

超伝導場における GaAs/AlGaAs  
短周期超格子の磁気光学的研究

佐々木 俊

①  
博士学位論文

超強磁場における GaAs/AlGaAs  
短周期超格子の磁気光学的研究

指導教官 三浦 登 教授

平成 5 年 2 月

東京大学大学院工学系研究科  
物理工学専攻

07111  
佐々木 智

# 目 次

1 序論	1
2 超格子構造の電子状態と光学的性質	6
2.1 バルク $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ のバンド構造	6
2.2 量子井戸におけるエネルギー準位と光学スペクトル	10
2.2.1 有効質量近似	10
2.2.2 バンド間遷移	12
2.3 量子井戸における磁気光学	16
2.3.1 磁気光吸収	16
2.3.2 量子井戸中の励起子状態	18
2.3.3 励起子の反磁性シフト	21
2.4 短周期超格子の特徴と問題点	23
2.4.1 Kronig-Penny モデルとミニバンド	23
2.4.2 短周期超格子における磁気光学	26
2.4.3 $\text{GaAs}/\text{AlAs}$ 短周期超格子におけるバンド構造と $\Gamma-X$ 交差	28
3 試料と実験方法	32
3.1 試料の作製と評価	32
3.2 強磁場の発生方法	34
3.2.1 強磁場発生現状	34
3.2.2 非破壊パルス磁場	35
3.2.3 一巻コイル直接放電法	39
3.3 パルス強磁場下の分光測定	41
3.3.1 非破壊パルス磁場における分光測定	41

3.3.2	超強磁場におけるストリーク分光測定	43
3.4	静水圧下での分光測定	49
4	タイプ I GaAs/Al <sub>x</sub> Ga <sub>1-x</sub> As 短周期超格子の磁気光学スペクトル	52
4.1	零磁場下の吸収スペクトル	52
4.2	短周期超格子における垂直伝導	54
4.2.1	実験結果	54
4.2.2	エネルギー準位の数値計算	60
4.3	鞍点における励起子効果	75
4.3.1	ミニバンド端における M <sub>1</sub> 型鞍点	76
4.3.2	磁場誘起鞍点	80
4.4	超格子における励起子状態	86
4.4.1	変分法による磁場中励起子の解析	86
4.4.2	一軸性結晶としての取扱い	89
4.5	考察	92
4.5.1	発光・吸収強度の磁場効果	92
4.5.2	バンド構造と励起子束縛エネルギー	94
5	タイプ II GaAs/AlAs 短周期超格子の磁気光学スペクトル	96
5.1	タイプ II GaAs/AlAs 短周期超格子の光学的性質	96
5.2	実験結果	100
5.3	考察	104
5.3.1	タイプ II 励起子の反磁性シフトと束縛エネルギー	104
5.3.2	タイプ II 超格子の分類	107
6	GaAs/AlAs 短周期超格子におけるタイプ I-タイプ II 転移	109
6.1	圧力誘起タイプ I-タイプ II 転移	110
6.1.1	実験結果	110
6.1.2	ひずみの補正	112
6.2	磁場誘起タイプ I-タイプ II 転移	114
6.2.1	実験結果	114
6.2.2	レート方程式による解析	117



6.3 考察	123
6.4 多重極限状態における光学測定	126
7 結論	130
謝辞	132
参考文献	134

# 第 1 章

## 序論

分子線エピタキシー法 (Molecular Beam Epitaxy: MBE) や有機金属気相成長法 (Metalorganic Chemical Vapor Deposition: MOCVD) などの薄膜単結晶成長技術の発展により作製が可能になった人工新物質である半導体超格子・ヘテロ接合系は、江崎らによって最初の提案がなされた当初 [1] には思いもよらなかった程の発展を遂げ、今日では物性物理学において一大分野を形成するに至るとともに、応用面でも数々の重要な貢献をしている。

半導体に電子の平均自由行程よりも微細な変調を人工的に加えると全電子系はメゾスコピックな量子領域に入り、そこでは電子の波動関数の人工的な制御、いわば波動関数工学が可能になる。その際の変調方法として考えられたのが、同一物質中で不純物ドーピングを切り替えて n-i-p-i 構造をつくるドーピング超格子、及び、異なる物質を交互に積層する組成変調による超格子である。特に後者の方法は、格子整合の良い GaAs/AlGaAs 超格子が作製されるに及んで大きく発展した [2, 3]。いまバンドギャップがそれぞれ  $E_{g1}$ ,  $E_{g2}$  であるような 2 つの物質を積層して超格子をつくる場合を考えると、ヘテロ接合における伝導帯及び価電子帯のバンド不連続の型に応じて、図 1-1 に示したように電子・正孔が同一物質中に閉じ込められるタイプ I と、両者が空間的に分離したタイプ II に分類できる。さらにタイプ II には物質 1 と物質 2 の伝導帯・価電子帯が重ならない図 1-1(b) のような場合、及び両者が重なって半金属的な振舞いを示すこともある図 1-1(c) のような場合がある。これまで最も広く研究されてきた GaAs/AlGaAs 系は通常はタイプ I であるが、その後対象となる母体物質が拡大されるにつれて、タイプ II の GaSb/InAs 系、大きな格子歪を伴う歪超格子である Si/SiGe 系や InGaAs/GaAs 系、さらには磁性不純物を含む CdTe/CdMnTe 系なども盛んに研究されるようになってきている。本論文では GaAs/AlGaAs 系を取り上げ、以後、この系にしばって話を進める。

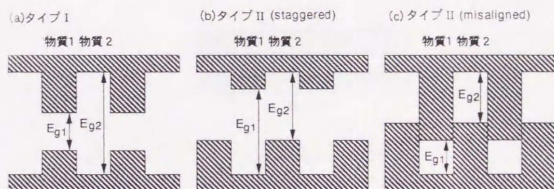


図 1-1: バンド不連続による超格子の分類。

さて、図 1-2 のように実空間において  $z$  方向に周期  $l$  の長周期秩序構造があると、ブリルアンゾーンは  $k_z = \pi/l$  で折り畳まれてミニゾーンになり、同時にエネルギーバンドはミニゾーン端のギャップによりミニバンドに分割される。江崎らは、ミニバンドの分散における大きな非放物線性に起因して、超格子層に垂直方向の電流-電圧特性に負性抵抗が現れることを示し、さらにブロッホ発振の可能性についても論じている。このような垂直伝導が研究されたのは主に周期が  $100\text{\AA}$  以下の比較的周期の短い超格子であったが [4]、その後研究の主体はむしろ、超格子ポテンシャルによる閉じ込め効果を利用した 2 次元量子井戸・ヘテロ界面に移っていった。強磁場下シュベニコフ・ドハース振動の測定による 2 次元サブバンドの研究 [5]、キャリアの不純物散乱を抑える変調ドーピングの開発 [6] を経て (分数) 量子ホール効果の舞台として重要な役割を果たすとともに、デバイス応用の面では高電子移動度トランジスタ (High Electron Mobility Transistor: HEMT) の開発 [7] へとつながった。

一方光学的研究に関しては、図 1-3 に示した Dingle らによる光吸収スペクトルの測定が特筆される [8]。彼らは異なる井戸幅を持つ量子井戸試料の吸収スペクトルにおいて量子化された 2 次元サブバンド間の遷移に対応する構造を観測し、計算との比較により各ピークの同定を行った。これを皮切りに、量子井戸面に垂直に電場を印加した場合に、閉じ込めポテンシャルがあるため電子と正孔が容易に解離せず、顕著なシュタルク効果が現れる量子閉じ込めシュタルク効果 (Quantum Confined Stark Effect) [9, 10] や、低次元化によってバルク物質に比べ励起子束縛エネルギーが著しく増大するため、室温においてさえ励起子ピークが観測される、いわゆる室温励起子 [11] など量子閉じ込め下での励起子の諸性質が明らかにされ、光双安定素子 [12] などの励起子デバイスや半導体レーザー [13, 14] に応用された。

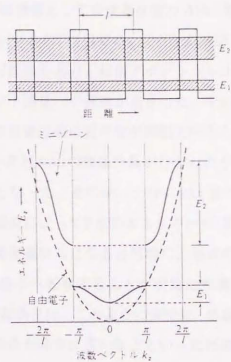


図 1-2: ミニバンドとミニゾーン。

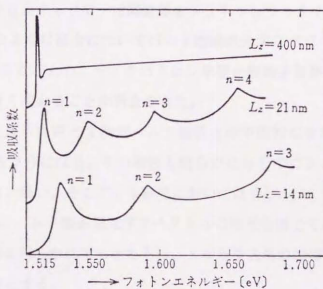


図 1-3: 量子井戸における光吸収スペクトルの井戸幅依存性 [8].

以上の動きと平行して、1 周期が数原子層程度の非常に周期の短い GaAs/AlAs 超格子の作製も試みられた [15, 16]。障壁層として間接遷移型の AlAs を用いると、短周期にしたときにバルクのブリルアンゾーン中心の  $\Gamma$  点以外に、(100) 方向の  $X$  点や (111) 方向の  $L$  点の状態が伝導帯下端を形成する可能性があり、超格子ポテンシャルによるそれらのエネルギー極小点間の混成も含めそのバンド構造への興味が高まった。そのような短周期になると長周期の場合に成功をおさめた有効質量近似の妥当性が問題となるため、強結合法 [17] や擬ポテンシャル法 [18, 19] などの第一原理からの理論計算が行われたが、それらの結果はお互いに食い違い、問題点を残すこととなった。その後、十分 GaAs 層の薄い GaAs/AlAs 超格子の伝導帯においては、閉じ込め効果によって  $\Gamma$  点のエネルギーが  $X$  点よりも高くなりバルクのブリルアンゾーンで考えると間接遷移型になると同時に、通常のタイプ I から電子と正孔が空間的に分離したタイプ II 超格子へ転移することが明確に意識されるようになった [20, 21]。タイプ II GaAs/AlAs 短周期超格子は、このように実空間・波数空間両方において間接性を有するため、励起子再結合の寿命が非常に長いなどといった特徴的な性質があり、現在に至るまで盛んに研究されるようになったが、理論と実験の対応を含め依然として問題点も多い。

短周期超格子のもう一方の側面は、薄い障壁層のトンネルが可能になり、層に垂直方向にミニバンドが形成されて 3 次的性格を帯びることである。こうした本来の意味での GaAs/AlGaAs 超格子についてシュブニコフ・ド・ハース振動の角度依存性が測定され、ミニバンドの形成が確認されるとともに有効質量の異方性が求められた [22]。また、磁場を超格子面に平行に印加するとキャリアーは障壁層をトンネルしつつサイクロトロン運動を行うことができるが、そのような場合についてバンド間磁気光学スペクトル [23] やサイクロトロン共鳴 [24, 25] の測定が行われ、サイクロトロン半径と超格子周期との相対的な大きさによって電子状態が大きく変わることが報告された。

このように 2 次元量子井戸と 3 次元バルク物質との中間的な位置を占める短周期超格子が近年注目を集めるようになり、その特性も明らかになりつつあるが、いまだ完全な理解に至っているとは言い難い。そこで、本研究においては GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 短周期超格子 ( $x = 0.5, 1$ ) について、バンド間磁気光学スペクトルの測定を通じてそのエネルギーバンド構造、及び励起子状態を明らかにするとともに、メガガウス域の超強磁場における新現象の探索を行うことを目的とする。

本論分の構成としては、第 2 章で光学的性質に重点をおいて GaAs/AlGaAs 超格子の一般的な性質を解説し、短周期化した際の特徴と問題点を提示する。第 3 章で試料の準備、及



びパルス強磁場下での光学測定について説明する。続いて本題に入るが、図 1-1 で示した超格子のタイプ別に従って話を進める。まず第 4 章では主に障壁層として  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  混晶 ( $x \simeq 0.5$ ) を用いたタイプ I 超格子を取り上げ、ミニバンド幅の大小に応じて光学スペクトルに現れる特徴的な性質を議論する。第 5 章ではタイプ II  $\text{GaAs}/\text{AlAs}$  超格子について、議論の分かれている伝導帯下端の状態を明らかにする。第 6 章では比較的長周期でタイプ I とタイプ II の境界域の試料を取り上げ、タイプ I-タイプ II 転移、及び、 $\Gamma$ -X 混成の問題を扱う。最後に第 7 章でまとめを行う。

## 第 2 章

# 超格子構造の電子状態と光学的性質

### 2.1 バルク $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ のバンド構造

超格子の話に入る前に、この節では母体物質であるバルク  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  について基礎的な説明を行う。

GaAs は図 2-1(a) に示すように 3 個の Ga と 5 個の As よりなる閃亜鉛鉱形の結晶構造をしており、格子定数  $a$  は  $5.66\text{\AA}$  である。Ga または Al の層と As 層を一組にして 1 原子層と呼ぶことにすると、その厚みは  $2.83\text{\AA}$  となる。以後 1 原子層厚を単位として超格子試料を  $(\text{GaAs})_m/(\text{AlAs})_n$  のように記述する。 $m, n$  は、超格子の 1 周期における GaAs 層及び AlAs 層それぞれの厚みが何原子層に相当するか示したものである。バルク  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  のブリルアンゾーンを図 2-1(b) に示す。

さて、GaAs のバンド構造は図 2-2 のように  $\Gamma$  点 (000) における直接遷移型となってい

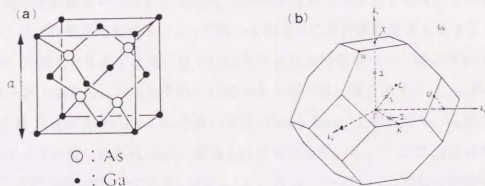


図 2-1 : GaAs の結晶構造 (a) とブリルアンゾーン (b)。

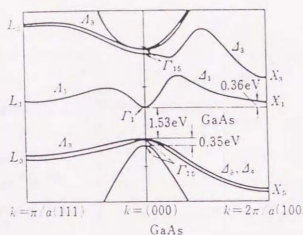


図 2-2 : GaAs のバンド構造。

る。ここで Ga のサイトを比率  $x$  だけ同じく 3 個の Al でランダムに置換すると  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  の混晶になる。このときの、伝導帯・価電子帯おのこのエネルギー極小点の  $x$  依存性を図 2-3(a) に、また、バンドギャップに直したものを図 2-3(b) に示す [26]。これを見るとわかるように  $x$  が大きくなるにつれて  $\Gamma$  点のバンドギャップも大きくなるので、GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  超格子を作った場合、通常は GaAs が井戸層に、 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  が障壁層となる。ただし伝導帯には  $\Gamma$  点の他 (100) 方向の X 点、および (111) 方向の L 点にもエネルギー極小点があり、特に  $x > 0.43$  では  $\Gamma$  点よりも X 点のエネルギーが低くなるため  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  は直接遷移型から間接遷移型に転移する。従って、後で詳述するように、こうした間接遷移型  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  と直接遷移型 GaAs を組み合わせて超格子を作ると、その伝導帯下端の状態が X 点的な性質を持つ場合もでてくる。

次に  $k \cdot p$  摂動法による価電子帯の取扱いを説明する。図 2-4 に GaAs の  $\Gamma$  点近傍のバンド構造を示した。GaAs の伝導帯下端は s 軌道的で取扱いも比較的容易である。これに対して価電子帯は、本来角運動量  $L = 1$  の 3 つの  $p_x, p_y, p_z$  軌道がスピン  $S = 1/2$  を含めて 6 重に縮退していたのが、スピン軌道相互作用によって図 2-4 のように全角運動量  $J = 3/2$  と  $J = 1/2$  の二つの状態に分離したものである。表 2.1 に  $k = 0$  における各バンド端のプロッホ関数  $u_j$ 、及び価電子帯上端からはかったそれぞれのエネルギーの一覧を示す。 $u_1, u_2$  が伝導帯、 $u_3, u_4$  が軽い正孔 (Light holes)、 $u_5, u_6$  が重い正孔 (Heavy holes)、そして  $u_7, u_8$  がスピン軌道相互作用によって分離した正孔 (Split-off holes) に対応している。ここで  $J_z$  は  $J$  の量子化軸方向 (超格子成長方向) の成分である。また、 $|X\rangle, |Y\rangle, |Z\rangle$  は  $x, y, z$  的な対称性を持つプロッホ関数、 $|\uparrow\rangle, |\downarrow\rangle$  はそれぞれスピン上向き、下向きの状態である。スピン軌道相互作用による分離の大きさは  $\Delta \simeq 350\text{meV}$  で、今後問題にする価電子帯上端近傍のエネルギー領域

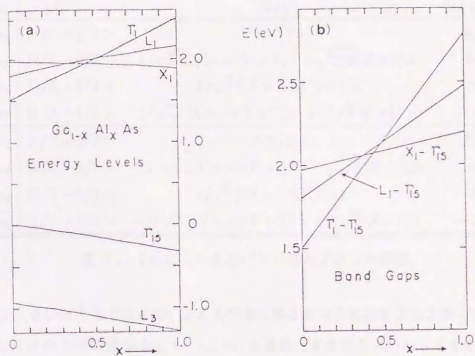


図 2-3 :  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  のエネルギー極小点 (a) およびバンドギャップ (b) の  $x$  依存性。

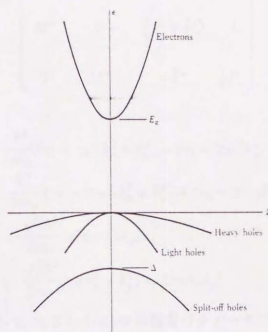


図 2-4 : GaAs  $\Gamma$  点近傍のバンド構造。

$u_j$	$ J, J_z\rangle$	$\Psi_{JJ_z}$	$E(k=0)$
$u_1$	$ 1/2, +1/2\rangle$	$ S\rangle \uparrow\rangle$	$E_g$
$u_3$	$ 3/2, +1/2\rangle$	$1/\sqrt{6}( X\rangle + i Y\rangle) \downarrow\rangle - \sqrt{2/3} Z\rangle \uparrow\rangle$	0
$u_5$	$ 3/2, +3/2\rangle$	$1/\sqrt{2}( X\rangle + i Y\rangle) \uparrow\rangle$	0
$u_7$	$ 1/2, +1/2\rangle$	$1/\sqrt{3}( X\rangle + i Y\rangle) \downarrow\rangle + 1/\sqrt{3} Z\rangle \uparrow\rangle$	$-\Delta$
$u_2$	$ 1/2, -1/2\rangle$	$ S\rangle \downarrow\rangle$	$E_g$
$u_4$	$ 3/2, -1/2\rangle$	$-1/\sqrt{6}( X\rangle - i Y\rangle) \uparrow\rangle - \sqrt{2/3} Z\rangle \downarrow\rangle$	0
$u_6$	$ 3/2, -3/2\rangle$	$1/\sqrt{2}( X\rangle - i Y\rangle) \downarrow\rangle$	0
$u_8$	$ 1/2, -1/2\rangle$	$-1/\sqrt{3}( X\rangle - i Y\rangle) \uparrow\rangle + 1/\sqrt{3} Z\rangle \downarrow\rangle$	$-\Delta$

表 2.1:  $\Gamma$ 点における各バンド端のプロット関数。

よりも十分大きいとみなせるので、 $J = 1/2$ の状態の寄与を無視することができる。すると4重縮退した $J = 3/2$ の状態( $u_5, u_3, u_4, u_6$ )を基底とする次のような $4 \times 4$ の $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 有効質量ハミルトニアンを解くことによって、価電子帯のエネルギー準位が記述される [27]。

$$H_0 = \begin{bmatrix} \frac{1}{2}P & L & M & 0 \\ L^* & \frac{1}{6}P + \frac{2}{3}Q & 0 & M \\ M^* & 0 & \frac{1}{6}P + \frac{2}{3}Q & -L \\ 0 & M^* & -L^* & \frac{1}{2}P \end{bmatrix} \quad (2.1)$$

ただし、

$$P = \frac{\hbar^2}{m_0}[(\gamma_1 + \gamma_2)(k_x^2 + k_y^2) + (\gamma_1 - 2\gamma_2)k_z^2] \quad (2.2)$$

$$Q = \frac{\hbar^2}{2m_0}[(\gamma_1 - 2\gamma_2)(k_x^2 + k_y^2) + (\gamma_1 + 4\gamma_2)k_z^2] \quad (2.3)$$

$$L = -\frac{\sqrt{3}\hbar^2}{2m_0}\gamma_3(k_x - ik_y)k_z \quad (2.4)$$

$$M = -\frac{\sqrt{3}\hbar^2}{2m_0}[\gamma_2(k_x^2 - k_y^2) - 2i\gamma_3k_xk_y] \quad (2.5)$$

で、 $m_0$ は自由電子の質量、 $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$ は Luttinger の物質パラメータである。(2.1)を対角化すると、

$$E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2}{2m_0}\{\gamma_1^2k^2 \pm \sqrt{4\gamma_2^2k^4 + 12(\gamma_3^2 - \gamma_2^2)(k_x^2k_y^2 + k_y^2k_z^2 + k_z^2k_x^2)}\} \quad (2.6)$$



となり、+符号が軽い正孔、-符号が重い正孔に対応している。GaAs の場合  $\gamma_1 = 6.85$ ,  $\gamma_2 = 2.1$ ,  $\gamma_3 = 2.9$  となっているので [28]、これらの値を用いてバンド端における (100) 方向の有効質量を計算してみると、

$$m^* = \frac{1}{\gamma_1 \pm 2\gamma_2} = \begin{cases} 0.09m_0 & (\text{Light holes}) \\ 0.38m_0 & (\text{Heavy holes}) \end{cases} \quad (2.7)$$

と求まる。式 (2.6) を見るとわかるように、重い正孔と軽い正孔の縮退に起因して  $\Gamma$  点近傍での分散は単純な有効質量を用いた放物線から外れており、こうした非放物線性 (nonparabolicity) が価電子帯の取扱いを困難にさせている。

## 2.2 量子井戸におけるエネルギー準位と光学スペクトル

この節では有効質量近似を用いた 2 次元量子井戸の基本的な取り扱いについて説明し、その光学スペクトルを議論する。

### 2.2.1 有効質量近似

超格子・量子井戸のエネルギー準位を議論する際には、通常、有効質量近似が用いられる。格子間隔よりも十分ゆっくり変化する外場  $V_{ext}(\mathbf{r})$  が加わった場合の有効質量方程式は、

$$[E_n(-i\nabla) + V_{ext}(\mathbf{r})] F(\mathbf{r}) = \epsilon F(\mathbf{r}) \quad (2.8)$$

のように与えられる。ここで、 $E_n(-i\nabla)$  は外場  $V_{ext}(\mathbf{r})$  のないときのエネルギー分散  $E_n(\mathbf{k})$  における  $\mathbf{k}$  を  $-i\nabla$  で置換した演算子で、 $F(\mathbf{r})$  は包絡関数である。このときの波動関数はバンド端のプロッホ関数  $u_{n0}(\mathbf{r})$  を用いて

$$\Psi(\mathbf{r}) = F(\mathbf{r}) u_{n0}(\mathbf{r}) \quad (2.9)$$

と表される。有効質量  $m^*$  の放物線バンド  $E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m^*}$  を仮定すると、(2.8) 式は

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V_{ext}(\mathbf{r}) \right] F(\mathbf{r}) = \epsilon F(\mathbf{r}) \quad (2.10)$$

となる。

$z$  方向に成長した超格子、あるいは量子井戸を考えると、その周期・井戸幅が十分大きい場合には  $V_{ext}(\mathbf{r})$  を超格子ポテンシャル  $V(z)$  で置き換えることができる。いま、 $xy$  方向はバ

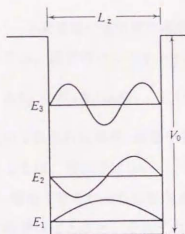


図 2-5:  $V_0 \rightarrow \infty$  のときの単一量子井戸におけるエネルギー準位と波動関数。

ルクと同様の並進対称性が残っているので包絡関数を

$$F(\mathbf{r}) = e^{ik_x x} e^{ik_y y} \phi(z) \quad (2.11)$$

とおくと、式 (2.10) は

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(z) \right] \phi(z) = \epsilon' \phi(z) \quad (2.12)$$

となる。ただし、

$$\epsilon' = \epsilon - \left( \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m^*} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m^*} \right) \quad (2.13)$$

である。今、図 2-5 のような幅  $L_z$ 、高さ  $V_0$  の単一量子井戸を考えると、

$$V(z) = \begin{cases} 0 & (|z| < L_z/2) \\ V_0 & (|z| \geq L_z/2) \end{cases} \quad (2.14)$$

となり、井戸の深さが無限大の極限 ( $V_0 \rightarrow \infty$ ) では (2.12) の解は

$$E_N = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left( \frac{N\pi}{L_z} \right)^2 \quad (2.15)$$

また、波動関数は

$$\phi_N(z) = \sqrt{\frac{2}{L_z}} \sin \frac{N\pi}{L_z} \left( z + \frac{1}{2} L_z \right) \quad (2.16)$$

で与えられる。 $N=1, 2, 3$  に対応する  $E_N, \phi_N(z)$  もあわせて図 2-5 に示した。 $z$  方向のエネルギーはこのように離散準位  $E_N$  に量子化されるが、量子井戸面内の  $xy$  方向は依然として自由電子的になっているので、各  $E_N$  をバンド端としてその高エネルギー側に 2 次元サブバンドが形成される。

## 2.2.2 バンド間遷移

次に、量子井戸におけるバンド間遷移の選択則を考察する。GaAs を井戸層、AlGaAs を障壁層とする量子井戸においては、両者のバンドギャップの差

$$\Delta E_g = E_g(\text{AlGaAs}) - E_g(\text{GaAs}) \quad (2.17)$$

のうち、 $Q\Delta E_g$ ,  $(1-Q)\Delta E_g$  がそれぞれ伝導帯、価電子帯におけるバンド不連続、すなわち井戸の深さとなる。 $Q$  の値としては、最近では 0.6~0.7 が用いられている。すると、図 2-5 のような量子化準位が伝導帯、価電子帯それぞれに形成され、電子及び正孔のエネルギーは、価電子帯の上端をエネルギーの原点にとると、それぞれ

$$E_{N_e}^{(e)}(k_x, k_y) = \frac{\hbar^2}{2m_e}(k_x^2 + k_y^2) + E_{N_e}^{(e)} + E_g \quad (2.18)$$

$$E_{N_h}^{(h)}(k'_x, k'_y) = -\frac{\hbar^2}{2m_h}(k'^2_x + k'^2_y) - E_{N_h}^{(h)} \quad (2.19)$$

で与えられる。ここで  $E_g$  はバルク GaAs のエネルギーギャップ、 $m_e$ ,  $m_h$  は電子、正孔の有効質量である。さて、バルク GaAs の伝導帯下端、価電子帯上端のプロッホ関数をそれぞれ  $u_{c0}(\mathbf{r})$ ,  $u_{v0}(\mathbf{r})$  とすると、(2.18) および (2.19) に対応する波動関数は、それぞれ

$$\Psi_{N_e, k_x, k_y}^{(e)}(\mathbf{r}) = \phi_{N_e}^{(e)}(z) e^{ik_x x + ik_y y} u_{c0}(\mathbf{r}) \quad (2.20)$$

$$\Psi_{N_h, k'_x, k'_y}^{(h)}(\mathbf{r}) = \phi_{N_h}^{(h)}(z) e^{ik'_x x + ik'_y y} u_{v0}(\mathbf{r}) \quad (2.21)$$

のようになる。価電子帯から伝導帯への電気双極子遷移の行列要素は  $\mathbf{p}$  を運動量演算子とすると

$$\langle \Psi_{N_e, k_x, k_y}^{(e)} | \mathbf{p} | \Psi_{N_h, k'_x, k'_y}^{(h)} \rangle \simeq \langle \phi_{N_e}^{(e)}(z) | \phi_{N_h}^{(h)}(z) \rangle \langle u_{c0} | \mathbf{p} | u_{v0} \rangle \delta_{k_x k'_x} \delta_{k_y k'_y} \quad (2.22)$$

で与えられ、GaAs の場合  $\langle u_{c0} | \mathbf{p} | u_{v0} \rangle \neq 0$  であるので、遷移が許容であるためには包絡関数の重なり積分

$$\langle \phi_{N_e}^{(e)}(z) | \phi_{N_h}^{(h)}(z) \rangle \neq 0 \quad (2.23)$$

であることが必要である。無限井戸の場合の包絡関数 (2.16) の形を見れば  $N_e = N_h$  のときだけ重なり積分が零でなくなることがわかる。実際の有限井戸に関しても第一近似的には同様なことがいえるので、結局量子井戸のバンド間遷移の選択則として

$$\left. \begin{aligned} k_x &= k'_x \\ k_y &= k'_y \\ N_e &= N_h = N \end{aligned} \right\} \quad (2.24)$$

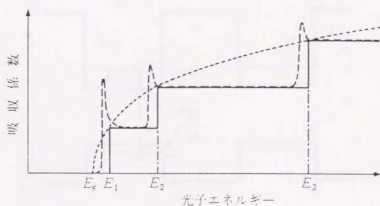


図 2-6: 単一量子井戸における状態密度 (実線) および励起子効果を含んだ吸収スペクトル (破線)。

が得られた。従って遷移エネルギーは、(2.18), (2.19), (2.24) より

$$\Delta E = E_g + E_N^{(e)} + E_N^{(h)} + \frac{\hbar^2}{2} \left( \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \right) (k_x^2 + k_y^2) \quad (2.25)$$

と与えられる。

さて、実際の光学スペクトルの形状には状態密度が反映される。よく知られたように、3 次元バルク半導体における状態密度は

$$\rho(E) = \frac{1}{2\pi^2} \left( \frac{2m^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{E} \quad (2.26)$$

のようにエネルギーの平方根に比例するのに対して、2 次元系では

$$\rho(E) = \frac{m^*}{\pi \hbar^2} \quad (2.27)$$

とエネルギーに依存しない形になる。各 2 次元サブバンドについて状態密度がこのようない定値をとるので、伝導帯全体としての状態密度は

$$\rho(E) = \sum_N \frac{m^*}{\pi \hbar^2} \Theta(E - E_N^{(e)}) \quad (2.28)$$

のように階段状になる。ここで、 $\Theta(x)$  は  $x = 0$  で 0 から 1 に変化する階段関数を表す。バンド間遷移では、同じように階段状の状態密度を持った価電子帯から伝導帯への遷移が起こるので、遷移エネルギー  $\Delta E$  に対する状態密度—結合状態密度 (joint density of states)— $\rho_{red}(\Delta E)$  を考えなければならないが、波数保存則が成り立っているので  $\rho_{red}(\Delta E)$  も階段状の関数となり、図 2-6 に示したような光吸収スペクトルが得られる。実際には電子と正孔の

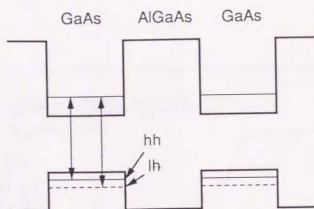


図 2-7: 多重量子井戸における  $N=1$  サブバンド間の遷移。

間のクーロン相互作用 (励起子効果) があるため、図中破線で示したように各サブバンド端から励起子の束縛エネルギー分だけ低エネルギー側にシフトしたところに励起子による吸収ピークが観測される。また、2.1で述べたように、バルクの価電子帯においては重い正孔と軽い正孔が縮退しているが、閉じ込めポテンシャルがあると縮退が解け、図 2-7 に示したように、閉じ込め方向 ( $z$  方向) の有効質量の大きな重い正孔の方が低エネルギー側に準位を形成する (正孔に関しては下が高エネルギー側) ため、重い正孔と軽い正孔の励起子ピークが分離して観測される。図 2-7 は量子井戸を多数積層した多重量子井戸 (Multiple Quantum Well: MQW) で、AlGaAs 障壁層が十分厚く、隣合った GaAs 量子井戸間の相互作用が無視できる場合には、単一量子井戸の寄せ集めとみなすことができる。図 2-8 は井戸幅  $L_z = 112\text{\AA}$  の多重量子井戸の 4.2K における吸収スペクトルであるが、階段状の状態密度を反映した特徴的なスペクトルが得られており、重い正孔 (hh) と軽い正孔 (lh) のピークが分離して観測されている。

一方発光 (Photoluminescence: PL) スペクトルにおいては、バンド間遷移によって励起されたキャリアがバンド端に緩和して励起子を形成し、それが再結合する際に放出する光子を観測する。図 2-9 は 3 次元バルク物質と 2 次元量子井戸 (超格子構造) について、熱平衡時の電子のエネルギー分布を示したものであるが、上で述べたように量子井戸は階段状の状態密度を持つため、バルク ( $\rho(E) \propto \sqrt{E}$ ) に比べて発光スペクトルの半値幅が小さいという特徴がある。



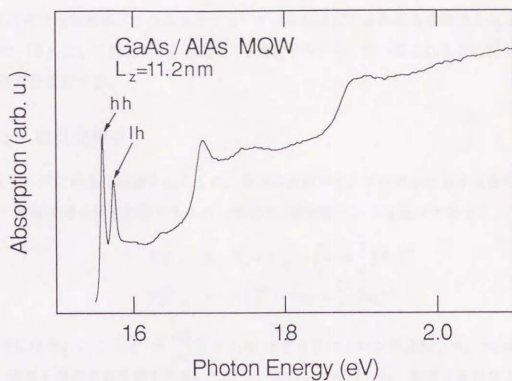


図 2-8 : 井戸幅 112Å の多重量子井戸の吸収スペクトル。

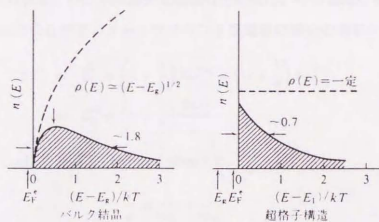


図 2-9 : 2, 3 次元系における電子エネルギー分布の比較。破線は状態密度を表す。

## 2.3 量子井戸における磁気光学

本研究では強磁場下での磁気光学スペクトルを通じて超格子の諸物性を明らかにしていくので、導入として周期の長い超格子(多重量子井戸)についてこれまでに行われた磁気光学的研究を紹介する。

### 2.3.1 磁気光吸収

量子井戸に垂直に磁場を加えると、面内の運動がランダウ準位に量子化される結果、伝導帯・価電子帯それぞれのエネルギー準位は、放物線バンドを仮定すると

$$E_{N_e, n_e}^{(e)} = E_g + E_{N_e}^{(e)} + \left(n_e + \frac{1}{2}\right) \hbar \omega_c^{(e)} \quad (2.29)$$

$$E_{N_h, n_h}^{(h)} = -E_{N_h}^{(h)} - \left(n_h + \frac{1}{2}\right) \hbar \omega_c^{(h)} \quad (2.30)$$

のようになる。ここで  $\omega_c^{(i)} = \frac{eB}{m_i}$  ( $i = e, h$ ) はサイクロトロン周波数、 $m_e, m_h$  はそれぞれ伝導帯、価電子帯の有効質量である。ただし、スピンは無視した。磁場に平行な方向は、すでに井戸型ポテンシャルによって量子化されていたので、(2.29), (2.30) は3方向が完全に量子化された形となっている。また、状態密度は単位面積当たり

$$\rho_i^{2D}(E) = \frac{eB}{2\pi\hbar} \sum_{N_i, n_i} \delta \left[ E - \left( n_i + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_c^{(i)} - E_{N_i}^{(i)} \right], \quad (i = e, h) \quad (2.31)$$

のように  $\delta$  関数で与えられる。バンド間磁気光吸収の選択則は、今の単純なモデルでは  $N_e = N_h = N, n_e = n_h = n$  となるので、 $N = 1$  サブバンド間遷移の場合の遷移エネルギー  $\Delta E$  は

$$\begin{aligned} \Delta E &= E_g^* + \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar \omega_c^{(e)} + \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar \omega_c^{(h)} \\ &= E_g^* + \left(n + \frac{1}{2}\right) \frac{\hbar e B}{\mu} \end{aligned} \quad (2.32)$$

で与えられる。ただし  $\mu$  は換算質量 (reduced mass) で

$$\frac{1}{\mu} \equiv \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \quad (2.33)$$

である。また、 $E_g^*$  は零磁場における励起子効果を含まないバンドギャップで、

$$E_g^* \equiv E_g + E_1^{(e)} + E_1^{(h)} \quad (2.34)$$

である。図 2-10(a) は、図 2-8 で示した GaAs 井戸層の厚みが  $112\text{\AA}$  の GaAs/AlAs 多重量

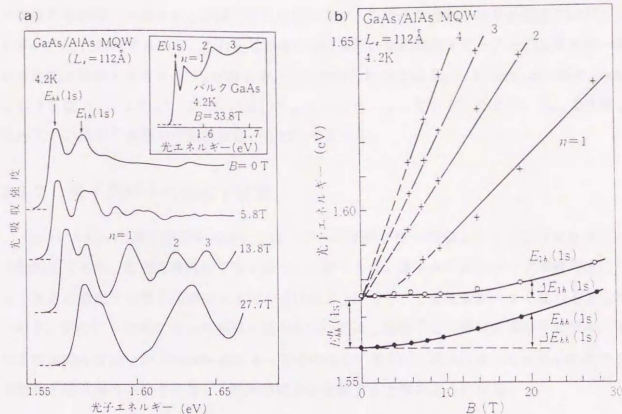


図 2-10: GaAs/AlAs 多重量子井戸の磁気光吸収スペクトル (a) と吸収ピークのエネルギーの磁場依存性 (b) [29]。

量子井戸 (MQW) における磁気光吸収スペクトルの測定結果である [29]。磁場を量子井戸層に垂直に加えると、励起子ピークの高エネルギー側に、伝導帯及び価電子帯 (重い正孔) のランダウ準位間遷移による振動的な吸収ピークが現れ、磁場とともに間隔を広げながら高エネルギー側にシフトしている。挿入図に示したのはバルク GaAs の磁気光吸収スペクトルである。今ピークの形に着目すると、量子井戸では (2.31) で見たように状態密度が  $\delta$  関数的になるため、対称的な形をしている。一方バルクでは、磁場方向に 1 次元の自由度が残るため、状態密度が単位体積当り

$$\rho_i^{3D}(E) = \frac{eB(2m^*)^{1/2}}{(2\pi\hbar)^2} \sum_{n_i} \left[ E - \left( n_i + \frac{1}{2} \right) \hbar\omega_c^{(i)} \right]^{-1/2}, \quad (i = e, h) \quad (2.35)$$

となることを反映して、GaAs において観測された吸収ピークは高エネルギー側に裾をひいた形をしている。

図 2-10(b) は、吸収ピークのエネルギー位置を磁場に対してプロットしたものである。励起子効果を見捨てる  $n \geq 2$  のランダウ準位は、(2.32) に従って磁場に対してほぼ直線的に変化し、その傾きから重い正孔と電子の換算質量  $\mu$  を見積ることができる。また、これら

の直線を零磁場に外挿するとはほぼ一点に収束するが、この点が励起子効果を含まないバンドギャップ  $E_g^*$  に相当するので、これと零磁場における重い正孔励起子ピークとのエネルギー差から励起子束縛エネルギー  $E_B$  が求まる。この試料においては  $E_B \simeq 12\text{meV}$  とバルク GaAs における値  $E_B = 4.2\text{meV}$  [29, 30] に比べてかなり大きくなっている。そこで、次に量子閉じ込め下での励起子状態の理論的取扱いについて述べる。

### 2.3.2 量子井戸中の励起子状態

GaAs/AlGaAs 量子井戸中の励起子は、ボーア半径が格子間隔よりもかなり大きなワニエ励起子であり、有効質量近似で取り扱うことができる。量子井戸幅をボーア半径程度に小さくすると励起子は閉じ込め効果を強く受けるようになり、その性質が大きく変わると考えられる。完全に2次元になった極限の場合については、励起子と同等な水素原子モデルに関する理論的な取扱いが Shinada らによって行われている [31]。彼らによって求められた2次元励起子の束縛エネルギーを、3次元の場合と比較すると次のようになる。

• 3次元

$$E_n = \frac{R_y^*}{n^2} \quad (n = 1, 2, 3, \dots) \quad (2.36)$$

• 2次元 [31]

$$E_n = \frac{R_y^*}{\left(n + \frac{1}{2}\right)^2} \quad (n = 0, 1, 2, \dots) \quad (2.37)$$

ただし、 $R_y^*$  は有効リドベルグで

$$R_y^* = \frac{\epsilon^2}{8\pi\epsilon a_B^*}, \quad a_B^* = \frac{4\pi\epsilon\hbar^2}{\mu e^2} \quad (\text{有効ボーア半径}) \quad (2.38)$$

である。従って、1s 状態の束縛エネルギーを比較すると、

$$E_{1s}^{(2D)} = 4E_{1s}^{(3D)} \quad (2.39)$$

と2次元では3次元の4倍になる。これに伴って、2次元になると、励起子ボーア半径の減少、振動子強度の増大などの特徴が出てくる。

しかし、現実の量子井戸は有限の幅を持っており、また、障壁層のポテンシャルの高さが有限であるため、井戸幅を零に近づけても今度は波動関数の障壁層へのしみ出しが大きくなるため、逆に束縛エネルギーが減少するという事情がある。実際、井戸幅を零にした極限は

単なるバルク AlGaAs に過ぎない。現実の量子井戸中の励起子状態を取り扱う方法の一つとして、これまでに変分法を用いた解析が報告されている [32-35] ので、ここで紹介する。伝導帯・価電子帯を放物線バンドで近似すると、励起子状態を記述するハミルトニアンは円筒座標表示  $(\rho, z, \phi)$  で次のように書ける。

$$H_0 = \left\{ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \left( \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \rho \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \right) - \frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{\partial^2}{\partial z_e^2} - \frac{\hbar^2}{2m_h} \frac{\partial^2}{\partial z_h^2} \right\} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} + V_e(z_e) + V_h(z_h) \quad (2.40)$$

ただし、励起子の重心運動は考慮していない。ここで、

- $\rho$  : 面内方向の電子と正孔の相対座標
- $z_e, z_h$  : 電子, 正孔の  $z$  座標
- $V_e(z_e), V_h(z_h)$  : 電子, 正孔に対する量子井戸ポテンシャル
- $\mu$  : 励起子の面内方向の換算質量
- $m_e, m_h$  : 電子, 正孔の  $z$  方向の有効質量

である。また、

$$\frac{1}{m_h} = \frac{\gamma_1 \pm 2\gamma_2}{m_0} \quad (2.41)$$

で、-が重い正孔、+が軽い正孔に対応する。 $\gamma_1, \gamma_2$  は 2.1 で述べた Luttinger の  $\gamma$  パラメータである。変分計算を行うための試行関数として、井戸幅がある程度小さく、サブバンドエネルギーがクーロンエネルギーよりも大きな場合について、Greene-Bajaj[34] は、次のような形を仮定した。

$$\Psi(\rho, z_e, z_h, \phi) = F_e(z_e) F_h(z_h) g(\rho, z, \phi) \quad (2.42)$$

ここで、 $F_e(z_e), F_h(z_h)$  はそれぞれ電子, 正孔の包絡関数で、有限の量子井戸に関する 1 次元シュレーディンガー方程式の基底状態の解として求まる。また、 $g(\rho, z, \phi)$  は電子と正孔の相対運動を記述する項で、1s 状態については

$$g(\rho, z, \phi) = (1 + \alpha z^2) \exp \left\{ -\delta \sqrt{\rho^2 + z^2} \right\} \quad (2.43)$$

という形を用いた。ここで、 $\alpha, \delta$  が変分パラメータである。このとき励起子束縛エネルギー  $E_B$  は、

$$E_B = E_1^{(e)} + E_1^{(h)} - \min_{\alpha, \delta} \frac{\langle \Psi | H_0 | \Psi \rangle}{\langle \Psi | \Psi \rangle} \quad (2.44)$$

で与えられる。図 2-11 はこのようにして計算された重い正孔励起子の束縛エネルギーを、



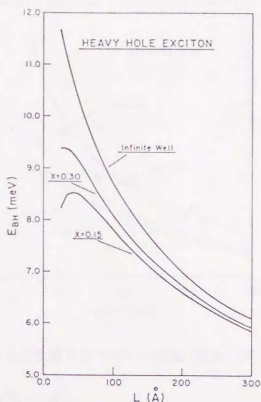


図 2-11：重い正孔励起子の束縛エネルギーと井戸幅  $L_z$  の関係 [34]。

$L_z$  に対してプロットしたものである。比較のために示した無限大障壁の場合には、 $L_z \rightarrow 0$  でバルクの 4 倍近い値に向かって単調に増加するが、有限障壁では  $L_z \rightarrow 0$  で波動関数のしみ出しが大きくなるため、束縛エネルギーはいったん極大値をとった後に減少の傾向に転じる。以上の計算はかなり単純化したハミルトニアン (2.40) に基づいているが、さらに計算の精度を上げるためには、価電子帯における重い正孔と軽い正孔の混成、異なるサブバンドに属する励起子状態間のクーロン相互作用を通じた混成、伝導帯の非放物線性、そして GaAs 層と AlGaAs 層との誘電率の違いによる鏡像効果等も考慮に入れる必要がある。Andreani ら [36] はこれらの効果を全て取り入れた計算を行い、それらを無視した場合に比べて束縛エネルギーが増大することを見いだした。図 2-12 は、2.3.1 で説明した磁気光学的方法によって求めた GaAs/AlAs 多重量子井戸の束縛エネルギー [29] と彼らの計算結果を比較したもののだが、 $x = 1.0$  の場合とよく一致しており、強磁場下での磁気光学測定により励起子束縛エネルギーがかなり正確に求まっていることを示唆している。

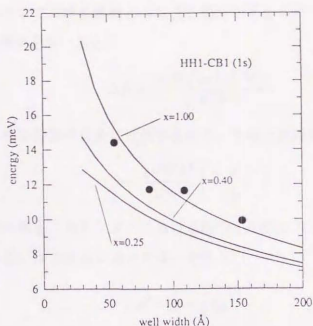


図 2-12：重い正孔励起子の束縛エネルギーの実験 (黒丸)[29] と理論 (実線)[36] の比較。

### 2.3.3 励起子の反磁性シフト

図 2-10(b) を見ると、吸収端の励起子ピークも磁場とともに高エネルギーシフトをしているが、ランダウ準位とは明らかに異なる磁場依存性を示しており、別の取扱いをする必要がある。

量子井戸層に垂直な  $z$  方向の磁場を、ベクトルポテンシャル

$$\mathbf{A} = \frac{1}{2} \mathbf{B} \times \mathbf{r} \quad (2.45)$$

で表すと、量子井戸における磁場中励起子のハミルトニアンは次のようにかける。

$$H = H_0 + \frac{1}{2} \omega_c L_z + \frac{1}{8} \mu \omega_c^2 \rho^2 \quad (2.46)$$

ここで、 $H_0$  は零磁場におけるハミルトニアン (2.40) である。また、 $L_z$  は角運動量の  $z$  成分で、 $\omega_c = eB/\mu$  はサイクロトロン周波数である。1s 励起子を問題にする際には第 2 項の 1 次ゼーマン項を無視できるので、磁場に依存するのは第 3 項だけになる。ここで、サイクロトロンエネルギーをリドベルグエネルギーで規格化した無次元パラメータ

$$\gamma \equiv \frac{\hbar \omega_c}{2R_y} \quad (2.47)$$

を定義すると、 $\gamma \ll 1$  で磁場を摂動とみなせる場合のエネルギーシフト  $\Delta E$  は、零磁場において求めた変分関数  $\Psi$  を用いると

$$\Delta E = \frac{\langle \Psi | \frac{1}{8} \mu \omega_c^2 \rho^2 | \Psi \rangle}{\langle \Psi | \Psi \rangle} \quad (2.48)$$

で与えられる。これは磁場の自乗に比例するので、その比例係数を  $\beta$  とおくと、

$$\beta = \frac{2\pi^2 \varepsilon^2 \hbar^4}{\mu^3 e^2} \left( \frac{\langle \rho^2 \rangle}{a_B^2} \right) \quad (2.49)$$

で与えられ、これは磁場に垂直な面内における励起子の広がり  $\langle \rho^2 \rangle$  に比例する。純粋な 2 次元、あるいは 3 次元の場合には、それぞれ

$$\langle \rho^2 \rangle_{2D} = \frac{3}{8} a_B^2 \quad (2.50)$$

$$\langle \rho^2 \rangle_{3D} = 2 a_B^2 \quad (2.51)$$

となるので、磁場中で  $\beta$  を測定すれば (2.49) から換算質量  $\mu$  が求まり、さらに (2.36), (2.37) からそれぞれの場合について束縛エネルギーを決定することができる。量子井戸・超格子の場合は 2 次元と 3 次元の中間的な値になり、束縛エネルギーを求めるためには変分法などの理論的モデルとの比較が必要となる。

一方、クーロン項を摂動とみなすことができるような  $\gamma \gg 1$  の強磁場極限においては、励起子の振舞いはランダウ準位に近づき、励起子ピークのシフトは磁場の 1 次  $\gamma$  に比例するようになる。この領域では、2.3.2 で述べた変分計算における試行関数  $g(\rho, z, \phi)$  としては (2.43) のような水素原子的な形よりも、異方性のある調和振動子型の波動関数

$$g(\rho, z, \phi) = \exp\{-(\alpha\rho)^2 - (\delta z)^2\} \quad (2.52)$$

の方がよい結果を与える [37]。

以上の 2 つの極限をつなぐ中間磁場領域に関しては取扱いが容易ではないが、これまでいくつかの理論計算が報告されている [38-40]。図 2-13 は、2 次元の極限の場合について Akimoto らが計算した磁場中励起子のエネルギー準位である [40]。指数  $n$  の大きい励起状態ほど、より弱磁場で図中破線で示したランダウ準位に近づく様子がわかる。完全には 2 次元でない現実の量子井戸・超格子においても定性的な振舞いは同様であると考えられるので、強磁場下では  $n$  の大きい状態をランダウ準位とみなして差し支えない。

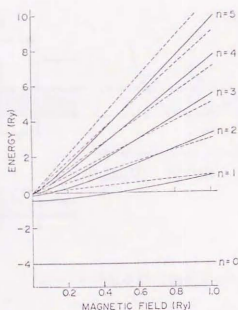


図 2-13 : 磁場中の 2 次元励起子のエネルギー準位 [40]。

## 2.4 短周期超格子の特徴と問題点

この節では、これまでに述べてきた 2 次元量子井戸と比較して短周期超格子がどのような特徴を持っているかを解説し、本研究で取り組むべき問題点を明らかにしていく。

### 2.4.1 Kronig-Penny モデルとミニバンド

厚み  $L_z$  の井戸層と  $L_b$  の障壁層からなる超格子においては、積層方向に周期  $d = L_z + L_b$  の並進対称性があるため、孤立量子井戸の包絡関数 (2.11) における  $\phi(z)$  が

$$\phi(z) = e^{ik_z z} f(z), \quad \left(-\frac{\pi}{d} < k_z < \frac{\pi}{d}\right) \quad (2.53)$$

と書け、 $z$  方向の波数  $k_z$  がよい量子数になる。ここで、 $f(z)$  は

$$f(z+d) = f(z) \quad (2.54)$$

を満たす周期関数である。超格子の周期を短くしていくとキャリアが障壁層をトンネルできるようになり、孤立量子井戸における離散的エネルギー準位が分裂して、エネルギーの  $k_z$  分散、すなわちミニバンドが生じる。また、ブリルアンゾーンは  $k_z = \frac{\pi}{d}$  で折り畳まれ、ミニゾーンとなる。図 2-14 にミニバンド分散を持つ超格子のバンド構造の模式図を示す。(0,0,0) から  $(0,0,\frac{\pi}{d})$  が  $z$  方向に折り畳まれたミニゾーンである。閉じ込めを受けていない  $xy$  方向は、

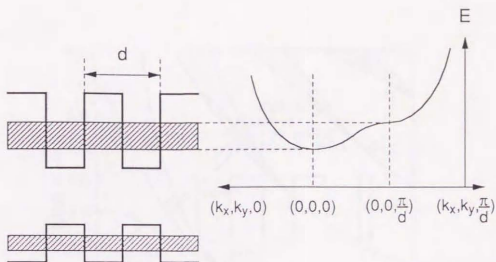


図 2-14: ミニバンド分散を持つ超格子のバンド構造。

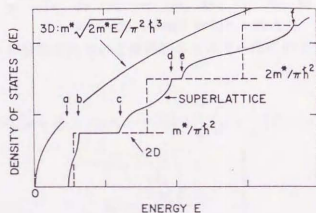


図 2-15: 超格子の状態密度の3次元、2次元との比較。

バルクと同様の放物線的なバンドが形成されている。また、 $k = (0, 0, \frac{\pi}{d})$ において  $M_1$  型の鞍点 (saddle point) となっている。状態密度に関しては、量子井戸では階段状であったものが超格子になると図 2-15 のように吸収端で3次元的な立ち上がりを示し、ミニバンド幅に相当するエネルギーにわたって徐々に増加した後に、鞍点对応するキックを経て平坦な状態密度に移行する。

光学スペクトルにおいては励起子効果を考慮する必要があるが、基礎吸収端に現れる通常の励起子ピークに加えて、図 2-15 の b, d, f 等の鞍点において、鞍点励起子 (saddle point exciton) による構造が観測される可能性がある。

さて、有効質量近似でこのような周期ポテンシャル中のエネルギー準位を計算するには Kronig-Penny モデルを用いればよい。井戸層、障壁層それぞれの厚みを  $a, b$ 、有効質量を  $m_a^*, m_b^*$ 、ポテンシャルの高さを  $V$  とすると、 $z$  方向のエネルギー  $E$  は次の式から決定される



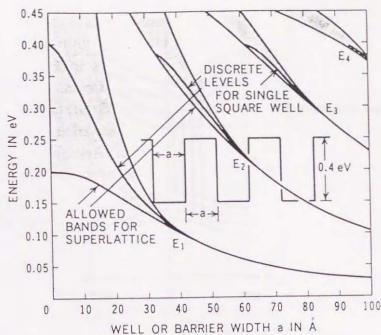


図 2-16:  $a = b$  の超格子における離散的エネルギー準位のミニバンドへの移行。

[41]。

$$\cos k_z(a+b) = \cos k_a a \cos k_b b - \frac{1}{2} \left( x + \frac{1}{x} \right) \sin k_a a \sin k_b b \quad (2.55)$$

$$\left. \begin{aligned} x &= \frac{m_a^* k_b}{m_b^* k_a} \\ k_a^2 &= \frac{2m_a^* E}{\hbar^2} \\ k_b^2 &= \frac{2m_b^* (E - V)}{\hbar^2} \end{aligned} \right\} \quad (2.56)$$

このときのヘテロ界面における境界条件は、

$$F_a = F_b \quad (2.57)$$

及び、電流演算子の保存則に相当する式

$$\frac{1}{m_a^*} \frac{\partial F_a}{\partial x} = \frac{1}{m_b^*} \frac{\partial F_b}{\partial x} \quad (2.58)$$

となっている。ただし、 $F_i$ 、 $m_i^*$ はそれぞれ物質  $i$  ( $i = a, b$ ) における包絡関数、有効質量である。

図 2-16 に  $a = b$ 、 $V = 0.4 \text{ eV}$ 、 $m_a^* = m_b^* = 0.1 m_0$  としたときの計算例を示す [42]。周期を短くしていくにつれて離散準位が幅を持ち、ミニバンドを形成する様子がわかる。

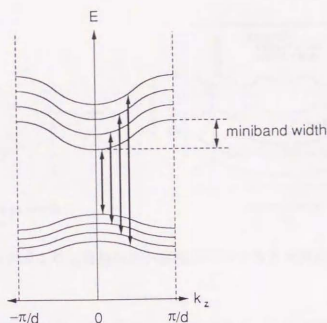


図 2-17：超格子面に垂直に磁場を印加した場合のランダウ準位とバンド間遷移。

このようにミニバンドが形成されると、それまで閉じ込めを受けていた  $z$  方向にも運動が可能になるため、超格子は再び 3 次元的性質を帯びるようになり、励起子の束縛エネルギーは同じ井戸幅を有する量子井戸における値よりも小さくなると考えられる。

## 2.4.2 短周期超格子における磁気光学

ミニバンドが形成されているような短周期超格子の磁場下での振舞いには、量子井戸とは大きく異なる点がある。

まず、超格子面に垂直に磁場を印加した場合（以後  $B_{\perp}$  と記す）、面内の運動が量子化されて図 2-17 のようなランダウ準位が伝導帯・価電子帯のおおに形成される。ランダウ準位の  $k_z$  分散に着目すると、2 次元量子井戸では 3 方向が完全に量子化されて分散はなく、3 次元バルクでは放物線的な分散があるのに対して、超格子においては両者の中間で、コサイン関数的な分散を持っている。第一近似的には、図に示したように同じランダウ指数  $n$  の準位間でバンド間遷移が起り、吸収ピークを与える。ただし、各ランダウ準位において、 $k_z = 0$  だけでなく、 $k_z = \pm\pi/d$  においても状態密度が極大となるため、基礎吸収端よりもミニバンド幅だけ高エネルギー側にある鞍点に収束するような、別のランダウ準位の系列が観測される場合もある [43]。

短周期超格子の磁気光学スペクトルにおいて量子井戸に対して際だった対照を示すのが、

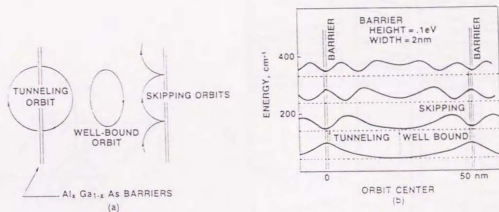


図 2-18: サイクロトロン半径よりも周期の長い超格子における古典的な電子の軌道 (a) とランダウ準位 (b)[25]。

磁場を超格子面に平行に印加した場合 (以後  $B_{//}$  と記す) である。この磁場配置において、量子井戸ではキャリアのサイクロトロン運動が厚い障壁層に阻まれるのに対し、短周期超格子になると障壁をトンネルすることによって周回軌道を完結させることができる。このときキャリアの感じる有効質量 (サイクロトロン質量)  $m_c$  は、面内の有効質量  $m_{//}$  と超格子方向の有効質量  $m_{\perp}$  の幾何平均  $m_c = \sqrt{m_{//} m_{\perp}}$  であり、サイクロトロン共鳴の測定を行うことによってミニバンドの分散を調べることができる [44]。また、バンド間磁気光学スペクトルにおいても、 $B_{\perp}$  の場合と同様に量子化されたランダウ準位間の遷移がピークとして観測されている [23]。

ただし、以上は超格子の周期に比べてサイクロトロン半径が十分大きな場合の話で、サイクロトロン半径が超格子周期以下になるような強磁場ではミニバンドの描像が破綻する。バルク物質の場合には、サイクロトロン半径が格子定数程度に小さくなるとランダウ準位の幅が広がる、Harper broadening という現象が古くから考えられている [45, 46]。これを観測するには  $10^4$  T 以上もの人工的に実現不可能な超強磁場が必要とされるが、超格子は基本周期がバルクよりも長いので、実現可能な磁場で類似の現象を観測することができる。Duffield ら [25] は、周期が  $500 \text{ \AA}$  とかなり長い超格子を用いることにより上の条件を実現してサイクロトロン共鳴の測定を行い、井戸層の中心に局在した軌道 (well-bound orbit) と障壁層に局在した軌道 (tunneling orbit) (図 2-18(a)) に対応する共鳴ピークを分離して観測した。このような状況下でのランダウ準位は図 2-18(b) のようにサイクロトロン軌道の中心に関する縮退が解けて分散を持っており、実空間で電子が占める場所によって共鳴エネルギーが異なっているのがピークの分裂の原因と考えられる。果して、バンド間磁気光学スペクトルにおい

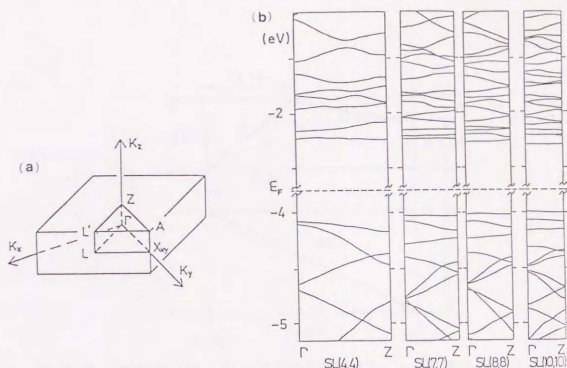


図 2-19: GaAs<sub>n</sub>/AlAs<sub>n</sub>超格子のブリルアンゾーン (a) とバンド構造 (b)[19]。

ても同様の現象が観測されるか、強磁場で調べるのが本研究の目的の一つである。

### 2.4.3 GaAs/AlAs 短周期超格子におけるバンド構造と $\Gamma-X$ 交差

短周期超格子のバンド構造は、有効質量近似が成立する範囲では Kronig-Penny モデルで記述できることを 2.4.1 で見た。しかし、1 周期が数原子層程度と非常に短い場合にはその妥当性が問題となるため、第一原理からの計算が必要となる。図 2-19(b) は Nakayama ら [19] が自己無撞着擬ポテンシャル法を用いて計算した  $(\text{GaAs})_n/(\text{AlAs})_n$  超格子 ( $\text{SL}(n,n)$ ) のバンド構造を、ブリルアンゾーンにおける積層方向の  $\Gamma-Z$  点間 (図 2-19(a) 参照) にわたって示したものである。周期が長いものほどブリルアンゾーン、並びにエネルギーバンドが小さく折り畳まれている。バルク AlGaAs の伝導帯には、 $\Gamma$  点 (000) 以外に (100) 方向の  $X$  点や (111) 方向の  $L$  点にもエネルギー極小点が存在することを 2.1 で述べたが、今のように層数の和 ( $m+n$ ) が偶数の超格子においては、特に、積層方向の  $X$  点 (以後  $X_Z$  と記す) が  $\Gamma$  点に折り畳まれる。Nakayama らの計算結果では、例えば短周期の超格子 (4,4) の伝導帯下端を形成する状態は、通常の長周期超格子のようにバルクのブリルアンゾーンにおける  $\Gamma$  点だけでなく、(100) 方向の  $X_Z$  点かなり混じりこんだものとなっている。

これを仮に有効質量近似で考えると次のようになる。図 2-20 は GaAs と  $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  のヘテロ接合をつくった際の伝導帯・価電子帯それぞれにおけるバンド不連続  $\Delta E_c$ ,  $\Delta E_v$  を表

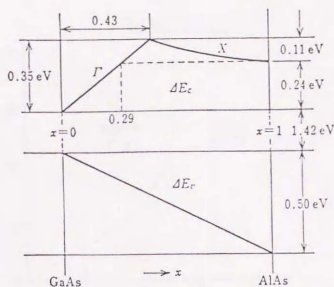


図 2-20: GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As ヘテロ接合におけるバンド不連続  $\Delta E_c$ ,  $\Delta E_v$ 。

している [47]。2.1 で述べたように  $x \simeq 0.43$  で Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 伝導帯においてバンド交差が起こり、 $\Gamma$  点に代わって X 点が伝導帯下端になる。AlAs 障壁層の場合、X 点のバンドギャップは AlAs の方が GaAs より大きいにもかかわらず、価電子帯において  $\Delta E_c$  だけバンドオフセットがあるため、AlAs の X 点の方が GaAs の X 点よりもエネルギーが低くなり、X 点に関しては逆に AlAs が井戸層、GaAs が障壁層になる。従って GaAs 層の厚みを薄くすると、GaAs を井戸層とする  $\Gamma$  点のエネルギー準位が AlAs を井戸層とする X 点のエネルギー準位よりも高くなり、超格子はバルクのブリルアンゾーンで考えると間接遷移型になる。また、このとき正孔は GaAs 層、電子は AlAs 層にそれぞれ局在し、両者が k 空間のみならず実空間においても分離したタイプ II 超格子となる。(GaAs)<sub>m</sub>/(AlAs)<sub>n</sub> で  $m, n$  について、タイプ I (直接遷移)・タイプ II (間接遷移) の場合分けをした概念図を図 2-21 に示す。両者の境界線は必ずしも正確ではないが、定性的には、AlAs 層がある程度厚ければ GaAs を十分薄くすることによって、X 点を伝導帯下端とするタイプ II に転移する。

ただし、X 点には  $X_Z(001)$  の他に図 2-22 に示したように超格子面内に波数ベクトルを持った  $X_X(100)$  及び  $X_Y(010)$  (以後  $X_X$  と  $X_Y$  をまとめて  $X_{XY}$  とよぶ) もあり、超格子になるとバルクにおいては等価であったこれらの X 点の縮退が解ける。X 点は有効質量の異方向が大きく、最近サイクロトロン共鳴によって観測された値では、軸方向の縦形質量が  $0.88m_0$  であるのに対し、それに垂直な横形質量は  $0.25m_0$  にすぎない [48]。従って、単純な有効質量近似では、閉じ込め方向の有効質量の大きい  $X_Z$  の方が  $X_{XY}$  よりもエネルギーが低くなると



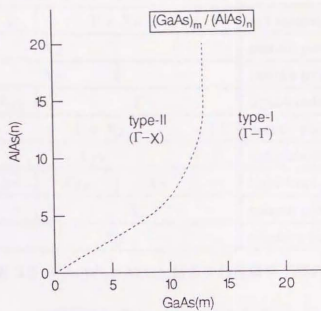


図 2-21 :  $(\text{GaAs})_m/(\text{AlAs})_n$  における遷移型の分類。

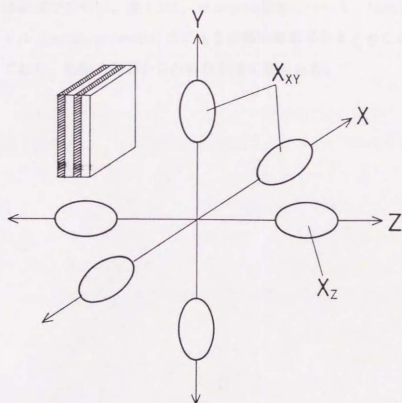


図 2-22 : X 点における等エネルギー面。

n	1	2	3	4	5	6	7	8	9	
Nakayama[19]	L			$\Gamma + X_Z$				$\Gamma$		self consistent pseudo-potential
Caruthers[26]		$X_Z$					$\Gamma$			pseudo-potential
Andreoni[18]		$X_Z$					—			pseudo-potential
Schulman[17]	$X_{XY}$			$\Gamma$						tight-binding
Gell[50]				$\Gamma + X_Z$				$\Gamma$		pseudo-potential
Yamaguchi[51]				$X_{XY}$				$\Gamma$		tight-binding
Muñoz[52]	—		$X_{XY}$			$X_Z$		—		tight-binding
Brown[53]	—			$X_Z$						pseudo-potential
				$X_Z$						effective mass

表 2.2 :  $(\text{GaAs})_n/(\text{AlAs})_n$  超格子の伝導帯下端の状態。

考えられる。しかし、一方で超格子ポテンシャルによる  $X_X$  と  $X_Y$  の混成 [20] や、GaAs と AlAs の小さな格子不整合によって AlAs 層に加わる二軸性の圧縮応力 [49] によって、 $X_{XY}$  のエネルギーが  $X_Z$  に対して相対的に低くなる効果もあり、果して  $X_{XY}$  と  $X_Z$  のどちらが伝導帯下端になるかは自明ではない。表 2.2 に、 $m = n$  の場合について、強結合 (tight binding) 法や擬ポテンシャル (pseudo-potential) 法による理論計算結果をまとめたが、各理論ごとに結果が食い違っており、実験的側面からの解決が強く望まれる。

## 第 3 章

# 試料と実験方法

### 3.1 試料の作製と評価

測定に用いた試料は、すべて NTT 基礎研究所堀越グループによって MBE 法で作製されたものである。基板として Cr を添加した半絶縁性 GaAs(100) を用い、その上に超格子層を 100~400 周期成長させた。意図的なドーピングは行っていない。

超格子の特性を決定するパラメータとして、井戸層、障壁層それぞれの厚み  $L_z$ ,  $L_b$  および GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  超格子の場合の混晶比  $x$  があるが、作製された超格子においてこれらの値が多少設計値からずれることがある。そこで X 線回折によって非破壊的に超格子試料の評価を行った [54]。図 3-1 に X 線ロックンガープの概念図を示す。超格子層の平均的な格子定数は GaAs 基板と若干異なっているため、基板からの (004) 反射の低角度側に超格子層からの 0 次反射ピークが分離して観測される。この分離は非常に小さい ( $<300\text{sec}$ ) ため、分解能の高い 2 結晶法を用いた。これに加えて、長周期構造により 0 次のピークの高角度側、低角度側それぞれに高次のサテライトピークが観測される。こうして求めた GaAs 基板と 0 次のピークの差を  $\Delta\theta_{0,s}$ , 0 次のピークと 1 次のピークとの差を  $\Delta\theta_{0,+1}$  とすると、超格子の周期  $d = L_z + L_b$ , および平均的な Al 含有率  $\bar{x}$  は、(004) 反射の場合次の式によって決定される。

$$d = \frac{189443}{\Delta\theta_{0,+1}} \quad (3.1)$$

$$\bar{x} = \frac{\Delta\theta_{0,s}}{371} \quad (3.2)$$

ただし、角度の単位は [sec] である。 $d$  と  $\bar{x}$  から  $L_z$ ,  $L_b$ ,  $x$  を求めるには次の式を用いる。

- GaAs/AlAs の場合

$$L_z = d(1 - \bar{x}) \quad (3.3)$$

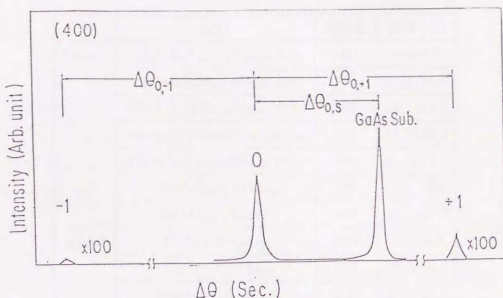


図 3-1: 超格子の X 線ロックカーブ。

$$L_b = d\bar{x} \quad (3.4)$$

• GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  の場合

$$L_z = \frac{t_z}{t_z + t_b} d(1 - \bar{x}) \quad (3.5)$$

$$L_b = \frac{t_b}{t_z + t_b} d(1 - \bar{x}) + d\bar{x} \quad (3.6)$$

$$\bar{x} = \left(1 + \frac{L_z}{L_b}\right) \bar{x} \quad (3.7)$$

ただし、 $t_z$ ,  $t_b$  はそれぞれ井戸層、障壁層の成長時間を表す。

測定用に準備した試料の一覧を表 3.1 に示す。膜厚は以上のようにして X 線回折により決定した値である。 $(\text{GaAs})_m/(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As})_n$  と書いた場合の  $m$ ,  $n$  は、膜厚を単位層の厚み  $2.83\text{\AA}$  で割り算した際の最も近い整数値とした。実際には、ヘテロ界面において 1 原子層程度の膜厚揺らぎがあるが、X 線回折では平均的な膜厚値が求まるので、いくつかの試料でみられるように単位層厚の整数倍からかなりずれる場合もでてくる。以後、 $(m, n)$  で各試料を表示する。

さて、パルス強磁場下で吸収スペクトルを測定するためには、エピタキシャル成長された超格子試料層よりもバンドギャップの小さな GaAs 基板を取り除かなければならない。そこで、次に試料の加工法について述べる。

まず適当な大きさに劈開した試料を、アルミナ粉末で  $150\mu\text{m}$  程度になるまで研磨し、さ

	試料	周期数	膜厚 (Å)
type-I	(GaAs) <sub>3</sub> /(Al <sub>0.51</sub> Ga <sub>0.49</sub> As) <sub>3</sub>	400	8.6/8.8
	(GaAs) <sub>6</sub> /(Al <sub>0.51</sub> Ga <sub>0.49</sub> As) <sub>6</sub>	100	17.6/18.0
	(GaAs) <sub>7</sub> /(Al <sub>0.47</sub> Ga <sub>0.53</sub> As) <sub>5</sub>	200	19.7/14.0
	(GaAs) <sub>6</sub> /(Al <sub>0.50</sub> Ga <sub>0.50</sub> As) <sub>18</sub>	100	16.5/49.3
	(GaAs) <sub>8</sub> /(Al <sub>0.47</sub> Ga <sub>0.53</sub> As) <sub>17</sub>	100	22.5/47.7
	(GaAs) <sub>14</sub> /(AlAs) <sub>6</sub>	100	38.8/16.6
	(GaAs) <sub>15</sub> /(AlAs) <sub>13</sub>	100	41.5/37.0
type-II	(GaAs) <sub>3</sub> /(AlAs) <sub>5</sub>	200	8.7/14.2
	(GaAs) <sub>5</sub> /(AlAs) <sub>6</sub>	200	13.6/16.6
	(GaAs) <sub>9</sub> /(AlAs) <sub>10</sub>	200	25.6/28.3
	(GaAs) <sub>6</sub> /(AlAs) <sub>25</sub>	100	16.0/69.8
	(GaAs) <sub>2</sub> /(AlAs) <sub>2</sub>	—	—
	(GaAs) <sub>4</sub> /(AlAs) <sub>4</sub>	—	—

表 3.1 : 試料の一覧。

らに 80~90 $\mu$ m になるまで CH<sub>3</sub>OH:Br(9:1) の混液で化学的に研磨し平坦な表面を得る。これを必要な大きさに劈開し、厚み 0.3~0.5mm の石英板に CREST 7344 で接着した。次に PA30(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>:NH<sub>4</sub>OH=30:1) を用いてエッチングを行い、残りの GaAs 基板を完全に取り除いた。これは選択エッチングで、超格子層中の Al を含んだ層で自動的にエッチングが止まるようになっている。ただしそのためには Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 中の Al 含有率  $x$  がある程度大きくないければならないため、本研究で取り上げた試料は全て  $x \geq 0.47$  となっている。

## 3.2 強磁場の発生方法

この節では、磁気光学的測定に用いた強磁場の発生方法を説明する。

### 3.2.1 強磁場発生の現状

強磁場を発生させるには、図 3-2 にまとめたように種々の方法が用いられている。定常磁場の発生方法として比較的良好に用いられる超伝導マグネットは最高 20T 程度、これと水冷式マグネットを組み合わせたハイブリッドマグネットだと定常磁場としては最高の 30T 程度



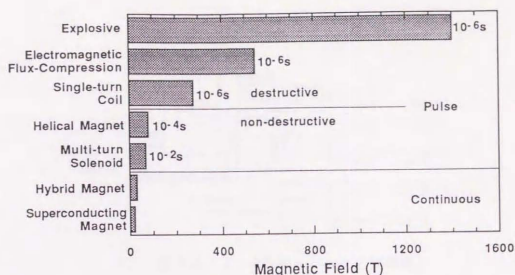


図 3-2: 種々の強磁場発生方法。時間はおよその磁場パルス幅を表す。

が発生可能であるが、これ以上の強磁場はパルスのな方法で初めて可能となる。非破壊的なパルスマグネットとしては、引っ張り強度の強い線材を多層巻にした巻線型コイルや、円柱形の鋼材から直接コイルを削り出したヘリカルコイルがあり、これらにコンデンサーバンクから放電することにより、それぞれ  $10^{-2}s$ 、及び  $10^{-4}s$  程度の幅を持った正弦波的なパルス磁場が発生される。ただし、非破壊的に発生可能なパルス磁場は現時点では  $60\sim 70T$  どまりで、さらに強い磁場を発生しようとすると、コイルに働く磁場の自乗に比例したマクスウェル応力が材料の強度を超えるため、破壊的な方法に頼らざるを得ない。

物性研究所超強磁場施設には、多層巻きコイル (Multi-turn Solenoid) を用いた非破壊的な方法に加えて、破壊的な方法として  $100T$  以上の超強磁場が発生可能な一巻きコイル (Single-turn Coil) 直接放電法、および電磁濃縮法 (Electromagnetic Flux-Compression) の3種類のパルス磁場発生方法がある。以下、本研究で用いた非破壊パルス磁場、及び一巻きコイル直接放電法について説明する。

### 3.2.2 非破壊パルス磁場

本研究で用いた巻線形コイルによる非破壊パルス磁場は、発生可能な最高磁場は  $50T$  程度にとどまっているものの、後で述べる一巻きコイル直接放電法に比べて磁場のパルス幅が3桁程長く ( $\sim 10^{-2}s$ )、分光測定も比較的容易に行えるという利点を有する。

図 3-3 に、非破壊パルス磁場発生に用いたコンデンサーバンクの回路図を示す。バンクの最高蓄積エネルギーは  $300kJ$  で、容量は  $6mF$  ないしは  $24mF$  に切り替えて使用すること

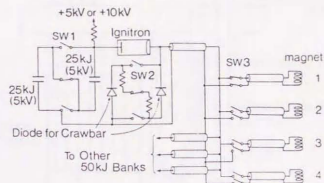


図 3-3：コンデンサーバンクの回路図。

ができる。

図 3-4 にパルスマグネットの外形と断面を示す。線材としては、引っ張り強度の強い超伝導芯線の入った Cu/NbTi を用いている。ただし、測定時には、抵抗を小さくして発熱を抑えるなどの理由によりマグネットを液体窒素温度 (77K) で使用するので、電流は外側の Cu 層を流れ、NbTi は線材の強度をもたせるだけの役目をしている。強磁場発生時に線材に作用する大きなマクスウェル応力に耐えるには、さらに線材を何らかの手段で補強する必要がある。当研究室では、従来エポキシ樹脂をマグネットに含浸させるという方法を用いていたが、今回これに変わる新しい方法として、氷とガラス繊維による補強法を開発した [55]。

パルスマグネットの作製は次のような手順で行う。

1. 厚さ 0.5mm のステンレスパイプとガラスエポキシ製のフランジで作ったボビンに、巻線器で軽く引っ張りながら ( $\sim 2\text{kgf/mm}^2$ ) 線材を巻いていく。特に力を受けやすい内側の 3～6 層目までは、層間にガラス繊維を巻く。
2. 電極のハンダ付け等を行った後、全体の外径がマグネットを入れるステンレス容器の内径に達するまで、さらに線材の外周に沿ってガラス繊維を巻き付ける。
3. しばらく水につけて水分をしみこませた後にマグネットをステンレス容器に設置し、ナイロンチューブを通じて容器内に水を導入する。
4. 破壊テストの場合には専用の防護箱に、測定の場合にはクライオスタットにマグネットを取り付け、液体窒素で冷やして水を凍らせる。

以上のような行程で、線材及びその絶縁方法、ボア径、層数などのパラメータを変えなが

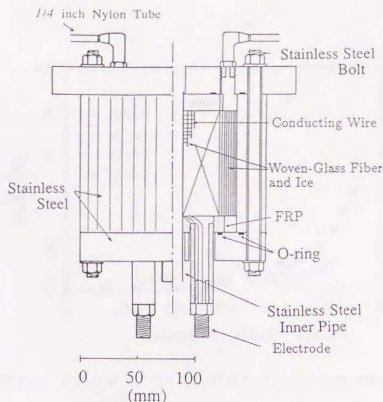


図 3-4：氷とガラス繊維で補強した非破壊パルス磁場用マグネット。

らマグネットを作製し、その最高磁場をテストした。

磁場の検出は、径 7~8mm、巻数 20~30 回のピックアップコイルをマグネット内に挿入し、これに誘導される起電力を積分器、及び増幅器を通して瞬間波形記録装置に取り込むことにより行った。毎回磁場を発生させた後にはマグネットの抵抗、及びインダクタンスをモニターした。図 3-5 は破壊テストにおけるマグネットのインダクタンス変化  $\Delta L/L$  である。このようにマグネットの変形をインダクタンスの変化としてとらえることができ、特に破壊の直前には急激にインダクタンスが上昇していることがわかる。図中 IRC-1 及び IRC-2 は線材としてただの Cu 線を用いたもので、引っ張り強度が弱いためより弱磁場でインダクタンスが増加し始め、最高到達磁場も低い。

図 3-6 は最高磁場を記録したマグネットのパルス磁場波形である。これらのマグネットにおいては、線材自身の絶縁材としてはホルマル被覆のみのものを用いており、ガラス繊維は層間にのみ入れてある。その結果、従来に比べて 1 層あたりの巻数が増えて (20→24 turns/layer) 充填率が向上している。最高 57.5T を記録したマグネット IRN-4 のパラメータをまとめると以下のようになっている。

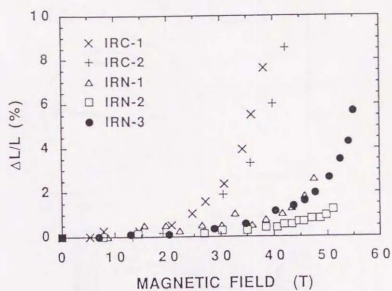


図 3-5: マグネットテストにおけるインダクタンスの変化。

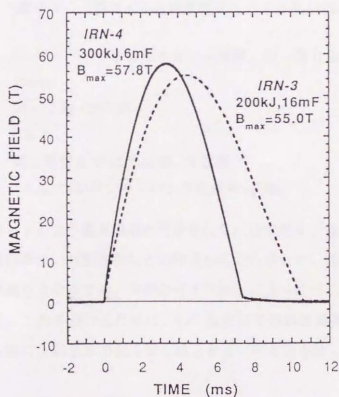


図 3-6: 最高磁場を記録したマグネットのパルス磁場波形。

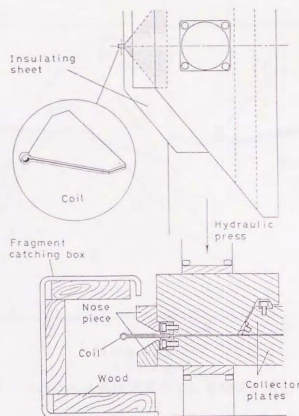


図 3-7 : 一卷コイル直接放電法のコイル周辺部。

- 線材 : Cu/NbTi( $\sim 50\mu\text{m}$  厚ホルマル被覆、引っ張り強度  $52\text{kgf/mm}^2$ )  
 ボーア径 :  $16\text{mm}$   
 総巻数 :  $24 \times 12$  層 = 288 回  
 充填率 : 0.9  
 ガラス繊維 : 第 6 層目まで  $150\mu\text{m}$  厚、2 重巻  
 パルス幅 :  $7.5\text{ms}$ (コンデンサーバンク容量  $6\text{mF}$  時)

この氷方式のマグネットにより最高磁場が更新されただけでなく、強磁場発生後の冷却効率の向上、簡便で再現性の良い作製過程などの利点もたらされた。逆に難点として、室温から冷却する際の水の凍り方次第では、内側のパイプが氷によってつぶされる場合もあるということが挙げられる。これを避けるために、 $40\text{T}$  程度までの磁場範囲で使用するときには、最初にステンレス容器に入れる水の量を少し減らすという方法を取った。

### 3.2.3 一卷コイル直接放電法

一卷コイル直接放電法は図 3-7 の挿入図に示したような形の、 $3\text{mm}$  厚の銅板を折り曲げ



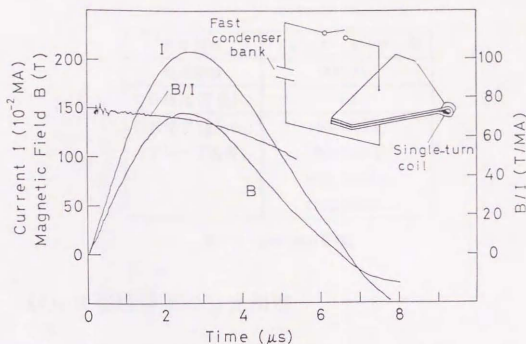


図 3-8: 一巻コイル直接放電法による磁場、及び電流波形。

てつくった一巻コイルに 100kJ 高速コンデンサーバンクから大電流を放電し、コイルが破壊される前に直接超強磁場を発生する方法である [56]。小さな径 (～3mm) のコイルを用いることにより最高 280T 程度まで発生可能であるが、通常の光学測定に用いた 10mm 径のコイルでは約 150T の最高磁場が得られる。これは電磁濃縮法などとは異なりコイルが外側に破壊されるため、コイル内に挿入された試料ホルダー等が破壊されずに残るのが特徴である。図 3-8 は発生される磁場と電流の波形を比較したものである。磁場発生と同時にコイルの変形が始まるため、磁場のピークは電流のピークの前に起こり、また、 $B/I$  は時間とともに減少する。パルス幅は約 6μs と非破壊パルス磁場に比べて 3 桁ほど短くなっており、それに伴って光学測定を行う際の積分光量も小さくなるため、後で述べるように測定系には特別の工夫を要する。

磁場の測定は、径 2～3mm のベークライトパイプに一巻したピックアップコイルをあらかじめ校正しておき、これに誘導される起電力を積分することにより行った。波形記録には電圧分解能 8 ビット、時間分解能 5ns のプログラマブルデジタイザー (ソニーテクトロニクス社 7612 型) を用いた。

光学形式	ツェルニーターナー形
焦点距離	320mm
口径比 (F 数)	4.2
回折格子 (g/mm)	150(5000Å)
(ブレース波長)	300(5000Å)
	600(5000Å)
	1200(5000Å)

表 3.2 : 分光器の仕様。

### 3.3 パルス強磁場下の分光測定

#### 3.3.1 非破壊パルス磁場における分光測定

非破壊パルス磁場における磁気光吸収測定のプロックダイアグラムは図 3-9(a) のようになっている。定常的な条件下での測定においては、通常、吸収スペクトルの代わりに励起スペクトル (Photoluminescence Excitation: PLE) を測定することが多い。これは単色光の励起波長をスキャンしながらバンド端の発光強度の変化を測定する方法で、GaAs 基板を取り除く必要がないなどの利点がある。しかし、パルス強磁場下での測定においては、短い磁場パルスの持続時間内に測定を終えなければならないため、上の方法を用いることはできない。そこで、白色光光源としてキセノン・フラッシュランプ (イーグル商事 ストロボパワーフラッシュ XF-300E) を使い、光吸収スペクトルを測定した。光源の光は光ファイバーによってクライオスタット内に導入し、液体ヘリウムによって 4.2K に冷やした試料を通過した透過光を、再び光ファイバーによって分光器に導く。分光器 (Jobin Yvon HR-320) の仕様を表 3.2 に示す。分光されたスペクトルの検出には、約 700 個のダイオードアレイを備えた Optical Multichannel Analyzer (EG & G OMA III) を用いた。図 3-9(b), (c) に示すように Faraday 配置 ( $B_{//}c_{//}k$ ) および Voigt 配置 ( $B_{\perp}c_{//}k$ ) で測定が可能である。ただし  $c$  は超格子面に垂直な法線ベクトル、 $k$  は光の波数ベクトルである。必要に応じて試料と光ガイドの間に円偏光板を挿入した。

測定時は図 3-10 のように、パルス磁場波形の頂上付近の磁場がほぼ一定とみなせる領域で OMA のゲートを 1ms 開き、これに光源の発光タイミングを同期させて強磁場下の光信号を取り込んでいる。OMA ゲートを開いている間の磁場変化は約 1% である。

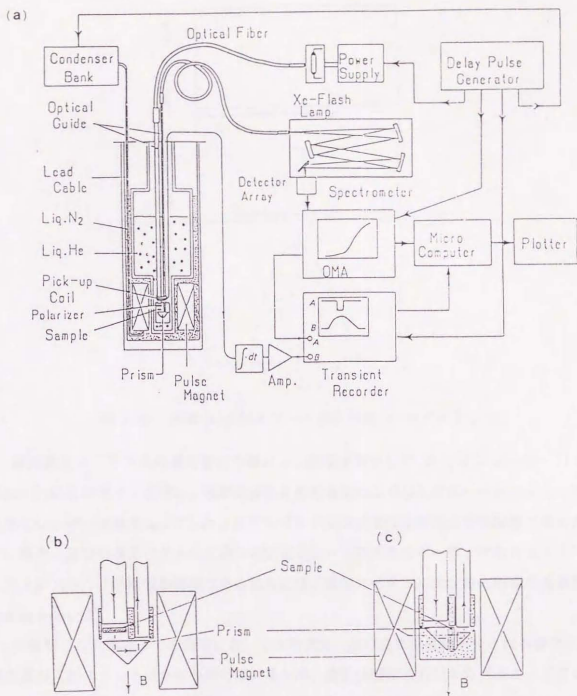


図 3-9: 非破壊パルス磁場における磁気光吸収測定のプロックダイアグラム (a)、Faraday 配置 ( $B_{\perp}$ ) 用試料ホルダー (b)、Voigt 配置 ( $B_{\parallel}$ ) 用試料ホルダー (c)。

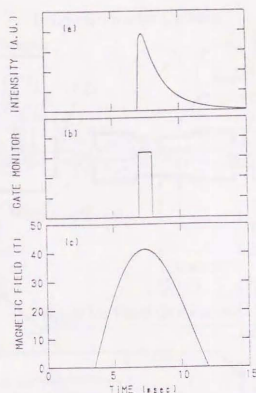


図 3-10 : 光源 (a), OMA ゲート (b), 磁場 (c) のタイミング。

磁気発光スペクトルの測定を行う際には、励起光源として Ar イオンレーザー (LEXEL 95) の  $5145\text{\AA}$  のラインを用い、試料の加熱を抑えるために OMA のゲートとタイミングをあわせてレーザー光をチョップした。発光スペクトルは通常は反射型の光学配置で測定されるが、発光、及び吸収スペクトルにおける励起子ピークのエネルギー差、すなわちストークスシフトが大きく、再吸収が無視できる場合には、吸収スペクトル測定時と同様の透過型の光学配置を用いた。

非破壊パルス磁場下での測定においては透過光、及び発光強度が十分とれる場合が多く、分光器の入射スリットはかなり閉じているため、波長分解能は OMA のダイオードアレイの解像力でほとんど決まる。測定条件に応じて回折格子を換えることにより、分解能を  $3\sim 12\text{\AA}$  の間で選んだ。

### 3.3.2 超強磁場におけるストリーク分光測定

一卷コイル直接放電法によって発生される  $150\text{T}$  に及ぶ超強磁場下での光学測定においては、磁場のパルス幅が数  $\mu\text{s}$  と非常に短くなることに起因する数々の困難が伴う。ここでは、イメージコンバータカメラを用いてストリーク分光を行った。

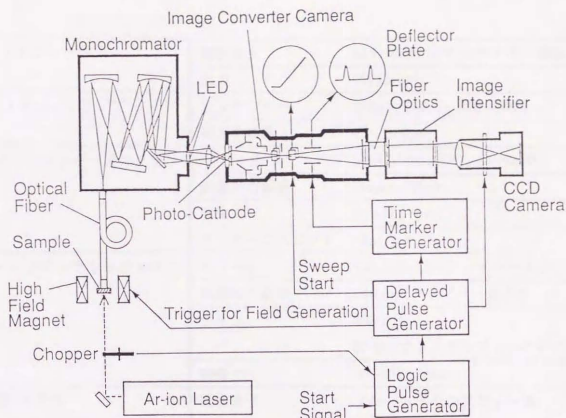


図 3-11: 超強磁場下ストリーク分光測定のプロック図。

図 3-11 に、ストリーク分光装置を用いた磁気発光スペクトル測定のプロック図を示す。励起光源として Ar イオンレーザー (LEXEL 3000) のマルチライン発振線 (波長 455–529nm) を使い、ミラー系で試料に照射した。典型的な励起強度は  $100\text{W}/\text{cm}^2$  である。一方、光吸収スペクトルの測定においては、白色光の光源として Xe フラッシュランプ (イーグル商事 LX-300) を使い、レンズで試料上に集光した。試料からの発光、及び透過光は光ファイバーによって分光器に導いた。分光器は非破壊パルス磁場下での測定に用いたのと同じ型のもの (Jobin Yvon HR-320) を使用した。分光器の射出スリット上に結んだスペクトル像をイメージコンバータカメラ (Hadland Photonics IMACON-792) のフォトカソード上に受け、電子ビームに変換して高速で掃引することにより時間分解スペクトルが画像データとして得られる。この掃引をパルス磁場の発生と同期させて行うことにより、最高磁場までのあらゆる磁場におけるスペクトルの変化を一度に測定することができる。ただし、これだけでは十分な光量が得られないので、さらにイメージインテンシファイア (Hadland Photonics Model 80/40) で増幅を行う。これはイメージコンバータカメラの蛍光スクリーンと光ファイバーで結合されており、従来のレンズを用いた方式に比べ光の損失を減らしている。次に、増幅された出力画像を対向させた 2 種のニッコールレンズ (180mm  $F=2.8$ , 50mm  $F=1.2$ ) を通じて



Ar イオンレーザー	発振波長	455-529nm(マルチライン発振)
	出力	7W(Max)
Xe フラッシュランプ	コンデンサー	125 $\mu$ F/250 $\mu$ F, 350~500V
	発光半値幅	75~100 $\mu$ s
イメージコンバータカメラ	カソード	S20UV 9mm(H) $\times$ 15mm(W)
	画像出力面積	30mm $\times$ 60mm
	解像力	8~12Lp/mm
	ストリークスピード	12ns/mm
イメージインテンシファイア	カソード	S20 $\phi$ 80mm (ファイバー入力)
	画像出力面積	$\phi$ 40mm(ファイバー出力)
	ゲイン	360fL/fc 50 倍(フォトリソグラフィックゲイン)
	解像力	30~60Lp/mm
CCD カメラ	撮像素子	フレームトランスファー型 CCD 固体撮像素子
	有効画素数	1018(H) $\times$ 1000(W)
	画素サイズ	12 $\mu$ m $\times$ 12 $\mu$ m
	A/D 分解能	12bit

表 3.3: 光学系の仕様。

CCD カメラ (浜松ホトニクス Model C-3640) に取り込み、光磁気ディスクに記録する。以前はストリーク画像を一たん写真に記録していたが、今回 CCD カメラを導入したことにより画像データを直接コンピューターで扱えるようになり、以後のデータ処理の効率、並びに測定精度が著しく向上した。表 3.3 に光学系の仕様をまとめた。ストリークスピード (掃引速度) やイメージインテンシファイアのゲイン等は可変であるが、実際の測定に用いた値を示した。

図 3-12 にコイル及びクライオスタット周辺の図を示す。一卷コイルの破壊は外側に向かって起こるとはいえ、クライオスタットは多数回使用すると疲弊し真空度が低下するので、比較的容易に作製・交換ができるようになっている。光軸を確保するため内径 2~3mm のベークライト (フェノール樹脂) パイプが中心に通っており、この中にポリイミドチューブに固定した試料を挿入する。中央のパイプにクライオスタット背面から直径 1.8mm の光

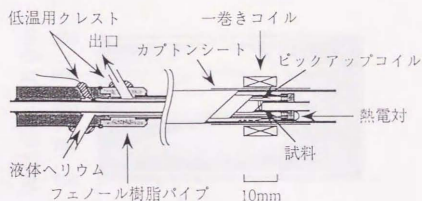


図 3-12：一巻コイル用クライオスタット。

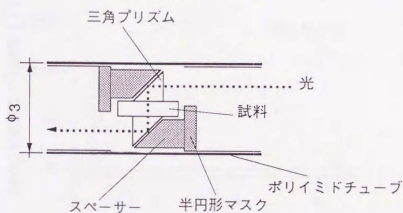


図 3-13：フォークト配置における試料の固定の様子。

ファイバーを試料直後まで挿入し、信号光を集めた。場合によっては、入射側にも光ファイバーを用いた。また、必要に応じて入射光と試料の間に円偏光板を挿入した。ファラデー配置 ( $B_{\perp}$ ) での測定は比較的容易だが、微小なプリズム ( $1 \times 1 \times 2\text{mm}$ ) を用いることにより、磁場を試料面に平行に印加するフォークト配置 ( $B_{\parallel}$ ) での測定も試みた。その際の試料の固定の様子を図 3-13 に示す。

試料の冷却はクライオスタット内に液体ヘリウム (低温ヘリウムガス) を流すことにより行った。最低到達温度は 10K 程度である。クライオスタットは真空容器の中に設置されており、冷却する際には容器内をヘリウムガスで置換する。内部に空気などの残留ガスが残っていると、低温にしたときに試料上に凝結して光を妨げる原因となるが、一たん置換を行った後にさらにヘリウムガスをクライオスタット周辺に流して残留ガスをパージし、容器内をヘリウム 1 気圧に保ったまま冷却を行うことにより、クライオスタットの真空度がさほど良くない場合でも、低温において光量の低下が起こらなかった。温度は試料近傍に設置した熱電対でモニターした。

図 3-14 に  $(\text{GaAs})_{15}/(\text{AlAs})_{13}$  の磁気光吸収測定において得られたストリーク画像を例と

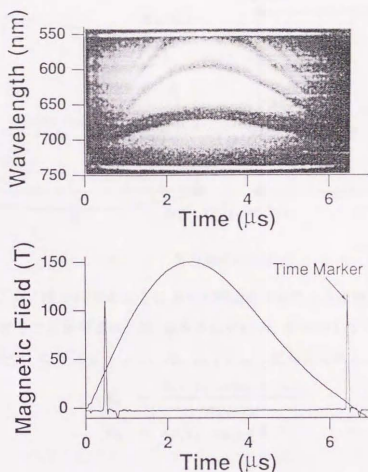


図 3-14: ストリーク画像と磁場波形。

して示す。掃引は時間軸に沿って左から右へ行っている。磁場とともに、いくつかの吸収線が短波長側にシフトしている様子がわかる。像の上下にはほぼ平行に走っている 2 本の白い線は、分光器の射出スリットの両端に取り付けられた発光ダイオードによるマーカーで、波長校正用の基準点として用いる。また、掃引中に図 3-14 下図のようなタイムマーカーパルスをイメージコンバータカメラの偏向プレートに 2 回加えて像を振らせ、磁場との時間的な対応付けに用いる。

一卷コイルを用いた測定は磁場のパルス幅が短いため光量が不十分で、分光器の入射スリット (波長分解能)、及び射出スリット (時間分解能) をかなり開けて、分解能を若干犠牲にせざるを得なかった。典型的な波長分解能は  $20\text{\AA}$  (入射スリット幅  $0.2\text{mm}$ 、回折格子  $300\text{g/mm}$ )、時間分解能は  $80\text{ns}$  (射出スリット幅  $1.0\text{mm}$ ) である。後者は磁場に換算すると、最高  $150\text{T}$  の磁場パルスの掃り (磁場発生から  $4\sim 5\mu\text{s}$  後) において約  $2.5\text{T}$  の誤差に相当する。ただし、時間分解能が悪くても磁場パルスの頂上付近では磁場の誤差は大きくならない。

次に、データ処理の手順を説明する。実際には掃引の際に画像が歪むため、これを補正

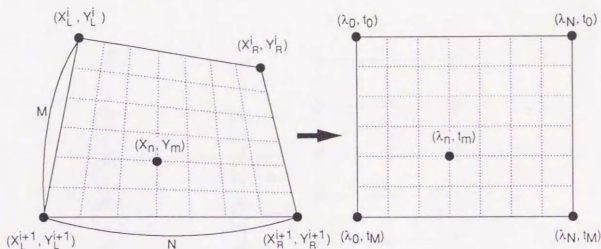


図 3-15 歪み補正の模式図。

する必要がある。今、図 3-15 左のような歪んだ四辺形を右のように補正し、横軸を波長、縦軸を時間に変換することを考える。横、縦をそれぞれ  $N, M$  等分してつくった格子上の点の座標  $(X_n, Y_m)$  ( $0 \leq n \leq N, 0 \leq m \leq M$ ) は、以下のように与えられる。

$$X_n = \frac{b_0 - b_1 - r_0 a_0 + r_1 a_1}{r_1 - r_0} \quad (3.8)$$

$$Y_m = r_0(X_n - a_0) + b_0 \quad (3.9)$$

ここで、

$$a_0 = X_L^i + \frac{m}{M}(X_L^{i+1} - X_L^i) \quad (3.10)$$

$$a_1 = X_L^i + \frac{n}{N}(X_R^i - X_L^i) \quad (3.11)$$

$$b_0 = Y_L^i + \frac{m}{M}(Y_L^{i+1} - Y_L^i) \quad (3.12)$$

$$b_1 = Y_L^i + \frac{n}{N}(Y_R^i - Y_L^i) \quad (3.13)$$

$$r_0 = \frac{Y_R^i - Y_L^i + m/M(Y_R^{i+1} - Y_R^i - Y_L^{i+1} + Y_L^i)}{X_R^i - X_L^i + m/M(X_R^{i+1} - X_R^i - X_L^{i+1} + X_L^i)} \quad (3.14)$$

$$r_1 = \frac{Y_L^{i+1} - Y_L^i + n/N(Y_R^{i+1} - Y_L^{i+1} - Y_R^i + Y_L^i)}{X_L^{i+1} - X_L^i + n/N(X_R^{i+1} - X_L^{i+1} - X_R^i + X_L^i)} \quad (3.15)$$

である。このようにして、波長  $\lambda_n$ 、時間  $t_m$  に対応する点  $(X_n, Y_m)$  が求まった。実際には図 3-16 のように LED マーカーを周期  $1\mu s$  の矩形波で変調しながら掃引して歪み補正用の画像を得、丸印をつけた点を頂点とする 6 個の四辺形 ( $1 \leq i \leq 6$ ) に全体を分割して、個々の四辺形に対して格子の刻みを CCD の 1 画素とおいて上の操作を行った。これにより掃引速度の非線形性も同時に補正できる。

画像の歪み補正を行った後、吸収測定の場合は、透過ストリーク画像と零磁場における光源のストリーク画像の間で CCD の 1 画素ごとに割り算を行い、光源のスペクトル構造、

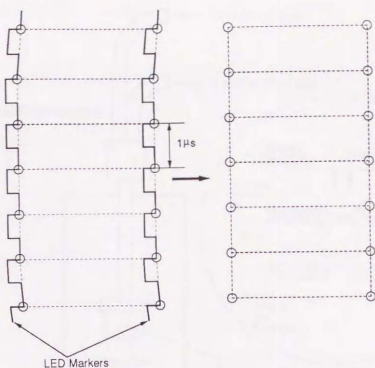


図 3-16: LED マーカーを用いた歪み補正。

測定装置の波長・時間特性などを補正する。また、発光測定の場合は、零磁場での発光ストリーク画像よりイメージコンバータカメラの出力強度に関する時間特性を求め、強磁場下のデータの強度補正を行った。

1枚の画像データは2メガバイトものメモリーを消費するため、データを大型コンピューター (FACOM M-380R) に転送して以上の処理を行った。

### 3.4 静水圧下での分光測定

本研究は磁気光学的測定を主眼としているが、相補的な手段としてダイヤモンドアンビセル (DAC) 用いて約 30kb に及ぶ静水圧下での発光測定も行った。

図 3-17 に測定系の模式図を示す。DAC は物性研究所八木研究室のものを用いた。挿入図に試料周辺の拡大図を示す。厚み 0.2mm のステンレスガセットに開けた直径 0.7mm の穴に試料、圧力媒体、ルビー粉末を入れ、2 個のダイヤモンドではさみ込むことにより静水圧を発生させる。圧力媒体にはメタノール:エタノール=4:1 の混液を用いた。圧力値はルビーの  $R_1$  発光線のピークシフトより次の式から求めた。

$$P = 2.74 \Delta \lambda \quad (3.16)$$



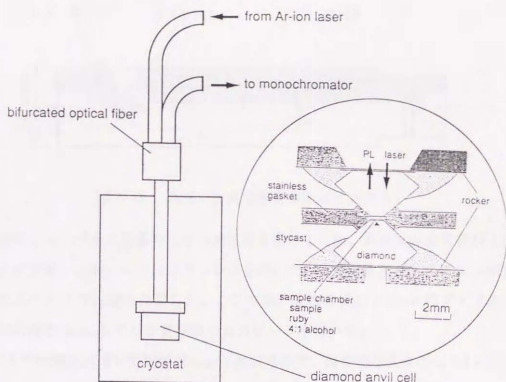


図 3-17: ダイヤモンドアンビルセルを用いた静水圧下発光測定の様式図。

ここで  $P$  は圧力 (単位 kbar)、 $\Delta\lambda$  は発光波長の変化 (単位  $\text{\AA}$ ) である。ダイヤモンドの加圧面の直径は 1mm である。2つのダイヤモンド面間の平行度や、ガスケットも含めた全体の中心合わせには細心の注意を要するので、顕微鏡下で作業を行った。室温で加圧後、DAC を液体ヘリウムで 4.2K に冷却して発光測定を行った。光学系としては、直径 1.5mm でダイヤモンドアンビルに接触する面のみ 1.0mm にテーパをつけて細くした石英光ファイバーを用い、1本で励起レーザー光の入射、及び発光の取り出しを兼用させた。この石英光ファイバーに、二股に分かれたバンドル型の光ファイバーケーブルをクライオスタットの外で接続し、片方からレーザー光を入射し、もう一方を分光器に導いた。圧力値を変える場合には、一たん DAC を室温に戻してからダイヤモンドに対する負荷を変えた。一般に室温で設定した圧力と 4.2K に冷却した後の圧力値は異なり、特に急冷した場合には室温での値の 2~3 倍の値になった。

大気圧下の場合も含め、零磁場においては OMA ではなく、光電子増倍管を用いたロックイン交流増幅法によって分光測定を行った。

静水圧下での分光測定はそれだけでも貴重な情報を与えるが、さらに強磁場と組み合わせることにより、いわば多重極限状態 (高圧+強磁場) という新しい局面が開かれる。そこで、今回図 3-18 のような、パルスマグネット中に挿入可能な小型のダイヤモンドアンビルセル

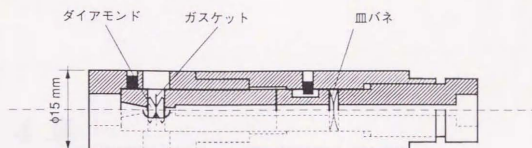


図 3-18：高圧・強磁場多重極限用圧力セル。

を新たに設計した。パルス磁場発生時の渦電流を避けるため、本来は非金属材料でセルを作製することが望ましいが、今回はステンレスを用いた。また、直接ダイヤモンドが接触するブロックのみベリリウム銅で作製した。ここでは、先端の径が 0.8mm のダイヤモンド、及び試料室の内径が 0.6mm のリン青銅製のガスケットを用いた。

静水圧下での測定に用いた試料は GaAs 基板付きで、典型的な大きさは  $0.4 \times 0.4 \times 0.1$  mm である。

## 第 4 章

# タイプ I GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 短周期超格子の磁気光学スペクトル

この章ではタイプ I (直接遷移型) GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 短周期超格子における強磁場下磁気光学スペクトルの測定結果を種々のエネルギー準位の数値計算とあわせて議論し、そのバンド構造及び励起子状態に見られる特徴を議論する。

### 4.1 零磁場下の吸収スペクトル

図 4-1 に代表的なタイプ I 超格子  $(\text{GaAs})_m/(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As})_n = (m, n)$  の 4.2K におけるバンドギャップ近傍の吸収スペクトルを示す。この章で取り上げる試料は (14,6) のみ  $x=1$  で他はすべて  $x \approx 0.5$  である。いずれの試料においても重い正孔 (hh) 及び軽い正孔 (lh) と電子との励起子吸収ピークが分離されて観測されている。超格子構造によるサブバンドエネルギーの大きなものほど吸収端が高エネルギー側にシフトしている。(8,17) は障壁層が厚く、異なる井戸間の結合が無視できる量子井戸型試料であるため、(6,6) よりも井戸層の幅が大きいかかわらず吸収端のエネルギーが高くなっている。また、(8,17) の励起子ピークの半値幅は他の短周期試料に比べて著しく大きくなっているが、これは次のように考えられる。近年薄膜結晶成長技術が進歩したとはいえ完全に平坦なヘテロ界面をつくるのは不可能で、実際には図 4-2 のように単原子層厚  $a/2 = 2.83\text{\AA}$  程度の乱れは避けられない。励起子はボーア半径 ( $\approx 100\text{\AA}$ ) の範囲内で平均した膜厚を感じるので、このような界面の乱れがあると、励起子のエネルギーが場所によって分布を持つことになる。仮に無限井戸で考えることにして、理想的な井戸幅  $L_z$  から  $\Delta L_z$  だけずれたとすると、これに対応するエネルギーの揺らぎは、式

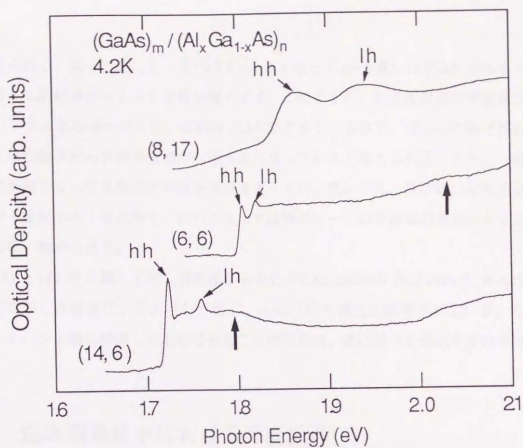


図 4-1 : タイプ I 超格子の光吸収スペクトル。

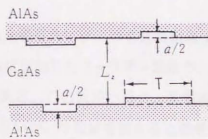


図 4-2 : ヘテロ界面の不均一の模式図。

(2.15) を  $L_z$  で微分することにより

$$\Delta E = \frac{\pi^2 \hbar^2}{m^*} \left( \frac{\Delta L_z}{L_z^3} \right) \quad (4.1)$$

と与えられる。従って  $\Delta L_z$  を一定 ( $\approx 2.83 \text{ \AA}$ ) とすると  $L_z$  が小さいほど  $\Delta E$  が大きくなり、それに伴って励起子ピークの半値幅が増大する。このように、たとえ界面の平坦度が同じでもサブバンドエネルギーの大きい試料ほど  $\Delta E$  が大きくなるので、図 4-1 に掲げた試料のうち (8,17) の励起子ピークの半値幅が一番大きくなっていると考えられる。また、一般に超格子の周期が短くなって 3 次元的性質を帯びるとともに、重い正孔、及び軽い正孔の励起子のエネルギー差が小さくなるので、試料によっては吸収ピークの半値幅の増大によって両者が分離されない場合もある。

(6.6) と (14.6) に関しては、吸収端からそれぞれ約 200 meV 及び 60 meV 高エネルギー側の矢印で示した位置に、ミニバンド端 ( $k_z = \pm \pi/d$ ) の構造が観測されている。これらの構造がミニバンド端に関連したものであることの同定は、後に述べる磁気光学的測定によって行う。

## 4.2 短周期超格子における垂直伝導

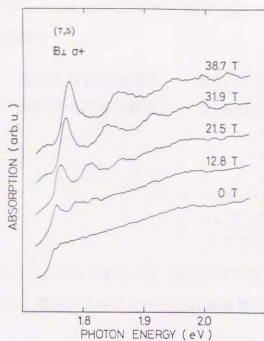
ここでは、200 meV 以上にも及ぶ非常に幅の広いミニバンドが形成されていて、面に垂直方向のキャリアの伝導が可能であるような短周期超格子 (7.5) を取り上げ、ランダウ準位の数値計算とあわせて議論する。

### 4.2.1 実験結果

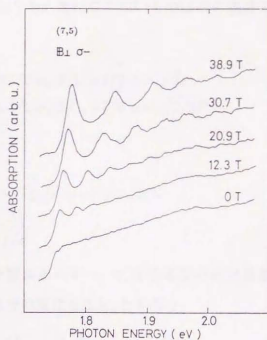
図 4-3 に試料 (7.5) の磁気光吸収スペクトルを最高磁場まで約 10 T おきに示す。(a), (b) は磁場を超格子面に垂直 ( $B_{\perp}$ ) に印加したファラデー配置で、円偏光の向きをそれぞれ  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  と変えて測定を行ったものである。この試料の場合、零磁場では (6.6) ほど励起子吸収ピークがはっきりと観測されていないが、強磁場を加えると吸収強度を増して明瞭なピークになり、高エネルギー側に反磁性シフトしている。また、励起子ピークの高エネルギー側にランダウ準位間遷移による吸収ピークが現れ、磁場とともに間隔を広げながら高エネルギー側にシフトしている。

$\sigma^{\pm}$  に円偏光した入射光のもとで、価電子帯及び伝導帯のブロッホ関数間の運動量行列要

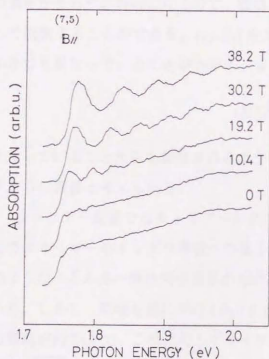




(a)



(b)



(c)

図 4-3: 試料 (7,5) の磁気光吸収スペクトル。

素  $M_{\pm} = \langle u_c | p_{\pm} | u_v \rangle = \langle u_c | p_x \pm i p_y | u_v \rangle$  のうち、零にならないものは次の場合である (複合同順)。

$$\begin{aligned} \text{重い正孔からの遷移} : M_{\pm}^h &= \langle 1/2, \mp 1/2 | p_{\pm} | 3/2, \mp 3/2 \rangle = \sqrt{2} P \\ \text{軽い正孔からの遷移} : M_{\pm}^l &= \langle 1/2, \pm 1/2 | p_{\pm} | 3/2, \mp 1/2 \rangle = \sqrt{2/3} P \end{aligned}$$

ただし

$$\begin{aligned} P &\equiv \langle S | p_x | X \rangle = \langle S | p_y | Y \rangle = \langle S | p_z | Z \rangle \\ &= \frac{m_0}{2} \frac{E_g(E_g + \Delta)}{m_c^*(E_g + \frac{2}{3}\Delta)} \end{aligned} \quad (4.2)$$

で、 $E_g$  はバンドギャップ、 $\Delta$  はスピン軌道分裂エネルギー、 $m_c^*$  は伝導帯の有効質量である。従って遷移の前後における全角運動量の  $z$  成分の変化を  $\Delta M_J$  とすると、

$$\left. \begin{aligned} \sigma^+ \cdots \Delta M_J &= +1 \\ \sigma^- \cdots \Delta M_J &= -1 \end{aligned} \right\}$$

の遷移がそれぞれ許容になるので、磁場によって分裂した異なるスピン状態間の遷移を分離して観測することができる。(a), (b) を比較すると、円偏光により吸収ピークの現れる位置がかなり異なっていることがわかる。また、吸収強度は  $|M_{\pm}|^2$  に比例するが

$$|M_{\pm}^h|^2 : |M_{\pm}^l|^2 = 3 : 1$$

となっていることから類推されるように、観測されたランダウ準位は重い正孔のサブバンドからの遷移と考えられる。

ファラデー配置ではキャリアが自由電子的な超格子面内でサイクロトロン運動を行うのでエネルギーのランダウ準位への量子化が起り、図 4-3 (a), (b) に見られたように、そのようなエネルギー準位間の遷移が光吸収スペクトルにおいて振動的な吸収ピークを与えていた。しかし、磁場を面に平行 ( $B_{//}$ ) に加えたフォークト配置では事情は異なる。今超格子の周期が約  $34 \text{ \AA}$  で、これに対してサイクロトロン軌道の半径  $l$  は、例えば磁場が  $20 \text{ T}$  のとき  $l = \sqrt{\hbar/eB} \simeq 60 \text{ \AA}$  となるので、サイクロトロン周回運動を完結させるには障壁層をトンネルしなければならない。今の試料の場合障壁層の厚みは  $14.0 \text{ \AA}$  に過ぎないので十分トンネル可能と考えられ、実際図 4-3(c) にみられるように磁場を面に平行に加えた場合にも、ランダウ準位間遷移による吸収ピークが明瞭に観測された。

逆に障壁層が厚くトンネル不可能な場合の例として、図 4-4 に、井戸層の厚みは試料 (7.5)

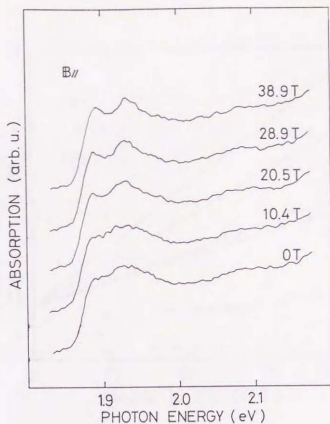


図 4-4 : 試料 (6,18) の磁気光吸収スペクトル。

とほぼ等しいが障壁層の厚みが約  $50 \text{ \AA}$  ある量子井戸型試料 (6,18) において、磁場を量子井戸面に平行に加えた際の吸収スペクトルを示した。零磁場のスペクトルを見ると、量子井戸型でサブバンドエネルギーが大きく、膜厚揺らぎ等の結晶性がより問題になってくるので、重い正孔及び軽い正孔の励起子ピークは半値幅が大きく不明瞭である。この試料でも磁場が面に垂直の場合にはランダウ準位間遷移による吸収ピークが観測されており、そのエネルギーの磁場依存性は図 4-5 のようになった。しかし、磁場を面に平行に加えた場合にはキャリアのトンネルが厚い障壁層に阻まれるためサイクロtron運動エネルギーの量子化は起こらず、各励起子ピークの反磁性シフトはみられるものの、ランダウ準位間遷移による振動的な吸収ピークは観測されていない。このことから、フォークト配置においてランダウ準位間遷移の吸収ピークが観測されるのは、面垂直方向にミニバンドを有する短周期超格子特有の性質であることがわかる。

図 4-6 は試料 (7,5) の磁気光学スペクトルにおいて観測されたピークのエネルギー位置を磁場に対してプロットしたものである。2.3節で述べたように各ランダウ準位の系列はほぼ直線上にのり、その傾きから換算質量を見積ることができる。いま超格子ポテンシャルを  $x$

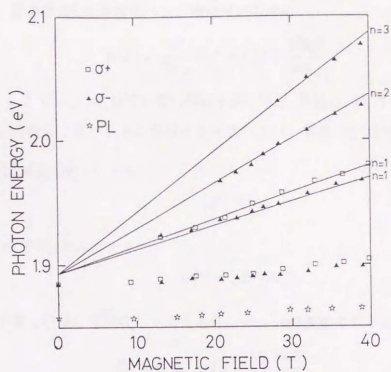


図 4-5 : 試料 (6,18) において観測された吸収及び発光ピークのエネルギーの磁場依存性。

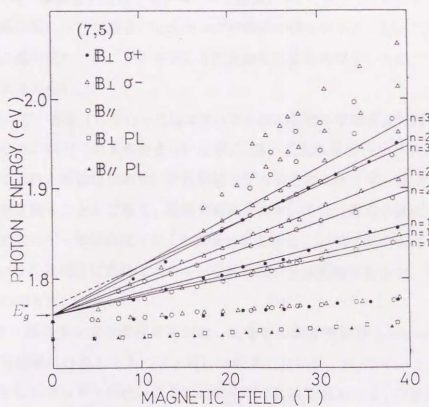


図 4-6 : 試料 (7,5) において観測された吸収及び発光ピークのエネルギーの磁場依存性。

方向にとると、伝導帯の $\Gamma$ 点近傍のバンド構造は近似的に

$$E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2}{2m_{\parallel}}(k_y^2 + k_z^2) + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m_{\perp}} \quad (4.3)$$

で与えられる。ここで $m_{\parallel}$ ,  $m_{\perp}$ はそれぞれ超格子面に平行、垂直方向の有効質量で、 $m_{\parallel} < m_{\perp}$ となっている。このようなバンドにおけるサイクロtron質量 $m_c^{(e)}$ は磁場配置に応じて、

- 磁場が面に垂直 ( $B_{\perp}$ ) のとき

$$m_c^{(e)} = m_{\parallel} \quad (4.4)$$

- 磁場が面に平行 ( $B_{\parallel}$ ) のとき

$$m_c^{(e)} = \sqrt{m_{\perp} m_{\parallel}} \quad (4.5)$$

となる。価電子帯も同様に単純化して考えると、バンド間遷移のエネルギーは

$$E_n = E_g^* + \left(n + \frac{1}{2}\right) \frac{\hbar e B}{\mu_c} \quad (4.6)$$

$$\left( \frac{1}{\mu_c} = \frac{1}{m_c^{(e)}} + \frac{1}{m_c^{(h)}} \right)$$

で与えられる ( $m_c^{(h)}$ は価電子帯のサイクロtron質量) ので、図4-6において同じ指数 $n$ と比較すると、磁場が面に平行な場合の方がランダウ準位の傾きが小さくなっている。ただしこの試料は非常に幅の広いミニバンドを有し3次元的な性質を帯びているので、 $B_{\perp}$ と $B_{\parallel}$ の異方性はさほど大きくない。

図4-6において、指数付けを行った低エネルギー側の系列を零磁場に外挿するとほぼ一点に収束し、この点が励起子効果を含まない伝導帯-重い正孔帯間のバンドギャップ ( $E_g^*$ ) に相当する。従ってこれと零磁場での重い正孔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ることができる。短周期超格子においては、界面の乱れによる易動度の低下や量子化エネルギー準位のほげがより顕著になるため、2.3節で紹介した長周期多重量子井戸の場合のように高精度に束縛エネルギーを求めることは困難であるが、およそ4~7meVと見積ることができた。

高エネルギー側のランダウ準位の系列は、伝導帯の非放物線性 (nonparabolicity) がきいてくるため零磁場に外挿してもバンド端には収束しないが、 $B_{\parallel}$ の $n=3$ の系列は $B_{\perp}$ の $n=3(\sigma^-)$ よりもエネルギーが低いにもかかわらず、直線で結ぶと $B_{\perp}$ の系列と交差し、零磁場に外挿してもバンド端に収束しない(点線)。これは次のように理解される。式(4.3)では超格子積層方向の有効質量 $m_{\perp}$ は一定であるとしていたが、実際にはミニバンドは $\cos$ 関



数的な形をしており、 $k_z = \pm\pi/d$  のミニバンド端に近づくにつれてバンドの曲率が小さくなり、 $m_\perp$  が増大する。従って、ミニバンドが関与する  $B_{//}$  の場合は、母体物質の非放物線性に加えてこうしたミニバンド構造による非放物線性も加わるため、上のような振舞いをすると考えられる。

図中には磁気発光スペクトル (PL) の測定結果も同時に比較してあるが、光吸収スペクトルにおいて観測された励起子ピークの磁場依存性とほぼ平行に反磁性シフトしている。また、両者のエネルギー差 (ストークスシフト) が約 20 meV あるが、これは今の試料における 1 原子層の界面の揺らぎにほぼ対応するエネルギーであり、試料中の局所的にエネルギーの低くなったところにキャリアが緩和して発光再結合しているためと理解できる。従って、この発光は吸収ピークと同起源の励起子の再結合によるものであると考えられ、この試料はタイプ I (直接遷移型) であることが確認された。

#### 4.2.2 エネルギー準位の数値計算

この節では磁場が超格子面に平行なフォークト配置について行ったエネルギー準位の数値計算について述べ、実験結果との比較を行う。

後で示すようにこの磁場配置では 1 次元の問題に帰着し、有効質量近似の範囲内で厳密にハミルトニアンを解くことが比較的容易に行える。計算方法としては、

1. Runge-Kutta 法により波動関数を直接求める方法

2. 格子点を基底にとってハミルトニアンを展開し、係数行列の対角化を行う方法

の 2 種類を用いた。伝導帯は主に 1 の方法で、価電子帯は 2 の方法で計算した。以下個別に見ていく。なお、計算には物性研究所の汎用大型計算機 FACOM M-380R 及び東大大型計算機センターのスーパーコンピュータ HITAC S-820 を使用した。

まず、伝導帯は s 軌道的でスピンを除けば縮退もなく、比較的取扱いは容易である。有効質量  $m^*$  の放物線バンドを仮定すると、有効質量方程式は

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V(x) \right] F(\mathbf{r}) = E F(\mathbf{r}) \quad (4.7)$$

となる。ただし  $F(\mathbf{r})$  は包絡関数、 $V(x)$  は超格子ポテンシャルで超格子面が  $y=0$  平面になるような座標系をとっている。ここでベクトルポテンシャルがランダウゲージ

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

で表せるような  $z$  方向 (超格子面内) の磁場を考えると、

$$\mathbf{k} \rightarrow -i\nabla + \frac{e}{h}\mathbf{A}$$

と置き換えればよいから、式 (4.7) は

$$\left[ \frac{\hbar^2}{2m^*} \left\{ -\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \left( -i\frac{\partial}{\partial y} + \frac{eBx}{h} \right)^2 - \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right\} + V(x) \right] F(\mathbf{r}) = EF(\mathbf{r}) \quad (4.8)$$

となる。ここで  $yz$  面内は並進対称性が残っているので

$$F(\mathbf{r}) = e^{ik_y y} e^{ik_z z} \phi(x) \quad (4.9)$$

$$\epsilon = E - \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m^*} \quad (4.10)$$

とおくと、式 (4.8) はさらに

$$\left[ \frac{\hbar^2}{2m^*} \left\{ -\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{(x-x_c)^2}{l^4} \right\} + V(x) \right] \phi(x) = \epsilon \phi(x) \quad (4.11)$$

となり、 $x_c$  を頂点とする放物線に超格子ポテンシャル  $V(x)$  で変調を加えたようなポテンシャル中で運動する 1 次元電子の問題に帰着する。ここで

$$l = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}} \quad (\text{サイクロトロン半径}) \quad (4.12)$$

$$x_c = -l^2 k_y \quad (\text{サイクロトロン軌道中心}) \quad (4.13)$$

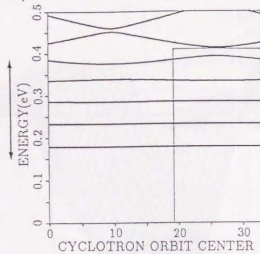
である。これを数値的に解くわけだが、磁場に起因する放物線の閉じ込みポテンシャルがあるので、 $x_c$  から十分遠方では波動関数は減衰してほとんど零になっている。そこで  $x_c$  から  $x$  軸の負の方向に十分離れた点  $x_0$  で初期条件

$$\phi(x_0) = 0 \quad (4.14)$$

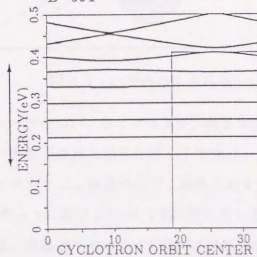
$$\frac{\partial \phi}{\partial x}(x_0) = 1 \quad (4.15)$$

を与え、Runge-Kutta 法により波動関数を発展的に求めていった。このとき仮定したエネルギー  $E$  が固有エネルギーになっていれば、 $x \rightarrow \infty$  で波動関数が 0 に収束するはずである。このことを利用してエネルギーを細かく変えながら固有値を探した。ただ、現実の数値計算では  $E$  として真の固有値に非常に近い値を入れても波動関数はいずれ発散してしまうので、 $x_c$  から  $x$  軸の正の方向に十分離れた点で波動関数の符号をモニターし、この符号の変化から固有値を判断した。

(7,5)  $B=40\text{T}$



$B=30\text{T}$



$B=20\text{T}$

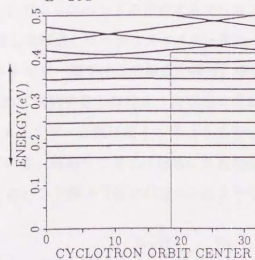


図 4-7: 試料 (7,5) の伝導帯のエネルギー準位。

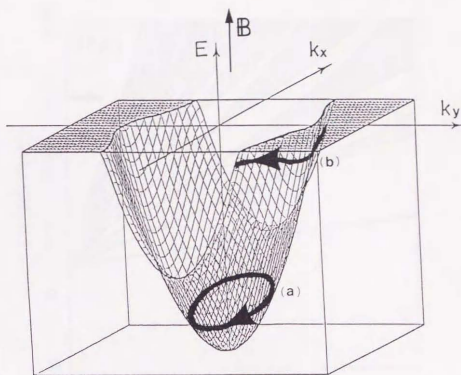


図 4-8:  $xy$ 面内のエネルギー分散。

試料 (7.5) のパラメータを用い、サイクロトロン軌道中心  $x_c$  を超格子の 1 周期にわたって変えながらエネルギー準位を求めた結果が図 4-7 である。Runge-Kutta 法の刻み幅は  $0.2\text{\AA}$  にとった。横軸はサイクロトロン軌道中心で、超格子の 1 周期分にわたって示してある ( $\text{\AA}$  単位)。横軸中央付近から上にのび  $0.41\text{eV}$  で右に折れている直線は障壁層を示す超格子ポテンシャルの一部である。零磁場で Bastard の境界条件を用いて Kronig-Penny モデルを解いて求めたミニバンドをエネルギー軸の横に矢印で示した。下から順に磁場が 20, 30, 40T の場合だが、いずれについてもミニバンドの形成されているエネルギー領域では、通常のランダウ準位と同様  $x_c$  に関して縮退した平坦なエネルギー準位が形成されている。ところがミニバンド端付近より高エネルギー側ではこの縮退が解け、準位が幅を持つようになる。

このことを半古典的に説明すると次のようになる。今磁場に平行な  $z$  方向の運動を無視すると、 $k_x, k_y$  面内のエネルギー分散は図 4-8 のように表せる。ここで超格子のミニバンドは  $\cos$  関数を仮定している。磁場中で電子は磁場に垂直な等エネルギー面内を運動する。このときエネルギーがミニバンド端より低ければ (a) のような閉軌道を描き、半古典的な量子化条件

$$S_n = \frac{2\pi e B}{h} \left( n + \frac{1}{2} \right) \quad (4.16)$$

によって軌道面積  $S$  ひいてはエネルギーが量子化される。これに対してミニバンド端より高

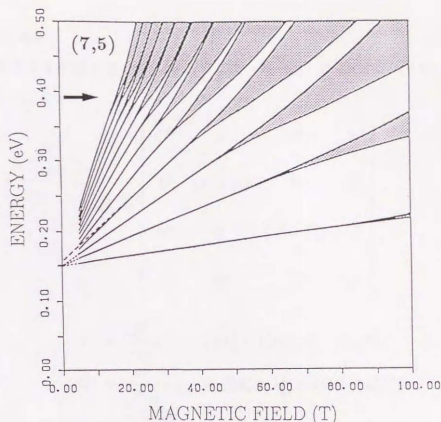


図 4-9: 試料 (7,5) の伝導帯エネルギー準位の磁場依存性。

エネルギー側では (b) のような開軌道になるため、量子化は起こらない。

計算されたエネルギー準位を磁場の関数として描くと図 4-9 のようになる。矢印で示したのは  $k_z = \pm\pi/d$  のミニバンド端である。各ランダウ準位は、高エネルギー・強磁場側でサイクロトロン軌道中心に関する縮退が解け、幅が広がっている。ここで各準位の幅が広がり始める磁場  $B_b$ 、あるいはエネルギー  $E_b$  に着目すると、弱磁場極限 ( $n \rightarrow \infty$ ) では図 4-8 の半古典近似に帰着し、 $E_b$  はミニバンド端に漸近する。一方、強磁場側のいわば量子極限においては、このあと 4.3 節で詳しく見るように  $l \simeq d$  を満たす磁場  $B_b$  において、最低ランダウ準位の幅が広がり始める。

ここでもう一つ注目すべき点是非放物線性である。図 4-6 において指摘したように、 $n=3$  のランダウ準位の強磁場側にフィットさせた直線を零磁場に外挿すると、非放物線性によってバンド端よりも高エネルギー側にずれていた。この計算でも図 4-9 中に点線で示したように同様の結果が再現されている。今の計算では母体結晶のバンドは放物線形を仮定していたので、ここで見られた非放物線性は純粋に超格子構造によるもの、すなわち  $\cos$  バンド的なミニバンドの非放物線性が現れてきているものである。

次に、価電子帯は 2 章で述べたようにスピンを含めて 4 重に縮退しており、伝導帯に比べ



取扱が困難である。

磁場中超格子を記述するハミルトニアンは、式 (2.1) で与えられていたバルクにおける  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  ハミルトニアン

$$H_0 = \begin{bmatrix} \frac{1}{2}P & L & M & 0 \\ L^* & \frac{1}{6}P + \frac{2}{3}Q & 0 & M \\ M^* & 0 & \frac{1}{6}P + \frac{2}{3}Q & -L \\ 0 & M^* & -L^* & \frac{1}{2}P \end{bmatrix}$$

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

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

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

$$M = -\frac{\sqrt{3}\hbar^2}{2m_0}[\gamma_2(k_x^2 - k_y^2) - 2i\gamma_3k_xk_y]$$

の対角項に超格子ポテンシャル  $V(x)$  と磁場の 1 次 に比例する Zeeman エネルギーに相当する項がつけ加わり、

$$H = H_0 + \frac{e\hbar}{m_0}B(\kappa J_z + qJ_z^3) + V(x)I \quad (4.17)$$

となる。ただし

$$J_z = \begin{bmatrix} \frac{3}{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{1}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\frac{3}{2} \end{bmatrix}, \quad I = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

で、(4.17) 中の  $k$  の 2 次式はすべて

$$k_\alpha k_\beta \rightarrow \{k_\alpha k_\beta\} \equiv \frac{1}{2}(k_\alpha k_\beta + k_\beta k_\alpha) \quad (\alpha, \beta = x, y, z)$$

のように反交換関係で置き換える [57]。ここで

$$\begin{cases} k_\alpha = -i\frac{\partial}{\partial \alpha} + \frac{e}{\hbar}A_\alpha \\ \mathbf{A} = (0, Bx, 0) \end{cases}$$

である。磁場があるときには  $k$  の各成分は必ずしも交換せず、例えば今の場合だと

$$[k_x k_y] = -\frac{ieB}{h} \neq 0 \quad (4.18)$$

となる。状態が混じっているため波動関数は

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{J_z} \phi_{J_z}(\mathbf{r}) |J, J_z\rangle \quad (4.19)$$

$$(J = 3/2, J_z = \pm 1/2, \pm 3/2)$$

$$\phi_{J_z}(\mathbf{r}) = F_{J_z}(x) e^{ik_y y} e^{ik_z z} \quad (4.20)$$

のように重ね合わせて与えられる。

ここで、 $k_z = 0$  とおくと式 (4.17) は次のような  $2 \times 2$  の行列に分離する。

$$H_{\pm} = \frac{\hbar^2}{m_0} \begin{bmatrix} \frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2} \left\{ -\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{(x - x_c)^2}{l^4} \right\} & \frac{\sqrt{3}}{2} \gamma_2 \left\{ -\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{(x - x_c)^2}{l^4} \right\} \\ \pm \frac{1}{l^2} \left( \frac{3}{2} \kappa + \frac{27}{8} q \right) + \frac{m_0 V(x)}{\hbar^2} & \mp \frac{\sqrt{3} \gamma_3}{l^2} \left\{ (x - x_c) \frac{\partial}{\partial x} + \frac{1}{2} \right\} \\ \frac{\sqrt{3}}{2} \gamma_2 \left\{ -\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{(x - x_c)^2}{l^4} \right\} & \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2} \left\{ -\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{(x - x_c)^2}{l^4} \right\} \\ \pm \frac{\sqrt{3} \gamma_3}{l^2} \left\{ (x - x_c) \frac{\partial}{\partial x} + \frac{1}{2} \right\} & \mp \frac{1}{l^2} \left( \frac{1}{2} \kappa + \frac{1}{8} q \right) + \frac{m_0 V(x)}{\hbar^2} \end{bmatrix} \quad (4.21)$$

基底は  $(|3/2, \pm 3/2\rangle, |3/2, \mp 1/2\rangle)$  (複合同順) である。結局有効質量方程式は

$$H_{\pm} \hat{f} = E \hat{f} \quad (4.22)$$

$$\hat{f} = \begin{bmatrix} F_{\pm 3/2}(x) \\ F_{\mp 1/2}(x) \end{bmatrix}$$

となる。これを数値的に解くわけだが、今の場合成分が2つあるので初期条件が一意的に定まらず、伝導帯の場合と同様な方法ではうまく計算できない。そこで Fasolino ら [58] にならって、全く異なる方法で解いた。

例として  $H_+$  の場合を考える。まず実空間において間隔  $h$  の格子点 (必ずしも現実の格子点には対応しない) をとり、ハミルトニアン中に現れる微分演算子を

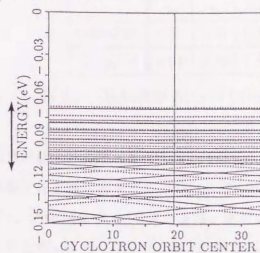
$$\frac{\partial F_j(x_n)}{\partial x} = \frac{F_j(x_{n+1}) - F_j(x_{n-1}))}{2h} \quad (4.23)$$

$$\frac{\partial^2 F_j(x_n)}{\partial x^2} = \frac{F_j(x_{n+1}) + F_j(x_{n-1}) - 2F_j(x_n)}{h^2} \quad (4.24)$$

$$(j = 3/2, -1/2)$$



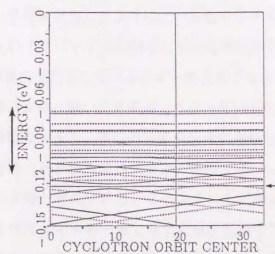
(7,5) B=20T



—  $J_z = 3/2, -1/2$

...  $J_z = -3/2, 1/2$

B=30T



B=40T

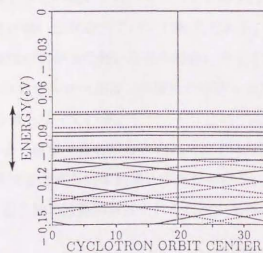


図 4-10 : 試料 (7,5) の価電子帯のエネルギー帯。

	$\gamma_1$	$\gamma_2$	$\gamma_3$	$\kappa$	$q$
GaAs[28]	6.85	2.10	2.90	1.2	0.0
AlAs[59]	4.04	0.78	1.57	1.2	0.0

表 4.1 : GaAs 及び AlAs の Luttinger パラメータ。

にのびる直線は井戸層と障壁層の界面を表している。実線が  $H_+$ 、点線が  $H_-$  に対応する。エネルギー軸は価電子帯上端を原点とし、下向きが正孔に対して高エネルギー側になるようにとっている。また Luttinger の  $\gamma$  パラメータは、試料全体の平均的な Al 含有率  $x$  に対応して表 4.1 に与えられた GaAs と AlAs の値から計算される内挿値を用いた。

この場合にも、エネルギー準位は高エネルギー側で  $x_c$  に関する縮退が解けている。また 30T の図において矢印で示したように、いったんエネルギー準位が分散を持つようになった後も、軽い正孔のサブバンドに付随した平坦な準位が見えている。

図 4-11 は磁場の関数としてエネルギー準位をプロットしたものである。上が  $H_+$  下が  $H_-$  に対応する。重い正孔と軽い正孔が混じり合っているため先ほど示した伝導帯の場合と比較すると非放物線性が大きく、準位の交差や反発がみられてエネルギースペクトルは非常に複雑である。伝導帯の計算から類推すると、指数  $n \rightarrow \infty$  でランダウ準位の幅が広がりはじめの位置がミニバンド端と考えられる。このようにして求めたミニバンド端を図中矢印で示す。ミニバンド端より高エネルギー側で準位の幅が広がっているのは伝導帯の場合と同様だが、それに重なって軽い正孔のサブバンドに付随するランダウ準位の系列が見えている。これらを零磁場以外挿すると、重い正孔のサブバンド端  $E_h$  より 12meV 程高エネルギー側に収束する。この収束点が軽い正孔のサブバンド端  $E_l$  である。 $E_l$  は  $H_{\pm}$  で若干異なっているが、これは、より波動関数が広がった軽い正孔の場合にカットオフの影響が大きくなるためと考えられる。 $E_h$  と  $E_l$  のエネルギー差は、実験的に求めた重い正孔・軽い正孔励起子ピークの分裂幅と同程度の値となっている。

以上、伝導帯・価電子帯おのおののエネルギー準位が計算されたので、次に両者を総合してバンド間遷移を考察し実験結果との比較を行う。

伝導帯・価電子帯の波動関数はそれぞれ次のように書ける。

$$\begin{aligned}\Psi_c(\mathbf{r}) &= F^{(c)}(x) e^{ik_y y} e^{ik_z z} |S, S_z\rangle \\ (S = 1/2, S_z = \pm 1/2)\end{aligned}\quad (4.32)$$



(7,5)

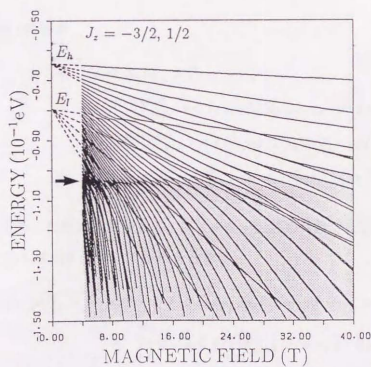
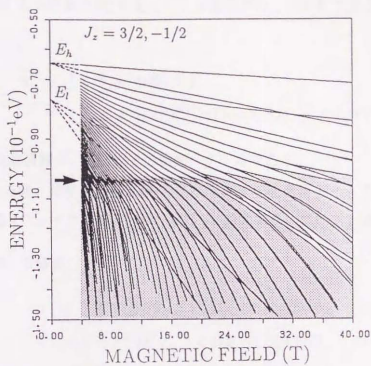


図11：試料 (7,5) の価電子帯エネルギー準位の磁場依存性

$$\Psi_v(\mathbf{r}) = \sum_{J_z} F_{J_z}^{(v)}(x) e^{ik_y y} e^{ik_z z} |J, J_z\rangle \quad (4.33)$$

$$(J = 3/2, J_z = \pm 3/2, \pm 1/2)$$

ここで  $|S, S_z\rangle, |J, J_z\rangle$  は表 2.1 で与えたバンド端のブロッホ関数である。すると吸収係数  $\alpha$  は

$$\alpha \propto |\langle \Psi_c | \mathbf{e} \cdot \mathbf{p} | \Psi_v \rangle|^2$$

$$= \left| \sum_{J_z} \langle F^{(c)}(x) | F_{J_z}^{(v)}(x) \rangle \langle S, S_z | \mathbf{e} \cdot \mathbf{p} | J, J_z \rangle \right|^2 \quad (4.34)$$

となる。 $\mathbf{p}$  は運動量演算子、 $\mathbf{e}$  は光子の偏光ベクトルである。

今磁場  $\mathbf{B}$  が  $z$  方向、超格子面が  $yz$  平面になるような座標系をとっており、光は超格子面に垂直に入射する (フォークト配置) ので  $\mathbf{e}$  は  $yz$  面内を向いている。 $H_x$  を例にとると

•  $\mathbf{e} \parallel \mathbf{B}$  ( $\pi$ 配置) の場合

$$\alpha \propto |\langle \Psi_c | p_z | \Psi_v \rangle|^2$$

$$= |\langle F^{(c)} | F_{-1/2}^{(v)} \rangle \langle 1/2, -1/2 | p_z | 3/2, -1/2 \rangle|^2$$

$$= \frac{2}{3} P^2 |\langle F^{(c)} | F_{-1/2}^{(v)} \rangle|^2 \quad (4.35)$$

•  $\mathbf{e} \perp \mathbf{B}$  ( $\sigma$ 配置) の場合

$$\alpha \propto |\langle \Psi_c | p_y | \Psi_v \rangle|^2$$

$$= |\langle F^{(c)} | F_{+3/2}^{(v)} \rangle \langle 1/2, +1/2 | p_y | 3/2, +3/2 \rangle$$

$$+ \langle F^{(c)} | F_{-1/2}^{(v)} \rangle \langle 1/2, +1/2 | p_y | 3/2, -1/2 \rangle|^2$$

$$= \frac{1}{6} P^2 |\sqrt{3} \langle F^{(c)} | F_{+3/2}^{(v)} \rangle + \langle F^{(c)} | F_{-1/2}^{(v)} \rangle|^2 \quad (4.36)$$

ただし  $P$  は 4.2 で定義した行列要素である。フォークト配置の実験では直線偏光を用いなかったため  $\mathbf{e}$  と  $y$  軸とのなす角  $\theta$  について平均をとると、

$$|\langle \Psi_c | \mathbf{e} \cdot \mathbf{p} | \Psi_v \rangle|^2 = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi |\langle \Psi_c | p_y \cos \theta + p_z \sin \theta | \Psi_v \rangle|^2 d\theta$$

$$= \frac{P^2}{12} \{ (\sqrt{3} \langle F^{(c)} | F_{+3/2}^{(v)} \rangle + \langle F^{(c)} | F_{-1/2}^{(v)} \rangle)^2$$

$$+ (2 \langle F^{(c)} | F_{-1/2}^{(v)} \rangle)^2 \} \quad (4.37)$$

となる。

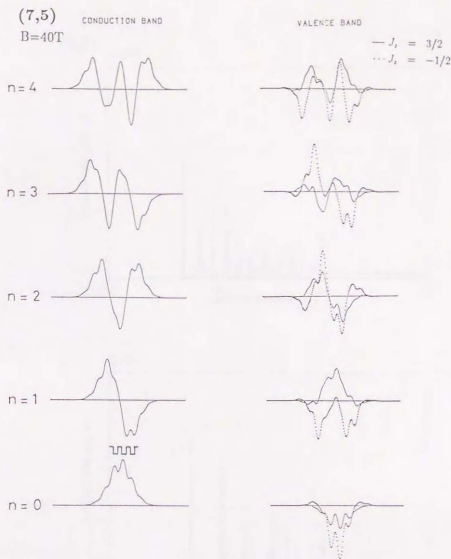


図 4-12: 試料 (7,5) の伝導帯・価電子帯の波動関数。

図 4-12 は 40T における伝導帯及び価電子帯 ( $J_z = 3/2, -1/2$ ) の包絡関数  $F^{(c)}(x)$ ,  $F_{J_z}^{(v)}(x)$  を低エネルギー側から 5 番目の準位まで示したものである。サイクロトロン軌道中心  $x_c$  は井戸層と障壁層の境界面上にあるとした。まず伝導帯の方を見ると、全体的な形は調和振動子の波動関数と同様だが、 $n=0$  の伝導帯の波動関数の上に示した超格子ポテンシャルの井戸層に対応した領域で、存在確率が局所的に大きくなっている。これらと価電子帯の波動関数との重なり積分を考えると、 $n=0, 3, 4$  については価電子帯・伝導帯ともに波動関数の偶奇が一致しており、同じ番号の準位間で遷移が起こる。これに対して  $n=1, 2$  では波動関数の形が入れ替わっており、価電子帯の  $n=1$  から伝導帯の  $n=2$ 、価電子帯の  $n=2$  から伝導帯の  $n=1$  の準位へ遷移が起こることがわかる。

(7,5)

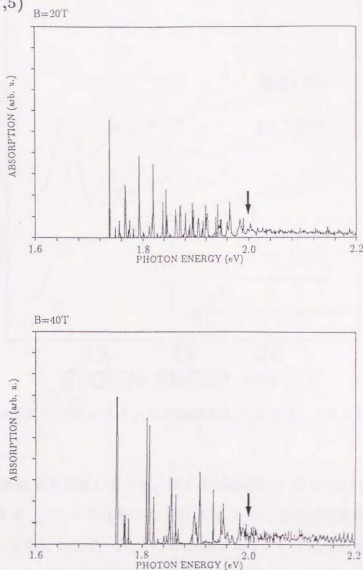


図 4-13 : 試料 (7,5) の磁気光吸収スペクトルの計算結果。

ところでミニバンド端より高エネルギー側ではランダウ準位が幅を持つと同時に状態密度が小さくなり、光吸収スペクトルにおいてそのような準位間の遷移は鋭い吸収ピークを与えないと予測される。そこで試料 (7,5) について  $B_{//}$  における磁気光吸収スペクトルを計算した結果が図 4-13 である。磁場は上が 20T、下が 40T である。ただし、ここでは簡単のため伝導帯の質量は物質によらず  $0.1m_0$  とした。また、今の計算では  $k_z = 0$  とおいているため実際の吸収スペクトルとは形状が異なる。計算結果を見ると、矢印で示したミニバンド端より高エネルギー側では明瞭なピークが現れていない。従って磁場を面に平行に加えて測定した磁気光吸収スペクトルにおいて、ピークが観測されなくなる位置がミニバンド端に対応する。

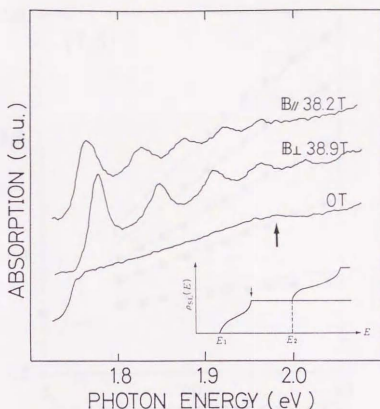


図 4-14: 試料 (7.5) の磁気光吸収スペクトルの磁場配置による違い (挿入図は超格子の状態密度)。

以上を踏まえて実験結果を見直してみる。図 4-14 は試料 (7.5) について磁場配置を変えて測定した磁気光吸収スペクトルを比較したものである。 $B_{\perp}$  ではほぼ全域にわたって吸収ピークが観測されているのに対して、 $B_{//}$  では零磁場のスペクトルに現れていたキंकを境にして、これよりも高エネルギー側ではピークが観測されていない。従ってこのキंकがミニバンド端であることが確認された。挿入図は超格子の状態密度だが、矢印で示したミニバンド端、すなわち  $M_1$  型鞍点のキंकが実際の光吸収スペクトルにおいてもキंकとして観測されていることがわかった。

最後にバンド間遷移の計算結果を実験と比較する。図 4-15 はフォークト配置の下で観測された吸収ピークの磁場依存性を計算結果と比較したものである。実測値を黒丸で、計算結果を実線で表す。バンドギャップの値は GaAs が 1.519 eV、 $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{As}$  に関しては 2.211 eV を用いて計算した。バンド不連続は 65%-35% 則を採用している。今スピン分裂した価電子帯の状態はともに許容遷移なので、単純に両者の平均をとった。これまでの計算では母体物質であるバルク GaAs 及び AlGaAs の非放物線性は考慮していなかったが、短周期になりエネルギー準位が高くなるほど非放物線性がきいてくるので、実験と合わせるためにはこれ



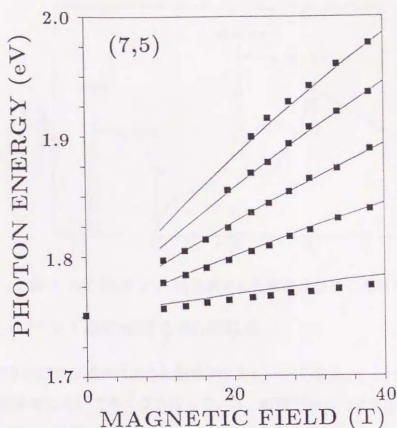


図 4-15: 試料 (7,5) の吸収ピークの磁場依存性の計算 (実線) と実験 (黒丸) の比較。

を取り入れる必要がある。非放物線性を考慮した超格子の伝導帯エネルギー準位の計算方法がいくつか提案されているが [60-63]、ここでは単純に 3 次元の場合に 2 バンドモデルで与えられる式

$$m^*(E) = m_0^* \left( 1 + \frac{E}{E_g} \right) \quad (4.38)$$

を採用した。ただし  $E$  はバルク GaAs 伝導帯のバンド端から測ったエネルギー、 $m_0^*$  はバンド端の有効質量 ( $=0.067m_0$ ) である。バンドギャップの大きい AlGaAs の有効質量は一定とした。また、伝導帯との相互作用による価電子帯の非放物線性は無視した。これを用いて計算した結果、図に見られるように実験値とよく一致した。ただし最低ランダウ準位は励起子効果が大きいため、励起子束縛エネルギー程度計算よりも低エネルギー側にずれている。

### 4.3 鞍点における励起子効果

前節で非破壊パルス磁場下で測定された短周期超格子の磁気光学スペクトルを論じたが、ここでは 150T に及ぶ超強磁場下での磁気光学測定によって明らかになった、超格子の 2 種類の鞍点における励起子効果を論ずる。

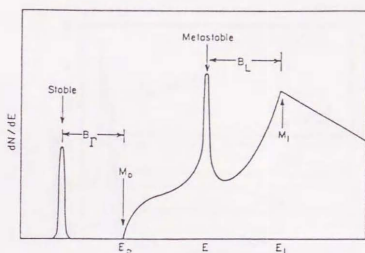


図 4-16:  $M_0$ 並びに  $M_1$ 特異点に付随する励起子共鳴ピーク。

#### 4.3.1 ミニバンド端における $M_1$ 型鞍点

これまでたびたび述べたように超格子のミニバンド端 ( $k_z = \pm\pi/d$ ) は  $M_1$ 型鞍点になっており、状態密度においてキंकとなっている。前節で論じた非常に幅の広い ( $> 200\text{meV}$ ) ミニバンドを有する試料では、吸収スペクトルはそのまま状態密度の形状を反映して鞍点でキंक構造をとっていたが、超格子の周期を長くしてミニバンド幅を小さくすると鞍点近傍の状態密度が増加し、それに伴って励起子効果も増大すると考えられる。

図 4-16 は Phillips によって提唱された鞍点励起子 (saddle point exciton) の概念図である [64]。  $M_0$ 特異点に付随する通常の励起子ピーク (stable) と同様に、  $M_1$ 特異点の低エネルギー側にも励起子共鳴ピーク (metastable) が現れると考えられた。その後、クーロン相互作用を接触型の短距離ポテンシャルで近似した方法 [65, 66] や断熱近似 [67] などの方法によって、鞍点励起子に関する理論的な取扱いがなされてきた。ところで半導体超格子は、周期などのパラメータを人工的に制御することにより鞍点近傍のバンド構造を自由に変えられる点で、鞍点励起子を研究するのに格好の系である。最近 Chu ら [68, 69] は  $k$ -空間サンプリング法という方法を用いて、GaAs/AlGaAs 超格子における励起子吸収スペクトルを計算した。図 4-17 は井戸幅  $80\text{\AA}$  の GaAs/Al<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>As 超格子について障壁層の幅を変えて計算した吸収スペクトルである [68]。点線はクーロン相互作用がない場合の吸収スペクトルを表す。ただし、重い正孔の励起子のみ考慮している。また、鞍点よりも高エネルギー側で吸収係数が減少するのは計算に使用した基底の数が有限であることに起因すると説明されている。障壁層が厚い場合は量子井戸型の吸収スペクトルを示すが、障壁層を薄くするにつれてミニバンド分散が大きくなり、鞍点の低エネルギー側に鞍点励起子によると考えられる共鳴ピーク

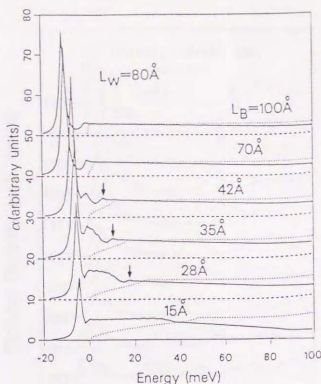


図 4-17: GaAs/Al<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>As 超格子の吸収スペクトル (理論計算)[68]。

が現れてくる (矢印)。

ここでは比較長周期の試料 (14.6) を取り上げ、鞍点における励起子効果を論ずる。前節で見たように、磁場を超格子面に平行に印加して磁気光吸収スペクトルを測定し、ランダウ準位間遷移の吸収ピークが消失するエネルギーよりおよそそのミニバンド幅を見積ることができる。40T までの非破壊パルス磁場下での測定により、この試料におけるミニバンド幅はおよそ 50~60meV 程度と見積られた。図 4-18 は一巻コイル法によって発生された超強磁場下で測定された (14.6) の吸収スペクトルである。磁場は超格子面に垂直 ( $B_{\perp}$ ) である。サイクロトロンエネルギー  $\hbar\omega_c$  がミニバンド幅よりも大きくなるような強磁場を印加することにより、図 4-19 のように、零磁場で鞍点に収束する  $k_z = \pm\pi/d$  の状態密度のピークを他のランダウサブバンドから分離して観測することができる。図 4-18 の 149T のスペクトルを見ると、矢印で示したところに小さな肩構造が観測された。これらの構造も含めて観測された吸収ピークのエネルギーを磁場に対してプロットしたのが図 4-20 である。実線・破線は単なるガイドである。 $\sigma^{\pm}$  どちらの円偏光においても  $k_z = \pm\pi/d$  の構造はバンド端 ( $k_z = 0$ ) の励起子ピークより約 64meV 高エネルギー側に位置し、また、それらの磁場依存性を見ると、 $k_z = 0$  の励起子ピークとほぼ平行に反磁性シフトしている。これらのことから考えて、図 4-18 において矢印で示した構造が  $k_z = \pm\pi/d$  に対応すると思われる。図 4-19 のように

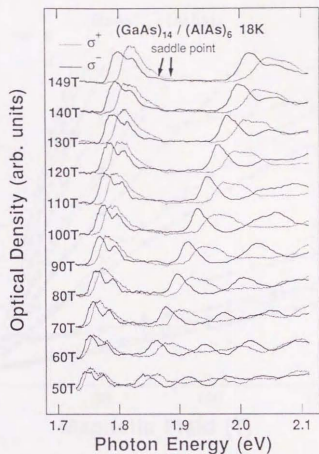


図 4-18：超強磁場における (14,6) の吸収スペクトル。

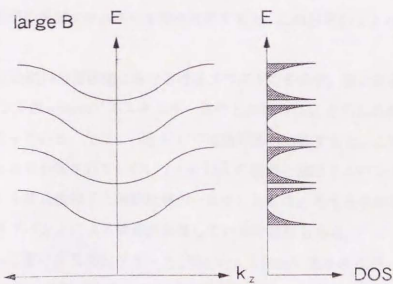


図 4-19：超強磁場における超格子のランダウ準位と状態密度。

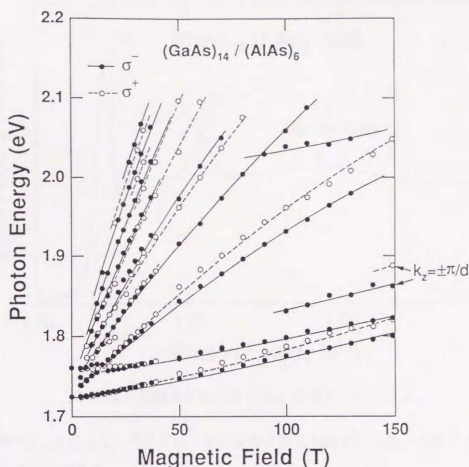


図 4-20 : (14,6) の吸収ピーク・肩構造の磁場依存性。

$k_z = 0$  と  $k_z = \pm\pi/d$  における状態密度はともに大きさが等しいが、励起子効果加わることにより  $k_z = \pm\pi/d$  の構造は相対的に小さくなると考えられる。以上より、 $M_0$ ,  $M_1$  両特異点に付随する励起子の束縛エネルギーの差を無視すると、この試料のミニバンド幅が 64 meV と求まる。

図 4-21 に、この試料の零磁場における吸収スペクトルを示す。重い正孔の励起子ピーク (hh) からミニバンド幅 64 meV 高エネルギー側の Saddle Point と示した位置を見ると、幅の広いピークになっている。ただし、図 4-17 の理論計算と比較すると、この試料は鞍点励起子のピークがはっきり分離されていない  $L_B = 15 \text{ \AA}$  の試料とほぼミニバンド幅が等しく、図 4-21 の構造はむしろ鞍点励起子と連続状態が一体化したものと考えるのが妥当であろう。また、軽い正孔のサブバンドによる構造が重畳している可能性もある。

図 4-21 において重い正孔励起子ピーク (hh) から 7.7 meV 高エネルギー側の矢印で示した位置に、2s から始まる励起状態、及び連続状態のオンセットとみられるキंकが観測されている。このエネルギー差 7.7 meV を 1s-2s 状態間のエネルギー差とみなすと、式 (2.36)、



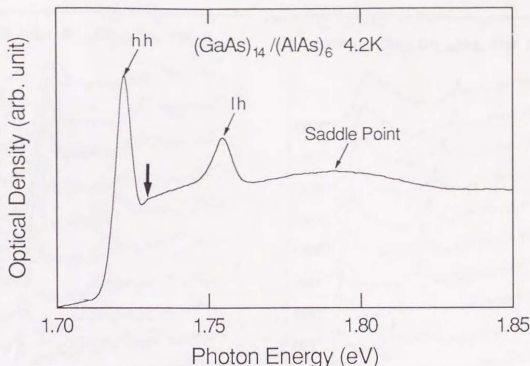


図 4-21 : 零磁場における (14,6) の吸収スペクトル。

(2.37) を用いることにより、それぞれ 3 次元及び 2 次元極限での励起子束縛エネルギー  $E_B^{3D}$ 、 $E_B^{2D}$  が次のように求まる。

$$E_B^{3D} = 10.3 \text{ meV}$$

$$E_B^{2D} = 8.7 \text{ meV}$$

実際の束縛エネルギーは両者の中間の値をとると考えられる。

#### 4.3.2 磁場誘起鞍点

4.2 節で磁場を超格子面に平行に印加した場合に、ミニバンドに対応する領域内でのみエネルギーの量子化が起こることを示した。ただし、そこで用いた磁場はサイクロトロン半径が超格子周期よりも大きく、キャリアが障壁層をトンネルしつつサイクロトロン運動を行うような比較的弱磁場であった。ここでは、サイクロトロン半径が超格子の周期と等しくなるような超強磁場下での磁気光学スペクトルを論じる。

図 4-22(a) は 150 T に及ぶ超強磁場を試料 (6,6) の面に垂直に印加した場合の吸収スペクトルである。磁場が強いため、 $\sigma^\pm$  の円偏光の違いによる励起子ピークの分裂 (ゼーマン分裂) もはっきりと観測されている。若干シグナルの SN 比が悪いが、吸収端の励起子ピークの高

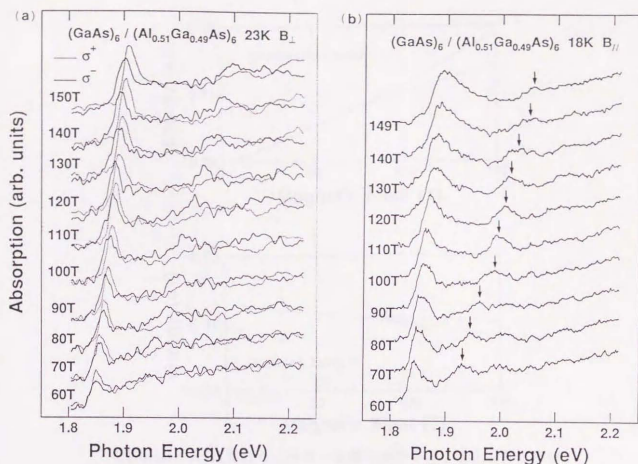


図 4-22 : 超強磁場における (6,6) の吸収スペクトル。(a) は磁場が超格子面に垂直 ( $B_{\perp}$ )、(b) は平行 ( $B_{\parallel}$ ) な場合である。

エネルギー側にランダウ準位間遷移による吸収ピークが観測されている。次に磁場を超格子面に平行に印加した図 4-22(b) の方を見てみる。まず、 $n = 1$  のランダウ準位 (矢印) は約 100T 付近まで吸収強度を増した後、さらに強磁場では 4.2 節で見たようにサイクロトロン軌道に関する縮退が解けてピークの幅が広くなり、やがて消失している。このピーク幅の広がり超強磁場下で  $n = 0$  のランダウ準位にまで及び、それに伴って励起子ピークの幅が高エネルギー側に著しく増大している。

4.2.2 で用いた方法で伝導帯・価電子帯の  $n = 0$  のランダウ準位を計算すると図 4-23 のように、ともに  $B_0 \approx 60\text{T}$  付近から幅が広がり始める。ただし価電子帯はスピン分裂に関して平均している。この  $B_0$  は試料 (6,6) においてサイクロトロン半径  $l$  と超格子の周期  $d$  が等しくなる磁場にほぼ一致している。こうしたランダウ準位幅の広がりは通常のバルク結晶では Harper broadening として知られ [45, 46]、サイクロトロン半径  $l$  が結晶周期  $a$  と同程度にまで小さくなると現れる現象である。バルク結晶において  $l \approx a$  の条件を達成するには非常な

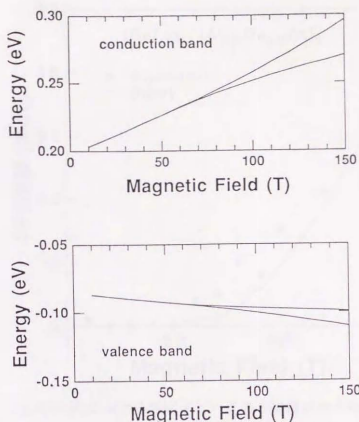


図 4-23:  $B_{//}$  における伝導帯・価電子帯の  $n=0$  のランダウ準位。

超強磁場が必要とされるが、人工的に作製した超格子を用いた場合にはバルクよりも基本周期が長くなるので、実現可能な磁場で  $l \simeq d$  となり Harper broadening 的な準位幅の広がり の起こる点が興味深い。

計算から得られた伝導帯及び価電子帯の準位幅の和を実験と比較したのが図 4-24 である。黒丸で示した実験値は、 $B_{\perp}$  及び  $B_{//}$  における励起子ピークの半値幅の差をとったものである。実際には励起子ピークの半値幅には軽い正孔の寄与も含まれるが、超格子面内の有効質量は軽い正孔の方が重い正孔よりも逆に大きくなっており、磁場とともに両者が接近して分離できなくなるため、ここでは軽い正孔の寄与を無視した。 $B_{\perp}$  の場合にも磁場とともに励起子ピークの半値幅は若干増大するが、 $B_{//}$  のスペクトルにおいてその効果を差し引いた余分のピーク幅の広がりが、 $l \simeq d$  の条件によってもたらされたランダウ準位幅の広がりに対応していることがわかる。

ここで励起子ピークの波形を考察する。これまで磁場に平行な方向の波数に関しては  $k_z = 0$  とおいていたが、これも考慮にいれて強磁場下で最低ランダウ準位の縮退が解けた状況でのエネルギー分散の模式図を描くと、サイクロトロン軌道中心は  $x_c = -l^2 k_y$  と  $k_y$  に

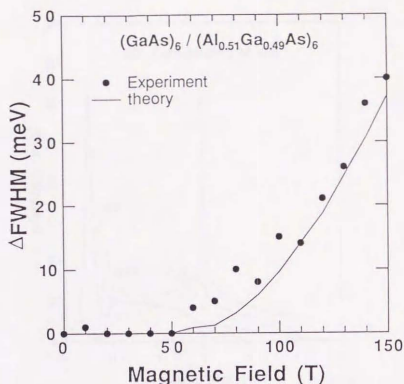


図 4-24 :  $B_{\perp}$  及び  $B_{\parallel}$  における励起子ピークの半値幅の差と計算との比較。

比例するので図 4-25 のようになる。 $k_y$  方向が強磁場によって誘起された分散で、 $k_z$  方向がバルクの母体物質と同様の放物線的な分散であり、遷移エネルギーを近似的に

$$E(\mathbf{k}) = E_g + E_0 \left[ 1 - \cos(k_y \frac{2\pi l^2}{d}) \right] + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2\mu} \quad (4.39)$$

と書くことができる。すると、図中矢印で示したところが 2 次元の鞍点となり、状態密度は発散する。果して電子・正孔間のクーロン相互作用のもとでの実際の吸収スペクトルに、この磁場誘起鞍点における状態密度のピーク構造がどのように反映されるのか興味を持たれる。

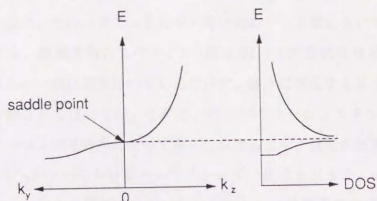


図 4-25 :  $B_{\parallel}$  において最低ランダウ準位の縮退が解けた場合のエネルギー分散と状態密度。

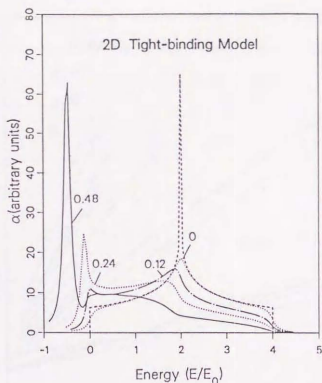


図 4-26: 2次元強結合モデルの場合のクーロン相互作用によるスペクトルの変化 [68]。

図 4-26 は、強結合モデル (tight binding model) によって遷移エネルギーが

$$E(\mathbf{k}) = E_0[2 - \cos(k_y a) - \cos(k_x a)] \quad (4.40)$$

で与えられるような 2 次元正方格子について、Chu ら [68] が計算した吸収スペクトルである。ただし、 $a$  は格子定数、 $E_0$  はバンド幅に関するパラメータで、図中の各スペクトルに付随した数値は  $E_0$  で規格化したクーロンエネルギーである。まず、クーロンエネルギーが零の場合は、状態密度をそのまま反映してエネルギー  $2E_0$  の鞍点においてピークを持った吸収スペクトルが得られている。しかし、クーロンエネルギーを大きくしていくにつれて鞍点のピークは小さくなり、その一方でエネルギー零付近のバンド端において、通常の励起子ピークが成長してくる。観測されたスペクトル (図 4-22(b)) の形状を見ると、吸収端の励起子ピークの高エネルギー側に裾をひいているだけで、鞍点に対応するエネルギー位置に特に新たなピークが分離されてはいない。これは、図 4-26 のクーロンエネルギーが 0.24 のスペクトルのようにクーロン相互作用によって鞍点におけるピーク構造が弱められたためと理解できる。149T のスペクトルにおける  $n = 1$  のランダウ単位を見ると、 $n = 0$  よりクーロン相互作用が弱いため、あまり明瞭ではないものの図 4-25 の状態密度に近い形状をしている。

上の計算は式 (4.40) で表されるように  $k_y$ ,  $k_x$  方向のバンド幅が等しい場合についてな



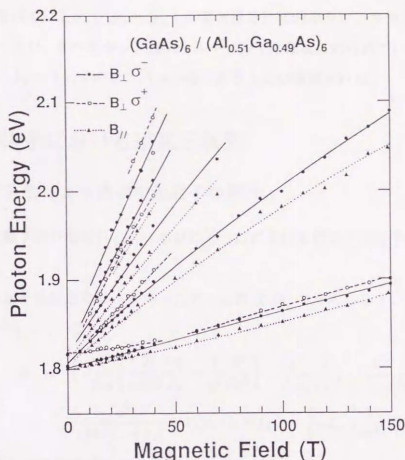


図 4-27: 試料 (6.6) において観測された吸収ピークの磁場依存性。

れたものであるが、実際には式 (4.39) のように  $k_z$  方向は eV オーダーのバルク的なバンド幅であるのに対して、磁場によって誘起された  $k_y$  方向のバンド幅は数 10 meV にすぎない。従ってこの計算結果と観測されたスペクトルを直接比較することはできないが、鞍点におけるクーロン相互作用の効果は定性的に理解できる。

(6.6) より長周期で、より弱磁場で  $l \simeq d$  となる試料 (14.6) についても同様な測定を行ったが、(6.6) の場合のような励起子ピーク幅の顕著な増大は観測されなかった。その原因の一つとして (14.6) の方が (6.6) よりもクーロン相互作用の効果が相対的に大きくなっていることが考えられる。ただし、Chu らの計算における規格化パラメータ  $E_0$  として今の場合どのような量を用いればよいか明かではなく、これらの現象を完全に理解するにはさらに異なる周期の超格子試料について測定を行うと同時に、現実に応じた理論が必要である。

最後に図 4-27 に試料 (6.6) において観測された吸収ピークの磁場依存性を示す。実線、破線、点線は単なるガイドである。この試料は図 4-1 の零磁場のスペクトルにおいて観測されたキック構造より、220 meV のミニバンド幅を有することが見積られており、かなり 3 次

元的性質を帯びているので  $B_{||}$  と  $B_{\perp}$  との異方性は比較的小さい。また、 $B_{||}$  において観測された吸収ピークが、すべてキングのエネルギー以下の領域に限られていることから、このキングが実際に  $k_z = \pm\pi/d$  のミニバンド端であることが確認された。

## 4.4 超格子における励起子状態

### 4.4.1 変分法による磁場中励起子の解析

ここでは量子井戸型試料 (6,18) 並びに (8,17) における磁場中励起子状態を変分法を用いて解析する。

磁場中励起子を記述するハミルトニアンは式 (2.46) で与えられていたが、もう一度記すと次のようになっている。

$$H = \left\{ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \left( \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \rho \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \right) - \frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{\partial^2}{\partial z_e^2} - \frac{\hbar^2}{2m_h} \frac{\partial^2}{\partial z_h^2} \right\} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} + V_e(z_e) + V_h(z_h) + \frac{1}{2}\omega L_z + \frac{1}{8}\mu\omega_c^2\rho^2$$

変分計算を行う際の試行関数は式 (2.42) で与えたように

$$\Psi(\rho, z_e, z_h, \phi) = F_e(z_e)F_h(z_h)g(\rho, z, \phi)$$

と書けるが、 $g$  として弱磁場極限では水素原子型の関数が、強磁場極限では調和振動子型の関数がよい結果を与えることが知られている。そこで、本研究では  $g$  として

$$g(\rho) = \exp[-(\rho/\alpha)^n] \quad (4.41)$$

という形を採用し、中間磁場領域での水素原子型から調和振動子型への波動関数の変化を連続的に扱うために、 $\alpha$  だけでなく指数  $n$  も変分パラメータとして取り込んだ。すると、 $B=0$  で  $n \rightarrow 1$ 、 $B \rightarrow \infty$  で  $n \rightarrow 2$  となることが予想される。また、ここで取り上げる試料は井戸層幅が小さく、電子・正孔は量子井戸ポテンシャルで  $z$  方向にすでに強く閉じ込めを受けているため、 $g$  に (2.43) や (2.52) のような  $z$  依存性を入れても結果はほとんど変わらなかった。

図 4-28 に第 6 章で取り上げる量子井戸型試料 (15,13) について行った変分計算結果を例として示した。今回新たに導入した変分パラメータである指数  $n$  は、零磁場で完全に水素原子型になっていれば 1 となるべきものであるが、おそらく試行関数の仮定のしかたによって実際には 1.2 付近の値をとる。磁場の増加とともに波動関数が調和振動子的な性質を帯びて

(GaAs)<sub>15</sub> / (AlAs)<sub>13</sub>

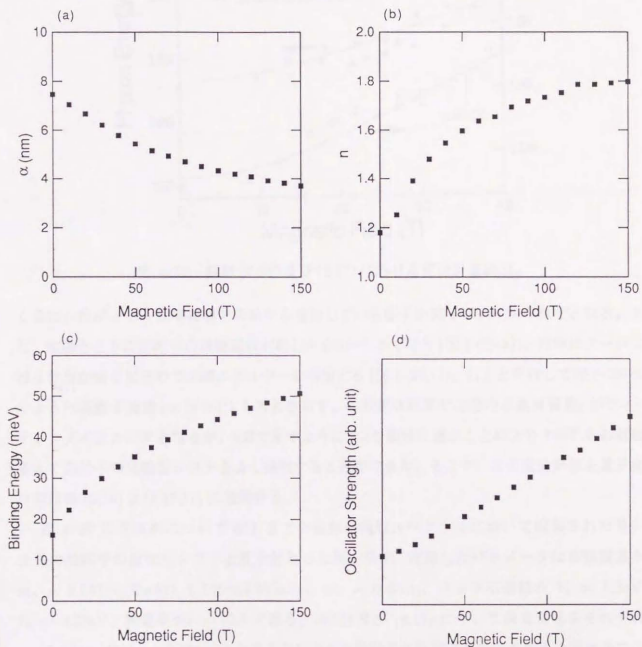


図 4-28: 試料 (15,13) における変分計算結果。(a) 変分パラメータ  $\alpha$ 、(b) 変分パラメータ  $n$ 、(c) 束縛エネルギー、(d) 振動子強度の磁場依存性。

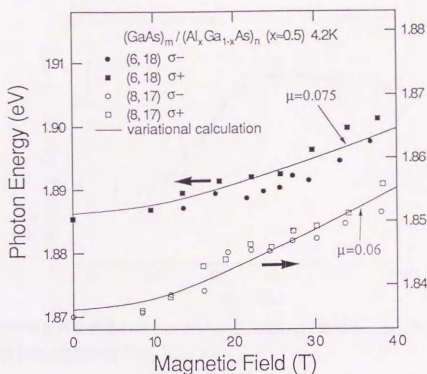


図 4-29: 試料 (6,18) 及び (8,17) における変分計算結果。

くりにしたがって  $n$  が零磁場での値から増加している様子が図 4-28(b) から見てとれる。また、磁場とともに励起子の波動関数が縮むため  $\alpha$  が小さくなり (図 4-28(a))、同時にクーロン相互作用が強くなるので束縛エネルギーが増加する (図 4-28(c))。以上と平行して図 4-28(d) のように振動子強度 ( $\propto |g(0)|^2$ ) も増大を示す。この変分計算では面内の換算質量  $\mu$  がフィッティングパラメータとなるが、6章で示すように、 $\mu$  を適当に選ぶことにより 150T もの強磁場まで励起子の反磁性シフトをよく説明することができた。そこで、この変分計算を量子井戸型試料 (6,18) 及び (8,17) に適用する。

図 4-29 に各試料について 40T までの磁気光吸収スペクトルにおいて観測された重い正孔の励起子の反磁性シフトと変分計算の比較を示す。使用したパラメータは有効質量が  $m_e = 0.067m_0$  (GaAs),  $0.105m_0$  (AlGaAs),  $m_h = 0.38m_0$ 、バンド不連続が  $V_c = 0.5\text{eV}$ ,  $V_h = 0.25\text{eV}$ 、誘電率が  $\epsilon = 12.3$  である。(6,18) 及び (8,17) について換算質量をそれぞれ  $\mu = 0.075m_0$  及び  $\mu = 0.06m_0$  とすることにより実験結果を説明できた。このとき零磁場での束縛エネルギーはそれぞれ 16.8meV 及び 13.6meV と求まった。

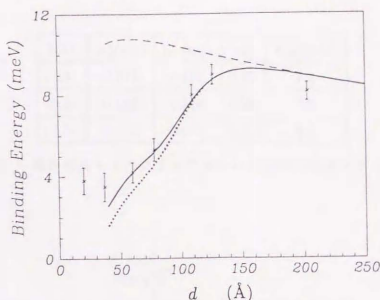


図 4-30：井戸層幅と障壁層幅の等しい GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 超格子における励起子束縛エネルギーの周期依存性 (理論計算)[70]。

#### 4.4.2 一軸性結晶としての取扱い

短周期超格子は成長軸方向にミニバンド分散を有するため、その励起子状態の解析においては量子井戸の場合のような単純な変分計算を用いることができないが、近年種々の方法による計算が報告されつつある [70-73]。

図 4-30 は Dignam らが、通常の 1 粒子ワニエ関数を拡張した励起子ワニエ関数を用いて、井戸層幅と障壁層幅の等しい GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 超格子について計算した励起子束縛エネルギーの周期依存性である [70]。超格子の場合は周期  $d$  が小さくなると隣合った井戸どうしが相互作用するようになり、波動関数が成長軸方向に広がって非局在化するため、破線で示した量子井戸の場合よりも束縛エネルギーが小さくなるのが特徴である。図中×印で示したのは Chomette ら [74] が励起子ピークの温度依存性から求めた束縛エネルギーであるが、計算結果と  $d > 60 \text{ \AA}$  ではよく一致している。ただし、彼らの計算は図 4-30 において実線と点線の違いが大きくなるような短周期の領域には適用できない。

試料 (3.3), (6.6), (7.5) といった非常に短周期の超格子における励起子束縛エネルギーを見積るため、ここでは超格子構造によってもたらされた異方性のあるバンド構造のみに着目し、超格子を一軸性結晶と見る立場から解析を行った。Gerlach らの一軸性結晶に関する理論 [75] によると、励起子束縛エネルギーは次のように与えられる。

$$E_B = R_y^* Z(\alpha)^2 \quad (4.42)$$



試料	$\mu_{//}(m_0)$	$\mu_{\perp}(m_0)$	$\alpha$	$E_B(\text{meV})$
(3,3)	0.074	0.102	0.27	7.4
(6,6)	0.067	0.108	0.38	7.0
(7,5)	0.066	0.092	0.28	6.6

表 4.2: 一軸性結晶モデルによって得られた励起子束縛エネルギー。

ここで、

$$R_y^* = \frac{\mu_{//} e^4}{32\pi^2 \epsilon^2 \hbar^2} \quad (4.43)$$

$$Z(\alpha) = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{\alpha}} \arcsin \sqrt{\alpha} & \text{for } \alpha > 0 \\ 1 & \text{for } \alpha = 0 \\ \frac{1}{\sqrt{|\alpha|}} \operatorname{arcsinh} \sqrt{|\alpha|} & \text{for } \alpha < 0 \end{cases} \quad (4.44)$$

$$\alpha = 1 - \frac{\mu_{//}}{\mu_{\perp}} \quad (4.45)$$

で、 $\mu_{//}$ ,  $\mu_{\perp}$  はそれぞれ超格子面に平行、垂直方向の換算質量、 $\alpha$  は異方性パラメータである。まず、各試料について  $B_{\perp}$  において観測された磁気光吸収スペクトルから  $\mu_{//}$  を次のように見積った。

$$\frac{1}{\mu_{//}} = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{\mu_{\sigma^+}} + \frac{1}{\mu_{\sigma^-}} \right) \quad (4.46)$$

ここで  $\mu_{\sigma^+}$ ,  $\mu_{\sigma^-}$  はそれぞれ  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  円偏光のもとで観測された磁気光吸収スペクトルにおいて、励起子効果、及び非放物線性がともに小さいと考えられる  $n=2$  のランダウ準位の傾きから見積った換算質量である。一方、 $B_{//}$  の場合はミニバンドによる非放物線性が顕著であるため、 $n=1$  のランダウ準位より換算質量  $\bar{\mu}$  を見積り、

$$\mu_{\perp} = \frac{\bar{\mu}^2}{\mu_{//}} \quad (4.47)$$

と近似した。このように実験的に得られた  $\mu_{//}$ ,  $\mu_{\perp}$  から計算された  $\alpha$  並びに束縛エネルギー  $E_B$  をまとめると表 4.2 のようになる。この理論は摂動論的な方法であり異方性の大きな場合には適用できないが、これらの試料について求められた  $\alpha$  は比較的小さく、十分適用範囲内であると判断できる。異方性は最も周期の短い (3,3) が一番小さくなっているにもかかわらず、束縛エネルギーは逆に一番大きくなっている。これは、(3,3) の場合サブバンドエネルギーの増加に伴う非放物線性によって伝導帯の有効質量が大きくなり、異方性の減少より

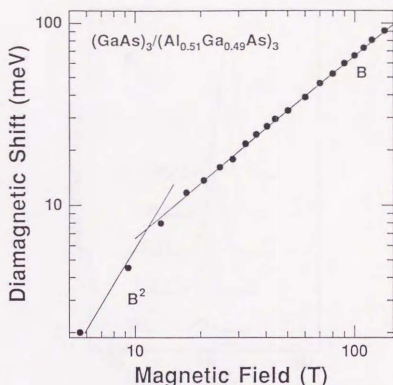


図 4-31 : (3,3) における励起子の反磁性シフト。

も  $\mu_H$  の増大がきいているためと理解できる。図 4-30 の  $d < 100 \text{ \AA}$  の領域では周期  $d$  が小さくなると束縛エネルギーも単調に減少するように見えるが、実際には非放物線性の効果が顕著になるような短周期の領域で再び束縛エネルギーが増加し始めると考えられる。従って、このような非常に短周期の超格子を扱う理論においては、非放物線性も考慮に入れる必要がある。

図 4-31 は、試料 (3,3) において観測された励起子の反磁性シフトを両対数表示でプロットしたものである。弱磁場領域では水素原子的でシフトは  $B^2$  に比例しているが、強磁場側ではランダウ準位的になりシフトは  $B$  に比例する。これらの 2 種の振舞いは

$$\gamma \equiv \frac{\hbar\omega_c}{2R_y} = 1 \quad (4.48)$$

を満たす磁場で移り変わると考えられる。図 4-31 において、2 つの直線の交点として得られる磁場は今の場合約 10 T となっているが、これは  $R_y$  として上の解析で得られた束縛エネルギーを用いて式 (4.48) から得られる磁場と一致しており、短周期超格子を一軸性結晶とみなす取扱いの妥当性を示している。

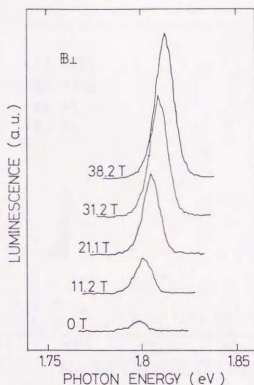


図 4-32: (6.6) における磁気発光スペクトル。

## 4.5 考察

### 4.5.1 発光・吸収強度の磁場効果

4.4.1の変分計算で示したように、磁場とともに励起子の波動関数が収縮して束縛エネルギーが増大し、同時に振動子強度も増加する。これまで、吸収スペクトルに関しては励起子ピークが磁場とともに強度を増すことを見てきた。図 4-32 は試料 (6.6) における磁気発光スペクトルであるが、このように発光スペクトルに関しても磁場とともに強度の増大がみられる。図 4-33 は零磁場における値で規格化した吸収・発光強度の磁場依存性を  $B_{\perp}$ ,  $B_{\parallel}$  両配置について比較したものである。ただし、吸収強度は挿入図の斜線部の面積から見積った。これを見ると発光強度の増大率は吸収の場合よりも大きくなっている。この違いを理解するには吸収と発光のメカニズムの違いを把握する必要がある。すなわち吸収は一過程の現象で吸収強度は直接振動子強度に比例するのに対して、発光の場合は再結合の前段階として励起されたキャリアーの緩和過程を余分に含むので、単純に振動子強度には比例しない。輻射遷移率 (radiative recombination rate) を  $R_r$ 、非輻射遷移率 (non-radiative recombination rate)

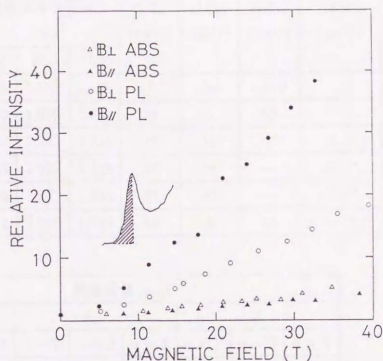


図 4-33 : (6,6) における吸収・発光強度の磁場依存性。

を  $R_{nr}$  とすると、発光強度  $P$  は

$$P \propto \frac{R_r}{R_r + R_{nr}}$$

となり、振動子強度 ( $\propto R_r$ ) だけでなく非輻射遷移率にも依存する。従って、発光強度の増大率が吸収の場合よりも大きくなっているのは、磁場による励起子波動関数の収縮に伴って非輻射遷移率  $R_{nr}$  が小さくなったためと理解される。 $B_{//}$  と  $B_{\perp}$  を比較すると、同じ磁場では吸収の場合は  $B_{\perp}$  の方が強度が大きい、すなわち振動子強度が大きいのにに対して、発光では逆に  $B_{//}$  の方が強度が大きくなっている。これは次のように考えられる。短周期超格子の場合、励起子ボーア半径内に多くのヘテロ界面を含んでおり、これらの界面によるキャリアの散乱が非輻射遷移過程にかなり寄与しているものと思われる。従って、 $B_{//}$  においては特に超格子積層方向に波動関数が収縮してボーア半径内の界面の数が減少し、 $B_{\perp}$  の場合よりも非輻射遷移率が減少するので磁場とともに著しく発光強度が増大する。実際、他の短周期試料 (3,3), (7,5) についても定性的には図 4-33 と同様の結果が得られたが、 $B_{//}$  における発光強度の増大は短周期の (3,3) が最も大きかった。

試料	遷移エネルギー (eV)			$\Delta E_{hl}$ (meV)	$\Delta E_{St}$ (meV)	$\Delta E_m$ (meV)	$E_B$ (meV)
	$E_{hh}$	$E_{lh}$	$E_{PL}$				
(3,3)	1.843	1.850	1.818	7	25	~290	7.4
(6,6)	1.805	1.819	1.800	14	5	220	7.0
(7,5)	1.752	1.762	1.733	10	19	229	6.6
(6,18)	1.886	1.923	1.858	37	28	—	16.8*
(8,17)	1.836	1.871	1.806	35	30	—	13.6*
(14,6)	1.724	1.760	1.720	36	4	64	8.7~10.3†

換算質量 ( $m_0$ )							
$\mu_{\sigma+}$		$\mu_{\sigma-}$			$\bar{\mu}$		
$n = 1$	$n = 2$	$n = 1$	$n = 2$	$n = 3$	$n = 1$	$n = 2$	$n = 3$
0.062	0.065	0.081	0.085	0.086	0.087	0.088	0.101
0.066	0.061	0.081	0.076	0.081	0.085	0.091	0.100
0.067	0.060	0.075	0.074	0.075	0.078	0.085	0.096
0.080	—	0.087	0.081	0.092	—	—	—
0.076	—	0.087	0.080	0.090	—	—	—
0.075	0.076	0.075	0.076	0.079	0.19	—	—

表 4.3: GaAs/AlGaAs タイプ I 直接遷移型超格子の実験結果。

#### 4.5.2 バンド構造と励起子束縛エネルギー

直接遷移型超格子について得られた結果を表 4.3 にまとめる。 $E_{hh}$ ,  $E_{lh}$  はそれぞれ光吸収スペクトルにおいて観測された重い正孔励起子及び軽い正孔励起子の吸収ピーク、 $E_{PL}$  は発光ピークの遷移エネルギーで、

$$\Delta E_{hl} = E_{lh} - E_{hh}$$

$$\Delta E_{St} = E_{hh} - E_{PL} (\text{ストークスシフト})$$

である。 $\Delta E_m$  はミニバンド幅で、(14,6) の場合は 4.3.1 で見たように、超強磁場下で  $k_z = 0$  の励起子ピークと  $k_z = \pm\pi/d$  における肩構造とのエネルギー差として得られた値で、それ以外は零磁場のスペクトルの  $k_z = \pm\pi/d$  におけるキングのエネルギーから求めた値である。 $E_B$  は重い正孔励起子の束縛エネルギーであり、無印は 4.4.2 における一軸性結晶としての取



扱いより得られた値、\*印は 4.4.1 で論じた変分計算から得られた値、そして†印は 1s-2s 状態のエネルギー差から見積った値である。また、ファラデー配置において円偏光を変えた場合 ( $\mu_{\sigma+}$ ,  $\mu_{\sigma-}$ ) 及びフォークト配置 ( $\bar{\mu}$ ) において求めた換算質量を各ランダウ準位の指数  $n$  について記した。

まず換算質量に注目すると、(3.3) などの 3 次元的試料では  $B_{\perp}$  の場合は指数  $n$  によらず  $\mu$  はほぼ一定値をとるのに対して、ミニバンドが関与する  $B_{\parallel}$  の場合は、4.2.2 で数値計算によって示したように  $n$  が大きくなるほど (エネルギーが大きくなるほど) ミニバンドの非放物線性が現れてきて  $\mu$  も大きくなる。また、サブバンドエネルギーの大きい試料ほど非放物線性がきいてくるために、全体的に換算質量も大きくなっていると言える。

次に束縛エネルギーであるが、短周期超格子の場合には界面の乱れの効果が相対的に大きくなるため、磁気光吸収スペクトルにおいて観測されるピークの半値幅が大きくなり、弱磁場の吸収端近傍で明瞭な吸収ピークを観測することができない。従って、長周期超格子のように外挿法によって精度よく束縛エネルギーを決定するのが困難である。そこで、ここでは種々の理論計算との比較により束縛エネルギーの決定を試みた。量子井戸型の試料では、閉じ込め効果と非放物線性による有効質量の増大等の要因により、バルク GaAs における値 (4.2 meV) の 3~4 倍の値になっている。一方、波動関数のしめだしが大きい短周期超格子においては、むしろバルクに近い値となっている。

表 4.3 にまとめたタイプ I 超格子に関する実験結果より、励起子状態とバンド構造の相関は以下のように要約できる。

2 次元的 (長周期)	↔	3 次元的 (短周期, バルク)
$E_B$ 大	↔	$E_B$ 小
$\Delta E_m$ 小	↔	$\Delta E_m$ 大
$\Delta E_{hl}$ 大	↔	$\Delta E_{hl}$ 小
$\bar{\mu}$ 大	↔	$\bar{\mu}$ 小

## 第 5 章

# タイプ II GaAs/AlAs 短周期超格子の磁 光学スペクトル

2章で説明したように、GaAs/AlAs 超格子は周期を短くしていくとやがて伝導帯において $\Gamma$ 点と $X$ 点が交差し、最低励起子状態においては電子が GaAs 層に、正孔が AlAs 層に局在したタイプ II 超格子に転移する。しかしその際に、超格子面に垂直方向の  $X_Z$  と超格子面内の  $X_{XY}$  のどちらが伝導帯下端になるかという点に関しては、2章で簡単に紹介した理論計算の結果を見ても必ずしも自明ではない。ここでは本研究で行った磁気光学測定を中心に実験的側面からこの問題に取り組む。なお本章で取り上げる試料はすべて障壁層が AlAs ( $x=1$ ) である。

### 5.1 タイプ II GaAs/AlAs 短周期超格子の光学的性質

タイプ II GaAs/AlAs 短周期超格子に関する光学測定としては、光吸収スペクトル、あるいはこれと等価な情報を与えると考えられる励起スペクトル (PLE) と発光スペクトル (PL) を同時に測定し、両者を総合的に議論した報告が数多くなされている [76-78]。図 5-1 に示すように光吸収ではタイプ I 同様価電子帯 $\Gamma$ 点から伝導帯 $\Gamma$ 点への遷移が支配的に起こるのに対して、発光では励起されたキャリアーが最低エネルギー状態にまで緩和した後、再結合するので、伝導帯の最低エネルギー状態が $X$ 点となっているタイプ II 超格子においては、伝導帯 $X$ 点から価電子帯 $\Gamma$ 点への遷移が起こる。従って光吸収及び発光スペクトルにおいて観測される励起子ピークには、伝導帯の $\Gamma$ - $X$ のエネルギー差に相当するストークスシフトが生ずる。図 5-2 に代表的なタイプ II 超格子 (3.5) 及び (5.6) の吸収・発光スペクトルを示した。

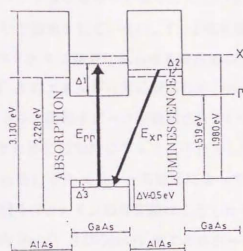


図 5-1 : タイプ II GaAs/AlAs 超格子における光吸収・発光。

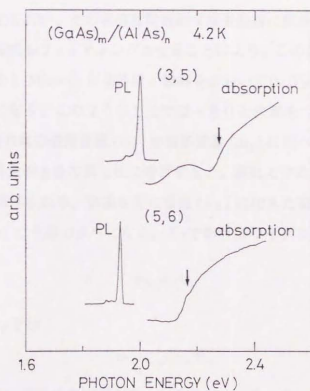


図 5-2 : 零磁場におけるタイプ II GaAs/AlAs 超格子の吸収・発光スペクトル

$\Gamma$ 点間の遷移が観測される吸収スペクトルにおいては、超格子の周期が非常に短く、しかも障壁層が AlAs でサブバンドエネルギーが高くなっているため界面の乱れが大きく影響し、励起子ピークがはっきりと観測されていない。 $\Gamma-\Gamma$ 吸収端のおよその位置を矢印で示した。試料 (3,5) の光吸収スペクトルに顕著に見られる吸収端以下の振動は、干渉の効果と考えられる。吸収端よりも、 $\Gamma-X$  のエネルギー差に対応して 200 meV 以上低エネルギー側にシフトした位置に発光スペクトルの励起子ピークが観測されている。本来  $\Gamma-X$  の遷移は間接遷移であり、 $k$  保存則を満たすためには同時にフォノンを放出しなければならない。ただし、超格子の場合はヘテロ界面におけるキャリアの散乱によってフォノンを伴わない  $X \rightarrow \Gamma$  の遷移も許容となり、実際図 5-2 のメインの発光線はこうしたゼロフォノン線である。そしてメインの発光ピークから約 30 meV 及び 50 meV 低エネルギー側に見えている小さなサブピークが、それぞれ AlAs の  $X$  点の LA 及び LO フォノンが関与した遷移と考えられる [79]。これらのフォノンサイドバンドは 4 章で扱った直接遷移型タイプ I 試料の場合にはまったく観測されず、タイプ II 試料に特有に見られるものである。

果してこの発光が  $X_Z$  と  $X_{XY}$  どちらによるものかが問題であるが、Finkman ら [21] は発光強度の時間分解測定を行い、その非指数関数的な減衰曲線に間接遷移型  $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  混晶について得られた理論式をフィッティングさせることにより、この発光が  $X_{XY}$  によるものであると主張した。しかし Minami ら [80] は、超格子においては  $X_Z$  発光の場合も同じ理論曲線に従うことを示しており、このような方法ではっきりと決着をつけることは困難である。

ところで  $X$  点は軸方向の縦形質量 ( $m_{||}$ ) が横形質量 ( $m_{\perp}$ ) に比べてかなり大きくなっている。そこでこの有効質量の大きな異方性に着目すると、磁気光学的手法により  $X_Z$  と  $X_{XY}$  の区別がつけられると期待される。磁場を面に垂直 ( $B_{\perp}$ ) に加えた場合、 $X$  点電子の  $k$  空間における軌道は図 5-3(a) の点線のようにになる。 $X_Z$  であればサイクロトロン質量は

$$m_c = m_{\perp}$$

となるのに対し、 $X_{XY}$  では

$$m_c = \sqrt{m_{\perp} m_{||}}$$

と大きな縦形質量が入ってくるので両者でかなり差が生じる。さらに磁場を面に平行に加えた場合を考えると、図 5-3(b) のように今度は  $X_Z$  のサイクロトロン質量にも縦形質量が入ってくるので、 $X_Z$  は磁場配置による異方性が非常に大きくなる。これに対して  $X_{XY}$  の方を見ると、磁場を  $y$  方向に加えた場合には  $X_X$  と  $X_Y$  の縮退が解けて、エネルギーの低い  $X_Y$  から

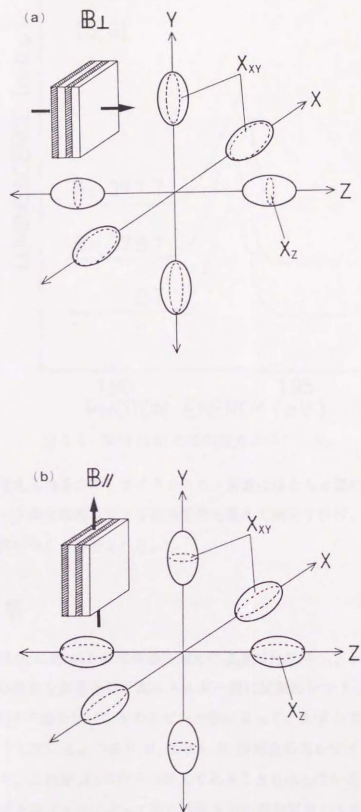


図 5-3 :  $B_{\perp}$ (a) 及び  $B_{\parallel}$ (b) における X 点電子の軌道。



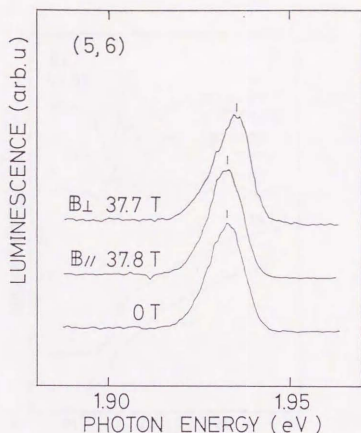


図 5-4: 試料 (5,6) の磁気発光スペクトル。

の発光が見えると考えられるので、サイクロトロン質量はほとんど変わらない。従って磁場中で励起子発光ピークの反磁性シフトを磁場配置を変えて測定すれば、その振舞いの違いから  $X_Z \cdot X_{XY}$  の区別がつくと期待される。

## 5.2 実験結果

図 5-4 は試料 (5,6) に約 40 T の強磁場を加えたときの発光スペクトルである。まず磁場が面に垂直 ( $B_{\perp}$ ) の場合を見ると若干高エネルギー側に反磁性シフトしているのに対して、磁場が面に平行 ( $B_{\parallel}$ ) の場合はバンドのスピンスplitによって、わずかではあるがむしろ低エネルギー側にシフトしている。つまり  $B_{\perp}$  よりも  $B_{\parallel}$  の場合の方がサイクロトロン質量がかなり大きくなっており、これが  $X_Z$  点からの発光であることを示している。一般に超格子においては、閉じ込めポテンシャルによって面に垂直方向の有効質量が大きくなり、本来等方的な  $\Gamma$  点の場合でも  $B_{\parallel}$  の方が  $B_{\perp}$  より反磁性シフトが小さくなる。そこで、仮に  $X_{XY}$  の場合に超格子構造によってどの程度反磁性シフトに異方性が生じるか有効質量近似で計算してみ

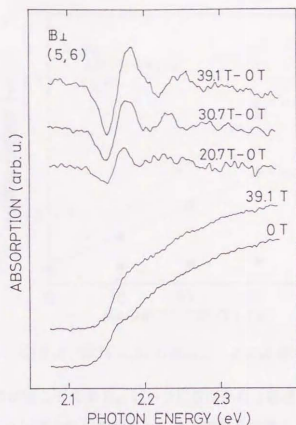


図 5-5: 試料 (5,6) の磁気光吸収スペクトル。

ると、

$$\frac{\Delta E_{\parallel}}{\Delta E_{\perp}} \simeq 0.54$$

となる。ただし、 $\Delta E_{\parallel}$ 、 $\Delta E_{\perp}$ はそれぞれ  $B_{\parallel}$ 、 $B_{\perp}$ において観測される反磁性シフトである。有効質量は  $m_{\parallel} = 1.1m_0$ 、 $m_{\perp} = 0.2m_0$ 、障壁の高さは  $V_c = 0.27\text{eV}$ (伝導帯)、 $V_h = 0.5\text{eV}$ (価電子帯)を仮定した。このように超格子の周期が短いことを反映して、図 5-4の実験結果よりもかなり異方性が小さくなる。従って、観測された発光は  $X_2$ によるものと考えられる。他の試料 (2,2), (4,4), (3,5), (9,10) についても磁気発光スペクトルにおいて同様な反磁性シフトの異方性が観測され、 $X_2$ が伝導帯下端となっていることがわかった。

図 5-5 に (5,6) の磁気光吸収スペクトルを示す。磁場は超格子面に垂直である。図の下方に示した 39.1 T のスペクトルを零磁場のスペクトルと比較すると確かに変化は認められるが、膜圧揺らぎが大きく影響するため、ランダウ準位間遷移による振動的なピークが明瞭には観測されていない。しかし各磁場で測定したスペクトルから零磁場のスペクトルを引算すると、図の上方に示したように吸収端近傍において、励起子及びランダウ準位間遷移と思われるピーク構造が現れているのがはっきりとわかる。これらのピークエネルギーを磁場に対

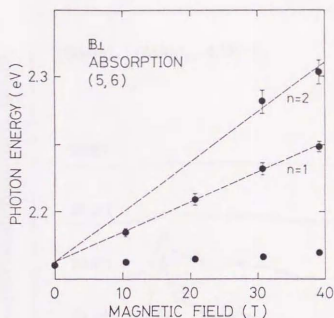


図 5-6: 試料 (5,6) の吸収ピークの磁場依存性。

してプロットしたのが図 5-6 である。ピーク位置はかなり誤差を含むが、図中破線で結んだ  $n=1$  及び  $n=2$  のランダウ準位の傾きから換算質量を見積ると  $\mu \approx 0.08m_0$  と、直接遷移型試料とほぼ等しい値が得られ、吸収スペクトルにおいては  $\Gamma$  点間の遷移が観測されていることが確認された。なお励起子ピークは、各磁場で得られたスペクトルを 2 階微分することによって求めたものである。

次に、図 5-7 は AlAs が 25 層と厚い試料 (6,25) について磁場を超格子面に垂直に印加した場合の発光スペクトルである。スペクトルの形状は図 5-4 で示した試料 (5,6) とは大きく異なり、矢印で示したゼロフォノン線に対して低エネルギー側のフォノンサイドバンドの強度が相対的に大きくなっている。また、全体として発光の積分強度が (5,6) に比べ一桁以上小さい。これまでに、AlAs 層厚が十分大きいタイプ II 超格子は  $X_{XY}$  が伝導帯下端になることが報告されているが [81, 49]、そこで見られる光学スペクトルの特徴は上の場合と一致している。従って (6,25) においては、逆に  $X_Z$  よりも  $X_{XY}$  の方がエネルギーが低くなっていると考えられる。図 5-7 において磁場による発光ピークのシフトも (5,6) に比べると非常に小さく、これが  $X_{XY}$  からの発光であることを裏付けている。1 周期中の総層数  $(m+n)$  が偶数であれば超格子のブリルアンゾーンにおいて  $X_Z$  は  $\Gamma$  に折り畳まれ擬直接遷移となる。これに対して、 $X_{XY}$  の場合は本質的に間接遷移であるため、全体の発光強度が小さくなるとともに、フォノンサイドバンドに比べてゼロフォノン線の強度が相対的に小さくなる。 $X_Z$  のゼロフォノン線は界面における散乱、あるいは超格子構造によるブリルアンゾーンの折り畳

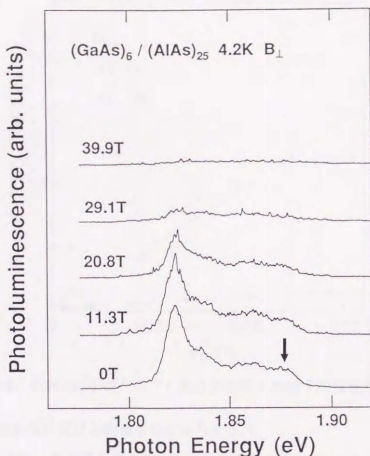


図 5-7: 試料 (6,25) の  $B_{\perp}$  における磁気発光スペクトル。

みによって許容になるのに対して、 $X_{XY}$ のゼロフォノン線は界面の乱れによって遷移が許容になると考えられる。

ここで、磁場とともに発光強度が激減しているが、この原因として次のような可能性が考えられる。4章でタイプⅠ超格子について見たように、低温での発光スペクトルにおいては界面の乱れによって超格子面内で局所的にエネルギーの低くなったところにキャリアが緩和して再結合するため、これがストークスシフトとして観測されていた。タイプⅡ超格子においては井戸層となる物質が電子と正孔とで異なるため、界面の乱れによる超格子面内のエネルギー極小点が両者で異なり、波動関数の中心がずれている。これに磁場が加わると波動関数が収縮し、電子・正孔はますますおのおののエネルギー極小点に局在するため両者の波動関数の重なりが減少し、これが発光強度の減少を引き起こす。 $X_2$ が伝導帯下端となっている (5,6) 等の試料は周期が短く、波動関数が GaAs 層、AlAs 層両方に広がっているため、このような効果は小さいと考えられる。図 5-7において例えば  $B = 20.8\text{T}$  で発光強度が半分程度に減少しているが、このときのサイクロトロン半径は約  $60\text{\AA}$  で、これが零磁場での電

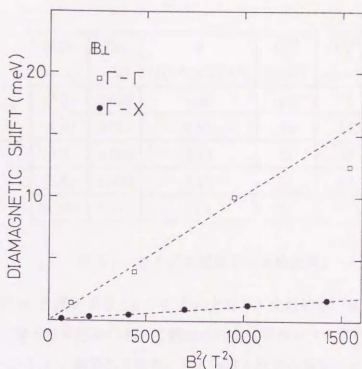


図 5-8: 試料 (5,6) のタイプ I 及びタイプ II 励起子の反磁性シフト。

子・正孔の超格子面内における距離の目安を与える。

以上で見たように、タイプ II 超格子における伝導帯下端が  $X_Z$  かあるいは  $X_{XY}$  かを判別する上でパルス強磁場下での磁気光学測定は非常に有効であるが、ほかにも圧力効果 [82] や光検知磁気共鳴 [81] などの手法により、本研究で行った同定を支持する結果が得られている。

## 5.3 考察

### 5.3.1 タイプ II 励起子の反磁性シフトと束縛エネルギー

ここでは、主にタイプ II 励起子について観測された反磁性シフトを解析する。図 5-8 は試料 (5,6) の発光スペクトルから得られたタイプ II 励起子 ( $\Gamma-X$ )、及び吸収スペクトルから得られたタイプ I 励起子 ( $\Gamma-\Gamma$ ) の反磁性シフトを磁場の自乗に対してプロットしたものである。 $\Gamma$ 点と  $X$ 点の有効質量の大きな違いを反映して、反磁性シフトは両者で著しく異なっている。仮に励起子の波動関数の面内の広がり  $\langle \rho^2 \rangle$  がともに等しいとして図中の破線の傾き ( $\beta \propto 1/\mu^3$ ) の比とタイプ I 励起子について得られた換算質量  $\mu \simeq 0.08m_0$  とから間接励起子の換算質量を見積ると、 $\mu = 0.18m_0$  が得られた。 $X_Z$  の場合の電子のサイクロトロン質量は横形質量  $m_{\perp} \simeq 0.2m_0$  で、また正孔については超格子の周期が短いのでバルク GaAs



試料 ( <i>m, n</i> )	$E_{PL}$ (eV)	$\beta$ ( $10^{-3}\text{meV/T}^2$ )	$E_B^{2D}$ (meV)	$E_B^{3D}$ (meV)
(2,2)	2.052	1.80	45	20
(4,4)	2.017	2.64	39	17
(3,5)	2.000	2.43	41	18
(5,6)	1.933	1.19	51	23
(9,10)	1.771	11.5	24	11

表 5.1: タイプ II 超格子の実験結果。

に近い値  $m_h \simeq 0.5m_0$  を仮定すると  $\mu \simeq 0.14m_0$  となり、比較的近い値をとる。

$X_Z$  が伝導帯下端となる試料において観測された反磁性シフトを図 5-9(a) に磁場の自乗にたいしてプロットした。純粋な 2 次元、あるいは 3 次元の場合にはこれより励起子の束縛エネルギー  $E_B$  を求めることができるが、中間的な次元性を有する超格子の場合には理論計算との比較が必要となる。ここでは、(2.36), (2.37), 並びに (2.49) より得られる関係

$$E_B \propto \mu \propto \beta^{-1/3}$$

を用いて簡単な比較を行う。図 5-9(b) に  $\beta^{-1/3}$  を発光ピークのエネルギーに対してプロットした。傾向としては短周期の試料ほど発光エネルギーが大きくなる。 $\beta$  は図 5-9(a) の弱磁場側にフィットさせた直線の傾きとして得られる係数である。 $E_B = C\beta^{-1/3}$  と書いたときの比例係数  $C$  は励起子の次元性、すなわち超格子のパラメータによって変わる量であり試料ごとに異なるが、 $\beta^{-1/3}$  から束縛エネルギーの目安を得ることができる。図 5-9(b) を見ると、(9,10)  $\rightarrow$  (5,6) で  $\beta^{-1/3}$  すなわち束縛エネルギーが増加しているのは、井戸幅が狭くなって閉じ込め効果がきくためと思われる。さらに周期を短くすると波動関数の障壁層へのしみ出しが大きくなって電子と正孔の重なりが大きくなるが、その効果よりも閉じ込めが減り 3 次元になる効果の方がきくために束縛エネルギーが減少すると解釈できる。(2.2) で再び束縛エネルギーが増大する理由としては、サブバンドエネルギーの増大に伴う非放物線性が考えられる。以上のふるまいは第 4 章で取り上げたタイプ I 超格子における結果と定性的に一致している。表 5.1 に各試料において観測された発光のピークエネルギー  $E_{PL}$ 、反磁性シフトの係数  $\beta$ 、2 次元及び 3 次元の極限に相当する束縛エネルギー  $E_B^{2D}$ 、 $E_B^{3D}$  をまとめた。実際の束縛エネルギーは  $E_B^{2D}$  と  $E_B^{3D}$  の中間となるはずである。Salmassi らの理論 [83] と比較す

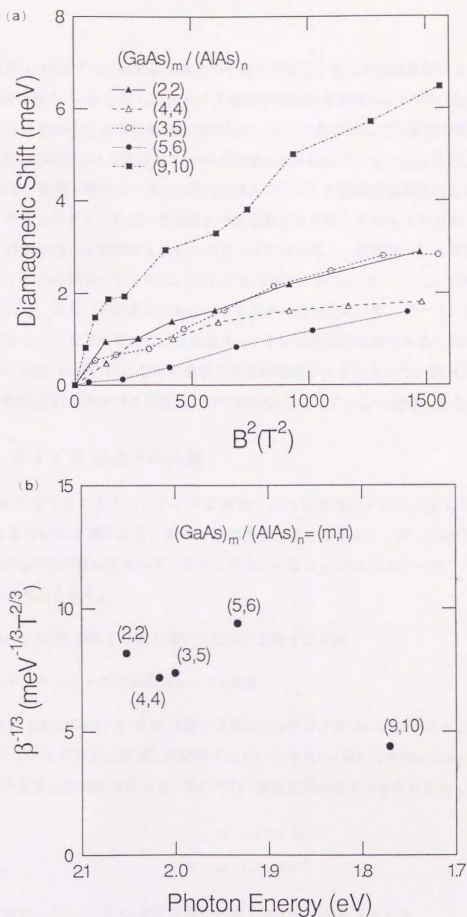


図 5-9 : (a) タイプ II 試料の反磁性シフト及び (b)  $\beta^{-1/3}$  の比較。

ると、(5,6) 以外はすべて理論値が両者の中間となった。彼らの理論計算によると、GaAs 層と AlAs 層の厚み ( $=d$ ) が等しいタイプ II 超格子における束縛エネルギーは、 $10\text{\AA} < d < 30\text{\AA}$  の範囲では  $d$  の減少とともに単調に増加している。これに対して本研究で得られた結果は、(5,6) 付近の膜厚における束縛エネルギーの増大を示唆している。ところで、タイプ I 超格子の場合は、発光・吸収スペクトル両方において  $\Gamma-\Gamma$  の遷移が観測されるが、その場合でさえも、発光スペクトルにおいては乱れのある界面に局在した励起子の再結合を観測しているため、自由励起子を観測する吸収スペクトルに比べると、反磁性シフトが若干小さくなるということがいくつかの試料で見られた。タイプ II 超格子に関しては、 $\Gamma-X$  の遷移強度が非常に小さいこと、また、その遷移の起こるエネルギー領域においてスペクトルに干渉効果による構造があることなどの理由により吸収スペクトルの測定が困難であるため明確な判断はできないが、(5,6) の場合にたまたま励起子の局在効果が大きくきいて、磁気発光スペクトルにおいて観測されたみかけの反磁性シフトが小さくなっている可能性もある。

### 5.3.2 タイプ II 超格子の分類

これまで見てきたように、タイプ II 超格子には伝導帯の下端が  $X_Z$  になるもの、及び  $X_{XY}$  になるものの 2 種がある。単純な有効質量近似で考えると、閉じ込め方向の有効質量の大きい  $X_Z$  の方が常にエネルギーが低くなる。一方  $X_{XY}$  のエネルギーを下げる効果として次の 2 つが考えられる。

- (1) GaAs と AlAs の格子定数の違いに起因する格子ひずみ
- (2) 超格子ポテンシャルによる  $X_X - X_Y$  混成

まず (1) だが、GaAs と AlAs は格子定数のマッチングがよいとはいえ 0.2% 程度の違いがあるため、GaAs 基板上に成長した超格子においては AlAs 層が 2 軸性の圧縮応力を受け、面内には縮み面垂直方向には伸びる。面に平行・垂直方向のひずみをそれぞれ  $e_{//}$ ,  $e_{\perp}$  とすると、

$$e_{//} = -1.8 \times 10^{-3}$$

$$e_{\perp} = 1.7 \times 10^{-3}$$

となっており、 $X_{XY}$  の  $X_Z$  に対する相対的なエネルギーの低下  $\Delta X$  は

$$\Delta X = E_2(e_{\perp} - e_{//}) \quad (5.1)$$

で与えられる。ここで  $E_2$  は伝導帯のせん断ひずみポテンシャルである。 $E_2$  として AlAs とバンド構造のよく似た GaP の場合の値 ( $=6.5\text{eV}$ ) を用いると、 $\Delta X = 23\text{meV}$  となる [81]。

次に (2) だが、 $X_Y(010)$  は  $(101)$  と逆格子ベクトル  $(1\bar{1}1)$  で結ばれた等価な点であり、 $(101)$  と  $X_X(100)$  は超格子ポテンシャル  $(001)$  で結合されている。従って、超格子の層数の偶奇で決まる波動関数の対称性に依りて、対称及び反対称な組み合わせ  $X_X \pm X_Y$  の縮退が解ければ、エネルギーの低下が生じることになる。

これらの効果により  $X_{XY}$  が伝導帯下端となる可能性がある場合、言いかえると有効質量近似において  $X_Z$  と  $X_{XY}$  のエネルギー差が小さくなる場合としては、

- (a) AlAs 層が厚く、X 点の電子に対する閉じ込め効果が弱い場合
- (b) 短周期で特に GaAs 層が薄く、積層方向の有効質量の比較的小さい ( $\approx 0.2m_0$ )  $X_{XY}$  サブバンドが大きなミニバンド分散を有する場合

が挙げられる。試料 (6,25) は (a) のケースである。また、(b) のケースとして Ge [84] は  $(n,n)$  超格子において、 $1 \leq n \leq 3$  の場合に  $X_{XY}$  が伝導帯下端になることを報告している。

## 第 6 章

# GaAs/AlAs 短周期超格子における タイプ I - タイプ II 転移

この章ではタイプ II 転移近傍のタイプ I 試料  $(\text{GaAs})_{15}/(\text{AlAs})_{13}=(15,13)$  を取り上げ、磁場及び静水圧によるタイプ I - タイプ II 転移 ( $\Gamma - X$  交差)、並びに伝導帯における  $\Gamma - X$  混成を議論する。

$(\text{GaAs})_n/(\text{AlAs})_n=(n,n)$  において、 $n$  が大きい長周期の場合は電子・正孔とも GaAs 層に局在したタイプ I 超格子であるが、周期を短くしていくと閉じ込め効果が  $\Gamma$  点のエネルギーが高くなり、 $n=12 \sim 14$  で  $\Gamma - X$  交差を起こしてタイプ II に転移することが知られている [85, 86]。一方、外場によるタイプ I - タイプ II 転移としては、これまで電場 [87] や静水圧 [88, 89] によるものが報告されている。ここで、超格子面に垂直に磁場を印加した場合のサイクロトロン質量を考えてみると、 $\Gamma$  点においてはバルク GaAs における値  $m_c = 0.067m_0$  に近い値をとるのに対して、 $X$  点 (正確には  $X_Z$  点) においては  $m_c \simeq 0.2m_0$  と  $\Gamma$  点よりもかなり大きな値となる。従って、タイプ I 超格子に十分強い磁場を印加すれば磁場誘起のタイプ I - タイプ II 転移が起こると期待される。図 6-1 に本研究で行った磁場及び静水圧による  $\Gamma - X$  交差の模式図を示す。静水圧の場合には、 $\Gamma$  点と  $X$  点の圧力係数が逆符号であるためある圧力において両者が交差するが、磁場の場合は、 $\Gamma$  点の方がサイクロトロン質量が小さく、磁場によるエネルギーシフトが  $X$  点よりも大きいために

$$B_c = \frac{2L_{\Gamma-X}}{\hbar e} \left( \frac{1}{m_\Gamma} - \frac{1}{m_X} \right)^{-1} \quad (6.1)$$

を満たす磁場でランダウ準位の交差が起こる。ここで  $m_\Gamma, m_X$  はそれぞれ  $\Gamma$  点、 $X$  点のサイクロトロン質量、 $L_{\Gamma-X}$  は零磁場における  $\Gamma - X$  のエネルギー差である。



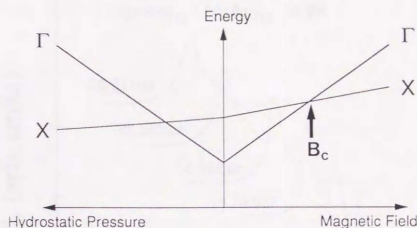


図 6-1: 磁場及び静水圧による $\Gamma-X$ 交差。

なお  $X$  点には  $X_Z$  のほかに縮退の解けた  $X_{XY}$  もあるが、本章で扱う試料 (15,13) においては  $X_{XY}$  は  $X_Z$  よりも十分高エネルギー側に位置すると考えられるので、今後  $X_{XY}$  は考慮しない。

## 6.1 圧力誘起タイプ I-タイプ II 転移

ここでは磁気光学スペクトルの議論に先立って、静水圧下での発光測定による  $\Gamma-X$  の励起子状態のエネルギー差  $\Delta_{\Gamma-X}$  の決定方法を述べる。

### 6.1.1 実験結果

図 6-2(a) はダイヤモンドアンビルセルで発生される約 30kbar に及ぶ静水圧下で測定した 4.2K における (15,13) の発光スペクトルである。タイプ I 試料に静水圧を印加すると  $\Gamma$  点の圧力依存性を反映して、発光ピークは高エネルギー側にシフトする。いまの試料では 2.7kbar ですでにタイプ II に転移していることが、大気圧下のスペクトルに比べて狭くなった発光半値幅よりわかる。これまでにもたびたび述べてきたように、短周期超格子においては界面の乱れに伴うエネルギーの揺らぎの影響が大きく、励起子ピークの半値幅もほとんどこれによって決まる。無限大障壁の場合のエネルギーの揺らぎは式 (4.1)

$$\Delta E = \frac{\pi^2 \hbar^2}{m^*} \left( \frac{\Delta L_z}{L_z^3} \right)$$

で与えられていたが、これを見ると  $\Delta E$  は有効質量  $m^*$  に反比例している。従って  $m^*$  の大きい  $X$  点に電子が存在するタイプ II 励起子の方が半値幅が小さくなる。

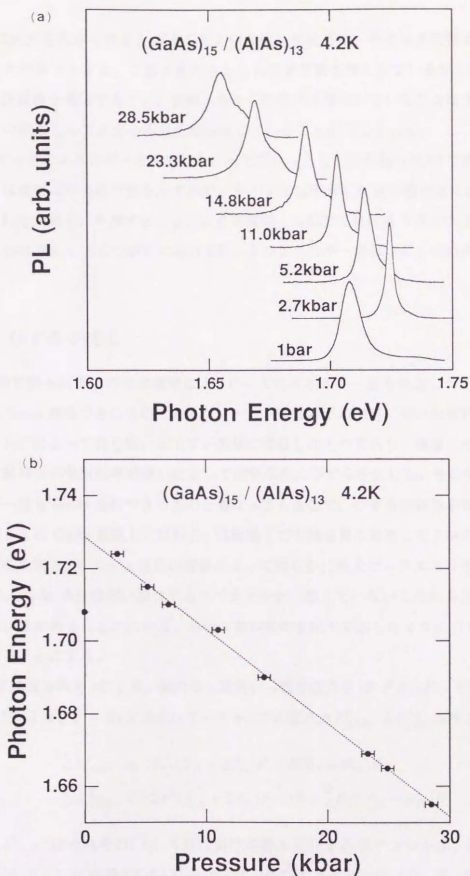


図 6-2 (a) 静水圧下における (15,13) の発光スペクトル。(b) 発光ピークエネルギーの圧力依存性。

さらに圧力を大きくするとX点の圧力依存性を反映して、今度は逆に低エネルギー側に発光ピークがシフトする。このとき圧力とともに半幅幅も増大しているが、4.2Kに冷却する過程で圧媒体が凝固すること、試料全体からの発光を測定していることなどを考えあわせると、その理由として多少の圧力分布を生じていることが考えられる。

発光ピークのエネルギーを圧力にたいしてプロットしたのが図6-2(b)である。X点のエネルギーは線形な圧力依存性を示すので、タイプⅡに転移した後の観測点に直線をフィットさせ、これを大気圧に外挿することにより零磁場・大気圧におけるX点のエネルギーが求まる。以上のようにしてこの試料における $\Gamma-X$ のエネルギー差は $\Delta E_{\Gamma-X} = 20.8 \text{ meV}$ と決定された。

### 6.1.2 ひずみの補正

前分節で静水圧下での光学測定により $\Gamma-X$ のエネルギー差を決定したが、そこで用いた試料はGaAs基板つきのものであった。一方、強磁場下の測定に用いた試料はGaAs基板をエッチングによって取り除いた上で石英板に接着したものであり、低温に冷却すると石英と超格子試料との熱収縮率の違いによって試料面内にひずみを生じる。その結果、 $\Gamma-X$ のエネルギー差もGaAs基板つきのものと異なってくるので、ひずみの効果を補正する必要がある。図6-3にGaAs基板上の試料と、強磁場下での測定用に処理した2種の試料の発光スペクトルを比較した。GaAs基板の有無によって明らかに発光ピークエネルギーが違っており、また、GaAs基板の無い場合でもスペクトルが一致していないことからひずみの大きさに試料依存性があることがわかる。以後2種の試料を図中で示したように(15,13)-#1, -#2と区別することにする。

超格子積層方向を $z$ にとり、面内の2軸性引っ張り応力を $(P, P, 0)$  ( $P > 0$ )で表すと、このときの $\Gamma-\Gamma$ 及び $\Gamma-X$ のエネルギーギャップの変化 $\Delta E_{(110)}^{\Gamma}$ ,  $\Delta E_{(110)}^{Xz}$ は次のようになる。

$$\Delta E_{(110)}^{\Gamma} = 2a^{\Gamma}(S_{11} + 2S_{12})P - b(S_{11} - S_{12})P \quad (6.2)$$

$$\Delta E_{(110)}^{Xz} = 2a^X(S_{11} + 2S_{12})P - (b + \frac{2}{3}E_2)(S_{11} - S_{12})P \quad (6.3)$$

ここで、 $a^{\Gamma}$ ,  $a^X$ はそれぞれ $\Gamma$ 点、X点における静水圧ひずみポテンシャル、 $b$ ,  $E_2$ はそれぞれ価電子帯( $\Gamma$ 点)、伝導帯(X点)におけるせん断ひずみポテンシャル、 $S_{ij}$ は弾性コンプライアンスである。ここで用いた値は、 $a^{\Gamma} = -8.93 \text{ eV}$ ,  $b = -1.76 \text{ eV}[90]$ ,  $E_2 = 5.1 \text{ eV}[91]$ ,  $S_{11} = 11.6 \times 10^{-4} \text{ kbar}^{-1}$ ,  $S_{12} = -3.7 \times 10^{-4} \text{ kbar}^{-1}[92]$ である。また、 $a^X$ に関しては、図

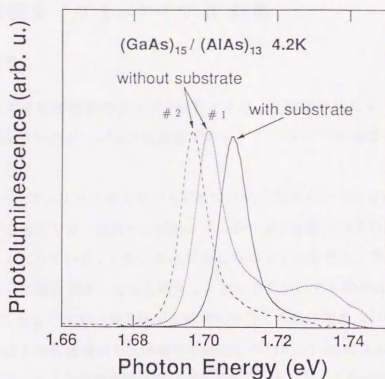


図 6-3 : GaAs 基板の有無による発光ピークエネルギーの違い。

6-2(b) より求めるタイプ II 転移後の静水圧 ( $P, P, P$ ) ( $P < 0$ ) によるエネルギーシフト  $\Delta E_{(111)}^{Xz}$  が

$$\Delta E_{(111)}^{Xz} = 3a^X(S_{11} + 2S_{12})P \quad (6.4)$$

と書けることより、 $a^X = 2.1\text{eV}$  と求まった。なお、GaAs と AlAs の弾性定数の違いを無視した。結局面内に 2 軸性の引っ張り応力が加わると  $\Delta E_{(110)}^{\Gamma} < \Delta E_{(110)}^{Xz} < 0$  となり、 $\Gamma-X$  のエネルギー差  $\Delta_{\Gamma-X}$  は増加する。

まず、図 6-3 において GaAs 基板付きの試料との発光ピークのエネルギー差よりひずみ  $P$  を見積り、これを用いて最終的な  $\Gamma-X$  のエネルギー差を求めた。このようにして得られた  $P$  及び  $\Delta_{\Gamma-X}$  を各試料について発光ピークのエネルギー  $E_{PL}$  とともに表 6.1 に示す。

試料	$E_{PL}(\text{eV})$	$P(\text{kbar})$	$\Delta_{\Gamma-X}(\text{meV})$
#1	1.7011	1.4	26.5
#2	1.6966	2.3	30.4

表 6.1 : 各試料における発光エネルギー、ひずみの大きさ、及びひずみ補正後の  $\Gamma-X$  エネルギー差。

## 6.2 磁場誘起タイプⅠ-タイプⅡ 転移

### 6.2.1 実験結果

(15,13) はタイプⅡ 転移直前のタイプⅠ 試料であり、前節で求めたように $\Gamma-X$ のエネルギー差が比較的小さいため、パルス強磁場下でタイプⅠ-タイプⅡ 転移が起こると期待される。

この試料は、タイプⅠにとどまっている間は井戸幅が小さくかなり2次元性の強い多重量子井戸とみなすことができ、励起子の束縛エネルギー及び振動子強度の増大に伴って発光効率が非常に大きくなっている。しかしタイプⅡに転移してしまうと、本来のバルクのブリルアンゾーンにおいて間接遷移になると同時に、実空間においても電子はAlAs層、正孔はGaAs層と分離してしまうため、発光効率が非常に小さくなると考えられる。

図6-4は40T以下の非破壊パルス磁場中で測定した(15,13)-#1の4.2Kにおける磁気発光スペクトルである。メインの発光線は重い正孔励起子、そして、これよりも30meVほど高エネルギー側にある小さなピークは軽い正孔励起子と考えられる。磁場とともに励起子ピークは高エネルギー側に反磁性シフトしている。面内のサイクロトロン質量は軽い正孔の方が重い正孔よりも逆に大きくなっているため、前者の方がシフト量は小さい。発光強度に関してはほとんど変化がなく、この磁場範囲では $\Gamma-X$ 交差が起こるには至っていない。

そこで一巻きコイルを用い、磁場範囲をさらに強磁場に拡張して測定を行った。図6-5は超強磁場下でのストリーク分光によって測定した磁気発光スペクトルである。最高磁場である142Tの前後を除き、各スペクトルは5Tおきに、時間の順に上から下に磁場の行き帰りにわたって示してある。超強磁場下の発光スペクトルの測定は信号光強度が十分でないため非常に困難であり、分解能を若干犠牲にして強度をかさいているので発光の半値幅が本来よりも大きくなっている。試料近傍の熱伝導帯対りモニターした温度は12Kであったが、 $\sim 100\text{W}/\text{cm}^2$ のレーザー光で励起しているため、試料自体の温度はこれよりも高くなっていると思われる。

スペクトルを時間の順に見ていくと、発光ピークは磁場とともに高エネルギー側に反磁性シフトしていくが、発光強度は $B \approx 55\text{T}$ 付近から減少しはじめ、 $B > 110\text{T}$ ではほぼ完全に消失している。これは $B \approx 55\text{T}$ で $\Gamma-X$ 交差、すなわち磁場誘起タイプⅠ-タイプⅡ転移が起こりキャリアが $\Gamma$ 点から $X$ 点に移ったためと解釈される。次に $B = 142\text{T}$ 以下の磁場の帰りのスペクトルを見ると、 $B \approx 80\text{T}$ 付近で発光強度がいったん異常な増大を示し



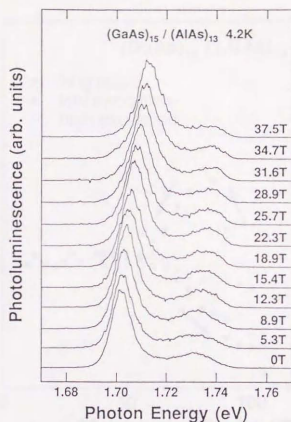


図 6-4 :  $(15,13)$ -#1 の非破壊パルス磁場における発光スペクトル。

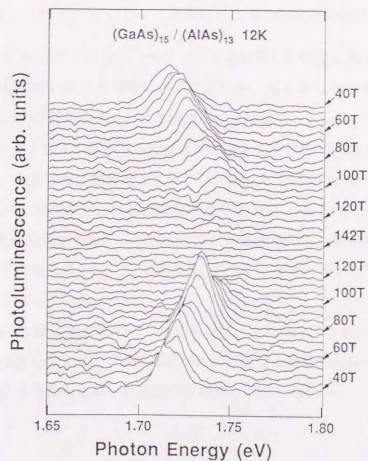


図 6-5 :  $(15,13)$ -#1 の超強磁場における発光スペクトル。

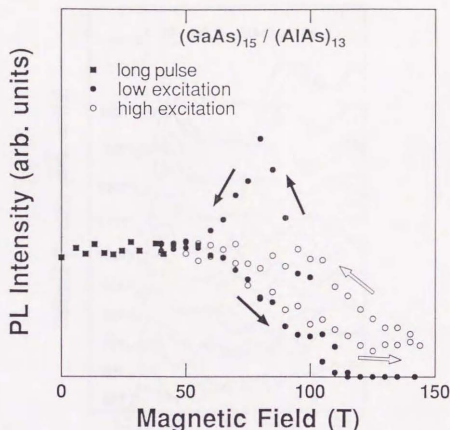


図 6-6: (15,13)-#1において観測された発光強度の磁場依存性。

た後再び減少し、 $B \approx 55\text{T}$ で行きのスペクトルとほぼ等しい強度に戻っている。発光強度に見られた以上の振る舞いをより明確にとらえるため、図 6-6 に積分発光強度を磁場に対してプロットした。40T 以下のデータは非破壊パルス磁場 (long pulse) 下で得られたものである。図 6-5 のスペクトルより読み取った発光強度を黒丸で示した (low excitation)。矢印は時間の向きを表す。発光強度に顕著なヒステリシスが現れているのがわかる。一方、白丸で示したのは、熱電対でモニターした試料近傍の温度は 10K であるがレーザーの励起強度を  $\sim 300\text{W}/\text{cm}^2$  と比較的強励起 (high excitation) にした場合である。弱励起の場合に比べて試料の温度が上昇しているため、 $\Gamma-X$  交差後も  $\Gamma$  点にキャリアがかなり熱分布するのでヒステリシスが小さくなっている。

図 6-7 に試料 #2 の磁気光吸収スペクトルを示す。#2 は #1 よりも  $\Delta\Gamma-X$  が大きいため、 $B \approx 80\text{T}$  で  $\Gamma-X$  交差を起こす。 $\Gamma-X$  混成があれば交差の前後で励起子ピークの分裂や反発が起こるが、そのような振る舞いは明瞭には観測されていない。

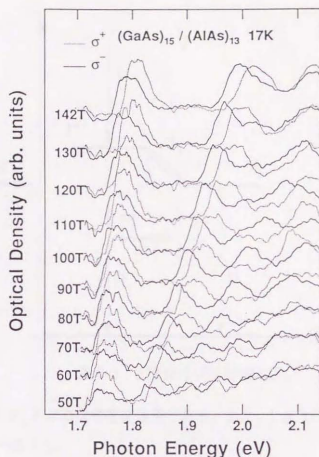


図 6-7: 超強磁場における (15,13)-#2 の吸収スペクトル。

### 6.2.2 レート方程式による解析

ここでは、発光強度の磁場依存性において観測されたヒステリシスの起源を明らかにするため、図 6-8 に示したような 2 準位モデルを用いてレート方程式による解析を行う。励起レーザー光によって  $\Gamma$  点のみにキャリアが生成されると仮定し、その割合を  $P$  とする。 $T_1$ ,  $T_2$  はそれぞれ  $\Gamma \rightarrow X$ ,  $X \rightarrow \Gamma$  の散乱頻度、 $R_\Gamma (= 1/\tau_\Gamma)$ ,  $R_X (= 1/\tau_X)$  はそれぞれ  $\Gamma$  点,  $X$  点における再結合過程の頻度である ( $\tau_\Gamma$ ,  $\tau_X$  は寿命)。すると  $\Gamma - X$  交差の前後におけるキャリアの動的過程を記述するレート方程式は次のようになる。

$$\frac{dn_\Gamma}{dt} = T_2 n_X - (T_1 + R_\Gamma) n_\Gamma + P \quad (6.5)$$

$$\frac{dn_X}{dt} = T_1 n_\Gamma - (T_2 + R_X) n_X \quad (6.6)$$

$n_\Gamma$ ,  $n_X$  はそれぞれ  $\Gamma$  点,  $X$  点におけるキャリア密度である。ここで  $T_1$ ,  $T_2$  の間にはキャリアの熱分布、及び  $\Gamma$  点と  $X$  点の状態密度を反映した次のような関係がある。

$$\frac{T_2}{T_1} = \frac{\mu_\Gamma}{\mu_X} \exp\left(-\frac{\Delta(B)}{k_B T}\right) \quad (6.7)$$

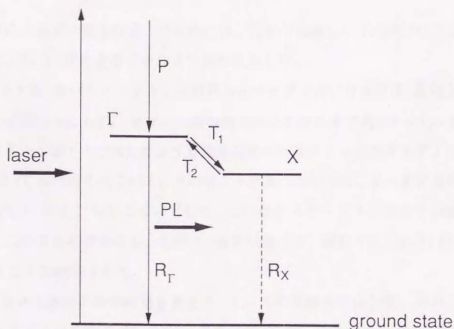


図 6-8: 2 準位モデルの模式図。

$\mu_\Gamma, \mu_X$ はそれぞれ $\Gamma$ 点,  $X$ 点の状態密度質量である。また、 $\Gamma$ 点及び $X$ 点における最低ランダウ準位のエネルギー差より、

$$\Delta(B) = E_\Gamma(B) - E_X(B) = \frac{\hbar e B}{2} \left( \frac{1}{m_\Gamma} - \frac{1}{m_X} \right) - L_{\Gamma-X} \quad (6.8)$$

と表せる。 $L_{\Gamma-X}$ は零磁場における $\Gamma-X$ のエネルギー差である。 $m_\Gamma, m_X$ はそれぞれ $\Gamma$ 点,  $X$ 点におけるサイクロトロン質量で、 $m_\Gamma = 0.091m_0$ [36],  $m_X = 0.25m_0$ [48]を仮定した。今パルス磁場を用いているため $B$ は

$$B(t) = B_{\max} \sin\left(\frac{\pi t}{\tau}\right) \quad (6.9)$$

のように時間の関数となっている。 $\tau$ はパルス幅で、実際に一巻きコイル直接放電法で発生されるパルス磁場においては、 $\tau \simeq 6\mu\text{s}$ となっている。タイプⅠ励起子の場合、直接遷移なので $\tau_\Gamma$ は100psのオーダーであるのに対して[93]、タイプⅡになると実空間・波数空間両方における間接性のため $\tau_X$ は非常に長く、 $\mu\text{s}$ のオーダーになることが時間分解発光の測定によって報告されている[21, 80, 94]。ここでは簡単のため、オーダーのみあわせて $R_\Gamma = 10^4\mu\text{s}^{-1}$ ,  $R_X = 1\mu\text{s}^{-1}$ とし、それらの $\Delta(B)$ 依存性を無視した。また、 $\Gamma-X$ 混成は考慮しない。

以上の条件下で、連立微分方程式(6.5), (6.6)を予測子-修正子法を用いて数値的に解いた。その際、式(6.7)だけでは $T_1, T_2$ の絶対値までは決定できないという問題があるが、両者を $R_\Gamma, R_X$ に比べて十分大きくとれば実際の計算結果はそれらの絶対値、及び $n_\Gamma, n_X$ に与

える初期条件によらず一定となる。具体的には、 $T_1$ を一定値とし  $T_2$ を式(6.7)より決定する場合であれば、 $T_1 \geq 10^5$ ととることにより解が収束した。

磁場のパルス幅 $\tau$ をパラメータとして計算したタイプⅠ及びタイプⅡ 励起子の発光強度の磁場依存性を図 6-9に示す。まず、実際の測定系における値である $\tau = 6\mu\text{s}$ (破線)とした場合に着目すると、図 6-6に示したような発光強度のヒステリシスがタイプⅠの発光強度の計算結果においても再現されている。今のモデル計算においては、 $\Gamma-X$ 交差の起こる磁場  $B_c$ は図中に示したように 74T になっており、これはヒステリシスの消失する磁場にほぼ対応している。このことを念頭において図 6-6を再び見ると、試料 (15.13)-#1 における  $B_c$ は約 55T であることが確認された。

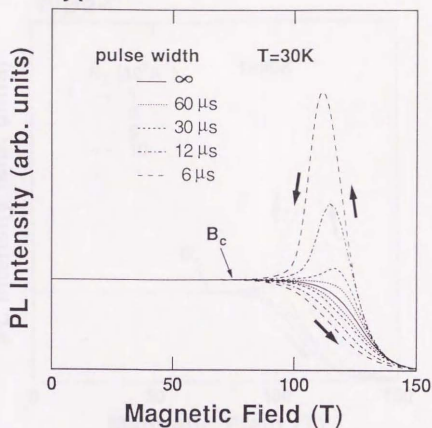
タイプⅡの発光強度の計算結果を見ると、 $\Gamma-X$ の再結合寿命が長いために超格子が磁場によってタイプⅡに転移している間にX点にキャリアが蓄積し、例えば  $B \simeq 110\text{T}$  では、行きに比べて帰りの方がキャリア数が3倍ほどに増大している。このように、再びタイプⅠに転移する直前に多数のキャリアがX点に存在することとなり、これらが $\Gamma$ 点に熱励起されてタイプⅠの発光強度の磁場依存性に見られるピークが生じると考えられる。図に示した計算結果を見ると、 $B \simeq 150\text{T}$ でタイプⅡの発光強度も初めのタイプⅠの発光強度と等しくなっているが、これは  $R_X$ をすべて発光再結合の成分と仮定しているためで、実際には非発光再結合の成分が  $R_X$ の大部分を占めているため、タイプⅡ 発光が観測されていないと理解できる。

次に、仮想的に $\tau$ を大きくして磁場の掃引速度を大きくした場合の計算結果を見ると、次第にヒステリシスが小さくなり、やがて定常状態である $\tau = \infty$ の場合に近づいていく。従って、磁場のパルス幅とタイプⅡ 励起子の再結合寿命がともに $\mu\text{s}$ のオーダーであることがヒステリシスの原因となっていることがわかる。図 6-10は、磁場のパルス幅を $6\mu\text{s}$ で一定にし、逆に  $R_X$ を変化させた場合の計算結果であるが、この場合もタイプⅡ 励起子の再結合寿命を短くするほどヒステリシスが小さくなっており、上の結論を裏付けている。

図 6-11 は温度依存性を示したもので、高温ほど $\Gamma-X$ 交差後も $\Gamma$ 点におけるキャリアの分布が増えるためヒステリシスが小さくなり、図 6-6と定性的に一致した結果が得られている。



# type-I



# type-II

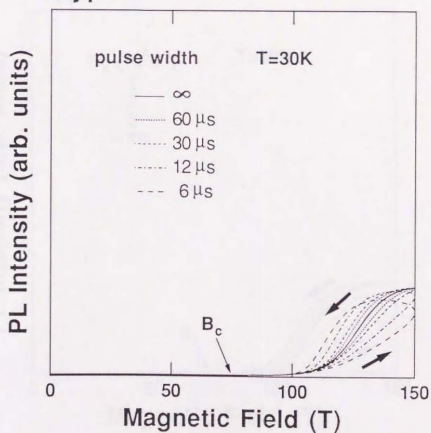


図 6-9: レート方程式を解いて得られた発光強度の磁場パルス幅依存性。

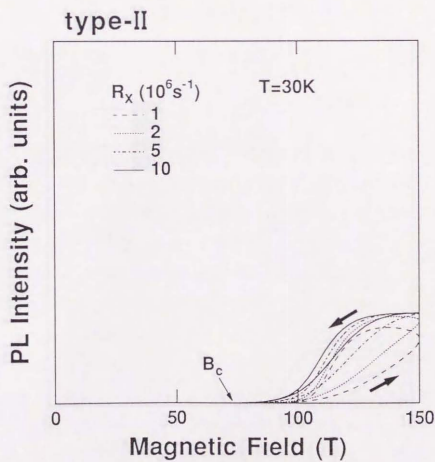
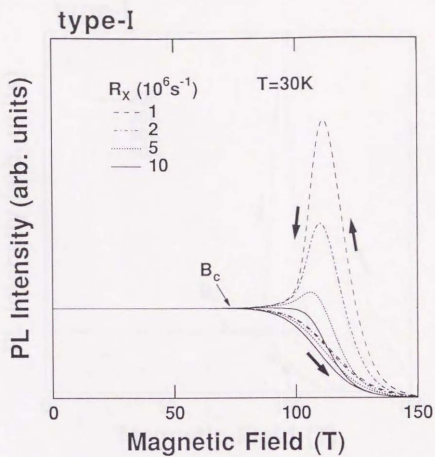
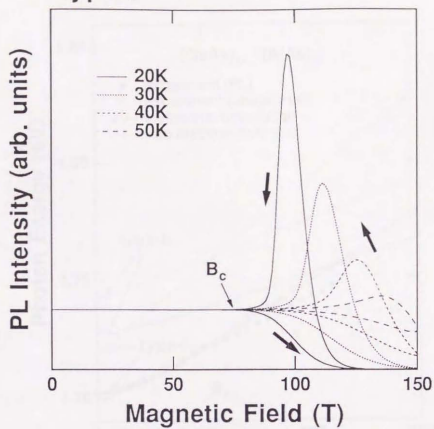


図 1. レート方程式を解いて得られた発光強度のタイプ II 発光寿命依存性。

# type-I



# type-II

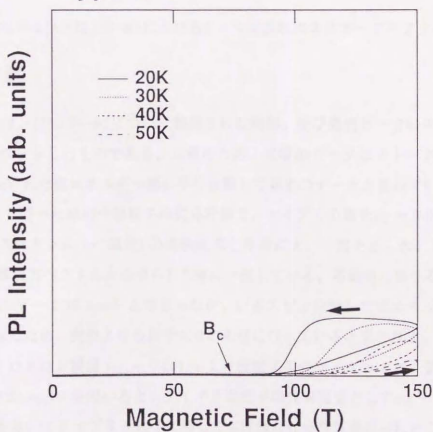


図 6-11: レート方程式を解いて得られた発光強度の温度依存。

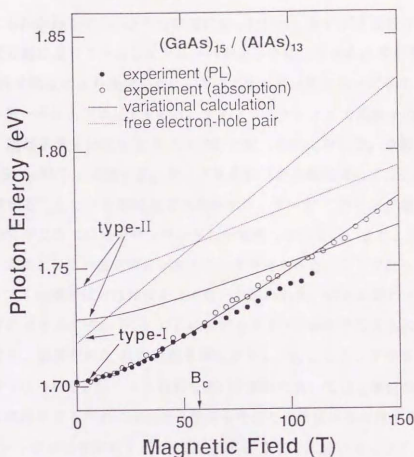


図 6-12: (15.13)-#1における $\Gamma-X$ 交差のエネルギーダイアグラム。

### 6.3 考察

図 6-12 は、(15.13)-#1について観測された吸収、及び発光ピークのエネルギーを磁場に対してプロットしたものである。比較のため、吸収のデータはストークスシフトに相当する約 15meV だけ低エネルギー側に平行移動して発光のデータと重ねている。実線で示したのは 4.4.1 で述べた磁場中励起子の変分計算で、タイプ I の場合  $\mu_{\Gamma} = 0.077m_0$  ととることにより吸収スペクトル ( $\sigma$ -偏光) の実験結果と非常に一致を示した。この  $\mu_{\Gamma}$  は 40T 以下の磁気光吸収スペクトルから得られた値に一致している。零磁場におけるタイプ I 励起子の束縛エネルギーは 16.2meV と求めたが、いまスピン分裂した低エネルギー側の分枝にフィットさせたため、実際よりも若干大きめの値になっていると思われる。この  $\mu_{\Gamma}$  と伝導帯  $\Gamma$  点のサイクロトロン質量  $m_{\Gamma} = 0.091m_0$  より価電子帯のサイクロトロン質量が  $0.5m_0$  となり、 $m_X = 0.25m_0$  [48] を用いると、タイプ II 励起子の換算質量として  $\mu_X = 0.17m_0$  が得られる。この値を用いてタイプ II 励起子に関しても同様な変分計算を行ったところ、零磁場での束縛エネルギーは 12.9meV とタイプ I よりも小さな値となった。X 点の方が  $\Gamma$  点よりも有効

質量が大きいかかわらずこのような結果になったのは、タイプⅡ 励起子における電子と正孔の空間的な分離によりクーロンエネルギーが小さくなったためと考えられる。

静水圧下の発光測定により決定した $\Gamma-X$ のエネルギー差をもとにしてタイプⅡ 励起子の磁場中エネルギー準位をプロットすると、タイプⅠとタイプⅡで励起子の束縛エネルギーが異なるため、励起子準位の交差は $B \approx 110\text{T}$ で起こるのに対して、点線で示したランダウ準位は $B \approx B_c \approx 55\text{T}$ で交差する。タイプⅡ 励起子の計算に際しては、高次のサブバンドの混成を考慮することにより零磁場での束縛エネルギーが1割りほど増加することが報告されている[95]がここでは最低サブバンドしか考慮していない。また、AlAsのX点の有効質量に関して依然として不確定要素があること等を考えると、ここで行ったタイプⅡ 励起子の計算はタイプⅠの場合ほどは精度が良くないと思われる。にもかかわらず、零磁場でのタイプⅡ 励起子のエネルギーが $B_c \approx 55\text{T}$ におけるタイプⅠ 励起子のエネルギーよりも大きいことからすると、観測された $B_c$ は励起子準位よりも、むしろランダウ準位の交差に対応していると結論づけられる。レート方程式を用いた解析においては2準位のみを考えていたが、より精密な議論をするためには励起子準位も含めた4準位系を考慮する必要がある。

吸収スペクトルにおける励起子ピークは150T近くまで変分計算とよく一致したのに対して、発光ピークは $B_c$ 付近から磁場とともに理論曲線より低エネルギー側にずれ始める。同様な振る舞いは試料#2においても $B > B_c$ で観測されている。この理由は明らかではないが、可能性として $\Gamma-X$ 混成によって反発した低エネルギー側の分枝が見えていることが挙げられる。反発の大きさ、すなわち $\Gamma-X$ 混成 $\langle \Psi_{\Gamma} u_{\Gamma} | V | \Psi_X u_X \rangle$ は周期が短く波動関数のしみ出しの大きな試料ほど大きくなると考えられる。ここで、 $\Psi_i, u_i$  ( $i = \Gamma, X$ ) はそれぞれ伝導帯各点における包絡関数、ブロッホ関数、 $V$ は超格子界面等の散乱ポテンシャルである。Pulsfordら[96]は、より短周期の試料(9,3)について磁場を超格子面に平行に印加した配置で磁気反射スペクトルを測定し、 $\Gamma-X$ 混成による $\Gamma$ 点の $n = 3, 4$ のランダウ準位とX点の最低ランダウ準位との10meV近い反発を観測した。一方、Meynadierら[87]が長周期の試料(GaAs-35Å, AlAs-80Å)について観測した電場によるタイプⅠ-タイプⅡ 転移においては、反発の大きさはわずか1meV程度であったし、Xia[97]が(12,12)について行った理論計算でも2~3meVとかなり小さな値になっている。そこで図6-12を見ると、 $B \approx 100\text{T}$ において吸収と発光ピークのエネルギー差は10meV弱あり、この試料の周期からすると $\Gamma-X$ 混成による反発にしては大きすぎるように思われる。

ほかの可能性としては、 $B > B_c$ でX点に蓄積し始める電子及び $\Gamma$ 点の正孔によって超格



試料	$\Delta_{\Gamma-X}$ (meV)	$B_c$ (T)
#1	$26.5 \pm 1.0$	$55 \pm 5$
#2	$30.4 \pm 1.0$	$80 \pm 5$

表 6.2: 各試料の $\Gamma-X$ エネルギー差と転移磁場。

子界面に発生する電気双極子と、励起子との相互作用といったことも考えられるが、現時点では明らかではない。

次に、面内ひずみの異なる2種の試料#1と#2における $\Gamma-X$ のエネルギー差 $\Delta_{\Gamma-X}$ と転移磁場 $B_c$ を表6.2にまとめる。当然のことながら、 $\Delta_{\Gamma-X}$ の大きい#2の方が転移磁場も高くなる。

ところで、AlAsはGaAs/AlAs超格子の障壁層として非常に重要な物質であるにもかかわらず、取り扱いが困難で移動度も小さいため、そのX点の有効質量が長い間不確定であったが、最近Miuraら[48]及びGoiranら[98]は強磁場を用いることによりサイクロトロン共鳴を観測することに成功した。しかし、実験結果の解釈については議論が別れており、Miuraらは $m_e = 0.47m_0$ の共鳴ピークを横形質量・縦形質量の平均 $\sqrt{m_{\perp}m_{\parallel}}$ としているのに対して、Goiranらは横形質量 $m_{\perp}$ と解釈している。本研究で論じているのは価電子帯-伝導帯間のバンド間遷移のスペクトルであるが、 $\Gamma-X$ 交差に関与しているのは伝導帯のみであり、観測された $B_c$ からAlAsのX点の有効質量に関する情報を得ることができる。そこで、どちらの主張が正しいのか、本研究で得られた実験結果をもとに考察してみる。

すでに述べたように $B_c$ はランダウ準位の交差に対応しているが、表6.2に記した $\Delta_{\Gamma-X}$ は励起子状態間のエネルギー差である。ところが、特にタイプII励起子の束縛エネルギーに不確定性があるため、 $\Delta_{\Gamma-X}$ からランダウ準位間のエネルギー差 $L_{\Gamma-X}$ を正確に求めることができない。しかし試料#1と#2における励起子束縛エネルギーの差を無視すると、両者の $\Delta_{\Gamma-X}$ の差 $\delta\Delta_{\Gamma-X} \equiv \Delta_{\Gamma-X}^{\#2} - \Delta_{\Gamma-X}^{\#1}$ を $L_{\Gamma-X}$ の差 $\delta L_{\Gamma-X} \equiv L_{\Gamma-X}^{\#2} - L_{\Gamma-X}^{\#1}$ とみなすことができる。2つの試料における転移磁場 $B_c$ の差を $\delta B_c$ とおくと、

$$\delta B_c = \frac{2\delta\Delta_{\Gamma-X}}{\hbar c} \left( \frac{1}{m_{\Gamma}} - \frac{1}{m_X} \right)^{-1} \quad (6.10)$$

となり、表6.2より得られる $\delta B_c$ 、 $\delta\Delta_{\Gamma-X}$ を代入することによりX点の有効質量に関して

$$m_X = m_{\perp} = 0.16 \pm 0.07m_0$$

と求まった。ただし $\Gamma$ 点の有効質量  $m_{\Gamma} = 0.091m_0$  に関しては、10%の誤差を考慮している。ここで求まった AlAs の X 点の横形質量  $m_{\perp}$  が Goiran らの報告している値のほぼ半分以下であることから、むしろ Miura らの同定の方が正しいと考えられる。また、Smith ら [99] は磁場を (100) 方向に印加した場合よりも (111) 方向に印加した場合の方がサイクロトロン質量が小さくなることを観測しており、Miura らの同定を支持する結果を得ている。

## 6.4 多重極限状態における光学測定

この節では、ダイヤモンドアンビルセルによって発生される高圧とパルス強磁場を組み合わせた多重極限下の光学スペクトルを論じる。試料は GaAs 基板付きの (15,13) である。

図 6-2(b) で示したように、この試料は  $\Delta_{\Gamma-X}$  が小さいため 2.7 kbar ですでにタイプ II に転移していた。ここでは、特にタイプ I-タイプ II 転移近傍の圧力で磁気光学測定を行った。図 6-13 に圧力が 0.8 kbar、及び 1.4 kbar の場合の測定結果を例として示した。まずタイプ I-タイプ II 転移前の 0.8 kbar のスペクトルを見ると、発光強度はほとんど変化せずに高エネルギー側に反磁性シフトしている。これに対して転移後の 1.4 kbar においては、弱磁場での反磁性シフトが 0.8 kbar の場合よりも小さく、磁場とともに急速に発光強度が減少している。ほかに圧力が 2.6 kbar、3.6 kbar においても同様に測定を行った。すべての測定結果を図 6-14 にまとめる。(b) に示した発光強度は零磁場における値で規格化している。零磁場における発光強度の定量的な比較は困難であるが、定性的にはタイプ I の 0.8 kbar が一番強度が大きいのは当然として、1.4 kbar 以上のタイプ II 転移後の圧力下では高圧のものほど強度が小さかった。タイプ II 励起子の発光強度は、 $\Gamma-X$  混成によって X 点的な伝導帯に混じりこんだ  $\Gamma$  成分に比例すると考えられる。摂動論的に考えると  $\Gamma-X$  混成の大きさは両者のエネルギー差  $\Delta_{\Gamma-X}$  に反比例するが、圧力とともに  $\Delta_{\Gamma-X}$  が大きくなるため発光強度が減少すると理解できる。磁場が加わるとさらに  $\Delta_{\Gamma-X}$  が増加するので、発光強度は図 6-14(b) のような磁場依存性を示すと一見思える。しかし、高圧ほど  $\Delta_{\Gamma-X}$  における磁場の効果は相対的に小さくなるはずなのに、得られた傾向は逆に高圧ほど磁場とともに発光強度が急速に減少している。そこで他の原因として、ガスケットとしてここでは電気伝導度の大きいリン青銅を用いているため、パルス磁場に伴う渦電流によって温度上昇していることが考えられる。強磁場で発光の半値幅が若干増大していることも、温度上昇を示唆している。温度が上昇すると非発光再結合の頻度が増加するが、本来の発光再結合寿命の長いもののほどその効果が相対的に大き

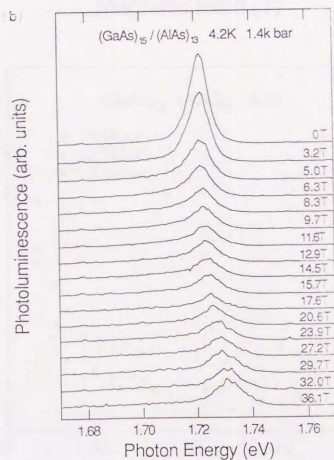
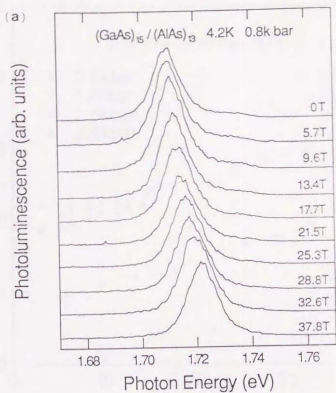


図 6-13 : (15.13) における高圧・強磁場多重極限下の発光スペクトル。(a) は 0.8kbar, (b) は 1.4kbar である。

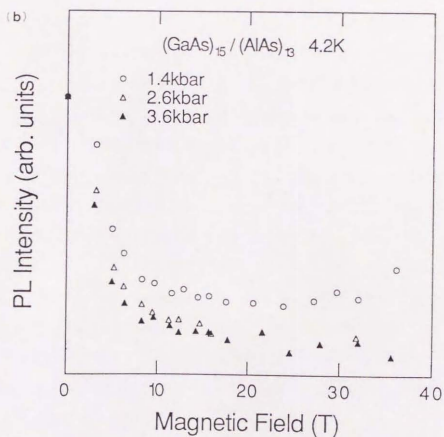
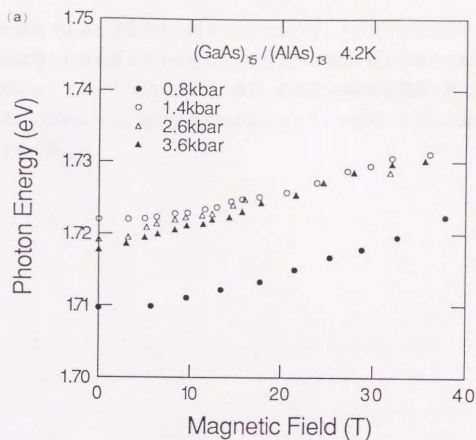


図 6-14: 発光ピークエネルギー (a) 及び発光強度の磁場・圧力依存性 (b)。

くると解釈できる。ところが、図 6-14(a)において、タイプ I の 0.8kbar の場合には大気圧下とほぼ等しい反磁性シフトを示したが、圧力が 1.4kbar 以上の場合に観測されたシフトは全体的にタイプ II には大きすぎ、また、その圧力依存性も温度上昇だけでは説明が困難である。いずれにせよ、電気伝導度の小さなガasketを用いてさらに詳しく調べることが必要であろう。



## 第 7 章

### 結論

本論文では 1 周期が  $10\sim 90\text{\AA}$  の  $(\text{GaAs})_m/(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As})_n$  短周期超格子についてパルス強磁場下でバンド間磁気光学スペクトルを測定し、そのバンド構造や励起子状態を調べるとともに超強磁場における新現象を探索した。得られた結果をまとめると以下になる。

1) 障壁の高さが低い場合 ( $x \simeq 0.5$ )、及び、比較的長周期の場合は超格子はタイプ I となる。本論文で取り上げたタイプ I 超格子はミニバンド幅に応じて、a) 非常に広いミニバンド幅 ( $> 200\text{meV}$ ) を有する 3 次元の試料、b) 中程度のミニバンド幅 ( $\sim 60\text{meV}$ ) を有する試料、及び c) 量子井戸型試料に分類できる。a) については、磁場を超格子面に平行に印加して磁気吸収スペクトルを測定した場合に、ミニバンドに対応するエネルギー領域でのみランダウ準位の量子化を観測し、有効質量近似に基づくエネルギー準位の数値計算とあわせて議論した。また、非常に短周期でバンド構造はかなり異方性が小さいため、1 軸対称性を有する 3 次元の物質とみなして励起子状態を解析した。さらに、超格子面に平行に超強磁場を印加した際に、ランダウ準位の縮退が解けることによって誘起される 2 次元の鞍点 (磁場誘起鞍点) に伴う励起子線幅の増大を観測した。b) については、ミニバンド幅よりサイクロトロンエネルギーが大きくなるような超強磁場下で吸収スペクトルを測定し、 $k_z = \pm\pi/d$  の鞍点励起子の構造を観測した。また、零磁場での吸収スペクトルにおいて、a) の場合には鞍点はキंकとして観測されていたが、よりミニバンド幅が小さく鞍点近傍の状態密度が大きくなっていることを反映して、ピーク的な鞍点の構造が観測された。c) に関しては、励起子の反磁性シフトを変分計算と比較し、短周期化に伴う量子閉じ込めや非放物線性による有効質量の増大等によって、それらがバルク GaAs における値の 4 倍にも達するような、かなり大きな束縛エネルギーを有することを見出した。

2) AlAs を障壁層とするタイプ II 短周期超格子については、従来 X 点的な伝導帯下端の

状態の起源について議論が別れていたが、磁気発光スペクトルにおいて観測された反磁性シフトの異方性より、周期が約  $50\text{\AA}$  以下の試料においては、面垂直方向の  $X_Z$  が伝導帯下端となっていることを示した。一方、AlAs 層が非常に厚いタイプ II 試料においては、逆に面内の  $X_{XY}$  が伝導帯下端となっていることを確認した。

3)  $\Gamma$  点と  $X$  点のエネルギー差が比較的小さい試料について、磁場及び静水圧による  $\Gamma-X$  交差 (タイプ I-タイプ II 転移) を観測した。磁場誘起タイプ I-タイプ II 転移においては、発光強度の磁場依存性に顕著なヒステリシスが現れることを見出し、2 準位モデルに基づいたレート方程式を用いた解析により、このヒステリシスが、タイプ II 励起子の再結合寿命、及び一巻きコイルによって発生されるパルス磁場の時定数がともに  $\mu\text{s}$  のオーダーであることに起因するものであることを示した。また、パルスマグネット内に挿入可能な小型のダイヤモンドアンビルセルを設計し、強磁場・高圧の多重極限下での発光測定を試みた。

GaAs/AlGaAs 系の超格子は最も早くから研究が始まっていたこともあって、その物性は今日ではかなり明らかになっているが、強磁場、さらには高圧といった極限状態においては非常に多様な局面がひらけ、新たな問題点も現れてきている。今後とも、さらに多方面から研究が進展することが望まれる。

## 謝辞

本論文をまとめるにあたり、非常に恵まれた研究環境におきまして5年間にわたって熱心に御指導くださいました三浦登教授に深く感謝します。

超格子試料を快く提供してくださいました NTT 基礎研究所の堀越佳治博士、佐久規主任研究員をはじめ、超格子物性研究グループの樽茶清悟博士、平山祥郎博士、前田就彦博士に深くお礼申し上げます。また、山口浩司研究主任には X 線測定で大変お世話になりました。

姫路工業大学助教授の嶽山正二郎博士には、物性研究所在任中に OMA をはじめとするパルス強磁場下の光学測定系全般にわたりお世話になりました。ここに感謝の念を表します。

東京大学物性研究所の内田和人氏は、一卷きコイル用クライオスタットを始め、卓越した技術とアイデアで筆者の研究を支援してくださいました。また、山梨大学教育学部の渡辺勝儀博士には光物性全般にわたって有益な討論をしていただくとともに、零磁場分光システムなど光学測定系でも大変お世話になりました。ストリーク分光装置が稼動するようになったのも両氏の御協力によるものです。

東京大学物性研究所の八木健彦助教授を始め、超高压部門の職員・学生の方々には、ダイヤモンドアンビルセルを用いた高压実験にご協力いただきました。ここに感謝の意を表します。

東京大学物性研究所の安藤恒也教授、Oxford 大学の Robin J. Nicholas 博士、東京大学工学部の長田俊人博士、岩佐義宏博士、並びに筑波大学物質工学系の黒田真司博士には有益な討論をしていただきました。李柱臣博士ならびに先端科学技術研究センターの永宗靖博士には、光物性技術の初歩を教えていただきました。

そのほか、東京大学物性研究所のガラス工作室、計算機室、工作室の方々にもいろいろとお世話になりました。

最後になりましたが、東京大学物性研究所超強磁場部門の皆様に対する感謝の気持ちは、もとより最少ではありません。高増正博士には測定用ソフトウェアを始め論文執筆に至るま

で、あらゆる面でお世話になりました。野尻浩之博士、並びに香取浩子博士にはデータ処理等で、親切に面倒をみていただきました。晴山武氏には測定に欠かせない数々の電気回路装置を作製していただきました。東堂栄氏には、試料の準備等で大変お世話になりました。また、終始筆者を暖かく見守り励まして下さった秘書の六車紀子氏ほか職員、学生、並びに卒業生の皆様方に心からお礼を申し上げます。

## 参考文献

1. L. Esaki, and R. Tsu, IBM J. Res. Dev. **14**, 61(1970).
2. L. L. Chang, L. Esaki, W. E. Howard, and R. Ludeke, J. Vac. Sci. Technol. **10**, 11(1973).
3. L. L. Chang, L. Esaki, W. E. Howard, R. Ludeke, and G. Schul, J. Vac. Sci. Technol. **10**, 655(1973).
4. L. Esaki, L. L. Chang, W. E. Howard, and V. L. Rideout, in *Proceedings of the 11th International Conference on the Physics of Semiconductors, Warsaw, Poland, 1972*, edited by the Polish Academy of Sciences (PWN-Polish Scientific publishers, Warsaw, Poland, 1972), p.431.
5. L. L. Chang, H. Sakaki, C. A. Chang, and L. Esaki, Phys. Rev. Lett. **38**, 1489(1977).
6. R. Dingle, H. L. Strömer, A. C. Gossard, and W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett. **33**, 665(1978).
7. T. Mimura, S. Hiyamizu, T. Fujii, and K. Nanbu, Jpn. J. Appl. Phys. **19**, L225(1980).
8. R. Dingle, Festkörperprobleme **XV**, 21(1975).
9. E. E. Mendez, G. Bastard, L. L. Chang, L. Esaki, H. Morkoc, and R. Fischer, Phys. Rev. **B26**, 7101(1982).
10. D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, Phys. Rev. Lett. **53**, 2173(1984).
11. T. Ishibashi, S. Tarucha, and H. Okamoto, Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Oiso, 1981, Inst. Phys. Conf. Ser. No. 63, Chapter **12**, 587(1982).
12. H. M. Gibbs, S. S. Tarng, J. L. Jewell, D. A. Weinberger, K. Tai, A. C. Gossard, S. L. McCall, A. Passner, and W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett. **41**, 221(1982).
13. J. P. van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann, and W. A. Nordland Jr., Appl. Phys. Lett. **26**, 463(1975).
14. W. T. Tsang, Appl. Phys. Lett. **39**(1981)786.
15. J. P. van der Ziel, and A. C. Gossard, J. Appl. Phys. **48**, 3018(1977).
16. A. Ishibashi, Y. Mori, M. Itabashi, and N. Watanabe, J. Appl. Phys. **58**, 2691(1985).



17. J. N. Schulman, and T. McGill, Phys. Rev. **B19**, 6341(1979).
18. W. Andreoni, and R. Car, Phys. Rev. **B21**, 3334(1980).
19. T. Nakayama, and H. Kamimura, J. Phys. Soc. Jpn. **54**, 4726(1985).
20. J. Ihm, Appl. Phys. Lett. **50**, 1068(1987).
21. E. Finkman, M. D. Sturge, and M. C. Tamargo, Appl. Phys. Lett. **49**, 1299(1986).
22. J. Yoshino, H. Sakaki, and T. Furuta, Proc. 17th Int. Conf. on Physics of Semiconductors, San Francisco, 1984 (Springer)519-522.
23. G. Belle, J. C. Maan, and G. Weimann, Surf. Sci. **170**, 611(1986).
24. S. J. Allen, Jr., T. Duffield, R. Bhat, M. Koza, M. C. Tamargo, J. P. Harbison, F. DeRosa, D. M. Hwang, P. Grabbe, and K. M. Rush, Proc. Int. Conf. Appl. High Magnetic Fields in Semiconductor Physics (Springer, 1987)p184.
25. T. Duffield, R. Bhat, M. Koza, F. DeRosa, K. M. Rush, and S. J. Allen, Jr., Phys. Rev. Lett. **59**, 2693(1987).
26. E. Caruthers, and P. J. Lin-Chung, J. Vac. Sci. Technol. **15**, 1459(1978).
27. J. M. Luttinger, and W. Kohn, Phys. Rev. **97**, 869(1955).
28. *Numerical Data and Functional Relationship in Science and Technology*, Vol. 17 of *Landolt-Börnstein*, edited by O. Madelung(Springer, Berlin.1982).
29. Y. Iwasa, Doctor Thesis (univ. Tokyo, 1986).
30. D. D. Sell, Phys. Rev. **B6**, 3750(1972).
31. M. Shinada, and S. Sugano, J. Phys. Soc. Jpn. **21**, 1936(1966).
32. R. C. Miller, D. A. Kleinman, W. T. Tsang, and A. C. Gossard, Phys. Rev. **B24**, 1134(1981).
33. G. Bastard, E. E. Mendez, L. L. Chang, and L. Esaki, Phys. Rev. **B26**, 1974(1982).
34. R. L. Greene, and K. K. Bajaj, Solid State Commun. **45**, 831(1983).
35. Y. Shinozuka, and M. Matsuura, Phys. Rev. **B28**, 4878(1983), **B29**, 3717(1984)(Erratum).
36. L. C. Andreani, and A. Pasquarello, Phys. Rev. **B42**, 8928(1990).
37. C. Aldrich, and R. L. Greene, Phys. Status Solidi **B93**, 343(1979).
38. W. Rösner, G. Wunner, H. Herold, and H. Ruder, J. Phys. B: At. Mol. Phys. **17**, 29(1984).
39. P. C. Makado, and N. C. McGill, J. Phys. C: Solid State Phys. **19**, 873(1986).
40. O. Akimoto, and H. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. **22**, 181(1967).

41. G. Bastard, Phys. Rev. **B24**, 5693(1981).
42. I. I. Goldman and V. Krivchenkov, *Problems in Quantum Mechanics* (Addison-Wesley, Reading, Mass., 1961)p60.
43. B. Deveaud, A. Regreny, M. Baudet, A. Chomette, J. C. Maan, and R. Romestain, in *Proceedings of the Eighteenth International Conference on the Physics of Semiconductors, Stockholm, Sweden, 1986*, edited by O. Engström (World Scientific, Singapore, 1987), p. 695.
44. T. Duffield, R. Bhat, M. Koza, F. DeRosa, D. M. Hwang, P. Grabbe, and S. J. Allen Jr., Phys. Rev. Lett. **56**, 2724(1986).
45. P. G. Harper, Proc. Phys. Soc. London, Sect. A **68**, 879(1955).
46. P. G. Harper, J. Phys. Chem. Solids **28**, 495(1967).
47. H. Kroemer, Surf. Sci., **174**, 299(1986).
48. N. Miura, H. Yokoi, J. Kono, and S. Sasaki, Solid State Commun. **79**, 1039(1991).
49. D. Scalbert, J. Cernogora, C. Benoit, M. Maaref, F. F. Charfi, and R. Planel, Solid State Commun. **70**, 945(1989).
50. M. A. Gell, M. Jaros, and D. C. Herbert, Superlatt. Microstruc. **3**, 121(1987).
51. E. Yamaguchi, J. Phys. Soc. Jpn. **56**, 2835(1987).
52. M. C. Muñoz, V. R. Velasco, and F. Garcia-Moliner, Phys. Rev. **B39**, 1786(1989).
53. L. D. L. Brown, M. Jaros, and D. F. Wolford, Phys. Rev. **B40**, 6413(1989).
54. T. Ishibashi, Y. Suzuki, and H. Okamoto, Jpn. J. Appl. Phys. **20**, L623(1981).
55. S. Takeyama, H. Ochimizu, S. Sasaki, and N. Miura, Meas. Sci. Technol. **3**, 662(1992).
56. K. Nakao, F. Herlach, T. Goto, S. Takeyama, T. Sakakibara, and N. Miura, J. Phys. E Sci. Instrum. **18**, 1018(1985).
57. J. M. Luttinger, Phys. Rev. **102**, 1030(1956).
58. A. Fasolino, and M. Altarelli, in *Band structure engineering in semiconductor microstructures*, R. A. Abram, M. Jaros eds., Plenum Press.
59. P. Lawaetz, Phys. Rev. **B4**, 3460(1971).
60. T. Hiroshima, and R. Lang, Appl. Phys. Lett. **49**, 456(1986).
61. D. F. Welch, G. W. Wicks, and L. F. Eastman, J. Appl. Phys. **55**, 3176(1984).
62. D. F. Nelson, R. C. Miller, and D. A. Kleinman, Phys. Rev. **B35**, 7770(1987).
63. P. P. Ruden, D. C. Engelhardt, and J. K. Abrokwha, J. Appl. Phys. **61**, 294(1987).
64. J. C. Phillips, Phys. Rev. **136**, A1705(1964).

65. H. Kamimura, and K. Nakao, J. Phys. Soc. Jpn, **24**, 1313(1968).
66. B. Velicky, and J. Sak, Phys. Status Solidi **16**, 147(1966).
67. E. O. Kane, Phys. Rev. **180**, 852(1969).
68. H. Chu, and Y. C. Chang, Phys. Rev. **B36**, 2946(1987).
69. H. Chu, and Y. C. Chang, Phys. Rev. **B39**, 10861(1989).
70. M. M. Dignam, and J. E. Sipe, Phys. Rev. **B41**, 2865(1990).
71. D. M. Whittaker, Phys. Rev. **B41**, 3238(1990).
72. M. F. Pereira Jr., I. Galbraith, S. W. Koch, and G. Duggan, Phys. Rev. **B42**, 7084(1990).
73. D. S. Chu, and Y. C. Lou, Phys. Rev. **B43**, 14504(1991).
74. A. Chomette, B. Lambert, B. Deveaud, F. Clerot, A. Regreny, and G. Bastard, Europhys. Lett. **4**, 461(1987).
75. B. Gerlach, and J. Pollmann, Phys. Stat. Sol. (b)**67**, 93(1975).
76. G. Danan, B. Etienne, F. Molloy, R. Planel, A. M. Jean-Louis, F. Alexandre, B. Jusserand, G. Le. Roux, J. Y. Marzin, H. Savary, and B. Sermage, Phys. Rev. **B35**, 6207(1987).
77. E. Finkman, M. D. Sturge, M. H. Meynadier, R. E. Nahory, M. C. Tamargo, D. M. Hwang, and C. C. Chang, J. Lumin. **39**, 57(1987).
78. K. J. Moore, G. Duggan, P. Dawson, and C. T. Foxon, Phys. Rev. **B38**, 5535(1988).
79. K. J. Moore, P. Dawson and C. T. Foxon, Phys. Rev. **B38**, 3368(1988).
80. F. Minami, K. Hirata, K. Era, T. Yao, and Y. Masumoto, Phys. Rev. **B36**, 2875(1987).
81. H. W. van Kesteren, E. C. Cosman, P. Dawson, K. J. Moore, and C. T. Foxon, Phys. Rev. **B39**, 13426(1989).
82. F. Minami, K. Todor, and K. Inoue, Semicond. Sci. Technol. **4** 265(1989).
83. B. R. Salmassi, and G. E. W. Bauer, Phys. Rev. **B39**, 1970(1989).
84. W. Ge, M. D. Sturge, W. D. Schmidt, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Appl. Phys. Lett. **57**, 55(1990).
85. R. Cingolani, L. Baldassare, M. Ferrara, M. Lugara, and K. Ploog, Phys. Rev. **B40**, 6101(1989).
86. H. Kato, Y. Okada, M. Nakayama, and Y. Watanabe, Solid State Commun. **70**, 535(1989).
87. M. H. Meynadier, R. E. Nahory, J. M. Worlock, M. C. Tamargo, and J. L. de Miguel, Phys. Rev. Lett. **60**, 1338(1988).

88. G. Li, D. Jiang, H. Han, and Z. Wang, Phys. Ref. B40, 10430(1989).
89. J. Nunnenkamp, K. Reimann, J. Kuhl, and K. Ploog, Phys. Rev. B44, 8129(1991).
90. M. Chandrasekhar, and F. H. Pollak, Phys. Rev. B15, 2127(1977).
91. P. Lefebvre, B. Gil, and H. Mathieu, Phys. Rev. B39, 5550(1989).
92. A. Gavini, and M. Cardona, Phys. Rev. B1, 672(1970).
93. G. Peter, E. O. Göbel, K. Ploog, P. Dawson, and C. T. Foxon, in *Proceedings of the 20th International Conference on the Physics of Semiconductors, Thessaloniki, Greece, 1990*, edited by E. M. Anastassakis and J. D. Joannopoulos (World Scientific, Singapore, 1990), p. 1601.
94. A. Wilson, C. E. Bonner, R. C. Spitzer, R. Fischer, P. Dawson, K. J. Moore, C. T. Foxon, and G. W. t'Hooft, Phys. Rev. B40, 1825(1989).
95. J. Cen, and K. K. Bajaj, Phys. Rev. B45, 14380(1992).
96. N. J. Pulsford, R. J. Nicholas, P. Dawson, K. J. Moore, G. Duggan, and C. T. B. Foxon, Phys. Rev. Lett. 63, 2284(1989).
97. J. B. Xia, Phys. Rev. B41, 3117(1990).
98. M. Goiran, J. L. Martin, J. Leotin, R. Planel, and S. Askenazy, Physica B 177, 465(1992).
99. T. P. Smith III, W. I. Wang, F. F. Fang, L. L. Chang, L. S. Kim, T. Pham, and H. D. Drew, Surf. Sci. 196, 287(1988).



