

超短パルスレーザーに誘起された特異な格子振動パターンの理論的予見 ～半導体におけるプラズモンと格子の超高速共鳴相互作用の解明～

研究成果のポイント

1. 高強度超短パルスレーザー^{注1}照射によりシリコン結晶に誘起されるコヒーレントフォノン^{注2}の生成ダイナミクスを理論解析し、新規な物理現象を予見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において、プラズモン^{注3}と縦光学フォノン^{注4}の共鳴相互作用の重要性を見出し、これが過渡的な格子ダイナミクスに顕著な効果を及ぼすことを示しました。
3. 励起キャリアのラビ振動^{注5}の効果がコヒーレントフォノンの振動パターンに直截に反映することを見出し、既存の実験値と比較して有意な一致を得ることに成功しました。
4. コヒーレントフォノン生成の前駆過程は、永らく未開拓な領域でした。今回の理論研究によって豊饒な物理が内在することが立証され、今後の光誘起超高速ダイナミクスの理解に大いに資することが期待されます。

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(D3)、計算科学研究センター 前島展也講師は、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おけるプラズモンと縦光学フォノンの共鳴効果をもたらす特異な量子ダイナミクスと当該系におけるラビ振動の効果を理論的に予見することに成功しました。

コヒーレントフォノンとは、パルス照射によって駆動される位相の揃った格子振動であり、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^{注6}程度の時間領域における超高速量子ダイナミクスは、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、超短光パルスによって高密度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^{注7}が形成されるというモデルを構築しました。これに基づき、プラズモンとフォノンの両モードがエネルギー的に共鳴して強い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することを見出しました。さらに、その振幅と位相が、パルス電場の強さに対応するラビ周波数に同期して周期的に振動することを明らかにしました。

当該の時間領域におけるコヒーレントフォノン生成の前駆過程は、照射レーザー間の光学的干渉によって遮蔽されるため、依然として未開拓な領域でしたが、今回の理論研究によって豊饒な物理が内在することが立証され、今後の光誘起超高速ダイナミクスの研究の進展に寄与することが期待されます。

本研究成果は、「Physical Review B」オンライン版に9月15日付で先行公開されています。

* 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および高強度化を可能にする目覚ましい技術躍進により、物理学と化学の多様な分野において、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^{注7}を半導体に照射すると、位相が揃った縦光学フォノンが瞬時に励起され、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顕著な振動現象が現れます。(図1)。位相情報が相殺される熱フォノン(インコヒーレントフォノン)の対比として、このようなフォンはコヒーレントフォノンと呼ばれます。コヒーレントフォンは、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(古典領域)において発現し、主として古典力学に基づく減衰強制振動モデル^{注8}によって理解されてきました。それ以前の時間領域(初期時間領域)においては、高密度に光励起されたキャリアが未だ緩和せず縦光学フォノンと相互作用するため、未開量子力学的効果の発現が期待されています。しかしながら、この時間領域における観測信号は、コヒーレントアーティファクト^{注9}と呼ばれる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されてきました。ごく最近、この時間領域で、Si(シリコン)において量子力学的干渉効果であるフアノ共鳴が発現することが検証されています。

研究内容と成果

半導体系の初期時間領域でのコヒーレントフォノン生成ダイナミクスを調べるため、ポーラロニック準粒子¹描像に基づいたモデルを構築しました。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するため、互いに纏いつきながら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仮定に基づくモデルです(参考文献1)。これを用いて、非ドープSi(シリコン)のコヒーレントフォノン変位時間シグナルを調べました。図2は、レーザーパルスのピーク電場の強さに相当するラビ周波数(横軸)に関して、パルス照射後20fsにおける時間シグナルの(a)初期位相と(b)振幅、および(c)縦光学フォノンとプラズモンの断熱エネルギーの変化を計算した結果です。図2(c)の断熱プラズモンのエネルギーの周期的変化は励起キャリアのラビ振動に起因するもので、ラビ周波数が194meVおよび388meVで励起キャリア密度がそれぞれ最大化および最小化されます。図2(d)は、縦軸のスケールが裸のフォノンのエネルギー(63meV)近傍における図2(c)の拡大図です。図2(c)および(d)より、断熱フォノンと断熱プラズモンがエネルギー的に共鳴する場合(図2、茶色破線近傍)、両モードが強く相互作用して反交差を生じ、図2(a)および(b)に特異な振る舞いが現れることを示しています。

図3はパルス照射から十分な時間が経過したのち(古典領域)の初期位相の計算値と実験値を示しています。これによると、励起キャリアの緩和によって反交差に起因する特異構造は消失しますが、ラビ振動に起因する構造は依然初期位相に反映することが分かります。図4は、代表的なラビ周波数で計算した初期時間領域におけるコヒーレントフォノン時間シグナルを表します。図4(a)、(b)、(c)のシグナルは調和振動のパターンとは大きく異なることが分かります。とりわけ、図4(a)および(c)のシグナルは、反交差に起因する初期位相および振幅の特異構造を反映して、図4(b)および(d)のシグナルに比べて非常に大きな振幅を有することが分かります。

以上の結果より、従来コヒーレントアーティファクトに埋没していた初期時間領域の時間シグナルには、豊饒な量子力学効果が内在することが分かりました。この研究において、縦光学フォノンとプラズモンの共鳴相互作用によって、大きな振幅と不規則な振動パターンを有する時間シグナルが発現することが理論的に予見できました。さらに、

ラビ振動によって励起キャリア密度が周期的に変動し、これが時間シグナルにも反映することが分かりました。

今後の展開

今回構築したポーラロニック準粒子モデルを適用することによって、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物理量を評価することが可能になります。例えば、GaAs(ガリウム砒素)における電子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ため、プラズモンとフォノンの共鳴相互作用の効果が時間シグナルにより顕著に表れると考えられます。さらに、これまで蓄積されてきた観測値との詳細な比較により、埋もれていた物理的知見の発掘が可能になると考えられます。

また、この研究を機に、コヒーレントアーティファクトに遮蔽されたコヒーレントフォノン生成初期時間領域における物理現象の理解が進むことが期待されます。具体的には、ポンプパルスとプローブパルス^{注10}の分極方向を調整するなど、コヒーレントアーティファクトを抑制する操作に加え、例えば、極紫外アト秒パルスを組み合わせることによって、この影響を回避しながら未知の物理現象を掘り起こす取り組みが必要になります。

参考図

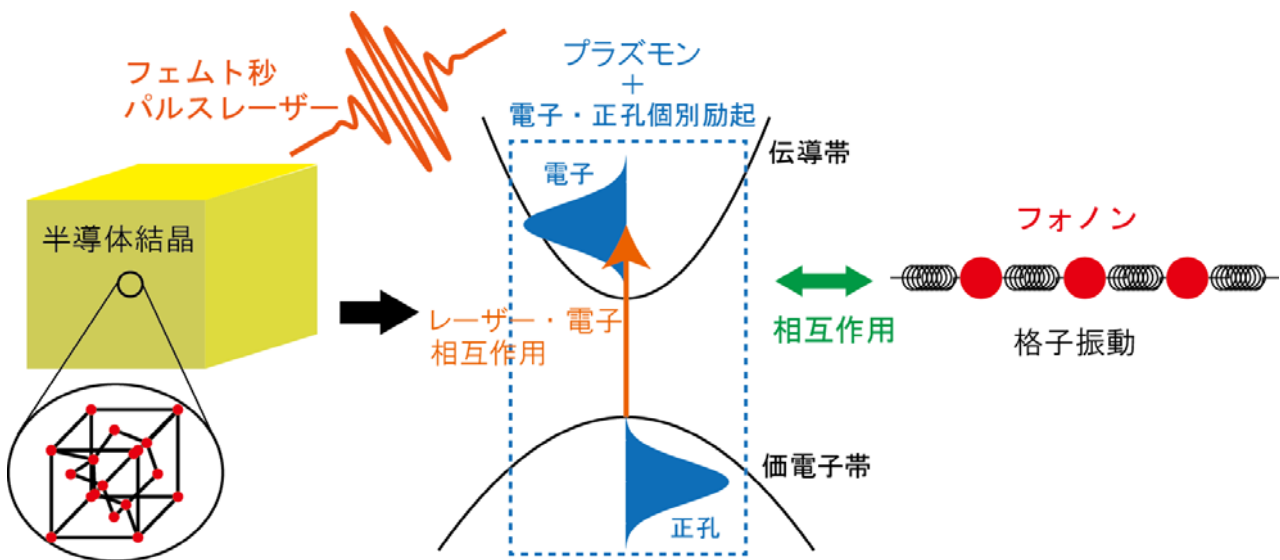


図1. 当該系量子ダイナミクスにおける相互作用の模式図。フェムト秒パルスレーザーを半導体結晶に照射することで、レーザー・電子相互作用によって電子系(プラズモン、電子・正孔個別励起)が誘起される。さらに、誘起された電子系がフォノン(格子振動)と相互作用することによって、コヒーレントフォノンが励起される。

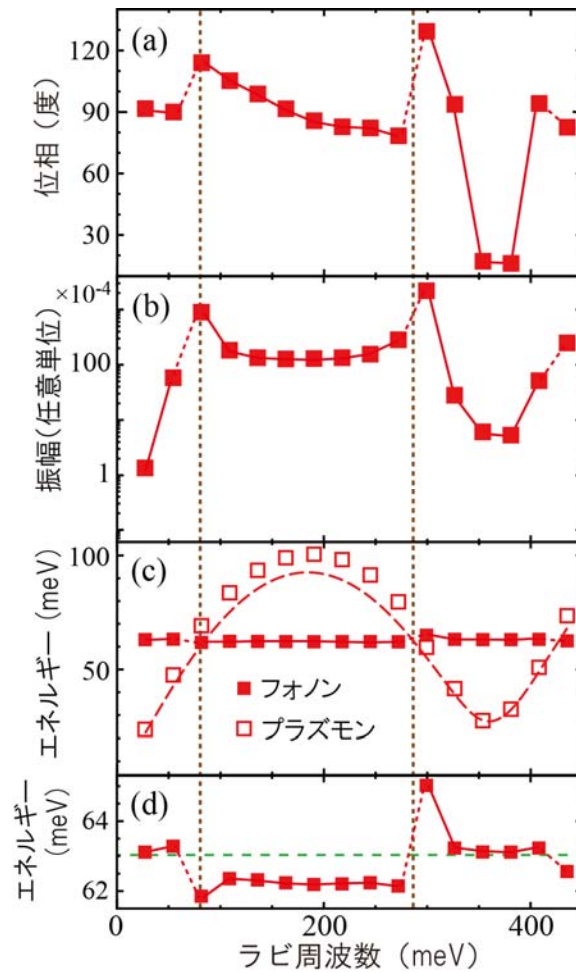


図 2. ラビ周波数の変化に関する、パルス照射後 20fs でのコヒーレントフォノン時間シグナルの(a)位相と(b)振幅、および(c)フォノンとプラズモンの断熱エネルギー。プラズモンのエネルギーはラビ振動を反映して、周期的に変動している。(d)は縦軸が裸のフォノンのエネルギー(63meV、緑破線)近傍における(c)の拡大図を示す。フォノンとプラズモンがエネルギー的に共鳴する場合(茶色破線近傍)に両モードが強く相互作用して反交差を生じ、位相と振幅に特異な構造が生じる。

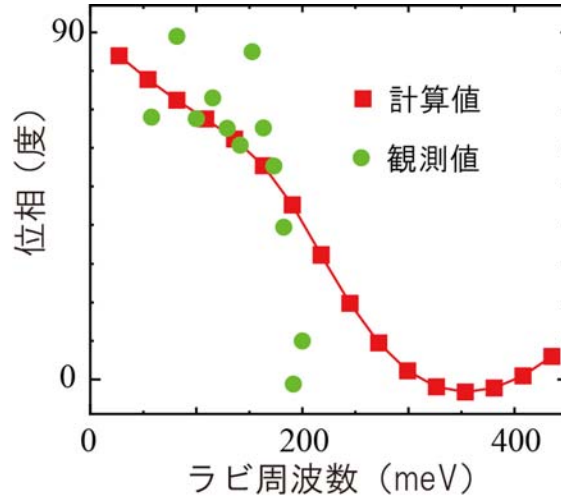


図 3. ラビ周波数の変化に関する古典領域における初期位相と観測値。プラズモンとフォンの共鳴相互作用に起因する特異構造は消失するが、ラビ振動に起因する構造は反映している。

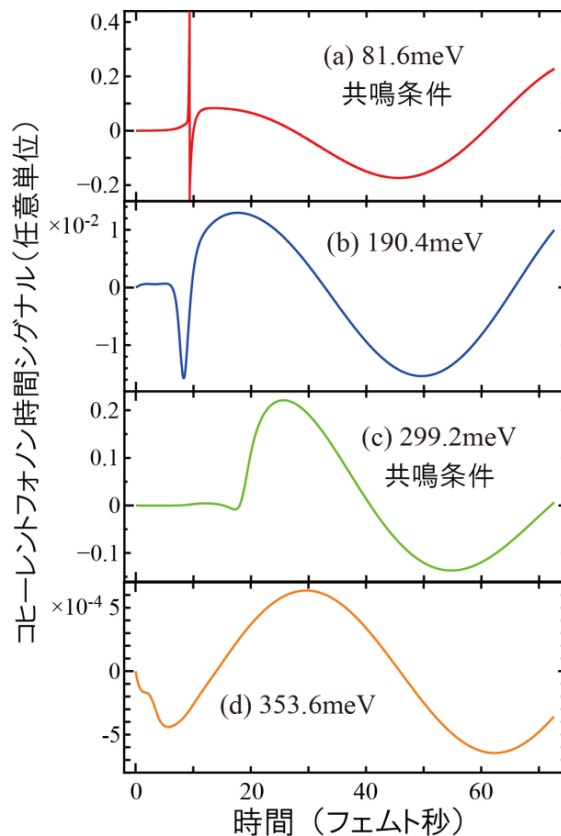


図 4. 代表的なラビ周波数におけるコヒーレントフォノン変位時間シグナルの計算値。(a)および(c)はラビ周波数がプラズモンとフォンの共鳴エネルギー近傍の場合であり、(b)および(d)は励起キャリア密度がそれぞれ最大化および最小化される場合を示す。

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^[注1]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(図1)。

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) ラビ振動

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。これがラビ振動であり、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。

注6) フェムト秒(fs)

1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^[注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: 励起キャリアと縦光学フォノンから構成される準粒子。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) コヒーレントアーティファクト

超短パルス(ポンプ)レーザー照射によって発生したコヒーレントフォノンは、これに遅延して照射されるプローブパルスに対する応答信号として観測することができる。初期時間領域では、ポンプパルスとプローブパルスの時間幅および遅延時間に関連して、両パルスが干渉し非線形光学効果を生じることで、調和振動から逸脱した非周期的信号がしばしば観測されている。実験で観測される非周期的な信号は、従来、全てコヒーレントアーティファクトとして扱われ、コヒーレントフォノン生成ダイナミックスの議論からは除外されてきた。

注10) ポンプパルスとプローブパルス

ポンプパルスとは、物質系を励起して非平衡状態を誘起するためのレーザーである。一方、プローブパルスとは、ポンプパルスによって励起された状態に引き起こされるダイナミックスや緩和過程を探知するためのレーザーである。ポンプパルスとプローブパルスを組み合わせて、両パルスの照射時間差を変えながら励起状態の時間変化を逐次追跡する手法をポンプ-プローブ分光法と呼ぶ。フェムト秒パルスやアト秒パルスを用いることによって、超高速過程の時間分解シグナルを得ることが可能になる。

参考文献

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

掲載論文

【題名】 Irregular Oscillatory-Patterns in the Early-Time Region of Coherent Phonon Generation in Silicon
(シリコンのコヒーレントフォノン生成の初期時間領域における不規則振動パターン)

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

【掲載誌】 Physical Review B

DOI: 10.1103/PhysRevB.96.125204

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 教授(物質工学域)

〒305-8575 つくば市天王台 1-1-1