

学 位 審 査 報 告 書

(ふ り が な) 氏 名	ひらの だいすけ 平野 大輔
学位 (専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	理 博 第 号
学 位 授 与 の 日 付	平成 年 月 日
学 位 授 与 の 要 件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	理学研究科 物理学・宇宙物理学 専攻
(学位論文題目) ワイドギャップ半導体混晶における高密度励起子の発光ダイナミクス	
論 文 調 査 委 員	(主査) 松田 一成 准教授 松田 祐司 教授 中 暢子 准教授

理 学 研 究 科

京都大学	博士 (理学)	氏名	平野 大輔
論文題目	ワイドギャップ半導体混晶における高密度励起子の発光ダイナミクス		

(論文内容の要旨)

本論文は、ワイドギャップ半導体混晶において、光励起で生成された励起子の局在化が高密度励起状態やそのダイナミクスに及ぼす効果について研究したものである。超高速時間分解発光の実験と詳細な解析を通して、(i) $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶における高密度励起子と励起子分子の局在化ダイナミクス、(ii) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶における電子正孔プラズマのダイナミクスなどを明らかにすることに成功した。

半導体を高密度に光励起すると、二つの励起子が束縛した励起子分子と呼ばれる状態が形成される。高密度光励起した $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶の励起子分子の発光スペクトルの形状は、光励起後約 20 ps の間、逆マクスウェル-ボルツマン分布に従うことがわかった。これはポテンシャルゆらぎの存在する混晶中においても、自由励起子分子が存在することを示している。さらに発光スペクトルの振る舞いは、励起子分子は励起後 20ps 以降にポテンシャルゆらぎによって局在化し、100 ps 以内に裾状態の底まで緩和することを示している。このスペクトル形状を、逆マクスウェル-ボルツマン分布に混晶の不均一幅を取り入れたモデルで解析した。この解析から発光のエッジエネルギーが、励起子分子の局在化を判断するための良い指標となることを示した。さらに、励起子分子の束縛エネルギーが混晶の不均一幅とともに増大することなどを明らかにした。これは、混晶の組成ゆらぎによって生じるポテンシャルゆらぎが励起子を空間的に局在させ、その結果束縛エネルギーが増大することを示している。これら励起子分子のダイナミクスが、ポテンシャルゆらぎによる励起子の空間的な閉じ込め効果によって支配されていることなどを明らかにした。

次に、より強励起条件下での $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶における発光ダイナミクスについて調べた。強励起の条件では、励起子分子発光よりもさらに低エネルギー側に新しい発光バンドが現れる。サブピコ秒領域で生じる発光スペクトルの解析から、これが励起子-励起子散乱によって生じる発光 (P バンド発光) であることを明らかにした。P バンド発光の減衰時間は励起子輻射再結合時間よりも非常に短く、励起子ポラリトンの拡散伝搬によって説明できることを明らかにした。

最後に、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶の低温かつ高密度励起状態における時間分解発光スペクトルについて議論した。発光スペクトルには励起直後に、非常に線幅の広い電子正孔プラズマ発光が観測された。その電子正孔プラズマは、励起後数ピコ秒以内に高速に局在励起子へと移行する。この電子正孔プラズマの発光スペクトル解析を行い、電子正孔プラズマを特徴づけるパラメーターを導出した。解析から得られた $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶におけるバンドギャップの縮小は、GaN に比べ非常に小さいことが分かった。これは、電子正孔プラズマを構成する正孔と電子のうち、正孔のみが裾状態に非常に早く局在化するため、非局在状態に存在する電子プラズマのみがそのダイナミクスに関与していることで説明できた。

本論文では、ワイドギャップ窒化物半導体混晶において、混晶特有の励起子の局在化が高密度光励起状態である励起子分子、励起子-励起子散乱、電子正孔プラズマのダ

イナミクスを支配することを明らかにした。この結果から、混晶組成比を変えることによって、高密度電子正孔間の相互作用とそれによる発光ダイナミクスを制御できることを示した。

(論文審査の結果の要旨)

半導体を光励起すると生成された電子と正孔間にクーロン相互作用が働き、束縛状態である励起子を形成する。さらに強い光励起によって高密度に励起子を生成すると、励起子分子形成や励起子-励起子散乱が起こり、さらに電子正孔プラズマなどの高密度光励起状態が現れる。これまで過去数十年に渡り、Si や GaAs などの単元素もしくは化合物半導体において、高密度光励起状態やそのダイナミクスが数多く研究されてきた。これらの系ではポテンシャルゆらぎが存在せず、自由な励起子から成る高密度励起状態が観測されることが知られている。しかし、三元半導体混晶のような組成不均一に起因するポテンシャルゆらぎのある系において、高密度光励起状態やそのダイナミクスに関する研究はほとんどなされていない。そこで本論文では、ポテンシャルゆらぎが存在するワイドギャップ半導体混晶 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ において、時間分解発光分光によって、励起子分子の局在化ダイナミクス、励起子-励起子散乱過程や高密度電子正孔プラズマのダイナミクスなどを研究している。

まず、サブピコ秒の時間分解能をもつカーゲート法を利用した発光測定によって、 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶の励起子分子の局在化ダイナミクスを調べている。発光スペクトルの詳細な解析から、ポテンシャルゆらぎの存在する混晶中における自由励起子分子の存在やポテンシャルゆらぎが励起子を空間的に局在させ、その閉じ込め効果により束縛エネルギーも増大することを示した。これらの成果は、サブピコ秒の非常に高い時間分解能での測定に加え、組成比の異なるサンプルでの系統的かつ詳細な実験によって初めて明らかとなったことである。さらに、従来その存在が知られていなかった混晶中での自由励起子分子の存在や、ポテンシャルゆらぎによって生じる空間的な閉じ込め効果による、励起子分子の安定化などを明らかにしたことは高く評価できる。

さらに、より強い光励起条件下での $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶における発光測定から、励起子-励起子散乱過程におけるポラリトン効果、高密度電子-正孔プラズマのダイナミクスについて調べている。特に、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶においては、励起直後から数ピコ秒の間に非常に線幅の広い電子正孔プラズマ発光が観測され、その振る舞いから電子正孔プラズマは、数ピコ秒以内に高速に局在励起子へと移行することを示している。さらに、この電子正孔プラズマ発光のスペクトル解析から、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 混晶におけるバンドギャップの縮小が、GaN に比べ小さいことが明らかとなった。これは、プラズマを構成する正孔が高速に掘状態に局在化するため、非局在状態に存在する電子プラズマがそのダイナミクスを決めていることを示している。これらの成果は、ポテンシャルゆらぎの効果が、電子-正孔プラズマのダイナミクスを支配していることを明らかにした点で高く評価できる。

以上のように、本論文はワイドギャップ半導体窒化物混晶における高密度光励起状態とそのダイナミクスを明らかにした先駆的な研究である。論文に報告されている結果は、ポテンシャルゆらぎのある系における励起子局在化が、励起子分子・電子正孔プラズマやそのダイナミクスに重要な役割を果たしている事を初めて明確に示した

ものであり、当該分野で大きな意義のある結果である。これらは、ワイドギャップ窒化物半導体混晶に限らず、ポテンシャルゆらぎの存在する幅広い物質系における光学応答を理解する上で重要な知見であり、今後さらなる研究の発展が期待される。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 22 年 1 月 15 日論文内容とそれに関連した口頭試問を行った。その結果合格と認めた。

要旨公開可能日： 年 月 日以降