



Title	Ultrafast photoluminescence dynamics under intense excitation conditions in wide-bandgap semiconductors
Author(s)	若生, 周治
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/50506
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (若 生 周 治)

論文題名

Ultrafast photoluminescence dynamics under intense excitation conditions
in wide-bandgap semiconductors
(ワイドバンドギャップ半導体における高密度励起条件下での超高速発光ダイナミクス
に関する研究)

論文内容の要旨

ワイドバンドギャップ半導体は、紫外域での光エレクトロニクス材料として大きな注目を集めている。また他の半導体に比べ、励起子束縛エネルギーが大きいと、室温でも励起子が安定して存在する。伝導帯の電子と価電子帯の正孔とがクーロン相互作用で束縛しあった状態である励起子は、結晶中に広がった非局在電子励起状態であることを反映して大きな振動子強度を持つことが分かっており、共鳴する光と強く相互作用して大きな非線形光学応答を示す事が知られている。励起子束縛エネルギーが大きい半導体において、励起子間の相互作用が無視できなくなる高密度励起状態では、単一励起子では観測されなかった現象が発現し、励起子と励起子の結合や散乱現象などの励起子間相互作用が関与する状態では、物質の光機能性が大きく変貌する。高密度励起条件下での励起子発光特性では、非線形現象が生じることが知られている励起子分子発光や励起子非弾性散乱発光(励起子-励起子散乱発光、励起子-電子散乱発光)などが観測される。これら高密度励起状態特有の発光プロセスは、超高速領域に現れる高い非線形性を有しており、例えば、超高速光増幅/光スイッチング/光エネルギー変換/光位相変調などへの応用が期待される。しかし、これまでは定常状態での研究がほとんどであり、これら超高速非線形光学特性については明らかにされていない。また、高密度励起条件下での発光の動的過程を詳細に測定することは、非線形光学現象の背景を理解する上でも重要である。本研究では、約0.6 psという高い時間分解能を有する光カーゲート法を用いることで、ワイドバンドギャップ半導体であるCuCl薄膜、ZnO薄膜、GaN薄膜における高密度励起状態特有の超高速発光ダイナミクスを観測することに成功した。本論文は、励起子ポラリトンの光学応答に関する包括的な解明と超高速ダイナミクスの制御を目的とした研究の成果をまとめたものである。

第1章では、本研究の背景、目的、及び、本論文の構成について述べた。

第2章では、本研究で重要となるサブピコ秒と高い時間分解能を有する光カーゲート法による超高速発光ダイナミクスの測定方法について詳細に述べた。

第3章では、励起子束縛エネルギーが約190 meVと非常に大きいCuCl薄膜における励起子分子発光ダイナミクスの励起光強度依存性、膜厚依存性について述べた。CuClは、励起子分子束縛エネルギーが約34 meVであり、励起子分子が安定に存在するため、高密度励起条件下での発光特性において励起子分子発光が主発光として観測される。励起子分子発光の時間分解測定から励起子ダイナミクスの膜厚依存性について明らかにした。

第4章では、ZnO薄膜における励起子-励起子散乱発光ダイナミクスの励起光強度依存性、励起光エネルギー依存性、温度依存性、膜厚依存性について述べた。測定結果から、励起子-励起子散乱発光が生じるまでの時間(onset time)はエネルギー緩和時間に対応し、立ち上がり時間は励起子同士の散乱レートにより決まる。また減衰時間は、散乱された先のポラリトンの寿命を反映していることが分かった。さらに減衰時間の膜厚依存性について、ポラリトンモードから励起子/フォトンモードへの変遷の観点から論じた。

第5章では、GaN薄膜における励起子非弾性散乱発光(励起子-励起子散乱発光および励起子-電子散乱発光)ダイナミクスについて述べた。GaNは、励起子束縛エネルギーが約28 meVであり、CuClやZnOよりも小さいが、室温(熱エネルギー:約26 meV)でも励起子は存在することが出来る。このように比較的励起子束縛エネルギーが小さい物質においては、高温(約100 K以上)になると励起子-電子散乱発光が観測される。励起子非弾性散乱発光ダイナミクスの温度依存性から、励起子-励起子散乱発光と励起子-電子散乱発光の両者ともに発光減衰時間は、散乱された先のポラリトンのフォトン性を反映することを明らかにした。

最後に、第6章では、本研究で得られた成果を総括して結論とした。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 （ 若 生 周 治 ）			
論文審査担当者		(職)	氏 名
	主 査	(教授)	兼松 泰男
	副 査	(教授)	高井 義造
	副 査	(教授)	渡部 平司

論文審査の結果の要旨

本論文は、紫外域において有望な光エレクトロニクス材料となるワイドバンドギャップ半導体について、高密度励起下の超高速発光ダイナミクスの観点から研究を行い、その結果をまとめたものである。高密度励起状態固有の、励起子分子状態、励起子-励起子散乱過程、励起子-電子散乱過程などを反映した発光ダイナミクスの詳細について研究し、全体像を捉えることを試みている。とりわけ、波長以下のスケールに及ぶ薄膜における特異な振る舞いを見出し、バルク状態に対応した励起子ポラリトンモードが、薄膜へと膜厚を減じることで、励起子／フォトンモードへ変遷することと関連づけて考察している。

高密度励起における超高速発光ダイナミクスは、素課程として興味深いだけでなく、超高速非線形過程に立脚した光増幅、光スイッチなどの光による光制御システムへの展開が期待されるが、所属研究室において開発された超高速発光ダイナミクス計測の手法である超高速光カーゲート発光分光法と、共同研究先において蓄積された、良質な薄膜作成技術を背景にして、はじめて、研究対象へのアプローチが可能となった。

ワイドバンドギャップ半導体は、励起子束縛エネルギーが大きく、室温においても励起子が存在するが、本論文においては、CuCl薄膜、ZnO薄膜、GaN薄膜において、超高速光ゲート発光分光システムを用いて、高密度励起下の超高速発光ダイナミクスを明らかにしている。

CuCl薄膜

超短パルス励起において、励起子分子発光が主となる強度領域を見出し、以下の結果を得ている。

- (1) 励起子分子-励起子系の有効温度を反映して、発光ピークエネルギーシフトが観測される。
- (2) 120 μ J/cm² パルス励起において、励起子分子-励起子系の有効温度が、ほぼバルク結晶における励起子分子の束縛エネルギー34meV 相当となる。
- (3) 発光の立ち上がりは、励起子分子生成過程を反映し、励起光強度に依存するが、発光減衰は励起光強度によらない。
- (4) 発光減衰時間は、膜厚に依存し、200nm 以下の薄膜では、壁面への励起子分子の衝突が、減衰を決めるという wall-collision model によって、膜厚依存性が説明できる。

ZnO薄膜

超短パルス励起において、励起子-励起子散乱発光（P発光）が主となる強度領域を見出し、以下の結果を得ている。

- (1) P 発光のピークエネルギーは、励起子系の有効温度を反映しシフトすると考えられる。
- (2) P 発光の立ち上がり時間は、励起子分子発光同様、励起子密度の逆 2 乗に依存する。
- (3) P 発光の減衰時間は、励起光強度に依存しない。

- (4) P 発光の減衰時間は、膜厚と発光エネルギーに依存する。
- (5) P 発光の減衰時間は、バルク様の薄膜では、ポラリトンの群速度分散の逆数に比例し、ポラリトン描像が破綻する波長以下の薄膜においては、フォトン性を表わす係数の逆数に比例する。

GaN薄膜

超短パルス励起において、散乱発光が主となる強度領域を見出し、以下の結果を得ている。

- (1) 100K 以下の低温領域では、励起子-励起子散乱に起因する P 発光が主になり、高温領域では、励起子-電子散乱に起因する H 発光が支配的になる。
- (2) 発光減衰時間は発光エネルギーと強い相関を持つ。
- (3) P 発光、H 発光を通して、ポラリトン状態が散乱終状態であると考えられる。
- (4) 発光減衰時間は、散乱終状態のフォトン性を反映していると考えられ、H 状態の方が、フォトン性が強い。
- (5) 発光減衰時間の発光エネルギー依存性は、ポラリトン群速度分散に比例するとして理解できる。

これらの結果を総合して、ワイドバンドギャップ半導体における、高密度励起子の振る舞いは、非線形高速光応答と関係づけられ、膜厚制御によりコントロールが可能なことを示していることを見出した。特に、励起子散乱により、低エネルギー側のポラリトン状態へのアクセスが可能になる。この終状態の性質は、ポラリトン描像が破綻する波長以下の薄膜では、フォトン/励起子描像へと移行すると考えることで理解が可能であるとし、終状態の性質の膜厚制御による光応答制御というシンプルな方法による非線形光学材料への応用の可能性を提案している。

以上のように、本論文は応用物理学、光物性物理学、光エレクトロニクス分野への貢献、特に超高速非線形光学材料・デバイスの今後の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。