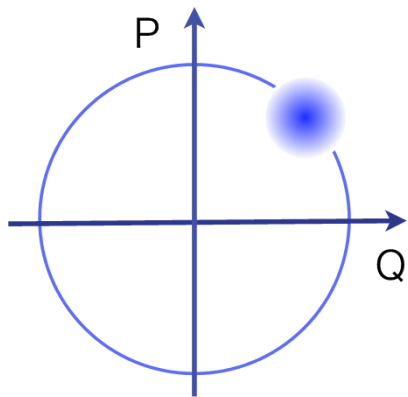


# コヒーレントフォノンダイナミクス ーフォノン波束の量子制御ー

中村一隆  
東京工業大学応用セラミックス研究所  
JST-CREST

---

## Outline

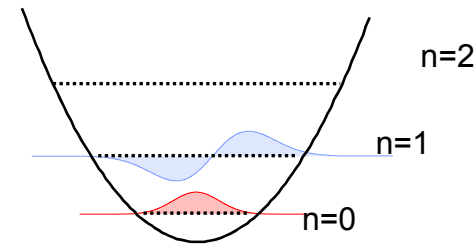


1. コヒーレントフォノンとは？
2. フェムト秒レーザーによる計測と制御
3. 時間分解X線回折による計測
4. まとめ

# コヒーレントフォノンとは？

- コヒーレントフォノンとは
  - 幾つかの振動量子状態の重ね合わせで構成された、**フォノンの波束**
  - 振動周期よりも十分短いパルス照射で励起される
  - 位相を揃えて運動する

$$|\varphi(t)\rangle = \sum_{n=0}^l C_n |n(t)\rangle$$

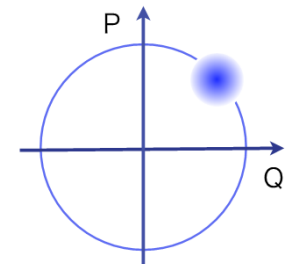


調和振動子で良い近似ができて、Poisson分布を持つ場合

$$|\varphi^{coh}(t)\rangle = e^{-|\alpha|^2/2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n(t)\rangle$$

フォノンのコヒーレント状態

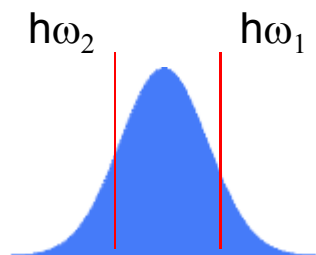
最小不確定性状態



- A. V. Kuznetsov and C. J. Stanton (PRL 73 (1994) 3243).

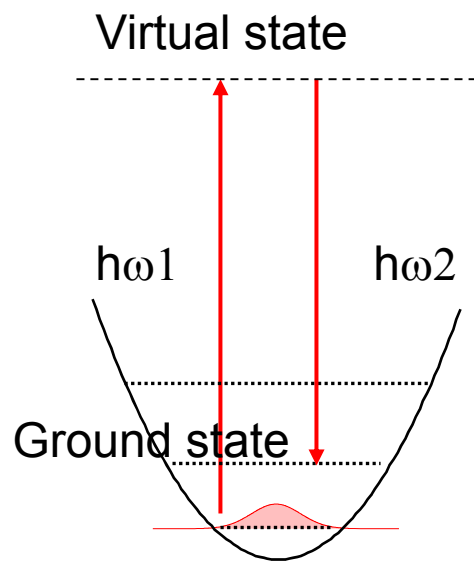
# コヒーレントフォノンの発生

パルス幅が振動周期よりも短い = レーザーエネルギー幅が振動エネルギーよりも大きい  
い  
 $\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar$

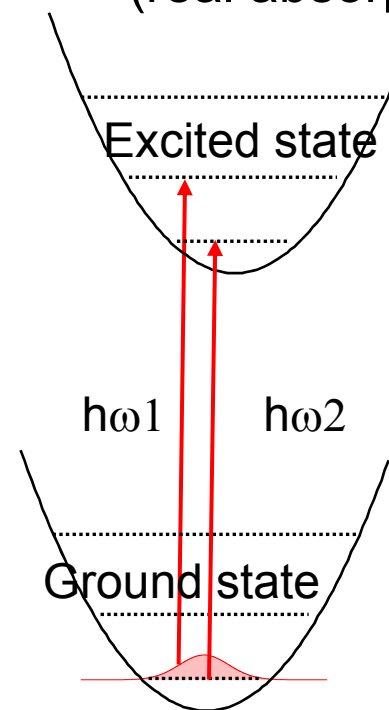


レーザー光振動数

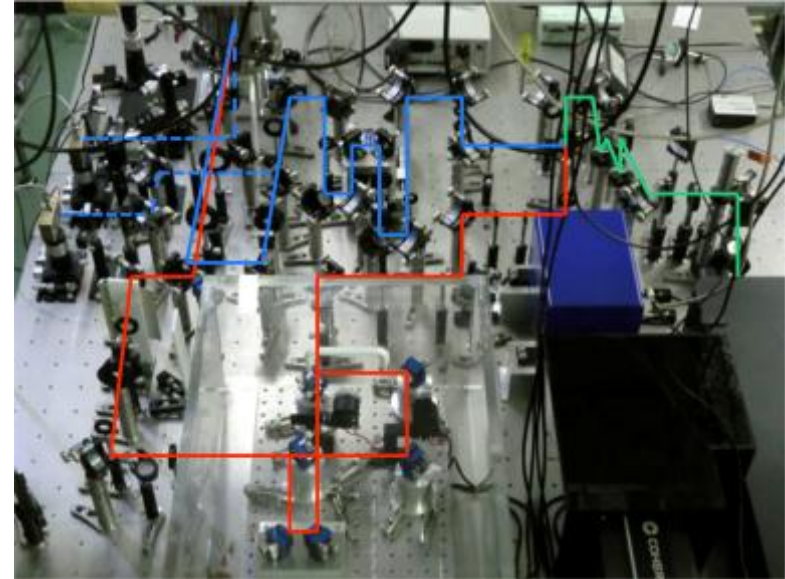
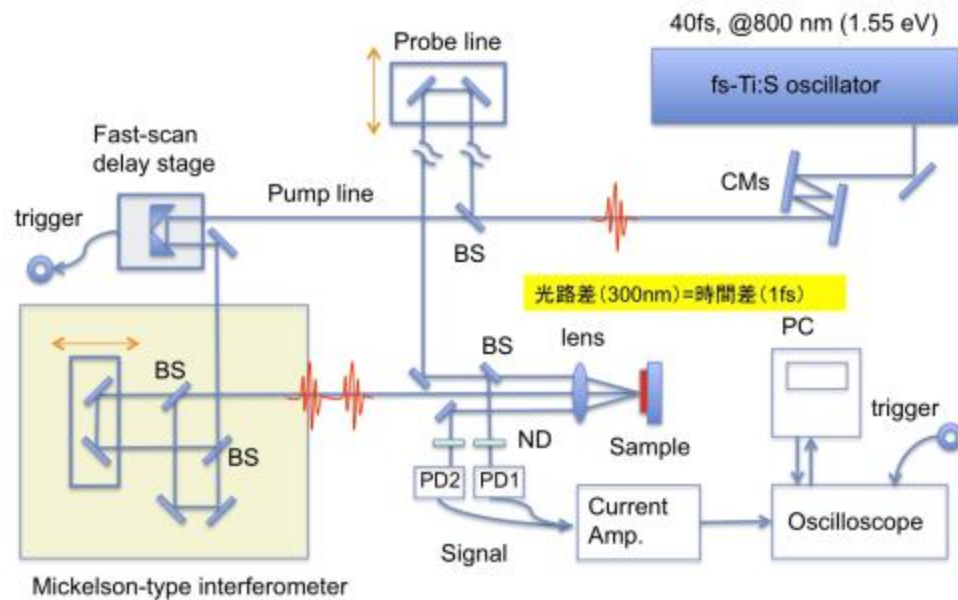
ISRS: transparent



DECP: opaque  
(real absorption)



# フェムト秒時間領域分光(FTDS)



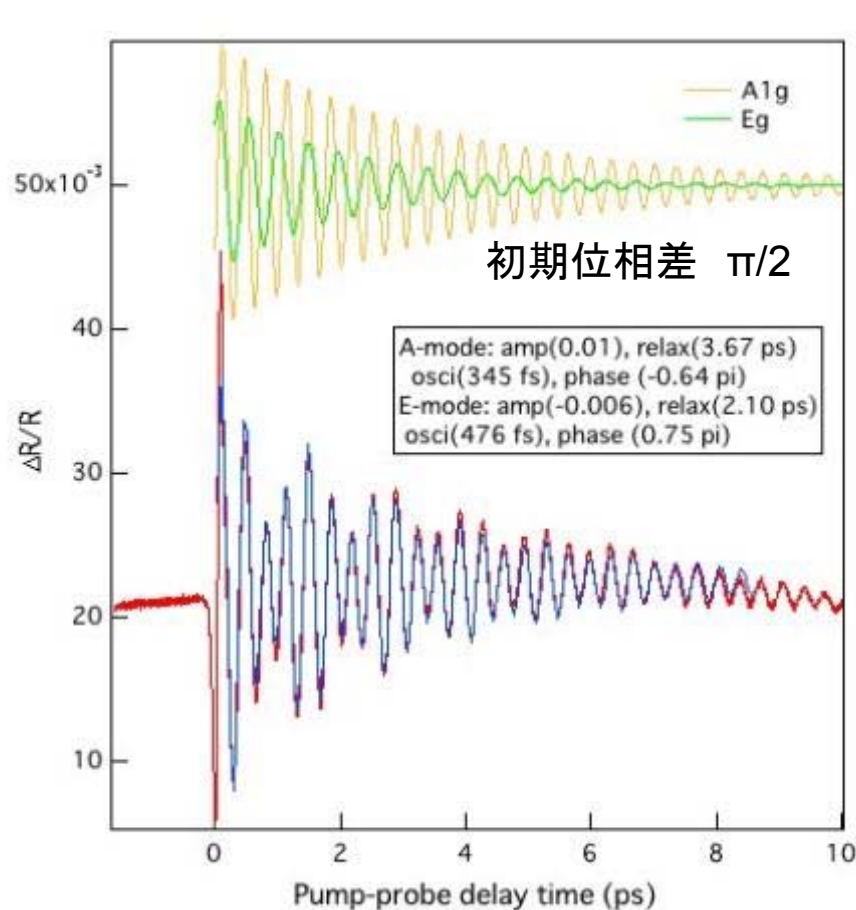
この計測法で分かること

- 電子状態
- キャリアの濃度
- フォノン振動
- スピン偏極

$$\Delta R(t) = \frac{\partial R}{\partial N} \Delta N(t) + \frac{\partial R}{\partial \chi} \frac{\partial \chi}{\partial Q} \Delta Q(t) + \dots$$

の時間発展の直接観測と制御

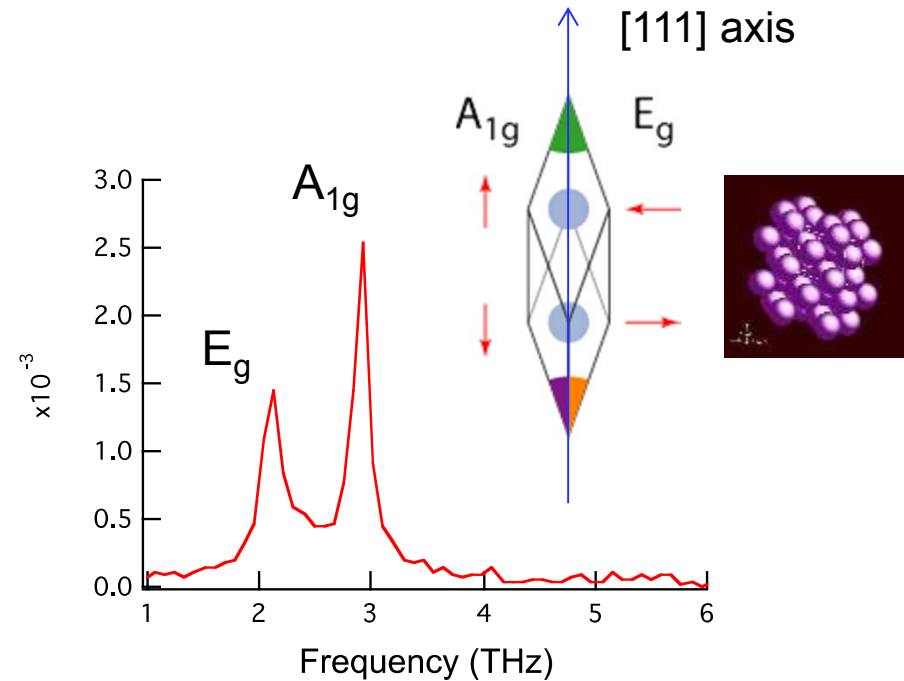
# フェムト秒時間分解過渡反射測定 Bi(111)



減衰振動フィッティング

$A_{1g}$  mode:  $T=345$  fs,  $\tau=3.67$  ps

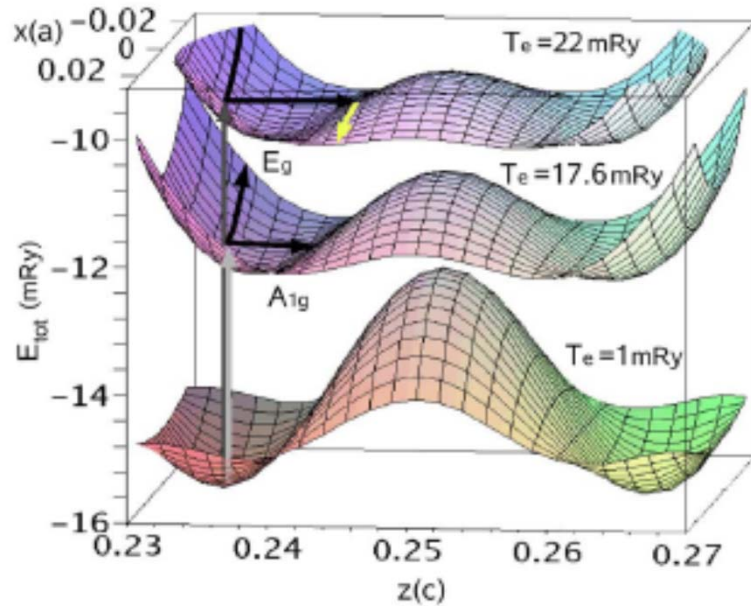
$E_g$  mode:  $T=476$  fs,  $\tau=2.10$  ps



$A_{1g}$ モードは最大変位から

$E_g$ モードは平衡点位値から 振動開始

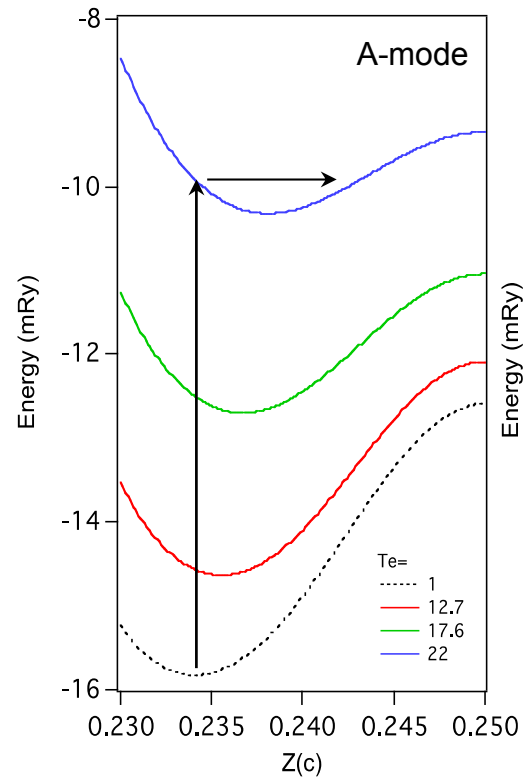
# Bi ポテンシャルエネルギー曲面



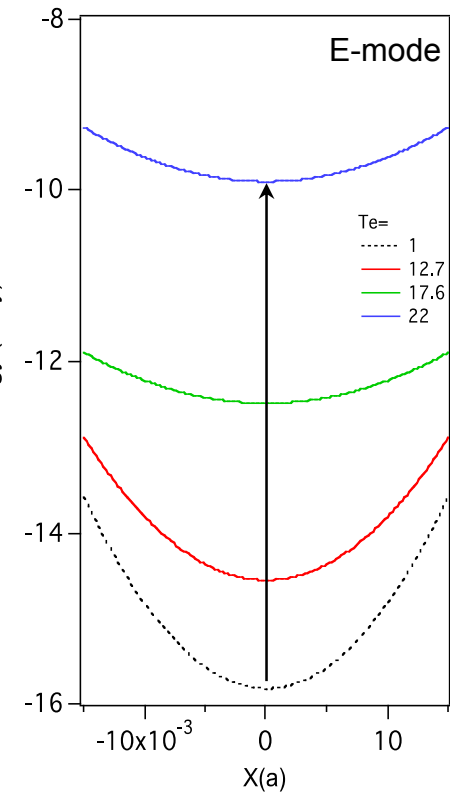
第1原理計算

Zijlstra et al. PRB 74(2006) 220301

カッセル大学との共同研究



$$\begin{aligned} \frac{\partial(\Delta R / R)}{\partial z} \\ = 0.0164 / pm \end{aligned}$$



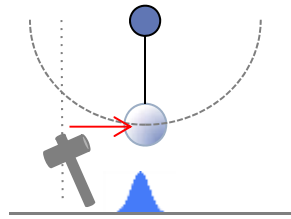
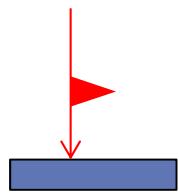
$$\begin{aligned} \frac{\partial(\Delta R / R)}{\partial x} \\ = 0.0046 / pm \end{aligned}$$

反射率 → 原子変位量

Zijlstra et al. (2011)

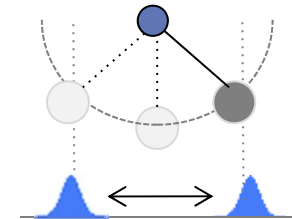
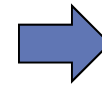
# 原子運動の制御

## 1. シングルパルス励起



コヒーレント状態

$$|\alpha\rangle = D(\alpha)|0\rangle$$

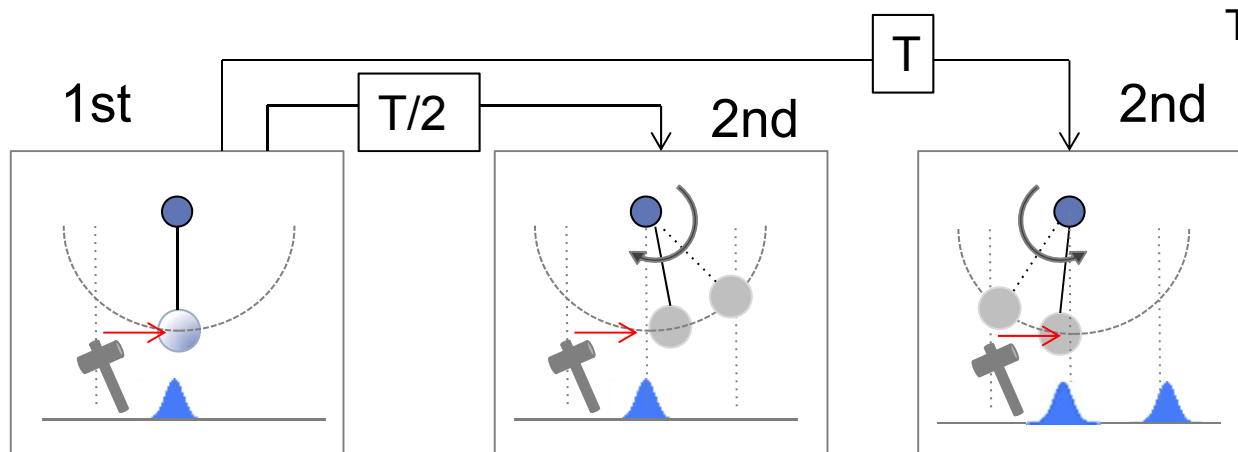
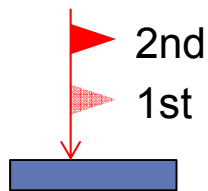


変位演算子  $D(\alpha) = \exp(\alpha \hat{a}^+ - \alpha^* \hat{a})$

$$|\alpha(t)\rangle = \exp(-i\hat{H}t/\hbar)|\alpha(0)\rangle$$

格子振動 = 振動波動関数の重ね合わせ状態

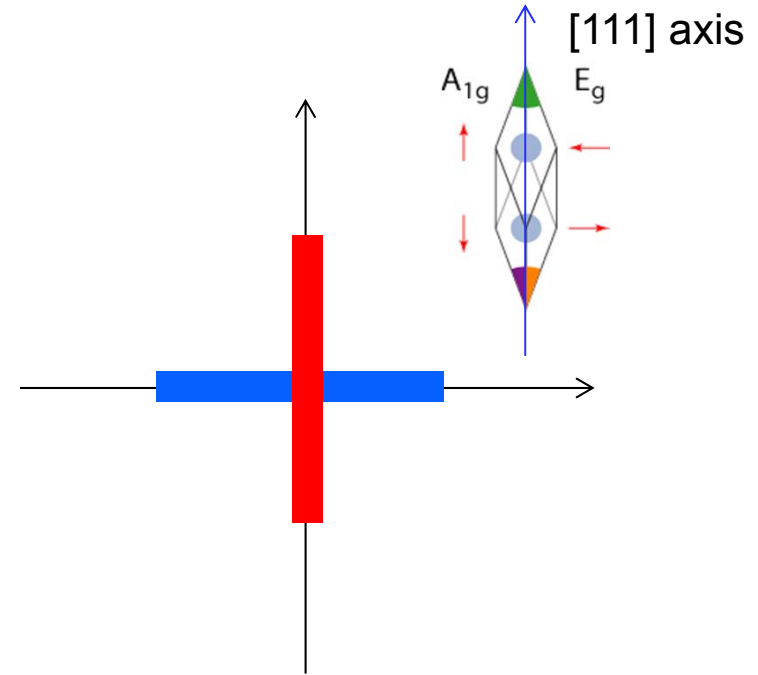
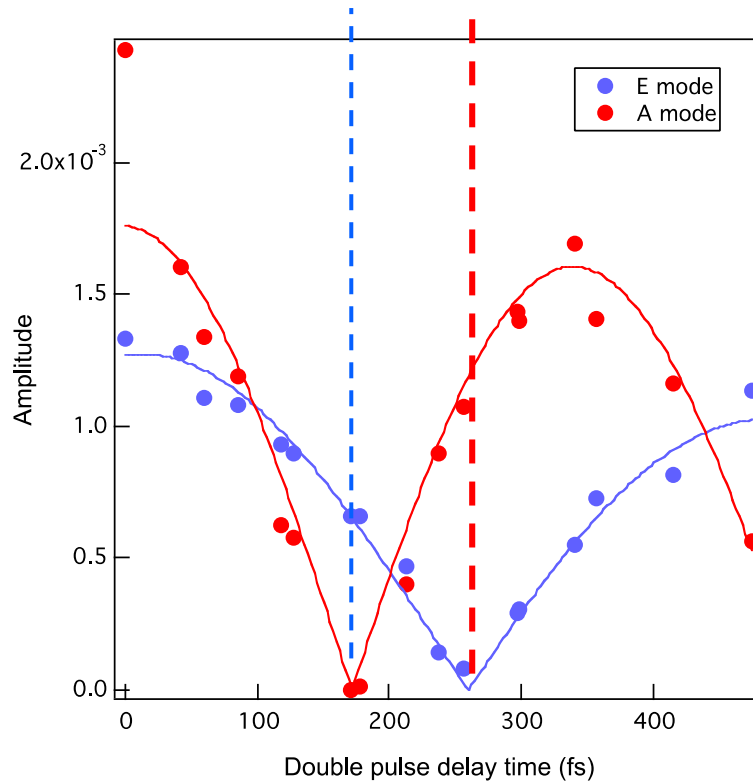
## 2. ダブルパルス励起



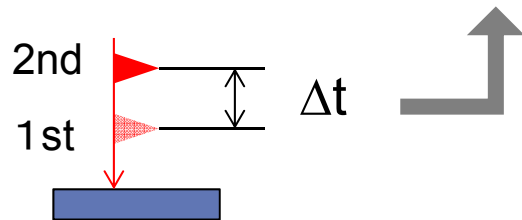
停止 (破壊的干渉)

増幅 (建設的干渉)

# Bi 結晶中の原子運動の制御



光パルス列による原子運動の制御

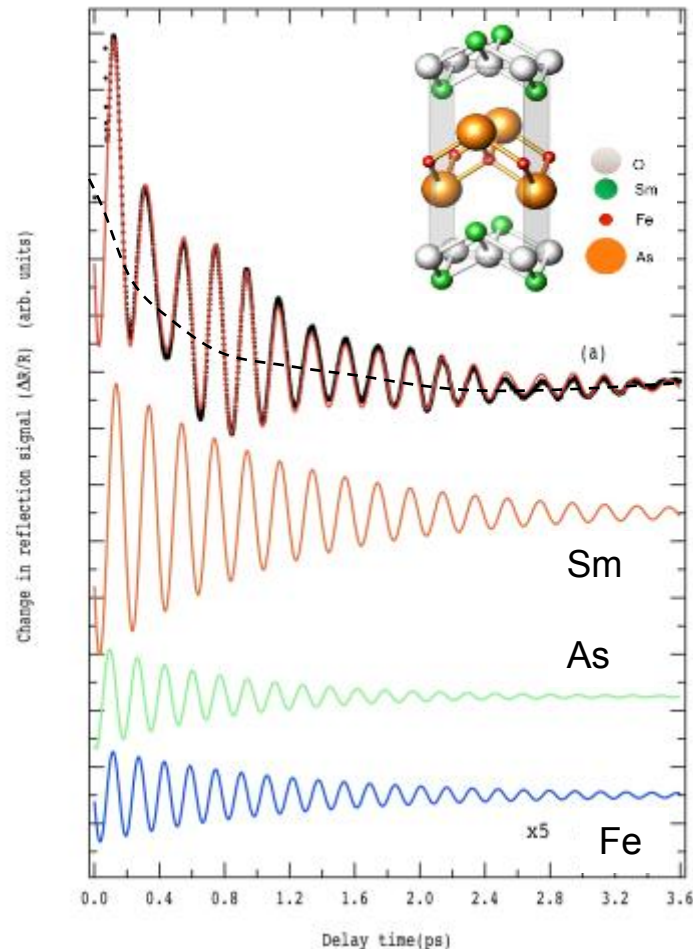


$$R(\Delta t) = \left| 2A \exp\left(\frac{-\Delta t}{\Gamma}\right) \cos\left(\frac{\omega \Delta t}{2}\right) \right|$$



# 鉄系超伝導体のキャリアフォノン相互作用

1つの指数関数減衰(キャリア減衰)  
3つの減衰振動(フォノン)



$\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  ( $x=0.075$ ):  $T_c=51\text{K}$

mode	Amp (1E-6)	Lifetime (ps)	Freq. (THz)	Softening (THz)
Sm	1.04	1.10	5.0	-0.06
As	0.37	0.84	5.9	
Fe	0.09	1.19	6.3	
Carrier	1.74	0.47		

- Sm, As, Feモードの振動数と寿命の決定
- Smモード振動数が時間とともに増加
- キャリア寿命が470fs

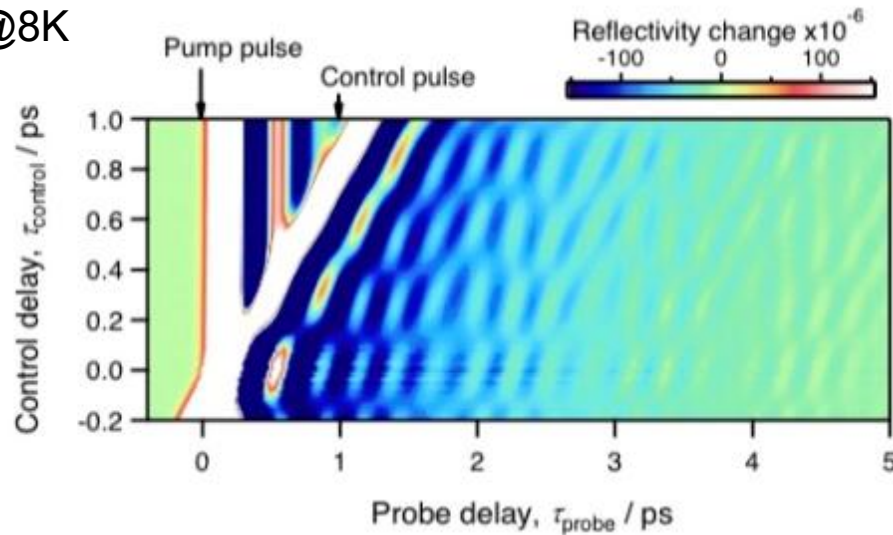
Smモードフォノンの電子的ソフトニング

振動数の減少 = キャリア密度増加による結合力の減少

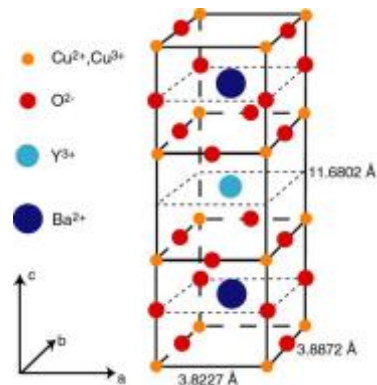
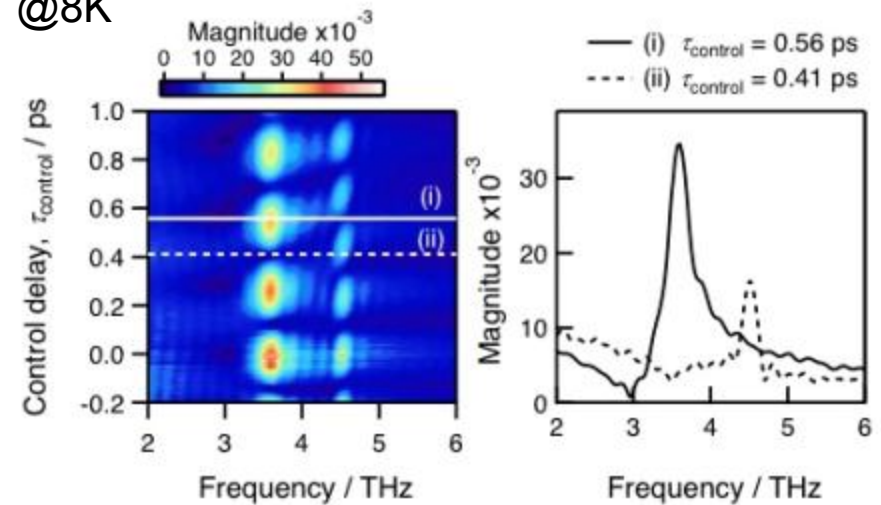
# 酸化物超伝導体のフォノン制御

YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>

@8K



@8K



光パルスによるフォノン振動振幅の選択的励起

Faraday Discussion 153 (2011) 375.

フォノン制御による電気伝導性の制御へ

(時間分解THz分光: 超伝導ギャップ、ジョセフソンプラズマ振動の計測)

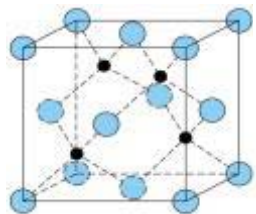
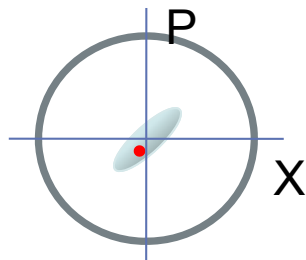
# スクイーズドフォノンによる量子ゆらぎ計測／制御

フォノンのスクイーズド状態

# 非古典状態

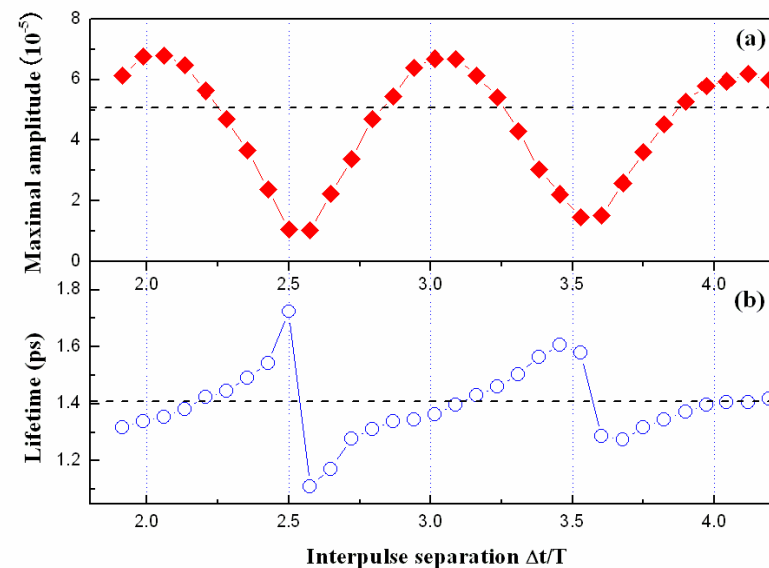
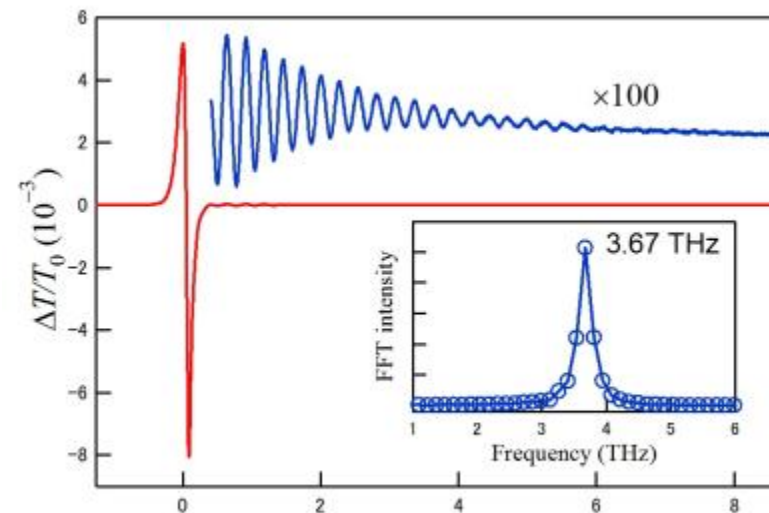
# 最小不確定性状態よりも小さい  
量子ゆらぎ

# 2次ラマン過程で生成



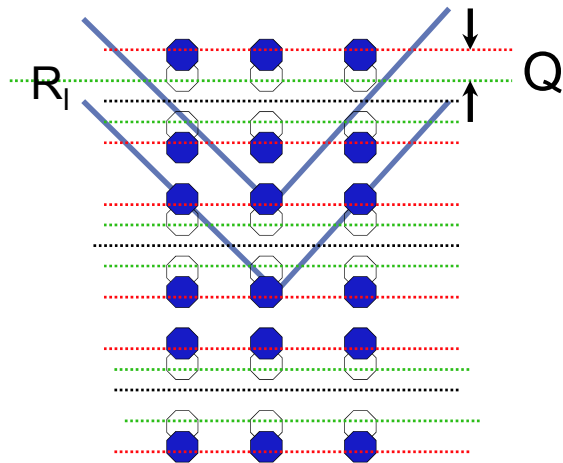
ZnTe crystal (110) cut

2TA(X) modeによるスクイーズドフォノンの生成と制御



J. Hu et al., PRB (2011)

# パルスX線によるコヒーレントフォノン計測



X線回折では：  
構造因子の変調 → 回折強度変調

$$|F|^2 = FF^* \approx |F_0|^2 + \sum_l iQ \exp(i\omega t + \theta_l)$$

K. Sokolowski-Tinten et al., Nature 422 (2003) 287.  
P. Beaud et al., PRL 99 (2007) 174801.

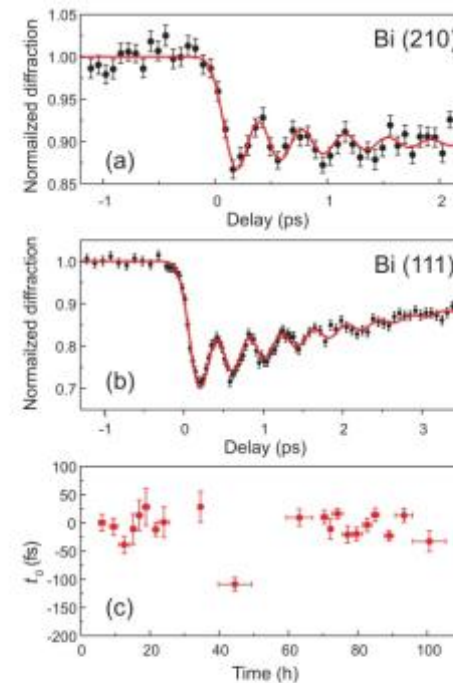
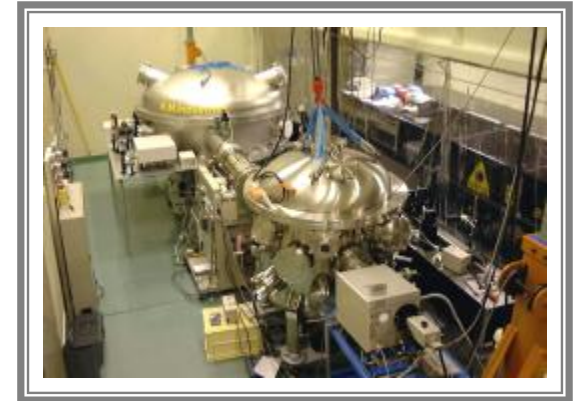


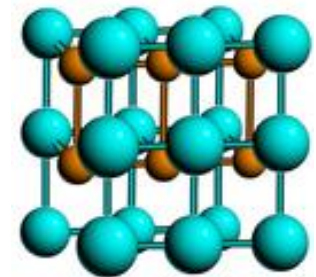
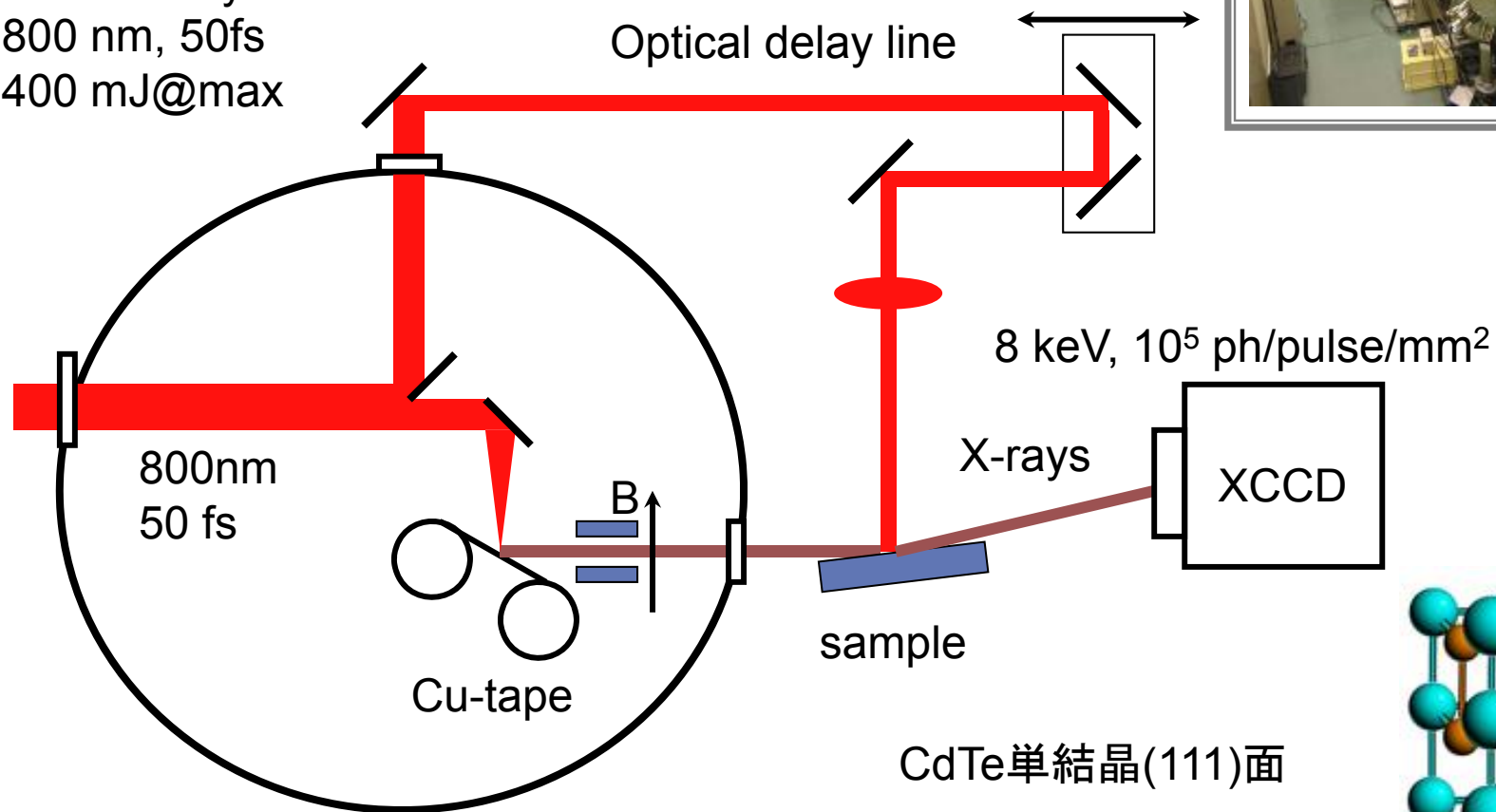
FIG. 4 (color). Normalized integrated diffracted intensity from the bulk (a) Bi(210) and (b) Bi(111) reflection at 7.15 keV as a function of pump-probe delay for excitation fluences of 1.53 and 2.24 mJ/cm<sup>2</sup>, respectively. The lines are fits to the data. (c) Measured time drifts during 5 days of consecutive scans. The horizontal error bars indicate the length of the scans.

# Femtosecond-TRXRD with LPX

Laser plasma X-rays:  
1keV-10keV characteristic X-rays, pulse width < 1ps

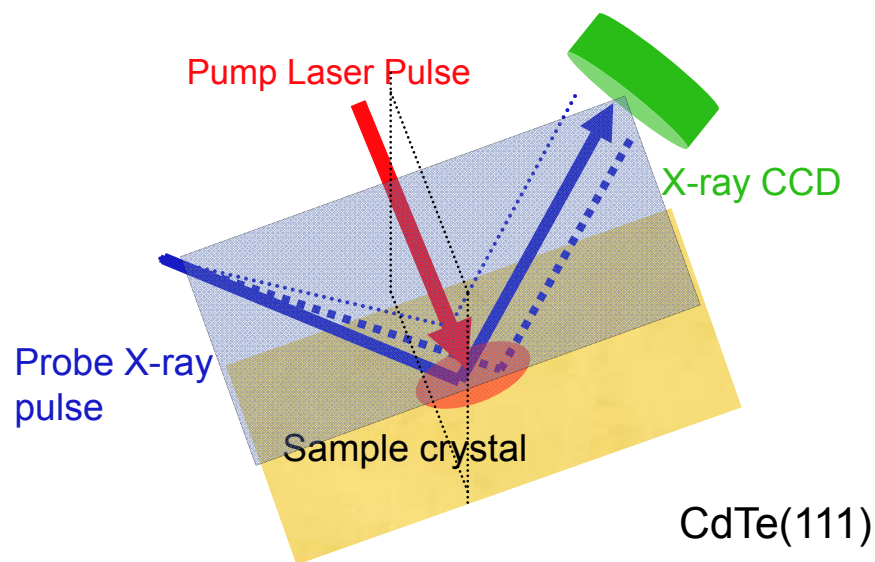


TW-laser system  
800 nm, 50fs  
400 mJ@max



# CdTeのコヒーレントフォノン

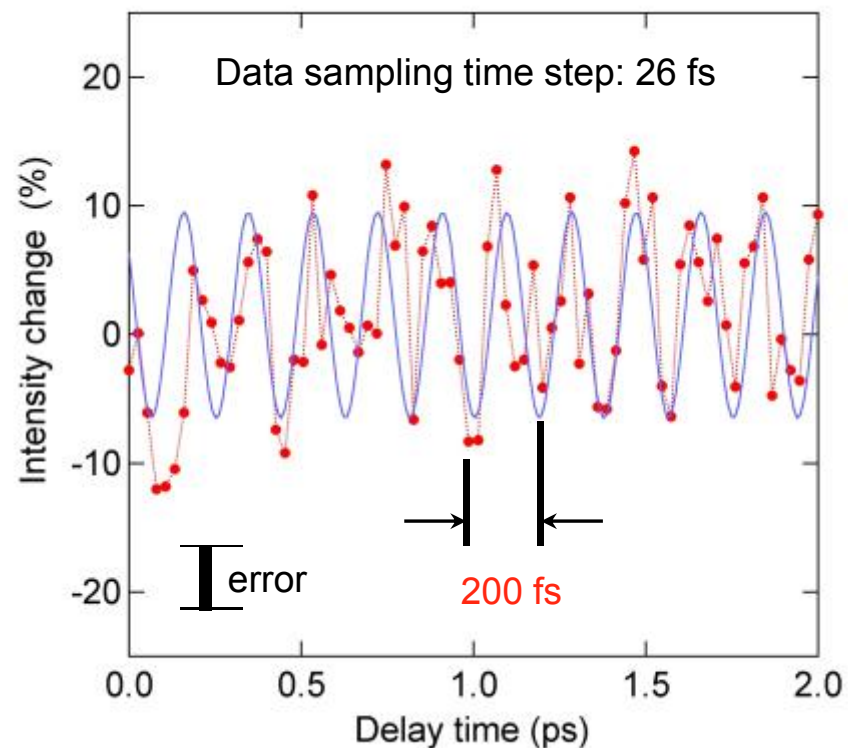
レーザープラズマX線を用いたコヒーレント  
フォノン振動計測の実証



Symmetric Bragg diffraction geometry

$$2d\sin\theta=\lambda$$

弱励起条件: 0.6 mJ/cm<sup>2</sup>



原子変位: 3 pm  
(格子定数の0.8%)

K.G. Nakamura et al., Appl. Phys. Lett. 93 (2008) 061905.

# ERLとの関連

Table 1-1 Target parameters of the 3-GeV ERL which is integrated with the X-ray free-electron-laser oscillator (XFEL-O).

	Operation modes				
	High-coherence mode	High-flux mode	Ultimate mode	Ultra short-pulse mode	XFEL-O
Beam energy (E)	3 GeV				7 (6) <sup>†</sup> GeV
Average beam current (I <sub>a</sub> )	10 mA	100 mA	100 mA	Typically, 77 μA (flexible)	20 μA
Charge/bunch (q <sub>b</sub> )	7.7 pC	77 pC	77 pC	Typically, 77 pC (flexible)	20 pC
Repetition rate of bunches (f <sub>rep</sub> )	1.3 GHz	1.3 GHz	1.3 GHz	Typically, 1 MHz (flexible)	1 MHz
Normalized beam emittances (ε <sub>x</sub> , ε <sub>y</sub> )	0.1 mm-mrad	1 mm-mrad	0.1 mm-mrad	To be investigated (typically, 1-10 mm-mrad)	0.2 mm-mrad
Beam emittances at full beam energy (ε <sub>x</sub> , ε <sub>y</sub> )	17 pm-rad	170 pm-rad	17 pm-rad	To be investigated (typically, 0.2-2 nm-rad)	15 pm-rad
Energy spread of beams; in rms (σ <sub>E</sub> /E)	2×10 <sup>-4</sup>	2×10 <sup>-4</sup>	2×10 <sup>-4</sup>	To be investigated	2×10 <sup>-4</sup>
Bunch length; in rms (σ)	2 ps	2 ps	2 ps	100 fs	1 ps

<sup>†</sup> Parameters for the XFEL-O at a beam energy of 7 GeV [1] are shown. Parameters at lower beam energy of 6 GeV are under investigation.

パルス幅: 100fs, 1ps での計測

Energy Recovery Linac Preliminary Design Report

- 低振動数モード(~1THz)のコヒーレント光学フォノンのダイナミクス  
—誘電体相転移のソフトモードなど
- コヒーレント音響フォノンのダイナミクス
- 光励起過渡状態でのポテンシャル変形とフォノンダイナミクス  
—光相変化材料(光メモリGe<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>Te<sub>5</sub> など)

# ERLからのTHz光によるフォノンのコヒーレント励起

# Low-frequency coherent optical phonons

## Share mode in graphite

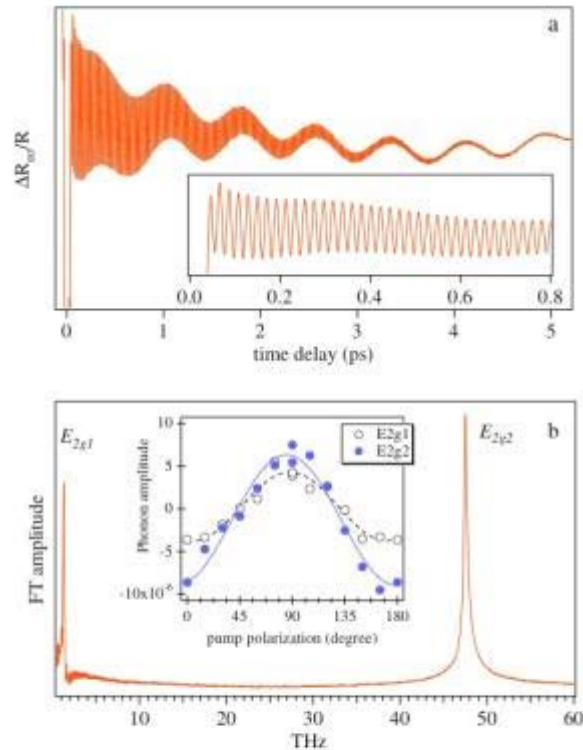


FIG. 1. (Color online) (a) Anisotropic reflectivity change  $\Delta R_{20}/R$  at pump power of 50 mW. The inset shows an enlargement of the trace to show the high-frequency modulation. (b) FT spectrum of the time-domain trace in (a). Inset shows the pump polarization dependence of the amplitudes of the two coherent phonons ( $A_1$  and  $A_2$ ) obtained from isotropic reflectivity ( $\Delta R/R$ ) measurement. The polarization angle is measured from the plane of incidence. The probe beam is polarized at  $90^\circ$ . Solid and broken curves are fits to  $\cos 2\theta$  function.

K. Ishioka et al., PRB 77 (2008) 121402R.

## Soft mode phonons in SrTiO<sub>3</sub>

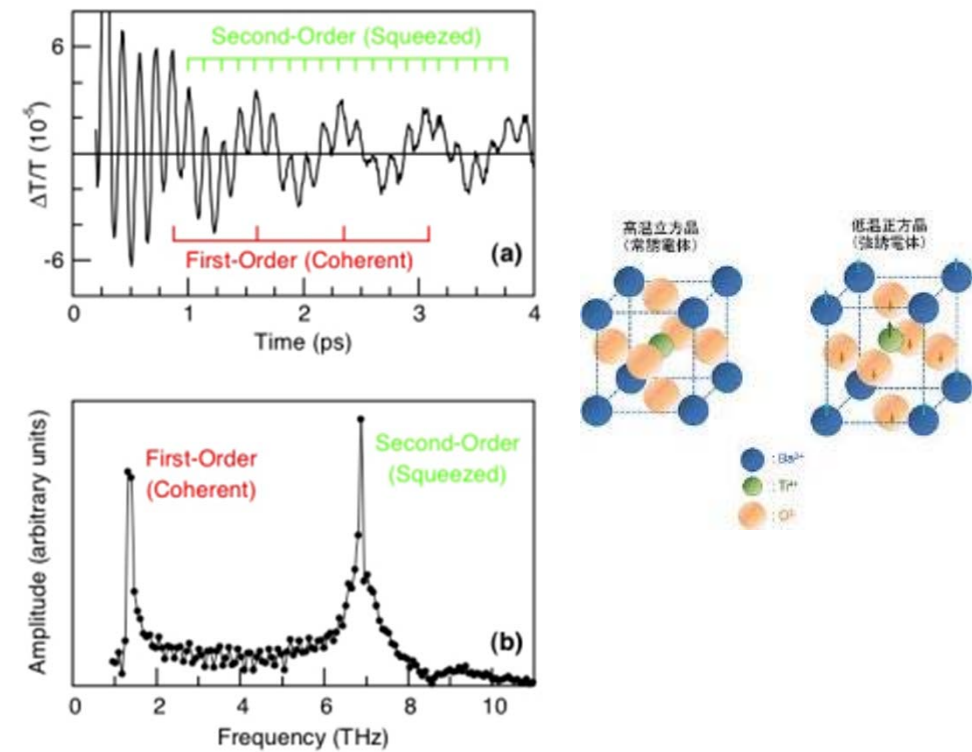


Fig. 2. (a) Normalized transmitted intensity of the probe pulse as a function of the delay for the  $A_{1g}$ -symmetry configuration. (b) Fourier transform of the time-domain data.

G. A. Garrett et al., Opt. Exp. 12 (1997) 385.



## まとめ

- フォノンの動的情報(寿命、初期位相、振動数シフト)を得ることができる
- パルス列を用いことで、フォノンの振幅制御、選択励起ができる  
→ フォノン誘起の構造や電子状態の制御の可能性
- 時間分解X線回折の組み合わせで原子変位の絶対値や構造変化を求められる

要望:

コヒーレントフォノンダイナミクスの研究:

レーザーとジッターフリーで100fs以下(～50fs)のX線光源が望ましい

# Acknowledgement

- [J. Hu](#), T. Akasaka, H. Takahashi, H. Koguchi, MSL
- [O.V. Misochko](#): Russian Academy of Science
- [K. Ohmori](#), H. Takeji, H. Katsuki, Y. Okano: IMS
- Y. Kayanuma: Osaka Prefecture Univ.
- M. Kitajima: National Defense Academy
- J. Takeda, I. Katayama, Yokohama National Univ.
- Y. Kamihara, Keio Univ.



This work was supported by

- JST-CREST, XFEL utilization project of MEXT
- Collaborative work of MSL, Collaborative work of IMS