

外部印加静電場による量子ドット中の荷電励起子の観測

佐々木匠^A, 三森康義^A, 小坂英男^A, 枝松圭一^A
赤羽浩一^B, 山本直克^B

東北大学電気通信研究所^A, 独立行政法人情報通信研究機構^B,

Observation of a negatively charged exciton in a single quantum dot by applying external static electric field

T. Sasaki^A, Y. Mitsumori^A, H. Kosaka^A, K. Edamatsu^A
K. Akahane^B, N. Yamamoto^B

Research Institute of Electrical Communication; Tohoku University^A
National Institute of Information and Communications Technology^B

We investigated the micro-photo-luminescence (PL) spectra of the negatively charged exciton in a single quantum dot by applying external static electric field. We observed the PL peak from the negatively charged exciton at the higher energy side of the neutral exciton. The quantum Stark shift was also observed.

1. はじめに

半導体量子ドットは、エネルギーギャップの大きい半導体中にギャップの小さいナノメートルサイズの半導体を成長させることによって作られる半導体量子構造である。量子ドット中の電子は3次元的に強く閉じ込められるため、エネルギー準位構造が離散化することが広く知られている。そのため、人工原子と例えられ、バルクや2次元半導体とは異なる多彩な光学的・電気的特性を示すことから様々な分野で注目を集めている。この量子ドット中に電子や正孔などの余剰キャリアが注入されると、準位構造や光学応答に関わる物性が大きく変化することが知られている。そのため、余剰キ

ャリアが注入された量子ドットに関しても近年、活発に研究が進められている。

我々の研究グループでは量子ドットにおける微細相互作用として、量子ドット内の励起子分極の局所電場効果に関する研究を進めている。量子ドットは単なる2準位系ではなく、局所電場効果に由来する反電場シフトにより、共鳴エネルギーが励起密度により変化することが明らかになっている[1]。局所電場効果の物理的出現過程は光誘起電荷間のクーロン相互作用であり、電子-正孔交換相互作用に類似した効果である。電子-正孔交換相互作用は励起状態がスピン-重項状態時のみ現れる効果である事が知られている。このため、局所電場効果に対する余剰スピンの効果を調べることは興

味深い。本研究では、半導体量子ドットにおける局所電場効果の余剰スピン依存性を実験的に明らかにすることを最終目的とし、その準備段階として基板がnドープの半導体量子ドット試料の表面に透明電極を装着し、外部静電場を印加することにより量子ドットに電子を注入し、顕微発光スペクトルの変化の測定を行った。

2. 試料と実験方法

本研究では、試料としてn-GaAsの[311]B面基板上に分子線エピタキシー法を用いてStranski-Krastanov成長モードによって作成された単層のIII-V族自己形成型半導体量子ドットを用いた。量子ドット層と障壁層はそれぞれ $\text{In}_{0.4}\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ と $\text{Al}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}$ により構成されている。上述の試料表面にTi(5nm)/Au(5nm)で構成される、透明電極を装着した。基板と透明電極への定電圧の印加により静電場が発生することで、電子が基板側より移動し量子ドット内に注入される。定電圧の印加により、量子ドット内に任意の電子を注入することができる構造となっている[図1]。

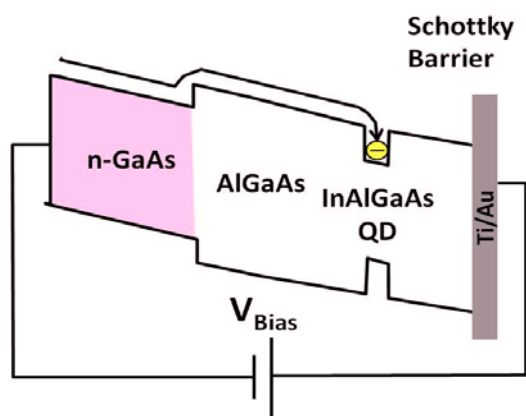


図1. 定電圧印加時のバンド構造の模式図

測定は、試料をクライオスタット中で5.5Kに冷却して行った。励起光源はCW-Ti:Sapphireレーザーを用い、波長を735nm(1.687eV)に設定し、量子ドット内で電子正孔対の直接励起が行える波長を選択した。顕微発光スペクトルの測定は、試料表面方向から対物レンズ(NA=0.55)を用いて励起光を試料上に集光し、量子ドットからの発光を同一の対物レンズにて採光した。発光は共焦点顕微鏡により空間分解能を向上し、シングル分光器(分解能0.21meV)により分光した後、CCDカメラを用いて測定を行った。定電圧の印加に際しては、0.1V単位の定電圧源を使用している。

3. 実験結果・考察

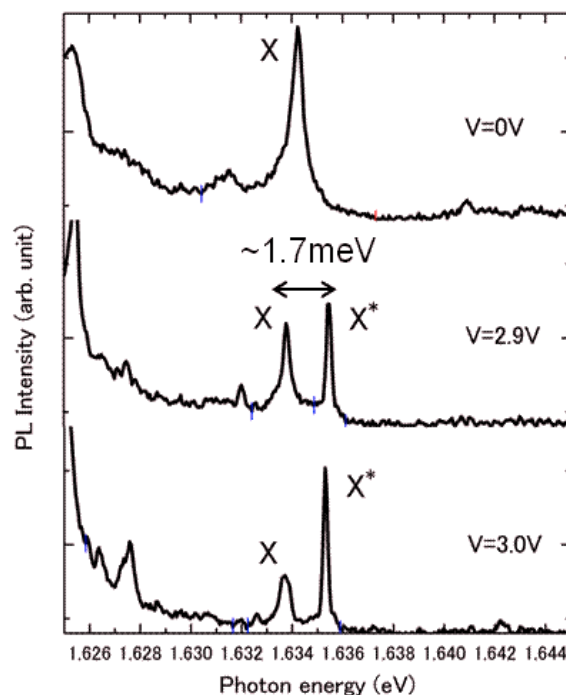


図2. 単一量子ドットからの発光スペクトルの電圧印加依存性。Xは中性励起子による発光、X*は荷電励起子からの発光を表している。

図 2 に顕微発光スペクトルの印加電圧依存性を示す。電圧 $V=0V$ において $1.634eV$ に単一量子ドット中の中性励起子からの鋭い発光ピーク(X)を観測した。電圧を印加していくと、 $1.7meV$ 高エネルギー側に新しい発光ピーク(X*)を観測した。また、印加電圧の増加と共に X*の発光強度が大きくなり、X の発光強度は低減していく傾向が観測された。この発光スペクトルの電圧依存性は、量子ドット中に電子が一つ注入され、荷電励起子が生成されたことによる変化と考えられる。その他のドットについても約 $3.0V$ の電圧印加によって荷電励起子からの発光を確認することができた。

一般に InAs 系量子ドットにおいては量子ドット内に電子が 1 個注入された荷電励起子からの発光は中性励起子の低エネルギー側に出現することが数多く報告されている。一方、正孔が量子ドットに注入された場合は中性励起子の高エネルギー側に観測される報告例がある。荷電励起子の発光ピーク位置は量子ドットの閉じ込めの強さによって変化する事が理論的に指摘されてお

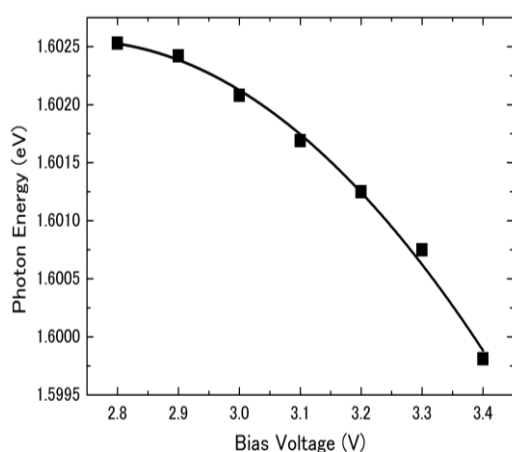


図 3. 荷電励起子の発光ピークの外部静電場 (外部印加定電圧) 依存性

り、特に量子ドットのの高さが高い場合、電子が量子ドット内に注入された荷電励起子の発光ピークは中性励起子の高エネルギー側に出現すると理論的に予測されている[2]。本研究で用いている量子ドットの高さは AFM 像により $6\sim 7nm$ 程度であり、過去の荷電励起子の実験で使用されている一般的な量子ドット($3\sim 5nm$)より高いため、電子による荷電励起子が高エネルギー側に出現したと考えられる。

また、量子ドットへの印加電圧の増加とともに、中性励起子および荷電励起子の発光スペクトルのピーク位置が低エネルギー側へとシフトする結果が得られた。荷電励起子のピーク位置の印加電場依存性を図 3 に示す。観測されたピークシフトは電場の 2 乗曲線により、よく再現されることから、電場の大きさの 2 次の摂動であるシュタルク効果によるものであると考えられる。半導体量子構造におけるシュタルク効果は、量子シュタルク効果と呼ばれている。定性的には、外部電場によりポテンシャルが傾くと、量子ドット中の電子は量子ドット内のよりエネルギーが低い方向へ波動関数の分布が移動し、一方、正孔の波動関数は高エネルギー側に分布が偏る。このとき、励起子の発光ピーク位置は電場の増加と共に低エネルギー側にシフトすることが知られている [3]。

最後に、荷電励起子の発光スペクトルの線幅は中性励起子のものより細くなっている。これは、中性励起子と荷電励起子とでは位相緩和過程が異なっていることを強く示唆している。今後、より詳細な緩和過程の解明を行う予定である。

4. まとめ

InAlGaAs/AlGaAs 量子ドットの試料表面に透明電極を装着し、単一量子ドットからの発光スペクトルの印加電圧依存性の測定を行った。印加電圧の増加に伴い、中性励起子の発光スペクトルの高エネルギー側に荷電励起子による発光ピークを観測した。また、荷電励起子の発光に関する量子シュタルク効果を観測した。荷電励起子の発光スペクトルの線幅は中性励起子の線幅よりも細く、荷電励起子と中性励起子で位相緩和過程が異なることが示唆された。

謝辞

今回の実験に用いた試料の透明電極装着は、東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻、樽茶・大岩研究室の大岩顕先生に作成して頂きました。この場を借りて御礼申し上げます。

参考文献

- [1] K. Asakura, Y. Mitsumori, H. Kosaka, K. Edamatsu, K. Akahane, N. Yamamoto, M. Sasaki and N. Otani, *Phys. Rev. B.* **87**, 241301 (2013).
- [2] G. Bester and A. Zunger, *Phys. Rev. B.* **68**, 073309 (2003).
- [3] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood and C. A. Burrus, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2173 (1984).