慶應義塾大学学術情報リポジトリ
Keio Associated Repository of Academic resouces

Title	バリア層組成揺らぎを利用した量子構造における弱局在状態の制御
Sub Title	Control of weakly localized states in semiconductor quantum structures through modification of roughness and composition in the barrier layers
Author	斎木, 敏治(Saiki, Toshiharu)
Publisher	
Publication year	2011
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2010.)
JaLC DOI	
Abstract	1~3原子層の厚さを有する量子井戸や量子ドット濡れ層に閉じ込められた電子の波動関数はバリア層に大きく浸み出すため、その電子状態の詳細は、バリア層におけるさまざまな揺らぎを明らかにする上で良いプローブとなる。そこで本研究では、近接場光学顕微鏡を用いたナノイメージング分光法と数値シミュレーションを駆使し、局在電子状態の解明をおこない、バリア層揺らぎとの関連を明らかにした。さらに、局所的な応力印加を利用した量子状態制御のデモンストレーションをおこなった。
Notes	研究種目：基盤研究(B) 研究期間：2008~2010 課題番号：20360021 研究分野：光物性・ナノ光学 科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・薄膜・表面界面物性
Genre	Research Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_20360021seika

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the KeiO Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

様式 C-19

科学研究費補助金研究成果報告書

平成２３年３月３１日現在

機関番号：３２６１２
研究種目：基盤研究（Ｂ）
研究期間：2008～2010
課題番号：２０３６００２１
研究課題名（和文）　バリア層組成揺らぎを利用した量子構造における弱局在状態の制御

研究課題名（英文）Control of weakly localized states in semiconductor quantum structures through modification of roughness and composition in the barrier layers

研究代表者
斎木　敏治（SAIKI TOSHIHARU）
慶應義塾大学・理工学部・教授
研究者番号：70261196

研究成果の概要（和文）：１～３原子層の厚さを有する量子井戸や量子ドット濡れ層に閉じ込められた電子の波動関数はバリア層に大きく浸み出すため、その電子状態の詳細は、バリア層におけるさまざまな揺らぎを明らかにする上で良いプローブとなる。そこで本研究では、近接場光学顕微鏡を用いたナノイメージング分光法と数値シミュレーションを駆使し、局在電子状態の解明をおこない、バリア層揺らぎとの関連を明らかにした。さらに、局所的な応力印加を利用した量子状態制御のデモンストレーションをおこなった。

研究成果の概要（英文）：Near-field photoluminescence imaging spectroscopy of the wetting layer of InAs/InP quantum dot (QD) at the critical thickness (2.4 monolayer (ML)) was conducted to visualize spatial variation in interface disorder. Compared to the result obtained from an InAs/InP quantum well (2 ML thickness), the density of carrier localization center in the wetting layer was found to be significantly reduced, preferably in the vicinity of QDs. The result indicates that short-range interface disorder was smoothed out at the beginning of QD formation. To the contrary, far apart from the QDs, atomic scale disorder still remained.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合　計
2008 年度	5,300,000	1,590,000	6,890,000
2009 年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
2010 年度	3,700,000	1,110,000	4,810,000
年度			
年度			
総　計	13,800,000	4,140,000	17,940,000

研究分野：光物性、ナノ光学
科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性
キーワード：量子井戸、量子ドット、濡れ層、波動関数、界面揺らぎ、組成揺らぎ

１．研究開始当初の背景

半導体量子ドットを中心に単原子層単位での構造制御が実現しつつある。しかし特に歪みをともなう結晶成長プロセスにおいては、単一原子レベルの原子の置換は完全に回避できず、量子構造の厚さ揺らぎやバリア層の組成揺らぎという形で発光スペクトルの不均一広がりをもたらしている。原子置換のよ

うすを直接観察する方法として、断面 STM は有用であり、これまで多くの知見をもたらしてきた。しかしこのような非平衡なプロセスの理解にあたっては、試料に加工を施さない非破壊測定がやはり望ましく、また、広い領域にわたり、二次元的に多くの測定データを蓄積することも必要である。近接場光学顕微鏡（NSOM）はこのような要求に応え得るツールであると期待されている。

われわれはこれまでに 10～30nm の空間分解能を有する NSOM を独自に開発し、量子ドットに閉じ込められた励起子の波動関数マッピングや希薄窒化物半導体の分光に取り組んできた。また最近では、光通信波長帯の材料として単一 InAs 量子ドット発光分光を手掛け、以下のような興味深い測定結果を得ている。

●単一の量子ドットから非常に鋭く、互いに接近した数本の発光ラインが見られる。

●単原子層厚の量子井戸（濡れ層）において弱局在状態を確認し、さらにその磁気発光特性が局在状態ごとに大きくばらついている兆候が見られる。

●これらの結果は、本来純粋な InP であるバリア層に対して原子置換を通して As 原子がわずかに混入し、バリア層に広がった波動関数がそれを感じて弱局在状態を形成していることに起因すると予想される。

一方、このような弱局在状態は量子情報処理のプラットフォームやテラヘルツ光検出などへの応用が期待される。ただしそのためには共鳴エネルギーや磁気光学特性の高精度なチューニングが必須であり、その具体的手法の提案が待たれている。

以上の研究成果、背景を踏まえ、この弱局在状態に関して以下の着想に至った。

●測定温度を下げることにより、さらに弱く局在した励起子発光をとらえ、高空間分解能の発光分光をおこなうことにより、バリア層内の組成揺らぎを高精度に決定することができるのではないか。

●この弱局在状態はバリア層のわずかな揺らぎによってそのエネルギー構造が支配されているので、新しい量子状態の制御方法として積極的に利用できないか。例えば NSOM プローブを介した応力印加と光加熱アニーリングにより、所望の弱局在状態を形成するための微調整ができるのではないか。

２．研究の目的

(1) InAs/InP 量子井戸､量子ドット濡れ層(主に単原子層）に対し、高空間分解能の発光イメージング分光をおこない、弱局在状態の空間的な分布、広がりを定量的に決定する。

(2) バリア層内の膜厚・組成揺らぎを仮定したモデルに対して、シュレディンガー方程式を解き、波動関数の広がりを評価する。発光スペクトルやその温度依存性との対比を通して、弱局在状態に対する理解を深める。

(3) NSOM プローブを介した応力印加によって弱局在状態のスペクトル変化を誘起し、量子状態の制御方法としての可能性と有用性を議論する。

３．研究の方法

(1) InAs/InP 量子井戸､量子ドット（濡れ層）試料に対し、マクロな発光スペクトル測定、ならびにその温度依存性に関するデータを蓄積する。

(2) 低温動作近接場光学顕微鏡により、量子井戸、ならびに量子ドット濡れ層のイメージング分光をおこなう。

(3) バリア層の揺らぎをモデル化し､FDTD 法を用いて、弱局在状態の波動関数、閉じ込めエネルギーを計算する。

(4) プローブを介した応力印加、ならびに相変化材料の体積変化を利用した応力印加によって弱局在状態の発光スペクトルの可逆的な制御をおこなう。

４．研究成果

(1) 測定試料

試料としてはダブルキャップ法を適用した InAs/InP 量子ドット(QD) および量子井戸(QW) を用いた。それぞれの InAs 供給量は 2.4 原子層(Monolayer: ML)、2.0ML であり、ともに厚さ 120nm の InP キャップ層で覆われている。2.4ML はほぼ 2 次元成長から 3 次元成長への臨界膜厚に相当する。図１(a)、(b)にそれぞれの試料（InP キャップ層なし）の原子間力顕微鏡画像を示す。QD については臨界膜厚であるため、ドット密度は非常に低く、およそ 1μm^2 あたり 5 個程度である。

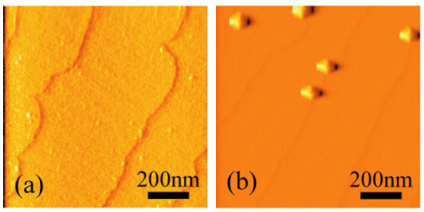

図１：(a)QW および(b)QD 試料の原子間力顕微鏡画像.

図２(a)、(b)に 10K における各試料のマクロフォトルミネッセンス(PL)スペクトルを示す。p1～p3 のピークはそれぞれ 1～3ML の層厚を有する領域からの PL に起因する。ドットが低密度であることを反映して、ドットからの発光強度は濡れ層からの発光強度に比べて、圧倒的に小さい。以下では、両試料でほぼ同一のスペクトル形状をもつ p3 の発光帯に着目し、NSOM による波長・空間分解測定をおこなった。

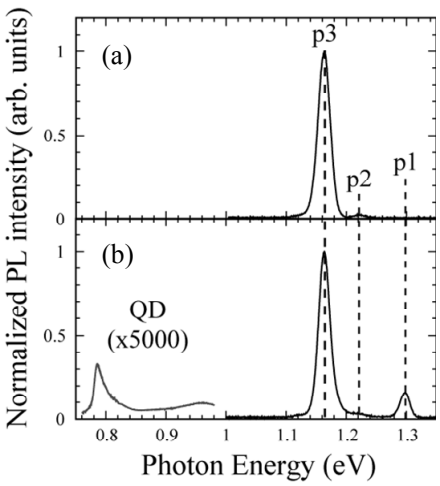

図２：(a)QW および(b)QD のマクロ PL スペクトル.

(2) 量子井戸のナノイメージング分光

開口型プローブ NSOM を用いて、QW 試料のイメージング分光をおこなった。開口直径は約 200nm で、空間分解能もほぼ同程度であることを、点状発光のイメージングによって確認している。PL の励起光源としては He-Ne レーザ（波長 632.8nm）を使用し、開口を通して試料に局所的に照射した。試料からの発光を再び局所的に開口を通して集光し、50cm 分光器と InGaAs ダイオードアレイによってスペクトル計測をおこなった。典型的には、1000nm 四方のエリアを 50nm ステップで走査し（20×20 ピクセル）各点で発光スペクトルを取得し、測定後に各発光ピークについてその分布を画像化するという作業をおこなう。なお、測定温度はすべて 10K である。

図３(a)は QW 試料に対して、ある一点で空間分解能 200nm の PL スペクトル測定をおこなった結果である。200nm という狭い領域からのスペクトルであるが、非常に多くの発光ラインが観測されている。図３(a)の挿入図は、矢印を付した発光について、その空間分布を示している。分布の広がりが空間分解能で制限されていることから、発光起源は空間的に強く局在していることがわかる。これは、量子井戸の界面揺らぎによる電子、正孔、あるいは励起子の局在によるものと考えられる。なお、図３(a)のスペクトルの励起強度依存性を測定したところ、全体の形状に変化が見られなかったことから、励起状態からの発光は含まれていない。すなわち、発光ラインの数だけ、局在サイトが存在することを意味する。以上の考察より、界面揺らぎは非常に細かな空間スケール（原子オーダー）で生じていることがわかる。以上のような傾向は試料上の至るところで確認されている。図３(b)はスペクトル全体の発光強度分布を示しており、観察領域にわたってほぼ一様であることがわかる。

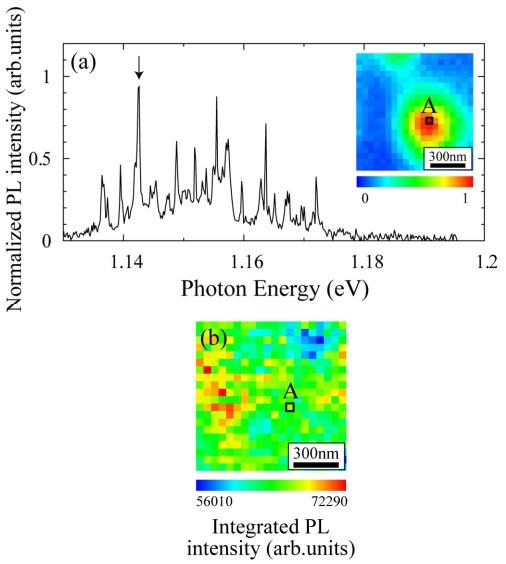

図３：(a)NSOM で測定した QW 試料の局所発光スペクトル．挿入図は矢印を付した発光ラインについて、その空間分布を画像化したもの．(b)積分発光強度の空間分布.

(3)界面揺らぎに起因する局在状態の計算

上記のとおり、2.0ML 厚の量子井戸試料では非常に高密度に局在サイトが存在することがわかった。そこで、この局在の起源を理解するため、界面揺らぎを取り入れた量子井戸構造に対して、シュレディンガー方程式を解き、電子状態を計算した。

図４(a)、(b)に計算に用いたモデルを示す。赤、緑、青で示した領域がそれぞれ、1ML、2ML、3ML の厚さをもつ量子井戸となっている（平均の厚さがちょうど 2.0ML となるように配置している)。それぞれの層厚の量子井戸における電子と重い正孔の閉じ込めエネルギーを表１にまとめる。数値計算にあたっては、Finite Difference in Time Domain(FDTD)法を用いた。

図４(c)に最低準位の電子の波動関数を示す。各層の厚さの違いによる閉じ込めエネルギーの差が小さいため、波動関数は広い領域に広がっていることがわかる。一方、図４(d)～(g)は重い正孔の最低準位から４番目の準位までの波動関数を示す。電子の場合と対照的に波動関数はポテンシャルが極小値をとる位置（ある程度広く 3ML の領域が広がっている箇所）で強く局在していることがわかる。以上の計算結果より、図３(a)で見られる数多くのピークは、原子スケールのポテンシャル揺らぎによって強く局在した正孔と、ある程度の広がりをもつ電子との再結合によるものと理解することができる。

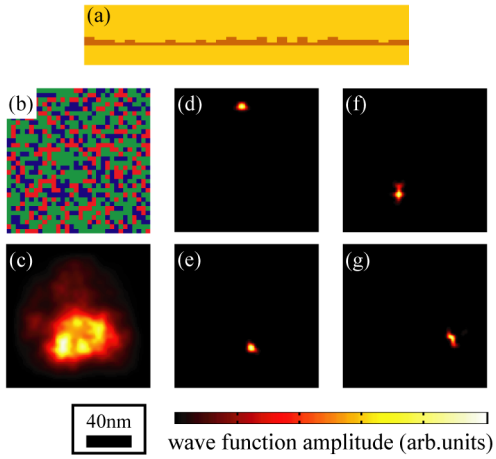

図４：(a), (b)層厚揺らぎをもつ量子井戸構造のモデル．(c)最低準位の電子の波動関数．(d)−(g)最低準位から４番目までの正孔の波動関数．

Well width	E_e (meV)	E_{hh} (meV)
1 ML	507.8	411.0
2 ML	476.4	308.2
3 ML	436.2	229.6

表１：1ML, 2ML, 3ML 量子井戸における電子と重い正孔の量子閉じ込めエネルギー．

(4) 量子ドットのナノイメージング分光

上記の解釈を念頭において、QW と同様のナノイメージング分光を、QD 試料の p3 帯発光（3ML 領域からの発光）に対してもおこなった。図５(a)、(b)は試料上の異なる位置で得られた PL スペクトルである。挿入図はそれぞれ矢印を付した発光ラインの空間プロファイルであり、いずれも空間的に局在した発光であることがわかる。図５(a)のスペクトルは、QW 試料にて得られた図３(a)とよく似ているのに対し、図５(b)のスペクトルは発光ライン数が極端に少ない。この特徴の違いを理解するために、p3 発光の積分強度、ならびに量子ドット発光の積分強度の空間分布を画像化した結果が図５(c)、(d)である。量子ドットの位置と p3 発光の特徴を注意深く観察すると、量子ドットから遠い場所では、図３(a)や図５(a)のような多数の発光ラインが観察されていることがわかった。これは、QD 試料では層厚が臨界膜厚を越えているが、原子スケールの細かい揺らぎが残されていることを意味する。一方、量子ドット近傍では、p3 の発光ラインは数本に限定されており、局在サイトとなる界面揺らぎが抑えられていると考えられる。すなわち、量子ドットの周囲では、歪みが緩和し、スムースな界面が形成されていると推測される。

この解釈は図５(c)の結果ともよく整合している。量子ドット近傍では、界面の平坦性により励起子の拡散距離が長く、局所的に励起されたキャリアが NSOM 開口の集光領域外にまで到達するため、PL 信号が大きく減少している。一方、界面揺らぎが原子スケールで生じている場所では、励起されたキャリアはその場所からほとんど移動することなく、局在サイトに捕獲され、NSOM 開口によって効率良く発光が集光される。

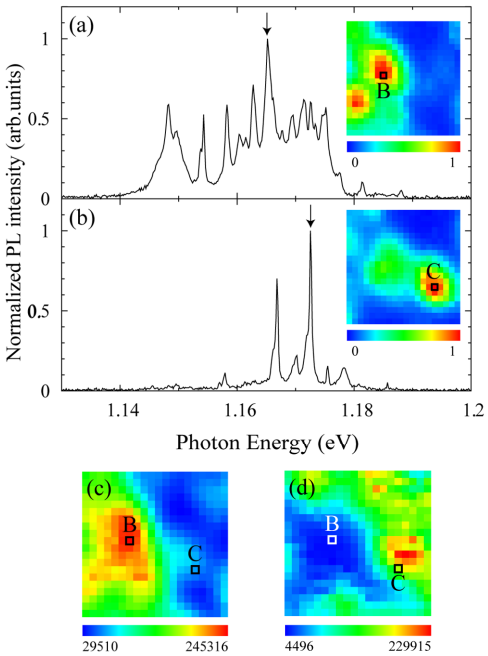

図５(a), (b)試料上の異なる２箇所で測定した局所発光スペクトル．挿入図は矢印を付した発光ラインについて、その空間分布を画像化したもの．(c), (d)p3 発光の積分値、ならびに量子ドット発光の積分値の空間分布図．

(5)発光強度温度依存性の解釈

これまでの実験結果の解釈をより確定的なものにするために、p3 発光の温度依存性を詳細に調べ、結果の整合性を議論した。なお、実験にあたっては NSOM は使用せず、マクロ測定のみをおこなった。

図６に QW と QD それぞれの p3 発光の積分値の温度依存性の測定結果を示す。いずれも温度上昇とともに、発光強度が単調に減少しているが、以下のフィッティングをおこなうことにより、その差異が明確になる。

$$I_{PL} = I_0 / \{1 + C_1 \exp(-E_{a1}/k_B T) + C_2 \exp(-E_{a2}/k_B T)\}$$

キャリアの熱励起過程として電子と正孔を個別に取り込むことによって、より精度の高いフィッティングをおこなうことができた。具体的な値は、QW については E_{a1}=26meV、E_{a2}=170meV、QD 濡れ層については E_{a1}=11meV、E_{a2}=110meV となった。表１の量子閉じ込めエ

ネルギーより、QW については、E_{a1}、E_{a2} はそれぞれ電子と正孔のバリア層までの熱励起エネルギーに相当する。一方、QD 濡れ層の場合は、3ML の領域から 2ML の領域への熱励起エネルギーに近い値となっている。

これらの結果は以下のように解釈することができる。QW の場合、3ML の領域から 2ML や 1ML の領域へ熱的に励起されても、多くのキャリアは再び 3ML の領域に素早く緩和する。したがって発光の低下をもたらすのは、バリア層への熱励起ということになる。他方、QD 濡れ層の場合は、平坦な 2ML の領域へ励起されたキャリアは量子ドットまで拡散し、ドット内へと緩和する。すなわち再び 3ML の領域へ戻ることはないため、p3 発光の強度が低下する。以上の説明は、NSOM の実験結果の解釈と非常に良く整合している。

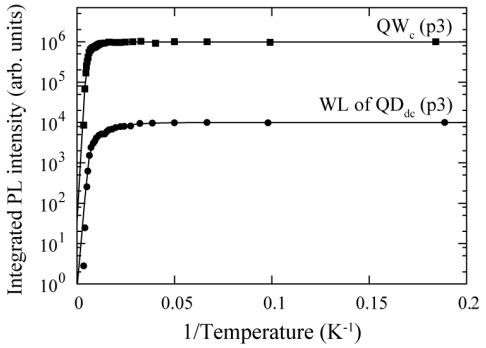

図６：QW と QD の p3 積分発光強度の温度依存性.

(6)相変化材料を用いた発光制御

光記録材料として広く用いられているカルコゲナイド相変化材料は、光励起（による加熱）によって結晶相とアモルファス相を可逆的に変化する。相変化の際に大きな体積変化をともなうので、これを局所的な応力源として、局在電子からの発光を制御することが可能である。

QD 試料の上に成膜した GeSbTe 薄膜に対して、アモルファス化、結晶化にともなう発光スペクトルシフトを確認した。

５．主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 19 件）

[1] R. Kubota, T. Saiki, P. Regreny, A. Benamrouche, and M. Gendry, “Low-Density InAs Quantum Dots Grown on InP(001) Using Solid-Source Molecular Beam Epitaxy with a Post-Growth Annealing Process”, Jpn. J. Appl. Phys. **49**, pp. 041201/1-4 (2010).【査読有】
[2]Y. Sugimoto, N. Tsumori, S. Nomura, and T. Saiki, “Visualization of Space Charge Field Effect on Excitons in a GaAs Quantum Dot by Near-Field Optical Wavefunction Mapping”, Opt. Rev. **16**, pp. 269-273 (2009).【査読有】
[3] Y. Sugimoto, S. Nomura, and T. Saiki, “Visualization of weak confinement potentials by near-field optical imaging spectroscopy of exciton and biexciton in a single quantum dot”, Appl. Phys. Lett. **93**, pp. 083116/1-3 (2008).【査読有】

〔学会発表〕（計 31 件）

[1] T. Saiki, “Nano-imaging spectroscopy of semiconductor quantum structures”, International Symposium on Young Researcher Global Leader Training Program, Hamamatsu, Japan, 8 October 2010.【INVITED】
[2] N. Tsumori and T. Saiki, “Near-Field Photoluminescence Spectroscopy with an Optical Mask using Phase Change Material”, The International Conference on Nanophotonics, Tsukuba, Japan, 2 June 2010.
[3] T. Saiki, “Visualization of local perturbation in semiconductor quantum dots by using a near-field scanning optical microscope”, The 7th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, Jeju, Korea, 26 November, 2009.【INVITED】
[4] T. Saiki, “Visualization of local perturbation in semiconductor quantum dots by near-field optical wavefunction mapping”, The 8th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics, Shanghai, China, 1 September 2009.【INVITED】
[5] R. Kubota, D. Mizuno, T. Saiki, E. Dupuy, P. Regreny and M. Gendry, “Near-field Imaging Spectroscopy of Low Density InAs/InP Quantum Dots”, 2009 International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Newport Beach, USA, 12 May 2009.
[6] T. Saiki and Y. Sugimoto, “Visualization of Confinement Potentials of Semiconductor Quantum Structures by Near-Field Optical Mapping of Exciton Wavefunction”, The 9th Asia-Pacific Microscopy Conference, Jeju, Korea, 5 November 2008.【INVITED】
[7] T. Saiki, “Real-space Visualization of Exciton Confinement in Semiconductor Quantum Structures”, 21st International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Fukuoka, Japan, 28 October 2008.【INVITED】
[8] Y. Sugimoto, T. Saiki, S. Nomura, “Visualization of Weak Confinement Potentials by Near-field Optical Imaging Spectroscopy of Exciton and Biexciton in a Single Quantum Dot”, 2009 International Conference on Solid State Devices and Materials, Tsukuba, Japan, 24 September 2008.
[9] R. Kubota, K. Nakashima, D. Mizuno, T.

Saiki, Y. Sakuma, and T. Usuki, “Near-field imaging spectroscopy of single InAs/InP quantum dots in optical telecommunication wavelength band”, The 5th International Conference on Semiconductor Quantum Dots”, Gyeongju, Korea, 14 May 2008.

〔図書〕（計 5 件）
[1] 斎木敏治、“近接場光のセンシング・イメージング技術への応用”、pp. 32-41、シーエムシー出版、2010 年. （分担執筆）.
[2] 斎木敏治、「走査プローブ顕微鏡」、pp. 364-370、共立出版株式会社、2009 年（分担執筆）.
[3] 斎木敏治、戸田泰則、「光物性入門」、朝倉書店、2009 年.
[4] 斎木敏治、「ナノイメージング」、エヌティエス出版、pp. 23-32、2008 年（分担執筆）
[5] T. Saiki, “Progress in Nano-Electro-Optics VI: Characterization of Nano-Optical Materials and Optical Near-Field Interactions”, pp. 1-39, Springer, 2008 (partial contribution).

〔その他〕
ホームページ：
http://www.saiki.elec.keio.ac.jp/home.html

６．研究組織
(1)研究代表者
斎木　敏治（SAIKI TOSHIHARU）
慶應義塾大学・理工学部・教授
研究者番号：70261196

(2)研究分担者
該当なし

(3)連携研究者
該当なし