

超短パルスレーザーに誘起された非対称スペクトル形状を有する格子振動の発現
～コヒーレントフォノン生成の前駆過程の一端を解明～

研究成果のポイント

1. 高強度超短パルスレーザー^{※1}によるシリコン結晶の光励起に伴って生成するコヒーレントフォノン^{※2}の振動パターンとスペクトル形状を理論と実験により解析し、新規な物理現象を見出すことに成功しました。
2. 永らく未開拓な領域であった、コヒーレントフォノン生成の起源となる前駆過程において、プラズモン^{※3}と縦光学フォノン^{※4}の間のローゼン-ツェナー型非断熱相互作用^{※5}が重要になり、これが過渡的な格子ダイナミックスの支配的要因の一つであることを示しました。
3. コヒーレントフォノン振動の時間シグナルをスペクトル分解することによって、ローゼン-ツェナー型非断熱相互作用が有効な場合のみ、スペクトル形状は非対称性を示すことを明らかにしました。この結果に関して、理論と実験の有意な一致を得ることに成功しました。

国立大学法人筑波大学数理物質系 日野健一教授、長谷宗明教授、数理物質科学研究科大学院 渡辺陽平、計算科学研究センター 前島展也講師、米国ピッツバーグ大学 Hrvoje Petek 教授は、半導体シリコンに高強度超短パルスレーザーを照射した直後に誘起されるプラズモンと縦光学フォノンの非断熱相互作用が、格子ダイナミックスを支配する要因の一つであることを、理論と実験の両面から立証しました。

パルス照射によって駆動される位相の揃った格子振動は、コヒーレントフォノンといわれる超高速過程の代表的な現象の一つです。コヒーレントフォノンが生成する直前の100フェムト秒^{※6}程度の時間領域における超高速量子ダイナミックスは、依然として未開拓な課題ですが、近年、内在する量子力学効果の解明が進みつつあります。

本研究では、超短パルスレーザーによって励起されたキャリアと縦光学フォノンが結合して、過渡的な複合量子状態であるポーラロニック準粒子^{※7}が形成されるというモデルに基づき、理論の構築を行いました。プラズモンとフォノンの両モードがローゼン-ツェナー型非断熱相互作用を起こすことによって、コヒーレントフォノンの時間シグナルに特異な振動パターンが発現し、そのスペクトル形状に顕著な非対称性が発現する現象を見出しました。この理論計算を実験と比較し、有意な一致を得ることに成功しました。

今回の研究によって、当該の時間領域で引き起こされるコヒーレントフォノン生成の前駆過程の一端が解明され、今後の光誘起超高速ダイナミックスの研究の進展に寄与することが期待されます。

本研究結果は、「Physical Review B」オンライン版に5月13日付で先行公開されました。

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

研究の背景

レーザーの短パルス化および高強度化により、物理学と化学の分野において、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多彩な非平衡現象が解明されつつあります。10 フェムト秒 (fs) 程度の時間幅を有する高強度超短パルスレーザーを半導体に照射すると、高密度電子励起に伴い時間・空間的に位相が揃った縦光学フォノンが励起され、巨視的物理量の統計的平均を取っても位相が相殺されないコヒーレントフォノンと呼ばれる顕著な振動現象が現れます (図 1(a))。コヒーレントフォノンは、半導体のほかに、金属/半金属、誘電体、高温超電導体など様々な物質で観測され、固体における格子の振動制御や格子ダイナミクスに加えて、固体相変態や化学反応ダイナミクスへの応用など、様々な分野への展開が期待されています。

この現象は典型的な超高速光学過程の一つであり、励起光のパルス時間幅がフォノンの 1 周期 (50fs 程度) より十分短い場合に発現します。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 (古典領域) において現れ (図 1(b))、主として古典力学に基づく減衰強制振動モデル^{注8}によって現象論的に理解されてきました。コヒーレントフォノンの生成は、それ以前の 100 fs 程度までの時間領域 (初期時間領域) における、光・電子・縦光学フォノンが動的に相互作用する量子力学的機構によると考えられていますが、この時間領域における観測シグナルは、物質系に起因しないレーザー間の光学的干渉効果によって遮蔽されるため、永らく議論の対象外となっていました。このように、コヒーレントフォノン生成の手掛かりとなる、初期時間領域における前駆過程は、依然、十分に解明されていません。

研究内容と成果

本研究では、高強度超短パルスレーザー (時間幅 10fs) を非ドープ Si (シリコン) 結晶に照射することによって誘起されるコヒーレントフォノン生成ダイナミクスを、理論と実験の両面から調べました。まず、理論モデルとして、ポーラロニック準粒子モデルを用いました (参考文献 1,2)。これは、励起キャリアと縦光学フォノンが過渡的に強く結合して、複合量子状態であるポーラロニック準粒子を生成するという描像に基づくモデルです。これを用いて、初期時間領域におけるコヒーレントフォノンの振る舞いを調べました。図 2 (a) は、様々な離調 (照射パルスの中心周波数と Γ 点^{注9} 間のバンドギャップ (図 1(a) 参照) のエネルギー差) に対する格子変位関数の時間シグナルの計算結果です。図 2(b) は、これらの時間シグナルを角振動数で分解したパワースペクトルです。離調が -54.4meV と -27.2meV において、時間シグナルに非調和性が現れるとともに、パワースペクトルは縦光学フォノンの固有振動数 63meV に対して非対称な形状を示します。各離調に対する非対称性の程度を表す非対称性パラメータ (q_a) の逆数の変化を図 2(c) に示します。図 3 は図 2 の理論計算に対応した実験結果です。図 3(a) は、様々な照射パルスの中心周波数 (光子エネルギー) に対する時間分解電気-光学サンプリング法^{注10} による反射率変化のシグナルです。図 3(b) はこれらのシグナルのフーリエ変換 (FT) スペクトル、図 3(c) はこれから抽出した非対称性パラメータの逆数の変化です。この系での照射パルスの強度から (励起キャリアとの相互作用によって繰り込まれた) Γ 点間のバンドギャップを評価すると 3.07eV 程度になり、理論計算の文献における結果と整合します。これを基に図 2(c) と図 3(c) の結果を比較すると、有意な一致が得られることがわかります。

この結果の背景にある物理を理解するために、図 4 に離調が -54.4meV と -27.2meV においてポーラロニック準粒子モデルに基づいて計算したプラズモンの断熱エネルギー^{注5} の実部の時間変化を示します。縦光学フォノンの断熱エネルギーの実部は、全時間領域で数 meV の範囲で固有振動数とほぼ等しくなり

ます。プラズモンの断熱エネルギーの実部は、パルス照射後に励起キャリア密度が増加するほど大きくなるので、この図に示すように、初期時間領域において縦光学フォノンの断熱エネルギーの実部に等しくなり、さらにはそれ以上に増大することが可能です。とりわけ、パルス照射後約 12fs 以降では両方の断熱エネルギーはほぼ平行に時間変化することが見て取れます。断熱エネルギー曲線がこのような変化をする場合、プラズモンと縦光学フォノンはローゼン-ツェナー型の非断熱相互作用によって結合することが推察されます。この結合は、両者間のエネルギー差が小さいほど支配的になります。図 2(a)と図 2(b)で得られた結果に関して、ローゼン-ツェナー型の非断熱相互作用が大きい順に離調を並べると、-54.4, -27.2, -136.0, 108.8meV になります。この順序は、図 2(c)のスペクトルの非対称性が大きい順序と一致します。さらに、図 2(a)の離調-54.4 および-27.2meV のシグナルを、初期時間領域における 50fs 程度までの振る舞いのみに限定して図 5(a)に示します。これによると、ローゼン-ツェナー型非断熱相互作用が引き起こされる約 12fs あたりでシグナルの振幅が大きく増大し、それ以降、非調和な振動パターンが誘起されることがわかります。図 3(a)の光子エネルギー3.025 および 3.040eV の観測シグナルに関して、図 5(b)に同様に 60fs 程度までの振る舞いを示し理論計算と比較すると、両者には有意な一致が見られます。また、図 2(a)と図 3(a)によると、スペクトルが非対称な場合ほど、初期時間領域における時間シグナルの振幅は古典領域における時間シグナルに比べて顕著に増大していることがわかります。

以上より、初期時間領域において、コヒーレントフォノンとはプラズモンと縦光学フォノン間のローゼン-ツェナー型非断熱相互作用によって誘起され、この結合が強いほど、シグナルは特徴的なスペクトル非対称を示すとともに、振動パターンにも顕著な振る舞いが現れることが明らかになりました。本研究によって、ポーラロニック準粒子モデルに基づく理論が実験からも検証され、コヒーレントフォノン生成の起源となる前駆過程の一端が立証されたと考えられます。

今後の展開

本研究により実験面から妥当性が検証されたポーラロニック準粒子モデルを用いて、非経験的なレベルでコヒーレントフォノン生成に関する様々な物理量を評価し、依然未解明な現象を検証することが可能になります。例えば、GaAs (ガリウム砒素) におけるキャリアと縦光学フォノンの相互作用は、当該研究における Si に比べてはるかに大きいにもかかわらず、周波数分解されたスペクトルには現在まで非対称性は確認されていません。また、従来、減衰強制振動モデルに基づく現象論的な理解のもとで蓄積されてきた実験値との定量的な比較を行うことによって、照射パルス強度に依存する励起キャリア密度のラビ振動^{注11} (参考文献 2) や章動^{注11} に伴う新規な物理的知見の発掘が可能になります。さらに、初期時間領域において量子力学的な起因を有するコヒーレントフォノンが、古典領域においていかにしてコヒーレント状態^{注12}を形成し、古典波動としての理解が可能になるかという根源的な問題に資することも期待されます。

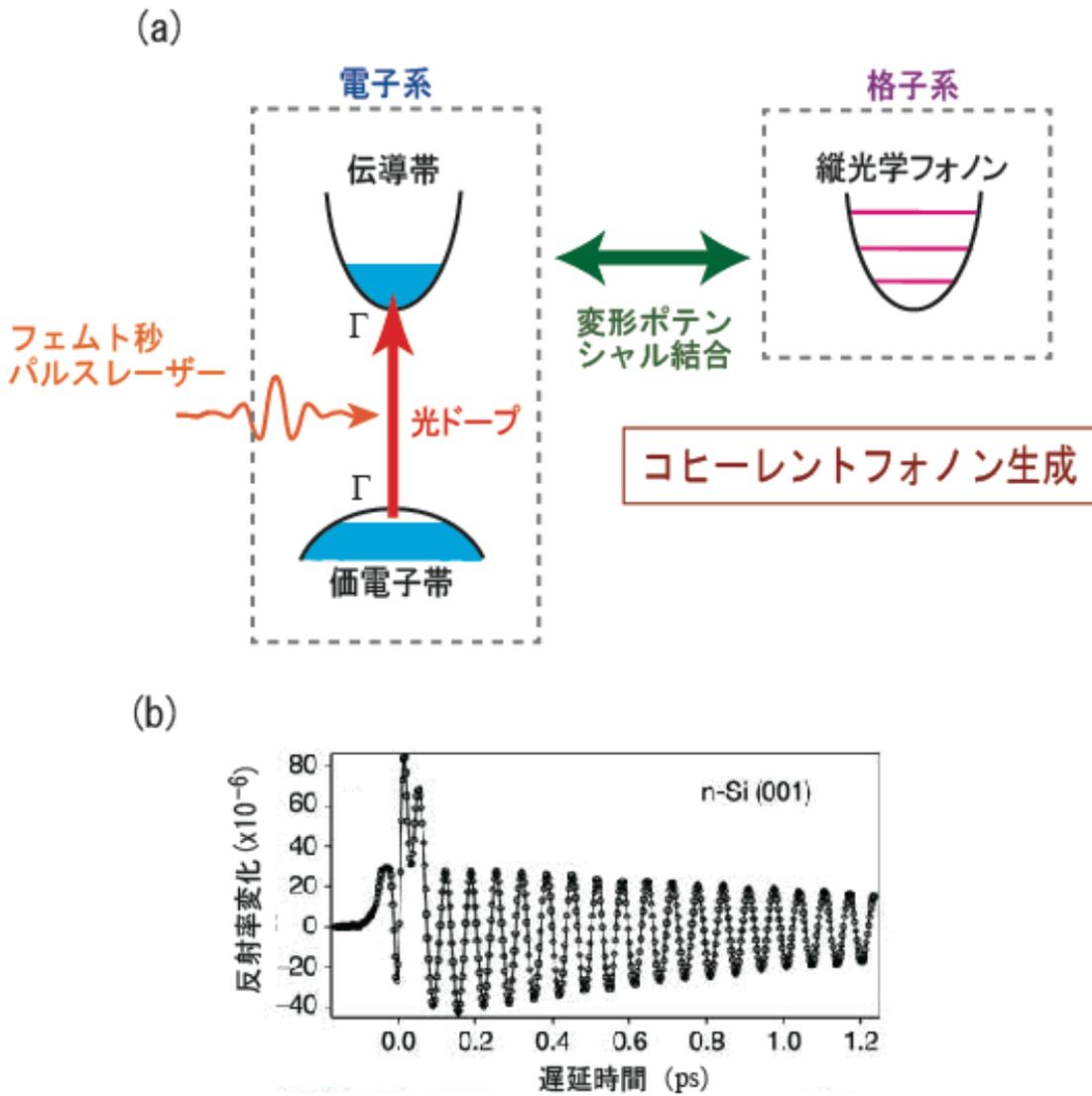


図1. (a)当該系量子ダイナミクスにおける相互作用の模式図。フェムト秒パルスレーザーをSi結晶に照射することによって、レーザー・電子相互作用を介して、 Γ - Γ バンドギャップ間に瞬時に高密度なキャリアが光ドーブされる。これらのキャリアには集団励起モードであるプラズモンが形成され、変形ポテンシャル相互作用^{注13}によって縦光学フォノンと結合し、コヒーレントフォノン生成が引き起こされる。(b)典型的なコヒーレントフォノンの振動パターン。(M. Hase, M. Kitajima, A. M. Constantinescu, and H. Petek, Nature (London) **426**, 51 (2003)から一部加工の上、引用。)

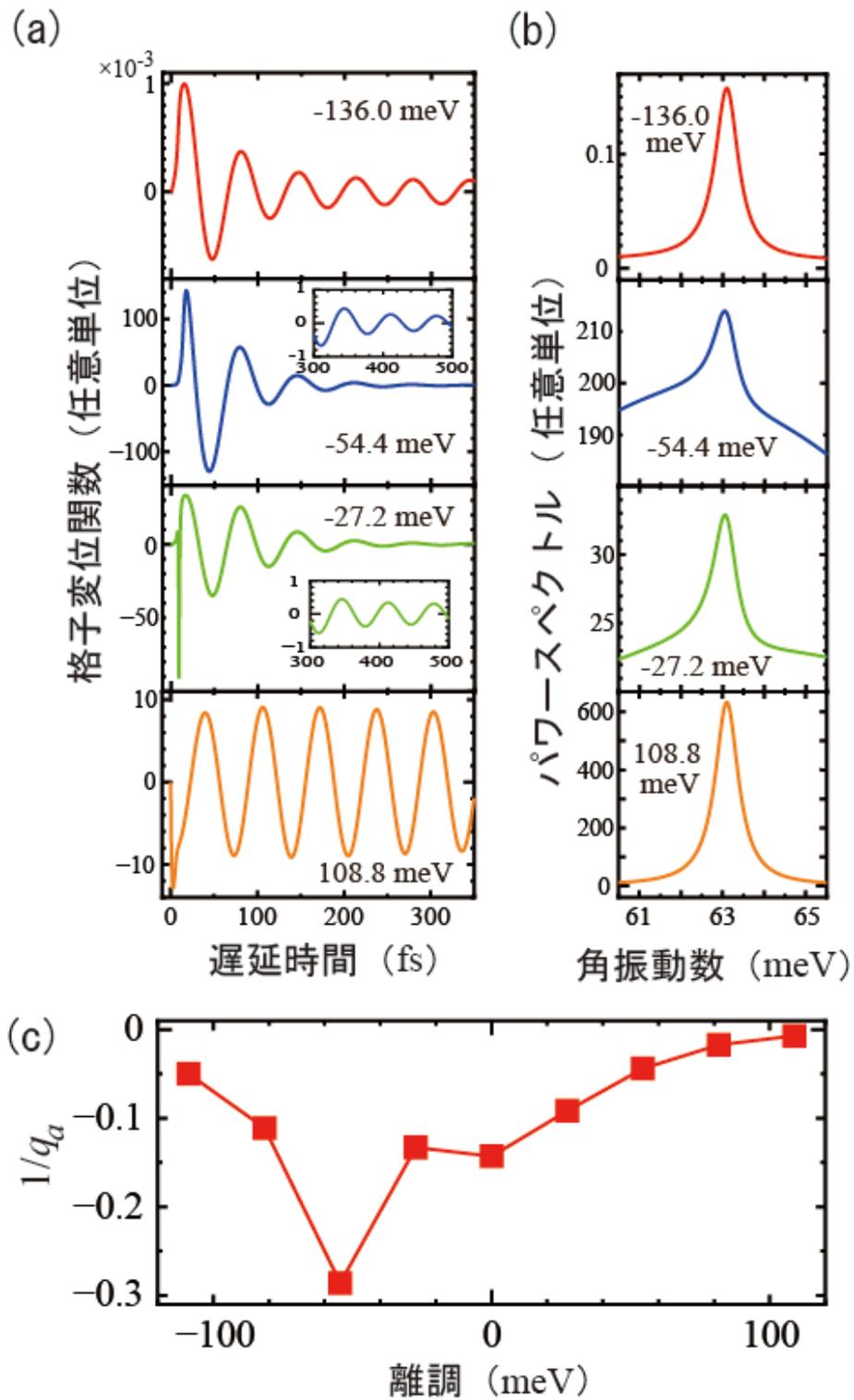


図 2. (a)各離調におけるコヒーレントフォノン格子変位関数の遅延時間変化。第 2 と第 3 パネルの挿入図は、遅延時間 300fs から 500fs における関数形の拡大図である。(b)パネル(a)の各格子変位関数を周波数分解したパワースペクトル。(c)パネル(b)のスペクトル形状から抽出した非対称パラメータ (q_a) の逆数の離調変化。

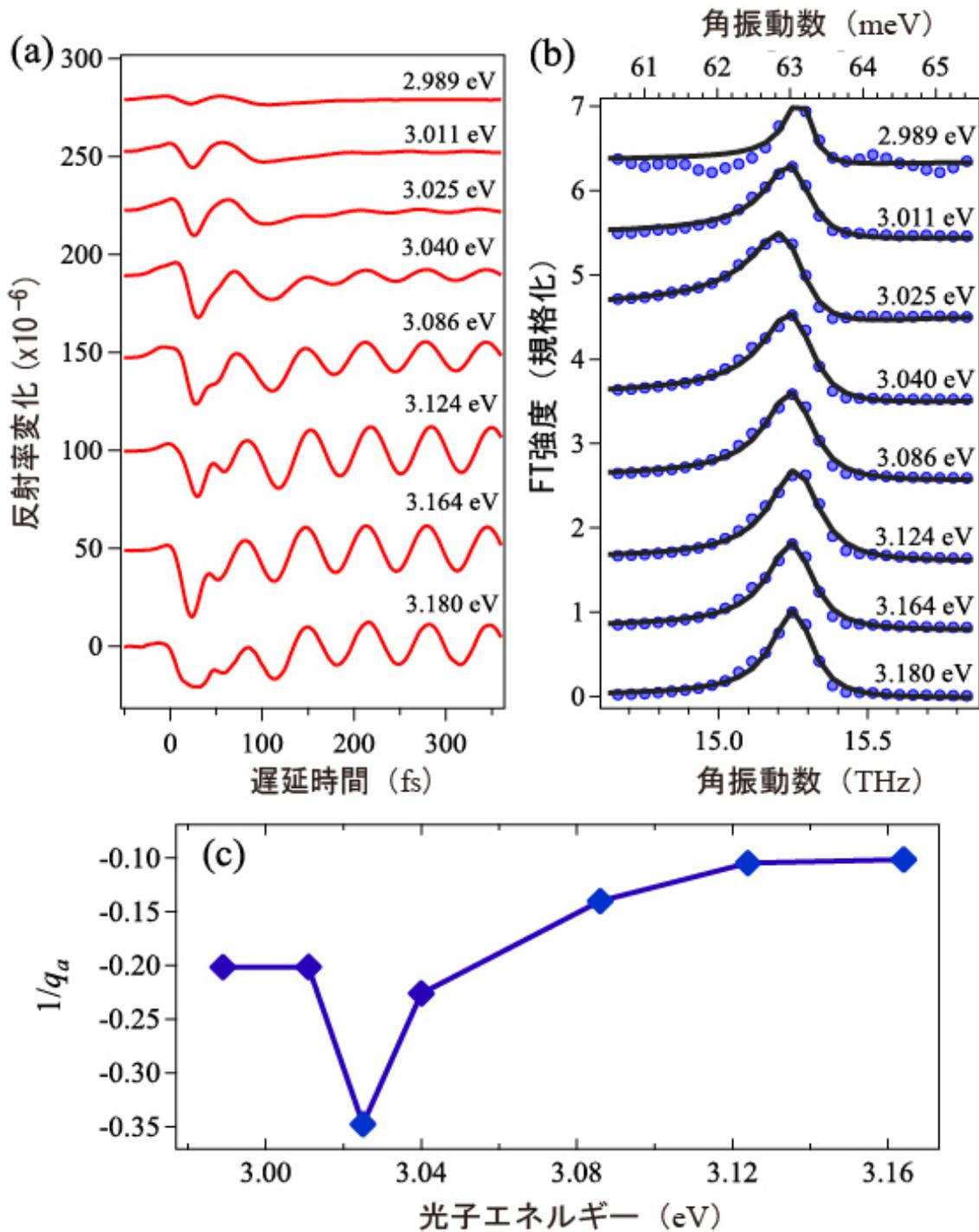


図 3. (a)各励起パルスの中心周波数（光子エネルギーに対応）における時間分解電子-光学サンプリング法による反射率変化シグナルの遅延時間変化。(b)パネル(a)の各時間シグナルをフーリエ (FT) 分解したスペクトル。(c)パネル(b)のスペクトル形状から抽出した非対称パラメータ (q_a) の逆数の光子エネルギーに対する変化。

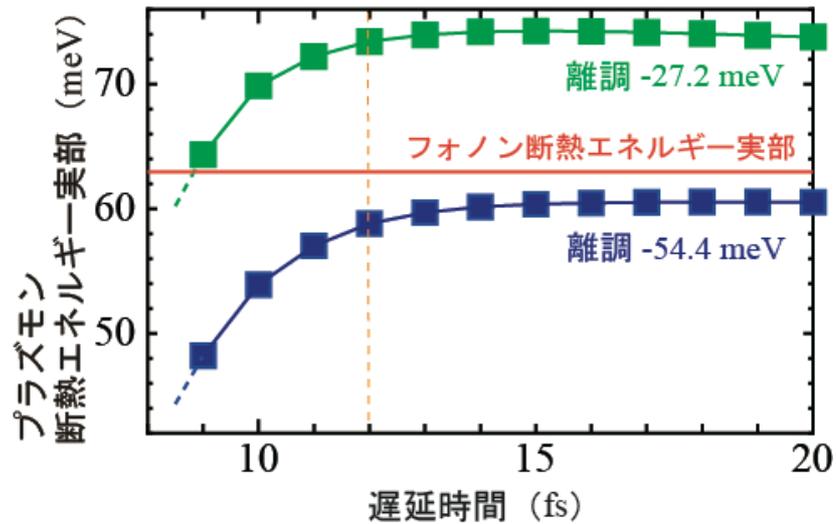


図 4. 離調-54.4meV (青色四角) と-27.2meV (緑色四角) におけるプラズモンの断熱エネルギーの実部の遅延時間変化。縦光学フォノンの断熱エネルギーの実部 (赤色実線) は固有振動数 63meV から数 meV の範囲しか変化しないため、簡単のため、定数として図示した。プラズモンと縦光学フォノンのローゼン-ツェナー型の非断熱相互作用は 12fs (橙色破線) 以降で支配的になる。

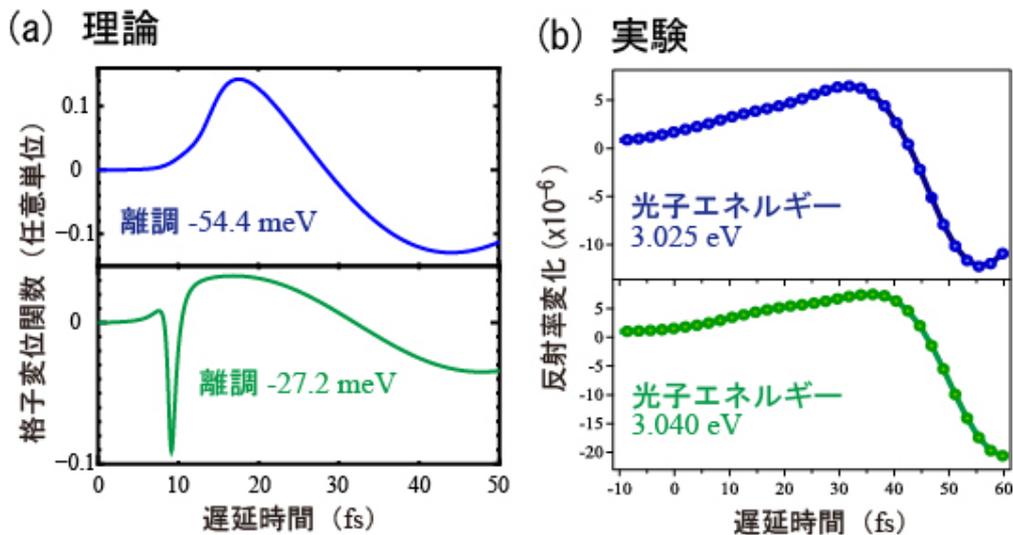


図 5. (a) 図 2(a)における離調-54.4meV (青色実線) と-27.2meV (緑色実線) の格子変位関数の 50fs までの遅延時間変化の拡大図。離調-27.2meV における遅延時間 9fs 近傍の格子変位関数の変調は、図 4 の対応する断熱エネルギー変化におけるランダウ-ツェナー型の非断熱相互作用^{注5} に起因する。これは時間的に局所な相互作用なので、スペクトルの非対称性にはほとんど寄与しないと考えられる。(b) 図 3(a)における光子エネルギー3.025eV (青色実線) と 3.040eV (緑色実線) の反射率変化シグナルの 60fs までの遅延時間変化の拡大図。

用語解説

注1) 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2) 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的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3) プラズモン

正のイオン殻による場の中で、光を照射したり熱を与えたりすると、自由に動く電子の密度の空間的な変化が生じ、結晶中の空間電荷分布に分極が生じる。これにより、電荷分布が中性である元の位置に電子を引き戻す力が働き、電子電荷密度が振動する。この振動を量子化した粒子をプラズモンという。プラズモンは電子の集団励起状態と解釈され、電子が自由に運動する連続状態（個別励起状態）とは区別される。

注4) 縦光学フォノン

格子振動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（ガリウム砒素）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5) 非断熱相互作用

ハミルトニアンを記述するパラメーター（例えば時間）が他の変数よりもゆっくりと変化する場合、このパラメーターを固定した状態を断熱状態、対応する固有エネルギーを断熱エネルギーという。パラメーターの変化に対して断熱状態間の相互作用（非断熱相互作用）が大きくなると、断熱エネルギー曲線は互いに反交差する。二状態間の断熱エネルギー曲線の反交差は、ランダウ-ツェナー型モデルとローゼン-ツェナー型モデルに大別される。前者においては、断熱エネルギー間に急峻な反交差が現れ、その近傍にのみ局所的な非断熱結合が生じる。一方、後者においては、断熱エネルギー曲線はパラメーターに関して平行に変化し、非断熱相互作用は広範なパラメーター領域に非局所的に広がる。

注6) フェムト秒 (fs)

フェムト秒は 1/1000 兆秒である。ちなみに、1 アト秒(as)は 1/1000 フェムト秒である。これらのオーダーの時間幅を有する超短パルスレーザー^[註1]を、それぞれフェムト秒パルスレーザーおよびアト秒パルスレーザーと呼ぶ。

注7) ポーラロニック準粒子

ポーラロニック準粒子とは、励起キャリアと縦光学フォノンから構成される準粒子を意味する。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は強く相互作用するので、両者が互いに結合して纏いあいながら運動するポーラロニック準粒子という複合粒子を導入することによって、実際の物理を直截に記述できると仮定される。

注8) 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9) Γ 点

結晶の空間対称性を記述する既約表現の一つであり、逆格子空間(運動量 k で表される空間)の中で最も対称性が高い。そのほかに対称性が高い k 点として、 Δ 、 Λ 、 X 、 L などがある。

注10) 時間分解電気-光学サンプリング法

電気・光学効果とは、電場印可により物質の屈折率(あるいは反射率)が変化する現象のことである。特に屈折率変化が電場に線形的な電気・光学効果のことをポッケルス効果と呼び、屈折率変化が電場の二乗に比例する電気・光学効果のことをカー効果と呼ぶ。電気-光学サンプリング法は励起光の光電場によって誘起された試料の屈折率変化(反射率変化)を、プローブ光パルスによって測定する手法である。

注11) ラビ振動と章動

物質に強いレーザー光を照射すると、電子は価電子帯(基底準位)と伝導帯(励起準位)の間で吸収と誘導放出を繰り返して振動する。特に、レーザー光の周波数が2状態間の遷移エネルギーに等しい場合(離調が零の場合)、これをラビ振動と呼び、その周期は照射レーザーのピーク電場の強さと光遷移双極子能率の積であるラビ周波数に反比例する。また、離調が零でない場合を章動という。

注12) コヒーレント状態

多数の量子状態が重ね合わされると古典的な波動に近い状態が生成し、この状態の量子の数(振幅に対応)の揺らぎと位相の揺らぎの間には不確定性関係が成り立つ。位相の揺らぎが零極限を取る場合(位相が確定する場合)、量子数は不確定な状態になる。これをコヒーレント状態という。典型的な例が、多数の光子によって生成するレーザー光である。また、光子の代わりにフォノンにおいて実現するコヒーレント状態がコヒーレントフォノンと考えられる。

注13) 変形ポテンシャル相互作用

半導体における電子と縦光学フォノンの相互作用は、変形ポテンシャル相互作用とフレリッヒ相互作用の二つに大別される。前者は Si 結晶のような非極性半導体において有効な物質の局所的な体積変化によって生じる短距離相互作用である。後者は GaAs 結晶のような極性半導体において支配的な分極電場と電子によるクーロン力を介して働く長距離相互作用である。

参考文献

[1]Y. Watanabe, K. Hino, M. Hase, and N. Maeshima, Phys. Rev. B **95**, 014301 (2017)

[2]Y. Watanabe, K. Hino, M. Hase, and N. Maeshima, Phys. Rev. B **96**, 125204 (2017)

掲載論文

【題 名】 Ultrafast asymmetric Rosen-Zener-like coherent phonon responses observed in silicon

(シリコンにおける超高速非対称ローゼン-ツェナー様のコヒーレントフォノン応答)

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

【掲載誌】 Physical Review B **99**, 174304 (2019)

DOI: 10.1103/PhysRevB.99.174304

問い合わせ先

日野 健一 (ひの けんいち)

筑波大学 数理物質系 (物質工学域) 教授