

( 続紙 1 )

京都大学	博士 ( 理学 )	氏名	高畑 光善
論文題目	Cu <sub>2</sub> O 薄膜における励起子の長波長近似を超えた非局所光応答		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文は、物質中の電子励起状態である励起子のコヒーレンス長が光の波長を超えるような、いわゆる「長波長近似」が成立しない場合の特異な光応答に関する研究成果をまとめたものである。</p> <p>第1章では、ナノスケールの物質における励起子の量子閉じ込め効果、超放射、長波長近似を超える光学応答など本論文の研究背景について述べ、研究の目的と論文の構成を説明している。第2章では、対象物質である亜酸化銅 (Cu<sub>2</sub>O) の光吸収や発光といった基礎光学特性に加え、励起子の生成・緩和過程について本研究で新たに得られた実験結果を交えて記述している。第3章では、実験に用いた試料の作成方法と実験装置について詳しく述べている。</p> <p>第4章では、黄色励起子と呼ばれる光学遷移がほぼ禁制の状態を利用して、長波長近似を超える領域での励起子超放射を実証した実験について述べている。励起子超放射は、結晶全体に広がるコヒーレントな励起子状態が光と強く結合することによって起きる協同現象である。長波長近似が成り立つ範囲ではこれまで多くの実験が行われ、励起子の超放射による輻射率は物質サイズに比例して増加することが知られている。本研究では、光の波長と同程度の膜厚の半導体 (Cu<sub>2</sub>O) 薄膜を用いて、長波長近似を超えた領域での励起子超放射を初めて観測した。輻射率は膜厚に比例して増加したのち、膜厚が約640ナノメートルを超えると飽和した。非局所光応答理論による計算結果との比較により、輻射率の飽和が始まる膜厚はコヒーレンス長に対応することを明らかにした。また、輻射率の膜厚依存性において新たに観測された振動構造は量子閉じ込めモードの次数の逐次的な変化に対応すること、結晶温度の増加に伴いコヒーレンス長が減少することなどを示している。</p> <p>第5章では、励起子超放射からポラリトン (励起子と光の強い結合状態) へのクロスオーバーに伴い、膜厚の増加とともに輻射率が減少に転じる現象を世界で初めて捉えた実験について述べている。この実験では、青色励起子と呼ばれる光学許容の状態に対してクロスオーバー膜厚がコヒーレント長より小さくなるような特殊な状況を実現し、輻射率の増減に応じて生じる共鳴エネルギーのシフトとしてクロスオーバーを観測した。理論解析では、エネルギー的に近接した複数の共鳴準位が存在する効果を新たにに取り込み、単一準位の場合に比べて光との結合が実効的に増すことで小さな膜厚においてクロスオーバーが起きることを示している。また、発光過程における輻射率の寄与についても考察を行い、クロスオーバー膜厚前後での発光スペクトルの膜厚依存性が理論計算の結果と良く合致することを見出した。さらに、薄膜内での電場と分極の空間分布を数値的に計算し、クロスオーバー膜厚前後で光応答が非局所的なものから局所的なものへと変化する様子を明らかにした。</p> <p>第6章では、本研究で明らかにした知見をまとめて結論を述べるとともに、本研究の将来展望を説明している。</p>			

(続紙 2 )

(論文審査の結果の要旨)

超放射は、コヒーレントな物質状態が光と強く結合することによって起きる協同現象であり、原子集団をはじめとしてこれまで様々な系で実験が行われてきた。固体中の素励起である励起子に関しても同様の概念が成り立つため、長波長近似のもとでの励起子超放射は良く知られている現象である。しかしながら、物質励起状態のコヒーレンス長を光の波長を超える領域まで長くすることは非常に困難であったため、励起子超放射の描像が長波長近似を超えてどのような物質サイズまで成り立つのか、また、理論的に予測されているポラリトンへのクロスオーバーは実際に起きるのか、といった問題に対する実験的検証は長い間なされてこなかった。本論文では、高品質な半導体薄膜を用いることと、光との結合が極めて弱い（または極めて強い）励起子状態を選ぶことによって長年の実験的困難を解消し、長波長近似を超える領域での励起子超放射とポラリトンへのクロスオーバーの観測に成功した。

まず、物質サイズに依存する光学応答の系統的な測定を可能にするため、膜厚が連続的に変化する楔型の半導体薄膜における光学スペクトルを数ナノメートルの高い膜厚分解能で測定する極低温顕微光学系を構築した。この装置を用いて亜酸化銅 ( $\text{Cu}_2\text{O}$ ) の黄色励起子の反射、透過、発光スペクトルの膜厚依存性を、長波長近似を大きく超える膜厚 1 マイクロメートルまで測定した。発光強度の膜厚依存性として捉えた輻射率の増強は、コヒーレンス長を 640 ナノメートルとした場合の非局所光応答理論による励起子超放射の数値計算と良く一致することを明らかにした。また、輻射率の膜厚依存性にみられる振動構造は、薄膜内の励起子の閉じ込めモードの次数 (1 から 11 まで) の変化に対応することを明確に示した。過去の報告では最低次のモードのみに観測が限られていたのに対し、本研究において観測モード次数が最大 11 までに拡張されたことは特筆に値する。

次に、励起子超放射による輻射率の増大が無限に続き得るかどうかについての実験的検証を行った。この問題は 20 年以上前に論じられており、物質サイズがある値を超えるとポラリトンへとクロスオーバーすることが予想されていた。多くの物質で予想されるクロスオーバー膜厚は数マイクロメートル以上であるが、本研究では光との結合が極めて強い  $\text{Cu}_2\text{O}$  の青色励起子を用いることによりクロスオーバー膜厚を劇的に小さくすることに成功した。その結果、吸収、発光スペクトルにおいて、膜厚 177 ナノメートルでのクロスオーバーに対応する共鳴エネルギーの特徴的なシフトを初めて観測した。また、エネルギー的に近接する複数の共鳴準位を新たに取り込んだ理論を構築し、計算結果は実験結果を良く再現すること、および、クロスオーバーが電場と分極の非局所的な応答から局所的な応答への変化に対応することを明確に示した。

以上のように、本研究において理論予測から 20 年以上の懸案を解決したことにより、これまで活用されることのなかった物質中の量子状態による新規な光-物質相互作用を開拓したことは、固体物性および量子光学分野に大きなインパクトを与える成果である。よって、本論文は博士 (理学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 30 年 8 月 6 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 平成 31 年 2 月 25 日以降