

超短パルス励起半導体におけるコヒーレントフォノン生成機構の理論的解明

日野 健一、前島 展也

1. 研究背景

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・空間的に位相が揃った縦光学フォノンが瞬時に一斉に励起され、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顕著な振動現象が現れる。このようなフォノンをコヒーレントフォノン(CP)と呼ぶ。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する。パルス照射後100fs程度までの時間領域(「初期時間領域(ETR)」と呼ぶ)において、CP時間信号には、通常不規則な非周期的振動パターンが現れる。これは照射レーザー光の非線形光学的干渉による”coherent artifact”として理解されてきたため、ETRはCP生成の議論の対象から除外されてきた未踏な研究領域であった。

しかるに、CP生成は、ETRにおいて光・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る。更に、この領域では、光ドーピングされた n 型Siにおいて量子干渉効果であるFano共鳴スペクトルに類似した非対称スペクトルが観測されている。しかしながら、GaAsにおいてはこのようなスペクトルは観測されていない。このように、ETRには新規な量子力学的現象が、未開のまま隠されている可能性がある。

2. 研究目的

- (1) 上記の非対称スペクトルの発現は、「強結合したポーラロニックな過渡的準粒子生成の痕跡」であると示唆されている。そこで、ポーラロニック準粒子生成に基づく量子ダイナミクス理論を構築する。
- (2) この理論模型に基づき、CPの生成機構および非対称スペクトル発現の物理的起因を解明する。
- (3) 様々なパルスレーザー照射条件下でCPの振動パターンや関連する周波数スペクトルの挙動を精査し、実験データとの比較を行うことで、当該理論の定量的なレベルでの妥当性の検証を行う。

3. 研究方法 (理論模型の構築)

当該の過渡的なポーラロニック準粒子描像に基づく量子ダイナミクス理論は、各時刻での光・電子・縦光学フォノンの全断熱Hamiltonianの解を基底とする断熱展開法に基づいた理論である[1]。これを以下のようなステップで構築する。

まず、このHamiltonianのうち電子・正孔を表す部分にDysonのボゾン化法を適用すると、各時刻でバンド内遷移とバンド間遷移を取り込んだ個別励起モード(連続状態)および集団励起モード(プラズモン)を記述する擬ボゾン演算子を得ることができる。次に、これらと縦光学フォノンの線形結合を表す演算子(ポーラロニック準粒子演算子)を導入し、これに対する運動方程式を求める。断熱近似を適用することにより、この数値解を求める。このようにして得られた断熱状態がポーラロニック準粒子状態である。一旦、全ての断熱状態に対するポーラロニック準粒子演算子が得られれば、直截に対応する遅延Green関数を求めることが出来る。これを用いて過渡的な誘電関数や他の物理量を記述することが出来るので、CP生成の実験データとの比較が可能になる。

さらに、当該模型において、ポーラロニック準粒子状態の構成要素となる擬ボゾンモード(個別・集団励起モード)および縦光学フォノンモードの断熱エネルギーの時間変化を得ることが出来る。これによって、ETR

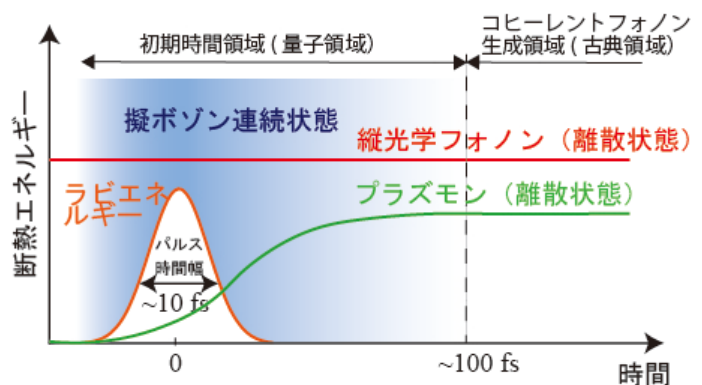


図1. 断熱エネルギー曲線の模式図

におけるCPダイナミックスの定性的な理解が容易になる。図1に各モードの断熱エネルギー曲線の模式図を示す。青のグラデーションは、個別励起モードにおける電子・正孔対の分布を表す（グラデーションが濃いほど励起密度が高い）。緑および赤の実線は、それぞれプラズモンおよび縦光学フォノンのエネルギー変化を表す。

これによると、ETRにおいて電子・正孔の連続状態に縦光学フォノンの離散状態が埋もれていることが分かる。これは、ETRにおいてFano型の相互作用が発現し得ることを示している[1]。また、励起パルス光の強度が高くなると、プラズマ振動数も大きくなるので、ETRにおいて縦光学フォノンモードの断熱エネルギーと交差し、プラズモン・縦光学フォノンの非断熱的な相互作用（Rosen-Zener結合）が引き起こされ得ることを示している[2-4]。

4. 結果及び考察

ここでは、前述の各研究の目的に対応した結果及び考察を述べる。

研究方法で言及したように、時間に依存する Dyson のボゾン化法を基に、ポーラロニック準粒子模型を構成した。これによると、CP生成は照射パルスレーザーとキャリアの相互作用が繰り返された擬ボゾン準粒子（個別・集団励起モード）と縦光学フォノンの相互作用により引き起こされると理解される。特に、非極性半導体である非ドーパ Si 結晶においては、空間群に基づく考察により、高密度キャリア励起による対称性の低下に起因して、中心対称性を有する Si 結晶の縦光学フォノン状態からの光放出が許容になることが理解される[1]。この対称性の低下の程度は、励起キャリアの非均一な空間分布（誘起電荷密度分布）の程度であり、極性である GaAs 結晶に比して著しく小さい。しかるに、この誘起電荷密度が Si の CP 生成において重要な役割を果たしていることが分かった。

ポーラロニック準粒子模型を、パルス励起強度が弱い領域から強い領域に適用して、それぞれにおける CP 生成機構を調べた。

まず、比較的弱いパルス励起領域（励起キャリア密度：数 $10^{17}/\text{cm}^3$ のオーダー）において、図1に示すように、CPの生成は電子・正孔の個別励起モードと縦光学フォノンの相互作用により誘起され、プラズモンモードと寄与は小さいと考えられる。非極性半導体である非ドーパ Si 結晶および極性半導体である GaAs 結晶における CP 生成に伴う過渡的光放出スペクトルを計算し、励起パルスレーザー照射後、15fs、65fs および 100fs におけるスペクトル形状を調べた。これによると、Si 結晶においては、65fs において非対称な Fano スペクトル形状が発現し、励起キャリアの緩和が支配的になる 100fs において、その形状は対称になっていくことが分かった。一方、GaAs 結晶においては、スペクトル形状は常に対称であり、Fano 型の共鳴が発現しないことが分かった。これらの相違は、電子・正孔の個別励起モードと縦光学フォノンの実効的な相互作用の結合定数の位相に起因することを突き止めた。すなわち、この結合定数は、Si 結晶においては電子・縦光学フォノン相互作用が変形ポテンシャル相互作用であることを反映して実数であるが、GaAs 結晶においては Fröhlich 相互作用が支配的であることを反映して純虚数である。さらに、この数値計算の結果は、開閉の散乱チャンネル間の結合を複素相互作用とする Shore の共鳴散乱模型に基づいて、整合的に説明ができる（図2参照）[1, 4]。

次に、ある程度大きなパルス励起領域における CP の挙動を調べた。ここでは、プラズモンと縦光学フォノンの断熱エネルギーが共鳴して両者間の結合による反交差が生じ、CP信号の振幅および位相のずれ（漸近的には初期位相に対応）は励起パルスレーザーの強度（クーロン補正を無視したラビ振動数に対応）に大きく依存し、レーザー強度に対する顕著な変化が発現することが分かった[2, 4]。さらに、過渡的な励起キャリア密度の増加に応じて、CP信号の振幅および位相のずれが Rabi 振動に従う変化を示すことを見出した。

さらに、強パルス励起領域（励起キャリア密度：数 $10^{19}/\text{cm}^3$ のオーダー）下の非ドーパ Si 結晶に

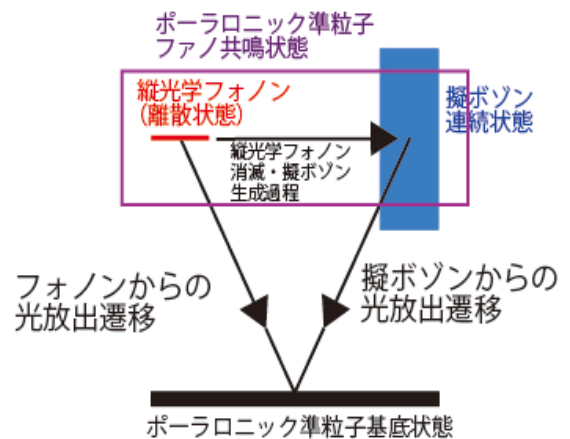


図2. ポーラロニック準粒子のFano型相互作用の模式図

において、これらの信号に対する励起パルスレーザーの離調（照射パルスレーザーの中心周波数と Γ - Γ 間のエネルギーギャップの差）依存性を調べた。ETRにおいて、不規則振動を有するCP信号の振幅が極端に増大し、その周波数スペクトル分布が非対称性を示すことが見出された。これは前述のFano共鳴とは異なる効果であり、ETRにおけるプラズモンと縦光学フォノンの過渡的相互作用に起因する。図1に示すように、励起キャリア密度が大きくなると、これらのモードの断熱エネルギーは、交差したり、縮退（共鳴）したりする。その際、両モードはそれぞれLandau-Zener型およびRosen-Zener型の間の結合をすると理解される。とりわけ、後者の相互作用はCP周波数スペクトル形状に大いに影響を及ぼすことが分かった。図3に示すように、実験値との精緻な比較を行い、有意な一致を見出した[3, 4]。GaAs結晶においても同様な計算を行い、既存の実験値と整合する結果を得た。すなわち、非ドープSi結晶の場合と異なり、スペクトル非対称性は見い出せなかった。しかしながら、プラズモンモードと縦光学フォノンモードの過渡的な結合が非常に大きくなるため、周波数スペクトルにおいて、縦光学フォノン周波数でのピークの高周波側にプラズモン周波数に対応するシヨルダーが見い出された。これはETRにおける両モードの相互作用に起因するため、よく知られている古典領域（図1参照）におけるLOPC相互作用とは区別される[5]。

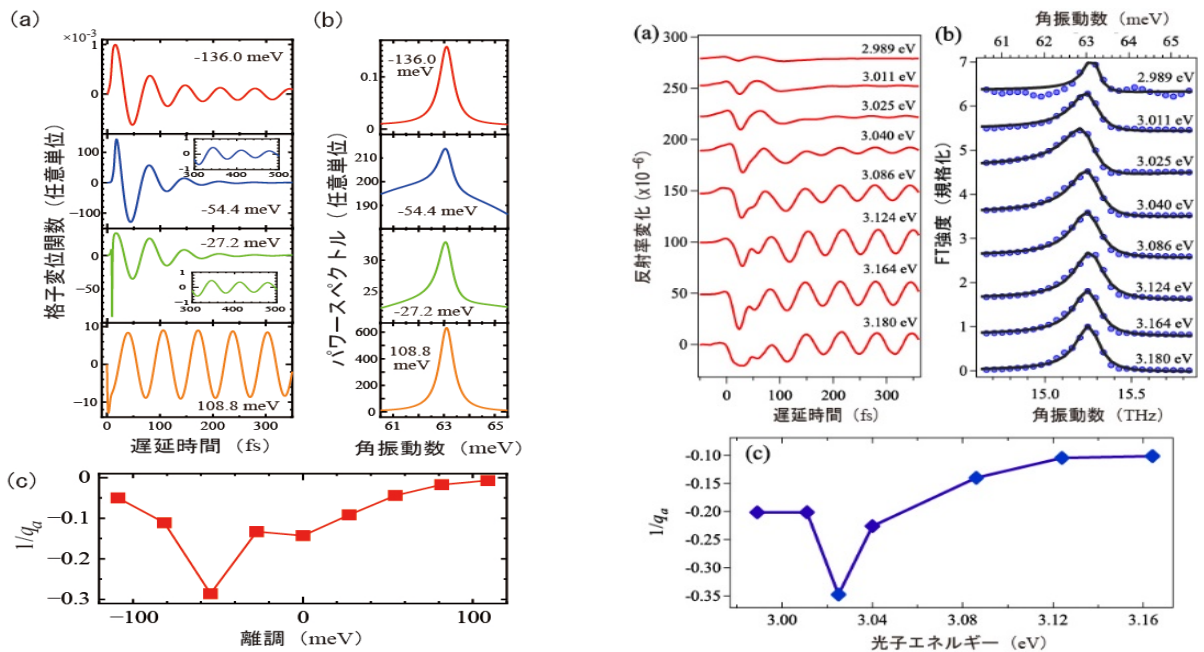


図3. (a)遅延時間に対するCP信号の振動パターン、(b)対応する周波数スペクトルおよび(c)スペクトル非対称性の理論値[左図]と実験値[右図]の比較。実験値は励起レーザーの中心周波数(eV単位)ごとの変化を示し、一方、理論値は離調(meV単位)[励起レーザー中心周波数とバンドギャップ(多体相互作用の繰り込み効果を考慮すると約3.07eV)の差]に対する変化を示す。詳細は[3]を参照。

5. 結論

CPは典型的な超高速光学過程の一つであるにもかかわらず、これまでその生成機構および付随するFano型共鳴に類する発現機構を統一的に理解する定量的な理論的枠組みは皆無であった。特に、ETRにおける豊饒な物理はほとんど未開な状況であった。従来の理論モデルのほとんどはパルスとキャリアの相互作用に関する摂動理論に基づくものであるため、高密度キャリア励起を伴う条件下で行われてきた実験との比較が困難であった。

本研究で構築したポーラロニック準粒子モデルは、励起キャリア密度の大小には依存しない非摂動理論である。照射パルスの任意の条件下で引き起こされるCPダイナミクスに適用することができる。これにより、CP生成機構、弱励起領域におけるFano共鳴機構、さらには強励起領域におけるCP

スペクトルの特異性（非対称性）等を、単一の理論模型で明らかにすることに成功し、実験との定量的なレベルでの比較研究が可能になる。この意味で、一連の当該研究は、CP 研究におけるマイルストーンとなるものと期待される。

謝辞

本研究は、JSPS KAKENHI Grants (No. JP23540360, No. JP15K05121), NSF Grants (No. DMR0116034, No. OISE-1743717) および NIMS Research Funds による研究費支援の基に行われた。

関連論文

- [1] Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, “Polaronic quasiparticle picture for generation dynamics of coherent phonons in semiconductors: Transient and non-linear Fano resonance”, Phys. Rev. B **95**, 014301_1-16 (2017). <http://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.014301>
- [2] Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, “Irregular oscillatory patterns in the early-time region of coherent phonon generation in silicon”, Phys. Rev. B **96**, 125204_1-6 (2017). <http://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.125204>
- [3] Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Nobuya Maeshima, Hrvoje Petek, Muneaki Hase, “Ultrafast asymmetric Rosen-Zener-like coherent phonon responses observed in silicon”, Phys. Rev. B **99**, 174304_1-9 (2019). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.174304>
- [4] Yohei Watanabe, “Theoretical Study on Quantum Dynamics of Coherent Phonon Generation in the Early-Time Region” (Doctoral Dissertation, University of Tsukuba, 2017). <http://hdl.handle.net/2241/00152366>
- [5] Nobuyuki Hayashida, Yuki Okuda, Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Nobuya Maeshima, Muneaki Hase (in preparation).