

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月4日現在

機関番号：12601

研究種目：新学術領域研究（研究領域提案型）

研究期間：2008～2012

課題番号：20104002

研究課題名（和文） 電子正孔・励起子量子凝縮相の光操作と制御

研究課題名（英文） Opical manipulation excitonic matter phase

研究代表者

五神 真 (GONOKAMI MAKOTO)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号：70161809

研究成果の概要（和文）：

光励起半導体において量子縮退した電子正孔系の物質相解明とその光による制御法の開拓を行った。主な成果として、直接遷移型バルク半導体における3次元トラップ中の励起子について、ボース・アインシュタイン凝縮転移の観測に成功し、また凝縮相の安定化のため希釈冷凍温度まで冷却された量子縮退励起子系を生成した。また、ワイドギャップ間接遷移型半導体、ダイヤモンド、において低温電子正孔系の励起法の開発を進め、低温領域では、液滴形成が抑制され、多励起子束縛状態が形成されることを発見した。さらに、超高速時間領域での光子統計性を計測する手法としてストリークカメラを用いた高次光子相関測定法を開発した。これを用いて垂直共振器面発光レーザーについて閾値近傍での2次相関関数に緩和振動現象に伴う振動が生じることを見出した。このほか、光励起物質相の制御手法として波形制御されたパルス光による物質相の制御について検討を行った。特に、3回対称性を有する結晶における、ラマン型非線形光学過程での光と物質系の角運動量保存則に着目した。光パルスをベクトル波として偏光状態の時間特性を制御することで、マグノンのスピン状態やテラヘルツ電気分極ベクトルを自在に制御できることを示した。

研究成果の概要（英文）：

We investigated quantum degenerate matter phases of photo-generated electrons and holes in semiconductor materials and explored and developed techniques to control and manipulate such systems. Major achievements include the successful observation of the Bose-Einstein phase transition of excitons created and confined in a three-dimensional trap in a bulk direct-gap semiconductor. In an attempt to further stabilize the condensate phase, an ultracold quantum degenerate gas of excitons was then created by cooling it down with a dilution refrigerator. Also, we developed an excitation scheme for the cold electron-hole system in diamond, a wide-gap indirect semiconductor. It led to the discovery of the polyexciton bound state in the low temperature regime, formed as a result of the suppression of electron-hole droplet formation. Furthermore, a high-order photon correlation acquisition system using a streak camera was developed as a method to measure the photon statistics in an ultrafast timescale. Using this, we detected an oscillation, induced by the relaxation oscillation phenomena, of the second-order correlation function for a vertical cavity surface emitting laser in the vicinity of the laser threshold. Moreover, we explored a new method to control material excitations using waveform-shaped pulses. We focused particularly on the conservation of quasi-angular momentum in Raman-type processes in crystals possessing three-fold rotational symmetries. As a result, an unrestrained control of magnon spin states and THz polarizations was demonstrated by shaping optical pulses as vector waves and thus regulating temporal characteristics of their polarization states.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	28,100,000	8,430,000	36,540,000
2009年度	72,800,000	21,840,000	94,440,000
2010年度	37,400,000	11,220,000	48,620,000
2011年度	23,400,000	7,020,000	30,420,000
2012年度	15,700,000	4,710,000	20,410,000
総計	177,400,000	53,220,000	230,620,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：光物性・半導体物性・物性理論・材料化学・量子エレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

光励起や電流注入によって半導体に生成された電子正孔系は強いクーロン相互作用が働く量子多体系であり、多彩な物質相を示す。半導体レーザーなどの素子においては、これらの相互作用を平均場近似で扱うことで、動作設計が行われてきた。近年、素子の微細化や低次元構造の利用などに伴い、この平均場近似を超えた効果がその動作特性において重要になっており、これを踏まえて素子設計の指針を定めることが必要となっている。また、超高速の光制御素子や、光子による量子情報演算や量子中継といった応用に於いても、キャリアの多体相関効果の制御が量子もつれの制御という観点から重要な課題となっている。一方、電子正孔の束縛状態である、励起子系のボース・アインシュタイン凝縮(BEC)の問題は半世紀以上にわたり議論されてきた懸案であるが、近年、結合量子井戸励起子系での自発的秩序形成、非平衡共振器ポラリトンの系でのポラリトン凝縮などの実験が相次いで報告され、研究が一段と活発化している。BECは量子力学原理の基本である、粒子性と波動性の二重性、量子統計性に直接関わる現象である。バルク固体中の電子正孔系が形成する準粒子について、BEC相を準熱平衡を保った状態で系統的に追跡し、転移の挙動と凝縮体の性質を明らかにし、統一的な物理描像を確立することが重要な課題となっていた。

2. 研究の目的

本研究では、1. 準熱平衡電子正孔系の物質相解明、2. 量子縮退した電子正孔系の集団励起とそのコヒーレンスの観測、の2つの項目を研究目的として掲げ、電子正孔集団の挙動を定量的・系統的に追跡し、また量子縮退した励起子系やポラリトン系の多体のコヒーレンスを捉える共に、それと結合する放射の量子コヒーレンスを調べ、光の量子論領

域での制御法として発展させることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 準熱平衡電子正孔系の物質相解明

亜酸化銅 1s パラ励起子はスピン禁制で寿命が長く、励起子 BEC 検証の最有力候補として多くの研究がある。これまで BEC 相は、パルス光励起で温度 $T=2\text{K}$ 、密度 $n=10^{17}\text{cm}^{-3}$ の付近で探索が続けられたが、加熱と粒子損失を伴う Auger 再結合と粒子寿命の制約により BEC 領域に到達できなかった。そこで、歪トラップを用いて励起子ガスを微小空間に保持した状態で、サブケルビン領域に冷却し、BEC の臨界密度を系統的に測定する。特に、 100mK 以下の領域で準熱平衡に励起子ガスを保ち、量子縮退した励起子の集団励起や秩序形成破壊のダイナミクスを世界にさきがけて捉える。

(2) 量子縮退した電子正孔系の集団励起とそのコヒーレンスの観測

まず、亜酸化銅 1s パラ励起子系の相互作用について、2 体非弾性衝突係数の温度依存性を系統的に評価し、その微視的機構を探る。相互作用するコヒーレントな励起子集団の集団・個別励起モードと動的応答とを調べ、励起子 BEC 相に特有の量子コヒーレンスの検出スキームを提案する。また、ワイドギャップ間接遷移型半導体や四重極ポラリトン系についても、低温高密度での自発的量子秩序形成を詳細に調べる。フォトンカウンティングストリークカメラを用いた高次光子相関計数法を開拓し、新しい量子光源あるいはレーザーとは異なるコヒーレント光源としての可能性を探る。パルス光による非線形光学過程を利用し、物質系の素励起をコヒーレントに制御する新しい手法の開拓を行う。

4. 研究成果

(1) 亜酸化銅パラ励起子における非弾性散乱

断面積の定量的観測

高感度励起子ライマン分光法を用いて、無歪の高純度亜酸化銅における 1s パラ励起子の密度の励起密度依存性、およびその温度依存性を正確に測定した。パラ励起子間の二体の非弾性散乱断面積を評価した結果、衝突誘起消失係数は $10^{-16} \text{ cm}^3/\text{ns}$ 台と非常に大きく、また散乱断面積は励起子の並進運動量の逆数に比例する s 波非弾性散乱の一般則に従うことを明らかにした (図 1)。これは液体ヘリウム温度での BEC 到達が不可能であることを示しており、1K 以下における探求が励起子 BEC 達成の唯一の手段であることを明らかにした。

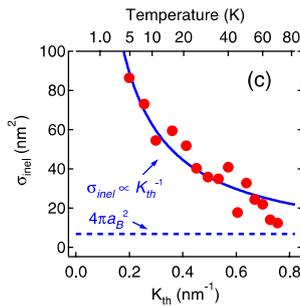


図 1. 励起子 Lyman 分光法によって定量的に観測した、亜酸化銅 1s パラ励起子間の非弾性散乱断面積とその温度依存性 [雑誌論文 2]。

(2) ヘリウム 3 冷凍機を用いた励起子ボース・アインシュタイン凝縮転移の観測

上記の成果をもとに、ヘリウム 3 冷凍機を用いたサブケルビン領域での冷却下で BEC 条件の達成をめざす実験を行った。このような低温においては 1s パラ励起子が生成箇所から速やかに拡散し密度が低下するため、不均一歪みの印加による 3 次元ポテンシャルを形成した。室温の熱輻射が流入しないよう窓材や窓の大きさを工夫することで、800mK の熱平衡状態にある励起子系の生成に成功した。そこで励起子数を増し BEC 相境界を超えると、高い運動量を持つ励起子が急激に出現することを発見した (図 2)。

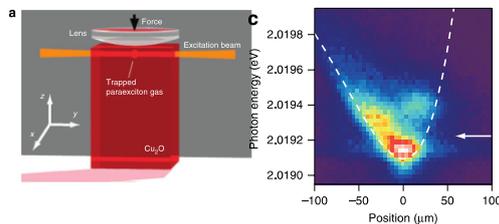


図 2. 不均一歪の印加による励起子 3 次元トラップポテンシャル形成 (左) と亜酸化銅 1s パラ励起子の BEC 転移に伴う緩和爆発現象の観測 (右) [雑誌論文 5]。

調和型の励起子トラップにおいては、基底状態の空間広がり小さいことに起因して、強

い非弾性散乱によるロスが生じる「緩和爆発」現象が水素原子の BEC において議論されてきたが、これが本系にも当てはまり BEC 転移の傍証であることを明らかにした。これらの結果から BEC を安定化するためには、励起子系をさらに低温化して低密度の BEC を用意する必要があることを明らかにした。

(3) 希釈冷凍機を用いた精密分光実験の完成と超低温量子縮退励起子の実現

無冷媒希釈冷凍機を用いた歪誘起トラップ内励起子捕獲の実験系を完成させ、亜酸化銅における超低温のパラ励起子の精密な発光観測を実施した。ベース温度として 38mK を達成し、弱励起極限において不均一歪誘起トラップの深さや勾配を系統的に変化させ、100 mK を下回る世界最低温度の励起子系を実現した。また、応力印加による励起子 TA フォノン相互作用の活性化がこの温度領域の冷却機構に重要であることを明らかにした (図 3)。急峻なトラップポテンシャルの設定においては、ヘリウム 3 冷凍機による実験と同様の緩和爆発現象を再現し、急激な加熱の生じない安定な BEC の条件の探索を進めた。一方、液体ヘリウム温度において励起子ライマン分光法を用いた励起子の吸収イメージングを実現し、希釈冷凍温度において凝縮体の直接観測を実現する検討を行った。

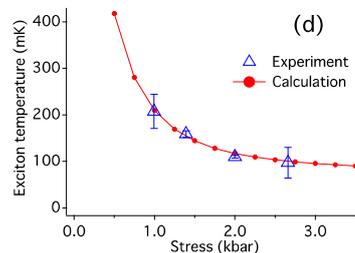


図 3. 格子温度 40mK において測定された、亜酸化銅 1s パラ励起子の到達温度の印加応力依存性。

(4) ワイドギャップ半導体における特異な量子多体系の観測と制御

まず、ワイドギャップ間接遷移型半導体のダイヤモンドにおいて、発光スペクトルの減衰ダイナミクスについて温度依存性と励起子密度依存性の詳細な調査を行った。その結果、自由励起子が窒素欠陥とホウ素欠陥へ束縛されるレートを明らかにし、電子正孔高密度量子相の実現のために不純物濃度が極めて低い超高純度ダイヤモンド単結晶が必要であることを見出した。電子正孔液滴形成の臨界温度以下で強いパルス光を照射後、弱パルスを注入し液滴の形成を促進させる制御実験を行った。液滴発光の増強度の温度依存性から、液滴相が低温においては不安定化することを明らかにした。

また、二光子励起法により低温の電子正孔系を生成した結果、中間密度領域では二個以上の励起子が束縛された多励起子状態をとることを見出した。さらに、中赤外域において液滴由来の金属応答を検出し、液滴のキャリア密度を決定した。

励起子準位への共鳴励起によってさらに低温の励起子系を作ることにも成功し、励起子気体と電子正孔液体との共存相である電子正孔液滴の安定性を検証する手法を確立した。電子正孔系の密度と温度を任意の値に制御できる波数選択励起法を利用して、多励起子状態による発光スペクトルの系統的な解析によって多励起子が安定に存在する相図上の相境界を明らかにした。

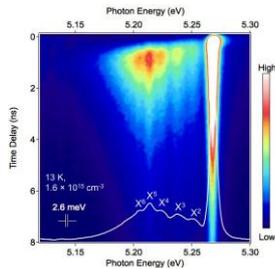


図4. ダイヤモンドにおいて発見された多励起子状態の時間分解発光スペクトル。

(5) 超高速時間領域光子相関測定法の開発

フォトンカウンティングストリークカメラを活用した超高速領域の高次光子相関測定法を開発した。これを垂直共振器型面発光レーザーに対して適用し、発振閾値近傍における高速な緩和振動現象を二次の光子相関を通じて観測した[雑誌論文 9]。このことは、従来のレーザー理論では考慮されていなかった物質系の動的応答が強く反映されていることを示している。

(6) 三回回転対称場における非線形光学過程を用いた物質系のテラヘルツ励起のベクトル制御

THz 領域に強い反強磁性共鳴線が観測される酸化ニッケル(NiO)結晶において、超短パルス光による非線形光学過程を用いた磁化制御、およびそのTHz磁気放射特性を調べた。特に、光磁気相互作用において、光、誘起された磁化、結晶の三者間の角運動量保存に着目した。結晶が離散回転対称性を持つ場合、結晶が離散的な値の角運動量のやり取りが可能である。この事情により、通常禁制であるような非線形光学効果が許容になることを示した。NiO結晶では微小なドメインがランダムに分布するために、結晶が三回回転対称性を有する。この時、直線偏光パルス入射による電気磁気誘導ラマン過程によって、磁気共鳴を瞬時励起することができる。誘起された磁化からのコヒーレントTHz放射を検出

し、磁化励起過程における偏光選択則が上記の予想と一致することを見いだした[雑誌論文 3]。この偏光選択則に基づき、ねじれ偏光ダブルパルスを励起光として用いることによって左右の振動モードが縮退した磁気励起を選択的に励起し、それを円偏光放射として検出することに成功した(図5)。

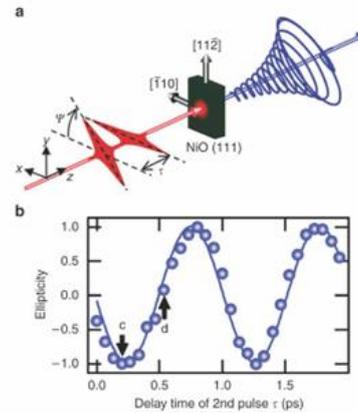


図5. 酸化ニッケルに対するねじれ偏光ダブルパルス励起(a)によって放射されたテラヘルツパルスの楕円率角パルス間隔依存性(b)[雑誌論文6]。

さらに、時空間パルス波形整形技術を用いて実現した「ねじれ偏光パルス」を用いて、物質中の分極・磁化のテラヘルツ振動を自在に制御する手法を開発し、実証することに成功した(図6)。ねじれ偏光パルスの場合、周波数空間における左右円偏光の変調を自在に設計することが可能であるため、誘導ラマン過程の制御の自由度を飛躍的に向上できる。ラマン型の非線形光学過程において、ねじれ偏光パルス波形を設計する際には、光パルスを構成する角周波数成分ごとの偏光状態を独立に制御するのではなく、異なる周波数成分間の相関を考慮する必要がある。この相関を記述する簡便なパラメータとして、「時間依存するストークスパラメータ」を導入し、ラマン型の2次非線形光学過程によって、 $\pm 2h$ となる回転モードの選択制御する手法を理論的に示した[雑誌論文 10]。

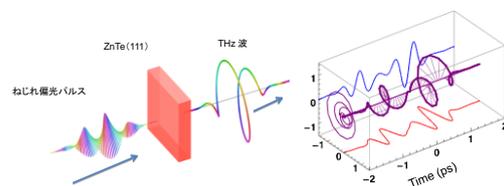


図6. ねじれ偏光パルス励起によるベクトル任意波形テラヘルツ制御実験の模式図と、観測されたテラヘルツ波形

この設計指針に従って波形整形を施したねじれ偏光パルスを用いて、三回回転対称結晶

で差周波を発生させることにより、広帯域の円偏光 THz パルス、中心周波数調整可能な狭帯域円偏光 THz パルス、チャープ制御された円偏光 THz パルスなど、偏光、帯域、中心周波数等を自在に制御できる THz 波発生が可能であることを示し、実証した。これは、THz 領域の様々な振動モードや固体の素励起を自在に制御する技術である。THz 波の帯域や偏光を自在に制御できるため、制御素子がそろっていない、THz 領域の新しい光源技術としても注目すべきものである。

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 26 件) 全て査読有

1. T. Higuchi, H. Tamaru, and M. Kuwata-Gonokami: “Selection rules for angular momentum transfer via impulsive stimulated Raman scattering”, Phys. Rev. A 87 (1), 013808/1-5 (Jan., 2013)
2. N. Takemura, J. Omachi and M. Kuwata-Gonokami: “Fast periodic modulations in the photon correlation of single-mode vertical-cavity surface-emitting lasers”, Phys. Rev. A, 85 (5) 053811/1-5 (May, 2012)
3. K. Yoshioka and M. Kuwata-Gonokami: “Relaxation explosion of a quantum degenerate exciton gas in Cu₂O”, New Journal of Physics 14, 055024 -1-14 (May, 2012)
4. N. Naka, I. Akimoto, M. Shirai, and K. Kan’no: “Time-resolved cyclotron resonance in cuprous oxide”, Phys. Rev. B 85 (3) 035209-1-6 (2012)
5. N. Kanda, T. Higuchi, H. Shimizu, K. Konishi, K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami: “The vectorial control of magnetization by light”, Nat. Commun. 2: 362 (June, 2011)
6. K. Yoshioka, E. Chae, and M. Kuwata-Gonokami: “Transition to a Bose-Einstein condensate and relaxation explosion of excitons at sub-Kelvin temperatures”, Nat. Commun. 2 : 328 (May, 2011)
7. K. Konishi, M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Arakawa, and M. Kuwata-Gonokami: “Circularly Polarized Light Emission from Semiconductor Planar Chiral Nanostructures”, Phys. Rev. Lett., 106 (5) 057402/1-4 (Feb., 2011)
8. T. Higuchi, N. Kanda, H. Tamaru, and M. Kuwata-Gonokami: “Selection rules for light-induced magnetization of a crystal

with threefold symmetry” : The case of antiferromagnetic NiO, Phys. Rev. Lett., 106 (4) 047401-1-4 (Jan., 2011)

9. K. Yoshioka, T. Ideguchi, André Mysyrowicz, and M. Kuwata-Gonokami: “Quantum inelastic collisions between paraexcitons in Cu₂O”, Phys. Rev. B 82, 041201(R)-1-4 (July, 2010)

10. N. Naka, J. Omachi, H. Sumiya, K. Tamasaku, T. Ishikawa, and M. Kuwata-Gonokami: “Density-dependent exciton kinetics in synthetic diamond crystals”, Phys. Rev. B 80 (3), 035201-1-7 (July, 2009)

[学会発表] (計 189 件)

1. M. Kuwata-Gonokami: Search for exciton BEC in a bulk crystal, ICSCCE (The 6th International Conference on Spontaneous Coherence in Excitonic Systems), Stanford, California, U.S.A, (30, Aug., 2012) (invited)
2. M. Kuwata-Gonokami: Bose-Einstein condensation transition of paraexcitons in a potential trap at sub-Kelvin temperatures, EXCON 2012 (The 10th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Nanostructured and Molecular Materials), Groningen, Netherlands, (2nd, July, 2012) (invited)
3. M. Kuwata-Gonokami: Polarization control with artificial chiral structures, 8th EOS Topical Meeting on Diffractive Optics 2012(DO2012), Delft, Netherlands (1st, March, 2012) (invited)
4. M. Kuwata-Gonokami: Relaxation explosion of a Bose-Einstein condensate of excitons in Cu₂O, Fundamental Optical Properties of Semiconductor -2011, North Carolina, U.S.A (4, August, 2011) (invited)
5. M. Kuwata-Gonokami: Experimental aspects of exciton-exciton interactions and of exciton BEC” School and Congerence “Cold Atoms, Semiconductor Polaritons and Nanotechnology”, albatros Hotel, Chersonissos, Crete, Greece, (3, May, 2011) (invited)
6. M. Kuwata-Gonokami: Stability of an ensemble of excitons in a quantum degenerate regime in a bulk semiconductor of Cu₂O, - Search for Bose-Einstein Condensation of excitons, The 41th Winter Colloquium on the PHYSICS of QUANTUM ELECTRONICS, Snowbird, U.S.A (3, Jan., 2011) (invited)

7. M. Kuwata-Gonokami: Advanced photons for condensed matter”, The 4th Yamada Symposium Advanced Photon and Science Evolution, Osaka, Japan (14, June, 2010) (invited)

8. M. Kuwata-Gonokami: Strong optical activity in planner chiral grating Structures, Optical Society of Korea 20th Anniversary and Winter Annual Meeting 2010, KAIST, KOREA (Jan., 21, 2010) (invited)

9. M. Kuwata-Gonokami: Coherent control of resonant two-photon excitation of cold excitons by phase modulated pulses, CLEO/Pacific Rim 2009: The 8th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics, Shanghai, Chinese (Sep., 1, 2009) (invited)

[図書] (計9件)

1. 小西邦昭, 五神真: 半導体プロセスを用いた小型円偏光発光素子の開発, レーザー加工学会誌 Vol.19, No.1, P68-70, 一般社団法人レーザー加工学会 (March, 2012)

2. 吉岡孝高, 五神真: 半導体励起子のボース・アインシュタイン凝縮, 日本物理学会誌第67巻, 第01号, P44, 一般社団法人日本物理学会 (Jan., 2012)

3. N. Naka: Trailing Quantum Phases in Solids Using Light-Matter Interaction, NOVA book “New Developments in Photon and Materials Research”, 19 (2012)

4. K. Peiponen, A. Zeidler, M. Kuwata-Gonokami (Eds.) : Terahertz Spectroscopy and Imaging (Springer Series in Optical Sciences), Springer (2012/10/4)

5. 樋口卓也, 五神真: 光によるコヒーレントな磁化制御における結晶対称性の役割, 固体物理 Vol.46, No.11, P711-723, 株式会社アグネ技術センター (Nov., 2011)

6. 吉岡孝高, 五神真: バルク半導体における励起子 BEC 相の探索, 固体物理 Vol.46, No.11, P593-604, 株式会社アグネ技術センター (Nov., 2011)

7. M. Kuwata-Gonokami: High-Density Excitons in Semiconductors. In: Bhattacharya P, Fornari R, Kamimura H, (eds.), Comprehensive Semiconductor Science and Technology, volume 2, pp.213-255 Amsterdam: Elsevier (2011)

8. M. Kuwata-Gonokami: “Optical Manipulation of Excitonic Particles into a quantum degenerate regime”, Quantum Coherence in Solid State Systems, International School of Physics “Enrico Fermi”, Course CLXXI, Vol.171, IOS press, Amsterdam P343-373 (Sep. 2009)

9. 小西邦昭, 五神真: ナノ格子による巨大旋光性, 応用物理 78, 531-535, 公益社団法人応用物理学会 (June, 2009)

[その他]

ホームページ等:

<http://www.dyce-opt.org>

<http://www.gono.t.u-tokyo.ac.jp>

受賞者: (計7件)

1. M. Kuwata-Gonokami: 2013 Fellow of Optical Society of America, Citation: For contributions to laser spectroscopy and photon science including nonlinear spectroscopy of semiconductors, high density phenomena, cold atoms and micro cavity structures., OSA

2. M. Kuwata-Gonokami: 2012 Fellow of American Physical Society, Division of Laser Science, Citation: For contributions to laser spectroscopy and photon science including nonlinear spectroscopy of semiconductors, high density phenomena, cold atoms and micro cavity structures., APS

3. 今井亮, 神田夏輝, 鄭渚, 小西邦昭, 五神真: 第32回(2012年春季)応用物理学会講演奨励賞「非線形光学結晶を用いたテラヘルツベクトルビームの発生」

4. T. Higuchi received Young Investigator Award in Gordon Research Conference (Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems 2012)

5. 吉岡孝高: 平成23年度日本物理学会若手奨励賞受賞(領域5)(2011年11月)

6. 五神真: 第14回松尾学術賞「レーザー分光法による固体における光量子物理学の研究」2010年10月28日

6. 研究組織

(1)研究代表者

五神真 (GONOKAMI MAKOTO)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号: 70161809

(2)研究分担者

中暢子 (NAKA NOBUKO)

京都大学・理学研究科・准教授

研究者番号: 10292830