間接的に光放出遷移する二つの量子経路が干渉することにより、Si においては非対称スペクトルが発現する。時間が経過しコヒーレントフォノン生成領域に入ると、間接的な遷移の経路は消失する。なお、ラビエネルギーとは、パルスと電子の相互作用の強さを表す。

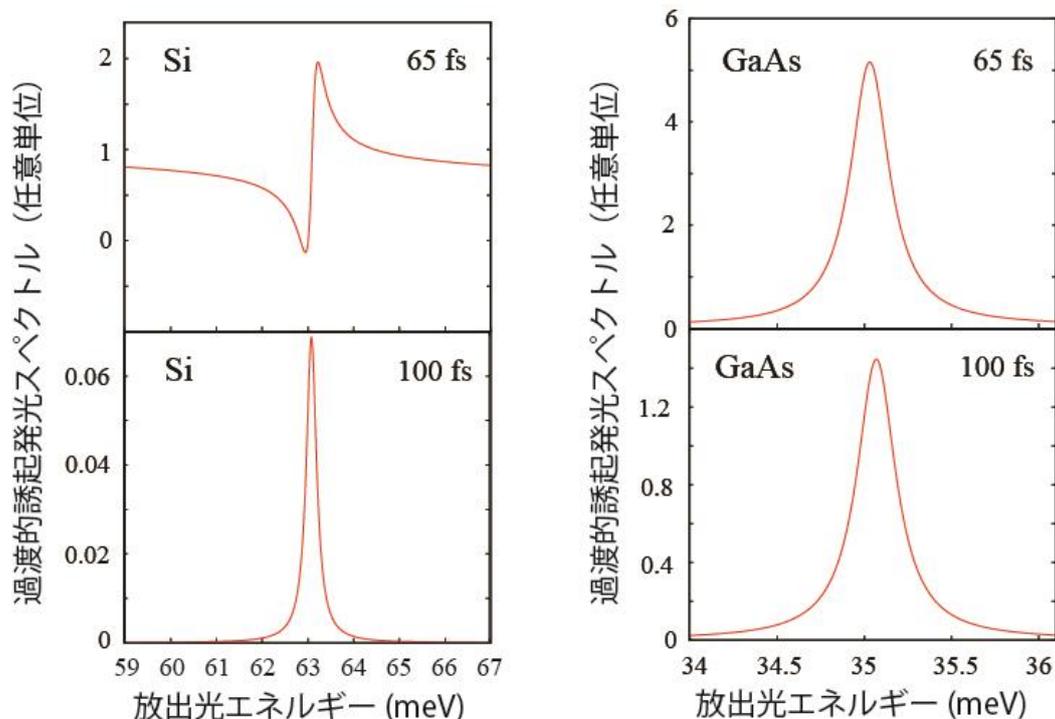


図 3. 65 fs および 100 fs での Si と GaAs における誘起発光スペクトル。フォノンのエネルギーでピークを有するスペクトルが現れる。特に、65 fs では、Si においてのみファノ共鳴に特徴的な非対称スペクトルが現れるが、GaAs においては対称のままである。一方、100 fs ではいずれの系でもスペクトル形状は対称である。

用語解説

注1) コヒーレントフォノン：結晶中の原子またはイオン殻は平衡位置のまわりを微小振動しており、これが結晶全体に波動として伝搬しているものを格子振動という。これを固有振動に分けて量子化した粒子(準粒子という)をフォノンという。超短パルスレーザー^[注 4]照射によって瞬時に励起された格子振動は、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特徴を有し、コヒーレントフォノンと呼ばれている。通常の格子振動では、駆動力は熱であるため位相情報は相殺されてしまう。

注2) ファノ共鳴：離散な準位が連続な準位とエネルギー的に縮退することによって生じる量子共鳴効果。ファノ共鳴をしている状態への光吸収および光放出スペクトルには、両準位間の量子干渉によって非対称なスペクトル形状が現れる。

注3) ポーラロニック準粒子：電子・正孔対を複合粒子とみなした擬ボゾン^[注 7]と縦光学フォノン^[注 5]から構成される準粒子。パルスにより高密度励起された電子・正孔対と縦光学フォノンは強く相互作用するので、この系を互いに結合して纏いあいながら運動する複合粒子とみなした方が、実際の物理を直截に表現している。

注4) 超短パルスレーザー：一つのパルス幅(時間幅)が数ピコ秒から数フェムト秒である非常に短いパルスを有するレーザー。最近では、パルス幅が数フェムト秒から数アト秒のパルスレーザーを意味することがある。

注5) 縦光学フォノン: 格子振動^[注 1]には音響モードと光学モードがあり、それぞれ縦波と横波の波動で結晶を伝搬する。縦光学フォノンはそれらのうちの一つのモードであり、GaAsのように単位格子が異質イオン殻により構成されている場合は、双極子モーメントの変化を生じる。

注6) 減衰強制振動モデル: 分子振動や格子振動を古典力学によって記述するモデルであり、構成原子またはイオン殻が時間により変化する外力(強制力)および現象論的な摩擦による減衰力のもとで振動運動するとみなす近似である。ローレンツモデルともいう。

注7) ボゾン化法: 相互作用し合いながら運動する二つの半整数スピンをもつ粒子(フェルミ粒子という)を、一つの複合粒子とみなす理論的な方法を指す。この複合粒子は、整数スピンを有する粒子(ボーズ粒子という)になるので、ボゾン化法と呼ばれる。

注8) フレーリッヒ相互作用: 電子・格子相互作用の一つであり、電子と縦光学フォノン^[注 5]の間に誘起される長距離相互作用。GaAsのようなイオン性結晶において支配的である。

参考文献

[1] M. Hase, M. Kitajima, A. M. Constantinescu, and H. Petec, Nature(London) **426**, 51 (2003)

掲載論文

【題名】 Polaronic-Quasiparticle Picture for Generation Dynamics of Coherent Phonons in Semiconductors: Transient and Non-Linear Fano Resonance

(半導体コヒーレントフォノン生成ダイナミクスに対するポーラロニック準粒子描像: 過渡的非線形ファノ共鳴)

【著者名】 Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, Nobuya Maeshima

【掲載誌】 Physical Review B

DOI: 10.1103/PhysRevB.95.014301

問い合わせ先

日野 健一(ヒノ ケンイチ)

筑波大学 数理物質系 教授(物質工学域)