

学 位 論 文 題 名

Photon Echo due to Quasi—Two—Dimensional
Excitons in GaSe

(GaSe 中の擬二次元励起子におけるフォトンエコー)

学位論文内容の要旨

パルス状の光が共鳴的に物質を励起すると不均一に広がった周波数をもつ振動子が一斉に同位相で振動を始め、これにより物質中に巨視的な分極が誘起される。この巨視的な分極は周波数の違う振動子間の干渉により、不均一広がりスペクトル幅の逆数程度の時間で減衰する。ここに時間 τ だけ経った後に時間反転パルスを入射すると 2τ の時間に再び各振動子の位相が揃い巨視的分極が現れる。この現象をフォトンエコーと呼ぶ。

フォトンエコーは物質中の励起状態に関する多くの情報を与えてくれる。その中で最も一般的な情報としては位相緩和に関するものである。位相緩和時間 (T_2) とは励起光によって振動子に記憶させられた位相が、外部からの摂動によって乱されるまでの時間で、物質と光がコヒーレントに相互作用できる時間を決める重要なパラメータである。フォトンエコーが最初に観測された 1960 年代にはナノ (10^{-9}) 秒領域で、原子や固体中にドーブされたイオンについて位相緩和時間の測定が行われていた。しかし、半導体などの最低励起状態である励起子は格子系との相互作用などにより非常に速い位相緩和時間を有する。最近の超短パルスレーザー光発生技術の進歩によりサブピコ (10^{-13}) 秒からフェムト (10^{-15}) 秒領域の分光が可能となった。これにより固体中の励起子の位相緩和時間の測定も可能となった。我々もこの半導体中の励起子の位相緩和過程の研究に初期の頃から携わり、層状半導体 GaSe を試料とし多くの成果を上げてきた。GaSe では積層不整によって結晶の c 軸方向への励起子の運動が制限されている。このように特定の方向の並進対称性の崩れた結晶中に閉じ込められた励起子を擬二次元 (Q2D) 励起子と呼ぶ。我々はこの Q2D 励起子の位相緩和過程の他にもフォトンエコーを用いて静的特性についても研究を行ってきた。

た。その成果のうち一部をまとめたものが本論文である。

我々が研究の対象としてきた励起子状態と言うものは、光によって生成された伝導帯の電子と価電子帯の正孔がクーロン相互作用によりバンド間の遷移のエネルギーよりも低いエネルギーで励起状態を形成したものである。さらに電子-正孔の交換相互作用により一重項と三重項励起子に分裂する。試料として用いたGaSeでは励起光の偏光をEとすると結晶のc軸についてE//cで一重項励起子が、E⊥cではスピン-軌道相互作用により三重項励起子がそれぞれ励起される。

励起子遷移に関する情報を得るために、E⊥cの励起配置で三重項励起子についてフォトンエコーの偏光依存性を測定した。フォトンエコーの偏光依存性を測定することにより光学遷移に関する全角運動量Jの変化についての情報を得ることが出来る。我々の結果から三重項励起子の遷移は原子における $J = 0 \rightarrow J = 1$ の遷移と同じ振舞いをする事が分かった。半導体中の励起子におけるフォトンエコーの偏光依存性の測定は我々が初めて観測したものである。

このような励起子遷移によって生成された三重項励起子の共鳴エネルギーは吸収測定により ~ 2.11 eVであることが分かった。しかし、一重項励起子の共鳴エネルギーを測定するには共鳴線の不均一広がりが広く、エネルギーが三重項励起子と非常に近いため、吸収では測定できなかった。そのため不均一広がりの影響を取り除いて両励起子間のエネルギー差を測定することの出来る量子ビート効果を用いて一重項励起子のエネルギーを決定した。具体的には一重項、三重項励起子ともに励起できるように試料を傾けた配置でフォトンエコーを行い、その結果量子ビートの観測に成功した。励起子についてこの量子ビートの観測例は非常に数少なく、我々の観測もその中の1つである。量子ビートの周期より両励起子間のエネルギー差は ~ 2.2 meVであることが分かった。

次に励起子の緩和過程について研究を行った。緩和過程には先に述べた位相緩和と励起子が消滅してその数が減少していく分布数緩和と呼ばれるものがある。このうち位相緩和の機構を調べるために我々は誘導フォトンエコー法を用いた。誘導フォトンエコーとは3本の励起光によって引き起こされるフォトンエコー現象である。(前述のフォトンエコーは2本の励起光によるものである。)我々は誘導フォトンエコー法により T_2 の温度及び励起光強度変化を測定した。この結果、位相緩和レート($1 /$

T_2) は温度と励起光強度についてともに線形の依存性を示した。これにより Q 2 D 励起子の位相緩和過程は、励起子-音響フォノン及び励起子-励起子の衝突に支配されているということが分かった。

この位相が緩和した後の励起子はある有限の時間で光を放出して消滅する(輻射緩和)か、光を放出せずに別のエネルギー状態に移っていく(無輻射緩和)かして分布数の緩和が起こる。この分布数の緩和の機構を調べるためにトランジェントグレーティング法を用いた。位相緩和と同様に分布数緩和時間(T_1)も温度及び励起光強度依存性を測定した結果、通常測定されている依存性とは逆の振舞いをするのを見いだした。それは温度が上昇すると緩和時間が長くなり、励起光強度を上げることによっても緩和時間が長くなるというものであった。また共鳴発光の実験結果と合わせて導かれる輻射寿命(励起子が光となって消滅する時間)についても同じ依存性を示すことが分かった。さらに T_1 と $1/T_2$ の間には強い相関があることも見いだした。この奇妙な依存性と相関は最近盛んに研究されているコヒーレント体積と輻射寿命の関係についての理論によって説明できる。この理論は Feldmann らと花村によって独立に導かれたものであるが、これによると Q 2 D 励起子の輻射減衰はコヒーレント体積によってその大きさが決められる遷移の双極子モーメントの巨視的増大効果により超放射的に起こるというものである。また、このコヒーレント体積は位相緩和過程に支配されている。我々のデータはこの理論によく合うことから、GaSe 中の Q 2 D 励起子は超放射的に減衰していると考えられる。

我々は本研究を通して、半導体中の Q 2 D 励起子について誘導フォトンエコー及びフォトンエコーにおける偏光依存性や量子ビート等の新しい現象を観測し、これらの現象を通して GaSe 中の Q 2 D 励起子の特性を明らかにした。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 井 上 久 遠

副 査 教 授 徳 永 正 晴

副 査 助 教 授 南 不二雄

副 査 助 教 授 木 下 修 一

学 位 論 文 題 名

Photon Echo due to Quasi-Two-Dimensional Excitons in GaSe

(GaSe中の擬二次元励起子におけるフォトンエコー)

パルス形状の光が共鳴的に物質を励起すると、不均一に広がった周波数をもつ振動子が一斉に同位相で振動を始め物質中に巨視的な分極が誘起される。この巨視的分極は周波数の異なる各振動子間の干渉により、不均一広がりスペクトル幅の逆数程度の時間で減衰する。ここに時間 τ だけ経った後に時間反転パルスを入射すると、 2τ の時間後に再び各振動子の位相が揃い巨視的分極が再び現われる。この現象をフォトンエコーと呼ぶ。この現象は物質の励起状態に関する多くの情報を与える。就中、位相緩和に関する情報、即ち、振動子が記憶した位相が外部からの振動により乱されるまでの位相緩和時間(T_2)を与える。この時間は、物質と光がコヒーレントに相互作用できる時間を与える重要な量である。半導体などの最低励起状態である励起子は、格子等との相互作用のため通常は 10^{-12} 秒以下の非常に速い位相緩和時間を持つため、従来研究が進んでいなかった。この研究は、最近の超短パルスレーザー発生技術の進歩を踏えて、従来、原子などを対象としてナノ(10^{-9})秒領域で行われていたフォトンエコーの実験を、GaSeを例にとって初めてサブピコ(10^{-12})秒域で研究したものである。

層状半導体GaSeは、積層不整のため結晶のc軸方向への励起子の運動は制限されている。この様な励起子を擬二次元(Q2D)励起子という。光励起子で生成された伝導帯の電子と価電子帯の正孔が、クローン相互作用によりバンド間遷移より低いエネルギーで励起状態を形成したものを励起子という。電子-正孔の交換相互作用により、さら

に一重項と三重項に分裂する。光の偏光を E として、 c 軸に対して $E \parallel c$, $E \perp c$ で、それぞれ一重項と三重項励起子が励起できる。主な成果を以下に要約する。

1. 励起子におけるフォトンエコーの偏光依存性を世界で初めて測定した。その結果、三重項励起子の遷移は、全角運動量 J が $J = 0 \rightarrow J = 1$ の原子の場合と同様なことをみい出した。
2. 三重項、一重項励起子間の量子ビートの観測により、エネルギー差が 2.2meV であることを明らかにした。励起子に関する量子ビートの数少ない観測の成功例である。共鳴線の不均一広がりのため、一重項の共鳴エネルギーは吸収測定では測定できない。
3. 3つの光パルスを用いる誘導フォトンエコー法を用い、励起子の位相緩和機構を詳細に研究した。 T_2 の温度並びに励起子強度依存性を測定し、位相緩和速度(T_2^{-1})が温度と強度に関して共に線形の依存性を示す結果を得て、位相緩和過程が励起子-音響フォトン及び励起子-励起子の衝突により支配されている事実を明らかにした。
4. 誘導フォトンエコー方と同じ配置で、一番目と二番目のパルスの時間差をなくすトランジェント・グレーティング法を用いて、励起子が消滅して数が減少していく分布数緩和時間(T_1)を測定した。その結果、 T_1 は温度上昇と共に長くなり、また励起光強度を上げてても長くなる事実を見い出した。解析から T_1 に寄与する輻射寿命についても同様な結果を得た。これは通常の三次元励起子の振舞いと全く異なる事実である。
5. 以上の結果から、 T_1 と T_2^{-1} の間には強い相関関係、即ち比例関係が存在することを初めて見い出した。理論的には、Q 2 D励起子の輻射寿命が励起子のコヒーレント体積により支配され、この体積は位相緩和過程で決まっていることを示している。この体積内の双極子が位相を揃えるため巨視的増大効果をもち、超放射的に放射することを意味している。最近の理論を初めて実証した重要な発見である。

以上のように、申請者は半導体中の二次元励起子に関して、サブピコ秒領域で誘導フォトンエコーを含めた種々のフォトンエコーの実験を行い、いくつかの新しい現象を見い出した。また、二次元励起子の超放射特性を世界で初めて解明したものである。

これ等の成果は、半導体物理学並びに量子光学の分野の進歩に大きな寄与を与えるものであり高く評価される。参考論文6編はいずれも権威ある国際誌に発表されている。

以上の所見に基づき、審査員は一致して申請者が博士(理学)の学位を受けるのに十分な資格を有するものを認めた。