

大森 賢治

自然科学研究機構・分子科学研究所・光分子科学研究領域・研究主幹・教授

アト秒精度の凝縮系コヒーレント制御

§1. 研究実施体制

(1)「大森」グループ

- ① 研究代表者: 大森 賢治 (自然科学研究機構・分子科学研究所・光分子科学研究領域、研究主幹／教授)
- ② 研究項目
 - ・研究全体の統轄
 - ・超高速量子シミュレーターの開発とバルク固体コヒーレント制御への応用
 - ・アト秒精度のバルク固体コヒーレント制御(中村グループと共同)
 - ・デコヒーレンス制御技術の開発

(2)「中村」グループ

- ① 主たる共同研究者: 中村 一隆 (東京工業大学応用セラミックス研究所、准教授)
- ② 研究項目
 - ・アト秒精度のバルク固体コヒーレント制御(大森グループと共同)
 - ・アト秒精度のバルク固体コヒーレント制御のための予備実験と検出系の開発

(3)「萱沼」グループ

- ① 主たる共同研究者: 萱沼 洋輔 (大阪府立大学21世紀科学研究機構、特認教授)
- ② 研究項目
 - ・凝縮系のアト秒コヒーレント制御理論の構築

§ 2. 研究実施内容

(文中の引用番号等は(3-1)に対応する)

・リユードベリ電子波束の観測

冷却 Rb 原子集団中に生成したリユードベリ電子波束の時間発展について、リユードベリ状態間に誘起される強い van der Waals 力に起因した多体相互作用の密度依存性を調べた。磁気光学トラップ中(原子数密度 10^{10}cm^{-3} 程度)、および光双極子トラップ中(原子数密度 10^{12}cm^{-3} 程度)の Rb 原子に対して、ピコ秒光パルスを用いたポンプ・プローブ測定を行い電子波束の時間発展を観測した。中心波長 594nm・時間幅 2ps の光パルスによる二光子励起を利用して、55d 状態を中心とした主量子数の異なる d 状態をコヒーレントに重ね合わせた動径振動波束を生成した。55d 状態は直径にして約 600nm の広がりを持ち、これは次年度に導入予定の光格子の間隔(532nm)と同程度であるため、光格子中にトラップされた際には隣接サイトの波束との空間的重なりによってバンド構造を形成すると期待される。この波束をプローブ光によりイオン化し、振動波束の時間発展を測定した。また、基底状態とリユードベリ状態間のエネルギー差(33650cm^{-1} 程度)を反映した振動周期約 1fs の量子干渉の実時間発展を観測することに成功した。上記2つのトラップ中では原子数密度の違いからリユードベリ状態間の相互作用によるエネルギーシフトに差が生じる。このエネルギーシフトを、1fs 周期の量子干渉信号において、位相シフトとして観測することに成功した。

・超伝導体のコヒーレントフォノン計測と制御

酸化物超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$ の2つの光学フォノンモード(Cu-O, Ba-O)のコヒーレントフォノン振幅強度を超伝導状態である 8K で制御することに成功した。鉄系酸化物超伝導体 $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x(x=0.075)$ のコヒーレントフォノンを超伝導状態である 12K で計測することに成功した。測定で得られたフォノンのパラメータは室温でのものと大きくは変わらず、超伝導に対するフォノンの影響は強くないことが分かった。また、 $\text{FeTe}_{0.75}\text{Se}_{0.25}$ についてもフェムト秒過渡反射率計測を行い、キャリア寿命やコヒーレントフォノン寿命を求め、電子-フォノン結合定数を見積もった。

・トポロジカル絶縁体のコヒーレントフォノン計測

近年トポロジカル絶縁体として注目を集めている Bi_2Se_3 の過渡反射率計測を行い、コヒーレントフォノンのダイナミクスを調べた。40fs のパルスレーザーパルスを用いることで、これまでに報告のある 2.14THz の A_{1g}^1 モードに加えて、5.09THz の A_{1g}^2 モードのコヒーレントフォノン振動が初めて計測できた。それぞれのモードの減衰速度が 0.26THz, 1.28THz と求められた。また、ふたつのモードの振動初期振幅が $\pi/2$ 異なっており、 A_{1g}^1 モードはサイン関数的に、 A_{1g}^2 モードはコサイン関数的に振動していることが分かった。このことは、励起状態のポテンシャルが、 A_{1g}^2 モード方向にはシフトが大きいものに対して、 A_{1g}^1 モード方向には

ほとんどシフトしていないことを示唆している。

- 半導体における準粒子の発生と計測および制御

半導体 GaAs 単結晶にフェムト秒レーザーパルスを照射すると、コヒーレント LO フォノンとプラズモンと LO フォノンの結合した LOPC モード振動の準粒子をコヒーレントに励起することができる。ここでは、ドーパントの異なる p-GaAs と n-GaAs を試料として用い、ダブルパルス励起による LO フォノンと LOPC の制御実験を行った。その結果、タイプによって制御性が異なることが観測され、光励起による LO フォノン放出に比べてプラズモン形成に時間遅れを見積ることができた。

- 振動外場による量子ダイナミクスのコヒーレント制御理論

前年度に、Dynamical Band Gap Collapse の現象が Bragg 後方散乱の位相干渉による抑制に起因することを明らかにしたが、本年度は、これを利用してブロッホ電子のポテンシャル散乱やトンネル効果を制御する可能性を研究した。これは固体中の電子のみならず、光学格子中に捕捉された冷却原子系(量子シミュレーター)においても実現可能である。時空間の双方で振動的な変調を加えられた系の散乱問題を、Floquet-Bloch 理論を Lippmann-Schwinger の散乱方程式に適合させることで、新たな定式化に成功した。この定式を1次元 tight binding model に適用し、約100サイトにわたってパイエルス絶縁体状態の部分に金属状態をサンドイッチしたモデルにおける電子の透過率を計算した結果、ギャップ崩壊に対応して完全反射と完全透過の2状態を振動外場によってスイッチできることを確認した。また、ポテンシャルバリアを有する系において、振動量子による反束縛状態を中間状態とする assisted tunneling のチャンネルが存在することなど、特異な現象を理論的に発見した。

- コヒーレントフォノン場中の時間・周波数分解反射スペクトルの理論

凝縮系の電子に振動的な外場を加える一つの方法は、コヒーレントフォノンを発生させることである。コヒーレントフォノンは、プローブ光の反射(または透過)スペクトルに対する変調として観測される。従来の測定では、中心周波数の決まったプローブパルスの全反射強度を、スペクトル分解せずに集光し測定するが、これを分光して観測周波数の関数として測定することにより、飛躍的に情報量が増えることに着目し、周波数分解過渡反射スペクトル(Dispersed Pump Probe)の理論を構築した。半導体を対象として計算した結果、透明域プローブの場合と不透明域プローブの場合とで、大きく異なる時間・周波数分解スペクトルが観測されることを予言した。これは複素誘電関数の定性的な違いによる。この結果は CdTe、Bi などで観測されている報告例を良く再現する。

- デコヒーレンス制御技術の開発

非共鳴の赤外高強度フェムト秒レーザーパルスを照射して分子の電子ポテンシャルに擾乱を加えることによって、波束内の直交した複数の振動固有状態が混ざり合い干渉する「強レーザー誘起量子干渉」という新しい物理現象を見いだした。強レーザー誘起量子干渉は様々な量子系のあらゆるタイプの量子固有状態に共通の普遍的な現象であり、量子系に書き込まれた情報を書き換えユニバーサルな論理ゲートを実行するための基盤技術として期待されるほか、デコヒーレンス制御の新しい手法としても期待される。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

1. H. Goto, H. Katsuki, H. Ibrahim, H. Chiba, and K. Ohmori, “Strong-laser-induced quantum interference”, *Nature Physics* 7, 383-385 (2011). (DOI:10.1038/nphys1960)

Covered by “News and Views” in Nature Physics; Nature Physics 7, 373 (2011).

Covered by “Research Highlights” in Nature Photonics; Nature Photonics 5, 382 (2011).

2. Y. Okano, H. Katsuki, Y. Nakagawa, H. Takahashi, K. G. Nakamura, and K. Ohmori, “Optical manipulation of coherent phonons in superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-t}$ thin films”, *Faraday Discussions* 153, 375-382 (2011). (invited paper) (DOI:10.1039/C1FD00070E)

3. Jianbo Hu, Oleg V. Misochko, Hiroshi Takahashi, Hiroaki Koguchi, Takayuki Eda, and Kazutaka G. Nakamura, “Ultrafast zone-center coherent lattice dynamics in ferroelectric lithium tantalate”, *Science and Technology of Advanced Materials*, vol. 12, No. 1, 034409 (4pp) 2011 (DOI:10.1088/1468-6996/12/3/034409)

4. Oleg V. Misochko, Jianbo Hu, and Kazutaka G. Nakamura, “Controlling phonon squeezing and correlation via one- and two-phonon interference”, *Physics Letters A*, vol. 375, pp. 4141-4146, 2011. (DOI:10.1016/j.physleta.2011.09.054)

5. Jianbo Hu, Oleg V. Misochko, and Kazutaka G. Nakamura, “Direct observation of two-phonon bound states in ZnTe”, *Physical Review B* vol. 84, 224304 (4 pp), 2011, (DOI: 10.1103/PhysRevB.84.224304).

6. Kazutaka G. Nakamura, Jianbo Hu, Katsura Norimatsu, Arihiro Goto, Kyushiro Igarashi, and Takao Sasagawa, “Observation of coherent higher frequency A_{1g} phonons in Bi_2Se_3 using femtosecond time-resolved reflection measurement”, *Solid State Communications* (in Press), (DOI:10.1016/j.ssc.2012.02.004).

7. Y. Kayanuma, "Quantum Betatron", *J. Phys. Conf. Series*, 302, 012041(4 pages), 2011 (DOI:10.1088/1742-6596/302/1/012041).

(3-2) 知財出願

① 平成 23 年度特許出願件数(国内 0 件)

② CREST 研究期間累積件数(国内 0 件)