

平成 2 6 年 6 月 4 日現在

機関番号：1 2 1 0 2

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：2 3 5 4 0 3 6 0

研究課題名（和文）超短パルス励起半導体における動的ファノ共鳴と過渡的準粒子生成

研究課題名（英文）Dynamic Fano Resonance and Transient Quasiparticle Generation in Semiconductors Excited by Ultrashort Pulse Laser

研究代表者

日野 健一（HINO, Ken-ichi）

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：9 0 2 2 8 7 4 2

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,100,000 円、（間接経費） 1,230,000 円

研究成果の概要（和文）：超短パルス高強度レーザーを半導体に照射すると、位相がそろったコヒーレントフォノン(CP)が瞬時に励起され、観測量に顕著な振動パターンが現れる。本研究では、CP生成に付随して発現する過渡的Fano共鳴や光学フォノン・プラズモン結合状態などを統一的に理解可能な量子論的枠組みの構築、さらにそれに基づく実験結果の検証を目的とする。そのために、プラズモン、電子・正孔対およびフォノンから成る擬ボゾン演算子を導入し、これによるポーラロニックな準粒子モデルを提示し、当該系の解析を行う。特に、このモデルをさらに単純化することにより、過渡的Fano共鳴を含むCP振動の解析的表式を得ることに成功した。

研究成果の概要（英文）：Irradiation of semiconductor with intense and ultrashort pulse-laser leads to instantaneous generation of on-phase collective motion of phonon termed coherent phonon, which shows pronounced vibrational patterns in observables. The present study is aimed at establishing a quantum-theoretical framework that makes it possible to interpret transient Fano resonance and a coupled state of LO phonon with plasmon in a unified manner, both phenomena of which are accompanied by the CP generation. Further, based on this framework, one intends to examine the experimental results. For this purpose, a polaronic quasiparticle picture is proposed, where the associated quasiboson operator is composed of the operators of plasmon, electron-hole pair, and phonon. In particular, this framework is applied to the CP generation accompanying the transient Fano resonance, and one has succeeded in obtaining an analytic expression well reproducing this effect.

研究分野：光物性理論

科研費の分科・細目：物性I・光物性

キーワード：パルスレーザー コヒーレントフォノン 半導体 ファノ共鳴 プラズモン

## 1. 研究開始当初の背景

高強度超短パルスレーザーを半導体に照射すると、位相がそろったフォノンが瞬時に励起され、巨視的物理量(屈折率や分極など)の統計的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。従来、この振動パターンは古典力学に基づく強制減衰振動によって理解されてきた。

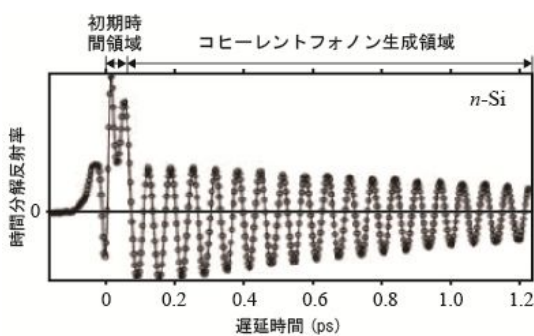


図1. 初期時間領域における過渡的 Fano 共鳴とコヒーレントフォノン生成 [K. Hino, M. Hase, and N. Maeshima, "Exciton Fano Resonance in Semiconductor Heterostructures and its Related Phenomena", in "Exciton Quasiparticles: Theory, Dynamics and Applications", Ed. R. M. Bergin (Nova Science Publishers, New York, 2011)より、一部加工の上抜粋。]

図1は光ドープされた $n$ 型Siにおいて遅延時間(励起光とプローブ光との時間差)の関数として表された反射率変化である。遅延時間が0から100fs程度までの初期時間領域において不規則な振動パターンが観測されており、100fs程度以降のCP生成領域とは明確に区別できることが分かる。この不規則な振動は、パルス照射によって高密度に励起された電子と縦光学(L0)フォノンとの間に生じる強い相互作用を介した離散・連続準位間の量子干渉効果であるFano共鳴(FR)効果に起因すると推察される。従来からよく知られている「定常的」なFRとは異なり、この現象は初期時間領域のみに発現する「過渡的」なFRである。この現象の起因としてポーラロニック準粒子の発現が示唆された[M. Hase, et al., Nature 426, 51 (2003)]。しかしな

がら、現状において、このような過渡的FRの生成機構の詳細は不明である。

一方、 $n$ 型GaAsのような極性半導体ではCP生成の初期時間領域において過渡的FRは観測されていない。これに対して、この系では、非極性系では確認されていないL0フォノンとプラズモンが結合した量子状態が明確に観測されている[例えば、J. Hu, et al., Phys. Rev. B 86, 235145 (2012)]。このような極性および非極性半導体では電子とL0フォノンはそれぞれフレリッヒ相互作用および変形ポテンシャル相互作用によって結合する。これが相異なる量子効果を引き起こす要因の一つと思われるが、この相違が何故にコヒーレントフォノン生成初期時間の量子効果に異なる物理現象を引き起こすか不明である。過渡的FRとフォノン-プラズモン結合の二つの量子効果を統一的に取り込むことが可能な理論モデルの構築と、それに基づく物理の詳細な理解が必要である。

## 2. 研究の目的

前述のように、FRの発現は、ポーラロニックな準粒子が初期時間領域において過渡的に形成されていることに起因するとの仮定が提起されている。そこで、本研究では、ポーラロニック準粒子描像に基づいて、過渡的FRおよびL0フォノン・プラズモン結合の両方を取り込むことが可能な理論モデルを構築する。とりわけ、過渡的FRの発現の可能性を理論的に検証し、上記の仮定の妥当性とさらなる理解の深化を目指す。

## 3. 研究の方法

ここでモデル化する物理系は、高強度超短パルス光により駆動される2バンド(価電子帯および伝導帯)から成る半導体電子系と、これが相互作用する1モードのL0フォノンから構成されている。電子系のクーロン相互作用は、乱雑位相近似を導入することにより平均場として取り込む。

本研究の方法は、(i)ポーラロニック準粒子を導入し、この演算子に対応する断熱的な固有状態および断熱的エネルギー固有値を、パルス励起後の各時間ステップで求める段階と、(ii)この表示を基に、系の時間発展(量子ダイナミクス)を非摂動的に解析する段階に分けられる。(i)の段階を導入すること

が本研究の特色であり、通常のような物理系の時間発展結合方程式を直接数値計算する方法とは一線を画する。

以下で(i)の段階を多少詳述する。乱雑位相近似を用いると、電子の生成・消滅演算子の積で定義される誘起電荷分極演算子と、電子系および光・電子相互作用から成る Hamiltonian の交換子は、誘起電荷分極演算子に関して線形になるように表すことが可能になる。このときの係数行列は、電子系の密度行列を汎関数とする非エルミート行列になる。これより得られる固有状態は、バンド内遷移に対応するプラズモン(擬ボゾン)とバンド間遷移に対応する電子・正孔対(擬ボゾン)に対応し、それぞれ(各時間ステップで定義される)断熱的な擬ボゾン状態と見なすことができる。さらに、これらの擬ボゾン演算子とフォノン演算子の線形結合を取り、全系の Hamiltonian との交換子を対角化することにより、ポーラロニック準粒子演算子を導入する。この演算子の(断熱的な)固有状態は、エネルギー的に離散的なフォノン(実ボゾン)とプラズモンおよびエネルギー的に連続的な電子・正孔対から成るので、過渡的 FR 状態およびフォノン・プラズモン結合状態をボゾン間相互作用に基づく同一の理論的枠組みの中で扱うことが可能になる。

一方、(ii)の時間発展は、ポーラロニック準粒子演算子の構成成分である上記のボゾン演算子の展開係数の時間微分によって決定される。これは、ポーラロニック準粒子の断熱的状态間の非断熱相互作用に対応する。

以上のように、ポーラロニック準粒子を導入することにより、当該系の物理はフォノン、プラズモンおよび電子・正孔対の断熱的時間変化とそれらの間の非断熱結合により理解することができる。このような描像に基づくと、実験で確認されている過渡的 FR およびフォノン・プラズモン結合状態は、非断熱結合に起因する物理効果として統一的に解釈することが可能になる。

#### 4. 研究成果

本研究期間において、特に、前述の方法論を離散準位に対応するフォノンと連続準位に対応する電子・正孔対の二つの寄与のみを考慮した最も簡単なモデル(1 離散+1 連続 Fano 問題)に適用する。このモデルを用いる

と、(下記で言及するように)適切な近似下で、図 1 に対応する CP 振動パターンを(数値計算を要しない)解析的な表式によって示すことが可能になる。

電子・正孔対に対応する擬ボゾン演算子は、実ボゾン演算子のような生成・消滅演算子間の交換関係は満たさない。そこで、この擬ボゾン演算子間の交換関係の基底状態期待値が 1 になるようにこの演算子を再定義し、これを実ボゾンと見なす近似を導入する。これにより、当該の全 Hamiltonian は、Fano-Anderson 型の Hamiltonian と同じ形式になり、ポーラロニック準粒子演算子の解析的な表式が求まる。これを用いて、研究方法(ii)の段階の時間発展を解析する。この時間発展は、準粒子演算子に対する遅延 Green 関数を求める問題に帰着される。この Green 関数が分かれば、フォノンに対応する遅延 Green 関数も求められる。当該モデルは 1 離散+1 連続 Fano 問題であるため、このフォノン Green 関数は、複素エネルギー面の下半面に周回径路を持つ複素積分により近似的に評価できる。以上の手続きにより、CP 振動パターンの解析的な表式を得ることができた。

得られた表式には、2 つの振動モードが現れる。照射パルス強度が小さいときは、L0 フォノンの振動数に対応するモードのみが残り、もう 1 つは消滅する。一方、照射パルス強度大きいときは、2 つのモードともに CP 振動パターンに寄与する。これらのうち一方は上記の L0 フォノンモードに対応するのであるが、他方は新規なモードである。これら両モードの干渉により、図 1 の初期時間領域の不規則振動が発現したと理解することができる。ここで、両モードともに、フォノンの自己エネルギーにより振動数が変調するほかに、時間的なダンピングを示すことが分かった。特に、新規なモードに対しては、このダンプは過渡的 FR の崩壊寿命に対応するものであらうと考えられる。

以上の CP の時間シグナルを CP の周波数スペクトルへ変換することによって、図 1 の初期時間領域におけるスペクトル分布を解析できる。これによると、照射パルス強度大きいとき、FR の特徴である非対称性が発現することが分かった。さらに、ここで得られた解析的な表式により、非対称を示す Fano  $q$ -パラメータや崩壊寿命の物理的な起因を理解

することができた。

これらの結果から過渡的 FR の定性的な理解が可能になり、 $n$  型 Si における CP の実験結果およびポーラロニック準粒子の過渡的生成と消滅に関する仮定を検証することに成功した。

上記の研究結果は、最も簡単な 1 離散+1 連続 Fano 問題に限定したものであるが、研究方法に記した方法は、2 離散+1 連続 Fano 問題などより複雑なモデル系にも適用可能である。しかるに、対応する Fano-Anderson 型 Hamiltonian の解を用いて解析的な表式を得ることが困難になる。そこで、この Hamiltonian へ近似的に帰着することなく、数値的に解析する定量的なレベルの研究が現在進行中である。これにより、上記の近似的な Fano-Anderson モデルによる結果の妥当性と、フォノン・プラズモン相互作用を取り込んだ系での解析が可能になる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 9 件)

H. Takenaka, N. Maeshima, and K. Hino,

“Spin and Orbital Correlation in Photoexcited States of Multi-Orbital Hubbard Models”, **JPS Conference Proceedings** (2014)[印刷中]. [査読有]

N. Maeshima, K. Yamada, and K. Hino,

“Laser-Controlled Exciton Fano-Resonance in Semiconductor Superlattices”, **J. Phys.: Condens. Matter** **25**, 435801\_1-6 (2013). [査読有]

doi:10.1088/0953-8984/25/43/435801

Yuya Nemoto, Ken-ichi Hino, and Nobuya Maeshima, “Quasienergy resonance in dynamic Wannier-Stark ladder”, **Phys. Rev. B** **87**, 205305\_1-13 (2013). [査読有]

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.87.205305>

Y. Nemoto, N. Maeshima, and K. Hino,

“Significance of decay mechanism into continuum in dynamical Wannier-Stark ladder”, **AIP Conf. Proc.** **1566**, 241 (2013). [査読有]

<http://dx.doi.org/10.1063/1.4848375>

N. Maeshima, K. Yamada, and K. Hino,

“Laser-induced Fano resonance in semiconductor superlattices”, **AIP Conf. Proc.** **1566**, 514 (2013). [査読有]

<http://dx.doi.org/10.1063/1.4848511>

K. Moriya, N. Maeshima and K.I. Hino,

“Dynamical properties of photogenerated polarons in one-dimensional dimerized Mott Insulators”, **Eur. Phys. J. B** **85**, 350 (2012). [査読有]

10.1140/epjb/e2012-30690-0

Nobuya Maeshima and Ken-ichi Hino,

“Parallelization of the R-matrix propagation method for the study of intense-laser-driven semiconductor superlattices”, **Comput. Phys. Commun.** **183**, 8-14 (2012). [査読有]

[dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2011.07.022](http://dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2011.07.022)

Nobuya Maeshima and Ken-ichi Hino,

“Dynamical Fano resonance of an exciton in laser-driven semiconductor superlattices”, **Phys. Rev. B** **85**, 205351\_1-9 (2012). [査読有]

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.85.205305>

Nobuya Maeshima, Kosuke Moriya, and Ken-ichi Hino, “Optical response of polarons and solitons in one-dimensional Peierls-Hubbard model”, **J. Phys. Soc. Jpn.** **81**, 104708\_1-7 (2012). [査読有]

10.1143/JPSJ.81.104708

10.1143/JPSJ.81.104708

[学会発表](計 14 件)

Y. Watanabe, Y. Nemoto, K. Hino, and N. Maeshima, “Polaronic Quasiparticle Picture for Coherent Phonon Dynamics in Semiconductors”, ICPS 2014 (2014 年 08 月 09 日~2014 年 08 月 15 日, Austin, USA). [発表予定確定].

Y. Watanabe, Y. Nemoto, K. Hino, and N. Maeshima, “Semiclassical Theory of Coherent Phonon Generation Accompanying Transient Fano Resonance in Semiconductors”, APS March Meeting 2014 (2014 年 03 月 03 日~2014 年 03 月 07 日, Denver, USA).

Y. Nemoto, K. Hino, and N. Maeshima, "Quasienergy resonance in a dynamic Wannier-Stark ladder", APS March Meeting 2014 (2014年03月03日~2014年03月07日, Denver, USA).

K. Hino, F. Ohno, Y. Nemoto, and N. Maeshima, "Collapse of Fractal Structure in a Dynamic Fractional Stark Ladder Driven by an Intense THz Laser", APS March Meeting 2014 (2014年03月03日~2014年03月07日, Denver, USA).

H. Takenaka, N. Maeshima, and K. Hino, "Spin and Orbital Correlations in Photoexcited States of Multi-Orbital Hubbard Models", SCES 2013 (2013年08月05日~2013年08月09日, Univ. of Tokyo, Tokyo, Japan).

根本裕也、日野健一、渡辺陽平、前島展也「過渡的ファノ共鳴を伴ったコヒーレントフォノンにおける解析的表式の導出」、日本物理学会 第69回年次大会 (2014年03月27日~2014年03月30日, 東海大学湘南キャンパス)。

大野文隆、根本裕也、日野健一、前島展也「分数型動的ワニエ-シュタルク階段におけるフラクタル構造と多チャンネル効果」日本物理学会 第69回年次大会, (2014年03月27日~2014年03月30日, 東海大学湘南キャンパス)。

井本文裕、前島展也、日野健一「2軌道縮退ハバード模型における光誘起ダイナミクス」日本物理学会 第69回年次大会 (2014年03月27日~2014年03月30日, 東海大学湘南キャンパス)。

守家康介、前島展也、日野健一「一次元パイエルスハバード模型における光照射後の時間発展」日本物理学会 第68回年次大会 (2013年03月26日~2013年03月29日, 広島大学)。

根本裕也、渡辺陽平、前島展也、日野健一「超短パルス照射半導体におけるコヒーレントフォノン生成のファノ-アンダーソン模型」日本物理学会 第68回年次大会 (2013年03月26日~2013年03月29日, 広島大学)。

Y. Nemoto, N. Maeshima, and K. Hino, "Significance of Decay Mechanism into

Continuum in Dynamical Wannier-Stark ladder", 半導体物理国際会議 2012 (ICPS2012) (2012年07月29日~2012年08月04日, Zurich, Switzerland).

Y. Nemoto, N. Maeshima, and K. Hino, "Destabilization of Dynamic Wannier-Stark ladder", 励起子過程国際会議 2012(EXCON2012) (2012年07月02日~2012年07月06日, Groningen, the Netherlands).

K. Moriya, N. Maeshima, and K. Hino, "Dynamical properties of photogenerated polarons in one-dimensional dimerized Mott Insulators", 励起子過程国際会議 2012(EXCON2012) (2012年07月02日~2012年07月06日, Groningen, the Netherlands).

柄澤朋宏、前島展也、日野健一「半導体におけるコヒーレントフォノンの多チャンネル散乱理論による解析」日本物理学会 2011年秋季大会、2011年9月21日-24日, 富山大学)。

#### 〔図書〕(計 1 件)

Ken-ichi Hino, Muneaki Hase, and Nobuya Maeshima, "Exciton Fano Resonance in Semiconductor Heterostructures and its Related Phenomena", in "*Exciton Quasiparticles: Theory, Dynamics and Applications*", Ed. R. M. Bergin (Nova Science Publishers, New York, 2011) 303-356 (総数409)。

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

日野 健一 (HINO, Ken-ichi)  
筑波大学・数理物質系・教授  
研究者番号：90228742

##### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

##### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：