

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 大間知 潤子

ダイヤモンドは構造と物性共に固体物理学における典型物質として古くから研究されてきた。その高い熱伝導性、高硬度性、紫外線および赤外線透過性といった性質により応用上も重要な物質として知られている。最近では、ダイヤモンドの欠陥に束縛された単一電子のスピン自由度を量子ビットに利用する可能性が注目され、スピン系の緩和や操作法について研究がすすめられている。ダイヤモンドは間接遷移型のワイドギャップ半導体であり、電子構造はシリコンと類似している。近年、高温高圧下での結晶成長やCVD法により、高品質の単結晶を成長する技術が開拓され、人工結晶を用いて、伝導特性や光学特性について詳細な研究が行われるようになった。また、レーザー技術の進歩により、紫外領域の波長可変レーザー光源を用いた分光実験や、紫外の強力なパルス光源による高密度励起現象の探索が可能となり、様々な励起条件下での光学特性の評価が進められるようになってきた。本研究は、紫外領域のフェムト秒パルス光源を用いて、ダイヤモンド結晶を強く励起し、高密度の電子正孔系の挙動について分光学的に調べるとともに、電子正孔系の物質相の制御法について分光学的に探索したものである。

本論文は以下の8章からなる。以下に各章の内容を要約する。

第1章では、本論文の序論として、電子正孔系の物質相探索という観点からダイヤモンドに着目する理由を述べ、本研究の背景を説明している。次に、本研究の目的を述べ、本論文の構成を示している。

第2章では本研究の理論的背景として間接遷移型半導体の電子正孔系が示す状態として、励起子ガス状態、励起子分子状態、多励起子束縛状態、電子正孔液滴状態について、電子状態の性質と分光学的な特徴について述べている。

第3章では、本研究の主題である、ダイヤモンドについてその基礎光物性についてまとめている。さらに本研究で用いた単結晶試料についてその基礎評価の結果を示している。

第4章では、歪印加によって電子正孔液滴相を制御する実験について述べている。まず、一軸応力下での電子状態変化とそれに伴う電子正孔系の安定相の変化について考察している。続いて、ヘルチアン接触法による不均一歪場発生の原理を説明し、この手法を用いた実験について述べている。発光スペクトル観察の結果から、歪印加による伝導電子帯の縮退度の低下によって、電子正孔液滴形成が抑制されると結論した。

第5章では、液滴形成のダイナミクスを探る新しい手法として、ダブルパルス励起下での発光相関測定法について述べている。実験法について測定系と測定原理について述べた後、実験結果を示し、液滴形成のダイナミクスについて得られた知見についてまとめている。その結果、低温領域で液滴形成が抑制されることが見いだされた。

第6章では、2光子励起法による実験について述べている。2光子励起法は結晶の広い領域に一樣に電子正孔を励起できることが特徴である。この場合電子正孔系と格子系との熱接触がよくとれ、電子正孔系が低温になることが確認された。この状態で広い励起密度領域で発光を観察したところ、特徴的な発光が観測された。この起源について、理論的に予言されているマルチバレー構造を有する電子系に特有な多励起子束縛状態である可能性について検討が行われた。また低温領域において、この多励起子束縛状態を経由して、液滴が形成されることが示唆される結果を得た。

第7章では、電子正孔系の性質を評価する別の手法として、光励起によって生じた電子正孔による中赤外領域の光学応答の検出について論じている。励起子をイオン化する過程に対応する光学吸収のスペクトル形状と強度について議論し、励起子数の定量評価法として利用できることを示している。高密度励起下で生じる電子正孔液滴は中赤外領域に表面プラズモンに特有なスペクトルを示すことについて述べ、そのスペクトル解析から、液滴中の電子正孔密度を評価できることを指摘している。これらをふまえ、実際に実験を行い、励起子ガス相と電子正孔液滴相を分離することに成功した。これにより、液滴中の電子正孔密度が発光スペクトル形状からの推測される値とほぼ一致し、非常に高密度になっていることが確認された。

第8章では、本研究の結果をまとめ、残された課題と今後の展望について述べている。

以上のように本研究は、高品質のダイヤモンド単結晶を用いて、時間分解発光測定および中赤外領域のポンププローブ分光法、歪印加により強い紫外パルス光照射のもとで生じる電子正孔系の諸相について系統的な研究を行ったものである。歪場による電子正孔液滴相の抑制、低温領域での液滴形成の抑制、多励起子束縛状態を示唆する発光の検出、電子正孔液滴中の密度評価などに成功した。これらは、半導体光物性研究の中心課題の一つである、電子正孔系の物質相について新たな知見を与えるものである。また、今後応用上も重要となるダイヤモンドの光学特性について新たな知見を与えており、工学的にも意義のある成果である。また、本研究で開拓された、レーザー分光法に基礎をおく実験手法は紫外パルスや中赤外パルスを用いた光物性研究の端緒となるものである。これら本研究の成果は今後の物理工学の発展に大きく寄与することが期待される。

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。