

## 論文の内容の要旨

論文題目：半導体 GaAs 中に共鳴励起された励起子系の

励起子間相互作用と緩和ダイナミクスの研究

(Exciton-Exciton Interaction and Relaxation Dynamics

in Resonantly-Created Exciton System in Bulk GaAs)

氏名 高山 正行

半導体に対してバンドギャップエネルギー以上の光子エネルギーを持つ光を照射することでできる電子正孔系は、その温度と密度に応じて様々な相をとる。特に低温・低密度の領域では、クーロン引力によって電子と正孔が水素原子様に束縛した励起子ができる。励起子は電荷中性の擬ボソンであり、極低温においてボース・アインシュタイン凝縮(BEC)が生じると予想されている。これまで励起子 BEC の実現・観測に向けて多くの研究がなされてきたが、励起子の寿命が典型的には ns のオーダーであり、また極低温の励起子状態を生成することが難しいなど、実験においては多くの困難があった。近年ではこの量子凝縮現象の兆候が報告されてきているが、未だ励起子 BEC の性質の多くは謎に包まれている。

Bogoliubov 理論によると、相互作用するボソン系の BEC においては、ボース粒子のエネルギー分散関係が粒子間相互作用エネルギーに依存する形でシフトと変調を受け、特にこのシフトを平均場エネルギーシフトという。冷却原子系においては、この平均場エネルギーシフトは極低温下での原子間相互作用を特徴付けるパラメーターである  $s$  波散乱長を用いてよく記述される。励起子系におけるエネルギー分散関係の変調と平均場エネルギーシフトの観測は励起子 BEC の観測・性質理解のための有力なアプローチであると期待されるが、この平均場エネルギーシフトの議論のためには励起子間相互作用エネルギーや励起子の  $s$  波散乱長についての定量的な理解が必要である。また励起子間相互作用は励起子を構成する電子・正孔のスピン状態に依存するため、励起子のスピンドYNAMIKSの理解も重要である。しかしながら、これまで3次元励起子系における励起子間相互作用や  $s$  波散乱長、およ

び励起子スピン緩和現象に関する実験からの定量的な評価はほとんどなされてこなかった。

本研究では 3 次元系での励起子間相互作用エネルギーと励起子スピンダイナミクスの定量的評価を目指し、直接遷移型半導体である GaAs を用いて、格子温度 5 K においてポンプ-プローブ分光を、偏光自由度を変えながら行った。ポンプ光の波長は軽い正孔(light hole, LH)-1s 励起子吸収ピークに合わせて狭線幅化・波長選択を行い、初期状態として極低温の LH-1s 励起子系を生成した。また、GaAs 中の励起子の束縛エネルギーは 4 meV 程度(1 THz 程度)であることから、テラヘルツ分光により励起子の内部遷移の観測を通じて、ポンプ光でつくられる励起子の密度を定量的に評価した。その結果以下の知見が得られた。

### (1) 重い正孔-軽い正孔混合励起子分子の誘導吸収の観測と励起子スピン緩和の定量評価

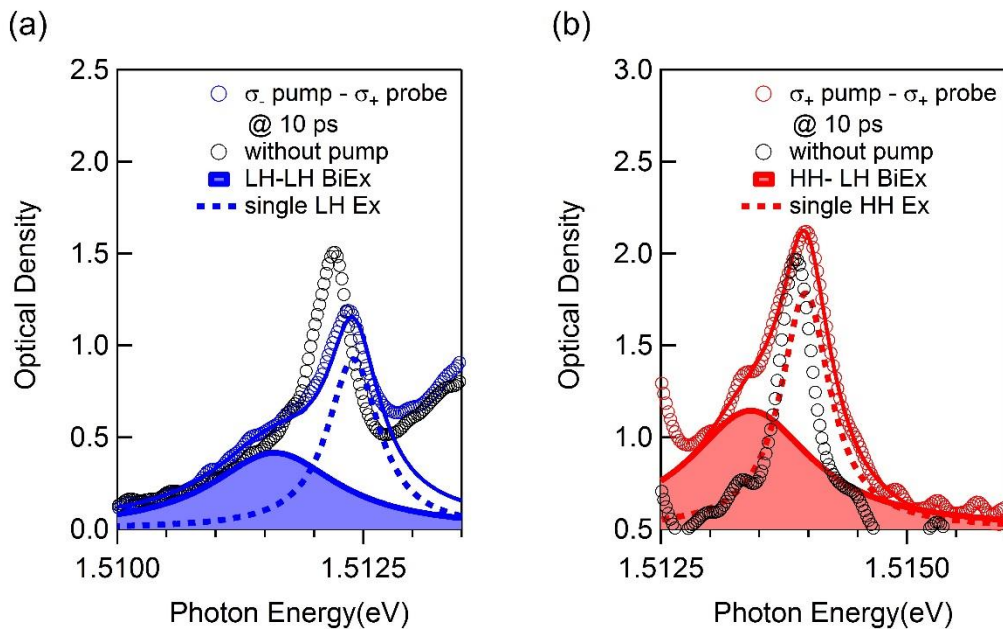


図 1. 励起子密度  $1.7 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 、ポンプ-プローブ遅延時間 10 ps における吸収スペクトル。2 重ローレンツ関数によるフィッティングにより 1 励起子吸収(色点線)と励起子分子誘導吸収(塗りつぶし)に分離された。

まず、ポンプ光・プローブ光の円偏光の組み合わせによって、図 1 に示されるように、(a)逆回り円偏光の場合( $\sigma^-$  - ポンプ- $\sigma^+$ プローブ) は LH 励起子の吸収ピークよりも低エネルギー側に LH-LH 励起子分子(同種の励起子から構成される励起子分子)を、(b) 同じ円偏光の場合( $\sigma^+$  - ポンプ- $\sigma^+$ プローブ) は重い正孔(heavy hole, HH)励起子の吸収ピークよりも低エネルギー側に HH-LH 混合励起子分子(異種の励起子から構成される励起子分子)による誘導吸収を観測した。バルクの閃亜鉛鉱型半導体における HH-LH 混合励起子分子の観測は本研究が初である。また、ポンププローブ遅延時間を変化させてこれらの励起子分子の誘導吸収のダイナミクスを測定することで、励起子を構成する電子・正孔のスピン緩和時間

を定量的に評価することに成功した。特に、電子正孔間交換相互作用に起因する、励起子内での電子・正孔の同時スピントリフは、バルク GaAs においては本研究において初めて観測された。

## (2) 励起子間相互作用エネルギーの定量評価

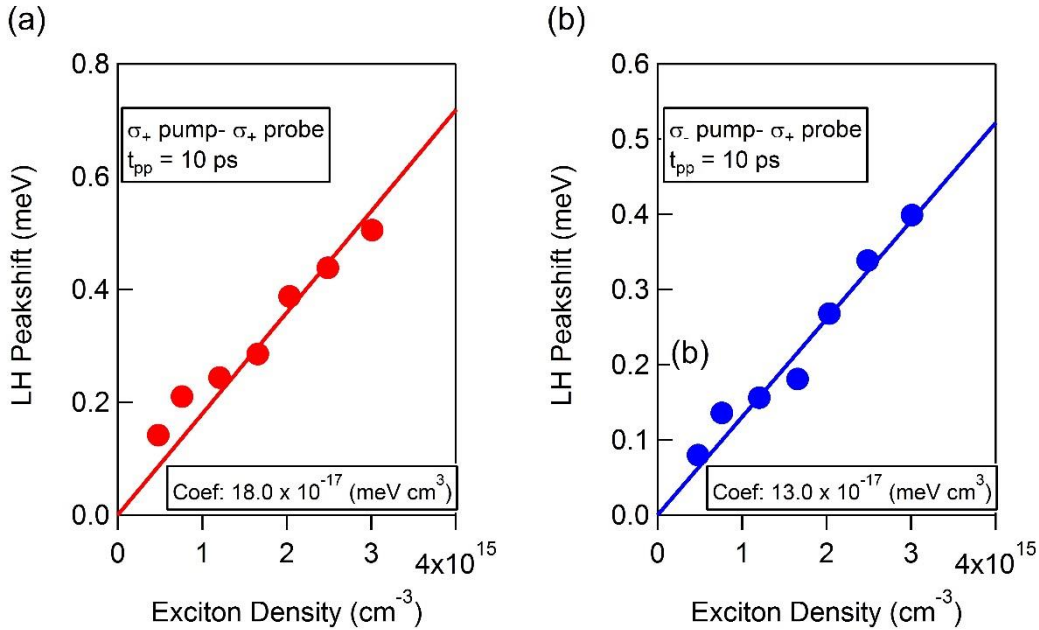


図 2. ポンプ-プローブ遅延時間 10 ps における LH-1s 励起子吸収ピークのエネルギーシフト  $\Delta E$  の励起子密度  $N$  に対する依存性。(a)  $\sigma_{+}$  ポンプ- $\sigma_{+}$  プローブ条件での測定結果。(b)  $\sigma_{-}$  ポンプ- $\sigma_{+}$  プローブ条件での測定結果。実線は  $\Delta E = \alpha N$  によるフィッティング結果。

励起子共鳴励起後 10 ps において、励起子間相互作用に起因する励起子吸収ピークのエネルギーシフトが観測された。励起子吸収ピークのエネルギーシフト量の励起子密度依存性を決定するために、テラヘルツ分光により励起子密度を定量的に評価した。その結果、図 2 のように励起子エネルギーシフトが励起子密度に比例する振る舞いが観測された。このエネルギーシフトは、位相空間充填効果や交換相互作用エネルギーに由来する励起子間相互作用に起因するものであり、実験結果を平均場近似に基づく理論計算と比較し、定量的によく一致することを明らかにした。また  $s$  波散乱のモデルで記述されるエネルギーシフトのシミュレーションと実験結果の比較から、電子スピン・正孔スピンの両方がともに逆向きである 2 励起子の間にも実効的に斥力散乱が働くことが実験的に明らかになった。なお、本研究では LH 励起子同士の相互作用に加え、HH 励起子と LH 励起子の間の相互作用エネルギーの定量評価にも初めて成功している。

### (3) 励起子エネルギーシフトのダイナミクス

直線偏光のポンプ光を用いて励起子を共鳴励起すると、励起後 30 ps 程度から数十 ps 程度かけて励起子吸収ピークのエネルギーシフト量が単調に減少し、100 ps 以降は準平衡状態に至る振る舞いが観測された。この振る舞いの詳細を明らかにするために、テラヘルツ分光によって励起子密度のダイナミクスを測定し、エネルギーシフトの時間変化と比較したところ、このエネルギーシフトの減少ダイナミクスは、励起子密度の減少だけでは説明することができず、実効的な励起子間相互作用強度がこの時間領域で減少していることが分かった。

そこで励起子間相互作用エネルギーの温度依存性の理論計算と比較した結果、共鳴励起後の時間経過に伴い励起子系の温度が上昇している可能性が示唆された。励起子-格子相互作用による熱化の数値シミュレーションを行ったところ、本研究における観測時間領域では格子による熱化はほとんど効いていないことが示された。従って励起子系の温度上昇の起源は励起子間非弾性散乱である可能性が最も高いと考えられた。実際、テラヘルツ分光により分かった励起子密度の減少のダイナミクスは、確かに共鳴励起後数十 ps の時間スケールで、励起子非弾性散乱によると考えられる励起子密度の減少が起きていることを示しており、この過程で放出される熱が励起子温度の上昇をもたらしていると結論した。

以上、本研究ではバルク GaAs の励起子系を対象に、スピン緩和ダイナミクス、励起子間相互作用の定量評価、極低温励起子状態の熱化ダイナミクスを明らかにした。これらの知見は励起子 BEC の性質理解の基礎になるものと考えられ、また励起子物性における普遍的・基礎的な物理に対して新たな実験的知見を与えるものであると考えられる。