

博士（理 学） 黒 田 隆

学 位 論 文 題 名

Excitonic Coherent Emission Process  
in Semiconductors

(半導体における励起子コヒーレント光放出過程)

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

コヒーレントな光の放出現象は、光と物質との相互作用が担う最も基礎的かつ単純な物理現象であるが、対象とする物質系が多電子系である固体の場合、放出過程が非常に短時間 ( $\sim 10^{-12}$  秒程度) に進行する現象であることから、必ずしも直接的な実験が行われてはいなかった。また、固体におけるコヒーレント過渡現象の理論的な取り扱いは、1970年代に気体原子集団を対象に実験がなされた「独立な2準位原子集団のモデル」を流用しているものの、その適用の正当性が検証されているわけではない。そこで本論文では、固体に固有なコヒーレント過渡現象を探索することを目的に、新たに2種類の超高速時間分解分光法を開発し、半導体の励起子準位におけるコヒーレント光放出過程を初めて直接観測できたこと、ならびに、その結果、個体中における超高速位相緩和特性、および相関のある2つ量子状態間の干渉現象（量子ビット現象）等の知見が初めて得ることができた。

注目する励起子準位に共鳴する光パルスを入射すると、振動電気分極が誘起され、そこからさらに光が放出される。放出光は、パルス入射ごく短時間の間は、入射パルスと位相が揃った指向性のある光ビーム（コヒーレント放出光）となるが、物質系のランダムなパートーベーションにより、誘起分極の位相の秩序が乱され、指向性のある光ビームは急速に減衰する（自由誘導減衰）。この減衰現象は位相緩和と呼ばれ、その特性時間（位相緩和時間）は、固体においては自由度がきわめて大きいことを反映して、1ピコ秒 ( $\sim 10^{-12}$  秒) 程度となる。位相緩和過程を観測することにより、注目する電子系と、格子系その他の自由度との相互作用強度の情報を得ることができ、

さらに応用の面からは、光との相互作用が連続的に持続する時間とも言える位相緩和時間は、特に光スイッチング等の非線形光学応答特性における最も基本的な物理定数とも言え、その値を知ることは意義深い。このように位相緩和特性を直接反映するコヒーレント光放出過程を観測することにより、多様な物理現象の知見を得ることが出来るが、以下に述べる様に単純に考え得る時間分解分光ではこの現象を検出することはできない。

入射光と位相の揃った放出光は、位相整合条件から、透過ビームもしくは反射ビームと同じ方向に放出されることになる。したがって時間幅が十分に短い共鳴パルスを試料に入射し、透過パルスの時間形状を測定すれば、その信号の時間遅れの部分にパルス入射後も位相緩和時間程度は持続しつつ減衰するコヒーレント放出光が検出されるはずである。近年のレーザー技術の進歩により、時間幅が1ピコ秒以下の超短パルス光源は既存の方法（モードロックパルスレーザー法）で生成でき、さらに超高速の時間分解能が要求される透過光パルスの時間形状の測定も、エレクトロニクス技術を用いる限り不可能であるが、非線形光和周波混合法を適用することにより可能となる。しかし、より本質的な問題点として、コヒーレント放出光はごく弱く、見かけ上系と相互作用しない弾性散乱成分に打ち消され、結果的に測定される信号は光パルスの試料内の伝播時間のみを反映し、コヒーレント過渡信号は何ら検出できないことがある。そこで申請者は、見かけ上系と相互作用しない反射成分を除去するために、試料にブリュスター角で共鳴光パルスを入射し、その反射パルスの時間形状を測定することを考え（時間分解ブリュスター角反射分光法と呼ぶ）、これを実践した。すなわち、よく知られているように、屈折率が実数となる非共鳴領域においては、 $p$ 偏光の光に対し反射率がゼロとなる入射角が存在し、これをブリュスター角と呼ぶ。共鳴光パルスをブリュスター角反射配置で試料に入射すると、反射パルスには見かけ上系と相互作用しない非共鳴反射成分は著しく減少し、コヒーレントな誘起分極からの放出光のみが検出されることになる。

実験に用いた試料は、層状化合物半導体GaSe中、およびZnSe/ZnSSe多重量子井戸超格子中の、ともに2次元量子閉じ込め励起子準位である。報告されているおのおのの半導体での透明領域における屈折率からブリュスター角を求め、その角度に入射角度を設定し、励起子エネルギーに共鳴した超短反射パルスの時間形状をサブピコ秒の

時間分解能で測定すると、弹性散乱的なバックグラウンドが消失すると同時に、非常に明瞭なコヒーレント放出光の減衰形状が観測することに成功した。更に、位相緩和時間の励起強度依存性を観測し、十分な強励起下においては、励起子状態に内在する非線形性に起因する励起子間散乱現象が、位相緩和過程の主たる要因になることを見いだした。さらに、励起子準位がエネルギー的に微細に分裂していることを反映して、コヒーレント光放出信号に時間的な振動構造が表出すること（量子ビート現象）を初めて実験的に観測することに成功した。

## 学位論文審査の要旨

主査 教授 井上久遠

副査 教授 中原純一郎

副査 教授 野村一成

主査 助教授 迫田和彰

### 学位論文題名

### Excitonic Coherent Emission Process in Semiconductors

(半導体における励起子コヒーレント光放出過程)

励起子は、固体の素励起の一つであるため、それ自身が物性物理学上の研究の対象であると同時に、多くの線型、並びに非線形な光学現象を支配するために重要である。半導体を中心に多くの固体において、励起子と光との相互作用に関して、これまでに非常に多くの研究がなされている。しかるに、コヒーレントな光で共鳴励起した場合の励起子からのコヒーレントな光放出過程、並びに励起子の波動関数のコヒーレントな持続時間（位相緩和時間）に関しては、これまで殆ど解明されていなかった。これは、実験的に直接観測する適当な手段がなかったためである。励起子の位相緩和時間は、 $10^{-12}$ 秒程度と極端に短いことも一つの理由である。

申請者は、コヒーレントな光放出現象を観測できる原理的に新しい方法を開発することにより、代表的な二次元電子系半導体結晶を対象にして、実際にサブピコ秒（ $10^{-13}$ 秒）領域で、この光放出の様相を観測し、その過程を解明した。具体的には、擬二次元系であるGaSe結晶と、ZnSe/ZnSSe多重量子井戸の2種類の半導体試料について研究を行った。主な成果を以下に要約する。

1. 過渡ブリュスター反射分光法とよぶべき新しい方法の開発に成功し、線型現象の範囲でのコヒーレントな光放出現象を世界で初めて観測した。 $10^{-12}$ 秒以下の超

短時間光パルスで励起子を共鳴的に励起した場合、そのすぐ直後に放出される指向性のあるコヒーレント光は、線型光学応答の領域では励起光の強い非共鳴散乱光にマスクされて通常は観測できない。これに対し、ブリュスター角での実験配置を採用することにより、この非共鳴光を除去できるはずであるとの着想の下に、コヒーレントな放出光のみを観測し、その時間発展形状を明らかにした。

2. 上記の観測に基づき、それぞれの系において位相緩和時間を求めることができた。この時間は光と励起子とがコヒーレントに相互作用できる特性時間であり、重要な物理量である。さらに、この励起光強度依存性を測定することにより、強励起下では位相緩和時間が光強度、すなわち励起子密度に比例して短くなることを明らかにし、励起子間散乱が位相緩和過程を支配する範囲を定量的に明らかにした。

3. 四光波混合放出光の時間形状を初めて観測することにより、これらの系の励起子が共に、均一ひろがりと不均一ひろがりによるスペクトル幅が同程度になっているを見い出した。一般に、位相緩和は上記の二つの原因による二つの変数、即ち、それぞれのスペクトル幅の逆数の時間定数によって記述される。原子系のような局在系においては多くの研究によりコヒーレントな過渡現象の描像が解明されている。一方、多体系である励起子系に関しては未解明であった状況に鑑みて研究を行い、二つの原因による寄与が同程度の場合の四光波混合放出光の時間形状を観測して、その理論的説明を与えた。

4. 量子干渉と古典干渉の実験的な区別が可能であることを初めて実証した。吸収スペクトルにおいて僅かにエネルギーが分離した固有状態が存在すると、実時間におけるコヒーレントな光放出プロファイルはそのエネルギーに対応した周期的な振動構造を持つ。この干渉効果は、二つの独立な振動双極子間の干渉と、三準位系として取り扱うことが妥当な量子準位間の干渉、すなわち量子干渉とに概念的には分けられる。線型の光学応答からは、この二つを実験的に区別することはできないのに対して、非線形現象である四光波混合では互いに異なった振る舞いを示すことを実験的に検証し、その理論的な解明も行った。

以上のように、申請者は全く新しい画期的な分光法を開発すると共に、それらの方針を駆使して、二次元電子系の励起子からのコヒーレント放出光の直接的な観測も含

めて、放出過程に関する多くの重要な知見を得て解明した。これらの成果は、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するものであり、高く評価される。なお、参考論文9編中の8編は、いづ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と認めた。