2013年度 修士論文

励起子ポラリトン凝縮体の音速測定と凝縮ダイナ ミクスの有効質量依存性

2014年2月6日

東京大学大学院情報理工学系研究科

電子情報学専攻

山本研究室

指導教員 山本 喜久 教授

学生番号: 48126453

松下 光樹

Measurement of sound velocity of the exciton polariton condensate and effective mass dependence of its condensation dynamics

by

Koki Matsushita

Master's Thesis

Graduate School of Information Science and Technology Majoir in Electronic and Information Engineering Yamamoto Laboratory

Tokyo University

February 2014

Abstract

Exciton polariton condensates are very attractive as the first practical superfluid in dissipative system, but the character of its hydrodynamics is not revealed ever. In this thesis, we focus on its effective mass and realize the polaritons which have very wide range of effective mass, then we tried to condensate it. Moreover, we excite the density waves as collective excitation of the polariton condensate superfluid by two varieties of lasers, and evaluate its hydrodynamics by the measurement of sound velocity.

目 次

第1章	序論	1
第2章	ボースアインシュタイン凝縮	3
2.1	3 次元系での BEC	3
	2.1.1 基底状態の粒子数密度	3
	2.1.2 秩序パラメータ	5
	2.1.3 非対角長距離秩序と相互作用のある系	6
2.2	超流動	8
	2.2.1 2流体モデル	9
	2.2.2 Landauの基準	10
	2.2.3 超流動体の運動	12
	2.2.4 量子渦	13
	2.2.5 音波的な集団モード	15
2.3	2 次元系での BEC	16
第3章	励起子ポラリトン	18
3.1	量子井戸励起子	18
	3.1.1 GaAs	18
	3.1.2 量子井戸	19
	3.1.3 励起子	21
3.2	半導体微小共振器	22
	3.2.1 ファブリペロー共振器	23
	3.2.2 DBR 共振器	25
3.3	励起子ポラリトン....................................	26
	3.3.1 励起子ポラリトンのエネルギー分散	26
	3.3.2 励起子ポラリトンの凝縮	30
第4章	実験系とサンプル	32
4.1	実験目的	32
4.2	実験サンプル	34
4.3	実験系	36
	4.3.1 冷却系	36
	4.3.2 光学系	37
	4.3.3 実験手順	38
4.4	音速と衝撃波・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	39
4.5	データ解析手法	40
第5章	実験結果	46
5.1		46
5.2		50

第7章	謝辞	60
第6章	参考文献	59
5.4	まとめと今後の展望・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	58
5.3	密度波の励起と音速評価	56

第1章 序論

励起子ポラリトンとは、半導体量子井戸中の励起子と、共振器中のフォトンの混合状態とみな される準粒子である.この準粒子は、極低温下で、DBR と呼ばれる構造の鏡で作られた共振器中 に半導体量子井戸を埋め込んだサンプルに、例えばレーザーを照射することで生成される. レー ザーは半導体量子井戸中に励起子を励起し、励起された励起子はフォトンを吐いて再結合する.後 述するが,励起子には発光する励起子と発光しない励起子が存在する.この放出されたフォトン は共振器中に閉じ込められ、この共振器フォトンモードと励起子の双極子相互作用によって、系 の新しい固有状態である励起子ポラリトンが生まれる. [1] このような励起子ポラリトンが生まれ る状態は Strong Coupling Regime と呼ばれ,主に埋め込まれる量子井戸の数,励起子の振動子強 度の大きさなどによって Strong Coupling Regime となるかどうかが決まる. 励起子ポラリトンの 大きな特徴のひとつは、測定の容易さにある. DBR は 100 % ではない反射率のため、フォトンが あるレート γ_c で外部に放出される.この放出されたフォトンは,内部の励起子ポラリトンの波数, エネルギーの情報を保持しており、ルミネッセンスを測定することで、励起子ポラリトンを直接測 定することができる. [1] そしてもうひとつの大きな特徴は、その有効質量の小ささにある. 励起 子ポラリトンの有効質量は、およそ励起子の10⁻³から10⁻⁴倍と、非常に小さい値を示す.励起 子とフォトンはどちらもボース粒子であるため、励起子ポラリトンもまたボース粒子である.こ のことから,ボーズアインシュタイン凝縮(以下 BEC)を現実的に実現することの出来る候補とし て、着目されてきた.励起子ポラリトンによる BEC は広く研究テーマとなっており、実際にレー ザーのパワーがある閾値を越えると、BEC が観測されたという結果も出ている.しかし、原子気 体 BEC のような平衡系とは異なり、励起子ポラリトンは解放散逸な非平衡系であることから、従 来の理論が適用できないという問題があり,理論分野における近年の課題となっている.また,励 起子ポラリトンは BEC を起こすと、超流動体となることが見込まれている.ここに着目して、励 起子ポラリトンの流体としての振る舞い(運動)を調べることは、初めての実用的な超流動の実 現に繋がるものと考えられている.この励起子ポラリトンの流体力学的な特性の解析のため,密 度波を励起するという研究がある.これは、非平衡系における超流動という新たな概念を示す画 期的な内容であり、平衡系における超流動と異なる点が見つかっている。本研究では、密度波を 実験的に実際に励起して、その特性を有効質量や密度の関数として評価することを目指した.特 に密度波から音速を評価することが大きな目標である. 音速は超流動性と密接に関係した物理量 であり、実験的に測定することは大きな意味合いを持つ. そのためには、BECの形や密度を高い 精度で安定して制御することが必要となり、励起子ポラリトンの励起方法、サンプルの品質など の面で一歩前に進む必要があった.特に今回の研究で着目したのが有効質量であり、これは平衡 系における従来の理論で重要なパラメータでありながら、物質に固有な値のためこれを変化させ るということは、従来の系ではできなかった.励起子ポラリトン系では、有効質量を変化させる ことができる.2つのサンプルを用いて、有効質量に対するポラリトンのBEC特性、更にBEC による密度波の特性を評価した.2章では、3次元、2次元のボース気体によるBEC、超流動につ

1

いて説明し、3章では励起子ポラリトンについて説明する.4章では実験方法を示し、5章で実験 結果とまとめ、今後の展望を示す.

第2章 ボースアインシュタイン凝縮

ここでは、3次元、2次元ボース気体の BEC, 超流動について理解することを目標とする.説明の際には、具体例として、BEC, 超流動の説明の際に良く用いられる原子気体、液体 He⁴ を用いることにする.また、熱力学的な平衡状態を仮定するため、理論的に直接、実際の実験系におけるものに適用できるわけでは無いことに留意されたい.

2.1 3次元系でのBEC

この世に存在する粒子は、全てボース粒子かフェルミ粒子に分類される。その違いは、スピン 角運動量はさることながら、粒子の従うエネルギー的な分布である。高温状態では、粒子は熱エ ネルギーの影響を受け、ほぼボルツマン分布に従うが、低温になるにつれて、ボースアインシュタ イン分布、あるいはフェルミディラック分布に従う粒子に別れる。ボースアインシュタイン分布 に従う粒子をボース粒子と呼び、ボース粒子は同じエネルギー準位に複数個の粒子が存在するこ とが出来る。BECとは、このボース粒子に特有の現象で、ある温度以下で急激に最低エネルギー 状態を巨視的(マクロ)な数の粒子が占めるようになる現象を示し、アインシュタインによって 1925年には予言されていた。この現象は、本来はミクロな世界の理論であるはずの量子力学的な 効果が、マクロなサイズで現れる、巨視的量子効果の表れとして、注目を集めており、実際に実 験として観測されたのは、アインシュタインの予言から、およそ70年も後のことであった。この 現象は、液体へリウムが極低温下で示す超流動性との関連性も指摘され、液体へリウムは恐らく、 BECを起こし、超流動状態となっているのだろう、という推論も為された。しかしながら液体へ リウムは強く相互作用する粒子のために、凝縮温度は定義されておらず、理論的には超流動転移 として扱われている。これは後に説明する量子ディプリージョンの影響によって、超流動状態に ある液体へリウムは、その実、殆どの粒子が凝縮状態にはなく、励起状態にあるためである。[4]

2.1.1 基底状態の粒子数密度

さて、まずは、簡単のために相互作用をしない、理想的な3次元ボース粒子を考えよう.ボー スアインシュタイン分布は、大正準集団において、(2.1)式で表される分布であり、 n_i はi番目の 状態を占有する粒子の平均数、 ϵ_i はi番目の状態のエネルギー、 β は $\frac{1}{k_bT}$ 、 μ は化学ポテンシャル を示す. $f_{BE}(\epsilon_i)$ は、Bose-Einstein分布関数とも呼ばれる. [1][2]

$$\bar{n_i} = f_{BE}(\epsilon_i) = \frac{1}{exp[(\beta(\epsilon_i - \mu)] - 1]}$$
(2.1)

ここで特に最低エネルギー状態 ϵ_0 に着目すれば,基底状態を占める粒子の平均数は,(2.2) 式となる. 粒子の平均数が負の値になることは無いので, $\mu < \epsilon_0$ が化学ポテンシャルの満たすべき条

件となる.

$$N_0 = \bar{n_0} = \frac{1}{exp[(\beta(\epsilon_0 - \mu)] - 1]}$$
(2.2)

ここで、 $\mu = \epsilon_0$ の状態を考えたいので、発散してしまう基底状態の項と分けて考えれば、全粒子数Nは、(2.3)式のように書ける.ここで、 N_0 は基底状態の粒子数である.

$$N = \sum_{i} \bar{n_i} = N_0 + \sum_{i \neq 0} \bar{n_i}$$
(2.3)

 \sum の部分は、励起状態にある粒子数を表しており、これが最大の値を取るのは、 $\mu = \epsilon_0$ の時であることは明らかである. もっと言えば、 μ は粒子数がNとなるように、 $\mu < \epsilon_0$ の範囲で値を変える. では、 $\mu = \epsilon_0$ の時を考えよう. その時の励起状態にある粒子数を、 N_c と書けば、 N_c はTの関数として与えられる. BECは、基底状態にある粒子数 N_0 が、全粒子数に相当する数になる現象である、言い換えれば、 N_c が全粒子数に対して非常に小さな値となる現象である. 低温になるにつれて、 N_c は減少していく. そして N_c がNに満たなくなった時、 $N_0 = N - N_c$ が基底状態に入る粒子数となる. 理想的な3次元ボース粒子の場合、凝縮とみなせるだけの N_0 となる温度を凝縮温度として書くことが出来る. まず、状態密度という概念を導入しよう. これはエネルギー準位があまりに密なため、 $d\epsilon$ というエネルギーあたりに、どれだけの準位が存在するか、という形で表現したもので、自由な3次元系の気体の場合は (2.4) 式で与えられる. ここで全粒子数 $N = \int D(\epsilon) f_{BE}(\epsilon) d\epsilon$ 、もしくは一般に $N = N_0 + \int D(\epsilon) f_{BE}(\epsilon) d\epsilon$ と表記することもある. この場合、 $N_0 \neq 0$ となるのは $\int D(\epsilon) f_{BE}(\epsilon) d\epsilon | \mu = \epsilon_0 < N$ の時である.

$$D(\epsilon) = \frac{Vm^{*\frac{3}{2}}\epsilon^{\frac{1}{2}}}{\sqrt{2}\pi^{2}\hbar^{3}}$$
(2.4)

状態密度を導入することで、 $\mu = \epsilon_0$ の時を考えれば、励起状態にある最大の粒子数密度は (2.5) 式で書け、さらに変数変換を行い、温度 Tc の時を考えれば、励起状態にある最大の粒子数密度と して (2.6) 式が得られる. $\mu = \epsilon_0$ の時、励起状態にある粒子数が最大になり、基底状態の粒子数は この積分の中に定義されていないためである.

$$n_c = \int f_{BE}(\epsilon) \frac{\rho(\epsilon) d\epsilon}{V} |\mu = \epsilon_0$$
(2.5)

$$n_c(T_c) = \frac{(mk_B T_c)^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}\pi^2 \hbar^3} \int_{\epsilon o}^{\infty} dx \frac{x^{\frac{1}{2}}}{e^{x-\beta\mu} - 1}$$
(2.6)

但し、 $x = \frac{\epsilon}{k_B T_C}$ である.ここで、特にこの積分の最大値を考えるために、 $\epsilon_0 \rightarrow 0$ としよう.この積分で求まる粒子数密度は、励起状態に入る最大の粒子数密度である.さて、この積分の値はおよそ 2.612 になることが知られている.さらに (2.7) 式で与えられる熱的 de Broglie 波長を導入すれば、励起状態にある粒子数密度は、(2.8) 式で書くことができる.

$$\lambda_T(T) = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_B T}} \tag{2.7}$$

$$n_c = \frac{2.612}{\lambda_{Tc}^3}$$
(2.8)

これは裏を返せば、熱的 de Broglie 波長単位体積あたりの平均的粒子数が、およそ 2.612 を上回ることが、自由な 3 次元系での BEC の条件であるとも言える. この熱的 de Broglie 波長単位体積あたりの平均的粒子数を位相空間密度と呼ぶ. 基底状態にある粒子数密度と、全粒子数密度の比 $\frac{n_0}{n}$ は、ある温度 T_c 以上では 0 に近似でき、 T_c 以下で (2.9) 式のように書くことが出来る. この温度 T_c が凝縮温度であり、この温度は粒子の質量の逆数に比例することも分かる.

$$\frac{n_0}{n} = 1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^{\frac{3}{2}} \tag{2.9}$$

ここで3次元系であることを強調しているのは、状態密度 $D(\epsilon)$ が2次元系と3次元系では異なるためであり、後述するが、これにより理想的な2次元系では、BEC は起こらないと考えられている.まず、以下で2次元系に進む前に、BEC に関連した重要な概念である秩序パラメータ、長距離相関について述べると共に、相互作用を伴う系についても考える.

2.1.2 秩序パラメータ

相転移を記述する際には秩序パラメータと呼ばれる量を定義するのが有効である.秩序パラメー タは、興味のある相では0ではなく、他の層では0となるように取られる量で、その取り方は一意 的ではない.例えば、強磁性体を考えると、外部磁場によって指向性を持った磁化が生じる(ス ピンの向きが揃う)が、一般的な状態ではスピンの向きはランダムであり、磁化の和は0となる ので、磁化を秩序パラメータとして取ると有用である.同様にして、理想的な3次元ボソンでの BECを考えれば、1節で見たように、凝縮温度以上の温度では、 $\frac{N_0}{N}$ は0に近く、 T_c 以上では0で はない.もっと言えば基底状態における粒子数は、BECではない状態ではほぼ0と考えて良いの で、基底状態における粒子数を秩序パラメータに取ると有効である.それに加えて、粒子状態の 情報も乗せておけば、秩序パラメータ1つで、凝縮粒子数と状態を知ることが出来る.ここでい う状態とは、位相を示す、即ち規格化された波動関数である.これらを踏まえて、BECを考える 場合は秩序パラメータとして、(2.10)式を定義するのが有効である.[2]

$$\Psi(r) \equiv \sqrt{N_0}\psi_0(r) \tag{2.10}$$

あるいは,秩序パラメータとして,(2.11)式のように場の演算子あるいは消滅演算子の期待値 を定義するという考え方もある.但し, $\psi(r)$ のようにハットを付けた ψ を場の演算子として波動 関数 $\psi(r)$ と区別する。場の演算子については、(2.13)式に具体系を記す。

$$\Psi(r) \equiv \langle \psi(r) \rangle \tag{2.11}$$

これらの値自体は、どちらも基底状態の粒子数を表現しているが、その物理的な描像は異なる. このように秩序パラメータを取ると、消滅演算子の期待値はコヒーレント状態のため、BECはコ ヒーレント状態として扱われ、これは概念的な困難を伴う.概念的な困難とは、例えば原子気体 を考えた場合、その粒子数は確定しており勝手に生成したり消滅したりすることは無い.これは 測定事実によって明らかである.しかしながら BEC がコヒーレント状態であると言うことは、粒 子数が確定していないことに等しく,矛盾してしまうことである.さて,相転移とは往々にして, 対称性の崩れにより引き起こされるものである.例えば,強磁性体を考えると,外部磁場により 強磁性体として機能するようになる前は,スピンの向きはランダムであり,スピンを回転させたと ころでエネルギー的に何の問題も起こさない.しかし強磁性相に転移すると,磁場の方向にスピ ンが指向性を持って揃うようになり,スピンを回転させることはエネルギー的に不利である.こ れはハミルトニアンの対称性が崩れたとも表現出来る.[2]一方で,BECの場合は,位相に着目 すると良い.何故なら,BEC状態となる前は,個々の波動関数の位相はランダムであり,ゲージ 対称性と呼ばれるように,これらは平均すると0であるが,BEC状態になると,ある特定の位相 を N₀ という巨視的な数の粒子が取るようになり,言い換えればある特定の位相を共有するように なるためである.これは巨視的な波動関数の形成と呼ばれ、ゲージ対称性の崩れとも表現される.

2.1.3 非対角長距離秩序と相互作用のある系

理想的な系では、単粒子状態を占める粒子の集まりとして全粒子を表現することが出来たが、実際の系では相互作用を伴っているため、このように考えることは出来ない. そのため、系の状態が、がある状態 $\psi(i)$ の重ね合わせであるとして考えることになる. これは多体の波動関数を導入することに他ならない. (2.12)式で与えられる一体の密度行列という概念を導入すると、このような場合においても有効である. [2]

$$n(r,r') = \langle \hat{\psi(r)}^{\dagger} \hat{\psi(r')} \rangle \tag{2.12}$$

まず,相互作用の無い理想系について考えよう.ここで,r,r'は空間座標である. $\psi(r)$ は(2.13) 式のように書ける.

$$\psi(\hat{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{i} \hat{a}_{i} e^{ip_{0}r} = \frac{a_{0}e^{ip_{0}r}}{\sqrt{V}} + \frac{1}{V} \sum_{i \neq 0} \hat{a}_{i} e^{ip_{i}r}$$
(2.13)

さて、ここでボゴリューボフの近似と呼ばれる近似を考える. $\hat{a_0}$, $\hat{a_0}^{\dagger}$ は、基底状態の粒子についての消滅生成演算子である. これらは、通常では交換不可な演算子であるが、 $\frac{\hat{a_0}}{\sqrt{V}}$, $\frac{\hat{a_0}^{\dagger}}{\sqrt{V}}$ について熱力学的極限を取れば、交換可能となる. つまり、 $\frac{\hat{a_0}}{\sqrt{V}}$, $\frac{\hat{a_0}^{\dagger}}{\sqrt{V}}$ は、c数として考えて構わない. そしてこれらの値を考えるために、積を考えて期待値を取れば、基底状態の粒子数 N_0 を用いて $\frac{N_0}{V}$ となる. いま、BEC の状態を考えているため、 $N \doteq N_0$ であり、熱力学的極限においてもこの値は 0 とならない. つまり、 $\hat{a_0}$, $\hat{a_0}^{\dagger}$ を (2.14) 式のように、c数として近似的に扱うことが出来る. これをボゴリューボフの近似と呼ぶ.

$$\hat{a_0} \doteq \sqrt{N_0} e^{-i\phi}, \hat{a_0^{\dagger}} \doteq \sqrt{N_0} e^{i\phi}$$
(2.14)

この近似を用いて、先ほどの一体密度行列の要素を考えよう.一体密度行列の対角要素 (r=r') は、座標 r における粒子数密度を表し、非対角要素 (r \neq r') は、r と r' の間のコヒーレンスを表し ている事に着目して、非対角要素を考える.場の演算子の \hat{a}_0 成分に注目したいので、 \hat{a}_0 成分だけ を別扱いにして考えれば、一体密度行列は (2.15) 式のように書き下せる.

$$\langle \hat{\psi(r)}^{\dagger} \psi(\hat{r}') \rangle = \langle \psi_{0}^{\dagger}(\hat{r}') \psi_{0}(\hat{r}) \rangle + \langle \psi_{\neq 0}^{\dagger}(\hat{r}') \psi_{\neq 0}(\hat{r}) \rangle = \frac{N_{0}}{V} e^{ip_{0}(r-r')} + \frac{1}{V} \sum_{i\neq 0} \langle \hat{a}_{i}^{\dagger} \hat{a}_{i} \rangle e^{ip_{i}(r-r')}$$
(2.15)

 $|r-r'| = \infty$ の極限では位相因子はランダムになり、熱力学的極限を考慮すれば振幅因子は $\frac{N_0}{V}$ という値が残る.これは、どれだけ離れた 2 点間においても、有限かつ一定のコヒーレンスが存在するという事を意味している.これは、前節における位相の共有という話を、一体密度行列の非対角要素を用いて説明している事に他ならない.これは非対角長距離秩序と呼ばれ、前節のような概念的な困難を伴わない便利な方法である.さて、相互作用のある多体系では、ボーズアインシュタイン分布など相互作用の無い理想系を仮定している量子統計に基づいた議論は役に立たず、一粒子の波動関数を持ち出せないので場の演算子を扱うのも難しい.そこでまず、多体の波動関数から出発して、秩序パラメータの従う方程式を考えることで、相互作用のある系におけるBECを考えよう.多体の波動関数として、N 個のボーズ粒子が同じ状態 ϕ_0 にある波動関数を考えると、(2.16)式のように書ける.

$$\psi_N(r_1, r_2...r_N) = \prod \phi_0(r_i)$$
(2.16)

つまり、 ϕ_0 について考えれば良いだろう. ϕ_0 の従う Schrodinger 方程式は (2.17) 式で与えられる.

$$i\hbar \frac{\partial \phi_0(r,t)}{\partial t} = \left[-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m^*} + V_{ext}(r,t)\right] \phi_0(r,t)$$
(2.17)

ここに相互作用として非線形項の $N_0 g |\phi_0(r,t)|^2$ を加えれば, (2.18) 式が得られる.g は相互作用を表す定数である.

$$i\hbar \frac{\partial \phi_0(r,t)}{\partial t} = \left[-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m^*} + V_{ext}(r,t) + N_0 g |\phi_0(r,t)|^2\right] \phi_0(r,t)$$
(2.18)

相互作用として $N_{0g}|\phi_{0}|^{2}$ を加える近似は平均場近似と呼ばれ、相互作用が弱く3体以上に作用 する複雑なもので無い状況下では妥当なものである. 2.1.2 と同様に秩序パラメータを用いて式を 変形しよう.秩序パラメータとして、 $\Psi = \sqrt{N_{0}\phi_{0}}$ を取る.すると秩序パラメータの従う方程式, (2.19) 式が導かれる.

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(r,t)}{\partial t} = \left[-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m^*} + V_{ext}(r,t) + g|\Psi(r,t)|^2\right]\Psi_0(r,t)$$
(2.19)

これは、Gross-Pitaevskii方程式と呼ばれている. 凝縮体の状態については、このGross-Pitaevskii 方程式を解くことで知ることが出来る. 特にGross-Pitaevskii方程式の秩序パラメータの時間発 展は、 $exp(-\frac{iut}{\hbar})$ で時間発展することが知られている. これは、ハミルトニアンから求まるエネル ギーの方程式、(2.20)式において(但し、ハミルトニアンにおいて相互作用の項は、同様に平均場 近似によって導入し、秩序パラメータも同様に導入した.)、正規化条件、式(2.21)を束縛条件と したラグランジュの未定乗数法を用いて、エネルギーが最低となるように求めた秩序パラメータ に関する方程式、すなわち時間に依存しないGross-Pitaevskii方程式、(2.22)式との整合を取るた めである. 具体的にはラグランジュの未定乗数を μ として、 $E - \mu N = 0$ を常に満たすように解 く. [3]

$$E(\Psi) = \int dr \left[\frac{\hbar^2 |\nabla \Psi(r)|^2}{2m} + V(r) |\Psi(r)|^2 + g |\Psi(r)|^4\right]$$
(2.20)

$$\int |\Psi(r)|^2 dr = N_0$$
 (2.21)

$$-\frac{\hbar^2 \nabla^2 \Psi(r)}{2m} + V(r)\Psi(r) + g|\Psi(r)|^2 \Psi(r) = \mu \Psi(r)$$
(2.22)

このµは、 $\frac{\partial E}{\partial N} = \mu \varepsilon$ 満たすラグランジュの未定乗数であり、即ち化学ポテンシャルである.ボーズ粒子が均一であると考えて、 $\nabla^2 \Psi(r)$ の項を落としてV(r) = 0とすれば、 $\mu = gn_0$ とも書ける.ここで、 n_0 は粒子数密度であり、 $n_0 = |\Psi(r)|^2$ である.さて、凝縮体の特徴的な量として、(2.23)式で与えられる回復長というものがある.

$$\xi = \frac{\hbar}{\sqrt{2m^* n_0 g}} \tag{2.23}$$

回復長についての理解を深めるため、無限に高いポテンシャルを持った箱の中に凝縮体が閉じ 込められた状況を考えると、秩序パラメータは箱の壁に近づくにつれて0に近づいていく. [3] そ の描像は、Gross-Pitaevskii 方程式から考えることが出来て、運動エネルギー項とポテンシャルエ ネルギー項の兼ね合いで決まる. ポテンシャルエネルギー = gn_0 である. $\Psi(r)$ の空間変化スケー ルを ξ とすれば、即ち $\frac{\partial \Psi(r)}{\partial r} = \frac{1}{\xi}$ とすれば、運動エネルギーは $\frac{\hbar^2}{2m^*\xi^2}$ のオーダーで書くことが出来 る. これは Gross-Pitaevskii 方程式から分かる情報である. ポテンシャルエネルギー項は、壁の付 近では 0 で、壁から離れれば $\Psi(r)$ はバルクの値に戻ろうとするので大きくなり、バルクの値に戻 ればほぼ一定となる. 逆に運動エネルギー項は、 $\nabla^2 \Psi(r)$ を含むので、壁の付近で大きく、バルク の値に戻ればほぼ 0 になる. ポテンシャルエネルギーと運動エネルギーがバランスするところで、 秩序パラメータはおよそバルクのオーダーまで回復すると言って良いだろう. 即ち $gn_0 = \frac{\hbar^2}{2m\xi^2}$ を 解けば、(2.23) 式が得られる. これは回復長と呼ばれ、壁で0 に落ちた秩序パラメータが回復する 特徴的な長さである. これは後述する、凝縮体中に出来る量子渦の特徴的なサイズという意味合 いも持つ. 量子渦の中心では密度が0 に落ちる、即ち秩序パラメータが 0 に落ち、中心を離れる につれて回復する. ξ はその特徴量を与えているためである. [3]

2.2 超流動

超流動と呼ばれる現象が最初に発見されたのは、液体 He⁴ を 2.17 K 以下という低温に冷やした 時の事であった.液体 He⁴ は、比熱を温度に対してプロットすると、2.17 K 付近で比熱が急激な ジャンプを起こすことが分かっており、この点をプロットした形がギリシャ文字の λ に似ている ことから、 λ 点と呼ぶ.この λ 点を境に、液体 He⁴ は、 λ 点より高い温度では HeI、 λ 点より低い 温度では HeII と呼ばれる.さて、HeII の相で、液体 He⁴ が粘性を失って摩擦無く流れる現象が見 つかった.これは、通常の液体では通ることの出来ないような極細管を、液体 He⁴ は通ることが 出来る、という現象と同じ意味合いを持ち、この不思議な現象は超流動と名付けられた.さらに 不思議な事に、2 つのシリンダーに液体 He⁴ を入れ、それを通常の液体では通ることの出来ない 極細管で繋いだ系において、シリンダー間に温度差を与えると、液体 He⁴ が極細管を通ってシリ ンダー間を移動するという熱機械効果や、噴水効果と呼ばれる現象も発見された.F.Londonは、 液体 He⁴ を相互作用の無い系として考えた時の BEC 転移温度が、2.17 K に近い温度となること から、超流動と BEC は等価なものではないか、と考えた.このアプローチは当たらずとも遠から ずで、実際にはこれらは等価なものではなく異なる現象であるが、共通点が多い現象である.さ て、まずは超流動を記述するにあたって有効な理論であると考えられている2流体モデルから始 めよう.これは、超流動の様々な実験結果を説明するために Tisza が導入したモデルである.[4]

2.2.1 2流体モデル

2流体モデルとは、液体は超流動成分、常流動成分からなっており、それぞれがローカルな速度、 密度を持っているとするモデルで、全流れが (2.24) 式のように表せるとするモデルである. 添え 字のnは常流動成分,sは超流動成分を示す. [4][18]

$$j = \rho_n v_n + \rho_s v_s \tag{2.24}$$

入点よりも高い温度では、超流動成分は0である.これらは、ある液体を考えた時に、ある部分 で区切って、それらを明確に超流動成分、常流動成分として分離できるものではない.λ点より低 い温度では液体 HeII という相になっており、超流動成分が基底状態、常流動成分が励起状態に対 応しているのである.そしてこの励起を起こしているのは、温度による熱エネルギーである.そ してこれらを踏まえれば、λ点より低い温度で超流動となり液体 He⁴ は粘性を失う、という表現 は正しくないことが分かるだろう.確かに粘性が0の超流動成分も存在するが、これは温度が0で ない限り、熱エネルギーによって常流動成分が励起されているため、測定する際に常流動成分の運 動も同時に測定してしまえば、粘性は0にならない.これは有名な回転粘性計を用いた粘性測定 実験と、極細管を用いた粘性測定実験において、λ点以下で粘性が0になったりならなかったりす るという実験事実や、温度によって超流動密度が変化することによる熱機械効果や噴水効果を良 く説明できる理論である.Landauは、この励起という表現に着目した.Landauの考えたモデル では、温度が0では、完璧な超流動体で粘性は0であり、温度が上がるとこの超流動体の中に励起 が起きる.その励起が、それ自身あるいは容器の壁との間で衝突を起こすことによって粘性が導 入されるという描像だ.液体 HeII の励起については、流体力学的に2つの低エネルギー励起があ ると考えられた.1つはフォノンである.これは (2.25) 式で表される線形分散を持つ励起である.

$$E_{ph} = pc \tag{2.25}$$

もう1つはロトンと呼ばれる励起で、(2.26)式で表される分散を持つ. Δは定数である。

$$E_{rot} = \Delta + \frac{(p - p_0)^2}{2m^*}$$
(2.26)

そして Landau は,超流動においては,このような励起が起きないのだと考えた.これが有名 な Landau の基準,あるいは臨界速度と呼ばれる概念である.



Fig. 2.1: 液体 HeII の素励起

2.2.2 Landau の基準

超流動成分が基底状態,常流動成分が励起状態であると前述した,この励起とは温度,即ち熱 エネルギーによってもたらされる.励起状態は,量子化された準粒子,素励起として扱うと都合 が良い.素励起の描像は,励起状態がある運動量 p を持つ素励起だと考える描像である.常流動 体とは,この素励起の流れである.液体 HeII がどのような素励起を持つか,ということは中性子 散乱の実験から Fig.2.1 のように分かっている.[4] Landau は,この素励起という描像に注目し て,超流動の安定性について言及した.ここで勘違いしやすい点について言及しておこう.以下 の Landau の議論は,熱エネルギーによる励起とは異なる議論である.Landau の議論では,熱に よって生まれた素励起,常流動成分は度外視して,超流動成分に着目する.言ってみれば,温度 を固定した状態で,超流動成分において素励起が生まれなければ,それは即ちエネルギーの散逸 を伴わない,まさに超流動成分であるという事である.逆に,素励起が生まれてしまえば,エネ ルギー的に素励起が次々と生成され,基底状態から励起状態へエネルギーを奪っていき,超流動 は崩壊する.Landau は,臨界速度という概念でこれを説明した.

まず、液体 HeII がある速度 V_i で動いている、正確に言えば液体 HeII の超流動成分が動いている状況を考える.言い換えれば中に浮いている質量 M の物体が、速度 V_i で流されている状況である.粘性が 0 ということは即ち、この質量 M の物体は速度 V_i のまま変化することは無いということだ.仮定的に、質量 M の物体によって励起が導入されたと考えよう.これは、質量 M の物体が液体 HeII の粒子を散乱させて、運動量 p とエネルギー $\epsilon(p)$ を与え、速度が V_f に変化したと考える.すると、エネルギー保存の式は (2.27) 式、運動量保存の式は (2.28) 式となり、ここから (2.29) 式が導かれる.

$$\frac{1}{2}Mv_i^2 = \frac{1}{2}MV_f^2 + \epsilon(p)$$
(2.27)

$$Mv_i = Mv_f + p \tag{2.28}$$

$$\epsilon(p) - pv_i + \frac{p^2}{2M} = 0$$
 (2.29)

質量 M は十分に大きいと仮定すれば,第3項を非常に小さいとみなせるので,結局,(2.30) 式 が得られる.

$$|V_i| \ge \frac{\epsilon(p)}{p} \tag{2.30}$$

ここで, (2.31) 式を Landau の臨界速度と呼ぶ.

$$|V_L| = \left[\frac{\epsilon(p)}{p}\right]_{min} \tag{2.31}$$

これは何を言っているかというと、この仮定、即ち励起が導入されるためには、液体 HeII は臨界 速度以上で運動していなければならないということである。通常の分散関係によれば、 $\epsilon(p) = \frac{p^2}{2m}$ である。即ち、臨界速度は 0 である。即ち、励起を起こさないためには、線形の分散関係が要求 されるということである。液体 HeII は低運動量領域で線形の分散関係を持っている。また、相 互作用する一様な 3 次元ボース気体 BEC の素励起は (2.32) 式のようになることが分かっていて、 $\epsilon^0 = \frac{p^2}{2m}$ である。[1]

これもまた低運動量領域で線形の分散関係を持っていることが分かる.当然ではあるが、この Landau の理論に基づけば、g = 0である理想3次元ボース気体のBEC は線形の分散関係を持た ず、超流動とはなり得ない.

$$\epsilon(p) = \sqrt{2gn_0\epsilon^0 + (\epsilon^0)^2} \tag{2.32}$$

また、言い換えれば、液体 HeII は、その分散関係から Landau の基準によれば、超流動体である 必要条件を満たしていると言えるだろう. [2] 再三繰り返すが、この議論においては有限温度によ る常流動成分の存在については考慮していない. 2.2.1 で前述したような極細管を用いれば,常流 動成分は流れることが出来ないため、実験方法によっては常流動成分は考えなくて良くなる.と、 ここまで書いたが,実際に Landau の基準を実験的に確かめる,即ち Landau の臨界速度を実験 的に求めるのは非常に難しいと考えられている.というのも、実際に質量Mの物体が超流動体中 を流れていたり、極細管を超流動体が通るような状況で、量子渦が励起されてしまうためである. そのため実際に実験で求められる臨界速度は、Landauの理論のそれよりもかなり小さな値となっ てしまう.この量子渦については、次節で説明する.さて、こういった超流動という現象を理解 するためには、集団現象として考える事が必要である.フォノンのような素励起は、個々の単粒 子ではなく、多体系としてみた集団的な励起である. 超流動体が運動するということは、全ての 粒子に渡ってコヒーレントに運動するということであり、全空間に渡ってコヒーレンスがあると いうことである.これはBEC で議論したようなコヒーレンスや超距離秩序の話と同様である.こ れらの特徴や分散関係における線形性といった共通点から,BECと超流動は等価なものとして考 えられてきた.しかしながら、あくまでBECとは基底状態にある粒子を指している現象である. 実際, T = 0 において液体 HeII は, 全てが超流動成分と考えられているが, その実, 粒子のエネ ルギーを見てみると、およそ10%程度しか基底状態には無い、すなわちBECの比率はおよそ10 %であると考えられている.その点でこの超流動という現象は、粒子が基底状態にある必要性は無 く,BECとは完全に異なる現象である.液体HeIIの場合では、その原子間の強い相互作用によっ て、粒子が基底状態から励起されてしまっているために、T=0においても BEC の比率がおよそ 10%程度になっているのだと考えられており、これは量子ディプリージョンと呼ばれている.[4]

2.2.3 超流動体の運動

超流動体を考えるにあたって、BEC の理論を適用しようとする事は、不思議なことではない. 前述したようなコヒーレンス、線形の分散という共通点があり、液体 HeII は BEC 成分を含むこ と、あるいは原子気体の BEC において超流動性が確認されたというような結果があるためである. [8][19] しかしながら、超流動は BEC 無しにも起きるということが分かっている.そこで、秩序パ ラメータとして密度を考える、という概念だけ拝借して話を始めよう.もちろん、基底状態のそ れではなく、超流動状態のそれである.そして超流動体の運動を記述するためには、流体力学が 必要となる.流体力学を使うことを見越して、規格化された波動関数 ψ の代わりに、位相 $\phi(r)$ を 用いた形式で秩序パラメータを (2.33) 式のように書こう.

$$\Psi(r) = |\Psi(r)|exp[i\phi(r)] \tag{2.33}$$

超流動密度は (2.34) 式であり, 流体力学の連続の方程式 (2.35) を用いれば, 超流動成分の流れ は, (2.36) 式のように書ける.

$$\rho_s(r) = |\Psi(r)|^2 \tag{2.34}$$

$$\frac{\partial p}{\partial t} + \nabla(\rho v) = 0 \tag{2.35}$$

$$j_s(r) = -\frac{i\hbar}{2m^*} \nabla \Psi(r) + c.c. = |\Psi(r)|^2 \frac{\hbar}{m^*} \nabla \phi(r)$$
(2.36)

これを流体力学の流れの式 (2.24) 式と比較すれば,超流動速度を (2.37) 式のように書くことが 出来る.

$$v_s = \frac{\hbar}{m^*} \nabla \phi(r) \tag{2.37}$$

結局,超流動速度は,超流動体の位相にのみ依存するということである. [3] 言い換えれば,超流動体を構成している1つ1つの粒子,それぞれの速度を局所的に求めることは出来ない. v_s というのは局所的な集団的な速度であり,それは全空間に渡る波動関数,即ち位相に依存した値を持つということである. さて,ここで速度が $v_s = \nabla \phi(r)$ という形で書けるということは,秩序パラメータが0でない,言い換えれば位相が定義されている限りは $\nabla \times v_s = 0$ である事を意味し,速度場は非回転流れであるという事である. もっと言えば,ある領域において秩序パラメータが0になるような特異点が無ければ,その循環は0ということである. このような特異点が無い状況というのは一般的ではないので,一般に特異点があるものとして考える. さて,位相は $mod(2\pi)$ で考えて良く,結局ある領域を1周すれば,位相は 2π の整数倍変化すると言って良い. つまり,循環は(2.38)式のように,整数1で量子化された値を持つ. ここでんはれではないので注意されたい.

$$\Gamma = \oint v_s dl = l \frac{h}{m^*} \tag{2.38}$$

これは、超流動体中の量子化された渦の存在をほのめかしている.さて、量子渦については次節で説明するとして、ここで Hess-Fairbank effect と呼ばれる超流動体の持つ特徴的な回転に対す



Fig. 2.2: 同心円状の2つのシリンダー

る応答について言及しておこう.まず、大きさが微妙に異なる同心円状の2つのシリンダーを用いて作られる環状の空間に、液体 He⁴ が満たされている状況を考えよう.これらのシリンダーは角速度 ω で回転させることが出来て、その環状の部分の半径をRとする.正確には幅 ΔR があるが、十分に狭いとしてRとおく.今、このシリンダーを角速度 ω で回転させる.イメージしやすいように Fig.2.2 にこの模式図を示す.

まず入点以上の温度では、超流動成分は全く無い、流体は、速度 *R*ωで回転することは明らかだ.ここでシリンダーを回転させたまま、温度を入点以下に下げることを考える、常流動成分は, 回転を続けるが、超流動成分は先の議論のように、その循環が整数*l*で量子化されるという制約がかかる. *今、ω* ≪ $\frac{\hbar}{mR^2}$ の状況を考えると、 $\omega = \frac{\hbar}{mR^2}$ での循環 Гは、(2.38)式より $\Gamma = 2\pi R^2 \omega$ 、即ち*l*=1であるから、*l*は1よりも非常に小さい絶対値を取らざるを得ない事が分かる.つまり、 *l*=0となり、循環は0になる、言い換えれば超流動体は回転しなくなる.そして温度をさらに下 げていけば、常流動密度は温度に依存して減少していくので、回転に寄与する密度は $\frac{\rho_n(T)}{\rho_{all}}$ と書く ことが出来る.そしてもちろん、温度を上げていき入点を越えれば、全密度が回転に寄与するよ うになる、更に詳しく言及しておけば、超流動体は常に回転しないわけではない。ωが変化して いき、例えば $\omega = \frac{\hbar}{mR^2}$ となれば、*l*=1となり、回転するようになる。しかし、その応答は ω の 変換に対して決して線形ではなく、次の*l*=2となるまで一定の速度で回転する。ωに対して速度 は、ステップ状に変化するのである. [2] このような非古典的な回転応答は Hess-Fairbank effect と呼ばれ、超伝導における Meissner effect と類似した特徴である. [18]

2.2.4 量子渦

さて,前節での議論のように,超流動体の循環は,液中に特異点が存在すれば,0では無い量子 化された値を持っていた.それ以外では循環は0の非回転流である,つまり回転流である場合は, 必ず特異点が存在している.繰り返すが,特異点とは秩序パラメータが0になる点,この場合で 言えば超流動体の密度が0になる点である.[2][3] 一般に,3次元では特異点は線上に連なること が知られていて、その線の端は液体が入っている容器の壁に繋がっているか、あるいは線がリン グ状になり自己完結するかである.これは渦度 $\Omega = \nabla \times v_s$ に発散が無いためであり、渦糸や渦環 と呼ばれている.渦度に発散が無いことは、 $div(\nabla \times v_s) = 0$ から明らかである.さて、まずは円 筒系の容器中の超流動体を考えて、z軸に沿って渦糸が出来ている状況を考える.この渦糸の周り の秩序パラメータがどのようになるのか考えよう.円筒座標においてz軸依存性は無いものと仮定 しよう.いま、z軸を中心としたループを考えれば、位相は1周で2πの整数倍変化するので、秩 序パラメータは円筒座標で (2.39) 式のように書ける.

$$\Psi(r) = f(r)e^{il\phi} \tag{2.39}$$

ここで, $f(r) = |\Psi(r)|$ であり, $|\Psi(r)|^2 = n_0(r)$ である. $|\Psi(r)|$ で書いても良いが, 以下でこれ を Gross-Pitaevskii 方程式に代入して整理する際に記号の煩雑化を防ぐため, f(r)を用いている. Pechick C.J. らの教科書などにおいても, $|\Psi(r)|$ の代わりに f(r)が使われている事が多く, それ に倣ったという意味もある. さて, これを, 前節で求めた時間に依存しない Gross-Pitaevskii 方程 式, (2.22) 式に代入しよう. 外部ポテンシャルを 0 とすれば, (2.40) 式が得られる.

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(r\frac{\partial f}{\partial r}) + \frac{\hbar^2}{2m^*r^2}l^2f + gf^3 = \mu f$$
(2.40)

ここで、渦糸から遠く離れた地点を考えれば、密度の半径方向への変化量である $\frac{\partial f}{\partial r}$ や $\frac{1}{r^2}$ に比例する項は無視して良いので、結局 $r \to \infty$ とした極限では (2.41) 式が得られる.

$$f(r)_{r \to \infty} = \sqrt{\frac{\mu}{g}} \equiv f_0 \tag{2.41}$$

ここで、この $r \to \infty$ の極限を取るという手続きは、(2.22)式において、均一な系を考えた場合 と同様の手続きであることに注意すれば、 $\mu = gn_0$ と書けて、 $f_0 = n_0$ とも書ける.この n_0 は、渦 の無いバルクの状態における密度であり、渦の中心から無限に離れた距離では、密度はバルクの 値に回復しているということに他ならない.さて、(2.40)式において、新しい変数として $\frac{f}{f_0} \ge \frac{r}{\xi}$ を導入して書き直すと、数値的に解けることが知られており、これを l=1 の場合に近似的に解い た式として、(2.42)式が知られている.ここで ξ は(2.23)式で与えられる回復長である.

$$f(r) = f_0 \frac{r}{\sqrt{2\xi^2 + r^2}}, \Psi(r, \phi) = f_0 \frac{r}{\sqrt{2\xi^2 + r^2}} e^{i\phi}$$
(2.42)

この式は何を表しているか振り返ってみれば、渦糸の周りにおける秩序パラメータであった. $r \rightarrow 0$ の極限、つまり渦糸の部分では $f(r) \rightarrow 0$ 、即ち渦糸は密度が0になっている領域であり、 確かに位相の定義出来ない特異点である事が見て取れる.そして、これは渦糸から ξ 程度離れれ ば、ある程度の値に回復することも分かる.これは前節で回復長について考えた時の議論と同様 である.この事から、 ξ は渦の大きさを決める特徴量として使われる.この渦は全領域に渡って超 流動体の位相に影響を与えており、容器の壁にぶつかるか、或いは反対向きの循環を持つ渦と打 ち消し合う事が無ければ消滅しない.さて、次に渦のエネルギーについて考えよう.渦のエネル ギーは、超流動体の運動エネルギーから評価することが出来る.渦糸の周りの超流動体の速度場 は、(2.38) 式より (2.43) 式のように与えられる.

$$v_s(r) = \frac{\Gamma}{2\pi r} \tag{2.43}$$

渦糸から*ξ*程度の距離までについては無視して,流体は半径 R 程度の大きさまで広がっている とすれば,渦糸の単位長あたりのエネルギーは (2.44) 式のように書ける.

$$E_{K} = \int_{\xi}^{R} \frac{1}{2} \rho_{s} (\frac{\Gamma}{2\pi r})^{2} 2\pi r dr = \frac{\rho_{s} \Gamma^{2}}{4\pi} \ln \frac{R}{\xi}$$
(2.44)

ここから分かるように、渦のエネルギーは、その循環量子数1の2乗に比例している。そのた め、例えば1=2の渦が出来たとすると、エネルギー的には1=1の渦の4倍となる。つまり1=1 の渦が2個になった方が有利なため、この渦はすぐに1=1の2つの渦に分裂する。更に興味深い ことに、これは渦糸の単位長あたりのエネルギーであり、3次元系では渦糸全体のエネルギーは渦 糸の長さに比例するのだが、2次元系では長さのlogスケールのエネルギーとなることが知られて おり、KosterlitzとThoulessが提唱したBKT 転移と呼ばれる現象に密接に関係している。また、 量子渦は、ある量子渦の作る速度場を横切るような運動をする際に循環を変化させて速度場を減 衰させる位相スリップと呼ばれる現象を起こすことが分かっており、それによりエネルギーの散 逸を起こしうる。この節では最後に、渦と、それ自身と反対の循環を持つ渦のペアについて少し 考えよう。円筒系を考えて、z軸方向に渦糸が距離xだけ隔てて並んでいる状況を考える。近似的 に考えて、渦糸から距離x以上離れたところでの速度場は打ち消し合って0になっていると考え れば、この系の持つエネルギーは(2.45)式のように書ける。

$$E_{K} = \int_{\xi}^{x} \frac{1}{2} \rho_{s} (\frac{\Gamma}{2\pi r})^{2} 2\pi r dr = \frac{\rho_{s} \Gamma^{2}}{2\pi} \ln \frac{x}{\xi}$$
(2.45)

っまり,この2つの渦糸の間には (2.46) 式のような力が働く. 向きはお互いに引き合う方向である.

$$F(x) = -\frac{dE_K}{dx} = -\frac{\rho_s \Gamma^2}{2\pi x}$$
(2.46)

また,渦糸と反対の循環を持つ渦糸は,それぞれの作る速度場によって,z方向とx方向に対し て垂直なy方向に速度vで,同じ向きに運動することになる.

2.2.5 音波的な集団モード

BECと相互作用が超流動の根底にある事は示した.超流動の励起スペクトルは、ある波数まで は線形で、ある波数以降はパラボリックな形状をしているおり、これは集団励起の存在を示して いる.パラボリックな形状の励起スペクトルは、運動エネルギー、即ち単粒子的な励起に相当し ている.もちろんあくまでも集団的な励起ではあるが、単粒子的な励起の集まりであるという意 味である.これはある波数 k_c以上では、励起サイズは非常に小さくなり、集団的な振る舞いをし ないことと同じである.超流動や BEC を考える上では、このような単粒子的な振る舞いには興味 がなく、系全体における集団的な励起が重要である.それは波数では k_c 以下に相当する線形の部 分であり、これは励起サイズが大きく、複数の粒子に跨るために集団的な励起となるためである. このような集団的な振る舞いが、前述したような量子渦であったり、音波であったりする.ここ では特に,超流動体の音波的な励起の性質について述べる.まず,一般的に言う音波とは密度波 のことで,密度の疎密の伝搬による波である.この密度波は流体系における基本的な励起体系で あり,集団励起の代表格である.一般に,通常の流体では密度波はまさに密度変化の伝搬であり, 例えば水たまりに水滴を落とせば局所的な密度変化によって波が生じるのはこれである.一方で 超流動体における波は、2 流体モデルに基づけば当然ではあるが,凝縮体成分の密度変化による波 と,熱励起による常流動体成分の密度変化による波が存在し得ることが分かっている.ここでは 特に,低温の極限における理論を紹介する.我々が本研究で興味があるのは低温下であるからで ある.凝縮体のモードというのは、今まで示してきたようにボゴリューボフ型でフォノン型の素 励起であり、その速度は (2.47) 式で与えられる.一方で熱励起によるモードの速度は、 $\frac{c}{\sqrt{3}}$ である ことが知られている.[3] 超流動体における音波的な集団励起と言った時には、このように温度変 化による波と密度変化による波を考えられるのだが、本研究で考えたのは凝縮体モードの方であ る.温度を低温で一定に保ち、局所的な凝縮体の密度変化を起こすことで、この密度波の性質を 実験的に測定した.その結果については5章で述べる.

$$c = \sqrt{\frac{gn_0}{m}} \tag{2.47}$$

2.3 2次元系でのBEC

最後に、2次元系における BEC について考える.2次元系と3次元系ではその状態密度が異なることは2.1 で既に述べた.まずは、理想的な2次元ボース気体について考えよう.2次元の場合の、理想気体の状態密度は(2.48)式で与えられるので、2.1 と同様に考えれば、全粒子数密度を(2.48)式のように書くことが出来る.ここで、2次元の場合は状態密度が *ϵ* に依存しないことに気を付けたい.

$$D(\epsilon) = \frac{m^* V(=L^2)}{2\pi\hbar^2}$$
(2.48)

励起状態の粒子数密度が最大になるのは、 $\mu = \epsilon_0$ である.

$$n = n_0 + \frac{m^*}{2\pi\hbar^2} \int_{\epsilon o}^{\infty} \frac{d\epsilon}{e^{\beta(\epsilon-\mu)} - 1}$$
(2.49)

さて、ここで積分の中身に着目しよう.3次元の場合には、 $\epsilon_0 \rightarrow 0$ の極限を考えて、この積分 の最大値を考えた.このようなプロセスを取ることができた理由は、この積分に最大値が存在し たためである.しかし3次元の場合と異なり、この積分は $\epsilon = \epsilon_0$ で無限大に発散するので、積分 の値は実質的に無限大の値を取ることが出来る.これはつまり、基底状態以外にいくらでも粒子 が入ることが出来ることを意味している.そのため、理想的な2次元系では、トラップなどを用 いて状態密度を調整しない限り BEC は起きない.2.1 でも述べた位相空間密度について、もう少 し補足しておこう.3次元における位相空間密度は、熱的 de Broglie 波長単位体積あたりの粒子数 であったから、同様に2次元の場合では $W = n\lambda_T^2$ のように書ける.これについて、更に踏み込 んで言及すれば、この位相空間密度という値は、熱的 de Broglie 波長に対しての粒子間の距離を 表している.即ち、 $W \ll 1$ という条件は、粒子間の距離は熱的 de Broglie 波長に対して十分に長 い、つまり粒子の波はオーバーラップすることは無く、量子的な現象には至らないということで ある. W > 1でオーバーラップを始め、量子的な現象が見え始めるようになる. そして、1節で 述べたように理想的な3次元系のボース気体では、 $W \doteq 2.612$ でBECが起きたのだった. 実際 には、現実において完全な2次元系というものは無く有限の高さを持っており、このような有限2 次元系ではBECが起き得ることが知られている. これは、確かに2次元系では励起状態には際限 無く粒子が入ることができるが、位相空間密度Wが1よりも大きい時、その中身としては高エネ ルギー状態を占める粒子数がボルツマン分布であるのに対し、低エネルギー状態を占める粒子数 は高い密度である、つまりBECに近い状態であるためと考えられている. [2]

第3章 励起子ポラリトン

ここでは、励起子ポラリトンについて説明する.前章では、原子気体のBEC や液体 HeII に見 られる超流動といった現象を取り上げた.しかしながら、これらを実験的に実現することはとて も難しい.例えば原子気体の場合は、非常に複雑な装置が必要であり、温度も数 mK 程度まで落 とさなければならない.液体 He⁴ については研究が進められているが、液体 He⁴ はデバイス化が 出来ないという致命的な欠点を持っている.そのため、デバイス化が容易な超伝導体と比較する と、超流動体はあまり実用的なものでは無いと考えられてきた.我々が本研究で着目した励起子 ポラリトンは、提案されてからの歴史は浅いが、初めての実用的な BEC、あるいは超流動体とし て機能するのではないかと考えられている準粒子である.励起子ポラリトンは、半導体微小共振 器と呼ばれる構造の中に量子井戸を埋め込み、レーザーによって励起子を励起することで形成さ れる.これについて良く理解するために、まずは半導体の基礎から始めよう.

3.1 量子井戸励起子

我々が主に扱うのは、GaAsと呼ばれる半導体であり、この節ではGaAsのバンド構造について 主に説明する.まず、バルクのGaAsについて考えよう.

3.1.1 GaAs

ブロッホの定理によれば、固体中の電子の波動関数は (3.1) 式のように書ける. [2][11]

$$\psi_k(r) = e^{ikr} u_k(r) \tag{3.1}$$

ここで、*u_k* は格子間隔ごとの周期性を持つブロッホ関数である.ここで*k* は結晶波数であり、 電子の波数を表しているわけではない事に注意する.結晶波数は、ブロッホ関数を平面波展開し た際に現れる波数を表しており、この数は無限にあるが、第一ブリルアンゾーン内の波数を1つ 指定して代表している.逆に言えば、ブリルアンゾーン内の波数以外は、全てブリルアンゾーン 内の波数と等価なものである.結晶格子中の電子の運動を解くということは、結局、Schrodinger 方程式を解いて、波数の関数として電子の固有値、固有状態を求めるということであり、この波 数に対するエネルギーの関係をバンド構造と呼ぶ.さて、次にバンドギャップを考えるため、フェ ルミエネルギー、フェルミ準位について概説する.半導体中の電子のような独立したフェルミ粒 子の集合が熱力学的平衡状態にある時、あるエネルギーを占める確率を与える分布をフェルミディ ラック分布関数といい、(3.2)式で与えられる.

$$f_{FD}(\epsilon_i) = \frac{1}{exp[\beta(\epsilon_i - \mu)] + 1}$$
(3.2)

ここで T=0 の時の μ をフェルミエネルギー E_f と呼ぶ. $\epsilon \leq E_f$ の状態のみ電子が詰まっており, $\epsilon > E_f$ の状態には全く電子が詰まっていないことになり、フェルミエネルギー E_f とは絶対零度 において電子の詰まっている最高準位のエネルギーである. T ≠ 0 の時では, (3.2) 式に沿って存 在確率は $0 \ge 1$ の間でなめらかになる.ここで $\epsilon = \mu$ の時に存在確率は1/2になり、この μ をフェ ルミ準位と呼ぶ.フェルミエネルギーと言った場合、それは絶対零度における議論となる.半導 体では、フェルミエネルギーが、バンドの存在しない禁制帯にあり、フェルミエネルギーより上部 に位置するバンドを伝導帯、下部に位置するバンドを価電子帯と呼ぶ、伝導帯の底と価電子帯の 頂点のエネルギー差をバンドギャップと呼ぶ.これらは半導体によって異なる値を取る.我々が特 に扱うのは GaAs なので、以下 GaAs についての特徴を述べる.まず、伝導帯の電子について、バ ンドの形状が k=0 の周辺でパラボリックな形状になっていることから、有効質量の導入によって 運動エネルギー近似ができる.低温下で、およそ有効質量は $m^* = 0.067m_0$ で与えられ、 m_0 は自 由電子の質量である.また、伝導帯の電子の波動関数を見てみるとs軌道の電子と同様の対称性を 持っており、つまり方位量子数 L = 0 である. このことから伝導帯は、スピン量子数 $S = \frac{1}{2}$ に起 因する2重縮退を起こしていることが分かる.一方で価電子帯の電子については、電子の波動関 数は p 軌道の電子と同様の対称性を持っている.方位量子数 L = 1 なので,スピン量子数 $S = \frac{1}{2}$ と合わせて価電子帯は6重に縮退を起こしている.しかしながらL=1のためスピン軌道相互作 用の影響があり、これにより $L \approx S$ ではなく、J = L + S で与えられる全角運動量 J が良い量子 数となる.これを考慮すると,2 重に縮退した全角運動量 $J=rac{1}{2}$ のバンドと4 重に縮退した $J=rac{3}{2}$ のバンドに分裂することが分かる. $J = \frac{1}{2}$ のバンドの方がエネルギーが低く,エネルギー差はお よそ 0.34 eV である. この $J = \frac{1}{2}$ のバンドはスプリットオフバンドと呼ばれる. $J = \frac{3}{2}$ の価電子 帯バンドの頂点と、伝導帯のバンドの底のエネルギー差で与えられるバンドギャップは、およそ 液体 He⁴ で冷却が可能な~4.2 K では 1.518 eV で与えられる. これは温度依存性を持ち,温度に よって多少変化する. さて, 更にこの4重に縮退している J = $\frac{3}{5}$ のバンドは, k=0 から離れるに つれて縮退が解ける.この4重の縮退を書き下せば、全角運動量のz方向成分Jzは量子化されて おり、 $J_z = \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2}$ の4重である. $J = \frac{3}{2}, J_z = \pm \frac{3}{2}$ のバンドと、 $J = \frac{3}{2}, J_z = \pm \frac{1}{2}$ のバンドはk=0 では縮退しているが、k=0から離れるにつれて、有効質量の大きいバンドと小さいバンドに分裂 する.また、どちらも2重に縮退している.ここで、有効質量の大きいバンドは重い正孔バンド、 またはヘビーホールバンドと呼ばれ、小さいバンドは軽い正孔バンド、またはライトホールバン ドと呼ばれる.これらの有効質量は(3.3)式,(3.4)式のように与えられる.

$$m_{hh}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 - 2\gamma_2}$$
(3.3)

$$m_{lh}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 + 2\gamma_2}$$
(3.4)

 γ_1, γ_2 はLuttinger パラメータと呼ばれるパラメータで、低温下でおよそ $\gamma_1 \doteq 7, \gamma_2 \doteq 2$ である.

3.1.2 量子井戸

前節では、バルクの GaAs についての特徴を述べた.次に、我々が本研究で用いた構造である 2次元量子井戸について概説する.一般に半導体デバイスは、基板上に半導体の結晶を成長させ

て作る. その方法として多く用いられているのが、MBE(分子線エピタキシー法)、CVD(化学気 相堆積)である. MBE は高真空状態中で,目的とする半導体原料を蒸発させるなどして基板表面 に照射して、薄膜状に堆積させる方法である、ここで求められるのは超高真空で、蒸発した分子 が他の分子と衝突することなくビーム状に進むことによって、目的とする分子のみを正確に、分 子層単位で細かく制御して堆積出来る点で優れている.このビームは分子線と呼ばれる.一方で, 超高真空を維持することが難しく、真空度が下がれば分子線にならず、真空蒸着法のように正確 な制御が出来なくなる.また,蒸着速度が遅くコストがかかるため量産には向いていないが,そ の精密性から本研究で使用するサンプルは MBE で製膜している. CVD は真空を必要とせず,原 料を含むガスを熱やプラズマで分解し、基板上に堆積させる方法である.これらの技術を用いて、 基板上にバンドギャップの小さな物質を数 nm の厚みで製膜し、バンドギャップの大きな物質でサ ンドイッチ状に挟んだ構造を量子井戸と呼ぶ.その順序としては,基板上に順に,バンドギャップ の大きな物質、バンドギャップの小さな物質、バンドギャップの大きな物質となる、これによって 電子の運動は強く束縛され、厚さ方向へ閉じ込められることになり、取り得るエネルギーは連続 的ではなく量子化される.これを模式的に表したものが, Fig.3.1 である.これは例えば, 無限の ポテンシャルバリアを仮定した量子井戸, つまり2種類の物質のバンドギャップの差が∞と仮定 した場合では,離散化されたエネルギー固有値は(3.5)式のように与えられる.nは量子数,dは 量子井戸の幅である. Fig.3.1 における E'_q は GaAs を挟む半導体,例えば AlAs のバンドギャップ である.

$$E_n = \frac{h^2}{8m^* d^2} n^2 \tag{3.5}$$



Fig. 3.1: 量子井戸の模式図

また、3次元系から2次元系になることで、その状態密度が変化する.2次元系では、状態密度 はエネルギーの値に比例せず、一定値を取る.これは2.3で述べたことと同じである.またエネル ギーに対して、電子の取り得る状態が増えるにつれて、状態密度も階段状に増加していく.これ を表したのが Fig.3.2 である.[1]

点線は量子井戸ではなく、3次元系の場合を示す. バルクでは k=0 で縮退していたヘビーホール バンドとライトホールバンドは、この閉じ込め効果によって、k=0 での縮退が解ける. そのエネ ルギーのシフトについては、式で分かるように有効質量が小さいほど基底状態のエネルギーは大 きくなるので、ライトホールバンドの方が、ヘビーホールバンドよりもバルク値から大きくずれ ることになる. そのため、以下の議論においてはヘビーホールのみを考え、ライトホールについ ては無視することにする.



Fig. 3.2: 量子井戸の状態密度

3.1.3 励起子

次に、励起子について考えよう. 励起子とは、電子とホールがクーロン力によって束縛された状態で、実際に伝導帯に励起された電子と、価電子帯のホールによる励起子発光によって存在が確認できる. そのエネルギーは、クーロン力で束縛されている分、自由な電子とホールのペアに比べて小さい. 励起子発光のエネルギーと、バンドギャップエネルギーとの差に相当するエネルギーを励起子束縛エネルギーと呼び、このエネルギーが大きいほど励起子が安定して存在できる. バルクの GaAs では、励起子束縛エネルギーはおよそ 4~5 meV で、これは室温の熱エネルギーに比べて小さいため、励起子は安定して存在することができない. [11] 前節のように、価電子帯については、 $J_z = \pm \frac{3}{2}$ のヘビーホール、伝導体については、 $J_z = \pm \frac{1}{2}$ の電子があった. よって、励起子は $J_z = \pm 2,\pm 1$ の状態を取り得る. ここで、フォトンが $J_z = 1$ であることを考えると、 $J_z = \pm 2$ の励起子は、フォトンを吐いて再結合することが出来ない、光学禁制な励起子である. これはダークエキシトンと呼ばれる. 一方で $J_z = \pm 1$ の励起子は、発光するブライトエキシトンと呼ばれる. 励起子を考える際には、このブライトエキシトンを考えるのが妥当である.まず、3 次元の励起子について考えよう. 励起子の Schrodinger 方程式は (3.6) 式のように書け、波動関数は電子とホール、両方の座標に依存している.

$$[(E_c - \frac{\hbar^2}{2m_0m_e}\nabla_e^2) - (E_v + \frac{\hbar^2}{2m_0m_h}\nabla_h^2) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b|R_e - R_h|} + V_e(R_e) + V_h(R_h)]\psi(R_e, R_h) = E\psi(R_e, R_h)$$
(3.6)

このような2体問題は、相互作用、この場合はクーロン力が電子とホールの距離だけに依存す るということを利用すると、重心座標の運動と相対座標の運動に分離することができる.[11] 重心座標を (3.7) 式、相対座標を (3.8) 式、全質量を (3.9) 式、換算質量を (3.10) 式のように導入 する.

$$R_{CM} \equiv \frac{m_e R_e + m_h R_h}{m_e + m_h} \tag{3.7}$$

$$r \equiv R_e - R_h \tag{3.8}$$

$$M \equiv m_e + m_h \tag{3.9}$$

$$\mu \equiv \frac{m_e m_h}{m_e + m_h} \tag{3.10}$$

すると, Schrodinger 方程式は (3.11) 式のように書き直せる.

$$[(-\frac{\hbar^2}{2m_0M}\nabla_{CM}^2) + (E_g - \frac{\hbar^2}{2m_0\mu}\nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b r})]\psi = E\psi$$
(3.11)

ここで演算子はそれぞれの加算系になっているので,波動関数を重心座標の関数と,相対座標の関数の積で表すことができる.重心座標の方程式は,一般的な Schrodinger 方程式の解であるから,平面波解である. [11] そこで相対座標の方程式を書き下せば, (3.12) 式のようになる.

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_0\mu}\nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b r}\right)\phi(r) = (E - E_g)\phi(r)$$
(3.12)

これを解けば,励起子のエネルギーは (3.13) 式のように与えられる.ここで R_{eh} は有効 Rydberg エネルギーと呼ばれる値であり, a_{eh} はボーア半径である.

$$\epsilon_n = E_g - \frac{R_{eh}}{n^2} , \ R_{eh} = a_{eh}^2 \frac{1}{2m_0\mu}$$
 (3.13)

ここで,励起子の束縛エネルギーは励起子のエネルギーとバンドキャップエネルギーの差であったから,励起子の束縛エネルギーは3次元のボーア半径を用いて(3.14)式のように書けるだろう.

$$E_{bind} = \frac{a_{eh}^2 \frac{1}{2m_0\mu}}{n^2} \tag{3.14}$$

2次元系では、同様の議論を2次元系で展開すれば、束縛エネルギーが4倍の値を取ることが分かっている。そのため、2次元に閉じ込めることで、バルクの束縛エネルギー、*E*_{bind}~5 meV は、およそ *E*_{bind}~20 meV となり、これにより励起子が安定して存在することができるようになる。しかしながら量子井戸は、2次元系ではあるが、上の議論で無視していた閉じ込めポテンシャルが存在するようになり、Schrodinger 方程式は電子とホールの閉じ込めポテンシャルを含んだ形になる。そのため、これを解析すると実際には束縛エネルギーは4倍にはならず、およそ2倍の値に留まることが知られている。

3.2 半導体微小共振器

さて、ここまでで量子井戸と励起子について説明した.ここでは、励起子ポラリトンへと話を 発展させるため、まず半導体微小共振器について説明する.共振器とは、一般に2枚の鏡を向かい 合って並べた構造を指す.例えばレーザー発振器は、この共振器中にレーザー媒質を入れること で、光を増幅して取り出している.特に、波長オーダーのサイズのものを微小共振器と呼ぶ.特 に半波長に相当するサイズのものを半波長共振器と呼び、立つモードは最低次である.これと半 導体の量子的な構造、例えば量子ドットや量子井戸を合体させたものを半導体微小共振器と呼び、 本論文では、GaAlAs と AlAs で形成される、DBR と呼ばれる鏡で、GaAs 量子井戸を閉じ込めた 形を考える.まず,単純な鏡で作られた共振器,ファブリペロー共振器から始めて,DBR 構造, 量子井戸励起子との結合,即ち励起子ポラリトンへと話を進めていく.

3.2.1 ファブリペロー共振器

ファブリペロー共振器は、2枚の鏡を一定の距離だけ離して置いた構造である.この構造に対し て光が入射した場合、その波長によって選択的に透過させたり、逆に反射させたりすることがで きる.バンドパスフィルタのように、ある特定の帯域の波長の光のみを透過させるフィルタにも 使われている構造である. 今、Fig.3.3 のように長さ L_c のファブリペロー共振器を考えて、一般 に中が屈折率 n_c の媒質で詰まっていることを考えよう. [2]

鏡の反射率を R,透過率を T,即ち反射係数を \sqrt{R} ,透過係数を \sqrt{T} とする.入射光の振幅を E_0 として入射角度を θ として Fig.3.3 のように取り,透過光の振幅を考える.透過光は,Fig.3.3 の E_1, E_2, \cdots を足し合わせたものであるのは明らかであるから,まず位相シフトを考えよう. l_1 を 光が進む間にシフトする位相 ϕ_1 と, l_2 を光が進む間にシフトする位相 ϕ_2 はそれぞれ (3.15) 式, (3.16) 式のように書ける.



Fig. 3.3: ファブリペロー共振器

$$\phi_1 = \frac{\omega n_c}{c} \times l_1 \tag{3.15}$$

$$\phi_2 = \frac{\omega}{c} \times l_2 \tag{3.16}$$

ここで、*l*₁,*l*₂,*l*₃はそれぞれ (3.17) 式、(3.18) 式、(3.19) 式のように書ける.

$$l_1 = \frac{L_c}{\cos\theta_c} \tag{3.17}$$

$$l_2 = l_3 sin\theta = n_c l_3 sin\theta_c \tag{3.18}$$

$$l_3 = 2L_c tan\theta_c \tag{3.19}$$

透過光 E_T を位相 ϕ_1, ϕ_2 を用いて表せば次のように表せるだろう.

$$E_T = \sum_n E_n = E_0 \sqrt{T} e^{i\phi_1} + E_0 \sqrt{T} e^{i\phi_1} \sqrt{R} e^{i\phi_1} \sqrt{R} e^{i\phi_1} \sqrt{T} e^{i\phi_2} + \cdots$$

これを整理して無限和の公式を用いて書き直せば、(3.20)式のようになる.

$$E_T = E_0 T e^{i\phi_1} \sum_n (R e^{i(2\phi_1 - \phi_2)})^n = \frac{E_0 T e^{i\phi_1}}{1 - R e^{i(2\phi_1 - \phi_2)}}$$
(3.20)

 ϕ_1, ϕ_2 を代入して, (3.16)~(3.18) 式を (3.14),(3.15) 式に代入, 更に振幅について入射光と透過光 の比を取って 2 乗すれば, (3.21) 式が得られる.

$$|\frac{E_T}{E_0}|^2 = \frac{T^2}{1 + R^2 + 2R\cos(2\omega L_c \frac{\sqrt{n_c^2 - \sin^2\theta}}{c})}$$
(3.21)

左辺は、まさにファブリペロー共振器の透過率の定義そのものである.この式の中で $R \ge T$ は 鏡によって決まる定数であるから、結局透過率は、cosの中身に依存することが分かる.そして、 透過率が最大になる条件を共振条件と呼ぶ.これは光が共振器中で反射を繰り返し、十分に長く閉 じ込められているという事を意味している.特に、 $\theta = 0$ として垂直入射する場合を考えれば、共 振条件として共振器長 L_c は (3.22)式で与えられ、特に最も短いl = 1の場合は $L_c = \frac{\lambda}{2n_c}$ である.

$$L_c = (\frac{\lambda}{2n_c})l$$
, $(l = 1.2.3...)$ (3.22)

これは半波長共振器とも呼ばれ,波長入の光を十分長く共振器内に閉じ込めることができる. 一方で、 $\theta \neq 0$ の場合は、共振条件を満たす L_c は $\frac{\lambda}{2n_c}$ から変化するので、共振条件を満たす波長は入から λ' へと変化する.特に、以下では共振器として、半波長共振器を考えることにしよう.さて、 θ を残して共振条件を書き下せば、(3.23)式のようになる.これは共振条件を、共振器長 L_c ではなくエネルギーの条件として書き下したものである.

$$2\pi = \frac{2\omega L_c \sqrt{n_c^2 - \sin^2\theta}}{c} ; \ \hbar\omega(\theta) = \frac{hc}{2L_c \sqrt{n_c^2 - \sin^2\theta}}$$
(3.23)

これは、共振条件を満たす共振器中の光子のエネルギーは (3.23) 式で与えられるということを意味している. もっと言えば、この式で与えられるエネルギー以外のエネルギーを持つ光子は共振器の中でモードが立つこと無く消えていくということである. ところでエネルギーを考えるにあたっては、波数を導入するのは自然である. 共振器フォトンの面内波数 $k_{//}$ を考えると、 $k_{//} = ksin\theta$ である. $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ と合わせて、(3.24) 式が得られる.

$$\sin\theta = \frac{c}{\omega}k\tag{3.24}$$

ここで、面内とは共振器の鏡と平行な面を指している.これを用いて $sin\theta \in k_{//}$ で置き換えれば、エネルギーは (3.25) 式となる.

$$\hbar\omega(k_{//}) = \frac{hc}{2n_c L_c} [1 - (\frac{ck_{//}}{n_c \omega})^2]^{-\frac{1}{2}}$$
(3.25)

さらに、 $\frac{c}{\omega} = \frac{\lambda}{2\pi}$ を用いて、これを近似的に展開すれば (3.26) 式が得られる.

$$\hbar\omega(k_{//}) \doteq \frac{hc}{2n_c L_c} [1 + \frac{1}{2} (\frac{L_c k_{//}}{\pi})^2]$$
(3.26)

これは結局, 共振器フォトンのエネルギーは, 面内波数 k_{//} に対してパラボリックな形で書ける, つまり有効質量を持つことを意味する. 共振器フォトンの有効質量は, (3.27) 式のように導入できる.

$$\hbar\omega(k_{//}) = \frac{hc}{2n_c L_c} + \frac{cL_c}{hn_c} (\hbar k_{//})^2 \; ; \; m_c^* = \frac{hn_c}{2cL_c} \tag{3.27}$$

通常の自由なフォトンは有効質量を持たないが、このように共振器内に閉じ込められたフォトンは有効質量を持っている.この有効質量の導入は、後に励起子ポラリトンの有効質量を論じる際に有効となる.また、半波長共振器を考えれば $L_c = \frac{\lambda}{2n_c}$ であるから、有効質量は (3.28) 式のようにも書ける.

$$m_c^* = \frac{hn_c^2}{\lambda c} \tag{3.28}$$

3.2.2 DBR 共振器

さて、ここで少し話を発展させて、DBR と呼ばれる構造を考えよう。DBR とは、屈折率が大 小と異なる2種類の誘電媒質を、交互に並べて作られる構造である。これは、屈折率が大きい媒 質から小さい媒質へ光が入射する時は自由端反射となり位相がシフトしないのに対して、屈折率 が小さい媒質から大きい媒質へ光が入射する時は固定端反射となり位相が π だけシフトすること を利用したもので、干渉によってこれにより光の透過率は極めて小さくなる。干渉条件を満たす ように、媒質の厚さを $\frac{\lambda}{4n_c}$ に設計すると、透過率が最小、即ち反射率が最大になり、極めて反射 率の高い鏡として機能することが分かっている。但しここでnは媒質の屈折率である。2種類の媒 質を用いるので、それぞれ n=n1、n2 である。これは普通の鏡に比べて、半導体チップ上に作れ る点や反射率を任意にコントロールできる点などで優れており、とりわけ反射率が波長依存性を 持っている事が実験上大きな利点である。本研究で用いたサンプルも、鏡として DBR を用いた. DBR の反射率は波長依存性を持っており、Fig.3.4 で示すように、特に反射率が小さくなる波長が 存在することと、ストップバンドと呼ばれる高反射率領域が存在することが特徴である。

このストップバンド長は, (3.29) 式のように与えられる. $\Delta n = |n_1 - n_2|, n_{eff} = \frac{n_1 + n_2}{2}$ である.

$$\Delta \lambda_{stopband} = \frac{2\lambda \Delta n}{\pi n_{eff}} \tag{3.29}$$

Fig.3.4 は Transfer Matrix Method を用いて適当なサンプルの場合の反射率を計算したもので, DBR を利用した共振器の反射率についても計算することができる. [2]

半波長共振器の鏡を DBR で置き換えた構造の反射率を計算したものが Fig.3.5 で,やはり共振の周 りでしっかりと透過率が高くなっていることが分かる.ここで注意しなければならないのは,ファ ブリペロー共振器の項で論じたように,透過率が高いということは光が十分に共振器の中に閉じ 込められているということであり,光が透過して抜けていっている訳ではないということである.



Fig. 3.4: DBR の反射率の例



Fig. 3.5: DBR 共振器の反射率の例

さて、ここで DBR を鏡として用いた場合、"共振器長"に相当する長さについて、考えよう、単純なファブリペロー共振器の場合、共振器長は L_c で問題無かったが、DBR 共振器の場合は、光が DBR の内部まで浸透することになり、実質的な共振器長は L_c ではなくなってしまう。思い返してみれば、DBR の高反射率は干渉によるものであったから、その表面で光を反射している訳ではないので当然である。この浸透長は penetration depth と呼ばれ、およそ式で与えられる。

$$l_{pene} \doteq \frac{3}{2} \frac{\lambda}{n_{eff}} \tag{3.30}$$

そのため、実質的な共振器長は $L_c + 2l_{pene}$ となる事に注意する、実際に用いるサンプルでは、 このDBR 共振器の中に立つモードの腹の位置にGaAsの量子井戸を埋め込んだものを用いる、こ れにより共振器フォトンモードと励起子を強く結合させて、励起子ポラリトンを実現する.

3.3 励起子ポラリトン

3.3.1 励起子ポラリトンのエネルギー分散

量子井戸で励起された励起子がフォトンを吐いて再結合するのは自然である.ここで,前節で 論じたように,このように発光する励起子は,伝導帯の電子と価電子帯のヘビーホールによるも のであったことに注意しておこう.今,量子井戸が共振器フォトンのモード中に埋め込まれている と、励起子はフォトンの電場と結合し、その結合の強さは $\hbar\Omega$ で与えられる事が分かっている. こ こで $\hbar\Omega$ は双極子相互作用の強さを示す. さて、共振器中に閉じ込められているフォトンは、DBR の反射率が完全な1では無いため、あるレート γ_c で共振器中から消滅すると考えて良く、同様に 励起子についても、あるレート γ_e でフォトンを吐かない非発光過程で再結合すると考えて良いだ ろう. これらによって励起子、フォトンが消滅するまでの間に、励起子とフォトンモードが結合 する、即ちこれらの間で双極子相互作用によるエネルギーのやりとりが行われるような状況下で は、これらは励起子、あるいはフォトンそれ自体ではなく、新しい状態であると見なすことがで きる. これが励起子ポラリトンである. このような状況は Strong Coupling Regime と呼ばれてい る. 一方で、励起子とフォトンモードの結合が弱い場合は、このような励起子ポラリトンを考える こと無く、励起子、フォトンそれぞれと考えられる. つまり、 $\hbar\Omega$ が大きくなり、Strong Coupling Regime にならなければ励起子ポラリトンは必要無い概念である. $\hbar\Omega$ はおよそ (3.31) 式のように 与えられることが分かっており、 N_{QW} は量子井戸の枚数、 L_{eff} は前節で考えた有効共振器長、 n_c は共振器の屈折率である. F_{ex} は励起子の振動子強度である. 本研究で用いたサンプルでは、 $\hbar\Omega$ はおよそ 6~7 meV という値を取る.

$$\hbar\Omega \doteq 2\hbar \sqrt{\frac{2\Gamma_0 N_{QW}}{n_c L_{eff}}} , \ \Gamma_0 = \frac{\pi e^2 f_{ex}}{4\pi\epsilon_0 n_c m_e c}$$
(3.31)

さて,ここでこの DBR 共振器に量子井戸を埋め込んだ系のハミルトニアンを考えると,それは 行列形式で (3.32) 式のように書けるだろう.ここで *E_{exc}*, *E_{cav}* は励起子,共振器フォトンのエネ ルギーである.

$$H = \begin{pmatrix} E_{cav} & \hbar\Omega\\ \hbar\Omega & E_{exc} \end{pmatrix}$$
(3.32)

もし $\hbar\Omega = 0$ であれば、このハミルトニアンの固有値は当然 E_{exc}, E_{cav} であるが、 $\hbar\Omega \neq 0$ の場合について固有値を考えると、このハミルトニアンの固有値は(3.33)式のように書ける.

$$E = \frac{1}{2} [E_{cav} + E_{exc} \pm \sqrt{(2\hbar\Omega)^2 + (\Delta)^2}]$$
(3.33)

これはħΩの導入によって導かれたハミルトニアンの新しい固有値であり,励起子ポラリトンのエネルギーである.エネルギーの低い方をLP(Lower Polariton),エネルギーの高い方をUP(Upper Polariton)と呼ぶ.以下では,エネルギーの低いLPを基準に考えることにする.なお,共振器フォトンのエネルギーは(3.27)式で,励起子のエネルギーは(3.34)式で与えられる.

$$E_{exc} = E_g - E_{bind} + \epsilon_e + \epsilon_h \tag{3.34}$$

励起子ポラリトンを考えるにあたって,励起子ポラリトンが励起子に近いのか,それとも共振 器フォトンに近いのかということは重要であり,LPの場合,これらの割合はHop Field 係数と呼 ばれ,それぞれ (3.35) 式, (3.36) 式のように与えられる.

$$|C|^{2} = \frac{1}{2} \left[1 - \frac{E_{cav} - E_{exc}}{\sqrt{(2\hbar\Omega)^{2} + (E_{cav} - E_{exc})^{2}}} \right]$$
(3.35)

$$|X|^{2} = \frac{1}{2} \left[1 + \frac{E_{cav} - E_{exc}}{\sqrt{(2\hbar\Omega)^{2} + (E_{cav} - E_{exc})^{2}}} \right]$$
(3.36)

UPの場合は、 $|C|^2$ が $|X|^2$ に、 $|X|^2$ が $|C|^2$ になる.これは、 $|LP\rangle = C|C\rangle + X|X\rangle$ のように $|LP\rangle$ は $|C\rangle$ と $|X\rangle$ の線形重ね合わせで記述でき、UPはこれの直交系として $|UP\rangle = C|X\rangle + X|C\rangle$ のよう に取っているためである. $|C|^2$, $|X|^2$ はそれぞれ共振器フォトンと励起子の割合を示し, $|C|^2 + |X|^2 =$ 1の関係がある.ここで、 $\Delta \equiv E_{cav} - E_{exc}$ は励起子と共振器フォトンのエネルギーの差を表し、 detuning と呼ばれる量である.励起子のエネルギーは量子井戸によって決まるので、 Δ は結局、 共振器長の変化を示しており、 $\Delta = 0$ が励起子の波長に対応した共振器長、それよりも共振器長 が長くなれば共振器フォトンのエネルギーが大きくなるので $\Delta < 0$ となり、共振器長が短くなれ ば $\Delta > 0$ となる. $\Delta > 0$ は Blue detuning, $\Delta < 0$ は Red detuning と呼ばれる. ここで, (3.33) 式を、 Δ の関数として UP, LP のエネルギーを図示すると Fig.3.6 のようになる. 更に、 Δ の関 数として (3.35),(3.36) 式を図示すると Fig.3.7 のようになる. Fig.3.6 より, $\Delta = 0$ で UP と LP の エネルギーは最も近づくが、これらの間には最低でも2ħΩのエネルギー差がある事が分かるだろ う. これは Rabi Splitting とも呼ばれ、図から見て取れるように、これによる Anti-Crossing(UP とLP が交点を持たないこと)は、Strong Coupling Regime であることの特徴である.また、 Δ の 値大きくなった状態を考えると、Fig.3.6から分かるように、UP、LPは Ecav, Eexc に漸近してい く事が分かる.特にLPは、 $\Delta \gg 0$ で E_{exc} に、 $\Delta \ll 0$ で E_{cav} に漸近する.これらは即ち、漸近 するような Δ では励起子ポラリトンではなく励起子,あるいは共振器フォトンとして扱っても差 し支えないという事を意味しており、基本的には $\Delta = 0$ が最も励起子ポラリトンとしての特徴が 現れる、即ち励起子ポラリトンを観測しやすい条件である.これは Fig.3.7 からも分かるように、 確かに $\Delta \gg 0$ で励起子の割合が大きくなり、 $\Delta \ll 0$ で共振器フォトンの割合が大きくなってい る.これは次で述べるように、励起子ポラリトンの有効質量を与える重要な要素である.



Fig. 3.6: Δ に対する LP,UP のエネルギー

さて、ここまでくれば、励起子ポラリトンのエネルギー分散を考える事ができるだろう.まず励 起子と共振器フォトンについて考えてみると、その有効質量が大きく違うことは (3.9) 式、(3.28) 式より明らかで、共振器フォトンの有効質量は、励起子の有効質量の $10^{-3} \sim 10^{-4}$ 程度のオーダー で軽い.そのため、これらのエネルギー分散を同じスケールで図示すると、励起子の分散はほぼ 直線になる. Δ の値によって共振器フォトンのエネルギーが異なり、UP、LPの分散も異なり、例 えば Δ の値によって場合分けをすれば Fig.3.8 のように描けるだろう.



Fig. 3.7: Δ に対する $|C|^2, |X|^2$



Fig. 3.8: Δ ごとの LP, UP のエネルギー分散

Fig.3.8 から分かるように、LP のエネルギー分散は、 $k \doteq 0$ でパラボリックな形になっている ことから、LP の有効質量 m_{LP} を考えることができるだろう。それは共振器フォトンの有効質量 m_{cav} と励起子の有効質量 m_{exc} を用いて、(3.37) 式のように書ける。

$$\frac{1}{m_{LP}} = \frac{|C|^2}{m_{cav}} + \frac{|X|^2}{m_{exc}}$$
(3.37)

 $m_{cav} \doteq m_{exc} 10^{-3} \sim 10^{-4}$ を思い出せば、励起子ポラリトンの有効質量は、 $k \doteq 0$ でおよそ励起 子の $10^{-3} \sim 10^{-4}$ 倍と非常に小さな値を持つことが分かる. ここで励起子は偶数個のフェルミ粒子 の複合体、つまりボース粒子であり、共振器フォトンもボース粒子であることを考えると、励起 子ポラリトンはその線形重ね合わせ状態であるから、励起子ポラリトンもまたボース粒子である. 第1章で述べた BEC を思い返そう. BEC はボース粒子に特徴的な現象であり、有効質量が小さ いほど、BEC が実現する温度は高くなる. つまり、励起子ポラリトンは BEC を比較的高温で発 現させることが見込まれる. これが励起子ポラリトンが注目を集めている大きな理由の1つであ る. また、先に述べたように、励起子ポラリトンには寿命という概念がある. それは励起子の非 発光再結合や、共振器フォトンが外部へ洩れてしまうことに起因し、 $\gamma_e \ge \gamma_c$ を用いて (3.38) 式の ように書ける.

$$\frac{1}{\gamma_{LP}} = \frac{|C|^2}{\gamma_c} + \frac{|X|^2}{\gamma_e}$$
(3.38)

これらは共振器の構造に起因し、およそ $\gamma_e \doteq 1 ns$, $\gamma_c \doteq 1 ps$ である. つまり、有効質量の場合 と同様に、励起子ポラリトンの寿命はおよそ共振器フォトンの寿命で近似でき、ps のオーダーで ある.

3.3.2 励起子ポラリトンの凝縮

前節で述べたように,励起子ポラリトンはBECを発現することが期待される.その過程につい て考えてみよう.まず,励起子ポラリトンはレーザーのような光パンプによって,励起される.こ こで用いるレーザーの波長 (エネルギー)によって、励起子ポラリトンがどこに励起されるかは変 動する. 一般的に用いられているのは Off Resonant Pumping と呼ばれる方法で, LP の底に直接 凝縮体を励起するのではなく、LPの枝やUPの枝、あるいは量子井戸の高さを越える高いエネル ギーにある連続帯に励起して、エネルギー緩和によって自発的に LP の底へ落とす方法である.連 続帯に励起した場合は,励起子ポラリトンではなく,電子とホールペアの状態である.まず LP の 枝に励起する場合を考えよう. レーザーをある入射角θで入射させた時を考える. レーザーの入 射角 θ は、 $k_{//} = \frac{2\pi}{\lambda} sin \theta$ で $k_{//}$ に相当する量であるから、Fig.3.9のように LP の枝に LP の溜ま りができる. これは Reservoir と呼ばれる. Reservoir から LP は、まずフォノン散乱によってエ ネルギー的に緩和されていく.これは Reservoir 周辺は $k_{//} \gg 0$ の領域のため、その LP の特性は 励起子に近くなっているためである.励起子ライクな LP のエネルギー分散は有効質量が大きい ため非常にゆるやか、つまり状態密度が高くなっており、フォノン散乱のエネルギーによってな めらかに緩和され、LPの枝を落ちていくことができる.実験では液体He⁴による冷却で温度はお よそ 4.2 K 前後になっており、この温度でのフォノン散乱のエネルギーが状態間のエネルギー de よりも大きいため、連続的に下の準位に落ちていく.しかし一方で、LPの枝を落ちていくにつれ て、k//は0へ近づいていき、段々とLPの特性は励起子ではなく、共振器フォトンに近づいてい く. すると LP のエネルギー分散は有効質量が急激に小さくなるため, 非常に急峻になる, つまり 状態密度が非常に小さくなる.こうなると、フォノン散乱のエネルギーではこれ以上 LP の枝を 落ちることが難しくなってしまう. 散乱先の受け皿が少なくなるためである. これは, Bottleneck Region と呼ばれている. この Bottleneck Region から脱出し, LP の底へ落ちるためには, LP 同 士の散乱過程が必要になる.これはLP-LP 散乱とも呼ばれ,Bottleneck Region に溜まったLPの 数が多くなってくるとLP同士で散乱を起こし、更にエネルギー的に緩和しようとする.この散乱 は、粒子数Nに対してN(N-1)のオーダーで起きるため、ボトルネックに溜まったポラリトンは、 散乱先の状態密度の小ささは健在であるが LP-LP 散乱によって枝を下ることができる. この散乱 の中でエネルギーと運動量は保存されており、ある LP が始状態である Bottleneck Region から終 状態として低エネルギー,低運動量である LP の底へ近い方へ散乱されるとすると,同時に散乱相 手となった LP は終状態として高エネルギー,高運動量であるフォノン散乱を受ける方へ散乱され る. これらフォノン散乱や LP-LP 散乱のレートは, Bose final state stimulation effect と呼ばれ るボース粒子特有の現象によって、終状態のLPの数が増えれば増えるほど増加していく.LPの 枝の上部に散乱された LP は、フォノン散乱によってまた Bottleneck Region に戻り、LP-LP 散乱 によって LP の底へ向けて LP が落ちていくことになる.これらによって, Reservoir に溜まって いた LP は、LP の底に落ち、凝縮することになる. これらの仕組みは、レーザーの2準位系に帰 着できる. この場合は、Reservoir が上準位、すなわち反転分布を形成して、凝縮体が下準位に相 当する. これらは (3.39)、(3.40) 式で表される. β はレイジングに寄与する自然放出の割合、P は レーザーのパンプパワー、 γ は減衰レート、即ち寿命を表す. 式中の +1 の部分が自然放出に相当 して、LP-LP 散乱によって Bottleneck を越えて、 n_c が1よりも大きくなれば誘導放出が始まり、 凝縮体が形成されていくことになる. [15]

$$\frac{dn_c}{dt} = \beta \gamma_R n_R (n_c + 1) - n_c \gamma_c \tag{3.39}$$

$$\frac{dn_R}{dt} = P - \beta \gamma_R n_R (n_c + 1) - n_R \gamma_R \tag{3.40}$$



Fig. 3.9: LP の緩和過程

また、UPの枝に励起された UPや、連続帯に励起された電子とホールペアもまた、フォノンを 吐くなどの緩和によって LPの枝に落ちて LPの Reservoir を形成することがあると考えられてい る.一方で、例えば入射角 $\theta = 0$ を用いる場合、直接 LPの底に相当するエネルギーで励起すれ ば、このような緩和を経なくてもいきなり凝縮体ができるのではないか、という考えもあるだろ う.これは On Resonant Pumping と呼ばれる方法である。しかしながらこの方法を用いた場合、 BECの特徴であるコヒーレンスは、緩和過程の中で誘導放出によって自発的に形成されたもので はなく、レーザーのコヒーレンスによってドライブされたものになってしまうという問題がある。 っまり BEC がレーザー依存性を持ってしまうことになり、これは不都合である。そのため、この 方法で作られた凝縮体は Fake Condensate などと呼ばれることもある.

第4章 実験系とサンプル

ここでは、本研究で行った実験の目的、手順、用いたサンプルの特性について説明する.まず、 本研究の目的について詳しく述べる.

4.1 実験目的

超流動体の集団モードの振る舞いは励起スペクトルに起因しており、例えば平衡系における超 流動体の励起スペクトルは、ボゴリューボフ型であった.そしてこのボゴリューボフ型の励起ス ペクトルは、低波数領域ではフォノン型の励起で傾き c を持っていた.つまり低波数励起を前提 として、集団モードである密度波を励起した状態を考えれば、その群速度は音速 c である.そし てこれはkによらず一定の値である.この音速 c は、ボゴリューボフ型の励起スペクトルの (2.32) 式から、(2.47) 式のように書けた.しかし励起子ポラリトンのような解放散逸系では、超流動体 の励起スペクトルはボゴリューボフ型にならず、サンプルの特性によって異なる励起スペクトル を持つことがシミュレーションなどによって明らかにされてきた.これを示したのが Fig.4.1 であ る. [7][10]

Fig.4.1(a)は、励起スペクトルのダイアグラムを示している. 横軸は励起レーザーのパワーを凝 縮体の形成される閾値で正規化したものであり、これは凝縮体の密度を与えている.縦軸は 2/2 で ある. γ_R は系における Reservoir からのポラリトンの緩和レート, γ_C は凝縮体の崩壊レートであ り、これらは用いたサンプルによって固有の値を取り、例えばサンプルの DBR の性能などに依存 する. [7] Fig.4.1(b),(c),(d) は, (a) におけるそれぞれの点での励起スペクトルを示しており, 励起 レーザーパワーやサンプルの ² によって, ボゴリューボフ型とは異なる励起スペクトルを持つこ とが示されている. [7] Fig.4.1(b),(d) のようなボゴリューボフ型ではない励起スペクトルの場合, フォノン励起と異なる非線形な形をしており、その音速を励起スペクトルから求めることはでき ない. また, 2.2.2 節で示した Landau の基準を満たしていないことが分かる. しかしながら, こ れらの励起スペクトルを持つポラリトン凝縮体が超流動体では無いと考えるのは聊か不適切であ る. 例えば J.Keeling らのグループは、励起子ポラリトン凝縮体には超流動密度が存在することを 理論的に示している. [8] 現在の動向としては、解放散逸系における超流動は、従来の平衡系にお ける超流動とは全く異なった性質を持つものとして、その定義自体も明確なものではない. そこ で、励起子ポラリトン凝縮体について、その流体力学的な特性を明らかにするべく、励起子ポラリ トン凝縮体中に密度波を励起して、その波の伝搬について理解することを目指した、これは言葉 を変えれば、非平衡系の超流動体における流体力学の解明を目指したものである。平衡系におけ る超流動体における波の伝搬については 2.2.5 節で述べ,密度波はフォノン波束に等しく,その群 速度は音速 c であった. しかし非平衡系においてはそうでは無いことが期待される. 具体的には密 度波であるフォノン波束の群速度は一様ではなく様々な値を持っていることが励起スペクトルか



Fig. 4.1: 励起スペクトルのダイアグラム

ら見込まれる.更に解放散逸系における超流動の特徴を与えるパラメータとして音速 c に着目し, 音速 c のプロファイルを求めることも目指した.ポラリトン凝縮体における密度波は, CW ビーム によって作られたバックグラウンドのポラリトン凝縮体の密度を、局所的にパルスビームで変調 することによって測定できる.励起子ポラリトンの非平衡性に基づく非線形励起スペクトルの効 果は、この密度波を観測することによって直接的に観測することができる。音速とは、媒質中を 伝搬する振動の最高速度を与える重要な物理量である.いかなる振動も、音速以上の速度で媒質 中を伝わることはできない. 音速のプロファイルは, Fig.4.1 で与えた励起スペクトルのプロファ イルと同様に、解放散逸系における超流動の特性を与えることが期待される、平衡系における音 速は、(2.47)式のように、質量と密度に依存する.gは相互作用を表す定数であり、媒質による定 数である.そこで,密度を与える励起レーザーのパワーと,ポラリトン凝縮体の有効質量の関数 として音速を実験的に求めるため、4.2節で示すサンプルと4.3節で示す実験系を用いた.ところ で励起子ポラリトンを励起するためにはレーザーによる励起が必要であるが、その入射レーザー の入射角は重要な意味合いを持っている。角度をつけるということは波数を与えるということで あり、緩和過程として LP の枝に励起して、散乱によって枝を落ちていく過程は角度をつけた入射 レーザーで実現できる.一方で、角度をつけることによる凝縮体の形や大きさが楕円形になって しまい、そのコントロールが非常に難しくなってしまうという問題がある。そのため、理想的に は垂直入射によって凝縮体を実現したいという思いがある.しかしながら垂直入射によって Fake ではないLP 凝縮体を実現するには、UP の共鳴エネルギーを用いるか、あるいは更に高いエネル ギーである連続帯に励起するしか無い. ここからの緩和過程というものは明らかにされておらず, そのエネルギー差の大きさから、緩和して凝縮体を実現することは難しいと考えられている.本 研究では2つのサンプルを用いて実験をしており、古いサンプルと新しいサンプルそれぞれで特 性が異なる.新しいサンプルでは垂直入射によって凝縮体が実現できる可能性があるということ が試作段階で分かっていた、更に新しいサンプルは、ポラリトンがサンプルの場所によって大き く異なる有効質量を持つことも予想されていた.これはサンプルの作成段階で非常に結晶成長な どが良質であり、試験的に測定した結果、大きく有効質量の異なるポラリトンが観測されたため である. 古いサンプルでは, 垂直入射による凝縮体は実現できず, 更にサンプルの位置による有 効質量の変化が小さく、幅のある測定ができなかった.これは凝縮への緩和過程が結晶成長の質 と関連しているためと考えられているが、詳しいことは分かっていない.有効質量を変化させて のポラリトン凝縮体の音速の評価は前例が無く、新しい試みであるため、新しいサンプルを用い て、まずは有効質量の大きく異なるポラリトン凝縮体の実現を目指した.平衡系での理論との比 較を行うことで、非平衡系であるポラリトンの凝縮論について理解を深めることも目的とした.2 章で述べたように、平衡系においては、凝縮体が形成される閾値となる密度は、温度を固定した 際に有効質量の関数として与えられる.一方で実験的には、有効質量は固有の値を持つため、こ れを変化させることはできなかった.励起子ポラリトンにおいて有効質量が大きく異なる凝縮体 を実現できれば、新たな理論の開拓に繋がると考えられる.

4.2 実験サンプル

本実験で用いたサンプルの断面図を Fig.4.2 に示す. Bottom DBR は GaAs 基板上に堆積され, Top DBR は最上部が空気面になるため, GaAs と空気の屈折率の違いから, Bottom と Top の DBRのミラー数がそれぞれ32枚,36枚と異なっている.ミラーの枚数は共振器の長さに直結す る重要な要素で、このサンプルは共振器フォトンモードとして3つのアンチノードができるように 作られている.サンプルの反射率測定結果を Fig.4.3 に示す. 複数の線が示されているのは、それ ぞれ異なるサンプルの位置で、即ちデチューニングを変えて測定した結果で、ここからおよその LPのエネルギーをつかむことができる.これは実際に我々が測定した結果ではなく、ドイツのグ ループからサンプルの作成段階で送られてきたデータである.ストップバンドは長く, 短波長側で はおよそ 710nm 程度まで続いている.実際に我々が実験で測定した結果は,LP の波長などを含 め多少異なるものになっていた.埋め込み量子井戸は、4nmのAlAsバリア層で挟まれた7nmの GaAs 層からなっており、量子井戸4層を1セットとして、これを3セット埋め込んでいる.これ は1つのアンチノードに埋め込める量子井戸の枚数が4枚程度で限界であるためである. 埋め込 み量子井戸の枚数をNとすると、√Nのオーダーで振動子強度が高まり、ラビ分裂のエネルギー が大きくなるため、励起子ポラリトンを観測しやすくなる。本サンプルのラビ分裂エネルギーは およそ 14.3 meV である. もっと多くのアンチノードを持つモードを利用して, アンチノードに埋 め込む量子井戸の数を増やせば理論的にはより有効な構造となるが、ファブリケーションの難し さと、隣り合うモードの間隔が共振器長Lに対して、¹でスケールするため、共振器長を長くす ることが難しいためである.また、このサンプルの励起子の波長はおよそ 761 nm である.サンプ ルのデチューニングは全体において大きくブルー側に振れており、試作テストの段階で8 meV 程 度が見込まれていた、そのためこのサンプルによる励起子ポラリトンはかなり質量が重たいこと が予想され、従来のサンプルに比べると励起子ポラリトンの凝縮体を作りにくい条件である.こ れも実際に実験を行って測定した結果、幅広いデチューニングを持ったサンプルであることが分 かった.またこのサンプルはテストの段階で垂直入射によるポラリトンの凝縮体ができることが 予測されていた.しかしながら実際には、色々な原因によって実用的な凝縮体を作ることはでき なかった.これらについても5章で述べる.同時に、今回の研究ではもう1つのサンプルも用い た. これをサンプル2とする. サンプルの構造はサンプル1と同じであるが, 結晶成長が粗いな ど、ファブリケーションの面で劣っているサンプルである. そのため、垂直入射による励起はで きないことが分かっている.励起子の波長はおよそ 771 nm である.このサンプルも同時に用いた 理由としては、新しいサンプルで期待通りの結果が得られなかった場合の保険としての意味合い や、あるいはサンプル1とサンプル2では同じ構造のため、得られた結果の評価から何かしらの 比較ができるのではないかという期待も込めている.このサンプルの作成、測定は東京大学、五 神研究室の Michael Fraser ならびにドイツのヴルツブルグ大学のメンバーらの協力によるもので ある.ここで出したデータは全て試作段階で送られてきたデータであり、実際に我々が実験で求 めたものではなく、その間には多少の開きがあった.実際のデータは5章で述べる.あくまでも、 これらのデータは実験を成功させるための指標として用いたに過ぎない.



Fig. 4.2: サンプル断面図



Fig. 4.3: 反射率測定結果

4.3 実験系

ここでは実験で用いた実験系について示す.まず,サンプルを冷却するための冷却系について 示す.

4.3.1 冷却系

まず励起子ポラリトンが凝縮するための環境として、低温が必要である.本実験での冷却には 扱いが容易な液体 He を用いた. (2.9) 式のように低温であればあるほど、凝縮体の割合も大きく なる.液体 He によって冷却が可能な 4.2 K は十分である.実際の有効質量の見積もり結果などは 5 章で述べる.冷却系を Fig.4.4 に示し、各部位について以下で説明する.



Fig. 4.4: 冷却系

・He回収系であり、チューブを通して回収室にHeを送るためのものである.

・回収系と液体 He のデュワー瓶を繋ぐコックであり、実験中以外は安全のために開けておく必要 がある.液体 He は、外部からの僅かな熱放射などの影響によって常に微量ながら気化しており、 平常時はこのコックを開けておかなければ爆発の危険がある.

・デュワー瓶の圧力が急激に上昇した場合に開けるコックであり、その先は外気に繋がっている. ・ブルーンと呼ばれる風船状のゴムであり、基本的にはブルーンに He が流れ込まないようにク リップで通り道が遮断されている.クリップを外せば流れてきた He を内部に集めることができ、 早く圧力を上げたい場合に、デュワー瓶に He を送り込み、圧力を上昇させるために使われる.

・トランスファーチューブと呼ばれるチューブで、先は針状の形状をしている.これを液体 He の デュワー瓶に挿入することで、チューブ先端に触れた液体 He が温度差によって気化し、デュワー 瓶の圧力が上昇する.液体 He は高圧側から低圧側へ流れるため、チューブを通してサンプル側へ 液体 He が流れることになる.但しチューブの温度によって液体 He は瞬時に気化してしまうため、 トランスファーチューブを冷やしながら徐々に液体 He が流れて行くことになる.

・液体 He のデュワー瓶であり,液体 He が入っている.外部とは断熱されているが、完全な断熱ではないため,微量ながら液体 He は気化している.

・トランスファーチューブが挿入されたデュワー瓶とクライオスタットを繋ぐ部分で、基本的に

はこれも合わせてトランスファーチューブと言う.外部とは断熱されており,Fig.4.4 に黄色で示した部分が真空層である.この真空をコントロールしているバルブが側面に設置されており,バルブを開けてしまうと真空断熱が解けてしまうため,基本的にはバルブは触らない.

・外部のロータリーポンプ,ターボ分子ポンプであり,クライオスタットを断熱するための真空層 を作るために使われる. Fig4.4 に黄色で示したように,コールドフィンガーを覆う空間は真空層 となり,効率的な冷却が可能となる.

・クライオスタット内のコールドフィンガーと呼ばれる部分であり、サンプルを設置する部分であ る.コールドフィンガー内には温度センサーが付いており、サンプルの温度はこのセンサーで測 る.但しサンプルはコールドフィンガー上に乗せる形で設置されるため、直接サンプルの温度が 測定できているわけではない.

・断熱的にサンプルを冷却するためのクライオスタットである.

・He回収系であり、サンプルの冷却に使われたHeを回収するためのものである.

4.3.2 光学系

次に、光学系について Fig.4.5 に示し,各素子について以下で説明する. 黄色で示した線は,サンプルからのフォトルミネッセンス (以下 PL) を示す.



Fig. 4.5: 光学系

・パルス発振の Ti-Sapphire レーザーソースである. Ti-Sapphire レーザーは非常にチューナブ ルな波長幅を持っており、GaAs 系材料のバンドギャップエネルギー,量子井戸エネルギーを幅広 くカバーできる.

・CW 発振の Ti-Sapphire レーザーソースである. 709 nm 以下の波長を用いることができない.

・半波長板である.

・ビームエクスパンダーである.パルスレーザーのスポット径を2~3倍にする.これは10.の対物レンズでサンプルに集光した際のスポット径を小さくするためである.

・ビームコントラクターである. CW レーザーのスポット径を1/2~1/3倍にする. これは10. の 対物レンズでサンプルに集光した際のスポット径を大きくするためである. ・周波数 300 Hz, duty cycle50 %のチョッパーである. 直接 CW ビームをサンプルに照射し続け ると熱エネルギーによって凝縮体にディプリージョンが起き凝縮体の質が悪化したり, 熱エネル ギーによってサンプルがダメージを受けるなどの問題があるため, このチョッパーによって熱を抑 える. 周波数は, パルスレーザーの周期に比べて十分長いため CW の扱いは変わらない.

・ビームスプリッターである.

・デフォーカスレンズである.これによって焦点を微妙にデフォーカスし,スポット径を微妙に変 化させるために用いる.

・対物レンズである.無限遠収差補正があるため、サンプルからの入射光に対して長さを気にせずに光学系を組むことができる.

・クライオスタットのサンプル面である.パルスビームと CW ビームが垂直に入射し,励起子ポ ラリトンとその凝縮体を形成する.

・直線偏光子とバンドパスフィルタである.これによってパルス,あるいはCWビームの反射光 を除去している.

・ストリークカメラを扱う光学系へと系を変更するためのミラーである。

 ・pixel size=13.5×10⁻⁶ mの冷却 CCD カメラである. xpixel は 2048 カウント, ypixel は 512 カ ウントである.ペルチェ素子によって電気的に内部を冷却する機構が入っており,高精度な測定 が可能である.

pixel size=7.1×10⁻⁶ mのストリークカメラ用の CCD カメラである. xpixel は 640 カウント,
 ypixel は 480 カウントである.

4.3.3 実験手順

まず冷却系のセットアップとして、ロータリー、ターボ分子ポンプの電源を入れ、クライオス タットの真空度を高める.次にトランスファーチューブをゆっくりと挿入し,セーフティバルブと 回収系に繋がるバルブを閉じる.ゆっくりと挿入するのは、デュワー瓶の急激な圧力の上昇を防 ぐためである.液体Heがトランスファーチューブを通りクライオスタットの冷却に至るまで暫く 待機し、クライオスタットの冷却が始まったらポンプの電源を切り、ポンプを繋いでいるバルブを 閉じる.これはクライオスタットの真空度は十分であり、コールドフィンガーの回りで液体 He に よるクライオポンピングが始まり、自己断熱冷却が起きるからである。冷却が始まったら、液体 Heの沸点である 4.28 K 程度までコールドフィンガーの温度が下がるのを待つ.冷却が完了した ら、CWビームをサンプルに入射させ、凝縮体が形成されるかどうかパラメータを探る.この際、 理想的には垂直入射させることが望ましいが、垂直入射の場合のポラリトン緩和ダイナミクスは 3.3.2節で述べたように冗長で、サンプルによっては凝縮体が形成しないことが多い. 垂直入射の 場合は連続帯あるいは UP の底に励起する必要があるが、対応する波長はストップバンド長など によって変化するため、その波長がレーザーの帯域内にある必要もある.実は今回のサンプルは 良質で、パンプに用いるレーザーの波長をおよそ 705 nm 程度にすれば凝縮体が形成することが 確認できたが、用いている CW レーザーの波長帯域は 710 nm が最低で、僅かに足りないという 問題があった.また垂直入射させた場合に通る対物レンズが2mmという非常に短い焦点距離を 持っており、スポットサイズが非常に小さくなってしまうという問題があり、角度をつけて入射 させることにした.一方で後述するように用いているパルスレーザーは波長帯域が広く,更にス ポットサイズが小さい方がパルスで作る凝縮体には望ましいため、垂直入射とした. 密度波のサ イズは、CW レーザーによる凝縮体のサイズでキャップされてしまうため、CW レーザーによるス ポットサイズは大きい方が望ましく、パルスレーザーによるスポットサイズは小さい方が局所的 に、精密に密度波をコントロールできるため、小さい方が良い.無事に凝縮体が確認できるまで、 レーザーの波長、レーザーのパワー、デフォーカスレンズの位置 (スポット径)を変化させ、適切 な条件を探す、凝縮体が確認できたら、このサンプルで実験が可能であるということであるとい う自信につながる. その後, レーザーパワーを変化させながら, 精密なエネルギー分散の評価を 始める.これは励起子ポラリトンの有効質量や、凝縮体形成の閾値となるレーザーパワーなどの サンプル特性を調べるためである.このようにして無事に有効質量などが評価できたら、サンプ ルの位置を変えながら同様の評価を行う.サンプルの位置を変えるということはデチューニング を変化させることに等しく、有効質量が変化することに等しい、今回の研究で用いたサンプルは デチューニングが大きく変化するサンプルである。そのため位置を変えて測定を繰り返し、位置 によって有効質量が大きく異なっていることを確認する。その後、有効質量の異なる位置を評価 してから、パルスレーザーによって密度波励起を行う. 手順としては、既に垂直入射されている CW レーザーによって作られている LP 凝縮体の上から、更にサンプルに向けてパルスレーザーを 垂直入射させる.パルスレーザーによって凝縮体の密度が部分的に変調されるが、そのサイズは 小さい. このことは CW レーザーによる凝縮体に精密で局所的な密度変化をもたらし,密度波の 集団励起が実現する.ポラリトンの寿命はパルス間隔に対して十分短く,パルスの周波数は特に 正確に選ぶ必要は無い、この際に、レーザーパワーとレーザーのスポットサイズを変化させて測 定を行う. レーザーパワーは凝縮体の密度に対応し、スポットサイズは波数空間における励起の 幅に対応する.この密度波をストリークカメラによって時間分解測定することで、ハイドロダイ ナミクスが測定できるとともに、音速を評価することができる。何故音速が評価できるのか、と いうことについては次節で述べる.またこれらの詳細な解析手順についても後節で述べる.これ らのプロセスによって密度や有効質量の関数として音速が測定できる.

4.4 音速と衝撃波

音速は媒質中を伝わる振動の最高速度であり、それを実験的に求めることは難しかった.速度 を測定したとして、それが音速である保証が無かったためである.それを可能にした本実験の理 論は、Fig.4.1 に示した励起子ポラリトン凝縮体の特徴的な非線形励起スペクトルに基づいている. 励起スペクトルについて、その群速度と位相速度の関係性は (4.2) 式と (4.3) 式で与えられる.

$$V_{group} = \frac{\partial E(k)}{\partial k} \tag{4.1}$$

$$V_{phase} = \frac{E(k)}{k} \tag{4.2}$$

群速度とは波束の速度であり、位相速度とは波束を構成している波の速度である.通常の媒質 では、位相速度は群速度より大きいことが多く、位相速度と群速度が等しいことは、分散が無い線 形な励起スペクトルを媒質が持っていることに等しい.しかしながら、Fig.4.1 に示すような非線 形な励起スペクトルを持つ媒質においては、群速度が位相速度よりも大きくなることがある.[13] 更に興味深いことに、(b),(d) では、群速度が(c) のボゴリューボフ型の励起スペクトルから求めた音速の値を上回るということが起きる。例えば、パルスビームによってある範囲のkを励起すると、対応した幅のkに対応したフォノン波束、即ち密度波が励起され、波束として伝搬する。しかしここでこのフォノン波束の群速度は特定の1つではなく、多くの速度を持っている事に注目したい。そのことは励起スペクトルの非線形性から、群速度がkによって異なっていることから理解できる。[13]

そのため波東は形を変えながら伝搬する.非線形光ファイバーにおける群速度分散のイメージで ある.そして群速度が音速cを上回るような範囲のkを励起していたとすれば,波束には超音速の 群速度で伝搬する部分が存在するということになる.これはFig.4.1.(b),(d)に示したような非線 形励起スペクトル,即ち非平衡系の超流動体に基づいており,(c)に示したようなボゴリューボフ 型の励起スペクトル,即ち平衡系の超流動体では起きないことである.しかしながら群速度はエ ネルギーの伝わる速度であり,媒質中で群速度が超音速を持つことはできない.ではどうなるの か,ということを示した例がFig.4.6である.Fig.4.6の図は,非線形の励起スペクトルを持つポラ リトン凝縮体の密度波の伝搬のシミュレーション図を示しており,傾きが速度を表している.[7] 群速度は密度波で一定ではないことと共に,衝撃波が形成されていることが分かる.この衝撃波 は密度波の群速度の超音速成分に由来するもので,密度波自身が超音速で伝搬することが無い代 わりに,密度波自身が衝撃波を形成することになる.そしてこの衝撃波面は,音速以下で進む波 面よりも早く伝搬するが,音速より早く伝搬することはできない,即ち音速で伝搬するため,こ の衝撃波の速度を測定することはポラリトン凝縮体の音速を測定することと等価である.



Fig. 4.6: 密度波の伝搬シミュレーション

4.5 データ解析手法

まず使用するサンプルについての特性を評価する必要がある.そのために行うべき実験については前述の通りであり、ここでは具体的な測定手法と、データからサンプルの特徴を解析する手法について述べる.サンプルからの PL は、Fig.4.5 に示した光学系のように4つのレンズを通り、 CCD カメラ上にイメージを作る.それぞれの焦点距離は、サンプルに近い順番に f1 = 100 mm、

f2 = 75 mm, f3 = 100 mm, f4 = 150 mm である. この時にイメージは波数空間でのイメージと なっている. そしてカメラの前には分光器が設置されており,波数空間における PL は分光され, 波数,波長をそれぞれ縦軸,横軸に PL のエネルギー分散を CCD カメラによって評価することが できる.この時に、分光器の波長幅として適切なものを取らなければ、目的とするポラリトンのエ ネルギー分散を捉えることができない.今回の実験では、中心波長として 765.0 nm を用いた.今 回使用した分光器のキャリブレーションパラメータは、中心波長からのずれが-1.31288 nm, pixel ごとの刻み幅が 0.01872 nm である. エネルギー分散の出力結果は 2 次元の数値データで与えら れる.まず、このエネルギー分散から有効質量を見積もる手法を示す.まず有効質量を見積もる 手法について示す。有効質量を見積もる際には励起レーザーのパワーとして小さいものを利用す る.2次元データはそれぞれカメラの pixel 数に応じて 2048 × 512 の行列の各要素がストアされ ており,行が波長,列が波数に対応している.但しここで列には波数の値ではなく,1から512ま での pixel の番号が振られているだけである. 有効質量は, エネルギー分散を2次関数近似するこ とによって求める.そのためにまず波長をエネルギーの形に変換する必要がある.この際に用い る式は,エネルギー (eV) = 1240/波長 (nm) であり,大小関係が逆転することに注意する.次に 行列において列を固定し、行のみの行列を作り、2次元データを1次元データに落とし込む.そし て得られた1次元データの中で最大の値を持つ要素を抜き出す.この事を,列の値を変えて繰り 返すことで、それぞれの列において最大の強度を持つエネルギーの値を得ることができる.この 際に、行列の全ての要素を対象にしてしまうと、実験データの乱雑さや、実験環境によって見え てしまう LP 以外のエネルギー分散といった外乱によって予期しない値が出てしまうことが多いた め、まず行列を大雑把に LP の回りのみで切り出してから行った. これらのプロセスにより、ある 列,即ち波数に対してLPのエネルギーを得ることが可能になる.次に,2次関数によってフィッ ティングすることを見越して、分散の底を求める必要がある.そのために、得られた列とエネル ギーに関するデータを再度行列化して、最小のエネルギーを持つ列を見つけ出すことを行う.こ の際に、実験データの乱雑さなどにより、最小のエネルギーの点が実際の分散の底から外れるこ とが起きてしまうため、一度データを Scipy の Interpolate によって補完してから行った.最後に、 ここまでで得られた列に対する LP のエネルギーというデータは pixel のサイズが有限であるため 非連続的な値を持つため、最小二乗法によって2次関数近似を行う.最小二乗法の実装はPython を用いて数学的な行列計算によって行う.この際に列の値が単純な値のままであることに注意し て、これを波数に変換する作業を行う必要がある.そのためには、Fig4.5の光学系で組んでいる それぞれのレンズの焦点距離を用いて計算する必要があり、今回の光学系では拡大係数 M として、 $M = \frac{f_1}{f_0} \times \frac{f_3}{f_2} \times \frac{1}{f_4}$ を用いれば, *pixelsize*[m] × M[m⁻¹] × $\frac{2\pi}{\lambda_{LP}}$ [m⁻¹] によって pixel あたりの波数 幅を求めることができる.この手法は C.W.Lai らの論文を参考にしている. λ_{LP} には、分散の底 の値を用いる. [20]

これにより、LPの分散を2次関数で評価することができる.但し、この時に2次関数としては $ax^2 + b$ の形を用いることに注意する.有効質量を2次関数近似によって求めることができるのは、 エネルギー分散が $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ という単純な2次関数で書けることによるからである.実際に最小二 乗法によって評価する方法を以下に示す.pixel あたりの波数幅をKとして、以下の2つの行列を 用意する.

$$F1 = \begin{bmatrix} (K \times N)^2 & 0 & 1\\ (K \times N - 1)^2 & 0 & 1\\ \vdots & \vdots & \vdots\\ 0 & 0 & 1\\ \vdots & \vdots & \vdots\\ (K \times N)^2 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$
(4.3)

$$F2 = \begin{bmatrix} E_{-N} \\ \vdots \\ E_{+N}atN \end{bmatrix}$$
(4.4)

ここでNはフィッティングの対象とする pixel 幅である.実際には N=40, つまり分散の底か ら-40pixel から+40pixel の波数までを対象とした.次に,F1の転置行列,F1の逆行列,F1の転 置行列の逆行列を用意し,それぞれを tF1,IF1,ItF1とすれば,(IF1)(ItF1)(tF1)(F2)の行列計 算によって,最小二乗法によってフィッティングされた 2 次関数の係数, $ax^2 + c$ の $a \ge c \ge x$ め ることができる.最小二乗法によって得られた aの値が直接,この関係式によって有効質量と直 結する量となっている.具体的には, $m = \frac{\hbar^2}{2a}$ である.なお,簡単のため単位を SI 系に変換して 計算した.実際に評価を行った例を Fig.4.7 に示す.ドットで示したのが,ある波数における最大 強度を持つ点で,実線が最小二乗法によるパラボラフィッティングである.



Fig. 4.7: 有効質量解析の例

次に,LPの凝縮体についての解析を行う必要がある.ここまでで考えてきたのはLPの有効質 量であり,LPが凝縮するかどうかについては考慮していなかった.凝縮条件として重要なのは温 度とレーザーパワーであり,温度は固定しているため,レーザーパワーを変化させて評価を行う 必要がある.実際,あるレーザーパワーを閾値として,閾値を越えると急激に凝縮体としての性 質が現れてくる.これは3.3.2節で示したように,ある閾値を越えると誘導放出がオンされて,短

い寿命の間に、急速かつコヒーレントに基底状態へ落ちていくためである。レーザーパワーの閾 値は非平衡であるポラリトン系において重要なパラメータである。平衡系ではレーザーパワーの 概念は無く、温度が固定された条件下で閾値となるのは基底状態にある粒子数密度であるが、ポ ラリトン系においても簡単な式によって、閾値となるレーザーパワーを基底状態の粒子数密度に 変換することができる.具体的には非平衡系のGross-Pitaevskii 方程式を解く必要がある.結果を 示すと、基底状態の粒子数密度 $n_c = \frac{P_{th}}{\gamma_c} (\bar{P} - 1)$ であり、 $\bar{P} = \frac{P}{P_{th}}$ である. 閾値にある時を考えれ ば、 $\bar{P}=1$ であるから、結局、閾値となる基底状態の粒子数密度は、凝縮体の寿命である γ_c を適 当な定数と見ればレーザーパワーの閾値と 1:1 に対応している. [7] なお Ye は,正確に評価するこ とは難しいパラメータである. そのため, 平衡系での閾値となる粒子数密度, これは有効質量の 関数であるが、という既に構築されている理論を、まだ明らかになっていない非平衡系での閾値 に適用することで、比較が可能になると考えている。これもまた新しい取り組みである、閾値を 評価する際にはレーザーパワーを変更しながら、同様にエネルギー分散の2次元データについて の解析を繰り返すことで、閾値を評価する. その際に必要となるパラメータとして、2次元データ にストアされている最大の強度値,ある範囲で積算された強度値,強度分布の半値幅などがある. 最大の強度値を評価するのは、凝縮体になるとk=0の回りの強度が急激に上昇し、logスケールで プロットした際に大きなジャンプが見えるためである.同様に、ある範囲で積算された強度につ いても同様に、閾値を越えるとlogスケールで大きなジャンプが見える.ある範囲で、というのが 評価する上で重要で、以下のように範囲を決めた.まず強度の最大値を与える行と列の値を中心 にして、行ごと、列ごとに1次元データを取り出し、そのスペクトルから、半値幅を見積もる. 基 準としたのは,最大値の1/e程度の値になる所で,それ以上の値を持るエリアを列,行ごとに評 価して、積算するエリアを決定した.これらをレーザーパワーを変化させながら、それぞれのエ ネルギー分散データについて評価して、最終的にレーザーパワーの関数としてグラフ化すること で、レーザーパワーの閾値を評価した.これは同時に、今回のサンプルで LP が凝縮体となってい る事を示す重要な証拠である.ここで一度,評価についてまとめておくと、サンプルにおいて位 置は固定した状態で、PLのエネルギー分散データを測定し、そこから有効質量、閾値となるレー ザーパワー,そして LP のエネルギーシフト量を評価した.同様のデータ解析を,それぞれ位置 の異なる点において繰り返し、有効質量が大きく異なっている点で評価を行う. ポラリトンの寿 命は psのオーダーであるから、密度波の psオーダーでの様子を捉えるためにストリークカメラ を用いる.ストリークカメラの概念図を Fig.4.8 に示す. [12] ストリークカメラは ps オーダーの



Fig. 4.8: streak camera の概念図

短い時間変化を捉えるためのカメラで、入射光はスリットを通りフォトカソードで一度電子に変換される.変換された電子は加速されてストリーク管を通り、その際に掃引電極によって電圧が 負荷される.負荷される電圧は時間に対して減少するようになっており、時間的に早くスリット を通過したフォトンほど大きな電圧を受けるため、縦方向に大きく移動することになる.これを 最後に再度電子に変換してカメラで読み込むことで、時間分解されたデータとなる.ストリーク カメラには時間分解を始めるトリガーとなるパルス信号が必要で、今回の実験では Fig.4.6 のよう にパルスレーザー前に設置されたビームサンプラーによってトリガーとなるパルスを飛ばし、ス トリークカメラに送っている.前述のように、このポラリトン凝縮体の集団励起である密度波は、 衝撃波の様相を呈しているため、これを実際に確認した後はこの速度を評価する.これは前述の ように音速の評価そのものである.同様に密度波のデータも 2 次元の行列によってストアされた データである.最初に LP の有効質量を解析した場合と異なるのは、今回の場合は波数空間ではな く実数空間の評価であり、座標軸は位置と時間となることである.Fig.4.5 に示したように、スト リークカメラの前には 2 つのレンズが置かれており、f4 = 150 mm、f5 = 150 mm である.この光 学系における変換係数は $M = \frac{f_1}{f_0} \times \frac{f_3}{f_2} \times \frac{f_5}{f_4} となり, pixelsize(m) \times \frac{1}{M}$ の変換によって pixel あ たりの空間幅を評価することができる.[20]

この手法も同様に, C.W.Lai らの論文を参考にしている.時間幅はストリークカメラの設定によって決まり,今回は142 ps としたため, pixel あたりの時間幅は 142 ps である. Fig.4.9 にストリー クカメラで得られたデータをプログラムで表示した例を示す. これは単純にデータの2 次元行列を



Fig. 4.9: 衝撃波の形を持った密度波の例

図化しただけのため、軸はキャリブレーションされていない.まず上に示したように縦軸を時間、 横軸を空間幅でキャリブレーションする必要がある.この楕円状になっている部分が衝撃波であ り、その速度を評価するためには有効質量評価と同様に、ある位置における最大強度を持つ点を プロットしていく必要がある.このやり方は有効質量評価の時と同様に、列を固定して最大強度 となる行を探すプログラムである.但し今回の場合は、ある位置に対して、時間変化によって強度 分布が何度も山を描く形になっていることに注意して、適切な範囲を切り出して評価を行わなけ ればならない.切り出し幅も位置によって固定ではなく、適切なデータが得られる切り出し幅を 適宜選んで行う必要がある.今回の場合は切り出し幅を変えて何度もプログラムを走らせ、外れ た点が出ないように範囲を適宜調整して評価を行った.最後に、プロットできた点を最小二乗法 によって線形近似して、その傾きから音速を求める.線形近似の際には、パラボラ近似ほど複雑な 手順は必要なく、numpyのlinalg.lstsq というパッケージを用いることで簡単に線形近似した直線


Fig. 4.10: 音速の解析例

第5章 実験結果

5.1 有効質量の評価

まずサンプルにレーザーを入射させ励起子ポラリトンを励起し、そのエネルギー分散から有効質量を評価した.この場合の励起子ポラリトンとはLPである.有効質量を評価した場所は、Fig.5.1の通りである.サンプルはy方向が短く、x方向に長い長方形に切り取られており、x方向に対し



Fig. 5.1: サンプルの測定位置と配置

て detuning が変化するように設計されている. クライオスタットのコールドフィンガーには4つ のサンプルが設置でき、下の2つはサンプル2である.上の2つがサンプル1であるが、実験を行 う中で、上のサンプルは励起子と光子が上手く結合せずに、励起子ポラリトンが評価できないこ とがわかった.また下のサンプルの右半分も同様に励起子ポラリトンが評価できなかった.下の サンプルの左半分は機能したため、5 mm 刻みで 17 点において励起子ポラリトンのエネルギー分 散を測定した. その中で特に有用な5点を選んで結果をプロットした. ここで有効質量のプロット は、detuning に対して行った.LP の有効質量は (3.37) 式のように与えられるので、detuning と 励起子の有効質量,共振器光子の有効質量によって決まる.このうち励起子の有効質量は,およそ $m_{exc} \doteq 0.2 \times e$ とした.実際にはサンプルによって異なるのだが、共振器光子の有効質量に比べ て変化による影響が小さいため, 簡単のためにこの値を利用した. 一方で共振器光子の有効質量 は(3.27)式のように与えられるが、正確に見積もることが非常に難しい値であり、サンプル構造 によって大きく異なる.これをフィッティングパラメータとして、実際のデータから見積もること は、今回の評価の確からしさを裏付ける1つの結果になる. そのために、まずサンプルの detuning を見積もっておく必要がある. そのためには (3.33) 式が有用である. 実験で測定したエネルギー 分散のデータからは、有効質量だけでなく、LPのエネルギーも評価することができる.これは分 散の底の値を用いる. 実際, (3.33) 式と (3.37) 式から分かるように, 有効質量が大きいというこ とは励起子の割合が大きいということであり、detuning が大きくブルー側に振れているというこ とであり、LP のエネルギーが大きくなることを意味しているため、その通りの結果が得られてい ることがわかる. この LP のエネルギーから, detuning を見積もることが可能である. (3.33) 式 を用いて、励起子の波長をおよそ 761.5 nm として LP のエネルギーから detuning を見積もると、 Fig.5.2 のようになる.



Fig. 5.2: デチューニングの評価

detuning を見積もるということは同時に,励起子ポラリトンがどれだけの割合の励起子から成っているかという評価と同等であり,(3.36)式から励起子の割合も同時に評価できる.これを示したのが Fig.5.3 である.



Fig. 5.3: 励起子の割合の評価

そして有効質量をプロットしたものが Fig.5.4 である.

ここで実線は (3.37) 式によるフィッティングである.これらの結果から,重たい有効質量を持つ LP は、detuning が非常に大きくブルーに振れており、ほとんどが励起子からできていること が分かる.この有効質量の大きさとして、今回のサンプルの中で最も小さい有効質量でもおよそ、 $5 \times 10^{-4} m_{exc}$ であり、これは比較的大きな値である.更に右端ではおよそ $4 \times 10^{-3} m_{exc}$ という有 効質量の励起子ポラリトンができていることが分かる.従来考えられていた励起子ポラリトンの 典型的な有効質量がおよそ $1 \times 10^{-4} m_{exc}$ のオーダーであることを考えると、これは非常に重たい



Fig. 5.4: 有効質量の評価

励起子ポラリトンである. この結果から, このサンプルにおいて, ほぼ1オーダー異なる有効質 量を持つLPを励起することに成功しており, この後に有効質量依存性を評価するために十分であ ることがわかる. ここまで重い励起子ポラリトンを用いた研究というのは前例が無いものである. そのため,予想としては, このLPを凝縮させることは非常に難しいように思われる. 励起子は ポラリトンの典型的な重さに比べて重たく,凝縮の閾値となる密度が非常に高くなることが予想 されるためである. 励起子の凝縮は未だ実現されていない. そして実際に, これらのLPを凝縮さ せようと試みたが,安定した凝縮体を作ることはできなかった. これらについては次節で述べる. 本節では,次にサンプル2の有効質量の評価結果を述べる. Fig.5.1のように下の2つがサンプル 2であり, このうち上のサンプルについて5点を取って有効質量を評価した. 刻み幅は1 mm と した. まずLPのエネルギーから detuning を見積もった結果, 0detuning を挟んでレッドからブ ルーへ振れていることが分かった. Fig.5.5 は detuning に対して励起子の割合をプロットしたもの で,それぞれの点は測定した位置に対応している.



Fig. 5.5: 励起子の割合の評価



Fig. 5.6: 有効質量の評価

更に有効質量をプロットしたものが Fig.5.6 である. このサンプル2 では有効質量の幅が比較的 狭く,有効質量はおよそ 1.5 倍程度までしか変化していない. そのため,このサンプル2 では有効 質量の依存性を評価することは難しい. このサンプルでは,有効質量の幅こそ狭いものの,凝縮 する環境としては,0detuningの周りと良いものが整っていることが分かる. そして実際に,この サンプルでは LP を凝縮させることができ,密度波を励起することもできた. これらについては後 節で述べる. 基本的には detuning が 0 の周りが最もポラリトンができやすい. そのため,多くの 研究者は detuning を最初に評価して,0 の周りで実験をする. 但しそれでは有効質量の評価が難 しいため,今回はサンプル1も用いて,有効質量を大きく変化させて,即ちわざと detuning を大 きくブルーに振った環境での凝縮にチャレンジした.

5.2 凝縮実験

まずサンプル2は、有効質量は位置によって殆ど違わないが、角度を付けた入射レーザーによっ て凝縮体を励起することができた。垂直入射では依然として凝縮体は確認できなかった。これは緩 和過程の複雑さとサンプルの質の問題によると考えられる。有効質量 $\doteq 3.5 \times 10^{-35}$ [kg], detuning $\doteq 0$ で、 $|X|^2 \doteq 0.5$ であるポジションにサンプルの位置を固定して、その凝縮特性を評価した。ま ずレーザーパワーを変化させて、エネルギー分散から、LP の底に相当する強度、そして半値幅に 相当するように強度から 1/e の強度までの部分の強度を足し合わせた強度を評価している。凝縮 体が形成されると、k=0 の周りで強度が log スケールでジャンプすると同時に、閾値以下でのパ ラボリックな分散、これは有効質量を評価する際に用いている情報であるが、それが見えなくな り、k=0 の周りに PL が集中する。そこから閾値となるレーザーパワーを評価することができる。 それぞれの結果を Fig.5.7 と Fig.5.8 に示す。



Fig. 5.7: 凝縮閾値の評価1



Fig. 5.8: 凝縮閾値の評価2

これらの評価は、同じ閾値を示している必要がある.結果から136 mW と180 mW の間でジャ ンプが起きていることが分かったため、今度はエネルギー分散だけでなく k 空間での評価から、 レーザーパワーを細かく区切って閾値を評価した.k空間での評価も、エネルギー分散の評価と同 様に、閾値を越えると k=0 の周りで強度が log スケールでジャンプすると同時に、k空間で k=0 の周りに PL が集中することになる.もちろんエネルギー分散による評価も k 空間による評価も、 同じ閾値を示している必要がある.136 mW と 180 mW の間に閾値があることがエネルギー分散 の結果から評価できたので、k 空間ではその周りで値を細かく切って評価した、その結果を Fig.5.9 と Fig.5.10 に示す.



Fig. 5.9: 凝縮閾値の評価3



Fig. 5.10: 凝縮閾値の評価4

ここから, 閾値はおよそ172 mW であることが評価できた.

サンプル1は非常に大きな detuning 幅を持ち,有効質量が大きく異なる励起子ポラリトンが実 現できることが分かった.これらを凝縮させようとしたが,結果として垂直入射はおろか,角度を 付けたレーザーの入射でも安定して凝縮させることはできなかった.その原因の1つとして,こ のサンプルの反射率のディップの波長が1つの問題であることが分かった.サンプルの反射率は 理論計算によると Fig.5.11 のようになっており,実際にレーザーの波長を細かく変化させながら PL の強度を調べていくと,705 nm 近辺で PL 強度が大きくなることから,ストップバンド外の ディップの波長はおよそ 705 nm であることが分かった.



Fig. 5.11: サンプルの反射率の理論計算

しかし用いている CW レーザーの波長のレンジは、最も短い波長を利用したとしても 709 nm 程度までしか下げることができなかった。そのため、完全にディップ中心となる波長を使うことが できず、これによって入射パワーが大きく損なわれてしまっていた。この問題が凝縮閾値となる 密度の実現を妨げていると考えた.一方でパルスレーザーはこの波長域を利用することが可能で あったが、パルスレーザーを CW レーザーとして用いた場合、その出力が非常に安定せず、安定 した凝縮体を実現することができないという問題があった。更に垂直入射による凝縮体が実現で きるという予測を妨げた要因としてサンプル前に置いている対物レンズの焦点距離が非常に短い ということがあげられる.これは PLを測定する上で必要なレンズであるが,垂直入射の際にこの レンズを通さなければならないため、スポットサイズが非常に小さくなってしまう. このレンズ の焦点距離は2 mm のため、実用的な凝縮体のサイズであるおよそ 20 μm を実現するためには、 µmオーダーのサイズまでレーザーのスポット径を絞ってからレンズに入射させなければならな い.これは非現実的な値である.入射角度をおよそ 60 度, 焦点距離およそ 40 mm のレンズを用 いて実験を行ったところ、凝縮体を多くの点で確認することができた.しかしながら、この凝縮 体は非常に不安定で、レーザーのプロファイルに非常に敏感であり、簡単に崩れてしまった. そ のため、安定して大きな凝縮体を形成することができなかった. Fig.5.12 に、測定ができた凝縮体 形成の様子を示す.

この場合,およそ閾値は60~70 mW程度だと考えられ,確かに凝縮体の様子は確認できたが, これを用いて特性を評価するには至らなかった.この理由については,詳しいことは分かってい



Fig. 5.12: サンプル1における凝縮体の例

ない.しかしながら,特に大きくブルーに detuning が振れている,つまり非常に重たい励起子ポ ラリトンを凝縮させようとした際に,面白い現象が見られた.これはサンプル2の大きくブルー に振れた点でも同様の挙動が確認された.その様子を Fig.5.13 から Fig.5.15 に示す.



Fig. 5.13: レーザーパワーの閾値



Fig. 5.14: Mean Field Blue Shift



Fig. 5.15: 有効質量のドロッピング

ここから分かるように、凝縮体が形成されるまでに、LPの底のエネルギーシフトはおよそ1 meV以上と非常に大きな値を示すと共に、確かにこれは凝縮体が形成されていることに対して、 有効質量が大きく落ちていくことが分かった.このようなレーザーパワーの増加に対して、閾値 以下での有効質量のドロッピングは新しい現象である.何故なら有効質量は従来の理論によれば 閾値以下では殆ど変化しないためである.この現象は恐らく、励起子ポラリトンを形成する励起子 として、ヘビーホール励起子ではなくライトホール励起子への変化が起きている可能性が高いと 考えられる.ライトホール励起子はヘビーホール励起子よりも高いエネルギーを持っているため、 実験的にはエネルギーの低いヘビーホール励起子によるポラリトンが観測されるはずだが、LPの Mean Field Blue Shift が大きいとライトホール励起子へと状態が遷移する可能性も考えられる. この理論については不完全で、はっきりとした事はまだ分からないが、有効質量の減少がライト ホール励起子によるものだと考えれば、その有効質量の小ささはレッドに振れる detuning に近い と考えられ、凝縮条件が緩んだ結果として凝縮体が観測されたと考えることができる. これらの 結果から、大きくブルーに detuning が振れている場合、その有効質量の重さゆえの凝縮閾値とな る密度が高くなっているという側面もあれど、GaAs のポラリトン系特有の問題として何らかの新 しい現象が起きている可能性があることが分かった. 有効質量の重さによる凝縮への影響を考え るために、理論的な側面から凝縮の閾値となる密度を考えた. Bagnato らの論文によると、2 次元 系においてハーモニックトラップを用いた場合のボース粒子の凝縮閾値となる密度は、(5.1) 式の ように与えられる. [17]

$$kT_c = \sqrt{\frac{Nh^2 U_0}{2\pi^2 ma^2 g_2}}$$
(5.1)

ここで*a*はハーモニックトラップの特徴的な長さであって、このままでは凝縮体のサイズでは ないため、 $\frac{N}{\pi a^2}$ が凝縮体の密度とならない. *g*₂はおよそ 1.656 という値である. D.S.Petrov らの 論文によれば、この場合の凝縮体のサイズは (5.2) 式で与えられるため、Bagnato らの論文で用い られている *U*₀*a* を一般的なハーモニックトラップの周波数 ω を用いて書き下し、凝縮体の密度の 関数として閾値となる密度を評価すると、(5.3) 式のようになる. [16]

$$Rc = \sqrt{\frac{T_c}{m\omega^2}} \tag{5.2}$$

$$n_c = \frac{4mk^2g_2}{\hbar^2\pi} \tag{5.3}$$

ここで例えば T=4 K は実験で使っている条件であるが、その際に有効質量の関数として閾値となる密度を評価すると、Fig.5.16 のようになる.



Fig. 5.16: 凝縮の閾値となる密度の理論計算

赤枠で示した部分が、今回のサンプルで可能な有効質量レンジである.この密度が実験的に実 現可能かどうかということは、Mott密度から評価できる.Mott密度は、系において実現可能な最 大密度を表し、この場合では特に励起子粒子の粒子間距離がボーア半径、およそ10 nm である場 合に相当する. これを今回の 12 枚量子井戸が入った系で見積もれば,およそ 1200 μm^{-2} である. 実際に実験的に凝縮体の密度を正確に測定することは難しいが,理論的に見積もることはできる. まず Mean-field blue shift と呼ばれる,低レーザーパワーから閾値以上へのLPのエネルギーシフ ト量を考える. これをエネルギー分散から評価した結果は,およそ 0.6 meV であった. これは相互 作用の影響によってエネルギーが増加するために起きる現象であり,このエネルギーシフト量は相 互作用の強さを g として,およそ gnc で見積もることができる. g はおよそ $6E_ba_B^2|X|^2$ で与えられ ることが分かっており, $|X|^2=0.5$, $a_B=10$ nm, $E_B=10$ meV とするとおよそ $3.0 \times 10^{-3} meV \mu m^2$ である. [7,14] ここからおよその凝縮体の密度を見積もると, 200 μm^{-2} となる. これは閾値とな る密度よりも大きく,条件を満たしていると考えられる. 一方でサンプル1においても,Mott 密 度以下の範囲に理論的な閾値密度が入っている. そのため,単純に有効質量の重さによる影響で安 定した凝縮が妨げられているのではなく,detuning がブルーに振れたポラリトン系において,新 しいモードへの遷移のような現象が強い意味合いを持っていると考えられる. この特異な現象に よって重い有効質量の凝縮体の実現が失敗し,軽い有効質量の凝縮体へと転移してしまっている というのが得られた結果からの予測である.

5.3 密度波の励起と音速評価

実際に安定して凝縮体を励起することができたのはサンプル2だけだったため、有効質量の依存性から密度波を評価することはできなかった.しかし凝縮体を用いて密度波を励起することに成功し、その結果を示す.4章で示したように、励起子ポラリトンの凝縮体の密度波は衝撃波の形を持っていることが理論的に予想されていた.今回の実験では、この衝撃波の形をした密度波を観測することができた.Fig.5.17に実際の観測例を示す.



Fig. 5.17: 衝撃波形の密度波の観測

用いたパルスレーザーの半値幅はおよそ 3.5 μ m である. 有効質量は 3.5 × 10⁻³⁵ kg である. レーザーパワーを変化,即ち密度を変化させて,音速を評価した結果が Fig.5.18 である. ここでレーザーパワーから密度の変換として,4章で示したように, $n_c = \frac{P_{th}}{\gamma_c}(\bar{P}-1)$ であるか



Fig. 5.18: 音速の測定結果と平衡系での理論フィット

ら、ここに閾値となるレーザーパワー 172 mW を代入して密度に変換している. γ_c は測定することが難しいパラメータであるから、フィッティングパラメータとして用いた. 平衡系での理論では、音速 c は有効質量 m の関数として (2.47) 式で与えられていた. 非平衡系であるポラリトン系に対してこの理論を適用してフィッティングしたものが、Fig.5.18 の実線である. ここから、非平衡系であるポラリトン系においても、平衡系と同様に音速を密度の関数として見積もれることが分かった. 一方で、この密度波は閾値となるレーザーパワーを上回ればすぐに見られるものではなく、閾値を越えていてもレーザーパワーが低いと、密度波を観測することはできなかった. およそ $P = 1.5 \times P_{th}$ を越えてから衝撃波の模様が確認できたが、不安定で音速を解析するには不十分なデータしか得られなかった. このままレーザーパワーを上げていっても、密度波の形は変わらず、非常に安定した形成がなされていることが分かる. これらをまとめたものを Fig.5.19 に示す.



Fig. 5.19: レーザーパワーの変化による密度波の挙動

5.4 まとめと今後の展望

今回の研究では、大きく有効質量の異なる励起子ポラリトンを実現することには成功したが、そ れらを安定して凝縮させることはできなかった.しかしながら、単純に大きな有効質量を持って いるという理由よりも、大きくブルーに振れた detuning を持つポラリトン系特有の挙動によって 重い有効質量を持つポラリトン凝縮体の形成が妨げられている可能性を見出した.実験環境とし ては、新たなレーザーを用いて波長域による問題を解決することでよりクリアな実験が可能にな ると予想される.そして超流動体である励起子ポラリトンの集団モードである密度波を実験的に 励起することに成功して、励起スペクトルからの理論的な予測に等しく衝撃波の形を持っている こと、そしてその音速は平衡系と同じく密度の関数として推移することを明らかにした.究極的 な目標としては、大きく有効質量の異なる励起子ポラリトンを凝縮させて、それぞれにおいて密 度波を励起することで、有効質量の関数としての評価も行いたかったが、今回は前段階の凝縮体 に関する実験で止まってしまったため、重い有効質量を持った励起子ポラリトンを安定して凝縮 させることを目指したい.垂直入射による励起の新たな方法などを模索し、ポラリトンの凝縮へ の緩和ダイナミクスについても理解を深めていきたい.

第6章 参考文献

- 1. Hui Deng, Dynamic Condensation of Semiconductor Microcavity Polaritons.
- 2. Georgios Roumpos, Phase Fluctuations in Microcavity Exciton Polariton Condensation.
- 3. C.J.Pethick and H.Smith, Bose-Einstein Condensation in Dilute Gases
- 4. Nozieres and Pines, The Theory of Quantum Liquids
- 5. ヤリーヴ-イェー, 光エレクトロニクス基礎編
- 6. J.Kasprzak et al, Nature 443, 409-414 (2006)
- 7. M.D.Fraser et al, Submitted (2014)
- 8. J.Keeling et al, Phys. Rev. B 72, 115320 (2005)
- 9. H. Deng et al, Science 298, 199 (2002)
- 10. M.Wouters et al, PRL 99, 140402 (2007)
- 11. 樺沢 宇紀, 低次元半導体の物理
- 12. 松尾 康弘, ストリークカメラによる励起子ポラリトン凝縮体の二次コヒーレンスの測定
- 13. G.P. アグラワール, 非線形ファイバー光学
- 14. Tassone, F. and Yamamoto, Y. Exciton-exciton Scattering Dynamics in a Semiconductor
- Microcavity and Stimulated Scattering into Polaritons. Phys. Rev. B 59, 10830-10842 (1999)
- 15. Naotomo Takemura et al, PHYSICAL REVIEW A 85, 053811 (2012)
- 16. D.S.Petrov et al, Bose-Einstein Condensation in Quasi-2D Trapped Gases (2000)
- 17. V.Bagnato et al, Bose-Einstein condensation in low-dimensional traps (1991)
- 18. Tutorial on superfluidity and superconductivity
- 19. A.Amo et al, Nature 457, 291-295 (2009)
- 20. C.W.Lai et al, Nature 450, 529-532 (2007)

第7章 謝辞

このような研究を進める機会を与えて下さった指導教員の山本喜久教授に感謝致します.また全面的に実験面,理論面での協力をして下さった M.D.Fraser さん,サンプルの作成をして下さった ヴルツブルグ大学の方々,光学系の分野で理論的に支えて下さった玉手修平さん,不躾な質問にも 懇切丁寧に対応して下さった高田健太さんを始めとした山本研究室の方々にも深く感謝致します.