

強磁場・高圧環境を用いた
GaP/AIPヘテロ構造の励起子に関する研究

丸田 敏夫



博士學位論文

強磁場・高圧環境を用いた
GaP/AIP ヘテロ構造の励起子に関する研究

2000年3月

内田和人

目次

第1章 序論	1
1.1 背景	1
1.2 研究目的	3
1.3 研究方法	4
1.4 論文の構成	5
第2章 GaP/AIP ヘテロ構造	6
2.1 GaP/AIP 系ヘテロ構造	6
2.2 短周期超格子	8
2.3 量子井戸	12
2.4 隣接閉じこめ構造	13
第3章 半導体ヘテロ構造の光学的性質と磁場及び圧力の効果	15
3.1 半導体ヘテロ構造	16
3.1.1 自由電子の状態密度と次元性	16
3.1.2 2次元電子のエネルギー準位	17
3.1.3 超格子構造	18
3.1.4 重い正孔と軽い正孔	22
3.2 励起子	24
3.2.1 次元性	24
3.2.2 自由電子の磁場効果	27
3.2.3 励起子の磁場効果	30
3.3 バンド間遷移	34
3.3.1 電気双極子遷移	34
3.3.2 量子井戸	35
3.4 圧力	37
3.4.1 静水圧	37
3.4.2 一軸性応力	38
3.5 発光現象	39
3.5.1 発光過程と関連する物理	39
3.5.2 発光の温度依存性	44
3.5.3 発光の励起光強度依存性	44
3.5.4 発光寿命	45
3.6 GaP/AIP ヘテロ構造	45
3.6.1 X点電子	45
3.6.2 磁場の効果	46
3.6.3 圧力の効果	48

第4章 試料と実験方法.....	50
4.1 試料.....	51
4.2 磁場発生.....	54
4.2.1 磁場とその発生技術.....	54
4.2.2 パルス磁場波形.....	55
4.2.3 パルスマグネットとコンデンサーバンク.....	56
4.3 高圧クランプセルの開発.....	59
4.3.1 静水圧.....	59
4.3.2 一軸性応力.....	63
4.4 光学測定系.....	65
4.4.1 OMA.....	65
4.4.2 インテグレートッドモード.....	66
4.4.3 ストリークモード.....	66
4.4.4 分光器.....	68
4.4.5 ファイバー光学系.....	69
第5章 磁場依存性.....	75
5.1 超格子.....	76
5.2 隣接閉じこめ構造.....	84
5.3 障壁層を挟んだ隣接閉じこめ構造.....	86
5.4 考察.....	89
5.4.1 励起光強度依存性.....	89
5.4.2 温度依存性.....	93
5.4.3 磁場効果の温度依存性.....	97
5.4.4 GaAs/Al _x Ga _{1-x} As 短周期超格子.....	101
5.4.5 「擬量子ドット欠陥」モデル.....	103
5.4.6 キャリア局在.....	106
第6章 圧力依存性.....	112
6.1 超格子.....	113
6.2 量子井戸.....	121
6.3 隣接閉じこめ構造.....	122
6.4 考察.....	127
6.4.1 GaAs/Al _x Ga _{1-x} As 短周期超格子.....	127
6.4.2 X _{xy} -X _z 交差.....	132
6.4.3 準直接遷移.....	134
6.4.4 励起子局在.....	135
第7章 磁場と圧力の効果.....	137
7.1 超格子バンド端の電子状態.....	137
7.2 磁場と圧力の効果.....	142
7.3 考察.....	150

7.3.1 重い正孔と軽い正孔の準位交差.....	150
7.3.2 X _z -Γ発光とX _{xy} -Γ発光.....	151
第8章 結論.....	152
8.1 タイプIIヘテロ構造の磁場効果.....	152
8.2 発光の起源.....	153
8.3 今後の課題と展望.....	153
謝辞.....	155
参考文献.....	159
発表論文.....	165

第 1 章

序論

- 1.1 背景
- 1.2 研究目的
- 1.3 研究方法
- 1.4 論文の構成

本論文でまとめた研究の背景について説明し、本研究の目的と研究方法を概説する。加えて、本論文の構成を述べる。

1.1 背景

まもなく幕を閉じようとしている 20 世紀は、量子論 (1900 年の Planck による量子仮説)、相対性理論 (1905 年の Einstein の特殊相対性理論) という全く新しい物理学が登場した世紀であり、その後半には、我々の社会生活を一変させることになったトランジスタが生み出された。同じ半導体素子であるダイオードや、抵抗、コンデンサーとともに同一基板状に作られた集積回路 (IC) は、今日、「産業の米」と謳われている。トランジスタの歴史は 1945 年、Shockley による電界効果デバイスの概念に遡る [1]。これは半導体表面付近のキャリア密度を、半導体から絶縁された金属電極にかける電界によって制御できるのではないかというアイデアであった。しかし、半導体表面に形成される表面準位のために電子が束縛され、予想したような効果は得られなかった。そして、1947 年、Bardeen と Brattain によって、Ge 結晶の表面に 2 本の金属針を立てた点接触型トランジスタが考案され、増幅現象が確認された [2]。さらに翌年、pn 接合理論に基づく接合型トランジスタが発明され、今日のシリコントランジスタに代表されるト

ランジスタ技術の基礎が確立された。トランジスタと製作技術を共有する整流性素子であるダイオードも、1938年のSchottkyの理論から出発したショットキーダイオード、1949年のShockleyによるpn接合理論に基づく接合型ダイオード、1957年のEsakiによるトンネル効果を利用したトンネルダイオード等が次々と考案され、実用化されている。続く1959年、Si結晶基板上にトランジスタを多数配置した「プレーナ・プロセス」と呼ばれる集積化技術が発明され、さらに、翌1960年には、Si単結晶表面に熱酸化 SiO_2 を成長させ、その上に金属電極ゲートをつけたMOS-FET(Metal Oxide Semiconductor Field Effect Transistor)が発明された。このトランジスタの特徴は、従来の電解効果デバイスの弱点であった表面準位が、Si-SiO₂界面では極めて生じにくいという点にあり、現在の半導体集積回路技術の基礎となった^[3]。記憶素子であるROM(Read Only Memory)や本研究で用いる光検出器の電荷結合素子であるCCD(Charge Coupled Device)も、このMOS構造を基本としている。このようにダイオードやそれをとりまく半導体デバイスという新技術の創成は、固体物理学と物質制御技術の見事な連携によって為し得たと言える。そして、最近の半導体デバイスの集積化は指数関数的速度を持ち、もはや、デバイスを流れるキャリアが電荷と有効質量をもった質点の集団と見なせる古典力学的な限界を越えようとしている。すなわち、キャリア(電子と正孔)の粒子性と波動性という量子力学的実在の特徴があらわになりつつあり、粒子性を利用した単電子デバイス、波動性を活かした量子波動デバイスなどの次世代量子エレクトロニクスの研究が行われている。

1969年、EsakiとTsuは、超格子という全く新しい概念を着想、提案した^{[4][5]}。これは、従来の半導体デバイスのキャリアの運動に見られる「マクロスコピック」領域と、原子・分子に強く束縛された電子系である「ミクロスコピック」領域の中間に位置する「メソスコピック」と呼ばれる領域のキャリアの運動を「工作」するための設計図だと言える。すなわち、キャリアの非弾性平均自由行程、あるいは位相コヒーレンス長よりも小さな周期構造を導入することによって、キャリアの量子性を引き出そうというものであり、ドナーとアクセプタを交互にドーピングしたnipiドーピング超格子と、異なる物質を交互に積層した組成変調型超格子の2種類の超格子を提案した。後者は、まさしくヘテロ構造半導体超格子であり、その後続くGaAs/AlGaAs超格子や量子井戸、量子細線など^{[6][7]}、様々な量子ヘテロ構造デバイスの研究・開発の萌芽となった。

このように、半導体量子ヘテロ構造は、電子・正孔の運動を制御する、いわゆるバンド・エンジニアリングの典型的な手法として、結晶成長技術の進歩とともに、これまでに数々の新物質と多彩な物性を生み出してきた^[8]。光学的手法を用いた研究では、Dingle等が異なる井戸幅を持つGaAs/AlGaAs多重量子井戸の光吸収スペクトルを測定し、量子ヘテロ構造による束縛状態の存在と、超格子サブバンド構造の形成過程を確認した^{[9][10]}。そして、量子井戸レーザー^{[11][12]}、光双安定素子^[13]等の半導体デバイスへの応用へと発展した。さらに最近、GaAs/AlGaAsヘテロ構造の強磁場下二次元電子系での整数・分数量子ホール効果といった、現在の半導体物理学の中心的課題となっている現象も発見されている^{[14][15]}。

これまで、半導体レーザーや発光ダイオードなどの光エレクトロニクスデバイスへの応用では、直接遷移型半導体を用いた数多くのヘテロ構造デバイスが研究、実用化されており、上述のGaAs/AlGaAs量子井戸レーザーもそのひとつである。さらに近年、間接遷移型半導体のみで構成された半導体ヘテロ構造を新たな発光材料に利用する試みがなされ、母体結晶の性質からかけ離れた新しい物性の可能性が期待されている。本来、光学遷移が禁制である間接遷移型半導体の発光効率を上げるためには、pn接合、量子井戸構造など、電子と正孔を空間的に接近させ、再結合確率をあげる方法、超格子という新たな周期構造を

人工的に導入し、電子帯構造(ブリュアンゾーン)の折り返し効果によって k 空間での直接遷移(以後、準直接遷移と記す)を実現させる方法、さらに局在性の強い再結合中心を導入して k 選択則を破り、発光効率を上げる方法などがある。ブリュアンゾーンの折り返し効果による準直接遷移型への変換については、すでに1974年にGnutzmann等^[16]によって提案されていたが、当時の結晶成長技術では、その可能性を論ずることは困難であった。そして、分子線エピタキシー(MBE)法に代表される、近年のめざましいエピタキシャル成長技術の進歩により、ようやく間接遷移型半導体による良質の超格子ヘテロ構造が作製されるようになり、Si/Ge系やGaP/AIP系を中心に発光性の極めて高い超格子が作製され、注目を集めている^{[17][18]}。Si/Ge超格子は格子歪みを伴っており、歪みによる複雑な効果が変換の可能性を不明瞭にしている^[19]。しかし、歪みを利用した大規模なバンド・エンジニアリングの可能性を拓く研究が行われている^{[20][21]}。そして最近では、ヘテロ構造の一種である隣接閉じこめ構造が提案され、非常に強い発光を示すことから、新たな発光材料としての期待が高まっている^[22]。それに対して、GaP/AIPヘテロ構造は理論的に扱いやすい格子整合系であり、短周期超格子の形成によって、可視光領域において、これまでの間接遷移型半導体の常識を越える強い発光が観測されている^[23]。この発光が電子帯の折り返し効果による準直接遷移型への変換によるものであるかどうか、まだ結論が得られていない。またSi/Ge系と同様の隣接閉じこめ構造からも、超格子構造を上回る強い発光が観測されたとの報告があり^[25]、発光メカニズムの解明が待たれている。

一方、最近の物性研究では、磁場、圧力、温度などの環境を極端に変えることによって物性の変化を追求するいわゆる極限物性が急速に進展してきている。これらの極端な環境の下では、物質は通常の状態では見られない新しい様相を示し、その物性を調べることによって、逆に物質の持つ固有の性質についての情報を得ることができる。量子ヘテロ構造の光物性の研究においても、極限環境下での測定はきわめて有力な手段となる。最近、精密な磁気光学測定への応用が可能になった40-50 Tにおよぶパルス強磁場を用いると、伝導帯、価電子帯の電子準位の量子化が顕著になり、励起状態も著しい影響を受ける。また高圧を加えると、量子構造によって形成された各種の電子準位が異なる圧力係数を持つことから、それらの交叉が起こり、光学応答に大きな変化が現れる。これらのことから、未解決の問題が多く残されている間接遷移型の半導体ヘテロ構造についての強磁場・高圧環境下での磁気光学的研究には多大の興味を持たれる。

1.2 研究目的

GaP/AIP短周期超格子は、価電子帯の頂上GaPの Γ 点にあり、伝導帯の底がAIPのX点にあるエネルギー構造を持つ。実空間、被数空間ともに電子と正孔が空間分離した間接遷移型の半導体である。そしてGaPとAIPの層数の和が偶数の超格子、たとえば $(\text{GaP})_n/(\text{AIP})_n$ 超格子を形成した場合、ブリュアン帯の折り返し効果によりAIPのX点が Γ 点に折り返される。しかし、この折り返し効果を受けるのは超格子面に垂直な方向である X_2 点だけであり、 k 空間での直接遷移型への変換が実現するのは、X点にそのままとどまっている X_{xy} 点(超格子面に平行)よりも X_2 点のエネルギーの方が低い場合に限られる。有効質量近似では、超格子ポテンシャルによって質量が重くなった X_2 点の方が X_{xy} 点よりもエネルギー

ギーが低くなる。しかし $X_x - X_y$ 混成が X_{xy} 点の最低エネルギーを下げる効果も考えられ、伝導帯の最下端が X_x 点になるのか、それとも X_{xy} 点になるのかは、GaAs/AlAs 系のタイプ II 超格子の場合と同じく、まだ未解決の問題である。そして、ブリュアン帯域の折り返し効果がどの程度発光に寄与するのかについても明らかになっていない。理論的な予測としては、層数が等しい $(\text{GaP})_n/(\text{AlP})_n$ 超格子の場合、Shibata 等^[28]、Kobayashi 等^[29] は、 n が 3 以上のときに準直接遷移型に変換すると計算結果を得ている。一方、Kumagai 等^[57] は n が 5 以上の奇数のときに準直接遷移型に変換すると予測しており、両者の主張は食い違いを見せている。

遷移型を決める伝導帯 X 点の電子有効質量は異方性が強く、超格子面に垂直に磁場を加えた場合のサイクロトロン質量は、 X_x 点の方が X_{xy} 点よりも重い。それに対して、超格子面に平行に磁場を加えた場合は、逆に X_{xy} 点の方が X_x 点よりも重くなる。磁場によって、バンド端近傍の電子状態が大きく変わることになれば、発光スペクトルに劇的な変化が期待できる。通常、半導体中の励起子に磁場を加えると、サイクロトロン運動によって磁場に垂直な面内の励起子波動関数が収縮し、束縛エネルギーや振動子強度の増大をもたらす。しかし、タイプ II 超格子の場合、電子と正孔が空間的に分離しており、そのような状況下での励起子に磁場を加えた場合どのようなことが起きるのか、これまで実験例はほとんどなく、それ自体、大変興味深い。さらに、超格子面に垂直に一軸応力を加えると、 $\Gamma - X_x$ 遷移エネルギーは低エネルギー側へ、それとは対照的に $\Gamma - X_{xy}$ 遷移エネルギーは高エネルギー側へシフトすることが知られている。発光スペクトルの圧力依存性を調べれば、どちらの X 点からの発光が明らかになる可能性がある。GaP/AlP 隣接閉じこめ構造からの強い発光は、その起源を超格子構造に求める考え方を否定するものであり、何らかの界面準位が関与している可能性がある。磁場と高圧のもとでの発光スペクトルの変化が、超格子とどのような違いを見せるのか、GaP/AlP ヘテロ構造の発光のメカニズムを解明するうえで、重要である。本研究は、GaP/AlP ヘテロ構造（短周期超格子、単一量子井戸、隣接閉じこめ構造）に、磁場と高圧を独立に、あるいはそれら二つの環境を同時に作用させたときの励起子発光の測定を実験手段として、バンド端あるいはゾーン端の電子状態、および強い発光のメカニズムを調べることを目的とする。

1.3 研究方法

東京大学物性研究所の極限環境物性研究部門では、電磁濃縮法^[31]、一巻きコイル直接放電法^[32]、長時間パルスマグネット^[33]、超伝導磁石といった様々な磁場発生法により、600 T を越える超強磁場から定常微弱磁場、あるいは角度回転磁場^[34]に至るまで、多種多様な磁場空間を生み出すことができ、磁場強度と発生の時間スケールにおいて、世界的にも類を見ない施設を有している。さらに、これらの磁場発生法に適した低温技術^[35]、物性測定技術が開発され、光学測定、サイクロトロン共鳴測定、電気抵抗測定、磁化測定等の物性測定技術と連携して、物性研究の先端領域で実践されている^[70]。そして、最近では、「磁場」という環境パラメータに、さらに「圧力」を加えて、物性研究のフィールドを拡げようという試みも行われている^[36]。

本研究では、磁場発生に同研究部門の 300 kJ コンデンサーバンクを電源とする長時間パルスマグネットを用いて、45 T を越える強磁場を約 12.5 ms のパルス幅で発生させた。また、パルス磁場中で試料の

温度上昇を起こさないテフロンセル方式の光学測定用高圧クランプセルを開発し、静水圧、一軸性応力ともに約 1.6 GPa の圧力下での磁気光学測定を可能にした。また、パルス強磁場中での分光測定には CCD を検出器にもつ OMA (Optical Multichannel Analyzer) 分光測定装置を使用し、CCD 全画素に蓄えられた光信号を積算して 1 ラインのスペクトルとして検出する従来の方法に加え、新たに CCD の電荷移動機構を応用した、時間分解スペクトル測定法を開発した。そして、磁場発生技術、圧力発生技術に、さらにパルス磁場が発生する短時間に光スペクトルを測定する OMA 分光測定装置を組み合わせて、強磁場・高圧（静水圧、一軸性応力）下における GaP/AlP ヘテロ構造からの発光スペクトルの測定を行い、バンド端あるいはゾーン端の励起子状態の磁場依存性および圧力依存性から、その電子状態を研究する。

1.4 論文の構成

本論文の構成は、まず第 2 章で GaP/AlP ヘテロ構造の特徴と、これまでの研究例をいくつか紹介し、第 3 章で強磁場及び高圧下における半導体低次元励起子の理解に必要な基本的事情について説明する。第 4 章では、本論文で扱う試料の作製法と構造を説明し、あわせて、実験で用いた磁場発生法、圧力発生法、光学測定系について説明する。第 5 章で、GaP/AlP ヘテロ構造からの発光スペクトルの磁場依存性に焦点をあて、ヘテロ界面に垂直に磁場を加えた場合に現れる特異な磁場依存性について、発光の励起光強度依存性、温度依存性、及び磁場効果の温度依存性の結果と併せて、そのメカニズムについて考察する。第 6 章では、発光スペクトルの圧力依存性について取り上げ、一軸性応力下で表れる劇的な発光強度の増大などから伝導帯下端の電子状態を特定する。さらに、GaP/AlP ヘテロ構造の示す強い発光の起源を明らかにし、準直接遷移型への変換について結論する。第 7 章では、励起子発光の磁場と圧力の両依存性から導かれるバンド端の電子状態の詳細な解析を行い、さらに、磁場と圧力を同時に加えた多重環境下での発光スペクトルの測定結果を示し、価電子帯頂上の正孔状態、及び $X_x - \Gamma$ 発光と $X_{xy} - \Gamma$ 発光の磁場依存性の違いについて議論する。最後に本論文のまとめを行う。

第2章

GaP/AIP ヘテロ構造

- 2.1 GaP/AIP 系ヘテロ構造
- 2.2 短周期超格子
- 2.3 量子井戸
- 2.4 隣接閉じこめ構造

GaP/AIP 系ヘテロ構造の特徴である格子整合と間接遷移型バンド構造について説明し、本研究で取り扱う短周期超格子、単一量子井戸、隣接閉じこめ構造について、そのバンド構造、バンド端励起子の電子状態を説明する。併せて、最近の研究例をいくつか紹介する。

2.1 GaP/AIP 系ヘテロ構造

III-V 族半導体である GaP と AIP は、ともに Zinc-Blende (閃亜鉛鉱) 型の結晶構造を持つ。これは、ダイヤモンド構造の空間格子である fcc 基本格子の格子点を Ga (あるいは Al) 原子が占め、残りの四面体格子 (tetrahedral site) を P 原子が占めている構造で、単体 Si と原子配列は同じである。格子定数はそれぞれ 5.4505 Å, 5.4635 Å ($T=300\text{ K}$) とほぼ同じような値を示す。また、バンド構造はともに価電子帯の頂上が Γ 点、伝導帯の底が X 点となり、バンド端光学遷移が禁制となる間接遷移型の半導体である。図 2.1 に結晶構造とブリュアンゾーンを示す。バンドギャップエネルギーは、絶対零度で GaP が 2.338 eV、AIP が 2.5 eV 程度となり、光学デバイスへの応用上、魅力的な発光帯を有している。ちなみに、光伝導により見積もられた GaP の絶対零度における直接ギャップは約 2.895 eV であり^[37]、伝導帯下端 X 点から約 0.56 eV 高いエネルギーに GaP の Γ 点が位置している。この GaP と AIP をヘテロ接合すると、界面での格子不整合は 0.3% 以下となり、格子歪みを考慮する必要のない、ほぼ理想的な半導体

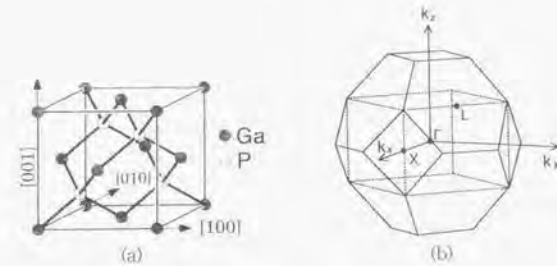


図 2.1 (a) Zinc-Blende (閃亜鉛鉱) 型結晶構造と、(b) ブリュアンゾーン。

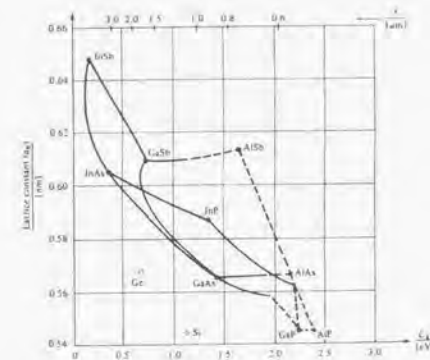


図 2.2 いくつかの代表的な半導体のバンドギャップエネルギーと格子定数の関係^[38]。GaP/AIP 系はすぐれた格子整合系であり、歪みのないヘテロ構造が作製できる。

ヘテロ構造を形成する。図 2.2 に、いくつかの代表的な半導体のバンドギャップエネルギーと格子定数の関係を示す。同じ III-V 族 GaAs/AlGaAs 系も格子定数の違いはほとんどなく、良質の積層構造を制御、成長させやすいことが、GaAs/AlGaAs 系ヘテロ構造の研究を促した最も大きな要因である。また純粋な GaAs/AlAs 系では約 1.5% の格子不整合があり、2 次元正孔に 2 軸性の圧縮応力が加わることによる軽い正孔と重い正孔のエネルギー単位の交差や、伝導帯下端 X 点電子の異方性に影響を与えることが知られている。さらに、IV 族 Si/Ge 系に至っては約 4% の格子不整合があり、歪みの効果が Si/Ge 系や Si/SiGe 系歪み量子井戸、歪み超格子におけるバンド端の電子状態に本質的な役割を演じている^[20]。

GaP と AIP の積層構造は、ヘテロ界面においてタイプ II staggered 型 (横ずれ) のバンド不連続性が接合され、バンド端の電子状態は価電子帯の頂上 GaP の Γ 点、伝導帯の底が AIP の X 点となり、光励

起された電子とその抜け殻である正孔は、実空間、波数空間ともに空間分離され、完全な間接遷移型半導体となる。これは、発光材料として極めて不利な状況と言わざるを得ない。しかし、超格子構造の形成によるブリュアンゾーンの折り返し (zone-folding) 効果で、ゾーン端の X 点が Γ 点に折り返され、波数空間での直接遷移型に変換する可能性が 1974 年に Gnutzmann 等によって指摘され^[16]。以後、Si/Ge 系、GaP/AIP 系を中心に、理論的研究が数多くなされている。しかし、この折り返し効果は、実空間と波数空間における幾何学的帰結であり、実験的検証には、結晶の良質性、ヘテロ界面の急峻性を実現するための結晶成長技術の進歩を待たねばならなかった。間接遷移型半導体ではキャリアの寿命が非常に長く、電子・正孔が輻射再結合する前に格子欠陥や不純物に捕獲され、非輻射再結合しやすい。つまり、バンド構造に由来する発光を観測するためには、直接遷移型半導体を上回る結晶の良質化が求められるという事情がある。そして近年、GSMBE (ガスソース分子線エピタキシー) 法や MOCVD (有機金属気相成長) 法により、1 原子層レベルで制御可能なヘテロ構造が作製され、GaP/AIP 短周期超格子から従来の常識を覆す強い発光が観測されたことから、多くの注目を集めることとなった^[23]。はたして、強い発光が準直接遷移型への変換を意味しているのかどうか、その可能性を検証するいくつかの実験が試みられている^{[17][59]}。さらに最近、GaP/AIP ヘテロ接合を AlGaP 層で挟み込むことによって、電子と正孔がヘテロ界面を挟んで隣り合う層に局在化される隣接閉じこめ構造 (Neighboring Confinement Structure: NCS) が提案、作製され、1 周期に関わらず 300 周期の超格子に匹敵する強い発光が観測されている^[25]。しかも超格子からの発光に比べ、温度特性が大幅に向上しており、間接遷移型半導体の光学デバイスへの応用という観点からも、発光機構の解明が待たれている。

第 1 章でも述べたとおり、間接遷移型半導体の発光効率を上げるためには、再結合中心を導入する以外に、超格子という新たな周期構造を人工的に導入し、電子帯の折り返し効果によって k 空間での直接遷移を実現させる方法と、電子と正孔を空間的に接近させ再結合確率をあげる方法がある。本研究では、前者として GaP/AIP 短周期超格子、後者として AlGaP/GaP/AIP/AlGaP 隣接閉じこめ構造に焦点をあてる。(なお 2.3 節で述べるが、間接遷移型半導体の場合、通常の量子井戸構造ではキャリアの片方しか閉じこめられないために、発光効率は悪いと予想される。)

2.2 短周期超格子

GaP と AIP を交互に成長させ、結晶の基本周期よりも長い周期構造を導入した GaP/AIP ヘテロ構造超格子は、価電子帯の頂上が GaP の Γ 点にあり、伝導帯の底が AIP の X 点にある、実空間、波数空間ともに電子と正孔が空間分離した間接遷移型の半導体になる。ブリュアンゾーンは図 2.3 に示したような正方形型 (tetragonal) となり、GaP と AIP の層数の和が偶数の超格子、たとえば $(\text{GaP})_n/(\text{AIP})_n$ 超格子 (以後、GaP/AIP (n,n) と記す。) を形成した場合、折り返し効果により超格子面に垂直な方向である AIP の X_z 点が Γ 点に折り返される (図 2.4)。そして、GaP 層と AIP 層を数原子層程度にすると、電子や正孔のトンネリングが起こるようになり、有効質量近似を基礎とする Kronig-Penny モデルでは記述できなくなる。GaAs/AlAs (n,n) 超格子の場合、 $n < 14$ で、短周期になるほどエネルギーギャップの実測値が Kronig-Penny モデルによる計算値よりも低めにずれることが知られている^[24]。準直接遷移型への

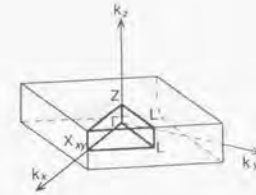


図 2.3 GaP/AIP 超格子の正方形 (Tetragonal) ブリュアンゾーン。

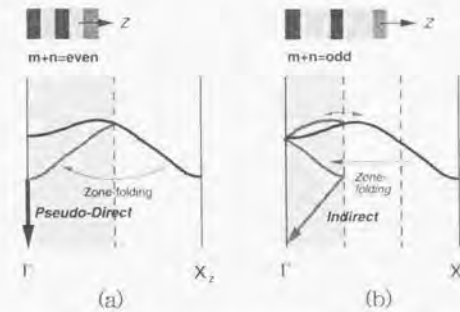


図 2.4 (a) ゾーン端 X 点が Γ 点に折り返される場合 (層数の和が偶数) と、(b) そうでない場合 (層数の和が奇数)。

変換は、折り返された X_z 点と折り返し効果を受けずに X 点にそのままとどまっている X_{xy} 点のエネルギーの相対位置によっており、伝導帯下端が X_z 点である場合、価電子帯頂上の Γ 点との $\Gamma(X_z) - \Gamma$ 光学遷移となり、 k 空間での直接遷移型が実現する (図 2.5)。有効質量近似では、超格子ポテンシャルによって質量の重くなった X_z 点の方が、 X_{xy} 点よりもエネルギーが低くなる。しかし短周期超格子の場合、 $X_z - X_{xy}$ 混成によって X_{xy} 点サブバンドが大きなミニバンド分散を持つことにより、最低エネルギーを下げる効果も考えられ^{[26][27]}。伝導帯の最下端が X_z 点になるのか、それとも X_{xy} 点になるのかは、GaAs/AlAs 系タイプ II 超格子の場合と同じく、まだ十分に理解されていない問題である。このような短周期超格子のバンド計算は第一原理から出発する必要があり、GaP/AIP 系では局所密度近似を適用した第一原理擬ポテンシャル法によるバンド計算が Shibata 等^[28]、Kobayashi 等^[29] によって行われている。図 2.6 に彼らによって計算された (4,4) 超格子の界面に平行な $L - \Gamma - X_{xy}$ 間と、成長方向の $\Gamma - Z$ 間のエネルギー分散を、表 2.1 に得られたバンド端 Γ 点電子と正孔の $\Gamma - X_{xy}$ 方向 (ヘテロ界面内) と $\Gamma - Z$ 方向 (ヘテロ界面に垂直) の有効質量を示す。また図 2.7 にバンド端電子と正孔の電荷分布を示す。電子は AIP 層に、正孔は GaP 層に局在したタイプ II 型の特徴が現れている。それによると、 (n,n) 超格子について、

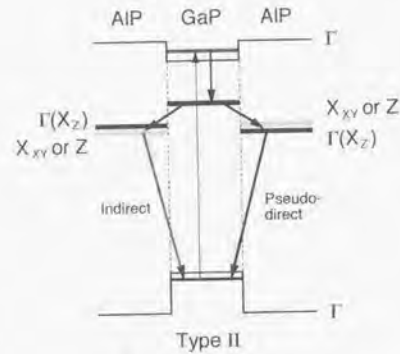


図 2.5 GaP/AIP 短周期超格子のエネルギー構造と遷移型の関係^[29]。
伝導帯下端が X_z 点の場合に、準直接遷移型への変換が実現する。

n が 3 以上の場合、伝導帯の底は X_z 点となり、準直接遷移型へ変換しているという結論を下している。また、Kumagai 等^[57] は sp^3s^* tight-binding 法によるバンド計算を行い、準直接遷移型への変換はヘテロ界面のバンド不連続量に敏感であるが、価電子帯のバンド不連続量として -0.46 eV^[30] を採用すると、 (n,n) 短周期超格子の場合、 n が 5 以上の奇数のときに準直接遷移型に変換するとの計算結果を出しており、両者の主張は食い違いを見せている。

Morii 等は、MOCVD 法により $n=3-9$ の GaP/AIP (n,n) 超格子を作製し、 $n=3$ を除くすべての超格子について、超格子ポテンシャルによるバンド・ギャップエネルギーを反映した発光スペクトルを観測した^[23]。それによると、超格子からの発光は $Al_{0.5}Ga_{0.5}P$ 混晶よりも 2 桁程度強く、発光デバイスである GaP:N バルクに匹敵する強度を誇っており、間接遷移型半導体の常識を遙かに越えるものである。また $n=3$ の試料は超格子構造にはなっておらず、 $Al_{0.5}Ga_{0.5}P$ 混晶の発光スペクトルと形状も発光強度も大して変わっていない。準直接遷移型への変換を実験的に評価した例として、Asami 等による ER (エレクトロリフレクタンス) 測定があり、GSMBE 法によって作製された $(3,3)$ 超格子および $(5,5)$ 超格子から明瞭な ER 信号が観測されたことから、両者が直接遷移型に変換していると結論している^[50]。しかし、信号強度が通常の直接遷移型に比べてかなり小さく、疑問を残す形となっている。また発光寿命の測定も行われており、 $(1,1,3)$ 超格子および $(9,5)$ 超格子からの発光において、約 2 ns と 20 ns という 2 種類の寿命をもつ成分が存在することから、部分的に準直接遷移型への変換が実現しているとの報告がなされている^[60]。しかし、GaAs/AlAs 超格子からの発光の場合、直接遷移と間接遷移とは発光寿命が 3 桁程度違っており、間接遷移型で通常 μs オーダーであることから、この実験も決定的とはいえない。超格子構造を実際に調べた例として Wang 等^[61] は、 $m,n=4-11.5$ の GaP/AIP (m,n) 超格子を作製し、X 線回折により得られた回折パターンから、急峻なヘテロ界面を持つ良質の超格子が実現しているとの報告を行っている。さらに、発光スペクトルに見られる 3 種類のピークの励起光強度依存性と温度依存性から、それぞれ

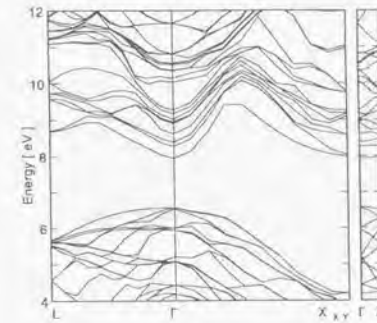


図 2.6 (4,4) 超格子の界面に平行な $L-\Gamma-X_{XY}$ 間と、成長方向の $\Gamma-Z$ 間のエネルギー分散^[25]。

	electron	hole
$\Gamma-X_{XY}$	$0.31 m_0$	$1.82 m_0$
$\Gamma-Z$	$6.83 m_0$	$4.78 m_0$

表 2.1 バンド端 Γ 点電子と正孔の有効質量 (m_0 は自由電子の質量)^[29]。

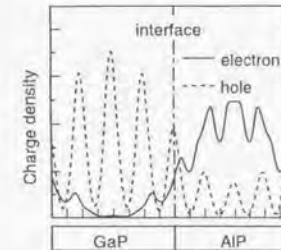


図 2.7 (4,4) 超格子のバンド端電子と正孔の電荷分布^[29]。
電子は AIP 層に、正孔は GaP 層にそれぞれ局在したタイプ II 型の特徴を示す。

の発光ピークをバンド端励起子からのゼロフォノン発光、不純物準位からの発光、格子欠陥に関する発光であると同定し、間接型光学遷移で通常見られるフォノンを介した発光であるフォノンレプリカが観測されないことから、準直接遷移型への変換が実現しているのではないかと予想している。また Nabetani 等^[62] は、超格子周期を $m,n=1,2,3$ の範囲で乱した (disordered) GaP/AIP (m,n) 超格子を作製し、乱

れない(2.2)超格子よりも強い発光を示すとの報告を行っている。そして最近、Uchida等^[68]によって、GaP/AIP短周期超格子のヘテロ界面に垂直に磁場を加えた場合に、磁場の増加とともに発光強度が急激に減少し、発光ピークが低エネルギーシフトするという特異な現象が見いだされた。彼らは、伝導帯X点電子の有効質量の異方性により、磁場による X_z-X_{xy} 交差が起きている可能性を指摘した。さらに、タイプII特有の、異なる層に空間分離された電子と正孔が、ヘテロ界面の揺らぎ等に捕らえられて形成する束縛励起子状態が、磁場依存性に関係している可能性も付け加えている。このように、GaP/AIP短周期超格子の電子構造は、理論と実験の両面において、十分理解されているとは言えない状況であり、準直接遷移型への変換の可能性については、驚くべき発光と内包する重要性にもかかわらず、実験的な確認すらほとんど得られていないのが現状である。さらに、準直接遷移型への変換がどの程度発光に寄与するのについても、まったく未解明のまま今日に至っている。

2.3 量子井戸

直接遷移型半導体の光エレクトロニクスデバイスへの応用を考えると、電子と正孔を空間的に接近させ、再結合確率をあげるためには、電子と正孔を確実に井戸層内に閉じこめることが重要であり、超格子構造における成長方向の電子あるいは正孔のトンネリングは本質的ではない。GaAs系量子井戸レーザーや光双安定素子など、多くの光エレクトロニクスデバイスが量子井戸構造をとるのは、まさにこのためである。(なかにはトンネリングの効果を積極的に生かしたデバイスもあり、GaAs/AlGaAs超格子アバランシオフォトダイオードなどがある。)間接遷移型半導体の量子井戸構造では、SiGe/Si歪み量子井戸が有名であり、基板の面方位とGe組成によってバンド不連続量と伝導帯下端の電子状態が変化し、タイプI型にもタイプII型にもなる。そして、発光性の量子井戸はやはりタイプI型であり、電子と正孔が面内

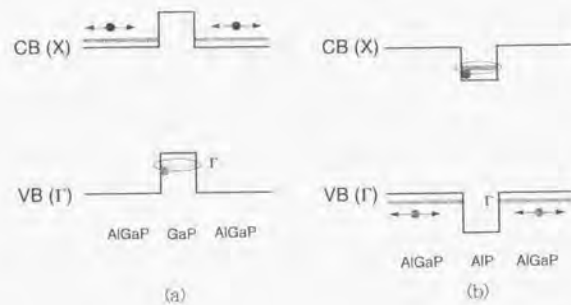


図2.8 (a) AlGaP/GaP/AlGaP単一量子井戸と、(b) AlGaP/AIP/AlGaP単一量子井戸のエネルギー構造図。
GaP/AIP系の場合、単純な量子井戸構造では、一方のキャリアのみ局在するために、発光には不利な構造であると予想される。

圧縮歪みを受けたSiGe層に閉じこめられることにより、フォノン放出を伴わない間接遷移による強い励起子発光が起こることが報告されている^[20]。しかし、電子と正孔が空間的に異なるタイプII半導体の場合、量子井戸構造では、一方のキャリアは井戸層に閉じこめられるが、もう一方のキャリアは、障壁層に広がってしまうことになる。たとえば、GaPをAlGaPで挟んだ構造は、価電子帯の頂上GaP層、伝導帯の底がAlGaP層となり、正孔のみがGaP層に閉じこめられ、正孔に対する量子井戸を形成する。(十分な厚みのAIPを障壁層にすると試料の劣化が激しいので、AlGaPを障壁層として用い、AIP量子井戸についても比較のために、AlGaPを障壁層とした。)また、AIPをAlGaPで挟んだ構造の場合、価電子帯の頂上AlGaP層、伝導帯の底がAIP層となり、AlGaP層が電子に対してバリアとして働き、電子のみがAIP層に閉じこめられることになり、何れの量子井戸構造も電子と正孔が空間的に分離される(図2.8)。そのために、どちらの量子井戸の場合も発光は非常に弱いことが予想され、知る限りにおいて、これまで報告された実験例はない。

2.4 隣接閉じこめ構造

Issik等^[25]は、GaP/AIP系量子井戸構造における電子と正孔の空間分離をさけるために、GaP/AIPヘテロ接合を両側からAlGaP層で挟んだ構造を提案し、隣接閉じこめ構造(Neighboring Confinement Structure: NCS)と名付けた。図2.9に、そのエネルギー構造を示す。この構造の特徴は、電子に対してはAlGaP層とGaP層がバリアとして働き、正孔に対してはAlGaP層とAIP層がバリアとして働くために、電子がAIP層に局在し、正孔が隣のGaP層に局在することになり、GaP層とAIP層が十分薄い場合、電子と正孔がヘテロ界面を挟んで局在し、それぞれの波動関数の重なりが増大することが期待できる。実際、彼らはGSMBE法によりAIP層25Å、GaP層6Åの隣接閉じこめ構造を作製し、単周期にもかわらず、300周期のGaP/AIP(3.5,3.5)超格子を上回る強い発光を観測した(図2.10)。また、発光強度の温度依存性から活性化エネルギーを見積ると、超格子の約15meVに対して、隣接閉じこめ構

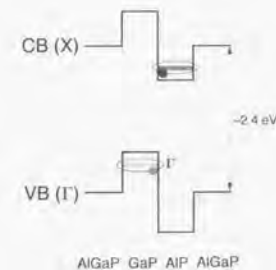


図2.9 AlGaP/GaP/AIP/AlGaP隣接閉じこめ構造のエネルギー構造図。
電子がAIP層に局在し、正孔が隣のGaP層に局在することになり、電子と正孔がヘテロ界面を挟んで隣り合う層に局在化される。

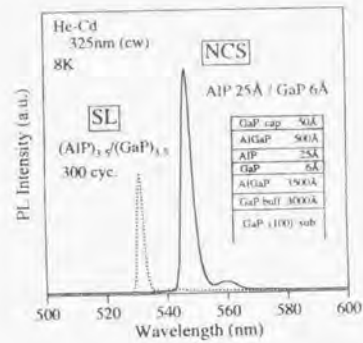


図 2.10 AlP 層 25 Å、GaP 層 6 Å の AlGaP/GaP/AIP/AlGaP 隣接閉じこめ構造からの発光と GaP/AIP (3.5,3.5) 超格子からの発光スペクトル^[25]。隣接閉じこめ構造からの発光は、単周期にもかかわらず、300 周期の GaP/AIP (3.5,3.5) 超格子を上回る強い発光を示している。

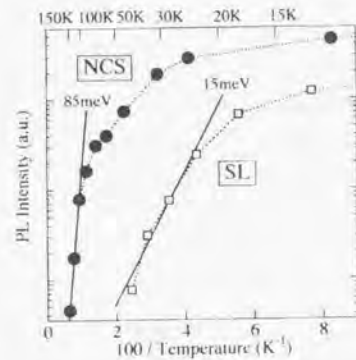


図 2.11 AlP 層 25 Å、GaP 層 6 Å の AlGaP/GaP/AIP/AlGaP 隣接閉じこめ構造と GaP/AIP (3.5,3.5) 超格子の発光強度の温度依存性^[25]。隣接閉じこめ構造からの発光の温度特性は、超格子構造に比べ大幅に改善されている。

造の場合 85 meV となり、温度特性が大幅に改善されていると報告している (図 2.11)。このように、隣接閉じこめ構造から、超格子構造を越える強い発光が観測されたことは、ブリュアンゾーンの折り返しによる準直接遷移型への変換が、必ずしも発光性に必要でないことを意味しており、その起源の解明が待たれている。

第 3 章

半導体ヘテロ構造の光学的性質と磁場及び圧力の効果

3.1 半導体ヘテロ構造

- 3.1.1 自由電子の状態密度と次元性
- 3.1.2 2次元電子のエネルギー準位
- 3.1.3 超格子構造
- 3.1.4 重い正孔と軽い正孔

3.2 励起子

- 3.2.1 次元性
- 3.2.2 自由電子の磁場効果
- 3.2.3 励起子の磁場効果

3.3 バンド間遷移

- 3.3.1 電気双極子遷移
- 3.3.2 量子井戸

3.4 圧力

- 3.4.1 静水圧
- 3.4.2 一軸応力

3.5 発光現象

- 3.5.1 発光過程と関連する物理
- 3.5.2 発光の温度依存性
- 3.5.3 発光の励起光強度依存性
- 3.5.4 発光寿命と遷移型

3.6 GaP/AIP ヘテロ構造

- 3.6.1 X点電子

3.6.2 磁場の効果
3.6.3 圧力の効果

半導体ヘテロ構造における低次元電子系の特徴を説明し、磁場と圧力がバンド構造や励起子状態にどのような効果をもたらすのか、GaP/AIP ヘテロ構造の励起子発光を中心に説明する。併せて、関連する物理について、紹介する。

3.1 半導体ヘテロ構造

3.1.1 自由電子の状態密度と次元性

自由電子の状態密度は、各次元における単位空間内に電子を置き、その波動関数に周期的境界条件を課すことによって、波数空間での許される状態数をエネルギーの関数として求めることによって得られる。たとえば、2次元の場合、面積 $S = L_x \times L_y$ の中にいる電子を考えると、その波動関数は平面波を用いて、

$$\phi_{mn}(\mathbf{R}) = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y}} e^{i(k_x x + k_y y)} = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\mathbf{K} \cdot \mathbf{R}} \quad (3.1)$$

と表せ、周期的境界条件により2次元波数空間での許される \mathbf{K} の値は、

$$\mathbf{K} = \left(\frac{2\pi m}{L_x}, \frac{2\pi n}{L_y} \right) \quad (m, n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (3.2)$$

となる。1つの状態の占有面積は、 $(2\pi/L_x)(2\pi/L_y) = (2\pi)^2/S$ となるので、状態数はスピン自由度を入れて、 $N_{2D}(\mathbf{K}) = 2S/(2\pi)^2$ となり、単位空間あたりの状態密度は $n_{2D}(\mathbf{K}) = 2/(2\pi)^2$ 、波数 K から $K + \delta K$ の間の状態数は、 $n_{2D}(K) \times 2\pi K \delta K = (K/\pi) \delta K$ となる。ここで、エネルギー E と波数 K とは、 $E = \hbar^2 K^2/2m$ の関係があるから、エネルギー E から $E + \delta E$ の間の状態数としても表すことができ、

$$N_{2D}(E) \delta E = N_{2D}(E) \frac{dE}{dK} \delta K = N_{2D}(E) \frac{\hbar^2 K}{m} \delta K \quad (3.3)$$

結局、2次元自由電子の状態密度は、

$$N_{2D}(E) = \frac{m}{\pi \hbar^2} \quad (3.4)$$

で与えられる。

1次元、3次元の場合も同様にして求めると、

$$N_{1D}(E) = \frac{1}{\pi \hbar} \sqrt{\frac{2m}{E}} \quad (3.5)$$

$$N_{3D}(E) = \frac{m \sqrt{2mE}}{\pi^2 \hbar^3} \quad (3.6)$$

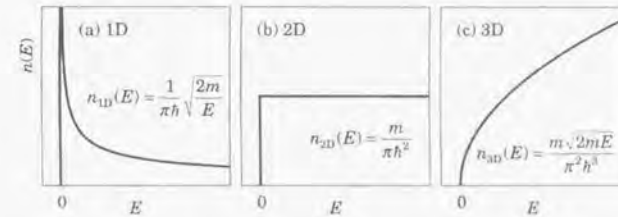


図 3.1 (a) 1次元、(b) 2次元、(c) 3次元における自由電子の状態密度 [38]。

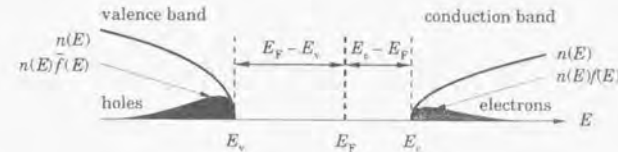


図 3.2 3次元半導体の電子と正孔の状態密度 [38]。

が得られる。図3.1は各次元における自由電子の状態密度を示している。現実の系では、許される複数の量子準位に対応した状態密度を足しあわせることになり、たとえば3次元半導体における電子と正孔の状態密度は、図3.2に示したようになる。

3.1.2 2次元電子のエネルギー準位

次に、電子を擬2次元面内に閉じこめた場合のエネルギー準位を求める。3次元 Schrödinger 方程式

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\mathbf{R}) \right] \psi(\mathbf{R}) = E \psi(\mathbf{R}) \quad (3.7)$$

において、電子が z 方向に閉じこめられたとすると、 $V(\mathbf{R}) = V(z)$ とおけるから、

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V(z) \right] \psi(x, y, z) = E \psi(x, y, z) \quad (3.8)$$

となる。このとき、波動関数は

$$\psi(x, y, z) = e^{ik_x x} e^{ik_y y} u(z) \quad (3.9)$$

と書けるので、波動関数の z 成分のみが残って、

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} + V(z) \right] u(z) = \left[E - \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m} - \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m} \right] u(z) \quad (3.10)$$

となる。ここで、

$$\varepsilon = E - \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m} - \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m} \quad (3.11)$$

とすると、

$$\left[\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dz^2} + V(z) \right] u(z) = \varepsilon u(z) \quad (3.12)$$

となつて、1次元 Schrödinger 方程式の形に帰着する。よつて量子化エネルギー単位は、

$$E(k_x, k_y) = \varepsilon + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m} \quad (3.13)$$

となる。今、無限に深いポテンシャルを考え、

$$V(z) = \begin{cases} 0 & |z| < \frac{a}{2} \\ \infty & |z| > \frac{a}{2} \end{cases} \quad (3.14)$$

とすると、波動関数は、

$$\psi_{k_x, k_y, n}(x, y, z) = \begin{cases} \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{a}} e^{ik_x x} e^{ik_y y} \cos \frac{n\pi z}{a} & n = \text{odd} \\ \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{a}} e^{ik_x x} e^{ik_y y} \sin \frac{n\pi z}{a} & n = \text{even} \end{cases} \quad (3.15)$$

と書け、エネルギー単位は、

$$E_n(k_x, k_y) = \frac{\hbar^2 (n\pi/a)^2}{2m} + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m} \quad (3.16)$$

で与えられる。このように z 方向のエネルギーが離散的な準位 E_n に量子化されるが、 xy 方向は依然として自由電子的なエネルギー分散を持つ。これらのエネルギーバンドは、2次元サブバンドと呼ばれている。実際の2次元量子井戸では結晶格子があり、電子はその格子ポテンシャルとヘテロ構造によるポテンシャルを感じている。しかし、格子間隔に比べて十分ゆっくりした摂動として量子井戸ポテンシャルが考えられる場合、質量 m^* の電子が量子井戸ポテンシャルの中を自由に運動しているとした Schrödinger 方程式で記述することができ、電子の波動関数は $k=0$ のブロッホ関数と包絡線関数の積で近似される。つまり、格子ポテンシャルの影響は、電子の有効質量の中に取り込められる(有効質量近似)。図3.3に、幅10nmの無限障壁GaAs量子井戸のエネルギー準位と波動関数、エネルギー分散、状態密度の計算例を示す。

3.1.3 超格子構造

量子井戸が1次元方向に周期的に並んだいわゆる超格子構造での電子状態は、Kronig-Penney モデルを用いて調べることができる。井戸層の厚みが w 、障壁層の厚みが b 、ポテンシャルの高さが V_0 の無限周期ポテンシャルを考える。このとき超格子周期は $a = b + w$ となる。今、超格子の周期的な障壁層に対する T 行列を考え、原点の障壁の隣の障壁層の透過行列を表すと、

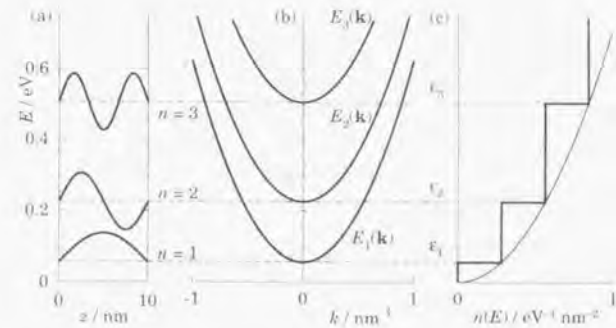


図3.3 幅10nmの無限障壁GaAs量子井戸の(a)エネルギー準位と波動関数、(b)エネルギー分散、(c)状態密度^[38]。

$$T_1 = \begin{bmatrix} e^{-ik_1 a} & 0 \\ 0 & e^{ik_1 a} \end{bmatrix} T_0 \begin{bmatrix} e^{ik_1 a} & 0 \\ 0 & e^{-ik_1 a} \end{bmatrix} = A^{-1} T_0 A \quad (3.17)$$

となり、次々に透過行列の範囲を広げると、結局

$$T = \dots (A^{-2} T_0 A^2) (A^{-1} T_0 A) T_0 (A T_0 A^{-1}) (A^2 T_0 A^{-2}) \dots \\ = \dots (A T_0) (A T_0) (A T_0) (A T_0) (A T_0) \dots \quad (3.18)$$

となり、 $A T_0$ の積の形に還元される。1次元の単一障壁による透過行列 T は、透過強度 t 、反射強度 r を用いて、

$$T = \begin{bmatrix} \frac{1}{t^*} & \frac{r^*}{t^*} \\ r & \frac{1}{t} \end{bmatrix} \quad (3.19)$$

で表されるから、

$$A T_0 = \begin{bmatrix} e^{-ik_1 a} & 0 \\ 0 & e^{ik_1 a} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{1}{t^*} & \frac{r^*}{t^*} \\ r & \frac{1}{t} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{e^{-ik_1 a}}{t^*} & \frac{e^{-ik_1 a} r^*}{t^*} \\ r & \frac{e^{ik_1 a}}{t} \end{bmatrix} \quad (3.20)$$

となり、この行列式が固有値を持つための条件式は、

$$\cos ka = \text{Re} \left[\frac{1}{te^{ik_1 a}} \right] = \text{Re} \left[\frac{2k_1 k_2 \cos k_2 b - i(k_1^2 + k_2^2) \sin k_2 b}{2k_1 k_2 e^{-ik_1 b} e^{ik_1 a}} \right] \quad (3.21)$$

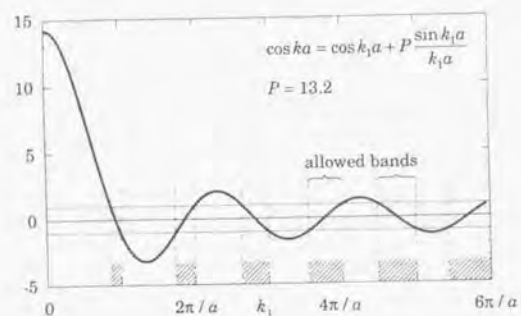


図 3.4 Kronig-Penney モデルの解の一例^[38]。
 $S = 0.13 \text{ eV} \times 5 \text{ nm}$, $a = 10 \text{ nm}$, $m = 0.067 m_0$ (GaAs) の場合について計算している。

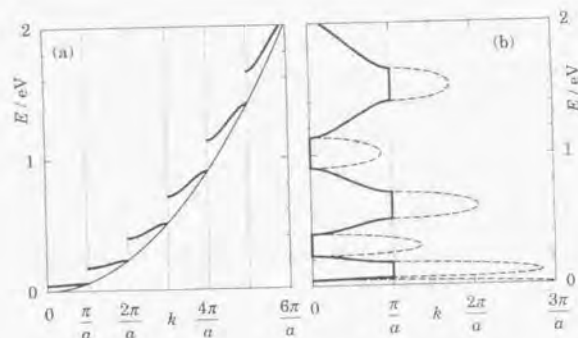


図 3.5 Kronig-Penney モデルによるミニバンドの分散関係^[38]。
 (a) が拡張帯域方式で、(b) が還元帯域方式による。超格子構造の導入により、エネルギーの禁制領域 (ミニギャップ) が現れる。

となる。簡単のために $V_0 b = S$ とおいて、 $S = \text{一定のまま } V_0 \rightarrow \infty$ とすると $b \rightarrow 0$ となり、(3.21) 式は、

$$\cos ka = \cos k_1 a + \left(\frac{maS}{\hbar^2} \right) \frac{\sin k_1 a}{ka} \quad (3.22)$$

となる。この式が解を持つための条件を、 $S = 0.13 \text{ eV} \times 5 \text{ nm}$, $a = 10 \text{ nm}$, $m = 0.067 m_0$ の場合について調べてみると、図 3.4 に示すように、エネルギーの禁制領域が現れる。これは、界面に垂直な波数 k_1 が π/a の整数倍に等しくなると、ブラッグ反射により定在波が立たなくなることに起因する。これらのギャ

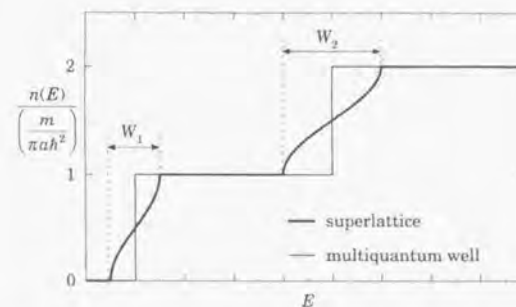


図 3.6 超格子と多重量子井戸の状態密度^[38]。
 量子井戸構造におけるサブバンド形成による状態密度の階段的なとびが、超格子構造ではなまっている。

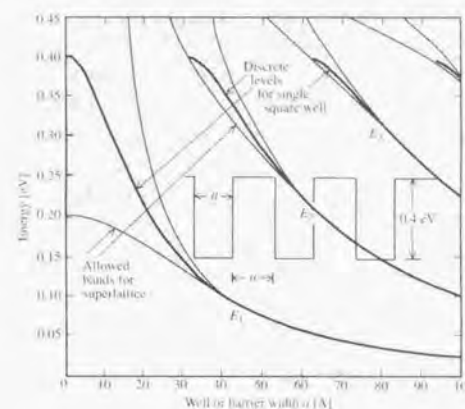


図 3.7 0.4 eV のポテンシャル障壁層をもち、井戸層、障壁層の厚みがともに a 人、有効質量 $0.1 m_0$ の超格子の場合のエネルギー単位の計算結果^[42]。

ップをミニギャップと呼び、分裂したバンドをミニバンドと呼んでいる。図 3.5 に、エネルギーバンドの分散関係を拡張帯域方式と還元帯域方式で示す。ここで、バンドのエネルギー分散を、

$$e(k) = \frac{1}{2} W(1 - \cos ka) = W \sin^2 \frac{ka}{2} \quad (3.23)$$

で近似すると、状態密度は、

$$n_{2D}(E) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} n_{1D}^{(SL)}(\epsilon) n_{2D}(E-\epsilon) d\epsilon = \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} n_{1D}^{(SL)}(\epsilon) d\epsilon$$

$$= \frac{m}{2\pi\hbar^2} \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{\pi} \arcsin \frac{E - \frac{1}{2}W}{\frac{1}{2}W} \right)$$
(3.24)

で与えられ、量子井戸の状態密度と比較すると、サブバンド形成による状態密度のとびが、バンド幅 W で、なまっていることがわかる (図 3.6)。また、図 3.7 に 0.4 eV のポテンシャル障壁層をもち、井戸層、障壁層の厚みがともに $a \text{ \AA}$ 、有効質量がともに $0.1 m_0$ である超格子の場合の、エネルギー単位の周期依存性を示す。尚期が短くなるにつれて、量子井戸構造に由来する離散的エネルギー準位が幅を持ち、ミニバンドを形成する様子がわかる。

3.1.4 重い正孔と軽い正孔

III-V 族半導体の価電子帯上端は Γ 点にあり、本来は角運動量 $L = 1$ の p 軌道の対称性をもつ 3 つの状態が、スピン自由度を含めて 6 重に縮退している。それらが、スピン軌道相互作用によって、全角運動量 $J = 3/2$ ($J_z = \pm 3/2, \pm 1/2$) と $J = 1/2$ ($J_z = \pm 1/2$) の 2 つのエネルギーに分かれ、後者はスピン軌道分裂エネルギー Δ だけ、価電子帯のさらに奥深くにバンドを形成する (Split-Off Band)。GaP の場合の分裂の大きさは $\Delta = 80 \text{ meV}$ 、AlP の場合、 $\Delta = 50 \text{ meV}$ 程度である。

価電子帯の複雑なバンド構造を調べる手法として $k \cdot p$ 摂動法が用いられる。スピン軌道分裂が十分大きいとして、価電子帯上端の状態への影響を無視すると、4 重縮退した全角運動量 $J = 3/2$ の状態を基底とする 4×4 の $k \cdot p$ 有効質量ハミルトニアンを対角化することにより、エネルギー準位が計算できる。基底関数として、

$$\begin{aligned} \left| \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (X + iY) |\uparrow\rangle \\ \left| \frac{3}{2}, +1 \right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{6}} [(X + iY) |\downarrow\rangle - 2Z |\uparrow\rangle] \\ \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{6}} [(X - iY) |\uparrow\rangle + 2Z |\downarrow\rangle] \\ \left| \frac{3}{2}, -1 \right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (X - iY) |\downarrow\rangle \end{aligned}$$
(3.25)

をとる。 $k \cdot p$ 有効質量ハミルトニアンは、

$$H_{4 \times 4} = \begin{bmatrix} \frac{1}{2}P & L & M & 0 \\ L^* & \frac{1}{6}P + \frac{2}{3}Q & 0 & M \\ M^* & 0 & \frac{1}{6}P + \frac{2}{3}Q & -L \\ 0 & M^* & -L^* & \frac{1}{2}P \end{bmatrix}$$
(3.26)

で与えられ、

$$P = \frac{\hbar^2}{m_0} [(\gamma_1 + \gamma_2)(k_x^2 + k_y^2) + (\gamma_1 - 2\gamma_2)k_z^2]$$

$$Q = \frac{\hbar^2}{2m_0} [(\gamma_1 - 2\gamma_2)(k_x^2 + k_y^2) + (\gamma_1 + 4\gamma_2)k_z^2]$$
(3.27)

$$L = -\frac{\sqrt{3}\hbar^2}{2m_0} \gamma_3 (k_x - ik_y)k_z$$

$$M = -\frac{\sqrt{3}\hbar^2}{2m_0} [\gamma_2(k_x^2 - k_y^2) - 2i\gamma_3 k_x k_y]$$

である^[43]。ここで $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$ は Luttinger の物質パラメータである。このハミルトニアンを対角化して、エネルギー固有値を求めると、

$$E(k) = \frac{\hbar^2}{2m_0} \left\{ \gamma_1^2 k^2 \pm \sqrt{4\gamma_2^2 k^4 + 12(\gamma_1^2 - \gamma_2^2)(k_x^2 k_y^2 + k_x^2 k_z^2 + k_y^2 k_z^2)} \right\}$$
(3.28)

となり、(100) 方向の有効質量は、

$$m_{hh}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 \mp 2\gamma_2}$$
(3.29)

となって、重い正孔状態と軽い正孔状態があることがわかる。また、これらの Γ 点近傍におけるエネルギー分散は k^2 には比例しておらず、非放物線性がさらに物理を複雑にしている (図 3.8)。

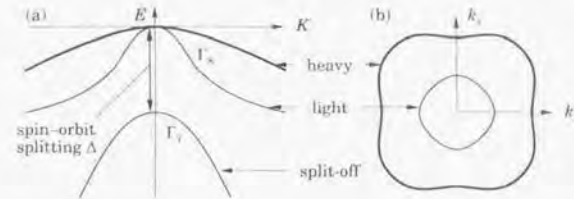


図 3.8 (a) 重い正孔と軽い正孔のエネルギー分散と、(b) ヘテロ界面の等エネルギー面^[38]。重い正孔が p_x -like、 p_y -like な軌道をベース関数とするのに対して、軽い正孔は p_z -like な軌道をベース関数としている。

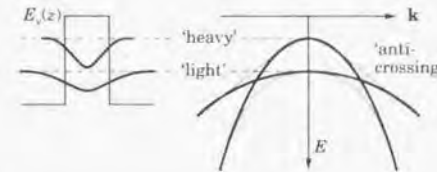


図 3.9 量子井戸中の正孔バンドのエネルギー分散^[38]。量子井戸中では、重い正孔の面内の質量は、軽い正孔よりもむしろ軽い。

量子井戸構造での価電子帯の場合、 z 方向の閉じこめポテンシャルのために、 z 方向に重い有効質量をもつ重い正孔が、軽い正孔よりも深い束縛状態を作るために、縮退が解ける。そして、Luttinger model によると、 xy 面内での有効質量は、

$$m_{\text{eff}}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 \pm \gamma_2} \quad (3.30)$$

となり、2次元電子系では、重い正孔の方が面内ではむしろ軽いということになり、二つの状態がミキシングしている(図3.9)。これは、重い正孔が p_x -like、 p_y -like な軌道をベース関数とするのに対して、軽い正孔は p_z -like な軌道をベース関数としていることに由来するものである。

3.2 励起子

3.2.1 次元性

絶縁体結晶での電子励起状態の量子(素励起)である励起子は、価電子帯の電子を光などによって励起したときに、伝導帯電子と、価電子帯に生成される正孔とのクーロン相互作用によって生じる束縛状態であり、電子分極波として結晶中を伝播し、励起子バンドを形成する。励起子のエネルギーは電子・正孔の重心運動成分と相対運動成分に分けられ、重心運動は電気的な中性粒子として、そのエネルギーを結晶中に運ぶことができる。そして、相対運動の波動関数の広がり、結晶の格子間隔との大小関係で大まかに3つの種類に分けられる(図3.10)。相対運動の波動関数の広がり、結晶の格子間隔に比べてかなり大きく、重心は単に並進運動していると見なせる場合の励起子をモット・ワニエ励起子と呼ぶ。その束縛エネルギーは水素原子型のエネルギー準位(リドベルグ準位)を持つ。イオン結晶、イオン性半導体中に多く見られ、 Cu_2O の光吸収スペクトルに現れる黄色系列励起子は有名である^[40]。また、相対運動の波動関数の広がり、結晶の格子間隔に比べて小さく、原子内あるいは分子内の電子分極波とみなせる場合の励起子をフレネル励起子と呼ぶ。このとき、励起子の重心運動は、格子点を共鳴的に移動する。分子間の結合が弱いファン・デア・ワールス力によっている分子性結晶中の励起子がこの典型である^[41]。さらに、原子波動関数の重なりが無視できない場合、すなわち、励起された電子が隣接する原子に移動した

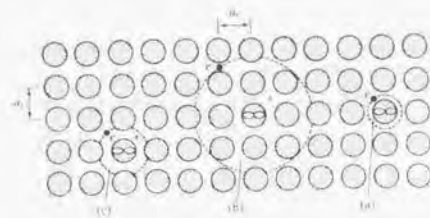


図3.10 (a) フレネル励起子、(b) モット・ワニエ励起子、(c) 電荷移動励起子^[39]。励起子波動関数の相対運動の広がり、格子間隔との関係を模式的に表している。

電荷移動状態を考慮する必要がある場合の励起子を電荷移動励起子と呼んでおり、対極にあるモット・ワニエ励起子とフレネル励起子の中間に位置すると言える。最近の例では、 C_{60} 結晶中の励起子が電荷移動型であると言われている。

半導体中の励起子ボア半径が格子間隔よりもかなり大きい場合(モット・ワニエ励起子)、電子-正孔のクーロン相互作用は、結晶ポテンシャルに対してゆるやかな摂動と見なしてよく、さらに電子帯構造の放射線性が高い場合、有効質量近似で扱うことができる。この場合、励起子状態を記述する2次元 Schrödinger 方程式は、

$$\left[\left(E_c - \frac{\hbar^2}{2m_0 m_e} \nabla_c^2 \right) - \left(E_v + \frac{\hbar^2}{2m_0 m_h} \nabla_h^2 \right) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 \epsilon_s |\mathbf{R}_c - \mathbf{R}_h|} + V_c(\mathbf{R}_c) + V_h(\mathbf{R}_h) \right] \psi(\mathbf{R}_c, \mathbf{R}_h) = E \psi(\mathbf{R}_c, \mathbf{R}_h) \quad (3.31)$$

となる。ここで、 E_c は伝導帯のエネルギー、 E_v は価電子帯のエネルギー、 V_c 、 V_h はそれぞれ電子、正孔を閉じこめる伝導帯および価電子帯のポテンシャルであり、量子井戸中の励起子と考え、ヘテロ界面に垂直な方向である z の関数である。このハミルトニアンを解析的に解くことはできず、変分法によって、励起子波動関数およびエネルギー準位が計算されている。

そこで、今は、3次元結晶を自由に運動する励起子を考える。この場合、Schrödinger 方程式は、励起子の重心運動と相対運動とに完全に分離することができる。励起子の重心座標 \mathbf{R}_{CM} と、相対座標 \mathbf{R} は

$$\mathbf{R}_{CM} = \frac{m_e \mathbf{R}_c + m_h \mathbf{R}_h}{M}, \quad M = m_e + m_h \quad (3.32)$$

$$\mathbf{R} = \mathbf{R}_c - \mathbf{R}_h$$

となり、換算質量を μ とすると、

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \quad (3.33)$$

であるから、励起子状態を記述する Schrödinger 方程式は、

$$\left[\left(-\frac{\hbar^2}{2m_0 M} \nabla_{CM}^2 \right) + E_g - \frac{\hbar^2}{2m_0 \mu} \nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 \epsilon_s R} \right] \psi(\mathbf{R}_{CM}, \mathbf{R}) = E \psi(\mathbf{R}_{CM}, \mathbf{R}) \quad (3.34)$$

で表せられ、結局、

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_0 M} \nabla_{CM}^2 \right) \phi_{CM}(\mathbf{R}_{CM}) = E_{CM} \phi_{CM}(\mathbf{R}_{CM}) \quad (3.35)$$

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_0 \mu} \nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 \epsilon_s R} \right) \phi(\mathbf{R}) = (E - E_g) \phi(\mathbf{R})$$

となり、重心運動と相対運動は切り離される。ここで重心運動成分については、自由粒子の Schrödinger 方程式であるから、

$$\phi_{CM}(\mathbf{R}_{CM}) = \sqrt{\frac{1}{N}} e^{i\mathbf{K}_{CM} \cdot \mathbf{R}_{CM}} \quad (3.36)$$

$$E_{CM} = \frac{\hbar^2 K_{CM}^2}{2m_0 M}$$

となる。しかし、励起する光の波数は結晶中の電子の波数に対して、無視できるほど小さいので、励起子の重心運動の波数ベクトルは $K_{CM} = 0$ とおける。また、相対運動の方は、水素原子型の Schrödinger 方程

式になっているので、エネルギー単位は有効リドベルグ定数を R_s^* とすると、

$$E_n^{(3D)} = E_g - \frac{R_s^*}{n^2} \quad R_s^* = \frac{m_0 \mu}{2} \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s \hbar} \right)^2 \quad (3.37)$$

となる。このとき、励起子の有効ボーア半径は、

$$a_n^{(3D)} = \frac{4\pi\epsilon_0\epsilon_s \hbar^2}{e^2 m_0 \mu} \quad (3.38)$$

で与えられる。このように、エネルギーギャップよりも低いエネルギー位置に、励起子準位と呼ばれる不連続なエネルギー準位が形成される。しかし、有限温度では、多くの場合、フォノンのエネルギーが励起子束縛エネルギーよりも大きくなるために、フォノン散乱による吸収線幅の増大が起こり、励起子準位は観測できなくなる。

2次元励起子の場合と同様の取り扱いにより、2次元水素原子型のハミルトニアンとなる。エネルギー準位と励起子ボーア半径は、それぞれ

$$E_n^{(2D)} = E_g - \frac{R_s^*}{\left(n - \frac{1}{2}\right)^2} \quad R_s^* = \frac{m_0 \mu}{2} \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s \hbar} \right)^2 \quad (3.39)$$

$$a_n^{(2D)} = \frac{2\pi\epsilon_0\epsilon_s \hbar^2}{e^2 m_0 \mu} = \frac{1}{2} a_n^{(3D)}$$

で与えられ、2次元励起子の励起子ボーア半径は3次元の場合の1/2倍となり、束縛エネルギーは、

$$R_s^{*(2D)} = 4R_s^{*(3D)} \quad (3.40)$$

となって3次元の場合の4倍となる。また振動子強度も増大するために、低次元化によって、励起子効果が大きく表れることになる^[44]。また、有限の井戸幅を持つ擬2次元励起子系については、Bastard等^[45]、Greene等^[46]、Shinozuka等^[47]が有効質量近似で励起子ハミルトニアンを記述し、変分法によって固有波動関数、固有エネルギーを計算している。

1次元系では、電子-正孔のクーロンポテンシャルが、原点でマイナス無限大に発散することから、理論的な取り扱いが困難であるが、原点の発散をカットオフした「正規化されたクーロンポテンシャル」を用いて計算すると、電子-正孔のクーロン引力は、高次元よりも大きくなり、低次元性が励起子効果を増大させることが予想されている。

励起子効果は、バンドギャップの直下に不連続な束縛準位を形成するばかりではなく、バンドギャップよりも高いエネルギー領域においても連続状態密度に影響を与える(図3.11)。これはSommerfeld factorと呼ばれており、 $W = (\hbar\omega - E_g)/R_s^*$ とすると、3次元、2次元の場合、それぞれ

$$\begin{aligned} |\phi^{(3D)}(\mathbf{R}=0)|^2 &= \frac{2\pi}{\sqrt{W}} \frac{1}{1 - e^{(-2\pi/\sqrt{W})}} \\ |\phi^{(2D)}(\mathbf{R}=0)|^2 &= \frac{2}{1 + e^{(-2\pi/\sqrt{W})}} \end{aligned} \quad (3.41)$$

となる。

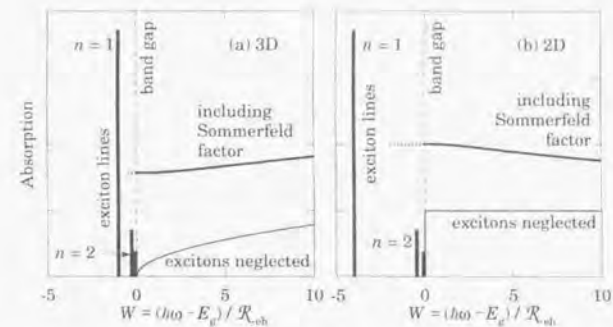


図3.11 (a) 3次元および(b) 2次元励起子準位による吸収スペクトルへの影響^[38]。

3.2.2 自由電子の磁場効果

荷電粒子の磁場効果を考える際に直感的に思い浮かぶのは、古典的なサイクロトロン運動である。電子に電磁場を加えると、

$$\mathbf{F} = -e(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (3.42)$$

で表せるローレンツ力が働く。磁場だけを考えて、電子に対する向心力となるために、電子は磁場と垂直な面内でサイクロトロン振動数 ω_c 、

$$\omega_c = \left| \frac{e\mathbf{B}}{m} \right| \quad (3.43)$$

で円運動をする。また、このときのサイクロトロン半径 R_c は、運動エネルギーを E とすると、

$$R_c = \frac{v}{\omega_c} = \frac{\sqrt{2mE}}{|e\mathbf{B}|} \quad (3.44)$$

で与えられる。

次に、3次元自由電子に磁場を加えた場合について量子力学的に考えてみる。古典電磁気学において電子の運動を完全に決めることができる電場 \mathbf{E} と磁場 \mathbf{B} は、量子力学においてはベクトルポテンシャル \mathbf{A} とスカラーポテンシャル ϕ に姿を変え、その効果を表すことになる。すなわち、

$$\begin{aligned} \mathbf{B} &= \nabla \times \mathbf{A} \\ \mathbf{E} &= -\nabla\phi - \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \end{aligned} \quad (3.45)$$

として、例えば、電磁場中での電荷 q の1粒子 Schrödinger 方程式

$$\left[\frac{1}{2m} (\hat{\mathbf{p}} - q\mathbf{A}(\mathbf{R}, t))^2 + q\phi(\mathbf{R}, t) \right] \Psi(\mathbf{R}, t) = i\hbar \frac{d}{dt} \Psi(\mathbf{R}, t) \quad (3.46)$$

に取り込まれる。今、時間的に不変な磁場 \mathbf{B} が z 方向にかかっているときを考える。ランダウゲージと呼

ばれるベクトルポテンシャルの取り方

$$\mathbf{A} = (0, Bx, 0) \quad (3.47)$$

を選ぶと、Schrödinger 方程式は、

$$\frac{1}{2m} \left[-\hbar^2 \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \left(-i\hbar \frac{\partial}{\partial y} + eBx \right)^2 - \hbar^2 \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] \psi(\mathbf{R}) = E \psi(\mathbf{R}) \quad (3.48)$$

$$\left[\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \frac{i\hbar Bx}{m} \frac{\partial}{\partial y} + \frac{(eBx)^2}{2m} \right] \psi(\mathbf{R}) = E \psi(\mathbf{R})$$

となる。ハミルトニアンの中で z 成分は磁場に対して影響されないで、 xy 面内の運動のみを考えることにする。また、微分演算子を含まない項は x だけに依存している。よ方向には自由運動をしていることがわかる。そこで、波動関数を、

$$\psi(\mathbf{R}) = \psi(x) e^{iky} \quad (3.49)$$

と書くことができ、結局、

$$\left[\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dx^2} + \frac{m\omega_c^2}{2} \left(x + \frac{\hbar k}{eB} \right)^2 \right] \psi(x) = E \psi(x) \quad (3.50)$$

となり、振動数 ω_c で振動中心が $-\hbar k/eB$ だけずれた 1 次元調和振動子の式と等価になる。ここで、位置座標のスケール因子として magnetic length l_B が、

$$l_B = \sqrt{\frac{\hbar}{m\omega_c}} = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}} \quad (3.51)$$

として定義されている。これは、10 T で約 80 Å、40 T で約 40 Å である。このときのエネルギー単位は、

$$E_{nk} = \left(n + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_c \quad (3.52)$$

となり、波動関数は

$$\phi_{nk}(x, y) \propto H_n \left(\frac{x - x_0}{l_B} \right) e^{-\frac{(x - x_0)^2}{2l_B^2}} e^{iky} \quad (3.53)$$

となる。ここで $n = 0, 1, 2, \dots$ であり、 H_n はエルミート多項式である。このように、自由電子に磁場を加えることによって、磁場に垂直な面内では調和振動子のように量子化され、 k によらず、 n のみによる離散的なエネルギー単位 (ランダウ準位) が形成される。また各準位は k に対して縮退しており、縮退度 ζ は、

$$\zeta = \frac{1}{2\pi l_B^2} = \frac{eB}{h} \quad (3.54)$$

で与えられる。

2次元系の場合、伝導電子が散乱を受けない理想的な完全結晶では、ランダウ準位の状態密度は δ 関数的である。しかし、実際には不純物や格子欠陥などによって散乱を受け、スペクトルは幅をもつようになる。ここで、電子が散乱されずに運動できる時間を τ とすると、エネルギーと時間の不確定性からサイク

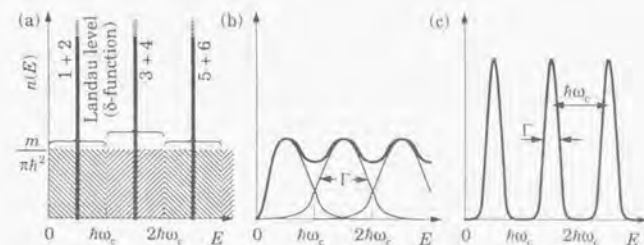


図 3.12 スピンを無視した場合の磁場中での状態密度と $\omega_c \tau$ との関係^[38]。(a) 完全結晶中の δ 関数的なランダウ準位と、現実の結晶における (b) $\omega_c \tau < 1$ の場合と、(c) $\omega_c \tau > 1$ の場合。

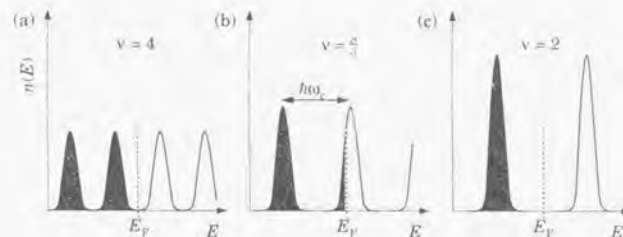


図 3.13 スピンを無視した場合の磁場中でのランダウ占有率とフェルミ準位の関係^[38]。それぞれ、ランダウ占有率 (a) $\nu=4$, (b) $\nu=8/3$, (c) $\nu=2$ の場合。

ロトン共鳴スペクトルの幅は、

$$\Delta E = \frac{\hbar}{\tau} \equiv \Gamma \quad (3.55)$$

の程度であることがわかる。また、各ランダウ準位間のエネルギー差は $\hbar \omega_c$ であるから、各スペクトルが分離して観測されるためには $\hbar \omega_c > \Gamma$ となる必要があり、書き換えれば、

$$\omega_c \tau > 1 \quad (3.56)$$

と表現できる。これは、サイクロトロン運動している電子が完全な円軌道を描く条件に他ならない。図 3.12 に磁場中での状態密度と $\omega_c \tau$ との関係を示す。

また、2次元電子(キャリア)濃度を n_{2D} とすると、伝導電子(キャリア)によるランダウ準位の占有率 ν は、

$$\nu = \frac{n_{2D}}{n_B} = \frac{\hbar n_{2D}}{eB} = 2\pi l_B^2 n_{2D} \quad (3.57)$$

で与えられ、最低のランダウ準位のみを電子（キャリア）が占有する $\nu < 1$ の状態を、強磁場量子極限と呼ぶ。半導体超格子や量子井戸等の2次元電子系では、伝導電子や正孔のキャリア濃度は金属に比べて極めて小さく、かつ散乱をほとんど受けずにキャリアがサイクロトロン運動できる程度の良質な試料であれば、比較的容易な磁場と低温下で強磁場量子極限状態が実現できる。このとき、離散的な状態密度を反映した特異な量子現象が数多く現われる。2次元電子系での輸送現象に現れる整数・分数量子ホール効果はその典型である。

3.2.3 励起子の磁場効果

次に、励起子の磁場効果について考える。この場合には、外部磁場の他に電子-正孔クーロン相互作用が加わるので、磁場とクーロン相互作用（励起子束縛エネルギー）が系を特徴づける。無次元パラメータ γ

$$\gamma = \frac{\hbar \omega_c}{R_y^*} \quad (3.58)$$

を定義すると、 $\gamma \ll 1$ ではクーロン相互作用に対して磁場を摂動とみなして良く、逆に $\gamma \gg 1$ では磁場に対してクーロン相互作用を摂動とみなして良い。

まず $\gamma \ll 1$ の弱磁場領域では自由励起子の有効質量ハミルトニアン（相対運動）は、スピン $S = \pm 1/2$ も含めて、

$$H = \frac{1}{2m_0\mu} \{ \hat{p} + eA \}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s R} + Sg\mu_0 B \quad \left(\mu_0 = \frac{e\hbar}{2m_0} \right) \quad (3.59)$$

となり、磁場方向を z にとり、symmetric gauge

$$A = \left(\frac{B}{2} y, -\frac{B}{2} x, 0 \right) \quad (3.60)$$

を使うと、結局、ハミルトニアンは

$$H = \frac{\hbar^2}{2m_0\mu} \nabla^2 + \frac{eB}{2m_0\mu} (xp_y - yp_x) + \frac{e^2 B^2}{8m_0\mu} (x^2 + y^2) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s R} + Sg\mu_0 B \quad (3.61)$$

$$= H_0 + \frac{1}{2}\omega_c L_z + \frac{1}{8}\mu_0 \omega_c^2 \rho^2 + Sg\mu_0 B \quad (\rho^2 = x^2 + y^2)$$

となる。第二項は軌道ゼーマンエネルギー、第三項は反磁性エネルギー、最終項はスピンゼーマンエネルギーである。S状態では $L_z = 0$ であるから、磁場に関係するのは反磁性項とスピンゼーマン項だけである。基底である1S状態の反磁性エネルギーの磁場依存性（反磁性シフト）は、

$$\Delta E_{1S} = \langle 1S | \frac{e^2 B^2}{8m_0\mu} (x^2 + y^2) | 1S \rangle = \beta B^2 \quad (3.62)$$

$$\beta = \frac{2\pi^2 \epsilon_0^2 \epsilon_s^2 \hbar^4}{m_0^3 \mu^3 e^2} \left(\frac{\rho^2}{a^* a_0} \right)$$

となり、磁場の2乗に比例し、また励起子の広がり（期待値 $\langle \rho^2 \rangle$ ）に比例する^[48]。同様に nS 状態は、

$$\Delta E_{nS} = \langle nS | \frac{e^2 B^2}{8m_0\mu} (x^2 + y^2) | nS \rangle = \frac{n^2(5n^2+1)}{\beta} B^2 \quad (3.63)$$

となり、高次の状態ほど反磁性シフト量は大きくなる。ここで、 $\langle \rho^2 \rangle$ は次元によって異なり、

$$\langle \rho^2 \rangle_{1S} = \frac{3}{8} a^* a_0^2 \quad (3.64)$$

$$\langle \rho^2 \rangle_{nS} = 2a^* a_0^2$$

となり、反磁性係数を測定することによって、(3.62)式から励起子有効質量 μ 、(3.37)、(3.39)式から励起子束縛エネルギー $E_B (= R_y^*)$ が求められる。しかし、実際の量子井戸や超格子では2次元と3次元の間の次元性を持つためにそう単純ではない。

次に $\gamma \gg 1$ の強磁場領域では、磁場のエネルギーに対して励起子効果は無視することができる。すなわち、励起子を構成する電子と正孔がそれぞれランダウ量子化され、(3.52)式で表される。磁場に比例するランダウ準位に漸近していく。

また $\gamma = 1$ の中間磁場領域では、理論的取り扱いが困難であるが、いくつかの計算が行われている^{[49][50]}。そして、水素原子型のリドベルグ準位からランダウ準位へエネルギー準位がどのように移行していくのかという、単位接続の問題などが研究されており、磁気量子数 $m = 0$ の準位どうしは必ず発散するという非交差則など、複雑な様相を見せることがわかっている。

Sugawara 等^{[51][52]}は、量子井戸のヘテロ界面に垂直に磁場を加えたときの励起子状態について、変分法を用いて計算している。それによると、励起子1S状態のみを考え、スピンを無視すると、励起子相対運動の有効質量方程式は、

$$\left[\frac{\hbar^2}{2m_0\mu} \nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s \rho} + \frac{e^2 B^2 \rho^2}{8m_0\mu} \right] \Psi_r = E_r \Psi_r \quad (3.65)$$

$$r = |r_e - r_h|$$

$$\rho = \sqrt{r^2 + (z_e - z_h)^2}$$

と書け、左辺第3項目は磁場の2乗に比例する反磁性項であり、 ρ は励起子半径である。励起子1S状態の相対運動の波動関数として、水素原子型と調和振動子型の波動関数の線形結合を考え^[53]、

$$\phi_{10}(r) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \left(\frac{a}{\lambda} e^{-\frac{r}{\lambda}} + \frac{b}{\eta} e^{-\frac{r^2}{\eta^2}} \right) \quad (3.66)$$

を変分関数とする。ここで、 a, b, λ, η は変分パラメータである。これより、励起子の包絡関数 $\Psi_r = \phi_{10}(r) \varphi_{e,n}(z_e) \varphi_{h,n}(z_h)$ から、励起子のエネルギー

$$\langle \Psi_r | \frac{\hbar^2}{2m_0\mu} \nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s \rho} + \frac{e^2 B^2 \rho^2}{8m_0\mu} | \Psi_r \rangle \quad (3.67)$$

を最小にするパラメータを求め、励起子基底状態の波動関数とエネルギーが求められる。図3.14は、井戸幅13.6 nmの $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 量子井戸について計算した励起子波動関数の磁場依存性を表しており、磁場によって励起子の相対運動が磁場に垂直な面内で収縮の様子がわかる。また図3.15は、磁場による励起子エネルギーの依存性を表しており、彼らの磁気吸収スペクトルの実験結果ときわめて良く一致している。弱磁場領域で磁場の2乗に比例する反磁性シフトから、より強磁場側ではランダウ準位に移行するエネルギーシフトがよく再現されている。また、励起子吸収スペクトルの吸収強度は、

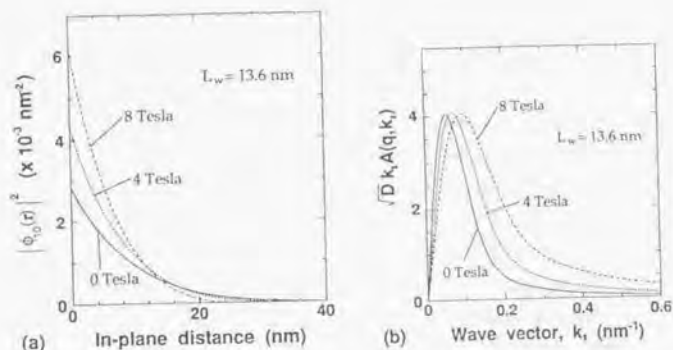


図 3.14 井戸幅 13.6 nm の $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 量子井戸中励起子の磁場依存性^[52]。
ヘテロ界面に垂直に 0 T, 4 T, 8 T の磁場を加えた場合について (a) $|\phi_{10}(r)|^2$ と、(b) $\sqrt{D}k_{\parallel}A(q, k_{\parallel})$ を示している。

$$S = \frac{\pi e^2 \hbar}{c n_r \epsilon_0 m_0} f \quad (3.68)$$

$$f = \frac{1}{m_0 E_{ex} D} \left| \sum_{k_{\parallel}} A(q, k_{\parallel}) P_{cv}(e, k_{\parallel}) \right|^2$$

$$= 2 |P_{cv}(e, k_{\parallel})|^2 |\phi_{nm}(0)|^2 \delta_{k, q} / m_0 E_{ex}$$

と書ける。ここで n_r は屈折率、 f は振動子強度である。これは、波動関数が収縮することによって振動子強度が増大し、その結果、吸収強度や発光強度が磁場によって増大することを示している。図 3.16 に (3.67) 式を用いて計算した吸収強度の磁場依存性を、実際の磁気吸収スペクトルと併せて示しており、磁場に伴う励起子吸収強度の増大を良く説明している。

GaAs/AlAs ヘテロ構造では、Tarucha 等^[54]による GaAs/AlAs 多重量子井戸の磁気光吸収スペクトルの測定などが行われ、1S 状態に対応する励起子基底状態が、磁場の 2 乗に比例して高エネルギーシフトするとともに、さらに高エネルギー側に、ランダウ準位間遷移に対応する振動的な吸収ピークが観測されている (図 3.17)。さらに、高次の励起子準位ほど、より弱磁場領域で磁場に比例するランダウ準位へ移行している様子が示されている。また、ランダウ準位間遷移の複数の吸収ピークをゼロ磁場に外挿するとどれもほぼ同じエネルギー点に収束し、バンド端と見なせることから、励起子ピークとのエネルギー差より、励起子の束縛エネルギーを見積っている。

励起子発光は、基本的には基底状態のみから起こり、フィリングの効果が現れやすい低次元量子ヘテロ構造では、キャリア分布によって励起状態からの発光も観測される。Rinaldi 等^[55]は、InGaAs/GaAs 量子ドットからの励起子磁気発光スペクトルにおいて、励起子基底状態の反磁性シフトと、いくつかの励起状態の Zeeman 分裂を観測している。また、十分低温領域での量子井戸等の量子ヘテロ構造からの発

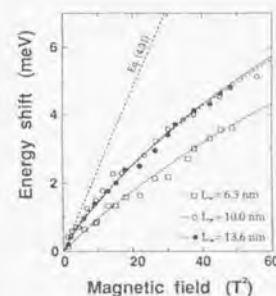


図 3.15 異なる井戸幅を持つ 3 種類の $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 量子井戸中励起子のエネルギーの磁場依存性^[52]。
磁気吸収スペクトルの実験結果と併せて示している。

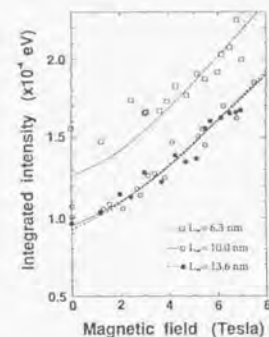


図 3.16 異なる井戸幅を持つ 3 種類の $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 量子井戸中励起子の吸収強度の磁場依存性^[52]。
磁気吸収スペクトルの実験結果と併せて示している。

光スペクトルの半値幅は、ヘテロ界面の揺らぎによるポテンシャル揺らぎの効果に大きく影響されることが知られており、Lee 等^[56]は、GaAs/AlGaAs 量子井戸のヘテロ界面に微視的な揺らぎ (面に垂直方向: 1 ML, 面内: 20-160 Å) を導入し、界面に垂直に磁場を加えた場合、励起子波動関数の収縮に伴って、発光スペクトルの半値幅が増大するとの計算結果を報告している。

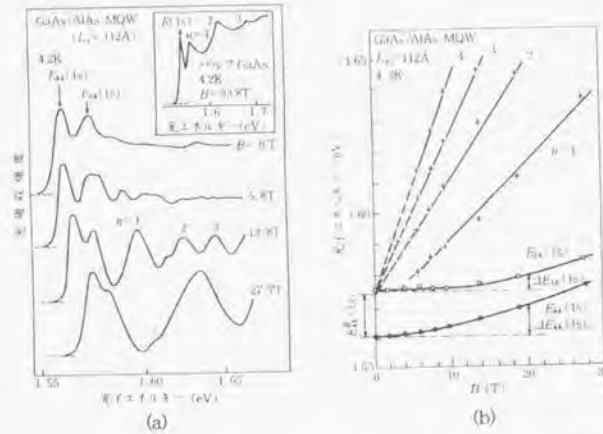


図 3.17 GaAs/AlAs 多重量子井戸の (a) 磁気吸収スペクトルと、(b) 吸収ピークエネルギーの磁場依存性^[38]。
励起子基底状態の反磁性シフトと、高次の励起子準位の反磁性シフトからランダウ準位へと移行する過程が観測されている。

3.3 バンド間遷移

3.3.1 電気双極子遷移

物質中を光（可視光）が通過するとき、光が格子振動のエネルギーよりも十分大きいために、光と格子系との相互作用は無視でき、光と電子との相互作用だけを考えれば良い。電子系に摂動（この場合、光）が加わる前の状態 i にある電子の、時間に依存する波動関数は、

$$\Psi(t) = \Phi_i(t) = \phi_i \exp\left(\frac{ieE_0 t}{\hbar}\right) \quad (3.69)$$

で表せ、無摂動ハミルトニアン \hat{H}_0 に比べ、十分に小さな摂動 $\hat{V}(t)$ が加わったときの時間に依存する Schrödinger 方程式は、

$$\hat{H}\Psi(t) = [\hat{H}_0 + \hat{V}(t)]\Psi(t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(t) \quad (3.70)$$

となる。このとき、状態 i から状態 f へ単位時間あたり遷移する確率は、摂動の最低次の近似で、

$$W_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \Psi_f | \hat{V} | \Psi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i) \quad (3.71)$$

$$V_{fi}(t) = \int \phi_f^* \hat{V}(t) \phi_i$$

で表せる。ここで、 V_{fi} は $V_{fi}(t)$ から時間成分を除いたものである。これは Fermi の黄金律 (Fermi's golden rule) と呼ばれている。光と電子の相互作用では、スカラーポテンシャルは $\psi = 0$ とおけるから、

$$E = -\frac{\partial A}{\partial t} \quad (3.72)$$

となつて、ベクトルポテンシャルを、

$$A(\mathbf{R}, t) = \frac{2eE_0}{\omega} \sin(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R} - \omega t) \quad (3.73)$$

とおける。光が入射されることによって、結晶ポテンシャルの他にベクトルポテンシャルが加わった電子の、時間に依存する Schrödinger 方程式は、

$$\left[\frac{(\hat{p} + eA)^2}{2m_0} + V_{crystal} \right] \Psi(\mathbf{R}, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{R}, t) \quad (3.74)$$

で表され、摂動ポテンシャルとして、

$$\begin{aligned} \hat{V} &= \frac{e}{2m_0} (\mathbf{A} \cdot \hat{p} + \hat{p} \cdot \mathbf{A} + eA^2) \\ &= \frac{e}{m_0} \mathbf{A} \cdot \hat{p} = \frac{eE_0}{i m_0 \omega} [e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R} - \omega t} - e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R} - \omega t}] (e \cdot \hat{p}) \end{aligned} \quad (3.75)$$

が得られる。(3.75) 式の第 1 項目は電子のエネルギーが $\hbar\omega$ 、運動量が $\hbar\mathbf{Q}$ 増加した光吸収過程を、第 2 項目は光放出過程を意味している。ここで、入射光の波長が、結晶の格子間隔よりもはるかに長いことから、電子波の運動量は光吸収によって、ほとんど変化しない（垂直遷移）。そこで $\mathbf{Q} = 0$ とし、Fermi の黄金律を適用すると、

$$W_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{eE_0}{m_0 \omega} \right)^2 |\langle f | (e \cdot \hat{p}) | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \quad (3.76)$$

が得られる。光の運動量を無視するこの取り扱いが電気双極子近似と呼ばれている。

3.3.2 量子井戸

次に、量子井戸中のバンド間遷移について考える。価電子帯上端および伝導帯下端の波動関数は、包絡関数とブロッホ関数の積の形で、

$$\psi_c(\mathbf{R}) = \chi_c(\mathbf{R}) u_c(\mathbf{R}) = \phi_{cn}(z) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_c(\mathbf{R}) \quad (3.77)$$

$$\psi_v(\mathbf{R}) = \chi_v(\mathbf{R}) u_v(\mathbf{R}) = \phi_{vn}(z) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_v(\mathbf{R})$$

と表せるから、バンド間電気双極子遷移の行列要素は、

$$\begin{aligned} \langle cnk | e \cdot \hat{p} | vmk \rangle &= \int \phi_{cn}^*(z) e^{-ik \cdot r} u_c^*(R) (e \cdot \hat{p}) \phi_{vm}(z) e^{ik \cdot r} u_v(R) \\ &= \delta_{k,k'} \sum_{\text{cell}} \int \phi_{cn}^*(z) \phi_{vm}(z) \int u_c^*(R) (e \cdot \hat{p}) u_v(R) d^3R \\ &= \delta_{k,k'} e \cdot p_{cn,vm} \langle cn | vm \rangle \end{aligned} \quad (3.78)$$

で与えられ、ここで、

$$\begin{aligned} p_{cn,vm} &= \frac{1}{\Omega} \int u_{cn}^*(R) (e \cdot \hat{p}) u_{vm}(R) d^3R \\ \langle cn | vm \rangle &= \int \phi_{cn}^*(z) \phi_{vm}(z) dz \end{aligned} \quad (3.79)$$

である。これより、量子井戸のバンド間遷移の選択則、

$$\begin{aligned} \Delta k &= 0 \\ \Delta n &= 0 \end{aligned} \quad (3.80)$$

が導かれる。しかし、現実の量子井戸では、電子と正孔にたいする量子井戸ポテンシャルは異なっており、同じパリティをもつ状態間、

$$\Delta n = \pm 2 \quad (3.81)$$

でもわずかに遷移確率は残っている (図 3.18)。さらに、非対称量子井戸の場合は、より複雑になる。

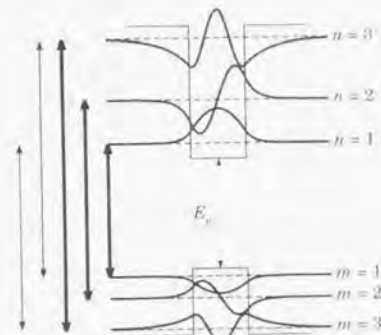


図 3.18 量子井戸のバンド間遷移の選択則^[38]。太い垂線は $\Delta n=0$ の選択則を満たす強い遷移を、細い垂線はパリティ保存を満たす弱い遷移 $\Delta n=\pm 2$ を表している。

3.4 圧力

3.4.1 静水圧

結晶を構成する粒子間のクーロン相互作用は粒子間距離の関数であり、たとえば、系の基底状態の波動関数の広がり目安であるボーア半径が圧力によって変化すると、波動関数と系のエネルギーが変化し、新しい定常状態を作る。さらに、結晶内電子のエネルギーバンド構造に現れるエネルギーギャップが、結晶格子からの電子のブラッグ反射による定在波 (ブロッホ電子) によることを考えると、圧力によってバンド幅や、ギャップの大きさが変化することが理解できる。たとえば圧縮によって、系の電子状態が大きく変化する例は、電子構造の変化に伴って引き起こされる凝縮系物質の絶縁体-金属転移や、さまざまな物質で見ついている六方最密充填構造への構造転移などがある。さらに、もともと「自由な」元素である水素さえも、圧縮によって絶縁体 (固体水素) から金属へ相転移するだろうと言われている。これなどは、数 100 GPa という超高压を必要とするが、原子や分子よりもずっと「やわらかい」結晶、あるいは高分子、生体分子の場合には、1 GPa 以下の比較的弱い圧力でも大きな変化が期待できる。

結晶のバンド構造は、構成している原子間距離によって大きく変わり、直接遷移型の場合、安定な状態から距離を縮めると、バンドギャップエネルギーは大きくなり、離すと小さくなる。そして、原子間の相互作用が起こらなくなるまで離すと、原子の離散的なエネルギー準位に収束する。今、原子間距離を Δa だけ変化させると、大気圧下でエネルギー E_0 を持っていた状態のエネルギーは、圧力係数を E_1 として、

$$E = E_0 + E_1 \Delta a \quad (3.82)$$

と表すことができる。これを価電子帯頂上と伝導帯下端について考えると、エネルギーギャップの変化分は、

$$\Delta E_g = (E_{1c} + E_{1v}) \Delta a \quad (3.83)$$

となる。つまり、エネルギーギャップは体積変化に対して線形に変化する。そして、結晶に加える力と体

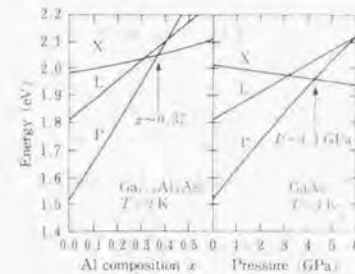


図 3.19 $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ 混晶の伝導帯下端バンド構造の組成比依存性と GaAs 伝導帯下端バンド構造の圧力依存性^[64]。

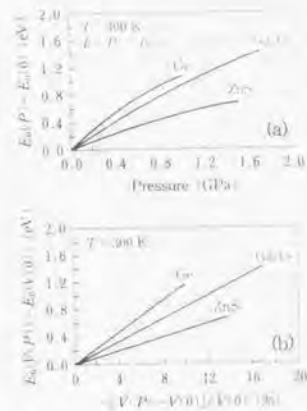


図 3.20 いくつかの半導体の直接吸収端の (a) 圧力依存性と (b) 体積変化 (圧縮率) 依存性^[64]。

積変化が比例する比例限界内では、エネルギーギャップは圧力変化に対して線形に変化するとはいえることができる。しかし、異なる対称点にある状態は、それぞれ異なる圧力係数を持つことから、圧力による単位交差や単位混合によって、バンド端の電子状態が変化する場合も別である。たとえば、GaAs は大気圧下において伝導帯下端が Γ 点であり、正の圧力係数 (107 meV/GPa) を持つのに対して、それより約 0.5 eV 高いエネルギーにある X 点が負の圧力係数 (-13 meV/GPa) を持つために、約 4.1 GPa の静水圧下で Γ -X 交差が起こり、直接遷移型から間接遷移型へ変換する (図 3.18)。GaAs/AlAs 超格子における圧力誘起タイプ I-タイプ II 転移は、GaAs の Γ 点と AlAs の X 点とのレベル交差に関係しており、いくつかの実験が報告されている。また、 Γ 点と X 点の有効サイクロトロン質量の違いを利用して、圧力によって Γ -X エネルギー差を制御し、さらに磁場を加えることによって、発生可能な磁場領域におけるタイプ I-タイプ II 転移の観測も行われており、磁場中での Γ -X 混合が議論されている。図 3.19 は、Ge、GaAs、ZnS の直接吸収端の圧力依存性と体積変化 (圧縮率) 依存性を表しており、バンドギャップが体積変化に対して、線形に変化することを示している。

3.4.2 一軸性応力

一軸性応力の場合、圧力の効果は結晶構造の対称性と電子状態の対称性に大きく依存する。たとえば、III-V 族 GaAs/AlAs タイプ II 超格子や、本研究で扱う GaP/AlP ヘテロ構造の伝導帯下端を形成する X 点電子状態は、[001] 方向に一軸性応力を加えると、[100] 方向の X_x 状態と [010] 方向の X_y 状態のエネルギーは上がり、[001] 方向の X_z 状態のエネルギーは下がることが知られている (図 3.21)。このことは、GaP/AlP 短周期超格子の準直接遷移型への変換を決定づける X_x 点と X_y 点の相対位置を一軸性応力によって制御できることを意味しており、本研究において極めて重要な性質であると言える。また、3.1.4

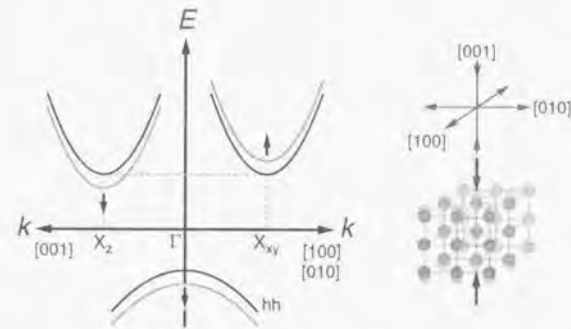


図 3.21 一軸性応力下での伝導帯 X 電子状態のエネルギーシフト。
[001] 方向に圧縮応力を加えた場合を示している。圧力を加えると、 X_{xy} 状態のエネルギーは上がり、[001] 方向の X_z 状態のエネルギーは下がる。

節で述べた量子井戸構造における価電子帯上端は、重い正孔状態が軽い正孔状態よりもヘテロ界面内の波動関数の広がりが大きく、面に垂直な方向は、その逆になる。すなわち、界面に垂直に圧縮応力を加えた場合、軽い正孔状態の方が、重い正孔状態よりも圧力の効果を受けやすくなり、単位交差が起こることが予想できる。また、低い対称性を有する結晶の場合、たとえば II-VI 族半導体における六方最密充填構造では、一軸性応力の効果はより複雑である。

3.5 発光現象

3.5.1 発光過程と関連する物理

半導体のバンド間遷移に基づく発光 (光ルミネッセンス) は、大きく分けて 3 つの過程から成り立っている。まず第一に、光によって価電子帯の電子が伝導帯にたたき上げられ、電子と正孔が生成される *excitation*、次に励起された電子-正孔対が熱平衡状態へと緩和する *thermalization*、そして最後に、電子-正孔対が再結合する *recombination* である (図 3.22)。そして、発光強度、すなわち量子効率を決めるのは、*recombination* 過程でのフォトン放出を伴う輻射再結合過程と、格子系あるいは電子系にエネルギーを渡す非輻射再結合過程の割合であり、輻射再結合過程とはすなわち Einstein の自然放出である。また、輻射寿命 (radiative lifetime) を τ_r 、非輻射寿命 (non-radiative lifetime) を τ_{nr} とすると、量子効率 η は、

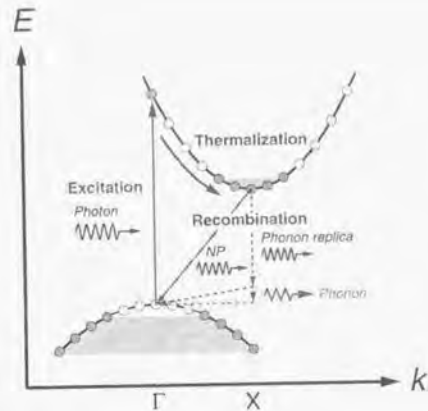


図 3.22 間接遷移型半導体の発光過程。

おおまかに、電子と正孔が生成される excitation、電子-正孔対が熱平衡状態へと緩和する thermalization、そして、電子-正孔対が再結合する recombination 過程から成り立っている。

$$\eta = \frac{1/\tau_r}{1/\tau_r + 1/\tau_{nr}} = \frac{1}{1 + \tau_r/\tau_{nr}} \quad (3.84)$$

で与えられる。間接遷移型半導体の場合 $\tau_r \ll \tau_{nr}$ が成り立ち、発光材料には不向きな理由とされている。輻射再結合には、直接遷移のバンド端発光と、間接遷移型半導体に見られるフォノンを介さない発光（ゼロフォノン線、あるいは NP (no-phonon)）、さらに、まわりの格子系にエネルギーを一部渡して発光するフォノンサイドバンド（フォノンレプリカバンドとも呼ばれる。）がある。単位格子に 2 個の原子をもつ 3 次元結晶中のフォノンモードは、3 個の音響フォノンモードと、3 個の光学フォノンモードがあり、結晶の対称性と構成原子の質量が決まる分散関係を持つ。図 3.23 に、例として Si 結晶と GaAs 結晶のフォノンの分散関係を示す。フォノンサイドバンドが観測されるのは、輻射寿命が長い間接遷移型半導体の特徴である。ゼロフォノン線は本来光学禁制であるものが、界面の揺らぎ（混晶揺らぎ、層厚揺らぎ、欠陥等）などの局在電子状態によって k 選択則が破れ、許容遷移となることによる。実験例として、大気圧下 GaP:N と約 6.3 GPa の静水圧下 GaAs:N の発光スペクトルを図 3.24 に示す。GaAs は大気圧下では直接遷移型であるが、4.1 GPa 以上の静水圧を加えると間接遷移型に変換する。どちらとも N がアイソエレクトロニック中心として働き、フォノンを介さないゼロフォノン線と、TA, LA, TO, LO などの多数のフォノンモードに対応するフォノンレプリカバンドが観測される。

しかし、多くの半導体の電子・正孔の再結合過程において、主要なのはむしろ非輻射再結合過程である。（それは、最近の高量子効率の CCD 検出器の量子効率がようやく 50% を超える程度であることを考えれば、すぐに納得できる。）しかし、非輻射再結合過程については、実のところ、よくわかっていない。と

いうのは、測定できるのはほとんどの場合、フォトンを出す輻射再結合であり、明確な証拠を残さない非輻射再結合過程は、その過程の多さと系の複雑さが絡み合って、実体に向ける研究が非常に困難だという事情がある。たとえば、非輻射再結合過程として、ある程度理解されているものでは、オージェ過程、表面・界面の局在電子状態（ダングリングボンド、欠陥等）が形成する連続準位による再結合過程、多重フォノン放出などがある。半導体のオージェ過程はバンド間遷移が基本であり理想結晶中でも起こる。その最も単純なものは、2 個の電子と 1 個の正孔による 3 体の散乱過程であり、伝導帯電子が価電子帯正孔と再結合する際に、フォノンとしてエネルギーを放出するのではなく、伝導帯にいる他の電子にそのエネルギーを渡す。または、価電子帯の深いところにいる電子がエネルギーを受け取り、価電子帯の正孔準位に飛び込む。さらに、禁制帯内に形成されたドナー準位やアクセプター準位、あるいはその両方が関与する散乱過程も考えられ、非常に複雑である。また、理想結晶の表面は内部の 3 次元の秩序とは大きく異なり、原子あるいは電子状態の最配列、再構成が起こっている。さらに、ダングリングボンドや、欠陥、段差といった形状効果など、表面を活性化させる要素に満ちあふれている。このことが、触媒作用や吸着作用の原動力となっている。異なる物質を単に接合したヘテロ界面についても、結晶の並進対称性が崩れているという点では表面と同様である。金属-半導体ヘテロ界面においては、高密度の界面準位がキャリアを捕獲し、フェルミ準位が禁制帯内にピンニングされる。1.1 節でも触れたが、この現象はトランジスタや、半導体の表面を金属接触することにより作製される集積回路等においては致命的であり、SiO₂ 酸化膜が非常にすぐれた表面不活性化膜となることが、「Semiconductor-Si」と言われるようなシリコン全盛時代を築いた所以である。また、半導体-半導体ヘテロ界面についても、ダングリングボンド、欠陥、構造的揺らぎなどが界面の電子状態を活性化し、特に発光デバイスにおいては、界面準位による非輻射再結合が起こり、深刻な発光性の低下を招くことが知られている。

固体表面の構造を調べるのは、結晶の 3 次元並進対称性にたよる従来の X 線回折法では不可能であり、放射光を利用した特殊な回折法による構造解析等で可能となる。さらに近年、STM（走査トンネル顕微鏡）の開発により、多くの物質表面の局所電子状態が明らかになっている。それに対して、半導体ヘテロ構造などの界面については、固体内部にあることや、現実には乱れのある界面では回折法が役に立たないことなどから、現状ではほとんど不可能である。

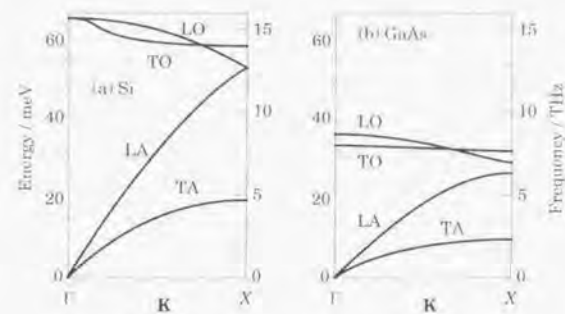


図 3.23 (a) Si と (b) GaAs 結晶のフォノンの分散関係^[38]。

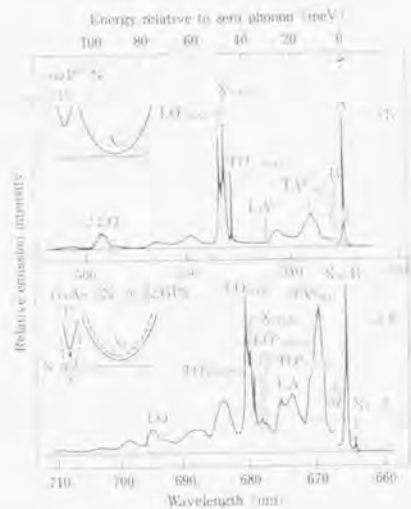


図 3.24 GaP:N と圧力 F GaAs:N (間接遷移) の発光スペクトル [64]。
N がアイソエレクトロニック中心として働き、フォノンを介さないゼロフォノン線と、多数のフォノンレプリカバンドが観測される。

現実に我々が観測する発光の殆どのは、Si/Ge 系に見られるゼロフォノン線のような電子-正孔の直接再結合ではなく、完全結晶からずれた部分、すなわち格子欠陥や不純物、あるいはヘテロ構造における界面のゆらぎ等によってできる局所的な電子状態に大きく左右されており、このことが発光スペクトルの解析を複雑なものにしている。すなわち、電子と正孔の両方が、局在しやすい単位であれば、再結合中心となり、電子、あるいは正孔のみが捕獲されやすい単位であれば、キャリアに対してトラップとして働く。再結合中心のなかでも、エネルギーを光として放出する（輻射）ものを発光中心と呼ぶが、エネルギーを音響フォノンに変える killer と呼ばれるものもある。波動関数が局在すれば、不確定性原理により運動量の不確定性が増大し、波数空間では逆に広がることになる。特に間接遷移の場合、対称性の異なる状態間での波動関数の重なりができて、本来の禁制が許容され発光する可能性がでてくる。GaP:N の発光ダイオードへの応用などは、その好例である。また特筆すべきは、間接遷移の場合、遷移確率は直接遷移にくらべ非常に小さいが、非輻射遷移の確率がさらにそれよりも小さく、かつ生成される電子-正孔が十分にあれば、強い発光が起こることである。また、多くの電子-正孔対が生成され、高密度に存在すると、個々の励起子としてではなく、2つのフェルミオンからなるボゾンとしての励起子を考える必要が出てくる（励起子ボーズ凝縮）。

結晶中の局在電子状態（格子欠陥、不純物、界面揺らぎ等）や、電子格子相互作用の強い自己束縛励起子系（強結合系）の発光性を説明するのに、配位座標モデルがよく使われている [67]。局在状態を作っている電子の振動と比べ、母体結晶の格子振動がはるかに遅いことから（電子に比べて、原子イオンは圧倒

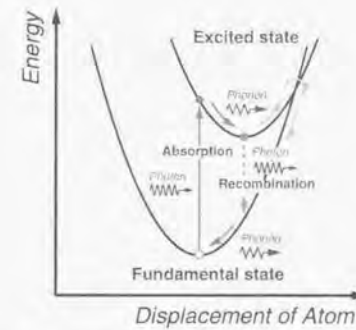


図 3.25 発光性局在電子状態の配位座標曲線。
励起状態の電子は、熱平衡状態に達したのち、輻射再結合する（低温時）。

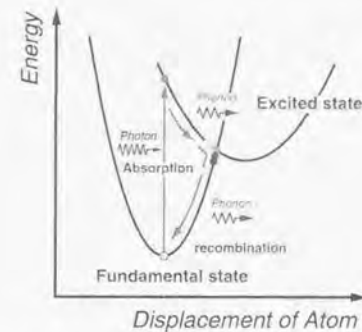


図 3.26 非発光性局在電子状態の配位座標曲線。
励起状態をエネルギー緩和してきた電子が断熱ポテンシャルの交差する点で、基底状態に乗り移るために、非輻射再結合する。

的に重い）、電子は各瞬間の固定された格子の場をみて運動していると見なすことができ、断熱近似を適用できる。このとき、電子のエネルギー（断熱ポテンシャル）は、原子間距離（配位座標）に依存し、電子の基底状態と励起状態の断熱ポテンシャルの関係によって、発光性か非発光性かが決められる。図 3.25 は発光性の場合であり、基底状態から励起状態に垂直にたたき上げられた電子は、格子系にエネルギーを渡しながらエネルギー緩和し（非輻射遷移）、励起状態の断熱ポテンシャルの底で Boltzmann 分布する（熱平衡状態）。その後、輻射遷移（発光）して基底状態にもどり、さらに基底状態の底までエネルギー緩和する。しかし、この場合も、十分温度が高いと、励起状態における熱平衡状態が大きな分布を持つこと

から、基底状態の断熱ポテンシャルとの交差点まで熱励起され、非輻射遷移する成分が出てくる。このモデルをもとに発光強度の温度依存性が説明されている。これに対して、図 3.26 に示すような断熱ポテンシャルの場合は、基底状態から励起状態に垂直にたたき上げられた電子が、格子系にエネルギーを渡しながらエネルギー緩和する途中で、励起状態の断熱ポテンシャルとの交差点で基底状態に乗り移り、その後、格子系にエネルギーを渡しながら基底状態の底までエネルギー緩和するために、非発光性となる。

3.5.2 発光の温度依存性

第一近似的には輻射遷移の確率は温度によらない。これに対して、非輻射遷移の確率は $Ce^{-E_i/k_B T}$ で表すことができる。ここで、 C は frequency factor と呼ばれる係数で $e^{-E_i/k_B T}$ に比べて温度依存性が小さいので、定数と見なすことができ、 E_i は活性化エネルギーである。(3.84) 式から発光強度の温度依存性は以下の式で表すことができる^[65]。

$$I(T) = \frac{I_0}{1 + Ce^{-E_i/k_B T}} \quad (3.85)$$

ここで、 C は比例係数、 k_B はボルツマン定数である。この式は、たとえば、量子井戸中に閉じこめられたキャリアが熱励起によって、閉じこめポテンシャルから解放される過程にも有効であり、その場合、 E_i は束縛状態にある励起子の活性化エネルギー、すなわち閉じこめポテンシャルの深さを与える。また、ヘテロ界面の揺らぎによるポテンシャル揺動に束縛された励起子の場合にも通応でき、束縛ポテンシャルの深さを見積もることができる^[66]。

また、発光ピークエネルギーの温度変化は、自由な励起子の場合には、ほぼバンドギャップエネルギーの温度変化の式

$$E_s(T) = E_s(0) - \frac{\alpha T^2}{T + b} \quad (3.86)$$

に従うと考えられる。しかし、束縛励起子の場合、低温領域で励起子束縛エネルギーによる発光ピークの低エネルギー化が起こり、完全な束縛状態では、温度変化はほとんどないことが予想される。この場合も、束縛エネルギーと熱励起エネルギーの大小関係で、温度効果が決まると考えられる。実際に、低温下で束縛励起子状態にある励起子からの発光を幅広い温度領域で測定すると、束縛ポテンシャルに相当する温度領域で、束縛状態から熱励起された自由励起子的な振る舞いに変わり、本来のバンドギャップの温度依存性へと移行する過程が観測される。

3.5.3 発光の励起光強度依存性

励起光を強くしたときの励起子発光の発光強度の変化は、自由な励起子の場合、励起光強度に比例して強度が増大するリニア（線形）な関係が、それよりも増大傾向が大きなスーパーリニアな関係になることが知られている。また、何らかのポテンシャルに束縛された励起子の場合、励起光強度に対して、発光強度の増大傾向が抑制されたサブリニアな関係になることがわかっている。また、Schubert 等^[73] は、GaInAs 合金について、組成揺らぎによるバンドギャップの揺らぎがある場合、励起子の輻射再結合寿命と励起子がポテンシャルの低い方へ移動する時間の大小関係から、発光スペクトルの形状の励起光強度依

存性を説明している。それによると、van Roosbroeck-Shockley のバンド間輻射再結合の理論^[67] では、再結合確率は、電子・正孔の濃度に比例する。このために強励起状態では再結合寿命が短く、キャリアがポテンシャル極小点に向かって移動する時間がないまま再結合し、発光スペクトルは Gaussian 的になる。これに対して弱励起状態では再結合寿命が長く、キャリアがポテンシャル極小点にエネルギー緩和してから再結合するために、発光ピークは低エネルギーシフトし、スペクトル形状は非対称となる。このように、励起光強度の測定は、励起子の感じるポテンシャルについての情報を与えてくれる。

3.5.4 発光寿命

帯間発光の輻射再結合確率は、伝導帯と価電子帯の Bloch 電子状態、電子・正孔の重なり積分等が関係する双極子行列要素に比例し、発光寿命はその逆数である。そして、発光減衰は、遷移型に依存し、直接遷移型の場合、

$$I(t) = \sum_i I_i e^{-t/\tau_i} \quad (3.87)$$

で与えられ、輻射寿命 τ の最も短い成分が、励起状態から基底状態へのバンド端発光に起因する。しかし、間接遷移型半導体では、非指数関数的な減衰が見られる。Klein 等^[76] は界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動によって遷移則が破れ発光しているとして計算を行い、ゾーン端励起子からの発光の発光減衰は、

$$I(t) = \frac{e^{-t/\tau_0}}{(1 + 2t/\tau_0)^{1/2}} \quad (3.88)$$

で表され、ゾーン端にない励起子からの発光では、

$$I(t) = \frac{e^{-t/\tau_0}}{(1 + t/\tau_0)^2} \quad (3.89)$$

で表されることを示した。ここで τ_0 はポテンシャル揺動による許容となった輻射寿命、 τ_0 はそれ以外の過程による輻射寿命である。間接遷移の場合の発光寿命は直接遷移の場合と比べて遙かに長く、たとえば、GaAs/AlAs 系では、通常、直接遷移型で ns 以下であるが、間接遷移型では μs のオーダーとなる。また、Krivorotov 等^[76] は、タイプ II 超格子の発光減衰と系の次元性の関係を調べる研究を行い、GaAs/AlAs タイプ II 超格子について、実験結果をよく説明している。さらに、間接遷移型の場合、温度上昇とともに、発光寿命が急激に短くなる現象が観測されている^{[77][78]}。

3.6 GaP/AIP ヘテロ構造

3.6.1 X 点電子

前章で述べたように、GaP 結晶と AIP 結晶はともに Zinc-Blende (閃亜鉛鉱) 型の結晶構造を持ち、ブリュアンゾーンの対称点と対称軸は、図 3.27 のとおりである。伝導帯の底は Δ 方向に 6 つの等価なエネ

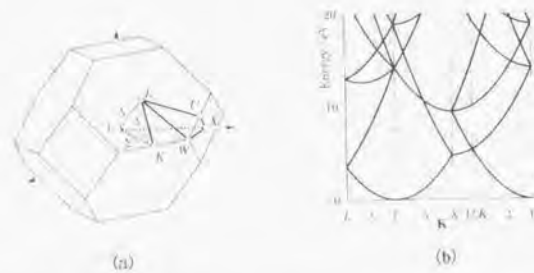


図 3.27 fcc 格子の (a) ブリュアンゾーンとその対称点、対称軸、及び (b) エネルギー分散^[38]。

物質	m_L	m_T
C (diamond)	1.4	0.36
Si	0.9163	0.1905
Ge	1.588	0.08152
AlAs	0.88	0.25
GaP	1.7	0.254
AIP	?	?

表 3.1 いくつかの半導体 X 点電子の縦型質量と横型質量。
X 点は非常に大きな異方性を持ち、縦型質量が横型質量よりもかなり重い。

ルギー極小点を持つ X 点であり、X 点の [100] 方向の valley におけるエネルギー分散は

$$E(\mathbf{K}) = E_c + \frac{\hbar^2}{2m_0} \left[\frac{(k_x - k_0)^2}{m_L} + \frac{k_y^2}{m_T} + \frac{k_z^2}{m_T} \right] \quad (3.90)$$

と書くことができる。ここで m_L は x 軸方向の質量 (縦型質量), m_T は y 軸および z 軸方向の質量 (横型質量) である。表 3.1 に単体と III-V 族半導体の代表的な伝導帯 X 点電子の質量パラメータを示す。(残念ながら、本研究で関係する AIP 伝導帯 X 点電子については、 $m_T^* = 0.13$ と報告されているだけである^[79]。) たとえば Si の場合、 $m_L = 0.92$, $m_T = 0.19$ となり、等エネルギー面は valley 方向に長軸を持つ、回転楕円体となり、極めて異方的な電子状態であることがわかる。図 3.27 に Si のブリュアンゾーンと 6 つの等価な X 点電子の等エネルギー回転楕円体を示す。

3.6.2 磁場の効果

磁場は電子の運動に対して仕事をしないことから、磁場による電子の運動は等エネルギー面上に限られる。つまり、k 空間において磁場を加えたときのサイクロトロン運動による X 点電子の軌道は、図 3.27

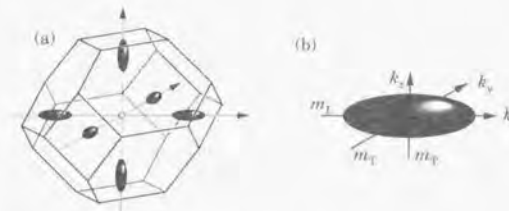


図 3.28 (a) X 点電子の等エネルギー回転楕円体と、(b) [100] valley の様子 (Si の場合)^[38]。

で示した回転楕円体を磁場方向に垂直に切った断面と考えると、回転楕円体の長軸に角度 θ だけ傾いた磁場に対する有効サイクロトロン質量は、

$$\frac{1}{m_c^2} = \frac{\cos^2 \theta}{m_T^2} + \frac{\sin^2 \theta}{m_L m_T} \quad (3.91)$$

で与えられる。今、[001] 方向に磁場を加えると、[001] valley X_z 点の有効サイクロトロン質量は $m_c = m_T$ となるのに対して、 X_{xy} 点では $m_c = \sqrt{m_T m_L}$ となり、 X_{xy} 点の方が重くなる。また、[100] 方向に磁場を加えると X_{xy} 点の縮退が解け、 X_x 点の有効サイクロトロン質量は $m_c = m_T$ となるのに対して、 X_y 点と X_z 点では $m_c = \sqrt{m_T m_L}$ となり、 X_z 点为重くなる。

[001] 方向に成長させた超格子では、超格子ポテンシャルによって、6 つのエネルギー極小点はおもや等価ではなく、有効質量近似で考える限り、 X_z 点の方が X_{xy} 点よりも質量が重くなる。しかし X 点の異方性が極めて強いことから、異なる磁場配置によるエネルギーの変化 (反磁性シフト、ランダウ準位等) を調べれば、X 点の電子状態が明らかになる可能性がある。2.2 節で述べたように、GaP/AIP ヘテロ構造の準直接遷移型への変換は、折り返された X_z 点と折り返し効果を受けずに X 点にそのままとどまっている X_{xy} 点のエネルギーの相対位置によっており、伝導帯下端が X_z 点である場合、価電子帯頂上の Γ 点との $\Gamma(X_z) - \Gamma$ 光学許容遷移となり、k 空間での直接遷移型が実現する。遷移型を決める伝導帯 X 点は異方性が強く、超格子面に垂直に磁場を加えた場合 (ファラデー配置) の有効サイクロトロン質量は X_z 点の方が X_{xy} 点よりも重い。それに対して、超格子面に平行に磁場を加えた場合 (フォークト配置) は、逆に X_{xy} 点の方が X_z 点よりも重くなる。磁場によって、バンド端近傍の電子状態が大きく変わることになれば、発光スペクトルに劇的な変化が期待できる。もしも、準直接遷移型への変換が実現していた場合、ヘテロ界面に垂直に磁場を加えると、伝導帯下端 X_z 点が X_{xy} 点よりも有効サイクロトロン質量が軽いために、ある磁場でレベル交差が起こり、磁場による間接遷移型へ再変換することが期待でき、発光強度の急激な減少と、エネルギーシフトの変化が観測できる可能性がある。これに対して、ヘテロ界面に平行に磁場を加えた場合は、レベル交差は起こらず、発光スペクトルの強度はそれほど変化しないはずである。

しかし、以上の予想は、励起子効果を考えていない。タイプ I 半導体中の励起子に磁場を加えると、サイクロトロン運動によって、磁場に垂直な面内の励起子波動関数が収縮し、束縛エネルギーや振動子強度の増大をもたらす。GaP/AIP ヘテロ構造のようなタイプ II 超格子の場合、電子と正孔が空間的に分離し

ており、そのような状況下での励起子に磁場を加えた場合、どのようなことが起きるのか、これまでほとんど実験例がなく、それ自体、大変興味深い。

3.6.3 圧力の効果

GaP/AIP ヘテロ構造のバンドギャップは Γ -X 間接遷移であり、3.4.2 節で述べたように、伝導帯下端の X 点電子状態に、ヘテロ界面 (001) 面に垂直に一軸性応力を加えると、[100] 方向の X_x 状態と [010] 方向の X_y 状態の圧力係数は正であるのに対して、[001] 方向の X_z 状態は負の圧力係数を示す (図 3.21)。Kobayashi 等は GaP/AIP (4,4) 超格子について、静水圧と、超格子面に垂直に一軸性応力を加えた場合のバンド端 Γ - X_z 遷移エネルギーと Γ - X_{xy} 遷移エネルギーの圧力依存性を計算した^[29]。図 3.29 にそれぞれの遷移エネルギーの静水圧依存性、図 3.30 に一軸性応力依存性を示す。静水圧依存性は、計算された圧力領域において両遷移エネルギーともに圧力に対してほぼ線形であり、圧力係数として Γ - X_z 遷移エネルギーが -21 meV/GPa、 Γ - X_{xy} 遷移エネルギーが -23.6 meV/GPa となり、 Γ - X_{xy} 遷移エネルギーの方がわずかに大きな負の圧力依存性を持つ。それに対して、超格子面に垂直に一軸性応力を加えた場合は、約 0.5 GPa 付近まで、 Γ - X_{xy} 遷移エネルギーは高エネルギー側へシフトするのと対照的に、 Γ - X_z 遷移エネルギーは低エネルギー側へシフトしており、1 GPa でのエネルギー差は約 77.9 meV となる。このことから発光スペクトルの一軸性応力依存性を調べれば、どちらの X 点からの発光か、明らかになる可能性がある。また、両遷移エネルギーとも 0.5-0.6 GPa 付近で圧力依存性が変化しており、3.1.4 節で述べた価電子帯上端の重い正孔状態と軽い正孔状態の準位交差に関係していると考えられる。すなわち、重い正孔状態が p_x -like、 p_y -like な軌道をベース関数とするのに対して、軽い正孔状態は p_z -like な軌道をベース関数とするために、界面に垂直な方向の波動関数は、軽い正孔状態の方がむしろ広がっている。このことから、圧力によって、価電子帯上端の正孔状態が重い正孔から軽い正孔に入れ替わることが予想される。正孔準位の交差手前と思われる低圧領域での圧力係数は、 Γ - X_z 遷移エネルギーが -35

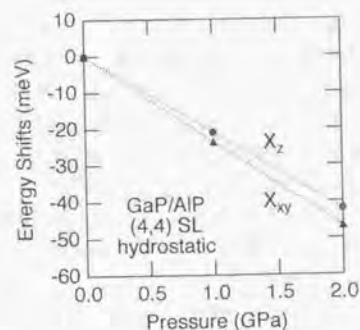


図 3.29 GaP/AIP (4,4) 超格子のバンド端遷移エネルギーの静水圧依存性^[29]。
 Γ - X_{xy} 遷移エネルギーの方がわずかに大きな負の圧力依存性を持つものの、両者の圧力係数の違いは、約 2.6 meV/GPa とかなり小さい。

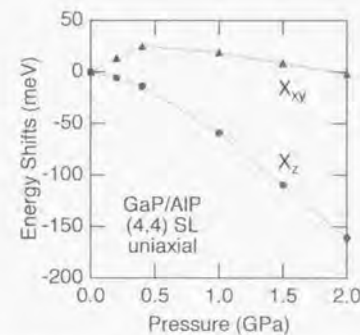


図 3.30 超格子面に垂直に一軸応力を加えた場合の GaP/AIP (4,4) 超格子のバンド端遷移エネルギーの一軸性応力依存性^[29]。
約 0.5 GPa 付近まで、 Γ - X_{xy} 遷移エネルギーは高エネルギー側へシフトするのと対照的に、 Γ - X_z 遷移エネルギーは低エネルギー側へシフトしている。

meV/GPa、 Γ - X_{xy} 遷移エネルギーが 61.8 meV/GPa となり、交差後と思われる高圧領域では、それぞれ -102 meV/GPa と -20.4 meV/GPa となっている。準位交差の前後の圧力領域で、磁場と圧力を同時に加えたときの発光スペクトルの測定を行うことにより、GaP/AIP ヘテロ構造の価電子帯正孔状態についての情報も期待できる。

第4章

試料と実験方法

4.1 試料

4.2 磁場発生

4.2.1 磁場とその発生技術

4.2.2 パルス磁場波形

4.2.3 パルスマグネットとコンデンサーバンク

4.3 圧力発生

4.3.1 静水圧

4.3.2 一軸性応力

4.4 光学測定系

4.4.1 OMA

4.4.2 インテグレートモード

4.4.3 ストリークモード

4.4.4 分光器

4.4.5 ファイバー光学系

本研究では、GaP/AIP 系ヘテロ構造（短周期超格子、単一量子井戸、隣接閉じこめ構造）の、パルス強磁場、高圧（静水圧、一軸性応力）、低温（4.2–77 K）という環境を独立に、あるいは多重に組み合わせた環境下での、発光スペクトルを測定した。磁場発生には、東京大学物性研究所極限環境物性研究部門のコンデンサーバンク（300 kJ）を用い、新たに設計したコイルによって、使用最大磁場 45 T、パルス幅 12 ms のパルス強磁場を発生させた。また、パルス強磁場中で誘起される渦電流による試料の温度上昇を起こさない高圧クランプセルを開発した。これは、本体シリンダー内に挿入するピストンや、テフロンセル、ステンレス球を交換することにより、簡便に、静水圧と一軸性応力を発生できるものであり、内部に光学窓を持ち、パルスマグネットと組み合わせて強磁場、高圧、低温下での光学測定を可能にしている。これまでのところ、静水圧、一軸性応力、ともに約 1.6 GPa の高圧発生に成功している。また、これ

ら極限環境下での光学スペクトルを測定するために、Optical Multichannel Analyzer (OMA4, 株式会社 SEIKO EG&G) を用いた。この測定器は検出器として CCD を使用しており、従来のスペクトル測定法（インテグレートモード）に加え、新たに CCD の電荷移動機構を応用した、ストリークモードでの測定法を開発した。これは、連続的に変化する磁場中でのスペクトルを、連続的に測定するものである。パルス強磁場中で高圧クランプセルを用いて、光学スペクトルを測定した例は、これまでほとんどなく、また CCD を応用したパルス強磁場下での OMA ストリーク分光測定も、他に例がない。本章では、用いた試料について作成法及び構造を説明し、観測された発光スペクトルを示す。また、磁場発生法、圧力発生法、および光学系を含めた発光スペクトルの測定法について、詳述する。

4.1 試料

測定に用いた試料は、GaP/AIP 超格子、AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸、AlGaP/AIP/AlGaP 単一量子井戸、及び AlGaP/GaP/AIP/AlGaP 隣接閉じこめ構造であり、すべて東京大学先端科学技術研究センターの白木研究室によって、Gas Source Molecular Beam Epitaxy 法で作製された。基板はすべてノンドープの GaP (001) を用い、固体原料として Ga, Al, In, さらに As, P の原料として、AsH₃, PH₃ のガスを用いている。また、すべての試料は、GaP ハフファ層を持ち、キャップ層として表面に GaP を成長させている [25][80]。

GaP/AIP (m,n) 超格子構造には、GaP 3 層と AIP 3 層を 100 周期成長させた (3,3) 超格子と、ひとつの基板上に周期の異なる超格子を 4 種類連続して成長させた多重の超格子があり、基板側から順に (7,4)、(6,4)、(5,4)、(4,4) の 4 種類の超格子を連続して成長させた試料と、さらに、m, n が等しい超格子 (7,7)、(6,6)、(5,5)、(4,4) を連続して成長させた試料とがある。どちらも、ひとつの超格子あたり、50 周期ずつ

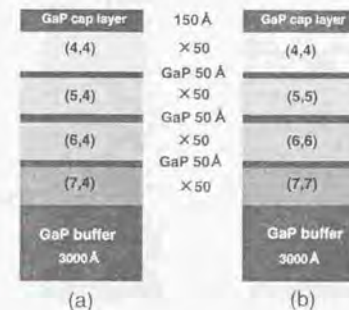


図 4.1 4 種類の周期の異なる超格子を同一基板上に多重に成長させた試料。
(a) 超格子 (7,4)、(6,4)、(5,4)、(4,4) と、(b) 超格子 (7,7)、(6,6)、(5,5)、(4,4)

つ成長させ、超格子間には 50 Å の GaP 層をスペーサーとして成長させている。また、表面に 150 Å の GaP のキャップ層がある (図 4.1)。2.2 節で述べたように、GaP 層と AlP 層の層数の和が偶数のときには、バルクのゾーン端である Σ 点が Γ 点に折り返される。そして、Shibata 等^[28]、Kobayashi 等^[29] によるバンド計算では、等しい層数の超格子 (n,n) の場合、n が 3 以上のとき、伝導帯の底は Σ_2 点となり、 k 空間での直接遷移 (準直接遷移) が実現すると予測されている。準直接遷移型への変換が発光に大きく寄与するとすれば、同一基板の異なる周期の超格子からの発光が、強度において際立った違いを見せることが予想される。

AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸は、GaP バッファ層 (3000 Å) の上に AlGaP 層を 3500 Å 成長させ、さらに AlP 層を 20 Å、AlGaP 層を 500 Å 成長させ、最後に GaP キャップ層を積んでいる (図 4.2)。この構造は、正孔のみ GaP 層に局在し、電子は AlGaP 層に広がっていることが予想される。また、AlGaP/AlP/AlGaP 単一量子井戸は、AlP 層の代わりに GaP 層を成長させた試料で、電子のみ AlP 層に局在し、

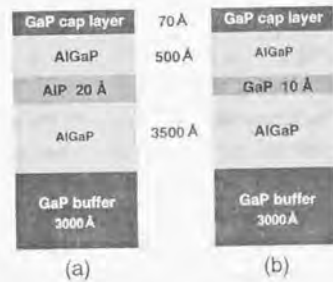


図 4.2 (a) AlGaP/AlP/AlGaP 単一量子井戸と (b) AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸。

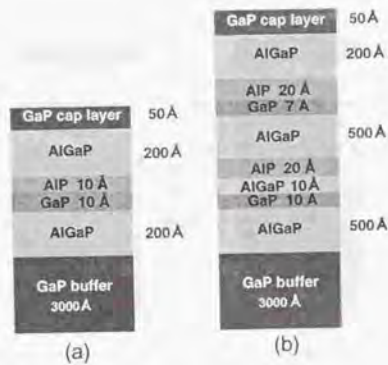


図 4.3 (a) AlGaP/GaP/AlP/AlGaP 隣接閉じこめ構造と、(b) 隣接閉じこめ構造の他に AlP 層と GaP 層の間を薄い AlGaP 層で隔てた構造を同時に成長した試料。

正孔は AlGaP 層に広がっていることが予想され、発光性が極めて悪いと考えられる。

また、隣接閉じこめ構造は、単一量子井戸構造の場合に一方のキャリアが空間的に局在されないという、常識的には発光にきわめて不利な状況を改善するために提案された構造で、隣接した AlP 層と GaP 層を両側から AlGaP 障壁層でサンドイッチすることにより、電子が AlP 層に、正孔が隣接した GaP 層にそれぞれ局在した電子構造をとる^[25]。実際には 200 Å の AlGaP 層の上に、いずれも 10 Å の AlP 層と GaP 層を連続して成長させ、最後に 50 Å の GaP キャップ層を成長させている。さらに、ヘテロ界面近傍の電子と正孔の波動関数の重なりを変えるために、通常の AlP 層 (20 Å) と GaP 層 (7 Å) の隣接閉じこめ構造 (NCS) の他に、AlP 層 (20 Å) と GaP 層 (10 Å) の間を 10 Å の AlGaP 層で隔てた構造 (spaced-NCS と記す。) を同一基板上に積層した試料も作製した (図 4.3)。

本研究で扱うすべての GaP/AlP ヘテロ構造からの発光スペクトルを図 4.4 に示す。測定温度は 4.2 K で、励起光にはアルゴンイオンレーザーの 351 nm ラインを用い、OMA で検出した (4.4 節)。上から、超格子構造、単一量子井戸構造、隣接閉じこめ構造の順に並べている。まず、同一基板上に 4 種類の超格子を多重に積層した 2 つの試料では、それぞれ、周期ポテンシャルを反映した 4 つの発光がきれいに分離して観測される。ただし、(4,4) と見積もった超格子からの発光が、2 つの試料で 20 meV 程度異なっており、界面の揺らぎによるポテンシャル揺らぎが存在していることを示している。また、(3,3) 超格子が

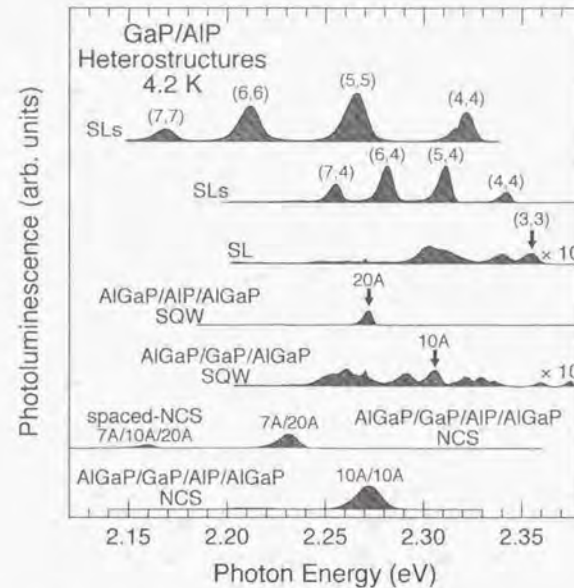


図 4.4 本研究で扱う GaP/AlP ヘテロ構造からの発光スペクトル。

上から順に超格子構造 3 種類、単一量子井戸構造 2 種類、隣接閉じこめ構造 2 種類である。

らの発光は非常に弱く、ゼロフォノン線の低エネルギー側にTAフォノン等を介したフォノンレプリカバンドが観測される。次に、一方のキャリアのみ局在した量子井戸構造では、正孔のみ局在した場合と、電子のみ局在した場合とは、全く異なる発光を示すことがわかった。すなわち、正孔のみ局在したAlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸では、発光が非常に弱く、ゼロフォノン線の低エネルギー側に(3,3)超格子でも見られたフォノンレプリカバンドが観測された。それに対して、電子のみ局在したAlGaP/AIP/AlGaP 単一量子井戸は、予想を上回るかなり強い発光が観測された。また、AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸に見られるゼロフォノン線の高エネルギー側のいくつかの発光ピークは、AlGaP/AIP/AlGaP 単一量子井戸でも観測されており、量子井戸構造以外からの発光であると思われる。また隣接閉じこめ構造からは、同じような層厚の50周期の超格子に匹敵する強い発光が観測された。また、AIP層とGaP層の間を10Åの薄いAlGaP層で隔てたspaced-NCSからは、同じ層厚のNCSと比べ、かなり弱い発光が観測される。測定の都合上、試料近傍の光学系や試料サイズが微妙に異なることから、発光強度の絶対値を厳密に比較することはできない。おそらく、2-3倍の誤差はあると考えられる。しかし、特徴として言えることは、(3,3)超格子からの発光が他の超格子に比べて非常に弱いということ、電子のみ局在したAlGaP/AIP/AlGaP 単一量子井戸からの発光が意外にも強く、正孔のみ局在した量子井戸と全く異なるということ、隣接閉じこめ構造からの発光が、短周期に関わらず、50周期の超格子に匹敵する発光を示すということなどである。

4.2 磁場発生

4.2.1 磁場とその発生技術

1 cm² のなかに一つの磁束量子が存在するときの磁場の強さは 2.07×10^{-11} T であり、東京の地磁気の強さは約 5×10^{-5} T、またネオマックスという強力な磁石の磁極表面が約 1 T である。さらに、白色矮星は約 10^7 T、超強磁場中性子星に至っては約 10^{11} T 程度の表面磁場を持つことがわかっている^[103]。そして、我々が人工的に作り出せる磁場は、まだそのなかのわずかな領域にすぎない。それは、コイルに電流を流すと、発生磁場に伴ってコイルを広げようとするマクスウェル応力

$$F = \frac{1}{2} \mu_0 B^2 \quad (4.1)$$

が、磁場の二乗に比例して急激に増大し、コイルの材料強度を簡単に超えてしまうことによる。たとえば、100 T の磁場によるマクスウェル応力は約 400 kg/mm^2 (4 GPa) にもなり、いかなる導電性材料の引っ張り強度も、これを越えられない。純銅線の場合のそれは、たかだか $20\text{-}40 \text{ kg/mm}^2$ であり、30 T 程度の磁場に相当する。このために、より強い磁場を発生させるには、瞬間的に磁場を発生させるパルス磁場発生法や、コイルの破壊を伴う破壊型の磁場発生法が必要になり、定常現象にはない技術的な困難が生じる。しかし、強磁場がもたらす恩恵は計りしれず、たとえば 10^3 T の磁場で、電子のサイクロトロン軌道半径が 8 Å となり、結晶の格子定数程度となる。さらに 10^5 T で、自由電子のゼーマンエネルギーが約 11.6 eV と、化学結合のエネルギー程度になり、物質の安定相にカタストロフィーが起こることが予想さ

れる。また半導体の物理では、強磁場下2次元電子系においてフィリングが1よりはるかに小さな磁気量子極限状態において、いったいどのような物性が出てくるのか、全く興味がつかない。そのために、より強い磁場、より長い強磁場を求めて世界中の磁場発生施設で、今もなお挑戦的な試みが続けられている。強い磁場を定常的に発生させるには限界があり、現在のところ、超伝導マグネットと水冷マグネットを組み合わせたハイブリッドマグネットによる30 T程度が現実的な最高到達磁場であり、さらに強い磁場は、瞬間的に発生させるしかない。それには、大別して二つのアプローチがある。一つは、巨大なコンデンサーバンクに大量の電荷を蓄え、多層巻き、あるいは一巻きのコイルに放電して、コイル自身に流れる大電流により、直接、強磁場を発生させる方法と、コイルによって発生した磁場を、外的な力(あるいはコイルに誘起された力)でさらに濃縮して、磁束密度を上げる方法である。前者の代表例には、パルスマグネットや一巻きコイル直接放電法があり、後者には、電磁濃縮法や爆縮法がある。電磁濃縮法は、金属製の円筒(ライナー)にあらかじめ数T程度の弱い磁場を発生させ、その外側にある1次コイルに超大型のコンデンサーバンクから大電流を放電することによって、1次コイルとライナーとの間に働く電磁力でライナーを収縮させ、その中の磁束を濃縮する方法であり、唯一、東京大学物性研究所の極限環境物性研究部門において開発が行われ、最近では600 Tを超える超強磁場の発生に成功している^[70]。この方法は、爆縮法に比べ、磁場の制御に優れ、また磁場発生に伴う電磁ノイズが少ないことから物性測定に適しており、最近ではストリークカメラを用いた超強磁場中での時間分解ストリーク分光測定にも成功している^[68]。まさに、日常的に物性測定を行うことができる世界最高の磁場であると言える。ただし、原理上、磁場発生とともに試料が破壊されてしまうことが難点である。それに対して、一巻きコイル法は、インダクタンスを可能な限り抑えた高速コンデンサーバンクからの大電流を、一巻きのコイルの変形が生じる前に一気に流すことによって強磁場を発生させる方法で、同研究部門において、200 T程度の超強磁場を発生している。この磁場発生法のユニークな点は、コイルの変形が外側に起こるために、コイル内部にあった試料や冷却のための小型のクライオスタットがそのまま再利用できる点にある。このために、磁気光学測定、サイクロトロン共鳴^[69]、磁化測定、電気抵抗測定など、様々な種類の物性測定が行われている^[70]。ただし、どちらの方法も磁場の発生時間は μs のオーダーである。100 Tを超えるメガガウス(mega gauss)領域には届かないまでも、超伝導マグネットよりも遙かに強い磁場を非破壊的に発生できるのがパルスマグネットであり、これまでに80 Tを超える磁場を、パルス幅10=100 msで発生することを可能にしている。このパルス幅は、多くの場合、物理現象の緩和時間(特に磁場を加えたことによる非平衡状態が、平衡状態に落ち着く時間)よりも圧倒的に長く、連続的に変化するパルス磁場を用いても、磁場が加わったときの系の平衡状態を逐次、追跡することができる。(付け加えるならば、一巻きコイル直接放電法などでは、 μs オーダーの短いパルス幅を利用して、間接型半導体からの発光の緩和過程のダイナミクスの研究も行われている^[71]。)

4.2.2 パルス磁場波形

パルスマグネットの回路は、基本的にはインダクタ(コイル)とコンデンサと抵抗(コイル)で構成される直列LCR回路であり、それにイグナイトロンやサイリスタ等の大電力用のスイッチがついている。コイルに流れこむ電流は、直列LCR回路の過渡現象として計算することができる。コンデンサーの初期電圧を V_c とすると、回路方程式は、

$$L \frac{di(t)}{dt} + Ri(t) + \frac{1}{C} \int_0^t i(t) dt = V_c \quad (4.2)$$

となり、両辺を時間微分すると、

$$\frac{d^2 i(t)}{dt^2} + \frac{R}{L} \frac{di(t)}{dt} + \frac{i(t)}{LC} = 0 \quad (4.3)$$

となって、線形二階微分方程式の形になる。この解は、定常解 $i(t) = 0$ を除いて、係数の大きさによって3つの解をもつ。初期条件 $i(0) = 0$ を考慮すると、

(i) $R > 2\sqrt{L/C}$ のとき、

$$i(t) = ae^{-\frac{R}{2L}t} \left(e^{\sqrt{\left(\frac{R}{2L}\right)^2 - \frac{1}{LC}}t} - e^{-\sqrt{\left(\frac{R}{2L}\right)^2 - \frac{1}{LC}}t} \right) \quad (4.4)$$

(ii) $R < 2\sqrt{L/C}$ のとき、

$$i(t) = ae^{-\frac{R}{2L}t} \sin \sqrt{\frac{1}{LC} - \left(\frac{R}{2L}\right)^2} t \quad (4.5)$$

(iii) $R = 2\sqrt{L/C}$ のとき、

$$i(t) = ae^{-\frac{R}{2L}t} t \quad (4.6)$$

となる。(i)と(iii)は、いずれも単なる漸近減衰形であるが、(ii)は振動解となる。実際、本研究で用いた電気回路は、負荷コイルのインダクタンスが約6mH、コンデンサーバンクの静電容量が約24μF、負荷コイルの抵抗が約30mΩ(120Hz)であるから、(ii)の場合にあたる。このとき、電流(つまりは磁場)波形は、正弦波で振動しながら、その振幅が指数関数的に減少していき、 R を無視すると、磁場の立ち上がりからまたゼロに戻るまでの時間は、 $\pi\sqrt{LC}$ となる。また、コイルによる発熱(つまり、コイルの抵抗)を無視すると、コイルに流れる最大電流は、コンデンサーに蓄えられる電気エネルギーと、コイルに蓄えられるエネルギーが等しいとおいて、おおまかに求められる。すなわち、

$$\frac{1}{2} CV_c^2 = \frac{1}{2} LI_{\max}^2 \quad (4.7)$$

$$I_{\max} = \sqrt{\frac{C}{L}} V_c$$

でよく、この場合、約10kAの電流が最大流れていることがわかる。

実際には、安全のために接地抵抗を介して、回路全体が接地されており、振動は急速に減衰する。またコンデンサーへの逆充電を防ぐために、コンデンサーと並列にダイオードを入れることが多く(クローバー回路)。その場合、磁場の掃りで長く尾を引いた半正弦波的な磁場波形になる。

4.2.3 パルスマグネットとコンデンサーバンク

それでは、測定に必要な磁場空間を実現するためには、どのようにすればいいのだろうか。一つの考え方として、まず、必要な磁場と発生する空間の大きさから、コンデンサーの容量と充電電圧の関係が求まる。

$$\int \frac{B^2}{2\mu_0} dV = \frac{1}{2} CV_c^2 \quad (4.8)$$

小さなコンデンサーをいくつも組み合わせれば、かなり自由にコンデンサーの容量と、充電電圧を選ぶことができる。(もちろん、電圧が高くなると、絶縁破壊の危険も増し、予算も限りがある。)次にそれが、コイルに蓄えられるエネルギーに等しいとおいて、コイルのインダクタンスと最大電流の関係が求まる。(最大電流も、ケーブル等により、その上限は決まってしまう。)コイルのインダクタンスはコイル形状に依存し、最初に想定した磁場発生空間から、大体の形状(内径、巻き数、縦の長さ等)は、決まってしまう。あとは、計算通り、電流、電圧によって回路が破壊しなければ、何ら問題ない。しかし、もつとも計算しにくく、かつ破壊しやすいのは、大抵の場合、コイルそのものである。

では実際に、どのようなコイルが強い磁場を発生できるのかということ。話はそう簡単ではない。まず、第一に、コイルの形状の効果があり、これは、実際に巻いたコイル線材の空間的な位置を割り出し、それを細かい電流素片に分け、ビオ・サバルの法則から磁場分布を求めてみると、線材に働くマクスウェル応力が、場所によってずいぶん違うことが分かる。マクスウェル応力による弾性破壊、あるいはそこまでいなくても、コイル形状の変化(インダクタンスの増加)が、線材の絶縁層を傷つけ、最終的に絶縁破壊を起こすという破壊のメカニズムを考えると、線材に働く力をなるべく均等にしたいと思うところであり、コイルの内側に行くほど層間距離を増やす巻き方は、一つの選択である。この場合、ガラス繊維を層間に巻いて、層間距離を調整し、最後にスタイクキャストやエコシール等のエポキシ樹脂で含浸する。しかし、そうすると、単位体積あたりの電流量(フィリングファクター)が減ってしまう。同じ磁場を出そうとすると、電流電圧を増やさなければならない。また、体積のかなりの部分で、よわらかいガラス繊維(繊維には、自由度がある。)とエポキシ樹脂の層ができ、マクスウェル応力によってコイルが変形する余地を与えてしまう。これでは、逆に絶縁破壊を起こしかねない。そこで、もう一つの選択として、線材の機械強度(引っ張り強度)を高め、マクスウェル応力が働いても、線材が変形しないようにする方法がある。この場合は、なるべく堅い線材をフィリングを落とさないようにきっちり巻き、しかも、コイルが変形する隙間を与えないことが大切である。(というより、層間に絶縁物を入れながら、整然ときっちり線材を巻くのは、至難の技である。)純銅線の引っ張り強度を上げるために、Nb-Tiのフィラメントが銅に埋め込まれている線材が知られており、約70kg/mm²の強度を有する。これにより、約55Tの磁場を発生できる。また最近、さらに硬い線材として、銅銀合金が用いられており、この方法で、80Tを越える強磁場が発生されている。

第二に、コイルの発熱の効果を取り入れなければならない。仮に、電気回路に抵抗がない(LC回路)とすると、コンデンサーからの放電は、振動数 $1/\pi LC$ の無限振動となる。すなわち、コンデンサーとインダクタ(コイル)は、負荷にはならない。今、単純に、電気回路に加わった抵抗(コイル)だけがエネルギーを消費しジュール熱に変わったと仮定すると、純銅線の77Kでの比熱0.195J/(g·K)で計算すると、300kJのエネルギーは1kgの純銅コイルの場合、1540Kにも相当する。実際には回路の他の残留抵抗成分があり、銅の比熱も温度上昇とともに2倍程度は大きくなる。そして、コイルは常に液体窒素に浸かって冷却されている。しかし、相当な温度上昇があることは確かであり、コイルの抵抗が大きくなって、電流量ひいては発生磁場が頭打ちになってしまう。また、パルスマグネットでは、通常エポキシ樹脂による含浸が行われているが、このエポキシ樹脂が、ジュール熱によって変質しかねない。また、我々が採用している氷をパルスマグネットの補強に利用する氷マグネット方式^{[104][105]}では、氷が溶けてしまうだ

ろう。このことが、マクスウェル応力によるコイルの破壊とならんで、強磁場発生時のネックになることは間違いない。この問題を避けるためには、極力、コイルの抵抗を小さくする必要がある。すなわち、抵抗で消費されるジュール熱は、電流電圧を実効値で表すと、

$$Q = I^2 R t \quad (4.9)$$

となる。電流を一定（ということは磁場を一定）とすると、 t はほぼ L と C で決まるので、磁場一定でジュール熱を抑えるためには、コイルの抵抗 R を減らす必要がある。この点では、先ほど紹介した、銀銅合金は純銅線に比べ、3 倍程度抵抗が高く、コイルの発熱の問題が生じる。

次に、本研究で実際に用いたパルスマグネットの断面図を図 4.5 に示す。パルスマグネットは、線材の引っ張り強度を上げるために、銅に超伝導材料でもある Nb-Ti のフィラメントが多数埋め込まれている線材を使用した。線材の断面積は $1.77 \text{ mm} \times 3.54 \text{ mm}$ (縦×横) で、引っ張り強度は約 70 kg/mm^2 である。また、線材の周囲には $50 \mu\text{m}$ 厚のホルマル被覆が施されている。中心のパイプは、内径 16ϕ 、厚さ 0.5 mm 、長さ 200 mm のステンレス管の両側に厚さ 20 mm の FRP 製のフランジを 90 mm の間隔をあけてエポキシ樹脂で接着し、線材を巻く部分にはカプトンテープを巻いて絶縁した。そして、ふたつの FRP 製のフランジの間に、巻き線器で張力をかけながら、10 層巻いた。この際、層間にエポキシ樹脂のひとつであるエコシール (株) グレースジャパン、W-19) に硬化剤カタリスト 9 (株) グレースジャパン) を混ぜた充填剤を浸透させたガラス繊維 (幅 20 mm) を巻き、層間距離を調整した。層間の絶縁層の厚みは、コイルの内側ほど厚くなるようにした。巻き終わった後、コイルの周囲にさらに、エコシールを浸透させたガラス繊維を薄く巻き、オープンに入れて 60 度で一昼夜置き、接着剤を固めた。次に、ス

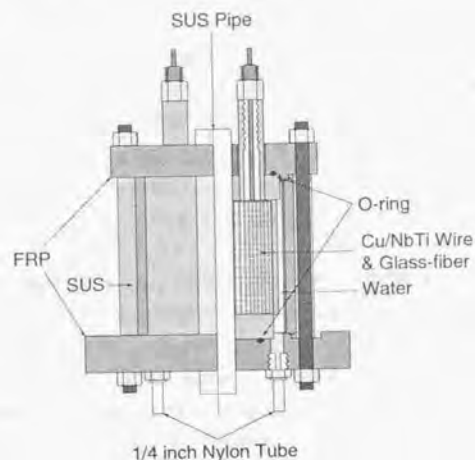


図 4.5 パルスマグネットの断面図。

Nb-Ti のフィラメントが多数埋め込まれている線材を使用し、コイルの内側ほど層間の絶縁層の厚みが厚くなるようにエポキシ樹脂を溶かし込んだガラス繊維を巻いている。

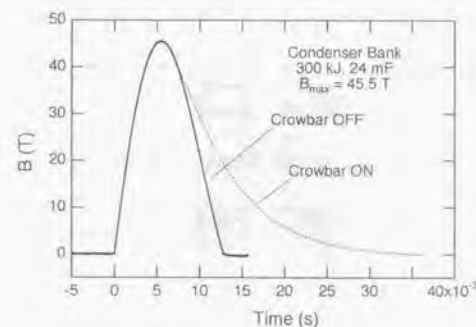


図 4.6 蓄積エネルギー 300 kJ、静電容量 24 mF における発生磁場波形。最大磁場 45.5 T で、パルス幅約 $12.5 \mu\text{s}$ (クローバー回路未使用時) クローバー回路使用時は立ち下がりまでのパルス幅が約 3 倍になっている。

テンレス製のボビンにコイルを入れ、FRP 製の上部フランジと下部フランジをボルトで固定した。さらに、通常良く行われる含浸の手間を省くためと、磁場発生後のコイルの冷却速度を向上させるために、コイルとボビンの間に水を入れ、液体窒素温度で水が固化することによってコイルの変形を抑える。水マグネット方式とした。ただし、コイル内部には、ほとんど水が浸透しておらず、もはや純粋な意味での水マグネットではない。テスト段階で最大 47.5 T の磁場を記録し、そのときのコイルのインダクタンスは磁場発生前に比べて、約 1.5% ののびを示した。安全のために常用で最大磁場を 45 T とし、2 年間に数千回の磁場発生を行っているが、現在もまだ稼働中である。このマグネットの冷却速度は、 45 T の磁場発生後において、抵抗の上昇分が発生前の 1 パーセント以内に戻る時間を目安とすると、約 30 分であった。

このパルスマグネットの電源として用いたコンデンサーバンク (パルス大電流を得るための大型コンデンサー) は、蓄積エネルギー 300 kJ で、 50 kJ のコンデンサー 6 つから構成されている。この内部コンデンサーの接続を直列または並列に切り替えることによって、静電容量 24 mF で充電電圧 5 kV 、あるいは静電容量 6 mF で充電電圧 10 kV のいずれかのモードで、稼働させることができる。また、コイルと並列にダイオードが入っており (クローバー回路)、コンデンサーに逆方向の電荷が流れ込むのを防いだり、パルス幅を長くできるようにになっている (図 4.6)。本研究では、長いパルス幅の磁場を発生させるために静電容量 24 mF のモードで使用し、 $L=1 \text{ mH}$ 、 $R=10 \text{ m}\Omega$ のパルスマグネットで約 2.7 kV の充放電により、最大 47.5 T 、パルス幅約 12.5 ms の強磁場を発生した。

4.3 高圧クランプセルの開発

4.3.1 静水圧

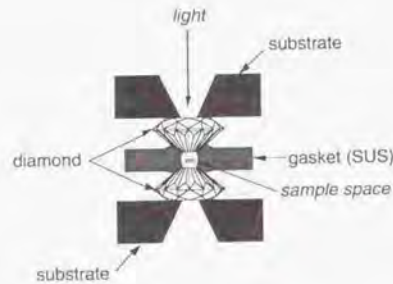


図 4.7 ダイヤモンドアンビルセルの試料近傍の断面図。
 ガasketが金属であるために、パルス磁場中で渦電流が発生し、試料が加熱される。

定常磁場下での静水圧発生法として、クランプ式のダイヤモンド・アンビル・セル (DAC) とピストン・シリンダー式圧力セルが知られている。DACは、金属製のガスケット内に試料と圧力媒体 (アルコール等) を入れ、上下から対向させたダイヤモンドでクランプすることによって高圧 (この場合は静水圧) を発生させる方法で、様々な物性測定に用いられている。光学測定についても、光ファイバーを用いることによって、比較的容易に行うことができ、ハイブリッドマグネットと組み合わせることによって、強磁場・高圧・低温といった多重環境下での興味深い研究が行われている^[72]。しかし、DACをパルス強磁場下で使用した場合、ガスケットの渦電流による発熱 (ダイヤモンドの上台に用いる金属の発熱もある) で、試料の温度上昇は避けられない。すなわち急激に変化する磁場中では、導体内に磁場の時間微分に比例した電流が誘起され、それによってジュール熱が発生し試料を加熱してしまう。非金属製のガスケットを用いることができれば、この問題は改善されるが、今のところ金属材料に頼らざるを得ないのが現状である。最高磁場 40 T、磁場の立ち上がりから 0 T に戻るまでのパルス幅約 12 ms のパルス磁場中で、液体窒素に浸された DAC 内の試料の最高磁場到達時における温度上昇は約 20 K であった。(静水圧下における GaAs/AlAs タイプ II 超格子からの発光の温度依存性から見積もった値である。) また、ピストン・シリンダー式圧力セルはテフロンで作られた容器の中に圧力媒体と試料を入れ、蓋をして、金属製シリンダーの内部に挿入し、超合金製のピストンで加圧して高圧を発生させる方法で、主に定常磁場下での電気的測定に用いられている。この技術を応用し、パルス強磁場中で使用できるサファイア窓を持つ光学測定用圧力セルの開発を行った。

50 T、1 GPa、4.2 K 程度の、強磁場・高圧 (静水圧)・低温という多重極限環境下で半導体の光物性測定を行う場合、強磁場・低温下で高圧を発生させる圧力セルに求められる条件とは何であろうか。まず 30 T 以上の強磁場はパルス的に発生させるしかない。そこで、パルス強磁場で誘起される渦電流による試料の温度上昇を避けるために、試料周辺は絶縁体でなければならない。また、磁場によって力を受けないために、非磁性材料を用いなければならない。さらに、磁場は小さな空間で発生させた方が磁場強度の点で有利であり、その中に液体ヘリウム溜めを作り、4.2 K で測定できるように、なるべく小さな圧力セルが望ましい。また、半導体の光物性測定を行うためには可視領域で透明な窓が必要である。これらすべての

条件を満たしてはじめて、強磁場・高圧・低温を組み合わせた多重極限環境下での光物性測定が可能となる。これまで超伝導マグネットによる定常磁場中での静水圧発生法として多く用いられてきた DAC は、金属製円環 (ガスケット) 内に圧力媒体を入れ、両側からダイヤモンドで圧縮して高圧を発生させる。このときガスケットを圧縮・変形させる力と、ガスケット内の圧力媒体の反発力の釣り合う条件が、高圧を発生する空間の壁面を形成する。それに対して、最近開発したクランプセルはあらかじめ圧力を発生させる空間を作り、その中に圧力媒体を封入したテフロン容器を入れ、壁面をピストンで押すことによって、テフロンが試料空間を確保し、さらにシーリングの働きを兼ねることによって、圧力を発生させる方法である。図 4.8 に圧力セルの組み立て時の断面図、および部品図、さらに試料空間周辺の拡大図を示す。また、図 4.9 に光ファイバーを含めた立体図を示す。本体は時効処理したベリリウム銅 (ベリリウム 2% 合金) を用いている。これは時効硬化性合金として有名であり、非磁性金属の中では最も硬い材料である。(ベリリウム銅は微量ながらバインダーとして磁性イオンであるコバルトを含んでいるが、磁化はこの場合無視出来るほど小さい。)

試料は、外径 4 φ、内径 2 φ で両端内側に 3 φ の段のある円筒状のテフロンの中に圧力媒体 (メチルアルコールとエチルアルコールの 4:1 混合液) と圧力モニター用のルビーの薄片と共に入れ、その両端を鏡面研磨された外径 3 φ、厚さ 1 mm のサファイア製円盤で密閉する。これをベリリウム銅製の本体内に焼きばめされた外径 8 φ、内径 4 φ のジルコニア (東京セラ、Z-703) 製パイプに挿入し、両側から外径 4 φ のジルコニア製ピストンで圧縮し、高圧を発生させる。片側のピストンには、光学測定用に 1 φ の穴が開いている。この時、テフロンセル内の圧力媒体がサファイアの円盤で完全にシールドされ高圧が保持されるためには、テフロンセルが動径方向にあまり変形を受けないことが重要である。そのためにはジルコニア製のパイプとピストン及びテフロンセルとの隙間、さらにテフロンセルとサファイア円盤との隙間は狭い程良い。即ち、これらの微小な隙間にテフロンが変形、充填されることによって、圧力媒体が封じ込められ、高圧が保持される。実際にはパイプ、ピストン、テフロンセル、サファイア円盤のはめあい部分はすべて ± 0.01 mm の加工精度で製作している。このジルコニアはセラミック材料の中で曲げ強度 (約 20,000 kg/mm²)、圧縮強度ともに最高の部類に入るものであり、耐摩耗性にも優れている。そしてピストンの中心にある約 1 φ の穴に光ファイバーを挿入することによって光学測定が可能となる。圧力のモニターはルビーの R1 線のエネルギーシフトから、 $\rho(\text{GPa}) = 2.74 \times \Delta\lambda(\text{nm})$ の関係式で計算でき、本研究で発生させる圧力領域では、きわめて高い線形性が確認されている^[74]。圧力セル全体のサイズは外径 11 φ、全長約 50 mm である。まだ開発段階であるが、これまでに約 1.6 GPa の圧力の発生に成功している。また、ルビーの R1 線の半値幅から、高い静水圧性を確認している。

この圧力セルの大きな特長は、第一にパルス強磁場下で試料の温度上昇が起こらないことである。圧力セル本体は金属でできており、パルス磁場の立ち上がりに強く誘起される渦電流によるジュール熱が発生するが、試料との間はセラミックとテフロンでシールドされており、試料近傍に金属材料がないために、数 ms 程度の測定時間内では試料の温度上昇は起きない。第二に大きな試料空間が挙げられる。今回開発した圧力セルは、直径 2 φ、高さ 2 mm の試料空間があり、ダイヤモンドアンビルセルと比較して体積にして 2 桁近く大きくなっている。このことは、試料のセッティングを容易にするうえに、50 T に及ぶ強磁場を発生できる時間内 (1 ms 程度) での光学測定で問題となる光強度の点で大変有利である。ちなみに、試料の交換・加圧に要する時間はせいぜい 30 分程度であり、DAC と比べ驚くべき簡便さだと言える。また、試料空間内に超小型の直角プリズム (1 × 1 × 1 mm) を配置することにより、光の進行方向

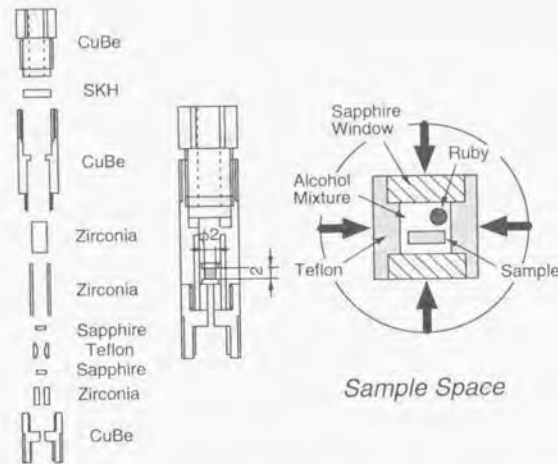


図 4.8 ハルス強磁場中で光学測定ができる高圧クランプセル (静水圧)。
50 T の強磁場、1.6 GPa の高圧、4.2 K の低温下での光学測定が可能であり、直径 2 φ、高さ 2 mm の試料空間を有する。

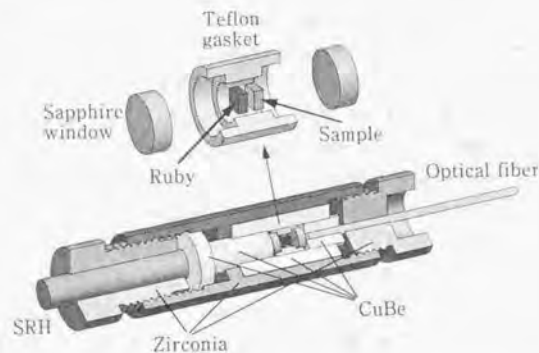


図 4.9 ハルス強磁場中で光学測定ができる高圧クランプセル (静水圧) の立体図。
試料に最も近い部分には、ジルコニアを用いている。ジルコニアピストンの穴に光ファイバーを挿入することによって、光学測定が可能となる。

と磁場が垂直なフォークト配置での測定も可能であり、既に測定に成功している。第三に、圧力の調整が容易である点が挙げられる。これは、テフロンセル内のピストンを押す油圧プレスの圧力と、実際に試料空間で実現される圧力がほぼ線形の関係にあるためであり、加圧・減圧を繰り返しても、かなりの精度で圧力を再現する。これは DAC にはない特徴である。

高圧発生時は、テフロンセルが軸方向に圧縮、変形されるため、試料の大きさの上限は、直径 2 φ、厚さ 1 mm 程度である。このテフロンセルの片側を直径 3 φ、厚さ 1 mm のサファイアの円盤で密閉し、その中に圧力媒体であるアルコール混合液と試料、圧力モニター用のルビー粉末を入れ、さらにもう片側を同じサファイアの円盤で密閉する。この時点でテフロンセル内に気泡が入っていないか、試料、ルビーが適切に封入され、意図した位置に納まっているか、容易に確認することができる。次にこのテフロンセルを本体内に焼きばめされた内径 4 φ のジルコニア製パイプの中へ挿入する。このとき注意しなければならないのは、挿入時にセルを押しこむことによって、気泡が入ってしまうことである。そこで、本体をあらかじめ圧力媒体として用いているメチルアルコール・エチルアルコール混合液中に沈めておき、液体中で、テフロンセル、ピストン等の挿入を行っている。また面接触するピストンとサファイア円盤表面は鏡面研磨し、ゴミ等が挟まれないように十分注意する必要がある。次に本体の両端を締め金具で仮締めする。最初に光の入射側を締め、その後で、反対側から超硬材料で作られた直径 7 φ、厚さ 2 mm の円盤を入れ、締め金具で、締め上げる。この締め金具には中央に 4 φ の穴が空いており、超硬材の丸棒をさし込み、油圧プレスで、先に入れた超硬材の円盤を介してピストンを押し加圧する。この圧力セルは DAC と比べ、圧力を発生する空間の断面積が格段に大きいため、1 GPa 程度の高圧をネジ締めだけで発生させることはできない。そこで、油圧プレスで丸棒を押し、設定圧力まで加圧したのち、締め金具で本体内のピストンを固定する。この際、油圧プレスの圧力ゲージが若干減少することを確認する。そののち油圧プレスの圧力を解放し、圧力セル本体のみで高圧が保持される。この状態でのテフロンセル内の試料の様子は、実体顕微鏡によりファイバー用の穴から観察することができる。こうして高圧を保持した圧力セルを液体ヘリウム中で使用する場合、金属に比べてテフロンや圧力媒体の熱膨張係数が大きいために、低温では相対的にテフロンセルが収縮し、室温よりも圧力が下がってしまう。しかし、約 1 GPa までは到達圧力と油圧プレスの圧力がほぼ線形の関係にあり、かなりの精度で任意の圧力に調整することができる。またテフロンセルの大きな弾性のために、一度高圧をかけた後減圧することも容易にでき、加圧と減圧を繰り返しても圧力の再現性が良く、このあたりも減圧時に圧力媒体が抜ける危険性の高い DAC と大きく異なる点である。この圧力セルを、中に光ファイバーを通してあるステンレスパイプで作られたホルダーの先端に固定し、ハルスマグネット内の二重管の中へ挿入する。ホルダー内のファイバーはクライオスタットの外側で、二分岐型の光ファイバーの収束側と接続される。そして、分岐側の方のファイバーに励起光を入射し、もう一方の分岐側ファイバーから出てきた発光を分光器に入射することによって、発光スペクトルの測定ができる。この方法では発光成分の他にレーザー光の一部がファイバー端面及び試料表面で反射されて出てくるため、分光器の手前でローパスフィルターを入れる必要がある。

4.3.2 一軸性応力

さらに最近、ハルス強磁場中で一軸性応力を発生することのできるクランプセルも独自に開発した。これは、静水圧用のクランプセルと共通のシリンダーを使用し、シリンダー内に挿入するピストンや、テフ

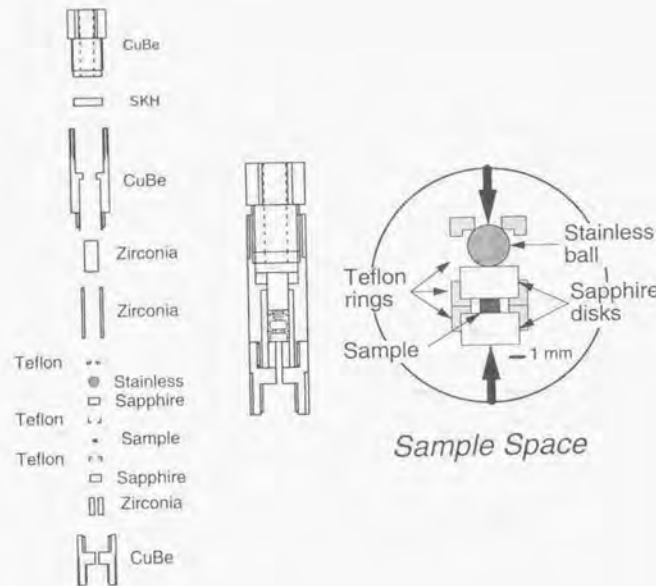


図 4.10 パルス強磁場中で光学測定ができる高圧クランプセル（一軸性応力）。
50 T の強磁場、1.6 GPa の高圧、4.2 K の低温下での光学測定が可能である。

ロンセル、ステンレス球を交換することにより、一軸性応力を発生できるものであり、図 4.10 に圧力セルの断面図と試料空間周辺の拡大図を示す。静水圧の場合と大きく異なるのは、試料を上下から直接、厚さ 2 mm のサファイアの内盤で挟み込む構造になっているところで、試料を均等に圧せるように、直径 2.5 mm のステンレス球を片側において、水平方向の自由度を持たせている。サファイアの内盤とステンレス球の周辺には、中心軸をあわせるためにテフロン製のリングをはめる。この圧力セルは、圧力を発生させる面積（試料の表面積）が静水圧の場合（テフロンセルの断面積）に比べて 1 桁以上小さいために、圧力セルのピストンを直接、空気圧シリンダーで圧すことにより加圧することができる。これは、パルス磁場内で、低温下で自由に圧力調整ができることを意味しており、大きな特長のひとつである。また、試料に加わる圧力 p は、金属顕微鏡で実測した試料の表面積 s と空気圧シリンダーの圧力 P とシリンダー径 S との関係

$$p = \frac{S}{s} P \quad (4.10)$$

から求めることができ、静水圧におけるルビーのような圧力モニターが必要ない。実際には圧力セルと、

圧力セル内に光ファイバーを導くためのステンレス管、光ファイバー、磁場をモニターするピックアップコイル等が、さらに一回り大きなステンレス製ホルダーの中に挿入されている。ホルダー上部には加圧用空気圧シリンダーがあり、ホルダー下部に設置されたピストンに対して、圧力セルを押しつけることにより、試料に圧縮応力を加える。この際、圧力セル、ファイバー、ステンレス管、加圧用空気圧シリンダー等の自重により、圧力を加えなくても、試料に圧力が加わった状態になる。そこで、これらの自重を補償するための空気圧シリンダーをさらに設け、ホルダーに対して、すべてを浮かせたのち、加圧する機構になっている。これまでに、直径 25 mm のシリンダー径をもつ空気圧シリンダーを用いて、約 0.7 mm 角の試料について、約 1.6 GPa の一軸性応力の発生に成功し、パルス強磁場・高圧（一軸性応力）・低温下での光学スペクトル測定を行っている。

4.4 光学測定系

4.4.1 OMA

パルス強磁場中で光物性測定を行うためには、従来の波長走査型の繰り返し測定の手法を取ることはできない。それは、パルス強磁場発生に伴って温度上昇したコイルの冷却が必要となるために、周期的な繰り返しパルス強磁場の発生が現実的に困難なためである。そこで、考え出されたのが、OMA を用いた測定法である。OMA は、横一列にフォトダイオードなどの光検出器を並べたアレイに、スペクトロメータにより同じく横方向に分光された光の帯を結像させることにより、一瞬のうちに、光学スペクトル全体を取り込むことができる装置であり、通常、ダイオードアレイの直前に光強度を増幅するためのイメージインテンシファイアが置かれる。そして、イメージインテンシファイアを駆動するゲート電圧と、パルス強磁場のタイミングを合わせることによって、パルス磁場の最大値におけるスペクトルを検出することができる。この方法を用いて、量子井戸^[81]、超格子^[82]、量子細線^[83]、量子ドット^[83-87]といったあらゆる次元の半導体ヘテロ構造に関する実験が数多くなされ、強磁場光物性の研究における強力な実験手法として、すでに定着している。そして、最近、検出器に CCD (Charge Coupled Device: 電荷結合素子)

CCD 型式	1530-PUV
画素サイズ	19 μ m × 19 μ m
画素数	512 × 512
画面サイズ	9.7 mm × 9.7 mm
波長領域	200-1100 nm
ダイナミックレンジ	18 bit
増幅率 (electrons/count)	4-5
読み出し速度 (最高)	10 μ s/line
量子効率 (650 nm)	約 40 %

表 4.1 CCD 検出器の仕様。

を用いた新しい OMA が開発され、縦方向にもダイオードが整列することによって、より高感度の測定が可能となっている。しかし、検出器が CCD になったことのお恵は、そればかりではない。CCD は本来、光電変換によって生成された信号電荷を次のピクセルへと移動させるシフトレジスタ機能を用いて、データを読み出している。この働きを利用して、パルス磁場で刻々と変化する光スペクトルを連続的に記録することが可能となる^[89]。本研究で用いた 株式会社 SEIKO EG&G 製 OMA4 の CCD 検出器の仕様を表 4.1 に示す。この CCD は光電変換、電荷蓄積、電荷輸送を同一部分で行うフルフレームトランスファー型であり、開口率が 100% である。また、CCD を液体窒素で冷却することにより、従来に比べノイズを大幅に低減している。

4.4.2 インテグレートモード

これまで行われてきたパルス強磁場中での分光測定は、最大磁場付近で OMA のゲートを一瞬だけ開いて、1 ラインのスペクトルを検出するという方法だった。この測定法は、限られた時間の露光を波長方向のピクセルごとに積算して記録することから、ここではインテグレートモードと呼ぶことにする。この方法は、OMA4 を用いても行うことができる。まず、分光器で分光されたスペクトルをレンズ系でさらに CCD 面に結像させ、512 × 512 の CCD の縦方向 400 ピクセル分を積算して、1 ラインのスペクトルとした。ただし、OMA4 では、これまでの OMA のように、イメージインテンシファイアを使用していないので、ゲート電圧に対応するものがなく、ある瞬間的な時間だけ、CCD を動作させるということができない。さらに、CCD 全面に内蔵されているシャッターは外部から駆動できるようになっているが、その動作が数 10 ms と、実験のタイムスケールに対してかなり遅い。つまり、一度計測を開始すると、内部シャッターが開いている間は、露光され信号電荷がたまり続けることになる。そこで、入射する光源自体を、チョッパーと機械式のシャッターで単パルス化して、その単パルス光と磁場発生タイミングを合わせることにした。本研究では、約 12.5 ms のパルス磁場の頂上でパルス幅 1 ms のパルス光を CCD に入射することにより、誤差 ± 1% 以内の均一な磁場下での光学測定を行った (図 4.11)。

4.4.3 ストリークモード

CCD は Si の表面に SiO₂ 絶縁膜をのせた MOS (Metal-Oxide Semiconductor) ダイオードを p 型 Si チップ上に複数個並べたものであり、ダイオードの表面金属電極に電圧を印加することによって、基板内部に空乏層を作り、これにより生じるポテンシャル井戸に電荷を蓄積する。さらに、位相の異なるクロックパルスを印加することによって、隣接する電位井戸、つまりは CCD 画素に電荷を転送することができる。これがシフトレジスタ機能であり、画像データの読み出しに使われている。この機能を応用して、パルス磁場で刻々と変化する光スペクトルを連続的に記録する OMA ストリーク分光測定装置の開発を行った。図 4.12 にその原理を示す。まず、CCD の第 1 列のピクセルだけに、分光器によって分光されたスペクトルを結像させる。この状態で、縦方向にシフトレジスタ機能を働かせると、第 1 列目の信号電荷が第 2 列目に、さらに第 2 列目の信号電荷が第 3 列目にと、逐次、次の列に信号電荷が転送されていく。こうして、磁場のパルス幅に対応して、シフトタイムを調整してやれば、連続的に変わるパルス磁場中で、0 T から最大磁場までの連続的な時間分解スペクトルが得られることになる。本研究で用いた CCD は、最

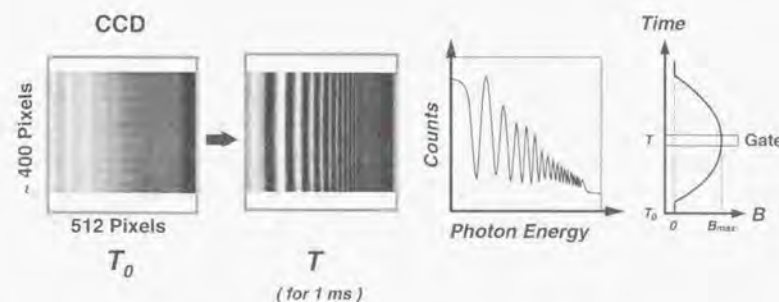


図 4.11 OMA インテグレートモードによるパルス磁場中での分光測定概念図。

パルス磁場の頂上付近で光パルスを同期させることにより、瞬間的なスペクトルの帯を CCD に照射し、縦方向に積算することによって均一な磁場下での精密な 1 次元スペクトルが得られる。

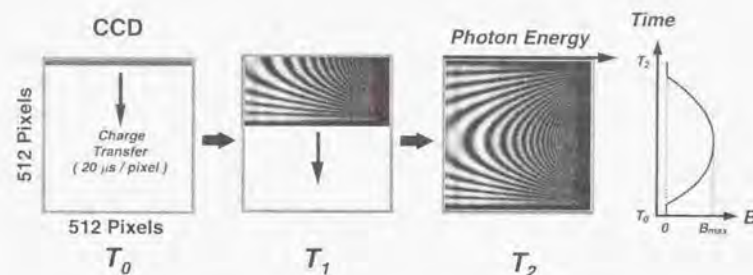


図 4.12 OMA ストリークモードによるパルス磁場中での時間分解ストリーク分光測定概念図。

CCD の第 1 列のピクセルの信号電荷が逐次 2 列目以降に送られるシフトレジスタ機構を、パルス磁場と同期して動作させることにより、強磁場中での連続的な時間分解スペクトルが得られる。

速で 10 μs/pixel であるから、5.12 ms 以上の時間変化を 512 分割された時間分解スペクトルとして検出することができる。実際のパルス磁場のパルス幅は約 12 ms であるから、磁場の立ち上がりから立ち下がりまで測定する場合、シフトタイムは 28 μs/pixel に設定した。このストリークモードでの測定でもっとも重要な要素のひとつは、分光器から出た光スペクトルを、精度良く横方向に切り出すことである。本研究では、分光器の出射側スリットの位置に、石英ガラスにアルミを蒸着して作った横型スリット (幅 100 μm) を置き、そのスリット像の片側のエッジを対向させたカメラレンズでさらに CCD 面上に結像させ、第 1-2 列目に光を入射した。しかし、単スリットの回折現象のため、実際には、第 5 列目まで光が入る。光強度の 90% 以上は第 1-2 列目に入っているが、この縦方向の光の広がり時間分解スペクト

ルの時間精度(磁場精度)を決める要因となっている。また、時間精度と波長精度に関して気をつけなければならないのが、信号電荷の浸みだしである。CCDに光を長時間照射したり、許容量を越える光を照射すると、信号電荷が近接する画素に浸みだしてしまう。この浸みだしは等方的に起こるために、時間精度と波長精度の両方に影響する。

このように光学系を変更するだけで、全く異なる2つの測定法を使い分けることができる。ここで注意すべきなのは、2つのモードの検出感度には圧倒的な違いがあるということである。本研究で用いたパルス幅約12.5 msのパルス磁場では、誤差 $\pm 1\%$ 以内の均一な磁場中でのスペクトルを得るためには、インテグレートモードでは、縦方向の約400ピクセルが1 msの露光時間で信号電荷を蓄えられるのに対して、ストリークモードでは、1ピクセルあたり28 μs の露光時間しかなく、磁場の立ち上がりで誤差 $\pm 1\%$ 以内の磁場範囲のスペクトルを得るためには、わずかに数ピクセル分の積算しか許されない、ということ、ストリークモードでの1スペクトルにおける延べ露光時間は10,000分の1程度である。にもかかわらず、この測定モードが重要なのは、たとえば磁性半導体のファラデー回転である。ファラデー回転は、透過強度の明暗の変化が、回転角(磁性体の場合、磁化に比例する)となって現れる。しかし、突然の磁気秩序の変化に対応した急激な透過光の変化が観測されるような系では、回転の向きまで特定するのは、実は非常に困難であり、単色光のファラデー回転測定の場合、原理的に不可能である。Yasuhira等^[90]はこの問題を、OMAストリーク分光測定法を用いた2次元時間分解スペクトルとして測定することにより見事に解決し、希釈磁性半導体ZnMnSeの磁気ステップに対応したファラデー回転のステップ構造を観測し、反強磁性交換相互作用の大きさを見積もることに成功した。また、磁場による各種相転移や、半導体の磁場誘起タイプI-タイプII転移に伴う発光スペクトルの変化など、磁場による急激な物性の変化をもたらす系では、現象の連続観測が必要不可欠であり、OMAを用いたストリーク分光測定は有効な測定手段として、今後ますます重要になるものと思われる。

これまでも、ストリークカメラを用いて、一巻きコイル法や電磁濃縮法といった100 Tを遙かに越える超強磁場発生法と組み合わせた、ストリーク分光測定が行われており、数多くの研究例が報告されている^{[91][92][93]}。しかし、ストリークカメラは光を電子に変換して高電圧で掃引させるために、画像の歪みが大きな問題となっており、コンピューターを用いた歪み補正のための画像解析が不可欠である。さらに、使用波長範囲がCCDを用いたOMAよりも狭く(400-800 nm)、研究の幅を狭める一因となっている。(最近では、ストリークに伴う画像歪みをほとんど生じないストリークカメラが生産されており、現在、超強磁場中でのストリーク分光測定装置として開発中である。)これに対して、CCDを用いたストリーク分光測定法は、ストリークカメラほどの時間掃引速度はないが、磁場発生タイムスケールの点でパルスマグネットと相性が良い。また使用波長範囲が広く、なにより原理的に画像の歪みが全くない、画期的なものである。さらに最近、CCDの第1列目を残して、残りのピクセルを直接金属プレートで遮光するタイプのストリークモード専用OMA分光装置を開発中であり、時間精度の向上のみならず、分光器とCCDをレンズ系で結合する必要がなくなることから大幅な測定精度の向上と、近紫外領域における測定波長領域の拡大(4.4.4節を参照)が期待できる。近年のCCDイメージセンサーの進歩はめざましく、今後、より画素サイズが小さく、量子効率の良いCCDが生産されれば、さらに強力な測定法になるものと思われる。また、掃引速度についても、原理的には、相当速くできるはずで、将来が期待される。

4.4.4 分光器

分光器は、Jobin-Yvon社のツェルニーター型分光器IR-320を用いた。この分光器は焦点距離320 mmで、本研究で用いた58 mm角の回折格子使用時におけるF値は5.0であり、開口数にして0.1に相当する。測定波長範囲にあわせて、回折格子の溝数を150, 300, 600, 1200 grooves/mmと変えて使用した。たとえば、1200 grooves/mmの回折格子を使用した場合の波長分散は2.5 nm/mmであり、OMAと組み合わせて約25 nm幅のスペクトルを検出することができる。もちろん、測定波長にあわせて、最適なブレース波長を持つ回折格子を選択する必要がある。分光器の分解能は1200 grooves/mmの回折格子(58 mm角)を使用したときに、579 nmの波長において0.4 Åであり、このときCCDの1画素あたりの受光波長範囲は約0.5 Åとなる。分光器の入射側はバンドルファイバーを直接取り付けられるように改良されており、ファイバー端面がスリット位置で微調整できるようにX-Yステージが装着されている。また、分光器の射出側は、前述のように、スリットの位置に、石英ガラスにAlを蒸着して作った縦スリット(幅100 μm)を差し込めるようになっており、インテグレートモードではスリットをはずし、ストリークモードでは再現性良く挿入できる機構になっている。そして、スリット位置の像を対向させた2組のカメラレンズ(Nikon 50mm, F/1.4)でOMAのCCD面上に結像させている。カメラレンズは、開口数が大きく、なおかつ、可視領域での取差を可能な限り取り除いており、市販されている組み合わせレンズとしては、極めて高度で、その割には非常に安価なものひとつである。ただし、取差を取り除くために、多くのレンズを組み合わせしており、レンズ同士を張り合わせている接着剤や、表面のコーティング剤の影響で、約400 nmより短波長の光は透過しない。この測定システムの短波長側の測定限界は、ここで決まっている。

4.4.5 ファイバー光学系

電磁場の一形態である光の伝播を支配するのは、言うまでもなくMaxwell方程式であるが、光の波動性や粒子性といった光の本質を無視して光を直進する光線と捉え、媒質中の光の進み方を研究するのが幾何光学である。そしてそれは、二点間の光の進み方は所要時間が極値になるような経路をとるという、フェルマーの原理に基づいており、そこから幾何光学のもっとも基本的な定理である反射・屈折の法則が導かれる。そして、大抵の場合、光学測定を行うために組み上げる光学系は、幾何光学によって設計される。光学測定を行う場合、時間に依存しない測定(普通の吸収、反射、発光スペクトル測定)では、より多くの光をいかに効率的に伝播させるかが問題となり、光速が無視できないような時間に依存する測定(発光の時間分解スペクトル測定など)では、集光の問題に加えて、光の経路の違いによる時間遅延が問題となる。

本研究におけるパルスマグネットを用いたOMAストリーク分光では、最小露光時間は1ピクセルあたり28 μs 、インテグレートモードでも1 msである。この短い時間にできるだけ多くの光を取り込むことが測定データの精度を決定づける。しかし、光を光源から試料、検出器へといかに効率的に伝播させるかということは、そう簡単な問題ではない。たとえば、光源の大きさ(白熱電球のフィラメントの大きさなど)と同じ大きさの試料に光を照射し、また透過あるいは反射した光をさらに全く同じ大きさの検出器に入射することを考えると、光源と試料の中間点と、試料と検出器の中間点にそれぞれレンズの主点がくるような光学系を組むのが、もっとも光の損失が少ない。これは幾何光学から導かれる結論であり、それから少しでもずれば、像の倍率 m が1でなくなり、光を損してしまう。

$$m = \frac{r''}{s} \quad (4.11)$$

仮に、光源と試料に2 mの距離があり、また試料と検出器にも2 mの距離があって、直線上にすべて並んでいるとすると、もっとも単純には、それぞれの中間点に焦点距離50 cmの凸レンズを一枚づつ置くだけでよい。シャープな像を結びたいければ、凸レンズの代わりに球面アクロマチックレンズを用いた方がよい。焦点距離100 cmでもっともトナンパーの大きな球面アクロマチックレンズは直径5 cm程度であり、開口数にして0.05である。この光学系の光経路を確保する空間がなければ、あるいは、もっと取り込む光を増やしたければ、さらにレンズを組み合わせる必要が出てくる。しかし実際には、測定すべき試料は、クライオスタット内のバルスマグネットのさらに内側という非常に奥まったところにあり、レンズやミラーで光学系を組むには、大変な労力がある。もし仮に光のパスを確保できたとしても、それはファイバー光学系を用いた場合と比べると、全く満足できないレベルであるのは、間違いない。その理由の一つに、レンズの持つ収差がある。レンズは、光軸上からでた光が光軸上の極めて近いレンズ表面に入射し、また光軸上に結像するように設計されており、焦点距離 f と共役距離 s, s' との間に、近軸公式と呼ばれる

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{s} + \frac{1}{s'} \quad (4.12)$$

の関係がある。そして、レンズ表面に入射した光が進む方向は、スネルの法則

$$n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2 \quad (4.13)$$

によって、与えられる。ところが、レンズを用いて有限の大きさの像を結像させる際、近軸ではない経路を伝播した光によって幾何光学的なずれが生ずる。これは収差と呼ばれている。収差には大きく分けて、球面収差、非点収差、コマ収差、歪曲収差、像面湾曲があり、それに屈折率が光の波長の関数であることから生ずる色収差が加わる。色収差を除くほとんどの収差は、レンズに絞りを入れることによって、大幅に改善される。また、屈折率の異なる材料を組み合わせた組み合わせレンズでは、色収差を含めて、かなりの収差が改善されている。(たとえば、球面アクロマチックレンズは、球面収差、コマ収差に加えて、可視光領域における色収差をほぼ完全に除去している。)しかし、収差を除くことは光学系の明るさと相反する。開口数NA(どのくらい広がった光を取り込めるかを示す数値)はレンズの直径を ϕ として、

$$NA = n \sin \theta \quad \theta = \frac{\phi}{2s} \quad (4.14)$$

で表されるから、レンズに絞りを入れると、当然小さくなり、光学系の分解能は、その逆数に比例して高くなることになる。この開口数は、カメラレンズで良く知られているF値と、

$$F = \frac{f}{\phi} = \frac{1}{2NA} \quad (4.15)$$

の関係にある。F値の小さなレンズで撮影するほど、被写界深度(ピントの合う領域)が浅くなり、ボケみのある写真が撮れるのは、このためであり、カメラが露出を自動で制御しているなら、そのときのシャッタースピードは、速くなっているはずである。また、組み合わせレンズは、確かに収差を取り除くには、大変都合がいいが、レンズ自体による吸収(厚み10 mmで透過域における外部透過率は約90%)、レンズ表面からの反射(SiO_2 の500 nmでの屈折率1.46で約3.5%)、あるいは張り合わせに用いる接着剤や無反射コーティング剤による吸収等があり、決して明るくはならない。また設計波長から少しでもずれ

ていれば、逆に性能は極端に低下してしまうのが普通である。(使用する波長に併せて可能な限り収差を除去した組み合わせレンズを特注するのも、使い方によっては有効であるが、レンズの設計と製造には、信じられないくらいのお金がかかるので現実には難しい。)そして何よりも、奥まった場所(今回の実験では、内径8 mmのパイプの中の約1 mの深さ)にある試料に、開口数を落とさずに、なおかつ光をほとんどロスせずに伝播させるのは、レーザーのような集束光を除いて、原理的に不可能であり、それを可能にしたのが、ファイバーオプティクスである。

光ファイバーは、屈折率の異なる2種類の媒質の境界で起こる全反射を利用した、伝送損失のきわめて少ない、光の周波数帯域での導波路である。伝送損失にして0.2 dB/km(1 kmのファイバーの伝送率99.55%)、伝播帯域は1 GHz/kmに達するものもあり、最大の特長は、高効率で柔軟な光の伝播である。屈折率分布には、グレーデッドインデックス型とステップインデックス型と呼ばれる2種類のタイプがある。ステップインデックス型は、コア(core)と呼ばれる屈折率の高い材料(通常 SiO_2 が多く用いられる。)の周囲を、クラッド(cladding)と呼ばれる、より屈折率の低い材料で取り囲んだ構造になっており、屈折率分布は階段的である。コア部分に入射された光は、コアとクラッドの界面で全反射を繰り返すことによって、ほとんど損失することなく伝播する。このとき、全反射臨界角の正弦が開口数NAを与え、コアとクラッドの屈折率(n_1, n_2)の差の割合を $\Delta (= (n_1 - n_2)/n_1)$ とすると、近似的に

$$NA = n_1 \sqrt{2\Delta} \quad (4.16)$$

が成り立ち、 $\Delta = 0.01$ の石英コアファイバーの場合、波長600 nm($n_1 = 1.46$)で $NA = 0.2$ となる。一方、グレーデッドインデックス型は、コア部分に屈折率を高めるドーパント(Ge等)を添加するか、あるいはクラッド部分に屈折率を低くするドーパント(F等)を添加することによって、中心からクラッドに向かって、2重分布に近い屈折率分布を持つように設計され、ファイバーの中心を進む軸光線と、屈折率の変化によって折り曲げられながら進む光線との時間遅延を生じることなく、低損失で光が伝播する。開口数との関係は、Geドーパ石英コアファイバの場合、コア中心の屈折率が純粋石英に対して1%高いとき $NA = 0.2$ 、1.5%高いとき $NA = 0.25$ となる。実際に測定に使用した光ファイバーは、(株)フジクラ製純粋石英コアファイバ(ステップインデックス型)と、Geドーパ石英コアファイバ(グレーデッドインデックス型)の2種類であり、Geドーパ石英コアファイバに関しては、開口数の違いによってさらに2種類のファイバがある。それぞれのファイバについて、コア径が200 μm 、400 μm 、600 μm 、800 μm の4種類があり、表4.2にそれらの仕様を示す。また、図4.13に各ファイバーの伝送損失の波長特性を示す。縦軸は1 kmあたりの損失であり、実際に実験室で張り巡らせるファイバー長が10 mだとすると、可視領域において透過率はほぼ100%である。ただ、純粋石英コアファイバでは、近赤外の950 nm付近に材料に含まれるOH基の振動による吸収があり、10 mのファイバでは90%程度吸収されてしまう。またGeドーパ石英コアファイバは、近紫外の400 nm以下で急激に透過効率が悪くなり、300 nm以下では全く光を通さないのに注意が必要である。本研究ではアルゴンイオンレーザーの351 nmラインを励起光としたので、励起光が伝播する経路は純粋石英コアファイバを使用している。次に、本研究で用いたバルスマグネットとOMAストリーク分光測定装置を組み合わせた、磁気発光スペクトル測定の全光学系を図4.14に示す。励起光源にはアルゴンイオンレーザー(株)COHERENTの351 nm(最大出力150 mW)を用いた。アルゴンイオンレーザーから出た光は、まずバンドパスフィルタ、ライトチョッパー、電磁シャッタ、スライドガラスを通り、平凸レンズで集光され、マイクロプリズムにより

ファイバ型名	屈折率分布	コア材質	NA	伝送損失 (dB/km)
SC	ステップインデックス型	純粋石英	0.2	10 以下
PC	グレーデッドインデックス型	Ge ドープ石英	0.2	10 以下
QC-L	グレーデッドインデックス型	Ge ドープ石英	0.25	10 以下

表 4.2 光ファイバ (株) フジクラ製の種類と仕様。

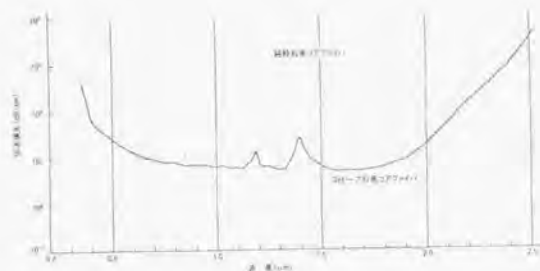


図 4.13 ステップインデックス型とグレーデッドインデックス型光ファイバ (株) フジクラ製の伝送損失の波長特性。

直角に曲げられ、コア径 $500 \mu\text{m}$ の純粋石英コアファイバに入射される。ライトチョッパーと電磁シャッタは、両者を組み合わせることにより、レーザー光から単パルスだけ取り出すためのものであり、スライドガラスは、単パルス化されたレーザー光を一部取り出し、OE でモニターして、パルス磁場とのタイミングを合わせるためのものである。パルス磁場及び試料を冷却するクライオスタット内には、入出射用の二本のファイバ (直径 $2 \text{ m}\phi$) が挿入され、その先端 (磁場中心) に、磁場配置 (磁場の向きと光の進行方向の関係) にあわせて、図 4.15 に示したジュラコン製試料ホルダー。純粋石英マイクロプリズム、偏光板等がセットされる。ファラデー配置は光の進行方向と平行に磁場を加える配置で、フォークト配置は光の進行方向に垂直に磁場を加える配置である。両配置ともに入射光が試料を透過したのち、マイクロプリズムにより 180 度反転して出射するように設計され、組立後の外径は 10 mm である。試料空間は、両配置とも直径 $4 \text{ m}\phi$ 、高さはファラデー配置では 3 mm 、フォークト配置では 1.5 mm である。偏光をかける実験では、ポラロイド社の偏光板を直径 $4 \text{ m}\phi$ に打ち抜き、試料の上に重ねて挿入する。また、本研究のような発光スペクトル測定では、一本のファイバ一中を励起光と発光が伝播するために、マイクロプリズムや、もう一方のファイバは必要ない。試料からの発光は、ファイバを出て、対向した焦点距離 75 mm レンズ径 50 mm の球面アクロマートレンズによって集光され、もう一本のファイバに入射する。分光器の直前で、直径 $100 \mu\text{m}$ の光ファイバを 80 本束にしたバンドルファイバにより、円形の光束を、縦長の矩形に変換して、分光器に入射した。自由に像の形を変えられるのは、バンドルファイバの特長であるが、ファイバを細密充填した場合でも、コア部分はまばらに点在するこ

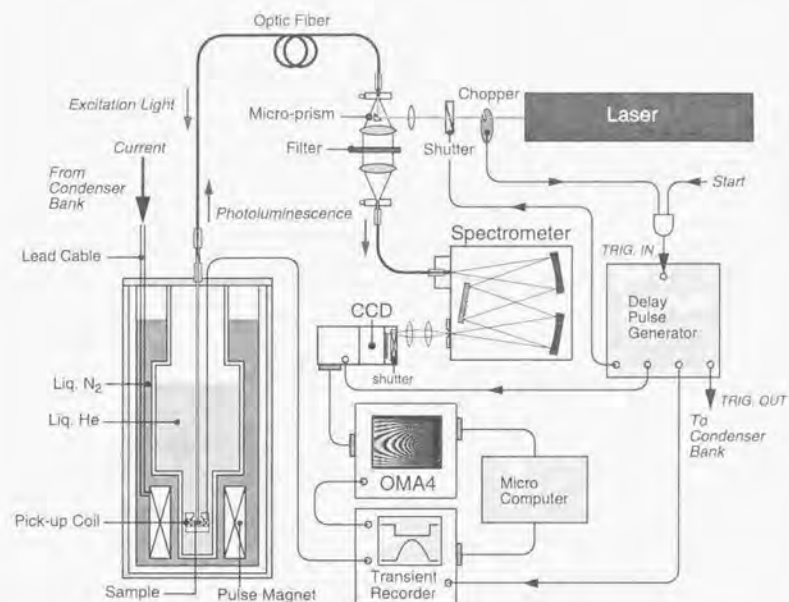


図 4.14 パルス磁場と OMA ストリーク分光測定装置を組み合わせた磁気発光スペクトルの測定系。光学系は主に光ファイバとレンズで構成されている。また、パルス磁場と測定装置の同期をとるためにデジタル遅延回路を用いている。

とになるので、単一ファイバと比べると、直径 $1 \text{ m}\phi$ の光束の透過率は 60% 程度になる。しかし、今回測定に用いた OMA のインテグレートモードでは、CCD 面上で約 $8 \text{ mm} \times 100 \mu\text{m}$ という縦長の像を結ばせることで、分光器の入射スリット幅 0.1 mm の場合に、約 8 倍の光強度の増大につながるの、結局、バンドルファイバを用いることの効果は、約 5 倍の光強度の増大をもたらす。

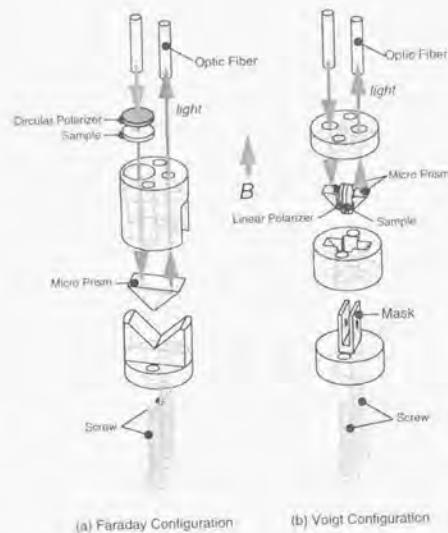


図 4.15 ハルスマグネットを用いた磁気光学測定用試料ホルダー。光の進行方向と磁場の向きが平行な (a) ファラデー配置用と、それらが垂直な (b) フォークト配置用。光を偏光するときには、偏光板を試料の手前にセットする。

第 5 章

磁場依存性

- 5.1 超格子
- 5.2 隣接閉じこめ構造
- 5.3 障壁層を挟んだ隣接閉じこめ構造
- 5.4 考察
 - 5.4.1 励起光強度依存性
 - 5.4.2 温度依存性
 - 5.4.3 磁場効果の温度依存性
 - 5.4.4 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 短周期超格子
 - 5.4.5 「擬量子ドット欠陥」モデル
 - 5.4.6 キャリア局在

GaP/AIP ヘテロ構造は、電子と正孔が実空間と波数空間の両方において分離しており、発光材料としては、きわめて不利だと考えられてきた。ところが、短周期の超格子構造や、隣接閉じこめ構造を導入すると、従来の常識を覆す強い発光が観測される。間接遷移型半導体の発光デバイスへの応用の面から、この強い発光が、ブリュアンゾーンの折り返し効果による波数空間での直接遷移型への変換によるものかどうか、よらないとすれば、どのような機構が介在しているのか、多くの注目を集めている。遷移型を決める伝導帯 X 点は、本来極めて異方的な電子状態を持つことから、発光機構の解明には、異なる磁場配置での磁気発光スペクトル測定が有効であると考えられる。また、電子と正孔が実空間・波数空間において分離した系における励起子の磁場依存性は、これまでほとんど報告されておらず、それ自体、大いに興味を持たれる問題である。そこで、前章で説明した実験技術を用いて、ハルス強磁場下での GaP/AIP 系ヘテロ構造の発光スペクトルの測定を行った。本章では、主に観測された発光スペクトルの特異な磁場依存性に焦点をあて、発光の励起光強度依存性、温度依存性、及び磁場効果の温度依存性の測定結果も加えて、そのメカニズムについて考察する。

5.1 超格子

周期の異なる超格子をひとつの基盤上に多重に積層させた超格子では、超格子構造による閉じこめポテンシャルの違いが十分あり、なおかつすべての超格子に励起光が到達し、発光が他の超格子により再吸収されなければ、それぞれのエネルギー準位からの発光がエネルギー的に完全に分離されて観測される。図 5.1 は、同一基板上に 4 種類の超格子を連続して積層した 2 つの試料と (3,3) 超格子からのそれぞれの発光スペクトルを 4.2 K で測定したものである。超格子を多重に成長させた試料では、周期ポテンシャルを反映してそれぞれの超格子構造からの発光がきれいに分離して観測されている。ただし、(4,4) を意図した超格子からの発光が、2 つの試料で 20 meV 程度異なっており、1 原子層以下の界面の揺らぎによるポテンシャル揺らぎが存在していることを示している。また、(3,3) 超格子からの発光は非常に弱く、ゼロフォノン線の低エネルギー側に TA, LA, TO, LO フォノンを経たフォノンレプリカバンドが見られる。多重に成長させた超格子の場合は、励起光の侵入長や、発光の再吸収などがあり、発光強度を厳密に比較することはできないが、ブリュアンゾーンの折り返し条件である GaP 層と AlP 層の層数の和の偶奇性が、発光強度にはほとんど反映されていないように思われる。

図 5.2 は、ひとつの基板上に周期の異なる超格子を 4 種類 (順に (7,4), (6,4), (5,4), (4,4)) 連続して成長させた超格子の発光スペクトルを、パルス強磁場中で測定した結果である。測定温度は 4.2 K で、大気圧下での測定である。また特に断らない限り、OMA インテグレートモードで測定した。この多重に成長した超格子は、GaP 層と AlP 層の層数の和が偶数と奇数のものがあり、ブリュアンゾーンの折り返し

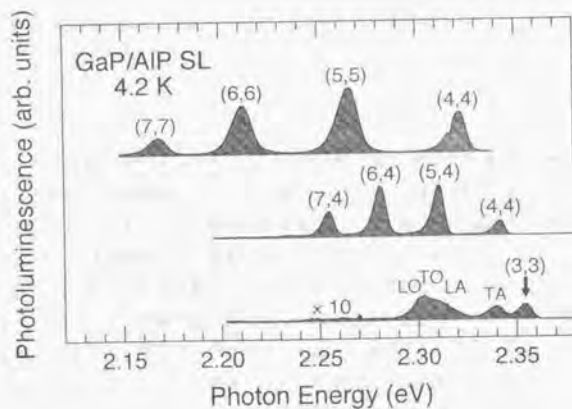


図 5.1 周期の異なるいくつかの超格子からの発光スペクトル。上から、4 種類の超格子を多重に成長させた 2 つの試料と (3,3) 超格子からの発光を示している。(3,3) 超格子からの発光には、ゼロフォノン線の低エネルギー側に複数のフォノンレプリカが見られる。

し効果が発光機構に影響を与えているとすれば、磁場依存性の違いが現れるはずである。磁場 B は超格子面に垂直で、光の電気ベクトル E は超格子面に平行な、いわゆるファラデー配置となっている。磁場を加えていない発光スペクトルは、主に正孔に対する閉じこめポテンシャルの違いを反映して、GaP 層の層数の少ない超格子ほど、短波長側に発光している。この超格子面に垂直に磁場を加えると、すべての超格子からの発光強度が急激に減少し、さらに低エネルギー側にシフトするという特異な現象が観測された。発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を図 5.3 に示している。(4,4) 超格子だけが、弱磁場側でピークの形状が多少変化し、他と若干異なる傾向を示しはするが、全体の特徴はほぼ周期によらない。(4,4) 超格子の特異性については、7.1 節で詳述する。) これは、これまで数多く研究されてきた磁場中半導体励起子の振る舞いと全く正反対である。すなわち、通常、励起子に磁場を加えると、励起子を構成する電子と正孔の波動関数が磁場に垂直な面内で収縮し、振動子強度の増大に伴って発光強度が増大する。さらに、励起子エネルギーは、反磁性シフトと呼ばれる、磁場の二乗に比例する高エネルギー側へのエネルギーシフトを起こす (3.2.3 節)。ただし、励起子の有効質量が非常に重い場合、ごく弱磁場領域で、電子あるいは正孔のスピンの角運動量の磁場による分裂、いわゆるスピントーマン分裂が反磁性シフトを上回り、結果として発光スペクトルが低エネルギーシフトを起こすことがある。しかし、この場合のシフト量は、電子と正孔のスピンを 2、磁場の強さを 40 T とすると $g\mu_B B = 4.64$ meV であり、さらに磁場に対して線形でないこと、周期依存性があることなどから、この現象の低エネルギーシフトはスピントーマン分裂だけでは理解できない。ゼロでない軌道角運動量を持つ励起状態であれば、軌道ゼーマンエネルギーによる低エネルギーシフトが考えられるが、今の場合、基底状態からの発光であり、その可能性はない。いずれにしても、電子相関のない自由励起子を考える限り、タイプ I であろうタイプ II であろうが、磁場による発光強度の減少は起こらないはずである。

次に、磁場が超格子面に平行で、光の電気ベクトルが超格子面に垂直な磁場配置 (フォークト配置) での磁気発光スペクトルを図 5.4 に示す。また、発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を図 5.5 に示している。この場合は、磁場を加えることによって、若干低エネルギーシフトを見せるものの、先ほどと異なり、発光強度はむしろ増大する傾向にある。このことは、発光機構がきわめて異方的な電子状態と深く関わっていることを示している。しかし、この場合も、超格子の周期による違いは、あまり見られず、ファラデー配置において観測された (4,4) 超格子の他と異なる複雑な磁場依存性も、この配置では見られなかった。

図 5.6 は GaP 層と AlP 層の層数が等しい (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) の 4 種類の周期の異なる超格子を連続して成長させた試料の磁気発光スペクトルの測定結果で、図 5.7 は各磁場での発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性である。(4,4) 超格子からの発光ピークエネルギーが、先ほどの試料における同じ (4,4) 超格子と比べて 20 meV 近く低エネルギー側にずれており、ヘテロ界面の不均一揺らぎを反映している。この試料でも (7,7) 超格子をのぞく比較的層数の小さな超格子では、先ほどと同様に、磁場を加えることによって、発光ピークが低エネルギー側へ大きくシフトし、発光強度が急激に減少するという特異な振る舞いを示す。また、(4,4) 超格子については微妙にエネルギーの異なる 2 つのピークで構成され、高エネルギー側のメインピークがより磁場による発光強度の減少が大きいために、約 25 T 付近で強度の逆転が起きている (これについても、7.1 節で詳述する。)。そして、(7,7) 超格子は、弱磁場領域では、発光強度の減少と低エネルギーシフトを示すが、強磁場領域では一転して発光強度が増大し、さらに高エネルギーシフトする様子が観測された。強磁場領域におけるこの振る舞いは、自由励起子の磁場依存性に近い。

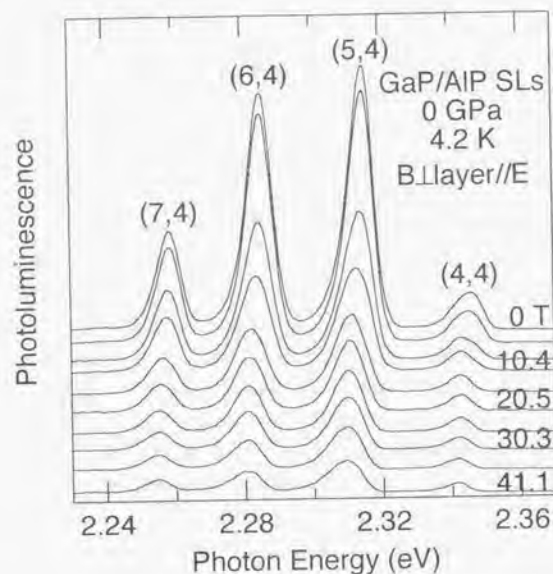


図 5.2 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に垂直に最大 41.1 T の強磁場を加えた (フェラデー配置)。磁場の増加とともに発光強度が急激に減少し、ピークエネルギーが低エネルギーシフトしている。

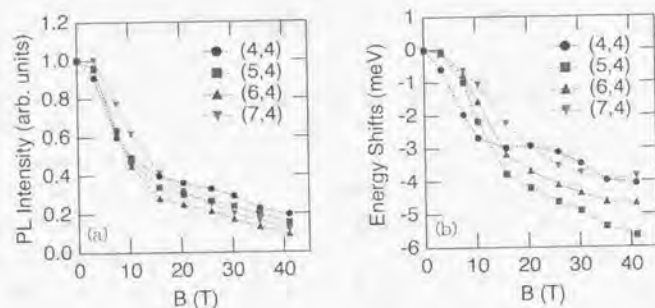


図 5.3 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。図 5.2 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットting から求めた発光ピークエネルギーである。

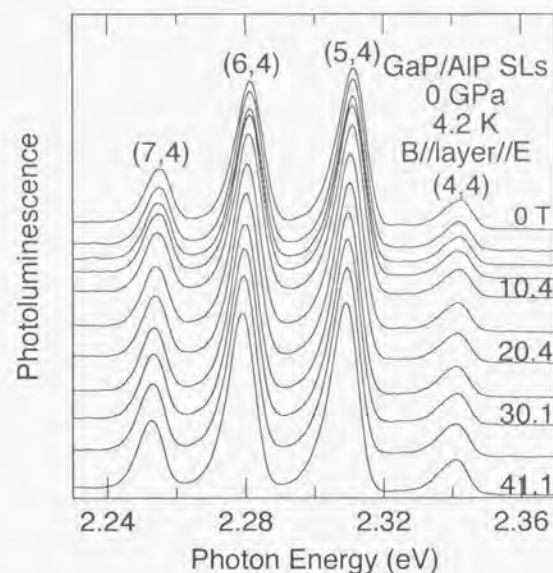


図 5.4 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に平行に最大 41.1 T の強磁場を加えた (フォークト配置)。フェラデー配置とは対照的に磁場の増加とともに発光強度が僅かながら増加している。

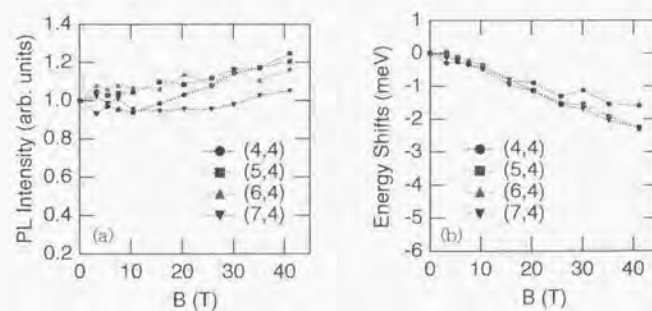


図 5.5 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。図 5.4 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットting から求めた発光ピークエネルギーである。

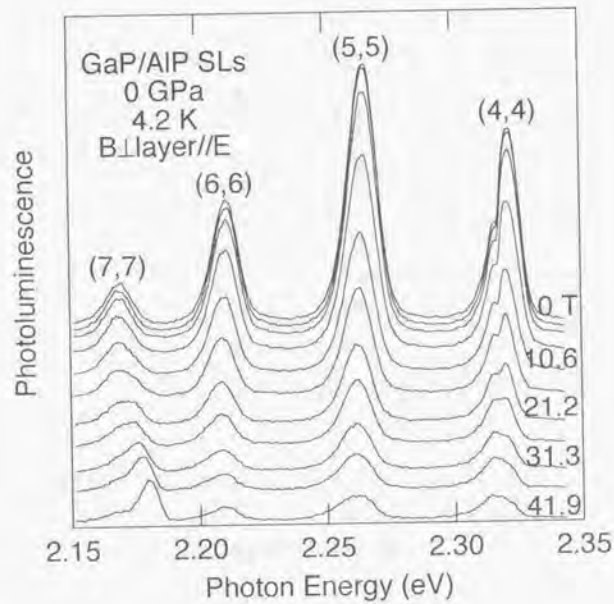


図 5.6 多重に成長させた超格子 (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に垂直に最大 41.9 T の強磁場を加えた (フェラデー配置), (7,7) 超格子からの発光が、強磁場領域で、発光強度の増大と高エネルギーシフトという自由励起的な振る舞いに変わっている。

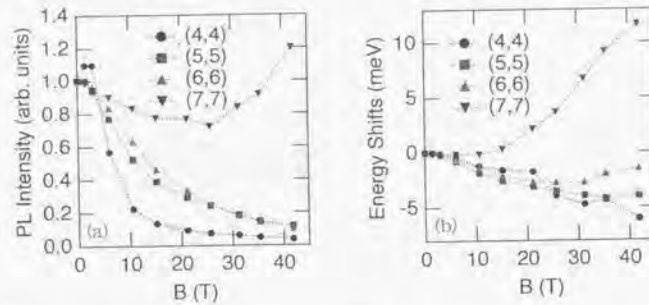


図 5.7 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図 5.6 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。

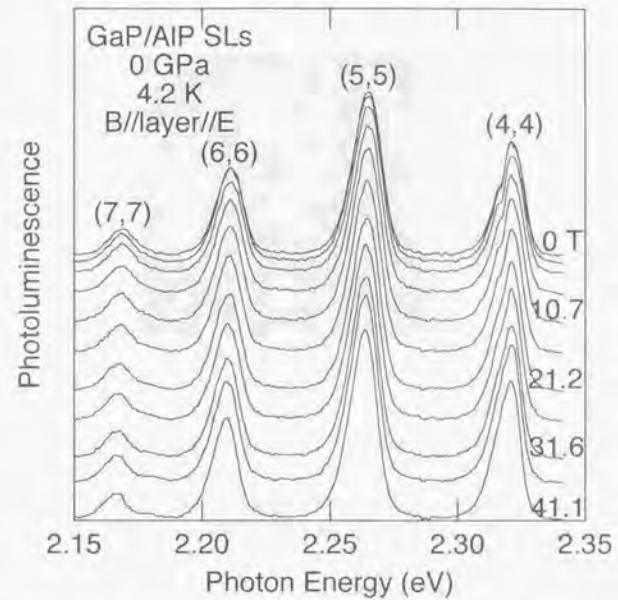


図 5.8 多重に成長させた超格子 (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に平行に最大 41.1 T の強磁場を加えた (フォークト配置), (7,7) 超格子からの発光は、フェラデー配置で見られた発光強度の増大を示さず、逆に低エネルギーシフトしている。

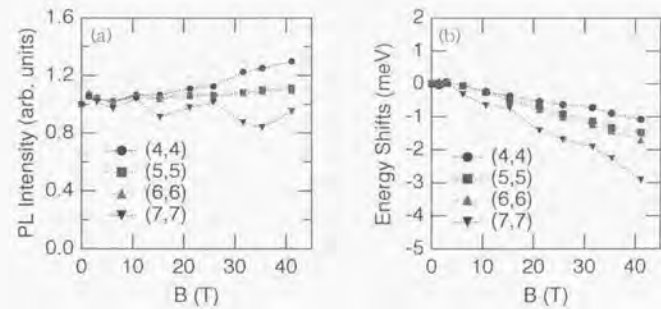


図 5.9 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図 5.8 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。

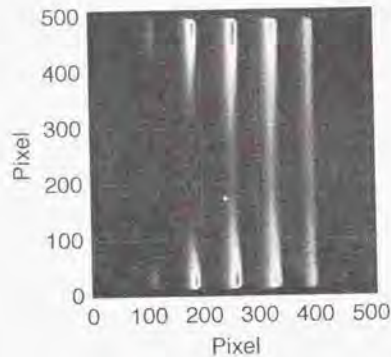


図 5.10 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの磁気発光スペクトルの OMA ストリーク画像 (ファラデー配置)。一度のバース磁場発生で、ゼロ磁場から最大磁場までの連続的なスペクトル測定が可能である。横軸右側が短波長、縦軸が時間。強磁場領域 (画像中央) で、すべての発光が消失する様子が分かる。

同じ試料のヘテロ界面に平行に磁場を加えたフォークト配置での結果を図 5.8 と図 5.9 に示す。この磁場配置では、(7,7) 超格子からの発光は、ファラデー配置で見られた発光強度の増大を示さず、逆に低エネルギーシフトしている。その他の超格子にも、若干の低エネルギーシフトが見られ、発光強度もそれほど変化していない。図 5.10 は 4.4.3 節で説明した OMA ストリークモードを用いて測定した、多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの磁気発光スペクトルのストリーク画像である。磁場配置はファラデー配置で、横軸右側が短波長、縦軸が時間となり、バース強磁場を加えることによって、すべての周期の超格子からの発光が、低エネルギーシフトしながら、急激に減少する様子を、2次元画像としてとらえることができる。この画像を横軸の各磁場で切り出したスペクトルが図 5.2 の実験に相当する。

次に (3,3) 超格子のファラデー配置における磁気発光スペクトルを図 5.11 に示す。(3,3) 超格子からの発光は、2.355 eV あたりにあるが、他の超格子に比べ発光が非常に弱く、ゼロフォノン線の低エネルギー側に TA, LA, TO, LO フォノンを経たフォノンレプリカバンドが見られる。これは、6.1 節で明らかになるが、(3,3) 超格子からの発光が、これまでの超格子と異なり、純粋な $X_{xy}^{-1}T$ 遷移によるものだからである。磁場を加えるにつれて、発光ピークは確かに低エネルギーシフトを示しており、フォノンサイドバンドもほぼ同じような振る舞いを見せている。ただし、他の超格子で観測された磁場による発光強度の急激な減少は見られない。(図 5.12)。

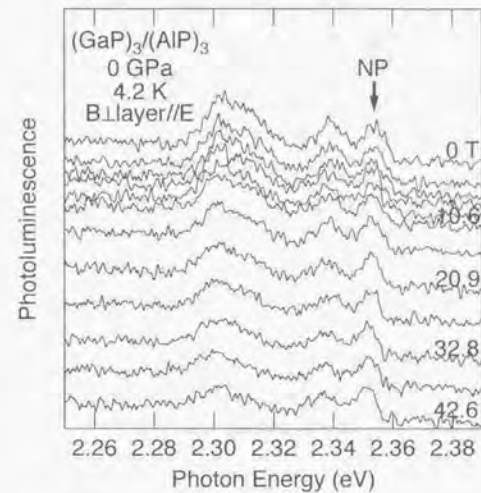


図 5.11 (3,3) 超格子からの磁気発光スペクトル。

ヘテロ界面に垂直に最大 42.6 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。これまでの超格子で観測された磁場による発光強度の急激な減少は起こっていない。また、フォノンレプリカはゼロフォノン線に追従して低エネルギーシフトしている。

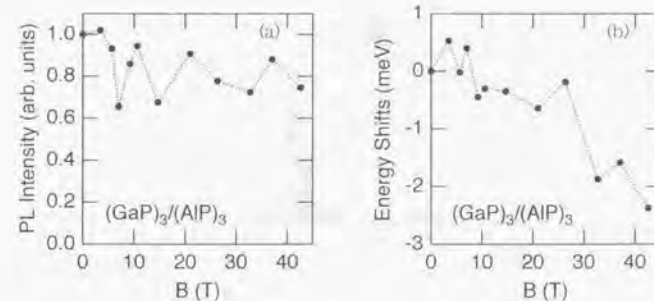


図 5.12 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。

図 5.11 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。

5.2 隣接閉じこめ構造

隣接した AlP 層 (10 Å) と GaP 層 (10 Å) を両側から AlGaP 障壁層でサンドイッチすることにより、電子が AlP 層に、正孔が GaP 層にそれぞれ局在化された隣接閉じこめ構造からの発光スペクトルと、通常の AlP 層 (20 Å) と GaP 層 (7 Å) の隣接閉じこめ構造 (NCS) の他に、AlP 層 (20 Å) と GaP 層 (10 Å) の間を 10 Å の AlGaP 層で隔てた構造 (spaced-NCS) を同一基板上に積層した試料からの発光スペクトルを図 5.13 に示す。AlGaP/GaP/AlP/AlGaP 隣接閉じこめ構造はどちらも短周期であるにもかかわらず、同じような層厚の 50 周期の超格子に匹敵する強い発光を示している (図 4.4)。しかし、AlP 層と GaP 層の間を薄い AlGaP 層で隔てた spaced-NCS からは、同じ層厚の NCS と比べ、かなり弱い発光しか観測されない。これは、電子と正孔の波動関数の重なりが減少しているためだと予想できる。さらに、NCS のゼロフォノン線の低エネルギー側に、備かながらフォノンレプリカバンドが観測されている。

図 5.14 に AlP 層 10 Å、GaP 層 10 Å の隣接閉じこめ構造の磁気発光スペクトルを示す。磁場配置は、ヘテロ界面に垂直に磁場を加えたファラデー配置である。この試料でも、磁場を加えるとともに、発光強度の急激な減少と、強磁場領域における発光ピークの低エネルギー側へのシフトが観測された。また、界面に平行に磁場を加えた場合は、若干の発光強度の減少が見られ、発光ピークエネルギーは、ほんの僅かではあるが、高エネルギー側へシフトする傾向が見られた (図 5.15)。また、図 5.16 に両磁場配置における発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性をまとめて示している。ファラデー配置における特

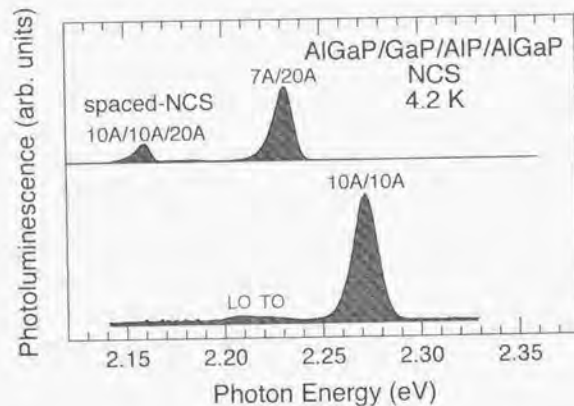


図 5.13 層厚の異なる 2 種類の NCS (隣接閉じこめ構造) と spaced-NCS からの発光スペクトル。上に NCS と spaced-NCS を同一基板上に成長させた試料。下に通常の NCS からの発光を示している。NCS のゼロフォノン線の低エネルギー側に備かながら複数のフォノンレプリカが見られる。

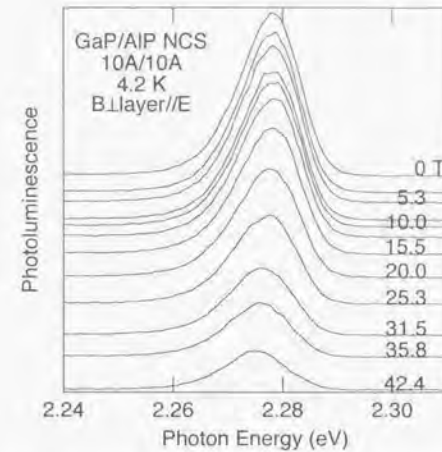


図 5.14 GaP 層と AlP 層ともに 10 Å の隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に垂直に最大 42.4 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

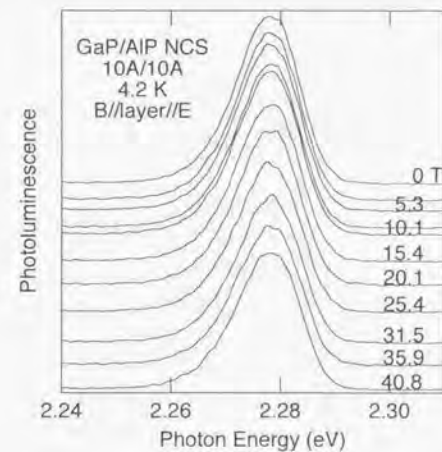


図 5.15 GaP 層と AlP 層ともに 10 Å の隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に平行に最大 40.8 T の強磁場を加えた (フォークト配置)。

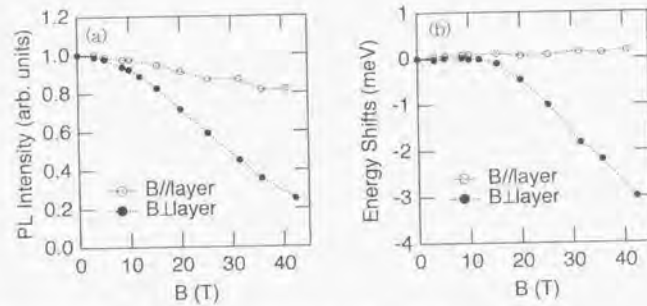


図 5.16 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
 図 5.14、図 5.15 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。

異なる磁場依存性が、この隣接閉じこめ構造でも観測されたということは、超格子などの周期構造ではなく、ヘテロ界面の性質がこの磁場依存性に大きく関わっていることを示唆している。特に注目すべきは、ファラデー配置におけるエネルギーシフトであり、10 T までの弱磁場領域では、非常に僅かながら高エネルギーシフトを示しているが、それより強磁場を加えると、一転して低エネルギー側へ大きくシフトしている。これは、磁場に比例するスピンゼーマン分裂以外のメカニズムが働いていることを示している。

5.3 障壁層を挟んだ隣接閉じこめ構造

これまで観測された特異な磁場依存性が、界面付近の局在電子状態に関係しているとすれば、電子と正孔間に薄い障壁層を挟むことにより電子・正孔を引き離してやれば、磁場依存性が大幅に変わる可能性がある。たとえば、GaP 層と AlP 層の間に AlGaP 層を挟み込んだ構造 (spaced-NCS) の場合、AlGaP 層が電子と正孔の両方に対する障壁層となって働くので、隣接閉じこめ構造 (NCS) よりも、電子と正孔の波動関数の重なりが小さいと予想される。そこで、ひとつの基板上に NCS と spaced-NCS の両構造を連続して成長させた試料について、発光スペクトルの磁場依存性の測定を行った。図 5.17 にヘテロ界面に垂直に磁場を加えたファラデー配置での磁気発光スペクトルの測定結果を示す。高エネルギー側が 7 Å / 10 Å の NCS からの発光、低エネルギー側が spaced-NCS からの発光である。NCS からの発光の磁場依存性は、10 Å / 10 Å の NCS の場合 (図 5.14、図 5.16) とそれほど変わらない。それに対して、spaced-NCS からの発光は、これまでになく急激な発光強度の減少と発光ピークエネルギーの大きな低エネルギーシフトを示した (図 5.18)。また、界面に平行に磁場を加えたフォークト配置では、NCS からの発光は、強度は僅かに減少傾向であるが、発光ピークは高エネルギーシフトを示した。このエネルギーシフトは 10

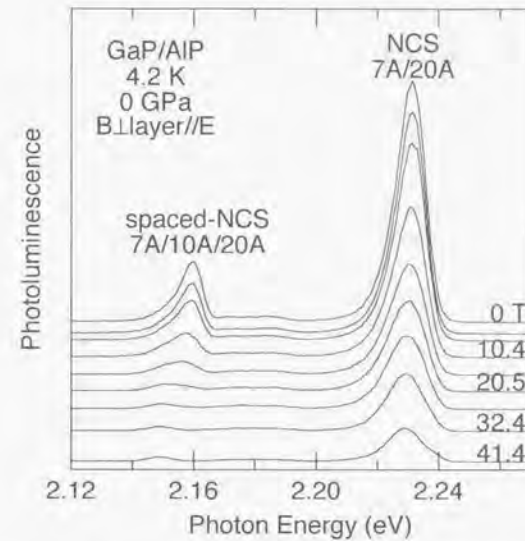


図 5.17 AlGaP 障壁層 10 Å を挟んだ隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に垂直に最大 41.4 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。磁場の増加とともに発光強度が急激に減少し、ピークエネルギーが大きく低エネルギーシフトしている。

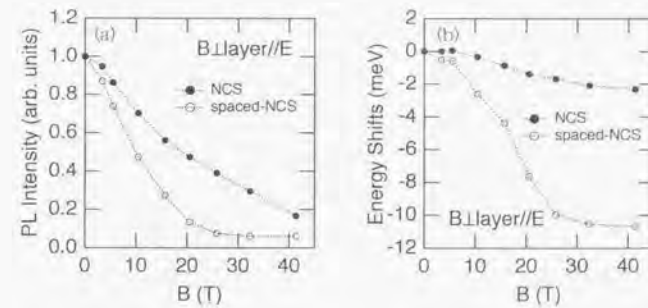


図 5.18 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性 (図 5.17)。
 NCS と比べて、spaced-NCS からの発光の急激な強度低下と大きな低エネルギーシフトが際立っている。

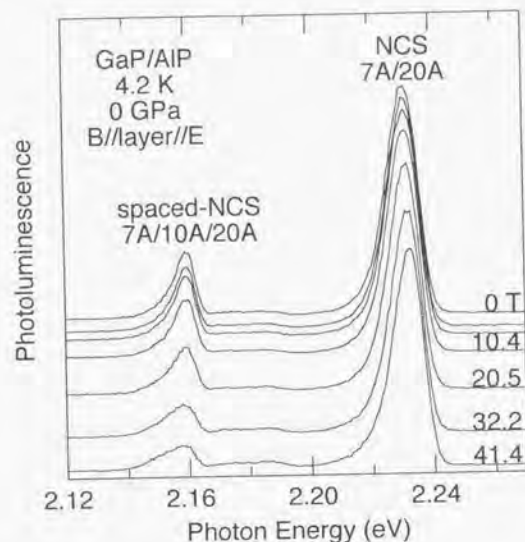


図 5.19 AlGaP 障壁層 10 Å を挟んだ隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に平行に最大 41.4 T の強磁場を加えた (フォークト配置)。spaced-NCS からの発光が磁場の増加とともに強度が急激に減少し、ピークエネルギーが低エネルギーシフトしている

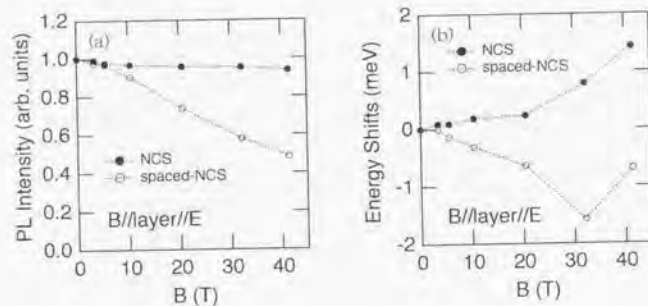


図 5.20 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性 (図 5.19)。磁場の増加に伴って、spaced-NCS からの発光の強度が低下しているのが注目される。

入 / 10 Å の NCS の場合 (図 5.15, 図 5.16) と異なる傾向であるが、おそらく AIP 層が 20 Å と厚いために、電子がより 3 次元的に広がっているためだと考えられる。そして spaced-NCS からの発光が、界面に平行に磁場を加えているにもかかわらず、大幅な発光強度の減少と、低エネルギーシフトが観測されたことは注目される。これは、磁場に垂直な面内で、電子と正孔が異なるポテンシャル井戸に局在化しているために、磁場を加えることによって、より局在性が増し、波動関数の重なりが小さくなることを示している。

5.4 考察

5.4.1 励起光強度依存性

ファラデー配置における特異な磁場依存性が、さまざまな周期の超格子と、隣接閉じこめ構造で観測されたということは、この現象が超格子構造の導入によるブリュアンゾーンの折り返し効果ではなく、主にヘテロ界面に局在した電子状態に起因するものであることを強く示唆している。3.5.3 節で述べたように、自由な励起子からの発光の励起光強度依存性は、リニアあるいはスーパーリニアになるのに対して、束縛された励起子からの発光はサブリニアな依存性を持つことが知られており、励起子の局在性を調べるには、励起光強度依存性の測定が有効である。そこで、2 種類の多重に成長させた超格子と隣接閉じこめ構造についての測定を行った。

多重に成長させた超格子 ((7,4), (6,4), (5,4), (4,4)) からの発光スペクトルを、アルゴンイオンレーザーの 351 nm ラインの強度を変えて測定した結果を図 5.21 に示す。測定温度は 4.2 K である。また、代表して (5,4) 超格子の発光強度と発光ピークエネルギーの変化を図 5.22 に示している。励起光強度と発光強度の比例関係が、比較的弱い励起光強度領域からすでにずれており、強度を強くするにつれて、ますますその傾向が強くなる様子が観測された。この依存性は同一基板上的他の超格子についても同様であり、磁気励起子発光の測定での励起光強度 (数 W 程度) では、完全にサブリニアな依存性を示す領域であることがわかった。

図 5.23 に、もう一つの多重に成長させた超格子 ((7,7), (6,6), (5,5), (4,4)) からの発光スペクトルの励起光強度依存性、図 5.24 に、代表して (5,5) 超格子からの発光の発光強度と発光ピークエネルギーの変化を示している。この試料でも、ほぼ同様のサブリニアな励起光強度依存性が観測され、励起子の局在状態が確認された。さらに、同一基板上的他の超格子についてもほぼ同様の依存性であった。

次に、AlGaP/GaP/AIP/AlGaP 隣接閉じこめ構造からの発光の励起光強度依存性を、図 5.25、図 5.26 に示す。この試料についても、発光強度の依存性は超格子の場合とほぼ同じであり、ほぼすべての強度領域にわたって、サブリニアな依存性が観測された。ただし、隣接閉じこめ構造からの発光だけが、励起光を強くすると、発光ピークエネルギーが高エネルギーシフトを示しており、バンドフィリングの効果であると考えられる。

以上のことから、GaP/AIP ヘテロ構造からの発光は、ヘテロ界面付近に束縛された励起子によるものであることを強く示唆している。

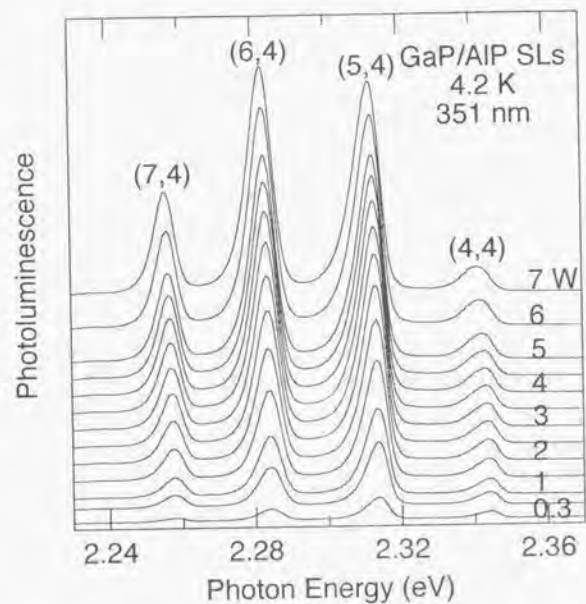


図 5.21 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの発光スペクトルの励起光強度依存性。

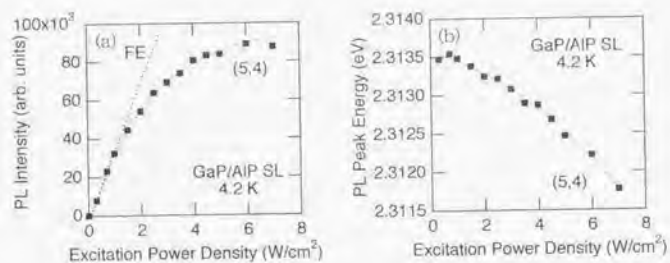


図 5.22 GaP/AIP (5,4) 超格子の (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの励起光強度依存性 (図 5.21)。
発光強度のサブリニアな励起光強度依存性が見られる。また、発光ピークエネルギーは、励起光を強くするとともに、低エネルギーシフトしている。

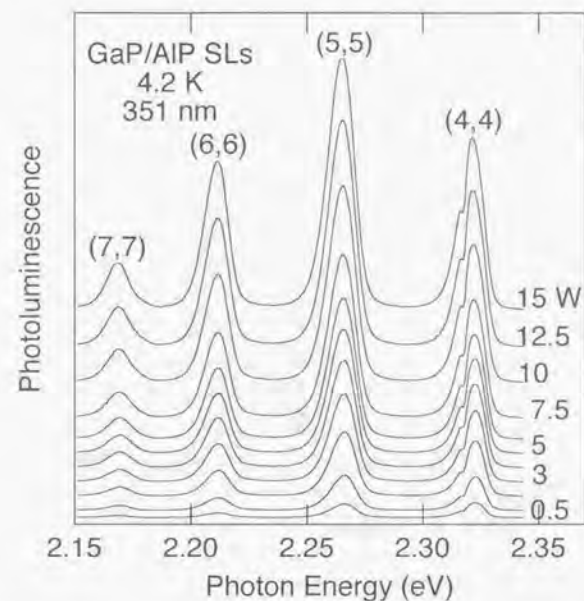


図 5.23 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの発光スペクトルの励起光強度依存性。

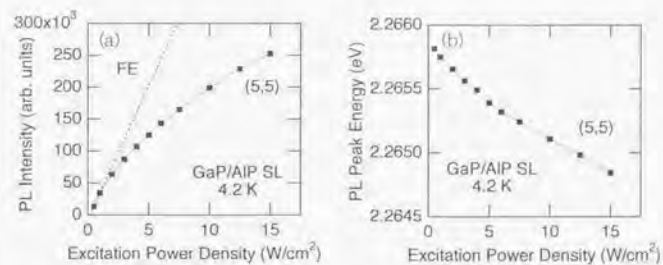


図 5.24 GaP/AIP (5,5) 超格子の (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの励起光強度依存性 (図 5.23)。
発光強度のサブリニアな励起光強度依存性が見られる。また、発光ピークエネルギーは、励起光を強くするとともに、低エネルギーシフトしている。

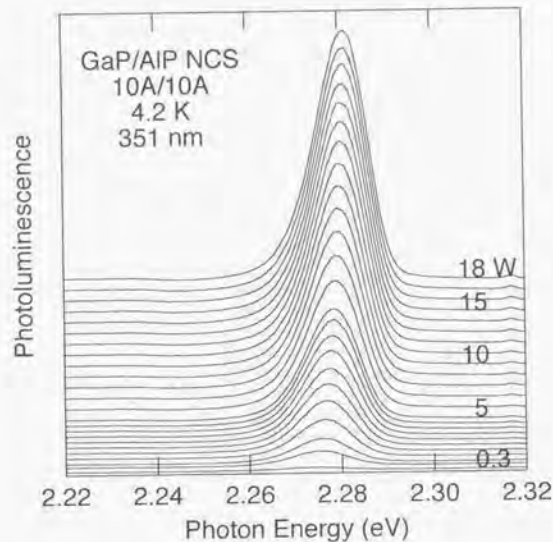


図 5.25 GaP 層と AIP 層ともに 10 Å の隣接閉じこめ構造からの発光スペクトルの励起光強度依存性。

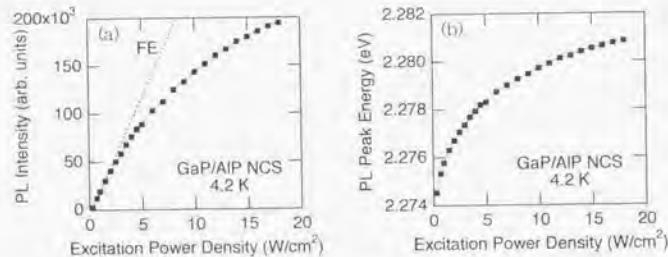


図 5.26 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの励起光強度依存性 (図 5.25)。発光強度のサブリニアな励起光強度依存性が見られ、ピークエネルギーは高エネルギー側にシフトしている。これはバンドファイリングの効果であると考えられる。

5.4.2 温度依存性

量子ヘテロ構造における励起子発光の温度依存性は、3.5.2 節で述べたように、ポテンシャル構造によって閉じこめられた励起子が、高温では熱的に解放される過程として、(3.85) 式で表される発光強度の温度依存性を示すことが知られている。また、十分低温下でポテンシャル揺らぎ等によって、励起子がある束縛状態にある場合にも、束縛状態から熱的に解放される過程として、同様の式を用いることができる。また、発光のエネルギー位置は、自由励起子状態の場合、(3.86) 式で示したバンドギャップエネルギーの温度変化に従うと考えられる。しかし、励起子が束縛状態にある場合、低温領域において束縛エネルギーによる発光ピークの低エネルギー化が起こり、完全な束縛状態では温度変化がほとんどないことが予想される。そこで、励起光強度依存性から明らかになった GaP/AIP ヘテロ構造の束縛励起子状態について、活性化エネルギー(束縛エネルギー)を評価するために、発光スペクトルの温度依存性の測定を行った。

図 5.27 は、多重に成長させた超格子 ((7,4), (6,4), (5,4), (4,4)) からの発光スペクトルを、4.2 K から 20 K まで温度を変えて測定した結果であり、それぞれの超格子からの発光強度と発光ピークエネルギーの温度変化を図 5.28 に示している。すべての超格子からの発光は、温度を上げるにつれて急激に減少し、20 K でほぼ消失する。ここで、束縛励起子の活性化エネルギーを E_{a1} 、ヘテロ構造ポテンシャルの閉じこめエネルギーを E_{a2} として、(3.85) 式に 2 つの活性化エネルギーを導入すると、4.2 K から約 20 K までのすべての温度範囲で発光強度の温度依存性がよく再現され、それぞれの超格子について、約 2.1–2.8 meV の活性化エネルギーが得られる。温度に換算すると ($1 \text{ eV} = k_B T = 1.16 \times 10^4 \text{ K}$)、約 24–32 K である。また、発光ピークエネルギーは、すべての超格子について、温度上昇とともにほぼ単調に低エネルギーシフトするが、約 15 K 付近を境に、一転して高エネルギーシフトに変わる。これは、束縛状態から熱励起された自由励起子からの発光が、本来のバンドギャップの温度変化へと移行する過程であると考えられる。そして注目すべきは、長周期の超格子ほど低温で、このエネルギーシフトの変化が現れていることで、界面揺らぎに伴うポテンシャル揺らぎが、束縛ポテンシャルを形成していることを示唆している。

次に、多重に成長させた超格子 ((7,7), (6,6), (5,5), (4,4)) からの発光スペクトルの温度依存性を図 5.29 に示す。それぞれの超格子の発光強度の温度依存性を同様の式でフィッティングすると、この試料でも 4.2 K から約 20 K までのすべての温度範囲でよく一致し、それぞれの超格子について、約 1.9–2.9 meV (約 22–33 K) の活性化エネルギーが得られた (図 5.30)。発光のエネルギーシフトも、先ほどの試料と同様に、低温領域の束縛励起子状態がより高温で自由励起子的になる様子が観測されている。

また、GaP 層と AIP 層がともに 10 Å である隣接閉じこめ構造からの発光の温度依存性を図 5.35 に示す。超格子に比べて、かなり高温まで発光が消失せずに観測される。これは、隣接閉じこめ構造が超格子構造よりも強く、電子-正孔対を閉じこめているために、温度特性が向上しているためである。発光強度の温度依存性は、4.2 K から約 40 K まで同様の式でよく表され、活性化エネルギーは約 3.6 meV (約 41 K) と見積もられた。また、発光ピークエネルギーの温度依存性は、束縛励起子状態では低エネルギーシフトし、約 40 K あたりから高エネルギー側へのシフトに変わっている。これも、超格子の場合と同様に、束縛状態から熱励起された自由励起子からの発光が、本来のバンドギャップの温度変化へと移行する過程が観測されているためと考えられ、活性化エネルギーとほぼ等しい温度領域である。

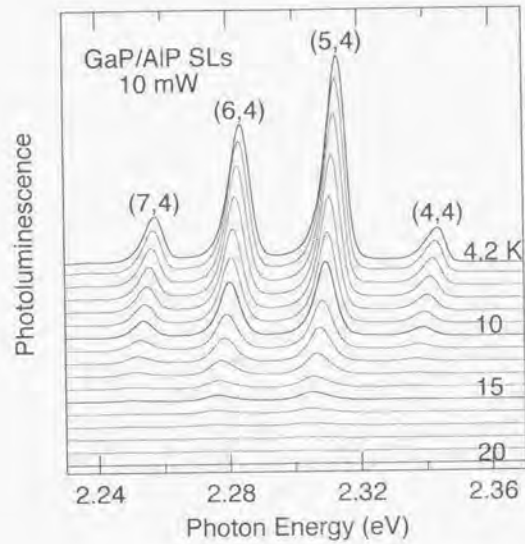


図 5.27 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの発光スペクトルの温度依存性。

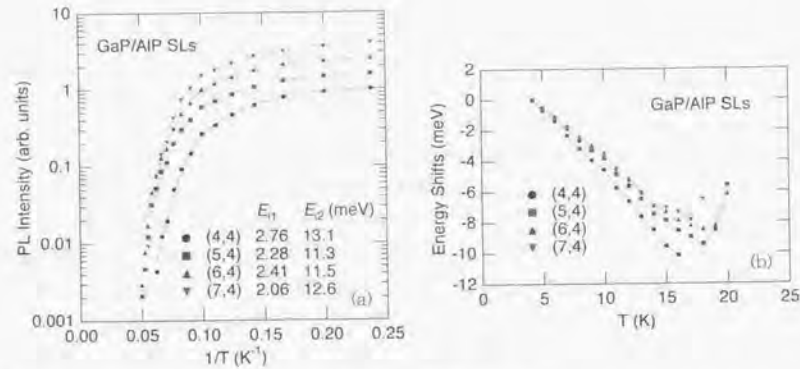


図 5.28 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの温度依存性 (図 5.27)。すべての超格子からの発光は、温度を上げるにつれて急激に減少し、20 K でほぼ消失する。(3.85) 式より、束縛励起子の活性化エネルギーとして、約 2.1 - 2.8 meV と見積もられる。

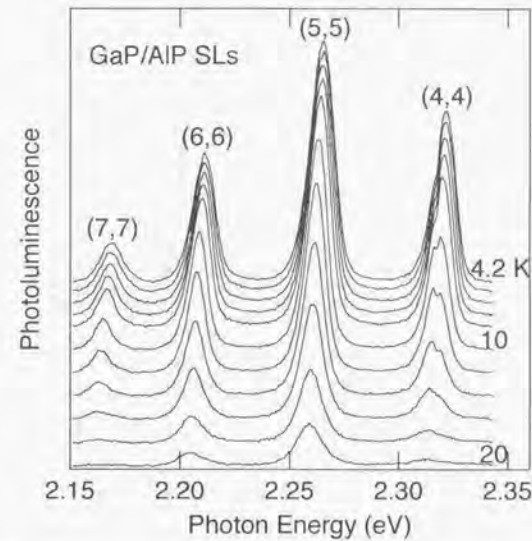


図 5.29 多重に成長させた超格子 (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) からの発光スペクトルの温度依存性。

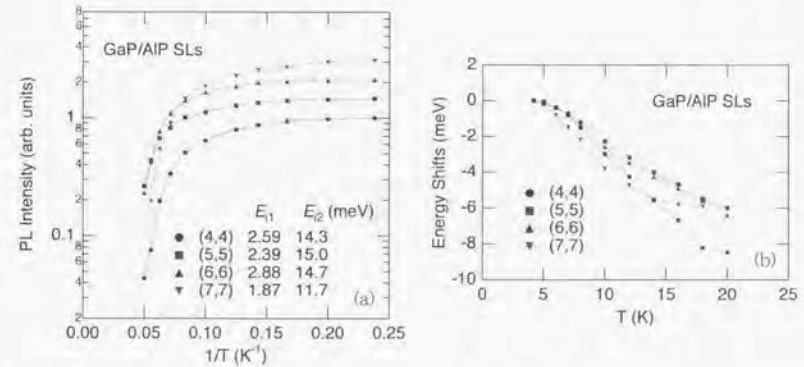


図 5.30 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの温度依存性 (図 5.29)。すべての超格子からの発光は、温度を上げるにつれて急激に減少し 20 K でほぼ消失する。(3.85) 式より、束縛励起子の活性化エネルギーとして、約 1.9 - 2.9 meV と見積もられる。

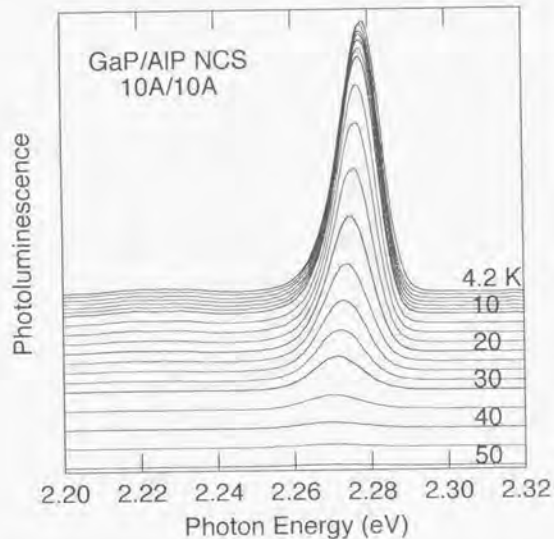


図 5.31 GaP 層と AIP 層ともに 10 Å の隣接閉じこめ構造からの発光スペクトルの温度依存性。

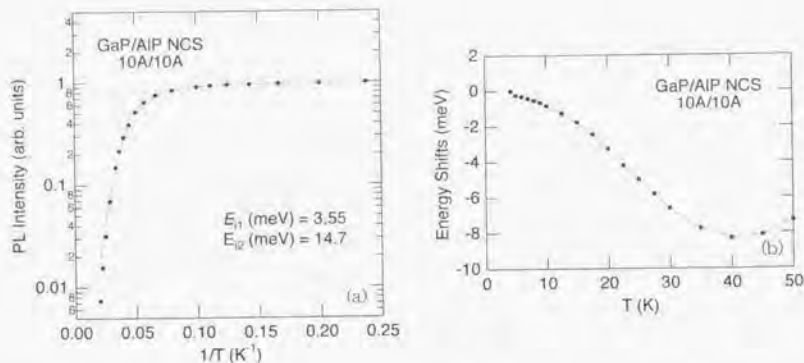


図 5.32 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの温度依存性 (図 5.31)。発光強度の温度依存性は、4.2 K から約 40 K まで (3.85) 式でよく表され、ポテンシャル揺らぎからの活性化エネルギーは約 3.6 meV (約 41 K) と見積もられる。

5.4.3 磁場効果の温度依存性

GaP/AIP ヘテロ構造からの発光の励起光強度依存性 (5.4.1 節) から、これらの発光が束縛励起子によるものであることがわかった。また、温度依存性 (5.4.2 節) から、界面揺らぎに作るポテンシャル揺らぎが、温度にして 20 - 40 K 程度の束縛ポテンシャルを形成し、束縛励起子状態を生み出している可能性が高い。ということは、これまで観測されてきた特異な磁場効果が、電子と正孔が空間分離したタイプ II 半導体中の束縛励起子の示す特徴であるという推論に達する。このことを検証するために、多重に 4 種類の超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) を同一基板上に成長させた試料と、もっとも量子効率が低いと考えられる隣接閉じこめ構造からの発光について、それぞれ束縛励起子が熱励起され自由励起子的になっていると思われる温度で、磁場依存性の測定を行った。

図 5.33 は、自由励起子的になっていると予想される 10 K (図 5.28 の発光強度の温度依存性が、この温度で束縛励起子状態からずれはじめている。) における多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの磁気発光スペクトル (ファラデー配置) である。また、図 5.34 に発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を、比較のために、4.2 K での結果 (図 5.3) と併せてプロットしている。磁場による発光強度の減少は、弱磁場領域ではそれほど急激ではなく、様子がかなり変わっている。さらに、4.2 K では大きく低エネルギーシフトしていた磁場依存性が 10 K においては大幅に抑制され、ほんの僅か低エネルギー側にシフトした後、さらに磁場加えると、高エネルギー側へのシフトに転じている。

次に、GaP 層と AIP 層がともに 10 Å である隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトル (ファラデー配置) の 20 K における測定結果を図 5.35 に示す。この温度では発光強度の温度依存性 (図 5.32) が、束縛励起子状態の式からずれはじめており、より自由励起子的だと考えられる。図 5.36 に発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を、4.2 K での結果 (図 5.14) と併せてプロットしている。磁場を加えることによる発光強度の急激な減少はこの温度領域でも見られるが、4.2 K での測定結果と比べると減少の割合が小さくなっている。また、大きく異なるのは発光ピークエネルギーの磁場依存性で、強磁場側で明らかに高エネルギーシフトしていることがわかる。また、20 K におけるヘテロ界面に平行に磁場を加えたフォークト配置での磁気発光スペクトルを図 5.37 に示す。この磁場配置では温度の効果はほとんど見られず、4.2 K とよく似た振る舞いが観測された (図 5.38)。

このようにヘテロ界面に垂直に磁場を加えたときに現れる特異な磁場依存性が、温度に非常に敏感であり、束縛ポテンシャルから熱励起できる温度、すなわち自由励起子状態では、エネルギーシフトの様子が一変し、逆に高エネルギーシフトを示すことがわかった。また、磁場による発光強度の減少も、高温では抑制される傾向にあることがわかった。超格子構造と隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトルにおいて、同様の温度依存性が得られたことは、上述の磁場依存性に、ヘテロ界面の界面単位に関係した束縛励起子状態が深く関与していることを示唆する結果であると言える。

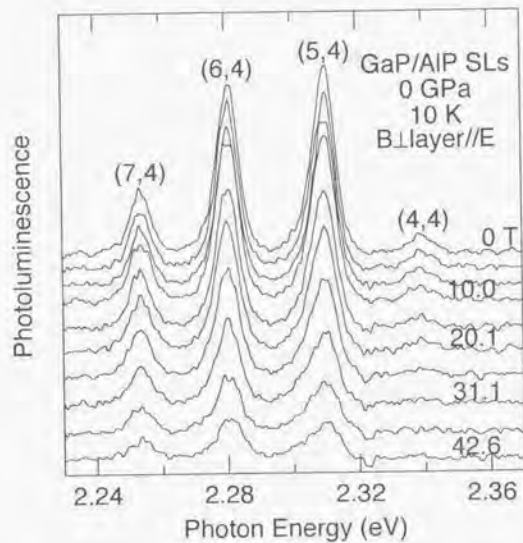


図 5.33 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの磁気発光スペクトル。温度 10 K で、ヘテロ界面に垂直に最大 42.6 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

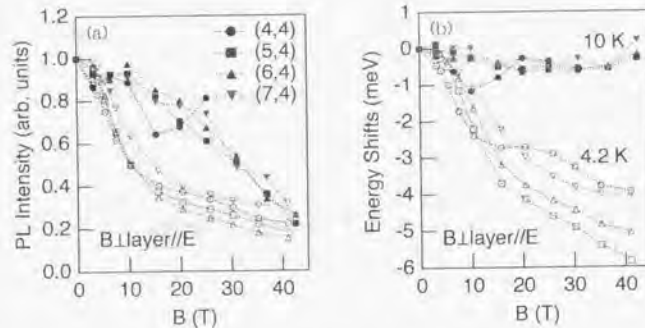


図 5.34 10 K における (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。図 5.33 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットting から求めた発光ピークエネルギーを 4.2 K での結果 (図 5.2) と併せて示している。低エネルギーシフトが抑制され、発光強度の減少の様子もかなり違っている。

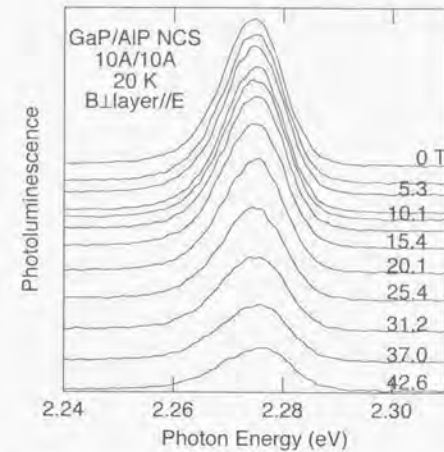


図 5.35 温度 20 K での GaP 層、AIP 層ともに 10 Å の隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトル。ヘテロ界面に垂直に最大 42.6 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

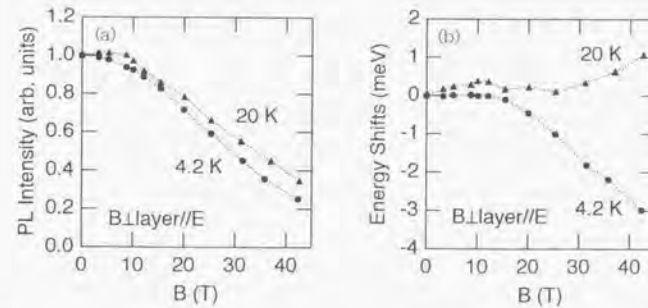


図 5.36 温度 20 K における (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。図 5.35 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットting から求めた発光ピークエネルギーを 4.2 K での結果 (図 5.14) と併せて示している。4.2 K の場合と比べ、発光強度の減少が抑制され、強磁場領域で明らかな高エネルギーシフトが観測された。また発光強度の磁場依存性は、若干減少傾向が抑制されているがそれほど変化はない。

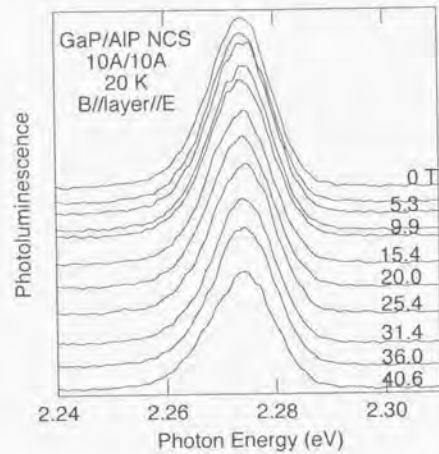


図 5.37 温度 20 K での GaP 層、AIP 層ともに 10 Å の隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトル。
ヘテロ界面に平行に最大 40.6 T の強磁場を加えた (フォークト配置)。

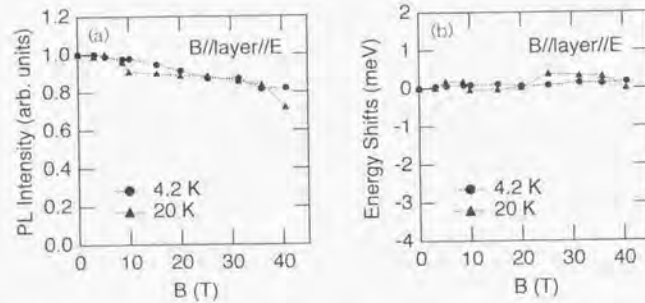


図 5.38 温度 20 K における (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図 5.37 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーを 4.2 K での結果 (図 5.15) と併せて示している。4.2 K での依存性と、発光強度、エネルギーシフトともにほとんど違いが見られない。

5.4.4 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 短周期超格子

GaP/AIP 系ヘテロ構造で観測された特異な磁場依存性が、電子と正孔が空間分離されたタイプ II 半導体の束縛励起子によるものであるとすれば、同じような励起子状態が実現していれば、他の物質系でも観測される可能性がある。そこで、もっともよく知られた GaAs/Al_xGa_{1-x}As 系超格子で、タイプ I とタイプ II の超格子について同様の測定を行い、検証することにする。測定に用いた試料は、NTT 基礎研究所堀越グループにより、MBE 法で作製された [71]。

図 5.39 は、価電子帯の頂上と、伝導帯の下端が GaAs 層の Γ 点にあるタイプ I 超格子 GaAs/AlGaAs (3,3) について、超格子界面に垂直に磁場を加えたときの励起子発光スペクトルを測定した結果である。3.2.3 節で述べた磁場中励起子の振る舞いをきれいに表している。すなわち、磁場を加えるにつれて、電子と正孔が磁場に垂直な面内でサイクロトロン運動を起こし、励起子の振動子強度が増大することによって、発光強度が増大する。また、励起子の空間的な広がりに比例し、磁場の 2 乗に比例する反磁性シフトによって、発光ピークエネルギーが高エネルギー側へシフトする。そして、強磁場状態の目安である無次元パラメータが 1 に近づく磁場領域で、磁場に比例するランダウ準位へと移行する過程が観測される。このような発光あるいは吸収・反射スペクトルの磁場依存性をもとに、励起子の束縛エネルギーや、有効質量を求めることができ、これまでも数多くの物質群で研究されている [94][95]。

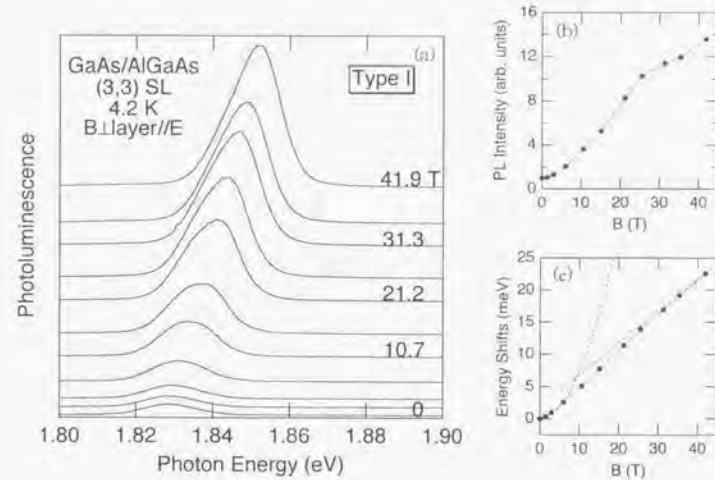


図 5.39 (a) GaAs/AlGaAs (3,3) タイプ I 超格子からの励起子発光の磁場依存性。
ヘテロ界面に垂直に最大 41.9 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。 (b) に発光強度、 (c) に発光ピークのエネルギーシフトを示している。磁場の増加に伴って、発光強度が増大し、高エネルギーシフトしており、反磁性シフトからランダウ準位へ移行する過程が観測されている。

次に、価電子帯の頂上が GaAs 層の Γ 点、伝導帯下端が AlAs 層の X 点にあるタイプ II 超格子 GaAs/AlAs (6,6) からの励起子発光の、超格子界面に垂直に磁場を加えたときの測定結果を図 5.40 に示す。フォノン放出を伴わない間接遷移による発光であるゼロフォノン線がもっとも強く、その約 27.5 meV と 50 meV 低エネルギー側に小さな肩構造が見られる。これは、それぞれ AlAs 層の X 点の LA および LO フォノンが関与した遷移に伴うフォノンサイドバンドである。このフォノンサイドバンドは、タイプ II 半導体に特徴的に見られるもので、緩和時間が 3 桁程度早い直接遷移型では、フォノンにエネルギーを渡す前に再結合が起こるので、通常観測されない。この試料では、磁場による発光強度の増大は起こっておらず、むしろ減少傾向にある。また発光ピークエネルギーも、弱磁場領域では、高エネルギーシフトを示すが、約 30 T 付近から低エネルギーシフトに移り変わっており、単純な反磁性シフトではない。次章で明らかになるが、この超格子の伝導帯下端は、AlAs 層の X_z 点にあり、X 点電子の有効質量の異方性を反映して、磁場による X_z - X_{xy} 交差が起こっている可能性がある。

図 5.41 は、タイプ II 超格子 GaAs/AlAs (6,25) からの励起子発光の、超格子界面に垂直に磁場を加えた場合の測定結果である。この試料の伝導帯下端は、AlAs 層の X_{xy} 点にあり、 X_z - Γ 遷移である (6,6) 超格子からの発光に比べて、積分強度にして、数%程度である。これは、超格子の成長方向である X_z 点が、GaAs 層と AlAs 層の層数の和が偶数になるとき、ブリュアンゾーンの折り返し効果で Γ 点に折り返され、 X_z - Γ 遷移が擬直接となるのに対して、 X_{xy} - Γ 遷移は、本質的に間接遷移であるためと考えられる。この

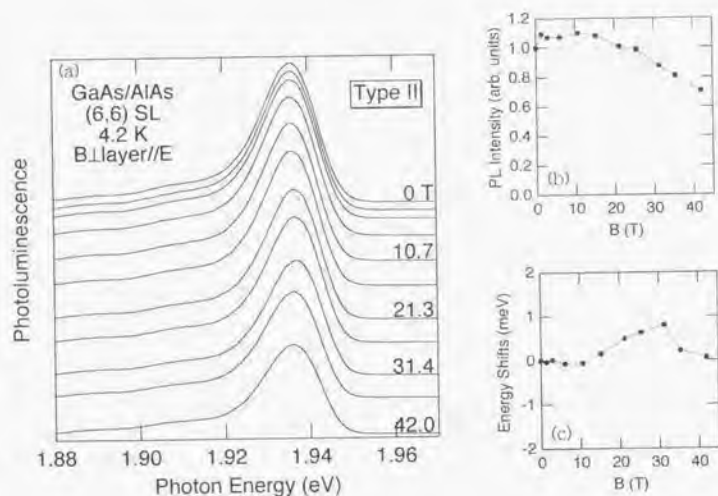


図 5.40 (a) GaAs/AlAs (6,6) タイプ II 超格子からの励起子発光の磁場依存性。ヘテロ界面に垂直に最大 42.0 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。 (b) に発光強度、 (c) に発光ピークのエネルギーシフトを示している。弱磁場領域では発光強度が僅かに増大し、高エネルギー側にシフトしているが、強磁場側では一転して、発光強度の減少と低エネルギーシフトを示している。

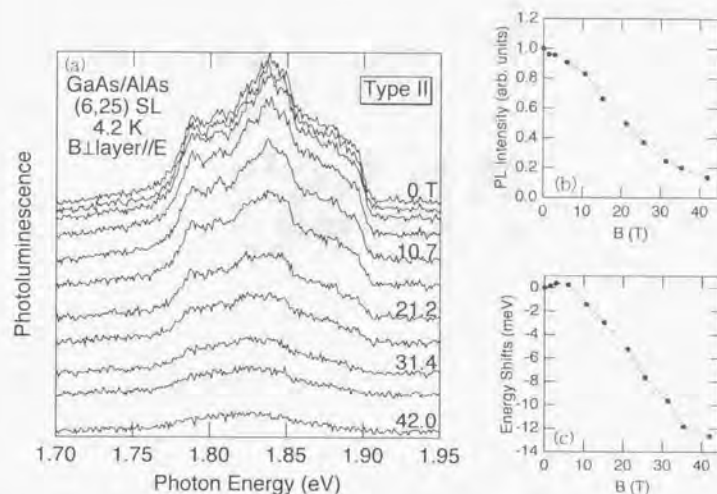


図 5.41 (a) GaAs/AlAs (6,25) タイプ II 超格子からの励起子発光の磁場依存性。ヘテロ界面に垂直に最大 42.0 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。 (b) に発光強度、 (c) に発光ピークのエネルギーシフトを示している。磁場の増加に伴って、発光強度が急激に減少し、低エネルギー側に大きくシフトしている。

試料のゼロフォノン線は、明確なピーク構造になっておらず、それよりも低エネルギー側に微少な構造を持つフォノンサイドバンドと連なり、ブロードな発光帯を形成している。この試料に磁場を加えると、急激に発光強度が減少し発光ピークエネルギーが低エネルギーシフトするという、GaP/AIP 系ヘテロ構造で見られたのときわめてよく似た現象が観測された。

5.4.5 「擬量子ドット欠陥」モデル

Kobayashi 等は、本研究で観測されたファラデー配置における発光スペクトルの特異な磁場依存性に興味を持ち、「擬量子ドット欠陥」モデルを提唱し、説明を試みた^{[97][98]}。このモデルは、GaP/AIP 超格子中のヘテロ界面に数百Å程度の広がりを持つ欠陥を考え、この欠陥に電子が束縛され、隣接する層に存在する正孔とクーロン引力で引きあうことによって、束縛励起子状態ができていくとするもので、(4.4) 超格子について、界面に垂直な方向に磁場を加えたときの束縛励起子の変分計算を行い、ヘテロ界面に垂直に磁場を加えたときの、発光強度の減少と低エネルギーシフトを定性的に説明できると報告している。モデルの概念図と重要なサイズパラメータを図 5.42 に示す。これを簡単に説明すると、まず、AIP 層の電子をトラップしているヘテロ界面における欠陥を、 $x-y$ 面内の 2 次元箱形ポテンシャル $V(x)$ として、

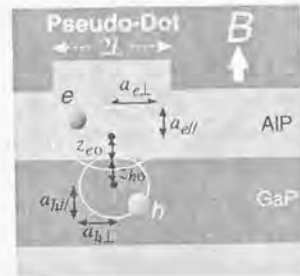


図 5.42 擬量子ドット欠陥モデルの概念図。
超格子中のヘテロ界面に形成された欠陥に電子が束縛され、隣接する層に存在する正孔とクーロン引力で引きあうことによって、束縛励起子状態ができる。

$$V(r_e) = \begin{cases} 0 & |x_e|, |y_e| < L \\ V_0 & |x_e|, |y_e| > L \end{cases} \quad (5.1)$$

とおく。電子の有効質量方程式は、

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_e^2 + V(r_e) \right] \psi_e(r_e) = E \psi_e(r_e) \quad (5.2)$$

で表わせる。今、簡単のために、無限ポテンシャルを考えると、境界条件は、

$$\psi_e(r_e) = 0 \quad |x_e|, |y_e| > L \quad (5.3)$$

となり、波動関数は

$$\begin{aligned} \psi_e(x_e, y_e) &= \frac{1}{L} \cos(k_x x_e) \cos(k_y y_e) \\ k_x &= \frac{n_x \pi}{2L}, \quad k_y = \frac{n_y \pi}{2L} \quad (n_x, n_y = 1, 2, 3, \dots) \end{aligned} \quad (5.4)$$

で表せる。次に、超格子中の2次元励起子の磁場効果を考える。ヘテロ界面に垂直に磁場を加えたときの有効質量ハミルトニアンは、

$$H = H_e + H_h + H_{ex} \quad (5.5)$$

となり、ここで

$$\begin{aligned} H_e &= \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_e^2 + \frac{1}{2} \hbar \omega_c L_{ez} + \frac{1}{8} m_e \omega_c^2 (x_e^2 + y_e^2) + V_e(z_e) \\ H_h &= \frac{\hbar^2}{2m_h} \nabla_h^2 + \frac{1}{2} \hbar \omega_h L_{hz} + \frac{1}{8} m_h \omega_h^2 (x_h^2 + y_h^2) + V_h(z_h) \\ H_{ex} &= \frac{e^2}{\epsilon |r_e - r_h|} \end{aligned} \quad (5.6)$$

である。次に、磁場中での励起子効果を取り扱いやすいように、ガウス型の変分関数を選び、さらに、タイプII型超格子の特徴である、電子と正孔の空間分離を表現するために、電子と正孔それぞれの中心座標 z_{e0}, z_{h0} を変分パラメータに加えて、

$$\begin{aligned} \psi(r_e, r_h) &= \phi_e(r_e) \phi_h(r_h) \\ \phi_e(r_e) &= \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^{1/2} a_{e\perp}^2 a_{e\parallel}}} e^{-\left[\frac{x_e^2 + y_e^2}{4a_{e\perp}^2} + \frac{(z_e - z_{e0})^2}{4a_{e\parallel}^2} \right]} \\ \phi_h(r_h) &= \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^{1/2} a_{h\perp}^2 a_{h\parallel}}} e^{-\left[\frac{x_h^2 + y_h^2}{4a_{h\perp}^2} + \frac{(z_h - z_{h0})^2}{4a_{h\parallel}^2} \right]} \end{aligned} \quad (5.7)$$

とおく。ここで、 $a_{e\parallel}, a_{e\perp}$ はそれぞれ磁場に平行な方向と垂直な方向の電子の波動関数の広がりであり、 $a_{h\parallel}, a_{h\perp}$ は同じく正孔の波動関数の広がりである。そして、電子が「擬量子ドット欠陥」に束縛されている効果を取り入れるために、磁場中においても、ヘテロ界面に平行な面内では、(5.4)式で与えられる波動関数で記述されるとし、面内の x - y 依存性を再現するように $a_{e\perp}$ を決めた。このようにして、ハミルトニアンを期待値

$$E_e(B) = \langle \psi | H_e + H_h + H_{ex} | \psi \rangle \quad (5.8)$$

を最小にするときの変分パラメータを求めた。また、励起子束縛エネルギーとして、

$$E_b(B) = \langle \psi | H_e + H_h | \psi \rangle - \langle \psi | H_e + H_h + H_{ex} | \psi \rangle \quad (5.9)$$

を計算し、加えて発光強度も

$$I = \left| \int \phi_e(r) \phi_h(r) dr \right|^2 \int_{\text{unit cell}} u_{CB}(r) p u_{VB}(r) dr \quad (5.10)$$

として計算した。ここで、 $u_{CB}(r)$ と $u_{VB}(r)$ はそれぞれ Γ 点の伝導帯下端と価電子帯頂上のブロッホ波動関数である。このようにして、50-300 Å までのいくつかの擬量子ドット欠陥のサイズについて、励起子束縛エネルギーと、発光強度の磁場依存性の計算結果が図 5.43 である。それによると、まず、励起子束縛エネルギーが磁場を加えるにつれて増加するが、増加の割合が欠陥サイズが小さいほど顕著であること、及び、発光強度が磁場を加えるにつれて減少するが、減少の割合が欠陥サイズが大きいほど顕著であることなどの特徴があらわれた。特に、発光強度の磁場による減少は、自由励起子では起こり得ないもので、正孔の波動関数が磁場によって収縮するのに対して、電子の束縛状態が磁場の影響を受けないことによって、電子と正孔の波動関数の重なりが磁場によって減少し、発光強度の減少をもたらしていると結論している。

発光強度の磁場依存性の計算は、観測された現象を定性的にはよく説明しているが、実際には 40 T で約 1/5 にまで発光強度は減少する。この減少を計算で再現するためには、さらに大きな「擬量子ドット欠陥」を考える必要がある。電子の de Broglie 波長を越える危険性がある。その場合に果たして束縛励起子状態が実現しているのか疑問である。また、励起子束縛エネルギーの増大がどのように発光ピークエネルギーの低エネルギーシフトに反映されるのか、よくわからない。しかしながら彼等が主張するように、何らかの束縛励起子状態が発光に関与しているのは間違いない。

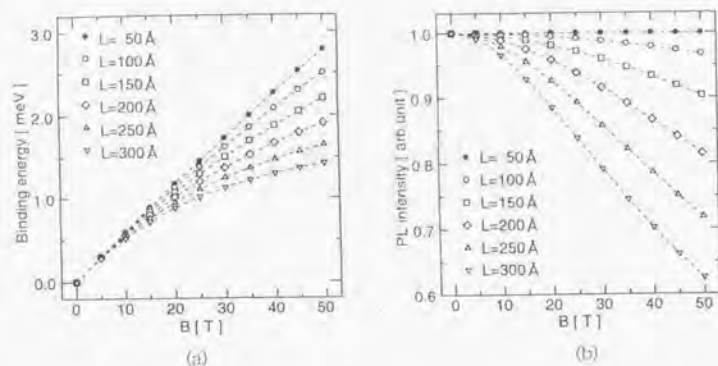


図 5.43 「擬量子ドット欠陥」モデルを用いたいくつかの欠陥サイズにおける GaP/AIP (4,4) 超格子からの励起子発光の (a) 励起子束縛エネルギーと (b) 発光強度の磁場依存性^[98]。
欠陥サイズが小さいほど、励起子の束縛エネルギーの磁場による増大の割合が大きく、欠陥サイズが大き
いほど、磁場による発光強度の減少の割合が大きい。

5.4.6 キャリア局在

発光の励起子強度依存性から、GaP/AIP ヘテロ構造のバンド端励起子が束縛励起子状態であることが明らかになり、またその温度依存性から、束縛状態の活性化エネルギーを見積もった。それによると、太まかな傾向として、隣接閉じこめ構造も含めて、長周期のヘテロ構造ほど、そのエネルギーが小さくなっている。このことは、層数の不均一揺らぎにともなうバンドギャップの揺らぎに束縛されていると考えるのが妥当である。無限ポテンシャル障壁における量子井戸のエネルギー準位は、(3.16) 式にあるように井戸幅を a として、

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{n\pi}{a} \right)^2 \quad (5.11)$$

で与えられる。そして a で微分することにより、

$$\Delta E_n = \frac{\hbar^2 \pi^2}{m} \left(\frac{\Delta a}{a} \right) \quad (5.12)$$

が導かれる。ここで、 Δa として GaP の 1 原子層 2.73 Å をとると、 a が大きいほど ΔE_n は小さくなる。すなわち、長周期ほど層数の不均一揺らぎにともなうポテンシャル揺らぎが少ないことになる。しかし、実際のところ、GaP/AIP ヘテロ界面にどのような揺らぎがあるのか、よくわかっていない。現時点で言えることは、電子が束縛され局在化するためには、電子の de Broglie 波長

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{\sqrt{2m^*E}} = \lambda_0 \sqrt{\frac{m}{m^*}} \quad (5.13)$$

以下のエネルギーポテンシャル構造が必要だということである。ここで、 λ_0 は自由電子の de Broglie 波長で 4.2 K ($E = 0.36$ meV) において約 640 Å である。Kobayashi 等によると、面内での X 点電子の有効質量は $0.31 m_0$ と見積もられているので^[98]、実験により求められた活性化エネルギーより、 $E = 3$ meV とすると、de Broglie 波長は約 250 Å となる。ちなみに、 Γ 点正孔の有効質量は $1.82 m_0$ と見積もられており、電子に比べてかなり重い。このことから、層数の不均一揺らぎによってできたエネルギーポテンシャルに電子が束縛され、ヘテロ界面を挟んで隣接する層にいる正孔が、電子とのクーロン相互作用によって界面付近に引き寄せられ、励起子束縛状態を形成しているものと考えられる。厳密に言えば、界面の状態によって、このとき正孔も電子によるクーロンポテンシャルとバンドのポテンシャルのトータルの場合の極小点に束縛されていると考えるのが自然であろう。とすると、界面に垂直に磁場を加えたときに起こる発光強度の急激な減少は、界面の揺らぎによるポテンシャル揺動に、電子（あるいは電子と正孔）が束縛された束縛励起子状態において、界面に平行な成分の電子・正孔の波動関数がサイクロトロン運動により収縮し、重なり積分が小さくなることにより、振動子強度及び再結合確率が低下するためであると考えられる。これに対して、界面に平行に磁場を加えた場合は、面内の波動関数がほとんど影響を受けないために、磁場依存性が小さくなることが予想される。だとすれば、超格子の周期や、隣接閉じこめ構造といったヘテロ構造の種類によらず（例外として、(3,3) 超格子と (7,7) 超格子があるが、後述する）、よく似た磁場依存性を示すことが理解できる。また、隣接閉じこめ構造における 20 K での測定で、発光強度の減少傾向が抑制され、発光ピークエネルギーは、一転して高エネルギー側へのシフトに変わった（図 5.35）。さらに、GaP 層と AIP 層の間に AlGaP 層を挟み込んだ構造からの発光が、界面に平行に磁場を加えた場合にも、急激な発光強度の減少と低エネルギーシフトを示した（図 5.19）。これらのことから、GaP/AIP ヘテロ構造において観測された、界面に垂直に磁場を加えたときの急激な発光強度の減少は、ヘテロ界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動により、界面付近に束縛されていた励起子が、磁場によって電子と正孔のそれぞれのエネルギー極小点に局在する、キャリア局在によるものであると考えられ、タイプ II ヘテロ構造特有のメカニズムであると言える（図 5.44）。

しかし、ヘテロ構造ポテンシャルに、単に磁場による放物線ポテンシャルを重ねるだけでは、励起子基底状態の低エネルギーシフトは起こり得ない。そこで、光によって生成された励起子が結晶中を拡散して、再結合中心で捕獲・発光するという励起子発光のダイナミクスを考えてみる。最近、Butov 等は、電子と正孔が空間的に分離した GaAs/AlGaAs 二重量子井戸からの励起子発光スペクトルにおいて磁場中での発光寿命の測定を行い、磁場を加えるにつれて発光寿命が増大し、14 T の磁場で約 2.5 倍に達するとの報告をおこなっており^[99]、その機構として磁気励起子質量の増大に伴う励起子局在領域の収縮をあげている^[100]。もしも、GaP/AIP ヘテロ構造において同様の磁場による発光寿命の増大が起こっているとすれば、3.5.3 節で述べた発光の励起子強度依存性との類推から、磁場による低エネルギーシフトを説明することができる。すなわち、GaP/AIP ヘテロ構造からの発光は、界面の揺らぎによるポテンシャル揺らぎの効果が大きく影響しており、さらに実空間・波数空間ともに間接型であることを反映して、長い発光寿命を持つ。これらのことから、光により生成された励起子は、ポテンシャルの低い方へエネルギー緩和しながら移動したのち、輻射再結合することが予想される（図 5.45）。このとき、磁場がゼロの状態では、励起子が再結合する時間 (τ_r) が、励起子がポテンシャル極小点に移動する時間 (τ_m) よりも短ければ、ポテンシャル揺らぎの分布を反映した Gaussian 型の発光スペクトルが観測されるはずである。これに対して、磁場を加えて発光寿命が長くなると、より多くの励起子がポテンシャルの低い方へエネルギー緩和し

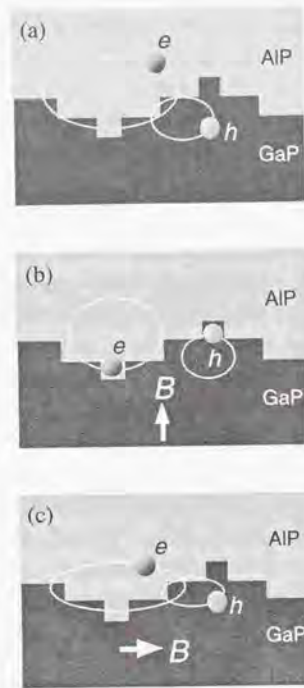


図 5.44 界面の揺らぎにともなうポテンシャル揺ら動に束縛された励起子の磁場依存性。(a) 磁場がないとき、(b) ヘテロ界面に垂直に磁場を加えたとき、(c) ヘテロ界面に平行に磁場を加えたとき。
 ゼロ磁場では、励起子は界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺らぎによって局在している。ヘテロ界面に垂直に磁場を加えると、電子・正孔の面内の波動関数が収縮し、それぞれのポテンシャル極小点に局在化するために、波動関数の重なりが減少する。それに対して、界面に平行に磁場を加えた場合、そのようなことは起こらない。

たのち発光するため、発光スペクトルの短波長成分は減衰し、スペクトル形状が非対称になるとともに、発光のピーク位置が低エネルギーシフトするはずであり、長波長側の幅はほとんど変化しないことが予想される。図 5.46 は、5.1 節で示した GaP/AIP (5,4) 超格子と (7,4) 超格子からの磁気発光スペクトル(フラーデー配置)において、ゼロ磁場と最大磁場での発光スペクトルをプロットしたものであり、併せてゼロ磁場でのスペクトル強度から最大磁場でのスペクトル強度を引いて、さらにゼロ磁場の強度で割った計算結果を併せてプロットしている。これは、磁場によって減少したスペクトル強度比の波長依存性を表しており、

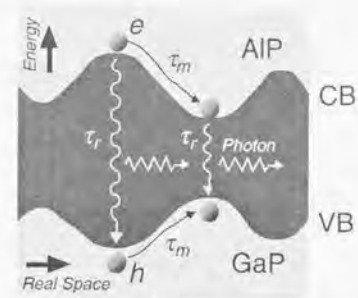


図 5.45 揺らぎを伴ったポテンシャル中でエネルギー緩和して発光する励起子の概念図。
 光により生成された励起子は、長い発光寿命を反映して、ポテンシャルの低い方へエネルギー緩和しながら移動したのち、輻射再結合する。このため、発光スペクトルは励起子の発光寿命とエネルギー緩和する時間との関係に影響することが予想される。

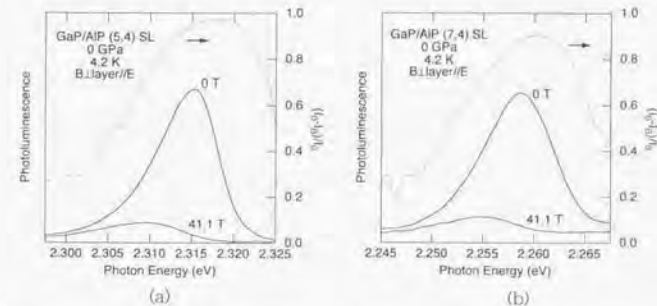


図 5.46 (a) GaP/AIP (5,4) 超格子と、(b) (7,4) 超格子からの磁気発光スペクトル (図 5.2)。ゼロ磁場でのスペクトル強度から最大磁場でのスペクトル強度を引いて、さらにゼロ磁場の強度で割った計算結果を併せてプロットしている。このことから、発光スペクトルの高エネルギー成分が磁場により大きく減少していることがわかる。

発光スペクトルの高エネルギー成分ほど磁場により大きく減少する傾向のあることがわかる。これは、(3,3) 超格子を除く他の超格子でも同様である。また、5.2 節で示した隣接閉じこめ構造からの磁気発光においても、磁場による発光スペクトルの高エネルギー成分の減少が際だっており、上述のモデルで予想されるスペクトルの磁場依存性に極めて良く似ている。

もうひとつの可能性として、電子・正孔が空間分離された系で特徴的な高密度電子・正孔対の磁場効果が考えられる。電子・正孔が空間的に離れた励起子系における強励起状態では、一方のキャリアが同一の

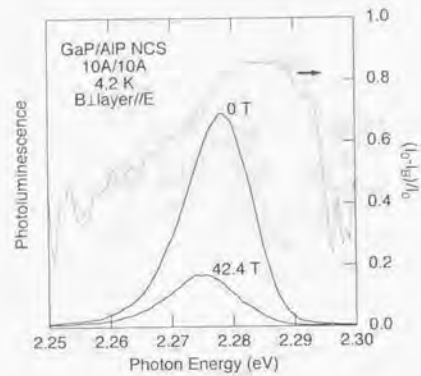


図 5.47 GaP/AlP 隣接閉じこめ構造からの磁気発光スペクトル (図 5.14)。ゼロ磁場でのスペクトル強度から最大磁場でのスペクトル強度を引いて、さらにゼロ磁場の強度で割った計算結果を併せてプロットしている。このことから、超格子の場合と同様に、発光スペクトルの高エネルギー成分が磁場により大きく減少していることがわかる。

空間に多数存在し、キャリア間の相互作用 (反発力)、言い換えるならば、多数のキャリアの作る電場分布により、励起子準位が高エネルギーシフトすることが知られている^{[101][102]}。この状態でヘテロ界面に垂直に磁場を加えると、面内での波動関数の収縮により、高密度状態が抑制され、発光ピークが全体的に低エネルギーシフトすることが予想される。しかし、5.4.1 節で示した超格子の励起光強度依存性は、強励起するほど発光ピークエネルギーが低エネルギーシフトしており、本実験の励起光強度では、高密度の電子-正孔対が生成されているとは言えない。これらのことから、磁場による発光スペクトルの低エネルギーシフトの機構としては、発光寿命の変化による励起子再結合のダイナミクスの変化が最も有力である。

例外的であった (7,7) 超格子については、周期が長いために、1 原子層の揺らぎをもたらすポテンシャルへの効果が小さく、励起子が比較的弱い磁場で束縛状態から解放され、自由励起子になっているのではないかと考えられる。ちなみに、キャリア局在の効果が、周期にほとんど依らないことから、先ほどの実験結果 (図 5.6) をもとに、(7,7) 超格子の発光のエネルギーシフトから隣の (6,6) 超格子の単調な低エネルギーシフト量を差し引くと、磁場の 2 乗に比例する反磁性シフトにきわめて近い曲線が得られ、GaP のバルクの誘電率をもとに励起子の換算質量を求めると約 $0.126 m_0$ であった (図 5.48)。Kobayashi 等^[29] によるバンド計算では、伝導帯 X 点電子 (Γ 点に折り返されている) と Γ 点正孔の有効質量はそれぞれ $0.31 m_0$, $1.82 m_0$ と見積もられていることから、励起子の換算質量は約 $0.26 m_0$ となり、磁場によるシフトは非常に大きいと言える。これは、元々の Γ 点と折り返された X 点との Γ -X 混合が起こっていることを示唆している。

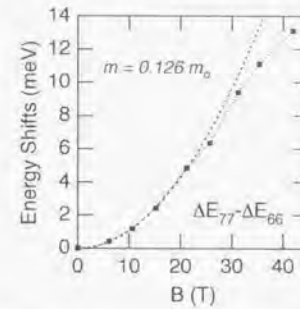


図 5.48 (7,7) 超格子のエネルギーシフトから (6,6) 超格子のエネルギーシフトを引いたエネルギーシフト (図 5.6 のデータをもとに計算)。点線は磁場の 2 乗に比例する反磁性シフトの式でフィッティングすると 20 T までの低磁場領域は、非常に良く一致している。これより励起子有効質量は $0.126 m_0$ と見積もられる。

もう一つの例外である (3,3) 超格子については、次章で明らかになるが、他のヘテロ構造と違い、伝導帯下端 X_{xy} 点からの発光であり、バンド端電子が AlP 層に広がっているためにキャリア局在の効果が小さいのではないかと予想される。ということは、磁場によるキャリア局在の効果が、界面の揺らぎのサイズ、キャリアの de Broglie 波長、励起子のボーア半径、magnetic length といった電子系の特徴的なサイズに、大きく影響されることが予想される。ちなみに GaAs/AlAs タイプ II 超格子では、価電子帯頂上 Γ 点 (軽い正孔) の有効質量は $0.082 m_0$ 、伝導帯下端 X 点は $0.16 m_0$ と見積もられており、GaP/AlP ヘテロ構造に比べて、概して軽い質量を持っている。また、GaP/AlP 系の場合には、伝導帯 Γ 点をはるかに高いエネルギーに位置するのに対して、GaAs/AlAs 系では両者のエネルギーがきわめて近く、 Γ -X 混合効果が大きいという違いがある。

最近、Ohta 等^[108] は、GaP バッファ層の上に組成比の異なるいくつかの $In_xGa_{1-x}P$ 層を成長させ、その上に AlGaP/GaP/AlP/AlGaP 隣接閉じこめ構造を成長することによって面内の引っ張り歪みを制御し、発光効率を高めることに成功したとの報告を行っている。また Usami 等^[109] は、同様の試料について、パルス強磁場中での発光スペクトル測定を行い、無歪みの試料について、本研究で観測された磁場依存性と同等の、発光強度の減少と低エネルギーシフトを確認した。さらに、歪みの加わった試料について、弱磁場領域では無歪みの試料に対して変わらないものの、より強磁場領域では発光強度が増大し高エネルギーシフトに移行する現象を見だし、磁場による局在効果と励起子局在の競合が磁場依存性に重要な役割を果たしているのではないかと予想している。また、最近、Haetty 等^[106] が、AlGaAs/AlAs タイプ II 多重量子井戸を用いた X_{xy} - Γ 励起子からの磁気発光スペクトルの測定において、同様の磁場による発光強度の減少を観測し、温度によって磁場依存性が抑制されることからキャリア局在の効果であるとの報告を行っている。ただし、エネルギーシフトについては言及していない。

第6章

圧力依存性

6.1 超格子

6.2 量子井戸

6.3 隣接閉じこめ構造

6.4 考察

6.4.1 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 短周期超格子

6.4.2 X_{xy}-X_z 交差

6.4.3 準直接遷移

6.4.4 励起子局在

間接遷移型半導体である GaP と AlP に、それぞれの層数の和が偶数の超格子構造を導入すると、ブリュアン帯域の折り返し効果により AlP の X 点が Γ 点に折り返される。しかし、この折り返し効果を受けるのは超格子面に垂直な方向である X_z 点だけであり、X 点にそのままとどまっている X_{xy} 点（超格子面に平行）よりも X_z 点のエネルギーの方が低い場合に k 空間での直接遷移型（準直接遷移型）への変換が実現する。有効質量近似では、超格子ポテンシャルによって質量の重くなった X_z 点の方が X_{xy} 点よりもエネルギーが低くなる。しかし X_z-X_{xy} 混成による面内のミニバンドの広がり効果が X_{xy} 点のバンドの最低エネルギーを下げる効果も考えられ、伝導帯の最下端がどちらになるのかは、まだ未解決の問題である。そして、ブリュアン帯域の折り返し効果がどの程度発光に寄与するのかについても、明らかになっていない。遷移型を決める X 点は圧力、特に一軸性応力に対して極めて異方的であり、圧力下における発光スペクトルの測定は、X 点に関する情報を明快に提供することが期待される。本章では、高圧（静水圧、一軸性応力）下での GaP/AlP 系ヘテロ構造の発光スペクトルの測定により、GaP/AlP ヘテロ構造のバンド端の電子状態を明らかにするとともに、強い発光の起源に迫る。

6.1 超格子

GaP/AlP 超格子のバンドギャップの圧力依存性は、3.6.3 節で紹介したように、Kobayashi 等^[29]によって計算されており、静水圧下では、X_z- Γ 遷移エネルギーと X_{xy}- Γ 遷移エネルギーは、1 GPa でのエネルギーシフトの差が約 2.6 meV (X_{xy} との方が大きくシフトする。)と、ほぼ似たような圧力係数を持つことがわかっている (図 3.29)。それに対して、超格子面に垂直に一軸性応力を加えると、X_z- Γ 遷移エネルギーは低エネルギー側へ、それとは対照的に X_{xy}- Γ 遷移エネルギーは高エネルギー側へシフトすることがわかっているおり、1 GPa での両者のエネルギー差は約 77.9 meV という計算結果が出されている (図 3.30)。絶対値はともかく、圧力係数の正負は、波動関数の対称性では決まるので、大まかな傾向はヘテロ構造によらないと考えられる。そこで、超格子、量子井戸、隣接閉じこめ構造の発光スペクトルの圧力依存性を調べれば、どちらの X 点からの発光か、明らかになる可能性がある。そこで、4.3 節で説明した圧力セルを用いて、GaP/AlP ヘテロ構造に静水圧・一軸性応力を加え、発光スペクトルの圧力依存性を OMA で検出した。測定温度はすべて 4.2 K である。

図 6.1 は、多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの発光スペクトルの静水圧依存性である。また、図 6.2 に、発光ピークエネルギーと発光強度の圧力依存性と、Kobayashi 等^[29]によって計算された (4,4) 超格子の静水圧依存性の結果をあわせて示している。圧力を加えるに従って、すべての超格子からの発光のピークエネルギーが低エネルギー側にほぼ直線的にシフトしており、圧力係数としてそれぞれ、(4,4): -19.2, (5,4): -18.6, (6,4): -18.8, (7,4): -19.3 meV/GPa と見積もられた。Kobayashi 等による圧力係数の計算値は、この圧力領域で、X_z- Γ : -21 meV/GPa, X_{xy}- Γ : -23.6 meV/GPa であるから、実験値は X_z- Γ 遷移のものよりも絶対値として 10% 程度小さくみである。また発光強度は、(7,4) 超格子だけが僅かに増大傾向にあり、他の超格子は短周期ほど磁場によって減少する傾向を示している。これは、X_{xy} 点と X_z 点の圧力係数の違いにより、圧力によって X_{xy}- Γ 発光成分が多くなるためではないかと考えられる。

次に、この試料のヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えたときの発光スペクトルの変化を図 6.3 に、さらに発光ピークエネルギーと発光強度の圧力依存性を図 6.4 に示す。(4,4) 超格子をのぞく 3 つの超格子は、ほぼ直線的に低エネルギーシフトしており、圧力係数としてそれぞれ、(5,4): -33.2, (6,4): -35.5, (7,4): -39.1 meV/GPa と見積もられ、Kobayashi 等による X_z- Γ 遷移エネルギーの圧力依存性の計算と比較的よく一致している。また、発光強度は高圧側で徐々に増える傾向にある。それに対して、(4,4) 超格子からの発光は、約 0.05 GPa までは高エネルギーシフトを示すが、さらに高圧側では一転して低エネルギーシフトに変わり、他の超格子と同じような圧力係数 (-31.9 meV/GPa) を示すようになる。図中に Kobayashi 等^[29]によって計算された (4,4) 超格子の X_z- Γ と X_{xy}- Γ 遷移エネルギーの一軸性応力依存性を点線で示している。高圧側での依存性は計算された X_{xy}- Γ 遷移エネルギーの応力依存性と非常によく一致しており、一軸性応力によって X_{xy}-X_z 交差が起きていることがわかる。また、交差していると思われる圧力領域あたりから発光強度が増大しはじめ、約 3 倍にまで達したのち高圧側でほぼ一定となる。この (4,4) 超格子からの発光の圧力依存性から、大気圧下における (4,4) 超格子の伝導帯下端は X_{xy} 点であり、X_z 点はそれより約 3 meV 高いエネルギー位置にあることがわかる。そして、その他の (5,4), (6,4), (7,4) 超格子は、大気圧下で X_z 点が伝導帯下端を形成していることがわかる。

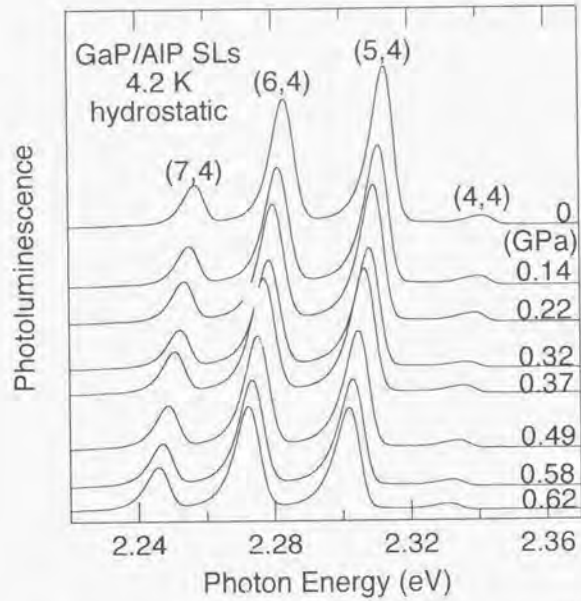


図 6.1 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの発光スペクトルの静水圧依存性。最高 0.62 GPa の静水圧を加えた、すべての超格子からの発光が、ほぼ直線的な低エネルギーシフトを示している。

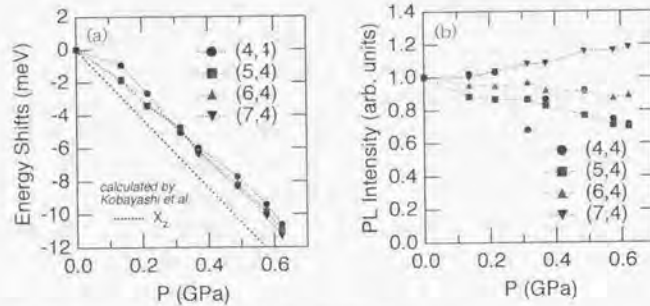


図 6.2 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の静水圧依存性。
図 6.1 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィッティングから求めた発光ピークエネルギーである。図中、点線で示した Kobayashi^[29] 等によって計算された圧力依存性と比較的一致している。

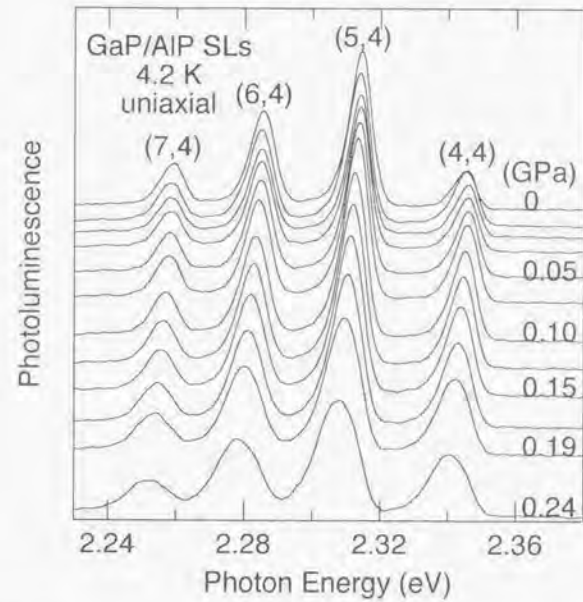


図 6.3 多重に成長させた超格子 (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) からの発光スペクトルの一軸応力依存性。ヘテロ界面に垂直に最大 0.24 GPa の一軸応力を加えた。

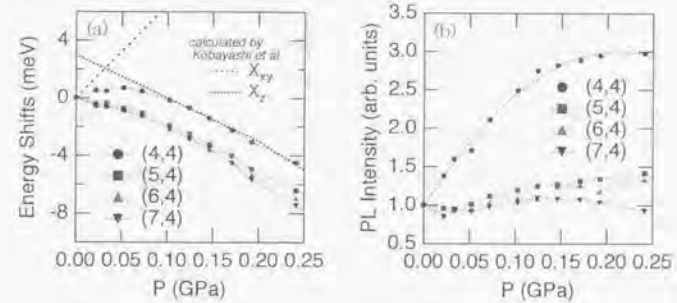


図 6.4 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸応力依存性。
(4,4) 超格子を除くすべての超格子は、ほぼ直線的な低エネルギーシフトを示し、Kobayashi^[29] 等によって計算された圧力依存性と良く一致している。それに対して、(4,4) 超格子は、エネルギーシフトの複雑な変化と発光強度の増大を示したのち、高圧側で他の超格子と同様の圧力依存性に移行している。

図 6.5 は、多重に成長させた超格子 (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) からの発光スペクトルの静水圧依存性である。また、図 6.6 に、発光ピークエネルギーと発光強度の圧力依存性を Kobayashi 等の計算結果とともに示している。(4,4) 超格子をのぞくすべての発光がほぼ直線的に低エネルギーシフトしており、圧力係数としてそれぞれ、(5,5): -19.1, (6,6): -19.8, (7,7): -21.0 meV/GPa と見積もられ、Kobayashi 等による X_2 - Γ 遷移エネルギーの圧力依存性の計算ともほぼ一致している。このことから、大気圧から約 0.63 GPa までのすべての圧力領域において、どれも X_2 点からの発光であると言える。(4,4) 超格子については、少なくとも 2 つの発光ピークからなり、圧力による交差あるいは反発らしき現象が観測された。とりあえずこの発光帯をシングルピークと見なして Gaussian 曲線でフィッティングすると、他の超格子と同じような圧力依存性 (-19.6 meV/GPa) を示している。

また図 6.7 は、この試料のヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えた結果である。(4,4) 超格子をのぞくすべての超格子からの発光は、静水圧の場合と同じく、ほぼ単調に低エネルギーシフトしており、圧力係数はそれぞれ、(5,5): -25.3, (6,6): -24.9, (7,7): -24.8 meV/GPa と見積もられた。しかし、Kobayashi 等の計算値よりも絶対値にして 20% 程度小さめの値となっている。また、(4,4) 超格子からの複数の発光ピークが、一軸性応力下において、より明瞭に交差あるいは反発する現象が観測された。これは、次章 7.1 節で詳細に解析するが、圧力による X_{xy} 点と X_2 点の準位交差、さらには、価電子帯の軽い正孔と重い正孔の準位交差が次々と起こっているためであると考えられる。その他の超格子では、このようなピークの交差や反発らしき現象は観測されていない。そして、全体的に見れば、(4,4) 超格子を含めたすべての超格子からの発光は、直線的に低エネルギーシフトしており、 X_2 点からの発光が支配的であると言える。また、発光強度については、周期によって微妙に異なる傾向を示している。

図 6.9 は、(3,3) 超格子からの発光の静水圧依存性である。もっとも高エネルギー側にあるのが、ゼロフォノン線であり、その低エネルギー側に TA, LA, TO, LO フォノンを経たフォノンサイドバンドが見られる。図 6.10 にあるように、ゼロフォノン線の発光ピークエネルギーは、ほぼ直線的に低エネルギーシフトしており、フォノンレプリカもそれに追従してシフトしている。(厳密には、格子が縮むと固有振動数は高くなるので、ゼロフォノン線とフォノンを経た発光ピークとのエネルギー差は大きくなるはずであるが、今の場合、無視できる程度である。) そして、圧力係数は、23.6 meV/GPa となり、Kobayashi 等の計算結果とさきわめて良く一致している。また、発光強度は圧力を加えても大して変わっていない。

次に、(3,3) 超格子のヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えたときの発光の圧力依存性を図 6.11 (a) に、また低圧領域での拡大図を図 6.11 (b) に示す。約 0.05 GPa までの低圧領域では、発光ピークエネルギーは直線的に高エネルギーシフトし、発光強度は若干強くなる傾向にはあるけれども、それほど変化は大きくない。ところが、さらに高圧を加えると、次第にエネルギーシフトの向きが逆転し、約 0.12 GPa よりも高圧領域では、直線的な低エネルギーシフトに変わった。また、ゼロフォノン線 (NP) の低エネルギー側に見られるフォノンサイドバンドも同様のエネルギーシフトを示した。さらに、低エネルギーシフトの様子が線形から逸れはじめるあたりから、ゼロフォノン線の発光強度が急激に増大しはじめ、高圧領域ではほぼ一定となるまでに、120 倍以上の発光強度の増大を確認した。これは、(4,4) 超格子で見られた X_{xy} - X_2 交差がより劇的にあらわれた結果である。このことから、大気圧下において (3,3) 超格子からの発光は X_{xy} - Γ 遷移によるものであり、 X_2 点は X_{xy} 点よりも約 8.7 meV だけ高エネルギー側にあることがわかった。また、 X_{xy} 点の圧力係数は 42.3 meV/GPa、 X_2 点は -55 meV/GPa と見積もられるが、この値は、Kobayashi 等の計算値とは、かなり食い違っている。

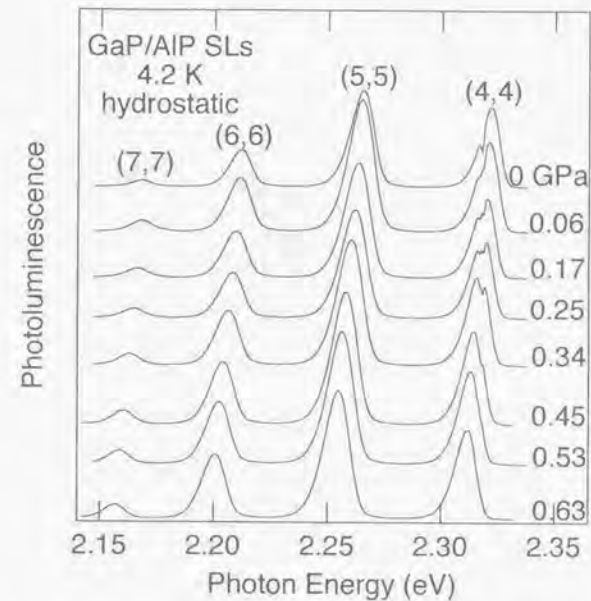


図 6.5 多重に成長させた超格子 (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) からの発光スペクトルの静水圧依存性、最高 0.63 GPa の静水圧を加えた。

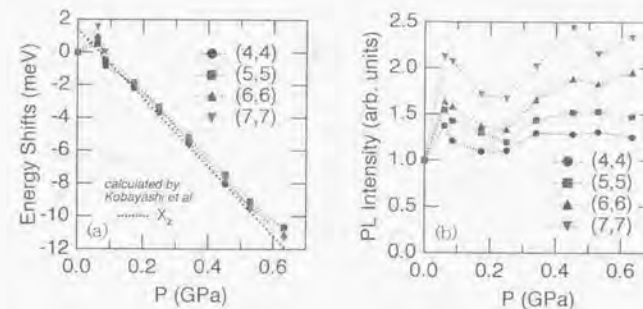


図 6.6 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の静水圧依存性。
図 6.5 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィッティングから求めた発光ピークエネルギーである。

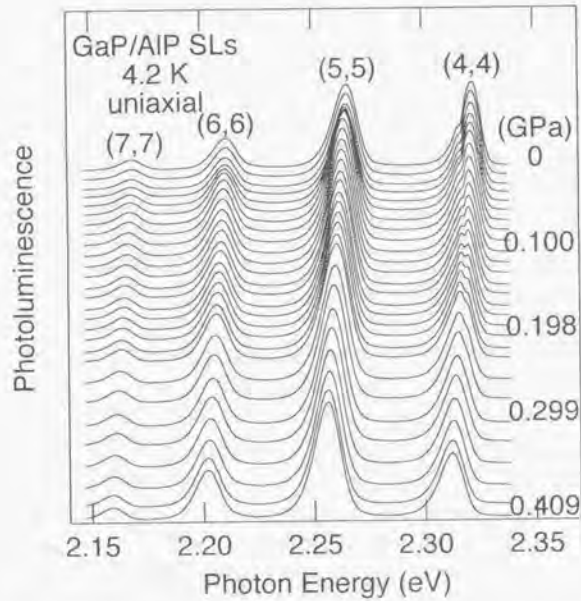


図 6.7 多重に成長させた超格子 (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) からの発光スペクトルの一軸性応力依存性。ヘテロ界面に垂直に、最高 0.409 GPa の一軸性応力を加えた。

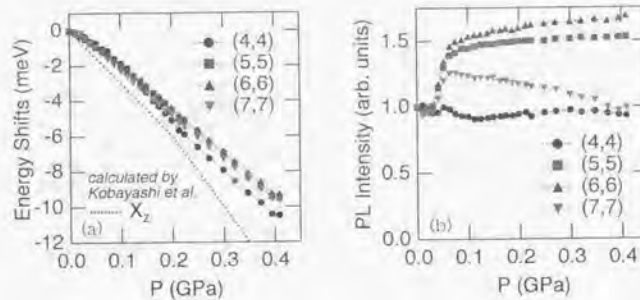


図 6.8 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸性応力依存性。
図 6.7 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィットting から求めた発光ピークエネルギーである。

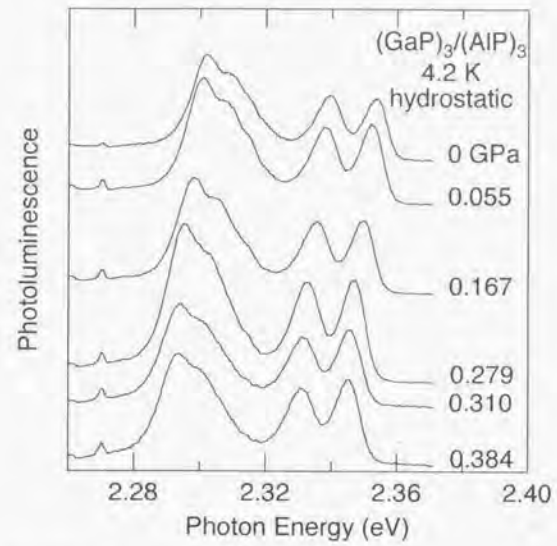


図 6.9 (3,3) 超格子からの発光スペクトルの静水圧依存性。最高 0.384 GPa の静水圧を加えた。ゼロフォノン線の低エネルギー側に複数のフォノンレプリカがあり、同様の圧力依存性を示している。

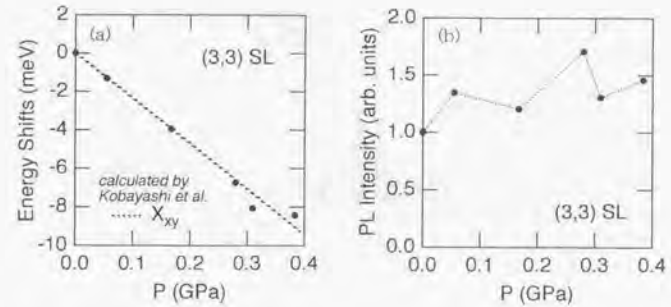


図 6.10 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の静水圧依存性。
図 6.9 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィットting から求めた発光ピークエネルギーである。

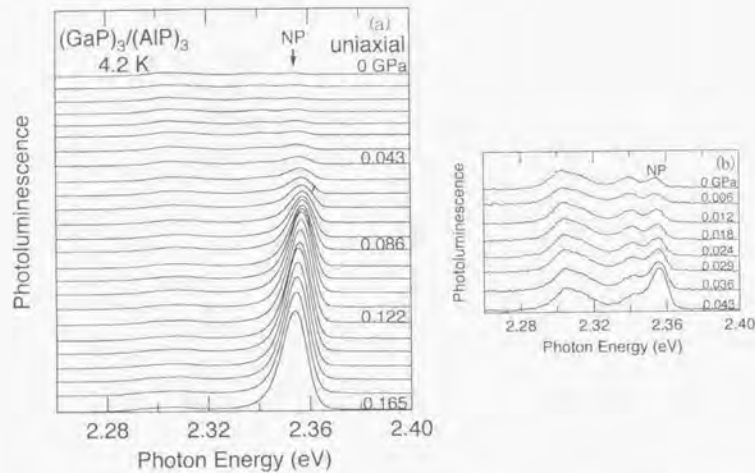


図 6.11 (a) (3,3) 超格子からの発光スペクトルの一軸性応力依存性。

ヘテロ界面に垂直に、最高 0.165 GPa の一軸性応力を加えた。(b) に低圧領域での拡大図を示す。圧力の増加とともに、ゼロフォノン線が急激に増大しながら高エネルギーシフトし、さらに高圧領域では、一軸して低エネルギーシフトを示している。また、フォノンレプリカバンドがゼロフォノン線に追いついて、エネルギーシフトしている。

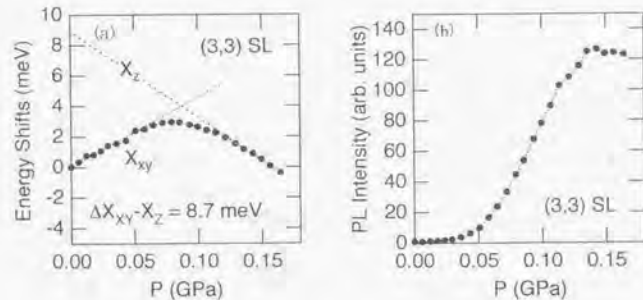


図 6.12 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸性応力依存性。

図 6.11 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。約 0.1 GPa 付近で、 X_{xy} - X_z 交差が起こり、エネルギーシフトの移り変わりと、発光強度の劇的な増大が観測された。

6.2 量子井戸

2.4 節で述べたように、光エレクトロニクスデバイスに最も広く用いられている量子井戸構造を GaP/AIP 系に導入した場合、一方のキャリアのみ局在することが予想され、発光にはきわめて不利であると考えられてきた。現にこれまで、GaP/AIP 量子井戸構造からの発光測定を報告した例は見あたらない。しかし、間接遷移型半導体の場合、結晶の質が発光効率にきわめて敏感であり、近年の結晶成長技術の進歩による試料の良質化にはめざましいものがある。また、超格子構造の電子状態の理解に、基本となる量子井戸構造を理解することはきわめて重要である。そこで、AlGaP/AIP/AlGaP 量子井戸と AlGaP/GaP/AlGaP 量子井戸の 2 種類の量子井戸構造を作製し、発光スペクトルの測定を試みた。AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸は 20 Å の AIP 層を AlGaP 層で挟んだ構造をしており、電子のみが AIP 層に局在し、正孔は AlGaP 層に広がっていると予想される。これに対して、AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸では 10 Å の GaP 層を AlGaP 層で挟んだ構造をしており、正孔のみが GaP 層に局在し、電子は AlGaP 層に広がっていると予想される (図 4.2)。これら 2 種類の量子井戸構造からの発光スペクトルの測定から、正孔のみ局在した場合と、電子のみ局在した場合とで、全く異なる発光を示すことがわかった。図 6.13 に、2 つの量子井戸からの発光スペクトルを示す。まず、驚くのは、電子のみ局在した AlGaP/AIP/AlGaP 量子井戸から予想をはるかに上回るかなり強い発光が観測されたことである。これは、実に 50 周期の (4,4) 超格子に匹敵する強さである。また、ゼロフォノン線の低エネルギー側に (3,3) 超格子でも見られた TA, LA, TO, LO フォノンを経た発光であるフォノンレプリカバンドが観測された。それに対して、正孔

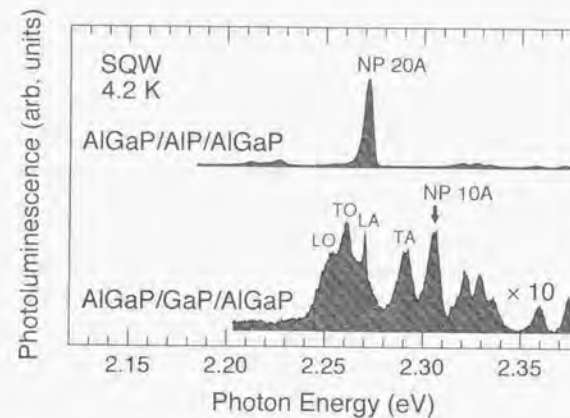


図 6.13 AlGaP/AIP/AlGaP 単一量子井戸と AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸からの発光スペクトル。電子のみ局在した AlGaP/AIP/AlGaP 量子井戸からは強いゼロフォノン線が観測され、正孔のみ局在した AlGaP/GaP/AlGaP 量子井戸からは弱いゼロフォノン線と、その低エネルギー側に同程度の強度を持つフォノンレプリカバンドが観測された。

のみ局在した AlGaP/GaP/AlGaP 量子井戸では、発光が非常に弱く、ゼロフォノン線の低エネルギー側に同じくフォノンレプリカバンドが観測された。また、ゼロフォノン線の高エネルギー側のいくつかの発光ピークは、AlGaP/AIP/AlGaP 量子井戸でも観測されており、量子井戸構造以外からの発光であると思われる。そこで、これらの量子井戸のバンド端の電子状態を調べるために、一軸性応力下における発光スペクトルの測定を行った。

電子のみ AIP 層に局在した AlGaP/AIP/AlGaP 量子井戸の、界面に垂直に一軸性応力を加えたときの発光スペクトルの圧力依存性を図 6.14 に示す。また、図 6.15 に、発光ピークエネルギーと発光強度の圧力依存性を示している。圧力の増加とともに、発光ピークエネルギーは低エネルギーシフトを示し、この発光が、 X_2-T 遷移によるものであることがわかる。そして、0.2 GPa 付近を境に、新たな圧力係数をもつ状態に移行している様子が観測された。また、発光強度は圧力の増加とともに、次第に減少する傾向を示した。

次に、正孔のみ GaP 層に局在した AlGaP/GaP/AlGaP 量子井戸の、界面に垂直に一軸性応力依存性を加えたときの発光スペクトルの圧力依存性を図 6.16、図 6.17 に示す。この試料の一軸性応力依存性は (3,3) 超格子の場合と比べてよく似ており、低圧領域では、発光ピークエネルギーは高エネルギーシフトを示すが、約 0.1 GPa を越えたあたりから、低エネルギーシフトへ転じている。また、エネルギーシフトの変化にあわせるように、発光強度が増大しはじめ、約 0.4 GPa において大気圧下の約 40 倍にまで達した。この現象も、(3,3) 超格子と同じく、圧力による $X_{xy}-X_z$ 交差が原因であると考えられる。

6.3 隣接閉じこめ構造

隣接した AIP 層 (10 Å) と GaP 層 (10 Å) を両側から AlGaP 障壁層でサンドイッチすることにより、電子が AIP 層に、正孔が GaP 層にそれぞれ局在している。隣接閉じこめ構造からの発光スペクトルの静水圧依存性を図 6.18 に、また、発光ピークエネルギーと発光強度の圧力依存性を図 6.19 に示す。圧力を加えるにつれて、NCS からの発光ピークが単調に低エネルギーシフトし、発光強度が次第に減少している。圧力係数は、超格子の場合と、たいして変わっていない。また低エネルギー側にみられるフォノンサイドバンドもゼロフォノン線と同じような圧力依存性を示している。

次に、この試料のヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えたときの発光スペクトルの測定結果を図 6.20 に、発光ピークエネルギーと発光強度の圧力依存性を図 6.21 に示す。発光ピークエネルギーは、ほぼ直線的に低エネルギーシフトしており、発光強度にも大きな変化は見られない。これは、(3,3) 超格子、(4,4) 超格子を除く他の超格子とよく似ている。このことから、隣接閉じこめ構造からの発光は、 X_2-T 遷移によるものであることがわかる。

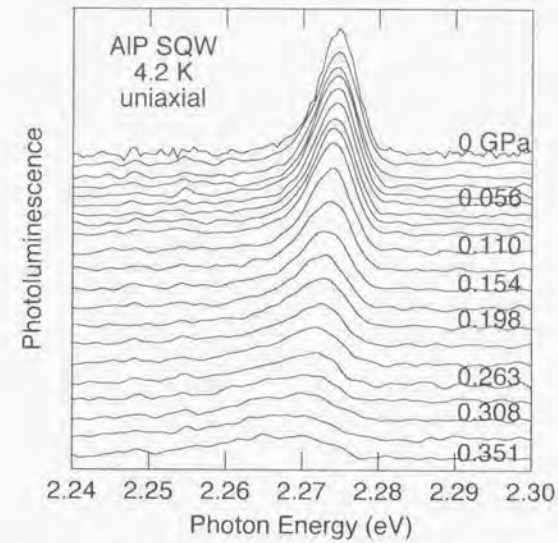


図 6.14 20 Å の AIP 層を AlGaP 層で挟んだ AlGaP/AIP/AlGaP 単一量子井戸からの発光スペクトルの一軸性応力依存性。

ヘテロ界面に垂直に、最高 0.35 GPa の一軸性応力を加えた。

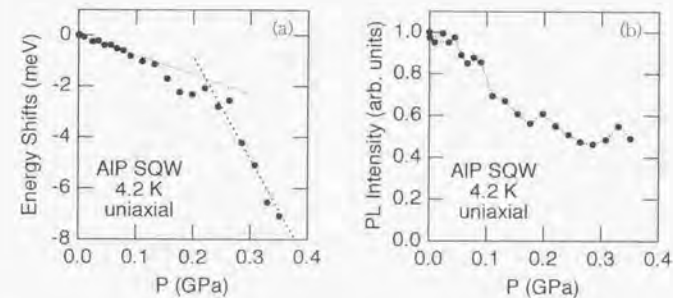


図 6.15 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸性応力依存性。

図 6.14 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィッティングから求めた発光ピークエネルギーである。圧力の増加とともに、低エネルギーシフトを示し、約 0.2 GPa から圧力依存性が変化している。また、発光強度は減少傾向である。

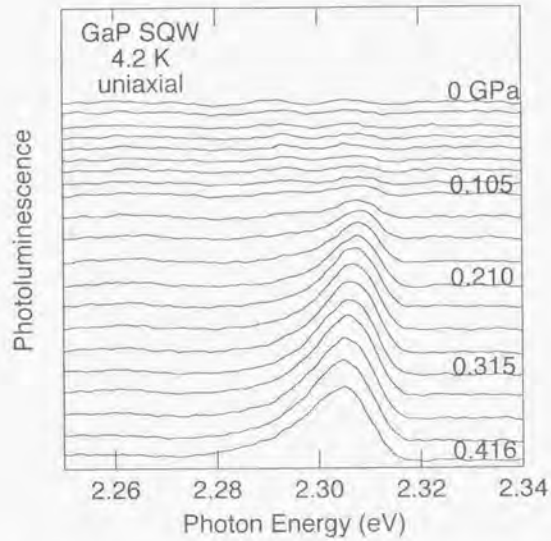


図 6.16 10 Å の GaP 層を AlGaP 層で挟んだ AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸からの発光スペクトルの一軸性応力依存性。ヘテロ界面に垂直に、最高 0.416 GPa の一軸性応力を加えた。

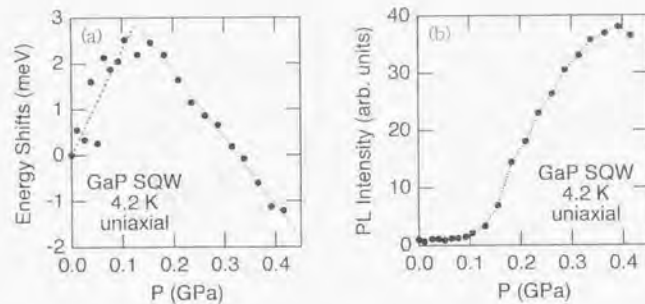


図 6.17 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸性応力依存性。図 6.16 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。約 0.1 GPa までは高エネルギーシフトをしているが、それより高圧側では一転して負のエネルギーシフトに変わった。さらに、圧力依存性の変化にあわせて、急激に発光強度が増大している。

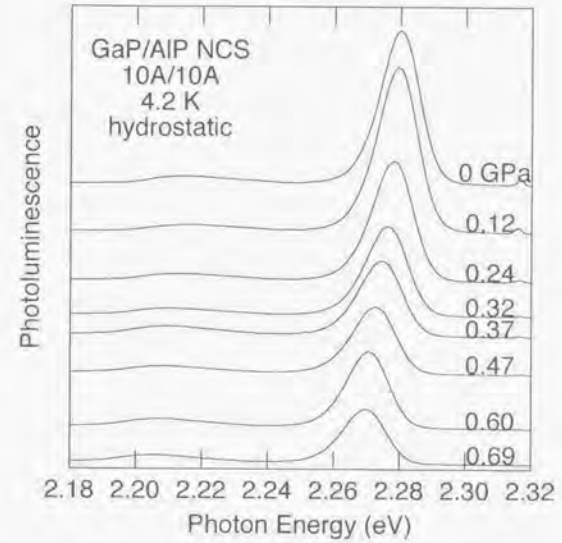


図 6.18 GaP 層と AIP 層ともに 10 Å の隣接閉じこめ構造からの発光スペクトルの静水圧依存性。最高 0.69 GPa の静水圧を加えた。

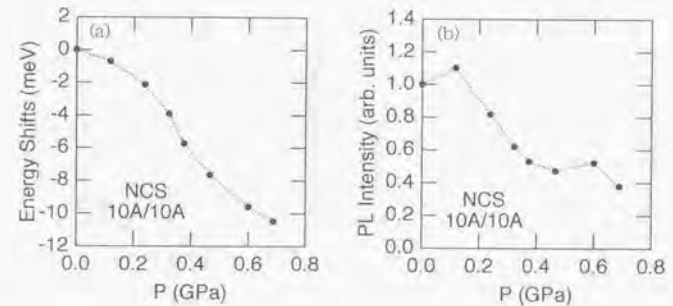


図 6.19 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の静水圧依存性。図 6.20 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。圧力の増加とともに、発光強度が次第に減少している。また、ほぼ単調な低エネルギーシフトを示している。

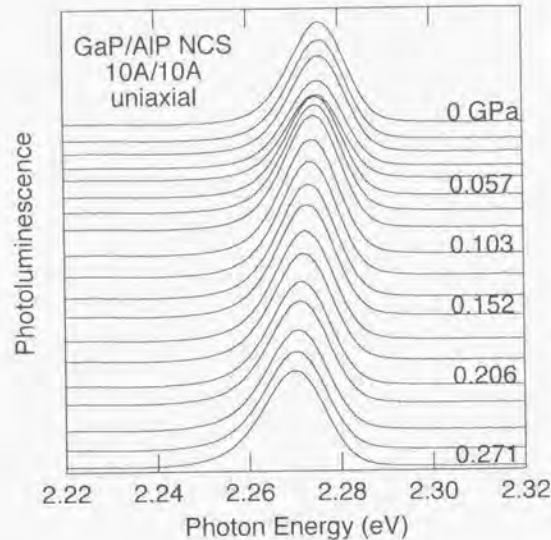


図 6.20 GaP 層と AIP 層ともに 10 Å の隣接閉じこめ構造からの発光スペクトル一軸性応力依存性。ヘテロ界面に垂直に最高 0.271 GPa の一軸性応力を加えた。

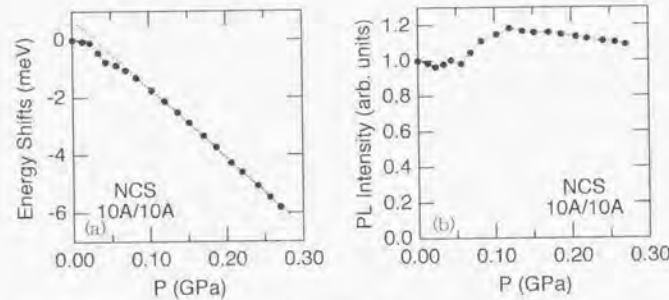


図 6.21 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸性応力依存性。

図 6.20 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィッティングから求めた発光ピークエネルギーである。圧力の増加とともに、直線的な低エネルギーシフトを示しているが、発光強度は大きく変わっていない。

6.4 考察

6.4.1 GaAs/Al_xGa_{1-x}As 短周期超格子

超格子構造における準位交差については、GaAs/Al_xGa_{1-x}As 系超格子の Γ-X 交差によるタイプ I-タイプ II 転移が有名であり、これまで数々の研究がなされている^{[110][111]}。なかでも、Γ 点と X 点の圧力係数(静水圧)の違いを利用した静水圧下での圧力誘起タイプ I-タイプ II 転移や、サイクロトロン質量の違いを利用した磁場誘起タイプ I-タイプ II 転移^{[71][112][113]}、さらには、磁場と圧力を同時に加えたときの磁場・圧力誘起タイプ I-タイプ II 転移の観測^[68]等、興味深い物理を展開している。しかしながら、タイプ II 状態にある GaAs/Al_xGa_{1-x}As 系超格子においても、伝導帯最下端が X_z 点と X_{xy} 点のどちらなのかという問題は、理論と実験の両面において、未だ十分には理解されていない。理論的には、GaAs/AlAs タイプ II 系では、AlAs 層の厚みが 60 Å 以上であれば X_{xy} 点が伝導帯下端になっているという予想がある。これは、GaAs と AlAs のわずかな格子不整合(格子定数 / GaAs : 5.6533 Å, AlAs : 5.661 Å)によって、AlAs 層に 2 軸性の圧縮応力が加わり、X_z 点のエネルギーが X_{xy} 点よりも高くなったためと解釈されている。また、Finkman 等は、層数の等しい GaAs/AlAs 超格子について発光の時間分解測定を行い、乱れによって許容となったゾーン端間接遷移型励起子に特徴的な非指数関数的な発光減衰曲線から、各層厚が 18-60 Å の超格子については伝導帯下端は X_{xy} 点であると結論している^[27]。しかし、この解釈については、Minami 等^[14]が、超格子構造では Γ 点に折り返された X_z 点からの発光も同様の発光減衰曲線に従うことを示しており、発光の時間分解測定から伝導帯下端を同定するのは難しい。また、Ge 等^[15]は、短周期構造において GaAs 層が薄く、界面に垂直な方向の有効質量の比較的軽い X_{xy} サブバンドが大きなミニバンド分散を持つ場合に、X_{xy} 点が伝導帯下端になるとして、GaAs/AlAs (n,n) 超格子において、1 ≤ n < 3 の場合であると報告している。実験的には、Γ-X 遷移強度が非常に小さいということ、それから、X_z 点と X_{xy} 点の静水圧依存性が大きく変わらないこと、X 点のサイクロトロン質量が重く、反磁性シフト等の磁場効果を測定するためには、非常に強い磁場が必要だということ等の事情が、この問題の検証を困難にしている。磁場効果については、励起子の有効質量から予想される反磁性シフトに比べて、実際には、かなり小さなエネルギーシフトしか示さない、あるいは低エネルギーシフトするものさえあり、通常の解析はできない^[71]。これも、本研究で取り上げているタイプ II 半導体ヘテロ構造における励起子局在と磁場によるキャリア局在の影響ではないかと予想している。この X 点の問題には、一軸性応力下の発光スペクトル測定がきわめて有効であり、いくつかのグループから報告されている。そこで、GaP/AIP 系で試みた手法と、その解釈の試金石として、さらに、よく研究されている物質と比較することによって、より理解を深めるために、GaAs/Al_xGa_{1-x}As 系超格子からの発光の一軸性応力依存性を測定し、電子状態の特定を試みた。測定に用いた試料は、前章と同様、NTT 基礎研究所堀越グループにより、MBE 法で作製された^[71]。

図 6.22 は、価電子帯の頂上と伝導帯の底が GaAs 層の Γ 点にあるタイプ I 超格子 GaAs/AlGaAs (3,3) からの励起子発光の、ヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えた場合の圧力依存性である。低圧側で、圧力の増加とともに発光強度がいったん増加し、約 0.15 GPa を超えたあたりで減少に転じた。また、ごく低圧側で高エネルギーシフトを示したが、次第に半値幅を広げながらエネルギーを下げ、新たなエネルギー

シフトへ移行していく様子が観測された。これは、重い正孔と軽い正孔のレベル交差にともなうミキシングの過程が観測されているのかもしれない。いずれにしても、エネルギーシフトは Γ 点の正の圧力係数を反映していると考えられる。

図 6.24 は、タイプ II 超格子である GaAs/AlAs (6.6) 超格子からの発光の一軸性応力下での測定結果である。また、図 6.25 に発光ピークエネルギーと発光強度の一軸性応力依存性を示している。約 0.02 GPa までの極めて低圧力領域で発光強度が大きくなり、高エネルギー側へシフトしている。さらに、圧力を加えると、一転して直線的に低エネルギーシフトし、約 0.2 GPa あたりから、さらに異なる傾きを持つ直線的な低エネルギーシフトへ移行した。この周期は、Finkman 等^[27]の伝導帯下端の予測からも予想されるように、 X_z と X_{xy} のエネルギー差が非常に僅かであり、ごく低圧力領域で $X_{xy}-X_z$ 交差が起こり、さらに、約 0.2 GPa 付近で、価電子帯の重い正孔と軽い正孔の単位交差により折れ曲がりが生じていると考えられる。しかし、 $X_{xy}-X_z$ 交差によると思われる発光強度の増大はわずかであり、大気圧における発光は $X_z-\Gamma$ 遷移からの寄与が支配的であると思われる。

また、図 6.26 は同じくタイプ II 超格子である、GaAs/AlAs (6.25) 超格子からの発光の一軸性応力下での測定結果である。ゼロフォノン線の低エネルギー側にある LO フォノン放出に伴うフォノンレプリカがもっとも強度が強いこと、さらに、ゼロフォノン線に追従して変化することが予想されることから、このフォノンレプリカについて解析し、発光ピークエネルギーと発光強度の一軸性応力依存性を示したものが図 6.27 である。ゼロフォノン線もほぼ同様な変化を示していると考えられる。この試料では、約 0.1 GPa までの低圧力領域では、直線的に高エネルギーシフトするが、それよりも高圧力側では、一転して、低エネルギーシフトに変わった。また、ピークシフトの変化に伴い、20 倍を大きく上回る発光強度の増大を観測した。これは、圧力による $X_{xy}-X_z$ 交差であり、大気圧下における伝導帯下端は X_{xy} 点であることがわかる。そして、発光ピークエネルギーの圧力依存性から、 $X_{xy}-X_z$ エネルギー差は、約 3 meV と見積もることができる。

まとめると、一軸性応力下における発光スペクトルの測定により、GaAs/AlGaAs (3.3) 超格子は、伝導帯下端 Γ 点の正の圧力係数を反映した結果が得られた。また、GaAs/AlAs (6.6) 超格子は、伝導帯下端が近接した X_{xy} 点と X_z 点からなり、発光は $X_z-\Gamma$ 遷移が支配的であることがわかった。また、(6.25) 超格子は大気圧下での伝導帯下端は X_{xy} 点であるが、圧力によって $X_{xy}-X_z$ 交差が起こり、ゾーンの電子状態を反映した、発光ピークエネルギーと発光強度の明らかな変化が確認された。また、発光ピークエネルギーの圧力依存性から、大気圧下において、 $X_{xy}-X_z$ エネルギー差は、約 3 meV であることがわかった。このように、既によく研究された GaAs/Al_xGa_{1-x}As 短周期超格子において、これまで明らかになっている(あるいは議論されている)電子状態の性質が一軸性応力下での発光測定に反映され、現象をほぼ説明できることが確認できた。

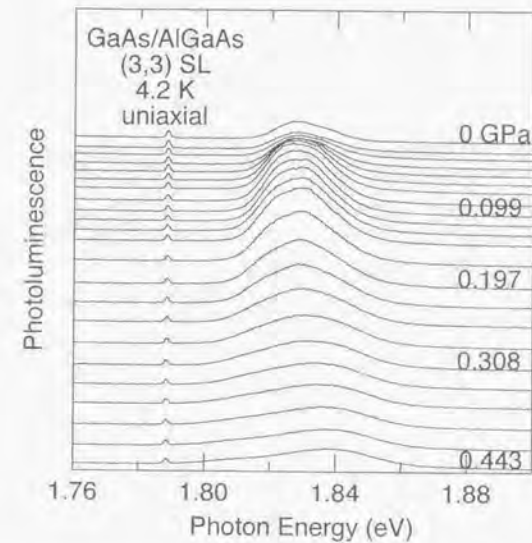


図 6.22 GaAs/AlGaAs (3.3) 超格子からの励起子発光の一軸性応力依存性。ヘテロ界面に垂直に最高 0.443 GPa の一軸性応力を加えた。

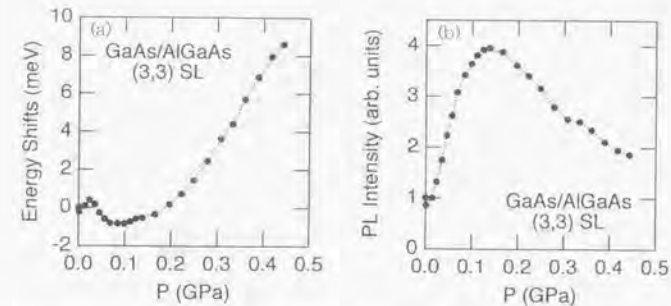


図 6.23 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸性応力依存性。

図 6.22 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。圧力の増加とともに、発光強度がいったん増加したのち減少し、レベル交差を思わせる複雑なエネルギーシフトを示している。

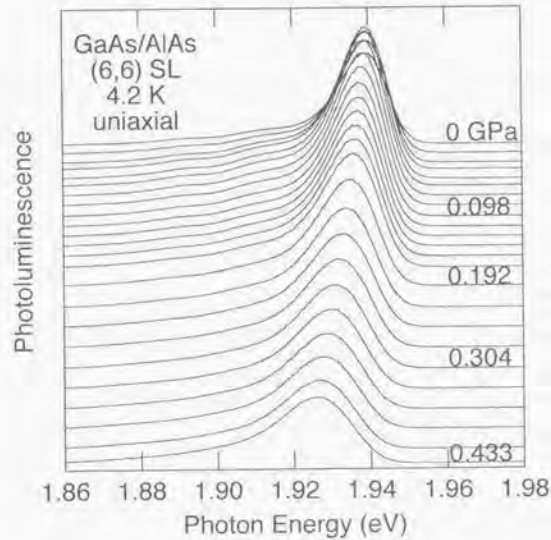


図 6.24 GaAs/AlAs (6,6) 超格子からの励起子発光の一軸性応力依存性。ヘテロ界面に垂直に最高 0.433 GPa の一軸性応力を加えた。

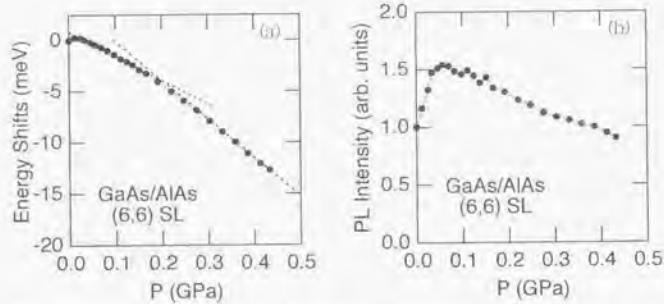


図 6.25 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸性応力依存性。図 6.24 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。圧力の増加とともに、発光強度がいったん増加したのち減少し、レベル交差を思わせる複雑なエネルギーシフトを示している。

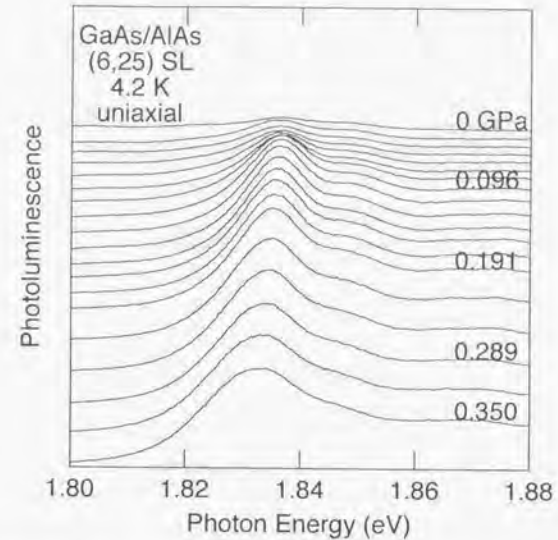


図 6.26 GaAs/AlAs (6,25) 超格子の励起子発光の一軸性応力依存性。ヘテロ界面に垂直に最高 0.350 GPa の一軸性応力を加えた。

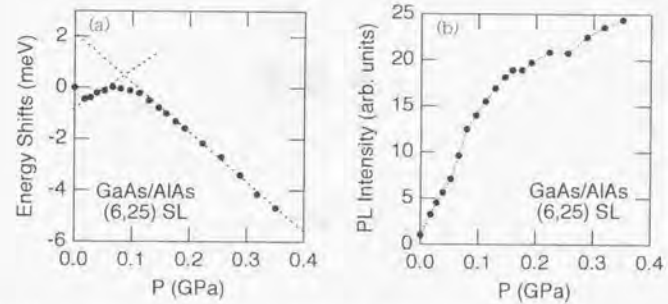


図 6.27 (a) 発光ピークエネルギーと (b) 発光強度の一軸性応力依存性。図 6.26 の各圧力での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。圧力の増加とともに、発光強度が急激に増加している。また、圧力による X_{xy} - X_z 交差を示すエネルギーシフトの折れ曲がりを観測した。

6.4.2 $X_{xy}-X_z$ 交差

GaP/AIP 系ヘテロ構造からの発光の圧力依存性から、(3,3) 超格子, AlGaP/GaP/AlGaP 量子井戸の伝導帯下端は X_{xy} 点であり、(4,4) 超格子ではそれらのエネルギーが拮抗し、それよりも長周期の超格子、AlGaP/AIP/AlGaP 量子井戸、及び隣接閉じこめ構造では伝導帯下端は X_z 点であることが明らかになった。そして、大気圧下で伝導帯下端が X_{xy} 点となっている試料に、ヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えると、 X 点電子の波動関数の異方性を反映して、ある圧力で $X_{xy}-X_z$ 交差が起こり、急激な発光強度の増大と、発光ピークシフトの変化をもたらすことがわかった。

このことから、それぞれのヘテロ構造におけるバンド端の様子を描いてみると、(3,3) 超格子では、図 6.28 のように、大気圧下では伝導帯下端が X_{xy} 点であり、一軸性応力を加えることによって、ある圧力で $X_{xy}-X_z$ 交差が起こる。 X_{xy} 点が X_z 点よりも低いエネルギーをもつ原因は、Ge 等が GaAs/AlAs (n,n) 超格子において報告しているのと同様に、 X_{xy} 点の大きなミニバンド分散によると思われる^[115]。また (4,4) 超格子では、それらのエネルギーが拮抗し、大気圧下においては、両方の発光成分が含まれていると考えられる。この点については、前章の磁場依存性において、すでに複数のピークが異なる振る舞いをしていくことが明らかになっており (図 5.2, 図 5.6)、 $X_z-\Gamma$ 遷移と $X_{xy}-\Gamma$ 遷移の両方が観測されていたためだと考えられ、この点については次章 7.1 節で詳しく調べることにする。(4.4) よりもさらに長周期の超格子では、もともと伝導帯下端は X_z 点であり、一軸性応力を加えたとしても、 X_z 点の圧力係数が負なのに対して、 X_{xy} 点の圧力係数が正であるから、単位交差は起こらない。そのために、発光ピークは単調に低エネルギーシフトし、発光強度に際立った変化はないと考えられる。バンド計算^{[28][29]}によれば、層数の等しい (n,n) 超格子について、n が 3 以上のときに、準直接遷移型に変換するとの予測がなされて

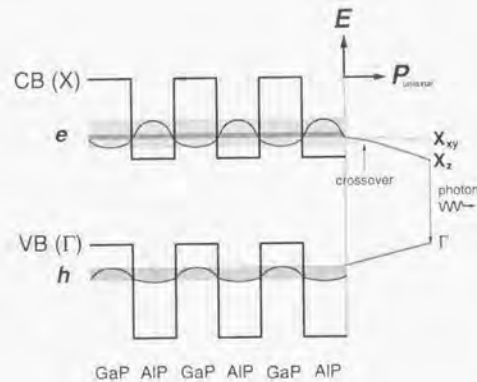


図 6.28 GaP/AIP (3,3) 超格子及び (4,4) 超格子のバンド構造。
大気圧下では伝導帯下端が X_{xy} 点であり、一軸性応力を加えることによって、 $X_{xy}-X_z$ 交差が起こり、圧力依存性の変化と発光強度の増大が起こる。それに対して、(4,4) よりも長周期の超格子では、もともと伝導帯下端は X_z 点であり、圧力による単位交差は起こらない。

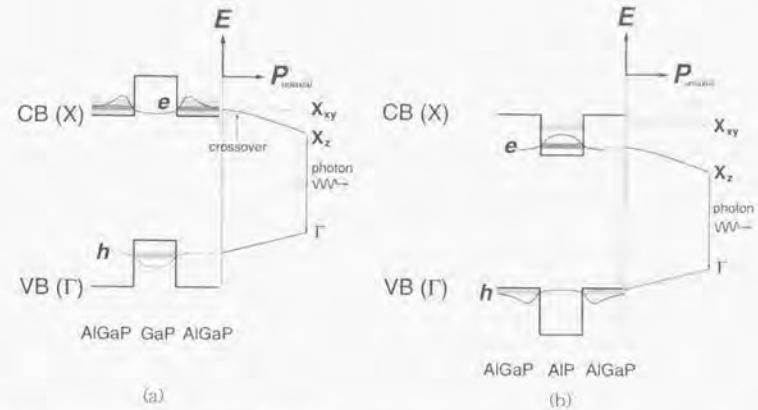


図 6.29 (a) AlGaP/GaP/AlGaP 単一量子井戸と、(b) AlGaP/AIP/AlGaP 単一量子井戸のバンド構造。
正孔のみ局在した量子井戸では、クーロン相互作用によって電子が界面付近に弱く局在しており、大気圧下では伝導帯下端は X_{xy} 点であり、一軸性応力によって $X_{xy}-X_z$ 交差が起こり、発光強度が増大する。それに対して、電子のみ局在した量子井戸では、伝導帯下端は X_z 点であり、圧力による単位交差は起こらない。

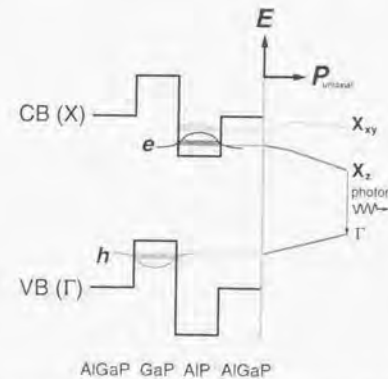


図 6.30 AlGaP/GaP/AIP/AlGaP 隣接閉じこめ構造のバンド構造。
 X 点電子に対する強い閉じこめ効果のために、伝導帯下端が X_z 点になっており、圧力による単位交差は起こらない。

いるが、現実には $n=4$ あたりに遷移型の境界がありそうである。

また、図 6.29 に AlGaP/GaP/AlGaP 量子井戸と AlGaP/AIP/AlGaP 量子井戸の予想されるバンド構造を示す。AlGaP/GaP/AlGaP 量子井戸構造では、バンド端電子は GaP 層に広がっている。完全に 3 次元的であれば、両単位は縮退しているが、電子・正孔のクーロン相互作用により、電子の波動関数が界面付近に強く局在していると考えられる。しかしながら、 X_z 点電子に対する閉じこめ効果はほとんどなく、 X_{xy} 点が X_z 点よりも下になっていることが予想される。そのため、一軸性応力によって (4,4) 超格子と同じく $X_{xy}-X_z$ 交差が起こったのではないかと考えられる。それに対して、AlGaP/AIP/AlGaP 量子井戸構造では、バンド端電子が量子井戸ポテンシャルによって AIP 層に閉じこめられ、その結果、 X_z 点が X_{xy} 点よりも下にある。そのために圧力による単位交差は起こらない。

隣接閉じこめ構造でも、AlGaP/AIP/AlGaP 単一量子井戸構造と同様に X_z 点電子に対する強い閉じこめ効果のために、伝導帯下端が X_z 点になっていると予想され (図 6.30)、圧力による単位交差は起こらず、観測された発光の圧力依存性を説明することができる。

6.4.3 準直接遷移

準直接遷移型への変換の可能性については、理論的予測として、層数が等しい GaP/AIP (n, n) 超格子の場合、Kumagai 等^[57] は n が 5 以上の奇数のときに準直接遷移型に、また Shibata 等^[28]、Kobayashi 等^[29] は n が 3 以上のときに準直接遷移型に変換すると計算結果を出している。さらに準直接遷移型への変換を実験的に評価した例として、Asami 等^[59] による ER (エレクトロリフレクタンス) 測定があり、(3,3) 超格子および (5,5) 超格子からの明瞭な ER 信号が観測されたことから、両者が直接遷移型に変換していると結論しているが、信号強度が通常の直接遷移型に比べてかなり小さく、問題を残す形となっている。また、発光寿命の測定も行われており^[60]、(11,3) 超格子および (9,5) 超格子からの発光が、約 2 ns と 20 ns という 2 種類の寿命をもつ成分からなることから、部分的に準直接遷移型が実現しているとの報告を行っているが、たとえば、GaAs/AlAs 超格子からの発光の場合、直接遷移と間接遷移とでは発光寿命が 3 桁程度違っており、間接遷移型で通常 μs オーダーであることから、この実験も決定的とは言えない。

本研究では、周期の異なるいくつかの超格子からの発光の一軸性応力依存性を測定し、GaP/AIP (4,4) 超格子を境界として、それよりも長周期では伝導帯下端が X_z 点、短周期では X_{xy} 点になっていることを明らかにした。このことから、界面の揺らぎを無視し、結晶性を問題にしなければ、たとえば、(6,4) 超格子は、間・直変換が実現し、準直接遷移型になっているはずである。それに対して、(5,4) 超格子は X_z 点が伝導帯下端になっているものの、GaP 層と AIP 層の層数の和が奇数であるから、 Γ 点に折り返されず、依然としてゾーン端を形成している間接遷移型のはずである。しかしながら、両者の大気圧下での発光強度を比べてみても、(実際には、励起光の侵入強度が違うので、僅かながら発光の再吸収が起こるので、厳密に比べることはできない。) (6,4) 超格子が際だって発光が強いということはなさそうである。それに、(4,4) 超格子において、 $X_z-\Gamma$ 遷移による発光と $X_{xy}-\Gamma$ 遷移による発光の両方が観測され、圧力誘起 $X_{xy}-X_z$ 交差の前後で、ゆるやかなエネルギーシフトを示している。このことは、ブリュアンゾーンの折り返し効果よりも、界面の揺らぎに伴う励起子局在効果が、発光に支配的であることを示唆している。このことを裏付けるような Lazzouni 等^[116] による 2 バンド強結合モデルの計算があり、

GaP/AIP 超格子のブリュアンゾーンの折り返し効果によってできた準直接エネルギーギャップの光学遷移強度は、折り返される前のエネルギーギャップの遷移強度に対して、1% にも満たないとの報告をしている。

6.4.4 励起子局在

それでは、 $X_{xy}-X_z$ 交差が起こると、どうして発光が強くなるのであろうか。それは、第一に、AIP 層の X_z 点電子が X_{xy} 点電子よりも有効質量が大きいため、より強く界面付近に局在しており、GaP 層の Γ 点正孔との重なり積分が大きくなること、第二に、界面付近のポテンシャル揺動による k 選択則の破れ

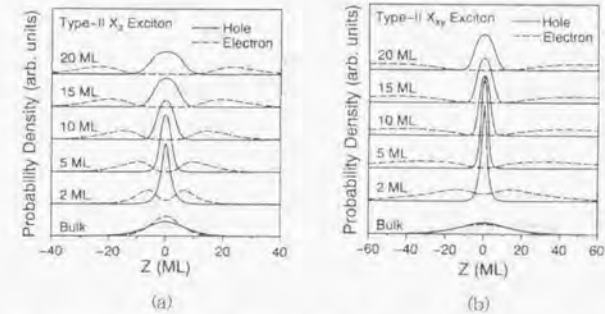


図 6.31 AlAs/GaAs/AlAs 単一量子井戸 (タイプ II) 中励起子の電子・正孔の確率分布の井戸幅依存性^[117]。

(a) が $X_z-\Gamma$ 励起子、(b) が $X_{xy}-\Gamma$ 励起子の場合についての計算結果である。

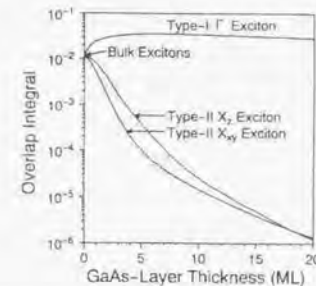


図 6.32 タイプ I $\Gamma-\Gamma$ 、タイプ II $X_z-\Gamma$ およびタイプ II $X_{xy}-\Gamma$ 励起子の電子・正孔の重なり積分^[117]。短周期の場合、 $X_z-\Gamma$ 励起子における電子・正孔の重なり積分の方が、 $X_{xy}-\Gamma$ 励起子よりも一桁近く大きい。

によって禁制遷移が許容されるといふこと、この2つの相乗効果によって、 $X_2-\Gamma$ 遷移による発光が $X_{xy}-\Gamma$ 遷移による発光よりも強くなるのではないかと考えられる。図6.31は、Pino等^[117]がGaAs/AlAsタイプII量子井戸中における励起子について、GaAs層の厚みを変えたときの、電子と正孔の分布の様子を計算したもので、 X_2 点電子の方が界面付近に強く局在していることを示している。また、電子と正孔の重なり積分を、タイプI励起子の場合も含めて計算した結果が図6.32に示してある。井戸層の厚みが数原子層の場合、 X_2 点電子の方が X_{xy} 点電子よりも一桁近く、重なり積分が大きいたことがわかる。

これまでに、隣接閉じこめ構造から、超格子構造を遙かに凌ぐ強い発光が観測され、電子のみがAIP層に局在し、正孔はAlGaP層に広がっていると予想されたAlGaP/AIP/AlGaP単一量子井戸構造からも、超格子構造に匹敵する強い発光を示すことがわかった。また、前章で、GaP/AIPヘテロ構造からの発光が、界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動により、界面付近に束縛された励起子によること、そして、ヘテロ界面に垂直に磁場を加えた場合に起きる特異な磁場依存性が、束縛励起子状態にある電子と正孔がそれぞれのエネルギー極小点に局在する、キャリア局在によって説明できることを示した。さらに、本章での圧力依存性の結果から、多くの超格子において伝導帯の底がブリュアンゾーンの折り返し効果により Γ 点に折り返された X_2 点であること、しかしながら折り返しの条件を満たす超格子構造の発光がとりわけ強いとは言えないこと、さらに、(4,4)超格子において、 $X_2-\Gamma$ 遷移と $X_{xy}-\Gamma$ 遷移の両方が観測されていることなどがわかった。これらのことから、GaP/AIPヘテロ構造では、電子・正孔のクーロン相互作用により、ヘテロ界面に局在励起子状態が形成され、ヘテロ界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動による k 選択則の破れが、本来禁制である電子・正孔の再結合を促しているものと考えられ、タイプIIヘテロ構造特有のメカニズムであると言える。付け加えるとすれば、GaP/AIPヘテロ構造におけるAIP正孔の有効質量が、GaAs/AlAsヘテロ構造におけるGaAs正孔よりもかなり重いことが、GaP/AIP系局在励起子状態の形成に影響していることも考えられる。

第7章

磁場と圧力の効果

7.1 超格子バンド端の電子状態

7.2 磁場と圧力の効果

7.3 考察

7.3.1 重い正孔と軽い正孔の準位交差

7.3.2 $X_2-\Gamma$ 発光と $X_{xy}-\Gamma$ 発光

第5章で、GaP/AIPヘテロ構造からの発光の特異な磁場依存性（急激な発光強度の減少と低エネルギーシフト）が、ヘテロ界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動により界面付近に束縛されていた励起子が、磁場によって電子と正孔のそれぞれのエネルギー極小点に局在する、キャリア局在によることを示した。また第6章では、発光の圧力依存性によりバンド端の電子状態を突きとめ、圧力によって $X_{xy}-X_2$ 交差に起因する急激な発光強度の増大が起こること、さらには強い発光の起源が準直接遷移型への変換ではなく、ヘテロ界面付近での励起子局在によることを確認した。そこで本章では、近接する X_2 、 X_{xy} 状態が伝導帯下端を形成している超格子構造に焦点を絞り、これまでに得られた磁場と圧力の両依存性から導かれるバンド端の電子状態についての詳細な解析と、パルス強磁場・高圧・低温という環境を同時に加えた多重環境下での発光スペクトルの測定結果を示し、価電子帯上端の正孔状態及び、 $X_2-\Gamma$ 発光と $X_{xy}-\Gamma$ 発光の磁場依存性の違いについて解析する。

7.1 超格子バンド端の電子状態

ひとつの基板上に周期的異なる超格子を4種類、連続して成長させた試料（順に(7,4)、(6,4)、(5,4)、(4,4)と(7,7)、(6,6)、(5,5)、(4,4)）と(3,3)超格子からの磁気発光スペクトルにおいて、(3,3)超格子を

除くすべての超格子からの発光が、ヘテロ界面に垂直に磁場を加えると、発光強度が急激に減少し、大きく低エネルギーシフトすることがわかった。そして、周期の異なる超格子を多重に成長させた2つの試料の(4,4)超格子からの発光スペクトルがどちらも、その他の超格子からの発光とは形状が異なり、少なくともエネルギーの異なる2つのピークで構成されていること、そして、それらが、異なる磁場依存性を示すために、磁場によるスペクトル形状の変化が起こり、複雑な振る舞いを示していることがわかった。また、ヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えたときの発光の圧力依存性から、GaP/AIP (m,n) 短周期超格子において、伝導帯下端を構成するAIP層 X_z 点と X_{xy} 点のエネルギーが、(4,4)超格子では拮抗し、それよりも短周期の(3,3)超格子では伝導帯下端は X_{xy} 点であり、長周期の(5,4)、(6,4)、(7,4)あるいは(5,5)、(6,6)、(7,7)では X_z 点であることが明らかになった。そして、大気圧下で伝導帯下端が完全な X_{xy} 点となっている試料に、ヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えると、 X 点電子の波動関数の異方性を反映して、圧力誘起 $X_{xy} \rightarrow X_z$ 交差が起こり、急激な発光強度の増大と、発光ピークシフトの変化をもたらすことがわかった。そこで、(4,4)超格子からの発光に焦点を当て、磁場依存性と圧力依存性の観測結果を、あらためて、解析し直すことにする。図7.1は6.1節で示した、多重に成長させた超格子(7,4)、(6,4)、(5,4)、(4,4)からの発光スペクトルの一軸性応力依存性(図6.3)について、(4,4)超格子からの発光スペクトルを拡大したものである。大気圧下における伝導帯下端は X_{xy} 点であり、 X_z 点はそれより僅か3 meV程

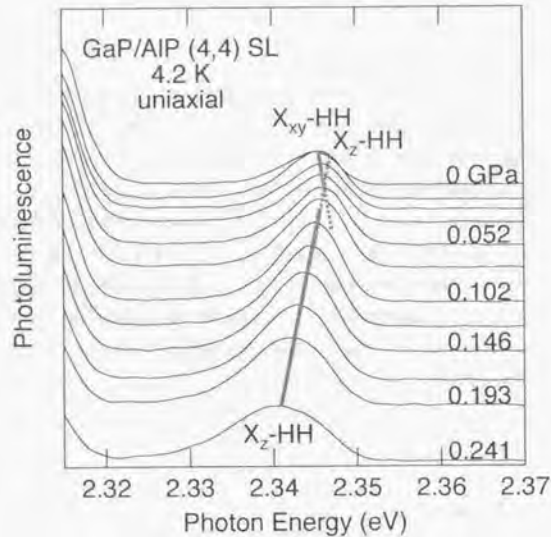


図7.1 GaP/AIP (4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。
大気圧下での発光には、 X_{xy} - Γ 遷移成分と X_z - Γ 遷移成分の両方が含まれ、一軸性応力により $X_{xy} \rightarrow X_z$ 交差が起きている(図6.3の拡大図)。

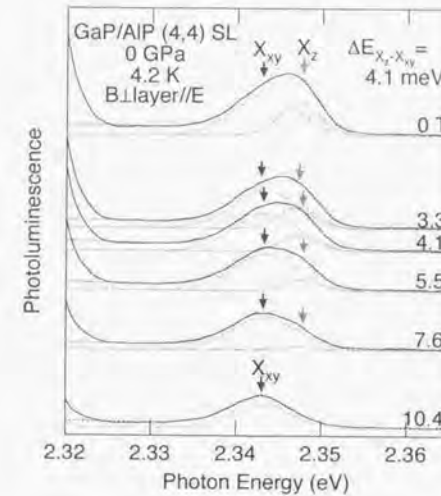


図7.2 GaP/AIP (4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。
0 Tにおいて、約4 meVのピークエネルギー差のある2つの Gaussian でフィッティングでき、高エネルギー側を X_z - Γ 発光、低エネルギー側を X_{xy} - Γ 発光と同一化した。

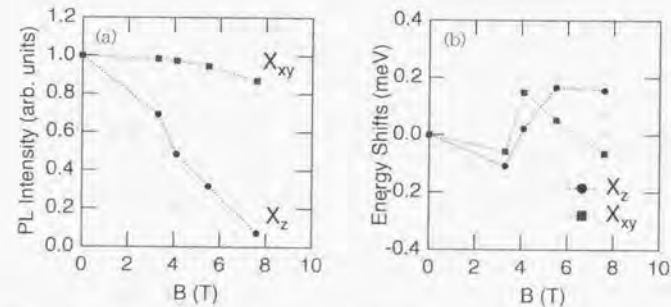


図7.3 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図7.2の各磁場での発光スペクトルを2つの Gaussian でフィッティングして求めたそれぞれの積分強度とピークエネルギーである。磁場を加えると X_z - Γ 発光成分は急激に発光強度が減少していくのに対して、 X_{xy} - Γ 発光成分はそれほど変化していない。

度、高いエネルギー位置にある。そして、約 0.05 GPa までの圧力領域では、発光ピークは高エネルギーシフトを示すが、それより高圧側では、一転して低エネルギーシフトになり、他の超格子と同じような圧力依存性を示すようになる。高圧力側での依存性は、Kobayashi 等によって計算された X_{xy} - Γ 遷移エネルギーの圧力依存性と非常によく一致しており、一軸性応力によって X_{xy} - X_z 交差が起きていることがわかる。そして、交差に伴い、発光強度が増大しはじめ、約3倍にまで達したのち、高圧側ではほぼ一定となる。

この (4,4) 超格子のヘテロ界面に垂直に磁場を加えた結果が図 7.2 であり、5.1 節で示した磁場依存性(図 5.2)の弱磁場領域での拡大図である。まず、0 T における発光スペクトルは、約 4 meV のピークエネルギー差のある 2 つの Gaussian 曲線でフィッティングでき、一軸性応力依存性から低エネルギー側が X_{xy} - Γ 発光、高エネルギー側が X_z - Γ 発光であると結論した。さらに、磁場を加えたときの発光スペクトルについても、同様のフィッティングを行った結果、磁場の上昇につれて、 X_z - Γ 発光成分は急激に発光強度が減少していくのに対して、 X_{xy} - Γ 発光成分は次第に減少するもの、 X_z - Γ 発光に比べるとその割合がかなり小さいことがわかった。これは、伝導帯下端が X_{xy} 点である (3,3) 超格子からの発光だけが、磁場に対して、ほとんど変化しなかったことと一致する(図 5.11)。

図 7.4 は、同じく 6.1 節で示した、多重に成長させた超格子 (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) からの発光スペクトルの一軸性応力依存性(図 6.7)について、(4,4) 超格子からの発光スペクトル部分を拡大したものである。大気圧下における伝導帯下端は X_{xy} 点であり、 X_z 点はそれより約 6 meV、高いエネルギー位置

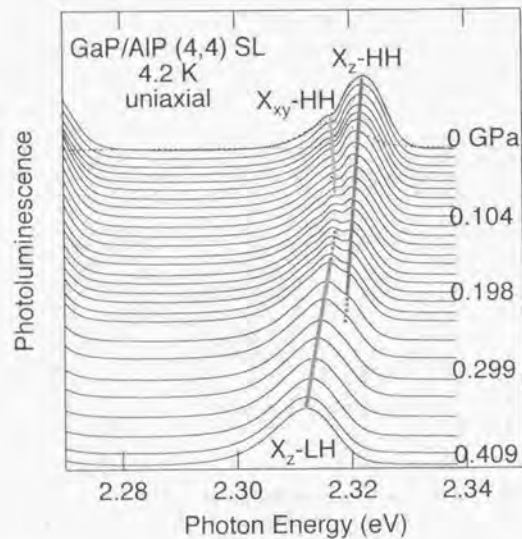


図 7.4 GaP/AIP (4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。
大気圧下での発光には、高エネルギー側の X_z - Γ 遷移成分と低エネルギー側の X_{xy} - Γ 遷移成分の両方が含まれ、高圧を加えるにつれて、価電子帯の軽い正孔状態が現れる(図 6.7 の拡大図)。

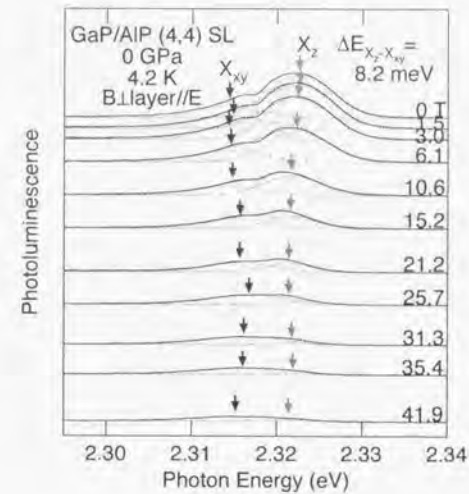


図 7.5 GaP/AIP (4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。
0 T において、約 8 meV のピークエネルギー差のある 2 つの Gaussian でフィッティングでき、高エネルギー側を X_z - Γ 発光、低エネルギー側を X_{xy} - Γ 発光と同定した。

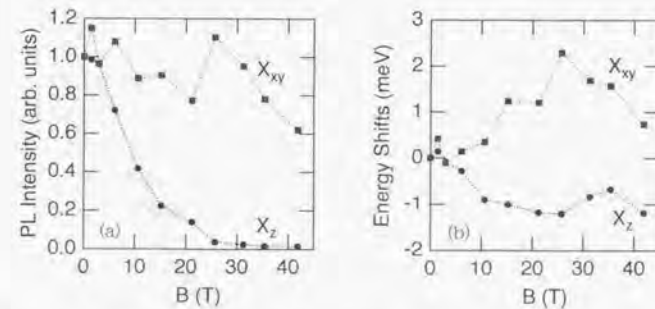


図 7.6 発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図 7.5 の各磁場での発光スペクトルを 2 つの Gaussian でフィッティングして求めたそれぞれの積分強度とピークエネルギーである。この超格子でも、磁場を加えると X_z - Γ 発光成分は急激に発光強度が減少していくのに対して、 X_{xy} - Γ 発光成分はそれほど変化していないことがわかる。

にある。そして、約 0.1 GPa までの圧力領域では、低エネルギー側 X_{xy} 点からの発光ピークは高エネルギーシフトを示すが、高エネルギー側 X_z 点は逆に、低エネルギーシフトを示し、約 0.1 GPa で X_{xy} - X_z 交差を起こし、その後 X_{xy} 点からの発光は消失する。さらに圧力を加えると、価電子帯の重い正孔 (HH) と軽い正孔 (LH) の混合状態を伴うレベル公差により、 X_z - Γ 発光が 2 つに分裂し、 X_z - Γ (LH) 発光が支配的となる。一軸性応力による HH と LH の単位公差は、Kobayashi 等によって計算された圧力依存性にも現れており、そこでは、約 0.5 GPa とこの場合よりも若干高い圧力で起こることが予想されている。

この (4,4) 超格子のヘテロ界面に垂直に磁場を加えた結果が図 7.5 であり、5.1 節で示した磁場依存性 (図 5.6) の弱磁場領域での拡大図である。また、発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を図 7.60 T における発光スペクトルは、約 8 meV のピークエネルギー差のある 2 つの Gaussian 曲線でフィッティングでき、一軸性応力依存性から低エネルギー側が X_{xy} - Γ 発光、高エネルギー側が X_z - Γ 発光と特定できる。これらの発光スペクトルに磁場を加えると、磁場の上昇につれて、 X_z - Γ 発光成分は急激に発光強度が減少していくのに対して、 X_{xy} - Γ 発光成分は次第に減少するものの、 X_z - Γ 発光に比べると減少の割合がかなり小さいという、先ほどと同様の傾向を示すことがわかった。

7.2 磁場と圧力の効果

次に、パルス強磁場、高圧、低温という環境を同時に加えた多重環境下での発光スペクトルの測定結果を示す。図 7.7 は、多重に成長させた超格子 (7,4)、(6,4)、(5,4)、(4,4) の静水圧下 (0.76 GPa) における磁気発光スペクトルである。励起発光の静水圧依存性を反映して、0 T でのすべての超格子からの発光ピークが、大気圧に比べて、約 10 meV ほど低エネルギー側にシフトしている。また、(5,4) 超格子からの発光と (6,4) 超格子からの発光の強度比が逆転している。この静水圧下で、さらに界面に垂直に磁場を加えると、大気圧下で観測されたのとやや異なる発光強度の減少と、発光ピークエネルギーの低エネルギーシフトを観測した。図 7.8 に発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を示している。大気圧下に比べて、僅かながら発光強度の減少の割合が小さくなっており、 X_{xy} - Γ 発光成分が増えているのではないかと考えられる。また、(4,4) 超格子については、発光強度の減少と発光ピークの低エネルギーシフトの変化から、この効果が顕著に働いており、 X_z - Γ 発光成分が磁場によって急激に減少するのに対して、 X_{xy} - Γ 発光成分はそれほど変化しないために、他の超格子からの発光と異なり、複雑なエネルギーシフトをしているのではないかと考えられる。

図 7.9 に、0.3 GPa の一軸性応力を加えたときの、発光スペクトルの磁場依存性の測定結果を示す。圧力依存性の測定から、この圧力領域では、各超格子からの発光は、 X_z - Γ 遷移によるものである。(4,4) 超格子における単調なエネルギーシフトは、大気圧下では X_{xy} - Γ 発光成分と X_z - Γ 発光成分が共存していたのが、一軸性応力によって、 X_z - Γ 発光成分のみの単一ピークになったことを示している。(図 7.10)

この試料にさらに強い一軸性応力を加えたときの、発光スペクトルの磁場依存性の測定結果を図 7.11 に示す。圧力は 0.5 GPa であり、価電子帯上端が、重い正孔状態から軽い正孔状態に完全に移行変わったと考えられる圧力領域である。発光ピークエネルギーは同様の単調な低エネルギーシフトであるが、発

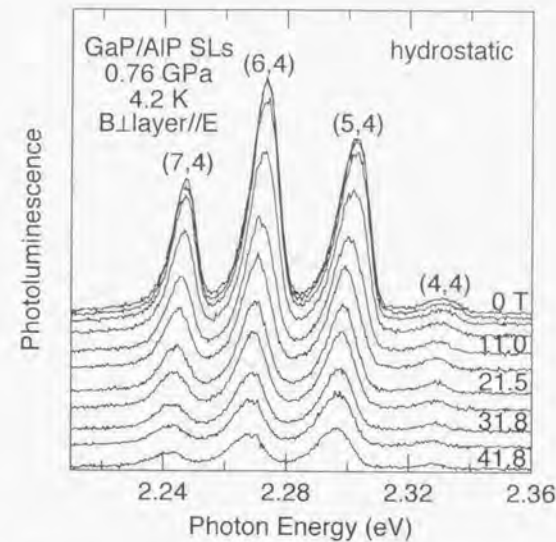


図 7.7 静水圧下における GaP/AlP (7,4)、(6,4)、(5,4)、(4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。0.76 GPa の静水圧下で、ヘテロ界面に垂直に最大 41.8 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

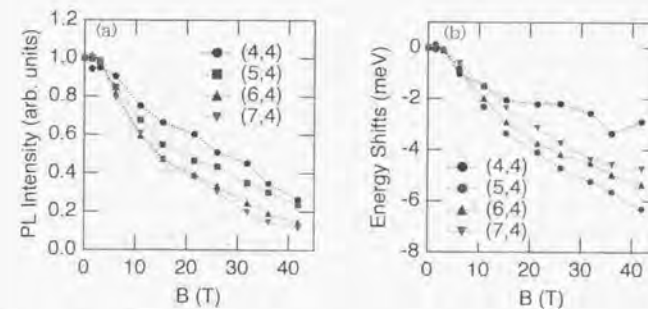


図 7.8 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。

図 7.7 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィッティングから求めた発光ピークエネルギーである。磁場による発光強度の減少の割合が大気圧下と比べ僅かながら小さくなっている。

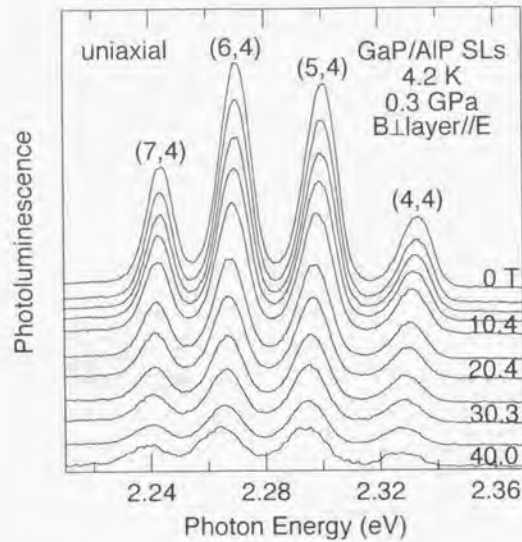


図 7.9 一軸性応力下における GaP/AIP (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。
0.3 GPa の一軸性応力下で、ヘテロ界面に垂直に最大 40.0 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

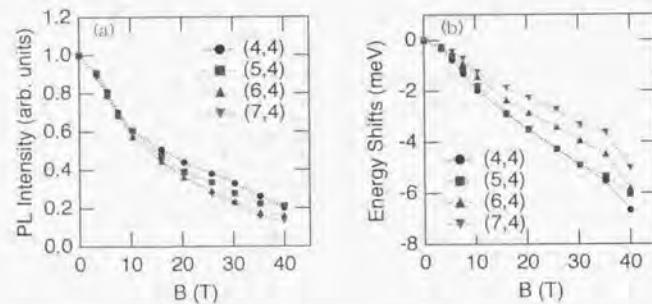


図 7.10 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図 7.9 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。(4,4) 超格子からの発光の磁場依存性が他の超格子と似たような振る舞いに変わっている。

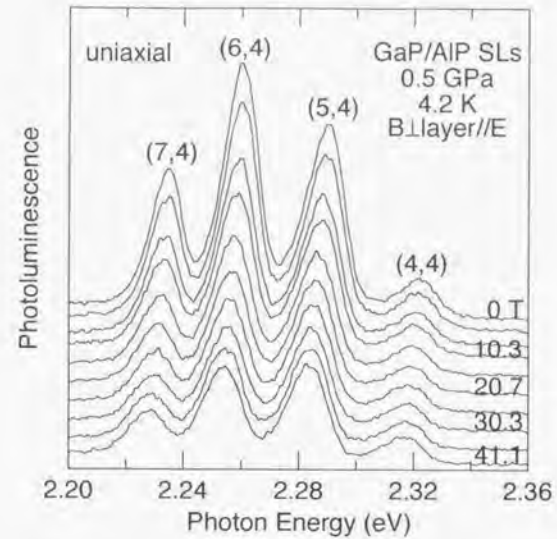


図 7.11 一軸性応力下における GaP/AIP (7,4), (6,4), (5,4), (4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。
0.5 GPa の一軸性応力下で、ヘテロ界面に垂直に最大 41.1 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

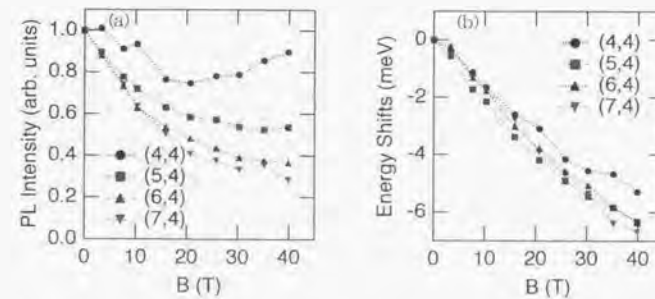


図 7.12 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図 7.11 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットングから求めた発光ピークエネルギーである。発光強度の減少傾向がかなり抑制され、(4,4) 超格子からの発光は、強磁場側でまた増大している。

光強度の減少傾向がかなり抑制され、(4,4) 超格子では磁場により約 20% 減少したのち、より強磁場側で、また強度が増大する傾向が見られる。(図 7.12) これは、特異な磁場依存性が価電子帯上端の電子状態にきわめて敏感であることを示している。

また図 7.13 に、GaP 層と AlP 層の層数の等しい超格子を多重に成長させた試料の静水圧・パルス強磁場下における発光スペクトルを示す。圧力は 0.63 GPa であり、4.2 K で測定した。また、図 7.14 に発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を示している。(5,5)、(6,6) 超格子については、大気圧下(図 5.6) と似たような磁場依存性を示している。また(4,4) 超格子については、大気圧下では、 X_{xy} -Γ 発光成分と X_2 -Γ 発光成分からなり、それぞれ異なる磁場依存性を持つために、複雑な振る舞いを示していたが、静水圧下では X_2 -Γ 発光のみからなる単一ピークとなり、磁場依存性も(7,7) 超格子を除く他の超格子と大変よく似た振る舞いに変わっている。(7,7) 超格子については、大気圧下での測定において、弱磁場領域では、発光強度の減少と低エネルギーシフトを示すが、強磁場領域では一転して発光強度が増大し、高エネルギーシフトする様子が観測された。静水圧下においても、この傾向は変わらないが、発光強度の増大が抑制されている。これは、圧力によるポテンシャル歪みの影響で、自由励起子状態が準安定に存在しづらくなっていることが考えられるが、現時点ではその詳細はわからない。また強磁場領域で、(7,7) 超格子の発光帯の低エネルギー側に新たな発光帯が高エネルギーシフトしながら出現しており、これについてもよくわからない。

この試料中の(4,4) 超格子からの発光は、大気圧下において伝導帯下端は X_{xy} 点であり、 X_2 点はそれより約 6 meV 高いエネルギー位置にある。そして、約 0.1 GPa で X_{xy} - X_2 交差を起こし、その後 X_{xy} 点からの発光は消失、さらに新たなピークが出現する。この新たなピークは X_2 -LH 遷移によると予想され、 X_2 -LH 発光と X_2 -HH 発光の両方が明瞭に観測される圧力領域での磁気発光スペクトルの測定結果を図 7.15 に、発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を図 7.16 に示す。(4,4) 超格子からの 2 つの発光ピークは、異なる磁場依存性を示していることがわかる。すなわち、高エネルギー側のピーク (X_2 -HH 発光) は、磁場を加えるとともに急激に減少するのに対して、低エネルギー側のピーク (X_2 -LH 発光) は、それよりも緩やかな減少しか示さない。また、この圧力でも、(7,7) 超格子からの単一発光ピークが磁場を加えると 2 つのピークに分裂していく様子が観測されたが、静水圧下と同様に、発光強度の増大が抑制されている。

(3,3) 超格子は、大気圧下では伝導帯下端が X_{xy} 点であり、一軸性応力を加えると、 X_{xy} - X_2 交差により 120 倍を超える発光強度の増大を起こす(図 6.11)。また、大気圧下における(3,3) 超格子からの X_{xy} -Γ 発光の磁場依存性は、磁場による低エネルギーシフトを示すものの、発光強度の急激な減少は起こさない(図 5.11)。これは、 X_2 -Γ 発光である他の超格子とは全く異なる傾向であった。それでは、(3,3) 超格子に一軸性応力を加えて X_{xy} - X_2 交差を起こし、 X_2 -Γ 発光にしたときに、さらに界面に垂直に磁場を加えたら、どのような振る舞いを示すだろうか。その結果を図 7.17 に示す。約 0.1 GPa の一軸性応力をヘテロ界面に垂直に加え、さらに、圧力下で、同じくヘテロ界面に垂直に最高 42.6 T の磁場を同時に加えた。測定温度は 4.2 K である。また、図 7.18 に発光強度と発光ピークエネルギーの磁場依存性を示す。この圧力下では、磁場を加えるにつれて、発光強度が急激に減少し、発光ピークエネルギーも大きく低エネルギーシフトを示すという、他の超格子と同様の磁場依存性が観測された。このことから、GaP/AlP ヘテロ構造の示す特異な磁場依存性が、X 点の電子状態に大きく影響されることが明らかになった。

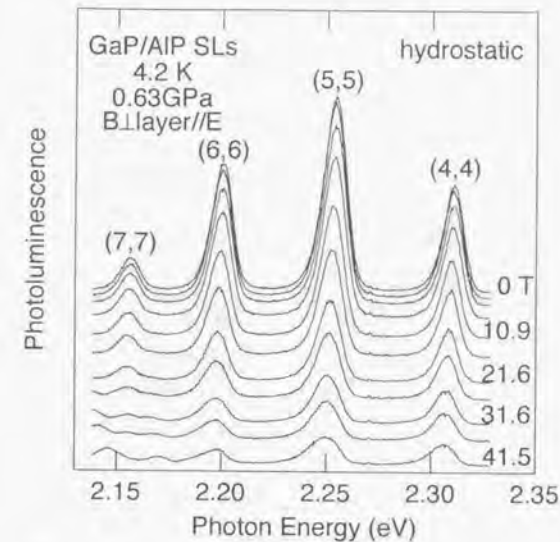


図 7.13 静水圧下における GaP/AlP (7,7)、(6,6)、(5,5)、(4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。0.63 GPa の静水圧下で、ヘテロ界面に垂直に最大 41.5 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

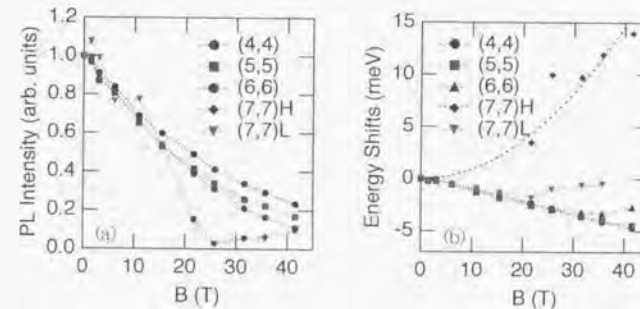


図 7.14 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。図 7.13 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィッティングから求めた発光ピークエネルギーである。磁場による発光強度の減少の割合が大気圧下と比べ僅かながら小さくなっている。

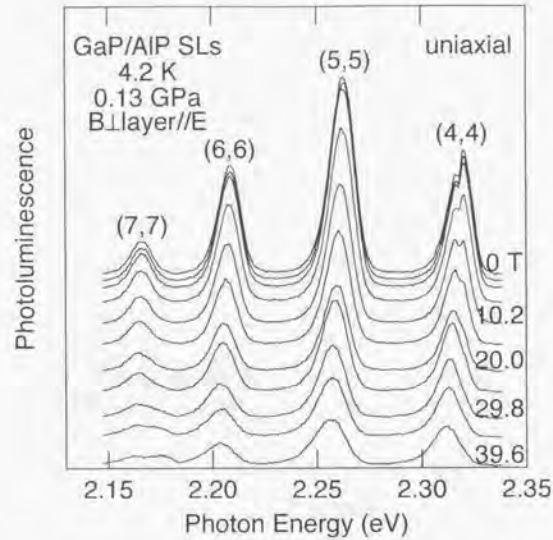


図 7.15 一軸性応力下における GaP/AIP (7,7), (6,6), (5,5), (4,4) 超格子からの磁気発光スペクトル。
0.13 GPa の一軸性応力下で、ヘテロ界面に垂直に最大 39.6 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

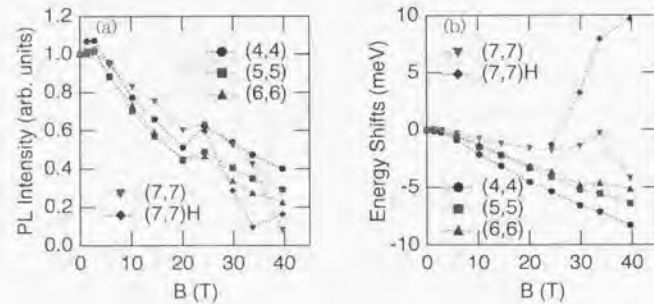


図 7.16 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図 7.15 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットティングから求めた発光ピークエネルギーである。(4,4) 超格子からの発光の磁場依存性が他の超格子と似たような振る舞いになっている。

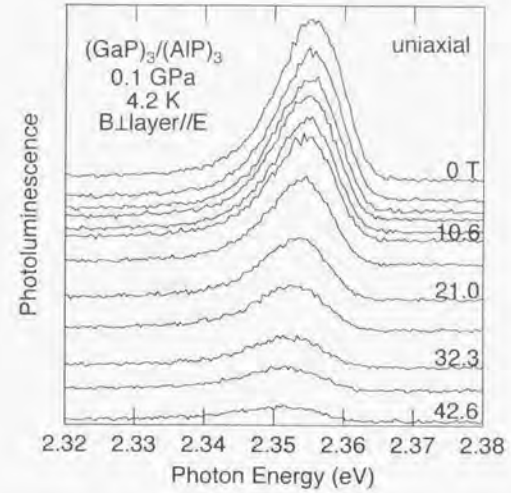


図 7.17 一軸性応力下における $(\text{GaP})_3/(\text{AIP})_3$ 超格子からの磁気発光スペクトル。
0.1 GPa の一軸性応力下で、ヘテロ界面に垂直に最大 42.6 T の強磁場を加えた (ファラデー配置)。

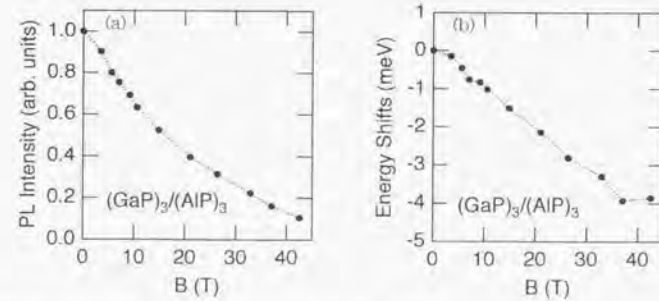


図 7.18 (a) 発光強度と (b) 発光ピークエネルギーの磁場依存性。
図 7.17 の各磁場での発光の積分強度と Gaussian フィットティングから求めた発光ピークエネルギーである。大気圧下での磁場依存性とは全く異なり、その他の超格子と同様の発光強度の減少と低エネルギーシフトを示した。

7.3 考察

7.3.1 重い正孔と軽い正孔の単位交差

多重に成長させた超格子 (7.4), (6.4), (5.4), (4.4) の磁気発光スペクトルが、ヘテロ界面に垂直な一軸性応力下 (0.5 GPa) において、磁場による発光強度の減少傾向がかなり抑制され、なかでも、(4.4) 超格子では、弱磁場領域で約 20% 減少したのち、より強磁場側で、再び強度が増大する現象が観測された。Kobayashi 等が指摘するように、この圧力領域では、価電子帯上端が、重い正孔状態から軽い正孔状態に移り変わっていることが、圧力依存性の実験からも確認されており、磁場依存性が変化した原因であると考えられる。3.1.4 節で述べたように、2 次元正孔状態は p 軌道をベースとしており、重い正孔が p_x -like, p_y -like な軌道をベース関数とするのに対して、 p_z -like な軌道をベース関数とする。このために、軽い正孔は重い正孔に比べ、面内の有効質量はむしろ重いことが知られており、圧力によって価電子帯の電子状態が重い正孔から軽い正孔に入れ替わることによって、ヘテロ界面の正孔の波動関数が大きく変化する (図 7.19)。そして、これまでの実験から、キャリア局在による特異な磁場依存性は、ヘテロ界面の揺らぎによって生じる束縛ポテンシャルの面内の大きさと、磁場を加えたときの電子および正孔のサイクロトロン半径、さらに励起子ボア半径などの大きさの相対関係に大きく依存することが予想される。ということは、正孔の波動関数の面内での大きさが小さくなると、磁場効果も相対的に小さくなるものが、容易に想像できる。このことが、価電子帯の軽い正孔状態が支配的な、高圧下での発光の磁場依存性に影響しているのではないかと考えている。

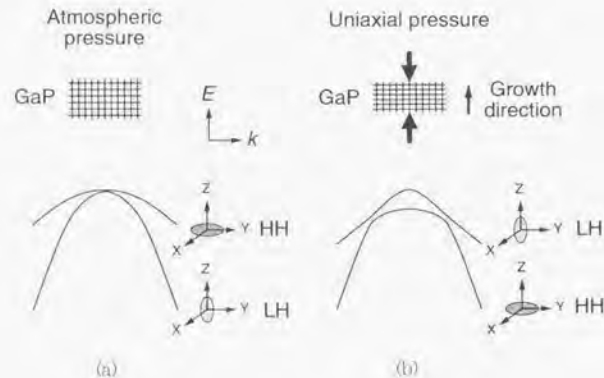


図 7.19 重い正孔 (HH) と軽い正孔 (LH) の一軸性応力による単位交差。
(a)が大気圧下、(b)が一軸性応力下での価電子帯上端付近のバンド分散を表している。一軸性応力により、価電子帯上端が重い正孔から軽い正孔に単位交差することにより、正孔の面内における波動関数が大きく変化する。

7.3.2 X_z - Γ 発光と X_{xy} - Γ 発光

ヘテロ界面に垂直に磁場を加えたときの (3.3) 超格子からの発光が、大気圧下ではほとんど変化しないのに対して、一軸性応力下では、急激な発光強度の減少と低エネルギーシフトという、その他の超格子や隣接閉じこめ構造で見られた特異な磁場依存性を再現する結果となった。また、(4.4) 超格子からの発光が X_z - Γ 遷移と X_{xy} - Γ 遷移に対応する 2 つのピークからなり、異なる磁場依存性を持っていることが明らかになった。すなわち、 X_{xy} - Γ 遷移による発光が磁場に対して余り変化しないのに対して、 X_z - Γ 遷移による発光は、ヘテロ界面に垂直に磁場を加えると、発光強度の減少と低エネルギーシフトを起こす現象が観測された。これは、 z 方向のポテンシャル構造によって閉じこめられた X_z 点電子の有効質量が X_{xy} 点電子に比べてかなり重く、波動関数が界面付近に強く局在しているために界面の揺らぎの影響を受けやすく、磁場によるキャリア局在状態になりやすいのではないかと考えられる。

しかしながら、この推論は 5.4.4 節で紹介した GaAs/AlAs タイプ II 超格子の磁気発光スペクトルの結果 (図 5.41) と矛盾している。GaAs/AlAs (6.25) 超格子は、発光の圧力依存性 (図 6.26) から、大気圧下で伝導帯下端が X_{xy} 点であることは明らかであり、 X_{xy} - Γ 遷移による発光ということが出来る。しかし、ファラデー配置における磁場依存性は GaP/AlP ヘテロ構造で観測された特異な磁場依存性とよく似ている。さらに、Haetty 等^[106] が同様な磁場依存性を報告している AlGaAs/AlAs タイプ II 多重量子井戸からの発光も、 X_{xy} - Γ 励起子によるものであると同一している。この GaP/AlP ヘテロ構造と GaAs/AlAs 系ヘテロ構造の磁場依存性の違いは、バンド端、特に伝導帯の電子状態に関係している可能性がある。すなわち、GaAs/AlAs 系タイプ II ヘテロ構造は、直接遷移型半導体である GaAs 層の Γ 点が伝導帯下端 X 点とエネルギー的に近接し (数 meV - 数 10 meV)、 Γ -X (特に X_z) 混合を起こしやすい状況にある。これに対して、GaP/AlP ヘテロ構造は間接遷移型半導体のみで構成されており、伝導帯 Γ 点は、X 点電子状態のはるか高エネルギー側 (絶対零度で、0.5 eV 程度) に位置している。(これが、GaP/AlP ヘテロ構造において、 X_{xy} - X_z 交差に伴って劇的とも言える発光強度の増大を起こす一因であると言えるかもしれない。) このために、2 つの系では、伝導帯下端の電子状態がかなり異なる状況にあることが、磁場依存性の違いを生じている原因である可能性がある。また、正孔の有効質量の違いとも関係しているかもしれない。しかしながら、この磁場依存性は、励起子ボア半径、ヘテロ界面に存在する揺らぎの程度や形状等とも関係していることが予想され、現時点で断言することはできない。

第 8 章

結論

- 8.1 タイプ II ヘテロ構造の磁場効果
- 8.2 発光の起源
- 8.3 今後の課題と展望

本研究により明らかになった事実と、その解釈について提案し、最後に今後の課題と展望を述べる。

8.1 タイプ II ヘテロ構造の磁場効果

強磁場、低温において、GaP/AIP ヘテロ構造（超格子、単一量子井戸、隣接閉じこめ構造）からの発光スペクトルの測定を行った。その結果、ヘテロ界面に垂直に磁場を加えると、発光強度が急激に減小し、発光ピークエネルギーが低エネルギーシフトを起こすことが分かった。これは、完全にクリーンなヘテロ界面を仮定しては説明できない特異な現象である。そこで、発光スペクトルの励起強度依存性および温度依存性を測定し、ヘテロ界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動に束縛された励起子からの発光であることを示した。また、自由励起子状態と予想される温度での磁気発光スペクトルを測定し、磁場依存性が温度に大きく影響されることを確かめた。このことから、界面に垂直に磁場を加えたときに起こる発光強度の急激な減少は、電子（あるいは電子と正孔）が界面の揺らぎによるポテンシャル揺動に束縛された励起子局在状態において、界面に平行な成分の電子・正孔の波動関数がサイクロトロン運動により収縮し、重なり積分が小さくなることにより、振動子強度及び再結合確率が低下するためであると考えられ、磁場誘起キャリア局在と表現できる。また、発光ピークエネルギーの低エネルギーシフトは、磁場による発光寿命の増大により、再結合する前に電子・正孔それぞれのポテンシャル極小点に落ち込みやすくなるという、励起子のダイナミクスの変化が関係していると考えられる。さらに、電子と正孔の間に障壁層を挟んだ隣

接閉じこめ構造からの発光において、界面に平行に磁場を加えた場合にも、同様の磁場依存性を確認した。このことから、お互い空間的に離れた場所に局在している電子と正孔が形成する励起子系一般に適用できる可能性がある。また、この現象は、キャリアの de Broglie 波長、励起子ボーア半径、サイクロトロン半径、界面の揺らぎの大きさ、あるいは活性化エネルギー等に敏感であることが予想される。半導体デバイスは、今後ますます微細化、集積化され、古典粒子としてのキャリアの運動から、より波動性を生かしたエレクトロニクスへと進化していくに違いない。バンドエンジニアリングを駆使した半導体ヘテロ構造デバイスはその典型であり、界面物理の理解が今後ますます重要となることは明らかである。タイプ II 半導体ヘテロ構造の磁気発光スペクトル測定が、界面の状態を知るひとつの有力な方法となるかもしれない。

8.2 発光の起源

発光スペクトルの圧力依存性から、ほぼ GaP/AIP (4,4) 超格子を境界として、それよりも長周期では伝導帯下端が X_2 点、短周期の (3,3) 超格子では X_{xy} 点になっていることを明らかにした。また、(3,3)、(4,4) 超格子において、圧力誘起 $X_{xy} - X_2$ 交差に伴う急激な発光強度の増大を観測した。これは、GaP/AIP 系ヘテロ構造の準直接遷移型への変換の必要条件（すなわち伝導帯下端が折り返された X 点であるということ）が満たされていることを確かめた最初の実験である。しかし、交差の前後で、発光ピークがゆるやかなエネルギーシフトを示しており、このことは、発光に対する準直接遷移型への変換効果がそれほど大きくないことを示唆している。また、ブリュアン帯域の折り返しが起こると予想される周期の超格子と、そうでない超格子との発光強度の違いはたいしてなく、さらに、隣接閉じこめ構造がもっとも量子効率の高い発光を示すということからも、ヘテロ界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動が選択則を乱し、本来禁制遷移である電子・正孔の再結合を促し、発光を増大させているものと考えられ、界面付近での励起子局在効果が、発光に支配的であることを示唆している。

8.3 今後の課題と展望

半導体ヘテロ構造デバイスの微細化を阻む要因の一つに材料限界がある。これは、ヘテロ構造の微細化に伴って高エネルギー化された量子単位が、材料の禁制帯幅を超えてしまうことである。これは、今後ますます高密度化される半導体エレクトロニクスデバイスの開発において、大きな問題となる。ここで、GaP/AIP 系ヘテロ構造のように、一軸性応力を加えることによって、伝導帯 X 点電子のエネルギーを下げ、逆に Γ 点障壁層のエネルギーを高くできれば、より深いポテンシャルに局在した量子状態が実現されるはずであり、歪みや外的な圧力を活かした半導体デバイスの可能性を拓くものと思われる。

さらに、GaP/AIP 系ヘテロ構造の示す強い発光が、周期構造に依らず、伝導帯下端 X 点電子の対称性と、界面付近の局在励起子状態によっていることから、単周期の量子井戸構造、ないしは、隣接閉じこめ

構造表面の極狭い領域に一軸応力を加えることによって、圧された部分のポテンシャルが低くなり、より次元性の低い量子状態を実現できる可能性がある。このことは、基板のデザインを変えることによって、量子細線、量子ドット、アンチドット等の量子構造を簡単に実現し、さらに、ポテンシャルの深さを圧力によって変え、自在に量子状態を制御できる可能性を意味している。

励起子は、スピン $S = \frac{1}{2}$ の準粒子であり、ボーズ統計に従う。そして、間接遷移型励起子の長い輻射寿命は、光（レーザー）による高密度励起状態を作りやすい。この特性を利用して、励起子の2体問題である励起子分子、あるいは励起子ボーズ凝縮等の研究がはじめられている^[118]。GaAs/AlGaAs系間接型半導体において、比較的弱励起状態でも、励起子分子が形成されているとの報告がある^[119]。また、量子井戸の界面に垂直に磁場を加えることによって、励起子凝縮が促進されるとの予測が出され^[120]。最近、AlAs/GaAs二重量子井戸構造において、GaP/AIP系と同じ間接遷移型の励起子状態が、磁場により局在性を強め、励起子ボーズ凝縮が起きているとの実験結果が報告されている^[121]。GaP/AIP系についても、より低温での発光スペクトル測定から、強磁場による励起子の凝縮状態を探索することは興味ある課題である。

謝辞

本論文をまとめるにあたり、ご支援を賜りました多くの方々に、この場をお借りし、感謝の意を表明いたします。

東京大学物性研究所の三浦登教授には、大変恵まれた環境のもとで本研究を遂行させていただきましたことを、深く感謝いたします。筆者が物性研究所に着任してから今日に至るまで、常に温かく筆者を見守り、あらゆる面で親身にご指導くださいました。また、第一線で活躍されているすぐれた研究者の方々と共同研究をおこなう機会を、幾度となく与えてくださいましたことは、身に余る光栄であり、本研究にとっても少なからぬ刺激となりました。

東京大学先端科学技術研究センターの白木靖寛教授には、本研究で用いた GaP/AIP 量子ヘテロ構造試料のすべてを快くご提供いただきました。また、本研究について貴重なご助言と温かい激励をいただきました。ここに深く感謝申し上げます。

白木研究室の一色史雄氏には、本研究で用いた GaP/AIP 量子ヘテロ構造試料のほぼすべてを作製していただきました。氏の卓越した結晶成長技術と隣接閉じこめ構造のアイデアなくしては、本研究は成り立ちませんでした。ここに、深く感謝いたします。

東京理科大学理学部の上村洸教授、小林由則博士には、本研究の初期に観測した GaP/AIP 短周期超格子からの発光の特異な磁場依存性に興味を持たれ、この系に関する数多くの計算をしていただきました。また機会あるごとに有益な討論をさせていただきました。ここに、深く感謝申し上げます。

東京大学物性研究所の長田俊人助教授には、多くの物理をご教授いただき、日々刺激的なお話をお伺いできたことは、研究生活を送るうえで、大変有益でした。また、本研究について貴重なご助言と温かい激励をいただき、感謝の念に耐えません。

千葉大学理学部の嶽山正二郎教授には、筆者が物性研究所着任当初から、パルス強磁場下における光物性測定技術のほぼすべてを教えていただきました。現在の測定技術も、その延長上にあることを表明し、今日まで、幾度と無く温かい叱咤激励をいただきましたことを、深く感謝いたします。

山梨大学理学部の渡辺勝儀助教授には、光物性全般について手ほどきいただき、実験や討論におつき合いただくなど、多くの時間を共に過ごさせていただきました。また常に筆者を温かく激励してくださいました。ここに、深く感謝いたします。

佐々木智博士には、大学院生として東京大学物性研究所三浦研究室にご在籍中、ストリーク分光測定装置の開発で、ご協力いただきました。また、氏の研究が、本論文にとって大変参考になりました。ここに、深く感謝いたします。

大阪市立大学の小松見雄教授には、物性研究所に客員教授としてご在籍された期間、共同研究に加えていただきましたことは、貴重な経験となりました。また今日に至るまで、折に触れ、多くの有益なお話をお伺いし、温かい激励をいただきました。ここに厚くお礼申し上げます。

大阪市立大学の赤井一郎博士には、本研究に関連した発光寿命の測定を快くお引き受けいただきました。ここに感謝を表明し、自らの非力のために、貴重なデータをうまく活かさないまま、今日に至っておりますことをお詫び申し上げます。

東京大学大学院工学系研究科の尾鍋研太郎教授には、本研究についてご討論いただき、貴重なご助言をいただきました。ここに厚くお礼申し上げます。

東京大学大学院工学系研究科の藤原毅夫教授には、本研究についてご討論いただき、貴重なご助言をいただきました。ここに深く感謝いたします。

東京大学物性研究所の後藤恒昭教授には、折に触れ、強磁場発生と測定技術について、貴重なアドバイスをいただき、また興味深いお話を幾度と無くお伺いしました。そして、常に温かく筆者を見守ってくださいました。ここに深く感謝申し上げます。

科学技術庁金属材料技術研究所の高増正博士には、物性研究所ご在籍中から、たくさんの貴重なお話を伺いました。また、多くのご支援をいただき、今日に至るまで、常に温かいお言葉を掛けていただけますことは、大きな励みとなっております。ここに、深く感謝いたします。

通産省工業技術院物質工学工業技術研究所の横井裕之博士には、本研究の主要な装置を用いた共同研究にご参加いただき、有益な討論をしていただきました。また、筆者が本研究内容の講演のためロスアラモス国立研究所に滞在した際は、大変お世話になりました。深く感謝いたします。

東京大学物性研究所の松田康弘博士には、本研究に関連したストリーク分光測定を、電磁濃縮法と組み合わせ、実践していただきました。磁場を用いた次世代の中心的な測定技法として、今後ますますその価値は高まると思われます。また、筆者が研究生生活を送る上で、大変お世話になっております。ここに、深く感謝いたします。

東京大学物性研究所の晴山武氏には、物性研究所ご在籍中、大先輩として、常に温かく筆者を見守り、激励してくださいました。また、電気回路の製作を常に快くお引き受けくださいました。氏の手になる回路なくして、本研究は遂行できませんでした。ここに、深く感謝申し上げます。

東京大学物性研究所の東堂栄氏には、筆者が物性研究所着任当初から、たくさんの温かい叱咤激励をいただきました。また、筆者の専門外の物理について、折に触れ、丁寧に教えてくださいました。そして、筆者が研究生生活を送る上で、幾度と無く窮地をお救いくださいました。ここに、深く感謝いたします。

国松洋博士には、大学院生として東京大学物性研究所三浦研究室にご在籍中、多くの貴重な時間を共に過ごすことができました。本研究で中心的な技術となる OMA 分光測定装置や、圧力セルの開発におけるご尽力に対して、深く感謝いたします。

安平俊伸氏には、東京大学物性研究所極限環境物性研究部門の光物性分野を担う貴重な一員として、現在も精力的にご活躍いただいております。また、筆者の思いつきを常に前向きに、精力的に実践していただいておりますことを、深く感謝するとともに、将来を期待しております。

有本英生氏をはじめとする東京大学物性研究所極限環境物性研究部門三浦研究室の学生の方々、三田村裕幸博士、光田暁弘博士、Mikhail Bartashevich 博士をはじめとする後藤研究室の職員、学生の方々、斎藤志郎氏をはじめとする長田研究室の学生の方々には、筆者の研究生生活、日常生活において、大変お世話

になりました。特に、本論文をまとめるにあたり、滞りがちであった筆者の仕事を、多くの方がフォローしてくださいましたことをお詫びし、深く感謝いたします。

Humboldt 大学の Michael von Ortenberg 教授には、パルス強磁場発生及び測定技術について、折に触れ、有益なアドバイスをいただきました。また、筆者が同大学で共同研究する機会を与えていただき、貴重な経験となりました。ここに深く感謝申し上げます。

Surrey 大学の Robin K. Hayden 博士には、特別研究員として東京大学物性研究所にご在籍中、共同研究する機会を得、多くの有益な討論ができました。また筆者の英語を幾度と無くチェックしていただきましたことを、深く感謝いたします。

Leuven Katholieke 大学の Fritz Herlach 教授、東北大学金属材料研究所の本河光博教授、Nottingham 大学の Laurence Eaves 教授、Oxford 大学の Robin J. Nicholas 教授、東京大学先端科学技術研究センターの荒川泰彦教授、Lecce 大学の Robert Cingolanti 教授、筑波大学の黒田 眞司博士、日本原子力研究所の児島一聡博士、Nottingham 大学の Mohamed Henini 博士など、数多くの方々との共同研究は、筆者にとって貴重な経験となりました。ここに感謝の意を表します。

筆者が物性研究所に着任当初、強磁場物性研究部門の秘書をしておられた佐々木紀子氏には、懇切丁寧にたくさんの事務的な事柄を教えていただきました。また、多くの方々にご紹介いただき、まい思い出となりました。ここに、深く感謝いたします。

松岡久美子氏には極限環境物性研究部門の秘書として、筆者の研究生生活、日常生活を快適に過ごすうえで、大変お世話になりました。筆者の思いつきによる書類整理など、予期せぬ仕事にも常に快くおつきあいいただき、また本論文執筆を、折に触れ激励していただきました。ここに、深く感謝いたします。

現在、極限環境物性研究部門の秘書をしておられる寺山浩子氏には、柏への移転業務という大変なお仕事の傍ら、筆者の無理なお願いを、幾度と無く、快くお聞きくださり、大変助けられました。また本論文執筆を激励していただきました。ここに、深く感謝いたします。

磁場発生装置、光学測定装置、その他大型周辺装置等を駆使した本研究を遂行するにあたり、科学技術庁金属材料技術研究所の木戸義勇博士をはじめとする強磁場物性部門の OB の方々から、有形無形の恩恵を賜っておりますことを、ここに深く感謝いたします。

㈱小宮商店の安達政廣氏には、筆者の研究に必要な資材の調達と、しばしば筆者の思いつきのために、設計変更や仕様変更を余儀なくされた注文に、常に親身に応じてくださいました。本研究を円滑に遂行するうえで、大変お世話になりました。ここに、深く感謝いたします。

㈱コスモテックの深水光秀氏には、圧力セルの開発にあたり、材料や設計のご相談に幾度と無く応じていただき、大変お世話になりました。ここに、深く感謝いたします。

㈱ NBI TECHNE の伴悦夫博士には、パルス磁場中での光学測定で使用する電気回路や機械加工品を数多く製作していただきました。ここに、深く感謝いたします。

東京理科大学理学系研究科の三須明教授には、筆者が修士課程および博士課程に在籍中、研究者として生きていくために越えるべきハードルの高さを指し示していただき、常に温かく見守ってくださいました。また、くじけそうなときにも叱咤激励して今日まで導いてくださいましたことを、ここに深く感謝申し上げます。

東京理科大学理学系研究科の小林正明博士には、実験屋ということの意味すらよくわからなかった筆者の未熟を幾度と無く戒め、ご指導くださいました。また、今日に至るまで、機会あるごとに、常に温かい

お言葉を掛けていただけますことは、大きな励みとなっております。ここに、深く感謝いたします。

長らく筆者を激励し応援して下さった米丸トミ先生、岡山倫夫先生をはじめとする恩師の先生方に、この場をお借りして、感謝の意を表します。

そして、筆者を見守り支えてくれた妻と、遊びを我慢し元気づけてくれた息子たちに感謝します。

最後に、遠方より常に温かく見守り、激励と支援を借しなかつた両親に感謝します。

参考文献

- [1] W. Shockley, *Electrons and Holes in Semiconductors* (New York: Van Nostrand, 1950).
- [2] J. Bardeen and W. H. Brattain, *Phys. Rev.* **74**, 230 (1948).
- [3] *Gallium Arsenide and Related Compounds* (Bristol: Institute of Physics, 1972).
- [4] L. Esaki and R. Tsu, *Superlattice and negative conductivity in semiconductors*, IBM Research Note, RC-2418 (1969).
- [5] L. Esaki and R. Tsu, *Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors*, IBM J. Res. Develop. **14**, 61 (1970).
- [6] L. L. Chang, L. Esaki, W. E. Howard and R. Ludeke, *J. Vac. Sci. Technol.* **10**, 11 (1973).
- [7] L. L. Chang, L. Esaki, W. E. Howard, R. Ludeke and G. Schul, *J. Vac. Sci. Technol.* **10**, 655 (1973).
- [8] 江崎玲於奈, 榎裕之編著, *超格子ヘテロ構造デバイス* (工業調査会, 1988).
- [9] R. Dingle, W. Wiegmann and C. H. Henry, *Phys. Rev. Lett.* **33**, 827 (1974).
- [10] R. Dingle, A. C. Gossard and W. Wiegmann, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 1324 (1975).
- [11] J. P. van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann and W. A. Nordland Jr., *Appl. Phys. Lett.* **34**, 1509 (1975).
- [12] W. T. Tsang, *Appl. Phys. Lett.* **39**, 786 (1981).
- [13] D. A. B. Miller, J. S. Weiner and D. S. Chemla, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-22**, 1816 (1987).
- [14] K. von Klitzing, G. Dorda and M. Pepper, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 494 (1980).
- [15] D. C. Tsui, H. L. Stormer and A. C. Gossard, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 1559 (1982).
- [16] U. Gnitzmann and K. Clausecker, *Appl. Phys.* **3**, 9 (1974).
- [17] 白木靖寛, *応用物理* **62**, 792 (1993).
- [18] J. Engvall, J. Olajos, H. Grimmeiss, H. Presting, H. Kibbel and E. Kasper, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 491 (1993).
- [19] U. Menezgar, J. Brunner, E. Friess, M. Gail, G. Astreiter, H. Kibbel, H. Presting and E. Kasper, *Thin Solid Films* **222**, 227 (1992).

- [20] 藤津晋, 白木靖寛, *固体物理* **27**, 998 (1992).
- [21] 白木靖寛, *表面科学* **14**, 75 (1993).
- [22] S. Fukatsu, H. Yochida, N. Usami, A. Fujiwara, Y. Takahashi, Y. Shiraki and R. Ito, *Thin Solid Films* **222**, 1 (1992).
- [23] A. Morii, H. Okagawa, K. Hara, J. Yoshino and H. Kukimoto, *J. Crystal Growth* **124**, 772 (1992).
- [24] A. Ishibashi, Y. Mori, M. Itabashi and N. Watanabe, *J. Appl. Phys.* **58**, 2691 (1985).
- [25] F. Issiki, S. Fukatsu and Y. Shiraki, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1048 (1995).
- [26] J. Ihm, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1068 (1987).
- [27] E. Finkman, M. D. Sturge, M. H. Meynadler, R. E. Nahory, M. C. Tamargo, D. M. Hwang and C. C. Chang, *J. Lumin.* **39**, 57 (1987).
- [28] G. Shibata, T. Nakayama and H. Kamimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 6121 (1994).
- [29] Y. Kobayashi and H. Kamimura, *Solid State Commun.* **98**, 957 (1996).
- [30] J. Tersoff, *J. Vac. Sci. Technol.* **B4**, 1066 (1986).
- [31] 三浦登, *バリティ* **8**, No.3, 62 (1993).
- [32] 三浦登, 中尾公一, 後藤恒昭, F. Herlach, 嶺山正二郎, 榊原俊郎, *固体物理* **19**, 772 (1984).
- [33] 三浦登, *バリティ* **4** No.4, 41 (1989).
- [34] T. Osada, S. Kagoshima and N. Miura, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5261 (1996).
- [35] 三浦登, 嶺山正二郎, 内田和人, *固体物理* **27**, 707 (1992).
- [36] 内田和人, 国松洋, 三浦登, *固体物理* **32**, 89 (1997).
- [37] D. F. Nelson, L. F. Johnson, M. Gershenzon, *Phys. Rev.* **135**, A1399 (1964).
- [38] J. H. Davies, *The Physics of Low-Dimensional Semiconductors* (Cambridge University Press, 1998).
- [39] M. Pope and C. E. Swenberg, *Electronic Processes in Organic Crystals* (Clarendon Press, Oxford, 1982).
- [40] S. Nikitine, J. B. Grun and M. Steskind, *J. Phys. Chem. Solids* **17**, 292 (1961).
- [41] 十倉好紀, 国府田隆夫, *固体物理* **15**, 267 (1980).
- [42] L. Esaki, *A perspective in superlattice development*, in *Symp. on Recent Topics in Semiconductor Physics* (World Scientific, Singapore 1983) pp 1-71.
- [43] J. M. Luttinger and W. Kohn, *Phys. Rev.* **97**, 869 (1955).
- [44] M. Shinada and S. Sugano, *J. Phys. Soc. Jpn.* **21**, 1936 (1966).

- [45] G. Bastard, E. E. Mendez, L. L. Chang and L. Esaki, *Phys. Rev. B* **26**, 1974 (1982).
- [46] R. L. Greene and K. K. Bajaj, *Solid State Commun.* **45**, 831 (1983).
- [47] Y. Shinozuka and M. Matsuura, *Phys. Rev. B* **28**, 4878 (1983), **B 29**, 3717 (1984) (Erratum).
- [48] R. S. Knox, *Solid State Physics: Theory of Excitons*, edited F. Seitz and D. Turnbull (Academic Press, New York, 1963).
- [49] P. C. Makado and N. C. McGill, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **19**, 873 (1986).
- [50] O. Akimoto and H. Hasegawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **22**, 181 (1967).
- [51] M. Sugawara, N. Okazaki, T. Fujii and S. Yamazaki, *Phys. Rev. B* **48**, 8848 (1993).
- [52] 菅原充, 博士論文「*Electronic States and Optical Properties of In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}/InP Quantum Wells*」(東京大学, 1995).
- [53] X. L. Zheng, D. Heinan and B. Lax, *Phys. Rev. B* **40**, 10523 (1989).
- [54] S. Tarucha, H. Pkamoto, Y. Iwasa and N. Miura, *Solid State Commun.* **52**, 815 (1984).
- [55] R. Rinaldi, P. V. Giugno, R. Cingolani, H. Lipsanen, M. Sopanen, J. Tulkki and J. Ahopelto, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 342 (1996).
- [56] J. Lee, G. D. Sanders and K. K. Bajaj, *J. Appl. Phys.* **69**, 4056 (1991).
- [57] M. Kumagai, T. Takahara and H. Hanamura, *Phys. Rev. B* **37**, 898 (1988).
- [58] A. Morii, H. Okagawa, K. Hara, J. Yoshino and H. Kukimoto, *J. Crystal Growth* **124**, 772 (1992).
- [59] K. Asami, H. Asahi, T. Watanabe, S. Gonda, H. Okumura and S. Yoshida, *Sur. Sci.* **267**, 450 (1992).
- [60] K. Asami, H. Asahi, S. G. Kim, J. H. Kim, A. Ishida, S. Tkamuku and S. Gonda, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 2430 (1994).
- [61] X. L. Wang, A. Wakahara and A. Sasaki, *J. Appl. Phys.* **76**, 524 (1994).
- [62] Y. Nabetani, A. Eakahara and A. Sasaki, *Mat. Sci. Eng. B* **35**, 454 (1995).
- [63] K. Uchida, N. Miura, J. Kitamura and H. Kukimoto, *Phys. Rev. B* **53**, 4809 (1996).
- [64] 財部健一, *応用物理* **63**, 255 (1994).
- [65] J. I. Pankove, *Optical Processes In Semiconductors* (Dover Publications, Inc., New York, 1971).
- [66] K. Yamashita, T. Kita, H. Nakayama and T. Nishino, *Phys. Rev. B* **55**, 411 (1996).
- [67] 前田敏二著, *ルミネッセンス* (横書店, 1964).
- [68] 国松洋, 博士論文「*半導体低次元励起子の超強磁場スペクトロスコピー*」(東京大学, 1998).

- [69] H. Arimoto, T. Saku, Y. Hirayama and N. Miura, *Physica B* **256-258**, 343 (1998).
- [70] N. Miura, Y. H. Matsuda, K. Uchida and H. Arimoto, *J. Phys. Condens. Matter* **11**, 5917 (1999).
- [71] 佐々木智, 博士論文「超強磁場における GaAs/AlGaAs 超格子の磁気光学的研究」(東京大学, 1993).
- [72] 松田康弘, 博士論文「高圧強磁場低温下での励起子発光による希釈磁性半導体の交換相互作用機構に関する研究」(東北大学, 1996).
- [73] E. F. Schubert and W. T. Tsang, *Phys. Rev. B* **34**, 2991 (1986).
- [74] G. J. Piermarini, S. Block, J. D. Barnett and A. Forman, *J. Appl. Phys.* **46**, 2744 (1975).
- [75] M. V. Klein, M. D. Sturge and E. Cohen, *Phys. Rev. B* **25**, 4331 (1982).
- [76] I. N. Krivorotov, T. Chang, G. D. Gilliland, L. P. Fu, K. K. Bajaj and D. J. Wolford, *Phys. Rev. B* **58**, 10687 (1998).
- [77] F. Minami, K. Hirata, K. Era, T. Yao and Y. Masumoto, *Phys. Rev. B* **36**, 2875 (1987).
- [78] L. P. Fu, F. T. Bacalzo, G. D. Gilliland, R. Chen, K. K. Bajaj, J. Klem and D. J. Wolford, *Phys. Rev. B* **52**, 2682 (1995).
- [79] 東京大学物性研究所編, 物性科学事典(東京書籍).
- [80] 杉田卓史, 修士論文「新しい量子構造を有する GaP 系半導体の発光特性」(東京大学, 1997).
- [81] S. Kuroda, K. Kojima, K. Takita, K. Uchida and N. Miura, *J. Crystal Growth* **159**, 967 (1996).
- [82] T. Komatsu, E. Kawahata, T. Karasawa, J. Akai, V. F. Aguekian, M. Nakayama, K. Uchida and N. Miura, *J. Luminescence* **66 & 67**, 468 (1996).
- [83] S. Nomura, H. Isshiki, Y. Aoyagi, T. Sugano, K. Uchida and N. Miura, *Phys. Rev. B* **57**, 2404 (1998).
- [84] L. Samuelson, S. Arand, N. Carlsson, P. Castrillo, K. Georgsson, D. Hessman, M. E. Hstol, C. Pryor, W. Seifert, L.R. Wallenberg, A. Carlsson, J. O. Bovin, S. Nomura, Y. Aoyagi, T. Sugano, K. Uchida and N. Miura, *Proc. 23rd Int. Conf. Phys. Semiconductors*, eds. M. Scheffler and R. Zimmermann (World Scientific, Singapore 1999) p.1269-1276 (1996).
- [85] P. D. Wang, J. L. Merz, S. Fafard, R. Léon, D. Leonard, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Peroff, K. Uchida, N. Miura, H. Akiyama and H. Sakaki, *Phys. Rev. B* **53**, 16458 (1996).
- [86] K. Uchida, N. Miura, Y. Sakuma, Y. Awano, T. Futatsugi and N. Yokoyama, *Physica B* **249-251**, 247-251 (1998).
- [87] R. K. Hayden, K. Uchida, N. Miura, A. Pollimeni, S. T. Stoddart, M. Henini, L. Eaves and P. C. Main, *Physica B* **246-247**, 93-96 (1998).
- [88] R. Cingolani, R. Rinaldi, H. Lipsanen, M. Sopanen, R. Virkkala, K. Majala, J. Tulkkki, J. Ahopelto, K. Uchida, N. Miura and Y. Arakawa, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4832 (1999).

- [89] 三浦 登, 内田和人, 国松 洋, 安平俊伸, 嶽山正二郎, *固体物理* **33**, 431 (1998).
- [90] T. Yasuhira, K. Uchida, Y. H. Matsuda, N. Miura and A. Towardowski, *J. Phys. Soc. Jpn.* **68**, 3436 (1999).
- [91] K. Uchida, K. Watanabe, N. Miura, M. Sakurai and A. Koma, *Physica B* **201**, 431 (1994).
- [92] S. Kuroda, K. Kojima, K. Takita, K. Uchida and N. Miura, *J. Crystal Growth* **159**, 967 (1996).
- [93] N. Miura, H. Kunimatsu, K. Uchida, Y. Matsuda, T. Yasuhira, H. Nakashima, Y. Sakuma, Y. Awano, T. Futatsugi and N. Yokoyama, *Physica B* **256-258**, 308 (1998).
- [94] Y. Nagamura, T. Tanaka, T. Kono, S. Tsukamoto, M. Nishioka, Y. Arakawa, K. Uchida and N. Miura, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 2502 (1995).
- [95] R. Cingolani, L. Bardassare, M. Ferrara, M. Lugara and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **40**, 6101 (1989).
- [96] Y. Kobayashi, T. Nakayama and H. Kamimura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 37 (1996).
- [97] Y. Kobayashi, H. Kouzu and H. Kamimura, *Solid State Commun.* **109**, 583 (1999).
- [98] 小林由則, 博士論文「Exciton States and the Mechanism of Photoluminescence in GaP/AlP Short-Period Superlattices in a Strong Magnetic Field」(東京理科大学, 1999).
- [99] L. V. Butov, A. A. Shashkin, V. T. Dolgoplov, K. L. Campman and A. C. Gossard, *Phys. Rev. B* **60**, 8753 (1999).
- [100] I. V. Lerner and Y. E. Lozovik, *Sov. Phys. JETP* **51**, 588 (1980).
- [101] D. Yoshioka and A. H. MacDonald, *J. Phys. Soc. Jpn.* **59**, 4211 (1990).
- [102] X. Zhu, P. B. Littlewood, M. S. Hybersten and T. M. Rice, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1633 (1995).
- [103] 釜江常好, 大杉節, *日本物理学会誌* **54**, 605 (1999).
- [104] M. Motokawa, H. Nojiri and Y. Tokunaga, *Physica B* **155**, 96 (1989).
- [105] 嶽山正二郎, 佐々木智, 落水洋聡, 三浦登, *固体物理* **26**, 561 (1991).
- [106] J. Haerty, M. Salib, A. Petrou, T. Schmiedel, M. Dutta, J. Pamulapati, P. G. Newman and K. K. Bajaj, *Phys. Rev. B* **56**, 12364 (1997).
- [107] W. R. Tribe, P. C. Klipstein, G. W. Smith and R. Grey, *Phys. Rev. B* **54**, 8721 (1996).
- [108] T. Ohta, N. Usami, F. Issiki and Y. Shiraki, *Semicond. Sci. Technol.* **12**, 881 (1997).
- [109] N. Usami, T. Sugita, T. Ohta, F. Issiki, Y. Shiraki, K. Uchida and N. Miura, *Phys. Rev. B* **60**, 1879 (1999).
- [110] N. J. Pulford, R. J. Nicholas, P. Dawson, K. J. Moore, G. Duggan and C. T. B. Foxon, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2284 (1989).

- [111] M. H. Meynadier, R. E. Nahory, J. M. Worlock, M. C. Tamargo and J. L. de Miguel, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1338 (1988).
- [112] S. Sasaki and N. Miura, *Appl. Phys. Lett.*, **59**, 96 (1991).
- [113] H. Momose, N. Mori, C. Hamaguchi, T. Ikaida, H. Arimoto and N. Miura, *Physica E* **4**, 286 (1999).
- [114] F. Minami, K. Hirata, K. Era, T. Yao and Y. Masumoto, *Phys. Rev. B* **36**, 2875 (1987).
- [115] W. Ge, M. D. Sturge, W. D. Schmidt, L. N. Pfeiffer and K. W. West, *Appl. Phys. Lett.* **57**, 55 (1990).
- [116] M. E. Lazzouni and L. J. Sham, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3523 (1993).
- [117] Z. S. Piao, M. Nakayama and H. Nishimura, *Phys. Rev. B* **53**, 1485 (1996).
- [118] 小川哲生, *応用物理* **68**, 122 (1999).
- [119] M. Nakayama, K. Suyama and H. Nishimura, *Phys. Rev. B* **51**, 7870 (1995).
- [120] Y. Kuramoto and C. Horie, *Solid State Commun.* **25**, 713 (1978).
- [121] L. V. Butov and A. J. Filin, *Phys. Rev. B* **58**, 1980 (1998).

発表論文

本論文に関する論文

1. "Photoluminescence Spectra of GaP/AlP Short-Period Superlattices under High Magnetic Fields"
K. Uchida, N. Miura, J. Kitamura and H. Kukimoto
Phys. Rev. B **53**, 4809-4813 (1996)
2. "Magneto-photoluminescence Spectra of Excitons in GaP/AlP Short Period Superlattices in High Magnetic Fields"
K. Uchida, N. Miura and H. Kukimoto
Physica B **227**, 352-355 (1996)
3. 「バルス強磁場下における光学測定用高圧クランプセルの開発」
内田和人, 国松 洋, 三浦 登
固体物理 **32**, 89 (1997)
4. "Magneto-Photoluminescence Spectra of GaP/AlP Short-Period Superlattices in High Magnetic Fields and Uni-Axial Stress"
K. Uchida, N. Miura, T. Sugita, F. Issiki, N. Usami and Y. Shiraki
Physica B **249-251**, 909-913 (1998)

その他の論文

1. "Faraday Rotation and Magnetization Measurements of $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{F}_2$ in Megagauss Fields"
M. Motokawa, K. Yoshida, A. R. King, S. Takeyama, K. Uchida, H. A. Katori, T. Goto and N. Miura
Physica B **177**, 307 (1992)
2. 「微小空間での試料の冷却 - 超強磁場と低温を組み合わせる -」
三浦 登, 嶽山正二郎, 内田和人
固体物理 **27**, 707 (1992)
3. "Magneto-optical Study on Excitonic Spectra in $(\text{C}_6\text{H}_{13}\text{NH}_3)_2\text{PbI}_4$ "
T. Kataoka, T. Kondo, R. Ito, S. Sasaki, K. Uchida and N. Miura
Phys. Rev. B **47**, 2010-2018 (1993)
4. "Magneto-optical Study on Excitonic Spectrum of $(\text{C}_6\text{H}_{13}\text{NH}_3)_2\text{PbI}_4$ "
T. Kataoka, T. Kondo, R. Ito, S. Sasaki, K. Uchida, and N. Miura
Physica B **184**, 132 (1993)

5. "Magnetoreflexion of the Lowest Exciton in a Layered Perovskite-Type Compound $(\text{C}_{10}\text{H}_2\text{NIH}_2\text{PbI}_4)$ "
M. Hirasawa, T. Ichi kawa, T. Goto, S. Sasaki, K. Uchida, and N. Miura
Solid St. Commun. **86**, 479 (1993)
6. "High-field Magneto-absorption Study of Hetero-interface Effect in $\text{CdTe}/\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ Multiple Quantum Wells"
H. Akinaga, T. Abe, K. Ando, S. Yoshida, K. Uchida, S. Sasaki, and N. Miura
Phys. Rev. B **47**, 15954 (1993)
7. "High Magnetic Field Effect on Exciton Energies in $\text{CdTe}/\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ Quantum Wells Grown by MBE"
S. Kuroda, Y. Shirai, K. Kojima, K. Uchida, N. Miura and K. Takita
Jpn. J. Appl. Phys. **32** Suppl. 32-3 (1993)
8. "Magneto-Optical Study of $\text{CdTe}/\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ Multiple Quantum Wells under High Magnetic Fields"
S. Kuroda, K. Kojima, K. Kobayashi, Y. Shirai, K. Uchida, N. Miura and K. Takita
Physica B **201**, 415 (1994)
9. "Magneto-optical Effects of Excitons in the Layered Perovskite-Type Material $(\text{C}_{10}\text{H}_2\text{NIH}_2)(\text{CH}_3\text{NIH}_2)\text{PbI}_4$ "
T. Kataoka, T. Kondo, R. Ito, S. Sasaki, K. Uchida and N. Miura
Physica B **201**, 423 (1994)
10. "Magnetoabsorption of the Lowest Exciton in Perovskite-Type Compounds $(\text{CH}_3\text{NIH}_2)\text{PbI}_3$ "
M. Hirasawa, T. Ishihara, T. Goto, K. Uchida and N. Miura
Physica B **201**, 427 (1994)
11. "Magneto-optical Measurements of C_{60} Epitaxial Films under Pulsed High Magnetic Fields up to 150T"
K. Uchida, K. Watanabe, N. Miura, M. Sakurai and A. Koma
Physica B **201**, 431 (1994)
12. "Generation of 500T Fields by Electromagnetic Flux Compression and Their Application to Cyclotron Resonance Experiments"
H. Nojiri, T. Takamasu, S. Todo, K. Uchida, T. Haruyama, T. Goto, H. A. Katori, and N. Miura
Physica B **201**, 579-583 (1994)
13. "Production of Megagauss Fields by Electromagnetic Flux Compression for Solid State Physics"
N. Miura, H. Nojiri, T. Takamasu, T. Goto, K. Uchida, H. A. Katori, T. Haruyama, and T. Todo
Megagauss Magnetic Field Generation and Pulsed Power Applications, (Proc. 6th Int. Conf. Megagauss Field Generation and Related Topics, Albuquerque, 1992), eds. M. Cowan and R. B. Spielman, (Nova Science Pub., Commack, New York, 1994) 1994 p.125-132
14. "Application of Megagauss Fields to Magneto-Optical Study of Semiconductors"
N. Miura, S. Sasaki, J. Kono, K. Uchida, T. Takamasu, O. Portugall, D. J. Barnes and R. J. Nicholas
Megagauss Magnetic Field Generation and Pulsed Power Applications, (Proc. 6th Int. Conf. Megagauss Field Generation and Related Topics, Albuquerque, 1992), eds. M. Cowan and R. B. Spielman, (Nova Science Pub., Commack, New York, 1995) 1994 p. 289-296

15. "Magnetic Field Tuning of Exciton Energies in $\text{CdTe}/\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ Multiple Quantum Wells"
S. Kuroda, K. Kojima, K. Kobayashi, K. Takita, K. Uchida and N. Miura
Proc. 22nd Int. Conf. Phys. Semiconductors, ed. D. J. Lockwood (World Sci., 1995) 1995 p. 1384-1387
16. "Magneto-optical Effect in GaAs Quantum Wires with Various Lateral Width"
T. Tanaka, Y. Nagamune, T. Kono, M. Nishioka, Y. Arakawa, K. Uchida, N. Miura and G. E. W. Bauer
Proc. 22nd Int. Conf. Phys. Semiconductors, ed. D. J. Lockwood (World Sci., 1995) 1995 p.1719-1722
17. "Magneto-optical Study of Interface Diffusion in $\text{CdTe}/\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ Multiple Quantum Wells"
S. Kuroda, K. Kojima, K. Kobayashi, A. Salto, K. Takita, K. Uchida and N. Miura
Materials Science Forum **182-185**, 615-618 (1995)
18. "Observation of Enhanced Lateral Confinement of Excitons in GaAs Quantum Wires with Various Sizes (7-30nm) by Magnetophotoluminescence Measurements"
Y. Nagamune, T. Tanaka, T. Kono, S. Tsukamoto, M. Nishioka, Y. Arakawa, K. Uchida and N. Miura
Appl. Phys. Lett. **66**, 2502-2504 (1995)
19. "Study of Γ -X Cross-over in GaAs/AlGaAs Short Period Superlattices by Simultaneous Application of High Pressure and Pulsed High Magnetic Fields"
N. Miura, H. Kunimatsu, K. Uchida, S. Sasaki and T. Yagi
Proc. 11th Int. Conf. High Magnetic Fields in Semiconductor Physics (Cambridge, 1994) ed. D. Helman (World Scientific, Pub. Co. Pte. Ltd., 1995) 1995 p. 324-327
20. "Magneto-optical Study of $\text{CdTe}/\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ Multiple Quantum Wells in the Mega-Gauss Field Range"
S. Kuroda, K. Kojima, K. Kobayashi, K. Uchida, N. Miura and K. Takita
Proc. 11th Int. Conf. High Magnetic Fields in Semiconductor Physics (Cambridge, 1994) ed. D. Helman (World Scientific, Pub. Co. Pte. Ltd., 1995) 1995 p. 662-665
21. "Photoluminescence Spectra of GaP/AlP Short-Period Superlattices under High Magnetic Fields"
K. Uchida, N. Miura, J. Kitamura and H. Kukimoto
Phys. Rev. B **53**, 4809-4813 (1996)
22. "Magnetic-Field Induced Type I-Type II Transition in $\text{CdTe}/\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ Multiple Quantum Wells"
S. Kuroda, K. Kojima, K. Takita, K. Uchida and N. Miura
J. Crystal Growth **159**, 967-971 (1996)
23. "Magneto-luminescence Studies of InAlAs Self-Assembled Quantum Dots in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Matrices"
P. D. Wang, J. L. Merz, S. Fafard, R. Léon, D. Leonard, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Peroff, K. Uchida, N. Miura, H. Akiyama and H. Sakaki
Phys. Rev. B **53**, 16458-16461 (1996)
24. "Dynamical Process of Excitons under Magnetic Fields in GaAs/AlGaAs Superlattices"
T. Komatsu, E. Kawahata, T. Karasawa, I. Akaf, V. F. Aguekian, M. Nakayama, K. Uchida and N. Miura
J. Luminescence **66 & 67**, 468-472 (1996)

25. "Low-dimensional Systems in Ultrahigh Magnetic Fields — Magneto Field-Induced Type I- Type II Transitions in Short Period Semiconductor Superlattices"
N. Miura, Y. Shimamoto, Y. Imanaka, H. Arimoto, H. Nojiri, H. Kunimatsu, K. Uchida, T. Fukuda, K. Yamataka, H. Momose, N. Mori and C. Hamaguchi
Semicond. Sci. Technol. **11**, 1586-1590 (1996)
26. "Magneto-optical Properties of InAs Monolayers and In_{1-x}Al_xAs Self-Assembled Quantum Dots in Ga(Al)As Matrices"
P. D. Wang, J. L. Merz, S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Petroff, N. N. Ledentov, P. S. Kopief, V. M. Ustinov, K. Uchida, N. Miura, H. Akiyama, H. Sakaki and C. M. Sotomayor-Torres
Physica B **227**, 378-383 (1996)
27. "Large Diamagnetic Shift in p-Type Modulation-Doped Quantum Wires"
S. Nomura, H. Isshiki, Y. Aoyagi, T. Sugano, K. Uchida and N. Miura
Proc. 23rd Int. Conf. Phys. Semiconductors, eds. M. Scheffler and R. Zimmermann (World Scientific, Singapore 1998) 1996 p.1185-1188
28. "MOVPE Growth and Electronic Properties of InP/GaInP Quantum Dots"
L. Samuelson, S. Anand, N. Carlsson, P. Castrillo, K. Georgsson, D. Hossain, M. E. Pistol, C. Pryor, W. Seifert, L.R. Wallenberg, A. Carlsson, J. O. Bovin, S. Nomura, Y. Aoyagi, T. Sugano, K. Uchida and N. Miura
Proc. 23rd Int. Conf. Phys. Semiconductors, eds. M. Scheffler and R. Zimmermann (World Scientific, Singapore 1999) 1996 p.1269-1276
29. "Exciton-LO Phonon Coupling and High Magnetic Fields Effects on Zn_{1-x}Cd_xSe/ZnSe Multi-Quantum Wells"
T. Yasui, B. P. Zhang, T. Yasuda, Y. Segawa, H. Kunimatsu, K. Uchida and N. Miura
Proc. 12th Int. Conf. High Magnetic Fields in the Physics of Semiconductors II, eds. G. Landwehr and W. Ossau, (World Scientific, 2000) vol. 2, 569 (1997)
30. "Exciton States in CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe Multiple Quantum Wells in the Megagauss Field Range"
S. Kuroda, K. Kojima, K. Takita, K. Uchida and N. Miura
Proc. 12th Int. Conf. High Magnetic Fields in the Physics of Semiconductors II, eds. G. Landwehr and W. Ossau, (World Scientific, 2000) vol. 2, 869 (1997)
31. "Effect of Vertical Transport on Superlattice Luminescence in the Presence of an In-plane Magnetic Field"
V. F. Aguekian, B. S. Monzon, A. A. Bates, J. L. Dunn, T. Komatsu, N. Miura and K. Uchida
Phys. Rev. B **56**, 1479-1485 (1997)
32. "Landau Level Formation in Semiconductor Quantum Dots in a High Magnetic Fields"
S. Nomura, L. Samuelson, M. E. Pistol, K. Uchida, N. Miura, T. Sugano and Y. Aoyagi
Appl. Phys. Lett. **71**, 2316-2318 (1997)
33. "High Magnetic Field Induced Large Blue Shift and Depopulation of Quasi-1D Electron-Hole System in p-Type Modulation-Doped Semiconductor Quantum Wires"
S. Nomura, H. Isshiki, Y. Aoyagi, T. Sugano, K. Uchida and N. Miura
Phys. Rev. B **57**, 2404-2414 (1998)
34. "Magneto-optical Spectroscopy of Semiconductors in Pulsed High Magnetic Fields up to 500T"
N. Miura, K. Uchida, Y. Matsuda, H. Kunimatsu and T. Yasuhira
Bull. Am. Phys. Soc. **43** No. 1, 104 (1998)

35. "Anomalous Photoluminescence Spectra of 2DEG in CdTe/CdMgTe Quantum Wells at Integer and Fractional Quantum Hall Regime"
S. Takayama, H. Kunimatsu, K. Uchida, N. Miura, G. Karczewski, T. Wojtowicz and J. Kossut
Bull. Am. Phys. Soc. **43** No. 1, 489 (1998)
36. "Magneto-optical Study of Interface Broadening of CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe Quantum Wells"
S. Kuroda, K. Kojima, K. Takita, K. Uchida and N. Miura
J. Crystal Growth **184/185**, 971-975 (1998)
37. "High Magnetic Fields Probing Nanostructures: Magneto-condensation into Quantum Dots"
M. von Ortenberg, K. Uchida, N. Miura, F. Heinrichsdorff and D. Bimberg
Physica B **246-247**, 88-92 (1998)
38. 「CCDを用いたパルス強磁場用時間掃引スペクトロメータ」
三浦 登, 内田和人, 国松 洋, 安平俊伸, 嶽山正二郎
固体物理 **33**, 431 (1998)
39. "High Field Magnetoluminescence spectroscopy of Self-Assembled (InGa)As Quantum Dots on High Index Planes"
R. K. Hayden, K. Uchida, N. Miura, A. Polimeni, S. T. Stoddart, M. Henini, L. Eaves and P. C. Main
Physica B **246-247**, 93-96 (1998)
40. "Magneto-Photoluminescence Study on Fractional Quantum Hall Effect in CdTe-CdMgTe Modulation n-Doped Single Quantum Wells"
S. Takeyama, H. Kunimatsu, K. Uchida, N. Miura, G. Karczewski, J. Jaroszynski, T. Wojtowicz and J. Kossut
Physica B **246-247**, 200-203 (1998)
41. "High Magnetic Field Study of Pressure Effect on the Spin-Spin Coupling among Excitons and Mn Ions in 2D and 3D-CdMnTe Systems"
H. Yokoi, Y. Kakudate, S. Fujiwara, S. Takeyama, H. Kunimatsu, K. Uchida, N. Miura, T. Schmiedel, S. Tozer, T. Wojtowicz, G. Karczewski and J. Kossut
Physica B **246-247**, 254-257 (1998)
42. "Magneto-Photoluminescence in High Magnetic Fields from InGaAs/GaAs Quantum Dots Formed in Tetrahedral-Shaped Recesses"
K. Uchida, N. Miura, Y. Sakuma, Y. Awano, T. Futatsugi and N. Yokoyama
Physica B **249-251**, 247-251 (1998)
43. "Photoluminescence Spectroscopy of Self-Assembled (InGa)As Quantum Dots in High Magnetic Fields"
R. K. Hayden, K. Uchida, N. Miura, A. Polimeni, S. T. Stoddart, M. Henini, L. Eaves, H. A. Carmona, P. Moriarty, P. H. Beton, P. C. Main, T. M. Fromhold and F. W. Sheard
Physica B **249-251**, 262-266 (1998)
44. "Magneto-Photoluminescence Anomalies at Integer and Fractional Quantum Hall Regimes in CdTe-CdMgTe Modulation n-Doped Single Quantum Wells"
H. Kunimatsu, S. Takeyama, K. Uchida, N. Miura, G. Karczewski, T. Wojtowicz and J. Kossut
Physica B **249-251**, 951-954 (1998)

45. "Magneto-photoluminescence and Electroluminescence Spectroscopy of Self-Assembled (InGa)As Quantum Dots on High Index Planes"
A. Pollimeni, S. T. Stoddart, M. Henini, L. Eaves, P. C. Main, K. Uchida, R. K. Hayden and N. Miura
Physica E **2**, 662-666 (1998)
46. "In-Plane Potential Modulation in Tensilely-Strained AlGaP-Based Neighboring Confinement Structure"
N. Usami, T. Sugita, T. Ohta, H. Ito, K. Uchida, Y. Shiraki, F. Minami and N. Miura
Physica E **2**, 883-886 (1998)
47. "Magneto-photoluminescence Study of Quantum Dots Formed on Tetrahedral-shaped Recesses"
Y. Sakuma, Y. Awano, T. Futatsugi, N. Yokoyama, K. Uchida and N. Miura
Solid State Electronics **42**, 1341-1347 (1998)
48. "Calculation of Landau Levels in Semiconductor Quantum Dots in a High Magnetic Field and at a High Optical Excitation"
S. Nomura, L. Samuelson, C. Pryor, M. E. Pistol, M. Stopa, K. Uchida, N. Miura, T. Sugano and Y. Aoyagi
Phys. Rev. B **58**, 6744-6747 (1998)
49. "Magneto-Optical Study of Excitons in Quantum Wells, Wires and Dots in High Magnetic Fields"
N. Miura, H. Kunimatsu, K. Uchida, Y. Matsuda, T. Yasuhira, H. Nakashima, Y. Sakuma, Y. Awano, T. Futatsugi and N. Yokoyama
Physica B **256-258**, 308-318 (1998)
50. "Magneto-optical Study of GaAs/AlAs Multiple Quantum Wells in Megagauss Fields"
Y. H. Matsuda, H. Kunimatsu, T. Yasuhira, K. Uchida and N. Miura
Proceedings of the 4th Int. Symp. on Advanced Physical Fields: Quantum Phenomena in Advanced Materials at High Magnetic Fields (Tsukuba, 1999, ed. G. Kido) 1999 p.17-20
51. "Zeeman-gap Anomaly in Photoluminescence from a Two-dimensional Electron Gas in CdTe/(Cd, Mg)Te Quantum Wells"
S. Takeyama, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Kossut, H. Kunimatsu, K. Uchida and N. Miura
Phys. Rev. B **59**, 7327-7329 (1999)
52. "Anomalies in Faraday Rotation Spectra of ZnMnSe under Pulsed High Magnetic Fields up to 150T"
T. Yasuhira, N. Miura, K. Uchida and A. Twardowski
(Jerusalem, Israel, 1998) edited by D. Gershoni (World Scientific, 1999) (in CD-ROM) 1999
53. "Effect of the Natural Substrate Patterning on the Growth of (InGa)As/GaAs Self-Assembled Quantum Dots: Microscopic and Optical Studies"
A. Pollimeni, S. T. Stoddart, M. Henini, R. K. Hayden, L. Eaves, P. C. Main, D. Cherns, Y. Atici, K. Uchida and N. Miura
(Jerusalem, Israel, 1998) edited by D. Gershoni (World Scientific, 1999) (in CD-ROM)
54. "Magneto-Condensation and Probing of Nanostructures by High Magnetic Fields"
M. von Ortenberg, H. Wissmann, A. Kirste, O. Portugall, L. Parthier, K. Uchida, N. Miura, F. Heinrichsdorff and D. Bimberg
(Jerusalem, Israel, 1998) edited by D. Gershoni (World Scientific, 1999) (in CD-ROM)

55. "Magneto-optical Study of Semiconductor Nanostructures in High Magnetic Fields"
N. Miura, Y. H. Matsuda, K. Uchida and H. Arimoto
J. Phys.: Condens. Matter **11**, 5917-5928 (1999)
56. "Magneto-photoluminescence Spectroscopy of AlGaP-Based Neighboring Confined Structure"
N. Usami, T. Sugita, T. Ohta, F. Issiki, Y. Shiraki, K. Uchida and N. Miura
Phys. Rev. B **60**, 1879-1883 (1999)
57. "The Magnetic Length in Solid State Physics"
M. von Ortenberg, H. Wissmann, A. Kirste, L. Parthier, K. Uchida, N. Miura, F. Heinrichsdorff and D. Bimberg
Physical Phenomena at High Magnetic Fields-III, eds Z. Fisk, L. Gor'kov and R. Schrieffer (World Scientific Pub. Co., 1999)
58. "Faraday Rotation Study of the Nearest-Neighbor Antiferromagnetic Exchange Interaction in High Magnetic Fields"
T. Yasuhira, K. Uchida, Y. H. Matsuda, N. Miura and A. Twardowski
J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 3436-3438 (1999)
59. "Exciton Absorption Spectra of Highly Anisotropic Crystal GaTe in a Magnetic Field"
A. Syouji, A. Yamamoto, T. Goto, K. Uchida and N. Miura
Phys. Rev. B **60**, 15519-15522 (1999)
60. "Electron-Hole Correlation in Quantum Dots under a High Magnetic Field (up to 45T)"
R. Cingolani, R. Rinaldi, H. Lipsanen, M. Sopanen, R. Virkkala, K. Majala, J. Tulkki, J. Ahopelto, K. Uchida, N. Miura and Y. Arakawa
Phys. Rev. Lett. **83**, 4832-4835 (1999)
61. "Magnetic and Non-Magnetic Faraday Rotation in ZnMnSe in High Magnetic Fields"
T. Yasuhira, K. Uchida, Y. H. Matsuda, N. Miura and A. Twardowski
Semicond. Sci. Technol. **14**, 1161-1164 (1999)

