

令和元年6月5日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05408

研究課題名(和文) 二光子生成コヒーレントフォノン プラズマ結合モードによる半導体キャリア特性の解明

研究課題名(英文) Investigations of carrier properties in semiconductors via two-photon excited coherent phonon-plasma coupling modes.

研究代表者

櫻田 英之 (Kunugita, Hideyuki)

上智大学・理工学部・准教授

研究者番号：50296886

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究はコヒーレントLOフォノンと半導体中の光キャリアとの相互作用を利用し、新たな電子物性測定技術の開拓を行うことを目的としている。まず、CdSe量子ドットを用い、コヒーレントフォノン信号の光生成キャリア数依存性を精密に調べた。キャリア数の増加とともにコヒーレントフォノンの生成が妨げられるのが観測された。

また、本研究では、GaAsやInPに対して二光子励起キャリアによるフォノン・プラズモン結合モードの生成をめざしている。そのためには、近赤外領域の極短パルス光源が必要である。そこで、非線形光学結晶であるBIBOを用い、パラメトリック増幅器の作製に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

今回のCdSe量子ドットにおけるコヒーレントフォノン信号のキャリア数依存性の観測では、キャリア数の増加とともにコヒーレントフォノンの生成が妨げられるのが観測された。これはプレポンパルスで作られた電子と正孔がドット内で個別に閉じ込められることによってそれぞれがフェルミオンの性質を示し、その後のラマン過程を妨げていることによる。このことはCdSe量子ドットにおいて、電子系のコヒーレント操作によってフォノンの生成を制御できることを示唆している。

研究成果の概要(英文)：In this study, we focused on developing new measurement techniques of the electron properties of semiconductors via investigations of the interactions between the coherent LO phonons and photo-generated carriers.

First, we investigated the carrier density dependence of the coherent phonon signal in CdSe dots. We observed that the generation of coherent phonons was hindered as the carriers increased.

To generate phonon-plasmon coupled modes by two-photon excitation of carriers in semiconductors such as GaAs and InP, an ultrashort pulse light source in the near infrared region is required. We successfully constructed a parametric amplifier using a nonlinear optical crystal BIBO.

研究分野：光物性

キーワード：コヒーレントフォノン

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

半導体中にキャリア（電子、正孔）があると、その集団運動が作る縦分極と LO フォノンの相互作用による「フォノン プラズマ結合モード」が作られる。化学的に高密度にドーブされた半導体における結合モードは、古くからラマン散乱によって数多くの研究がなされてきた。半導体を用いたコヒーレントフォノンの研究でも反射型のポンププローブ分光でこのモードの観測が行われており、例えば、ドーブキャリア密度の増大による減衰レートの変化が報告されてきた。さらにコヒーレントフォノン分光の手法では時間軸上での観測が行われているために光パルスによるキャリアの過渡的な注入が可能であり、光励起キャリア生成後の結合モードの時間発展が観測されている。

一方、申請者はこれまでの研究で、非共鳴パルス光を単結晶に透過させることによってコヒーレントフォノンを生成すると、励起パルス光強度の増加によって、コヒーレントフォノンの減衰レートとともに周波数が変化することを見出してきた。さらには、両者は比例関係にあることも観測された(図1)。さらに、ここで見られた現象は、二光子励起による低密度キャリア極限での結合モードの生成に対応することを明らかにしてきた。

2. 研究の目的

上で述べたフォノン プラズマ結合モードに関するこれまでの我々の成果をふまえ、本研究ではコヒーレントフォノンを観測するだけではなく、その挙動（信号強度、周波数、減衰レート）をプローブとして光励起キャリアの静的・動的ふるまいを探る手法を確立する。具体的には、

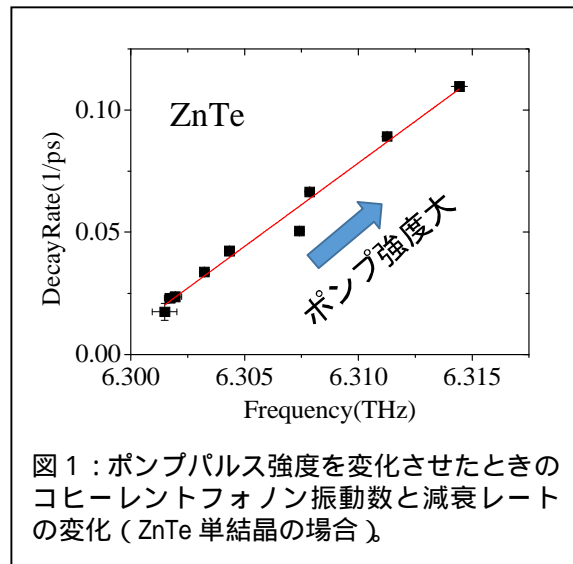


図1：ポンプパルス強度を変化させたときのコヒーレントフォノン振動数と減衰レートの変化（ZnTe 単結晶の場合）。

(1) GaAs のような、発光・受光デバイス材料として一般に用いられている半導体単結晶試料を用い、透過型ポンププローブ測定を行う。パルス光強度を変えることで、コヒーレントフォノンと二光子励起キャリアとの相互作用によって生じるフォノン プラズマ結合モードを観測する。その周波数シフトと減衰レートのキャリア密度依存性を明らかにすることで、光励起キャリアの易動度の測定手法の確立を目指す。

(2) 量子閉じ込め系では光励起キャリアとフォノンとの相互作用がバルク単結晶内とは異なると考えられる。これを利用することにより、光励起キャリア状態を変えることで、物質系のフォノン状態の制御を行うことが期待できる。特に量子ドットでは電子系は二準位状態に近いことから、他の二準位系で行われているような光励起電子状態のコヒーレント制御によって同時にフォノンも制御可能であると考えられる。そこで、本研究では、その可能性を探るために、量子ドットでのコヒーレントフォノン測定を行い、キャリア、フォノンのいずれもが閉じ込められた状態での両者の相互作用を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 二光子励起キャリアによるフォノン プラズマ結合モードを作るには、透過型のポンププローブ分光を行う必要がある。なおかつ、コヒーレントフォノン信号をもとにしたキャリア易動度の解析はこれまで我々以外の例がない。そのため、このような手法が妥当であることを示すには、ホール易動度が分かる試料でこの測定を行い、コヒーレントフォノン信号の解析で得られた値と比較を行う必要がある。

これまでの我々の研究では可視パルス光源を用いており、透過型測定を行うためにはドーブが困難なワイドギャップ半導体を用いる必要があった。そのため、易動度は過去の文献によらざるを得なかったが、これらは結晶成長の手法等によって大きくばらついているという問題があった。

一方、バンドギャップが近赤外域にある GaAs や InP は、ドーブのバラエティが豊富で、かつ試料ごとの易動度の情報も得られる。そこで、本研究ではこれまでの我々の手法とは方針を変え、物質のバンドギャップにあわせて光源を用意する。つまり、赤外パルス光源を本研究費で作製し、赤外用透過型ポンププローブ光学測定系を構築して、これらの物質での透過型コヒーレントフォノン測定を可能とする。

(2) CdSe 量子ドットは蛍光材料として、様々な粒子径のものが市販されている。しかも、各

試料での粒子径のばらつきも少ない。そのため、光源の波長に合わせて粒子径を選べば、電子系を共鳴励起することができる。さらに、いくつかのグループによって CdSe 量子ドットでのコヒーレントフォノンが観測されており、粒子径がフォノンのふるまいに与える影響も分かっている。

そこで、この物質に対して、バンド間遷移よりも短波長の励起子（電子・正孔対）生成パルスと励起子遷移に共鳴する波長のコヒーレントフォノン励起パルスを別々に用意し、コヒーレントフォノン信号のドット内励起子数依存性を観測する。

4. 研究成果

この課題の研究期間中に建物の改築があり、二度の実験室の移転が行われた。そのため、研究の進み具合がスローダウンした時期もあった。しかし、最終的には全体を通じて、主に以下の二つの成果が得られている。

(1) 赤外極短パルス光源の作製

本研究では、前提として、GaAs や InP の格子振動周期より短いパルスを出力する光源が必要である。

研究当初の計画では、入手が容易な BBO 結晶を使って光源を作製することを考えていた。さらに、我々にとってすでに可視光源での経験の蓄積がある非同軸パラメトリック増幅器の作製を検討していた。しかし、その間に、いくつかのグループによって、より新しい物質である BIBO 結晶による同軸パラメトリック増幅器が報告されるようになった。BBO と異なり、BIBO では近赤外で幅広い波長域にわたって同軸での位相整合条件角度が等しい。そのため、スペクトル幅の広いパルスが出力され、パルス圧縮を行うことによって、目的とする時間幅のパルスが得られる。また、同軸型の増幅器の場合、ポンプ・シグナル・アイドラー光の相対角度を気にする必要が無い。そのため、目で直接見ることができない波長であることを考慮すると、調整が容易であるというメリットはきわめて重大である。さらに、このやり方の場合、非同軸増幅器と違って、角度色分散が無いという長所がある。

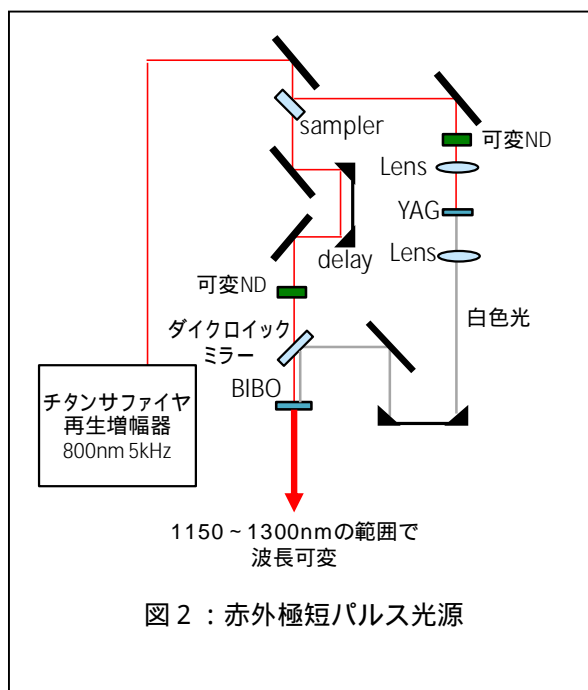


図 2 : 赤外極短パルス光源

そこで、本研究でもこの結晶を入手して光源の作製を行った（図 2）。現時点ではまだパルス圧縮の最適化の途中だが、すでに時間幅 60 フェムト秒の赤外パルスが得られている。これは上述の半導体材料でコヒーレントフォノンを励起するのに十分な値である。

(2) 量子閉じ込め系における励起子 フォノン相互作用

上で述べたように、市販の CdSe 量子ドットを用いてコヒーレントフォノン信号の光生成キャリア数依存性を精密に調べた。なお、市販のものはトルエンを媒質とするコロイド溶液であり、当初は低温下での測定を行うことを考えていたため、電気泳動法による薄膜化を行っていた。しかし、試料ごとの膜の均一性のばらつきが大きく、かつ試料が劣化するため、良質の試料が得られてもそれを繰り返し用いることができなかった。そのため、他のグループによる測定と同様に、コロイド溶液のままコヒーレントフォノンの測定を行った。

バンド間遷移よりも短波長の励起子生成パルス（プレポンパルス）によって光励起キャリアを生成し、時間差をつけてコヒーレントフォノンを生成、さらにその減衰過程を観測した。プレポンパルスの強度を変えることで、1 ドット当たりの励起子数を増やし、それによってコヒーレントフォノンのふるまいがどのように変化するかを調べた。その結果、励起子数の

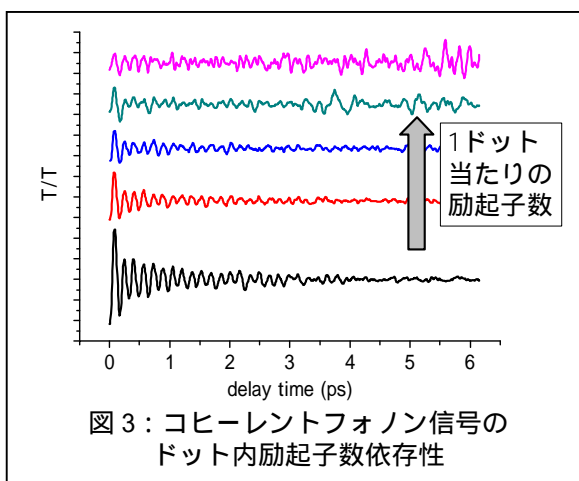


図 3 : コヒーレントフォノン信号のドット内励起子数依存性

増加とともにコヒーレントフォノンの生成が妨げられるのが観測された(図3)。これはプレポンパルスで作られた電子と正孔がドット内で個別に閉じ込められることによってそれぞれがフェルミオンの性質を示し、その後のラマン過程を妨げていることによると考えられる。このことはCdSe量子ドットにおいて、電子系のコヒーレント操作によってフォノンの生成を制御できることを示唆している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 件)

〔学会発表〕(計 件)

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。