

強磁場中の亜酸化銅光吸収スペクトルと量子カオス

物質・材料研究機構 瀬山 実穂¹, 高増 正

亜酸化銅 (Cu₂O) の光吸収スペクトルを、25T までの強磁場において準連続データとして測定した。励起子状態の吸収スペクトルの磁場発展から、磁場中リドベルグ原子のカオス状態に関する情報を議論する。

1 序論

亜酸化銅はその光吸収スペクトルに水素原子様のエキシトンピークが見られることでよく知られており、その研究は 50 年代から盛んに行われてきた [1]。特に吸収ピークエネルギーの磁場依存性については、磁場中リドベルグ原子が古典的にはカオス性を示すため、量子力学的なカオス状態研究の典型的な対象として理論的にも注目されてきた。一方、磁場中リドベルグ原子の実験的研究は、He 等の原子分光により多くの研究者によって行われており、磁場印加によって電子状態が古典カオスの量子論的特徴を示すことが知られている [2]。こうしたリドベルグ原子の研究では、実験室レベルで印加できる磁場は数テスラに限られている。磁場効果がクーロンエネルギーと同等になる磁場 B_0 が 10^5 T にも及ぶため電子軌道の磁場増大による発展の全貌は実験的には得られていない。固体中のエキシトンでは、リドベルグエネルギーの誘電率による変化により B_0 の値は小さくなる。亜酸化銅では B_0 の値は約 600T であり、昨今の固体物性研究における磁場発生技術の向上と相俟って達成可能な磁場範囲内にある。また、そのスペクトルも固体中の吸収としてはかなり鋭いピーク構造を持つためこうした磁場依存性研究に適した対象であると考えられる [3]。亜酸化銅エキシトンの磁気吸収スペクトルについては、低磁場ではすでに多くの研究がなされている。特に Sasaki らは 10T 程度までの磁場での吸収ピークの磁場変化を詳細に調べ、エキシトン状態からの摂動による解析を行なった [4]。また、150 T までの超強磁場領域における $n=2,3$ のメインピークのシフトについても Kobayashi らにより報告されている [5]。今回我々は、定常強磁場装置と高感度 CCD 分光器を使用することで準連続的なスペクトルの磁場依存性の測定に成功した。この結果をイメージプロットすることによりエキシトンピークのシフトの様子やピークの分裂、反発などの磁場発展を連続的に追うことにより詳細にとらえることができたので報告する。

¹E-mail: SEYAMA.Miho@nims.go.jp

2 実験および結果

試料は floating-zone 法によって作られた単結晶を $50\mu\text{m}$ に研磨したものを用いた [3]。測定は物質・材料研究機構強磁場センターの水冷銅マグネットを用い 25T までの定常強磁場下で行なった。試料はマグネット中の ^4He クライオスタット内に置かれ、キセノンランプによる連続光を光ファイバーにより導くことで吸収スペクトルの測定を行なった。吸収スペクトルは CCD カメラを用いたインターバル測定を用いることにより、0.04T の磁場分解能で準連続的なデータを得た。測定は、 $T=4.2\text{K}$ および 1.5K について行なった。

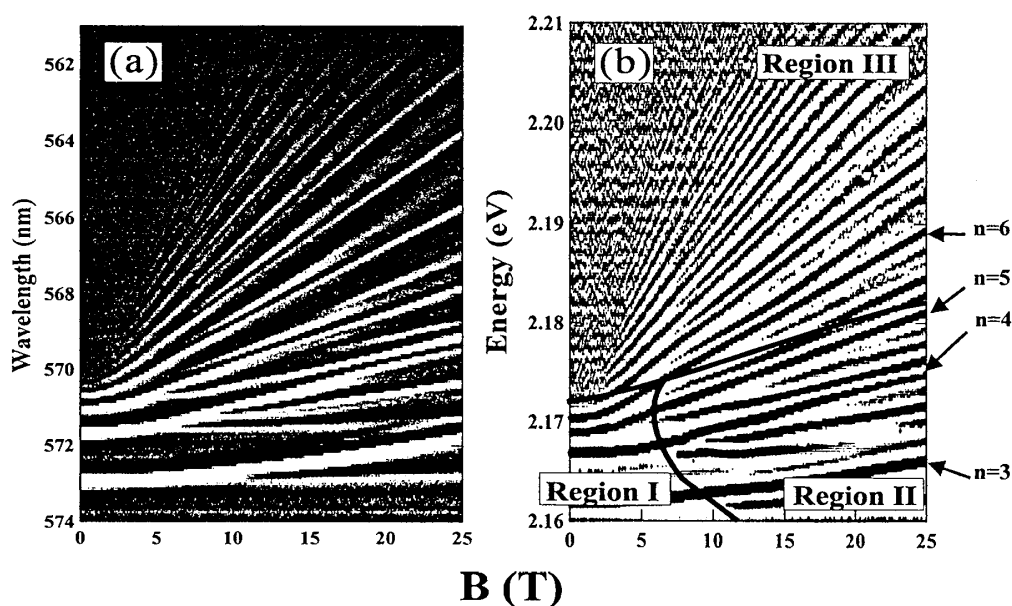


図 1: (a) 磁場－エネルギー平面上的吸収スペクトルと (b) 領域分割

図 1 に示したのは、 σ^+ 偏光の磁気吸収スペクトルを磁場－エネルギー平面でのイメージプロットで示したものである。バンド端吸収の影響を取り除くため、図ではエネルギー方向に 2 階微分をして吸収ピーク構造を強調してある。図 (a) で、白い部分が吸収ピークを示している。磁場を印加しない状態では、イエローシリーズエキシトンのピークが $n=2-7$ まで明確に分離しており、この試料が十分高純度であることが分かる。このイエローシリーズにおけるエキシトンのイオン化エネルギーは 2.172eV である。

磁場を印加すると励起子吸収は磁場の 2 乗に比例する反磁性シフトを示すが、これまでの報告と同様に強磁場では様々な微小吸収ピークが観測される [4]。こうした吸収スペクトルの構造は、その性質から 3 つの領域に分類することができる (図 1 (b))。低磁場、低エネルギーの領域 I では、励起子吸収は水素模型で十分良く記述できる。ピークエネルギーの磁場シフトは、単純な水素原子模型の反磁性シフトと一致し磁場の 2 乗関数で表される。また、図 2 に示したように、定量的にも反磁性シフトは摂動計算の結果をよく再現する。領域 I の強磁場側では、反磁性シフトを示す各励起子ピークが互いに交差を始める。その

結果、ピークエネルギーの磁場シフトは最早単純な反磁性シフトでは表せなくなり、むしろ磁場に比例したピークシフトを示すようになる。領域Ⅰの上限磁場値は、通常の励起子の磁場依存性がランダウ準位的に磁場に線形なものへと変わってゆく磁場値よりは遥かに小さな値であり、その n に対する依存性から異なる n の状態が交差する最小磁場によって決まっていることが容易に分かる。 $n=3$ と $n=4$ の間のピークの磁場依存性に注目すると、25Tまでの磁場領域で少なくとも3回の反交差(図2のa-c)が生じているのがわかる。またその吸収強度は、この反交差の際に入れ替わりを見せるが、通常の単純な反交差とは異なり両者の強度合計も磁場と共に単調でない変化を示しており、いくつかのピークが影響を及ぼし合う状態であることを示唆している。つまり、領域Ⅱでは、既に多くのピークが摂動を超えた相関により結びついており少数のエキシトン状態による説明が困難であると言える。

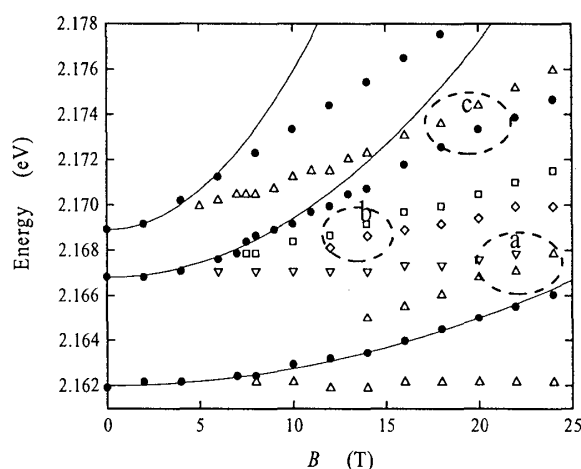


図 2: 低エネルギー領域での主なピーク位置の磁場変化。低磁場での実線は摂動計算から得られた各 n 状態に対する反磁性シフト。

イオン化エネルギーより高エネルギー側の領域では、吸収スペクトルには多くのほぼ等間隔の幅の広い吸収ピークが見られる。これが振動状の吸収とか準ランダウ状態と呼ばれる吸収ピークであり、多くのリドベルグ原子の吸収スペクトルに見られるものと同様である。この領域(領域Ⅲ)では、対応する古典力学系の状態は完全カオス状態にあり、実測される吸収スペクトルがどのような起源によるかに多くの議論がなされている。我々の測定結果では、各主量子数 n (あるいはランダウ指数)に対応する吸収ピークは、明らかに磁場の増大にともなう構造の変化をしており、 $B=7\text{T}$ 付近、 14T 付近、 21T 付近で吸収のメインピークの高エネルギー側にサブピークが現れるのが分かる。サブピークは、その強度を磁場と共に増し、次のサブピークの出現により次第に強度を失うように見られる。新たなサブピークが現れる磁場値は、ランダウ指数にあまりよらない。この磁場値がほぼ等間隔であることから、古典的な類似の周期軌道から派生する吸収であることが想像される。その起源に関しては温度依存性等の詳しい解析が必要であるが、 4.2K と 1.5K の間で

はスペクトルに有意差は見出せ無かった。

カオス状態のエネルギー準位は、その準位統計に特徴が現れることが知られている。固体中のエキシトン状態では、他のリドベルグ原子と異なりその吸収スペクトル幅が広いいため詳細な準位統計の解析が難しいものと考えられる。我々は、 Cu_2O の測定データから、磁場、エネルギー範囲を広くとることにより、準位統計にカオス状態の特徴が現れるかどうか検討した。図 3 は、上記の領域 I および III の代表的な範囲で最近接吸収ピーク間のエネルギー差の確率分布をとったものである。リドベルグ原子の場合と異なり、各ピークが大きな線幅を持つため統計には大きな誤差が混入する。しかし、明らかに、領域 I では、エネルギー差が小さい状態に大きな確率分布を持つポアソン型の分布を示しており、一方、領域 3 では、ウィグナー型の分布をとることが分かる。また、いろいろな領域幅（磁場、エネルギー）に対してこうした分布を求めるとその変化が連続的に起こっているようすが示唆された。

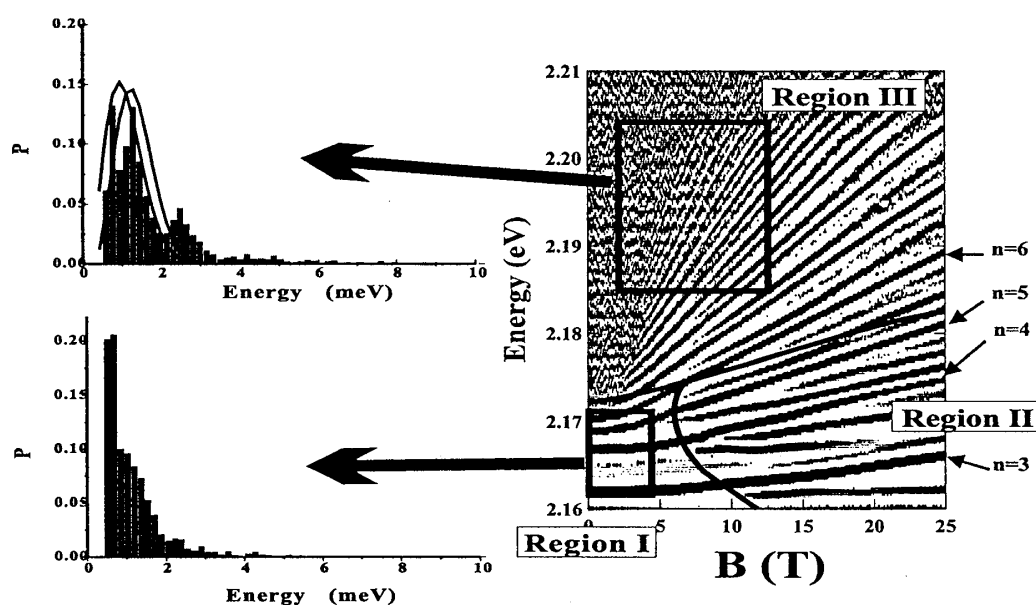


図 3: 各領域における最近接吸収ピーク間エネルギーの分布

3 まとめ

水冷銅磁石による定常強磁場と CCD 分光器を用いた準連続吸収スペクトル測定の組み合わせにより、亜酸化銅中の励起子吸収スペクトルの磁場発展を広いエネルギー-磁場範囲にわたり測定した。原子分光による測定に比べるとそのスペクトルの精度、詳細さは亜酸化銅では明らかに劣っているが、磁場範囲の広さにより多くの情報が得られることがわかった。今後、より広い磁場範囲のデータや温度依存性等の解析により古典カオス領域におけるスペクトルの性質についてあらたな実験的情報がもたらされることが期待できるものと考えている。

参考文献

- [1] M. Hayashi and K. Katsuki, J. Phys. Soc. Jap. 7(1952)599. E. F. Gross and B. P. Zakharchenya, Solid Stat Commun., 5(1967)633.
- [2] H. Friedrich and D. Wintgen, Phys. Rep. 183, No.2(1989)37.
- [3] T. Ito et al. J. Mat. Sci. 33(1998)3555.
- [4] H. Sasaki et al. J. Phys. Soc. Jap. Vol. 34, No. 1(1973)95.
- [5] M. Kobayashi et al. J. Phys. Soc. Jap. Vol. 58, No. 5(1989)1823.