

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 永井 正也

本論文は半導体において光励起によって生成されたキャリアが高密度かつ低温の状態を示す集団運動についてレーザー分光法を用いて研究したものである。半導体に電子正孔が光励起によって注入されると、電子正孔系はその密度や温度によって様々な状態をとる。密度が低い場合には電子正孔対の束縛状態である励起子ガスとして存在する。キャリア密度が高くなると、電子正孔間のクーロン引力が遮蔽され束縛が解かれ、自由な電子正孔ガスすなわち電子正孔プラズマとして振る舞う。この中性の励起子ガスからイオン化されたプラズマへの転移は励起子モット転移と呼ばれている。電子正孔プラズマは高密度のまま低温状態になると、多体のクーロン相互作用と交換相互作用がフェルミオンとしての反発力と拮抗し、凝縮することがある。この凝縮体は電子正孔液滴と呼ばれ、電子正孔対の再結合寿命の長い間接遷移型半導体で観測されている。このような低温で且つ高密度の電子正孔系の振る舞いは、バンド間の光学遷移強度の大きな直接遷移型半導体でも興味ある問題であり、1970年代以降多くの研究が行われてきた。しかし、直接遷移型半導体では、電子正孔系の寿命が短くキャリアの熱緩和時間と同程度であるために、電子正孔系の低温高密度相の物性を調べることは困難であった。また、実用素子として利用されているガリウム砒素などの半導体では、このような低温状態を現実のデバイスで利用することはないので応用上の観点からは重要ではないと考えられて来た。しかし、最近、ガリウムナイトライドをはじめとするワイドギャップ半導体を用いた光素子の実用化が進み、低温高密度のキャリアの物性を理解しておくことは応用上も重要となってきた。これはワイドギャップ半導体ではクーロン相互作用が大きく、多体効果による凝集エネルギーが常温においても光キャリアの物性を支配する可能性があるからである。一方、近年の超短パルス光技術の進歩により、光励起エネルギーの可変範囲は紫外から遠赤外にまで広がり、様々な条件で光キャリアを高密度に励起することが可能となった。またキャリアのダイナミクスをフェムト秒からピコ秒の時間スケールで捉えることも可能となってきた。

これらの背景のもとで、本研究では低温の高密度電子正孔系を生成する方法を探求し、実際に生成した低温高密度のキャリアの振る舞いを分光学的に調べたものである。特にワイドギャップ半導体の典型例として、直接遷移型の  $\text{CuCl}$  と間接遷移型のダイヤモンドを用いて、電子正孔の凝縮体が形成されることを新たに見いだした。

本論文は7章からなる。以下に各章の内容を要約する。

第1章では序論として、この研究の背景である半導体の高密度光励起キャリアの研

究の背景について述べ、従来の半導体の高密度電子正孔系の研究の問題点を整理している。それをもとに、本研究の意義と目的について説明し、本論文の構成について述べている。

続く第2章、3章では理論および実験について基礎となる事項について述べている。第2章では半導体の電子正孔系の状態についての基礎的事項、及びこれまでの半導体の高密度光励起キャリアの研究について述べている。第3章では本研究で用いた高出力フェムト秒光源と波長変換システムについて装置の概略を紹介し、フェムト秒広帯域ポンププローブ分光法及びフェムト秒時間分解発光測定法の実験方法について述べている。

第4章から第6章は本論文の中心をなすもので、本研究で得られた主要な実験について結果とその考察について述べている。第4章では典型的な半導体である Si、GaAs を用いた中赤外領域のポンププローブ分光について述べている。光励起キャリアのバンド内の集団運動を検出するためには、光励起キャリアのプラズマ周波数近傍のプローブ光を用いた時間分解分光が必須である。このために、本研究では中赤外域でのポンププローブ分光の実験手法を確立し、また得られたスペクトルの時間変化から光励起キャリアの時空間の挙動を捉えることができることを実証している。

第5章では直接遷移型半導体において励起子や励起子分子など大きな束縛エネルギーを持つ電子-正孔対を短パルス光で直接共鳴励起し、モット転移を経て高密度で低温の電子正孔系を生成することにより、低温高密度の電子正孔プラズマを励起できることを提案している。まず、I-VII 族半導体である CuCl 単結晶を用い、励起子共鳴強励起下での発光の時間分解分光について述べている。発光をサブピコ秒時間分解測定したところ、バンド間励起の場合とは異なる発光の時間変化を確認した。次に、キャリアの集団運動を直接検知するために、プラズマ周波数近傍の電磁応答を調べ、励起子共鳴下で実際に低温のプラズマが生成したことを実証した。また発光スペクトルと中赤外域過渡反射のスペクトルの形状の時間変化を比べ、イオン化した電子と正孔が 10 ピコ秒以内に空間的に不均一になり、電子正孔液滴のような安定な凝縮状態に達していることを見いだした。

第6章では間接遷移型半導体の中でもワイドギャップ半導体のダイヤモンドを取り上げ、光励起高密度キャリアの低温での挙動について調べた。バンド端近傍の光励起下での発光スペクトルの温度依存性及び発光の時間分解測定を行った。得られたスペクトル形状を解析した結果、同じ IV 族間接遷移型半導体である Ge や Si と同様にダイヤモンドにおいても低温では空間的に凝縮した電子正孔液滴が形成し、高温ではガス状の電子正孔プラズマとして存在していることを見いだした。また、液滴相の臨界温度はこれまで知られている、間接遷移型半導体の中では最も高温である。

第7章では本研究で得られた成果を要約し、今後の研究の課題と展望が述べられている。

以上の様に、本研究で著者は、半導体の電子正孔系の低温高密度での挙動を明らかにするために、その励起法と観測法を考案し、キャリアの再結合寿命の短い半導体において電子正孔液滴のような安定な凝縮プラズマ相が存在することを実証した。実験手法としては、中赤外領域におけるポンププローブ分光法を用いてキャリアのバンド内での集団運動を捉えることができることを示した。これは従来広く用いられている、バンド間遷移をプローブする方法と相補的であり、今後この分野の研究に広く利用されると考えられる。これらの成果は半導体の光学応答について新たな知見を与えているが、応用面でも今後の光デバイスやそれを用いた工学の発展に貢献するものであり、物理工学の発展への寄与は大きい。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。