様式 C-19

科学研究費補助金研究成果報告書

平成２１年　５月２８日現在

研究種目：若手研究(B)
研究期間：2007～2008
課題番号：19760007
研究課題名（和文）　半導体量子構造における対称性の操作と光物性の制御

研究課題名（英文）　Control of crystal symmetry and optical properties in semiconductor quantum structure

研究代表者
山下　兼一（YAMASHITA　KENICHI）
京都工芸繊維大学・工芸科学研究科・助教
研究者番号：00346115

研究成果の概要：本研究では、結晶構造の対称性操作により半導体の光学物性が制御できることを示すために、量子構造を形成した半導体発光材料の光学的異方性を評価した。偏光フォトリフレクタンスの測定結果より、電子エネルギー帯構造の結晶面方位異方性と光学遷移強度の相関を明らかにした。特に、高次のエネルギー遷移を含んだ広いスペクトル領域での光学遷移異方性を初めて実験的に示し、理論から予測されていた基礎物性と比較、検討した。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合　計
２００７年度	2,100,000	0	2,100,000
２００８年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総　計	3,300,000	360,000	3,660,000

研究分野：応用物性・結晶工学・電子電気材料工学
科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎　・　応用物性・結晶工学
キーワード：(1) 結晶工学　(2) 電子・電気材料　(3) 半導体物性　(4) 光物性　(5) 量子井戸

１．研究開始当初の背景

現在のエレクトロニクス産業あるいはオプトエレクトロニクス産業を支えている半導体材料は、次世代の各種デバイス・機器の創製のためにも根幹となると考えられ、高い機能性あるいは新しい機能性を発現させるためにその電子的・光学的性質を自在に制御する技術を確立することが今後も重要な課題である。この目標に向けて、材料混晶比の調整やナノ構造作製による量子効果などの導入とともに、半導体材料自身あるいは作製する量子構造の結晶工学的な対称性操作も非常に重要な手段になり得る。例えば閃亜鉛鉱型半導体結晶の１次元量子井戸構造をベースとして考えると、自発的な原子の周期構造である自然超格子構造や、量子井戸構造の成長方向として面内での原子配列に異方性が伴う[110]方向を取った[110]面量子井戸などは比較的導入しやすい対称性の操作であり、通常のバルク結晶あるいは[001]面量子井戸構造とはそれぞれ全く異なった電子的・光学的性質が得られる。また、学術上・実用上の両面で非常に興味深い現象が発現することも示されている。これらの例を、次世代の電子状態が自在に制御された高機能半導体材料・デバイス実現のための一つのア

プローチ手段として発展させるために、構造の対称性と電子的・光学的基礎物性に対する学術的理解を深めておくことは特に重要な課題であると言える。

２．研究の目的

本研究は、材料が元来持っている結晶対称性の操作により、半導体量子構造の電子状態及び光物性を制御し、既存デバイスの高機能化と次世代の量子デバイス創製のための知見を探索することを目的とする。閃亜鉛鉱構造の[001]方向のような化合物半導体でよく用いられる対称性の高い材料系では得難い新しい機能性の発現を目指した本研究の実施により、対称性というパラメータの積極的導入による新たな概念での新規物質あるいはデバイスデザインに関する研究が加速されるものと期待できる。

本研究では、以下の２つを研究対象として、ナノスケールでの原子配列に起因する対称性の低下を伴った半導体量子構造の基礎物性を光学的な実験手法により明らかにする。

(1) GaInP 系混晶半導体における自然超格子構造形成によるヘテロ界面電子状態変化

(2) (110)面量子井戸構造における面内光学異方性の評価

(1)で取り上げている半導体自然超格子構造とは、エピタキシャル成長過程で自発的に現れる対称性の低下（空間群：F-43m→R3m）を伴った長距離秩序構造のことであり、この対称性低下によりバルクとは全く異なったバンド構造を形成することや、大きな分極効果が発現することが知られている。申請者はこれまでに、その電子状態と光物性について実験・理論計算両面から詳細に研究を行ってきた。例えば、ラマン散乱や磁気光学測定を用いた評価により、意図的なドーピングを施さずとも分極効果の影響により界面に良好な２次元電子ガスが発生することが明らかにされている。本研究期間では、実験結果を系統的に理解するために理論計算を用いた検討を行い、対称性の変化による分極効果の発生度合いを解析することを試みる。一方、(2)で取り上げている(110)面量子井戸構造はその対称性が２軸性となり、量子井戸面内での異方的な原子配列が光学特性に反映され、特定の結晶軸方向で遷移確率が増大するなどの現象が発現する。本研究期間内では、InAlAs/InGaAs(110)面量子井戸などを材料として、特に光学遷移確率の偏光依存性という観点から、電子状態と光学特性の変化を井戸幅の関数として詳細に調べ上げる。

３．研究の方法

(1)　自然超格子構造形成による分極効果の理論解析

GaInP 系混晶半導体における半導体自然超格子形成による GaAs とのヘテロ界面電子状態の変化について、まだ未解明であるピエゾ電界および自発分極効果の発生と周期構造の形成度合いの因果関係を明らかにするために、数値計算による理論解析を行う。原子オーダリングと界面のバンド構造の相関関係を明らかにし、図１に示すような界面三角ポテンシャルで発生する二次元電子ガス濃度を導出する。これらの結果より、界面二次元電子ガス濃度を定量的に決定するパラメータを導き出し、新しい機能を持った量子構造創製へ向けた検討を行う。

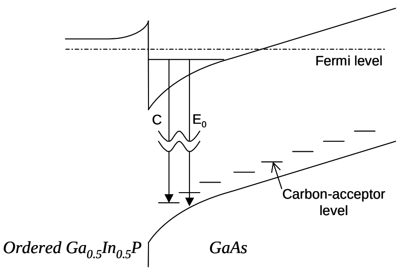

図１　自然超格子 GaInP/GaAs ヘテロ接合のバンドアライメント

(2)　(110)面量子井戸構造における遷移強度の定量的評価

(110)面量子井戸においては、対称性の低下に伴ってブリリュアンゾーン中心でもヘビーホール - ライトホールバンドがミキシングした複雑な電子状態を構成しており、面内での光学異方性を示す。また、スピン軌道分離準位とのミキシングにより、その異方性は井戸幅の関数として変化することが理論計算より予測されている。そこで本研究では、これらの実験的検証を行うために、(110)InP 基板上に成長した InGaAs/InAlAs 及び InGaAs/InP 量子井戸構造の面内光学異方性を変調反射スペクトル測定により探索する。井戸幅の異なるサンプルについて系統的な実験を行い、光学遷移強度の変化を定量的に明らかにする。

４．研究成果

まず、GaInP自然超格子の発生による分極効果の理論解析についての研究成果を述べる。図２は、自然超格子構造を有するGaInP/GaAsのラマン散乱スペクトルであり、GaAs光学フォノンモードの波数近辺を示している。ηは自然超格子構造の形成度合いを表すものであり、オーダーパラメターと呼ばれる。η=0 の場合は 295cm^{-1}付近のGaAs-LOフォノンモードによるシャープな散乱ピークのみが観測されるのに対して、η≠0 の場合には大きな偏光異方性を有するブロードなピークが 260-270cm^{-1}近傍に現れる。これは界面での電荷蓄積に由来したプラズモン－フォノン結合モードであり、その波数より３次元

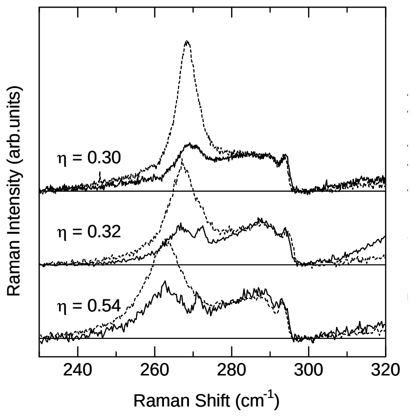

図２　自然超格子GaInP/GaAsのラマン散乱スペクトル

電荷密度を見積もることができる。その結果、蓄積電荷密度はオーダーパラメターの増加とともに減少する傾向があり、分極効果の発生度合いに応じて２次元電子濃度が増加すると示している過去の文献によるC-V測定の結果とは異なることがわかった[図３(b)“×”プロット参照]。

ラマン散乱及びC-V測定の結果の違いを考察するために、有限要素法とトランスファーマトリックス法を用いて、GaInP/GaAsヘテロ界面のバンド構造及び電子の波動関数分布を自己無撞着的に計算した。図３(a)に示すように、伝導帯不連続エネルギーと GaAs 層での界面電界をオーダーパラメターに依存する物理量として（それぞれ第一原理計算結果とフォトルミネッセンス励起スペクトル測定により定量化されている）計算を行った。図４に、計算によって得られたヘテロ界面近傍における(a)バンド構造と(b)電子の波動関数の空間分布を示す。オーダーパラメターの増加に従い、２次元電子ガスの空間分布が界面での三角ポテンシャルからあふれ出し、GaInP 層に大きくしみだしていることが分かる。これは、伝導帯不連続がオーダーパラメターとともに小さくなることに起因する。その結果、GaAs 側の界面近傍に存在する電子ガス濃度は小さくなり、図３(b)の黒丸プロットで示すように、２次元電子ガス濃度の増加が抑制されるものと思われる。この計算結果は、ラマン散乱による測定結果とは定量的な比較はできないが、オーダーパラメターの増加にともなうプラズモン－フォノン結合モードの挙動を定性的に説明できる。

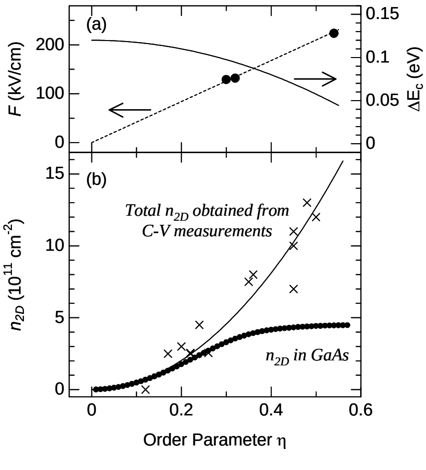

図３　(a)界面電界及び伝導帯不連続のオーダーパラメター依存性　(b)CV 測定及び理論解析により得られた界面２次元電子ガス濃度のオーダーパラメター依存性

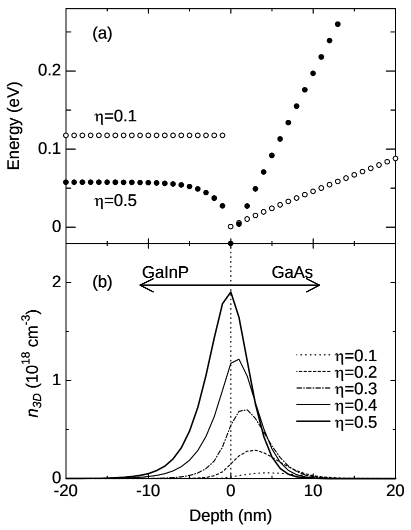

図４　理論計算により得られた(a)界面近傍におけるバンド構造と(b)２次元電子の波動関数分布

次に、(110)面量子井戸構造における面内光学異方性の評価結果について述べる。図５はInP(110)基板上に成長したInGaAs/InAlAs多重量子井戸（MQW）の偏光フォトリフレクタンススペクトルである。(a)及び(b)はそれぞれ井戸幅 8nm、5nm のサンプル、(c)はInP(001)基板上に作製したサンプルについての結果である。それぞれのスペクトルにおいて、基礎吸収端から高次のエネルギー遷移までの遷移信号が観測されている。また、(001)基板の MQW では偏光依存性が見られないのに対して、(110)基板の MQW では、それぞれの遷移信号が異なった偏光依存性を示していることがわかる。このMQWサンプルに対しては、過去に偏光フォトルミネッセンス励起スペクトル測定において基礎吸収端の光学遷移異方性が議論されていた。今回、偏光フォトリフレクタンス法を導入することにより、高次のエネルギー準位が関与した異方的遷移信号の観測に初めて成功した。

フィッティングにより、観測されたスペク

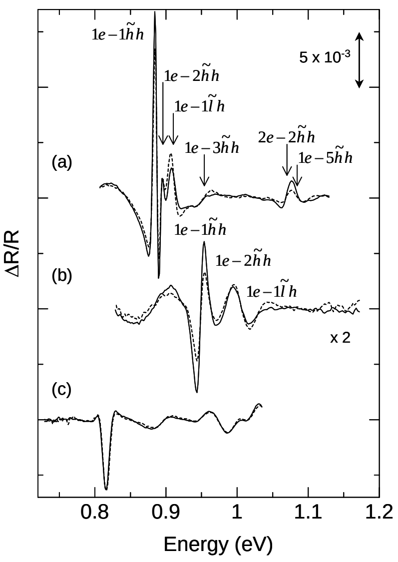

図５　InGaAs/InAlAs 多重量子井戸構造の偏光フォトリフレクタンススペクトル

トルは各遷移信号に分割することができ、それぞれの遷移強度の異方性を定量的に評価することができる。図５(a)の井戸幅 8nm のサンプルを例に取ると、1e-1hh と 1e-1lh の偏光異方性は逆であることが分かる。また、これらの遷移の偏光度は井戸幅の低下とともに増大していることが分かる。一連のスペクトル解析により得られた全ての遷移信号に対する偏光度を図６(b)にプロットしている。この実験結果を考察するために、スピン軌道分離バンドを考慮した 6 x 6 Luttinger-Kohn ハミルトニアンによる価電子状態の理論計算を行った。図６(b)中の実線及び破線により理論計算結果を示す。1e-1hh、及び 1e-1lh の遷移に関しては、無限大ポテンシャルを仮定しているために僅かな相違はあるが、概ね理論どおりの結果が得られていることが分かる。2e-2hh 遷移偏光度は、1e-1hh よりもかなり大きい。これは、ホールの量子化エネルギーが大きいため、スピン軌道分離バンドとの相互作用が強いことに起因しており、エネルギー準位の高次化は井戸幅の低下と等価であることを意味するものである。一方、1e-2hh や 1e-3hh といった遷移信号については、電子及びホール波動関数の直交性のために本来は禁制であり、無限大ポテンシャルを仮定したハミルトニアンでは解析することができない。言い換えると、これらの遷移の振動子強度異方性には、バリア層である InAlAs の Luttinger パラメターが大きく影響することを示す。過去の文献では、Kane のハミルトニアンにより 1e-2hh や 1e-3hh といった遷移信号についても偏光度の理論計算が行われており、今回の実験結果と定性的な一致を示している。

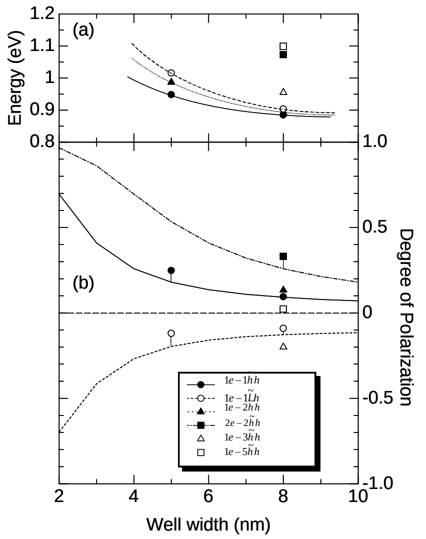

図６　InGaAs/InAlAs 多重量子井戸構造の(a)遷移エネルギー及び(b)偏光度の井戸幅依存性

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１件）

① K. Yamashita, H. Asai, and K. Oe, “Anisotropic optical transitions in [110]-oriented semiconductor quantum well studied by photoreflectance spectroscopy”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 46, pp. 1536-1539, (2007), 査読有

〔学会発表〕（計１件）

① K. Yamashita, et al., “Experimental Investigation of Anisotropic Optical Transition Matrix Elements in [110]-Oriented InGaAs/InAlAs Quantum Well”, 34th International Symposium on Compound Semiconductors, 2007/10/15, Kyoto

６．研究組織

(1)研究代表者

山下　兼一（YAMASHITA　KENICHI）
京都工芸繊維大学・工芸科学研究科・助教
研究者番号：00346115

(2)研究分担者

（　　）

研究者番号：

(3)連携研究者

（　　）

研究者番号：