

論文の内容の要旨

テラヘルツ分光法による励起子モット転移の研究 (Exciton Mott Transition Studied by Terahertz Spectroscopy)

氏名 鈴木剛

高密度に励起された半導体中の電子正孔系は、密度・温度により多彩な相を示す。温度が十分低く、低密度の領域では、電子と正孔がクーロン引力により引き付けあい、励起子と呼ばれる束縛状態を形成する。励起子は、電氣的に中性であるので、系全体は絶縁性を示し、また、その量子統計は近似的にボースアインシュタイン統計に従う。一方、密度を増加させていくと、励起子は遮蔽効果により不安定になり、励起子が乖離した状態である電子正孔プラズマが安定となる。電子正孔プラズマは、フェルミ粒子としての気体であり、系全体は金属的な性質を示す。この、密度上昇に伴う絶縁体から金属への転移を励起子モット転移と呼ぶ。

励起子モット転移は、電子正孔系における長距離クーロン相互作用に起因する相転移である点で基礎物理学的に興味深く、約半世紀に渡り様々な研究者がその解明に尽力してきた。また、応用の観点からもレーザーの発振閾値がどのように決まり、そこにクーロン相互作用がどのように効いているのかといった光デバイスの進歩の上で不可欠な研究であり、精力的に研究されてきた。

これまでは主に、乱雑位相近似 (Random Phase Approximation : RPA) 理論が一般的に受け入れられてきた。これによると、電子正孔対密度の増大に伴い、主に交換相互作用の増大によりバンドギャップは縮む。この現象をバンドギャップリノーマライゼーション (Band Gap Renormalization : BGR) と呼ぶ。一方、励起子は電氣的に中性であるために、周りの電荷による遮蔽効果を受けにくく、エネルギー位置はほとんど変化しない。そして、バンドギャップエネルギーと励起子エネルギーが交差する密度 (モット密度) で励起子モット転移が起こると考えられてきた。しかし、近赤外、可視光領域の発光測定及び吸収測定によるバンド間遷移を通じた測定では、モット密度近傍で BGR をはっきりと観測できていないのが実状である。

励起子の束縛エネルギーは、数 meV~数十 meV であり、遠赤外、テラヘルツのエネルギー領域に対応する。近年、高時間分解能を有するテラヘルツ分光法が進展し、物性研究における低エネルギーの素励起観測の非常に強力な手段として普及してきた。電子正孔系においても、テラヘルツ分光法により、励起子の内部遷移の観測を通してクーロン相関を調べることができるようになった。例えば、GaAs/(AlGa)As 量子井戸の 2 次元電子正孔系では、密度増加に伴う励起子束縛エネルギーの変化が報告されているが、試料系によって結果が異なるなど、結論には至っていない。一方、1 次元系ではモット転移に伴う励起子束縛エネルギーの減少が生じないことがバンド間光学遷移の測定から提唱されている。3 次元系に至っては、束縛エネルギーの減少を明確に観測した例はない。

このような現状を踏まえ、本研究では、3 次元電子正孔系における励起子モット転移の解明を目指して、テラヘ

ルツ分光測定による観測を行った。バンド構造や励起条件の影響を比較するために、間接遷移型半導体 Si と直接遷移型半導体 GaAs の両方を用いた。

Si における励起子モット転移のキャリアダイナミクス

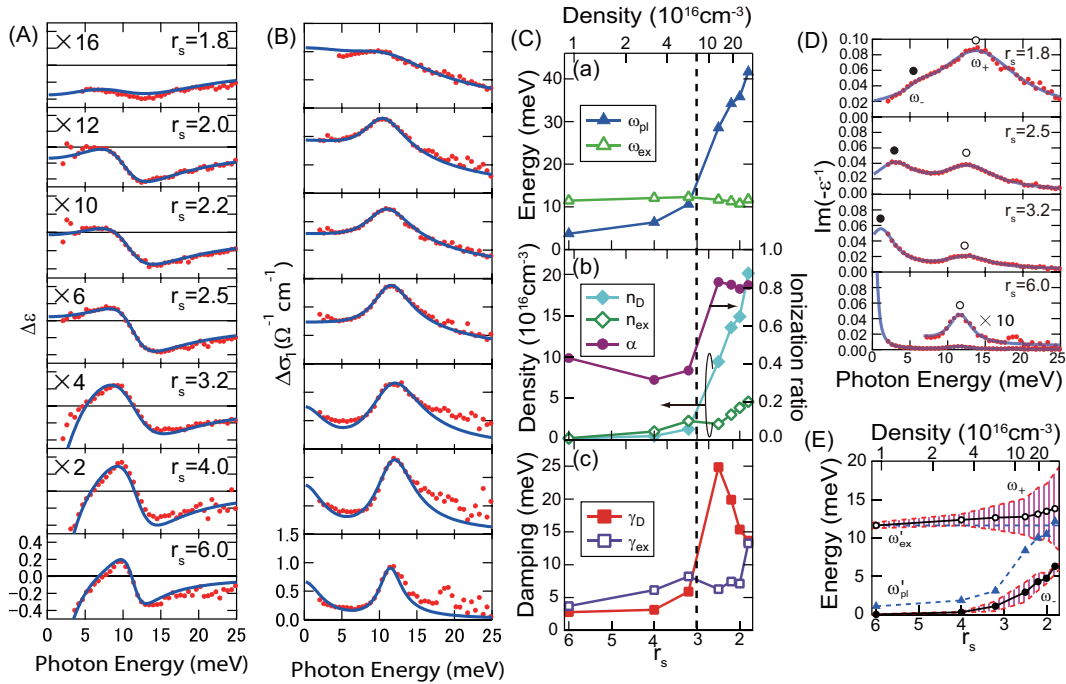


図 1: 格子温度 30 K、遅延時間 4 ns における (A) 誘電率実部と (B) 光学伝導度の変化。点が実験データを表し、実線がドルーデ・ローレンツモデルのフィッティングによる計算結果を表している。(C) フィッティングにより得られた様々なパラメータの密度依存性。点線は 30 K での RPA モット密度 ($r_s = 3.0$) を表す。(a) プラズマ周波数 (ω_{pl}) と励起子 1s-2p 遷移エネルギー (ω_{ex})。 (b) 自由キャリア・1s 励起子密度 (n_D, n_{ex}) とイオン化率 (α)。 (c) 自由キャリアと励起子の散乱確率 (γ_D, γ_{ex})。 (D) 格子温度 30 K、遅延時間 4 ns における損失関数。実線は、現象論的 2 成分ローレンツモデルによるフィッティング曲線。(E) 損失関数 (D) のピークエネルギー位置 (ω_+, ω_-) の密度依存性。半値全幅を破線で示す。また参照のため、遮蔽プラズマ周波数 (ω'_{pl}) と裸の励起子 1s-2p 遷移エネルギー (ω'_{ex}) をプロットしている。

電子系の温度が格子系の温度と等しくなる準熱平衡状態における励起子モット転移を観測するために、試料としてキャリア寿命の長い間接遷移型 Si を選定した。図 1 の (A), (B) は、格子温度 30 K、遅延時間 4 ns での誘電率実部、光学伝導度の励起密度依存性である。励起密度は、ボア半径で規格化した平均粒子間距離 r_s で示しており、RPA による 30 K での Si のモット密度は $r_s = 3.0$ である。実験データから、励起密度を増大させても 12 meV に見られる励起子 1s-2p 遷移エネルギーは変化せず、また、RPA のモット密度以上 ($r_s \leq 3.0$) でも励起子が強く残存していることが見て取れる。これらは明らかに、これまでの解釈とは異なる振る舞いである。得られたデータから定量的な知見を得るために、ドルーデ・ローレンツモデルによりフィッティングを行った。フィッティング曲線を (A), (B) の青実線で示し、得られたパラメータの密度依存性を図 (C) に示す。30 K での RPA によるモット密度を黒点線で示す。(a) は、プラズマ周波数 ω_{pl} と励起子 1s-2p 遷移エネルギー ω_{ex} の値をプロットしており、 ω_{pl} が ω_{ex} 以上の値になる密度領域でも、 ω_{ex} は変化しない様子が見て取れる。(b) は、自由キャリア密度 n_D と励起子密度 n_{ex} 、及び励起子が乖離している割合を表すイオン化率 α を示しており、ちょうど RPA でのモット密度近傍でイオン化率が急激に上昇している様子が見て取れる。(c) は、自由キャリアと励起子の散乱確率 γ_D, γ_{ex} を示しており、 γ_D がモット密度近傍でピーク的な振る舞いを示していることが見て取れる。さらに $\gamma_D \approx 25$ meV と、この密度領域での自由キャリアの運動エネルギーと比較しても 1 桁以上大きな値を取ることから、この密度領域で系が不良金属的になっていることを示唆している。

次に、集団運動の性質を調べるために、誘電関数から損失関数を計算し、ピークのエネルギーから縦波共鳴周波数を求めた。図 1(D) に損失関数 (赤点) を示し、現象論的 2 成分ローレンツモデルのフィッティング曲線 (青線) も併せて示す。低密度領域では、二つのピークが明確に分離している様子が見て取れる。低エネルギー側の共鳴がプラズモンであり、高エネルギー側が縦波励起子の 1s-2p 遷移エネルギーである。図 1(E) にピークのエネルギーと半値全幅の励起密度依存性を示すが、観測された縦波共鳴周波数 (ω_+, ω_-) と、遮蔽プラズマ周波数 (ω'_{p1}) と裸の励起子 1s-2p 遷移エネルギー (ω'_{ex}) との振る舞いを比較すると、励起密度の増大に伴い、二つの共鳴周波数が反交差し、またそれと同時にブロードニングしていく様子が見て取れる。反交差していく振る舞いから、この領域で系の縦波共鳴は、プラズモンと励起子の結合モードであることが分かり、言い換えれば、これは、系の集団運動である電荷密度揺らぎ (プラズモン) と縦波励起子の分極とが結合していることを示している。プラズモンのブロードニングの起源は、励起子の存在に起因し、通常のフェルミ液体と異なる、電子正孔系特有の現象であることが分かった。

Si における励起子モットクロスオーバーと相図の決定

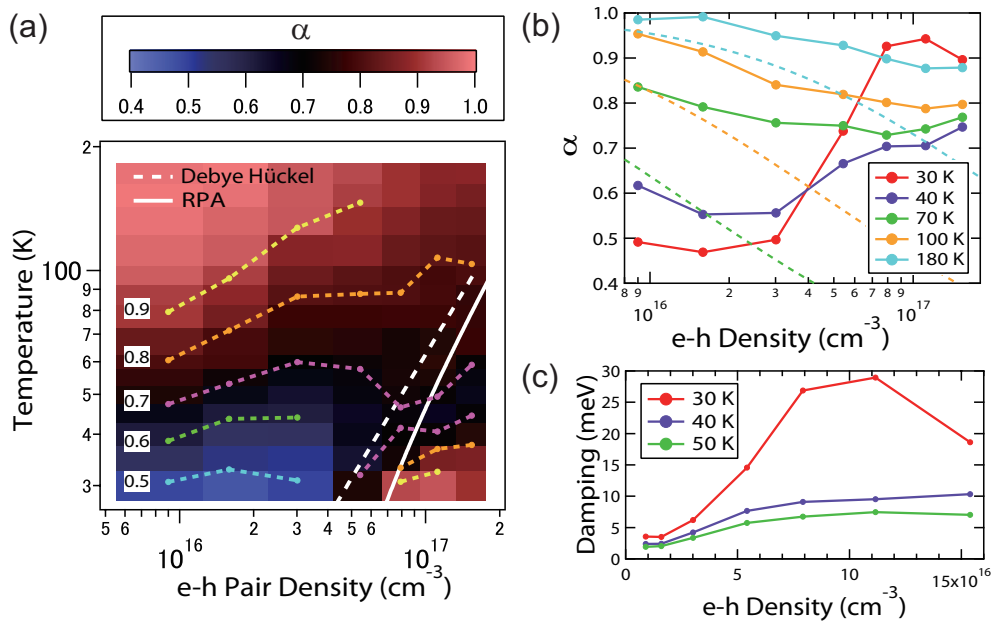


図 2: (a) 温度・密度空間でのイオン化率の二次元プロットで表した Si における相図。デバイーヒュッケル近似及び RPA によるモット密度を白破線及び白実線でそれぞれ示してある。(b) イオン化率の密度依存性とサハ方程式 (点線) との比較。(c) 自由キャリアの散乱確率の密度依存性。

テラヘルツ分光により誘電率実部と光学伝導度が得られ、フィッティング解析からイオン化率が求まること分かったので、次に、密度・温度を系統的に変えてイオン化率を求めることで、Si における相図を決定した。図 2(a) に、本研究で実験的に求めたイオン化率の 2 次元プロットを示す。比較のために、デバイーヒュッケル近似及び RPA によるモット密度を白破線及び白実線で表す。40、50 K などの比較的高温領域において、モット密度以上の高密度領域で励起子が高い割合で存在していることが新しく発見された。より詳しく見るために、(b) に代表的な温度におけるイオン化率の密度依存性を示す。また、熱力学的な安定性から割合を決定するサハ方程式による予測を点線で併せて示す。サハ方程式によれば、密度が増大するにつれて、励起子の束縛エネルギーの利得がプラズマであることによるエントロピー的利得を上回り、励起子の割合が高くなることが予想される。温度が高くなるほど、サハ方程式に近づいていく振る舞いから、高温領域では、励起子・電子正孔プラズマは古典的な粒子として振る舞い、質量作用の法則により割合が決まることが分かった。一方低温になると、高密度領域で遮蔽効果による安定性が熱力学的な安定性を上回って、イオン化率は上昇する振る舞いを示す。

次に、相図における自由キャリアの散乱確率の振る舞いを見るために、(c) に代表的な温度における散乱確率の密度依存性を示す。比較的高温の領域では、密度上昇と共に単調に増大していくのに対して、低温領域の 30 K で

は、モット密度近傍でピーク的な振る舞いを示すことが分かった。この振る舞いは、電子正孔間の引力相互作用に起因するものと考えられる。密度がある程度高く、頻りに電子正孔が衝突し、かつ励起子の熱的乖離が抑制される低温領域でこのような不良金属的な応答を示すと考えている。

MBE 成長した GaAs における励起子モット転移の研究

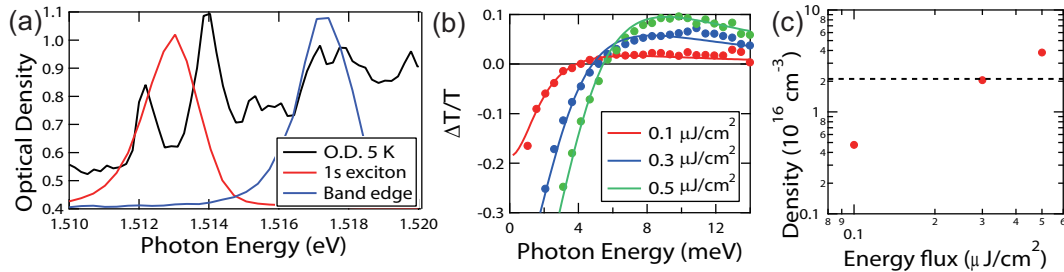


図 3: (a) 格子温度 5 K における試料のバンド端光吸収スペクトル（黒実線）と 4f 光学系により切り出した励起光パルスのスペクトル。赤実線が 1s 励起子共鳴励起条件で青実線がバンド端励起条件。(b) 1s 励起子共鳴励起条件下で、励起後 10 ps、格子温度 5 K における差分透過率（点）。ドルーデモデルによるフィッティング曲線を実線で示す。(c) フィッティングにより求められた自由キャリア密度の励起強度依存性。黒点線は励起子遮蔽を考慮した RPA によるモット密度。

直接遷移型半導体では、バンド端遷移における吸収係数が大きいために、励起子共鳴励起により高密度に励起子を生成することができる。本研究では、GaAs を試料として選定し、4f 光学系を用いた波長の切り出しにより、1s 励起子共鳴励起とバンド端励起の二つの励起条件を実現し、テラヘルツ分光により観測した。図 3(a) に 1s 励起子共鳴励起とバンド端励起に用いたパルスのスペクトルと、格子温度 5 K における試料の吸収スペクトルを示す。(b) に 1s 励起子共鳴励起条件下で、励起後 10 ps、格子温度 5 K における差分透過率を、励起強度を変化させて点で示す。励起子共鳴励起条件にも関わらず、自由キャリアの応答を示すドルーデ型のスペクトルが現れた。定量的に考察するために、ドルーデモデルを用いた転送行列法により差分透過率を計算し、フィッティング解析を行った。フィッティング曲線を (b) の実線に示し、得られた自由キャリア密度を (c) に示す。比較のために、励起子遮蔽を考慮した RPA によるモット密度の計算結果を黒点線で示してあるが、実験データから抽出した自由キャリア密度は、モット密度以下であった。それにも関わらず、励起子の応答が表れずに自由キャリア応答が現れたことに関しては、高品質の直接遷移型半導体であるために分極のコヒーレンスが大きく、実効的にモット密度が低下して自由キャリアになってしまうことが可能性として考えられる。自由キャリアに乖離してしまう微視的な機構は、本研究では分からなかったが、その解明のためには、励起パルスの制御や、同じ励起条件での発光や吸収によるバンド間遷移とバンド内遷移の比較などの実験が今後の展望として考えられる。

総括

半導体電子正孔系において、励起子の束縛エネルギーはテラヘルツ周波数領域に存在する。本研究では、間接遷移型半導体 Si と直接遷移型半導体 GaAs を用いて、励起子内部遷移を通して 3 次元系における励起子モット転移の解明を試みた。誘電関数からフィッティング解析により定量的な物理量を求めることができ、励起子モット転移におけるキャリアダイナミクスの新しい知見を得ることに成功した。

参考文献

- [1] T. Suzuki and R. Shimano, Phys. Rev. Lett. **103**, 057401 (2009).
- [2] T. Suzuki and R. Shimano, Phys. Rev. B **83**, 085207 (2011).
- [3] T. Suzuki and R. Shimano, Phys. Rev. Lett. **109**, 046402 (2012).