

学 位 論 文 題 名

Study on enhanced excitonic effects in wide-gap
semiconductor quantum structures
and formation of atom-like discrete levels

(ワイドバンド半導体量子構造における励起子効果の増大と
原子様離散化準位の形成に関する研究)

学位論文内容の要旨

トランジスタの発明以来、素子の微細化と集積化技術は目覚ましい進展を遂げてきた。従来型のキャリアの集団運動を制御するデバイスの動作は、少数量子領域における揺らぎによる制限を受け、近い将来限界に達すると予想される。そこで最近、それら古典的デバイスに代わり単一量子を生成・制御可能な単一量子デバイスの必要性が急速に高まっている。究極の秘匿通信を実現する量子暗号通信用単一光子光源や、量子力学の基本原理解に基づいて並列計算を実現する量子計算に必要な量子論理ゲートはその代表例であり、その実現のためには、物質系として原子様の二準位系を準備し、そこに属する量子状態を光との相互作用によって効率よく制御することが必要である。原子様の二準位系としては、固体素子としての安定性、制御性、集積性の点から、また光との相互作用を特徴づける振動子強度の増大が可能な励起子系を利用できる点から、半導体量子ドットの利用が望ましい。しかしながら従来よく研究されている III-V 族半導体は、単一量子ドット内の励起子と光共振器内の離散化光場モードとの結合強度が十分ではなく、量子ゲート操作の一種であるコヒーレント操作に必要な強結合領域には達しないという問題がある。そこで、基礎物性面からワイドバンドギャップ半導体に着目した。一般にワイドバンドギャップ半導体は大きな換算質量、小さな誘電率を持つため大きな励起子振動子強度を有し、強い光との相互作用が期待される。しかし、ワイドバンドギャップ半導体については、これまで短波長発光デバイスやパワーデバイスといった点に主眼をおいた強励起条件下での研究が中心であり、励起子や光との相互作用等の基礎物性面の検討例は少ない。

本論文では、III-V 族半導体と比較し大きな励起子振動子強度を持つワイドバンドギャップ半導体量子構造を作製し、主に単一光子光源や量子論理ゲートの実現に向けた少数励起子条件下での基礎物性の検討を行った。また、ワイドバンドギャップ半導体中の励起子は Bohr 半径が小さく、試料の不均一性による局在の影響を受けやすい点を積極的に利用し、三元混晶半導体中の合金揺らぎに由来する局在準位を利用した原子様離散化量子準位の形成を提案し、試料作製およびその光学特性の検討を行った。

本論文は以下の5章から構成される。

第一章では、序論としての本研究の背景を述べる。背景に関連して半導体量子構造中の励起子物性、非線形性、励起子と光場との相互作用について述べるとともに、光場の重要な固有状態である単一光子状態とコヒーレント状態の関係について概説する。引き続き本論文の目的、構成について述べる。

第二章では、II-VI 属半導体超格子構造の作製、構造評価、光学評価について述べる。基板として用いる GaAs との格子整合が良く、エネルギーギャップ差が大きいため強い閉じ込めポテンシャルが期待される ZnSe/MgS 超格子構造の作製を行った。MgS は自然界においては岩塩構造を取るが、ZnSe/MgS 超格子構造とすることで GaAs 基板と同じ閃亜鉛鉱構造を保ったまま成長することを初めて確認した。この ZnSe/MgS 超格子構造に対して反射スペクトル解析による光学特性評価を行ったところ、室温に至るまで励起子の寄与に基づく構造が明瞭に観測され、この超格子構造における強い励起子効果の増大が確認された。また、超格子構造中の励起子の局在効果、及びコヒーレンス保持に重要な影響を与える励起子—フォノン相互作用についても検討を行い、量子構造中の強い励起子閉じ込め効果により、光学フォノンと励起子との間の結合定数がバルク半導体と比較し低減されることを確認した。

第三章では零次元化により更なる励起子効果の増大と、状態密度の離散化に伴う原子様離散準位の形成の検討を行う。II-VI 族半導体 CdS 自己組織化量子ドット構造を作製し、原子間力顕微鏡により形状・密度の評価を行った後、顕微 PL 分光により光学スペクトルの検出ドット数依存性を検討した。その結果、検出ドット数の多い場合に観測された不均一広がりに基づくブロードな構造が、観測領域を低減することにより多数のスパイク形状が分離して観測された。これは量子ドットの零次元的状态密度を反映したものであり、CdS 量子ドットの形成を光学的に確認した。一方、自己組織化量子ドットと微小共振器中の離散化光モードとの結合を議論する際、量子ドットのサイズ揺らぎに基づく不均一広がりが問題となるため、明確な議論のためには特定の準位を持つ量子ドットに選択的に励起子分布を生じさせることが必要となる。そこで、離散的なエネルギー構造を持つ LO フォノンを利用した励起子のエネルギー緩和過程に関する検討を併せて行った。

第四章では、孤立した二準位系としての零次元準位形成に関する検討を行った。II-VI 族半導体は励起子 Bohr 半径が小さく、試料の不均一性に基づくポテンシャル局在の影響を受けやすい性質を持つ。そこで共振器との結合を念頭に量子ドット系に比べて発生光子エネルギーをより大きく設計可能な混晶系の局在準位を孤立二準位系として利用することを提案し、ZnCdS 三元混晶半導体の組成不均一性から形成される局在準位の光学特性を検討した。結果として、微小検出領域からのシャープで離散的な零次元性格の強い発光線を観測した。励起光強度依存性等の検討から、空間的に孤立した、独立に存在する ZnCdS 中の局在準位からの励起子発光であることが明らかになった。

第五章では、本研究における成果を総括すると共に、著者が所属する研究グループのもつ関連する実績と併せ、今後の展望について述べる。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 未 宗 幾 夫

副 査 教 授 武 藤 俊 一

副 査 教 授 笹 木 敬 司

副 査 教 授 山 本 眞 史

副 査 教 授 中 原 純一郎 (理学研究科)

学 位 論 文 題 名

Study on enhanced excitonic effects in wide-gap semiconductor quantum structures and formation of atom-like discrete levels

(ワイドバンド半導体量子構造における励起子効果の増大と
原子様離散化準位の形成に関する研究)

トランジスタの発明以来、素子の微細化と集積化技術は目覚ましい進展を遂げてきた。従来型のキャリアの集団運動を制御するデバイスの動作は、少数量子領域における揺らぎによる制限を受け、近い将来限界に達すると予想される。そこで最近、それら古典的デバイスに代わり単一量子を生成・制御可能な単一量子デバイスの必要性が急速に高まっている。究極の秘匿通信を実現する量子暗号通信用単一光子光源や、量子力学の基本原則に基づいて並列計算を実現する量子計算に必要な量子論理ゲートはその代表例であり、その実現のためには、物質系として原子様の二準位系を準備し、そこに属する量子状態を光との相互作用によって効率よく制御することが必要である。原子様の二準位系としては、固体素子としての安定性、制御性、集積性の点から、また光との相互作用を特徴づける振動子強度の増大が可能な励起子系を利用できる点から、半導体量子ドットの利用が望ましい。しかしながら従来よく研究されている III-V 族半導体は、単一量子ドット内の励起子と光共振器内の離散化光場モードとの結合強度が十分ではなく、量子ゲート操作の一種であるコヒーレント操作に必要な強結合領域には達しないという問題がある。そこで、基礎物性面からワイドバンドギャップ半導体に着目した。一般にワイドバンドギャップ半導体は大きな換算質量、小さな誘電率を持つため大きな励起子振動子強度を有し、強い光との相互作用が期待される。しかし、ワイドバンドギャップ半導体については、これまで短波長発光デバイスやパワーデバイスといった点に主眼をおいた強励起条件下での研究が中心であり、単一量子デバイスの実現を目的とした強度領域における励起子と光場との相互作用等の基礎物性面の検討が待たれていた。

本論文では、III-V 族半導体と比較し大きな励起子振動子強度を持つワイドバンドギャップ半導体量子構造を作製し、主に単一光子光源や量子論理ゲートの実現に向け必要とされる励起子振

動子強度の増大、また低次元化による励起子系とフォノン間相互作用の低下を実証し、更に励起子系と光場との相互作用を議論する際に障害となる自己形成量子ドットに付随する不均一広がりの影響を排除するため、量子ドットのエネルギー選択励起の方法を提案するなど、単一量子デバイスの実現に不可欠な基礎物性の解明及び手法の開発が行われている。また、ワイドバンドギャップ半導体励起子の小さな Bohr 半径、試料の不均一性による局在の影響を受けやすい点を積極的に利用し、三元混晶半導体中の局在準位を利用した原子様離散化量子準位を形成することを提案し、背景光の抑制された良好な単一量子準位形成を実現している。

本論文は以下の五章から構成されている。

第一章では、序論としての本研究の背景を述べている。背景に関連して半導体量子構造中の励起子物性、非線形性、励起子と光場との相互作用が述べられており、光場の重要な固有状態である単一光子状態とコヒーレント状態の関係について概説がある。引き続き本論文の目的、構成について述べている。

第二章では、II-VI 属半導体超格子構造の作製、構造評価、光学評価を行っている。基板として用いる GaAs との格子整合が良く、エネルギーギャップ差が大きいため強い閉じ込めポテンシャルが期待される ZnSe/MgS 超格子構造を選択しその作製を行っている。この ZnSe/MgS 超格子構造に対して反射スペクトル解析による光学特性評価を行い、室温に至るまで励起子の寄与に基づく共鳴構造が明瞭に観測され、この超格子構造における強い励起子効果の増大が確認された。また、超格子構造中の励起子の局在効果、及びコヒーレンス保持に重要な影響を与える励起子-フォノン相互作用についても検討を行っており、量子構造中の強い励起子閉じ込め効果により、光学フォノンと励起子との間の結合定数がバルク半導体と比較し低減されることを確認している。

第三章では零次元化により更なる励起子効果の増大と、状態密度の離散化に伴う原子様離散準位の形成の検討が行われている。II-VI 族半導体 CdS 自己組織化量子ドット構造を作製し、顕微 PL 分光により光学スペクトルの検出ドット数依存性が検討されている。その結果、検出ドット数の多い場合に観測された不均一広がりに基づくブロードな構造が、観測領域を低減することにより多数のスパイク形状が分離して観測された。これは量子ドットの零次元的状態密度を反映したものであり、CdS 量子ドットの形成が光学的に確認したものである。一方、自己組織化量子ドットと微小共振器中の離散化光モードとの結合を議論する際、量子ドットのサイズ揺らぎに基づく不均一広がり問題となるため、明確な議論のためには特定の準位を持つ量子ドットに選択的に励起子分布を生じさせることが必要となる。そこで、離散的なエネルギー構造を持つ LO フォノンを利用した励起子のエネルギー緩和過程に関する検討を併せて行い、量子ドットのエネルギー選択励起が可能であることを実証している。

第四章では、孤立した二準位系としての零次元的準位形成に関する検討が行われている。II-VI 族半導体は励起子 Bohr 半径が小さく、試料の不均一性に基づくポテンシャル局在の影響を受けやすい性質を持つ。そこで共振器との結合を念頭に量子ドット系に比べて発生光子エネルギーをより大きく設計可能な混晶系の局在準位を孤立二準位系として利用することが提案され、ZnCdS 三元混晶半導体の組成不均一性から形成される局在準位の光学特性の検討がされている。結果として、微小検出領域からの背景光の抑制されたシャープで離散的な零次元的性格の強い発光線が観測された。励起光強度依存性等の検討から、空間的に孤立した、独立に存在する ZnCdS 中の局在準位からの励起子発光であることを明らかにしている。

第五章では、本研究における成果を総括すると共に、著者が所属する研究グループのもつ関連する実績と併せ、今後の展望について述べられている。

これを要するに、著者は単一量子デバイスの実現に必要な強い励起子-光場相互作用を、ワイドバンドギャップ半導体量子構造を用いて実現することを提案し、実際にその高い優位性を実験的に明らかにしたものである。この知見は光エレクトロニクス・応用物理学の分野に貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。