

# CdTe/ZnTe 量子構造の顕微分光

薄井将吾、赤井一郎<sup>A</sup>、渡辺勝儀<sup>B</sup>、鐘本勝一、唐沢力  
阪市大院理、熊大衝撃セ<sup>A</sup>、山梨大工<sup>B</sup>

## Micro-spectroscopy of CdTe/ZnTe quantum structures

S.Usui, I.Akai<sup>A</sup>, K.Watanabe<sup>B</sup>, K. Kanemoto, T.Karasawa

*Department of Physics, Graduate School of Science, Osaka City Univ. ,  
Shock Wave and Condensed Matter Research Center, Kumamoto Univ.<sup>A</sup> ,  
Faculty of Engineering, Univ. of Yamanashi<sup>B</sup>*

Micro-spectroscopy has been applied to the luminescence spectra in CdTe/ZnTe quantum structures. In smaller size quantum dots of CdTe, luminescence peak appears at higher energy side with inhomogeneous broadenings. For the sample showing broader band widths in normal (non-microscopic) luminescence, the microscopic photoluminescence (micro-PL) spectrum reveals remarkable peak shift to the higher energy side than the normal one. The band width in such samples, shows narrowing with increasing temperature, against the prediction of exciton-lattice interaction. These features are explained by energy transfer and relaxation mechanisms between close dots. On the other hand, for the sample with narrower band width, the energy transfer between dots is suppressed. The variety of micro-PL spectra is evidently explained in terms of these mechanisms.

### 1. はじめに

CdTe/ZnTe 量子ドットは、 $\text{II-VI}$  族半導体の量子ドットの1つで、格子定数の大きなミスマッチにより、小さなサイズのドットが自己形成されること、および広いバンドギャップエネルギーを持っていることにより、短波長域の発光デバイス材料への応用が期待されている。しかし、InAs/GaAs 系等の  $\text{III-V}$  族半導体量子ドットに比べ、この系における電子物性的研究はあまり進んでおらず、ドット内のエネルギー構造、発光特性等において今後の研究の進展が期待されている。

半導体量子ドットの研究においては、分子線エピタキシー(MBE)法によって作られた試料が用いられることが多いが、我々はホットウ

オール法により CdTe/ZnTe 量子構造試料を作成した。この試料に顕微分光法を適用し発光スペクトルの測定および、通常の発光スペクトルの温度依存性の測定を行い、この系における光励起状態のダイナミクスを明らかにする。

### 2. 試料・実験方法

CdTe/ZnTe 量子構造試料は、基板にアンダーブ(100)-GaAsを用い、ZnTe バッファ層、CdTeQW 層、ZnTe キャップ層の順にホットウオール法を用いて成長させた。表1に各試料の成長条件を示す。各層の成長速度が、ZnTe は 0.3nm/s、CdTe が 0.2nm/s で、QW 層成長時の基板温度は 300 °C である。

各試料は、CdTe 層の厚さ及び、成長中断時間を変えて作成した。CdTe 層の厚さは成長速度に基づき、成長時間から制御している。表中の QW 層厚は成長時間から求めた公称厚さ (nominal thickness: モノレイヤー (ML) 単位) であり、平均ドットサイズは、球状ドットの無限ポテンシャル閉じ込めを仮定して発光ピークエネルギーの測定値から見積もったものである。

キャップ層をつけていない試料で測定した AFM 像の例では、量子ドットの密度は  $1\ \mu\text{m}$  四方で約 500 個程度、ドットのサイズは  $10\text{nm}$  ~ 数  $10\text{nm}$  であった。

顕微分光測定に用いた装置の概要を述べる。試料の励起に LD 励起の YAG レーザー ( $532\text{nm}$ ) を用いた。試料発光の測定範囲は直径  $4\ \mu\text{m}$  (拡大倍率:  $25 \times 4$  倍、ピンホール径:  $100\ \mu\text{m}$ )、対物レンズの開口数 (N.A.) は 0.42 である。試料は、液体 He フロー式クライオスタット (Oxford Microstat He) により  $3\text{K}$  まで冷却した。発光スペクトルの検出は  $75\text{cm}$  ダブル分光器 (SPEX) + 冷却 PM または、 $32\text{cm}$  シングル分光器 (JY-HR320) + 冷却 CCD を用いて行った。

通常の (非顕微) 発光スペクトルは、 $\text{Ar}^+$  レーザー ( $488\text{nm}$ ) で励起し、 $1\text{m}$  ダブル分光器 + 冷却 PM で検出した。

試料番号	QW厚 (ML)	基板温度 ( )	成長中断 (秒)	平均ドットサイズ (nm)
23	90.2	300	900	4.57
27	36.5	300	1200	4.73
31	57.0	301	1200	5.10
35	82.3	300	1800	5.00
37	20.6	300	900	5.17
75	5.2	300	0	5.75
76	2.1	300	0	5.07
83	1.5	300	0	4.44

表1. 試料作成条件

### 3. 結果

図 1 に各試料の  $4\text{K}$  における発光スペクトルをピークエネルギーの順に示す。他の量子ドット系における、サイズが小さいほど不均一幅が増大していく傾向に比べ、我々の系では不均一幅は必ずしも高エネルギーのものほど広がってはならず、ドットのサイズ分布や相関に多様性が存在している。作成条件として“成長中断”をおこなっていない試料では、不均一幅が狭くなっている。

図 2(a) に不均一幅の広い試料 (#35) の顕微分光スペクトルを示す。非顕微スペクトルよりさらに幅が広く、高エネルギー側に大きくシフトしたスペクトルが得られた。図 2(b) (#37) では、非顕微スペクトルとピークは一致するが、やはり顕微スペクトルの高エネルギー側に非顕微スペクトルでは顕著でなかった成分が強く現われる。

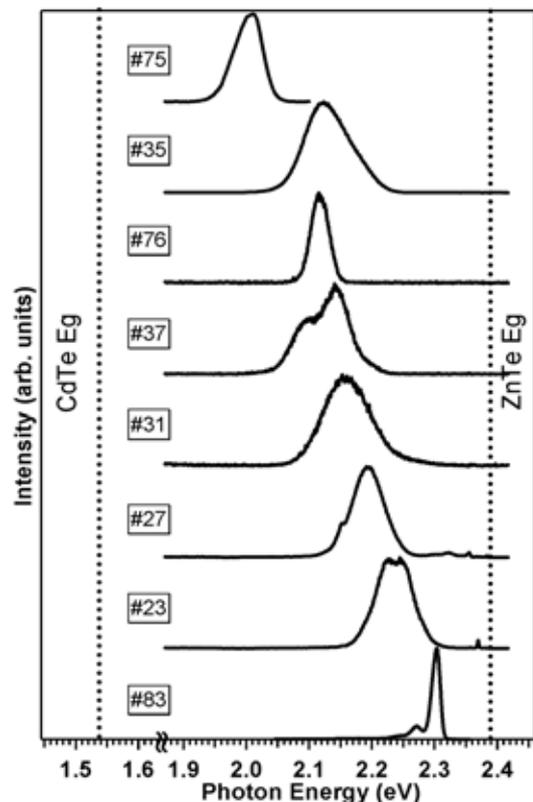


図1. 各試料の発光スペクトル ( $4\text{K}$ )

図 2(c)に示す不均一幅の狭い試料(#76)では、顕微スペクトルの幅は非顕微スペクトルと同程度であるが、ピークがほぼ一致するものと、高エネルギー側にシフトしたものが測定位置に依存して現われる。図 2(d)に示す試料(#75)の顕微スペクトルでは、ピーク・幅ともに非顕微スペクトルとほぼ一致する。

幅の広い試料(#35,37)での顕微スペクトルの特徴は、非顕微スペクトルの幅を超える非常に広い発光幅である。顕微分光により、単一あるいは少数の孤立したドットの発光を捉えられているならば、発光ピークは非顕微発光のピークより高・低どちらの側にも現われうるが、その幅は非常に狭いはずである。従って、顕微スペクトルの幅がより広くなるという結果は、サイズ分布を持つ孤立ドット群から

の発光を分離せずに捕らえている事を示す。しかし、この事だけで顕微スペクトルピークが常に高エネルギー側に現れることは説明できない。

幅の狭い試料(#76)では、発光幅はほとんど変わらず、ピークシフトは高エネルギー側に生じている。このことは各ドットが十分孤立しておらず、相互に非常に接近しており、ドット間のエネルギー移動が生じている事を示唆する。この移動は緩和を伴うため、高いエネルギー固有値を持つ小さいサイズのドットから大きいドットへと移動が起こる。励起領域の外周部において、このようなドット間エネルギー移動が起こると、非顕微測定ではこのドット間エネルギー移動により領域外にある大きいドットへと緩和した成分を含めて取り込むため、スペクトルにおいて低エネルギー成分はより顕在化するはずである。一方、顕微分光測定では励起領域内からの発光のみ取り込まれる。そのため大きいドットへの緩和成分が領域外に外れれば、スペクトルの低エネルギー成分が減少するため、ピークは高エネルギー側にしか現われない。この現象は幅の広い試料(#35,37)でも観測されている。以上の解釈を確かめるため、各試料での発光スペクトルの温度依存性を調べた。

図 3 に非顕微分光で得た発光帯の半値幅の温度依存性を示す。CdTe量子ドットからの発光の均一幅は、図 3(x)で示すように温度上昇と共に励起子-格子相互作用により増加することが報告されており<sup>2)</sup>、不均一幅が勝れば温度上昇に伴って幅は僅かに増加するはずである。しかし、幅の広い試料(#31,35)の半値幅は温度上昇とともに減少し、幅の狭い試料(#76,75)では、幅は温度変化に対してほぼ変化していない。いずれも(x)で示した均一幅に比べてはるかに大きな値

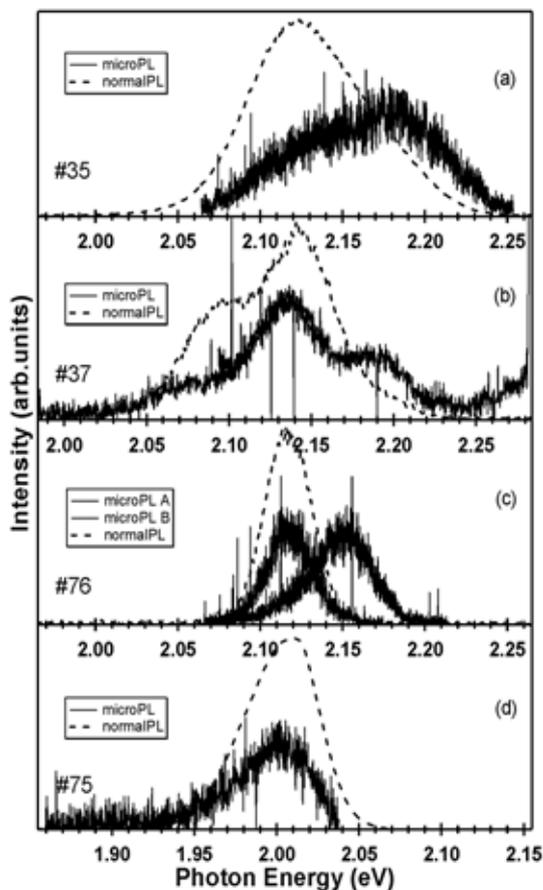


図2. 各試料の顕微発光スペクトル

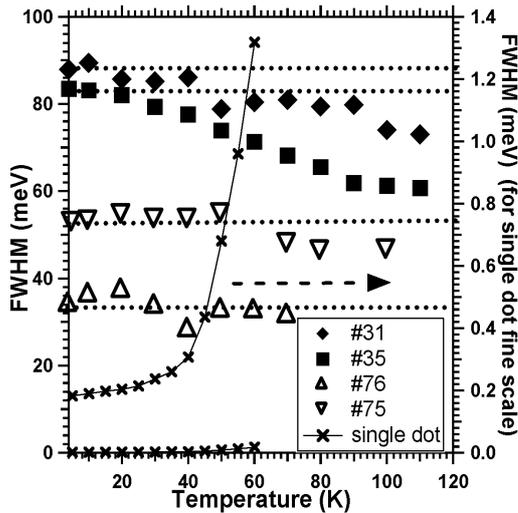


図3. 発光帯幅の温度変化

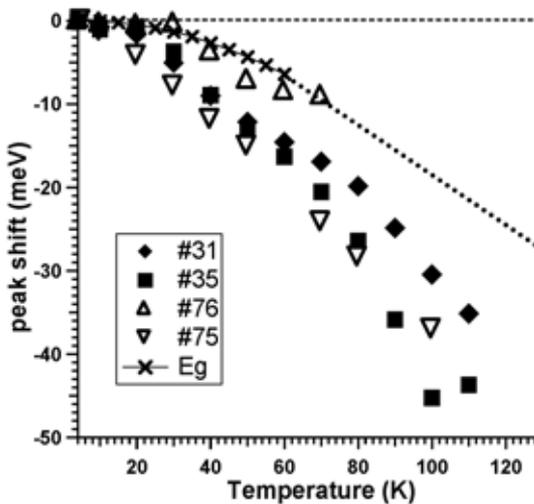


図4. 発光帯ピークの温度変化

をとっており、この発光帯幅の変化は励起子格子相互作用の温度依存とは全く異なる原因によることを示している。

発光帯の不均一幅は、関わるドットのサイズ分布を与える。したがって、温度上昇により発光帯幅が減少するのは、より大きなドットへのエネルギー移動が促され、励起子の分布が偏って発光するためだと考えられる。

図4に発光帯のピーク位置シフト量の温度変化を示す。幅の広い試料(#35,37)の発光ピークはCdTeのバンドギャップの温度変化よりも大きく低エネルギー側にシフトしているが、幅の狭い試料(#76)では、バンドギャップ

の変化とほぼ同様の変化を示す。

以上のような温度上昇による幅の減少およびピークのより大きな低エネルギー側へのシフトは、ドット間エネルギー移動による、より大きなサイズのドットへの緩和過程の促進によるものであると結論付けられる。

#### 4. まとめ・今後の課題

作成した量子構造試料の顕微分光測定及び、発光の温度変化を測定した。成長中断を入れた試料では、顕微スペクトルに量子ドット間のエネルギー移動・緩和を反映したピークのシフトが現われ、同じ機構による発光帯の特異な温度依存性がみられた。一方、成長中断のない試料では、これらの特異な振舞いが抑制されており、発光帯の幅も狭いことから、ドットが比較的均一に形成されているとみられる。

個々のドットからの発光を得るため、顕微倍率を上げて観測領域を狭める装置の改良や、マスキング法等も検討に値する。

ドット間のエネルギー移動については、時間分解発光や顕微発光スペクトルの温度変化、顕微分光装置を用いた空間分解発光等からもさらに情報が得られると思われる。

#### 参考文献

- 1) K.Kheng, *et al.*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **190** No.2 p459 (2002)
- 2) L.Besombes, *et al.*, *Phys. Rev. B* **63** p155307 (2001)
- 3) S.Sanguinetti, *et al.*, *Phys. Rev. B* **60** p8276 (1999)
- 4) 杉崎満 *Optronics* No.11 p180 (2004)
- 5) 早川洋司 他 第17回光物性研究会論文集 p93 (2006)