

平成 21 年 5 月 25 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19740174
 研究課題名 (和文) ディスク状半導体量子ドットにおける励起子輻射再結合寿命の研究
 研究課題名 (英文) Study of radiative recombination lifetimes of excitons
 in disk-shaped semiconductor quantum dots
 研究代表者
 富本 慎一 (TOMIMOTO SHINICHI)
 筑波大学・大学院数理物質科学研究科・助教
 研究者番号：90396599

研究成果の概要：ディスク状 InAs/InP 量子ドットにおける励起子の輻射再結合寿命をアップコンバージョン法による時間分解 PL 測定によって調べた。ディスクの高さが低くなるにしたがって、電子波動関数の障壁層への浸み出しによる励起子寿命の僅かな上昇が見られた。また、励起子のディスク面内方向の閉じ込めによるエネルギースペクトルの離散化により、輻射再結合寿命の温度依存性がかなり抑えられることが分かった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,600,000	0	2,600,000
2008年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	210,000	3,510,000

研究分野：半導体物性

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：光物性

1. 研究開始当初の背景

(1) 半導体量子構造に閉じ込められた励起子の輻射再結合寿命は、閉じ込めの大きさや形状、次元に強く依存することが知られている。閉じ込めの次元の相違は、特に輻射再結合寿命の温度依存性に強く反映され、2次元 (量子井戸) では輻射再結合寿命は温度 T に比例するが、1次元 (量子細線) では $T^{1/2}$ に比例することが報告されている。また、0次元 (量子ドット) では、状態のエネルギースペクトルが離散的となりため、低温で温度依存性は現れないとされている。

本研究では、ディスク状量子ドットに閉じ

込められた励起子の輻射再結合寿命を実験的に調べる。これは、直径 (数十ナノメートル以上) に対して、高さが著しく小さい (数ナノメートル以下) 円盤状の半導体結晶を指す。この形状のため、そこに閉じ込められた励起子は、量子ドットの場合と比較してディスク面内方向の重心運動に対する制限が緩くなる。そのため、0次元 (量子ドット) と2次元 (量子井戸) の中間に位置する系とすることが出来る。この2つの次元の中間領域では、試料作製の難しさから実験的な研究はほとんど進んでいない。そのため、本研究では、最新の結晶成長技術により特に高さが精

密に制御されたディスク状半導体量子ドットの試料を用いて系統的な実験を行う。

(2) 本研究で用いる試料は、InP 基板上に成長させたディスク状の InAs 量子ドットである。これは、ダブルキャップ法を用いて通常の自己形成量子ドットをディスク形状に加工したもので、高さが原子スケールで精密に制御されている。ところが、近赤外領域に発光波長があるため、通常の時間分解 PL 測定の方法（ストリークカメラなど）を用いることが出来ず、励起子の再結合寿命も明確に決定出来ていない。そこで本研究では、この波長領域での時間分解 PL 測定をアップコンバージョン法を用いて行う。

2. 研究の目的

本研究は、ディスク状半導体量子ドットに閉じ込められた励起子の輻射再結合寿命を、時間分解 PL 測定を中心とする実験により調べ、それを決定する物理的メカニズムを明らかにすることを目的とする。特に次の2つの事柄を実験的に明らかにする。

(1) 量子井戸中の励起子のように2次元平面内の重心運動が許される場合と、それが制限される場合（ディスク状量子ドットの場合）とで、輻射再結合寿命はどのように異なる振る舞いをするか。特に、2つの場合で寿命の温度依存性はどのように異なるか。その相違をもたらす物理的メカニズムは何か。

(2) 励起子ボーア半径よりもはるかに小さいディスクの高さを変化させた時、輻射再結合寿命は、それに対してどのような依存性を示すか。この依存性は、ディスクの高さによる電子・正孔間の相対運動の変化によってどのように説明されるか。

3. 研究の方法

(1) ディスク状 InAs/InP 量子ドット試料の定常 PL スペクトルの測定を行う。本研究で調べるディスク状量子ドット試料は、通常の自己形成量子ドットをダブルキャップ法でディスク形状に加工することで、高さを精密に制御したものである。試料は、量子ドットを約 $2 \times 10^{10} / \text{cm}^2$ の面積密度で含んでいる。その断面構造を InAs の部分を取り出して図1に示す。ドットは 2 ML（モノレイヤー）のぬれ層（Wetting layer）の上に存在するが、ドットの高さ（QD height）をぬれ層の厚みも含めて図のように定義すると、それは 3–10 ML となる。1つの試料には異なる高さのドットが、ある分布をもって含まれているが、個々のドットの高さは ML 数で決まる離散的な値しか取りえない。したがって、1つの試

料に含まれるドットの高さの分布も自ずから離散的なものとなる。試料の PL スペクトルは、この離散的な高さ分布を反映して分裂した複数のピークを示すことが分かっている。これらのピークが、試料温度や励起レーザー強度、励起波長によってどのように変化するかを、定常 PL スペクトルの測定によって把握する。

(2) 時間分解 PL 測定を行い、励起子の輻射再結合寿命を求める。(1)で述べたように、試料の PL スペクトルはドットの離散的な高さ分布を反映して分裂した複数のピークを示す。それぞれのピークは ML 数で指定出来る単一の高さのドットからの励起子発光である。したがって、1つのピークの PL を分光して時間分解測定を行えば、そのピークに対応する単一の高さのドットに閉じ込められた励起子の再結合寿命を求めることが出来る。ドットの高さと PL ピーク波長の関係は、(1)のスペクトル測定で求められているので、それに従って各ピークで時間分解測定を行うことにより、ドットの高さの関数として励起子再結合寿命を求める。また、寿命の温度依存性、励起強度依存性を測定する。本研究では、時間分解 PL 測定をアップコンバージョン法によって行う。この方法によって、近赤外領域の PL を高い時間分解能（約 100 fs）で感度良く測定することが出来る。

(3) ディスク状量子ドットの高さと同程度の井戸幅をもつ InAs/InP 量子井戸の試料において、励起子の輻射再結合寿命を同じ方法で調べる。励起子の重心運動が2次元平面内で許された場合の輻射再結合寿命を調べ、その結果をドットの場合と比較して、閉じ込めの次元の相違が輻射再結合寿命にどのような影響をもたらすかを調べる。特に、温度依存性の比較を行う。



図1 ディスク状量子ドットの断面模式図。

4. 研究成果

(1) ディスク状 InAs/InP 量子ドットにおける励起子の輻射再結合を調べるため、定常 PL スペクトルの測定とアップコンバージョン法による時間分解 PL 測定を行った。PL スペクトルは、井戸幅 2 ML の量子井戸試料が 1 つのピークのみを示すのに対して (図 2 (a))、ディスク状量子ドット試料は分裂した複数のピーク (f3–f9) を示す (同図 (b))。これは 1 分子層の厚みを単位とする離散的な量子ドットの高さ分布のためであり、f3–f9 のピークはそれぞれ 3–9 ML の高さに対応している。これらのピークは温度の上昇に伴ってそれぞれ低エネルギー側にシフトしながら、100 K 程度で消光することが分かった。低エネルギーシフトはバンドギャップの減少により、消光は励起子の非輻射再結合により説明される。また、励起強度、励起波長による変化も詳細に調べた。図 3 は時間分解 PL 測定の結果である。この図の曲線のように 1 成分の指数関数的な減衰を仮定してフィッティングを行い、PL 寿命から閉じ込め励起子の寿命を求めた。各 PL ピークの波長を分光して時間分解測定を行うことで、ディスクの高さと励起子寿命の関係を調べたが、高さが 6 ML から 3 ML に低くなるにしたがって、寿命は 1.3 ns から 1.6 ns へ僅かに上昇した。これは、電子波動関数の InP 障壁層への浸み出しによるものと推測される。図 4 (b)(c) は寿命を温度に対してプロットしたものである。寿命の温度依存性は小さく、高さ 5 ML と 6 ML のディスクについては、4.2–70 K の温度範囲で 1.2–1.7 ns の範囲での変化であった。定常 PL 強度から非輻射再結合の寄与を求め、それを考慮して解析を行った結果、励起子の輻射再結合寿命は 40 K 以下ではほとんど温度変化していないことがわかった (図 4 (d))。これは、励起子の重心運動がディスク内に制限されていることによると考えられる。強励起下では多励起子状態によると考えられる、寿命が 0.2 ns 以内の短寿命成分を別に検出した (図 3 (b))。

(2) ディスク状 InAs/InP 量子ドットにおいて得られた閉じ込め励起子の輻射再結合寿命と比較するため、ディスク状量子ドットの高さと同程度の井戸幅をもつ InAs/InP 量子井戸において、同じ方法 (アップコンバージョン法による時間分解 PL 測定) で励起子寿命を調べた (図 3 (a)、図 4 (a))。量子井戸 (2 次元平面内への閉じ込め) の場合、ディスク状量子ドット (2 次元と 0 次元の中間的な閉じ込め) の場合とは異なり、20–60 K の温

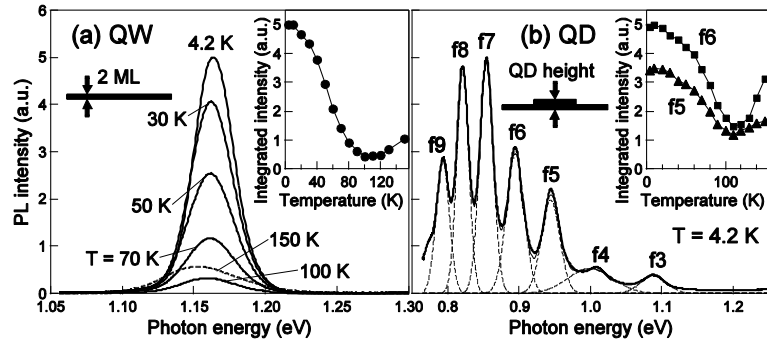


図 2 (a) InAs/InP 量子井戸及び (b) ディスク状量子ドットの PL スペクトル。積分強度の温度依存性を各パネルの右上に示す。

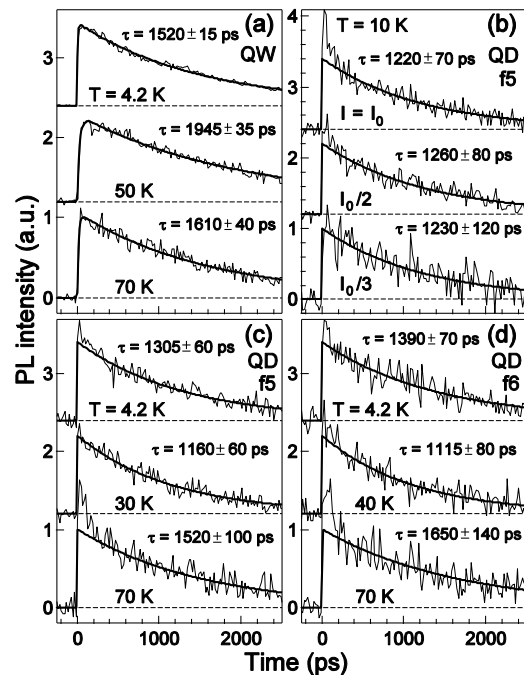


図 3 時間分解 PL の測定結果。(a) InAs/InP 量子井戸、(c)(d) ディスク状量子ドットの f5、f6 ピークにおける温度依存性。(b) は f5 ピークにおける励起密度依存性。

度範囲で、輻射再結合寿命は 2 倍程度の増大を示すことが分かった (図 4 (d))。これは、励起子の重心運動に許される次元の相違による状態密度分布の違いによるもので、輻射再結合の際の波数の面内方向成分の保存則によって説明される。ディスク状量子ドットでは、量子ドットに固有の離散的なエネルギースペクトルにより温度依存性がかなり抑えられていることが分かった。

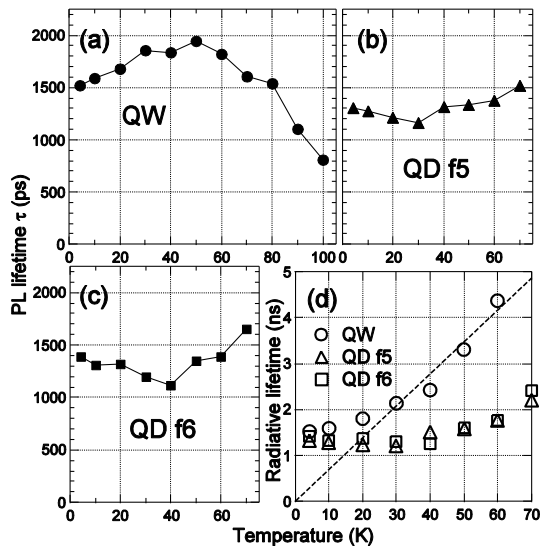


図4 (a) InAs/InP 量子井戸、(c)(d) ディスク状量子ドットの f5、f6 ピークにおける PL 寿命の温度依存性。(d) は図 2 の結果を利用して求めた輻射再結合寿命。

(3) ディスク状 InAs/InP 量子ドットと類似の系である InAs/InP ナノワイヤ (数 ML 厚) においてもアップコンバージョン法による時間分解 PL 測定を行い、励起子の再結合寿命を求めて比較した。この場合は、タイプ II 型のヘテロ接合に起因する長い励起子寿命と、200 ps 程度の短時間の PL のブルーシフトを観測した。後者は、電子と正孔の空間的分離に起因する過渡的なバンドベンディングによるものであることが分かった。また、ディスク状量子ドットとナノワイヤについて、PL の円偏光度の時間分解測定によって、光励起された電子のスピンの時間発展の観測も試みた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① K. Goto, M. Ikezawa, S. Tomimoto, B. Pal, Y. Masumoto, P. Mohan, J. Motohisa, T. Fukui, "One- and Two-dimensional Spectral Diffusions in InP/InAs/InP Core-Multishell Nanowires", Japanese Journal of Applied Physics, 48, 04C203-1 から -3, 2009, 査読有
- ② K. Goto, S. Tomimoto, B. Pal, Y. Masumoto, P. Mohan, J. Motohisa, T. Fukui, "Transient band-bending in InP/InAs/InP core-multishell

nanowires", physica status solidi (c), 6, 205-208, 2009, 査読有

- ③ S. Tomimoto, A. Kurokawa, Y. Sakuma, T. Usuki, Y. Masumoto, "Radiative recombination of excitons in disk-shaped InAs/InP quantum dots", Physical Review B, 76, 205317-21, 2007, 査読有

[学会発表] (計 12 件)

- ① 川名啓介, 冨本慎一, 野澤伸介, 舛本泰章, 「チャージチューナブル InP 量子ドットにおける電子スピンのピコ秒ダイナミクス」、第 56 回応用物理学関係連合講演会、2009 年 3 月 31 日、筑波大学
- ② 冨本慎一, 野澤伸介, 寺井慶和, 黒田真司, 瀧田宏樹, 舛本泰章, 「CdMnTe/ZnTe 量子構造の光励起状態におけるスピンダイナミクス」、第 56 回応用物理学関係連合講演会、2009 年 3 月 30 日、筑波大学
- ③ 野澤伸介, 冨本慎一, 寺井慶和, 黒田真司, 瀧田宏樹, 舛本泰章, 「CdTe/ZnTe 量子構造における電子スピンダイナミクスの温度変化と g 因子の異方性」、第 56 回応用物理学関係連合講演会、2009 年 3 月 30 日、筑波大学
- ④ 冨本慎一, 野澤伸介, 寺井慶和, 黒田真司, 瀧田宏樹, 舛本泰章, 「Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe 自己形成量子ドットにおける電子スピンダイナミクス」、日本物理学会第 64 回年次大会、2009 年 3 月 30 日、立教大学
- ⑤ 野澤伸介, 冨本慎一, 寺井慶和, 黒田真司, 瀧田宏樹, 舛本泰章, 「CdTe/ZnTe 量子ドット中の閉じ込め電子の g 因子とスピン緩和」、日本物理学会第 64 回年次大会、2009 年 3 月 28 日、立教大学
- ⑥ K. Goto, M. Ikezawa, S. Tomimoto, B. Pal, Y. Masumoto, P. Mohan, J. Motohisa, T. Fukui, "One-dimensional and Two-dimensional Spectral Diffusion in InP/InAs/InP Core-Multishell Nanowires", 2008 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM '08), 2008 年 9 月 25 日、つくば国際会議場
- ⑦ 冨本慎一, 野澤伸介, 寺井慶和, 黒田真司, 瀧田宏樹, 舛本泰章, 「CdTe/ZnTe 量子井戸及び自己形成量子ドットにおける時間分解カー回転測定」、日本物理学会 2008 年秋季大会、2008 年 9 月 20 日、岩手大学
- ⑧ 野澤伸介, 冨本慎一, 寺井慶和, 黒田真司, 瀧田宏樹, 舛本泰章, 「時間分解カー回転法を用いた CdTe/ZnTe 量子構造

におけるスピンドYNAMIKSの観測」、
第 69 回応用物理学会学術講演会、2008
年 9 月 3 日、中部大学

- ⑨ K. Goto, S. Tomimoto, B. Pal,
Y. Masumoto, P. Mohan, J. Motohisa,
T. Fukui, “Transient band-bending in
InP/InAs/InP core-multishell
nanowires”, 8th International
Conference on Excitonic Processes in
Condensed Matter (EXCON '08),
2008 年 6 月 26 日、京都大学
- ⑩ Shinichi Tomimoto, “Study of electron
spin dynamics in CdTe/ZnTe quantum
dots by time-resolved Kerr rotation”,
Workshop on PNU-Tsukuba
Collaborated Research, 2008 年 3 月 17
日、Pusan National University (韓国)
- ⑪ Shinichi Tomimoto, “Femtosecond
time-resolved PL spectroscopy of
InAs/InP nanostructures”, 日本学術振
興会 二国間交流事業 韓国 (KOSEF)
との共同研究に関わるワークショップ、
2007 年 12 月 17 日、筑波大学
- ⑫ 富本慎一, 黒川篤, 佐久間芳樹, 臼杵達
哉, 舛本泰章, 「InAs/InP 量子井戸及び
ディスク状量子ドットにおける励起子
輻射再結合寿命」、日本物理学会第 62 回
年次大会、2007 年 9 月 21 日、北海道大
学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富本 慎一 (TOMIMOTO SHINICHI)
筑波大学・大学院数理物質科学研究科
・助教
研究者番号：90396599