

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 22 日現在

機関番号：13501

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560008

研究課題名（和文）半導体ナノ構造局在励起子の状態と移動に関する研究

研究課題名（英文）State and transfer of excitons localized in semiconductor nanostructure

研究代表者

松本 俊（MATSUMOTO TAKASHI）

山梨大学・名誉教授

研究者番号：00020503

研究成果の概要（和文）：希薄磁性半導体井戸と非磁性半導体井戸をもつ多重量子井戸構造を用いて井戸局在励起子の井戸間移動現象を調べた。励起子のスピン状態と励起子再結合に伴う発光の円偏光度に着目して、希薄磁性井戸から非磁性井戸への励起子移動を確認した。移動過程の観測に適した試料構造を設計製作し、隣接井戸間の移動と隣の隣の井戸への移動を分離した観測に成功した。本研究成果は半導体ナノ構造中の励起移動を基本過程とする新奇デバイスへの展開につながる。

研究成果の概要（英文）：Inter-well transfer of excitons was studied by using multi quantum well (MQW) structures consisting of a diluted magnetic semiconductor (DMS) well and nonmagnetic semiconductor (NMS) wells. Exciton transfer from DMS well to NMS well was confirmed by observing degree of circular polarization of photoluminescence from NMS well. Exciton transfers from DMS well to the next NMS well and to the next-but-one NMS well were separately observed in MQW samples with a novel structure.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：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：励起子、多重量子井戸、希薄磁性半導体

## 1. 研究開始当初の背景

量子井戸、量子ドットなどの半導体ナノ構造中の励起子への興味が高まっている。半導体レーザーなど既存のデバイスへの応用のみならず、個々のナノ構造に機能を持たせそれらを有機的に結合した量子計算の q-ビットや多次元情報処理デバイスへの応用が期待される。ナノ構造間の波動関数の重ね合わせ状態や励起移動を制御することで量子演

算や新原理の情報伝送が可能になる。量子構造内に注入されたスピン±1/2 の電子はスピン±3/2 の重い正孔と結合して光学的に活性なスピン±1 の励起子と不活性な±2 の励起子を形成する。量子ドットへのスピン選択的な励起子注入が観測されているが、スピン注入現象の理解は未だ統一されておらず、結合量子構造におけるパウリの排他律にしたがった反平行スピン注入、スピン保存トンネ

ル注入、局在励起子を介したエネルギー移動などの解釈が報告されている。

筆者らは希薄磁性半導体 (diluted magnetic semiconductor, DMS) と非磁性半導体 (non-magnetic semiconductor, NMS) で構成される量子井戸構造の井戸局在励起子のスピン状態を偏光磁気フォトルミネセンス (PL) 法と偏光磁気反射法で研究してきた。DMS 井戸に励起子を注入し、NMS 井戸局在励起子発光を観察すれば、DMS 井戸から NMS 井戸への励起子の移動過程を知ることができる。

## 2. 研究の目的

励起子の井戸間移動を確認すると同時に観測に適した多重量子井戸 (MQW) 構造を設計・製作し、局在励起子発光の静的および動的な特性を測定して半導体ナノ構造中の励起子状態と移動に関して詳細な知見を得ることを目的とする。

## 3. 研究の方法

1 個の ZnCdMnSe DMS 井戸と 1~3 個の ZnCdSe NMS 井戸で構成される MQW 構造を GaAs(001) 基板上に MBE 法で製作し、円偏光分離磁気 PL スペクトルを温度  $T=4\text{K}$  においてファラデー配置で外部磁束密度  $B=0\sim 8\text{T}$  で測定する。時間積分スペクトルは He-Cd レーザーの 325nm 線あるいは  $\text{Ar}^+$  レーザーの 477 nm 線で励起し、1/4 波長板と直線偏光板を介して CCD 分光器で検出、時間分解スペクトルは 405nm パルスレーザーダイオードで励起しストリークスケープで観測した。

## 4. 研究成果

### (1) 二重量子井戸構造における励起子移動

DMS 井戸と NMS 井戸で構成される二重量子井戸 (DQW) 試料に  $B=8\text{T}$  の外部磁界を印加したときの PL スペクトルと反射スペクトルを図 1 に示す。(a) は He-Cd レーザーの 325nm 線で、(b) は  $\text{Ar}^+$  レーザーの 477nm 線で励起したものである。325nm の光子エネルギーは ZnSe 障壁層のバンドギャップより大きく、DMS 井戸と NMS 井戸の両方に励起子が注入される。一方、477nm の光子エネルギーは DMS 井戸の基底準位励起子エネルギーより小さくかつ NMS 井戸の基底準位励起子エネルギーより大きい。したがって、477 nm 励起では NMS 井戸のみに励起子が注入される。PL スペクトルに見られる 2.45eV ピークは NMS 井戸局在励起子の再結合によるものである。DMS 井戸からの発光が観測されないのは、中間障壁層厚が小さいために DMS 井戸に注入された励起子は発光再結合する前に NMS 井戸に移動するためである。反射スペクトルには大きなゼーマン分離を

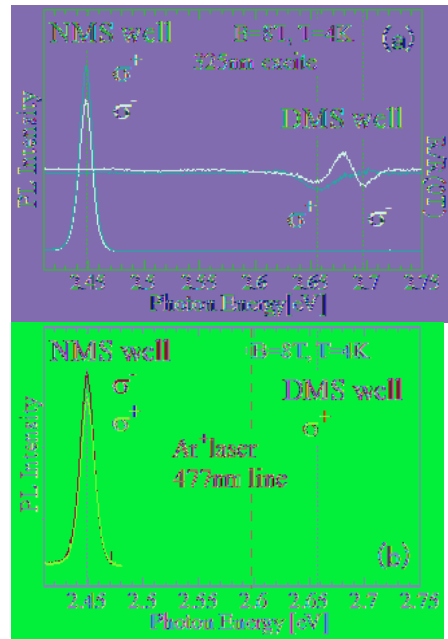


図1 DMS-NMS DQW 試料の磁気 PL スペクトル。(a)325nm 励起、(b)477nm 励起。

伴った DMS 井戸内の励起子基底準位遷移による信号が見られる。NMS 井戸からの PL は 325nm 励起では正の円偏光 ( $\sigma^+$  円偏光の強度が  $\sigma^-$  円偏光の強度より大きい) を示すが、477nm 励起では負の円偏光を示す。

上記の結果は以下のように説明できる。DMS 井戸に注入された励起子は正の巨大ゼーマン効果によってダウンสปิน ( $\sigma^+$ ) 状態に偏極した後にスピン状態を保存して NMS 井戸に移動、NMS 井戸の励起子基底状態に緩和、 $\sigma^+$  偏光を発して再結合し、NMS 井戸からの  $\sigma^+$  発光に寄与する。一方、477 nm 励起では励起子は NMS 井戸のみに注入

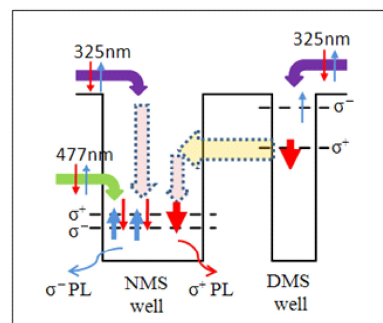


図2 励起子の注入・移動・緩和・再結合。垂直の矢印はアップスピン励起子とダウンสปิน励起子、太さは各励起子の密度を表す。水平および垂直の点線矢印は励起子の DMS 井戸から NMS 井戸への移動とエネルギー緩和を表す。

される。直接 NMS 井戸に注入された励起子は負のゼーマン効果でアップスピン ( $\sigma^-$ ) 状態に偏極し、基底状態に緩和、 $\sigma^-$  偏光を発生して再結合する。これらの過程を図 2 に模式的に示す。DMS 井戸に励起子を注入した場合のみに NMS 井戸から正の円偏光が観測されるのは  $\sigma^+$  スピン偏極励起子の DMS 井戸から NMS 井戸への移動によるものである。

### (2) 井戸層への励起子注入機構

いろいろな井戸幅をもつ量子井戸局在励起子発光の励起スペクトルを測定して井戸層への励起子注入過程を調べた。励起子の光注入機構として(a)井戸局在励起子基底状態への縦型光学(LO)フォノン支援共鳴励起、(b)障壁層励起子状態への LO フォノン支援共鳴励起、(c)障壁層の連続準位への非共鳴励起、を分離・観測した。井戸幅が狭い場合は(a)が、広い場合には(c)が支配的である。特定の井戸から特定の井戸への励起子移動の効果的な観測には、障壁層から井戸層へ励起子の流入がなく、(a)の機構が支配的な MQW 構造が適する。

### (3) 多重量子井戸構造における励起子移動

図 3 (a)に示す MQW 構造を用いて実験した。図(b)には各井戸の励起子エネルギー準位を示す。DMS 井戸と NMS 井戸 1 および 2 には重い正孔励起子の基底状態のみが存在する。NMS 井戸 3 には基底状態と 4 つの励起状態が存在する。DMS 井戸、NMS 井戸 1 および NMS 井戸 2 への励起子注入は、井戸層励起子基底状態への縦型光学(LO)フォノン支援過程が支配的である。ここでは、DMS 井戸、NMS 井戸 1、NMS 井戸 2 に注目する。

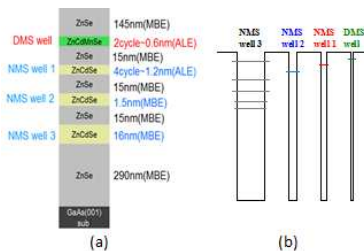


図 3 (a)MQW 構造と(b)励起子のエネルギー準位。

B=3T と 8T における PL スペクトルを図 4 に示す。赤実線と青波線はそれぞれ  $\sigma^+$  励起子と  $\sigma^-$  励起子による発光スペクトル、点線は B=0T におけるスペクトルである。大きなゼーマンシフトと正の円偏光を示す 2.775eV 付近のピークは DMS 井戸局在励起子の発光である。2.745eV と 2.697eV に見られる発光はそれぞれ NMS 井戸 1 と NMS 井戸 2 での励起子再結合による発光である。これらの発光の円偏光は B=3T では負であるが、B=8T

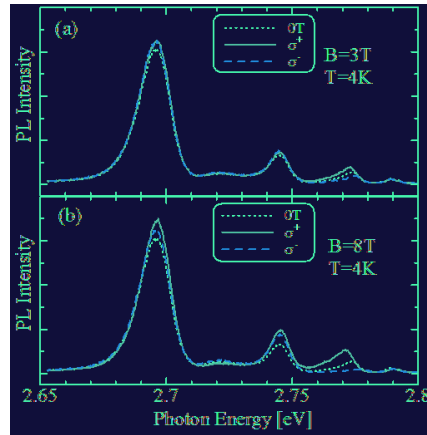


図 4 4QW 試料の磁気 PL スペクトル。(a)B=3T、(b)B=8T。

では正になる。各井戸からの発光の円偏光度  $P = [I(\sigma^+) - I(\sigma^-)] / [I(\sigma^+) + I(\sigma^-)]$

の外部磁界依存性を図 5 に示す。I( $\sigma^+$ ) と I( $\sigma^-$ ) はそれぞれ  $\sigma^+$  発光と  $\sigma^-$  発光の強度である。DMS 井戸発光は巨大ゼーマン効果のために大きな正の円偏光度を示し、その磁界依存性はプリルアン型である。NMS 井戸発光は低磁界では負の円偏光を示すが磁界が大きくなると正の円偏光に変わる。本実験で用いた MQW 構造の中の NMS 井戸と同構造を持つ単一量子井戸 (SQW) 試料では全磁界範囲で負の円偏光が観測された。したがって、本 MQW 構造中の NMS 井戸が示す正の円偏光は近くに存在する DMS 井戸からの  $\sigma^+$  スピン偏極励起子の移動によるものと結論できる。なお、B=3T と 4T 付近に見られる負のピークは NMS SQW 試料にも見られ、明るい励起子と暗い励起子の結合現象によるものと考えられる。

次に、NMS 井戸 1 および 2 の正の円偏光度の磁界依存性について説明する。低磁界では DMS 井戸内励起子のスピン偏極度が小さく、DMS 井戸から NMS 井戸への励起子移

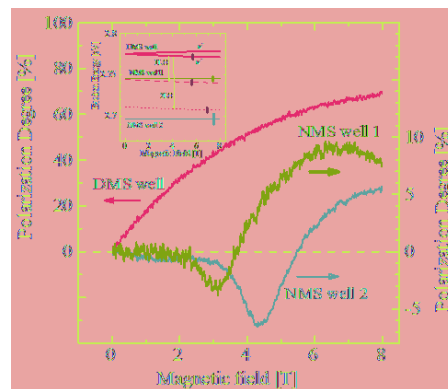


図 5 DMS 井戸、NMS 井戸 1 および 2 からの発光の円偏光度の外部磁界依存性。挿入図は各井戸局在励起子エネルギーの磁界依存性。

動があったとしても NMS 井戸発光の正円偏光への寄与は小さい。磁界が大きくなると DMS 井戸内の正にスピン偏極した励起子密度が増大し、NMS 井戸へ移動すると NMS 井戸の  $\sigma^+$  発光に大きく寄与するようになる。NMS 井戸 1 の円偏光度は  $B=6.5T$  で最大になり、それ以上の磁界では減少が観測された。NMS 井戸 2 の円偏光度は  $B=8T$  まで上昇し続け、 $8T$  以上で最大値に達すると予想される。実験に用いた試料の DMS 井戸局在励起子エネルギーは NMS 井戸 1 および 2 の局在励起子エネルギーより約  $1LO$  フォノンエネルギーおよび  $2LO$  フォノンエネルギーだけ大きい。図 5 の挿入図中に DMS 井戸の  $\sigma^+$  励起子より  $1LO$  フォノンおよび  $2LO$  フォノンエネルギーだけ低いエネルギーを波線および点線で示す。  $1LO$  フォノン線は NMS 井戸 1 に近い。したがって、DMS 井戸の励起子は  $1LO$  フォノン支援過程で NMS 井戸 1 の基底状態に移動すると考えられる。磁界が大きくなりすぎると  $1LO$  線と NMS 井戸 1 のエネルギー差が増大し、DMS 井戸から NMS 井戸 1 への  $\sigma^+$  励起子移動効率が減少するために NMS 井戸 1 の正円偏光度が減少すると考えられる。DMS 井戸から NMS 井戸 2 への励起子移動は  $2LO$  フォノン支援過程が関与し、移動効率は  $B=8T$  以上で最大になると期待される。

NMS 井戸 1 と NMS 井戸 2 の正円偏光度は異なる磁界依存性を示した。この実験結果は、DMS 井戸から NMS 井戸 2 への励起子移動が、DMS 井戸  $\rightarrow$  NMS 井戸 1  $\rightarrow$  NMS 井戸 2 のようなカスケード過程ではなく、DMS 井戸と NMS 井戸 2 の間の直接的な相互作用に支配されることを示唆している。

#### (4) 励起子移動の動特性

上記 MQW 試料の井戸局在励起子発光の減衰時間は  $B=0T$  において、 $70ps$  (DMS 井戸)、 $140ps$  (NMS 井戸 1)、 $180ps$  (NMS 井戸 2) であった。励起終了後の非磁性井戸発光の円偏光度の時間変化を図 6 に示す。 $B=3T$  では NMS 井戸 1、2 とともに経過時間によらず負の円偏光を示す。 $B=8T$  では  $\sigma^+$  発光の減衰が  $\sigma^-$  発光より遅くなり、円偏光度は励起停止後時間とともに 0 から NMS 井戸 1 では  $+30\%$  まで、NMS 井戸 2 では  $+20\%$  まで増大する。円偏光度の上昇時間は  $250ps$  (NMS 井戸 1) と  $350ps$  (NMS 井戸 2) 程度であった。NMS 井戸 2 に比べて NMS 井戸 1 の偏光度が大きく上昇時間が短いのは、NMS 井戸 1 と DMS 井戸との相互作用が NMS 井戸 2 と DMS 井戸との相互作用より大きいことを反映している。

#### (5) まとめ

DMS 井戸と NMS 井戸で構成される DQW、

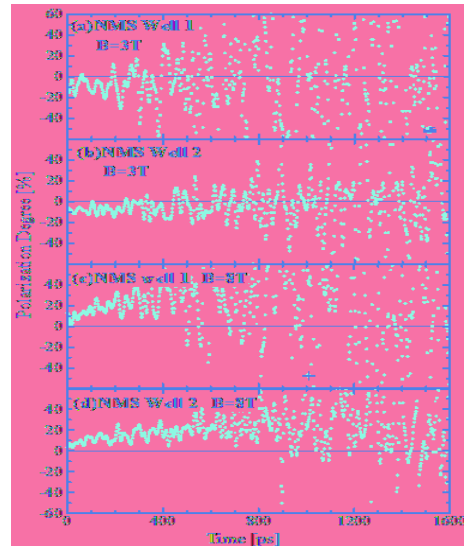


図 6 NMS 井戸局在励起子発の円偏光度の時間変化。(a)  $B=3T$ , NMS 井戸 1、(b)  $B=8T$ , NMS 井戸 2、(c)  $B=8T$ , NMS 井戸 1、(d)  $B=8T$ , NMS 井戸 2。

MQW 構造を用いて、量子井戸局在励起子の井戸間移動現象を調べた。励起子のスピン状態と発光の円偏光に注目して DMS 井戸から NMS 井戸への励起子移動を検証した。量子井戸局在励起子の井戸間移動の観測に適した構造を設計・作製し、隣接する井戸への移動と隣の隣の井戸への移動を分離して一つの試料で静的および動的に観測することに成功した。この成果は励起子移動現象の本質に迫るものであると同時に、本知見に基づいて半導体ナノ構造中のエネルギー極小位置の局在励起子を有機的に結合することで多次元情報処理や量子演算などの新奇デバイスへの展開が期待される。

#### 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 4 件)

- ① T. Matsumoto, F. Iwasaki, M. Hishikawa, S. Fukasawa, T. Muranaka, and Y. Nabetani, Spin-polarized exciton transfer in Zn-Cd-Mn-Se multi quantum wells, *Physica Status Solidi C* (2013) 印刷中。
- ② T. Suwa, A. Ishikawa, T. Matsumoto, H. Hori and K. Kobayashi, Constrained dynamics of excitation transfer due to a structured nano system, *Physica Scripta*, Vol.T151, pp.014054-1 - 014054-5 (2012). DOI: 10.1088/0031-8949/2012/T151/014054
- ③ T. Matsumoto, K. Ohmori, K. Kodama, M. Hishikawa, S. Fukasawa, F. Iwasaki, T. Muranaka, Y. Nabetani, Optical and structural properties of Zn-Cd-Mn-Se double



quantum well systems, *Jap. J. Appl. Phys.* Vol.50, pp.05FC13-1 - 05FC13-4 (2011). DOI: 10.1143/JJAP.50.05FC13

- ④ K. Ohmori, K. Kodama, T. Muranaka, Y. Nabetani, and T. Matsumoto, Tunneling of spin polarized excitons in ZnCdSe and ZnCdMnSe coupled double quantum wells, *Physica Status Solidi C*, pp.1642-1644 (2010). DOI: 10.1002/pssc.200983214

〔学会発表〕(計 17 件)

- ① 松本俊、化合物半導体の薄膜作製評価と多元系機能材料研究会—新機能・新材料を目指して—、応用物理学会多元系機能材料研究会 2012 年度講演会、2012 年 11 月 30 日、新潟大学 (新潟市)。
- ② 興石溪、小仲修平、岩崎文昭、菱川正夫、深澤左興、村中司、鍋谷暢一、松本俊、スピン偏極励起子の井戸間移動の外場による制御、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 14 日、愛媛大学 (松山市)。
- ③ T. Matsumoto, F. Iwasaki, M. Hishikawa, S. Fukasawa, T. Muranaka, and Y. Nabetani, Spin-polarized exciton transfer in Zn-Cd-Mn-Se multi quantum wells, 18th International Conference on Ternary and Multinary Compounds, 2012 年 8 月 30 日、ザルツブルグ大学 (ザルツブルグ、オーストリア)。
- ④ 岩崎文昭、菱川正夫、深澤左興、小仲修平、興石溪、川崎永人、村中司、鍋谷暢一、松本俊、量子井戸局在励起子の多重井戸間移動、第 59 回応用物理学会関係連合講演会、2012 年 3 月 17 日、早稲田大学 (東京都)。
- ⑤ 岩崎文昭、菱川正夫、深澤左興、小仲修平、興石溪、村中司、鍋谷暢一、松本俊、ZnCdMnSe 系多重量子井戸局在励起子の井戸間移動、応用物理学会多元系機能材料研究会 2011 年度講演会、2011 年 12 月 10 日、愛媛大学 (松山市)。
- ⑥ 岩崎文昭、菱川正夫、深澤左興、小仲修平、興石溪、村中司、鍋谷暢一、松本俊、ZnCdMnSe 系多重量子井戸における励起子注入過程、応用物理学会多元系機能材料研究会 2011 年度講演会、2011 年 12 月 9 日、愛媛大学 (松山市)。
- ⑦ 興石溪、深澤左興、菱川正夫、岩崎文昭、米山貴裕、村中司、鍋谷暢一、松本俊、非対称多重量子井戸構造の成長と評価、第 72 回応用物理学会学術講演会、2011 年 9 月 1 日、山形大学 (山形市)。
- ⑧ 小仲修平、岩崎文昭、深澤左興、菱川正夫、興石溪、村中司、鍋谷暢一、松本俊、量子井戸局在励起子発光の励起スペクトル、第 72 回応用物理学会学術講演会、

2011 年 9 月 1 日、山形大学 (山形市)。

- ⑨ 岩崎文昭、菱川正夫、深澤左興、小仲修平、興石溪、村中司、鍋谷暢一、松本俊、DQW 局在スピン偏極励起子発光の動特性、第 72 回応用物理学会学術講演会、2011 年 9 月 1 日、山形大学 (山形市)。
- ⑩ M. Hishikawa, S. Fukasawa, F. Iwasaki, K. Omori, K. Kodama, T. Muranaka, Y. Nabetani, T. Matsumoto, Exciton transfer between ZnCdMnSe and ZnCdSe quantum wells, 15th International Conference on II-VI Compounds, 2011 年 8 月 23 日、Mayan Riviera (メキシコ)。
- ⑪ 岩崎文昭、菱川正夫、深澤左興、米山貴裕、村中司、鍋谷暢一、松本俊、Zn-Cd-Mn-Se 系 DQW の光学的特性と構造評価(2)、第 58 回応用物理学会関係連合講演会、2011 年 3 月 27 日 神奈川工科大学 (厚木市)。
- ⑫ 深澤左興、菱川正夫、岩崎文昭、興石溪、米山貴裕、村中司、鍋谷暢一、松本俊、シャッター制御による混晶組成制御と多重量子井戸構造の作製、58 回応用物理学会関係連合講演会、2011 年 3 月 27 日、神奈川工科大学 (厚木市)。
- ⑬ 菱川正夫、深澤左興、岩崎文昭、村中司、鍋谷暢一、松本俊、結合 DQW 構造におけるスピン偏極励起子発光の動特性、第 58 回応用物理学会関係連合講演会、2011 年 3 月 25 日、神奈川工科大学 (厚木市)。
- ⑭ 深澤左興、菱川正夫、岩崎文昭、米山貴裕、村中司、鍋谷暢一、松本俊、原料交互供給による Zn-Cd-Mn-Se 系ナノ構造の作製と評価、応用物理学会多元系機能材料研究会 2010 年度講演会、2010 年 11 月 19 日、千葉工業大学 (習志野市)。
- ⑮ 菱川正夫、深澤左興、岩崎文昭、村中司、鍋谷暢一、松本俊、ZnCdSe 系 DQW における励起子トンネリングと励起子相互作用、応用物理学会多元系機能材料研究会 2010 年度講演会、2010 年 11 月 19 日、千葉工業大学 (習志野市)。
- ⑯ T. Matsumoto, K. Ohmori, K. Kodama, M. Hishikawa, S. Fukasawa, F. Iwasaki, T. Muranaka, Y. Nabetani, Optical and structural properties of Zn-Cd-Mn-Se double quantum well systems, 17th International Conference on Ternary and Multinary Compounds, 2010 年 9 月 28 日、ラマダホテル会議場 (バクー、アゼルバイジャン共和国)。
- ⑰ 岩崎文昭、菱川正夫、深澤左興、村中司、鍋谷暢一、松本俊、Zn-Cd-Mn-Se 系 DQW の光学特性と構造評価、第 71 回応用物理学会学術講演会、2010 年 9 月 14 日、長崎大学 (長崎市)。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松本 俊 (MATSUMOTO TAKASHI)

山梨大学・名誉教授

研究者番号：00020503

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし