

電子 1219

修士論文

# 窒化ガリウム系ナノ構造の スピン効果を伴う光物性の研究

平成 18 年 2 月 3 日提出

指導教官 荒川 泰彦 教授

電子工学専攻 46388

川野 武志

# 目次

## 第一章 序論

1. 1	研究の背景	1
1. 1. 1	ナノテクノロジー	1
1. 1. 2	量子ドット	1
1. 1. 3	量子ドット中の電子スピン	2
1. 2	研究の目的	3
1. 2. 1	スピン緩和	3
1. 2. 2	窒化ガリウム系ナノ構造の光物性	4
1. 3	本論文の構成	5

## 第二章 試料

2. 1	有機金属気相成長法	6
2. 2	自然形成的作製法	7
2. 3	試料構造	8
2. 3. 1	InGaN 多重量子井戸	8
2. 3. 2	GaN 量子ドット	9

## 第三章 InGaN 多重量子井戸のスピンダイナミクス

3. 1	ポンプ・プローブ測定法	11
3. 2	実験原理	13
3. 3	キャリア緩和測定	15
3. 4	スピン緩和時間測定	17
3. 5	スピン緩和時間 In 含有率依存性	18
3. 6	スピン緩和時間温度依存性	21
3. 7	まとめ	22

## 第四章 GaN 量子ドット中のスピン偏極度の観測

4. 1	実験系	2 3
4. 2	発光特性	2 4
4. 3	スピン分極の観測	2 6
4. 4	スピン偏極度のドットサイズ依存性	2 7
4. 5	スピン偏極度の温度依存性	2 9
4. 6	まとめ	3 0

## 第五章 GaN 量子ドットの共鳴励起分光

5. 1	キャリア緩和時間測定	3 1
5. 1. 1	単一光子計数法による蛍光寿命測定	3 1
5. 1. 2	実験系	3 3
5. 1. 3	キャリア緩和時間の量子ドットサイズ依存性	3 4
5. 2	パルス光による発光励起分光	3 7
5. 2. 1	PLE の原理	3 7
5. 2. 2	結果	3 8
5. 2. 4	考察	4 2
5. 3	連続光による発光励起分光	4 5
5. 3. 1	実験系	4 5
5. 3. 2	結果と考察	4 6
5. 4	まとめ	5 0

## 第六章 総論

## 参考文献

## 本研究に関する発表

## 謝辞

# 第一章 序論

## 1. 1 研究の背景

### 1. 1. 1 ナノテクノロジー

ナノテクノロジーは基本的に量子力学を基盤とした技術であり、量子力学という純粋な理論から各分野に応用できるまでに発展した大きな要因は、原子、分子を観察し操作できる技術が開発されたことである。この20年に原子・分子レベルの観察や測定技術が飛躍的に発展した。1986年には原子間力顕微鏡が発明され、このことが契機となり、その後の10年間で膜表面の分子像、イオン結晶原子、電子像の観察技術が開発され、原子・分子の構造を直接捉えることが可能となった。さらに1997年以降に、原子間力の識別方法が開発され原子間力の制御方法および原子同定技術が確立されるに及んで、2001年以降には原子を一つ一つ自由に移動することが可能となった。こうしてナノレベルの観察・操作技術の飛躍的な発展で、ナノテクノロジーの実用化が現実味を帯びてきた。ナノテクノロジーは科学技術の新しい領域を切り開くとともに、幅広い産業の技術革新を先導し、社会、経済に大きなインパクトを与えてきている。

### 1. 1. 2 量子ドット

三次元的に電子を完全に閉じ込め0次元電子を実現する量子ドットは、1982年の荒川・榊による量子ドットレーザの提案と閾値電流の温度無依存化の予言においてなされた[1]。量子ドットの実現は半導体において人工原子や人工分子を作り出すことに相当している。

量子ドットはS-K成長モードを利用した自己形成法などナノ技術の進展により、未来のエレクトロニクス・フォトンクスを支える基本構造を支える一つとなっている。

量子ドットの応用としては、(a)量子ドットレーザ、量子ドット光増幅器、光

非線形素子、光検出器 (b)単一電子デバイスへの応用 (c)量子ドットおよび近接場光による光集積回路 (d)量子ドットの光スイッチへの応用 (e)量子ドットの記録媒体（メモリ）への応用 (f)単一光子発生素子や量子もつれ状態生成などの量子情報技術への応用 (g)高効率ディスプレイや照明素子、超高出力レーザー (h)量子ドットの量子コンピュータへの応用では量子ビットとして様々なものが提案されており、その代表的なものとしては電子スピン、電子軌道、電子状態、励起子を利用したものがある。

### 1. 1. 3 量子ドット中の電子スピン

#### (1) 基本的性質

量子ドット中の伝導電子はフェルミ波長程度の空間(50~100nm)に閉じ込められている。例えば、二次元円盤形のドットにおいて、その面内の閉じ込めポテンシャルを二次元調和系（振動数 $\omega_0$ ）で近似すると、ドット内に出来る単一粒子状態（固有エネルギー $E_{nl}$ ： $n$ は動径方向の量子数、 $l$ は軌道角運動量）は $E_{nl} = \eta\omega_0(2n + |l| + 1)$  ( $n = 0, 1, 2, \dots, l = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ )と表される。この $\eta\omega_0$ が電子間の相互作用と同程度かそれ以上のとき、量子ドット中の電子は原子と同様の基本則に従う[2,3]。つまり最初の2個の電子は1S殻( $n=l=0$ )、続く4個の電子は2P殻( $n=0, l=\pm 1$ )を占有し、また、同一殻内の電子スピンはフント第一則に従う。このような電子系の性質は電気伝導測定により詳しく調べられている[4]。スピンに関係するものとしてはフント則の他に近藤効果、パウリ効果などに関係する現象が観測されている。これらは量子ドットを使うことで制御可能な量子現象として観測され、さらに新しい側面も見出されている。なお、スピンの係わる現象が電気伝導測定で捉えられるということは量子ドット中のスピン状態が少なくとも電子輸送の時間スケールで安定に存在していることを示唆する。これはスピン自由度が外界の影響を受けがたいことを意味し、量子計算への応用にも有用な性質であると考えられる。

#### (2) 相互作用と緩和時間

(i) 固体中の電子は周囲の環境と様々な相互作用を通して結合する。電子スピンに関わる相互作用としてはスピン軌道相互作用、核スピン結合、磁性不純物による散乱などがある。一般に Si、GaAs など代表的な半導体結晶は十分に高純度なので、磁性不純物の影響は無視でき、また、他の二者についても相互作用の程度は十分に小さい。特に量子ドットの場合には、軌道角運動量が小さいので、スピン軌道相互作用の効果は極めて弱く [5]、核スピン結合についても、0 次元的なエネルギーの離散性のために電子スピンの結合は十分に弱い [6,7]。

(ii) 定常状態ではこれらの弱い相互作用を経由してスピンは熱平衡状態に落ち着く、すなわち緩和している。その時間スケールは一般に、縦緩和時間 ( $T_1$ ) と横緩和時間 ( $T_2$ ) で定義される。 $T_1$  はエネルギーや軌道成分の変化を伴う緩和時間、 $T_2$  は位相コヒーレンスが破れる時間 (デコヒーレンス時間) に相当する。

(iii) 量子演算はすべて  $T_2$  の時間内に行わなければならない。

(iv) 電子の軌道については、「スピンを考慮しなければ」、 $T_1$ 、 $T_2$  ともにフォノン、フォトン、プラズモンなどの吸収・放出が主要因となる。十分低温では音響型のフォノンの影響が最も強く、通常  $T_1$ 、 $T_2$  とも nsec 程度と短い。

(v) しかし、スピンの変化を伴うような変化に対してはフォノンやフォトンは直接的には影響しない。やはり、スピン軌道相互作用や電子スピン・核スピン結合が重要である。

(vi) 緩和問題を定量的に議論するうえで、 $T_1$ 、 $T_2$  は重要な物理量であるが、一般にその測定は難しい。これは、時間領域の測定では信号量が小さく雑音の影響を受けやすいからである。十分な信号を得るために大きな試料を使う必要があり、空間的な不均一性の影響が避けられないなどが原因であり、量子ドットでは特別の工夫が必要となる。

## 1. 2 研究の目的

### 1. 2. 1 スピン緩和

ここ十数年の研究により化合物半導体でのスピン緩和過程の速度とその緩和

メカニズムが明らかになりつつある。III-V 族化合物半導体では、円偏光を用いた光励起によって容易に高いスピン偏極状態を生成でき、こうして生成された電子のスピン緩和時間はピコ秒領域であり、極めて高速である。このピコ秒領域でスピンのハンドリングが可能になるならば、従来この時間領域で利用されてこなかったスピンという量子状態がデバイス動作を決める新しい機能として利用できる可能性がある。

III-V 族化合物半導体は今日のオプトエレクトロニクスを中心材料であり、既存のオプトロニクスと材料的な親和性のある（より具体的にはモノリシックに作製可能な）スピデバイスが実現できる可能性がある。

近年、スピンの振る舞いは面発光レーザの偏光特性に大きな影響を及ぼすことが明らかになっている[8]。既に実用化されている光デバイスにおいてもスピン物性の解明は重要な要素になっている。

いくつかのスピン緩和機構ではバンド構造の違いによって、スピン緩和時間が大きく変化する。例えば、GaAs 量子井戸（CDなどに用いられる  $0.8\ \mu\text{m}$  帯）に比べて半分程度のバンドギャップしか持たない InGaAs 量子井戸（光通信の主要な波長である  $1.5\ \mu\text{m}$  帯）のスピン緩和の機構は GaAs 量子井戸のそれとは異なる可能性が高い。また、GaAs 量子井戸に比べておよそ倍のバンドギャップを持つ GaN 系材料のスピン緩和メカニズムも異なる可能性がある。

## 1. 2. 2 窒化ガリウム系ナノ構造の光物性

GaN/AlN ヘテロ構造は自発分極やピエゾ電界によって外部電界がない状態においても量子閉じ込めシュタルク効果が顕著に現れ、量子井戸や量子ドット中に数 MV/cm の強い内部電界が生じるユニークな系である。

我々の研究室では GaN/AlN 量子ドットにおいて試料表面に横サイズが 200nm のメサ構造を形成し、顕微発光分光法を用いて単一量子ドット分光を行い数個の発光ピークを観測した。また、発光積分強度の励起強度依存性から励起子基底準位と励起子分子状態からの発光を確認し、内部電界によって励起子

分子の結合エネルギーが負になることを明らかにした。

本研究では窒化ガリウム系ナノ構造のスピンの効果を伴う光物性のさらなる解明を求めて研究した。

### 1. 3 本論文の構成

本論文の構成を以下に述べる。まず第二章では本研究で用いた InGaN 多重量子井戸と GaN 量子ドットのサンプル構造について、その作成方法から述べる。第三章では InGaN 多重量子井戸中における電子スピンのダイナミクスについて述べる。具体的には In の含有率を変えたときに多重量子井戸が In の組成揺らぎから量子ドット的な振る舞いをするようになることを述べる。第四章では GaN 量子ドットのスピン偏極度の観測について述べる。第五章では GaN 量子ドットのスピン物性を詳しく調べるために必要なエネルギー状態の解明に関する実験について述べる。第六章で本実験についてのまとめを行う。



## 第二章 試料

### 2. 1 有機金属気相成長法

本研究で用いた試料は全て有機金属化学気相成長法（Metal Organic Chemical Vapor Deposition : MOCVD 法）によって作製されたものである。

以下 MOCVD 法（図 2-1）について簡単に説明する。

薄膜材料を高温中で反応させて基板上に成膜する CVD プロセスのうち、特にその材料に有機金属を用いる方法は有機金属化学気相成長法と呼ばれる。

仕組みとしては、金属錯体原料を原料層に入れて液体状態になるようにヒーターで加熱する。キャリアガスを原料層内に流入させることにより、気化した原料ガスは配管を通して反応管へと運ばれる。気化した原料は高周波誘導加熱装置で加熱された基板上に蒸着されて成膜が行われる。

MOCVD 法の特長としては、

- ・ 高真空を必要としない
  - ・ 大面積、複雑な形状の基板にも成膜可能
  - ・ 量産性に優れている
  - ・ 化学反応の選択性を用いて、選択成長などの結晶成長がしやすい
- という点が挙げられる。

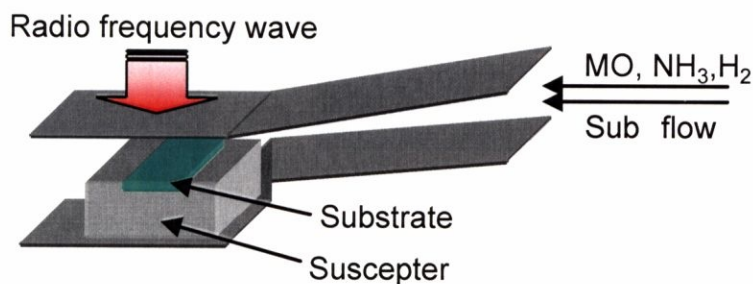


図 2-1 MOCVD 装置概念図

## 2. 2 自然形成的作製法[9]

エピタキシャル成長には、図 2-2 に示すように異なる熱力学的機構に基づく成長モードが存在する。最も良質なエピ層界面を形成するフランク・ファンデル・メルベ (Frank-van-der Merwe : FvdM) の成長様式では、基板と成長材料がほぼ同一の格子定数を持つ必要がある。しかし、基板の表面エネルギーがエピ層との界面エネルギーとエピ層の表面エネルギーの和よりも大きいときは、光子整合がとれていてもボルマー・ウェーバー (Volmer-Weber : VM) モードとして島状構造を形成する。

一般的に VW モードは大きな格子定数差を持つ材料でよく見られる。格子定数差を持つ場合の別の成長モードとしてストランスキー・クラスタノフ (Staranski-Krastanow : SK) モードが知られる。SK モードでは、最初歪みを伴った FvdM モードとしてエピ層を形成する。成長が進むに連れて歪みエネルギーが蓄積され、膜厚が歪みのもたらす臨界点を超えると島状構造に移行する。島状構造の下には数原子層の二次元エピ層が形成されており、このエピ層は濡れ層 (wetting layer) と呼ばれる。

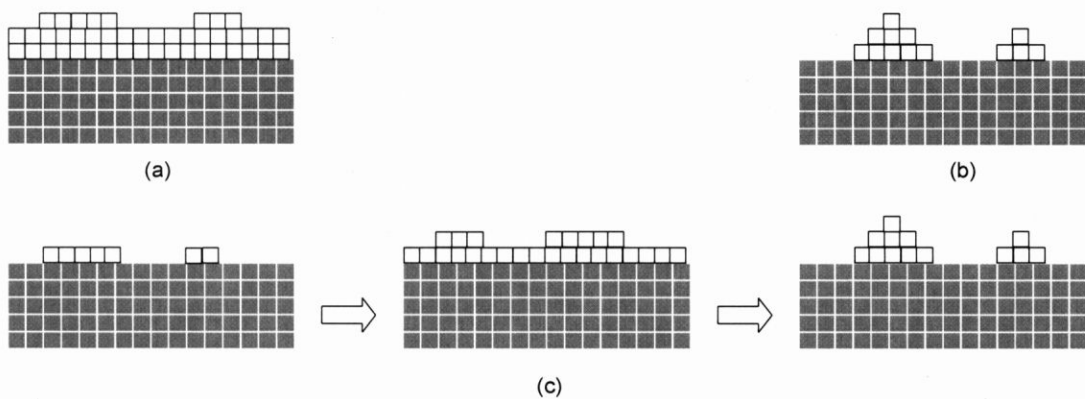


図 2-2 ヘテロエピタキシャル成長モードの概略図

(a) Frank-van der Merwe

(b) Volmer-Weber

(c) Stranski-Krastanow

これら成長モードの特徴を利用することにより、成長条件を最適化して自然形成的にナノ構造を作製することが可能となる。エピタキシャル成長は良質の結晶性と界面を実現するため、光学的な応用や物性測定の対象として一般的に用いられる作製方法である。

## 2. 3 試料構造

### 2. 3. 1 InGaN 多重量子井戸

図 2-3 に示すようにサファイア基板上有機金属気相成長法(MOCVD 法)で作製した。まず、低温で GaN の緩衝層を 30nm 成長させ、次に  $1.5\ \mu\text{m}$  の GaN を成長させた。その後、バリア層として 2nm の  $\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$  を、井戸層として  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  を 5 層成長して InGaN の多重量子井戸を作製した。井戸層の In 含有率が 1.06%、0.88%、0.76%、0.71% の 4 つのサンプルを用意した (表 2-1)。

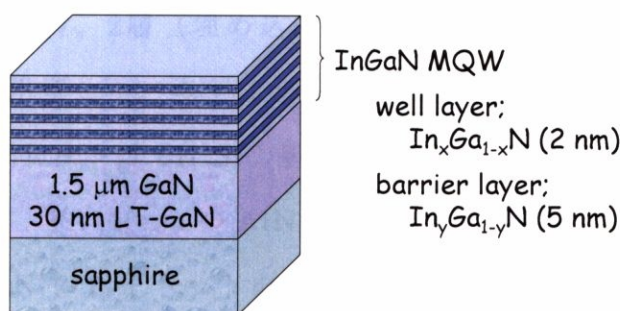


図2-3 InGaN多重量子井戸サンプル構造

表2-1 InGaN多重量子井戸サンプル

	$x$ for well layer	$y$ for barrier layer
Sample A	0.106	0.053
Sample B	0.088	0.035
Sample C	0.076	0.027
Sample D	0.071	0.027

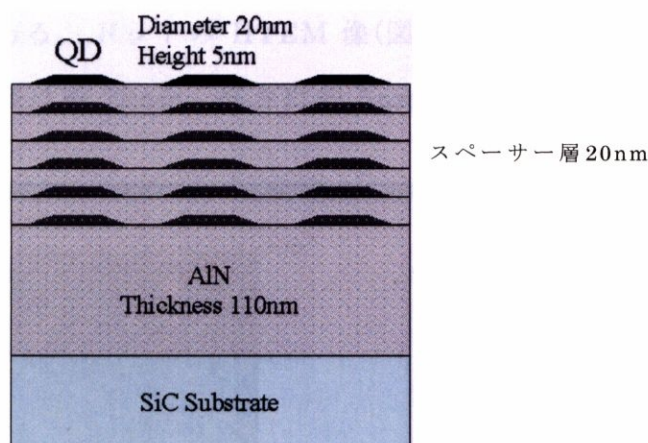


図2-4 積層したGaN量子ドット構造

### 2. 3. 2 GaN 量子ドット

サンプル(図2-4)は低圧有機金属気相成長法 (MOCVD法) によってSKモードでAlN層上に自己形成した高品質のGaN量子ドット (量子ドット) である。サンプルは量子ドットを成長方向に何層積んだかによって区別され、1層 (量子ドットの埋め込み層)、2層 (埋め込み層+AFM層)、6層 (5層の埋め込み層+AFM層) の三種類用意した。以下にサンプルの成長方法の詳細を示す。

積層 GaN 量子ドットは 6H-SiC 基板の(0001)方向に成長させた AlN 層上に堆積される。まず、約 110nm の AlN を 1180°C で基板に直接堆積する。AlN を成長させた後 GaN の量子ドットを成長させるために基板を 975°C に冷やす。GaN の自己形成量子ドットは大変低い V/III 比 13 の条件下で 6.4 モノレイヤー (ML) の GaN 上に成長される。GaN 層の成長後、量子ドットの成長のためにアンモニアの供給を 3 秒間停止する。量子ドットの成長後、20nm の厚さの AlN をスペーシングレイヤーとして堆積させる。初めの 4nm の AlN 層は 975°C で堆積される。結晶の品質と AlN 表面モホロジーを改善するために、続く 16nm の AlN 層は 1180°C で成長させる。AlN 層成長後は同じ条件で GaN 量子ドットが成長される。

サンプルの AFM 像を図 2-5 に示す。この図から分かるように、ドットの密



度はおよそ  $2 \times 10^{10}$  個である。ドットの HTEM 像(図 2-6)を示す。これから分かるように、ドットの直径は約 20nm、高さは約 5nm となっている。

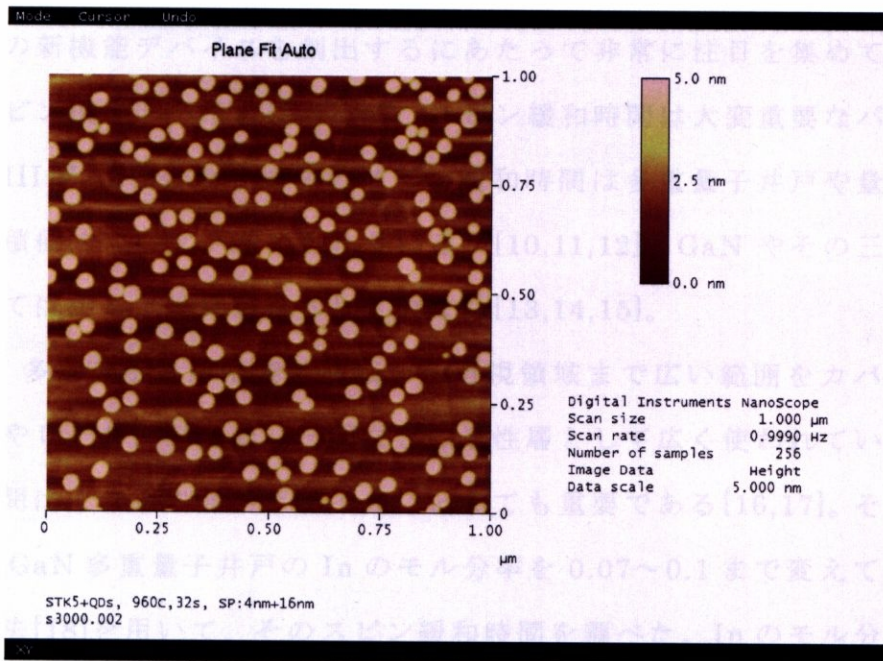


図 2-5 サンプルAFM像

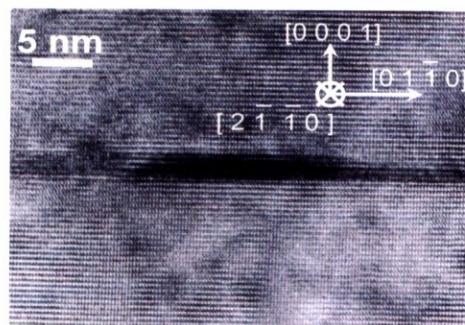


図 2-6 ドット HTEM 像

## 第三章 InGaN 多重量子井戸のスピンドイナミクス

半導体中の電子スピン制御はスピン LED やスピン量子ビット、スピンメモリーなどの新機能デバイスを創出するにあたって非常に注目を集めている。これらのスピン機能デバイスにとって、スピン緩和時間は大変重要なパラメータである。III-V 族化合物半導体のスピン緩和時間は多重量子井戸や量子ドットに対して積極的に研究が進められているが[10,11,12]、GaN やその三元混晶物にたいしては殆んど知見が得られていない[13,14,15]。

InGaN 多重量子井戸は紫外領域から可視領域まで広い範囲をカバーするので LED やレーザ、面発光レーザなどの活性層として広く使われている。スピン緩和時間はそれらの光学デバイスにとっても重要である[16,17]。そこで本実験では InGaN 多重量子井戸の In のモル分率を 0.07~0.1 まで変えて、ポンプ・プローブ法[18]を用いて、そのスピン緩和時間を調べた。In のモル分率を変えることによって相分離が起きることが一つの狙いである。

### 3. 1 ポンプ・プローブ測定法

実験はポンプ・プローブ法（図 3-1）によって行い、Ti:Sapphire レーザの第二次高調波を用いた。レーザのパルス幅は 100fs、繰り返し周波数は 75.8MHz である。ポンプ・プローブ法の原理を簡単に示す。ポンプ・プローブ法はキャリアの振る舞いを時間的に調べるときによく用いられる実験手法である。透過型のものと反射型のものがあるが、ここでは透過型のものについて説明する。まず、同じ励起源のレーザをビームスプリッターによって二つに分けて、同じエネルギーを持った二つのレーザを用意する。二つのレーザはそれぞれポンプ光とプローブ光という呼び名で区別される。ポンプ光とプローブ光はある時間差を持ってサンプルに照射される。まず、ポンプ光がサンプルに照射

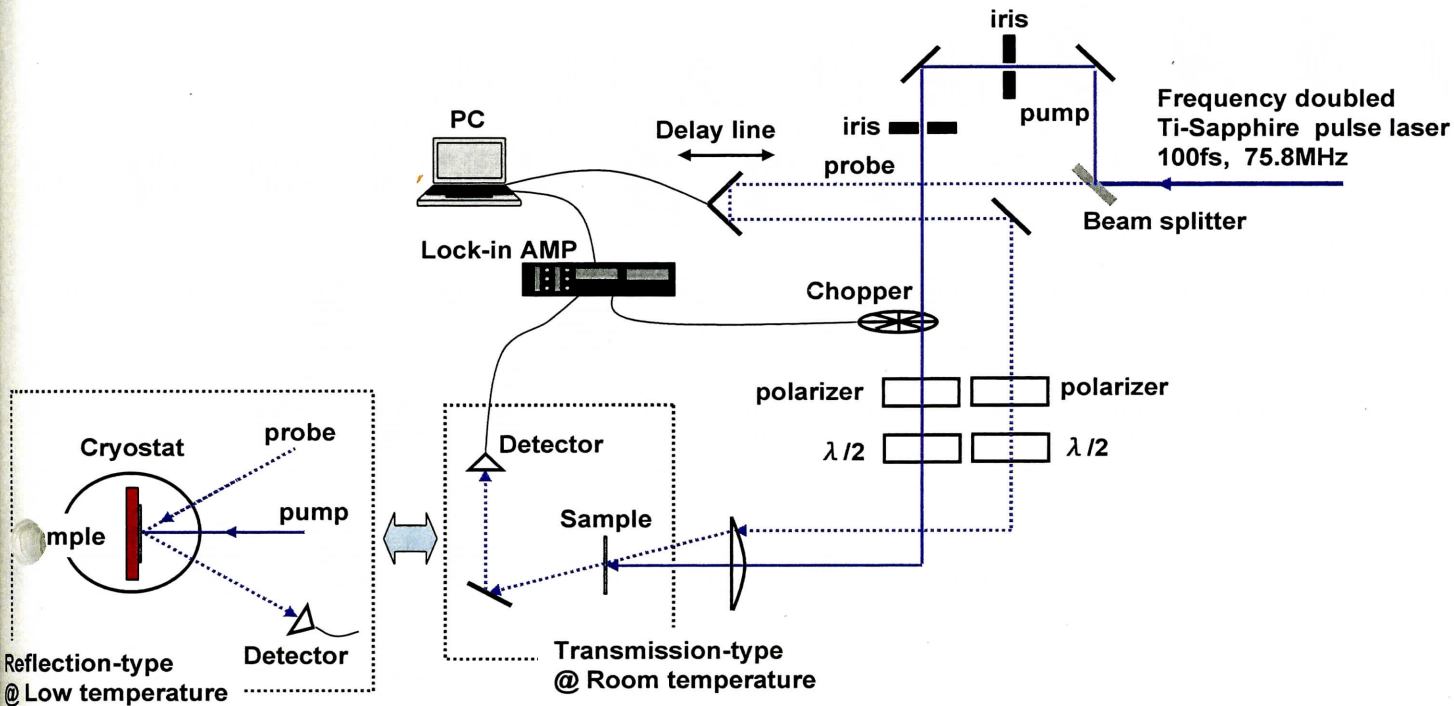


図 3 - 1 ポンプ・プローブ法実験系

され、次にプローブ光がディレイラインを通ることによって、ポンプ光が照射されてからある一定時間後にサンプルに照射される。そして、サンプルを透過してきたプローブ光の強さをディテクターによって測定する。以上がポンプ・プローブ測定法の簡単なシステムである。

次に、このシステムによってキャリアの時間的な振る舞いがどのようにして調べられるのか説明する。まず、ポンプ光をサンプルに照射すると、サンプル中ではあるエネルギー準位にキャリアが生成される。従って、サンプル中にはポンプ光によって生成されたキャリアが既にあるエネルギー準位に存在するために、プローブ光が照射されても、プローブ光のエネルギーはその準位にキャリアを生成することが出来ず、プローブ光のサンプルに対する透過率はポンプ光が照射される前と比べて増加する。つまり、ディテクターに検出されるプローブ光の強度はサンプル中のキャリア状態を反映していることになる。そして、ポンプ光が照射されてから時間が経つと、ポンプ光によって生成されたサ

ンプル中のキャリアの状態が変化するので、それに従って、透過するプローブ光の強度も変化する。ディレイラインの長さを変えて、サンプル中にポンプ光を照射してから様々な時間経った後にプローブ光を照射することによって、ポンプ光によって生成されたキャリアの状態の時間変化が分かる。

スピンを選択的に励起するには円偏光を照射する必要があるので、 $\lambda/2$  波長板と  $\lambda/4$  波長板を通すことによって円偏光のレーザを生成し、それをポンプ光としてサンプルに照射する。プローブ光をポンプ光と同じ円偏光にして照射すると、ポンプ光によって励起されたスピンと同じ向きスピンの時間変化を測定出来、逆円偏光を照射すれば、逆向きのスピンの時間変化を測定出来る。この実験の原理については次の節で詳しく説明する。

本実験においては、ポンプ光のビーム径は約  $36 \mu\text{m}$ 、プローブ光のビーム径は約  $100 \mu\text{m}$  である。つまり、プローブ光がサンプルに照射される面積はポンプ光より大きいので、基本的にプローブ光はある一定の透過率を持っている。そして、ポンプ光が照射されるとプローブ光の透過率が  $\Delta T$  変化する。

### 3. 2 実験原理

磁性材料と異なり、半導体は通常、アップスピンとダウンスピンの数が同数で、スピンの偏りはない。従って、半導体中のスピンを利用する場合、何らかの方法で半導体中にスピンの偏りを作ってやる必要がある。伝統的な方法としては、半導体に数テスラ以上の大きな磁場を印加して、半導体を無理やり磁気分極させてしまう方法がある。また、不純物ドーピングによる励起や、電場・電流励起といった様々な方法があるが、ここでは、本実験で採用した光励起によって半導体中に分極したスピンを生成する方法について述べる。

半導体にバンドギャップエネルギー以上の光子エネルギーの光を照射すると価電子帯の電子が伝導帯に励起され、半導体中を自由に移動するマイナス電荷のキャリア電子とプラス電荷のキャリア正孔が生成される。ところで、光はそ



の進行方向に対して右回りまたは左回りの角運動量を持っているので、光の角運動量は光励起によって、半導体中に光生成された電子・正孔キャリア対に移される。この原理をもう少し定性的に説明すると次のようになる。光は進行す

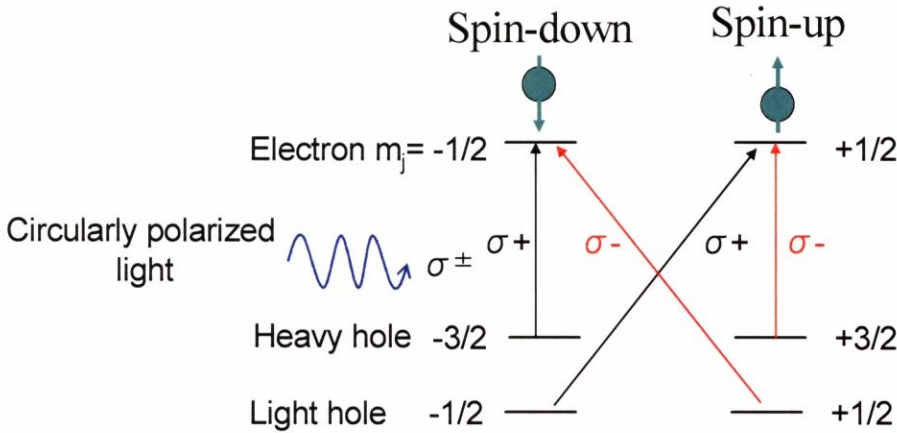


図 3 - 2 光遷移の選択則

る電場の振動で表される。円偏光の場合、電場は回転しながら進行している。従って、円偏光の光は円電流が流れている状態と等価であるといつてよい。電流が流れるとそこには磁場が発生するので、その磁場によってキャリアの持つスピンのたいして力が加わる。よって、右円偏光と左円偏光では異なった向きのスピン、つまりアップスピンとダウンスピンが生成されることになる。

偏光を伴った光源による励起と光生成キャリアのスピン偏極との関係を窒化物 III - V 族化合物半導体について図 3 - 2 に示す。自然光の偏光は乱雑となっていて無偏光状態である。従って、自然光による励起では上向き・下向きスピンのバランスは崩せない。しかしながら、偏光フィルターなどを通して右あるいは左回りの円偏光のみを半導体に照射すれば、スピン偏極したキャリアのみが選択的に生成されるので、スピンのアンバランスな状態を実現することが出来る。ところが、III 族窒化物半導体の場合、ヘビーホールとライトホールのエネルギー差が約 10meV 程度と小さいので、スピン偏極を作り出すのは難しいと考えられている。

アップスピン、ダウンスピンに対応して右円偏光、左円偏光が発光されるので、測定時には右円偏光の強度と左円偏光の強度を比較すれば、発光準位におけるスピン偏極度が求められる。

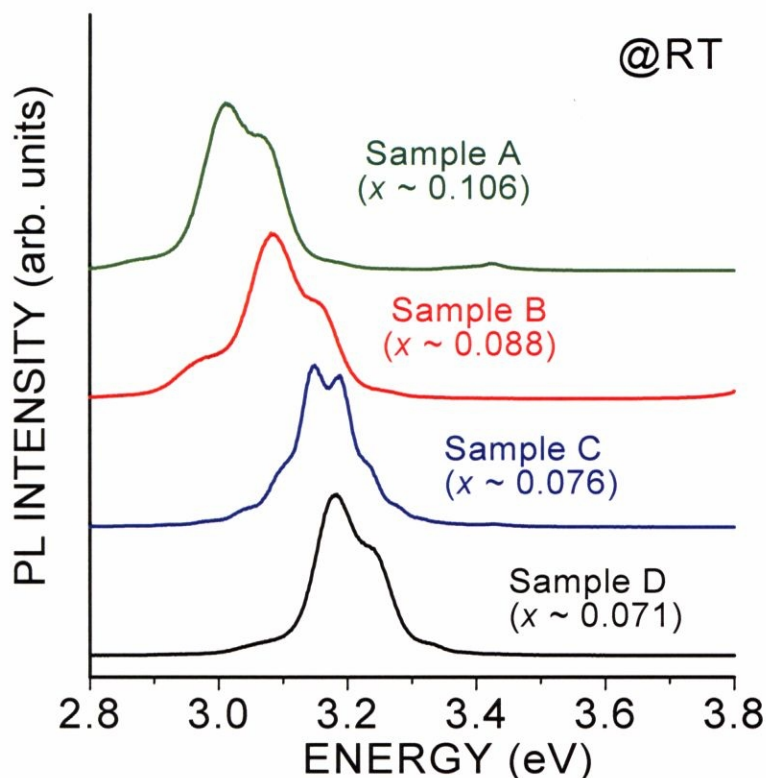


図 3 - 3 InGaN多重量子井戸PLスペクトル

### 3. 3 キャリア緩和時間測定

図 3 - 3 に He-Cd レーザの連続光 (エネルギー: 3.81eV) で励起した 4 つのサンプルの室温における PL スペクトルを示す。In の含有率が増えるにしたがって、スペクトルのピークが低エネルギー側にシフトしている様子が分かる。In は原子番号が大きく、原子の半径がガリウムや窒素に比べて大きいので In の含有率が多くなると InGaN の平均的な格子定数は大きくなる。したがって、In の含有率が多くなるに連れてバンドギャップのエネルギーが小さくなることは妥当であると考えられる。

図 3 - 4 にポンプ・プローブ法で測定したキャリア緩和時間の測定結果を示

す。図 3-4 (a)はサンプル A の室温におけるプローブ光の透過率の時間変化である。実線は励起エネルギーが  $3.02\text{eV}$  (バリア層以下)、点線は励起エネルギーが  $3.28\text{eV}$  (バリア層上) の場合の時間変化である。バリア層以下の励起エネルギーで励起した場合、励起直後は井戸層内に多数のキャリアが生成される。したがって、プローブ光は井戸層内にキャリアを生成することが出来なくなり、結果、プローブ光はサンプルに吸収されない。したがって、プローブ光の透過

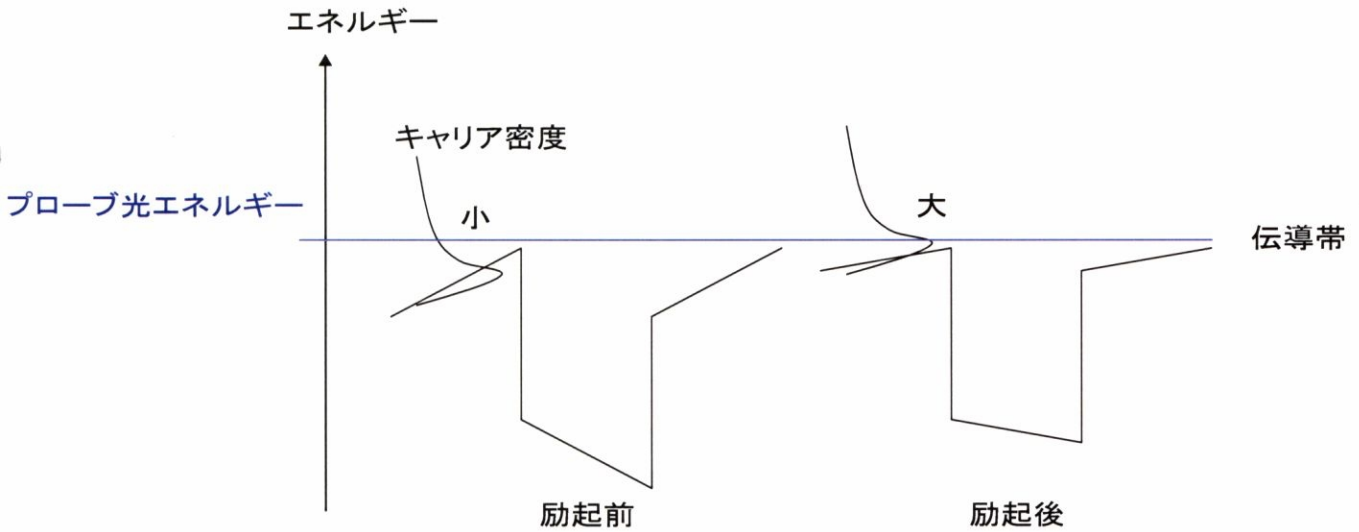


図 3-4 キャリア緩和メカニズム

率は増加し、時間経過とともに元の状態に戻っていく。バリア層以上で励起した場合はバリア層以下で励起した場合と異なる振る舞いをする。そもそも InGaN には大きな内部電界が掛かっているために、バリア層のバンドも傾いている。しかしバリア層以上で励起すると、バリア層にキャリアが生成され内部電界の効果が抑制され、バリア層のバンドの傾きは緩やかになる。その結果キャリア密度が全体的にエネルギーの高い状態にシフトし、ポンプ光と同じエネルギーのプローブ光を照射した場合、プローブ光はよりサンプルに吸収されるようになって、透過率は負のほうへ減少するのではないかと考えられる (図 3-4)。

図 3-3 (b)は室温におけるサンプル A の緩和時間を横軸に励起エネルギー

をとってプロットしたものである。比較的長い緩和時間が  $3.02\text{eV}$  と  $3.22\text{eV}$  において観測されている。これはそれぞれ、井戸層の共鳴端とバリア層の共鳴端に相当する。これらの結果に比べて、非共鳴における緩和時間はエネルギー緩和のプロセスがあるために短い。つまり、成長方向にはキャリアは閉じ込められているが、面内ではキャリアの閉じ込めが弱くエネルギー準位が連続的になっているために、キャリアが励起されたエネルギー準位からすばやく緩和してしまう。井戸層の共鳴端における緩和時間よりもバリア層の共鳴端における緩和時間のほうが長い。これは、井戸層では量子閉じ込めが強く、その結果振動子強度が強く、バリア層に比べて正孔と再結合する確率が高いためだと考えられる。

### 3. 4 スピン緩和時間測定

図 3-5 にスピンの緩和時間の測定結果を示す。サンプル A を室温においてポンプ光とプローブ光を  $3.03\text{eV}$  にして測定した。図 3-3 の PL スペクトルを見て分かるように、サンプル A のほぼピークにおけるエネルギーであり、量子井戸内に共鳴励起したことになる。図 3-5 において赤い線で表される  $\sigma_{++}$  はポンプ光と同一円偏光のプローブ光強度、青い線で表される  $\sigma_{+-}$  はポンプ光と逆円偏光のプローブ光強度で、それぞれアップスピンの強度とダウンスピンの強度に対応する。HH と LH は結晶場による分裂とスピン軌道相互作用の影響により、ウルツ型の結晶においても縮退は解けている。バルク GaN においては温度 10K において約  $5\text{meV}$  縮退が解けている[19]。C 軸方向に成長されたウルツ型構造では、3次元から2次元に次元が減少し、さらに HH と LH の有効質量がほとんど同じなので[20]、HH と LH のエネルギー差はほとんど出来ない。しかも本実験においてポンプ光とプローブ光のエネルギー幅は約  $20\text{meV}$  もある。したがって、HH と LH はほぼ同程度に励起されるために、InGaN 多重量子井戸においては弱いスピン偏極度しか生成出来ない。図 3-5 を見て分



かるように、約 10% 程度の弱いスピン偏極度を生成することが出来た。ここで、スピン偏極度は  $(\sigma_{++} - \sigma_{+-}) / (\sigma_{++} + \sigma_{+-})$  である。緑の線で表されるのはスピン偏極度の時間変化で、一次の指数関数で近似したところ、その緩和時間は  $110 \pm 20 \text{ ps}$  と求めることが出来た。スピン偏極度の緩和時間の 2 倍がスピンの緩和時間なので、緩和時間は  $220 \pm 40 \text{ ps}$  と求めることが出来た。この緩和時間は他の物質における緩和時間よりも非常に長い。この理由を調べるために他のサンプルに対してもスピンの緩和時間を調べた。

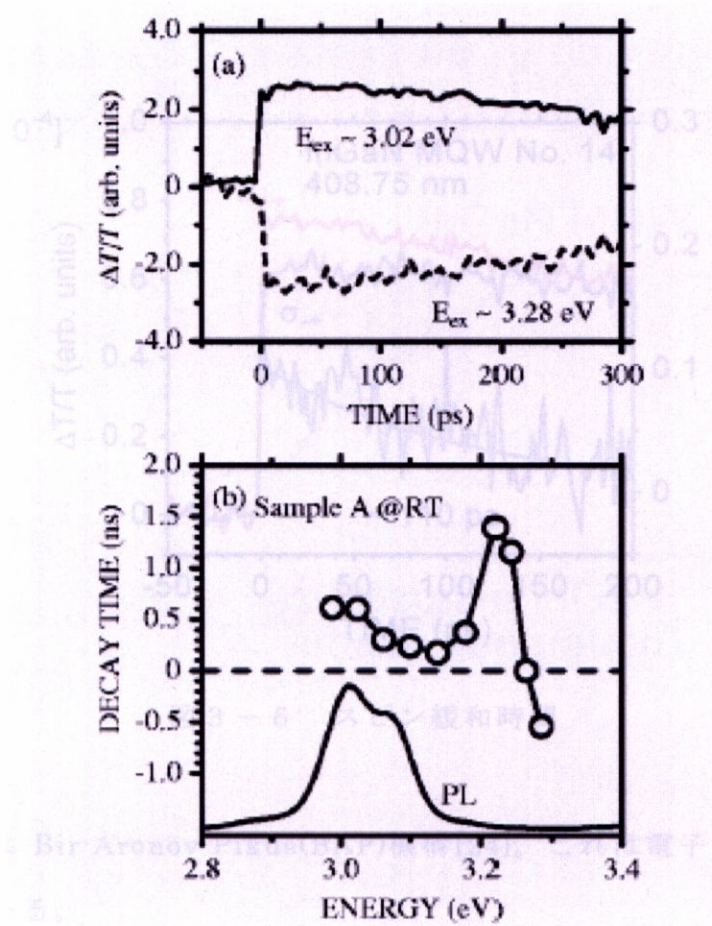


図 3-5 キャリア緩和時間

### 3. 5 スピン緩和時間 In 含有率依存性

図 3-6 はスピンの緩和時間の In 含有率依存性を示したものである。これを見て分かるように、In の含有率が増えるに従ってスピ緩和時間も増加してい

る。

現在報告されているスピン緩和のメカニズムとしては次に挙げる3つのものがある。一つは D'yakonov-Perel'(DP)機構[21]。これは結晶の反転対称性が失われることによって誘起されるスピン軌道相互作用が、伝導帯においてスピン分裂を引き起こし、それが磁場と等価的な働きをすることによってスピン緩和に影響を及ぼすメカニズムである。2つ目は Elliott-Yafet(EY)機構[22,23]。これは価電子帯と伝導帯が混合することによって、スピントリップが促進されるメカニ

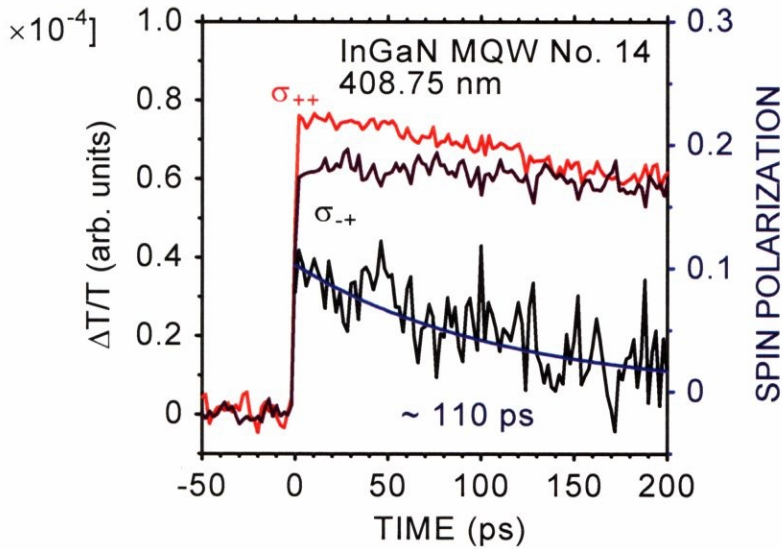


図 3 - 6 スピン緩和時間

ズム。3つ目は Bir-Aronov-Pikus(BAP)機構[24]。これは電子と正孔の間の交換相互作用である。

不純物による散乱が  $U^2_{alloy}x(1-x)$  に比例するとする。ただし、 $U_{alloy}$  はランダムな不純物ポテンシャルである[25]。このとき、DP機構は不純物散乱に比例し、EY機構は不純物散乱に反比例すると考えると、In含有率に対するEY機構とDP機構のスピン緩和時間依存性の理論線は、それぞれダッシュの線とドットの線になる。これを見て分かるように、測定値の線は今考察した機構のどの理

論線とも一致していない。従って InGaN 多重量子井戸の場合、今まで報告されているものとは異なる緩和機構が働いていると考えられる (図 3-7)。

現在までに様々なグループによって In 含有率が 0.05 から 0.2 の InGaN 多重量子井戸における相分離の報告がある [26,27]。相分離によって In 含有率の揺らぎが誘起される。In 含有率が多い場合バンドギャップは小さくなり、逆の場合バンドギャップは大きくなる。したがって、In 含有率の揺らぎによって電子は In 含有率の多いところに局在するようになり、これがあたかも量子ドットのような振る舞いをすると考えられる。量子ドット中では、その状態密度のデルタ関数的な離散性から様々な散乱機構が抑制され、スピン緩和時間は長くなることが一般的に知られている。In 含有率が大きい場合は多重量子井戸が量

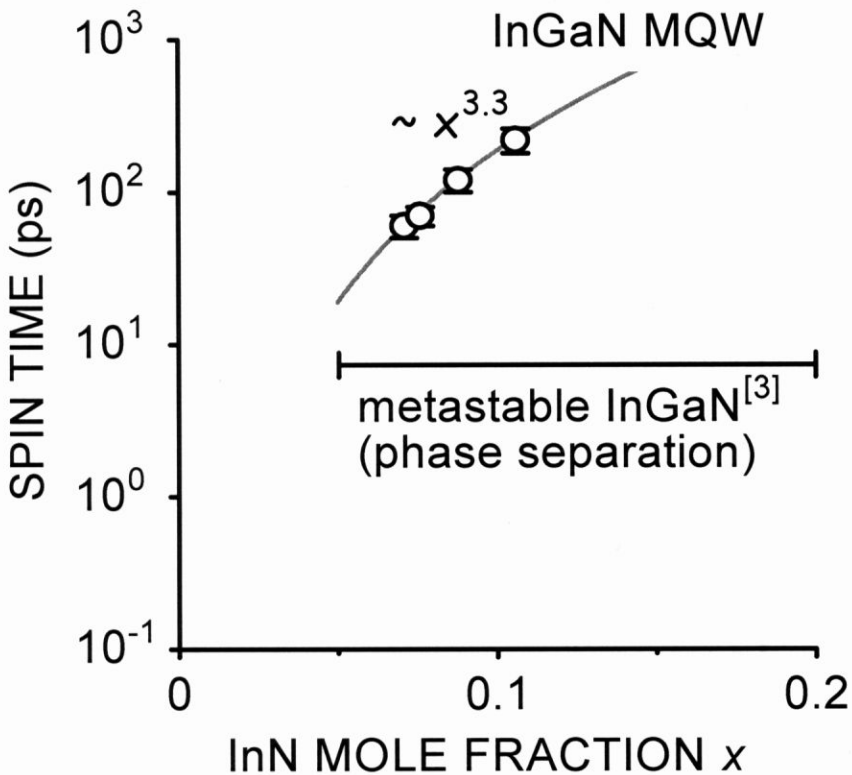


図 スピン緩和時間のIn含有率依存性

子ドットのような振る舞いをするために長いスピン緩和時間を示し、In 含有率が小さい場合は量子ドットのような振る舞いを示さないためにスピン緩和時間

は相対的に短いと考えられる。

### 3. 6 スピン緩和時間温度依存性

次に示すのは In 含有率の大きいサンプル A と小さいサンプル B に対するスピン緩和時間の温度依存性である (図 3-7)。この実験は低温に冷やす必要があるため、透過型のポンプ・プローブ法ではなく、反射型のポンプ・プローブ法によって行われた。サンプル A におけるスピン緩和時間は約 200ps で一定値であり、サンプル B におけるスピン緩和時間は指数関数的に減少している。一般的に量子ドットにおいてはフォノンとの相互作用が小さいために、温度に対する依存性がないことが知られている。実験結果はこの理論とよく一致しており、In 含有率が大きいサンプルにおいては、確かに相分離が起こり、結果として量子ドットのような振る舞いを示すようになることを示唆していると思われる。

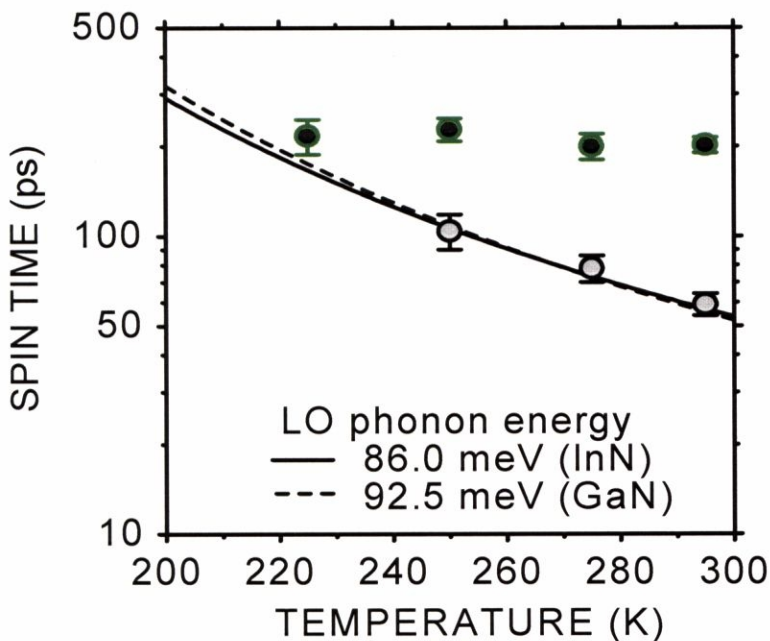


図3-7 スピン緩和時間の温度依存性



### 3. 7 まとめ

本実験では InGaN 多重量子井戸のスピンドイナミクスを調べた。まず、InGaN 多重量子井戸のスピソ緩和時間が他の系に比べて非常に長いことを観測した。さらにスピソ緩和時間が In 含有率が多くなるにしたがって、長くなることも観測した。この原因としては In の含有率が増加すると、量子井戸層における In の組成揺らぎが起こり、キャリアが局在化して様々なスピソ緩和機構が抑制されるためだと考えた。その説を補足する結果として、スピソ緩和時間の温度依存性を調べ、In の含有率が多いサンプルにおいては温度に対する依存性がないという結果を得た。