

論文の内容の要旨

論文題目 スピン禁制励起子のボース・アインシュタイン凝縮転移
(Bose-Einstein condensation transition of spin-forbidden excitons)

氏 名 吉岡 孝高

1950年に日本人研究者によって発見された励起子は、半導体において形成される電子と正孔が Coulomb 引力により束縛状態を形成した準粒子である。励起子は2個のフェルミ粒子の複合粒子であるためボース統計性に従うことが期待されるが、元来多体フェルミ粒子系において形成される素励起であり、ボース統計性が最も顕著に現れる相転移といえるボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) を実在粒子と同様に形成しうるか否か、また凝縮体を形成したときいかなる性質を示すのか、全く自明ではなく実験的な観測が望まれてきた。しかしながら理論提案以降、実に50年を経過しながらも確固たる励起子 BEC の報告は存在しなかった。

励起子が発見された舞台でもある亜酸化銅 (Cu₂O) においては、双極子禁制のバンド構造に起因して直接遷移型半導体でありながら最低エネルギー状態の所謂黄色系列 1s 励起子は異例に長い寿命をもつ。特に純スピン三重項状態である 1s パラ励起子は輻射場との結合が完全に遮断されておりマイクロ秒もの寿命を示すため、格子による効果的な冷却、熱平衡状態の達成、レーザー光励起による高密度励起子生成の容易さから液体ヘリウム温度における励起子 BEC 実現の最有力候補とされてきた。しかし、輻射再結合確率が極めて低いため、従来より行われてきたフォノンサイドバンド発光のスペクトル形状解析法では励起子の温度や密度の評価の定量性に重大な問題があり、BEC を実現したとする報告も存在したものの十分な証拠とはならなかった。さらに、励起子間の二体散乱による励起子の消失過程に起因して、希薄で古典的な励起子ガスであってもフォノンサイドバンド発光スペクトル形状は量子縮退した場合と酷似する可能性が議論され、BEC の達成はおろか観測法までもが疑わしい状況となった。

そこで本論文では、我々のグループで開発された 1s 励起子の密度と温度の新たな評価法である「励起子 Lyman 分光法」の定量性を向上させ、亜酸化銅のバルク結晶内に形成されるスピン禁制 1s パラ励起子について、BEC 実現に必要な基礎パラメータを信頼性の高い形

でまず評価した。その結果必要となった、パラ励起子のサブケルビン領域への冷却を実現し、結晶内でのパラ励起子の局所的捕獲を行い励起子 BEC 転移条件を達成した結果、励起子 BEC 転移に起因する可能性がある現象をとらえることに成功した。以下にその概略を示す。

電子と正孔の Coulomb 引力による束縛状態である励起子は水素原子と同様の離散的エネルギー準位構造を有している。励起子の 1s-2p 遷移は励起子の内部スピン状態に依存せず双極子遷移許容である。また、高次系列と比較すると 1s 励起子は central-cell corrections のため電子正孔の単純有効質量和よりも重い並進有効質量を持つ。これらを巧みに利用した励起子 Lyman 分光法は、その遷移の吸収量から 1s 励起子の密度、吸収スペクトル形状から 1s 励起子の熱分布という重要な量を曖昧さなく評価できる。密度の評価には遷移の双極子モーメントの正確な評価が必要であるが、central-cell corrections のため 1s 励起子状態の励起子 Bohr 半径を固有エネルギーから単純には求めることができず、これを実験的に正確に評価する必要があった。そこで 1s オルソ励起子のサブピコ秒パルス 2 光子共鳴励起直後の 1s-np 誘導吸収スペクトルを時間分解励起子 Lyman 分光法を用いて測定し、異なる主量子数状態への吸収スペクトルの間の相対スペクトル面積比から 1s 励起子の Bohr 半径を求める方法を再検討した。データ点数の増加だけでなく誤差の評価方法や理論曲線の当てはめ方法に注意を払い 1s 励起子の Bohr 半径と 1s-2p 誘導双極子モーメントを高い信頼性で決定し、これをもって 1s 励起子の密度測定の定量性が確保されることとなった。

サブピコ秒再生増幅器を用いる時間分解励起子 Lyman 分光法では、誘導吸収量の検出限界が十分でなく希薄な励起子の観測が難しい。またパラ励起子の寿命のような長い時間ス

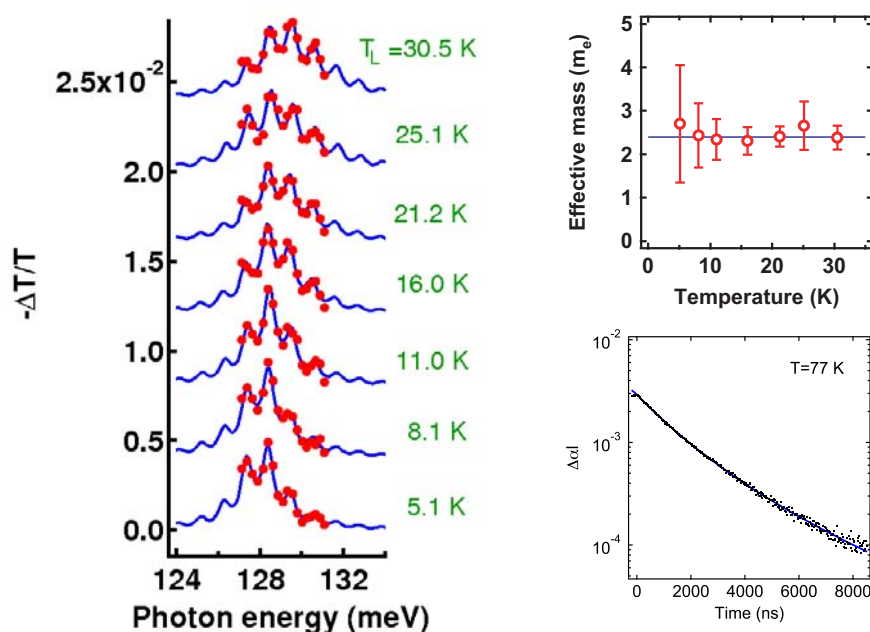


図1 (左) 炭酸ガスレーザーを用いて検出した、希薄で熱平衡状態にある 1s パラ励起子の誘導吸収スペクトル。(右上) 誘導吸収の形状解析から抽出した 1s パラ励起子の有効質量。(右下) 励起子 Lyman 分光法による希薄な 1s パラ励起子の寿命計測の典型例。

ケールの現象の観測は不可能である。そこで、希薄かつ熱平衡状態にあるパラ励起子を明瞭にとらえその性質を明らかにするために、連続波発振(cw)レーザーを光源とする高感度な励起子 Lyman 分光法の開発を行った。プローブ光源として波長選択単一線発振炭酸ガスレーザーを使用し、強度変調の方法や計測系の雑音を極力低減する工夫の結果、中赤外領域でありながら従来よりも 2 桁広い 5 桁強のダイナミックレンジを実現し、希薄で熱平衡状態にあるパラ励起子の誘導吸収スペクトルの取得を実現した (図 1 左)。この高感かつ広いダイナミックレンジを有する分光法を用いて、1s パラ励起子の BEC 実現に必要な基礎パラメータの評価を行った。具体的には誘導吸収スペクトルの形状解析を行い、その励起子温度依存性の結果からパラ励起子の有効質量を決定した (図 1 右上)。さらに、cw 光をパルス状に切り出し励起パルスとプローブパルスのタイミング差を電氣的に制御することで、希薄極限にあるパラ励起子のマイクロ秒に及ぶ寿命 (図 1 右下) とその温度依存性を観測した。炭酸ガスレーザーによるプローブは離散的で限られた発振波長のみが許されるため、連続的なスペクトルを取得する試みとしてパルス発振量子カスケードレーザーによる励起子 Lyman 分光法の構築も行った。

励起子 BEC を実現するために重要なもう一つのパラメータは励起子間散乱である。1s オルソ励起子については絶対発光量計測の結果から非常に大きな二体オルソ励起子間の衝突誘起励起子消失 (励起子 Auger 過程としばしば呼ばれる) が観測され、それまでの量子縮退した発光スペクトルの観測結果が全て否定された経緯があった。これを踏まえ、構築した定量的測定法により 1s パラ励起子間の非弾性散乱を観測した。散乱の効果が無視できる十分に希薄な領域からパラ励起子密度の励起レート依存性を系統的に取得し (図 2 左)、3次元拡散方程式を含むレート方程式の数値計算結果と比較した結果、オルソ励起子について報告された値と同程度の、非常に大きな非弾性散乱係数を見出した。またそれが温度に依存しない、すなわち非弾性散乱断面積は低温で発散すること (図 2 右) も確認し、それが s 波非弾性散乱の特徴そのものであることを明らかにした。この結果、超流動液体ヘリウム温度における BEC 達成のため数十年来目標となってきた励起子密度では、それを達成

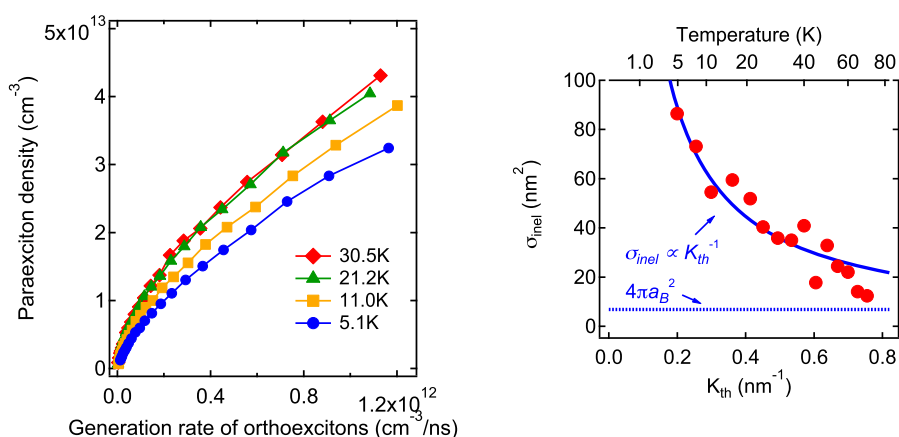


図2 (左) 励起子 Lyman 分光法により測定した定常状態 1s パラ励起子の密度の励起子生成レート依存性。(右) 抽出したパラ励起子間二体非弾性散乱断面積の温度依存性。

しても実効的寿命が熱緩和時間よりも遥かに短くなるため、BEC の達成は不可能であることが判明した。一方、この非弾性散乱過程やパラ励起子の寿命を決める機構の解明に一步近づく試みとして、励起子の選択的生成の下で光伝導測定を行い、結晶内の欠陥準位がこれらの過程に重要な寄与を持つ可能性を明らかにした。

励起子間非弾性散乱が強い状況下で BEC 転移を観測するためには、より低い BEC 臨界密度を設定し励起子間散乱を回避することが唯一の手段となる。そこで無冷媒ヘリウム 3 冷凍機を用いてサブケルビン領域への亜酸化銅結晶の冷却と、低温励起子の急速な拡散を回避するため不均一歪印加によるパラ励起子の捕獲を行い、冷凍機の振動対策を施しつつ歪下で僅かに許容となるパラ励起子の空間分解直接発光スペクトルの精密な解析を行った。その結果、パラ励起子が確かに 0.8 K とサブケルビン領域に到達していることを確認し、その温度とトラップ形状から要求される BEC 臨界励起子数に実際に到達した。そこで観測されたのは、高温励起子の閾値的な出現であった (図 3)。BEC 転移が実際に生じたと仮定すると、散乱長が短い系においてトラップポテンシャル中の凝縮体の体積が小さいことに起因し、全系の二体非弾性散乱レートが増大することが期待される。これは水素原子の BEC 転移においても議論された「緩和爆発」と呼ばれ、本結果の起源である可能性がある。励起子フォノン相互作用や寿命、トラップポテンシャル等関与するパラメータをすべて取り入れた直接モンテカルロシミュレーションを行い、レート方程式に基づく考察と合わせて、全パラ励起子の中で 1% 程の凝縮体が存在すると緩和爆発による熱的成分の急激な増加を再現できることが分かった。冷却原子気体においては、非弾性散乱が強い系は実験的に BEC 領域に到達することができないため、フォノンによる冷却が常に行われることで許される、パラ励起子の BEC は新しい系を提供する可能性がある。

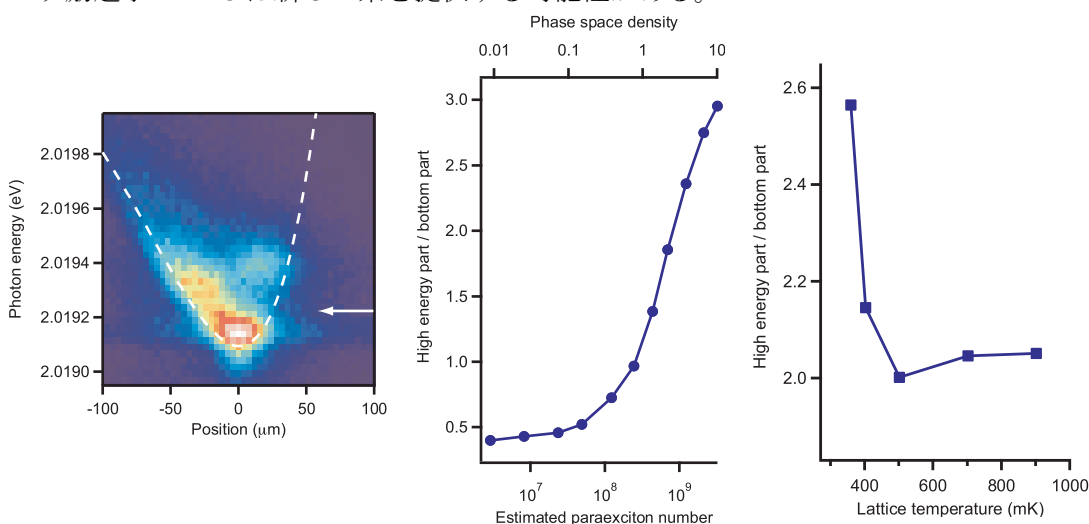


図3 (左) 格子温度 354 mK の結晶内で捕獲したパラ励起子が BEC 臨界数を越えた際に現れた、緩和爆発と考えられる現象。(中) 歪誘起トラップ中のパラ励起子数に対して観測した高エネルギー励起子成分とトラップ底の励起子成分の比率。(右) 一定の強い励起の下で格子温度に対して測定した同比率。