

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：13501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740200

研究課題名(和文) 軌道角運動量を持った光と素励起との相互作用

研究課題名(英文) Interaction between angular momentum of light and elementary excitations

研究代表者

東海林 篤 (SYOUJI, Atsushi)

山梨大学・医学工学総合研究部・助教

研究者番号：40392724

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：これまで光は平面波として扱われてきたが、近年、軌道角運動量を持った光に注目が集まっている。本研究ではこの光の軌道角運動量が物質中の素励起にどのような影響を与えるのかを探ってきた。半導体・亜酸化銅中の最低励起の素励起は角運動量が2変化する過程であり、通常の光は1であることからこれを遷移させることが出来ない。これに対し、軌道角運動量に1を持った光は全角運動量2を持つことから励起することが出来ると期待される。軌道角運動量を持ち、素励起に共鳴するエネルギーの光を亜酸化銅に照射したところ、低エネルギー側からの発光が観測され、これまで通常の光では観測できなかった素励起を励起できることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：In these decay, angular-momentum of light is very attracted. Until now, light is treated as plane wave, but the angular-momentum is expected inducing another interaction especially elementary excitation of semiconductors. Lowest excited states in a copper (I) oxide has 2 angular momentum, so the plane wave, which has 1 angular momentum, cannot excite the states. On the contrary, the light with angular-momentum is considered excite the states because of the extra angular-momentum. Illuminating the copper (I) oxide by the light with angular momentum resonating the states, I demonstrated the light angular-momentum induce invisible elementary excitation observation.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：半導体 四重極子 光の空間モード

### 1. 研究開始当初の背景

近年、ラゲールガウス(LG) ビームは軌道角運動量を持つということが明らかとなり、光の空間モードに関する研究が盛んとなっている。現在 LG ビームに含まれる空間モードを利用した研究は、光ピンセットや微粒子の回転制御、冷却原子の光トラップ等といった応用として盛んに行われている。しかし LG ビームが物質中の素励起に吸収された場合、光が持っていた軌道角運動量がどのように保存されるのか？という基本的な研究はまだ行われていない。しかし、もしこのことを明らかにすることができたならば、光の空間モードに多重に情報を載せて一度に検出を行うような、これまでにない多重情報通信のための検出装置へと発展させていくことが出来ると期待される。

一方、学術的基礎研究としては、励起子は自分で吐き出した光を自分で吸い込むという自己相互作用、即ちポラリトン状態を形成していることが知られており、従来このポラリトンに関する研究は平面波が入射した場合について解析されてきた。これに対し、軌道角運動量を持った光を照射した場合にはこれまでとは異なったタイプのポラリトン形成すると期待され、様々な空間モードを伴った新たな物性研究へと発展させていくことが期待される。

### 2. 研究の目的

上述の背景に対し、本研究では光の空間モードと結合する励起子の測定を進めてきた。通常の直接型半導体に観測される励起子は双極子許容の励起子であり、この双極子遷移が非常に強い遷移を示すことから、光の空間モードによる遷移を覆い隠してしまい、これを観察することは出来ない。しかし亜酸化銅結晶の価電子帯の頂上は銅の 3d 軌道、伝導体の底は酸素の 2s 軌道から成っていることから、最低励起子準位であるオルソ励起子は双極子禁制である。従って、空間モードに誘起される光学遷移を見いだすには亜酸化銅のオルソ励起子を用いるのが最適であると考えられる。そこで本研究の目的としては、亜酸化銅のオルソ励起子に対し軌道角運動量を持った光を照射することでオルソ励起子が軌道角運動量を持った光によって励起可能であることを示し、光の空間モードによって誘起されるこれまでにない光学遷移の可能性を示すことである。

具体的には、Cu<sub>2</sub>O 結晶は反転対称性のある立方晶系 Oh に属し、価電子帯の頂上  $\Gamma_7^+$  と伝導体の底  $\Gamma_6^+$  の間の遷移によってスピン禁制のpara励起子  $\Gamma_2^+$  と双極子禁制のオルソ励起子  $\Gamma_5^+$  を形成する。ここでこの結晶中における光の表現は  $\Gamma_4^-$  であり、表現が一致しないことからオルソ励起子は双極子遷移禁制である。従来、オルソ励起子を用いた研究には二光子励起過程  $\Gamma_4^- \times \Gamma_4^- = \Gamma_4^+ + \Gamma_5^+$  の過程が多く用いられてきた。これに対して本研究

では従来スカラー  $\Gamma_1^+$  として扱われてきた光の空間モード TEM<sub>00</sub> モードの代わりにベクトル型である LG モード  $\Gamma_4^-$  を導入することで、 $\Gamma_4^- \times \Gamma_4^- = \Gamma_4^+ + \Gamma_5^+$  の過程によりオルソ励起子を一光子で励起する。ここで遷移はバンド間で起こるものであり、また光学遷移を禁制にしているのはバンドであることから光の軌道角運動量はバンドによって吸収され、遷移が可能となる。因みに同じバンドから形成されているpara励起子は平均自由行程が 50 μm という報告があることから、同程度まで光を絞り込むことで光の空間モードの影響をオルソ励起子に与えることが可能となる。尚、本研究では励起子の内部自由度を対象とする研究ではないため、励起子のボア半径  $r_0$  と比較する必要はない。

### 3. 研究の方法

(111)面を切り出した亜酸化銅結晶を冷凍機により 5K に冷却し、オルソ励起子に共鳴するエネルギーである波長 610nm で、且つ軌道角運動量を持った円偏光の光を照射した。光源には 1KHz 繰り返しのナノ秒レーザー励起オプティカルパラメトリックオシレータ(OPO)を用いた。レーザーの照射パワーは数 nW とし、非線形光学現象が起きないパワーに設定している。光の空間モード制御には液晶タイプの空間位相変調器を用い、光学系を変えなく遠隔操作により空間モードの変更を行うことが出来るセットアップとなっている。レーザー励起によりオルソ励起が励起されるとすぐにエネルギー緩和をおこし、吸収されたエネルギーは低エネルギー側にある束縛励起子の発光として観測されるが、本研究ではその強度を分光器を用いて観察した。ここで、励起エネルギーと発光を観察するエネルギーは非常に近いことからローパスフィルタを用いてレーザー光の減衰を行った。ここで、本研究で用いている空間位相変調器であるが、光軸を厳密に設定することは困難であり、理想的な変調からのずれが生じてしまうために予期しない信号が観測にかかる恐れがある。そこで励起子が励起出来る条件とできない条件の差分を取ることにより空間モード誘起による励起子生成の信号のみを取りだした。具体的には、軌道角運動量と円偏光にはそれぞれ右回りと左回りがあり、組み合わせは全部で4種類となるが、両者の組み合わせには全角運動量が2の場合と0の場合でそれぞれ2種類ある。オルソ励起子を励起することが可能なのは全角運動量が2のものであり、励起出来ないのは0のものであることから、全角運動量が2のものから0のものを引いた差分スペクトルが光の空間モードによって誘起されたシグナルとなる。

### 4. 研究成果

図1に示す発光スペクトルは右回り円偏光且つ右回りラゲールガウスビーム

(PoIRLGR)で励起したときのスペクトルである。この発光スペクトルは主に電気四重極遷移によって励起された準位を経由したものであるが、光の空間モードに影響されて励起された成分も僅かに含まれていると考えられる。また前述した空間モード変調の不完全性から来るシグナルを除く目的もあり、右・左回り円偏光(Pol<sub>R</sub>, Pol<sub>L</sub>)及び右・左回りラゲールガウスビーム(LG<sub>R</sub>, LG<sub>L</sub>)を適宜組み合わせた四種類で励起を行った場合の発光スペクトルから、その差 (Pol<sub>R</sub>LG<sub>R</sub>) + (Pol<sub>L</sub>LG<sub>L</sub>) - (Pol<sub>R</sub>LG<sub>L</sub>) - (Pol<sub>L</sub>LG<sub>R</sub>)をとったものを図1の発光の差分スペクトルとして示す。オルソ励起子は全角運動量0の共鳴光に対して弱い発光を示す。しかし差分スペクトルが正であることから全角運動量2を持った光に対しては全角運動量0の共鳴光よりもさらに励起子へのエネルギー吸収が誘起されていることが本実験結果から得られた。また、両者のスペクトル形状が一致することから、空間モードによって誘起された励起過程によって励起されているのはオルソ励起子であると考えられる。本実験により光の空間モードによって誘起される、従来行われてきた平面波のみを用いた研究では観測できなかった新たな空間モードによって誘起される光励起現象の実証に成功したといえる。

さらに、その励起現象に関して考察を行うべく、差分スペクトルのレーザー励起強度依存性の測定を行った。結果を図2に示す。レーザー強度を4倍にすると発光スペクトル及び差分スペクトル共に4倍となっており、光の空間モードによって誘起されたこの新たな光励起現象は線形の応答であることがこの実験より確かめられた。さらに未発表であるが、クロスチェックとして白色光による透過スペクトルにおいても、励起子による光吸収のディップが、空間モードを操作することにより深さが変化することを観測している。本実験では光源としてナノ秒のパルスレーザーを用いているが、この透過スペクトルによる観測の結果から本実験結果は確かに非線形な光学現象ではなく、線形の光学現象であることが確かめられた。

本研究により光の空間モードを利用した励起子の励起は可能であることが実証された。またこの空間モードによって誘起された励起の過程は一光子過程であることが確かめられた。一般的に一光子過程における光学遷移はポラリトンを形成しており、本研究で明らかとなった空間モード誘起による光学遷移に於いても同様にポラリトンを形成しているものと考えられる。今後、この空間モードに誘起されるポラリトンがどのような性質を持つのか、さらに詳しく解析していく予定である。

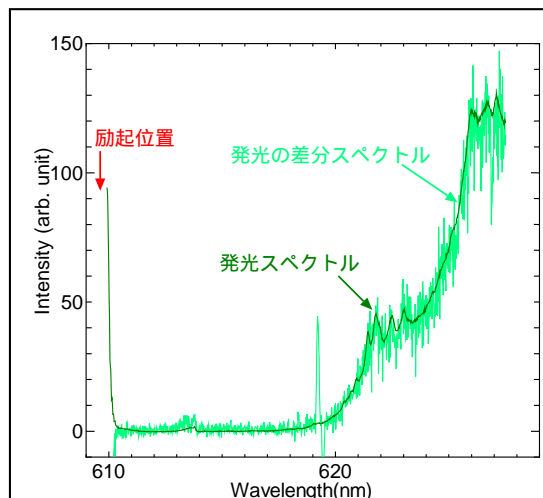


図1：オルソ励起子のエネルギー位置（赤矢印）を軌道角運動量を持った円偏光を組み合わせた全角運動量2の光で励起した場合の発光スペクトルと、全角運動量2の光による発光スペクトルから0の光による発光スペクトルを差し引いた差分スペクトル。620nmよりも短波長側は励起レーザーを取り除くためのフィルターのカットオフによって減衰している。

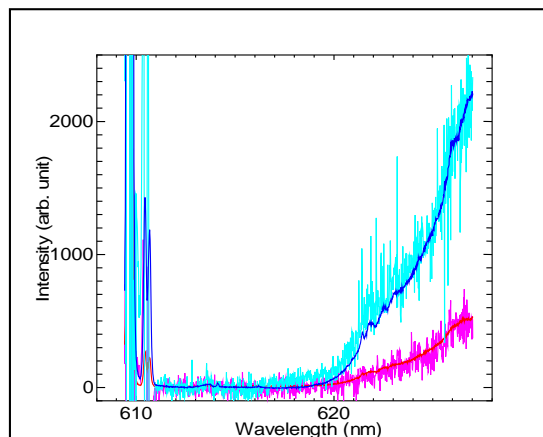


図2：図1に示した差分スペクトルの励起レーザー強度の依存性。レーザーの照射パワーを4倍にすると発光スペクトル（赤）及び差分スペクトル（ピンク）が発光スペクトル（青）及び差分スペクトル（水色）と変化し、共に4倍となり、線形の光学現象であることが解る。

5．主な発表論文等  
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 1 件)  
東海林篤、大友明、齋藤伸吾、軌道角運動量を有する光による亜酸化銅 1s オルソ励起子の励起、日本物理学会 2014 年 3 月 29 日、東海大湘南キャンパス

〔その他〕  
ホームページ等  
<http://www.inorg.yamanashi.ac.jp/research/18>

6．研究組織  
(1)研究代表者  
東海林 篤 (SYOUJI, Atushi)  
山梨大学・医学工学総合研究部・准教授

研究者番号：40392724