

学位論文要約

超高速レーザー分光法を用いた非平衡電子系における散乱過程の研究

谷 峻太郎

半導体におけるキャリア輸送は現代の電子デバイスおよび光デバイス技術の根幹を成しており、輸送特性を司る運動量緩和過程の理解は欠かすことができない。急速な技術進展に伴い電子・光デバイスの更なる高周波化・高出力化が求められると共に省電力化・小型化への要求から、デバイスの内部構造の微細化が進んでいる。高周波化・高出力化・微細化に伴うデバイス内部での高電場・高密度なキャリアの散乱過程を理解する事は産業応用上の重要性のみならず、多体相関する電子系のダイナミクスを理解する上でも重要である。とりわけ運動量緩和の素過程と同等の時間スケールでは電子の周囲環境は自由運動や散乱、束縛のため目紛しく変化し、平衡状態とはかけ離れた状態であると考えられる。このような時間スケールでは通常は平均化されてしまいみることのできない個々の運動量緩和過程の特徴が発現することが期待されるが、半導体中でのキャリアの運動量緩和時間は典型的にピコ秒 (10^{-12} 秒) 以下であり、伝導度測定により散乱の素過程に迫る事は困難であった。

超高速レーザー分光法を用いる事で、これらの散乱過程を数十フェムト秒 ($10^{-14} - 10^{-12}$ 秒) の時間分解能で測定し、また散乱過程を区別することができる。超高速レーザー分光法を用いた研究はこれまで位相緩和、エネルギー緩和、運動量緩和、スピン緩和に寄与する様々な散乱過程を明らかにしてきた。とりわけ近年のテラヘルツ技術の著しい進展により数〜数十 meV 程度のエネルギー領域の電子のダイナミクスを測定することができる。このエネルギー領域には半導体やグラフェンを含む様々な物質におけるバンド内遷移が存在する。

本論文では非平衡状態におかれた電子正孔系の運動量の緩和の素過程を明らかにすることを目的として、多体クーロン相関により新奇な散乱過程の発現が期待される高密度電子正孔系および高電場により駆動され平衡状態から遠く離れた電子正孔系を対象として研究を行った。超高速な緩和の素過程を測定するためコヒーレントテラヘルツパルスにより瞬間的に駆動した電子正孔系のバンド内運動をテラヘルツ時間領域分光法およびフェムト秒過渡吸収応答を用いて測定する装置を構築した。超高速分光法を用いて得られた実験結果と数値シミュレーションを照らし合わせる事で

論文の前半では、高密度に光励起された半導体に作られた熱い電子系における支配的な散乱過程を報告する。実験ではフェムト秒レーザーパルス照射によりワイドギャップ半導体セレン化亜鉛に高密度の熱い電子正孔対を作り出した。光励起により作られた電子正孔系は不純物ドーピングの必要がないため、クーロン相関する多体系を研究する理想的な系である。光励

起された後、電子正孔対のダイナミクスは時間領域分光法により測定される。電子正孔対のクーロン相関を明らかにするため、試料は温度 9 K まで冷やす事によりフォノンの散乱を抑制した。1 光子励起と 2 光子励起を組み合わせる事で $2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ から $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の広い密度領域において電子正孔対の挙動を測定することに成功した。その結果、電子正孔対密度 $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 付近における運動量緩和レートの著しい増大を観測した。観測された結果の背後にある散乱過程を明らかにすべく、熱い高密度電子正孔系における散乱を記述する新しいモデルを構築した。数値計算の結果支配的な散乱過程は電子-プラズモン散乱であることを明らかにし、増大しているように見える緩和レートは熱揺らぎとクーロン遮蔽の競合により起こっている事を明らかにした。さらに数値計算の結果から電子正孔系の運動量緩和が最大となる密度を決定する関係式を見いだした。

論文の後半ではグラフェンにおける超高速キャリアダイナミクスについて報告する。グラフェンは蜂の巣構造を持つ炭素原子単層膜からなる物質で、固体中において質量ゼロのディラック電子系を研究する恰好の舞台である。グラフェンの重要な特性として室温においても銀に匹敵するような高い伝導率をもつことが挙げられ、基礎と応用の両面から重要な性質である。これまでグラフェンにおいて直流伝導度測定を通して様々な輸送特性が測定されてきたが、光学フォノンによる高速な散乱に制限されて 30 kV/cm 程度の電場で電流が飽和してしまっていた。本研究では高強度のテラヘルツパルスを用いて瞬間的に強い電場を印加する事で、光学フォノン散乱より速くキャリアを加速する事に成功した。200 フェムト秒のパルス幅をもつ高強度テラヘルツパルスを試料に照射し、光学フォノン散乱が起こる前に電場を加速する事で、近赤外領域において大きな吸収飽和を実現した。また半古典ボルツマン方程式を用いた数値計算と実験結果を照らし合わせる事で、高電場下におけるグラフェンの運動量空間中でのダイナミクスを明らかにするとともに、グラフェンにおいて高強度テラヘルツパルスにより高効率な衝突イオン化が起きている事を明らかにした。