

論文の内容の要旨

論文題目 「GaAs 量子井戸中のサブバンド間遷移による赤外吸収と電子ラマン散乱」
(Infrared absorption and electronic Raman scattering
by intersubband transitions in GaAs quantum wells)

氏名 鵜沼 毅也

半導体ナノ構造におけるサブバンド間遷移は、赤外領域の吸収・発光や可視領域の電子ラマン散乱として観測され、緩和効果や多体効果を顕著に示す興味深い現象である。また、赤外光検出器や量子カスケードレーザーといったデバイスへの応用が成功し、近年非常に注目されているが、これらの性能改善を考える上でも鍵となるような基礎物理的問題が依然として残されている。例えば、サブバンド間吸収の線幅は、これまで様々な GaAs 系量子井戸において調べられてきたが、移動度とは相関をもたないことが実験事実として知られ、謎とされている。サブバンド間電子ラマン散乱は、井戸幅の広い (~ 20 nm 以上の) GaAs 系量子井戸に関して多数報告されているが、井戸幅の狭い (~ 10 nm 以下の) 量子井戸に関しては極めて限られた報告しかなく、赤外吸収との対応も詳しく調べられていない。

GaAs 量子井戸中のサブバンド間遷移に関する本研究では、サブバンド構造を反映した 3 つの基本的現象 —— 光吸収、電気伝導、電子ラマン散乱に現れる共鳴エネルギーやブロードニングの間の関係を明らかにした。その過程で、吸収及び電子ラマンスペクトルの高精度な測定を実現し、吸収線幅の系統的な計算方法を示した。特に、サブバンド間遷移が界面ラフネスから受ける影響は研究全体を通して重要であり、詳細に論じられている。

論文の構成は、研究の背景と意義を述べた第 1 章、実験方法や物理的議論の基礎となっている事柄についてまとめた第 2 章、サブバンド間赤外吸収計測と電子ラマン散乱計測の方法を説明した第 3 章、及び、実験結果と計算結果を示して物理的議論を行った第 4 章以

降の各章となっている。

第4章では、Si変調ドーパ GaAs 単一量子井戸におけるサブバンド間吸収線幅と移動度の温度依存性に関して、詳細な実験結果を示した上で、界面ラフネス散乱及びフォノン散乱を考慮した理論計算によって定量的な説明を行った。図1は、顕微フーリエ変換赤外分光計 (μ -FTIR) を用いて測定した 8-nm GaAs/AlAs 単一量子井戸のサブバンド間吸収スペクトルである。試料を電界効果トランジスタ構造に加工してゲート電極による電子濃度制御を行

い、空乏状態を参照として電荷蓄積状態の透過スペクトルを評価するという工夫した方法によって、単一量子井戸においてもこのようにサブバンド間吸収を高 S/N 比で検出した。4.5 K における線幅 (半値全幅) は $2\Gamma_{op} = 11.1$ meV であり、一方、移動度 μ に対応する輸送緩和時間によって決まるエネルギーのぼけ (輸送現象のぼけ) は $2\Gamma_{tr} = 1.2$ meV であった。吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ は輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ と比べて約 1 桁大きくなっている。

図2の丸印は、測定した吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ 及び輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ の温度依存性である。吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ は 11.1 meV (4.5 K) から 14.9 meV (300 K) まで温度と共に緩やかに増大している。これは、輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ が急激に増大する (移動度 μ が急激に悪化する) 様子と大きく異なっている。

Andoの理論によると、電子の散乱によるサブバンド間吸収の位相緩和レート $2\Gamma_{op}(E)$ は、面内運動エネルギー E の関数として、サブバンド内散乱からの寄与 $\Gamma_{intra}(E)$ とサブバンド間散乱からの寄与 $\Gamma_{inter}(E)$ の和で表される。この理論に基づき、低温における吸収線幅の原因として最も可能性の高い界面ラフネス散乱の寄与、及び温度依存性に関係すると考えられるフォノン散乱の寄与を定式化した。GaAs-on-AlAs 界面 (AlAs 表面) のラフネスを平均の高さ Δ 、相関長 Λ の Gaussian 型相関関数でモデル化すると、界面ラフネス散乱に対して次式が得られる。

$$\Gamma_{intra}(E) = \frac{m^* \Delta^2 \Lambda^2}{\hbar^2} (F_{00} - F_{11})^2 \int_0^\pi d\theta e^{-q^2 \Lambda^2 / 4}$$

$$\Gamma_{inter}(E) = \frac{m^* \Delta^2 \Lambda^2}{\hbar^2} F_{01}^2 \int_0^\pi d\theta e^{-\tilde{q}^2 \Lambda^2 / 4}$$

ここに、 $F_{mn} = \sqrt{(\partial E_m / \partial L)(\partial E_n / \partial L)}$ (E_n は第 n サブバンドの量子化エネルギー、 L は井戸幅)、 m^* は電子の有効質量、 q は散乱ベクトルの大きさ、 θ は散乱角である。

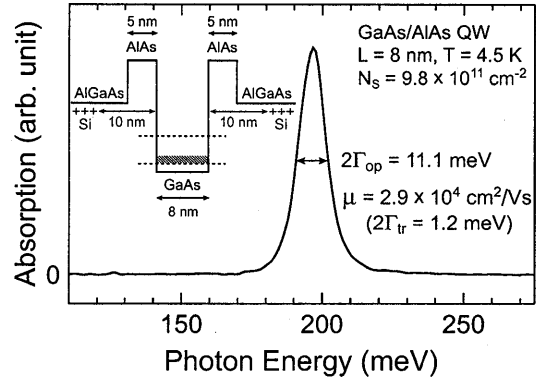


図1: 8-nm GaAs/AlAs 単一量子井戸のサブバンド間吸収スペクトル

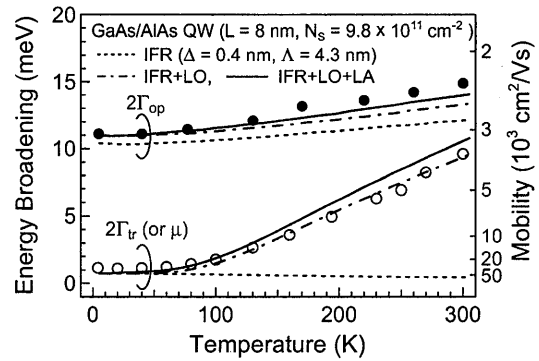


図2: サブバンド間吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ 及び輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ (移動度 μ) の温度依存性

図2の曲線は、吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ と輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ の温度依存性に関する計算結果である。界面ラフネス散乱 (IFR; $\Delta = 0.4$ nm, $\Lambda = 4.3$ nm), LO フォノン散乱, 及び LA フォノン散乱の寄与を順に加え、破線 (IFRのみ), 一点鎖線 (IFR+LO), 実線 (IFR+LO+LA) の3種類で表示している。まず低温では、界面ラフネス散乱が吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ に対して 10.4 meV, 輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ に対して 0.73 meV といういずれも支配的な寄与をしているが、値は1桁異なっている。これは、界面ラフネス散乱において、第1励起サブバンド内散乱の効果が基底サブバンド内散乱の効果よりも遥かに大きいためである (無限バリア近似では $F_{11} = 4F_{00}$ となる)。温度が上昇していくと、LO フォノン散乱の寄与は輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ に対して 80 K 以上で支配的になるが、吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ に対しては僅かに増加する程度であり、室温においても 1.8 meV に留まっている。これは、LO フォノン散乱において2つのサブバンド内散乱行列要素が近い値をもち、打ち消し合ってしまうためである。吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ の値は、室温でも界面ラフネス散乱によってほとんど決まっていることが分かる。このような計算結果は、実験結果と非常によく一致している。

第5章では、界面ラフネス散乱とフォノン散乱に加え、アロイ散乱及びイオン化不純物散乱の寄与についても定式化を行い、数値計算によって各散乱メカニズムの特徴を詳細に論じた。図3に、アロイ散乱 (AD) を考慮した例として、10-nm $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 量子井戸における計算結果を In の割合 x の関数として示す。吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ に対しては、界面ラフネス散乱 (IFR; $\Delta = 0.35$ nm, $\Lambda = 4.0$ nm) の寄与は 1.6 meV 程度であり、それに比べてアロイ散乱の寄与は $x = 0.1$ のときでも 0.3 meV 程度と小さい。一方、輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ に対してもアロイ散乱の寄与は 0.3 meV 程度であるが、界面ラフネス散乱の寄与は 0.1 meV 程度であるため、移動度 μ は x と共に急激に悪化する。このような計算結果は、Campman らの実験結果 (丸印) をよく説明している。

第6章では、初めて観測に成功した、井戸幅の狭い (~ 10 nm 以下の) GaAs 単一量子井戸中のサブバンド間電子ラマン散乱について述べた。従来、井戸幅の広い (~ 20 nm 以上の) GaAs 量子井戸においては、異なる動的多体効果を含む電荷密度励起 (CDE; 平行偏光) 及びスピン密度励起 (SDE; 垂直偏光) と、動的多体効果を含まない一電子励起 (SPE; 両方

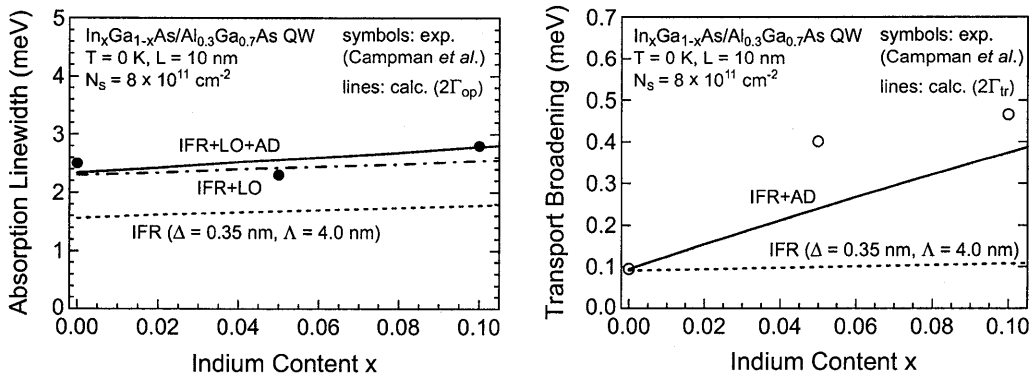


図3: 10-nm $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 量子井戸におけるサブバンド間吸収線幅 $2\Gamma_{op}$ 及び輸送現象のぼけ $2\Gamma_{tr}$ (移動度 μ) のアロイ組成 x 依存性

の偏光) という 3 種類のピークが確認されている。入射光と散乱光の偏光関係に関して選択則が存在し、垂直偏光で観測される励起はスピン-軌道相互作用による電子スピンの反転を伴う。一方、井戸幅の狭い量子井戸においては界面ラフネスによるブロードニングの影響が大きいため、測定は困難であるとされてきたが、筆者は入射光の共鳴条件に注意することによってその困難を克服した。

図 4 は、12 K における 10-nm GaAs/AlAs 単一量子井戸の典型的なサブバンド間電子ラマンスペクトルである。電子濃度が十分高いにもかかわらず、平行/垂直偏光でそれぞれ 134.2

/134.0 meV というほぼ同じ位置に 1 つのピークのみが現れている。そこで、ピークの帰属を行うために、井戸幅 8.5 – 18 nm の範囲でラマンスペクトルの特徴の移り変わりを調べ、図 5 (a) → 図 5 (b) → 図 4 という結果を得た。これは、井戸幅が狭くなるにつれて CDE, SDE のピークが小さくなることを意味し、図 4 のピークが SPE に帰属されることを示

している。また、このピークに関して、高エネルギー側の共鳴端では著しいラマンシフトの増大とラインシェイプの変化が観測され、界面ラフネスによる面内運動量保存則の緩和という観点から定性的に説明されることを示した。

第 7 章では、狭い量子井戸におけるサブバンド間吸収と電子ラマン散乱を比較し、その結果から遷移エネルギーに対する動的多体効果を実験的に見積もることができることを指摘した。図 6 は、12 K における 10-nm GaAs/AlAs 単一量子井戸のサブバンド間吸収スペクトルである。図 4 の電子ラマンスペクトルと比較すると、吸収ピークのほうがラマンピークよりも 8.0 meV だけ高エネルギー側に現れていることが分かる。吸収ピークの起源は過去の報告において CDE であることが確認されており、この 8.0 meV というエネルギー差は動的多体効果の現れと考えられる。

最後の第 8 章では、本研究において得られた知見をまとめ、今後の展望を記した。

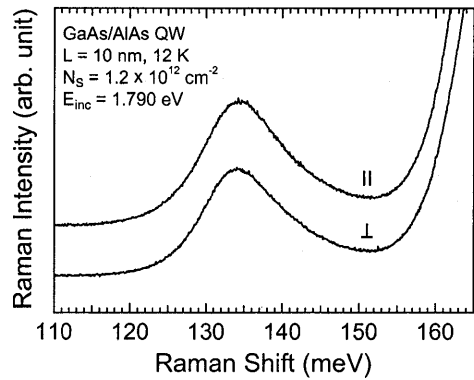


図 4: 10-nm GaAs/AlAs 単一量子井戸のサブバンド間電子ラマンスペクトル

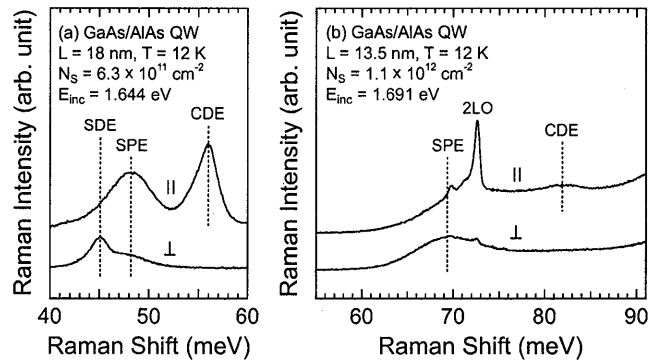


図 5: (a) 18-nm, (b) 13.5-nm GaAs/AlAs 単一量子井戸のサブバンド間電子ラマンスペクトル

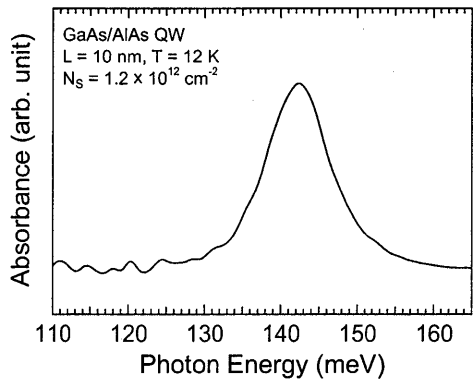


図 6: 10-nm GaAs/AlAs 単一量子井戸のサブバンド間吸収スペクトル (図 4 の電子ラマンスペクトルと比較のこと)