

論文の内容の要旨

半導体中に光誘起された電子正孔 BCS 状態の研究 (Light-induced electron-hole BCS state in semiconductor)

氏名 室谷 悠太

半導体を光励起すると、負に帯電した電子と正に帯電した正孔の集団が作られる。温度と密度が低いときは、クーロン力によって束縛された電子正孔対すなわち励起子が安定となり、励起子気体が形成される。励起子は近似的にボース粒子として振る舞うため、これは極低温でボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) すると考えられている。一方、高密度になるとクーロン力の遮蔽によって励起子が不安定化し、電子と正孔が自由に動き回る電子正孔プラズマとなる (励起子モット転移)。しかし、極低温では擬フェルミ面のクーパー不安定性によって電子正孔クーパー対が形成され、巨視的な秩序を持つ電子正孔 BCS 状態に転移すると考えられている。励起子 BEC と電子正孔 BCS 状態はいずれも電子正孔対の量子凝縮であるため、対密度に対して連続的に変化することが予想されている (BEC-BCS クロスオーバー)。

これらの量子凝縮相は転移温度が低く、観測手法も確立されていないことから、いまだ明確には実証されていない。しかし直接遷移型半導体では、量子凝縮の秩序変数である巨視的な電気分極が光と結合しているため、レーザー光の照射によって外因的に電子正孔 BCS 状態を作り出せるという予想がなされている。これは自発的な秩序状態とは異なるが、形式的にはほぼ等価であり、励起条件によっては励起光の透過後に自発的な秩序状態が残る可能性も提案されている。しかし、光励起すると電子正孔系の温度が高くなり、光とのコヒーレントな相互作用が阻害される場合が多いためか、これまでは実験的な検証を欠いていた。

そこで本研究では、電子正孔対の基底状態である $1s$ 励起子を共鳴的に励起することによ

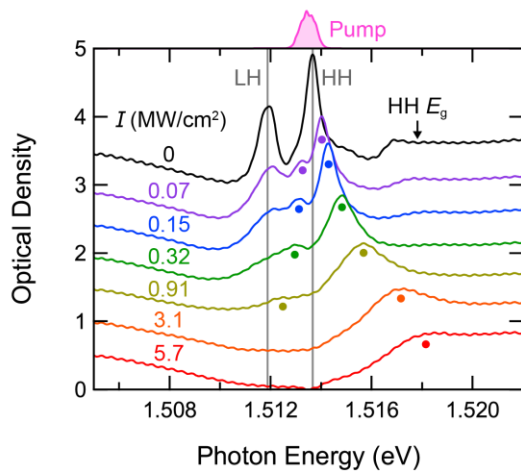
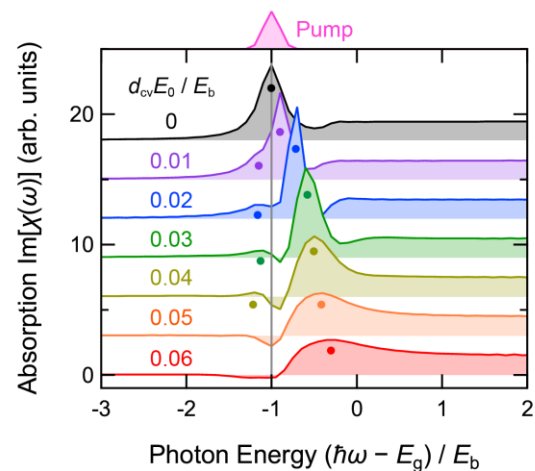
(a) Experiment ($\Delta t = 0$ ps)(b) Theory ($\Delta t = 0$ ps)

図 1. 重い正孔励起子 (HH) を共鳴的に励起したときのバンド端近傍の過渡吸収分光の結果。ポンプ・プローブ遅延時間は 0 ps。(a) 実験結果。励起強度 I の順に上から並べた。丸はピーク位置を示す。(b) 半導体ブロッホ方程式に基づくシミュレーション結果。電場振幅 E_0 の順に上から並べた。

って光から電子正孔系に流入する熱を抑制しつつ、光学的に電子正孔 BCS 状態が生成されるかどうかを検証した。1s 励起子は大きな遷移双極子モーメントを持つため、光との強い相互作用を実現する上でも有利と考えられる。試料には典型的な直接遷移型半導体である砒化ガリウム (GaAs) の三次元結晶を用い、格子温度 5 K でコヒーレントな光学応答を観測した。

まず、超短光パルスをプローブ光とする過渡吸収分光により、光励起されている間の電子正孔系の状態を調べた。図 1(a) にポンプ・プローブ遅延時間 0 ps における実験結果を示す。比較的弱い励起強度においては、共鳴励起された重い正孔励起子 (HH) が光子の衣をまとってドレスト状態を作ることにより、吸収線の分裂が観測される。ただし励起子間に斥力相互作用が働くため、高エネルギー側のピークは低エネルギー側のピークよりも大きくなる。励起強度を上げていくと、やがて低エネルギー側のピークは消失し、高エネルギー側のピークは幅を広げながらバンドギャップエネルギー (HH E_g) に接近してゆく。バンドギャップエネルギーはイオン化した電子正孔対状態が始まるところに相当するから、このような振る舞いを励起子的な基底で理解することはできない。また、単にインコヒーレントな光キャリアがドーパされたためとして説明することもできない。実験結果の遅延時間依存性から、励起光のコヒーレンスが重要な役割を果たしていることが示されるからである。

そこで、微視的な理論の一つである半導体ブロッホ方程式を用いたシミュレーションを行うことで、電子正孔系がどのような状態にあるかを調べた。図 1(b) は過渡吸収スペクトルの計算結果を示しており、(a) の実験結果を定性的に再現しているため、今の問題に対して半導体ブロッホ方程式が良いモデルになっていることが確かめられる。これを踏まえ、シ

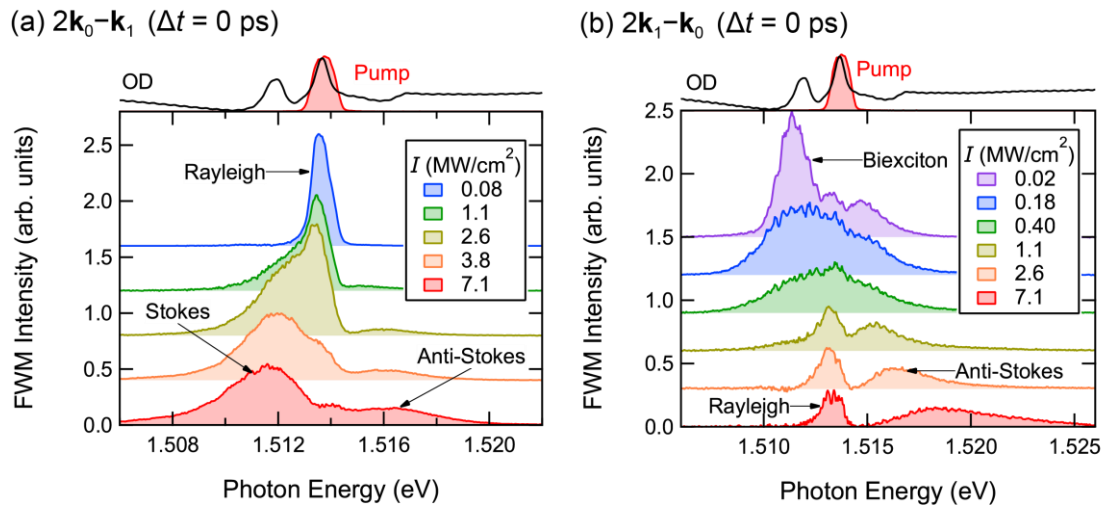


図 2. 重い正孔励起子 (HH) を共鳴的に励起したときの四光波混合スペクトル。ポンプ・プローブ遅延時間は 0 ps。(a) $2\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_1$ 方向の信号。 \mathbf{k}_0 と \mathbf{k}_1 はそれぞれポンプ光とプローブ光の波数ベクトル。(b) $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_0$ 方向の信号。

シミュレーション結果に基づいてコヒーレントな電子正孔対の波動関数を調べたところ、強励起条件では電子正孔対が励起子的なものから電子正孔クーバー対的なものに変化していることが分かった。その他の微視的な量の振る舞いから、この変化が擬フェルミ面の形成や励起子モット転移と相関していることがわかった。したがって、励起子を強く共鳴励起することで、電子正孔 BCS 状態に近い非平衡状態が形成されるということが理論的に示された。シミュレーションで得られた過渡吸収スペクトルと実験結果との比較から、実験的にも高密度励起下では光誘起された電子正孔 BCS 状態が実現していると結論した。ただし、励起光パルスが試料を通過した後まで量子凝縮相が残るような振る舞いは実験的に観測されなかった。

続いて、光誘起された電子正孔 BCS 状態の性質をより詳しく調べるために、四光波混合の測定を行った。四光波混合はコヒーレントな非線形光学現象であるため、インコヒーレントな励起に影響されることなく励起光のコヒーレンスに由来する応答を観測することができる。まず、ドレスト状態の振る舞いが比較的よく分かっている非共鳴励起条件において実験を行い、光駆動された状態の分光として四光波混合法が有効であるということを確認した。具体的には、励起子のドレスト状態が誘導ハイパーラマン散乱によるストークス放射と反ストークス放射の形で観測されることを明らかにした。

次に、励起子共鳴励起条件で四光波混合の測定を行い、光誘起された電子正孔 BCS 状態の応答を調べた。この結果、過渡吸収分光では連続吸収帯に重なってしまい分離しにくかったドレスト状態のピークを明瞭に観測することに成功した。図 2 に実験結果の例を示す。(a)、(b)はそれぞれ $2\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_1$ 、 $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_0$ 方向に放射された信号である。ただし \mathbf{k}_0 、 \mathbf{k}_1 はそれぞれポンプ光とプローブ光の波数ベクトルを表す。まず図 2 (a)では、励起強度の増大とともに

に信号が分裂し、ストークス光 (Stokes) と反ストークス光 (Anti-Stokes) に分かれる様子が見て取れる。これらは BCS 的な高密度領域におけるドレスト状態の分枝と解釈される。また (b) では反ストークス光が励起子エネルギーから離れていく様子が見られ、これも BCS 的なドレスト状態の成長を反映していると考えられる。半導体ブロッホ方程式はこれらの振る舞いを部分的に再現するため、大まかな振る舞いは平均場近似に基づいて理解してよいと思われる。しかし再現できない点も残ることから、高次の相関が影響していることが示唆される。このように高次の相関まで含めた理解を得るにはさらなる実験的・理論的研究が必要である。

以上のように、本研究では $1s$ 励起子を共鳴的に励起することによって光学的に電子正孔 BCS 状態が生成されることを実証し、それがどのような光学的性質を示すのかを明らかにした。これらの知見は近年注目を集めている励起子絶縁体や光駆動によって創発する物性といった分野にも関連しており、電子正孔系の基礎物性の理解に貢献するものと考えられる。