

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2015

課題番号：25707024

研究課題名(和文)量子縮退バルク励起子の励起子Lyman分光法による精密観測

研究課題名(英文) Precision measurement of quantum degenerate bulk excitons by excitonic Lyman spectroscopy

研究代表者

吉岡 孝高 (Yoshioka, Kosuke)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：70451804

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,900,000円

研究成果の概要(和文)：励起子ライマン分光法を用いて、歪誘起トラップ中にトラップされた亜酸化銅中の1sパラ励起子の世界初の吸収イメージングに、励起子温度7Kにおいて成功した。また、励起子内部遷移の共鳴エネルギーの印加応力依存性を理論的に計算可能とし、実験結果との対応付けを行った。また、この中赤外分光法を希釈冷凍機に対して適用する実験系を完成させ、100mK台の量子縮退パラ励起子の吸収イメージングを取得することに成功した。さらに、2台のフェムト秒モード同期チタンサファイアレーザーを構築し、超高精度な光周波数コムとして完成させることで、固体の精密分光の実現への道筋をつけた。

研究成果の概要(英文)：We have succeeded to demonstrate the absorption imaging for trapped 1s paraexcitons in cuprous oxide at 7 K using the excitonic Lyman spectroscopy. This is the first observation of the absorption image in exciton systems in general, that probes 1s paraexcitons via the 1s-2p transition. We have developed a theory that describes the frequency shift of the excitonic internal transitions in a strain-induced trap, and we have compared the numerical results with our experiment. We also extended this experimental method in the mid-infrared to our dilution refrigerator, where we have successfully observed the absorption image of a quantum degenerate exciton gas at around 100 mK. In addition, we have developed two mode-locked femtosecond lasers and controlled them to be ultrafine optical frequency combs. This is the first step towards fine spectroscopy of solids using femtosecond frequency combs.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：励起子 ポース・アインシュタイン凝縮 吸収イメージング 周波数コム

1. 研究開始当初の背景

低温の半導体において、光励起された伝導電子と正孔は励起子と呼ばれる水素原子用の束縛状態を形成する。励起子は二対のフェルミ粒子の複合粒子であることからボース統計性に従うと考えられ、低温高密度の条件下でボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) の実現が 50 年以上前より期待されてきた。亜酸化銅 (Cu_2O) における黄色系列 1s 励起子状態は、そのようなバルク励起子系における BEC 実現の最有力候補として長年注目を集めてきた。特に最低エネルギー状態である 1s パラ励起子はスピン禁制励起子であって極めて長い輻射寿命を持ち、格子との熱平衡状態を実現できる理想的な系である。しかしそれは従来の発光測定法の適用が困難であることを意味しており、生成された励起子数、熱分布、さらには励起子間散乱など BEC に不可欠な情報を信頼性のある形で評価することができなかった。

五神真教授 (東京大学) と提案者らは、水素原子様の準位構造を活用して光学許容な 1s-2p 誘導吸収スペクトルを観測し、励起子の密度と熱分布を定量的に測定する「励起子 Lyman (ライマン) 分光法」を開発してきた。特に提案者は、波長選択炭酸ガスレーザーをプローブ光源として用いることで励起子 Lyman 分光法の検出のダイナミックレンジを 5 桁に拡張し、希薄で熱平衡状態にあるパラ励起子を高感度に検出可能とした。

また、代表者らは BEC 転移密度を下げ BEC を安定化するために希釈冷凍機による実験の立ち上げを進め、定常励起下の励起子として世界最低温度の、100mK を下回る超低温の励起子ガスの観測に成功した。しかし、この発光過程の運動量保存則により凝縮体は光子を放出しないため、これを直接観測できないという重大な問題がある。すなわち、量子縮退励起子やボース・アインシュタイン凝縮の観測のために、発光測定以外の敏感な直接的検出手法の開発が急務であった。

2. 研究の目的

本研究では、励起子 Lyman 分光法やレーザー分光技術を最大限に活用してこれらの重大な課題を解決することを目的とした。具体的には以下の通りである。

励起子 Lyman 分光法は並進運動量がゼロ近傍の励起子であっても 2p 準位への遷移は許容であることから、発光観測で問題となった低温励起子の観測不可能性は解決することができる。最近の研究では不均一歪に捕獲した 1s パラ励起子系を用いてボース・アインシュタイン凝縮の観測を進めている。そこで歪誘起トラップポテンシャル中のパラ励起子について、1s-2p 遷移周波数の同定を液体ヘリウム温度において行い、さらに共鳴周波数において励起子の世界初の吸収イメージングを実現する。

さらに、この吸収イメージング法を希釈冷凍機での実験に拡張して量子縮退した歪みト

ラップ中パラ励起子を定量的に観測するため、100mK 台の極低温において中赤外光を導入することに挑戦する。

また、近年分光光源としての導入が進められているフェムト秒光周波数コム of 精緻な光源制御の技術を、本研究のような固体分光へ適用させることを目指し、モード同期チタンサファイアレーザーの構築と光周波数コムとしての制御、さらには励起子の精密な周波数分解分光や時間分解分光の実現を目指す。

3. 研究の方法

具体的には、下記の 3 項目の実現を目指した実験的研究を行う。

(1) 歪誘起トラップポテンシャル中のパラ励起子の吸収イメージングの実現

色素レーザーを用いた 1s 励起子の定常励起の下で、歪トラップした 1s パラ励起子に対して、量子カスケードレーザーと中赤外冷却 MCT 検出器を用いて誘導吸収スペクトルを観測する。その温度依存性・印加歪依存性を高い信号対雑音比をもって観測する。系統的な測定結果から、観測されることが期待される基底状態の誘導吸収遷移の共鳴エネルギーとそのスペクトル形状を突き止める。なお、本実験は液体ヘリウム温度において実施する。

(2) 希釈冷凍機を用いて冷却した量子縮退励起子の吸収イメージングの実現

希釈冷凍機を用いた冷却により当時実現されつつあった、励起子温度 100 mK 以下の極低温パラ励起子の定常励起下での BEC 転移について、その直接的な証拠を励起子吸収イメージングを用いてとらえる。この手法の空間分解能を十分に引き出し、凝縮体の吸収イメージングを空間分解・運動量分解測定のもとで系統的に取得することで、発光観測では得ることができない BEC の直接的な証拠を得る。

(3) フェムト秒パルスレーザーの精緻な制御による励起子のダイナミクスの精密観測

Cu_2O 励起子の精緻な時間分解分光を先端的なレーザー技術を用いて実現するために、進捗に応じて、2 台のフェムト秒モード同期レーザーを製作して周波数コムとしての安定化を行う。これを用いて時間分解分光を行い、例としてオルソ励起子-パラ励起子転換のダイナミクスを調べることを目指す。

4. 研究成果

(1) 歪誘起トラップポテンシャル中のパラ励起子の吸収イメージングの実現

Cu_2O 天然単結晶に対してレンズを通じて圧力を印加し、結晶内に不均一歪を誘起して励起子に対するトラップポテンシャルを形成した。4.9 K に結晶を冷却して、有限の歪み場の箇所のみで 1s オルソ励起子を生成する LO フォノンサイドバンド吸収を通じて、トラップポテンシャル付近にのみオルソ励起子を生成した。オルソ励起子からパラ励起子に転換し、比較的高い密度のパラ励起子がトラップポテンシャル中で熱平衡となる。

チューナブル量子カスケードレーザーを用いて、パラ励起子 1s-2p 共鳴周波数付近をプローブエネルギーとして、トラップポテンシャル付近全体を照射した。トラップ位置の拡大像を形成する位置に液体窒素冷却 MCT 検出器を配置し、それを 2 次元掃引することで透過光強度の 2 次元プロファイルを取得した。高分解能の AD 変換器を用いて MCT 検出器の出力信号を取得することで、各位置において励起子を生成する場合と生成しない場合の差分を高感度に記録した。その結果、プローブ波長 9760 nm において、励起子温度 7 K に相当する空間広がり、トラップされたパラ励起子の空間分布を捉えることに成功した(図 1)。これは励起子系で実現した世界初の吸収イメージングである。

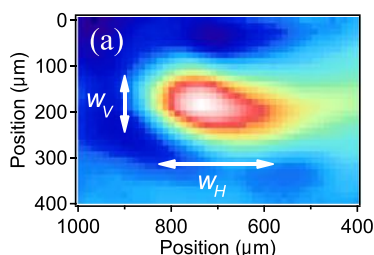


図 1. 世界初のトラップしたパラ励起子の吸収イメージ

また、歪誘起トラップ中では、誘導吸収スペクトルが位置に依存しトラップ中心に近いほど 1s-2p 遷移がレッドシフトすることを位置に依存する誘導吸収スペクトルから発見した(図 2)。この起源を明らかにするため、歪誘起トラップポテンシャル中の 1s-2p パラ励起子遷移について理論的に考察した。歪による 1s 励起子準位のエネルギーシフトについては過去の文献でよく知られているものの、np 状態については報告がない。そこで np 状態の波動関数を基底として相互作用ハミルトニアン行列要素を計算し、2 次摂動の範囲で、空間不均一な歪下での np 準位のエネルギーを任意の空間位置で求めることが可能となった。加えて励起子の熱分布も考慮に入れることで、トラップされた熱的励起子ガスおよびボース・アインシュタイン凝縮体の 1s-2p スペクトルを計算することが可能となった。さらに、オルソ励起子の 1s-np 遷移エネルギーの計算も加え、当該中赤外スペクトル領域におけるオルソ励起子とパラ励起子の重畳の可能性について指摘を行った。

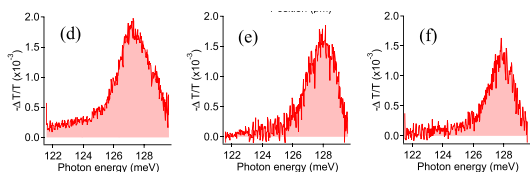


図 2. 歪誘起トラップ中の誘導吸収スペクトルの位置依存性

(2) 希釈冷凍機を用いて冷却した量子縮退励起子の吸収イメージングの実現

希釈冷凍機において、熱輻射を抑制しながら中赤外光を導入可能とするために、中赤外波長域のバンドパスフィルタを冷凍機の輻射シールドを光学窓の代わりに導入した。さらに、中赤外光の導入と発光観測を両立させる事が出来る光学系を希釈冷凍機の内部に構築した(図 3)。希釈冷凍機で冷却した Cu₂O 試料中でトラップされ、100 mK 付近まで冷却されたパラ励起子を用意した。波長可変量子カスケードレーザーの出力を歪み誘起トラップ中の 1s-2p 共鳴波長に設定した上で、適切なパルス幅のパルスに切り出し試料に照射した。その結果、当該低温領域において初めてパラ励起子の吸収イメージを取得することに成功した。

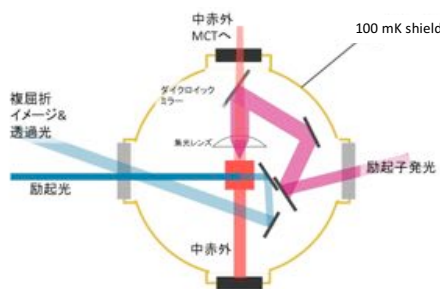


図 3. 希釈冷凍機内部に設置した中赤外・可視の分光を両立させる光学系

(3) フェムト秒パルスレーザーの精緻な制御による励起子のダイナミクスの精密観測

フェムト秒モード同期チタンサファイアレーザーの設計及び製作を行い、実際に 5W 励起のもとでパルス幅 20fs、出力 1W、繰り返し周波数 80MHz のレーザーを 2 台完成させた。従来の分光法を超えた精緻な固体分光法を実現するために必要な、キャリアエンベロープ位相の制御のために f-2f 干渉計を構成し、低位相ノイズ RF 信号に位相同期することに成功した。繰り返し周波数を、縦モードの一本を狭線幅な単一縦モードレーザーに対して位相同期させることで、2 台のフェムト秒光周波数コムが完成した(図 4)。これにより、超広帯域デュアルコム分光法や、電氣的に精密に時間遅延を制御して行うポンプ・プローブ分光法を実施できるセットアップが完成し、精緻な原子分光の技術を固体分光に適用するための道筋が整った。

当初予期していなかった展開として、本研究で製作したフェムト秒モード同期チタンサファイアレーザーの出力ビーム位置や伝播方向を受動的に安定化する方法を確立することに成功し、従来困難であったフォトニック結晶ファイバへの結合効率が長期的に変化しない固体レーザーを実現したことが挙げられる。このことで、世界的にも希有な超狭線幅で光周波数計測能力の高いフェムト秒光周波数コ

ムを完成させることに成功し、本研究のみならず、光原子時計や超精密分光等、領域を超えた重要光源として今後大きく発展させることができる見込みとなった。



図 4. 製作したモード同期チタンサファイアレーザーとフォトニック結晶ファイバを用いて発生した白色光。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

1. K. Yoshioka, M. Kuwata-Gonokami, Phys. Rev. B **91**, 195207 (2015). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.91.195207

[学会発表] (計 22 件)

(海外)

1. K. Yoshioka, “Mid-infrared absorption imaging of a quantum degenerate exciton gas in cuprous oxide at 100 mK”, 19th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids (DPC’ 16), 2016/7/22, Paris (France) (invited)
2. K. Yoshioka, “Quest for Bose-Einstein condensation of a gas of dark excitons at 100 mK”, 12th US-Japan Seminar: Many body quantum systems from quantum gases to metrology and information processing, 2015/9/23, Madison (USA) (invited)
3. K. Yoshioka, “Excitons in Cu₂O: towards a stable Bose-Einstein condensate of bulk excitons at sub-Kelvin temperatures”, International Winter School on the Physics of Indirect Excitons and Polaritons, 2015/3/18, Les Houches (France) (invited lecture)
4. K. Yoshioka, Y. Morita, H. Suzuki, and M. Kuwata-Gonokami, “Towards a stable Bose-Einstein condensate of trapped paraexcitons in Cu₂O at sub-100 mK temperatures”, ICSCE-7 (The 7th International Conference on Spontaneous Coherence in Excitonic Systems), 2014/4/23, Hakone (Japan) (invited)

5. K. Yoshioka, Y. Morita, K. Fukuoka, and M. Kuwata-Gonokami, “Towards a stable Bose-Einstein condensate of excitons in a bulk semiconductor”, QFS 2013: International Symposium on Quantum Fluids and Solids, 2013/8/5, Shimane (Japan) (invited)

(国内)

6. 吉岡孝高, 蔡恩美, 森田悠介, 鈴木博祐, 五神真 「亜酸化銅 1s パラ励起子の歪誘起トラップにおける 1s-2p 誘導吸収スペクトル」 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014/9/8, 中部大学(愛知県春日井市) (口頭)
7. 吉岡孝高, 五神真 「3次元トラップした亜酸化銅 1s パラ励起子の吸収イメージングの実現」 日本物理学会 69 回年次大会, 2014/3/27 東海大学(神奈川県平塚市) (口頭)

[その他]

ホームページ等

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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉岡 孝高 (YOSHIOKA, Kosuke)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：70451804