

論文の内容の要旨

A theoretical study on quantum state and optical trapping of excitons (励起子の量子状態と光学トラップに関する理論研究)

氏名 加藤 洋生

■ 博士論文の概要

本博士論文では固体中の励起子に関する二つの理論的研究を行なっている。一つ目の研究では数値シミュレーションにより励起子多体束縛状態の安定性を調べる。この複合粒子は40年近く前に存在を予言されつつも、計算コストの重さから理論的に検証が進んでいなかった。二つ目の研究は光を用いた励起子のトラップ技術の実現可能性を検証する。この研究は冷却原子の光トラップ技術の応用であり、新たな励起子状態の制御技術を提案するものである。

■ 研究の背景

励起子は電子と正孔がクーロン力により互いに束縛した水素原子様の準粒子である。励起子を構成するキャリアが固体中で生成される過程は主に二つある。一つは半導体・絶縁体の光励起過程で、バンドギャップを超えるエネルギーを持った光子を吸収すると電子正孔対が励起される。二つ目は、N型半導体とP型半導体の接合に電圧を印加することでキャリアを半導体に注入する過程である。いずれの過程に於いてもキャリアが結合して形成された励起子は有限の寿命を持ち最終的には光子を放出して消滅する。そのため、固体の光応答を理解する上で励起子は極めて重要な役割を果たしている。

電子正孔多体系の振る舞いは縦軸に系の温度、横軸に電子正孔対の励起密度をとった相図の上で理解することができる[1]。高温かつ低密度の領域では電子正孔対が励起子を形成

し、励起子気体として存在する。そこから密度が増加していくとクーロン力が他の励起子に遮蔽されるようになり、励起子がイオン化して電子正孔プラズマの相に転移する。一方で、低温領域では電子正孔液体と呼ばれる密度の高い相に転移すると考えられている[1]。また、励起子 BEC は半導体で巨視的量子現象を実現するものとして盛んに研究されてきた[2]。相図は伝導帯や価電子帯の軌道縮重度など系の詳細に強く依存する。しかしながら、電子正孔系では未だ存在が確立していない状態が存在する。一つは多重励起子 polyexciton と呼ばれる励起子の多体束縛状態の存在である。多光子吸収や光応答での励起子間の相関効果を理解する上で重要だと考えられるが、特に三体以上の束縛状態はこれまで理解が進んでこなかった。

一方、主として励起子 BEC の実現を目的として励起子の運動状態の制御技術が様々な形で検討されてきた。もっとも広く使われている手法は、数十 μm スケールの微小チップを結晶に接触させて強い圧力を印加する手法だと考えられる[2]。印加された圧力は局所的に結晶のバンドギャップを小さくし、励起子に作用する実効的な閉じ込めポテンシャルとして機能する。他にも、理論や実験のレベルで様々な励起子の閉じ込め技術が提案されている。音響フォノンの定在波を生成し、その腹ないし節に励起子を閉じ込める手法[3]、小さな空間を取り囲むように高密度に励起子を励起して壁を作り、壁内部の低密度励起子気体の閉じ込めを実現する手法[4]、仮想励起された励起子との運動量交換を励起子の閉じ込めに利用する手法[5]などがある。

■ 本研究の動機と目的

本研究は二つの目的を持っている。一つは多重励起子の安定性を数値的に検証することである。励起子三体以上の束縛は伝導帯・価電子帯の軌道縮退が本質的に重要であると考えられている[6]。しかしながら、計算コストの重さからこれまで理論的な研究が進んでこなかった。実験的な観測の報告も限られているが、近年ダイヤモンドで多重励起子由来とされる発光ピークが観測され[7]、束縛エネルギーの比較が可能になった。

二つ目の目的は、励起子の光を用いた閉じ込め技術の実現可能性を理論的に検証することである。多重励起子の実験では同時に多くの種類の励起子やその複合粒子、電子正孔液体などが出現していると考えられるが、目的の粒子を空間的に分離することができればその物理的性質を研究する上で役に立つと考えられる。光を用いた中性粒子の閉じ込めは冷却原子系の実験技術として長い歴史があり、本研究でも同じ物理的機構を用いた励起子トラップの実現可能性を検討する。

■ 多重励起子の安定性に関する理論的研究

励起子の三体以上の束縛は自明な現象ではない。例えば水素とポジトロニウムは三量体を作らないが[8,9]、これは二量体中で構成粒子がスピン三重項を作ると3つ目の粒子がパ

ウリ斥力により接近できないためだと考えられる。一方、固体中ではブロッホ軌道の縮退が電子・正孔の内部自由度として機能し、パウリ斥力を回避出来ることが多重励起子形成の物理的機構として提案されている[6]。本研究では、粒子間の相関を精密に記述でき、かつ計算コストの低いガウス関数型の基底(ECG 基底)を試行関数に用いた。電子正孔系は有効質量近似に基づき量子少数体系として取り扱い、 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 摂動の枠組みでブロッホ軌道の縮退自由度をモデルに取り入れた。

本研究では数値シミュレーションの結果、ダイヤモンド中の励起子の三量体の安定性を示すことに成功した。これは我々の知る限りではバルクで初めての計算である。また、これに加えて励起子、トリオン(荷電励起子)、励起子分子、荷電励起子分子が束縛することも示した。特に荷電励起子分子と励起子三量体の束縛はブロッホ軌道の縮退自由度を持つ系に固有の状態である。これらの粒子の束縛エネルギーは実験的に報告されている値の 80% 程度を与え、定量的によく再現している。また、有効質量の強い異方性がどのように励起子状態間の縮退を破るかについても明らかにした。多重励起子が形成する条件を満たす半導体は多く、本研究の結果はそれらの半導体での多重励起子の形成を議論する上で普遍的な価値を持つ。

■ 励起子系での光学トラップの実現可能性に関する理論的研究

本研究では励起子系に作用する光ポテンシャルを研究する上で、モデル計算とモデルに必要なパラメータを計算する第一原理計算を組み合わせて用いる。まず光ポテンシャルの原理について述べる。中性粒子が離散的な内部励起状態を持つとき、準位の幅に共鳴するような周波数を持つ電磁波を印加すると、粒子の準位が混成しエネルギーがシフトする。このシフトの大きさは電場強度に比例するため、レーザー一定在波を用いるとエネルギーシフトの大きさが空間的に変調する。これが空間的に周期的な光ポテンシャル、つまり光格子として機能する。励起子のスペクトル構造と電磁波との結合定数が得られると、光トラップの実現可能性について議論することができる。また、冷却原子系では輻射圧による系の加熱が重要な要素となっており、本研究では励起子系で同様の効果がどのように影響するかも議論する。

上記のモデルパラメータ、すなわち励起子の内部励起スペクトルと電磁波の結合強度は第一原理計算で得られる励起子波動関数から決定する。本研究では励起子状態のシミュレーションに GW+BSE 法を用いる。これは固体の励起子状態をもっとも精度よく計算できる手法の一つとして知られている。GW+BSE 法は密度汎関数理論(DFT)と組み合わせて用いられる。GW 近似は電子間の相互作用を媒質に遮蔽されたクーロン力を用いて記述し、DFT 計算で問題になるバンドギャップの系統的な過小評価の問題を大きく改善することが知られている。Bethe-Salpeter 方程式は二粒子相関関数の運動方程式であり、電子正孔対の重

ね合わせ状態として励起子波動関数を与える。DFT 計算には Quantum-ESPRESSO[10] を、GW+BSE 法の計算には BerkeleyGW を用いた[11]。

本研究ではグラフェンという 2 次元的な構造を持つ直接ギャップ半導体の励起子を対象とした。この化合物はバンド構造が単純であり、また励起子の束縛エネルギーが巨大で実験的な準位の同定が容易になること期待して選んだ。数値シミュレーションの結果、最低エネルギー状態から数えて 5 つの励起子状態が光ポテンシャルの実現に使えることが明らかになった。ポテンシャルの深さは 10^7W/cm^2 の電場強度で $10^2 \mu \text{eV}$ の桁のポテンシャルが印加可能であることを示した。また、円偏光を用いることで励起子の二重縮退した最低エネルギー状態の一方を選択的にトラップできる可能性を示した。また、励起子自身の寿命が内部励起状態の緩和のタイムスケールよりも遥かに早いことで、スピン一重項励起子をトラップする上で輻射圧による励起子系の加熱は無視できることを示した。

■ まとめ

本研究では固体中の励起子に関して二つの理論的研究に取り組んだ。一つは固体中での多重励起子の安定性の数値的検証である。間接ギャップ半導体でのブロッホ軌道の縮退自由度と有効質量の強い異方性をモデルに取り入れた。量子少数体系の波動関数を厳密対角化することによってダイヤモンド中の励起子三量体の安定化を示すことに成功した。今回の成果を元に、今後より重要な化合物で多重励起子の研究が進むことが期待される。

二つ目の研究では光を用いて励起子をトラップする技術を理論的に提案した。二次元半導体グラフェン中の励起子を対象として、レーザー一定在波を用いることで $10^2 \mu \text{eV}$ のオーダーの深さのポテンシャルにトラップできることを示した。このポテンシャルはレーザー波長の半分の空間周期を持ち、今回のケースでは $1 \mu \text{m}$ 程度である。これは圧力を印加する手法と比べてポテンシャルの空間スケールが一桁以上小さい。励起子状態の制御に微細加工技術を必要としないことも大きなメリットである。新たな励起子系の操作技術として、励起子の物性の解明に貢献できると考えられる。

【参考文献】

- [1] M. Nagai et al. Phys. Stat. Sol. (b), 238(509), 2003. [2] K. Yoshioka et al. Nat. Comm., DoI: 10.1038/ncomms1335. [3] M. J. A. Schuetz et al. Phys. Rev. X, 7(041019), 2017. [4] A. T. Hammack et al. Phys. Rev. Lett., 96(227402), 2006. [5] M. Combescott et al. EPL, 93(47012), 2011 [6] J. Shy-Yih Wang and C. Kittel. Phys. Lett., 42A(189), 1972. [7] J. Omachi et al. Phys. Rev. Lett., 111(026402), 2013. [8] S. Bubin et al. Phys. Rev. A, 87(054501), 2013. [9] G. Calzaferrri. Chem. Phys. Lett., 87(443), 1982. [10] P. Giannozzi et al. J. Phys.: Condens. Matter, 21(395502), 2009. [11] J. Deslippe et al. Comp. Phys. Comm., 183(1269), 2012.