

論文の内容の要旨

論文題目

Two-Photon Spectroscopy on Excitons in Strain-Induced Traps in Cu_2O
(亜酸化銅における歪みトラップ中の励起子の二光子分光)

氏名

中 暢子

中性アルカリ原子におけるボース・アインシュタイン凝縮体 (BEC) の生成は基礎物理学の飛躍的な進歩をもたらしたのみならず、それらを利用したいわゆる原子レーザーや計量標準といった応用面にも発展をみせている。一方、固体中における電子的素励起である励起子についてボース凝縮の可能性が理論的に予測されてから久しいが、ごく最近結合量子井戸中の間接励起子の巨視的な秩序と解釈される実験結果が報告され、関心が再び高まっている。しかし、この報告で示されている現象は BEC の決定的な証拠ではなく、BEC の問題は未だ懸案のままである。本研究は、BEC の実験的証拠と当初解釈された事実が報告されながらなおその解釈をめぐるさまざまな議論が続いてきた直接型半導体、亜酸化銅における励起子系を取り上げ、その決着に向けて、二光子共鳴励起により波数ゼロ近傍に選択的に作られる励起子系のトラップ中での特性を分光学的に詳しく調査しその有効性を吟味したものである。

亜酸化銅の励起子は双極子禁制ギャップに由来して長い寿命を持つ。これは BEC の実現に有利な点のひとつとされるが、同時に大きな拡散長の起源ともなる。そのため励起子は結晶中を動き回り、実効的な励起子密度を低下させることが知られている。この問題を避けるため、不均一歪みによる励起子エネルギーの変化を利用した「歪みトラップ」への励起子の捕捉が 1983 年に提案され、BEC に向けた研究が行われたことがある。しかし、その実験では一光子励起が用いられたためレーザーが与える剰余エネルギーにより熱い励起子がまず生成され、その熱化速度も十分でないために BEC は生成されていない。また、このように作られる熱い励起子間の二体衝突 (オ

一光子) 係数は理論的に予測される値よりも数桁大きく BEC の生成を妨げるということが近年の詳しい定量的実験から報告され、議論が再び沸騰してきた。

そこで本研究では、我々のグループで以前、塩化第一銅の励起子分子系に適用されたことのある二光子励起による波数がほぼゼロの冷たい励起子系を生成する方法に注目した。その概念図を図 1 に示す。この方法ではフォノンを生成することなく運動エネルギーの極めて小さい低温の励起子を、スピン状態を揃えて選択的に生成することができる。さらに、その鋭い共鳴と結晶中の励起子エネルギーが歪みによって場所に依存していることにより、極めて高い空間選択性が得られるものと期待した。

本実験では、亜酸化銅天然結晶から切りとり表面を研磨した立方体の試料の上面にストレッサーを圧着することによって、励起子トラップを生成した。超流動状態の液体ヘリウム中でストレスの大きさを調整できる試料ホルダーを作製し、さらにストレッサーの形状や結晶方位に工夫を凝らし、従来の単一トラップだけでなく二重トラップや円筒型トラップを実現した。また複数ある天然結晶の評価を系統的に行い、結晶ごとに異なる発光特性を活かすため実験の目的に応じてそれらを使い分けている。なお最終的な実験の多くは、最も純度が高いと判断された試料に三次元閉じ込めの調和型トラップを生成して行われた。

二光子励起の空間選択性の特徴が活かされた本研究の成果としてまず、歪みトラップの三次元形状診断法の開発が挙げられる。図 2(a)はスピン一重項状態であるオルソ励起子の二光子励起下における直接発光によって、オルソ励起子に対する等ポテンシャル面を二次元面内で可視化した例である。この二次元面をどう切り取るかはレーザー光の照射位置によって選択することができるため、この方法を繰り返すと三次元の診断が可能である。図ではストレスの印加によって三重縮退しているオルソ励起子準位の縮退が解け、このうちストレスに対して赤方シフトする下枝ブランチが深さ 4.3 meV (温度に換算して 50 K) の 2 つのポテンシャル井戸を生成していることが分かる。一方、これまで圧力軸に沿った一次元的形状のみで議論されていた理論を拡張し、二次元断面での励起子の等ポテンシャル面の数値計算を行い、実験結果をほぼ完全に再現できることを見出した (図 2(b))。これによりトラップ形状やポテンシャル勾配を正確に見積もることが可能になった。これは、励起子密度の議論に決定的となる励起子体積の評価を高い精度で可能にした意味で重要な進歩である。

さて、この物質における議論を複雑にしている別の原因は、励起子寿命や拡散長の試料依存性

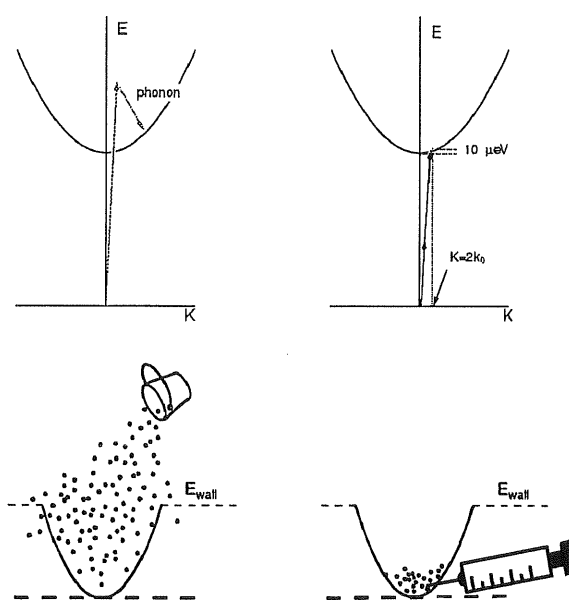


図 1. 一光子励起 (左), 二光子励起 (右) により調和型トラップ中に注入される励起子の分布の概念図.

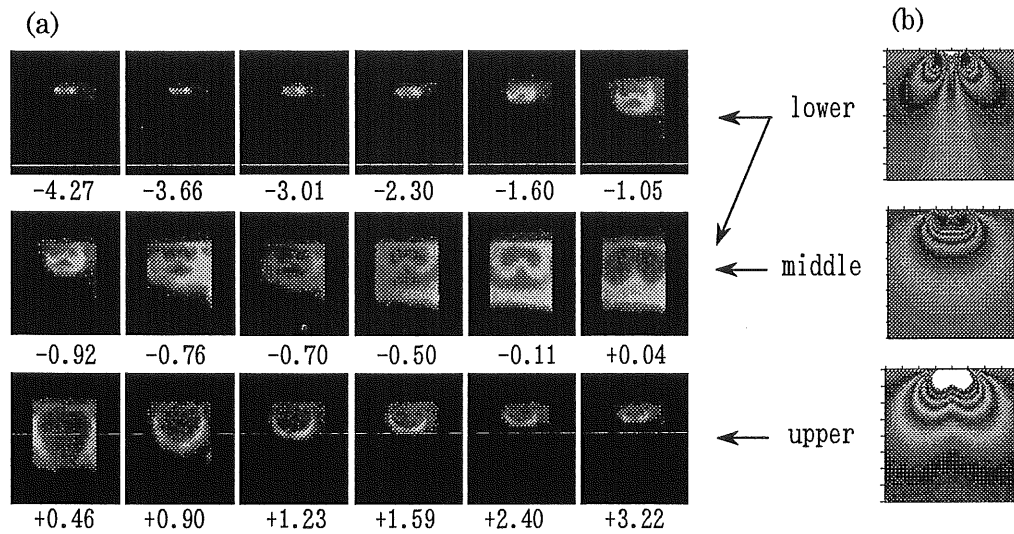


図 2. トラップの形状診断 (a)実験 (b)計算値. 数字はゼロ
ストレス下の励起子エネルギーからの離調 (meV) を示す.

があり報告値のばらつきが大きい点である．本研究において，トラップ中に二光子共鳴励起によって注入される励起子の動的特性がはじめて系統的に測定され，二光子励起の新たな側面として以下のことが見い出された．

- (1) オルソ励起子の二光子共鳴励起下ではこれまで検出されることのなかったスピン三重項状態であるパラ励起子からの発光が検出され，波数ゼロ近傍のオルソ励起子からも下方転換によりパラ励起子が間接的に作られることが分かった．パラ励起子の寿命と拡散定数はトラップへの捕捉に十分な大きさであることが確認された．
- (2) トラップの縁に生成されたオルソ励起子がトラップの底へ向かってドリフトする様子が，実空間とスペクトル空間の双方において初めて観測された．このドリフト成分の解析によって波数ゼロ近傍のオルソ励起子の拡散定数が決定された．その値はこれまで予想されていたよりもはるかに大きくパラ励起子のもと同程度であったが，オルソ励起子の寿命が短いことから拡散長に換算するとトラップへの捕捉には十分でない．しかしながら，オルソ励起子から間接的に作られるパラ励起子の生成場所を制御する意味でのトラップの有用性が明らかになった．

このように二光子励起下でのトラップの有効性を確かめたのち，高密度領域での実験を行った．図 3(a)は二重トラップ配置におけるオルソ励起子のフォノン線とパラ励起子の直接発光のスペクトルの入射強度依存性を示す．これらの発光のスペクトル形状は，トラップ中での励起子の空間分布と有効温度を反映することが知られている．すなわち，スペクトル幅が広いことは励起子がポテンシャルエネルギーの高いトラップの上方にまで分布し，その温度が上がっていることを示す．詳しい解析によってパラ励起子の温度は，入射強度を増すと 3 K から 5 K へと徐々に上昇していることが分かった．このことから，密度に依存した熱化過程の存在がうかがえる．一方，発光強度を入射強度の関数としてプロットしたものが挿入図である（黒印：オルソ励起子，白印：パラ励起子）．オルソ励起子は二光子励起過程に期待される二乗則にほぼ従うのに対し，パラ励起

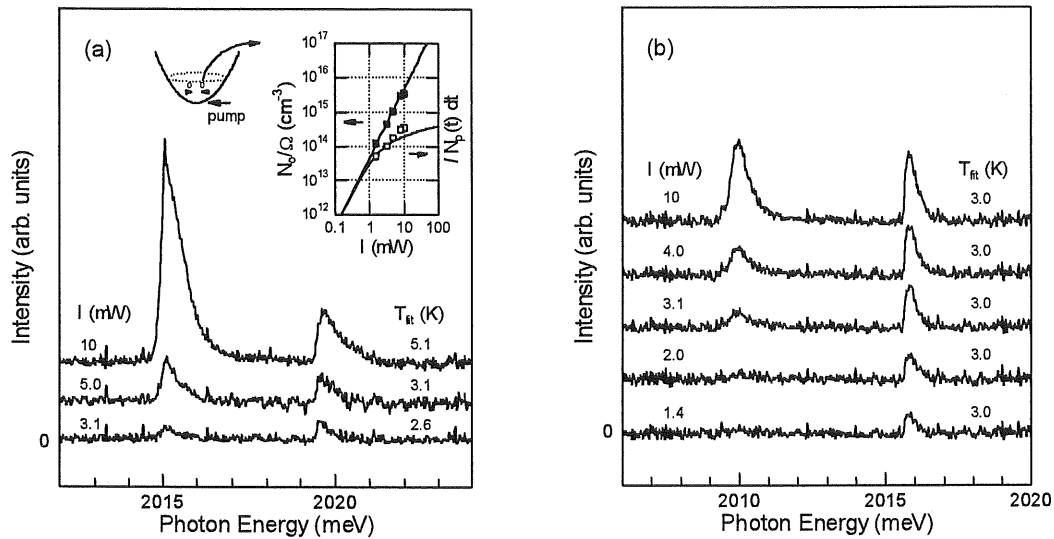


図 3. オルソ励起子のフォノン線（低エネルギー側のピーク）とパラ励起子の直接発光（高エネルギー側のピーク）のスペクトルの入射光強度依存性．(a)二重トラップ，(b)単一トラップの場合．

子には強い飽和が見られる．以上のことから，パラ励起子間の二体衝突が熱化の起源となることが推測される．これまでに考えられてきた励起子間の衝突（オージェ）過程は，衝突する励起子の一方が非輻射崩壊し，もう一方がイオン化するというモデルである．このイオン化のうち再生成される励起子はスピランダム化すると考えられており，パラ励起子間の衝突からもオルソ励起子が間接的に作られることになる．ところが，我々の結果はオルソ励起子の再生成が無視できる程度であり，イオン化は極めて少ないことが分かる．結論として，衝突したパラ励起子の半数のほとんどがイオン化しないままトラップの外へ逃げ出し運動エネルギーを運び去る「蒸発冷却」過程として働いていることが分かった．また，ごくわずかなイオン化によってもたらされる加熱エネルギーとの均衡によって，パラ励起子の密度に依存する有効温度が決定されることも分かった．

一方，より深い単一トラップでは興味深い現象が観測された．すなわち，パラ励起子の直接スペクトルの形状が，同じ入射強度の範囲でも 3 K のまま一定となり（図 3(b)），さらに強い飽和が見られた．トラップの体積を考慮して推定された励起子密度と合わせると，パラ励起子の初期の位相空間密度は 0.1 以上であるとの評価を得た．そこで空間分布を詳しく調べたところ，密度の高いほど分布幅が狭くなる結果が得られ，ボース統計性の現れであると結論される．しかし BEC に至る高密度化には結晶表面の損傷の回避など，実験上の改良が必要である．

本研究では，励起子の共鳴励起が行われるが，この過程に付随して起きる散乱過程の効果や二光子振動子強度の主量子数依存性といった基礎事項についても，レーザー共振器の改良により得られた狭線幅の赤外レーザー光を利用することなどによって，高い精度で吟味することができた．

このように，本研究は亜酸化銅における低温励起子の基礎的性質や試料の特性を踏まえて，冷たい励起子の新しい生成法を開拓し，トラップの形状評価や励起子の動的特性，トラップ中での加熱・冷却機構の理解からその有用性を示したものである．