分数層超格子量子細線における高磁場下での光学異方性

伊藤哲[1], 志智亘[2], 森定慎介[2], 西岡愛恵[2], 市田正夫[1,2],
後藤秀樹[3], 鎌田英彦[3], 小林直樹[4], 安藤弘明[1,2]
[1]甲南大学量子ナノテクノロジー研究所
[2]甲南大学大学院自然科学研究科
[3]NTT 物性科学基礎研究所
[4]電気通信大学量子・物質工学研究科

Optical Anisotropy in Fractional-Layer-Superlattice Quantum Wires under High Magnetic Field

Tetsu Ito[1], Wataru Shichi[2], Shinsuke Morisada[2], Yoshie Nishioka[2], Masao Ichida[1,2],
Hideki Gotoh[3], Hidehiko Kamada[3], Naoki Kobayashi[4], and Hiroaki Ando[1,2]
[1]Quantum Nano-Technology Laboratory, Konan University
[2]Faculty of Science and Engineering, Konan University
[3]NTT Basic Research Laboratories, NTT Corporation
[4]Department of Applied Physics, University of Electro-communication

Abstract

We investigated optical magnetic effect in one dimensional (1D) quantum structures. We measured optical anisotropy in fractional-layer-superlattice (FLS) quantum wires, and observed polarization dependent photoluminescence spectra from them. The optical anisotropy was suppressed by applying magnetic field. The anisotropy was assessed by the optical transition probability between conduction and valence bands. The valence band states are calculated by **k·p** perturbation method considering the mixing of heavy and light hole states caused by the quantum confinement in 1D structure. The calculated optical anisotropy well reproduces the experimental trend.

1. はじめに

磁場の印加によって引き起こされる電子状態の変化が光吸収・発光等の光学特性に反映される磁気光学効果は、ナノ構造における電子状態に対する知見を与え、さらには量子閉じ込めモデルの妥当性を吟味する上で有用な情報を提供する。近年の半導体作製技術の向上により様々な方法でこのような量子ナノ構造を実際に作製することが可能になってきており、純粋な磁気光学的興味に加えて、新しいデバイス応用に対する期待も高まっている。特に２方向に量子閉じ込め構造を持つ１次元量子構造、すなわち量子細線においては、その光学特性に異方性が現れることが知られている。例えば、Ｖ溝型構造やＳ字型構造といった擬似１次元構造を対象に、異方性の議論が主に反磁性シフトの観測から行われてきた[1-4]。これらの構造は励起子が構造の一部に局在することを利用しているため、横方向の閉じ込めが非常に弱く、理想的な１次元構造からは遠い構造である。また、半導体エッチング加工技術と埋め込み成長技術を組み合わせて作製した矩形方の量子細線を用いた実験も行われているが[5]、エッチングによる加工には限界があり、微細な１次元構造を作製するのは非常に難しい。

一方で分数層超格子（FLS）量子細線は、単原子テラス上に自己形成モードを用いて、結晶成長方向とは垂直な方向に周期的な構造分布を作ることができるため、量子井戸の厚さと同程度(～10nm)の周期構造の作製が可能となり、理想的な１次元構造にきわめて近い構造を作製することができる。我々は作製された構造パラメーターを用いて状態密度を計算し、１次元性の特徴が明確に現れることを報告している[6]。

本論文では１次元閉じ込めの特性を示すFLS 量子細線における磁気光学的効果を、実験と理論解析により議論する。実験にはMOCVD 法により作製した AlAs/GaAs FLS 量子細線[6]を用い、１次元量子細線におけるフォトルミネッセンス（ＰＬ）を測定し、その偏光特性の磁場依存性を調べた。また、１次元量子構造の閉じ込め効果により引き起こ

される、価電子帯の重い正孔と軽い正孔の混ざりこみを **k·p** 摂動法で計算し、PL の偏光特性の磁場効果を議論した。これまでにも、１次元系の偏光特性の議論は反磁性シフトに着目して多くの研究が行われてきたが、本研究ではPL偏光の磁場効果をFLSのように非常に理想的な１次元量子構造に適用し、**k·p** 摂動法により得られたブロッホ関数の対称性から光学特性の磁気効果を議論した。

2. 実験

本研究で用いたGaAs/AlAs FLS 量子細線は、[-110]方向に傾きを付けられた GaAs(001)基板上に、MOCVD 法により作製された。基盤の傾きは原子層テラスにより形成されており、結晶はテラスに沿って成長するので、AlAs と GaAs を交互に積層することにより周期的な Al 含有量変化をもつ細線構造が形成される。このようにして作製される FLS 量子細線は基盤の傾きθにより量子閉じ込め次元を１次元から２次元へと調整することができる[6]。今回は１次元性を持つことが確認されている FLS 細線周期が 12 nm (θ = 1.5°)と 16 nm (θ = 1°)の二つの試料を測定に用いた。これらの FLS 量子細線は 12 nm の$(AlAs)_{1/4}(GaAs)_{3/4}$ FLS層を$(AlAs)_3(GaAs)_2$超格子(SPS)層で挟んだ構造を持つ。電子 X 線顕微分析により、FLS 層の Al 含有量は 0.25 を平均として±0.1 程度の含有量揺らぎがあることが分かっている。この値をパラメーターとして伝導帯と価電子帯のバンド構造から吸収係数を計算すると、バンド端に１次元的特長である$1/\sqrt{E}$ に比例する結合状態密度を示す事が分かっている[6]。

FLS 量子細線に垂直な方向に磁場（最大 10 T）を印加し、同じく細線に垂直な方向から He-Ne レーザー光（直線偏光、波長 633 nm = 1.96 eV）を照射した場合の、PL スペクトルの偏光の変化を測定した。FLS 量子細線に平行(I_z)および垂直(I_y)な方向に偏光分離して PL スペクトルを４K にて観測した。図１に、周期 L_y = 16 nm の FLS 量子細線に対する PL スペクトルを示す。細い線が磁場を印加していないときのスペクトル、太い線が 10T の磁場を印加したときのスペクトルである。実線と破線はそれぞれ FLS 量子細線に平行(I_z)および垂直(I_y)な方向の偏光成分である。ピーク強度に大きな差が確認でき、１次元量子閉じ込めに起因する大きな異方性が観測できた。また、磁場の印加によりピークエネルギーのシフトである反磁性シフトとともに、ピーク強度の差が抑制される様子も観測された。

図２に、周期が異なる FLS 量子細線(L_y = 12, 16 nm)および AlGaAs 量子井戸について測定した PL 強度の異方性 $P = (I_z-I_y)/(I_z+I_y)$に対する磁場依存性を示す。量子井戸では異方性が

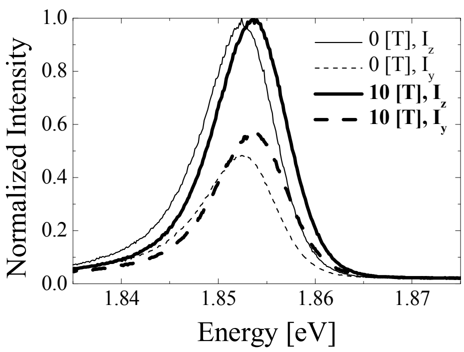

図１．FLS 細線周期 L_y = 16 nm の試料からの PL スペクトル。細い線は磁場を印加していないときのスペクトル。太い線は 10T の磁場を印加したときのスペクトル。実線と破線はそれぞれ細線に平行および垂直な方向の偏光成分。

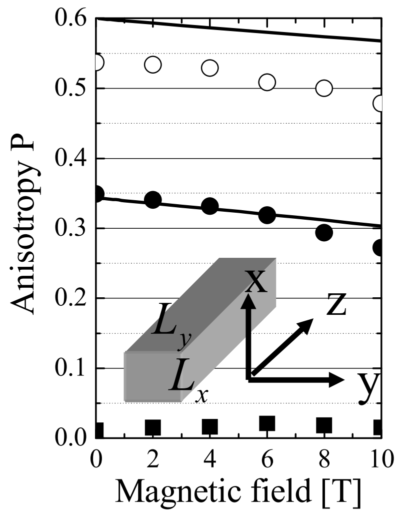

図 2. PL 強度の異方性 $P = (I_z-I_y)/(I_z+I_y)$に対する磁場依存性。白と黒の丸はそれぞれ L_y = 12 nm と L_y = 16 nm の FLS 量子細線、黒の四角は AlGaAs 量子井戸からの PL スペクトルから算出された異方性の値。実線は **k·p** 摂動法により求めた計算結果。挿入図は細線の模式図と計算に用いた座標軸を示している。

観測されなかったが、量子細線では大きな異方性が観測された。特に、磁場が印加されていない場合、L_y = 12 nm の量子細線では P = 0.54 という他の種類の量子細線では観測できない大きな異方性を示した。これらに磁場を印加すると、磁場を強くするにしたがって、量子細線で見られる異方性が小さくなった。これは、本来閉じ込めが無い細線に平行な方向にも磁場の印加により磁場ポテンシャルが出現し、波動関数が閉じ込められるようになるためであり、磁場印加によるブロッホ関数の対称性の変化を反映している。

3. 計算

量子細線からの発光強度を計算し、異方性の実験結果と比較することにより、磁場印加によって引き起こされる磁気光学効果を考察する。発光強度 I は光遷移確率 W で表され、電磁場と電子の相互作用ハミルトニアン $H_{\rm int}$ を用いて計算することができる。

$$W \propto \left|\left\langle \Psi_c \middle| H_{\rm int} \middle| \Psi_v \right\rangle\right|^2 \tag{1}$$

つまり、伝導帯$|\Psi_c>$および、価電子帯の状態$|\Psi_v>$が分かれば異方性が計算できるので、それぞれの状態を順に求めた。

量子細線に平行な方向に z 軸を取り、電子・正孔は x、y 方向に閉じ込められるものとする(図２の挿入図参照)。量子細線のポテンシャルエネルギー$V(x,y)$は矩形で、エネルギー障壁は無限大とする。磁場 B が x 方向に印加した場合を考える。スピンおよび電子 - 正孔間のクーロン相互作用を無視すると、自由電子のハミルトニアンは、

$$\hat{H}_c^B = -\frac{\hbar^2}{2m_e^*}\nabla^2 + \frac{e^2B^2}{8m_e^*}\left(y^2+z^2\right) + V(x,y) \tag{2}$$

となる。ここで、ゲージは対称ゲージ $A = B(0,-z,y)/2$ を用いた。また、磁場が弱く摂動として取り扱える場合、光学活性な電子の包絡関数の対称性は x、y 方向のみならず z 方向にも S 型であり角運動量を持たないので、ここでは自由電子の回転運動に対するゼーマンエネルギーは無視した。また、磁場が摂動として扱える場合、磁場ポテンシャルは y 方向のポテンシャル障壁よりも小さいので、(2)式のハミルトニアンの固有関数は x、y、z 方向に変数分離型の、

$$\phi = \left(\frac{2}{\pi}\right)^{\frac{1}{4}} \frac{2}{\sqrt{L_x L_y \lambda_e}} \cos\frac{\pi x}{L_x} \cos\frac{\pi y}{L_y}\, e^{-\left(\frac{z}{\lambda_e}\right)^2} \tag{3}$$

と近似できる。これが伝導帯の包絡関数となる。z 方向の包絡関数としては調和振動子に対する最低次の固有関数を用いている。今回測定に用いた FLS 量子細線はこのような近似が良く成り立つ系であると考えている。(3)式で表される固有関数を仮定すると、z 方向の電子の包絡関数の広がり λ_e は解析的に $\lambda_e = 2\sqrt{\hbar/eB}$ と求めることができる。磁束密度が 10T の磁場を印加した場合、z 方向の包絡関数の広がりは λ_e~ 16 nm 程度となるので測定磁場の範囲では磁場を摂動と考えることができる。S 対象性を持ち、上向きと下向スピンを表すブロッホ関数をそれぞれ u_{c1}、u_{c2} とすると、これらと(3)式との積が伝導帯の状態$|\Psi_c>$を表す。

次に価電子帯の磁場効果を考える。バンド構造の解析法はいくつかあるが、我々は **k·p** 法に基づいた 4 行 4 列の Luttinger 行列を用いた。4 行 4 列の Luttinger 行列はバンド端から離れたスピン軌道分離バンドを無視し、重い正孔バンドと軽い正孔バンドのみを考慮した簡素化されたハミルトン行列であるが、価電子帯のバンド端の特徴を表現する上で十分な精度を有している。行列の基底を、

$$u_{hh1} = \frac{-1}{\sqrt{2}}\left|(X+iY)\uparrow\right\rangle$$

$$u_{lh1} = \frac{-1}{\sqrt{6}}\left|(X+iY)\downarrow\right\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}}\left|Z\uparrow\right\rangle$$

$$u_{lh2} = \frac{1}{\sqrt{6}}\left|(X-iY)\uparrow\right\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}}\left|Z\downarrow\right\rangle$$

$$u_{hh2} = \frac{1}{\sqrt{2}}\left|(X-iY)\downarrow\right\rangle \tag{4}$$

と取ると、4 行 4 列の Luttinger 行列は次のように表現される。

$$H_{LK}^{4\times4} = -\begin{bmatrix} P+Q & R & -S & 0 \\ R^+ & P-Q & 0 & S \\ -S^+ & 0 & P-Q & R \\ 0 & S^+ & R^+ & P+Q \end{bmatrix} \tag{5}$$

この 4 行 4 列の Luttinger 行列を量子細線に適用する。伝導帯の場合と同様に、細線に平行に z 軸を取り、x 軸方向に磁場を印加した場合を考える(図２の挿入図参照)。ゲージも伝導帯の場合と同様に対称ゲージを採用し、球対象近似$\left(\gamma_2 = \gamma_3 = \bar{\gamma}\right)$を用いると、4 行 4 列の Luttinger 行列の各成分は次のようになる。

$$P=\frac{\gamma_1\hbar^2}{2m_0}\left\{k_x^2+k_y^2+k_z^2+\frac{e^2B^2}{4\hbar^2}\left(y^2+z^2\right)\right\}$$

$$Q=\frac{\bar{\gamma}\hbar^2}{2m_0}\times\left\{k_x^2+k_y^2-2k_z^2-\frac{3eB}{\hbar}yk_z+\frac{e^2B^2}{4\hbar^2}\left(y^2+z^2\right)\right\}$$

$$R=-\frac{\sqrt{3}\bar{\gamma}\hbar^2}{2m_0}\left\{\left(k_x^2-k_y^2+\frac{eB}{\hbar}zk_x-\frac{e^2B^2}{4\hbar^2}z^2\right)-i\left(2k_xk_y-\frac{eB}{\hbar}zk_x\right)\right\}$$

$$S=\frac{\sqrt{3}\bar{\gamma}\hbar^2}{2m_0}\left\{2\left(k_zk_x+\frac{eB}{2\hbar}yk_x\right)-i\left(2k_yk_z+\frac{eB}{\hbar}\left(yk_y-zk_z\right)-\frac{e^2B^2}{2\hbar^2}yz\right)\right\} \tag{6}$$

x、y 方向に等方的な強い閉じ込めを仮定し、価電子帯第1サブバンドの包絡関数としてx、y、z 方向に変数分離型の波動関数を考える。また、磁場ポテンシャルの閉じ込めが寄与するz方向に関しては直行関数で展開して考える。

$$\phi=\frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{L_xL_yL_z}}\times\sum_n c_n\cos\frac{\pi x}{L_x}\cos\frac{\pi y}{L_y}\cos\left(\frac{n\pi z}{L_z}+\frac{(n-1)\pi}{2}\right) \tag{7}$$

ここでL_zはz方向の磁場閉じ込めを計算するために課す仮想的境界条件に対応している。磁場がない場合に、(6)式より各行列成分を計算すると、$S=0$ となる。さらに、$L_x=L_y$ の場合は $R = 0$ ともなり、Luttinger 行列は対角行列となり、(4)式の u_{lh} がバンド端に対応するブロッホ関数となることが分かる。磁場の印加によりこれら非対角成分が0でなくなり、このブロッホ関数に u_{hh} が混ざりこみを起こし偏光特性が変化する。

z 方向の展開次数を $n=10$ として計算した結果を図 2 の実線で示す。$4n$ 行 $4n$ 列のLuttinger 行列を対角化し、バンド端に対応する最低次エネルギーの固有ベクトルから(1)式を用いてyおよびz方向の偏光成分を計算し、異方性 P を各磁場に対して計算した。細線周期 12 nm、16 nm のいずれにおいても実験結果の傾向を再現している。この結果は磁場の印加により量子閉じ込めのない z 方向に磁場ポテンシャルが出現し、発光に寄与するバンド端のブロッホ関数が混ざりこみを起こすことにより、光学異方性が抑制されることを示している。絶対値のずれは、今回の計算で考慮していないクーロン相互作用の影響や、試料の細線周期の不確定さなどによるものと思われるが、磁場依存性の特徴を再現できたのは、実験に用いた AlAs/GaAs FLS 量子細線が計算で仮定した1次元的な閉じ込め条件を良く満たしているためであると考えられる。このような簡潔な計算により量子閉じ込め効果を議論する系としては、AlAs/GaAs FLS 量子細線は理想的な試料であると考えられる。

4. まとめ

AlAs/GaAs FLS 量子細線の光学異方性を発光スペクトルから測定し、大きな異方性を観測した。これに磁場を印加するとその異方性は抑制される事が分かった。**k·p** 摂動法によりブロッホ関数を求め、光学異方性を計算したところ、実験で求めた磁場依存性の傾向によく一致する結果が得られた。測定に用いたAlAs/GaAs FLS 量子細線は理想的な1次元的特性を示しており、発光に寄与するバンド端のブロッホ関数が混ざりこみを起こし、光学異方性が抑制されることが分かった。

5. 謝辞

FLS 量子細線結晶成長にご協力いただいた元 NTT 物性科学基礎研究所の斉藤久夫氏に感謝いたします。

参考文献

[1] Y. Nagamune, Y. Arakawa, S. Tsukamoto, M. Nishioka, S. Sasaki, and N. Miura, Phys. Rev. Lett., **69**, 2963 (1992).
[2] H. Weman, M. Potemski, M. E. Lazzouni, M. S. Miller, and J. L. Merz, Phys. Rev. B, **53**, 6959 (1996).
[3] R. Rinaldi, P. V. Giugno, R. Cingolani, F. Rossi, E. Molinari, U. Marti, and F. K. Reinhart, Phys. Rev. B, **53**, 13710 (1996).
[4] M. V. Marquezini, M. J. S. P. Brasil, M. A. Cotta, J. A. Brum, and A. A. Bernussi, Phys. Rev. B, **53**, R16156 (1996).
[5] M. Notomi, J. Hammersberg, J. Zeman, H. Weman, M. Potemski, H. Sugiura, and T. Tamamura, Phys. Rev. Lett., **80**, 3125 (1998).
[6] H. Ando, H. Saito, A. C-Pirson, H. Gotoh, and N. Kobayashi, Appl. Phys. Lett., **69** 1512 (1996).