

氏名	渡辺 陽平
学位の種類	博士（工学）
学位記番号	博甲第8485号
学位授与年月日	平成30年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	

Theoretical Study on Quantum Dynamics of Coherent Phonon Generation in the Early-Time Region (初期時間領域におけるコヒーレントフォノン生成量子ダイナミックスの理論研究)

主査	筑波大学教授	工学博士	日野 健一
副査	筑波大学教授	博士(工学)	長谷 宗明
副査	筑波大学教授	理学博士	矢花 一浩
副査	筑波大学准教授	博士(工学)	近藤 剛弘
副査	東京工業大学特任教授	理学博士	萱沼 洋輔

## 論文の要旨

高強度超短パルスレーザーを半導体に照射すると、位相が揃ったフォノンが瞬時に励起され、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はコ  
ヒーレントフォノンと呼ばれ、Si、Ge や GaAs などの半導体で観測されている。従来、この振動パターンは  
古典力学に基づく減衰強制振動モデルにより理解されてきたが、生成初期の数 10fs 程度の時間領域  
(初期時間領域という)に発現する超高速な量子力学的効果の詳細については依然未解明である。審査  
対象論文は、初期時間領域におけるコヒーレントフォノン生成過程の物理を理解するため、精緻な量子ダ  
イナミクス理論を構築し、実験で見出されている過渡的ファノ共鳴機構の理論的解明や LO フォノン・プ  
ラズモン結合に起因する新規な物理現象の理論的提示を行ったものである。

第1章では、コヒーレントフォノン生成に関するこれまでの研究背景を述べている。特に、これを理解す  
るため構築されてきた従来の理論的模型(現象論的な強制減衰振動子に基づく模型および量子論に基  
づく微視的模型)およびコヒーレントフォノン生成に付随する過渡的ファノ共鳴に関する説明を行って  
いる。さらに、当該研究の目的を三項目に分けて明示している。第1の目的は、コヒーレントフォノン生成の  
量子ダイナミクスを記述するために、ポーラロニック準粒子模型を構築することである。第2の目的は、  
この模型に基づき、実験で観測されている過渡的ファノ共鳴の物理的起因を解明し、さらに初期時間領

域に未だ見出されていない量子力学的効果を探査することである。第3の目的は、様々なパルスレーザー照射条件下でコヒーレントフォノンの振動パターンや関連する周波数スペクトルがいかに変化するかを調べ、実験データとの比較を行うことである。

第2章では、ポーラロニック準粒子模型の理論的な構築に関して詳述している。ポーラロニック準粒子とは、電子・正孔系の個別励起モード(連続状態)、集団励起モード(プラズモン)およびLOフォノンモードからなる時間に関して断熱的な擬ボソンである。これに対応する運動方程式を導出し、非断熱結合項はランダウーツェナー型で時間に関してデルタ関数的な振る舞いをするを仮定して、ポーラロニック準粒子演算子の近似的な解析解の表式を導出している。これは第1章で言及した第1の目的に対応する。

さらに、第2の目的である過渡的なファノ共鳴ダイナミクスを理解するために、この解析的表式に、LOフォノンおよびプラズモンを閉じた散乱チャンネル、電子連続状態を開いた散乱チャンネルとするファノ理論を適用して、電子密度の遅延相関関数およびLOフォノンの遅延グリーン関数を導出している。これらを用いて当該の非平衡系における観測物理量の基礎となる遅延縦感受率の表式を求めている。この遅延縦感受率の虚数部は非平衡状態にある電子及びLOフォノンの励起状態からの光放出(負の光吸収、光学利得)に対応するので、これに基づきコヒーレントフォノン生成機構に内在する物理を抽出できると考えている。以上で導出したポーラロニック準粒子状態は、過渡的なファノ共鳴状態を記述している。ただし、ファノ理論を適用するにあたって、ポーラロニック準粒子の断熱エネルギーが実であることを仮定するので、ここで構築した模型は、励起パルスレーザーの強度が比較的小さく、キャリア密度が低い場合に適用が制限されると考えている。

第3の目的である更なる量子力学的効果の探索に当たって、励起パルスレーザーの強度が大きい高キャリア密度励起状態に適用できる模型を構築する必要がある。そのため、ポーラロニック準粒子状態を、その構成要素である電子の連続状態、LOフォノンおよびプラズモンからなる系の離散化された断熱複素固有エネルギー状態(共鳴散乱状態ではなく)であるとする近似を行っている。ここで、この固有エネルギーの虚数部は、ポーラロニック準粒子状態の(断熱的な)崩壊寿命を表している。この模型をLOフォノンの遅延グリーン関数に適用して、コヒーレントフォノンの時間信号およびそのフーリエ変換である周波数スペクトルを記述する表式を導出している。

第3章では、本研究で構築した理論模型を適用した計算結果を示し、考察を行っている。この章は4つの節からなっている。第1節および第2節では、それぞれ上記の第2および第3の目的に対応したものである。第3節では、第2章で構築した理論と他の理論との比較を行っている。第4節では、当該の理論模型をコヒーレントフォノン生成に適用するにあたって、妥当性を議論している。以下、特に、第1節と第2節の内容要旨について記述する。

第1節では、非ドープSi結晶およびGaAs結晶におけるコヒーレントフォノン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ている。これによると、Si結晶においては、65fsにおいて非対称なファノ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を示している。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、ファノ型の共鳴が発現しないことを実証している。こ

これは、電子・正孔の個別励起モード及びプラズモンとLO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示している。すなわち、これは、Si 結晶においては電子・LO 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 結晶においてはフレリッヒ相互作用が支配的であることを反映して純虚数であることが、両者の系での相違を引き起こしていることを突き止めている。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シヨアの共鳴散乱模型に基づいて、整合的に説明ができることを示している。また、空間群に基づく考察により、高キャリア密度励起による対称性の低下により、中心対称性を有する Si 結晶のLOフォノン状態からの光放出が許容になることを示している。ポーラロニック準粒子状態の非断熱結合がファノスペクトル形状に及ぼす効果についても評価している。

第2節では、まずコヒーレントフォノン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)に対する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)依存性を調べている。これによると、励起パルスレーザーの強度がある程度大きくなり、プラズモンとLO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る際、コヒーレントフォノン信号に顕著な変化が発現することを示している。さらに、過渡的な励起キャリア密度の増加に応じて、コヒーレントフォノン信号の振幅および位相のずれがラビフロッピングに従う変化を示すことを見出している。また、これらの信号における励起パルスレーザーの離調依存性も調べ、実験値との比較を行っている。

第4章では、本研究の結論である。さらに本論文における(主として第2章の)補足として、付録 A-F が追記されている。

## 審 査 の 要 旨

[批評]

総評としては、この学位論文の研究内容は、当該分野における基幹学術雑誌である Physical Review B 誌に 2 報の原著筆頭論文として既に掲載されていることもあり、完成度の高い学位論文であると評価された。さらに、今後の研究展開も期待できるとのコメントもあった。そのうえで、下記のようなコメントがあった。

- ・第 3 章第1節で計算した物理量である過渡的光放出スペクトルが、必ずしも実験で観測されている反射率変化と同じではないので、両者間の関係を示したほうが良い。
- ・第 3 章第 2 節で計算した物理量であるコヒーレントフォノン信号のフーリエ変換周波数スペクトルの形状を調べる際、そのメジャーとしてファノ共鳴スペクトル形状を表す際常用される  $q$  パラメータが導入されている。この周波数スペクトルの非対称性は、必ずしもファノ共鳴効果に起因するものではないので、上記パラメータに関して補足的な説明をしないと、読者に混乱が生じる懸念がある。
- ・第 3 章第 2 節において見出された新規な効果は量子力学的効果であると記載されているが、LOフォノンを古典力学的に扱った場合いかなる相違が生じるか検証が必要である。

〔最終試験結果〕

平成 30 年 2 月 14 日、数理物質科学研究科学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。