

称号及び氏名 博士（工学） 水本 義彦

学位授与の日付 平成18年12月31日

論文名 「振動外場による電子状態の変調と  
コヒーレントダイナミックス」

論文審査委員 主査 萱沼 洋輔

副査 大同 寛明

副査 石原 一

## 論文要旨

近年の技術の進歩に伴い、高強度レーザーの作成が比較的容易になった。それにより、光を物質の電子状態を探るプローブとしてだけでなく、原子や分子の電子波動関数をコヒーレントな変調を通じて操り物性を変化させるツールとして用いる事が可能になってきた。

高強度レーザー場にさらされた電子の動力学は大きな変調を受け、その動力学の変化が物質の光学的な性質にも大きな変化を与える。その様な変化を理論的に扱うためには、光と電子系との相互作用を摂動としてではなく厳密に取り込む必要がある。また、レーザー場に揺すられた系は強い非定常状態であり、定常状態に対して導出された多くの定式化を利用する事は不可能である。そのため、レーザー場中の物性を扱うためには基本から新たな定式化を行う必要がある。

その様な背景から、振動外場の下での電子状態の時間発展の変調と、それに伴うバンド構造、光学的性質の変化を明らかにする事を目的として研究を行った。

本論文は二部構成となっており、第I部は4章構成、第II部は5章構成になっている。

第I部では『振動電場により変調された準位交差系の非断熱遷移』について研究した。時間に依存する外場の下での量子系の時間発展は以前から研究がなされてきたが、レーザー技術の進歩や微細加工技術の進歩により Rabi 振動の様なコヒーレントな現象の直接観測が可能になった事から、理論的に提案、予言されてきた現象を実験的に確認する研究が盛んに行われる様になっている。また、量子コンピューターの様な将来の量子デバイスへの応用という面も、研究が推進されている大きな理由である。これまでに、量子ドット間の Rabi 振動を利用した量子ビットなど、様々な量子ビットの実現方法が提案されているが、どのような量子ビットも基本的には二準位系である。つまり、二準位系は量子ダイナミックス研究の上で最も基本的な系として重要であるだけでなく、応用面においても重要である。以上の様な背景から本研究を行った。

第1章では、

上述に示した背景と、関連する論文を示し、本研究を行う意義と、その位置づけを示した。また、本研究に非常に関連が

ある問題として、エネルギー準位が交差する場合に起こる Landau-Zener tunneling と、交差時の遷移確率を表す Landau-Zener 公式について示した。最後に本研究の目的を示し、第 I 部の構成を示した。

第 2 章では、本研究で扱った系のモデルを示し、更に系の時間発展を表す近似解の定式化を行った。具体的には、エネルギー差が一定速度で時間変化する二準位系(Zener モデル)に外場によるエネルギー振動が加わったモデルを扱った。系の時間発展を表す近似解を求めるために、Schrödinger 方程式の変形により振動外場の量子を持つ多数の準位が交差する描像(仮想多準位描像)を導出した。多数の仮想準位の交差による population の時間発展を転送行列近似を用いて計算した。

転送行列近似とは時間発展を交差の瞬間とそれ以外に分け、交差の瞬間の変化を転送行列で、それ以外を位相のみの変化で表す手法である。転送行列を用いて導出した式をまとめ、各交差時における変化を表す漸化式として最終的な近似解を得た。

第 3 章では、population の時間発展に対する Schrödinger 方程式の時間積分による厳密解と、第 2 章で求めた近似解の計算結果を示した。population の時間発展は振動外場により強い変調を受け、更に、その振動数に強く依存し本質的な変化をする。準位間の遷移は準位交差の周辺でのみ起こるため、population の時間発展には階段状の急激な変化が現れる。振動数が小さい極限では、その急激な変化が実準位が交差する時刻に現れる。それに対し、振動数が大きい極限では一定の時間間隔で現れ、その時刻は仮想準位の交差に対応する。これにより、振動数が増加するに従い振動外場が緩やかに振動する古典的な外場から量子化された外場に変遷する様子が明確になった。また、一連の非断熱過程を転送行列により記述する、新たな手法の有効性を明らかにした。

第 4 章では、第 I 部の内容をまとめた。

第 II 部では、『高強度赤外レーザーによるバンド変調の理論』について研究した。

原子・分子では、高強度かつコヒーレントな電磁場下の電子系は強く変調を受け、dressed state と呼ばれる電子状態と光子が強く混成した状態をなす事が知られている。固体においても高強度コヒーレント光の照射は電子系のエネルギーバンドに強い変調を与え、それにより、原子の場合と同様にバンド構造は電磁場と強く混成し、dressed band を構成するであろう。

それに関連して、最近、Kono とその共同研究者は高強度で非共鳴の赤外レーザーをポンプ光に用い、GaAs 等の化合物半導体に対しポンププローブ実験を行った。その結果、ポンプ光の照射の下で光子エネルギーがバンドギャップに満たないプローブ光に対して新たな吸収の出現が観測された。その後の詳細な実験の結果、吸収端は高エネルギーシフトする事も明らかになった。このような変化はポンプ光が照射されている瞬間でのみ現れるので、この現象においてキャリアの実励起、および、熱の効果は無関係である。従って、この実験結果はコヒーレントな現象として理解できる。半導体の価電子帯と伝導帯は共に、構成原子の同じ組の原子軌道により構成されている。最外殻価電子準位の s 軌道と p 軌道は混成し sp<sup>3</sup> 軌道を作り、更に最隣接原子の sp<sup>3</sup> 軌道もまた相互の混成により結合軌道と反結合軌道を作る。半導体のバンドギャップは根本的に反結合軌道と結合軌道のエネルギー差に起因する。従って、高強度非共鳴レーザー場による半導体のバンド構造の変化を定量的に調べるためには、電子系を原子軌道を用いて記述し、量子力学的混成と電子系とレーザー場との相互作用を同時に基本から扱う必要がある。更に、強レーザー場で揺さぶられた電子系は非定常状態であり、Fermi の黄金則に基づく光学応答理論を用いる事は不可能である。従って、実験結果の解析を行うためには、強レーザー場中の半導体に対するプローブ光の光学応答の理論枠組みを再定式化する事が不可欠である。

第 5 章では、上述に示した背景と、関連する論文を示し、本研究を行う意義と、その位置づけを示した。最後に本研究の目的を示し、第 II 部の構成を示した。

第 6 章では、本研究を行う基礎として、一般的な光と相互作用している電子系のハミルトニアンを示し、本研究で用いる形式への変形を示した。

第 7 章では、高強度非共鳴レーザー場中の半導体の吸収スペクトルの定式化をその本質を調べるためにまずは一次元モデルに対して行った。レーザー場によるバンド構造の変化を扱うために、s-p 混成軌道を基底関数とした s-p 混成強束縛モデルを用いて電子系を表し、レーザー場を古典的振動電場として電子系との相互作用をあらわに取り込んだ。Bloch の定理と Floquet 理論を用いる事により dressed band を求めた。吸収スペクトルの定式化は密度行列から始め、遷移確率を導出した。

単位時間あたりの遷移確率が吸収スペクトルに対応する。非共鳴レーザー場中の半導体の吸収スペクトルを dressed

band 間の遷移として導出した。

数値計算により吸収スペクトルのレーザー場の強度、および、光子エネルギー依存性を求めた。

高強度非共鳴レーザー場は半導体の吸収スペクトルに劇的な変化をもたらす。吸収端の高エネルギー側へのシフト、および、吸収端以下の新たな吸収の出現である。それらの変化はレーザー場の強度の増加、光子エネルギーの減少に伴い顕著になる。これらの結果は前述の Kono 等の実験結果と定性的によく一致する。

吸収スペクトルの吸収端は、レーザー場の強度 0 の極限で元のエネルギーバンドと一致する main dressed band 間の遷移に対応し、吸収端の高エネルギー側へのシフトはレーザー場による dressed band 幅の減少に起因する。また、吸収端以下の新たな吸収は量子数が少数個異なる dressed band 間の遷移、つまりは pump-photon assisted band-to-band transition または動的 Franz-Keldysh 効果によると解釈できる。

第 8 章では、第 7 章の結果を基にし、実験結果を定量的な解析を行うためにより現実的な三次元閃亜鉛鉱型結晶の半導体を扱った。電子系は s 軌道と、3 つの p 軌道の原子軌道関数を基底とし、再隣接原子間のみ相互作用を取り入れた強束縛モデルを用いた。ポンプ光は古典的振動電場として、プローブ光は光子描像で、それぞれ厳密に扱った。吸収係数の導出は基本的に第 7 章と同様であるが、偏光等を含め、厳密に行った。

数値計算により、吸収スペクトルのレーザー場の強度、光子エネルギー、および、偏光依存性を求めた。吸収スペクトルの変化や、強度、光子エネルギー依存性の結果は定性的には第 7 章で得た結果と同様である。偏光依存性はポンプ光とプローブ光の偏光が成す角度のみに依存し、変化は成す角度が小さいほど顕著になるが、 $90^\circ$  の場合も変化が残った。これらの偏光依存性はポンプ光と電子系との非摂動的相互作用と結晶構造によると考えられる。これらの結果は実験結果を定性的だけでなく、定量的にもよく再現した。

本研究により、非共鳴強レーザー場中における半導体 dressed band 計算の理論的枠組みが初めて与えられた。

第 9 章では、第 II 部の内容をまとめた。

最後に、第 I 部、第 II 部の総括を示した。

## 審査結果の要旨

本論文は、レーザーなどの単色高強度でコヒーレントな振動電場中に置かれた物質の電子状態の変調および量子力学的時間的发展を理論的に研究した結果をまとめたものであり、次のような成果を得ている。

(1) エネルギー差が周期的振動外場により変調され、かつ、その平均値が一定速度で変化し交差する 2 準位系(量子ビット)の占有確率の時間的发展を、数値計算および Landau-Zener 公式を用いた転送行列近似の二つの方法により計算し比較検討した。その結果、(a) 外場の振動数の大なる極限および小なる極限で占有確率の階段関数的時間波形が現れ、その中間域では chaotic な振る舞いが現れた。前者(高振動数域)での振る舞いは、振動外場の「量子化」ともよべる現象であり、後者(低振動数域)は実際の準位交差に伴う非断熱遷移によるものと理解できる。(b) 全領域にわたって、転送行列近似がよい精度で厳密解を再現しており、極めて広いパラメータ領域において転送行列近似は有効であることを明らかにした。

(2) GaAs 結晶において観測された強赤外レーザー印加によるバンド端光学応答変調の実験結果を解析することを目標として、非共鳴高強度振動電場中における半導体バンド構造の理論を構築し、実験の解析を行った。LCAO 理論に基づき、空間的周期性と時間的周期性を、それぞれ Bloch の定理および Floquet の定理を用いて取り込み、電子状態計算の最初から振動電場効果を厳密に考慮した新しいバンド計算手法を考案した。その結果、光の場をまとった新しいバンド構造が出現することを明らかにし、これをドレストバンドと名づけた。強い非共鳴レーザー光の下での弱いプローブ光による光吸収遷移の定式化を行い、バンド端近傍の変調を計算した。その結果、本来のバンド端は高エネルギー側に移動すると同時に、低エネルギー側に新たな誘導吸収が出現することが明らかになった。これらの理論計算の結果は、実験結果を定性的のみならず定量的にも良く再現することが判明した。

(3) より一般的に、高強度レーザー場中におけるバンドギャップの変調効果を 1 次元 s-p 結合半導体モデルにより調べた。その結果、レーザーの光子エネルギーが、本来のバンドギャップより大なる時は、外場の効果によりみかけのバ

バンドギャップは減少し、逆に、本来のバンドギャップより小なる時は、みかけのバンドギャップは増大することを明らかにした。この結果は、実験事実と合致するとともに、一見、互いに矛盾しているように思われた従来の理論的予測をも統一的に理解することを可能とした。

以上の成果は、近年、急速に進歩しつつあるレーザー技術を用いた物質の電子状態操作の基礎を与え、また、量子駆動系の新規な現象の予言をもしており、物性物理学への貢献は大である。また、申請者が自立して研究活動を行うに必要な能力と学識を有することを証したものである。

本委員会は、本論文の審査および最終試験の結果から、博士（工学）の学位を授与することを適当と認める。