

交換相互作用の励起子コヒーレンスに及ぼす

効果に関する分光学的研究

学位論文内容の要旨

励起子とは直接遷移型半導体において光励起によって生成される電子と正孔がクーロン相互作用によって束縛された準粒子であり、そのダイナミクスはしばしば物質の光機能を決定する重要な働きを担う。特に励起子の位相情報(コヒーレンス)は、固体における量子演算や量子情報通信など次世代量子力学的デバイスへの応用が期待され、高い関心を集めている。このとき励起子は長時間に渡ってそのコヒーレンスを保持することが望ましく、量子ドットに代表される0次元閉じ込め構造による散乱の抑圧が広く利用される手段である。これに対して本研究は、緩和を引き起こす相互作用を利用した励起子コヒーレンスの制御性に着目する。具体的には励起子系に特徴的なスピン交換相互作用に着目する。交換相互作用は量子ドットにおいて顕在化する励起子微細構造の起源であり、近年精力的な研究がなされている。しかしながら交換相互作用が励起子コヒーレンスに及ぼす影響は、現状ではほとんど明らかになっていない。そこで本研究では、強い交換相互作用を有するワイドギャップ系半導体の GaN を用いることにより、交換相互作用と励起子スピン及び励起子コヒーレンスの関係を明らかにする。特に基板上に成長されたヘテロエピタキシャル GaN 薄膜の一軸歪制御性を利用し、異方的交換相互作用を含めた励起子コヒーレンスに対する交換相互作用効果を明らかにする。

本論文は6章からなる。以下に各章ごとの概要を述べる。

第1章「序論」では、励起子のコヒーレンスに着目すること、及びその制御方法に対する本研究の意義と位置付けを明らかにする。

第2章「GaN 励起子物性の高精度計測」では、GaN 励起子に対する物性値を決定するため、異種基板上薄膜の歪特性を利用する。通常、物質固有の物性値の見積りには、圧力や温度など外場を変化させなければならないが、異種基板薄膜を用いることで結晶性を損なうことなく物性値を測定することができる。測定は非線形分光法である四光波混合(FWM)分光を行い、その基板依存性からスピン軌道相互作用定数、結晶場分裂エネルギー及び交換相互作用定数を見積もった。FWMの信号強度は遷移の振動子強度の大きさに応じて増強されるため励起子遷移の振動子強度が大きい GaN に対して効果的であり、発光分光測定などの線形分光と比較してはるかに高い精度で定量値を見積もることができる。

第3章「時間分解分光による GaN 励起子スピン緩和ダイナミクス」では、GaN の励起子スピン緩和ダイナミクスの観測とその緩和メカニズムの解明を目的とした。半導体におけるスピン緩和の研究は非常に長い歴史があるが、GaN に関しては主に結晶性の問題から系統的な実験例は少なく、緩和メカニズムに関して未解明な部分も多い。例えば、Beschoten らは、時間分解ファラデー・ロー

レーション分光測定により、n-dope バルク GaN において電子スピンコヒーレンスの緩和時間が 5K で 20ns に及ぶことを示した。一方、Kuroda らは、時間分解スピン依存ポンプ・プローブ過渡反射率測定により、A 励起子スピンの緩和時間が 0.47-0.25ps (@150-225K) というサブピコ秒の高速で緩和することを示している。これらの違いが本質的なものなのか、つまり電子描像で見たスピン緩和と、励起子描像で見たスピン緩和の本質的な違いに起因するのか、または試料の個体差 (試料の品質) に由来したものなのか、その詳細は未だ明らかになっていない。そこで本研究では、バルク試料に対し 2 種類の時間分解分光 (スピン依存ポンプ・プローブ過渡反射率測定及び過渡スピン回折格子分光測定) から励起子スピン緩和時間を見積もり、比較検討を行った。その結果、GaN の特徴である強い励起子交換相互作用がサブピコ秒 (0.6ps@10K) の励起子スピン緩和を誘起し、励起子自体のコヒーレンスを決定していることが明らかになった。

第 4 章「励起子微細構造における励起子コヒーレントダイナミクス」では、GaN の励起子微細構造 (EFS) におけるコヒーレントダイナミクスを調査した。EFS は、形状の非対称性に伴う異方的交換相互作用によって発現する励起子状態であり、量子ドットなどの量子構造では古くから知られている。しかしながら EFS の基本的な物性、特にそのコヒーレンスを特徴付ける物性に関しては、バルク試料を用いた系統的な実験例がないため現状では明らかになっていない。一方、本論文第 2 章では、異種基板上薄膜において成長方向に対し垂直な面内に残留する一軸歪の量に依存して EFS が発現することを示した。本章ではこの点に着目し、a 面サファイア基板上薄膜における EFS の位相緩和時間を測定した。EFS の各共鳴は高い偏極度を有し、その分裂エネルギーも $\sim 1\text{meV}$ と比較的大きいため、偏光選択励起による周波数分解 FWM 分光を行うことで、各共鳴の位相緩和時間を測定することができる。その結果、EFS の各共鳴は、異方的交換相互作用によって誘起される非対称な有効磁場の発生により、異方的な位相緩和を生じることが明らかになった。このことは、基板の歪特性を利用することで交換相互作用の効果を制御し、励起子のコヒーレンスを制御できることを示している。

第 5 章「GaN 励起子のコヒーレント制御」では、GaN 励起子の特徴である励起子状態の多様性 (A,B 励起子の分裂、同種及び異種励起子分子遷移、励起子微細構造) に着目し、多チャンネルの励起子コヒーレント制御を実現することを目的とした。GaN を用いた励起子コヒーレント制御に関する報告例は、バルク試料は元よりその量子構造においてもなく、本研究が先行研究として位置付けられる。その手法は、同軸パルス間の時間遅延を励起子分極振動の周期 ($\sim 1.5\text{fs}$) に対し高い時間分解能 ($\sim 40\text{as}$) を持つピエゾ素子を用いて制御し、周波数分解 FWM 分光により状態の観測を行った。その結果、A-B 励起子分極と A-AA 励起子分子間のコヒーレント制御及び A-B 励起子間量子ビートのコヒーレント制御を実現した。

第 6 章「まとめと今後の展望」では、本研究で得られた知見を総括し、今後の展望を述べる。

学位論文審査の要旨

主 査	准教授	戸 田 泰 則
副 査	教 授	森 田 隆 二
副 査	教 授	武 藤 俊 一
副 査	教 授	折 原 宏
副 査	准教授	足 立 智
副 査	教 授	福 井 孝 志 (情報科学研究科)

学 位 論 文 題 名

交換相互作用の励起子コヒーレンスに及ぼす 効果に関する分光学的研究

本論文では励起子コヒーレンスを決定する相互作用効果の一つとして、励起子交換相互作用に着目する。交換相互作用は量子ドットにおいて顕在化する励起子微細構造の起源であり、近年精力的な研究がなされている。しかしながら交換相互作用が励起子コヒーレンスに及ぼす影響は、現状ではほとんど明らかになっていない。そこで本研究では、強い交換相互作用を有するワイドギャップ系半導体の窒化ガリウムを用いることにより、励起子スピン及び励起子コヒーレンスに及ぼす交換相互作用効果を明らかにする。励起子コヒーレンスを直接評価可能な四光波混合分光を観測手段として用いることにより、励起子微細構造を含めたコヒーレンス計測とその高精度評価を実現した。本論文は全六章から構成されている。以下に各章の要旨を示す。

第一章「序論」では、励起子コヒーレンスに着目する意義と、その制御方法に対する本研究の着眼点を明らかにしている。

第二章「GaN 励起子物性の高精度計測」では、GaN 励起子に対する物性値を決定するため、異種基板上薄膜の歪特性を利用している。通常、物質固有の物性値の見積りは、圧力や温度変化など外場の制御が必要であるが、異種基板薄膜を用いることで結晶性を損なうことなく物性値を測定できる。測定は非線形分光法である四光波混合 (FWM) 分光を行い、その基板依存性から歪パラメータを決定し、スピン軌道相互作用定数、結晶場分裂エネルギー及び交換相互作用定数を見積もった。これらのパラメータは次章以降のコヒーレンス評価に利用されている。ここで FWM の信号強度は遷移の振動子強度に対して非線形に増加するため、特に GaN のような強い振動子強度を持つ励起子系に対しては通常の光学測定に比べ高精度な物性値の見積もりを実現できている。

第三章「時間分解分光による GaN 励起子スピン緩和ダイナミクス」では、GaN の励起子スピン緩和ダイナミクスの観測とそのメカニズムの解明を目的とした。半導体におけるスピン緩和の研究は非常に長い歴史があるが、GaN に関しては主に結晶性の問題から系統的な実験例は少なく未解

明な部分も多い。本研究では励起子スピンの緩和時間を過渡回折格子分光から見積もり、その緩和メカニズムを探索した。過渡回折格子分光では励起子スペクトルから直接緩和時間を評価できるため、信頼性が向上している。低温における測定結果は従来報告された電子スピン緩和 (20ns) と比べて著しく高速なスピン緩和を示し、励起子コヒーレンスとほぼ同等であることを明らかにした。この差異は交換相互作用の寄与を示唆しており、その温度特性から散乱効果も有意な寄与を示した。これらの知見を踏まえて、異方的な交換相互作用を用いた励起子コヒーレンスを次章で評価した。

第四章「励起子微細構造における励起子コヒーレントダイナミクス」では、Ga_{0.99}N_{0.01} 薄膜の一軸歪により縮退の解けた励起子微細構造 (EFS) におけるコヒーレントダイナミクスを調査した。EFS は交換相互作用を反映した一軸歪に伴う異方的交換相互作用によって発現する励起子状態であり、単一量子ドット分光による報告が盛んである。しかしながら EFS の基本物性、特にそのコヒーレンスの特徴付ける物性に関してはその不均一性のため系統的な調査が実現されていない。これに対して本論文で用いるサファイア a 面上の Ga_{0.99}N_{0.01} 薄膜では EFS 分裂幅から一軸歪量を評価できる。本章ではこの利点に着目し、異種サファイア基板上薄膜における励起子コヒーレンス測定を実現した。ここで EFS の各共鳴のコヒーレンスはその高い偏極度を利用することによって、偏光選択励起による FWM 分光から直接比較できる。その結果、EFS の各共鳴は異方的な位相緩和を示すことが明らかとなった。理論計算による励起子分裂幅から、誘起される有効磁場が各 EFS に対応した異方性を有することが明らかとなり、この異方性が各共鳴におけるスピン緩和の違いをもたらす。第三章で示された Ga_{0.99}N_{0.01} における励起子コヒーレンスとスピン緩和の対応を踏まえると、このモデルは実験結果をよく説明できる。さらに実験結果は異種基板で生じる歪特性を利用することによって励起子コヒーレンスが制御可能であることを意味しており、応用上の観点からも意義深い。

第五章「Ga_{0.99}N_{0.01} 励起子のコヒーレント制御」では、Ga_{0.99}N_{0.01} 励起子の特徴である励起子状態の多様性 (A,B 励起子の分裂、同種及び異種励起子分子遷移、励起子微細構造) に着目し、多チャンネルの励起子コヒーレント制御を実現することを目的としている。Ga_{0.99}N_{0.01} を用いた励起子コヒーレント制御に関する報告は本研究が初めてである。制御はレーザーパルス対によって実現され、同軸パルス間の時間遅延を励起子分極振動の周期 (~ 1.5 fs) に対し高い時間分解能 (~ 40 as) で制御することにより達成された。周波数分解 FWM 分光により制御による応答変化を可視化し、制御性を評価している。その結果、A-B 励起子分極と A-AA 励起子分子間のコヒーレント制御及び A-B 励起子間量子ビートのコヒーレント制御を実現した。

第六章は本論文の総括と今後の展望について記述している。

これを要するに、本研究は励起子コヒーレンスにおける交換相互作用の効果を非線形分光を用いて明らかにした先駆的研究であり、応用物理学の発展に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。