

論文の内容の要旨

論文題目 半導体における励起子間相互作用と非線形光学応答の研究

氏名 青木隆朗

少数の光子で動作する非線形光学固体素子は、基礎・応用の両面において重要であるが、その実現のためには何らかの共鳴構造を利用して大きな非線形性を引き出す必要がある。そのため、半導体励起子共鳴での非線形光学応答は精力的に研究されている。原子系の非線形光学応答が孤立2準位系の応答を表す光ブロッホ方程式 (Optical Bloch Equation, OBE) によってよく記述されるのに対して、半導体中の電子・正孔系にはキャリア間のクーロン相互作用が強くはたらくため、この系の非線形光学応答を記述するには多体効果を取り入れなければならない。特に、励起子系の3次の非線形光学応答においては電子、正孔の4体の相関が重要な寄与をもつことがわかってきた。このような4体の相関を取り入れた微視的な理論は Dynamics Controlled Truncation Scheme (DCTS) として定式化されており、これに基づいた解析が活発になされている。しかし、4体の相関を第一原理的に計算する立場ではさまざまな近似を取り入れざるを得ず、その正当性の検証は困難である。非線形素子の物質設計への指針としては、4体の相関を有効に取り込んだ現象論的な理論を構築し、またその妥当性を検証する実験を行うことが重要であると考えられる。

そのような現象論として、励起子のボゾン的な性質を出発点とする、いわゆる「励起子描像」がある。励起子は希薄な極限ではボゾンであるから、励起子の非線形性は理想的なボゾンからのずれに起因する。この立場に立って、非線形性の起源としてスピン依存性を含んだ励起子間相互作用、および位相空間充填効果を考えたものが「弱く相互作用するボゾンモデル (WIBM)」である。このモデルでは4体の相関の重要な部分が励起子2体間の相互作用として取り込まれている。本研究では典型的な半導体である GaN、ZnSe、GaAs に対して4体の相関の効果を引き出す実験を行い、WIBM の妥当性を検討する。

通常の時間領域での四光波混合測定で得られる遅延時間依存性は線形分極の緩和を反映しており、この測定から4体の相関の効果を抽出することは一般に困難である。しかし、非線形分極の位相を反映する測定ができれば、そこから4体の相関についての情報を引き出せると考えられる。本研究では、そのような測定として量子ビートに着目した。励起子量子ビートの周期には2つの励起子準位間のエネルギー差が表れるだけであるが、その位相は非線形分極の位相を反映していると考えられる。そこで本研究では、量子ビートの位相を測定することで、その偏光依存性から2種類の励起子の系でのスピンの依存した励起子間相互作用について調べることができるのではないかと考え、GaNのA-、B-励起子間、およびZnSeのlight-hole、heavy-hole励起子間の量子ビートを測定した。

実験では、フェムト秒パルスの中心波長を2つの励起子共鳴の中心に合わせ、各励起子共鳴における信号を分光器で切り出した。GaNについての結果を下図に示す。また、各偏光配置でのビートの位相 ϕ を表にまとめてある。WIBモデルを3バンドの系に拡張し、励起子描像で励起子量子ビートの起源を考察すると、A-、B-励起子間の相互作用、および位相空間重点効果によってビートが表れることがわかった。すなわち、励起子量子ビートの起源は異種励起子(A-B)間の相関であるといえる。さらに、得られた実験結果との比較を行う。直線偏光を用いた配置では、両方の励起子共鳴で同じ位相が観測され、平行配置、直交配置でそれぞれ0、および π であること、また、100%近いビートのコントラストをもつことから、異種励起子(A-B)間、および同種励起子(A-A、B-B)間の相互作用を表すパラメータについて次式の関係が得られる。

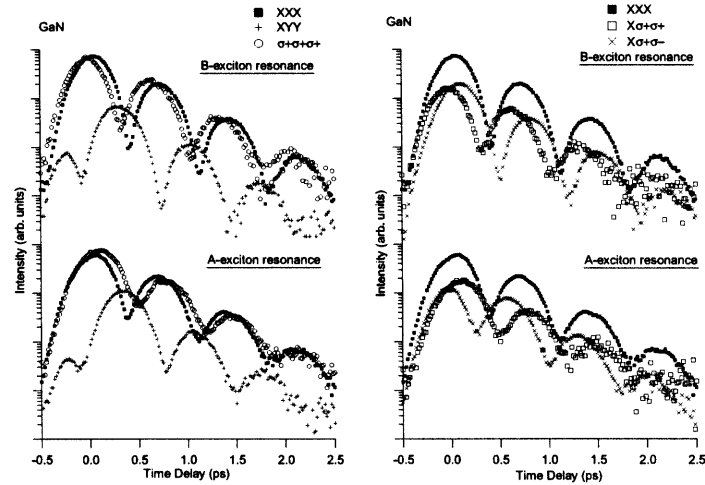
$$R_{AB} = W < 0, \quad W_{AB} = R > 0, \quad \nu' = \nu \quad (1)$$

式(1)より、励起子間相互作用、および位相空間充填効果は2つの励起子が同じスピンの電子をもつかどうかのみによって決まることがわかる。これは正孔が電子よりも大きな有効質量をもつことを反映していると考えられる。また、式(1)は、同じ向きのスピンをもつ異種励起子間には引力的な相互作用がはたらくことを示しているが、これは最近報告されている”mixed biexciton”の偏光依存性ともよく一致している。また円偏光を用いた配置では、それぞれの励起子共鳴で、同じ大きさで逆符号の位相が観測されたが、この位相から励起子間相互作用の大小関係、および実部と虚部(EID)の寄与の比がわかる。すなわち、

$$R_{AB} < R, \quad W_{AB} > W \quad (2)$$

$$\frac{\gamma_{EID}}{-W} \approx \begin{cases} 0.7 & (\text{GaN}) \\ 3 & (\text{ZnSe}) \end{cases} \quad (3)$$

である。式(2)は、独立に得られた式(1)と矛盾しない。また、式(3)より、ZnSeはGaNと比較してEIDの効果が強いことがわかる。



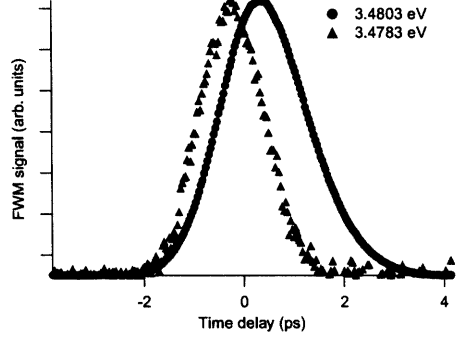
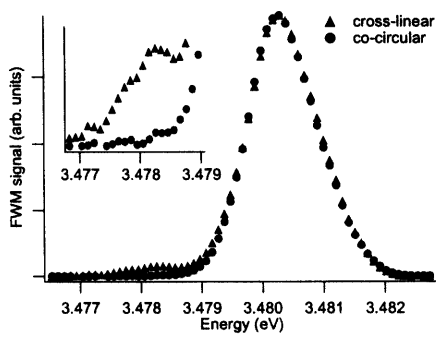
GaN	ϕ_A	ϕ_B
(XXX)	0.0π	0.0π
(XYY)	1.0π	1.0π
(+++)	0.3π	-0.3π
(X++)	0.3π	-0.3π
(X+-)	-0.3π	0.3π

ZnSe	ϕ_A	ϕ_B
(XXX)	0.0π	0.0π
(XYY)	1.0π	1.0π
(+++)	0.2π	-0.2π
(X++)	0.2π	-0.2π
(X+-)	-0.2π	0.2π

また最近、4体の相関における動的な効果(メモリー効果)が無視できないことを示す実験結果が報告されており、DCTSなどの微視的な理論においても動的な効果の取り込みが試みられている。励起子間相互作用のうちで瞬時的な相互作用の成分と、有限の相関時間をもつ動的な成分は非線形分極の実時間での変化に異なった寄与を示すが、これを時間領域で直接測定すると、パルスのスペクトル幅内の励起がすべて関与し、非縮退の過程が含まれるため個々の寄与を分けて抽出するのは困難である。そこで本研究では、ピコ秒レーザーのパルスがスペクトル幅としては縮退過程のみがおこるとみなせる程度に十分狭く、また有限のパルス幅を持つために時間領域での測定を行える点に着目し、GaNの励起子共鳴、励起子分子共鳴での縮退四光波混合測定により、時間領域で動的な効果を抽出した。

左下図は直線直交偏光、および同じ向きの円偏光配置で、遅延時間原点における縮退四光波混合信号をレーザーの中心波長を連続的に走査して得られた四光波混合スペクトルである。また、右下図はレーザーの中心波長を励起子共鳴、および励起子分子共鳴に固定して測定した四光波混合信号の遅延時間依存性である。信号強度の最大値を与える遅延時間は、励起子共鳴、励起子分子共鳴のそれぞれで $T_{max} = 0.4$ ps、 -0.3 psであった。

四光波混合信号の遅延時間依存性に表れるシフトは位相空間充填効果 ν と励起子分子 K の競合を反映している。瞬時的な相互作用に起因する項 $W - R$ は周波数によらないので、 T_{max} の周波数依存性から動的な効果を引き出せることがわかる。実験結果から、励起子系の非線形光学応答における位相空間充填効果の寄与と励起子分子の寄与の比較を行った。



一方周波数領域では、動的な効果は非線形分極の周波数依存性に表れる。しかし、単純に励起子共鳴近傍で非線形光学応答のスペクトルを測定した場合、線形の分散によるフレネルファクターを評価しなければならないこと、および線形な共鳴の幅より大きな離調をとると信号強度が弱くなることなどの困難がある。そこで本研究では、GaAs 半導体微小共振器に着目した。微小共振器と励起子が強く結合し、共振器ポラリトンを形成する系では、ポラリトン共鳴において強い非線形光学応答がみられるが、これは励起子の非線形分極に増強因子をかけたものとして理解される。増強因子は励起子共鳴からの離調が大きいエネルギーで大きな値をとるので、共振器の共鳴を励起子の共鳴付近で変化させることで、励起子非線形光学応答の裾の周波数依存性を調べた。

下図に平行配置、直交配置、逆回り円偏光配置の信号強度と同じ向きの円偏光配置の信号強度との比を励起子共鳴からの離調に対して示す。それぞれ

$$\frac{I^{XXX}(\omega)}{I^{X++}(\omega)} = \frac{|\chi_1(\omega) + \chi_2(\omega)|^2}{|\chi_1(\omega)|^2}, \quad \frac{I^{XYY}(\omega)}{I^{X++}(\omega)} = \frac{|\chi_1(\omega) - \chi_2(\omega)|^2}{|\chi_1(\omega)|^2}, \quad \frac{I^{X+-}(\omega)}{I^{X++}(\omega)} = \frac{|\chi_2(\omega)|^2}{|\chi_1(\omega)|^2} \quad (4)$$

に対応する。WIBMにおいてメモリー効果として励起子分子のみを考えることで、これらの結果をよく説明できることがわかった。

