

論文内容の要旨

博士論文題目 シリコンナノ構造における励起子および電子正孔液滴の研究

氏 名 二本柳 智

(論文内容の要旨)

シリコン(Si)を高密度に光励起すると、電子と正孔が高密度に空間的に凝縮した電子正孔液滴が形成される。Si ナノ構造中に高密度の電子正孔を生成した場合、ナノ構造特有の界面の存在とナノ空間での閉じ込めの効果により、電子正孔液滴の形成・発光過程がバルク結晶の場合とは異なることが期待される。本論文では、励起子ボーア半径より非常に大きなサブミクロン程度のサイズのSi ナノ構造における高密度電子正孔液滴および励起子の発光特性について研究を行った。

本論文は、7章からなっており、各章の内容は以下の通りである。

第1章では、研究背景と本研究の目的について述べた。

第2章では、Si における励起子の発光過程についてまとめた。

第3章では、Si における高密度電子正孔系、特に電子正孔液滴について、これまでの理論的解釈と実験結果についてまとめた。

第4章では、試料作製と実験に用いた光学装置についてまとめた。

第5章では、Si ナノ薄膜における高密度電子正孔系、特に電子正孔液滴について議論した。対物レンズを用いた顕微光学系を用いて、膜厚の異なるナノ薄膜の高密度励起条件下での発光スペクトルの測定を行った。ナノ薄膜では、バルク結晶に比べ低い励起強度においても電子正孔液滴が観測できることを見出した。さらに、励起子発光に対する電子正孔液滴発光の強度比は、ナノ薄膜の膜厚によって異なることを発見した。これらは、ナノ薄膜では界面を生成核として電子正孔液滴が形成されることを示している。また、強励起下で時間分解発光測定を行った結果、Si ナノ薄膜は、バルク Si 結晶では観測されなかった電子正孔液体からの発光を示すことを明らかにし、ナノ薄膜における電子正孔液体の形成機構を解明した。

第6章では、Si ナノワイヤーにおけるバルク結晶と異なる励起子発光強度の温度依存性を議論した。熱酸化膜や不純物濃度などの条件が異なる Si 試料の発光を測定した結果、熱酸化膜との界面に局在した励起子の熱的再励起が励起子発光に関与していることを示した。時間分解発光測定により、この熱的再励起に対応する遅い発光寿命をもつ成分を確認した。また、Si ナノワイヤーでは、励起子の輻射再結合確率が增大していることも示した。界面に局在した励起子と自由励起子の輻射再結合確率の増大が、Si ナノワイヤーのバルク結晶とは異なる発光強度の温度依存性の要因であることを明らかにした。

第7章では、本研究で得られた新たな知見についてまとめた。

以上、本研究では、Si ナノ構造における電子正孔液滴および励起子の基礎物性を明らかにした。

(論文審査結果の要旨)

間接遷移型半導体であるシリコン (Si) では、低温で高密度光励起することにより電子正孔液滴状態が観測できることが知られている。しかし、Si ナノ構造における電子正孔液滴の研究は非常に少なく、ナノ構造における励起子や高密度電子正孔液滴の挙動は理解されていない。本論文では、Si ナノ薄膜における電子正孔液滴の研究を行い、バルク結晶とは異なる液滴の形成過程を明らかにした。また、Si ナノ構造での高効率励起子発光機構を解明した。励起子ボーア半径よりも大きなサイズの Si ナノ構造における励起子および電子正孔液滴に関して新しい知見を与えた。これらの成果を以下に示す。

1. 新しく構築した低温顕微分光システムを用いて、高密度励起下での Si ナノ薄膜からの電子正孔液滴の発光スペクトルを観測した。その結果、電子正孔液滴の発光強度の励起子発光強度に対する強度比が、膜厚が薄くなるにつれ大きくなることを発見した。ナノ薄膜では、Si 結晶と SiO₂ 表面層の界面を生成核として電子正孔液滴が形成されるというモデルを提案した。このモデルにより、得られた実験結果をうまく説明できることを示した。ナノ薄膜の特徴である界面の存在により、ナノ薄膜での電子正孔液滴が効率良く形成されることを明らかにした。また、フェムト秒パルスレーザーを用いて高密度光励起を行い、時間分解発光スペクトルを測定した。そのスペクトルの解析から、バルク Si 結晶では観測されたことのない高密度な電子正孔液体が実現されていることを明らかにした。この高密度電子正孔液体の形成過程も、界面を生成核とする電子正孔液滴の形成モデルを用いて説明できることを示した。光学的手法を用いて、Si ナノ構造における電子正孔液滴の基礎物性を明らかにした。
2. 励起子ボーア半径よりも大きなサイズの Si ナノ構造においては、バルク結晶と同じエネルギー位置に励起子発光が観測されるにもかかわらず、その発光強度はバルク結晶に比べ大きい。自由励起子の発光の温度依存性を測定し、ナノワイヤーは不純物濃度が低いにもかかわらず、不純物濃度の高い Si 基板に似た温度依存性を示すことを見出した。また、発光減衰測定から、温度が上昇するにつれて 2 成分の発光寿命を持つこと明らかにした。これらの結果から、ナノワイヤーでは界面に局在した励起子の熱的再励起および自由励起子の輻射再結合確率の増大が起こることを明らかにし、高効率励起子発光の機構を解明した。

以上のように、本論文は、Si ナノ構造における励起子および電子正孔液滴に関する分光学的研究を行い、Si ナノ構造物質特有の新しい物性を見出した。これらは、学術的に価値の高いものである。よって、審査員一同は、本論文が博士(理学)の学位論文として価値のあるものと認めた。