

(Sc, Er)₂O₃ 薄膜におけるサイト選択励起でのエネルギー移動とアップコンバージョン

Inter- and intra-site energy transfers and upconversion under site selective excitation in (Sc, Er)₂O₃ thin films

北大院工¹, NTT 物性基礎研², NTT ナノフォトニクスセンタ³

○川上欣洋¹, 俵 毅彦^{2,3}, 尾身博雄^{2,3}, 鍛冶怜奈¹, 足立 智¹

Hokkaido Univ.¹, NTT Basic Research Labs.², NTT Nanophotonics Center³

○Y. Kawakami¹, T. Tawara^{2,3}, H. Omi^{2,3}, R. Kaji¹, S. Adachi¹

E-mail: y_kawakami@eng.hokudai.ac.jp

【はじめに】我々は量子情報デバイスのプラットフォームとして酸化エルビウム混晶薄膜 (Sc, Er)₂O₃ に注目し, 結晶中に内包された Er³⁺ の 4f 電子のエネルギー動的過程を調査している [1, 2]. 量子状態のコヒーレント操作においては, 目標準位からのポピュレーション散逸を可能な限り抑制する必要がある. (Sc, Er)₂O₃ 薄膜では, 非発光中心への電子のトラップやマルチフォノン放出などの非発光緩和過程と上方変換 (アップコンバージョン: UC) がポピュレーション散逸の原因である. 本研究では弱励起および強励起下での時間分解発光測定から, エネルギー移動モデルの妥当性を検討した.

【実験】試料には Si(111) 基板上に MBE 法で成長された (Er_xSc_{1-x})₂O₃ ($x = 1.0, 0.05, 0.01$) 単結晶薄膜を, 励起には cw 波長可変レーザーを用いた. Er₂O₃ 単結晶には, 対称性の異なる 2 つのサイト (C₂ および C_{3i}) が存在する. C_{2(3i)} サイトの Er³⁺ のエネルギー準位は結晶場により, 基底準位 ⁴I_{15/2} は 8 つ (Z_i⁽ⁱ⁾, $i = 1-8$), 第一励起準位 ⁴I_{13/2} は 7 つ (Y_i⁽ⁱ⁾, $i = 1-7$) に分裂する. 各試料について, ⁴I_{13/2} 多重項に対応する範囲で励起波長を掃引して, 上位準位 (400–1000 nm 帯) からの UC 発光の励起強度依存性 ($P_{exc} = 0.1-70$ mW) を 4 K にて測定した. また, C_{3i} サイト Y₃['] 準位を弱励起および強励起下で共鳴励起して, 時間分解発光の温度依存性測定 (4–60 K) を行った. 時間分解測定では, 音響光学変調器を用いて形成したパルスで励起し, ストリークカメラ (時間分解能, 20 ps) により Y₁['] – Z₁['] 遷移の発光減衰を取得した.

【結果及び考察】図 1 に $x = 1.0$ での Y₁ (1535.7 nm, 赤) および Y₃['] (1530.5 nm, 黒) 準位を共鳴励起 ($P_{exc} = 30$ mW) して, 4 K にて測定した各上位準位からの UC 発光スペクトルを示す. Y₁, Y₃['] 両共鳴において, ²H_{9/2} (~420 nm), ⁴S_{3/2} (~550 nm), ⁴F_{9/2} (~680 nm), ⁴I_{9/2} (~850 nm), ⁴I_{11/2} (~1000 nm) 多重項からの発光を観測した. その中でも ⁴S_{3/2} および ⁴F_{9/2} 多重項からの UC 発光強度は, 他の多重項に比べて強い. 図 2 に Y₃['] 共鳴における ⁴S_{3/2} および ⁴F_{9/2} 多重項からの UC 発光の励起強度依存性を示す. この結果から UC 発光が現れるにはある一定の励起強度が必要であり, UC 発光は強励起の領域で顕著になることがわかる. UC の影響が大きい強励起下での時間分解測定で得られた発光減衰は, C₂ サイト内での UC によるエネルギー移動を取り入れたモデルで再現可能である. 講演では, 弱励起および強励起下での時間分解発光測定から, エネルギー移動のモデルの妥当性について議論する.

【謝辞】本研究の一部は JSPS 科研費 24360033 の助成を受けた.

[1] T. Tawara et al., Appl. Phys. Lett. **102**, 241918 (2013).

[2] 川上他, 2014 年応物秋 18a-A24-8.

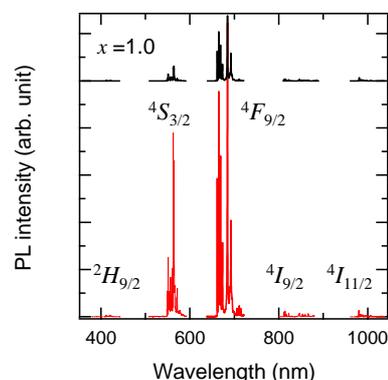


図 1: $x = 1.0$ での Y₁ (赤) および Y₃['] (黒) 共鳴励起における UC 発光スペクトル ($P_{exc} = 30$ mW, 4 K).

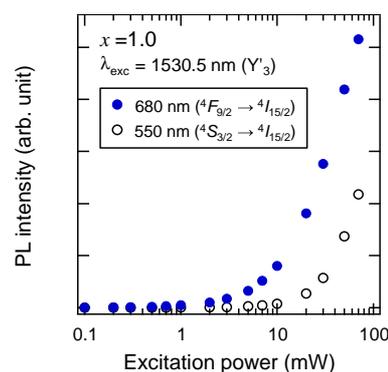


図 2: Y₃['] 共鳴励起における ⁴S_{3/2} および ⁴F_{9/2} 多重項の UC 発光の励起強度依存性 ($x = 1.0, 4$ K).