

論文審査の結果の要旨

論文提出者氏名 寺田 陽祐

間接バンド端を基底状態にもつ双極子許容 2 準位電子・正孔系における輻射再結合過程の研究についてまとめられた寺田氏の博士論文は、全 6 章からなる。第 1 章は導入部で研究の動機、背景、目的が述べられ、第 2 章で実験の原理と現象の理論的背景が詳述されている。これに続く第 3 章から 5 章では、3 つのテーマにそって実験結果とそれに関する考察が述べられ、最後の第 6 章で結論と今後の展望が述べられている。

導入で述べられているとおり、間接遷移バレーを伝導帯の最低エネルギー状態にもつ IV 族半導体の輻射再結合の制御を目的として、同氏は、修士の時分から近赤外領域の時間ドメイン評価を基軸に SiGe/Si ヘテロ構造を中心とする量子ナノ構造の研究に従事してきた。博士後期課程では、励起子基底状態からの双極子許容間接遷移において長寿命性を反映した、直接遷移物質では観測しにくい特異なキャリアダイナミクスが系統的に発現することを見いだした。同材料系はホール量子閉じ込めとは対照的に電子が殆ど束縛を受けない特殊なタイプ II 型の閉じ込めを示すが、逆にこの性質を利用することで 2 準位系の断熱的キャリア再分布のダイナミクスと再結合キネティクスを制御可能な構造がデザインできることを示した。これによって従来あった光学評価に内包されながら看過されてきた問題点を浮き彫りにし、物性評価の新手法を開発するとともに最先端研究のループホールを指摘。これを実験事実を通じて発展的に解消することで、分野の発展に大いに貢献した。そしてこれらの成果をまとめることで本論文を完成させた。

第 3 章では、簡便なセットアップで測定が可能、かつ汎用性が高い光学評価法として有名な光励起蛍光を取り上げ、従来のデータ解析と物性評価に大きな変更を迫る内容を提示している。同手法は、半導体をはじめとするさまざまな物質の研究に用いられてきた。蛍光から得られるデータとしてはエネルギーと並んで相対強度が重要であり、ことに励起強度のべき指数は、蛍光と競合する非輻射な再結合過程の寄与に関する情報を与えてくれる点で重用される。励起強度に対して光キャリア濃度が一様に増加する系においては、蛍光強度対励起密度のべきが最大 2 を超えないことが一般的に知られている。氏は、状態密度にとびがある 2 準位系では、この一般則が崩れることに気がついた。まずモデル理論計算を用いてこの効果を示し、修士時代の専門である IV 族半導体ヘテロ構造のバンド接続、間接遷移特性などを駆使することで、これを実証的に示した。その結果、状態密度にステップ的な不連続が存在すると、励起状態蛍光のべき指数が 2 を大きく超える一方、同時に基底状態蛍光のべき指数は 1 を下回るということがわかった。さらにキャリアの再結合を表すレート方程式から導かれるべき指数にくわえて、状態密度不連続

がもたらすべき指数が、簡単な積の形で全体のべき指数に取り込まれることを示した。この効果は、実験でも明瞭に観測され、フェルミ分布のぼけとともにべき指数の異常が逐次的に解消される温度効果、高温極限での振る舞いなどが、悉く理論予測と符号することがわかった。さらにしばしば観測事実だけにもとづいて議論される実験結果、たとえば誘導放出と誤認されるべき指数の異常増大が、実は状態密度の不連続に起因する高い蓋然性を指摘した。一方、現象論的側面では、同効果が輸送現象として著名な共鳴トンネルダイオードのアナロジーで理解できることを指摘した。擬フェルミ準位と状態密度不連続の共鳴が、光学的にかつトンネル障壁のない状況においても検知可能であることは驚異的である。この性質にもとづいて同氏は、同評価法が即時、量子閉じ込め系の障壁へのキャリア実空間移動に適用可能なことを指摘し、物質非依存な特性であることにも言及している。これらは物理学、応用物理学にとどまらず、蛍光評価を必要とする物質・材料系分野の方法論にとどまらず、学理の発展と深化に貢献するものである。

第4章の狙いは、第3章で扱った結合2準位間の可逆なキャリア移動の性質を積極的に利用することで、輻射再結合系のみを利用して、非輻射再結合系の人工モデルシステムを模倣的に構築することにある。これによって通常は外部出力を得ることができず、想像の産物の域を出ないブラックボックスとしての非輻射再結合過程と輻射再結合過程間のマイクロレベルなキャリアダイナミクスや、前者の効果的な回避あるいは抑制法を明示的な形で研究することが可能となる点が重要である。勿論のことこのような試みは今までに例がない。氏は、超格子障壁と量子井戸の間のホール移動に注目し、前者を輻射再結合過程、後者を非輻射再結合過程とみたことでこれを可能にした。まず、低励起密度で支配的な非輻射再結合過程の代表格である Shockley-Reed-Hall 再結合過程の際立った基本的な性質 (1) べき指数が2であること、(2) 励起密度上昇とともに寿命が伸びる効果をとともに再現することに成功した。一方、この非輻射過程模倣モデルには有効な温度領域が存在することを見いだした。それによれば低温では超格子における局在、高温では量子井戸からのホールの脱離が支配的となるが、この結果を敷衍して時間分解蛍光計測を行うことで新しい知見を得ている。すなわち、局在支配の低温環境であっても強励起条件下においては、ホール脱離が支配的となることによって非輻射再結合過程が抑制される結果、(2) の効果が発現することを直に示したのである。これは、(1)が前章でも指摘があったように、(2)あるいは定常励起下における非輻射過程の抑制効果が経験的に知られていても、その検証が困難であったことに鑑みれば、これは大きな前進であるといえる。その一方で、極低温の局在条件下では局在支配ゆえに井戸への捕獲が促進しないこととあわせて、非輻射再結合の抑制にはポテンシャル障壁の導入以外にも強励起による飽和抑制が有効であることを明らかにした点が意義深い。非輻射再結合の抑制と制御は、半導体レーザを初め再結合過程では最重要の位置づけにあり、今

回の研究のもつ意義は極めて大きいと言える。

第 5 章では、波数空間で隔たった、散乱による電子移動が伴う 2 準位間の輻射再結合過程を対象として、前 2 章とは異なる視野から研究を行っている。とくに両バレーのエネルギー差が小さい間接、直接バレーをもつ IV 族半導体のゲルマニウムを選択した点を特徴としている。電子状態を制御する観点からは量子構造が好適であるが、直接バレーの利用やスピンを端を発する昨今のゲルマニウム熱の高まりの中、未知の光学的性質を明らかにすることは時代の要請でもある。実際、発光エネルギーが通信波長帯に一致することを動機に、ゲルマニウムの直接バレー発光が近年、盛んに研究されている。しかし、歪、無歪系を問わず、ゲルマニウムの発光における直接バレーの関与は、エネルギー計算以外に確たる根拠を持たない。一方、直接遷移であれば高速の直接変調が可能となる筈である。氏は、時間分解法をもちいてこれらの懸案事項の一気に解決を目指した。量子構造は一般に薄膜の形態をとるが、エピタキシャル成長中に導入される格子欠陥は非輻射再結合中心をもたらす。それゆえ短寿命の直接遷移と超寿命の間接遷移では後者の効率の低下が著しい。これらは定常励起蛍光で直接評価することが難しいが、時間分解計測であれば寿命短縮として弁別が容易である。氏は、バルクのゲルマニウム試料に 2 つの金属電極を設けた構造を用い、パルス電流注入条件での発光強度と寿命のエネルギー分散およびその温度特性を時間の関数として詳細に解析した。その結果、直接、間接蛍光の明確な同定と分離に成功し、直接遷移がパルス電源の周波数応答より短い 1ns 以下の寿命をもつとともに pin 構造のバイアス変調によって NRZ パルスのオンオフ変調帯域 40MHz を得た。これはゲルマニウムの発光ダイオードの変調速度としては最高値であり、直接遷移の関与を示唆している。さらにこの変調特性にもとづいて、逆バイアス下での直接、間接バレー端における Stark 効果の発現を観測している。さらに電流注入では間接バレーにのみ電子が注入可能であるが、そこからバレー間フォノン散乱によってのみ直接バレーが励起可能であることを今回の実験によって直に示した。

以上より間接端基底状態 2 準位系では励起状態のみ外場への応答性が高く、基底状態だけを扱う従来の物性描像の正しさ裏付ける一方で、励起状態からの発光の利用と制御への道筋をつけた。このように最先端分野をリードする成果、鋭い洞察力と判断力を駆使して、従来看過されてきた本質的な問題を掘り起こし、緻密な議論と明解な論理展開、そして実験を通じてこれらを実証する姿勢は、後に続く学生のロールモデルであり、一連の業績は、特定の研究分野のみならず、物性物理学の発展に寄与するものである。

尚、第 3、4、5 章の一部は、安武祐輔氏、深津晋氏らとの共同研究であるが、論文提出者が主体的に実験計画の立案、実行、解析と考察を行ったものであり、その寄与は十分であると判断する。

よって本論文は、博士（学術）の学位請求論文として合格と認められる。