

論文の内容の要旨

論文題目 超強磁場サイクロトロン共鳴による
半導体量子構造の電子状態の研究

氏名 井海田 隆

1: 研究の背景と目的

近年、半導体製造技術や微細加工技術の進歩とともに良質の量子井戸・量子細線・量子ドットの作成が可能になり、次元性を制御することが容易になってきた。それとともにそのような系において様々な興味ある物性現象が観測されている。それらは電子のド・ブロイ波長が系のサイズと同程度になることによって、特有の興味深い性質を示すが現れるためである。このようなメゾスコピックな系の量子現象については、未知な点もまた数多く残されている。本研究は量子構造を持つ半導体中の電子状態について超強磁場におけるサイクロトロン共鳴実験を手段として研究を行い、その新しい物性についての解明を目指すものである。その対象物質としては Si/SiGe 二次元電子井戸系と、PbSe/PbEuTe 自己形成量子ドットにおける零次元電子系を選び研究を行った。近年 Si/SiGe 量子井戸構造を用いることによって、高易動度の二次元系電子ガスを作成することができるようになった。この二次元電子系は Si-MOS のそれよりもはるかに高い易動度を持つので、Si-MOS では不可能であった種々の現象の観測も可能になると期待される。一方、PbSe/Pb_{1-x}Eu_xTe の超格子構造は、1998 年に G. Springholz らによって、量子ドット層を積み重ねた構造では、ドットが 3 次元的に面心立方格子状に配列することが、実験的に確認された(図 1)。またその超格子の間隔や Eu のドープ量(~8 %)などを制御することによって、自己形成される量子ドットのサイズや形、間隔さらには量子ドット結晶の構造を制御することが出来る。この構造は中遠赤外の量子カスケードレーザーとしての応用や、中遠赤外の 3 次元フォトニック結晶として振舞うことの期待などから多大な関心を集めている。しかし、この試料においては現在までに X 線などによる構造解析がなされているものの、その詳しい電子状態に関しては未だに十分な研究がされていると言える状況ではない。この試料はドットの密度がきわめて高く、ドットが面心立方型の結晶を構成しているので、サイクロトロン共鳴による観測に適しており、自己形成ドットが結晶として規則配列をしている効果を調べることができるという点で強い興味がもたれる。

2: 実験方法

本研究では広範囲の領域の強磁場と遠赤外、赤外領域の光源を用いてサイクロトロン共鳴の実験を行った。20 T ~

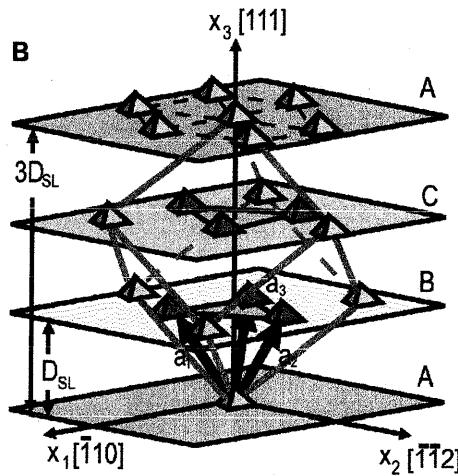


図 1 PbSe 三次元的整列量子ドット

は得られた有効質量を磁場に対してプロットしたものである。ランダウ準位の占有率(フリングファクター) v は磁場と電子密度によって変化するものであるが、本研究では磁場を変化することによって制御している。

有効質量は特に低温では v が整数の値になるところの付近で極大値を持っている。図 4 はサイクロトロン共鳴線幅から見積もった移動度である。この移動度はおおよそ THz 領域の AC 移動度となっている。この移動度も v が整数の値となるところで明らかな変化が見られる。 $v = 2$ から $v = 1$ までの間では同じような値を取っていた AC 移動度が $v = 1$ を超えたところから一転して温度によって 2 倍程度の違いが見られた。

このような有効質量が v に依存して変化する振る舞いの理由としてはキャリア数がスピinnレベルをちょうど埋める(v =偶数)時に、フェルミエネルギー付近の電子の状態密度が減少し、不純物に対するスクリーニングの効果が低下して、サイクロトロン共鳴線幅が上昇し、有効質量が低下することが考えられる。しかし、ドープされた半導体ではそのドーパントによって有効質量やサイクロトロン共鳴線幅の振動が異なるので、不純物のあるときの有効質量は一般的な二次元電子系の振る舞いとして測定するには信頼性がないとされた。この研究はその後、主に GaAs 系で進められたが、このような有効質量の振動現象についてはいまだにはっきりとした決着が得られていない。近年の Si-MOS における電子の有効質量測定の実験においては、1996 年に Kotthaus らによって、 $v = 4n$ のスピinnレベルの上下および、折りたたまれた 2 つの Xz バレーのすべてが埋まる状態で、有効質量がピークをもつことが確認されている。彼らはまた、スピinnの上下のみの $v = 4n + 2$ や、折りたたまれたバレーの一方だけが先に埋まった状態である $v = 4n + 1$ の状態においても有効質量ピークは観測されるように見えるが、誤差範囲であるとしている。本研究は、 $v = 4n + 2$ や $v = 4n + 1$ においても有効質量の振動があることを確認した初めての研究である。

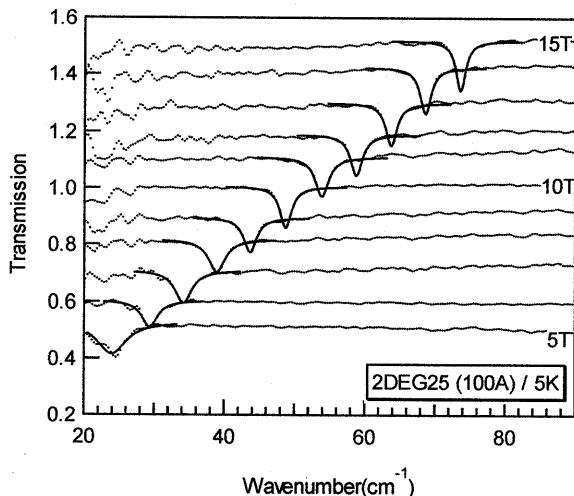


図 2: Si/SiGe 量子井戸でのサイクロトロン共鳴

40 T の領域では物性研究所の長時間パルスマグネットを用いて磁場を発生し、光源としては CO₂ レーザー励起メタノール分子レーザーを用いた。100 T 以上の強磁場を発生するためには一巻きコイル法を用いた。これは銅で出来た直径 10 mm, 幅 10 mm のコイルに瞬間に大電流を流し、慣性によって銅の変形があまり進まないうちに超強磁場を発生する方法である。この一巻きコイル法で発生可能な最大磁場は 300 T である。超強磁場領域ではこの一巻きコイル法と CO₂ レーザーを組み合わせて実験を行った。

3: Si/SiGe 二次元電子系における実験結果と考察

図 2 は井戸幅 10 nm の試料についての 5 T ~ 15 T までのサイクロトロン共鳴実験のスペクトルである。測定可能な磁場領域で透過光の 10 % ~ 20 % 程度の吸収が観測された。また、図 3

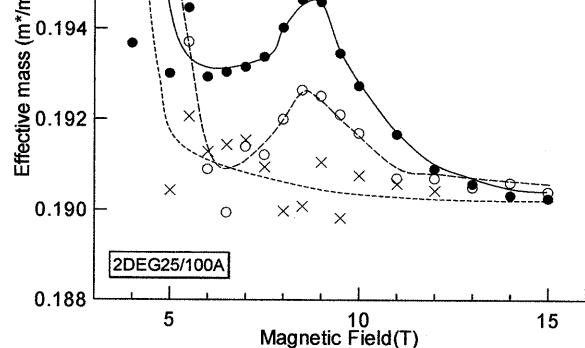


図 3: 有効質量の磁場依存性

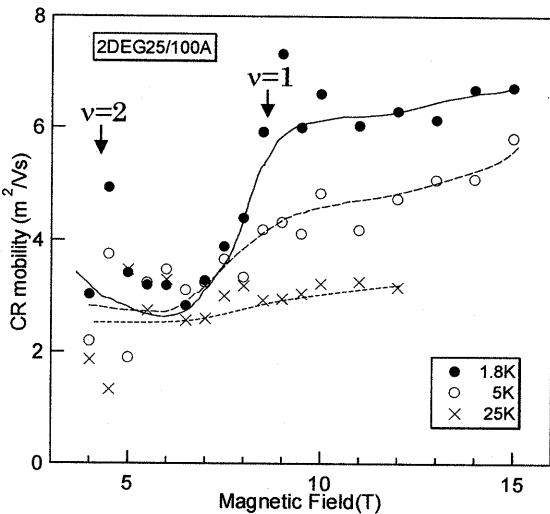


図 4 サイクロトロン共鳴線幅から計算された AC 移動度

ンに量子ドットによるポテンシャルを導入することによって説明される。それぞれのデータをフィッティングし、共鳴磁場と入射光の波数の関係を示したものが図 6 である。量子ドットによるポテンシャルと PbSe 本来の狭ギヤップによる複雑なバンド構造を反映することにより、これらのピークの位置はよく説明できる。

図 7 は同じ試料に対する超強磁場におけるサイクロトロン共鳴スペクトルの入射光エネルギー依存性を示したものである。強磁場に現れる重い有効質量の共鳴ピークの中心位置は PbSe のそれとほぼ同じであるが、ピークが 2 つまたは 3 つに分裂した。この分裂の原因は、PbSe の 3 つの重い有効質量の伝導帯谷の縮退がドット近傍の強い歪みによって分裂したものとして理解できる。さらにもともと異方性の大きい伝導帯谷に異方的な歪みが加わることによって有効質量が変化する効果も考えられる。ドット周辺のひずみが関係していることは一巻きコイル法による実験を繰り返し、温度ヒステリシスと磁場の強力な衝撃を与えることによって、その分裂の度合いが減っていくことからも検証され、また、もともと歪の小さいと思われる AAA タイプの量子ドットに対してはその分裂幅が小さいこともこの推論を支持している。

次に実験結果に見られる大きな特徴は、吸収強度が測定波長によって大きく変化することである。普通サイクロトロン共鳴の吸収の断面積は電子数に依存していて、その半値半幅が緩和時間に依存している。したがって一つの試料でわずかな波長の違いによって共鳴断面積が大きく変化するという現象には、形状に依存した何らかの効果が出ていることは間違いない。形状に依存した効果で最も簡単に考えられるのは薄膜が干渉効果を起こしていることである。

入射光の波長は空気中では $10.6 \mu\text{m}$ だが、これらの試料の低温での誘電率はおよそ 30 近くになることから、試料内

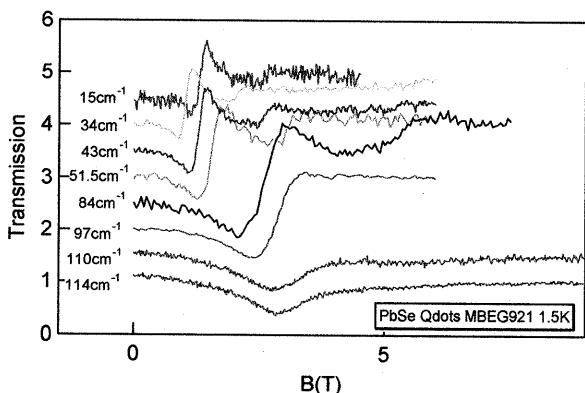


図 5 PbSe 量子ドットの弱磁場におけるサイクロトロン共鳴スペクトル

4: 実験結果と考察~PbSe/PbEuTe 自己形成量子ドットの実験結果と考察

図 5 に自由電子レーザーとスプリット型の超伝導マグネットによって測定されたサイクロトロン共鳴スペクトルを示す。まず、 110cm^{-1} (13.6 meV)と 114cm^{-1} (14.1 meV)の光では Lorentz 型の吸収ピークが確認できた。また、若干見にくいか 5T 程度の位置にも吸収ピークが存在している。

また、 97cm^{-1} (12.0 meV)より低エネルギー側では、マグネットプラズマ効果によって、ある磁場を越えたときに光が透過するようになっている。この振る舞いは一般的であり、簡単にスペクトルを計算し、有効質量および共鳴線幅を求めることができるものである。また、実験の可能な一番低いエネルギーである 15cm^{-1} (1.86 meV)の光を入射すると、ピークは強磁場側にシフトした。このようにエネルギーを下げているにもかかわらずピークが強磁場側にシフトする現象は、ハミルトニア

ンに量子ドットによるポテンシャルを導入することによって説明される。

それぞれのデータをフィッティングし、共鳴磁場と入射光の波数の関係を示したものが図 6 である。

量子ドットによるポテンシャルと PbSe 本来の狭ギヤップによる複雑なバンド構造を反映することにより、これらのピークの位置はよく説明できる。

図 7 は同じ試料に対する超強磁場におけるサイクロトロン共鳴スペクトルの入射光エネルギー依存性を示したものである。強磁場に現れる重い有効質量の共鳴ピークの中心位置は PbSe のそれとほぼ同じであるが、ピークが 2 つまたは 3 つに分裂した。この分裂の原因は、PbSe の 3 つの重い有効質量の伝導帯谷の縮退がドット近傍の強い歪みによって分裂したものとして理解できる。さらにもともと異方性の大きい伝導帯谷に異方的な歪みが加わることによって有効質量が変化する効果も考えられる。ドット周辺のひずみが関係していることは一巻きコイル法による実験を繰り返し、温度ヒステリシスと磁場の強力な衝撃を与えることによって、その分裂の度合いが減っていくことからも検証され、また、もともと歪の小さいと思われる AAA タイプの量子ドットに対してはその分裂幅が小さいこともこの推論を支持している。

次に実験結果に見られる大きな特徴は、吸収強度が測定波長によって大きく変化することである。普通サイクロトロン共鳴の吸収の断面積は電子数に依存していて、その半値半幅が緩和時間に依存している。したがって一つの試料でわずかな波長の違いによって共鳴断面積が大きく変化するという現象には、形状に依存した何らかの効果が出ていることは間違いない。形状に依存した効果で最も簡単に考えられるのは薄膜が干渉効果を起こしていることである。

入射光の波長は空気中では $10.6 \mu\text{m}$ だが、これらの試料の低温での誘電率はおよそ 30 近くになることから、試料内

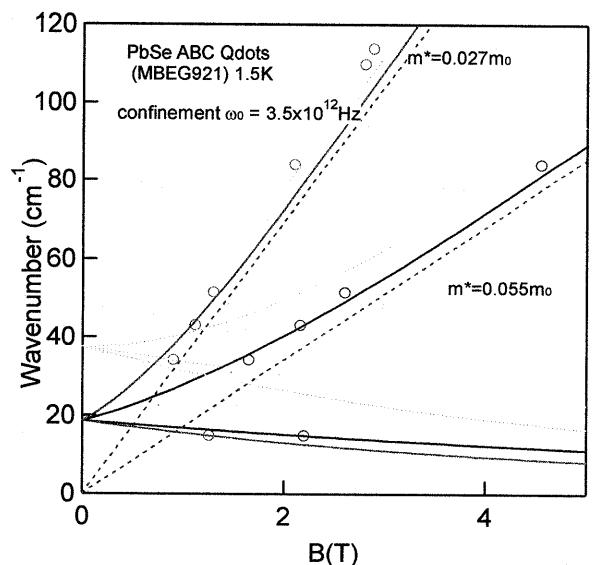


図 6 共鳴磁場位置と共鳴波数

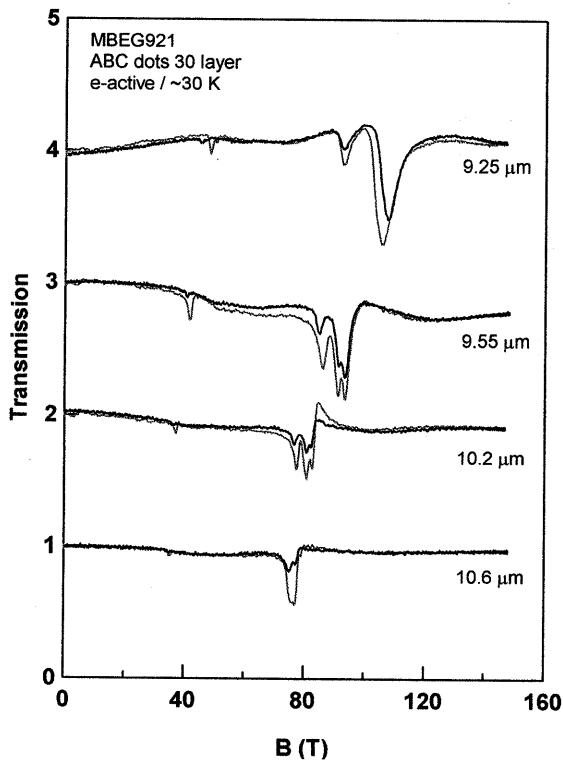


図 7 PbSe/PbEuTe 量子ドット試料のサイクロトロン共鳴（エネルギー依存性）

にシフトするはずである。本研究では有効質量に大きな異方性が存在するためにこの関係をそのまま用いることはできないが、角度が 10° 、波長が $9.25 \mu\text{m}$ の実験において、ピーク位置が弱磁場にシフトしている事から、そのエネルギーでクロスオーバーが起きていると仮定してサブバンドを含めてバンドの状態を計算することができた。その結果からはゼロ磁場付近でのクロスオーバーなど、納得のできる結果がうかがえた。

5: まとめ

本研究では、半導体量子構造の低次元電子系の中から Si/SiGe 単一量子井戸中の電子の二次元電子系、および PbSe/PbEuTe 自己形成量子ドット結晶中の零次元電子系を取り上げ、強磁場下のサイクロトロン共鳴という手法を用いてその電子状態について研究を行った。クリーンな二次元電子系である Si/SiGe 量子井戸においては有効質量や共鳴線幅の振動などの二次元電子系特有の振る舞いがこの系でも観測されることを確認した。また、PbSe/PbEuTe 自己形成量子ドット系においては、弱磁場では古くから予想されている量子ドットとランダウ準位の混成を確認し、超強磁場によって零次元的な量子構造を二次元的なものとして扱う事によってその電子状態及びドット内の歪の効果を解明した。また、量子ドットの規則配列によるとと思われる共鳴吸収強度の顕著な磁場依存性などを見出した。

部での波長は $2 \mu\text{m}$ を下回る。このことから、試料内部で定在波が立ち、試料空間を何度も往復する光の吸収が見られたと考えることが可能である。

また、二次元電子系に対して磁場方位を傾けてサイクロトロン共鳴実験を行うと、閉じ込め方向のサブバンドと、二次元面内のランダウ準位の間でカップリングが起り、共鳴磁場位置に大きな変化が現れる。本研究においても試料を磁場に対して傾けて測定を行うことにより、このカップリングを観測することができた。図 8 は、ABC タイプ量子ドット試料の、 $10.6 \mu\text{m}$ の光を入射したときのサイクロトロン共鳴スペクトルの試料方向依存性である。二次元面を傾けるにあたって、傾ける方向は 3 つに縮退している重い有効質量のバーに対して、1 つが重い方向に傾き、残りの二つが起き上がり、より軽い方向を向くように傾けた。一番重い有効質量をもつピークは完全二次元系の時のシフト量である $\cos^{-1}\theta$ よりも強磁場にシフトしていった。

この状態に対しては電子が二次元的であるとして、サブバンドとランダウレベルがカップリングを起こしているとすることで説明ができる。これによるとサブバンド遷移エネルギーよりもサイクロトロン共鳴エネルギーが小さく、また値が近いときに、吸収ピークは強磁場に遷移し、サイクロトロンエネルギーがサブバンド遷移のエネルギーを超えると逆に弱磁場

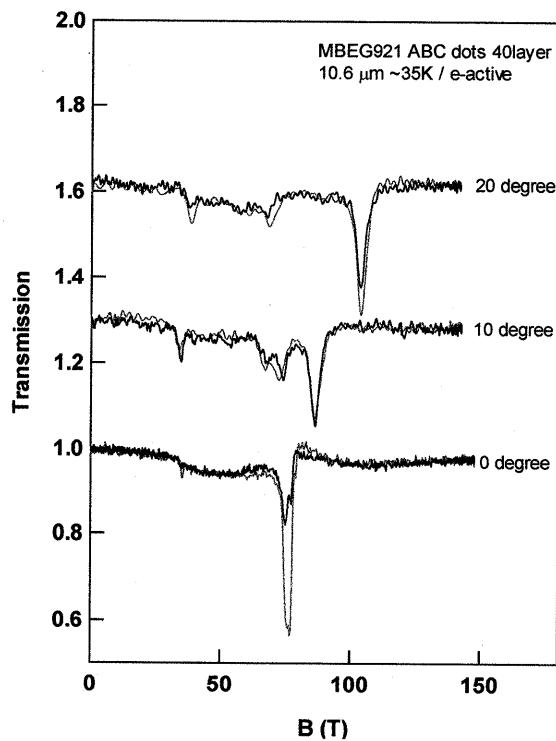


図 8 量子ドット試料のサイクロトロン共鳴（磁場角度依存性）