

|              |   |
|--------------|---|
| Title        | GaAs/AlAs多重量子井戸及び超格子の光学的手法を用いた評価  |
| Author(s)    | 原口, 雅宣  |
| Citation     | 大阪大学, 1993, 博士論文  |
| Version Type | VoR   |
| URL          | <a href="https://doi.org/10.11501/3067997">https://doi.org/10.11501/3067997</a> |
| rights       |   |
| Note         |   |

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

GaAs/AlAs多重量子井戸及び超格子の  
光学的手法を用いた評価

1993年

原 口 雅 宣

# 目次

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 1   | 序論   | 1  |
| 2   | GaAs/AlAsヘテロ構造とフォトリフレクタンス法と全反射減衰法の原理       | 6  |
| 2.1 | 序論   | 6  |
| 2.2 | GaAs/AlAs多重量子井戸および超格子試料                    | 8  |
| 2.3 | フォトリフレクタンス (PR) 法                          | 14 |
| 2.4 | フォトリフレクタンス (PR) 法による実験方法                   | 19 |
| 2.5 | 全反射減衰 (ATR) 法                              | 22 |
| 2.6 | 全反射減衰 (ATR) 法による測定                         | 27 |
| 2.7 | まとめ  | 31 |
| 3   | フォトリフレクタンス法によるバッファ層内の電界強度の評価               | 34 |
| 3.1 | 序論   | 34 |
| 3.2 | GaAs/AlAs多重量子井戸試料の代表的フォトリフレクタンススペクトル       | 35 |
| 3.3 | GaAs バッファ層に由来するフォトリフレクタンススペクトル             | 39 |
| 3.4 | 低電場変調理論の拡張                                 | 41 |
| 3.5 | バッファ層内の内蔵電界強度の評価                           | 43 |
| 3.6 | まとめ  | 45 |
| 4   | フォトリフレクタンス法による試料の均一性の評価                    | 47 |
| 4.1 | 序論   | 47 |
| 4.2 | 量子準位間遷移によるフォトリフレクタンススペクトルの場所依存性            | 48 |
| 4.3 | GaAs バッファ層内のバンド端遷移によるフォトリフレクタンススペクトルの場所依存性 | 55 |
| 4.4 | まとめ  | 59 |
| 5   | フォトリフレクタンス信号強度の変調周波数依存性による物性評価             | 61 |
| 5.1 | 序論   | 61 |
| 5.2 | フォトリフレクタンス信号強度と深い準位                        | 62 |
| 5.3 | フォトリフレクタンス信号強度の変調周波数依存性                    | 69 |
| 5.4 | まとめ  | 75 |

|     |                               |     |
|-----|-------------------------------|-----|
| 6   | 多重量子井戸試料の全反射減衰 (ATR) 法を用いた評価  | 77  |
| 6.1 | 序論                            | 77  |
| 6.2 | 多重量子井戸試料の全反射 (ATR) スペクトルの理論計算 | 78  |
| 6.3 | GaAs/AlAs 多重量子井戸試料に対する実験結果の解析 | 95  |
| 6.4 | まとめ                           | 99  |
| 7   | 超格子試料の全反射減衰 (ATR) 法を用いた評価     | 102 |
| 7.1 | 序論                            | 102 |
| 7.2 | 超格子の誘電率                       | 103 |
| 7.3 | 超格子試料の全反射減衰 (ATR) スペクトルの理論計算  | 114 |
| 7.4 | GaAs/AlAs 超格子試料に対する実験結果の解析    | 118 |
| 7.5 | まとめ                           | 122 |
| 8   | まとめ                           | 124 |
| A   | 多重量子井戸・超格子構造での ATR 信号理論計算     | 126 |
| B   | M-TDFE の式の導出                  | 133 |
| C   | 一次元鎖モデルにおけるパラメータの与え方          | 135 |
| D   | s (TE) 偏光入射時の ATR 信号理論計算      | 141 |
|     | 謝辞                            | 147 |
|     | 論文業績                          | 148 |

# 第 1 章

## 序論

近年、異なる半導体をエピタキシャル成長をさせたヘテロ構造（例えば超格子や多重量子井戸構造：図 1.1）がたいへん注目されている<sup>1-3</sup>。これは、不純物をドーブする部分とキャリアが走行する部分を分けることができるので高速増幅素子や、ヘテロ構造によって実現される特異な電子状態を用いた光電子素子への応用が期待されるからである。たとえば、前者の例をあげると、高速増幅素子としては単一のヘテロ接合を持ち超高周波域での増幅に用いられる HEMT<sup>2</sup>があり、後者の例としては量子井戸構造の半導体レーザ<sup>3</sup>が上げられる。これらのヘテロ構造中では、電子は量子力学的効果によりポテンシャルの井戸に閉じ込められ、通常バルク材料とは異なる電子状態となる。このとき、実効的バンド端幅が広がったり、3次元的に自由に動いていた電子が制限を受け2次元的な運動をするなどといった現象が生ずる<sup>1</sup>。この特異な電子状態は、ヘテロ構造のサイズ・バルク材料のバンド端幅・バンド端幅の違い等により異なる。例えば、量子井戸構造において、同じ組合せの半導体を用いても構造の周期を変えることでバンド端幅は変化し、電子が量子井戸に閉じ込められた状態から広く移動できる状態まで変化させることができる。従って、これらのヘテロ構造材料に対する（結晶）評価技術は通常バルク材料に対する場合と同様に重要な課題となっている。

ヘテロ構造の評価法には様々なものがあり、近年の素子の微細化にともなって、非接触で微少領域を評価できる評価法が主流となっている。この条件を満たす光を用いた代表的手法としてフォトルミネッセンス（PL）法<sup>4,5</sup>、フォトリフレクタンス（PR）法<sup>5-10</sup>、光吸収法<sup>11</sup>、エリプソメトリ法<sup>12</sup>、ラマン散乱法<sup>13</sup>、全反射減衰（ATR）法<sup>14-18</sup>があげられる。

これらの手法により評価されたバンド端付近のエネルギー領域での光学的物性について、多くの報告がなされている<sup>4-12</sup>。しかし、数 $\mu\text{m}$ をこえる波長の赤外領域における光学的性質の評価は十分とはいえない。ヘテロ構造を形成する結晶薄膜そのものの性質でさえ十分わかっていない半導体もある。たとえば、最もよく研究されているヘテロ構造の一つである、GaAs/AlAs 多重量子井戸を形成する AlAs についてでさえ、光学フォノンの振動数に対応する波長域（20～30 $\mu\text{m}$ ）における誘電率定数<sup>13,14</sup>が十分研究されているとはいえない。

以上の点を踏まえて、本研究の主目的は、ヘテロ構造の中でも GaAs/AlAs 多重量子井

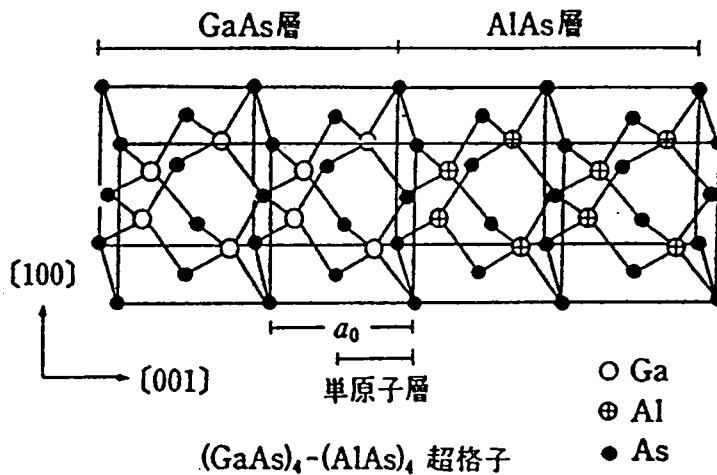


図 1.1 GaAs/AlAs 超格子の一例

戸 (MQW)・超格子 (SL) の光学的性質の評価を光を用いて行い、このような材料の物性・特性評価法を確立することである。そのために、評価法として変調分光法的一种であるフォトリフレクタンス (PR) 法と一種の反射率測定法である全反射減衰 (ATR) 法を用いる。試料として用いる GaAs/AlAs 多重量子井戸・超格子は、(1)「GaAs と AlAs の格子定数が近いので良質のヘテロ構造が作製しやすい。」、(2)「電子が閉じ込められる GaAs 層での電子移動度が Si に比べ 5 - 6 倍と大きい。」、(3)「GaAs は発光素子が容易に作製できる直接遷移形半導体である。」などの特徴から、MQW (SL) として最も早くから研究されている<sup>1</sup>。一方、評価法の PR 法は、室温において波長分解能の良いスペクトル構造が得られる<sup>5-10</sup>ことが知られており、ヘテロ構造のバンド端付近の評価に適した手法としてよく用いられている。また ATR 法<sup>14-18</sup>は、半導体材料に関しては主として赤外の評価法として用いられているが、ヘテロ構造の評価に用いられた例はきわめて少ない。しかし、赤外領域で電子の集団振動であるプラズモンや格子振動の評価に適していることや、薄膜の評価法として定評のある手法であるので、ヘテロ構造の評価法として優れた手法であると考えられる。

PR 法<sup>5-10</sup>は、断続的に照射されている励起光によって生じた試料の反射率変化を測定する変調分光法であり、電場変調分光 (エレクトロリフレクタンス: ER) 法的一种とみなされている。ER 法的一种と見なされるのは、反射率の変化を生ずる変調機構が、「半導体表面に存在する表面空乏層の電界強度が光励起された電子・正孔によって緩和されることによって電界変調が生ずる。」と考えられている<sup>6</sup>ためである。すなわち、PR 法も ER 法と同様に、電場変調によって反射率の変化が表れているのである。この表面空乏層の電界強度や励起光による電界変調の大きさは測定試料によって異なり、同一試料においても表面の状態が異なれば信号強度、形状が異なるといった現象が表れる。これは、電界変調の大きさは、励起光強度・励起光の波長・チョッピング周波数・表面空乏層の電界強度等の関

数であり、さらに表面空乏層の電界強度とその深さ方向の強度分布についても、表面付近の不純物の分布や他の結晶欠陥の分布によって異なるためである。

以上の事は、PR法が表面付近の様々な情報を検出可能であることを示し、MQW(SL)を評価する上での有用な特徴となっている。しかし、様々な要因が絡み合っているためPR法の変調機構は十分解明されていない。そのうえ、MQW(SL)にたいしてPR法を用いた場合、電界変調にヘテロ界面の存在が影響する。MQW(SL)に於けるPR法の変調機構を明らかにすることは急務となっており、本研究でもこれを明らかにすることを主眼の一つとした。

一方ATR法<sup>14-18</sup>は、入射光が全反射しているプリズムの底面に試料を取り付け、波長もしくは入射角度を変えて試料に光エネルギーが逃げる場合の反射率低下を測定することで試料を評価する一種の反射率測定法である。ATR法によって観測される表面ポラリトン<sup>14,15,17</sup>(表面付近の素励起と電磁波の結合したモード)は、薄膜の光学的性質に敏感である<sup>18</sup>ので、この手法は薄膜物性の光学的評価法として優れた方法である。MQW(SL)のように、薄膜を積み重ねた構造の試料の評価には最適の方法の一つと考えられる。しかしながら、これまでMQW(SL)の研究には余り用いられなかった。

半導体試料中では格子振動と電子(正孔)のプラズマ振動が赤外~遠赤外領域に存在し、これらが試料の光学定数を左右する<sup>16-17</sup>。したがって、この領域でのATR測定によって、格子振動などの情報を得ることができ、さらにその情報から試料の評価ができる。MQW(SL)においてはATR測定を行うことで、MQW構造特有の振動モードや、単位格子が大きくなるために生ずる格子振動の折り返しの効果の観測などが期待される。また様々な振動モードは、ATR法では先に述べたポラリトンの形で観測され、そのポラリトンそのものの理解もMQW(SL)の光学的性質の理解の上で重要である。本研究では、ATR法を用いGaAs/AlAs MQW(SL)のポラリトンの観測とそれを用いたMQW(SL)の評価を行い、ATR法をMQW(SL)の評価法として確立することを主眼の一つとした。

以上、本研究の目的をまとめると、次のようになる。試料としてGaAs/AlAs MQW(SL)を選び、半導体MQW(SL)試料について光学的評価法であるPR法とATR法を用いて評価を行い、

1. PR法については、変調機構の解明とMQW(SL)の光学的性質を評価し、
2. ATR法についてはポラリトンの観測とそれによる材料評価法の確立する。

以下、第2章では、MQW(SL)試料についての基本的性質と、測定法の原理・実験配置についての記述を行う。第3~5章ではPR法を用いた測定結果とその解釈・討論を、第6、7章ではATR法による測定結果とその解釈・討論を行う。最後に、本研究のまとめを第8章で行う。

## 参考文献

- 1 日本物理学会編、半導体超格子の物理と応用 (培風館、東京、1984)
- 2 T.Mimura, S.Hiyamizu, T.Fujii, and K.Nanbu, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 19,L225(1980).
- 3 J.P.van der Ziel, R.Dingle, R.C.Miller,W.Wiegmann, and W.A.Nordland, Jr., *Appl. Phys. Lett.*, 26, 463(1975).
- 4 T.Ishibashi, Y.Suzuki, and H.Okamoto, *Jpn J. Appl. Phys.*, 20, L623, (1981).
- 5 T.Nakazawa, H.Fujimoto, K.Imanishi, K.Taniguchi, C.Hamaguchi, S.Hiyamizu, and S.Sasa, *J. Phys. Soc. Jpn*, 58, 2192 (1989).
- 6 O.J.Glembocki, B.V.Shanabrook, N.Bottka, W.T.Beard, and J.Comas, *Proceedings of the Society of Photo-Optical Instrumnsntation Engineers (SPIE, Bellingham, 1985)* 524, 86.
- 7 H.Fujimoto, C.Hamaguchi, T.Nakazawa, K.Taniguchi, K.Imanishi, H.Kato, and Y.Watanabe, *Phys. Rev.*, B41, 7593 (1990).
- 8 C.Hamaguchi, T.Nakazawa, T.Matsuoka, T.Ohya, K.Taniguchi, H.Fujimoto, K. Imanishi, H.Kato, and Y.Watanabe, *Superlattices and Microstruct.* 9, 449 (1991).
- 9 T.Matsuoka, T.Nakazawa, T.Ohya, K.Taniguchi, C.Hamaguchi, H.Kubo, and Y. Watanabe, *Phys. Rev.*, B43, 11798 (1991).
- 10 M.Haraguchi, Y.Nakagwa, M.Fukui, and S.Muto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 30, 1367(1991).
- 11 R.Dingle, *Festkorperproblem XV, Advances in Solid-State Physics (Pergamon-Vieweg, 1975)* p.21.
- 12 M. Erman, J. B. Theeten, P.Frijlink, S.Gaillard, Fan Jia Hia, and C.Albert, *J. Appl. Phys.*, 56, 3241(1984)
- 13 C.Colvard, T.A.Gant, M.V.Klein, R.Merlin, R.Fischer, H.Morkoc, and A.C.Gossard, *Phys. Rev*, B31, 2080(1985).



- 14 N.J.Harrick, *Internal Reflection Spectroscopy* (Harrick Scientific Corp., Ossining, N.Y. 1979).
- 15 M.Haraguchi, M.Fukui, and S.Muto, *Phys. Rev.*, B41, 1254(1990).
- 16 S.Perkowitz, R.Sudharsanan, S.S.Yom, and T.J.Drummond, *Solid State Commun.*, 62, 645(1987).
- 17 *Electromagnetic Surface Modes* (ed. A.D.Boardman, John Wiley & Sons Ltd, 1982).
- 18 M.Yano, M.Fukui, M.Haraguchi, and Y.Shintani, *Surf. Science*, 227, 129(1990).

## 第 2 章

# G a A s / A l A s ヘテロ構造とフォトリフレクタンス法と全反射減衰法の原理

### 2.1 序論

この章では、多重量子井戸 (MQW) や超格子 (SL) の特性と、本研究で評価法として用いたフォトリフレクタンス (PR) 法と全反射減衰 (ATR) 法の特徴・原理と測定法について述べる。

第 1 章において、多重量子井戸 (MQW) や超格子 (SL) は、通常バルク半導体に比べ、特異な特性を持つと記述した。この章では、MQW や SL が、具体的にバルク半導体とどの様な点において特性が異なるかを述べる。特に、本研究では、MQW (SL) 試料の光学的評価が主たる目的であるので、それらの試料の光学的性質を重点的に述べる。ここでは、本研究で用いた試料を用いて、量子化によるバンド端エネルギーの変化や格子振動の折り返しなどの具体的な例を挙げて考える。

本研究において採用した PR 法及び ATR 法は、前者は 1960 年代後半から<sup>1</sup>、後者は 1960 年代から<sup>2</sup>始められた、比較的歴史が浅い測定法である。これらの評価法は、光を用いているため、原理的には非接触・非破壊の測定法であり、空間分解能を測定波長程度まであげることができる。したがって、近年の電子素子・光電子素子の微細化に対応した、微少領域の測定・評価が可能である。

PR 法は、試料に変調を与えるものとして光を用いた変調分光法の一つである。2.3 節で述べるように、基本的には電場による変調分光法 (エレクトロリフレクタンス: ER 法) と同様な特徴を持つ測定法である<sup>1</sup>。PR 法と ER 法の特徴は、室温において波長分解能の良いスペクトル構造が得られ、かつ、そのスペクトル構造は比較的簡単な式で表現されることである。しかし、PR 法は ER 法と異なり、電極の形成が不要なため試料の前準備が簡単である。また、ER 法では電極の形成ができない試料では測定不能であるが、PR 法ではどの様な試料でも測定が可能である。

この章では、PR 法の原理について、2.3 節において述べる。2.4 節では、実験配置・手法および、得られた PR スペクトルをどの様に解析するかを述べる。

全反射減衰（ATR）法は反射率測定法の一つである<sup>2</sup>。入射光が全反射しているプリズムの底面に試料を取り付け、波長もしくは入射角度を変えて試料に光エネルギーが逃げる場合の反射率低下を測定することで試料を評価する。ATR法によって観測される表面ポラリトン<sup>3</sup>（表面付近の素励起と電磁波の結び付いたモード）は、薄膜の光学的性質に敏感である。それゆえに、表面ポラリトン励起を利用したATR法<sup>3</sup>は、薄膜物性の光学的評価法として優れた方法である。これまで、ATR法は、半導体材料に関しては、格子振動やプラズモンの特性を利用した赤外領域での評価法として用いられている。ATR法を用いた半導体評価の例はそれほど多くなく、ヘテロ構造の評価に用いられた例もきわめて少ない。しかし、赤外領域で電子の集団振動であるプラズモンや格子振動の特性評価、あるいはそれらを通した半導体物性評価に適しているので、ヘテロ構造の評価法として優れた手法であると考えられる。

この章では、ATR法について、2.5節で原理について、2.6節で実験配置および実験方法について述べる。

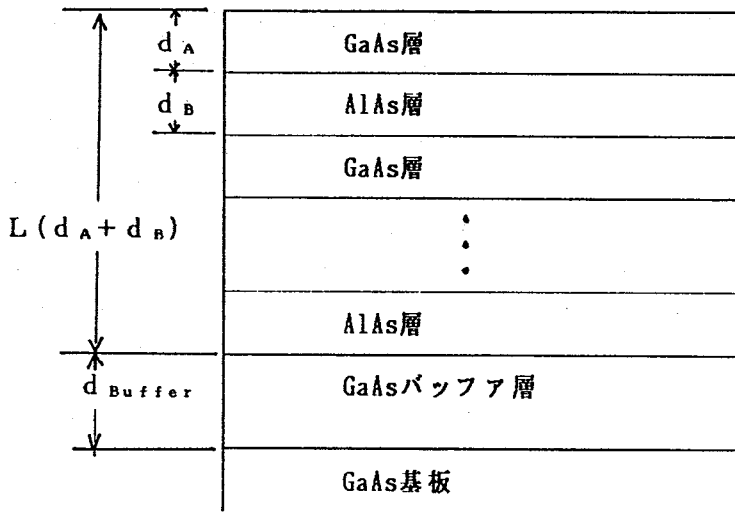


図 2.1 GaAs/AlAs 多重量子井戸・超格子試料の図

## 2.2 GaAs/AlAs 多重量子井戸および超格子試料

本研究で用いた試料は、すべて富士通研究所株式会社の厚木研究所で作製された。半絶縁性 GaAs 基板上に、GaAs のバッファ層と GaAs と AlAs からなる MQW(SL) を、分子線エピタキシー (MBE) 法<sup>4</sup>によって成長させている (図 2.1)。なお、不純物は添加されておらず、MQW(SL) を構成する GaAs 層と AlAs 層の幅は等しい。表 2.1 に示すように、MQW(SL) 試料は GaAs 層幅が異なる 3 種類 (A、B、C) を用意した。MQW(SL) 内の GaAs(AlAs) 層幅はそれぞれ、A の場合 10.2nm、B の場合 5.1nm、C の場合 3.0nm である。試料 A、B、C の周期数 (GaAs 層と AlAs 層の 1 組の数) は、それぞれ 25、50、120 である。

2 種類の半導体からなるヘテロ接合型 MQW では、伝導帯の電子と価電子帯の正孔は、バンド端幅と電子親和力の違いによって生じたポテンシャルの井戸のなかに閉じ込められる<sup>4</sup>。この時、電子が閉じ込められる層を井戸層、ポテンシャル障壁として働く層を障壁層と呼ぶ。当然ながら、井戸の中の電子は、障壁層を越えて隣あう井戸へ移動することができない。3 次元的な性質であった電子は、量子力学的な効果によって、離散的なエネルギー準位列ができ、2 次元的な状態密度を持つようになる。一方、障壁層の厚さが十分薄い場合、波動関数のしみだしにより隣あう井戸の波動関数が互いに結合して、電子が井戸間を動き回るようになる。この状態の構造は、各”量子井戸”が電子を井戸の中に閉じ込めていないので超格子 (SL) 構造と呼ばれる<sup>4</sup>。

以上の電子の振舞いは、バンド間の相互作用を無視すれば、簡単なクロニヒ・ペニーモデルで記述できる。電子の波動関数を  $\psi$ 、井戸層と障壁層における有効質量をそれぞれ  $m_w^*$  と  $m_b^*$ 、ポテンシャル障壁の高さを  $V$ 、電子のエネルギーを  $E$  とおき、MQW(SL) は  $z$  方向に作製してあるとすれば、波動方程式は次のように記述される。

表 2.1 本研究で用いた試料

| 試料 | GaAs 層厚 [nm] | AlAs 層厚 [nm] | 種別  |
|----|--------------|--------------|-----|
| A  | 10.2         | 10.2         | MQW |
| B  | 5.1          | 5.1          | MQW |
| C  | 3.0          | 3.0          | SL  |

井戸層内で

$$\frac{d^2\psi}{dz^2} + \frac{2m_w^*E}{\hbar} \psi = 0 \quad (2.1)$$

障壁層内で

$$\frac{d^2\psi}{dz^2} - \frac{2m_b^*(V-E)}{\hbar} \psi = 0 \quad (2.2)$$

ただし、 $\hbar = h/2\pi$ である。

解を求めるうえでの境界条件は、波動関数の連続性と、波動関数の  $z$  に対する一次微分を有効質量で割ったもの ( $z$  方向の運動量に相当) の連続性で与えられる。式 2.1 と式 2.2 の連立方程式を解くことで、電子の固有エネルギー (量子化エネルギー) と波動関数の形状が分かる。なお、価電子帯の正孔においても、電子の場合と同様な論議ができる。一般的には、井戸の深さが一定の場合、井戸幅が狭く、電子 (正孔) の有効質量が小さいほど、量子化エネルギーが大きい<sup>4</sup>。

GaAs と AlAs の組合せによる MQW では、伝導帯の電子と価電子帯の正孔が GaAs 層に閉じ込められるので、GaAs 層のことは井戸層、AlAs 層はポテンシャル障壁として働くため障壁層と呼ばれる。また伝導帯電子の様子を考えると、閉じこめの効果によって、GaAs 層の伝導帯の底より幾分高エネルギーの位置に伝導帯電子の量子化準位が現れる。一方、価電子帯では、軽い正孔と重い正孔のエネルギーの縮退が解けると同時に価電子帯の頂上より低いエネルギー位置に量子化準位が現れる。これは、式 2.1 と式 2.2 から分かるように、量子化エネルギーの大小は正孔 (あるいは電子) の有効質量に関係するからである。図 2.2 は、試料 (B) における電子と正孔の量子化準位を式 2.1 と式 2.2 によって計算したものを示したエネルギーバンド図である。電子、軽い正孔、重い正孔の有効質量は、GaAs 井戸でそれぞれ、0.067、0.094、0.34<sup>5</sup>、AlAs 障壁でそれぞれ 0.15、0.15、0.76<sup>6</sup> とした。また、GaAs と AlAs のバンド端幅は、それぞれ、1.424eV と 3.002eV<sup>6</sup> とし、両者の伝導帯の底のエネルギー差は 1.036eV<sup>7</sup> とおいた。なお、ここで AlAs のバンド端幅が、直接遷移端幅となっているのは、GaAs の伝導帯の底、すなわち井戸の底にいる電子は、波数  $k = 0$  の状態にあるため、その電子から見た量子井戸深さは、 $k = 0$  について考えるべきであるためである。電子の量子化準位について、量子化エネルギー準位の低いものから順に 1e、2e と記号を割り当ててある。重い正孔と軽い正孔についても同様に、重い正孔の場合は 1H、2H、軽い正孔の場合は 1L、2L とした。

これらの量子化準位間での遷移は、波動関数の直交性・対称性により番号部分が同じもの間で許される。すなわち、1e の電子状態は、1H または 1L の正孔状態との間で遷移が

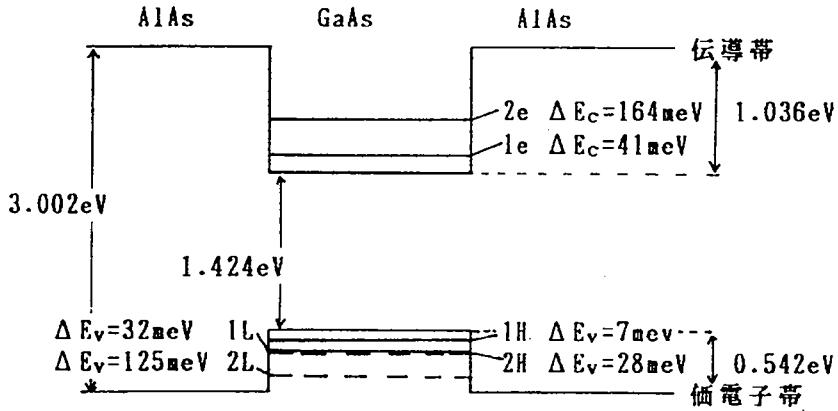


図 2.2 試料 B における量子化準位

表 2.2 試料における量子化準位 (計算結果)

| 試料 | 量子化エネルギー (meV) |     |     |
|----|----------------|-----|-----|
|    | 1 e            | 1 H | 1 L |
| A  | 41             | 9   | 28  |
| B  | 128            | 31  | 85  |
| C  | 261            | 72  | 162 |

可能である<sup>4,8</sup>。以下、1e と 1H との遷移を 1e1H、1e と 1L との遷移を 1e1L と記述する。この遷移則は、大きな電界が印加され、ポテンシャル井戸の形状が大きく変わり波動関数に変形したことによって、波動関数の直交性・対称性が崩れたとき以外成立する。なお、3つの試料について、量子化エネルギーを計算した結果を表 2.2 に示す。表では、電子と正孔についての量子化エネルギーを、それぞれ伝導帯の底と価電子帯の頂上からのエネルギー差で示した。障壁幅・井戸幅以外の計算に必要なパラメータは図 2.2 の場合と同じ値を用いた。

量子化によって状態密度もバルクの場合と異なる。バルクの場合、状態密度はエネルギーに対して、放物線状に変化する。一方、深さ無限大の典型的な量子井戸では、状態密度はエネルギーに対して、ステップ関数的に変化する。図 2.3 はこの様子を模式的に示したものである。実際の半導体 MQW (SL) では、量子井戸深さが無限大ではないので、完全なステップ関数とはならない。しかし、隣り合う井戸の波動関数と相互作用しない波動関数をもつ準位に対しては、状態密度をステップ関数で近似することができる<sup>4,8</sup>。

これまで、MQW (SL) 構造においてバンド端付近の光学的性質を決定するのに主役

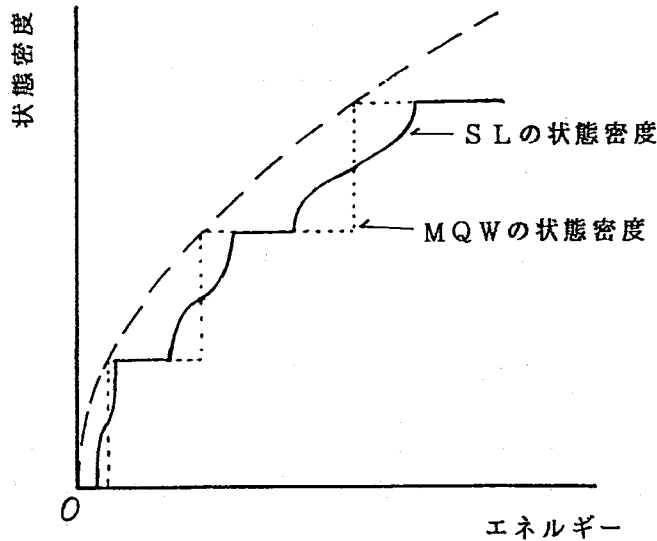


図 2.3 量子井戸における状態密度

を演ずる、電子・正孔の量子化について述べた。一方、赤外領域で光学的性質を大きく左右する光学格子振動についても、MQW (SL) 構造にすることでその特性に変化が生ずる。これは、MQW (SL) 構造を一つの結晶と考えた時、単位格子の大きさが、材料となったバルク物質の単位格子の大きさとは異なることに由来する。ここで、 $z$  軸方向にMQW (SL) を作製した試料を考える。 $z$  軸方向に進む格子振動の分散関係を描くと、 $z$  軸方向の波数空間が縮小しているため、格子振動が波数空間で折り返される。その結果、振動様式の個数が増加する。この効果は、格子振動の折り返し効果と呼ばれ、井戸層・障壁層の周期が数 nm 以下となったとき顕著に現れる。すなわち、超格子 (SL) 試料において観測される<sup>9,10</sup>。

1次元結晶による超格子をとりあげて、この現象を説明する。質量がそれぞれ  $M$  と  $m$  である2種類の原子が、交互に間隔  $a$  で並んでいる1次元結晶を考える。そのブリルアンゾーンは、 $-\pi/2a \sim \pi/2a$  となり、格子振動の分散関係は図2.4のようになる。この時、振動数が高い分散関係を示す分枝を、光学モードといい、振動数が低い側の分枝を音響モードという。

次に、原子間隔がそれぞれ、 $a_A$  と  $a_B$  であるような、結晶Aと結晶Bの2種類の1次元結晶からなる、1次元超格子を考える。結晶Aと結晶Bをそれぞれ  $2La_A$  と  $2Na_B$  の長さごとに交互につなげて超格子を形成すると、単位胞のながさは  $2(La_A + Na_B)$  と拡大するので、そのブリルアンゾーンは  $-\pi/2(La_A + Na_B) \sim \pi/2(La_A + Na_B)$  と縮小する。この結果、光学および音響分枝の折り返しが生じて、振動モードの個数がふえる。GaAs/AlAs 超格子を

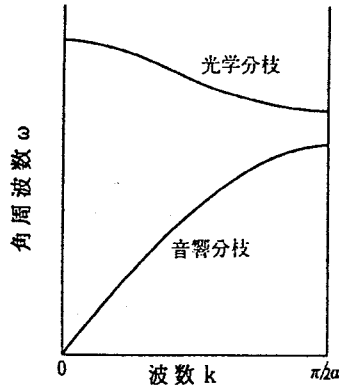


図 2.4 一次元結晶の格子振動の分散関係の一例

例にとり、この様子を示したのが図 2.5 である。図 2.5 では、GaAs/AlAs 超格子を、一次元結晶に単純化して格子振動の分散関係を計算している。GaAs 層と AlAs 層は、どちらも原子の個数が 8 であるとした。ブリルアンゾーンが縮小して、多数の振動モードが現れている。

通常のパルク材料では、キャリアのプラズマ振動による寄与を考えない時、赤外領域における角周波数  $\omega$  の光に対する誘電率  $\epsilon(\omega)$  の古典振動子モデルでの表現は、

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{S\omega_{TO}^2}{\omega_{TO}^2 - \omega^2 - i\nu\omega} \quad (2.3)$$

である<sup>10</sup>。ただし、ここで、 $\epsilon_{\infty}$  は  $\omega$  が十分大きい場合の誘電率、 $S$  は振動子強度、 $\omega_{TO}$  は横光学格子振動周波数、 $\nu$  は横光学格子振動周波数に対するダンピングの大きさである。上述のように、MQW (SL) では、フォノンの折り返しの効果によって、格子振動のモードの数が増加するので、式 2.3 とは異なる表式で誘電率が表されると考えられる<sup>10</sup>。また、式 2.3 で表現できるとしても、パルクの場合とは、 $S$  や  $\nu$  などの値が異なる可能性もある。これらの点については、第 6、7 章で述べる。



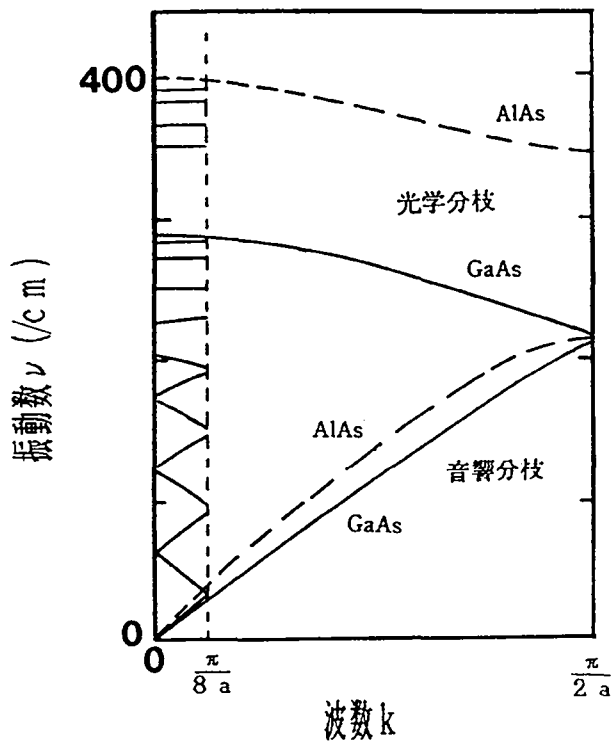


図 2.5 GaAs/AlAs 超格子における格子振動の分散関係の計算例。超格子を一次元結晶とみなして、超格子層の成長方向への波数を持つ格子振動の分散関係を求めた。GaAs 層と AlAs 層の厚さは 1.13nm である。

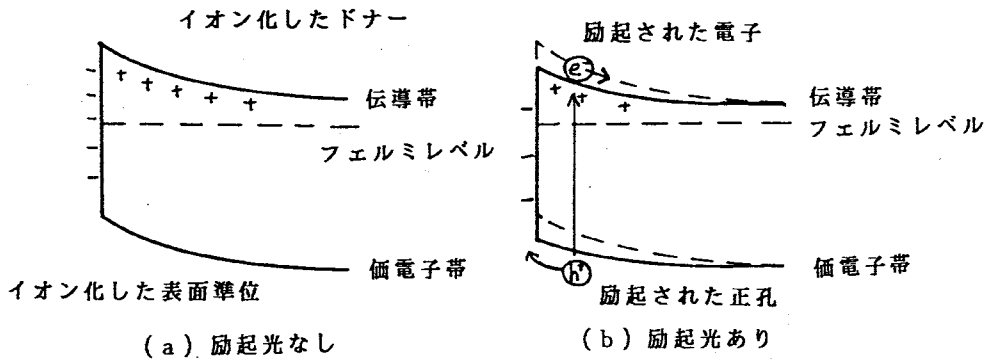


図 2.6 PR法原理図

### 2.3 フォトリフレクタンス (PR) 法

PR法は、断続的に照射された励起光によって試料の誘電率に変調を与え、参照光によってそのときの反射率の変化割合の波長依存性を測定する手法<sup>1,11</sup>である。直接光学遷移の生ずる波長付近においてスペクトル構造があらわれる。PR法は、電場変調分光（エレクトロリフレクタンス：ER）法の一つとみなされており、スペクトル構造の解析に用いる理論式もER法の場合と同じ式である。これは、反射率の変化を生ずる変調機構が図2.6に示すように、「半導体表面に存在する表面空乏層の電界強度が、光励起された電子・正孔によって緩和されることによって電界変調が生ずる。この電界変調による誘電率の変化によって反射率の変化が生ずる。」と考えられている<sup>11</sup>ためである。

試料構造によっては、表面空乏層での電界ではなく、たとえばpn接合などの接合部で生じている電界の変調による誘電率変化が原因である場合もある。いずれにせよ、試料内部になんらかの原因によって存在している電界場（built-in field：以下BF）が変調を受け、電界変調により引き起こされた誘電率変化によって反射率変化が生ずる。従って、PR法もER法と同様に、電場変調によって反射率の変化が誘起される<sup>1,11</sup>。

PR信号は反射率の変化割合として検出され、その強度は、垂直入射の場合次の式の様にかける。

$$\Delta R/R = \text{Re}(c_1 \Delta \epsilon) \quad (2.4)$$

ここで、 $c_1$ は、参照光の入射角、試料の誘電率や試料のまわりの媒質の誘電率によって決定される定数、 $\text{Re}(x)$ は、複素数 $x$ の実部を意味する。一般的にPR信号は、価電子帯から伝導帯へ電子が遷移する遷移エネルギー付近で現れる<sup>1,12</sup>。誘電率の変化 $\Delta \epsilon$ は、参照光の光子エネルギーと、BF強度および励起光による電界変調の大きさの関数である。 $\Delta \epsilon$ は、電界による摂動を考慮することによって計算される。この時、BF強度と電界変調強度の大きさによって、後述のように式2.5で表現できる場合と、式2.8で表現できる場合とに分かれる。

BF強度および励起光による電界変調の大きさが十分小さい場合、Aspnesによって誘電

率変化の理論式が次のように与えられている<sup>1,12</sup>。

$$\Delta\epsilon = \sum_{j=1}^p \{A_j \exp(i\theta) (E - E_{g_j} + i\Gamma_j)^{-n_j}\} \quad (2.5)$$

ここで、 $A_j$ は信号振幅、 $\theta_j$ は位相角、 $E_{g_j}$ は遷移エネルギー、 $E$ は参照光の光子エネルギー、 $\Gamma_j$ はブロードニングファクタ、 $n_j$ は遷移が生ずるエネルギーでの結合状態密度に関係する定数である。下添字  $j$  は  $j$  番目の遷移を表す。ただし、遷移の生じている個数が  $p$  個であるとした。 $A_j$ は、電界強度の2乗と、価電子帯から伝導帯に電子が遷移する場合の遷移行列要素の大きさに比例する。 $\theta_j$ は、位相定数であり、誘電関数の形状や電界分布などに依存する。また、 $\Gamma_j$ は、熱的効果や結晶の不完全性によって生ずるエネルギーのぼけに対応する。 $n_j$ の値は、結合状態密度の形状が3次元であれば2.5であり、2次元であれば3.0となる。

ただし、電界変調の大きさが十分小さいという条件は、電界強度  $F$  が次の式を満たす場合に満たされる。

$$\left\{ \frac{(eF\hbar)^2}{8\mu_j\Gamma_j} \right\}^3 < \frac{1}{3} \quad (2.6)$$

ここで、 $\mu$ は、電子と正孔の有効質量をそれぞれ  $m_e$ 、 $m_h$  と置いたとき、

$$\frac{1}{\mu_j} = \frac{1}{m_{ej}} + \frac{1}{m_{hj}} \quad (2.7)$$

で与えられる。ここで、 $e$ は電子の電荷量である。

図 2.7 は、式 2.5 がどのような関数であるかを示したものである。簡単のため  $p=1$  とおき、 $\Gamma=1\text{eV}$ 、 $E_g=0\text{eV}$  とおいた。 $\theta$ の値によって関数の形状が変化することが分かる。Aspnes によると、式 2.5 は誘電率の3次微分の形を与える<sup>1,12</sup>ので、式 2.5 を指して、Aspnes の3次微分関数表式 (T D F F : Third Derivative Functional Form) と呼ぶこともある。

一方、電界強度が式 2.6 を満たさない場合は、フランツ・ケルディッシュ振動 (F K O) と呼ばれる、参照光の光子エネルギーに対して周期的な信号強度変化が得られる。F K O が生じている場合、すなわち、電界強度が大きい場合、誘電率の変化は、式 2.8 に示す理論式で表現される。<sup>1</sup>

$$\Delta\epsilon = \sum_{j=1}^p \left\{ A_j (2\mu_j/\hbar^2)^{3/2} (\hbar\theta_j)^{1/2} [G(\eta_j) + iF(\eta_j)] \right\} \quad (2.8)$$

ここで、 $A_j$ は、価電子帯から伝導帯に電子が遷移する場合の遷移行列要素の大きさに比例する定数である。また、

$$\eta_j = \frac{E_{gj} - E}{\hbar\theta_j} \quad (2.9)$$

$$(\hbar\theta_j)^3 = \frac{(eF\hbar)^2}{2\mu_j} \quad (2.10)$$

$$F(\eta_j) = \pi \left\{ Ai'^2(\eta_j) - \eta_j Ai^2(\eta_j) \right\} - (-\eta_j)^{1/2} u(-\eta_j) \quad (2.11)$$

$$G(\eta_j) = \pi \left\{ Ai'(\eta_j) Bi'(\eta_j) - \eta_j Ai(\eta_j) Bi(\eta_j) \right\} + \eta_j^{1/2} u(\eta_j) \quad (2.12)$$

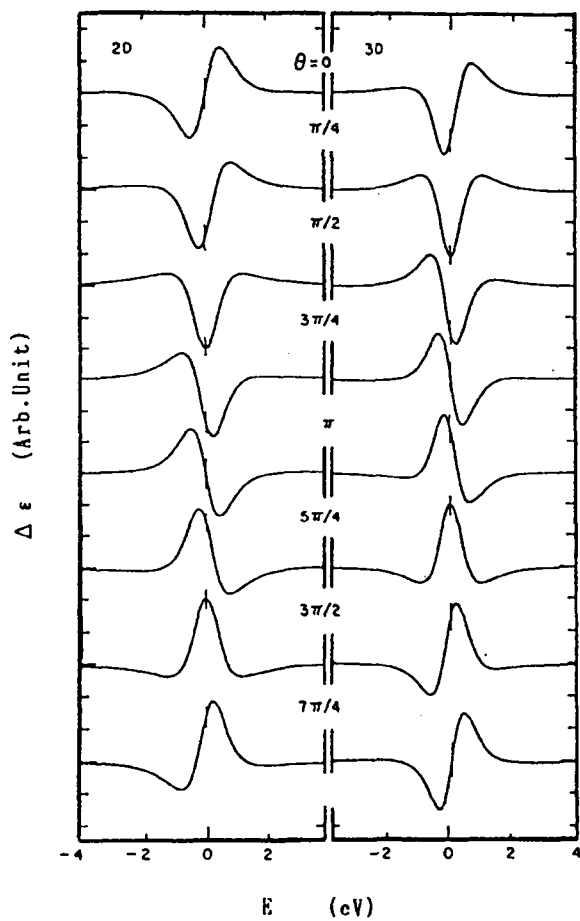


図 2.7 Aspnes の TDFE 式による誘電率変化の計算例

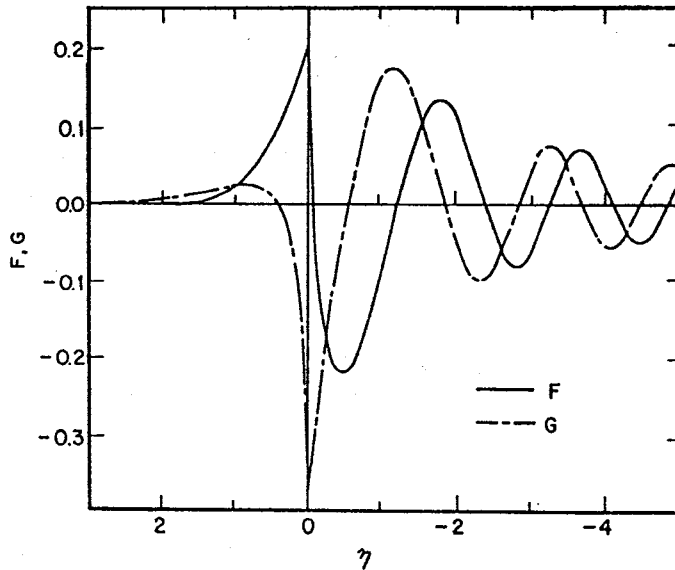


図 2.8 関数  $G(\eta)$  と  $F(\eta)$

であり、 $Ai(x)$ 、 $Bi(x)$  はエアリー関数である。また、 $u(x)$  はステップ関数である。電界強度が分かっている場合、FKOの振動周期から、有効還元質量 $\mu_j$ の評価が可能である。なお、関数  $G(\eta)$  と  $F(\eta)$  の変化の様子を図 2.8 に示す。PR法を用いて、材料評価を行う場合は、式 2.4～式 2.12 によって計算される理論値と実測値との比較によって、バンド幅等の必要な情報を得る。

先に述べたように、PR測定では、はじめにBFが存在し、励起キャリアでBFが緩和されることによって電界変調が生ずる。したがって、BFの熱平衡状態における電界強度を  $F_0$ 、励起光を照射したときの電界強度を  $F_0 + \Delta F$  とおけば、PR信号は、

$$\frac{\Delta R}{R} = \text{Re}\{C_1[\Delta\epsilon(F_0) - \Delta\epsilon(F_0 + \Delta F)]\} \quad (2.13)$$

と表すことができる。PR信号強度を決定する項の一つであるBFの強度や、電界変調の大きさは、測定試料によって異なり、同一試料においても表面の状態が異なれば信号強度・形状が異なるといった現象が表れる。これは、電界の変調は光励起キャリアの注入によって生ずるため、表面準位・不純物などの結晶欠陥の濃度分布によって変調強度が異なるためである。また、これらの結晶欠陥があれば、励起キャリアの捕獲・放出によって、励起光強度変化と電界強度変化の間に時間的なずれが生ずる。したがって、PR信号強度は、励起光強度・励起光の波長・チョッピング周波数・表面空乏層の電界強度等の関数となる。

以上の事は、PR法が表面付近の様々な情報を検出可能であることを示し、光浸入長の範囲でバルク半導体やMQW(SL)を評価する有効な手法であることを意味する。しかし、表面準位や他の結晶欠陥などの、様々な要因が絡み合っているためPR法の変調機構は十分解明されていない。そのうえ、MQW(SL)においては、電界変調にヘテロ界面の存

在が影響する。このように、PR信号を解釈する上で、不明の部分が多く、MQW(SL)に於けるPR法の変調機構を明らかにすることは急務の課題となっている。さらに、これまでは、式2.4の $C_1$ についてあまり注目されなかった。MQW(SL)試料では、各ヘテロ界面での反射光が干渉しあってPR信号に影響を与えらるるので、 $C_1$ はMQW(SL)を評価する上で重要なパラメータの一つとなる。この $C_1$ についても十分な考察が必要である。具体的には第3章以降に実験結果と共にその点について考察する。

## 2.4 フォトリフレクタンス (PR) 法による実験方法

本研究で用いたPR法の実験配置を図2.9に示す<sup>11</sup>。変調を与える励起光源は、He-Ne イオンレーザー (発振波長 632.8nm、NEC 製、GLG5360) または Ar<sup>+</sup> イオンレーザー (発振波長 488.0nm、NEC 製、GLG3201) を、オプティカルチョッパで断続光としたものを用いた。

反射率変化割合 (PR 信号) を測定する参照光は、750W のタングステンランプからの光を焦点距離 50 cm の分光器 (応用分光製、AIR-50) で分光したものを用いた。参照光を検出する光検出器は、Si のフォトダイオード (浜松フォトニクス製、S1336) を用いた。この時、光検出器の前面には、レーザーの散乱光や他の迷光を排除するため、色ガラスフィルター (東芝製、R69) を置いた。

光検出器の出力は、OPアンプを用いた電流電圧変換器を通したのち、DC出力成分は電圧計で、AC出力成分はロックインアンプ (NF 製、NF5610) で検出した。その後、両成分ともペンレコーダ (グラフィテック製、SR6335) に記録した。ここで、DC出力は反射率に相当し、AC出力は光変調によって生じた反射率変化に相当する信号である。

ペンレコーダに記録された信号は、デジタイザ (グラフィテック製、マイタプレット) によりデジタル信号に変換し、コンピュータによって解析を行う。なお、PR信号は、AC成分をDC成分で割り算を行って得られる。

試料に与える変調が参照光のスポットサイズ (2mm × 1mm) の範囲で均一に生ずるように、励起光のスポットサイズは直径 4 mm とした。この励起スポット径であれば、レーザー光の空間的強度分布はガウシアン分布であるので、参照光が照射されている範囲で励起光度が実験精度の範囲で均一とみなすことができる。この時、励起光の励起強度は 50 mW/cm<sup>2</sup> 以下になるように設定した。また、チョッピング周波数は、PR信号強度のチョッピング周波数を測定するときを除いて 200 Hz とした。

PR信号の測定範囲を次のようにして決定した。本研究で用いた試料は、2.1節で述べたように、GaAs/AlAs MQW (SL) である。2.2節の計算によると、GaAs/AlAs MQW層内の電子 (正孔) について、一番低い量子化エネルギーを持つ量子化準位 1e (1H、1L) は、伝導帯 (価電子帯) から 100meV 以下しか離れていない。GaAs のバンド端エネルギーは約 1.42eV であることを考慮すると、MQW (SL) 層の一番低い遷移エネルギーは、約 1.5eV である。したがって、これに対応する波長 (約 830nm) を中心として、750nm (約 1.65eV) から 920nm (約 1.35eV) の範囲でスペクトルを測定することとした。この範囲のPR測定によって、試料からのスペクトルには、GaAs バッファ層からの信号、MQW層内 1e1H 遷移からの信号、1e1L 遷移からの信号の少なくとも 3 つの信号が現れることが予想される<sup>11</sup>。

試料の評価は、前節に示した理論式 (式 2.4~式 2.13) によるPRスペクトルの計算値と、実測したPRスペクトルの値が最も一致するようにパラメータを与えることによって行う。低電界の式 (式 2.5) を用いるか、FKO の式 (式 2.8) を用いるかによって、得られるパラメータは若干異なる。本研究での理論式には、変調電界が低電界の場合の式 (Aspnes の TDFP<sup>12</sup>) を用いる。これは、試料に不純物を添加 (ドーピング) していないので、試料に存在している BF が、十分小さいと考えられるからである。すなわち、参照光の光子エ

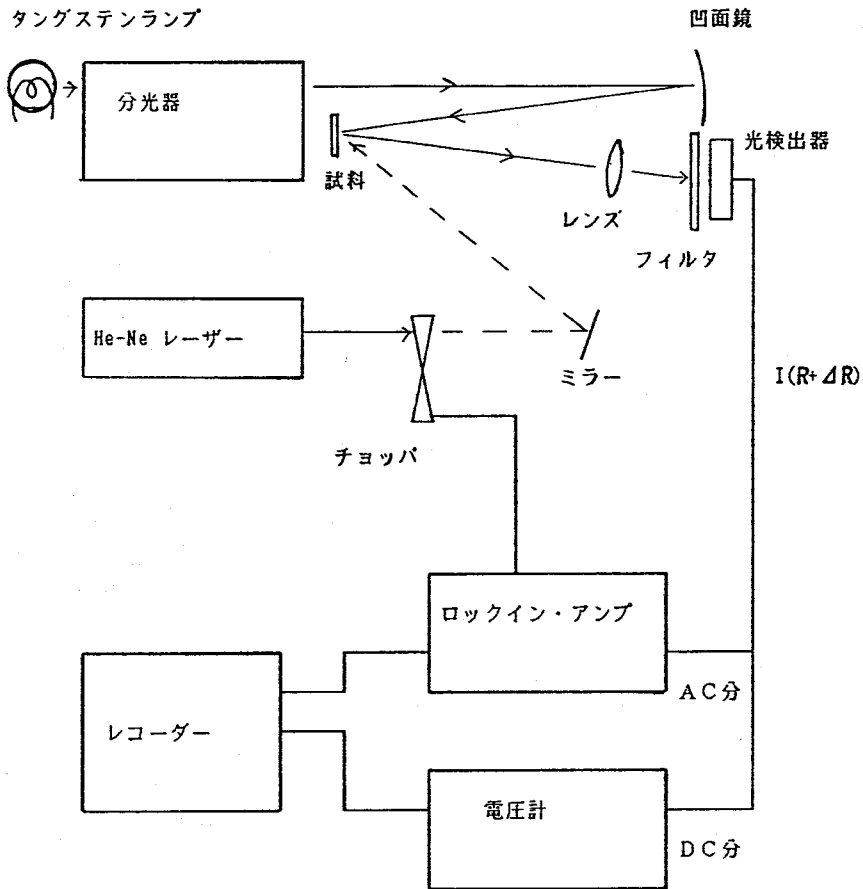


図 2.9 PR 測定系。タングステンランプは 750W である。励起光源として  $\text{Ar}^+$  レーザを使用することもあった。検出器で受けた信号の交流成分はロックインアンプで、直流成分は直流電圧計で増幅する。どちらの成分もレコーダに記録し、その後デジタイザでコンピュータに取り込む。



エネルギーが  $E$  である時の PR 信号 ( $\Delta R/R$ ) の表式として、

$$\Delta R/R = \text{Re}\left\{C_1 \sum_{j=1}^P A_j \exp(i\theta_j)(E_{gj} - E + i\Gamma_j)^{-n_j}\right\} \quad (2.14)$$

を採用する。ここで、各パラメータの詳しい意味は、2.3 節で示したのでここでは省略する。

また、 $n_j$  について、バッファ層からの信号に対して 2.5、MQW 層からの信号に対しては 3.0 を採用した。また、量子井戸の波動関数が、隣合う井戸間で相互作用している SL 構造からの信号に対しては、 $n_j = 2.5$  とした。これは、第 2 章にも述べたように、 $n = 2.5$ 、 $n = 3.0$  は、電子（正孔）の状態密度がそれぞれ、3 次元的、2 次元的であることを示すからである<sup>11,12</sup>。今後、特に断わらない限り、式 2.14 を PR スペクトル解析に用いる。

以上説明した光学系を用いて、PR スペクトル測定を行い、その結果を理論式 2.14 で解析する。試料の測定結果とその解釈は第 3～5 章に述べる。

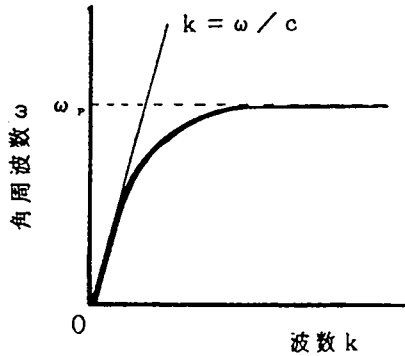


図 2.10 S P の分散関係の一例

## 2.5 全反射減衰 (A T R) 法

半導体・金属の表面には、表面の素励起と光が結合した表面ポラリトン (S P) が存在することが知られている<sup>3</sup>。表面ポラリトンは、表面付近にエネルギーが局在するという特徴を持つ。従って、表面に局在する S P を観測することで、試料の表面近傍の評価が可能となる。ところが、図 2.10 に示す S P の分散関係から分かるように試料表面・界面に光をあてても、S P の波数が入射側の媒質中を伝搬する光に比べ大きいため、そのままでは S P の励起・観測ができない。そこで、入射光の波数をなんらかの方法で大きくする必要があるのである。

全反射減衰 (A T R) 法<sup>2,3</sup>は、この問題を解決できる測定法の一つである。この手法では、入射光が全反射しているプリズムの底面に試料を取り付け、反射光強度の波長もしくは入射角度依存性を測定する。このとき、プリズム底面のエバネセント波を通じて試料にエネルギーが吸収される場合、反射率低下が生ずる。この全反射からの反射率の減少が、吸収スペクトルとして評価されるので、A T R の名前がある。プリズムと試料の置き方には、クレッチマン (Kretschmann) 配置<sup>13</sup>とオットー (Otto) 配置<sup>14</sup>の 2 種類の配置がある。図 2.11(a) のようにプリズムと試料が接触しているものをクレッチマン配置、(b) の様に離れているものをオットー配置という。

クレッチマン配置では、試料膜厚が均一であるので、膜や表面物性を正確に測定できる。しかし、プリズム底面に試料薄膜を作製する必要があるため、対象物となる試料はプリズム上に蒸着やスパッタリング成長などが可能なものに限られる。一方、オットー配置では、どの様な試料でも測定できる。しかし、プリズムと試料の間の空隙を光の波長程度以下の大きさとし、かつプリズム底面の大部分で均一となる様に制御する必要がある。

A T R 法により、どの様に入射光の波数を大きくするかを説明する (図 2.12 参照)。誘電率  $\epsilon_{in}$  の媒質中に置かれた誘電率  $\epsilon(\omega)$  の半無限試料を考えた場合、その表面に存在する S P

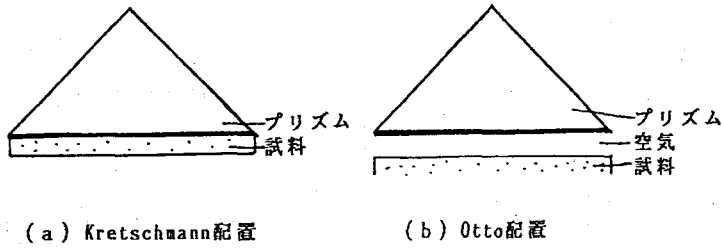


図 2.11 クレッチマン配置とオットー配置

の分散式は次のように与えられる<sup>3</sup>。

$$k_{\parallel}^2 = \frac{\omega^2 \epsilon(\omega) \epsilon_{in} \{\epsilon(\omega) - \mu \epsilon_{in}\}}{c^2 \{\epsilon(\omega) - \epsilon_{in}\} \{\epsilon(\omega) + \epsilon_{in}\}} \quad (2.15)$$

ただし、 $c$  は真空中の光速、 $\mu$  は媒質の透磁率である。この分散関係を示した一例が図 2.12 中の実線である。 $n$  を試料のまわりの媒質の屈折率とすると、媒質中での光は、 $n\omega/c$  の破線の分散関係をもち、S P の分散関係との交点は存在しない。すなわち、試料にそのまま光を照射した場合、S P を励起することはできない。

ここで、プリズムの屈折率を  $n_p$ 、入射角を  $\theta_i$  とすると、プリズム中での界面に平行な方向の光の波数ベクトルは、 $k_{\parallel} = n_p(\omega/c) \sin \theta_i$  (図 2.12 一点鎖線) となる。この時、 $n_p$  と  $\theta_i$  の値を選択することで、 $k_{\parallel} > n\omega/c$  (図中破線) とすることが可能である。試料が存在しない場合、全反射角より大きい入射角で入射した光はプリズム底面で全反射する。試料が存在する場合、S P の励起条件を満たす  $(\omega, k_{\parallel})$  に対応した  $(\omega, \theta_i)$  となると、プリズム底面の消衰波から S P へエネルギーが移り、図 2.12 (a) のように反射光強度は減少する。従って、ATR 法によって、S P の励起・観測が可能となる。

S P を観測するために  $(\omega, k_{\parallel})$  の組を変化させる方法としては、 $\theta_i$  を固定して  $\omega$  を変化させる周波数スキャン法、 $\omega$  を固定して  $\theta_i$  を変化させる角度スキャン法、 $n_p(\omega/c) \sin \theta_i$  が一定となるように  $\theta_i$  と  $\omega$  を同時に変える周波数・角度スキャン法の 3 つの方法がある。本研究では周波数スキャン法を用いて ATR 測定を行った。

ここで、半無限試料を用いたオットー配置における ATR 法による反射率の理論式の導出方針を示す。図 2.13 に示すオットー配置において、プリズム、空気、試料の誘電率をそれぞれ  $\epsilon_p (= n_p^2)$ 、1、 $\epsilon_m$  とする。また、試料の深さ方向に  $z$  軸の正方向をとり、空気層の厚さを  $h$  とする。

プリズム側から振動数  $\omega$  の T M 波 (p 偏光波) を入射したとき、各媒質内での電界強度は、i) プリズム内では、

$$\begin{aligned} \vec{E}_i + \vec{E}_r &= E_i \left( \vec{x} + \vec{z} \frac{-ik_{\parallel}}{k_{pz}} \right) \exp\{-i(\omega t - k_{\parallel} x - k_{pz} z)\} \\ &+ E_r \left( \vec{x} + \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{k_{pz}} \right) \exp\{-i(\omega t - k_{\parallel} x + k_{pz} z)\} \end{aligned} \quad (2.16)$$

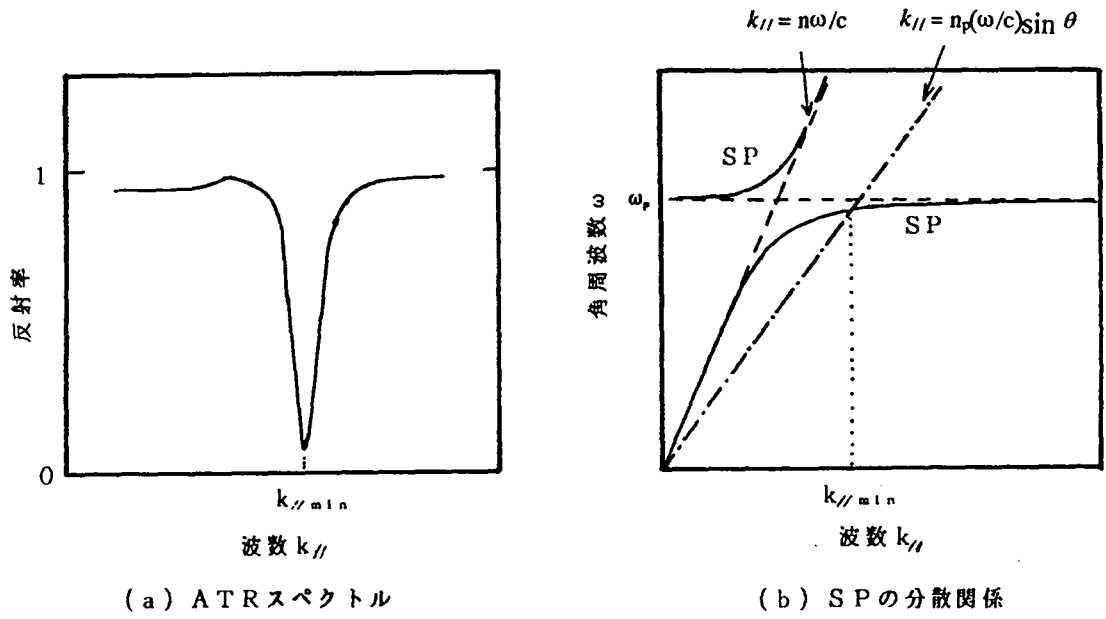


図 2.12 SPの分散関係とATRスペクトル

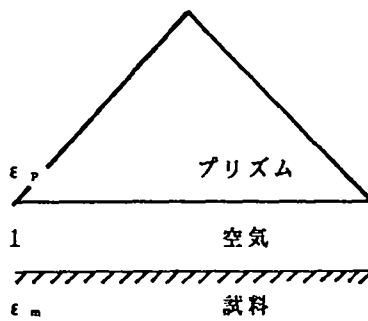


図 2.13 OTTO配置

となり、ii) 空気層内では、

$$\begin{aligned}\vec{E}_{gi} + \vec{E}_{gr} &= E_{gi}(\vec{x} + \vec{z}\frac{-ik_{\parallel}}{\beta})\exp\{-i(\omega t - k_{\parallel}x) + \beta z\} \\ &+ E_{gr}(\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\beta})\exp\{-i(\omega t - k_{\parallel}x) - \beta z\}\end{aligned}\quad (2.17)$$

となる。また、iii) 試料内では、

$$\vec{E}_m = E_m(\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha})\exp\{-i(\omega t - k_{\parallel}x) - \alpha(z - h)\}\quad (2.18)$$

ただし、

$$\alpha = \sqrt{k_{\parallel}^2 - \epsilon_m\omega^2/c^2}\quad (2.19)$$

$$\beta = \sqrt{k_{\parallel}^2 - \omega^2/c^2}\quad (2.20)$$

$$k_{pz} = \sqrt{\epsilon_p\omega^2/c^2 - k_{\parallel}^2}\quad (2.21)$$

で表される。 $z = 0, h$ において、電束の界面に垂直な成分の連続と、電界の界面に平行な成分の連続という境界条件を用いると、反射率  $R$  は、

$$\begin{aligned}R &= \left|\frac{-E_r}{E_i}\right|^2 \\ &= \left|\frac{r_{pv}(\alpha + \epsilon_m\beta) + (\epsilon_m\beta - \alpha)\exp(-2\beta h)}{(\alpha + \epsilon_m\beta) + r_{pv}(\epsilon_m\beta - \alpha)\exp(-2\beta h)}\right|^2\end{aligned}\quad (2.22)$$

$$r_{pv} = \frac{k_{pz} - i\epsilon_p\beta}{k_{pz} + i\epsilon_p\beta}\quad (2.23)$$

と表現される。

式 2.22 と式 2.23 より、反射率  $R$  の最小値を与える  $k_{\parallel}$  や  $\omega$  は、式 2.22 の分母の実数部が 0 あるいは最小とするような値となる。プリズムが十分速い ( $\exp(-2\beta h) \ll 1$ ) 場合、式 2.22 の分母を 0 とするような  $k_{\parallel}$ 、 $\omega$  は、空気と媒質界面に存在する S P の分散関係式を満たす<sup>3,7</sup>。すなわち、プリズムを速くに置くことにより、ATR スペクトルに現れる反射率の最小値を与える  $k_{\parallel}$ 、 $\omega$  を、空気・媒質界面の S P の分散関係式から与えられる  $k_{\parallel}$ 、 $\omega$  に近づけることができる。つまり、ATR 法によって、S P の励起と観測ができる。

金属薄膜の評価法として、ATR 法はよく用いられている<sup>3</sup>。これは第一に、S P は表面に局在するため、他の光学的手法に比べて、表面数 nm 以下の厚さの情報が容易に得られることが理由である。次に、金属においてはプラズマ振動周波数  $\omega_p$  が高いために、可視光でプラズモンと結び付いた S P (表面プラズモンポラリトン) が観測できることがあげられる。可視光領域では、目視で光路の確認ができる上、光学素子 (レンズ、偏光子等) の価格が安価である。さらに、光源として、周波数純度と平行度の高く、安価な可視の気体レーザーを用いることができる。レーザー光以外の光源を用いる場合、周波数純度と平行度を高くすると光強度が小さくなるので、特別な工夫が必要となる。

赤外領域において半導体試料に存在する代表的な表面の素励起は、プラズモンと光学格子振動（光学フォノン）である<sup>3</sup>。すなわち、赤外域における半導体のSPは、プラズモンと光の結び付いた表面プラズモンポラリトンか表面フォノンポラリトンが良く観測される。プラズマ周波数 $\omega_p$ は、キャリア密度に強く依存する。半導体におけるキャリア密度は、金属のキャリア密度に比べかなり小さいので、 $\omega_p$ は赤外領域となる。それゆえ、表面プラズモンポラリトンも赤外領域でなければ観測されない。一方、表面フォノンポラリトンが存在できる周波数領域は、横光学フォノン周波数 $\omega_{TO}$ と縦光学フォノン周波数 $\omega_{LO}$ の周波数の間、すなわち $\omega_{TO} < \omega < \omega_{LO}$ を満たす周波数に限られる。また、ほとんどの半導体試料に於いて、 $\omega_{TO}$ と $\omega_{LO}$ は、 $500\text{cm}^{-1}$ 以下の周波数（光の波長では $20\ \mu\text{m}$ 以上）に存在する。以上のような周波数の制限と、赤外用プリズムが高価であるためとで、これらの赤外領域のSPを表面分光に応用する試みはあまり行われていない。

MQW（SL）は基板上に半導体超薄膜を成長させるという手法をとるので、試料から数百nmから数 $\mu\text{m}$ の深さしかない。したがって、2.2節に述べた、MQW（SL）特有のキャリアの動きや、格子振動モードなどの情報を得るためには、薄膜評価に適しているATR測定法は有効な手法であると考えられる。

## 2.6 全反射減衰 (ATR) 法による測定

本研究ではATR法の配置として、プリズムと試料の間に空隙があるオットー配置<sup>14,15</sup>を用いる。オットー法は既に存在している試料にプリズムを近づける事で実現可能な方法である。この配置では空隙の幅は未知数となる。オットー配置を用いた理由は、

1. すでに作製されているMQW(SL)を、再度プリズム上に蒸着してMQW(SL)を作ることが不可能であること、
2. プリズム(KRS-5)上に、GaAs/AlAs MQW(SL)をエピタキシャル成長できないこと、

の2つによる。

本来ならば、プリズムを基板としてMQW(SL)を作製し、クレッチマン配置によりATR測定を行うのが最も望ましい。ところが、MQW(SL)構造をプリズム上に作製するためには、プリズムの材質とMQWの各層の結晶の格子定数がほとんど一致する必要がある。今回用いたプリズムの材質であるKRS-5は、この条件を満たしていない。それでもなお、KRS-5を用いた理由は、GaAsとAlAsの光学格子振動の対応する周波数領域<sup>2</sup>において透明で、現在入手が容易な光学材料はKRS-5とCsIしかなく、しかも取扱いがより容易なものはKRS-5であったためである。

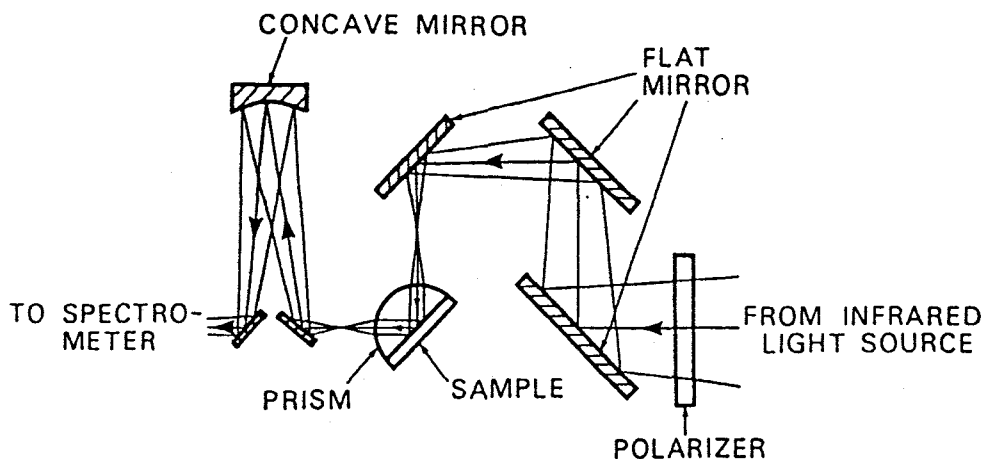
一方、プリズムと試料の間の空隙は、3 $\mu$ mの厚さのマイラフィルムに光学窓をあけたもので作った。試料をプリズムに押し付ける時に、このフィルムをはさむことで、光学窓のある部分で3 $\mu$ mの空隙ができる。ただし、空隙の厚みは、フィルムと試料の間にゴミをはさんだり、押し付け強度が十分でなかったり、あるいは逆に押し付けが弱すぎたりすることで、3 $\mu$ mちょうどにならないことも有り得る。

ATRスペクトルをとる手法として、入射角をある角度に固定し、反射率の周波数依存性を測定する周波数スキャンATR法を採用した。赤外分光光度計(日立270-50形)を用いて、波長スキャンATR測定を行うため、ATR装置(日本分光ATR-3型:図2.14)を、赤外分光光度計の試料室内に装着した。

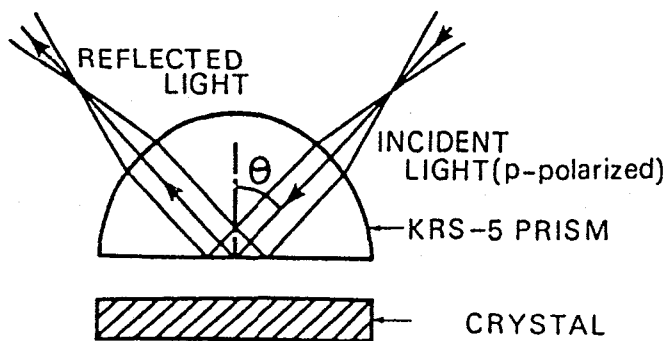
このATR装置は、分光光度計内蔵の光源からの光が、プリズム内部で平行になるように設計されている。また、偏光方向の切り替えは、グリッド偏光子を用いた。なお、スキャンされる周波数の範囲は250から600 $\text{cm}^{-1}$ とした。これは、GaAsとAlAsの光学格子振動が約270から約400 $\text{cm}^{-1}$ の間に存在する<sup>6</sup>ので、この付近において、光学格子振動によるSPが観測されることが期待される<sup>3,16</sup>ためである。

試料の評価は、空隙の厚みや試料の誘電率等を変数とした理論ATRスペクトルと、実験で得られたATRスペクトルを合わせることで行われる。ここで、MQW試料における理論ATRスペクトルの計算法について方針と結果のみ述べる。なお、計算の詳細は付録Aに示す<sup>15,16</sup>。

ATR配置と、座標の関係を図2.15のようにおく。ここで、簡単のためにプリズム、空気層、GaAs層、AlAs層、基板の誘電率をそれぞれ、 $\epsilon_p$ 、 $\epsilon_g$ 、 $\epsilon_A$ 、 $\epsilon_B$ 、 $\epsilon_S$ とする。また、プリズム、空気層、試料の位置関係は、 $z < -d_g$ がプリズム、 $-d_g < z < 0$ が空気層、 $0 < z$ が



(a) ATR測定装置



(b) プリズムと試料

図 2.14 ATR装置。プリズムは、KRS-5で作製された半円柱プリズム。光学系とプリズムの半径は、プリズム底面において入射光が平行となるように設計されている。試料はプリズム底面へ、光学窓を開けた $3\mu\text{m}$ 厚のマイラーフィルムを間に挟み押しつける。



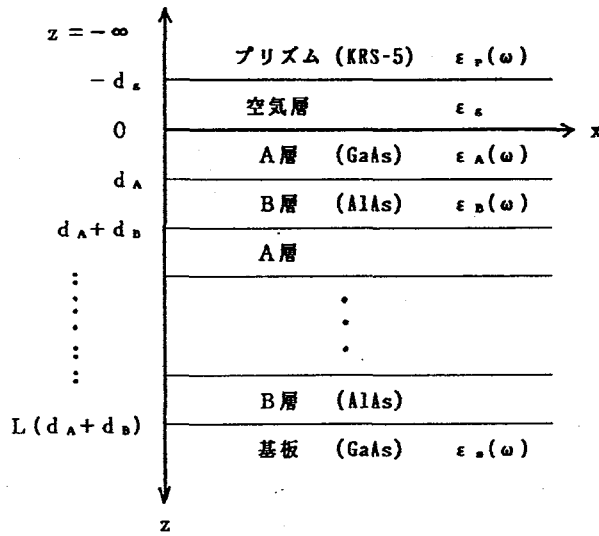


図 2.15 ATR 配置と座標の関係

試料であるとする。また、GaAs 層と AlAs 層の厚さをそれぞれ、 $d_A$  と  $d_B$  とする。GaAs 層と AlAs 層を合わせた層の数を  $P$  とする。プリズム内には入射光と反射光が存在しており、 $x-z$  平面上の角周波数  $\omega$  の入射光は、プリズム側から入射角  $\theta$  で入射される。入射光の偏光は TM (すなわち  $p$ ) 偏光である。一方、基板内にも波が存在していると考えられる。このとき、空気層、GaAs 層、AlAs 層内にはそれぞれ、 $z$  の正の方向に進む波と、負の方向に進む波が存在する。

この時、入射光の波数のプリズム底面に平行な成分  $k_{\parallel}$  は、光速を  $c$  とおくと、

$$k_{\parallel} = \sqrt{\epsilon_p}(\omega/c) \sin \theta \quad (2.24)$$

と与えられる。したがって、プリズム内で垂直な波数成分  $k_z$  は、

$$k_z = \sqrt{\epsilon_p \omega^2 / c^2 - k_{\parallel}^2} \quad (2.25)$$

となる。ここで、空気層、GaAs 井戸層、AlAs 障壁層、基板での  $z$  方向への電磁波の減衰および伝搬を表す減衰定数をそれぞれ、 $\alpha_g$ 、 $\alpha_A$ 、 $\alpha_B$ 、 $\alpha_S$  とおけば、

$$\alpha_j = \sqrt{k_{\parallel}^2 - \epsilon_j \omega^2 / c^2} \quad (2.26)$$

となる。ただし、 $j = g, A, B, S$  である。また、各界面の境界条件として、電界の接線方向成分の連続と、電束の  $z$  方向成分の連続を用いる。

以上の式を用い、各電界強度間の関係式を行列の形で表現して、反射光強度と入射光強度との関係を求めることで反射率、すなわち ATR 信号強度が計算される。付録 A の結果から、ATR 信号強度  $R$  は次のように与えられる。

$$R = |N/D|^2 \quad (2.27)$$

ただし、

$$\begin{aligned} N &= \epsilon_A \alpha_g \{E^+ \exp(\alpha_g d_g) - E^- \exp(-\alpha_g d_g)\} (MF' + M'F) \\ &+ \epsilon_g \alpha_A \{E^+ \exp(\alpha_g d_g) + E^- \exp(-\alpha_g d_g)\} (L_e F' + L'_e F) \end{aligned} \quad (2.28)$$

$$\begin{aligned} D &= \epsilon_A \alpha_g \{E^- \exp(\alpha_g d_g) - E^+ \exp(-\alpha_g d_g)\} (MF' + M'F) \\ &+ \epsilon_g \alpha_A \{E^- \exp(\alpha_g d_g) + E^+ \exp(-\alpha_g d_g)\} (L_e F' + L'_e F) \end{aligned} \quad (2.29)$$

$$E^+ = \epsilon_p \alpha_g + i \epsilon_g k_z \quad (2.30)$$

$$E^- = \epsilon_p \alpha_g - i \epsilon_g k_z \quad (2.31)$$

$$F = (\epsilon_s \alpha_A L' - \epsilon_A \alpha_s M') \exp(\lambda 2L) \quad (2.32)$$

$$F' = (-\epsilon_s \alpha_A L + \epsilon_A \alpha_s M) \exp(-\lambda 2L) \quad (2.33)$$

$$L_e = \exp(-\alpha_A d_A) - \frac{(1 - \frac{\alpha_B \epsilon_A}{\alpha_A \epsilon_B}) \{1 - \exp(-2\lambda + \alpha_B d_B - \alpha_A d_A)\}}{(1 + \frac{\alpha_B \epsilon_A}{\alpha_A \epsilon_B}) \{\exp(-\alpha_A d_A) - \exp(-2\lambda + \alpha_B d_B)\}} \quad (2.34)$$

$$L'_e = \exp(-\alpha_A d_A) - \frac{(1 + \frac{\alpha_B \epsilon_A}{\alpha_A \epsilon_B}) \{1 - \exp(2\lambda - \alpha_B d_B - \alpha_A d_A)\}}{(1 - \frac{\alpha_B \epsilon_A}{\alpha_A \epsilon_B}) \{\exp(-\alpha_A d_A) - \exp(2\lambda - \alpha_B d_B)\}} \quad (2.35)$$

$$M = L_e - 2 \exp(-\alpha_A d_A) \quad (2.36)$$

$$M' = L'_e - 2 \exp(\alpha_A d_A) \quad (2.37)$$

ここで、 $\lambda$ は、正の実数か正の実数部を持つ複素数で、MQW (SL) 層内に電磁波が存在するための条件式、

$$\begin{aligned} &(\epsilon_A^2 \alpha_B^2 + \epsilon_B^2 \alpha_A^2) \sinh(\alpha_A d_A) \sinh(\alpha_B d_B) \\ &+ 2 \epsilon_A \epsilon_B \alpha_A \alpha_B (\cosh \alpha_A d_A \cosh \alpha_B d_B - \cosh 2\lambda) = 0 \end{aligned} \quad (2.38)$$

を解くことによって求められる。

ATRスペクトルは、それぞれの周波数について、以上の式を用いてATR信号強度を計算することにより求められる。この時、空気、プリズム、基板のそれぞれの誘電率とGaAs層の厚さAlAs層の厚さは分かっている。従って、未知数は、GaAs層とAlAs層の誘電率および、空気層の厚さとなる。

赤外領域においてプラズマ振動の項を無視したとき、バルクのGaAsとAlAsの誘電率は、周波数に対して式2.3で表される関数である。MQW (SL) でのGaAs層とAlAs層の誘電率は、バルクの場合と同様に、周波数に対してなんらかの関数となるはずである。本研究では、フォノンの折り返しの効果<sup>10</sup>が無視できるMQW試料に対して、式2.3の表式を用いることができると考えた。また、フォノンの折り返しを考慮する場合は、複数の振動子を持つ表式の誘電率<sup>10</sup>を用いた。これについては、第7章で触れる。

## 2.7 まとめ

本章では、MQW (SL) 試料の性質と、PR法およびATR法について述べた。測定対象として3種類のMQW (SL) 試料を取り上げた。それらは、井戸層幅と障壁層幅が同じGaAs/AlAs MQW (SL) 試料であり、それぞれ周期長(井戸層幅と障壁層幅の和)が異なる。MQW (SL) 試料では、バルク試料とは異なった光学的性質を持つ。これは、バンド端付近では、キャリアの閉じ込めの効果が生じ、赤外領域では、格子振動の折り返しの効果が生ずるためである。

PR法とATR法は、非接触・非破壊の特性評価技術である。PR法とATR法はMQW (SL) の評価に向けた手法である。それぞれの手法の特徴によって、PR法とATR法の測定波長域は異なる。PR法は、バンド端付近の波長域となり、ATR法は遠赤外領域となる。PR法は、半導体MQW (SL) の評価技術としてよく用いられているが、その変調機構など未だ説明されていない。一方、ATR法は、これまで半導体評価には余り用いられなかった。しかし、薄膜の評価技術として優れた特徴を持つので、MQW (SL) に向けた手法であると考えられる。

PR法の測定配置は、特別な光学素子は必要なく標準的な手法を用いた。励起光源として、Ar<sup>+</sup>イオンレーザーまたはHe-Neレーザーを用いた。スペクトルを測定した範囲はバンド端エネルギー付近である。また、PR信号を解析する理論式として、AspnesのTDFEを用いた。

ATR法においては、KRS-5で作られた半円筒形プリズムを用いたオットー配置を採用した。空隙の厚み約3  $\mu\text{m}$ であり、周波数スキャン法によってスペクトルを測定した。なお測定範囲は250 $\text{cm}^{-1}$ から600 $\text{cm}^{-1}$ である。また、ATR信号を解析するにあたって、用いる理論式を示した。

PR法およびATR法による、MQW (SL) 試料に対する測定結果と結果の解釈・考察については、次章以下で述べる。

## 参考文献

- 1 D. E. Aspnes, Handbook on Semiconductors, vol.2, ed. T.S.Moss, volume ed. M. Balkanski, (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1980) p.111.
- 2 N.J.Harrick, Internal Reflectance Spectroscopy (Harrick Scientific Corp., Ossining, N.Y. 1979).
- 3 Surface Polaritons, eds. V.M.Agranovich and D.L.Mills, (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1982).
- 4 日本物理学会編、半導体超格子の物理と応用（培風館、東京、1984）
- 5 R.C.Miller, D.A.Kleinman, and A.C.Gossard, Phys. Rev., B29, 7085 (1984).
- 6 S.Adachi, J.Appl.Phys., 58, R1(1985).
- 7 W.S.Fu, G.R.Olbright, A.Owyong, J.F.Klem, R.M.Biefeld, and G.R.Hadley, Appl. Phys. Lett., 57, 1404(1990).
- 8 岡本 紘、超格子構造の光物性と応用（コロナ社、東京、1988）。
- 9 C.Colvard, T.A.Gant, M.V.Klein, R.Merlin, R.Fischer, H.Morkoc, and A.C.Gossard, Phys. Rev., B31, 2080(1985).
- 10 N.Raj, and D.R.Tilley, in Chap.7, The Dielectric Function of Condensed Systems, eds. L.V.Keldysh, D.A.Kirzhnits, and A.A. Maradudin (North-Holland, Amsterdam, 1989)p459.
- 11 O.J.Glembocki, B.V.Shanabrook, N.Bottka, W.T.Beard, and J.Comas, Proceedings of the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE, Bellingham, 1985) 524, 86.
- 12 D.E.Aspnes, Surf. Sci., 37, 418(1973).
- 13 E.Kretschmann, Z. Physik, 241, 313(1971).
- 14 A. Otto., Z. Physik, 216, 398(1968).

15 M.Haraguchi, M.Fukui, and S.Muto, Phys. Rev., B41, 1254(1990).

16 Y.Nagano, K.Matsugi, M.Haraguchi, and M.Fukui, J. Phys. Soc. Jpn., 58, 733(1989).

## 第 3 章

# フォトリフレクタンス法によるバッファ層内の電界強度の評価

### 3.1 序論

この章では、2つのことを行う。一つは GaAs/AlAs MQW 試料のバッファ層にかかっている電界強度について、PR スペクトルの形状より評価を試みることに、もう一つは、その過程に於いて代表的な PR スペクトルを示し、その信号がどのような遷移に由来するのかを明らかにすることである。

MQW 試料では、第 2 章で示したように、電子・軽い正孔間遷移と電子・重い正孔間遷移の 2 つは、異なった遷移エネルギーをもつ。また、MQW 層は等価的なバンド端が GaAs よりも高エネルギー側に存在するので、GaAs のバンド端に相当するフォトンエネルギーで MQW 層は透明となる。従って、GaAs バッファ層からの信号も、MQW 層を通して観測できる。故に、MQW 試料では、バンド端のフォトンエネルギー付近に、複数の遷移が存在する。PR スペクトルは、複数の遷移による信号が重なり、興味深い形状になる<sup>1-3</sup>。

以前から、MQW 試料において、バッファ層からの PR スペクトルの形状が、Aspnes の TDFF 理論で計算された形状と一致しないことが知られていた<sup>1-3</sup>。TDFF 理論は前述した通り、変調電界強度が小さい場合のものである。この不一致は、変調電界強度が TDFF 理論の適応範囲を越えたためと考えると、バッファ層からの PR スペクトルの解析を行う<sup>4</sup>。これまで、変調電界強度が大きい場合は、FKO の式が使用されていた。しかし、FKO の式を用いると、計算に時間がかかってしまう。そこで、変調電界強度が大きい場合に、計算が容易な評価式が望まれていた。ここでは、(1) TDFF の理論から出発して、TDFF の場合よりもより強い変調電界範囲で用いることのできる理論式 (M-TDFF) を導出し、(2) 導出された式によって PR 信号を評価し、変調電界強度を見積ることを行う。

なお説明の都合上、まず、MQW 試料の代表的な PR スペクトルを示し、どのような遷移に由来するのかを明らかにすることを行う。次に、バッファ層にかかっている電界強度について、PR スペクトルの形状より評価を試みる。

表 3.1 P R スペクトルから得られた遷移エネルギーとブロードニングエネルギー

| Transition mark | Transition energy (eV) | Broadening energy (meV) | Transition     |
|-----------------|------------------------|-------------------------|----------------|
| D               | 1.420                  | 15                      | GaAs substrate |
| C               | 1.440                  | 15                      | GaAs buffer    |
| B               | 1.478                  | 9                       | 1e1H           |
| A               | 1.493                  | 9                       | 1e1L           |

## 3.2 GaAs/AlAs 多重量子井戸試料の代表的フォトリフレクタンススペクトル

図 3.1 に、GaAs/AlAs MQW 試料（井戸幅 10.2nm）のバンド端付近における代表的な P R スペクトルを示す<sup>4</sup>。図中の破線は、第 2 章に示した Aspnes の TDFP の式を用いて、各パラメータを動かし、最も一致するようにスペクトルを計算（ベストフィット）した結果である。この時、遷移の数を 4 つとしている。このベストフィットの結果から、図 3.1 に示すフォトンエネルギーの範囲では、スペクトルは少なくとも 4 つの遷移によって構成されていることが分かる。ここで、4 つの遷移に対して高エネルギー側から、A、B、C、D と記号を割り当てておく。理論スペクトルを実験スペクトルに一致させることから得られた A から D の遷移エネルギーと、ブロードニングファクタを表 3.1 に示す。Aspnes の TDFP を用いた理論 P R スペクトルと実測 P R スペクトルとの比較によって得られた遷移エネルギーとブロードニングエネルギーである。表中の”Transition mark”は、図 3.1 の図中の記号と対応している。Transition は、試料内で生じている遷移との対応関係を示す。

次に、表 3.1 に示した 4 つの遷移の同定を行う必要がある。基本的には、第 2 章 2. 2 節に示した手順で計算した MQW 試料の量子準位間遷移エネルギー（表 3.2）と、ベストフィットから得られた遷移エネルギーとの比較によって、それぞれの遷移の同定を行った。表 3.2 において、励起子束縛エネルギーの値は文献<sup>7</sup>によった。量子井戸内における、伝導帯電子、価電子帯の重い正孔および軽い正孔の量子化準位で最も低いエネルギーを持つものが、それぞれ 1 e、1 H および 1 L である。補正後のエネルギー（右端）は、井戸層のバンド端幅を 1.440eV とおいて計算された量子準位間遷移エネルギーから、励起子の束縛エネルギーを引いたものである。遷移エネルギーの大きさに着目すると考慮すべき遷移について次のようにまとめられる。

1. A と B の遷移エネルギーは、それぞれ量子井戸中の 1e1L、1e1H の遷移エネルギーに近い。なお、第 2 章で述べたように、番号の異なる量子準位間（たとえば 1e2H）の遷移は、遷移確率がほとんど 0 に近いので考慮の対称から除外される。
2. 最も低エネルギー側の D の遷移エネルギーは、GaAs のバンド端遷移エネルギーとは

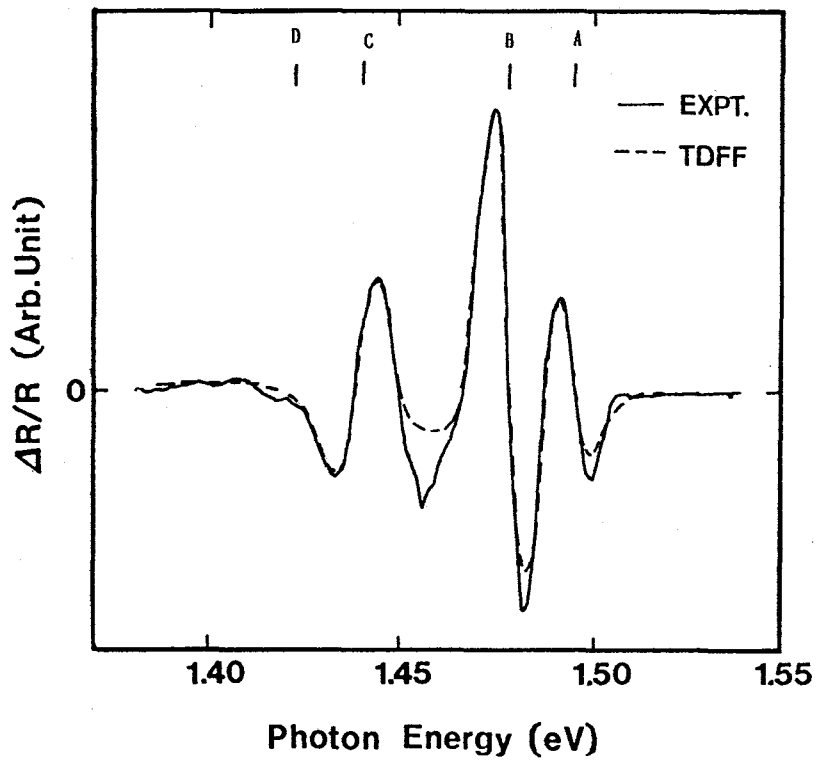


図 3.1 GaAs/AlAs MQW試料 (井戸幅 10nm) のPRスペクトル。実線は測定結果。破線はTDFによる理論計算スペクトル。図上部に示すマーク(A,B,C,D)は、ベストフィットによって得られた遷移エネルギー



表 3.2 MQW内の量子準位間遷移エネルギーの計算値と励起子束縛エネルギー

| Transition     | Transition energy (eV) | exciton binding energy <sup>7</sup> (meV) | corrected transition energy (eV) |
|----------------|------------------------|---|----------------------------------|
| GaAs Band edge | 1.424                  | -   | 1.440                            |
| 1e1H           | 1.474                  | 9   | 1.481                            |
| 1e1L           | 1.493                  | 10  | 1.499                            |

ば同じである。

3. Cの遷移エネルギーについては、近いものは存在しない。

以上の特徴から、同定を行った。

AとBの遷移エネルギーは、1e1L・1e1Hの量子化準位間遷移エネルギーの計算結果に比べ、それぞれ3meVと4meV高エネルギー側にあるが、近い値となっている。かつ、AとBの遷移エネルギーの差(15meV)も、1e1Hと1e1Lの遷移エネルギーの計算結果の差(19meV)とは、4meV異なるのみである。AとBの同定について、それらの信号強度比も参考になる。というのは、1e1L、1e1Hの遷移に由来する信号強度の比は、その遷移確率の計算から約1:3であると予測されている<sup>1</sup>からである。AとBの信号強度比は1:2.5であり、この値に近い。従って、遷移エネルギーと信号強度比から考えて、AとBはそれぞれ1e1L、1e1Hに対応すると結論される。Dについては、試料はGaAs基板上に作られたGaAs/AlAs MQWであることを考慮すれば、遷移エネルギーの値から、基板かバッファ層のGaAsバンド端遷移に由来すると考えられる。Cの遷移エネルギーは、GaAsのバンド端のエネルギーとは16meVの差があり、その相違が大きすぎる。また、量子準位の遷移エネルギーとしては余りに差が小さすぎる。他の研究者によるGaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As MQWについてのPR測定結果の報告<sup>5</sup>を見ると、Cと同様に、GaAsバンド端でもなく、量子準位でもない遷移による信号が観測されている。それらの報告では、この遷移は、AlをドーピングするつもりでなかったGaAs部分に、Alが取り込まれてしまったAl<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Asのバンド端遷移であるとしている。本研究でもこの解釈に立ち、Cについてはもう少し詳細に検討する。

CをAl<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Asのバンド端遷移に由来する信号であると考え、遷移エネルギーの値から、Alの混晶比が0.013となる<sup>6</sup>。このようなGaAsのAlAsとの混晶化は、MBE成長時において、真空室内にわずかに残留しているAlが、GaAs成長と共に取り込まれることによって生ずると考えられる。故に、このAl<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Asが試料に存在するところは、GaAs基板以外のGaAs井戸層・GaAsバッファ層が考えられる。しかしながら、GaAs井戸内では、電子(あるいは正孔)は量子化され、伝導帯の底(あるいは価電子帯の頂上)に存在できない。つまり、伝導帯の底(あるいは価電子帯の頂上)の状態密度は零となる。したがって、価電子帯の頂上と伝導帯の底との間の遷移、いわゆるバンド端遷移は生じず、量

量子準位間の遷移が起こる。量子準位間の遷移エネルギーは、バンド端遷移エネルギーより大きな値であるので、Cに相当する信号は観測されないことになる。一方、バッファ層中では量子準位が形成されていないので、遷移はバンド端遷移である。したがって、バッファ層になんらかの原因でAlがドーブされ、 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  になったためバンド端エネルギーが大きくなったと考えた方が自然である。故に、信号Cは、バッファ層におけるAlGaAsのバンド端遷移による信号であると同定した。

また、 $1e1H \cdot 1e1L$  の遷移エネルギーが計算値より約数 meV 大きいことも、Alの意図しないドーブによって、井戸層を形成しているGaAsのバンド端エネルギーが大きくなってしまっているためであると解釈できる。バッファ層と同じ混晶比でAlが入っていると仮定すると、計算値とのずれは約10meVとなる。バッファ層と同じ混晶比としたのは、GaAs井戸層は、GaAsバッファ層と同一条件で作られているので、混晶比が変わる積極的な理由が存在しないためである。このずれ(約10meV)は、他の報告にあるように、量子井戸内の電子と正孔によってできる励起子の束縛エネルギーの影響であると結論付けられる<sup>15</sup>。文献によれば、井戸幅10.2nmの量子井戸における1e1Hと1e1Lの励起子の束縛エネルギーは、それぞれ約8meVと約10meV<sup>7</sup>であり、約10meVのずれとほぼ一致する。したがって、PRスペクトルで観測される1e1Lと1e1Hの遷移は、実際には、それぞれの励起子状態からの遷移であると結論付けられる。なお、これらの効果を取り入れた遷移エネルギーの計算値は、表3.2の右端に示す。

以上で、図3.1に示したPRスペクトルは、

1. Aは量子井戸内の量子準位間遷移1e1L、
2. Bは量子井戸内の量子準位間遷移1e1H、
3. Cはバッファ層のバンド端遷移、
4. Dは基板でのバンド端遷移、

の4つの遷移に由来する信号であることが示された。しかしながら、1.46eV付近で、計算されたスペクトルと実験で得られたスペクトルは、必ずしもよく一致していない。これについて、次節で考察を行う。

### 3.3 GaAs バッファ層に由来するフォトリフレクタンススペクトル

図 3.1では、フィッティングの結果が、1.46eV 付近で必ずしも実験結果と一致していない。遷移が5つあると仮定すると、うまく合わせることができるが、その場合、Alの濃度が異なる AlGaAs 部分が2箇所存在する必要がある。この時、バッファ層から基板にかけて、濃度が異なる箇所が存在すると仮定することになるが、Alが異なった濃度でバッファ層・基板部分に混入する理由が存在しない。バッファ層は連続的に成長させるので、濃度に変化する場合は連続的な変化となるはずである。この時、バッファ層内で、バンド端エネルギーが連続的な変化をするので、PR信号はブロードな信号になると予想される。しかし、図 3.1の実験結果は、単一のバンド端遷移であることを示す鋭い信号となっている。以上のことより、図 3.1に示すPR信号は、4つの遷移による信号が重なっているものと推定できる。

4つの遷移を仮定した場合は、信号C（つまりバッファ層からの信号）が、低電界変調によるものではないとするとうまく一致させることができる。信号Cの様なPR信号は、変調電界強度かBF（Built-in Field）電界強度が大きい場合に生ずる<sup>1-3,8</sup>。電界強度が大きいという前提のもとで、理論計算スペクトルと実測スペクトルを一致させる試みは、3.5節において再び行う。ここでは、バッファ層に、大きな電界強度がかかっているとした場合、どのような原因が考えられるかを検討する。原因としては、次の4つが考えられる。

1. バッファ層のドナー（またはアクセプタ）濃度が大きい。
2. MQW層とバッファ層がPN接合を形成している。
3. バッファ層と基板との界面でフェルミレベルのピンニングが生じている
4. MQW層とバッファ層の界面でフェルミレベルのピンニングが生じている。

このような原因は、（A）基板が半絶縁性の GaAs であること、（B）表面 GaAs 層のフェルミレベルは価電子帯の底から0.8eVのところにある<sup>9</sup>こと、を考慮すると考えられ得ることである。

以下、1～4について考える。

1について：このとき、半導体表面の表面空乏層における電界強度が大きくなる。しかしながら、本研究で用いた試料では、バッファ層はドーピングされていないので、不純物濃度は大きくないと考えられる。従って、（1）の考えは却下する。

2について：MBE法では、不純物を添加しなくとも残留不純物によって、キャリア密度  $10^{15}/\text{cm}^3$  程度以下のp形かn形半導体となることが知られている<sup>10</sup>。一方、基板にとし て用いた液体封止引き上げ法によって作製された GaAs には、炭素が不純物として混入していることが知られている<sup>11</sup>。炭素は、MBE法による結晶成長時に熱が加わることで、バッファ層へ拡散によってドーピングされるようになる。この結果バッファ層がp形となる。GaAs/AlAs MQW部分が全体としてn形半導体となったとすると、MQW層がn形

で、バッファ層が p 形の p n 接合が形成される。p n 接合の接合面は、強い電界がかかっている。

3 について：2 で説明した炭素の拡散によって、バッファ・基板界面に炭素 C 濃度が異常に高い部分が生じ、ここでフェルミレベルのピンニング（固定化）が起こる。この結果、価電子帯から計ったフェルミレベル位置が、表面とバッファ・基板界面とで大きく異なり、強い電界がかかる。

4 について：「MQW層とバッファ層界面で、フェルミレベルのピンニングが生じている」と仮定するという事は、「バッファ層の GaAs・MQW層最後の AlAs 障壁層の界面でフェルミレベルのピンニングが生じている」と仮定するのに等しい。この試料では、不純物が少ないので、界面でピンニングを生ずるためには、高濃度の界面準位が必要なためである。このことは、GaAs・AlAs 界面は、格子定数が近いので良質なヘテロ界面が得られていることに矛盾する。したがって、(4) の考えも却下する。

すなわち、可能性として残ったのは、2 と 3 である。2 と 3 は、単独で起こるだけではなく、同時に起こっている可能性もあり、一概にどちらが原因であるかは現段階では不明である。

前節では、信号 C を、バッファ層におけるバンド端遷移に由来する信号と結論した。そして、遷移エネルギーが、GaAs のバンド端エネルギーより大きいのは、「MBE法によるバッファ層成長時に、Al 元素の意図しない混入によって AlGaAs が形成されている」からであるとした。これについてもう少し考える。MBE法では、GaAs 層と AlAs 層の選択的な成長は、分子線源前のシャッターの開閉によって行う。従って、GaAs 層成長時でも Al 分子線源の温度は、Al 原子が分子線源から真空室内へ飛び出すことができるほどの温度となっている。この時、分子線源からの輻射熱によって、シャッター付近が加熱され、シャッター付近に付着していた Al 原子が再び真空室内へと飛び出すことが予想される。このことによって、Al の分子線源のシャッターがしまっているにもかかわらず、GaAs 部分への Al の混入が生ずると考えられる。

MQW中の GaAs 井戸層への Al 混入については以下のように考えられる。GaAs 層成長時には、AlAs 障壁層成長中に真空室内へ飛び出してきた Al 原子の一部が、真空室内にとどまってしまう。このとき、成長の際に Al 原子が取り込まれ、ここでも AlGaAs 混晶化が生じてしまう。従って、GaAs 井戸層も実際には純粋な GaAs から形成されているわけではなく、AlGaAs から形成されている。

### 3.4 低電場変調理論の拡張

信号 C の様な P R 信号は、変調電界強度か B F 電界強度が大きい場合に生ずる<sup>1-3,8</sup>。この時は、Aspnes の TDFF で対象としている低電界変調電界強度のケースではないので、F K O の式によって信号を評価する。F K O の式で実際に評価するには、積分計算を必要とし計算時間がかかるという問題点がある。M Q W (S L) では、図 3.1 のように複数の遷移による信号の重ねあわせとなる。複数の遷移に対して、コンピュータで理論スペクトルと実測スペクトルを一致させる場合、積分を用いた式を採用すると大幅に計算時間が増大する。評価式を簡略化できれば、計算時間は短縮され小型コンピュータでも解析が可能となる。ここではこの簡略化について述べる。

P R は、電界変調によって、誘電率に変化を与え、それを反射率変化割合として検出する手法である。そこで、電界強度に依存した誘電率の表式から出発して、第 2 章の式 2.5 に相当する、誘電率の変化分を表す式を導出すればよい。まず、直流電界 F が存在する時の、一電子近似によって得られる結晶の誘電率  $\epsilon$  についての表式は、次のように与えられる<sup>8,12</sup>。

$$\epsilon(E, \Gamma, F) = 1 + iQ \int_{B.Z.} d^3k \int_0^\infty ds \exp(-\Gamma s + iEs) \exp\left\{-i \int_{-s/2}^{s/2} ds E_{cv}(k - eFs)\right\} \quad (3.1)$$

ただし、E は、光子エネルギー、F は、電界強度、 $\Gamma$ 、Q、 $E_{cv}$  は、それぞれ、ブロードニングファクタ、遷移確率行列要素を含む定数、価電子帯と伝導帯間の遷移エネルギーであり、k は、電子と正孔のペアが持つ波数である。ここで、電界強度はバンド構造に変化を与えない範囲の強度としている。バンド構造に変化がなくても誘電率が変化する理由は、禁制帯の中に、電子や正孔の波動関数がしみ出して、実質的なバンド端幅が減少するためである。

ここで、誘電率変化を  $\Delta\epsilon(F, \Gamma, E) = \epsilon(F, \Gamma, E) - \epsilon(0, \Gamma, E)$  とおけば、電界による誘電率の変化  $\Delta\epsilon$  は、

$$\Delta\epsilon = iQ \int_{B.Z.} d^3k \int_0^\infty ds \exp(-\Gamma s) \exp[is(E - E_{cv})] \{\exp[-i(s\hbar\Omega)^3/3] - 1\} \quad (3.2)$$

ただし、

$$(\hbar\Omega)^3 = (eF\hbar)^2/8\mu \quad (3.3)$$

$$1/\mu = 1/m_e + 1/m_h \quad (3.4)$$

となる。ここで、 $E_g$  はバンド端遷移エネルギー、 $\hbar$  はプランク定数、 $e$  は電子の電荷量、 $m_e$  は電子有効質量、 $m_h$  は正孔有効質量である。

式 3.2 の積分を行う前に、 $\exp\{-i(s\hbar\Omega)^3/3\}$  の項を、 $(\hbar\Omega)^3$  が十分小さいとして、

$$\exp\{-i(s\hbar\Omega)^3/3\} = 1 - i(s\hbar\Omega)^3/3 \quad (3.5)$$

と近似する。式 3.5 を用いて積分を実行すると、第 2 章で示した Aspnes の TDFF の式 (式 2.5) が得られる。この近似は、 $|\hbar\Omega| < \Gamma/3$  の範囲で成立する。ところが、電界強度が

大きくなると、この近似が成立しなくなる。そこで、式 3.5 の近似を、第 2 項までで打ち切らずに、第 4 項までで近似すると、

$$\exp\{-i(s\hbar\Omega)^3/3\} = 1 - i(s\hbar\Omega)^3/3 - (s\hbar\Omega)^6/(2!32) + i(s\hbar\Omega)^9/(3!33) \quad (3.6)$$

となる。

式 3.6 を採用すると、バルクの  $\Gamma$  点 ( $k = 0$ ) での遷移を想定した場合、 $\Delta\epsilon$  の表式は最終的に、

$$\begin{aligned} \Delta\epsilon = & AF^2 \exp i\theta(E - E_g + i\Gamma)^{-2.5} \\ & + AB_1 F^4 \exp i\theta(E - E_g + i\Gamma)^{-5.5} \\ & + AB_2 F^6 \exp i\theta(E - E_g + i\Gamma)^{-8.5} \end{aligned} \quad (3.7)$$

と表現される。ここで、 $B_1, B_2$  は、 $\mu$  に関係した定数である。なお、導出は付録 B に示す。

式 3.7 の第 1 項目は、Aspnes の TDFF とまったく同じである。第 2 項・第 3 項は、それぞれ電界強度の 4 乗および 6 乗に比例する。すなわち、電界強度が大きくなると第 2 項および第 3 項が急激に大きくなっていく。そのため、電界強度が小さいときは第 1 項が支配的であるが、電界強度が大きくなるにつれ、第 2 項が支配的となり、さらに第 3 項が支配的となっていく。式 3.7 によって理論値と実験値のベストフィットを行えば、電界強度の評価ができる。この式 3.7 は、Aspnes の TDFF の式と同様な道筋で導出を行っており、Aspnes の TDFF 式そのものが項の 1 つとして存在している。そこで、以下、式 3.7 を M-TDFF (Modified-TDFF) と呼ぶ<sup>4</sup>。

### 3.5 バッファ層内の内蔵電界強度の評価

前節で導出した式 3.7を用いて、図 3.1の信号 Cを再び評価した。遷移の数としては 3.2 節に示したように、4つの遷移を仮定した。ここで、信号 Cに対する理論式として M-TDFF (式 3.7)を用い、他の信号 (A、B、D)に対しては通常の TDFFを用いる。ベストフィットによって得られた理論曲線を図 3.2(実線)に示す<sup>4</sup>。

新しく計算された理論曲線は、TDFFのみを用いた場合(図 3.2の破線)にくらべ、よく一致していることが分かる。M-TDFFを用いて得られた信号 Cの遷移エネルギーは、TDFFの場合と誤差の範囲で一致している。したがって、図 3.2にしめす実験結果の PR スペクトル(点線)と計算結果スペクトル(実線)の比較から、スペクトルは4つの遷移を由来としている、信号 Cの源であるバッファ層には、TDFFの適応範囲を越えた変調電界強度がかかっている、と考える良いと結論できる。また、式 3.7中の3つの項の強度比較をすると、第3項目が支配的である。3.3節に述べたように、3つの項の強度比較によって、変調電界強度を求めることができる。その結果、信号 Cの源であるバッファ層に、約 35kV/cmの電界が存在していることが分かった。信号 Cは、バッファ層と MQW層の界面で反射された光の反射率変化割合信号であるので、バッファ層と MQW層の界面には、35kV/cmもの電界がかかっているということになる。

この強い電界の由来として、3.3節において、(i) n形 MQW層と p形 バッファ層による PN接合の接合部分の電界、(ii) バッファと基板の界面のフェルミレベルのピンニング、を可能性のあるものとして挙げた。具体的な電界強度が得られたので、簡単なモデルを用いて、このどちらが原因となっているのか予想することができる。ただし、(i) 表面の GaAs層のフェルミレベルは、価電子帯の頂上から 0.6eVのところにあること、(ii) 半絶縁性基板を用いているので、基板の十分深い部分では、真性半導体であること、の2つの条件を用いた。

はじめに p n接合のモデルを考える。故意にドーピングしていない、GaAs/AlAs MQW層のドナー濃度は、 $10^{15}/\text{cm}^3$ のオーダー以下である<sup>10</sup>ので、ここでのドナー濃度を  $10^{15}/\text{cm}^3$ とする。つぎに、バッファ層のアクセプタ濃度を  $10^{14}/\text{cm}^3$ と仮定すると<sup>13</sup>、MQW層とバッファ層の界面には、約 25 kV/cmの電界がかかっていることが計算できる。一方、フェルミレベルのピンニングのみを考えると、約 8 kV/cm以下の電界強度となる。従って、強い電界強度の由来としては、主として、MQW層とバッファ層の間で p n接合が形成されているためであると結論付けられる。これらの2つが同時に生じているとすれば、電界強度の計算値は実測値に近づく。

本研究で用いた試料は、GaAs/AlAs MQW試料としては、ごく一般的な製法で作製された試料である。バッファ層中で、強い電界をもたらした p n接合形成の直接的な原因は、ごくわずかな不純物の混入である。したがって、MQW試料において、バッファ層中の電界を小さくするためには、不純物の混入源を探し出し、極力不純物を少なくする必要がある。

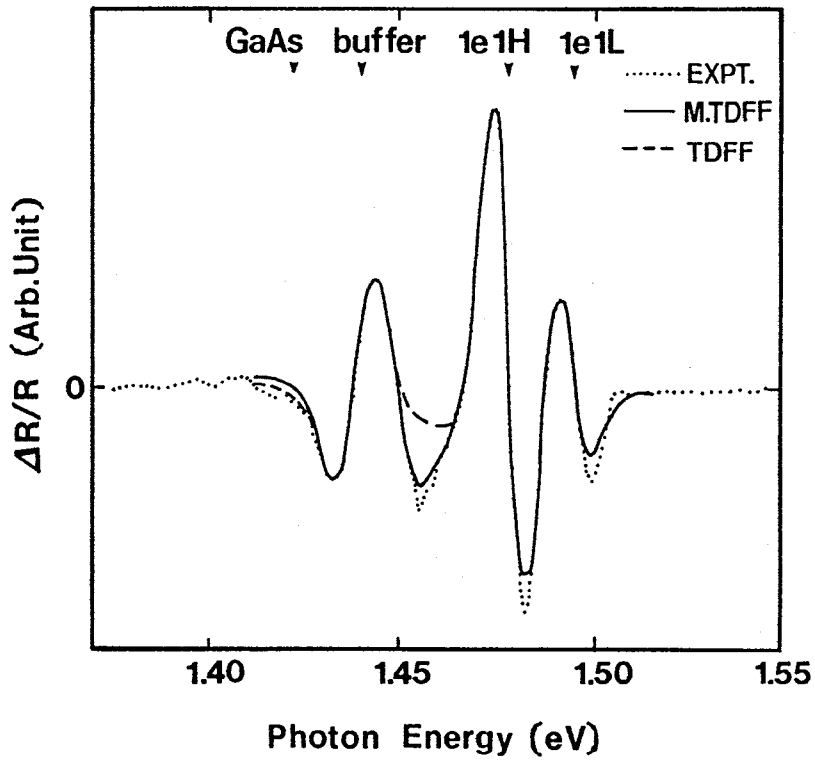


図 3.2 GaAs/AlAs MQW 試料 (井戸幅 10.2nm) 試料の PR スペクトルと M-TDFF による理論スペクトル。点線は実測スペクトル。破線と実線はそれぞれ TDFF と M-TDFF による理論スペクトル。図上部の矢印は、各遷移の遷移エネルギーを示したものの。



### 3.6 まとめ

この章では、GaAs/AlAs MQW試料（GaAs 井戸層 10.2nm、AlAs 井戸層 10.2nm）の代表的なPRスペクトルを示し、その信号は、量子井戸内の量子準位間の遷移と、GaAs バッファ層および GaAs 基板でのバンド間遷移に由来することを明らかにした。量子準位間の遷移は、電子・軽い正孔間遷移と電子・重い正孔間遷移の2つで、異なった遷移エネルギーをもつ。GaAs バッファ層でのバンド端遷移エネルギーは、バルクの GaAs の値よりも 16meV 大きかった。この高エネルギー側への遷移エネルギーのシフトは、バッファ層成長時に Al が取り込まれることで、バッファ層のバンド端幅が大きくなったことで生じていると推定した。

また、バッファ層からのPRスペクトルの形状は、TDFE で計算される形状と異なる。この不一致は、変調電界強度が TDFE 理論の適応範囲を越えたためと考えた。そこで、変調電界が大きい場合に、TDFE に変わって評価に用いる式として M-TDFE を導出した。M-TDFE を導出した理由は、変調電界が大きい場合に用いる FKO の式によって理論値を計算するには余りに時間がかかってしまうためである。M-TDFE によってバッファ層からのPR信号を評価し、変調電界強度を見積ったところ、バッファ層に約 35kV/vm の電界が存在していることが分かった。この電界は、MQW層を n 形、バッファ層を p 形とした一種の p n 接合が試料内に形成されていると考えると説明可能であることが判明した。

## 参考文献

- 1 O.J.Glembocki, B.V.Shanabrook, N.Bottka, W.T.Beard, and J.Comas, Proceedings of the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE, Bellingham, 1985) 524, 86.
- 2 U.K.Reddy, G.Ji, T.Henderson, H.Morkoc, and J.N.Schulman, J. Appl. Phys., 62, 145 (1987).
- 3 R.L.Tobe, Arthur L. Smirl, Thomas F. Boggess and J.N.Schulman, J. Appl. Phys., 64, 4678 (1988).
- 4 M.Haraguchi, Y.Nakagawa, M.Fukui, and S.Muto, Jpn. J. Appl. Phys., 30, 1367 (1991).
- 5 H.Shen, P.Parayanthal, Fred H.Pollak, Micha Tomkiewicz, T.J.Drummond, and J.N.Schulman, Appl. Phys. Lett., 48, 653 (1986).
- 6 S. Adachi, J. Appl. Phys., 58, R1 (1985).
- 7 U.Ekenberg, and M.Altarelli, Phys. Rev., B35, 7586 (1987).
- 8 D.E.Aspnes, Handbook on Semiconductors vol.2, ed. T.S.Moss, volume ed. M. Balkanski, (North-Holland, Amsterdam, 1980) p111.
- 9 C.Van Hoof, K.Deneffe, J.De Boeck, D.J.Arent, and G.Borghs, Appl. Phys. Lett., 54, 608 (1989).
- 10 小長井 誠、半導体超格子入門 第4章(培風館、1987) p81.
- 11 R.A.Morrow, J. Appl. Phys., 63, 5863 (1988).
- 12 D.E.Aspnes, Surface Sci., 37, 418 (1973).
- 13 T.M.Kerr, C.E.C.Wood, S.M.Newstead, and J.D.Wilcox, J. Appl. Phys., 65, 2673 (1989).

## 第 4 章

# フォトリフレクタンス法による試料の均一性の評価

### 4.1 序論

MBE法によって作られるMQW(SL)試料は、MQWの原料となる分子材料の分子線強度が位置依存性を持つために、試料表面上で井戸幅や障壁幅が場所により異なる<sup>1-3</sup>。この結果、試料表面上の位置によって、量子井戸内の量子化エネルギーが異なり、量子準位間の遷移エネルギーに不均一性が現れる。この現象は、PR法や遷移による発光現象を観測するフォトルミネッセンス法で観測されている。フォトルミネッセンス法では発光ピークのフォトンエネルギーのシフトが、PR法ではスペクトルの位置のシフトと形状変化が観測されている<sup>1,3</sup>。これまでの研究では、このスペクトル構造の位置のシフトについて着目していたが、PRスペクトル形状変化については十分な考察が与えられていなかった。そこで本章では、このPRスペクトルの形状の変化を定量評価することから、試料の物性評価をし、それから試料の均一性の評価を行うことを目的とする<sup>2</sup>。試料は、井戸幅 10.2nm の GaAs/AlAs MQW (試料A) を用いた。

始めに、量子井戸内での量子準位間遷移によるPR信号の場所による変化に着目する。そして、この変化を量子井戸幅の変化によるものであることを明らかにし、量子井戸幅の定量的な評価を行う。つぎに、バッファ層でのバンド間遷移によるPR信号の場所による変化に着目し、その変化がMQW層の厚さの変化に由来することを明らかにする。そのうえで、MQW層の厚さの変化を定量的に評価する。

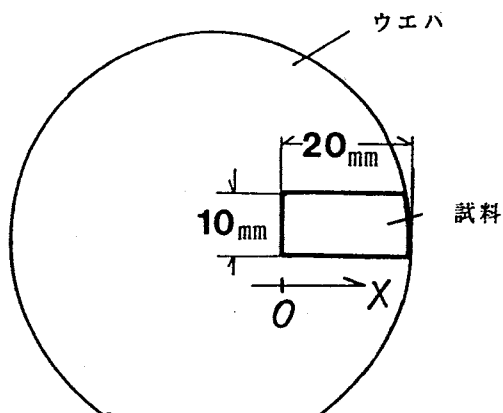


図 4.1 試料形状と座標軸（x 軸）のとりかた

## 4.2 量子準位間遷移によるフォトリフレクタンススペクトルの場所依存性

ここで評価対象とした試料は、井戸幅と障壁層幅共に 10.2nm の MQW 試料である、試料 A とした。表面での PR スペクトルの場所依存性を考えるので、まず、場所の表現を定義する。MQW はもともと、GaAs の 2 インチウエハ基板上に作成されている。本研究で用いた試料は、基板上に作製されたものを基板ごと 10 mm × 20 mm の大きさに切り出したものである。そこで、試料表面上のウエハの中心から端方向に x の正方向をとる。このとき、ウエハ中央に近い側の試料の端を x の原点とする（図 4.1）。MBE 装置によるエピタキシャル薄膜の作製を行う場合、原料となる分子の分子線強度が場所に依存するため、薄膜の厚さに場所依存性が現れる。この結果、PR スペクトルに構造のエネルギーシフトや形状変化といった場所依存性が現れると予想される。

試料 A における、PR スペクトルの試料表面上の場所依存性の測定結果を、図 4.2 に示す<sup>2</sup>。矢印で示したのは、Aspnes の式 (TDFE) と M-TDFE を用いて得られた、遷移エネルギーである。つまり、バッファ層からの信号に対しては M-TDFE を、他の信号に対しては Aspnes の TDFE を評価式として用いた。第 3 章に述べたように、この PR スペクトルは高エネルギー側から、量子準位間遷移の  $1e1L$  遷移と  $1e1H$  遷移、バッファ層のバンド間遷移、基板でのバンド間遷移の 4 つの異なる遷移エネルギーを持つ信号から構成されている。

始めに予想された様に、スペクトル形状に位置依存性が現れている。観測された位置依存性の明かな特徴としては、

1. x が大きくなる（基板中心から外周に近づく）につれ、量子準位間遷移（ $1e1H$ 、 $1e1L$ ）のエネルギー位置は高エネルギー側へシフトする、

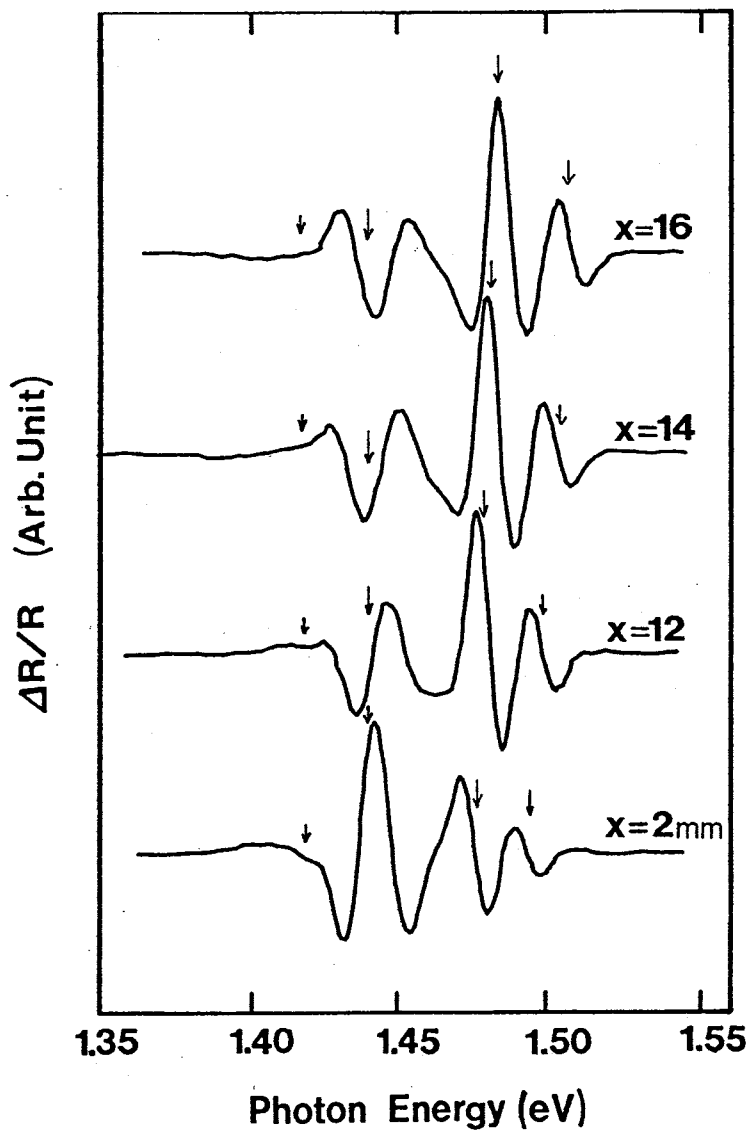


図 4.2 GaAs/AlAs MQW試料におけるPRスペクトル。矢印は理論曲線との比較によって得られた遷移エネルギーを示す。

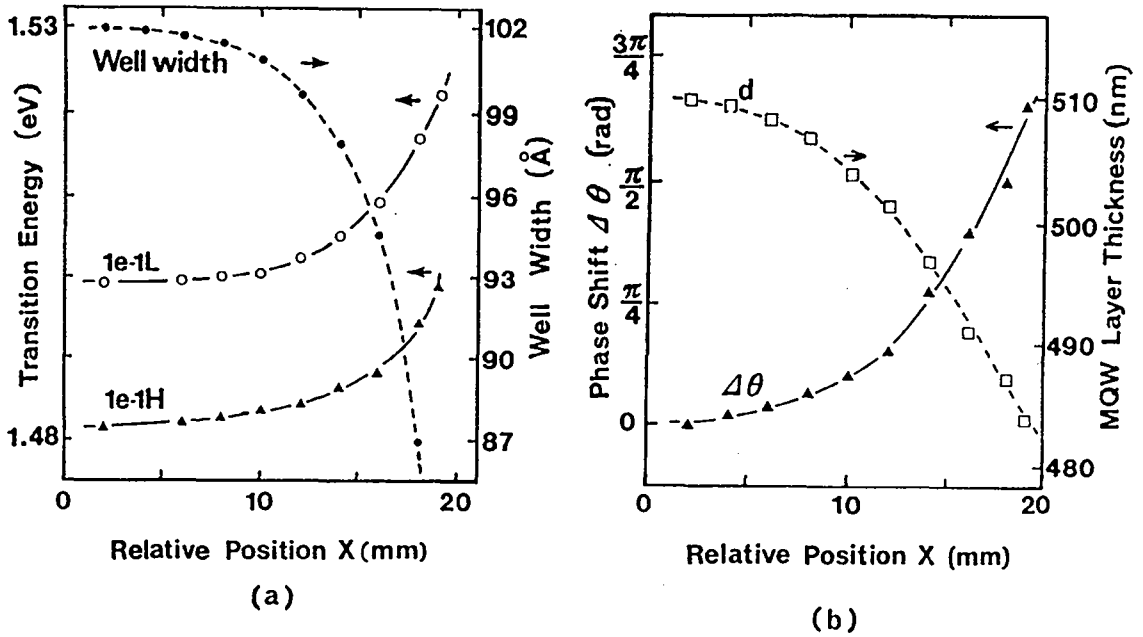


図 4.3 1e1Hと1e1Lの遷移エネルギーと位相角の位置依存性

2. その時、その形状はごくわずかに変化する、
3. バッファ層バンド間遷移のエネルギー位置は変化がない、
4. しかし、その形状は大きく変化する、

という4点が挙げられる。この節では、量子準位間遷移に由来する信号の解析について取り上げる。バッファ層のバンド間遷移に由来する信号変化の解釈については、次節で取り上げる。

Aspnes の理論式 ( TDFE ) を用いてスペクトルのベストフィットを行って得られた、1e1H・1e1L に対する遷移エネルギー  $E_g$  と信号の位相角  $\theta$  の試料表面の位置依存性を、それぞれ図 4.3 a、4.3 b に示す<sup>2</sup>。位相角は  $x = 1\text{mm}$  での PR スペクトルに対するフィッティングによって得られた位相角  $\theta_{x=1}$  を基準とし、ある  $x$  での位相角の基準からの差  $\Delta\theta$  を示している。なお、信号振幅については、各測定点における励起光強度を一定にできなかったため、図に示していない。信号振幅は、励起光強度の関数である<sup>4</sup>ので、励起光強度が一定でない場合、信号強度依存性のデータの信頼性が薄いためである。

図 4.3 a より、測定データ上で、 $x = 2\text{mm}$  と  $x = 19\text{mm}$  での 1e1H と 1e1L の遷移エネルギーの差  $\delta E_H$  と  $\delta E_L$  は、それぞれ、約 15meV と約 23meV である。まず、この原因について考察する。量子準位間遷移エネルギーは、量子井戸幅・井戸層のバンドギャップ・ポテンシャル井戸の深さ等によって異なる。そこで、井戸層のバンドギャップのみが変化し井戸幅は変化しないと仮定すると、 $\delta E_H$  と  $\delta E_L$  はほとんど同じ値となるので、図 4.3 a の結果を

説明できない。ポテンシャル井戸の深さの変化によって説明するためには、エネルギーの変化が大きすぎるためである。たとえば、電子に対して幅 10.2nm 無限深さの量子井戸と深さ 600meV の量子井戸を考えても、1e1H の遷移エネルギーは 5meV 程度しか変化しない。一方、遷移エネルギーの変化を、量子井戸の幅の変化であるとする、うまく説明される。井戸の幅が、10.2nm から 8.5nm まで変化すると、1e1H と 1e1L の遷移エネルギーは、それぞれ 15meV と 23meV だけ変化する。従って、 $x$  の増加と共に量子準位間遷移エネルギーが、高エネルギー側へシフトするという事は、 $x$  が増加するにつれ量子井戸幅は狭くなっていることに対応すると結論できる。この様子を示したものが図 4.3 a の破線である。

このような、量子井戸幅の試料表面上での不均一性は、M B E 装置内での成長時に於ける分子線強度の不均一性に由来する。分子線強度は分子線セルの軸に対する角度の関数で与えられることが知られており<sup>3</sup>、強度は試料表面上では、必ずしも均一でない。したがって、試料表面上の場所によって結晶の成長速度が異なり、結晶薄膜の膜厚に分布が生ずる。本試料においても、この現象によって井戸幅に試料表面上の場所依存性が存在し、その結果、量子準位間の遷移エネルギーに場所依存性が生じたと説明できる。

遷移エネルギーの変化については、井戸幅の変化が原因であることが分かった。次に、位相の変化についてはどうであろうか。MQW 試料では、各量子井戸の界面で参照光が反射するため、参照光には干渉現象が生じている<sup>5</sup>。この現象が PR スペクトル形状に影響を与えている可能性がある。従って、PR スペクトル形状について、各界面の参照光の反射と干渉による効果を考慮しなければならない。干渉によって引き起こされる PR スペクトル形状の変化は、Aspnes の TDFP でベストフィットを行った場合の信号振幅と位相角に現れると考えられる<sup>2,6</sup>。

定量的な評価を行うには、モデルをたてて数値計算を行う必要がある。AlAs 層のバンド端エネルギーは、2.16eV であるので、ここで考えている入射光の光子エネルギー (1.5eV) 付近では、不純物などなければ、光吸収と励起光による誘電率変化は無視される。従って、MQW 層において、誘電率変化を生じているのは、GaAs 層のみである。ここで、GaAs 層での励起光による誘電率変化は、Aspnes の TDFP の式で表現されるとする。一方、各 GaAs 層は、試料表面からの深さによらず、同一条件で作製されている。したがって、各 GaAs 層の厚さは、GaAs 層が表面からどのような深さに存在しようとも一定であると考えられる。また、AlAs 層についても同様である。そこで、GaAs 層と AlAs 層の各層の厚さを、試料表面からの深さによらず、試料表面上の場所にのみ依存する関数、それぞれ  $d_A$ 、 $d_B$  とする。

MQW 試料の PR スペクトルを計算するために、多層膜構造における光の反射・透過問題を解くのに便利な、光学的特性行列を用いる<sup>2</sup>。まず一組の GaAs 層と AlAs 層を、MQW の単位層と考える。ただし、GaAs 層と AlAs 層の屈折率を、それぞれ  $n_A$  と  $n_B$  とする。ある単位層に対する光学的特性行列  $M_I$  は、入射光が試料に対して垂直に入射される場合、

$$M_I = \begin{bmatrix} \cos g_A \cos g_B - \sin g_A \sin g_B & i \left( \frac{\cos g_A}{n_A} \sin g_B + \frac{\cos g_B}{n_B} \sin g_A \right) \\ i(n_A \sin g_A \cos g_B + n_B \cos g_A \sin g_B) & \cos g_A \cos g_B - \sin g_A \sin g_B \end{bmatrix} \quad (4.1)$$

とあらわされる。ただし、 $g_A = 2n_A d_A / \lambda$ 、 $g_B = 2n_B d_B / \lambda$  ( $\lambda$  は入射光の真空中での波長)

である。

M Q W層の周期数がNの場合、単位層の数がNであるので、M Q W層の光学的特性行列Mは、各単位層の特性行列の積で表される。

$$\begin{aligned} M &= M_1 M_2 M_3 \cdots M_N \\ &= \begin{bmatrix} m_{11} & im_{12} \\ im_{21} & m_{22} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (4.2)$$

式 4.2で表される特性行列を持つM Q W層が屈折率 $n_s$ の基板上にある時、M Q W試料に対する反射率Rは、

$$R = \left| \frac{(m_{11} + im_{12}n_s) - (im_{21} + m_{22}n_s)}{(m_{11} + im_{12}n_s) + (im_{21} + m_{22}n_s)} \right|^2 \quad (4.3)$$

となる。

ここで考えているフォトンエネルギーの範囲では、M Q W層内において、励起光によって誘電率（屈折率）変化が生ずる部分はGaAs井戸層である。従って、GaAs層に於ける屈折率変化を $\Delta n_A$ とすると、P R信号は、

$$\Delta R/R = \{R(n_A + \Delta n_A) - R(n_A)\}/R(n_A) \quad (4.4)$$

と表現される。一般に、誘電率 $\epsilon$ と複素屈折率 $n$ の関係は、 $\epsilon = n^2$ であるので、GaAs層の屈折率変化 $\Delta n_A$ は、 $\Delta n_A \ll n_A$ とすると、

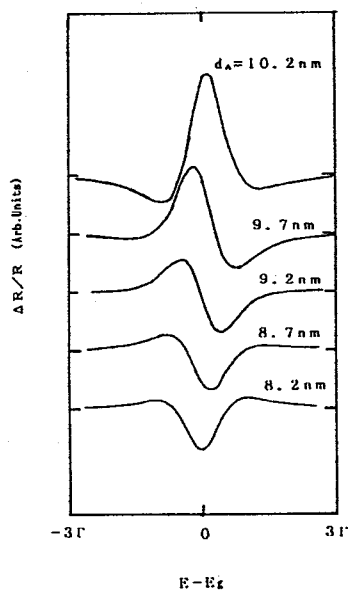
$$\Delta n_A = \Delta \epsilon_A / 2n_A \quad (4.5)$$

と近似される。

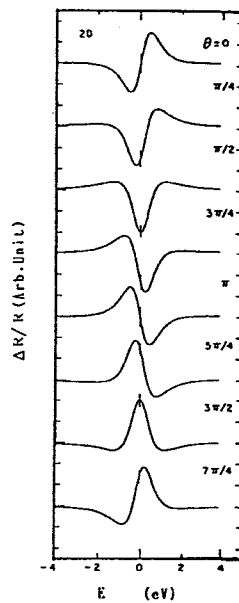
GaAs層の誘電率変化 $\Delta \epsilon_A$ はAspnesのTDFPで表現されるので、式 4.1～式 4.5を用いて、P Rスペクトルを計算できる。計算にあたっては、 $n_A$ と $n_B$ の値が必要である。あるフォトンエネルギーにおけるGaAs層の屈折率 $n_A$ は、電子と正孔の状態がバルクと異なるので、バルクの値とは異なる。また、 $n_A$ はGaAs層の幅にも依存する。しかし、GaAsの屈折率との違いは小さくGaAs層幅の変化に対しても強い依存性は無いので<sup>7</sup>、 $n_A$ はGaAsの屈折率と同じでかつ井戸幅に依存しないものとみなす。一方、AlAs層の屈折率 $n_B$ については、M Q W構造としたことによる変化はないので、AlAs膜の値を用いることができる<sup>8</sup>。M Q W試料の量子準位間遷移エネルギーに対する解析結果から、井戸幅が変化していることが分かっているので、まず、遷移の数を1とし、井戸幅を変えてP Rスペクトル形状変化を確かめる計算を行った。井戸幅は、10.2nmから、8.2nmまで変化させた。障壁層の幅は10.2nm、量子井戸の周期数は25周期とした。また、 $n_A = 3.65$ 、 $n_B = 2.98$ とおいた。

計算されたP Rスペクトルを、図 4.4 aに示す。横軸は、遷移エネルギーで正規化されたフォトンエネルギーである。図 4.4 bには、式 4.1～式 4.5を用いずに、式 2.4と式 2.5のみを用いて位相角 $\theta$ だけを変化させたP Rスペクトルの計算結果を示す。図 4.4 aと図 4.4 bを比較すると、井戸幅の変化によるスペクトル形状の変化は、位相角 $\theta$ の変化として現れることが分かる。たとえば、図 4.4 aにおいて、 $d_A = 10.2\text{nm}$ の場合、図 4.4 bの $\theta = 3\pi/2$ に

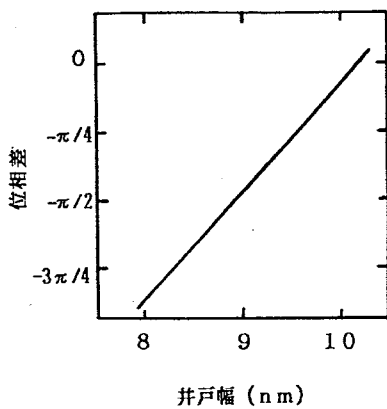




(a) PRスペクトル形状の井戸幅依存性



(b) Aspnesの式によって計算された PRスペクトルの位相項依存性



(c) 井戸幅と位相項の関係

図 4.4 計算された PR スペクトルの形状の井戸幅依存性と位相項の変化。

相当する信号となっているが、 $d_A = 8.2\text{nm}$  の場合だと、 $\theta = 3\pi/4$  に相当する信号となっている。

この  $d_A$  の変化と位相角  $\theta$  の変化を対応させたのが図 4.4 c である。図 4.4 c では、ある井戸幅における位相角を  $10.2\text{nm}$  の時の位相角を基準として表現した。井戸幅が  $8\text{ nm}$  から  $10\text{ nm}$  の間であれば、ほぼ直線的に位相が変化していることがわかる。従って、図 4.3 a に示されている位相角の変化は、井戸幅などの MQW 層の構造的な変化によって生じていることが分かる。逆の言い方をすれば、信号の位相角より、MQW 構造の井戸幅などの評価を行うことができる。

量子準位間遷移による PR スペクトル信号の位相角（図 4.3 b）より、MQW 構造の形状の定量的な評価を行うために、2 つのモデルを考えた。それぞれの場合について計算を行い、結果の比較によって妥当なモデルを選択する方法を以下に述べる。遷移エネルギーの変化より、GaAs 層の井戸幅  $d_A$  が、 $x$  の値が大きくなるにつれ、減少していくことが分かっている。また、図 4.4 の計算例ではふれていないが、分子線強度の不均一による層厚変化は、GaAs 層のみならず、AlAs 層においても生じている可能性がある。したがって、モデルとして、(i)  $d_A$  のみが増えている、(ii)  $d_A$ 、 $d_B$  両方とも増えている、の 2 つが考えられる。ここで、測定されている試料について、(i) のケースでは、 $x = 1\text{mm}$  の地点に比べ  $x = 19\text{mm}$  の地点において、 $d_A$  が約  $10\%$  減少しているとすると、位相角の場所依存性に関する実験結果を説明することができる。従って、量子井戸層全体の厚さは約  $26\text{nm}$  減少していることになる。(ii) のケースでは  $d_A$ 、 $d_B$  ともに、 $x = 1\text{mm}$  での値に比べ  $x = 19\text{mm}$  での値が  $5\%$  の減少しているとおけば、図 4.3 b の結果を説明できる。この場合も量子井戸層全体の厚さは  $26\text{nm}$  減少していることになる。

量子準位間の遷移エネルギーの試料表面における場所依存性（図 4.3 a）より、 $x = 1\text{mm}$  での値にくらべ、 $x = 19\text{mm}$  での  $d_A$  の値は、約  $14\%$  減少している。従って、(i) のケースが妥当であると考えられる。しかしながら、遷移エネルギーの変化から得られた  $d_A$  の変化量は約  $14\%$  で、位相角  $\theta$  の変化から得られた  $d_A$  の変化量は約  $10\%$  であり、若干の食い違いがある。この原因は、GaAs 層と AlAs 層の屈折率として与えた値が、実際の屈折率より大きかったことによる可能性があるが、詳細は不明であり今後の検討課題である。

### 4.3 GaAs バッファ層内のバンド端遷移によるフォトリフレクタンススペクトルの場所依存性

図 4.2 をみると、GaAs バッファ層に由来する信号は、試料表面上の場所によって、形状が大きく変化している。図 4.5(三角印) は、理論式を用いた解析結果による、バッファ層に由来する信号の位相の位置依存性を示したものである。便宜上、位相の基準を  $x = 1\text{mm}$  の時の位相角とし、基準に対する位相差  $\psi$  を示した。 $x = 1\text{mm}$  と  $x = 19\text{mm}$  での値を比べると、約  $2\pi$  の変化がある。この位相角の変化も、 $1e1H \cdot 1e1L$  の場合と同様に、干渉の効果によって生じていると考えられる。一方、バッファ層に由来する信号の遷移エネルギーは、変化していない。MQW 試料は、GaAs 井戸層と AlAs 障壁層による MQW 層、GaAs バッファ層、基板から構成されており、多数の界面が存在している。試料に光を入射すると、各界面において反射した光は、互いに干渉をおこす。この現象が、PR スペクトル形状に変化をもたらすと考えられる<sup>2,6</sup>。

複雑な構造で干渉効果を考慮するより、構造を単純化した方が、物理的にも分かりやすく、考察の見通しもよい。そこで、MQW 試料の構造を単純化し、屈折率  $n_1$  をもつ MQW 層と屈折率  $n_2$  をもつ バッファ・基板層から構成されているとする(図 4.6)。すなわち、MQW 層全体を、屈折率  $n_1$ (誘電率  $\epsilon_1$ ) 厚さ  $d$  の単結晶薄膜と考え、バッファ層と基板は、ひとまとめにして屈折率  $n_2$ (誘電率  $\epsilon_2$ ) の結晶基板と考える。以下、便宜的にバッファ層・基板部分のことを、バッファ層とよぶ。

このとき、試料に入射された光は、試料表面(界面 1)において反射率  $R_1$  で反射され、のこりの一部は MQW 層・バッファ層界面(界面 2)において反射率  $R_2$  で反射される。空气中に置かれた 2 層構造における波長  $\lambda$  の光に対する垂直反射率  $R$  は、

$$R = \frac{R_1 + R_2 + 2\text{Re}\{r_1 r_2 \exp(i\psi)\}}{1 + R_1 R_2 + 2\text{Re}\{r_1 r_2 \exp(-i\psi)\}} \quad (4.6)$$

$$\psi = 4\pi n_1 d / \lambda \quad (4.7)$$

と与えられる。ここで、 $r_1$  は界面 1 における振幅反射率、 $r_2$  は界面 2 における振幅反射率である。

考えている GaAs/AlAs MQW 試料のバッファのバンド端にあたる波長 ( $\lambda_0$ ) においては、バッファ層と MQW 層の屈折率はそれぞれ、3.65 と約 3.44 で比較的近い値なので<sup>7</sup>、 $R_2$  は小さく  $R_1 \gg R_2$  である。また、MQW 層は  $\lambda_0$  の波長の光に対して透明であるので、試料中での光吸収はないとして取り扱う。バッファ層においても、バンド端付近であるので吸収は小さいとする。励起光による電界変調で、バッファ層の誘電率が  $\epsilon_2$  から  $\epsilon_2 + \Delta\epsilon_2$  へと変化した場合、反射率は、 $R$  から  $R + \Delta R$  へと変化する。PR 測定において、誘電率変化は  $\Delta\epsilon_2 \ll \epsilon_2$  の条件が成立しているので、 $\Delta R \ll R$  と考えられる。以上の条件下で、 $R$  および  $\Delta R$  は、次のように近似される。

$$R \simeq R_1 + 2r_1(1 - R_1)\text{Re}\{r_2 \exp(i\psi)\} \quad (4.8)$$

$$\Delta R \simeq 2 \frac{r_1(1 - R_1)}{(n_1 + n_2)^2} \text{Re}\{\Delta\epsilon_2 \exp(i\psi)\} \quad (4.9)$$

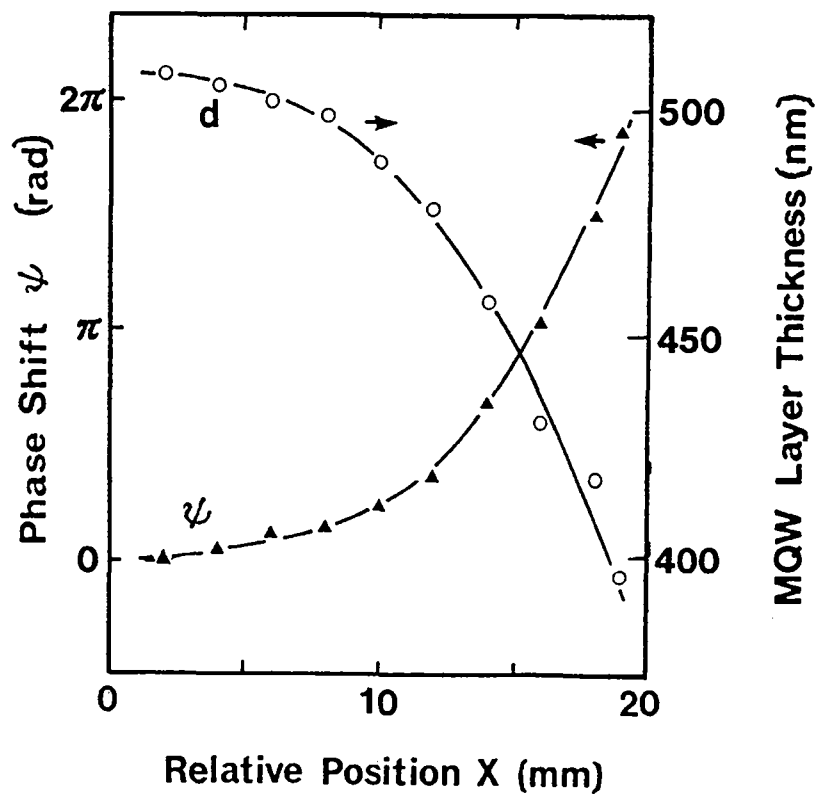


図 4.5 GaAs バッファ PR 信号の位相角とその解析によって得られた MQW 層幅の位置依存性。x = 1 mm での位相角を基準とし、その位相角からの変化量を  $\psi$  とした。

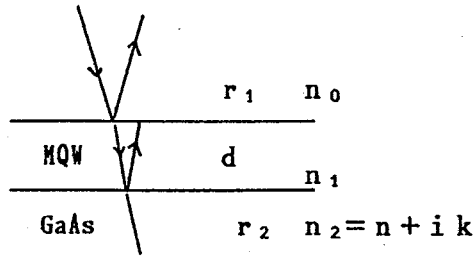


図 4.6 干渉効果計算のモデル

従って、PR信号 $\Delta R/R$ は

$$\Delta R/R \simeq \frac{2(1 - R_1)}{(n_1 + n_2)^2 \{|r_1| + 2|r_2|(1 - R_1) \cos \psi\}} \text{Re}\{\Delta \epsilon_2 \exp(i\psi)\} \quad (4.10)$$

と表される。これで、MQW層が存在するために生じた干渉の効果を取り入れた、バッファ層からのPRスペクトルに対する解析の式が導出された。

式 4.10をみると、位相角 $\theta$ にさらに、 $\psi$ という干渉の効果を表す位相項が加わることが分かる。図 4.5の実験結果より、 $x = 1$ と19mmで位相の差は、ほぼ $2\pi$ である。式 4.7より、 $\psi$ の値が $2\pi$ 変わるためには、 $n_1 d$ の値が $\lambda/2$ 変化すればよい。バッファ層のバンド端の遷移エネルギーは、約1.43eVであり、この波長は約870nmに相当する。また、この時の $n_1$ の値はおよそ3.43<sup>7</sup>であるので、 $d$ の値の変化は、約126nmとなる。位相角の変化を、MQW層の膜厚 $d$ の変化として表現したのが図 4.5の白丸印である。

MQW層の膜厚 $d$ の変化(126nm)を一周期当りの変化量に換算すると、測定試料の周期数は25周期であるので、5.0nmという結果となる。この結果を、1e1L・1e1Hの遷移エネルギー測定、位相項測定による量子井戸 $d_A$ の変化量(1.7nm)と比較すると、5.0nmという数字は明らかに大きすぎる。 $d_A$ 、 $d_B$ ともに1.7nm変化しているとおいても一周期あたりの変化量は3.4nmにしかならず、説明できない。この食い違いについて以下に考察してみる必要がある。

まず、屈折率 $n_1$ が3.43より大きい場合はどうだろうか。文献<sup>7</sup>でのMQWの屈折率のデータを見る限り、3.43が3.53以上になることは考えにくい。ここで仮に、3.43ではなく、3.53を採用しても、3.43と3.53の屈折率の差はわずか3%であり、 $d$ の変化に与える影響も、式 4.7より3%である。この程度の違いでは、一周期あたりの変化量の食い違いを説明できない。

MQW層の量子準位間遷移エネルギーは、試料表面上で場所によって異なっていた。そのような状況下では、遷移エネルギーに相当する波長付近では、屈折率 $n_1$ に場所依存性が存在すると考えられる。そこで、 $x = 1$ mmでのMQW層の屈折率を $n_1$ 、 $x = 19$ mmでの屈折率を $n_1 + \delta n_1$ とする。また、MQW層の厚さを、 $x = 1$ mmでは $d$ 、 $x = 19$ mmでは $d - \delta d$ とおく。このとき、 $x = 1$ mmでの $\psi$ の値 $\psi_0$ と、 $x = 19$ mmでの $\psi$ の値 $\psi'$ は式 4.7よ

り、それぞれ、

$$\psi_0 = 4\pi n_1 d / \lambda \quad (4.11)$$

$$\psi' = 4\pi(n_1 + \delta n_1)(d - \delta d) / \lambda \quad (4.12)$$

となる。したがって、位相差  $\delta\psi = \psi' - \psi_0$  は、

$$\delta\psi = 4\pi(-n_1\delta d + \delta n_1 d - \delta n_1\delta d) / \lambda \quad (4.13)$$

で与えられる。注目している波長  $\lambda$  は、MQW層内の量子準位間遷移エネルギーに相当する波長  $\lambda_0$  よりも長い波長である。MQW層の屈折率  $n_1$  は、 $\lambda_0$  で極大値をとることが知られている<sup>7</sup>。本試料では、 $x$  の値が大きくなるにつれ量子井戸幅が小さくなるので、MQWの量子準位間遷移エネルギーが高エネルギー側にシフトする結果、 $\lambda_0$  は短い波長側へシフトする。したがって、 $x$  の値が大きくなるにつれて、波長  $\lambda$  に対してMQW層の屈折率は小さくなる。故に  $\delta n_1$  は負である。

式 4.13 は、 $\delta n_1 d$  の項があるため、 $\delta d$  が小さくとも、 $d$  や  $\delta n_1$  が大きければ、位相角の変化  $\delta\phi$  は大きくなることを示している。たとえば、 $|\delta\phi| = 2\pi$ 、 $\lambda = 870\text{nm}$ 、 $d = 510\text{nm}$ 、 $n_1 = 3.43$  とおけば、 $\delta n_1 = -0.1$  の時  $\delta d = 112\text{nm}$ 、 $\delta n_1 = -0.2$  の時  $\delta d = 97\text{nm}$  となる。 $\delta d$  の値は、始めの評価値  $\delta d = 126\text{nm}$  より小さくなり、食い違いは改善される。

本試料において、量子準位間遷移による信号から得られている井戸幅の変化 ( $1.7\text{nm}$ ) が正しいとすると、 $\delta d = 43\text{nm}$  ( $= 1.7 \times 25$ ) であるので、 $2\pi$  の位相角変化のためには、 $\delta n_1 = 0.56$  となる。この屈折率の変化は余りにも大きすぎる。MQW層の遷移エネルギーの違いによって生ずる屈折率の差は、文献のデータ<sup>7</sup>との比較によれば  $0.2$  以下と期待されるからである。また、 $870\text{nm}$  での GaAs と  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  の屈折率は、それぞれ  $3.65$  と  $3.24$  であり、MQW層の屈折率は、少なくともその間の値とならねばならない<sup>7</sup>。井戸幅と障壁幅が両方とも  $1.7\text{nm}$  の変化があるとすると、 $\delta d = 85\text{nm}$  であるので、 $\delta n_1$  は  $0.28$  となり妥当な値に近づく。しかし、 $\delta d = 85\text{nm}$  という結果は、4.3節の  $\delta d = 26\text{nm}$  という値とはかなり相違する。

MQW層の屈折率変化を取り入れる事により、バッファ層からのPR信号の位相角の評価に基づくMQW層幅の変化の評価値は、4.2節と4.3節の中の井戸層幅変化の値から予測される値に近づくが、その相違は依然として大きい。この違いは現在のところ説明できず、今後の検討課題である。

以上の結果より、バッファ層からのPR信号が、試料表面の場所に依存して変化する原因は、MQW層の膜厚の変化が原因の一つであることが示された。また、逆にMQW層全体の膜厚の変化やその均一性の評価を、バッファ層からのPR信号の変化によって評価できる可能性を示した。

## 4.4 まとめ

試料表面上の場所によってPRスペクトルは形状が変化することを明かにした。この変化はこれは、量子井戸での量子準位間の遷移による信号か、バッファ層でのバンド間遷移による信号が変化することによる2つの原因が考えられる。量子準位間の遷移に由来する信号では、主として、量子井戸の幅が場所によって異なることによる遷移エネルギーのシフトが寄与する。一方、バッファ層（基板）でのバンド間遷移による信号の変化は、MQW(SL)層厚さが異なることによって、干渉の効果の現れ方が変化することによる。これらの量子井戸幅・量子井戸層幅の変化によるPRスペクトルの変化は、定量的な評価を行うことが可能である。

本研究では、GaAs/AlAs MQW試料を例にとって、実際に試料表面の場所によるPRスペクトルの変化を測定し、各部の量子井戸幅と量子井戸層全体の厚さを評価した。量子井戸の幅は量子準位間の遷移エネルギーから、量子井戸層全体の厚さは、量子井戸からのPR信号形状とバッファ層からのPR信号形状によって評価された。その結果、本研究で用いた試料では、量子井戸層幅が、ウェハ中央付近に比べ端付近で薄くなっていく場所依存性が見いだされた。また、量子井戸層全体の厚さも、端に行くにしたがって薄くなっている。量子井戸幅の変化量は、最大14%であった。一方、量子井戸層全体の厚さの変化は、評価方法によって26nmと85nmが得られ、大きな違いがあった。この2つの食い違いは、評価に用いたモデルが、量子井戸幅の変化による量子井戸層の屈折率変化を、正確に取り入れていないためであると考えられる。

## 参考文献

- 1 P.Parayanthal, H.Shen, F.H.Pollak,O.J.Glembocki,B.V.Shanabrook, and W.T.Bear, Appl. Phys. Lett., 48, 1261(1986).
- 2 M.Haraguchi, Y.Nakagawa, M.Fukui, and S.Muto, Jpn. J. Appl. Phys., 30, 1367(1991).
- 3 日本物理学会編、半導体超格子の物理と応用、第6章（培風館、東京、1984）。
- 4 T.Kanata, M.Matsunaga, H.Takakura, and Y.Hamakawa, J. Appl. Phys., 68, 5309 (1990).
- 5 A.F.Terzis, X.C.Liu, A.Petrou, B.D.McCombe, M.Dutta, H.Shen, D.D. Smith, M.W.Cole, M.Taysing-Lara, and P.G.Newman, J. Appl. Phys., 67, 2501(1990).
- 6 A.P.Thorn, A.J.Shields, P.C.Klipstein, N.Apsley, and T.M.Kerr, J. Phys. C:Solid State Phys., 20, 4229 (1987).
- 7 Y.Suzuki, and H.Okamoto, J. Electron. Mater., 12, 397(1983).
- 8 R.E.Fern, and A.Onton, J. Appl. Phys., 42, 3499(1971).



## 第 5 章

# フォトリフレクタンス信号強度の変調周波数依存性による物性評価

### 5.1 序論

フォトリフレクタンス (PR) 信号強度は、励起光の波長・強度・励起光の変調周波数および、温度によって変化する<sup>1-4</sup>。これは、フォトリフレクタンス法における変調が、光励起キャリア注入による内蔵電界 (Built-in field:BF) の緩和によって生ずることに由来する。光励起キャリアの注入による BF の緩和は、主に励起キャリアの寿命や拡散による。また、BF は、半導体試料内の空間電荷や、(酸化膜などあれば) 界面・表面の電荷の分布を反映する。したがって、PR 信号は、励起キャリア生成・消滅や試料の空間電荷についての情報を含む。

一方、フォトリフレクタンス法での変調機構については、完全に解明されているわけではない。未だに良く分かっていない表面・界面準位が電界の変調に関わっているため、励起光の変調周波数と信号強度の関係や、表面準位の種別による信号強度についての定性的な解釈は可能でも、定量的な説明が困難となっている。

そこで、本章では変調機構の解明を第 1 の目的とする。すなわち MQW 試料に対して、PR 信号強度の変調周波数依存性を測定することにより、MQW 試料での変調機構・界面準位などの情報が得られることを示す。また、PR 信号強度の変調周波数依存性は、深い準位がその過程に関わっているキャリアの生成・消滅の情報を含んでいるので、第 2 の目的として、信号強度の変調周波数依存性を調べることで、深い準位の測定が可能であることを示す。

## 5.2 フォトリフレクタンズ信号強度と深い準位

深い準位が試料中に存在している場合を考える。この時、光励起によって注入されたキャリアに対して、深い準位による捕獲・放出が生ずる。その結果光励起キャリアによる、BFの緩和が生ずる。

図 5.1のように、一種類の深い準位が存在している n 形半導体試料に対して、PR 測定を行う場合を考える<sup>1</sup>。価電子帯頂上からはかったフェルミレベルの位置が、表面と内部で異なるため、試料には表面から深さ  $d$  まで空間電荷領域、したがって BF が存在している。フェルミレベルの位置が異なるのは、良く知られているように、イオン化している表面準位が存在するためである<sup>1,5</sup>。熱平衡状態においては、試料のバンド図は図 5.1(a) のようになる。ここで、深い準位のエネルギーレベルは、表面から深さ  $w$  でフェルミレベルと交差している。

試料に励起光が照射された場合、励起光によってキャリアが生成され、図 6-1(b) のようにキャリアの移動およびキャリア捕獲によるイオン化準位の中性化によって BF が緩和される。従って、空間電荷領域は深さ  $d'$  へと変化する。この時、深い準位のエネルギーレベルのフェルミレベルとの交差位置は、 $w + \delta w$  となる。交差位置が  $\delta w$  変化するために、幅  $|\delta w|$  の領域にある深い準位は、キャリアの捕獲が必要になる。逆に、励起光が照射されていた状態から、照射されなくなった場合、 $|\delta w|$  の幅に存在する深い準位からキャリアの放出が行われる。深い準位のキャリアの捕獲・放出は、瞬時に行われるわけではなく、時定数  $\tau_T$  だけ時間がかかる。すなわち、励起光の ON/OFF に対して、深い準位の荷電状態の変化は  $\tau_T$  だけ遅れる。励起光が ON となった場合、光励起キャリアの注入とキャリアのポテンシャルに沿った移動によって、深い準位の荷電状態の変化を伴うことなく、BF を変化させることができる<sup>2</sup>。この現象は、過渡現象であるので、 $|\delta w|$  の幅に存在する深い準位がイオン化したままであっても、一時的にこれに見合うキャリアが表面へ移動することで BF を変化させる事が可能である。キャリア移動の速さは、キャリアの捕獲と放出に比べはるかに速いので、次に述べる励起光が OFF となる場合と比較して、BF の変化は瞬時的に生ずる。一方、励起光が OFF となった場合、深い準位の荷電状態の変化がなければ、電界強度はもとの熱平衡状態には戻らないので、電界の変化に時間的な遅れが生ずる。

すなわち、断続的に照射した励起光によって電界変調を与える場合、深い準位の存在によって、電界の変化は、励起光が ON となる時の立ち上がりの時間的遅れはほとんど無視できるのに対して、OFF の場合に時間的遅れが大きい(図 5.2 中段)。PR 信号は変調電界によって起こるわけであるので、変調電界の時間遅れは、PR 信号の時間遅れとして現れるはずである。

実際の PR 測定系で、この深い準位による時間遅れ  $\tau_T$  が測定可能であるかどうかを考察してみよう。すでに述べたように、励起光が ON となる時の、PR 信号の立ち上がり時間はほとんど無視可能であるのに対して、OFF となる時の立ち下がりでは  $\tau_T$  だけ時間的遅れが生じている。したがって、PR 信号の時間的変化は、図 5.2 の下部のようになる。すなわち、立ち上がりではステップ関数で表現され、立ち下がりでは  $\exp(-t/\tau_T)$  で変化する。ロックインアンプを使用した測定系では、励起光の変調周波数に同期した交流成分を信号として取り出すので、 $\tau_T$  が大きくなれば大きくなるほど、同期交流成分は小さくなる。したがっ

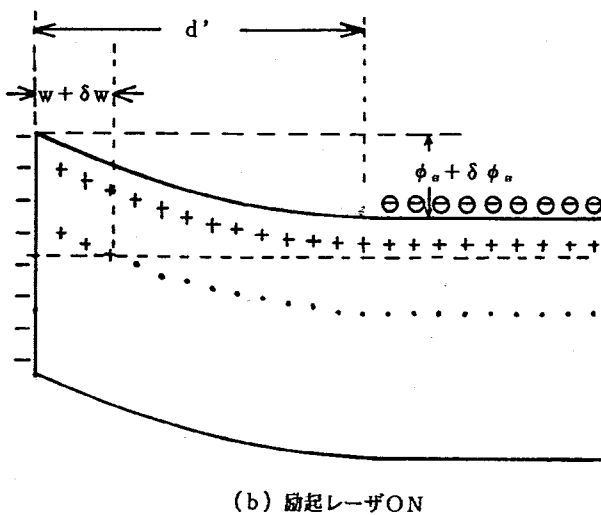
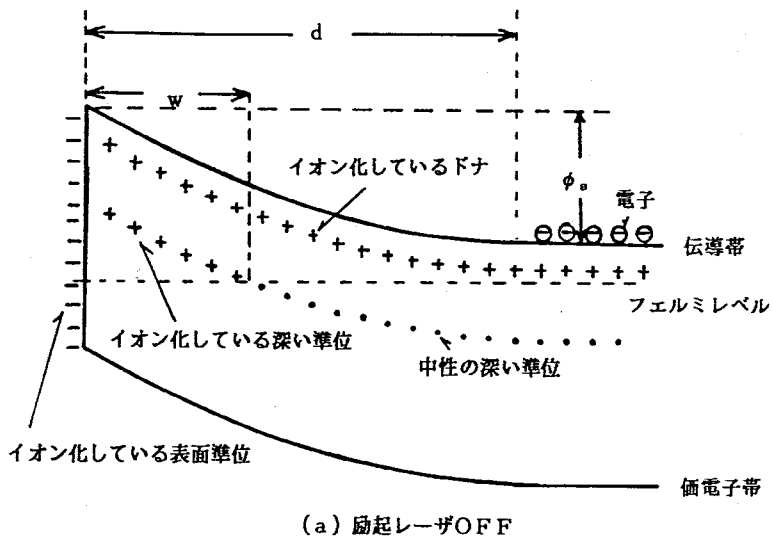


図 5.1 n形半導体の表面付近における空間電荷領域。負に帯電している表面準位が存在している場合。熱平衡状態において空間電荷領域が深さ  $d$  まで広がり、深い準位のエネルギーレベルは深さ  $w$  においてフェルミレベルと交差する。レーザー照射時には、その領域は  $d'$  までとなり、深い準位のエネルギーレベルの交差位置は  $w + \delta w$  となる。

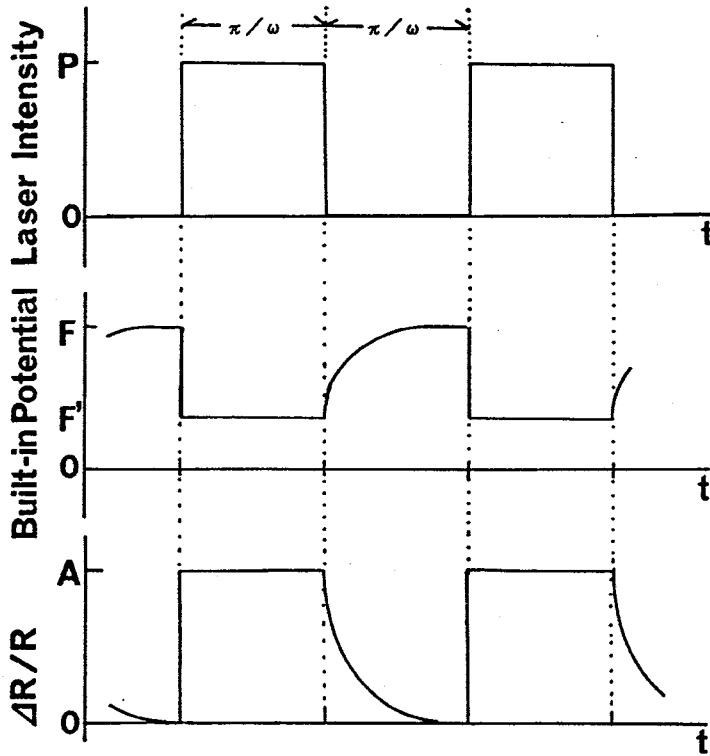


図 5.2 励起レーザーのON/OFFとPR信号の時間応答

て、 $\tau_T$ が大きいほどPR信号強度が低下する<sup>2-4</sup>。変調周波数が高いほど、この効果は顕著となるので、PR信号強度は変調周波数依存性を強く持つことになる。

ここで、変調角周波数を $\omega$ とすると、ロックインアンプによるPR信号出力 $I(\omega)$ は、

$$I(\omega) = \omega \int_0^{2\pi/\omega} \frac{\Delta R(t)}{R} \exp\{i(\omega t - \delta)\} dt \quad (5.1)$$

で与えられる。ただし、 $\delta$ は、参照信号に対する検出系の位相遅れの項である。

時定数を決定する深い準位が一種類のみである場合、図 5.2に示されるPR信号の時間応答は、

$$\Delta R(t)/R = \begin{cases} A[1 - \exp(-t/\tau_T)] & (0 < t < \pi/\omega) \\ 0 & (\pi/\omega < t < 2\pi/\omega) \end{cases} \quad (5.2)$$

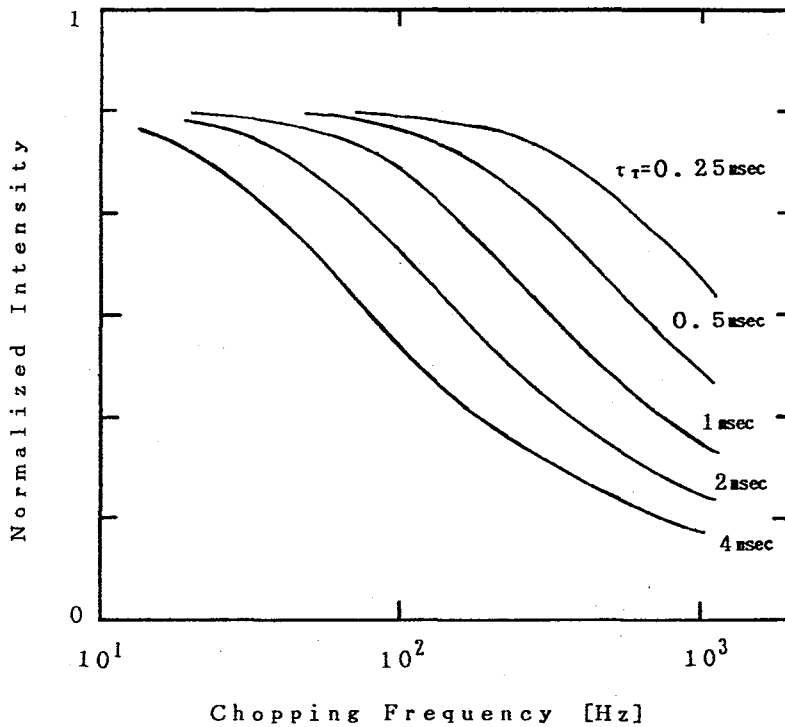


図 5.3 PR 信号のチョッピング周波数依存性

と表すことができる。式 5.2 を式 5.1 に代入し、積分計算を行うと、

$$I(\omega) = I(0) \left\{ \frac{1 + (\omega\tau_T)^2 [1 - \exp(-\pi/\omega\tau_T)/4]}{1 + (\omega\tau_T)^2} \right\}^{1/2} \quad (5.3)$$

が得られる<sup>2-4</sup>。

式 5.3 の関数を、横軸変調周波数  $\omega/2\pi$ 、縦軸  $I(\omega)/I(0)$  の図にプロットしたのが図 5.3 である。変調周波数が高くなるにつれて、 $I(\omega)/I(0)$  が減衰する様子がわかる。また、 $\tau_T$  が大きいほどその傾向が強くなる。

励起キャリアの深い準位による捕獲・放出は、温度に強く依存しているので、温度を変えて変調周波数依存性を測定する事は、たいへん重要な意味をもつ。温度が高い場合、キャリアの捕獲・放出共に盛んになり、変調周波数依存性は小さい。一方、温度が低くなれば、キャリアの捕獲・放出共に起こりにくくなり、PR 信号の時間的な変化は長くなる。したがって、変調周波数依存性は強くなる。電子トラップとなる深い準位によって  $\tau_T$  が決定されている場合を考えると、電子の有効状態密度を  $N_e$ 、電子の熱速度を  $v_n$ 、トラップの捕

獲断面積を $\sigma_n$ とする場合、時定数 $\tau_T$ は、

$$\frac{1}{\tau_T} = N_e v_n \sigma_n \exp(-\Delta E_T / k_B T) \quad (5.4)$$

で与えられる<sup>3-5</sup>。ただし、 $k_B$ はボルツマン定数、 $T$ は温度、 $\Delta E_T$ はトラップの活性化エネルギーである。

式 5.4より、温度 $T$ を変えて $\tau_T$ を測定し、 $T^2 \tau_T$ の自然対数と $1/T$ のグラフ（アレニウスプロット）を描くと、直線関係になり、その傾きから深い準位の活性化エネルギーがもたまることがわかる。すなわち、深い準位についてキャリアの捕獲あるいは放出に $\tau_T$ の時間遅れが存在すれば、PR法をもちいて深い準位の評価が可能である。

今までの議論では、時定数 $\tau_T$ でキャリアを捕獲あるいは放出する深い準位が存在する場合、PR信号も時定数 $\tau_T$ で変化することを証明しなくてはならない。この件について検討してみる。試料中の全電荷密度 $Q_T$ は、時間に依存しない電荷密度 $Q_{fix}$ 、表面単位に存在する電荷密度 $Q_{ss}$ 、深い準位に存在する電荷密度 $Q_t$ 、イオン化した浅いドナーの電荷密度 $Q_s$ の和で与えられる。

$$Q_T = Q_s + Q_{ss} + Q_t + Q_{fix} \quad (5.5)$$

この式を微分すると、電荷量の変化によって生ずる電流密度が与えられる。

$$i_T = i_s + i_{ss} + i_t \quad (5.6)$$

ここで、変調周波数 $\omega$ の励起光による試料表面でのポテンシャルの変化を $\delta\phi_s$ とおけば、

$$i_T = (j\omega C_D + Y_{ss} + Y_t)\delta\phi_s \quad (5.7)$$

となる。ここで、 $C_D$ は面積あたりの空間電荷容量であり、 $Y_{ss}$ と $Y_t$ はそれぞれ、表面単位によって生じた面積あたりのアドミタンスと、深い準位によって生じた面積あたりのアドミタンスである。

PR信号強度 $I_{PR}$ は、ポテンシャルの変化 $\delta\phi_s$ に比例し<sup>6</sup>( $I_{PR} = K\delta\phi_s$ )、また電流 $i_T$ は、光励起によって注入されているキャリアに比例するので、アドミタンスの表式より時定数 $\tau_T$ が求められる。時定数が決まれば、5.3から、励起光の変調周波数に対するPR信号強度の依存性を導くことができる。以下、深い準位によるアドミタンスを求める。試料内に浸入した励起光の光子によって電流が発生する<sup>6</sup>ので、次の式が成立する。

$$\frac{P\gamma(1-R)}{h\nu} = (j\omega C_D + Y_{ss} + Y_t)I_{PR}/K \quad (5.8)$$

ここで、 $P$ は励起光強度、 $\gamma$ は量子効率、 $R$ は試料の反射率、 $h$ はプランク定数、 $\nu$ 光の振動数、 $K$ は比例定数である。式 5.8をまとめると、

$$I_{PR} = \frac{A}{j\omega C_D + Y_{ss} + Y_t} P \quad (5.9)$$

$$A = \gamma(1-R)K/(h\nu) \quad (5.10)$$

が得られる。すなわち、PR信号の変調周波数依存性は、空間電荷容量、表面準位のアドミタンス、深い準位のアドミタンスの関数であることが分かる。これらのアドミタンスが、時定数を与える。

次に、深い準位によるアドミタンスを、深い準位の物性パラメータで表す。深い準位の荷電状態の変化によって生ずる電流密度は、深い準位の濃度を  $N_t$ 、キャリアの捕獲確率  $c_n$ 、放出確率  $e_n$ 、フェルミ関数  $f$  の関数となる。荷電状態の変化があるのは  $\delta w$  の間だけであるので、その領域でのキャリアの捕獲・放出を考えればよい。電子の電荷量を  $w$ 、表面から深さ  $w$  の位置でのキャリア密度を  $n$  とおけば、 $i_t$  は、

$$i_t = eN_t \{ c_n \int [1-f] n dw - e_n \int f dw \} \quad (5.11)$$

である。一方、熱平衡状態では、 $i_t$  は 0 であるので、

$$e_n = c_n n_0 (1 - f_0) / f_0 \quad (5.12)$$

が成り立っている。下添字の 0 は熱平衡状態におけるそれぞれの値を示す。また、光励起による熱平衡状態からのズレは小さく、深さ  $w$  でのポテンシャルの変化  $\delta\phi'$  が小さいと仮定すると、キャリア密度の変化  $\delta n$  は、

$$\delta n = (e/k_B T) n_0 \delta\phi' \quad (5.13)$$

で与えられる<sup>5</sup>。式 5.11 から式 5.13 を用いて、 $i_t$  は、

$$i_t = j\omega (e^2/k_B T) N_t \frac{f_0 [1 - f_0] \delta w}{1 + j\omega f_0 / (c_n n_0)} \delta\phi' \quad (5.14)$$

と求められる。 $|\delta w| \ll w$  の時、浅いドナー濃度を  $N_D$  とおけば、ポアソンの式から、

$$\delta\phi' = \frac{N_D}{N_t} \delta\phi \quad (5.15)$$

の関係式があるので、 $Y_t$  は

$$Y_t = j\omega (e^2/k_B T) N_D \frac{f_0 [1 - f_0] \delta w}{1 + j\omega f_0 / (c_n n_0)} \quad (5.16)$$

で与えられる。なお、 $Y_{ss}$  も、同様の手順で計算することができ、その結果を示すと、

$$Y_{ss} = j\omega (e^2/k_B T) N_s \frac{f_{s0} [1 - f_{s0}]}{1 + j\omega f_{s0} / (c_{sn} n_{s0})} \quad (5.17)$$

となる。ただし、 $N_s$  は表面準位の単位面積あたりの密度、 $f_{s0}$  は表面の熱平衡時におけるフェルミ関数、 $c_{sn}$  は表面準位の熱平衡時におけるキャリアの捕獲確率、 $n_{s0}$  は表面での熱平衡時におけるキャリア密度である。

アドミタンスが式 5.16 によって表されるとき、時定数  $\tau_T$  は  $f_0 / (c_n n_0)$  で与えられる。また、式 5.17 の場合は、 $\tau_T$  は  $f_{s0} / (c_{sn} n_{s0})$  で与えられる。これらの  $\tau_T$  の表現は、式変形によっ

て式 5.4と同じ形となる。すなわち、式 5.16と式 5.17は、時定数 $\tau_T$ でキャリアを捕獲したり放出したりする深い準位がある場合、PR法をもちいて、深い準位の評価が可能であることを示している。

実際の試料に対し $\tau_T$ の測定を行うとき、半導体内部の深い準位のみでなく、表面準位も影響を受ける。測定時に求められた $\tau_T$ が、どちらの準位によって決定されているかを区別することは困難であり、この点については今後の検討課題である。



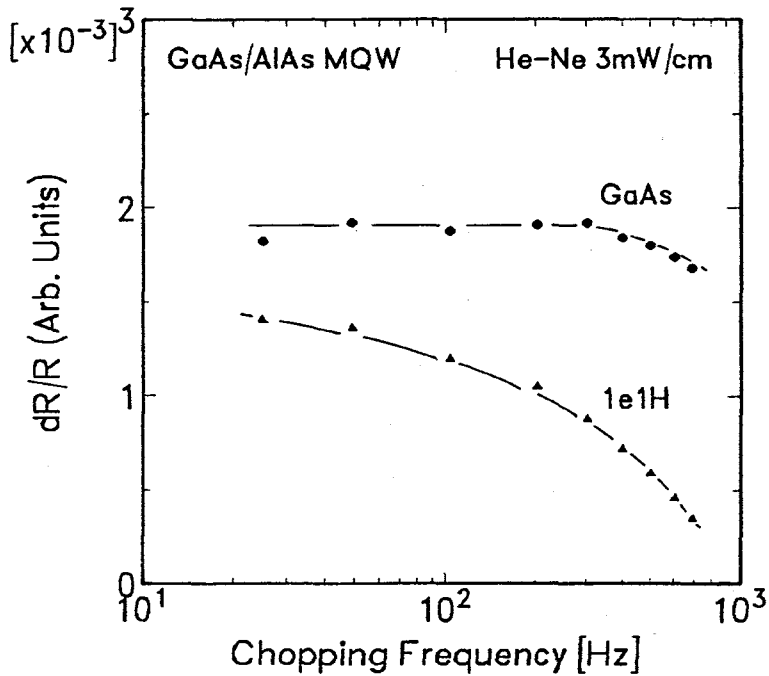


図 5.4 GaAs/AlAs MQW 試料の P R 信号強度チョッピング周波数依存性。励起光源は He-Ne レーザ、励起強度は  $3\text{mW}/\text{cm}^2$ 。

### 5.3 フォトリフレクタンス信号強度の変調周波数依存性

MQW 試料では、2 種類の半導体が数多くのヘテロ界面を構成している。5.2 節で示したような、n 型半導体のモデルが適応可能であるか否か興味深い。そこで、試料として GaAs/AlAs MQW 試料（試料 A：井戸幅  $10.2\text{nm}$ ）をもちいて、P R 信号強度の変調周波数依存性を測定した。

室温における、P R 信号強度の変調周波数依存性測定結果を図 5.4 に示す<sup>4</sup>。変調周波数は  $20\text{Hz}$  から  $800\text{Hz}$  まで変えて測定した。また、この時の励起光源は He-Ne レーザを用いており、試料表面での強度は  $3\text{mW}/\text{cm}^2$  であった。図中の GaAs (●印) と 1e1H (△印) は、それぞれ GaAs バッファからの信号と 1e1H の信号を表す。なお、1e1H と 1e1L の信号強度の絶対強度は異なるが、周波数依存性はまったく同じであったので、1e1L の信号強度の周波数依存性は省略した。

図から、信号強度の変調周波数依存性は、GaAs バッファからの信号と 1e1H 信号とでは異なることが分かる。図中の曲線は、式 5.3 中の  $\tau_T$  の値を変化させ、最も実験結果に一致する曲線を求めた結果である。これによって、各変調周波数依存性の曲線は、式 5.3 に示さ

れた関数で表現できることが分かり、基本的には5.2節で示した取扱いが可能であることを示している。1e1H、1e1L信号はともに、1.8msecの時定数を持ち、GaAs信号は測定された範囲では変調周波数にあまり依存していない。このことは、MQW層とGaAsバッファ層のBFの変調は、それぞれ異なった深い準位によって時間応答が支配されていることを示唆する。ただし、ここで述べているMQW層での深い準位とは、いわゆる深い準位でなく試料表面の表面準位の可能性もあるが、両方を含めて深い準位と呼ぶことにする。これは先に述べたようにそれぞれの寄与を分離することが難しいからである。

MQW層とバッファ層において変調電界の時間応答を支配する深い準位が異なるということは、それぞれ別個のBFが存在しているということになる。この考えは、第3章で述べた、(1) バッファ層とMQW層界面には、大きな電界がかかっており、(2) この電界はp型バッファ層とn型MQW層のPN接合によってできた電界である、という結論を支持するものである。

次に励起強度を $0.4\text{mW}/\text{cm}^2$ と小さくして、同様の測定を行った結果を図5.5に示す。1e1H、1e1L信号の時定数には変化がなかったが、GaAs信号の時定数が1.5msecとなった。この結果は、MQW層とバッファ層では別個のBFが存在するという説明を支持するものである。すなわち、励起レーザー光が弱い場合は、バッファ層内で電界変調を起こすのに十分な励起光強度がバッファ層の部分では得られず、MQW層表面で発生している電界変調に引きずられた形でバッファ層内での電界変調が起こっているものと考えられる。

さらに、励起光源として $\text{Ar}^+$ イオンレーザーを用いた、PR信号強度の変調周波数依存性を図5.6に示す<sup>4</sup>。このときは、励起光強度が $2\text{mW}/\text{cm}^2$ であったにもかかわらず、GaAs信号の変調周波数依存性は、1e1H信号のものとはほぼ同じである。この結果は、励起光がHe-Neレーザーにくらべて波長の短い $\text{Ar}^+$ イオンレーザーの場合、MQW層で吸収されてしまい、バッファ層へは励起光が届きにくいいため、励起光が弱いHe-Neレーザーの場合とほぼ同じ結果を与えたものと理解される。

$\text{Ar}^+$ イオンレーザーの波長(488.0nmまたは514.5nm)におけるGaAsの吸収係数は、 $9 \times 10^4\text{cm}^{-1}$ より大きい<sup>7</sup>。また、He-Neレーザーの波長(632.8nm)でのGaAs層の吸収係数は $4 \times 10^4\text{cm}^{-1}$ 程度<sup>7</sup>である。AlAs層については、He-Neレーザー光にたいして透明であるのに対し、 $\text{Ar}^+$ レーザー光では $200\text{cm}^{-1}$ 程度の吸収係数をもつ<sup>8</sup>。試料Aでは、MQW層の厚さは510nmであり、そのうち半分がGaAs層である。したがって、試料Aに、He-Neレーザーを照射した場合、MQW表面で反射されなかった光の内、約36%がバッファ層に到達するのに対して、 $\text{Ar}^+$ イオンレーザーでは約10%しか到達しない。すなわち、試料表面で同じ励起光強度であっても、バッファ層での励起光強度は3~4倍ほど異なる。これが、励起光強度が小さいときと同じ結果を与えた原因である。励起光源として $\text{Ar}^+$ イオンレーザーを用いた結果も、MQW層とバッファ層に別個のBFが存在していることを示唆している。

次に、低温( $T=100\text{K}$ )で、PR信号強度の変調周波数依存性を測定した。その結果を図6-7に示す。励起光強度は $1\text{mW}/\text{cm}^2$ であった。室温での結果と比較すると、GaAs、1e1Hのいずれの信号も、変調周波数依存性が弱くなっていることがわかる。また、GaAs信号強度は、1e1H信号強度に比べかなり小さくなり、変調周波数依存性は1e1H信号と同じであった。1e1H信号強度を基準にすると、GaAs信号強度は、室温の時に比べ $1/10$ 以下になり、時定数は1.5msecであった。

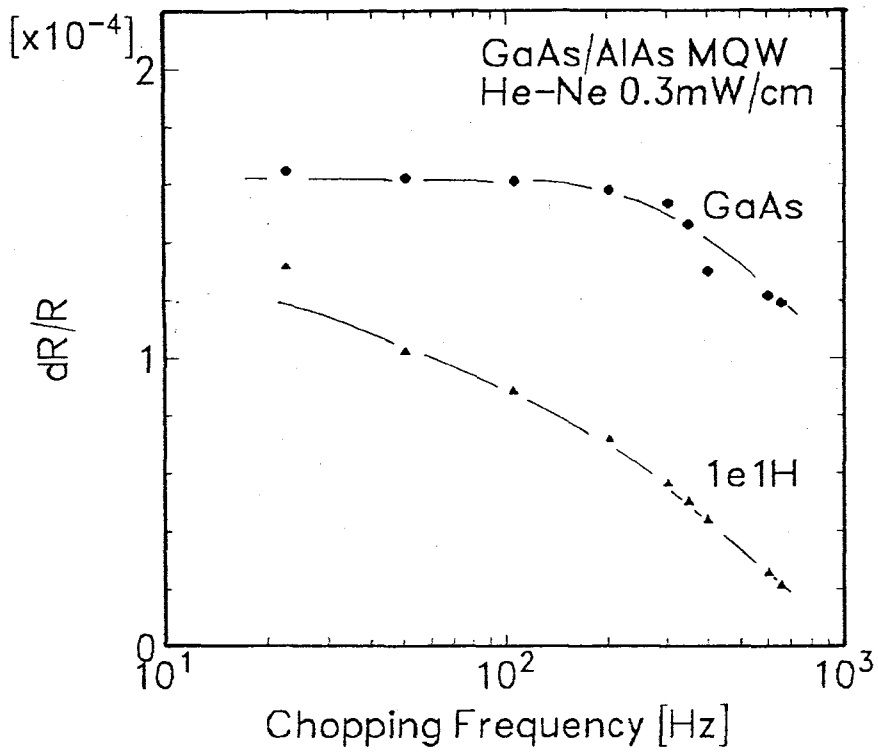


図 5.5 弱励起時におけるMQW試料のPR信号強度チョッピング周波数依存性。励起光源はHe-Neレーザー、励起強度は $0.4\text{mW}/\text{cm}^2$ 。

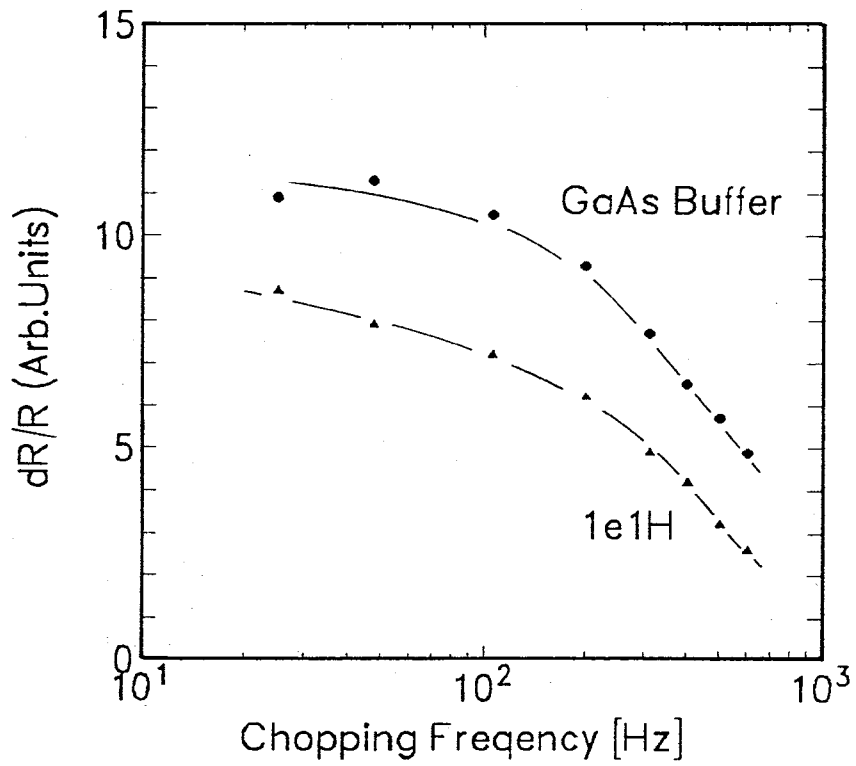


図 5.6 Ar<sup>+</sup>イオンレーザ励起におけるMQW試料のPR信号強度チョッピング周波数依存性。励起強度は2mW/cm<sup>2</sup>。

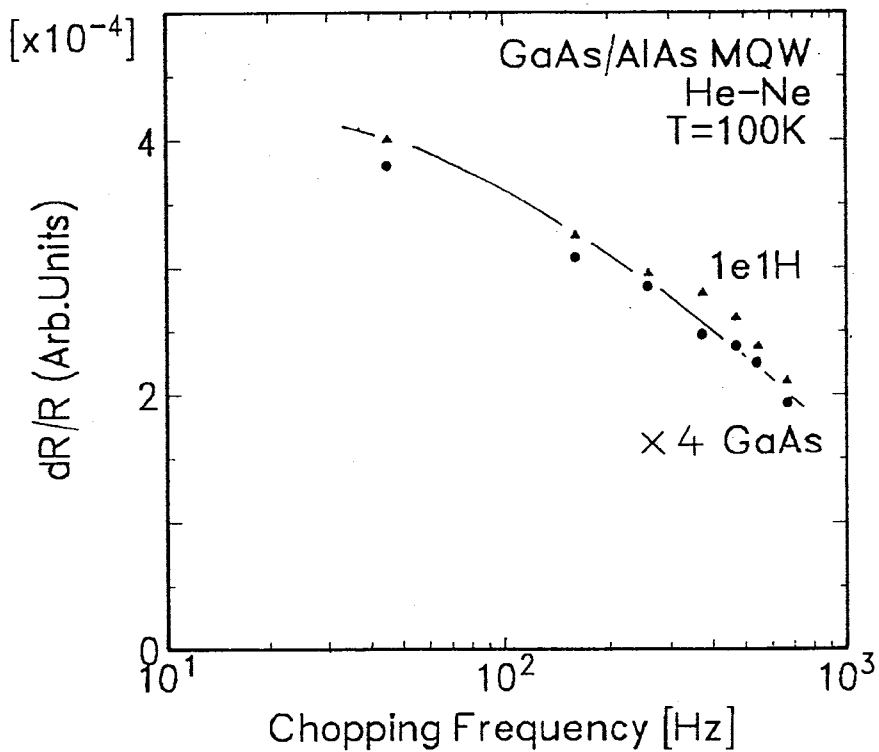


図 5.7 低温 ( $T = 100\text{ K}$ ) における MQW 試料の PR 信号強度チョッピング周波数依存性。励起光源は He-Ne レーザ、励起強度は  $1\text{ mW/cm}^2$ 。

GaAs 信号強度が、室温時に比べかなり小さいこと、時定数が 1e1H 信号の値と同じであることなどから、(1) バッファ層内部での変調電界強度が小さくなっている、(2) バッファ層内部で独立した変調電界が存在していないことが分かる。この原因の究明は、今後の検討課題である。これを明らかにするには、もっと、様々な温度での変調周波数依存性の測定を行う必要がある。

低温時と室温時とで、PR 信号強度が同じ深い準位によって変調周波数依存性が決定されているとすると、式 5.4 より、時定数  $\tau_T$  は低温の時は大きくならなければならない。式 5.4 は、C を物質によって異なる定数とおいて、

$$\frac{1}{\tau_T} = C\sigma T^2 \exp(-\Delta E_T/k_B T) \quad (5.18)$$

と書き換えられるからである。式 5.18 をみれば、 $\tau_T$  は明らかに温度の低下と共に、増大する関数である。しかし、今回の実験結果は、これと一致していない。不一致の原因は、室温で測定した場合と、低温で測定した場合とで、PR 信号強度の変調周波数依存性を支配する深い準位の種類が異なる為であると考えられる。GaAs 試料における DLTS 測定でも、GaAs 中には複数の深い準位が存在することが示されている。これを実証するには、様々な温度での変調周波数依存性を測定することが必要である。そのような実験から、5.2 節に示したように、 $\Delta E_T$  の値を求めることができる。いずれにせよ、この実験で PR 法を用いて、深い準位のパラメータ ( $\Delta E_T$  など) を求める可能性が示された。

## 5.4 まとめ

MQW試料に対して、室温でPR信号強度の変調周波数依存性を測定し、MQW層からの信号と、バッファ層からの信号では、その依存性が異なることを示した。また、励起光強度を変えた場合と、励起光波長を変えた場合について同様の実験を行った。その結果、励起光強度が小さい場合や、励起光波長が短い場合は、バッファ層からの信号は、MQW層からの信号と同じ変調周波数依存性を持つことが分かった。このことは、MQW層での電界変調とバッファ層での電界変調が別個に行われていることを示し、別個の電界変調が起こるか否かは、バッファ層に十分な強度で励起光が到達するかどうかによることも示した。

また、100KにおいてもPR信号強度の変調周波数依存性を測定し、MQW層からの信号とバッファ層からの信号の依存性が同じであることを示した。時定数の100Kでの値と室温での値を比較した結果、時定数を決定している深い準位は100Kにおける場合と室温における場合とで異なることが分かった。このことは、PR信号の解析から、深い準位のパラメータを求めることができる可能性を示している。

## 参考文献

- 1 O.J.Glembocki, B.V.Shanabrook, N.Bottka, W.T.Beard, and J.Comas, Proceedings of the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE, Bellingham, 1985) 524, 86.
- 2 X.C.Shen, H.Shen, P.Parayanthal, and F.H.Pollak, Superlattices and Microstruct. 2, 513 (1986).
- 3 T.Kanata, M.Matsunaga, H.Takaura, Y.Hamakawa, and T.Nishino, J. Appl. Phys., 69, 3691 (1991).
- 4 M.Haraguchi, Y.Nakagawa, M.Fukui, and S.Muto, Superlattice and Mictorstuct. in press.
- 5 御子柴宣夫、半導体の物理、第8章、(培風館、1982)p175.
- 6 T.Kanata, M.Matsunaga, H.Takakura, Y.Hamagkawa, and T.Nishino, J. Appl. Phys., 68, 5309(1990).
- 7 D.E.Aspnes and A.A.Studna, Phys. Rev. B27, 985(1983).
- 8 P.D.Kirchner, W.J.Schaff,G.N.Maracas, L.F.Eastman,T.I.Chappell and C.M.Ransom, J. Appl. Phys., 52, 6462(1981).



## 第 6 章

# 多重量子井戸試料の全反射減衰 (ATR) 法を用いた評価

### 6.1 序論

近年の結晶成長法の発展によって作製されるようになった、半導体多重量子井戸 (MQW) や超格子 (SL) の物性について、様々な測定方法での評価が行われている。光学的測定法である ATR 法を用いて、この MQW や SL の SP に関する多くの報告がなされている<sup>1-6</sup>。しかし、SP の励起とその観測を通して、MQW や SL の物性を評価するという視点からの論議はほとんどされていなかった。第 2 章で述べたように、表面ポラリトン (SP) は、光学的に異なる性質を持つ媒質の界面に局在する表面電磁波のモードである。したがって、SP は表面・界面の情報を含むので、SP の観測によって表面・界面の物性を探ることができる。また、MQW や SL では、各界面の SP が互いに相互作用をおよぼしているため、SP は MQW や SL の物性についての情報も与えてくれると予想される。そこで、この章では、ATR 法を用いた MQW や SL における SP の励起と観測を通して、MQW や SL の物性を評価し、その有用性を示す。

以上の目的のため、まず、MQW や SL に対して SP の励起と観測を行うために ATR 法を用いた場合、どのような ATR 信号が得られるかの理論的検討を行う。ここでは、MQW 試料として、有限周期の GaAs/AlAs MQW と GaAs/AlGaAs MQW を想定する。次に、実際の GaAs/AlAs MQW 試料に対して ATR 測定を行い、ATR スペクトルには SP の励起による反射率の低下を観測する。理論計算結果とこの実験結果との比較によって、GaAs と AlAs 層の誘電率を決定する。そして、ATR 法による SP 観測を通して、MQW や SL 物性の評価が可能であることを示す。

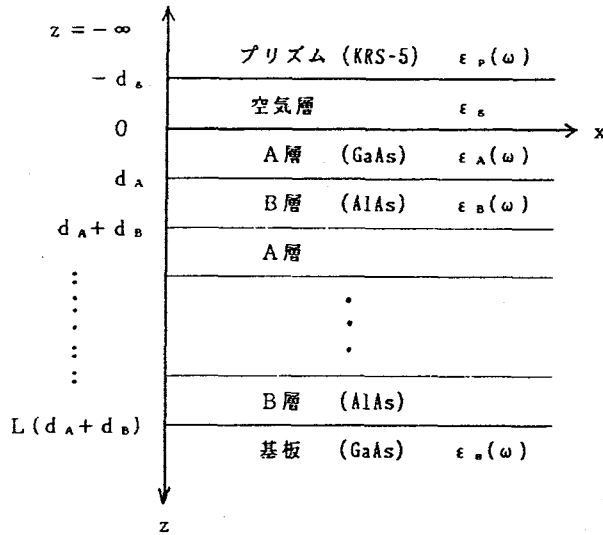


図 6.1 GaAs/AlAs MQW試料のATR配置

## 6.2 多重量子井戸試料の全反射 (ATR) スペクトルの理論計算

この節では、MQW試料に対するATR信号の計算方法と、具体的なモデルを用いた理論計算結果について述べる<sup>1,2</sup>。MQW試料は、GaAs基板上に作られたL周期のGaAs井戸層(層厚 $d_A$ )と(AlAsまたはAlGaAs)障壁層(層厚 $d_B$ )から構成されている(図6.1)。また、ATR測定に必要なプリズムの材質としてKRS-5を想定し、ATR配置としてはOTTO法(第2章参照)を採用する。この時、ATR信号の理論計算式は、第2章すでに述べた理論式を用いる。

ATR信号を計算するためには、各層の比誘電率が必要である。MQW試料の各部においては、第2章に示したように、比誘電率の表記として、次に示す式を採用する。

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty + \sum_{j=1}^m \frac{S\omega_{Tj}^2}{\omega_{Tj}^2 - \omega^2 - i\nu\omega} \quad (6.1)$$

GaAs、AlAs、AlGaAs (Al混晶比0.3)の各誘電率パラメータは、表6.1に示す<sup>7,8</sup>。表において、一つの物質に対して2段のパラメータの組がある。上段は文献からの引用であり、下段は今回得られた誘電率パラメータである。AlGaAs (Al混晶比0.3)のパラメータは、振動子が二組であるので2段になっている。

次に、式6.1とこの表のパラメータを採用した時の誘電率分散を図6.2に示す。上側(a)と下側(b)がそれぞれ、誘電率の実部と虚部の周波数分散である。

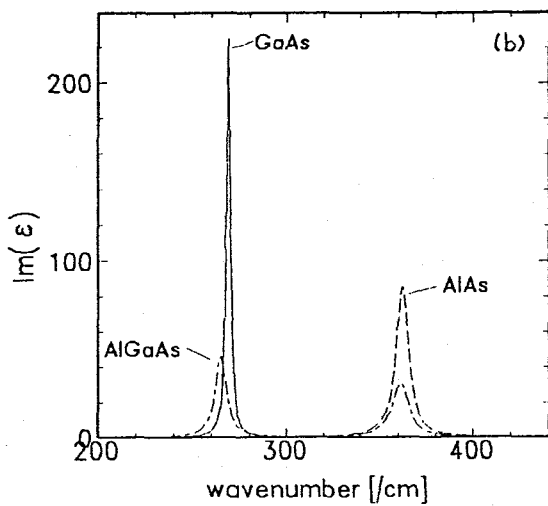
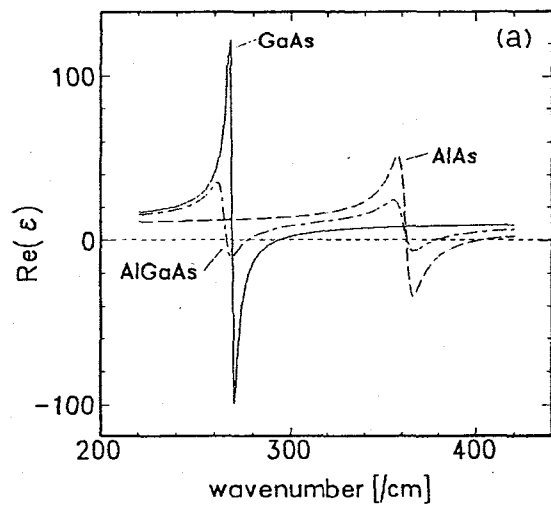


図 6.2 GaAs、AlAs と  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  の誘電率分散。(a) と (b) は、それぞれ誘電率の実部と虚部の誘電率周波数分散である。

表 6.1 GaAs、AlAs の誘電率パラメータ

| material            | $\epsilon_\infty$ | S    | $\omega_{TO}[\text{cm}^{-1}]$ | $\omega_{LO}[\text{cm}^{-1}]$ | $\nu[\text{cm}^{-1}]$ |
|---------------------|-------------------|------|-------------------------------|-------------------------------|-----------------------|
| GaAs <sup>7</sup>   | 10.9              | 2.03 | 269                           | 293                           | 2.4                   |
| this work           | 11.0              | 2.13 | 265                           | 290                           | 3.9                   |
| AlAs <sup>8</sup>   | 8.2               | 1.9  | 362                           | 404                           | 8.0                   |
| this work           | 8.5               | 1.87 | 361                           | 399                           | 4.2                   |
| AlGaAs <sup>7</sup> | 10.5              | 1.24 | 265                           | 278                           | 7.2                   |
|                     |                   | 0.93 | 361                           | 379                           | 10.8                  |

図 6.2より、光の周波数によって、S P 活性（比誘電率が負の状態）媒質となる物質が異なることがわかる。例えば、GaAs/AlGaAs の組み合わせでは、277 から 293 $\text{cm}^{-1}$  の領域で GaAs が S P 活性媒質、267 から 269 $\text{cm}^{-1}$  と 363 から 377 $\text{cm}^{-1}$  の領域で AlGaAs が S P 活性媒質となる。また、GaAs/AlAs の組み合わせでは、364 から 382 $\text{cm}^{-1}$  の領域で AlAs が S P 活性媒質となる。

一方、プリズムの材質が KRS-5 であるので、真空での光の波長を  $\lambda_0 \mu\text{m}$  とすると、プリズムの比誘電率は次の式で与えられる<sup>9</sup>。

$$\epsilon_p(\lambda) = 1 + \sum_{i=1}^5 \frac{a_i \lambda_0^2}{\lambda_0^2 - \lambda_i^2} \quad (6.2)$$

ここで、空気層の比誘電率は 1 とおいた。ただし、 $a_1 = 1.8293958$ 、 $a_2 = 1.6675593$ 、 $a_3 = 1.1210424$ 、 $a_4 = 0.0451336$ 、 $a_5 = 12.380234$ 、 $\lambda_1^2 = 0.0225$ 、 $\lambda_2^2 = 0.0625$ 、 $\lambda_3^2 = 0.1225$ 、 $\lambda_4^2 = 0.2025$ 、 $\lambda_5^2 = 27089.737$  である。

次に、以上の式 6.1 と式 6.2 を用いて、ATR 信号の理論計算を行った。まず計算を行ったのは、GaAs 井戸層 10nm、AlGaAs 障壁層 10nm の半無限 GaAs/AlGaAs (Al 混晶比 0.3) MQW 試料である。図 6.2 より、277 $\text{cm}^{-1}$  から 293 $\text{cm}^{-1}$  にかけて、GaAs 層部分が S P 活性媒質となるので、その付近の周波数領域に注目した。

図 6.3 に示してあるのは、空気層の厚さが 3  $\mu\text{m}$ 、入射光の周波数を 280 $\text{cm}^{-1}$  とした角度スキャン ATR 信号である。同じ図に、比較のため GaAs 単結晶試料を用いた場合の計算結果（破線）も示す。GaAs 単結晶試料（破線）の反射率が、大きく落ち込んでいる部分は、GaAs 表面での S P 励起により光エネルギーが持ち去られた結果生じた反射率の減衰であると考えられる。

$k_{\parallel} = 2300\text{cm}^{-1}$  付近における MQW 試料での反射率の減衰が、S P の励起によるのかを調べるため、電界の x 方向成分  $E_x$  の深さ (z) 方向強度  $|E_x|$  分布を計算したのが図 6.4 である。もちろん入射光の周波数は 280  $\text{cm}^{-1}$  とし、空気層の厚さは 3  $\mu\text{m}$  とした。この図では、MQW 試料表面 (z = 0) での  $|E_x|$  の値を 1 としてある。明らかに  $|E_x|$  は、MQW/空気界面で極大となっている。また、式 2.38 の  $\lambda$  の値についても、その虚数部は実数部に比べ無視できる大きさである。したがって、図 6.3 における反射率の減衰は、MQW 試料における S P の励起によって生じたものと結論づけられる。

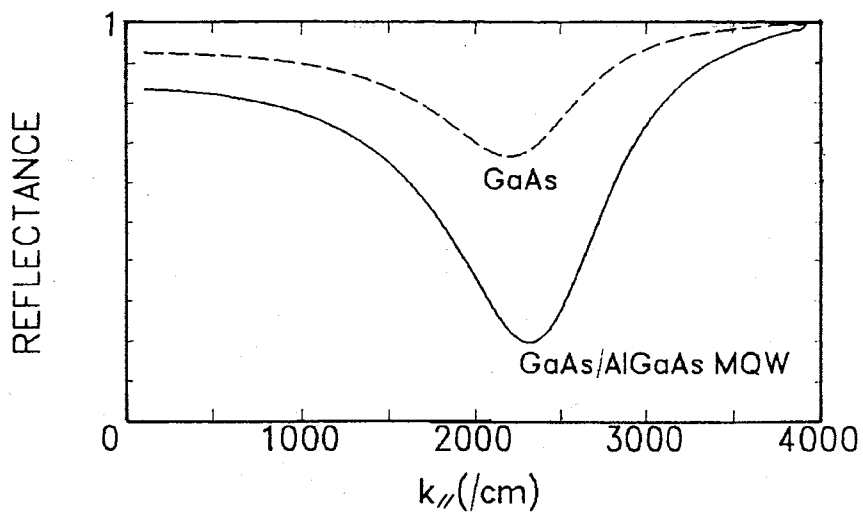


図 6.3 GaAs/ $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  MQW試料の角度スキャンATRスペクトル

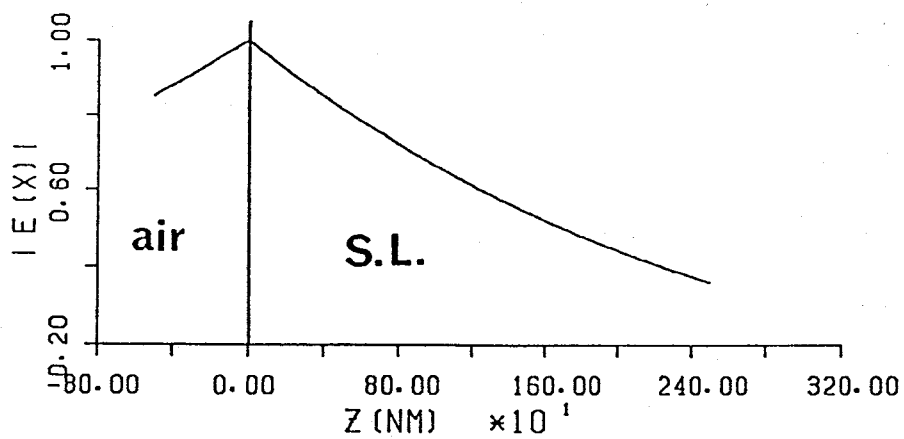


図 6.4  $|E_x|$  の深さ方向分布

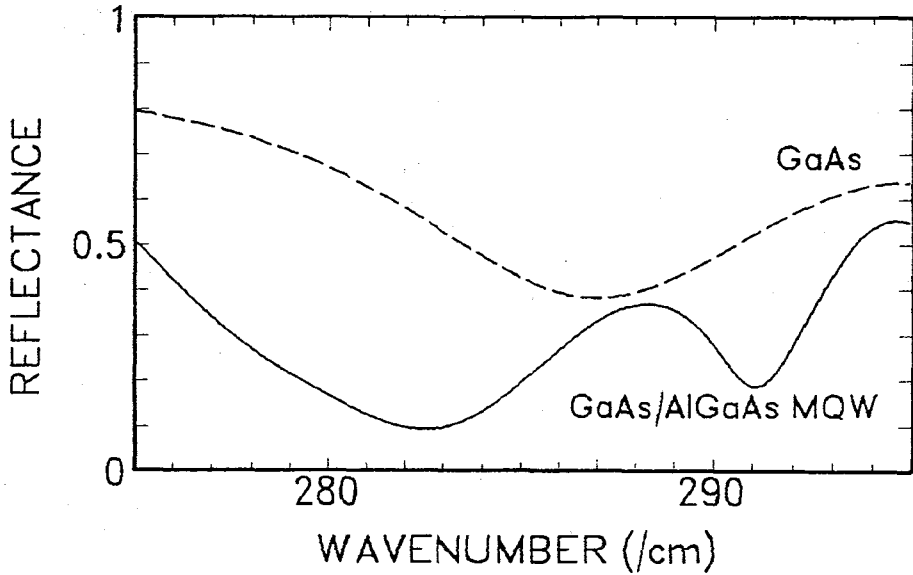


図 6.5 入射角 35 度での MQW 試料の周波数スキャン ATR スペクトル

GaAs 単結晶試料と MQW 試料のそれぞれの ATR 信号曲線を比較すると、MQW 試料の場合の半値幅が、GaAs 試料の場合より大きいことが分かる。これは、AlGaAs 層における、光学格子振動のダンピングによって生じている。すなわち、MQW 層部分でのダンピングが、GaAs 試料と比較して大きいことに由来する。また、MQW 試料において最も強く信号が減衰している所の  $k_{||}$  は、GaAs 試料の場合と比べて大きな値となっている。これも、AlGaAs 層のダンピングが原因であると思われる。

次に、先の場合と同じ配置において入射角を 35 度に固定した時の、周波数スキャン ATR スペクトルの理論計算結果を図 6.5 に示す（実線）。先の場合と同様に、比較のために GaAs 試料を用いた場合の ATR スペクトルの理論計算結果を破線で示してある。

図 6.5 を見ると、MQW 試料において、反射率が減衰している部分が 2 つあり、そのどちらも GaAs 試料の反射率が減衰している部分と位置（周波数）がずれている。また、反射率が減衰している部分の半値幅が、GaAs の場合に比べ大きい。半値幅の違いの原因は、角度スキャンスペクトルにおける半値幅の違いの原因と同じく、MQW 層でのダンピングが GaAs 試料に比べ大きいことによって生じている。MQW 試料における  $282\text{cm}^{-1}$  付近で反射率が最小となっている減衰の形状は、GaAs 試料でのローレンツ型の減衰スペクトルと異なり、やや複雑な形状をしている。これは、AlGaAs 層部分の誘電率が、この領域で周波数分散を生じており、一定の値となっていないことが原因であると考えられる。一方、

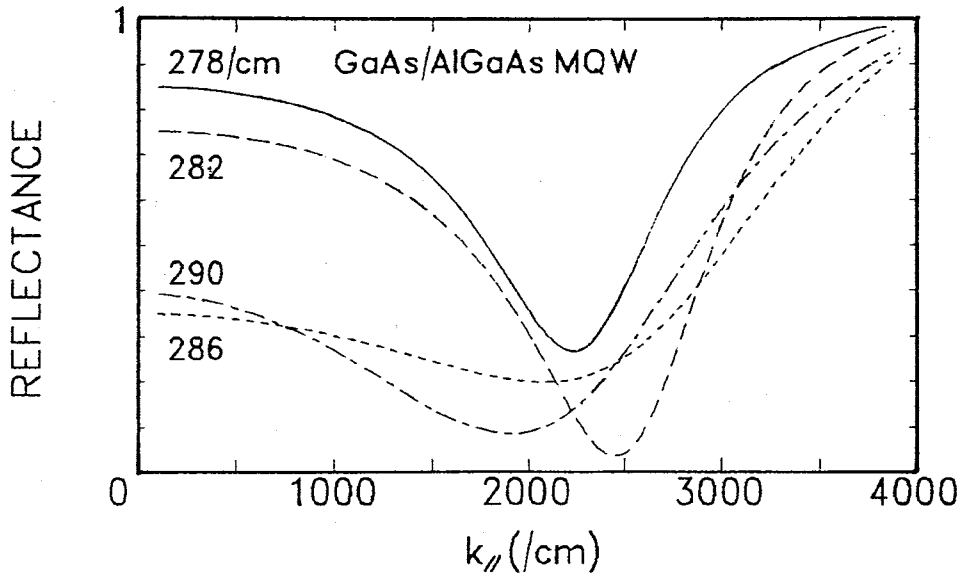


図 6.6 入射光の周波数が異なる場合の角度スキャン ATR スペクトル。  
 空気層の幅は  $3 \mu\text{m}$ 。GaAs 層と AlGaAs 層の幅は、共に  $10\text{nm}$ 。

$292\text{cm}^{-1}$  に反射率の最小を持つ構造は、通常のポラリトンの励起条件である、空気と GaAs 層の誘電率の和が負 ( $\epsilon_A + \epsilon_g < 0$ ) であるという条件を満たしていないので、後述する仮想モードの励起による反射率の減衰であると考えられる。

異なった周波数の入射光に対する、角度スキャン ATR 信号の理論計算結果を図 6.6 に示す。周波数は、 $278\text{cm}^{-1}$  から  $290\text{cm}^{-1}$  の間で変化させた。試料、膜厚とも先の場合と同一の条件とした。周波数が高くなるにつれ、減衰の幅が急激に大きくなる。また、反射率が最小となる  $k_{\parallel}$  の値に着目すると、周波数が高くなるにつれて  $k_{\parallel}$  は大きくなっていくが、ある最大値をとった後は減少していく。

この現象を解釈するために、SP の分散関係を計算した (図 6.7)。上側 (a) と下側 (b) は、それぞれ  $k_{\parallel}$  の実数部と虚数部の分散関係を示す。図中には 2 本の分散曲線が現れている。ここで、ATR 配置での SP には、表面モードと仮想モードのふたつが存在する事に注意しておく<sup>10</sup>。ふたつのモードの基本的な違いは、プリズム内の電磁場の  $z$  方向への伝搬方向が異なる点にある。表面モードは、ATR プリズムの底面のエバネセント波から SP へエネルギーが注入されるようなモードであり、プリズム内の電磁場の振幅は試料面から遠ざかるにつれて減衰する。仮想モードのプリズム内の電磁場振幅は、試料面から

遠ざかるにつれて増大している。このモードでは、SPのエネルギーが、プリズム底面のパネセント波を通してプリズム側へとエネルギーが流れだしている。したがって、プリズムの存在がSPのダンピングとして働くモードである。

図 6.7において、実線がSPの表面モードであり、破線が仮想モード、丸印は角度スキャンATR信号が最小となる点を示したものである。明らかに、 $284\text{cm}^{-1}$ 付近から、バックベンディング（周波数は高くなるのに波数が小さくなる）現象が生じているのがわかる。丸印は、バックベンディングが生ずる周波数まで、表面モードによく一致している。しかし、それ以上のバックベンディングが生じている周波数では、一致していない。このような現象は、プリズム/金属薄膜/空気という配置においても観測されている<sup>11</sup>。すなわち、この周波数領域では、ATR信号から、SPの分散関係を評価する事はできない。

金属/空気界面でのSPの分散関係でみられるバックベンディングは、金属の誘電率の実部と空気の誘電率の和が0となった周波数から高周波数側で生ずる<sup>12</sup>。MQW試料の場合、金属膜の場合との比較から、GaAsの誘電率の実部  $\text{Re}(\epsilon_A)$  と AlGaAsの誘電率の実部  $\text{Re}(\epsilon_B)$  の和が0 ( $\text{Re}(\epsilon_A) + \text{Re}(\epsilon_B) = 0$ ) となった周波数からバックベンディングが生ずると予測される。図 6.1の誘電率の分散関係をみると、周波数 $\omega = 284\text{cm}^{-1}$ で  $\text{Re}(\epsilon_A) = -\text{Re}(\epsilon_B)$  となっている。この周波数は図 6.7において、バックベンディングが始まる周波数と一致している。それゆえ、金属膜/空気の配置の場合と同じ原因でバックベンディングが生じていると思われる。これは、MQW(SL)構造におけるSPが、各井戸層/障壁層界面に局在するSPの重ね合わせとしてあらわされるという考え方を強く支持する結果である。

次に、図 6.7における、バックベンディングの周波数領域で丸印と実線とが一致しない原因を考える。角度スキャンATR信号を計算する場合、入射角 $\theta$ を変化させるので、波数の試料表面に平行な成分  $k_{||}$  は実数となる。一方、分散関係での  $k_{||}$  は複素数であり、バックベンディングが生じている周波数領域では、 $k_{||}$  の虚数部はその実数部に比べて無視できない大きさとなっている。この時、ATR信号のディップ位置はSPの励起位置と一般的には一致しない。すなわちSPの分散関係をATR信号から求める事はできない。

OTTO配置のATR法では、プリズムと試料との間の空気層の厚さを変えることにより、試料表面のSPに対する入射光と反射光の結合の強さの制御をしたり、試料内部へのエネルギーの浸透を調節することにより、様々な情報を得ることができる。そこで、これまで用いたものと同じ試料について、空気層厚  $d_g$  を  $1\ \mu\text{m}$  から  $12\ \mu\text{m}$  まで変化させた時の、角度スキャンATR信号の計算を行った。その結果を図 6.8に示す。

スペクトルの形状を比較すると、 $d_g$  が小さくなるにつれてSPの励起による反射率の減衰の半値幅が大きくなることが分かる。これは、プリズムが試料に近づくことによって、試料のSPへのエネルギー注入が容易になると同時に、SPのエネルギーがプリズム側へ逃げやすくなることが原因である。SPのエネルギーがプリズム側へ逃げるということは、プリズムによるダンピングが生じているということである。また、反射率が最小となる  $k_{||}$  の値は、 $d_g$  が小さくなるにつれて大きくなる。この現象は、真空/金属配置のSPの場合にも見られる現象である<sup>12</sup>。

MQW構造においては井戸層幅と障壁層幅を変化させることにより、電子・正孔の量子化準位を変えることができる。ここでATR信号を観測している様な  $300\text{cm}^{-1}$  付近の周波数帯では、キャリアの密度が十分低い時、誘電率に量子化準位の変化は無関係である。した



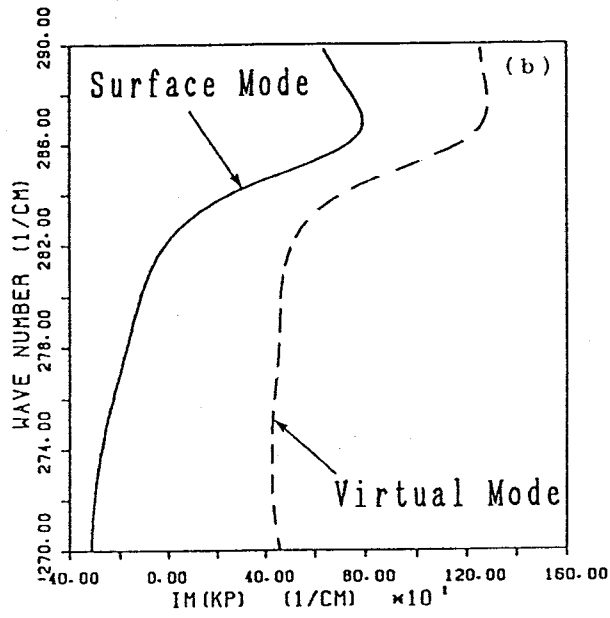
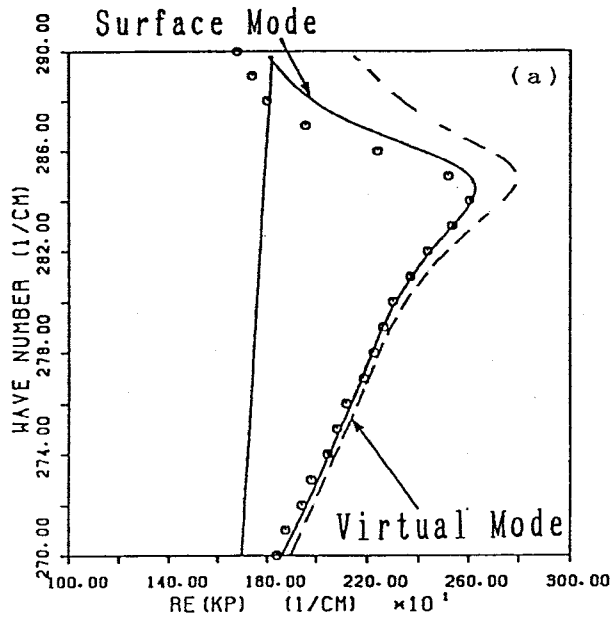


図 6.7  $GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As$  MQW 試料における S P の分散関係。○印は、角度スキャンスペクトルにおいて信号強度が最小となる  $k_{||}$  を示したものの。

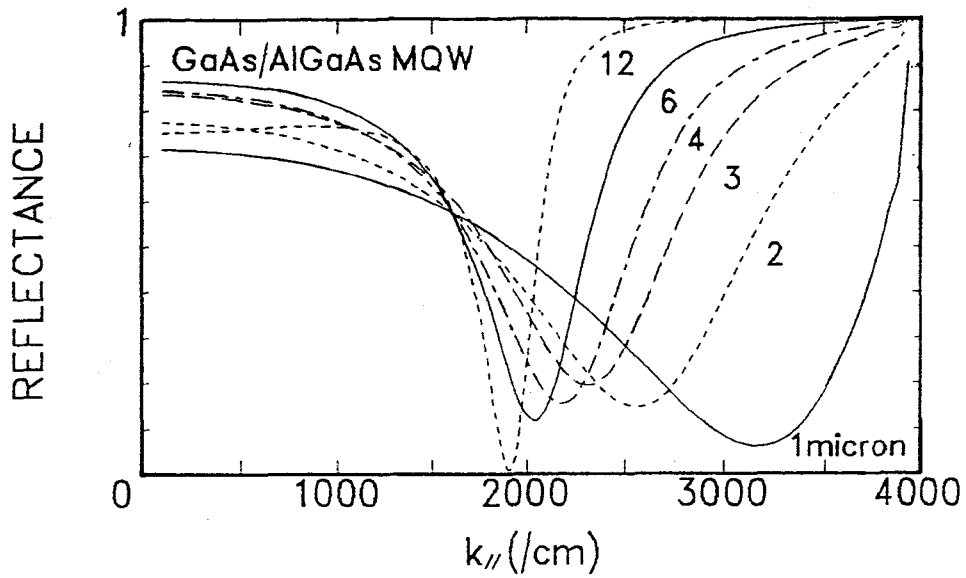


図 6.8 空気層を変化させた場合のMQW試料の角度スキャンATRスペクトル。空気層の厚さは1~12  $\mu\text{m}$ の間で変化させた。入射光の周波数は  $280\text{cm}^{-1}$ 。

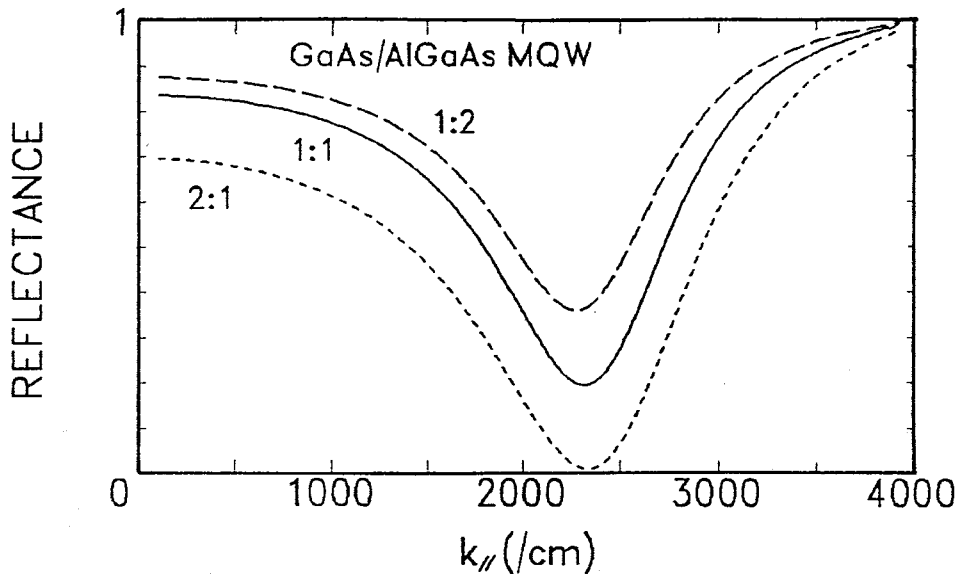


図 6.9 GaAs 層と  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  層の層厚比 ( $d_A:d_B$ ) を変化させた場合の角度スキャン ATR スペクトル。入射光の周波数は  $280\text{cm}^{-1}$ 。

がって ATR 信号の基本構造には余り大きな変化が現れないと考えられる。この井戸層幅と障壁層幅の変化による ATR 信号の変化の予測を確認するため、GaAs 層と AlGaAs 層の層厚の和 ( $d_A + d_B$ ) を一定にし、二つの層厚の比  $d_A:d_B$  をかえて、角度スキャン (図 6.9) および周波数スキャン (図 6.10) ATR 信号を計算した。 $d_A + d_B$  の値は  $20\text{nm}$  として、 $d_A:d_B$  を 2:1、1:1、1:2 と変化させた。

角度スキャンの結果 (図 6.9) をみると、 $d_A:d_B$  の値が小さくなるにつれ、わずかに反射率の減衰の位置が波数の大きい方へシフトしている。また、同時に減衰の半値幅が大きくなっている。これは、この周波数領域でもダンピングをもつ AlGaAs 層の割合が増えたため、エネルギーが AlGaAs 層で消費されることに由来する。周波数スキャンでの結果 (図 6.10) は、 $d_A:d_B$  の値が小さくなるにつれ、反射率の減衰の位置が低周波数側へずれ、減衰の半値幅はおおきくなっている。この結果も、角度スキャンの場合と同様に解釈できる。

これまでは無限周期の MQW 試料を想定してきたが、有限周期の場合は、SP が存在している MQW 層厚に依存して、ATR 信号が変化することが予想される。そこで、基板を GaAs とし、GaAs と AlGaAs 一組の数 (周期数  $L$ ) を変えて角度スキャン ATR 信号を計算した。入射光の周波数は  $280\text{cm}^{-1}$ 、空気層厚は  $3\ \mu\text{m}$ 、各 GaAs 層と AlGaAs 層の厚さはすべて  $10\text{nm}$  とした。計算結果を図 6.11 に示す。

スペクトル形状の比較より、 $L$  が増えるにつれ反射率の最小値は小さくなることが明らかとなった。また、 $L = 600$  の場合は無限周期の MQW 試料における ATR スペクトルと

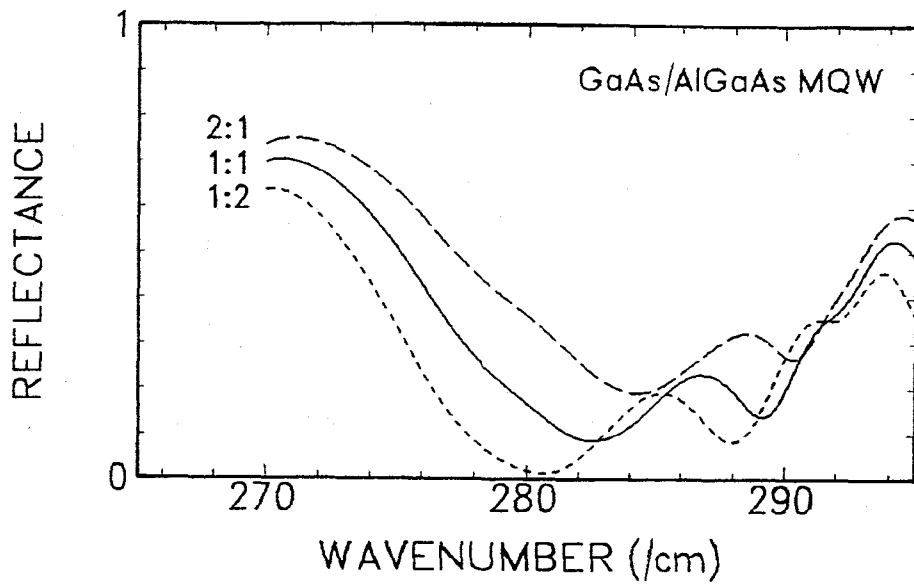


図 6.10 GaAs 層と  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  層の層厚比を変化させた場合の周波数スキャンATRスペクトル。入射角は 35 度。

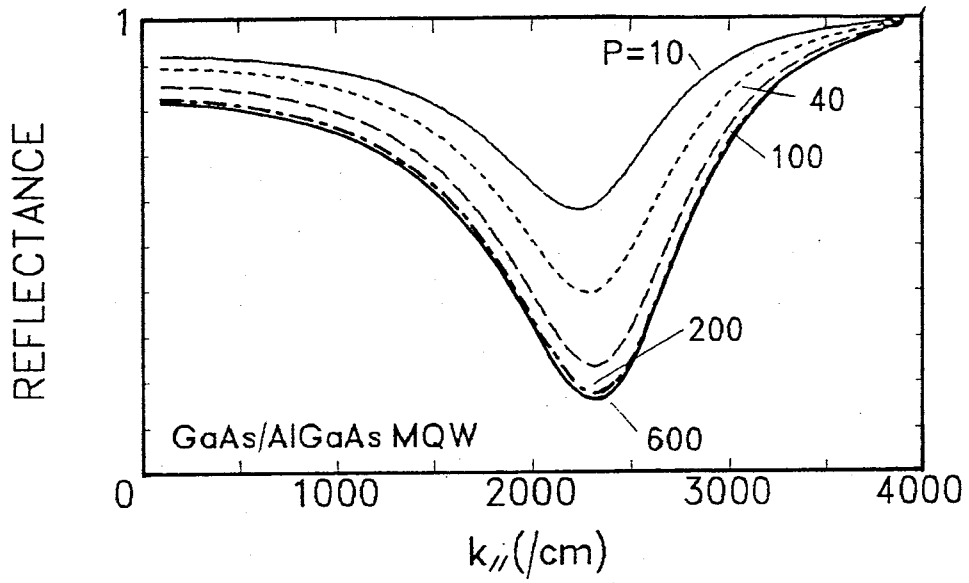


図 6.11 MQW試料の周期数を変化させた場合の角度スキャンATRスペクトル。入射光の周波数は  $280\text{cm}^{-1}$ 、空気層厚は  $3\mu\text{m}$ 、各 GaAs 層と AlGaAs 層の厚さは共に  $10\text{nm}$ 。

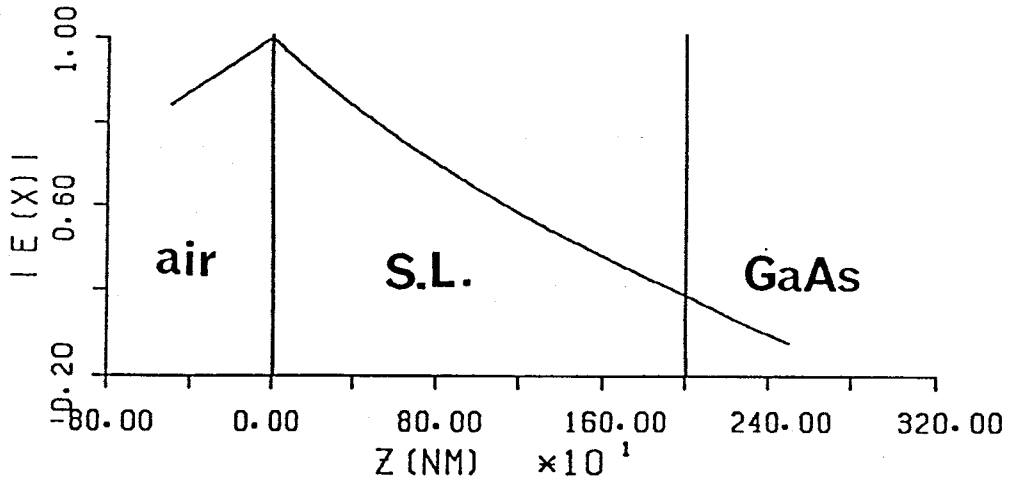


図 6.12 周期数 100 の MQW 試料における  $|E_x|$  の深さ方向分布。入射光の周波数は  $280\text{cm}^{-1}$ 。

同じ形状となった。L が小さい場合は MQW 層内に局在する SP のエネルギーは容易に基板側へと逃げるため十分な共鳴スペクトルが得られない。しかし、L が増加するにつれ MQW 層の厚さが大きくなり、基板側へと逃げ出す SP のエネルギーが減少していくことに対応する。以上の説明は、次に示す  $|E_x|$  の深さ方向分布を描ことで容易に理解される。

L = 100 の場合について、 $|E_x|$  の深さ方向分布の計算結果を図 6.12 に示す。半無限 MQW の場合と同様に、MQW / 空気界面で最大となる電界分布が得られた。また、式 2.38 によって得られる  $\lambda$  の値についても、その虚数部は実数部に比べ無視できるとの結果を得た。すなわち、有限周期の MQW においても、SP の励起によって反射率の減衰が生じていることが確認された。

周期数 100 の場合では MQW / GaAs 界面での電界強度は、MQW / 空気界面の 40 パーセント程度もあり、SP のエネルギーのかなりの部分が GaAs 基板側に存在していることがわかる。このことが、先に述べた L の値による減衰強度の違いの原因となっている。

次に、GaAs / AlAs MQW 試料 (GaAs 層幅、AlAs 層幅共に 10nm) について ATR 理論曲線を計算した。これは、本研究にあたって入手した MQW 試料が GaAs / AlAs 構造であるので、次節に示す ATR 信号の実測値がどのようになるを予測するために行ったものである。計算においては、試料の周期数が半無限の場合と 25 周期の場合を考え、空気層の厚さを  $3\ \mu\text{m}$  とし、入射角を 35 度に固定した周波数スキャン ATR 法に対して行っ

た。AlAs 層と GaAs 層がそれぞれ S P 活性となる領域に注目して、 $200\text{cm}^{-1}$  から  $450\text{cm}^{-1}$  の範囲で計算した結果を、図 6.13 に示す。

図 6.13 ( a ) に示す半無限試料の場合、反射率の減衰部が数多く見られる。 $360\text{cm}^{-1}$  ~  $290\text{cm}^{-1}$  の間には、バルクポラリトンの励起による反射率の減衰が見られる。また、( b ) に示す 2.5 周期試料の場合、バルクポラリトン励起による反射率の減衰が見られない。バルクポラリトンは導波的に試料内部を伝搬するモードであり、有限な MQW では導波モードとなる。 $270\text{cm}^{-1}$  ~  $290\text{cm}^{-1}$  における反射率の減衰部分と、 $370\text{cm}^{-1}$  ~  $405\text{cm}^{-1}$  における反射率の減衰部分がいわゆる S P の励起による反射率の減衰である。

GaAs/AlGaAs MQW の場合との大きな違いは、GaAs の光学格子振動に由来する S P の励起による  $280\text{cm}^{-1}$  付近の反射率の減衰部分と、AlAs の光学格子振動に由来する S P の励起による  $380\text{cm}^{-1}$  付近の反射率の減衰部分がともに 3 つの部分に分かれて見られることである。3 つの減衰部分のうち最も周波数が大きいものは、GaAs/AlGaAs MQW 試料においても観測された、仮想モードの励起による減衰であり、残り 2 つは表面モードの励起による反射率の減衰である。GaAs/AlGaAs MQW の場合は AlGaAs 層でのダンピングが大きいため、これらの 3 つのモードが分離されなかったと考えられる。半無限 MQW においては、それぞれの減衰の形状は、ローレンツ型である。一方 2.5 周期の場合は、 $280\text{cm}^{-1}$  での減衰の形状は非ローレンツ型であり、この原因は、MQW 層の厚さがモードを分離するには十分でないため、3 つのモードが重なりあって一つの減衰部分を形成していることによる。2.5 周期試料の場合、 $380\text{cm}^{-1}$  付近の反射率減衰は、 $370\text{cm}^{-1}$  と  $405\text{cm}^{-1}$  の 2 つのディップ (反射率が減衰している部分) から構成され、見かけ上幅が広がっている。これは、周期数 2.5 周期の GaAs/AlAs MQW では MQW 層の厚さが十分でないためモードが分離されなかったことが原因である。

図 6.13 ( b ) の  $380\text{cm}^{-1}$  付近における、2 つの反射率の減衰の由来を明らかにするため、 $373\text{cm}^{-1}$ 、 $397\text{cm}^{-1}$  の周波数について、電界の MQW 表面に平行な x 方向成分  $E_x$  の深さ ( z ) 方向強度  $|E_x|$  分布を計算した。比較のため、 $280\text{cm}^{-1}$  での計算も行った。その計算結果を図 6.14 に示す。この図では、MQW 試料表面 ( z = 0 ) での  $|E_x|$  の値を 1 としてある。

いずれの周波数とも、MQW / 空気界面における  $|E_x|$  は、極大となっている。 $280\text{cm}^{-1}$  での  $|E_x|$  は、基板中において、深さ方向に対して減衰していく。このことは、 $280\text{cm}^{-1}$  での S P は、GaAs の格子振動に由来するものである事を考えれば、GaAs 基板中でも MQW / GaAs 界面に S P が存在していることを示す。一方、 $373\text{cm}^{-1}$ 、 $397\text{cm}^{-1}$  の  $|E_x|$  については、GaAs 基板は S P 不活性であり、しかも、これらの周波数では格子振動のダンピングがほとんど無視できるので  $|E_x|$  の値は深さ方向に対して変化がない。

$373\text{cm}^{-1}$  の  $|E_x|$  は、MQW 層内で深さ方向に指数関数的に減衰し、式 2.38 中の  $\lambda$  の実数部が虚数部に比べ十分大きいので、AlAs の格子振動が関与した S P がこの周波数で励起されていると結論づけられる。しかし、 $397\text{cm}^{-1}$  の  $|E_x|$  は、表面で最大となっはいるが、AlAs の比誘電率に着目すると、通常の S P 励起とは事情が異なることがわかる。 $397\text{cm}^{-1}$  では、誘電率の実部は負であるものの、虚数部と実数部の絶対値を比較すると、ほとんど大きさが同じである。また、GaAs と AlAs の誘電率の実部の絶対値を比較すると、GaAs の方が値が大きいので、AlAs/GaAs 界面に S P が励起する条件を満たさないことがわかる。

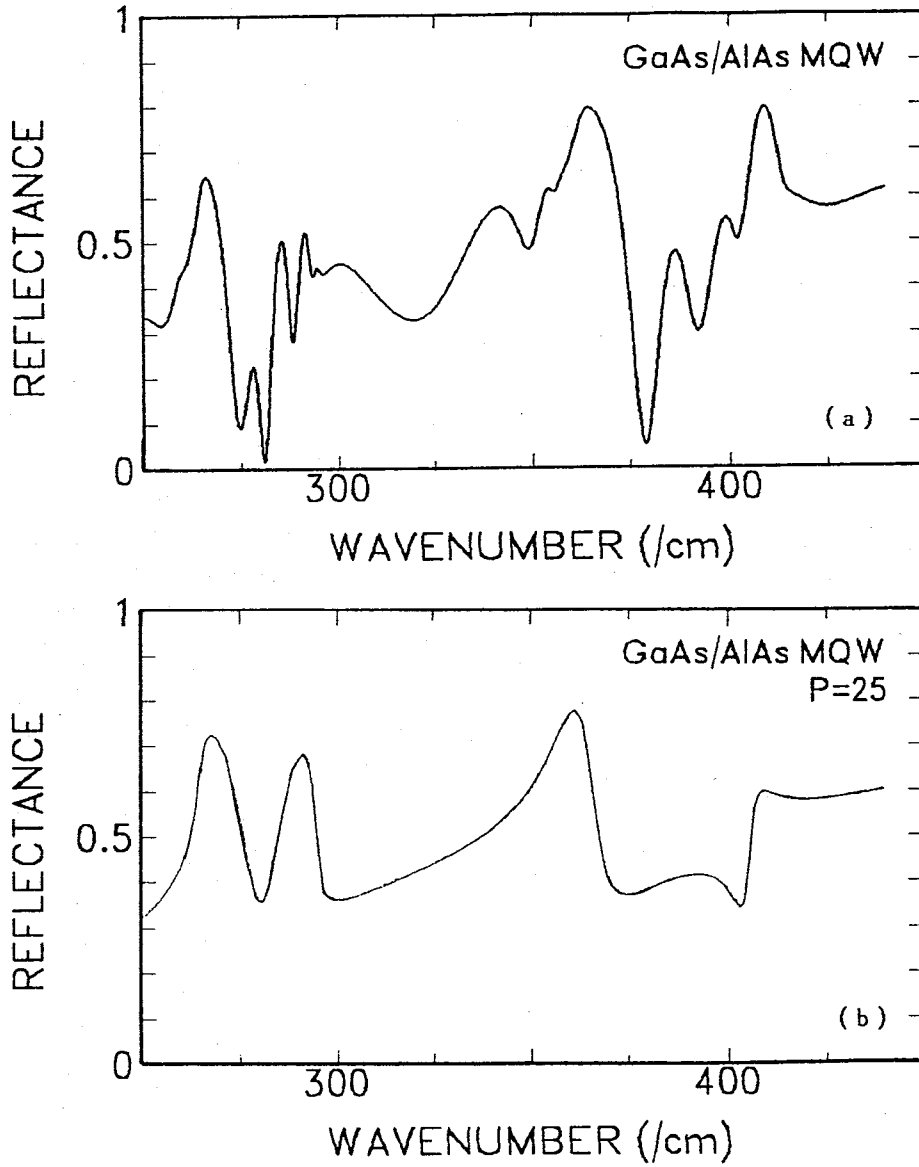


図 6.13 GaAs/AlAs MQW試料のATRスペクトル。(a)と(b)は、それぞれ半無限周期と25周期のMQW試料に対するATRスペクトル。入射角は35度、空気層幅は $3\mu\text{m}$ 、GaAs層とAlAs層の幅は共に10nm。



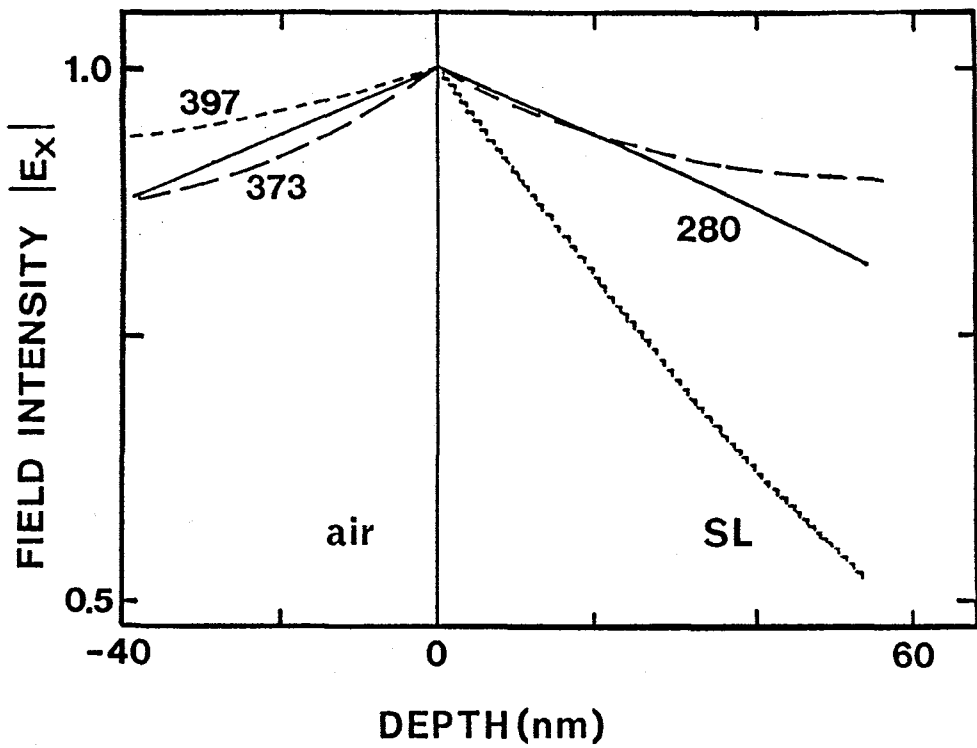


図 6.14 GaAs/AlAs MQW 試料における  $|E_x|$  の深さ方向分布。入射光の周波数を  $280$ 、 $373$ 、 $397\text{cm}^{-1}$  と変化させた場合の計算結果。入射角は  $35$  度、空気層の幅は  $3\ \mu\text{m}$ 。

このようなモードは、損失が大きく、通常、我々がS Pと呼んでいる Fano モードタイプの S P ではなく<sup>13-16</sup>、先ほどの GaAs/AlGaAs MQW 試料でみられた仮想モードであると結論づけられる。

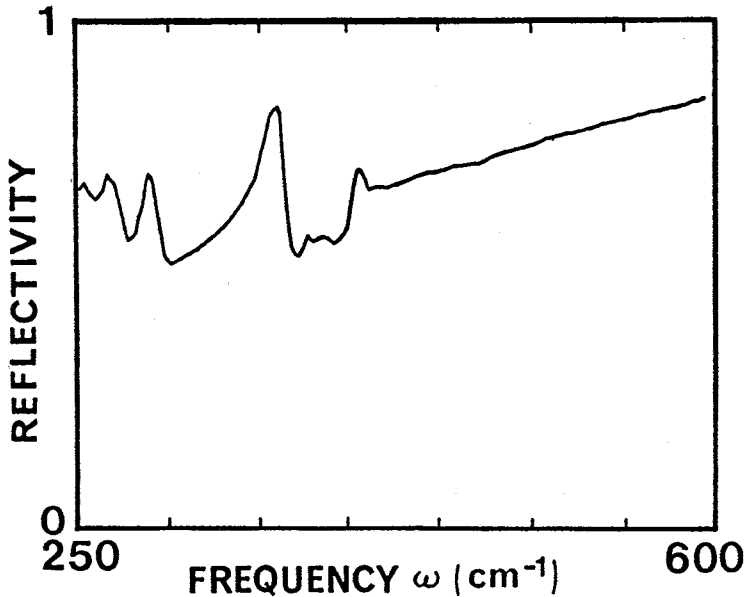


図 6.15 実験によって得られた GaAs/AlAs MQW 試料の ATR スペクトル。入射角は 35 度、GaAs 層と AlAs 層の幅は共に 10.2nm。

### 6.3 GaAs/AlAs 多重量子井戸試料に対する実験結果の解析

MQW 試料として、GaAs 層と AlAs 層ともに 10.2nm の厚さを持ち、GaAs 層と AlAs 層の 2.5 周期の GaAs/AlAs MQW 試料を用意した。GaAs / AlAs MQW 試料に対する周波数スキャン ATR 測定は、第 3 章に示した測定系で行った。OTTO 配置で必要な空気層は、厚さ 3 μm のフィルムに窓を付け、試料と共にプリズムに押しつけることでもうけた。TM (p) 偏光の入射光の入射角は、35 度とした。また、測定の周波数領域は、250cm<sup>-1</sup> から 600cm<sup>-1</sup> までであり、その周波数分解能は 1cm<sup>-1</sup> である。

図 6.15 の実線が、測定された ATR スペクトルである。280cm<sup>-1</sup> と 380cm<sup>-1</sup> 付近に、明らかな反射率の減衰がある。それぞれの特徴として、280cm<sup>-1</sup> の減衰は比較的鋭く、380cm<sup>-1</sup> の減衰は幅が広く、370cm<sup>-1</sup> 付近と 395cm<sup>-1</sup> 付近に中心周波数がある 2 つの減衰ピークの合成からなる形状と考えることもできる。なお、270cm<sup>-1</sup> 以下の周波数では、KRS-5 の透過率が非常に悪くなるため、スペクトルのデータは信頼性に欠ける。

前節での理論計算結果 (図 6.14) と比較すると、280cm<sup>-1</sup> と 380cm<sup>-1</sup> の減衰は、それぞれ GaAs での格子振動と AlAs での格子振動に由来する SP の励起に対応することが分かる。また、380cm<sup>-1</sup> 付近での幅の広い減衰も予測された通りである。370cm<sup>-1</sup> から 390cm<sup>-1</sup> 付近で、理論計算では現れなかった、反射率が波打つような変化が観測されている。その原因としては、MQW (や SL) 構造をとることによる AlAs 層での格子振動が折り返され

る<sup>17</sup>効果の影響であると思われるが、その詳細は現段階では不明である。このことは、格子振動の折り返しがより強く現れるような、GaAs/AlAsの周期長の短い試料にたいしてATR測定を行えばよりはっきりと分かるであろう。この格子振動の折り返しの効果に関しては、次章で詳細に取り扱う。

次に、GaAsとAlAsの誘電率パラメータおよび、空気層厚さを変化させることで、ATRスペクトルの理論計算結果の実測結果に対するベストフィットを行った。GaAs層とAlAs層の誘電率は、式6.1で表現されるとし、バッファ層と基板層は区別なく、GaAsで構成されているとした。また、GaAs井戸層とAlAs障壁層の厚さは、ともに10.2nmとして固定した。ここで、式6.1における誘電率パラメータは、 $\epsilon_\infty$ 、 $S$ 、 $\omega_{TO}$ 、 $\nu$ の4つ存在し、GaAsとAlAsの系では、誘電率パラメータは8つ(=4×2)となる。

図6.16が、ベストフィットさせた理論計算ATRスペクトル(破線)と実験結果(実線)との比較である。丸で囲んである部分は拡大した図を示してある。270cm<sup>-1</sup>以下をのぞいては、全体的にみて一致している。

この270cm<sup>-1</sup>以下の不一致は、(1)KRS-5は、この付近から低周波数側で光の吸収が生ずるのに対して、計算した式にはKRS-5での吸収の効果が入っていないこと、(2)この付近での光の吸収によって、実測データの誤差が大きくなったこと、(3)屈折率の周波数分散によってプリズム底面において入射光を平行にできなくなったこと、が原因と考えられる。

そのほかに、280cm<sup>-1</sup>と380cm<sup>-1</sup>付近の反射率の減少している部分にわずかな不一致がみられる。280cm<sup>-1</sup>付近では、反射率の減少の程度が異なり、380cm<sup>-1</sup>付近では、375cm<sup>-1</sup>から390cm<sup>-1</sup>にかけての波打つような反射率の変化が理論計算では再現されていない。そして、400cm<sup>-1</sup>付近の反射率の立ち上がり、理論計算では鋭すぎる。この不一致を説明できるものとしては、

1. MQW(SL)構造であることによって生じた光学格子振動の折り返しの効果と、
2. 光学格子振動のダンピングが周波数依存性を持っていることによる効果、
3. 特に280cm<sup>-1</sup>付近に関しては、KRS-5プリズムの吸収による効果、
4. 何らかの原因によって、半無限MQWで見られるように表面モードが2つに分離した、あるいは導波モードが励起されたことによる効果、
5. MQW層内のGaAs/AlAs界面に存在する振動モードが励起された効果、

などが考えられる。1.については、光学格子振動の折り返し効果を観測するには、MQWの周期長が長すぎるので考慮にいれる必要がないと考えられる。2.と3.と5.は、理論計算には取り入れていない。4.については、MQW層の厚さが1μm程度以上の時に観測される現象であるのに対して、本試料ではMQW層の厚さが0.5μmであるので不一致の原因とは考えにくい。2.と3.と5.が、不一致の原因である。

理論計算値のベストフィットによって得られた誘電率パラメータを、表6.1に示す。GaAs<sup>7</sup>、AlAs<sup>8</sup>についての文献での値(表6.1)と比較すると、(1)今回得られたGaAsの横光学

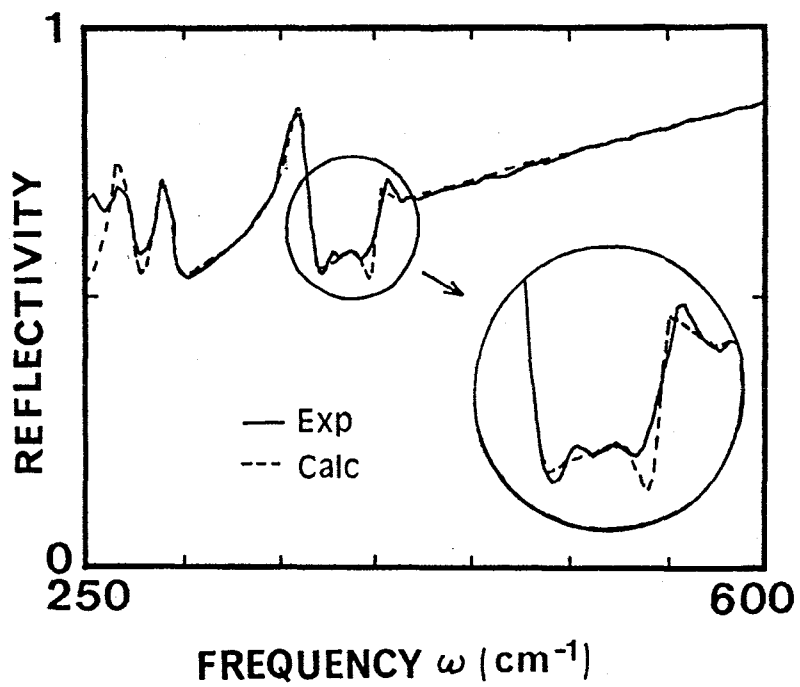


図 6.16 理論計算と実験結果によるATRスペクトルの比較。実線は実測スペクトル。破線はベストフィットによって得られた理論スペクトル。

格子振動の周波数 $\omega_{TO}$ の値が、文献の値に比べ低周波数側にあること、(2) 今回の AlAs の格子振動のダンピングの大きさが、文献の値に比べずいぶん小さいこと、がわかる。

まず、GaAs の $\omega_{TO}$ に関して考える。振動周波数のズレを生ずる原因としては、GaAs 層にかかる応力、格子振動の非調和振動性などがある。MQW 構造では、格子定数や熱膨張率の異なる 2 種類の物質を極めて短い周期長で交互に積み重ねるので、各層に大きな応力が存在しやすい。GaAs/AlAs の組み合わせでは、GaAs 層に引っ張り応力、AlAs 層に圧縮応力が加わる<sup>18</sup>。GaAs 層での引っ張り応力と AlAs 層での圧縮応力は、横光学格子振動周波数 $\omega_{TO}$ を、それぞれ、低周波数側と高周波数側へシフトさせる。ところが、表 6.1 中の AlAs の $\omega_{TO}$ は、文献の値よりも低周波数側へシフトしている。したがって、GaAs の $\omega_{TO}$ の低周波数側へのシフトは、応力による $\omega_{TO}$ のシフトだけでは説明ができない。

結晶中で、格子振動の非調和振動性が強い場合、 $\omega_{TO}$ の値は低周波数側へシフトし、格子振動のダンピングが周波数依存性を示すことが知られている<sup>19</sup>。ベストフィットで得られた AlAs の $\omega_{TO}$ が、文献の値よりも低周波数側にあることは、非調和振動による効果が無視できない事を示している。さらに、MQW (SL) 構造での各層に存在する応力は、非調和振動を増大させる。GaAs/AlAs MQW の各層の厚さは 10.2nm であり、各層で応力が加わった状態となっている。一方、文献の試料の厚さは、GaAs については 200  $\mu\text{m}$ 、AlAs については 1.2  $\mu\text{m}$  であり、この場合、応力の影響はなかったものと考えられる。

次に、AlAs の格子振動におけるダンピングの大きさの違いについて考える。ダンピングの大きさは、AlAs 膜と GaAs/AlAs 界面の質の程度を表すと考えられる。AlAs 膜の質を決定するものは、結晶性、不純物の濃度、キャリア密度、およびそれらの均一性と、AlAs 膜厚の均一性がある。ここで用いた試料は、故意に不純物を添加していない試料であり、キャリア密度は  $10^{15}\text{cm}^{-3}$  以下である。このキャリア密度の数値は、最近の MBE 技術で不純物を添加しない MQW 試料としては、最も良好な部類にはいる。また、各層の膜厚の均一性・結晶性と GaAs/AlAs 界面の滑らかさは、PR 測定 (第 4 章と第 5 章) から良い試料であることがわかっている。したがって、ベストフィットで得られた AlAs の格子振動のダンピングの大きさは、MQW 部分の AlAs 層の質が高い事によって得られたものである。

## 6.4 まとめ

A T R法を用いることによって、M Q W構造におけるS Pが励起・観測できることを、GaAs/AlGaAs半無限M Q W試料を想定した理論計算によって証明した。また、S Pの励起・観測を通じて、どのような情報が得られるかの検討を理論計算によって調べた。

さらに、実際のGaAs/AlAs M Q W試料を用いて、周波数スキャンA T Rスペクトルを測定し、理論計算結果との比較により、GaAsとAlAsの誘電率パラメータを得た。その結果、AlAsの格子振動のダンピングはこれまでの報告より小さい値であることがわかった。また、理論計算では予測されなかったスペクトル構造が存在することがわかった。この構造の原因として、今回考慮にいれなかった、格子振動の非調和振動的な効果・超格子構造特有の格子振動の折り返しの効果が考えられる。この格子振動の折り返しの効果に関しては、次章で取り扱う。

以上のことは、A T R法によるS Pの励起・観測によって、半導体M Q W (S L)の物性評価が可能であること、A T R法が半導体M Q W (S L)の物性評価を行う上で極めて有効な手法であることを示している。

## 参考文献

- 1 M.Fukui, and K.Matsugi, J. Phys. Soc. Jpn., 56, 2964(1987).
- 2 Y.Nagano, K.Matsugi, M.Haraguchi, and M.Fukui, J. Phys. Soc. Jpn, 58, 733(1989).
- 3 R.E.Camley, and D.L.Mills, Phys. Rev., B29, 1695 (1984).
- 4 B.L.Johnson, J.T.Weiler, and R.E.Camley, Phys. Rev., B32, 6544 (1985).
- 5 N.Raj, R.E.Camley, and D.R.Tilley, J. Phys. C 20, 5203(1987).
- 6 A.R.El-Gohary, T.J.Parker, N.Raj, D.R.Tilley, P.J.Dobson, D.Hilton, and C.T. R.Foxon, Semicond. Sci. Technol., 4, 338 (1989).
- 7 O.K.Kim and W.G.Spitzer, J. Appl. Phys.,50, 4362 (1972).
- 8 S.Perkowitz, R.Sudharanan, and S.S.Yom, Solid State Commun.,62, 645(1987).
- 9 M.J.Dodge, Section 1. in Handbook of Laser Science and Technology vol.4. Optical Materials:Part 2, ed. M.J.Weber (CRC Press,Inc., Boca Raton, Florida, 1986)p21.
- 10 P.E.Ferguson, R.E.Wallis, M.Belakhovsky, J.P.Jadot and J.Tomkinson, Surf. Sci., 76, 1127(1978).
- 11 E.T.Arakawa, M.W.Williams, R.N.Hamm and R.H.Ritchie, Phys. Rev. Lett., 31, 1127(1973).
- 12 R.W.Alexander, G.S.Kovener and R.J.Bell, Phys. Rev. Lett., 32, 154 (1974).
- 13 P.Halevi, Surf. Sci., 76, 64 (1978).
- 14 Surface Polaritons, ed. V.M.Agranovich and A.A.Maradudin (North-Holland, Amsterdam, 1982).
- 15 Electromagnetic Surface Modes, ed. A.D.Boardman (Wiley, New York, 1982).
- 16 M.Takabayashi, H.Shiba, M.Haraguchi and M.Fukui, J. Phys. Soc. Jpn., 61, 2550 (1992).



- 17 H.Chu, and Y.C.Chang, *Phys. Rev.*, B38, 12369(1988).
- 18 N.Nishioka, Y.Shinoda and Y.Ohmachi, *J. Appl. Phys.*, 57, 277(1985).
- 19 K.Hisano, F.Placido, A.D.Bruce and G.D.Holah, *J. Phys.*, C5, 2511(1972).

## 第 7 章

# 超格子試料の全反射減衰 (ATR) 法を用いた評価

### 7.1 序論

半導体において、赤外領域で誘電率に支配的な影響を与えるものは、光学格子振動とキャリアによるプラズマ振動である。超格子構造となった半導体では、最小単位となる結晶格子の大きさが、バルクと異なるので、波数空間における格子振動の分散関係は、ある波数で折り返され、複数の振動モードがあらわれる現象が見られる<sup>1-3</sup>。その結果、誘電率はバルクの場合と異なり、複雑な周波数分散を示すはずである。これまでの超格子における格子振動の研究は、(a) どのような振動モードがあらわれるか、(b) 振動モードの分散関係はどうか、(c) 振動を観測することで超格子構造の周期や結晶の質の評価が可能か、等の点に重点がおかれ、誘電率そのものがどの様になるのか、という視点が欠けていた。

そのような状況の中、半導体超格子の誘電率に関する研究が、1988年に Chu と Chang<sup>3</sup> によって報告された。彼らは、超格子を一つの結晶と考え、超格子の格子振動の分散関係を計算し、さらに分極の計算から誘電率の理論的表記を求めた。その結果によれば超格子の誘電率は異方性をもち、誘電率の表式は複数の振動子による項の和で与えられる。

この章では、彼らの視点とは異なり、薄膜を積み重ねて超格子構造を構成した場合、各薄膜の誘電率はどの様に表され、その結果超格子の誘電率の表式はどの様に理論的に表されるかを議論する。この取扱いは、各薄膜の物性的な興味はもちろんであるが、超格子における S P の性質を調べる上でも重要である。これは、超格子や多重量子井戸構造では、各層界面での S P の重ね合わせによって、超格子の S P が表されるからである。

さらに、誘電率の表式を求めた後、GaAs/AlAs 超格子における S P の ATR 信号を求め、さらに ATR 法による S P の励起・観測を行う<sup>4</sup>。

## 7.2 超格子の誘電率

キャリアによるプラズマ振動および不純物による寄与を無視できる場合、光により強制振動させられる各原子の振動の様子を求めることによって、超格子構造の誘電率が得られる。

そこで、まず超格子における格子振動の基本的な振る舞いを探るために、一次元モデルを採用し<sup>1,2</sup>、誘電率の計算を試みる。ここでは、GaAs/AlAs 超格子など、2種類の閃亜鉛鉱型構造半導体からなる超格子を考える。

結晶の $j001j$ 軸方向に、GaAs層とAlAs層を積み重ねて作る超格子では、Ga（またはAl）原子とAs原子に着目すると、Ga（またはAl）原子のみからなる層とAs原子のみからなる層が $j001j$ 軸に対して垂直な配置となるように交互に配列しているとみなすことができる。ここで、 $j001j$ 方向に平行な波数ベクトル $k$ を持つ格子振動を扱う場合、 $j001j$ 方向への位置関係が同じ原子であれば、 $j100j$ および $j010j$ 方向への動きは同一であるので、各層を剛体として取り扱うことができる。したがって、 $j001j$ 方向に平行な波数ベクトルをもつ格子振動に対しては、超格子の格子振動を一次元鎖のモデルにより解析することが可能である<sup>1,6</sup>。この時、ある角振動数 $\omega$ の光に対する誘電率は、光によって原子列が強制振動させられる場合の、各原子の変位で生ずる分極によって求めることができる。

GaAs/AlAs S Lが、図7.1(a)に示すような一次元鎖モデルによって表現できるとする。すなわち、GaAs、AlAs各層のIII族原子とV族原子の対がそれぞれ、 $m$ 組、 $n$ 組からなる超格子を考える。この時、GaAs層の厚さは、GaとGaの原子面の間隔が $2.83[\text{\AA}]$ であるので、 $2.83 \times m [\text{\AA}]$ の厚さとなる。AlAs層の厚さについても同様にして、 $2.83 \times n [\text{\AA}]$ となる。母体となるGaAs（あるいはAlAs）バルク結晶のブリルアンゾーンは、 $-\pi/c[\text{\AA}^{-1}]$ から $\pi/c[\text{\AA}^{-1}]$ （ただし、 $c=2.83[\text{\AA}]$ ）であるが、図7.1(a)に示す超格子では、 $z$ 方向の軸の長さが $(m+n)$ 倍となるので、ブリルアンゾーンは、 $-\pi/(m+n)c[\text{\AA}^{-1}]$ から $\pi/(m+n)c[\text{\AA}^{-1}]$ となる。その結果、図7.1(b)に示すように、光学および音響格子振動モードが折り返され、モードの数が増加する。

図7.1のモデルで誘電率を計算するには、外部から強制振動が加わった時の各原子の変位から分極を計算すれば良い<sup>3,5,6</sup>。分極が求まれば、誘電率の値は簡単に求められる。各原子の変位ベクトルをまとめて一次元行列 $u$ とすると、原子の運動方程式は行列で書き表すことができ、

$$M \frac{d^2}{dt^2} u = F u - \Gamma \frac{d}{dt} u + z E_{loc} \quad (7.1)$$

となる。ただし、 $M$ は各原子の質量を表す対角行列、 $F$ は各原子間の結びつきを表すバネ定数行列、 $\Gamma$ は振動する早さに比例する減衰項の比例定数行列、 $z$ は各原子の有効電荷を表す行列、 $E_{loc}$ は各原子に働く局所電界をあらわすベクトルをまとめた一次元行列である。また、一次元行列を除き、各行列のサイズは $2(m+n) \times 2(m+n)$ である。

GaAs層、AlAs層の各層内で局所電界は一定とすると、要素の数が $2(m+n)$ であった局所電界を表す行列は、要素が $m$ と $n$ の2つの部分行列に分けることができ、

$$E_{loc} = \begin{bmatrix} E_{loc, GaAs} \\ E_{loc, AlAs} \end{bmatrix} \quad (7.2)$$

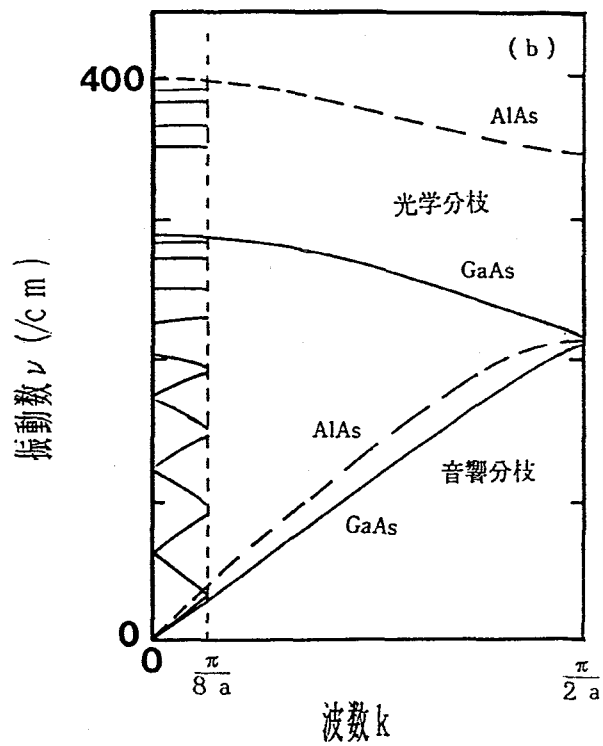
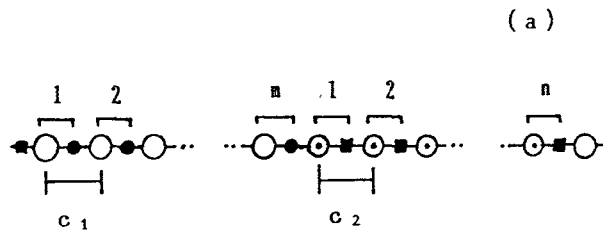


図 7.1 一次元鎖モデルによる格子振動の分散関係。(a) は一次元鎖モデル、(b) はその格子振動の分散関係。

$$E_{loc,GaAs} = E + \frac{P_{GaAs}}{3\epsilon_0} \quad (7.3)$$

$$E_{loc,AlAs} = E + \frac{P_{AlAs}}{3\epsilon_0} \quad (7.4)$$

と与えられる。ただし、 $E$ は外部電界ベクトルを要素とする一次元行列、 $\epsilon_0$ は真空の誘電率、 $P_{GaAs}$ はGaAs層内での分極、 $P_{AlAs}$ はAlAs層内での分極、 $E_{loc,GaAs}$ はGaAs層内での局所電界、 $E_{loc,AlAs}$ はAlAs層内での局所電界である。また、局所電界を表す行列の各要素はベクトル量である。

一方、分極ベクトル  $P$ は、各原子の相対変位によって生じたイオンの双極子モーメントの単位体積当りの和である。そこで、 $N_{GaAs}$ と  $N_{AlAs}$ を、それぞれGaAsとAlAsの単位体積あたりの原子対数とすれば、

$$P'_{GaAs} = \frac{N_{GaAs}}{n} (z_{GaAs} u_{GaAs} + \alpha_{GaAs} E_{loc,GaAs}) \quad (7.5)$$

$$P'_{AlAs} = \frac{N_{AlAs}}{m} (z_{AlAs} u_{AlAs} + \alpha_{AlAs} E_{loc,AlAs}) \quad (7.6)$$

と各層の分極率  $P$ (ベクトル量) が与えられる。ここで、 $z_{GaAs}$ と  $z_{AlAs}$ は、それぞれGaAs層とAlAs層の各原子の有効電荷をあらわす一次元列行列であり、 $u_{GaAs}$ と  $u_{AlAs}$ は、それぞれGaAs層とAlAs層各原子の変位ベクトルを要素とする一次元行行列、また、 $\alpha_{GaAs}$ と  $\alpha_{AlAs}$ は、それぞれGaAs層とAlAs層の各原子の電子分極率を表す一次元列行列である。

式 7.2～式 7.4を考慮すると、

$$P_{GaAs} = B_{21,GaAs} u_{GaAs} + B_{22,GaAs} E \quad (7.7)$$

$$P_{AlAs} = B_{21,AlAs} u_{AlAs} + B_{22,AlAs} E \quad (7.8)$$

$$B_{21,j} = \left( I - \frac{N_j}{3\epsilon_0 k} \alpha_j \right)^{-1} \frac{N_j}{k} z_j \quad (7.9)$$

$$B_{22,j} = \left( I - \frac{N_j}{3\epsilon_0 k} \alpha_j \right)^{-1} \frac{N_j}{k} \alpha_j \quad (7.10)$$

と、書き表すことができる。ただし、ここでの  $P_{GaAs}$ と  $P_{AlAs}$ は、分極率を表す行列であり、 $I$ は単位行列である。  $j$ はGaAsまたはAlAs、 $k$ は  $j = \text{GaAs}$  のとき  $n$ 、 $j = \text{AlAs}$  のとき  $m$ を表す。また、 $B_{21,GaAs}$ と  $B_{22,GaAs}$ は  $2n \times 2n$ の行列、 $B_{21,AlAs}$ と  $B_{22,AlAs}$ は、 $2m \times 2m$ の行列である。

$u_{GaAs}$ と  $u_{AlAs}$ は  $u$ の部分行列であり、 $P_{GaAs}$ と  $P_{AlAs}$ は分極率を表す行列  $P$ の部分行列であるので、これらをまとめて、

$$u = \begin{bmatrix} u_{GaAs} \\ u_{AlAs} \end{bmatrix} \quad (7.11)$$

$$P = \begin{bmatrix} P_{GaAs} \\ P_{AlAs} \end{bmatrix} \quad (7.12)$$

となる。

式 7.7～式 7.12を考慮に入れると、上式は変位行列  $u$  と外部電界行列  $E$  を用いて、次の式にまとめることができる。

$$P = B_{21}u + B_{22}E \quad (7.13)$$

$$B_{21} = \begin{bmatrix} B_{21, \text{GaAs}} & 0 \\ 0 & B_{21, \text{AlAs}} \end{bmatrix} \quad (7.14)$$

$$B_{22} = \begin{bmatrix} B_{22, \text{GaAs}} & 0 \\ 0 & B_{22, \text{AlAs}} \end{bmatrix} \quad (7.15)$$

ここで、角周波数  $\omega$  の正弦波的な強制振動によって各原子に変位が生じていると仮定すると、その変位の大きさは  $\exp(-i\omega t)$  に比例する。したがって、運動方程式は、単位行列を  $I$  とおけば、式 7.1～式 7.12 より、

$$-\omega^2 M u = B_{11}u - i\omega \Gamma u + B_{12}E \quad (7.16)$$

$$B_{11} = F + \frac{Z B_{21}}{3\epsilon_0} \quad (7.17)$$

$$B_{12} = Z \left( I + \frac{B_{22}}{3\epsilon_0} \right) \quad (7.18)$$

と書き直すことができる。さらに再び式 7.11 と式 7.12 を用いて、分極率  $P$  を変位  $u$  を用いることなく表現できる。すなわち、

$$P = -B_{21}(M^{-1}B_{11} + \omega^2 I - i\omega M^{-1}\Gamma)^{-1}M^{-1}B_{12}E + B_{22}E \quad (7.19)$$

となる。したがって、各原子層での比誘電率を表す行列  $\epsilon$  は、 $D = \epsilon_0 E + P$  より、

$$\epsilon = I + \frac{B_{22}}{\epsilon_0} - \frac{B_{21}}{\epsilon_0}(M^{-1}B_{11} + \omega^2 I - i\omega M^{-1}\Gamma)^{-1}M^{-1}B_{12} \quad (7.20)$$

であたえられる。

以上の様に、GaAs / AlAs 超格子内の GaAs 層と AlAs 層の比誘電率は式 7.20 で表される。式 7.20 を用いて誘電率を計算するには、 $M$ 、 $\Gamma$ 、 $B_{11} \sim B_{22}$  の各行列の要素が必要である。 $M$  と  $\Gamma$  と  $B_{22}$  は対角行列であるので、各要素を簡単に求めることができる。 $M$  と  $\Gamma$  の各要素は、それぞれ各原子の質量と各原子に付随する格子振動のダンピングの値となる。 $B_{22}$  の各要素は、高周波での誘電率の値から求められる。そのほかの各行列の要素は、バルク結晶での横波光学格子振動周波数、縦波光学格子振動周波数、有効電荷、電子分極率から求められる。行列の各要素の具体的な決定法については、付録 C で述べる。なお、式 7.20 で計算される誘電率行列は、対角成分のみをもつ  $2(n+m) \times 2(n+m)$  行列となる。対角成分が、その位置での誘電率となる。

また、誘電率の計算には直接関係しないが、式 7.20 から、縦波光学格子振動周波数  $\omega_{LO}$  を求めることができる。各行列は、実数あるいは実数を要素とするベクトルから構成されている。縦波光学格子振動周波数  $\omega_{LO}$  は実数であるので、式 7.20 の虚数部を無視して、

$$I + \frac{B_{22}}{\epsilon_0} - \frac{B_{21}}{\epsilon_0}(M^{-1}B_{11} + \omega^2 I)^{-1}M^{-1}B_{12} = 0 \quad (7.21)$$

とにおいて、 $\omega$ について解けば、 $\omega_{LO}$ が求められる。このとき、超格子の構造、すなわち ( $n + m$ ) の値によって、解の個数が異なる。

以上述べた計算手続きで求められる誘電率が、具体的にどのような周波数分散を示すかを調べるため、GaAs / AlAs 超格子内の GaAs 層と AlAs 層の比誘電率を式 7.20 を用いてそれぞれ計算した。格子振動のダンピングの大きさは、バルクでの横波光学格子振動の周波数を  $\omega_{TO}$  とした時、 $0.015 \times \omega_{TO}$  で与えられるとした。したがって、表 6.1 の  $\omega_{TO}$  を用いると GaAs 層、AlAs 層におけるダンピングの値は、それぞれ、約  $4.0\text{cm}^{-1}$  と約  $5.4\text{cm}^{-1}$  である。また、各行列のパラメータは、Ga 原子と As 原子一組、あるいは Al 原子と As 原子一組だけの誘電率計算結果が、 $\omega_{TO}$  などの実際の誘電率定数から得られる結果と一致するように選んだ。GaAs の  $\omega_{TO}$  と  $\omega_{LO}$  の値はそれぞれ  $268$  と  $292\text{cm}^{-1}$ 、AlAs の  $\omega_{TO}$  と  $\omega_{LO}$  の値はそれぞれ  $362$  と  $404\text{cm}^{-1}$  とおいた<sup>7</sup>。GaAs/AlAs 超格子の GaAs 層と AlAs 層の厚さは、共に  $5.6\text{\AA}$  の超格子と、共に  $14.2\text{\AA}$  の超格子を計算のモデルとして選んだ。GaAs 層と AlAs 層厚さを原子対の組数に換算すると、 $5.6\text{\AA}$  の厚さは原子の対 (Ga と As、あるいは Al と As) が 2 組ずつであり、 $14.2\text{\AA}$  の厚さでは 5 組ずつである。

GaAs 層と AlAs 層の厚さをどちらも  $5.6\text{\AA}$  とした時の誘電率の実部に対する計算結果を図 7.2(a)、虚部を (b) に示す。また、GaAs 層と AlAs 層の厚さをどちらも  $14.2\text{\AA}$  とした場合の誘電率の実部と虚部の計算結果を、それぞれ図 7.3(a)、(b) に示す。どちらの図も実線が GaAs 層における計算結果であり、破線が AlAs 層における計算結果である。折り返しによって光学格子振動の周波数が複数あらわれたことにより、誘電率に複雑な周波数分散が見られる。たとえば、図 7.3 の GaAs 層の誘電率をみると、 $210\text{cm}^{-1}$  から  $300\text{cm}^{-1}$  の範囲に誘電率の極大と極小が 3 組ずつみられる。また、AlAs 層の誘電率には  $345\text{cm}^{-1}$  と  $380\text{cm}^{-1}$  に小さなピークが存在している。これらが、超格子における格子振動の折り返し効果が誘電率に現れた結果である。

図 7.2(a)、図 7.3(a) において興味深いのは、GaAs 層において周波数分散が特に著しい周波数領域で、AlAs 結晶単体では見られない周波数分散が AlAs 層で生じていることである。AlAs 層において周波数分散が著しい領域でも、GaAs 層に、GaAs 結晶単体では見られない周波数分散が生じている。また、誘電率の虚数部に注目すると、わずかではあるが、誘電率の虚数部が負になる部分が生じている。これらの現象を、例として  $285\text{cm}^{-1}$  付近の AlAs 層の誘電率分散について説明する。GaAs 層部分で格子振動が特に激しいとき、隣の AlAs 部分までその影響がおよび、その結果、AlAs 層内で本来生じないような分極が発生することによって、異常な誘電率分散が生ずる。このとき、GaAs 層の格子振動エネルギーが AlAs 層へと流入することにより、誘電率の虚部が負になってしまうのである。AlAs の光学格子振動周波数付近の現象は、GaAs と AlAs の立場を入れ換えて説明できる。GaAs と AlAs の光学格子振動の周波数領域 ( $\omega_{TO} < \omega < \omega_{LO}$ ) が離れているため、この計算結果にあらわれた隣の層での格子振動の伝達による分極の発生は比較的小さいはずである。超格子の素材として、光学格子振動の周波数領域がもっと近いもの、あるいは一部重なっているものを選べば、この効果は強く現れると予測される。

次に、式 7.20 で計算される誘電率と、古典振動子モデルで計算される誘電率との違いを明確にするため、今まで計算された結果を、古典振動子モデルによる誘電率の計算結果と

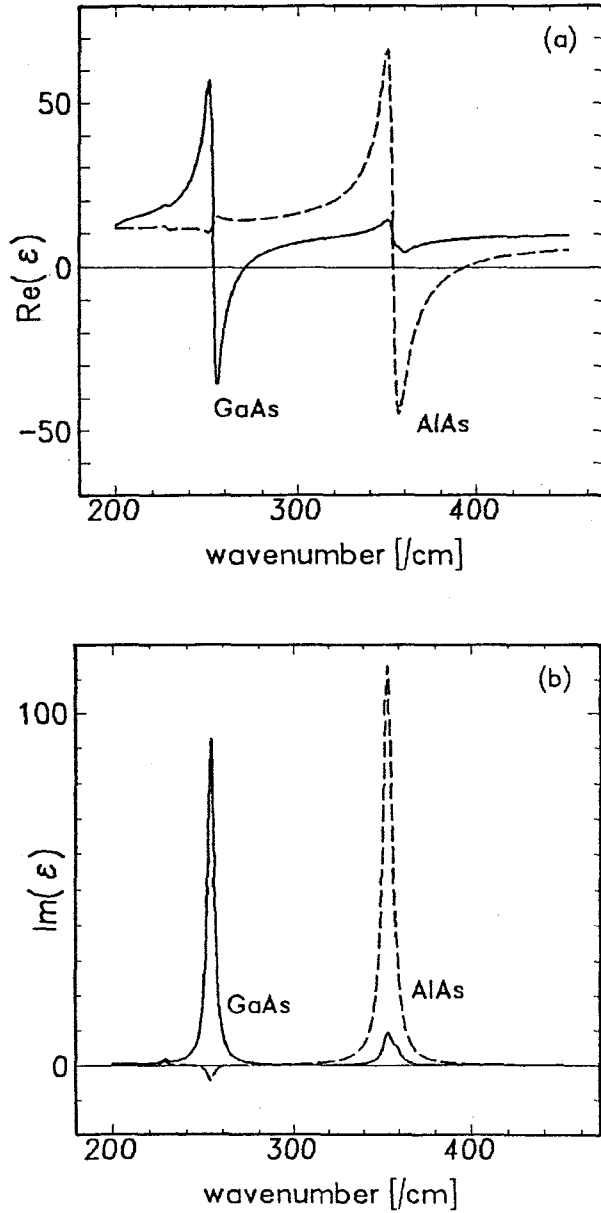


図 7.2 GaAs/AlAs(5.6Å/5.6Å) S L の誘電率。(a) と (b) はそれぞれ、誘電率の実部と虚部を表す。実線は GaAs 層の誘電率であり、破線は AlAs 層の誘電率である。



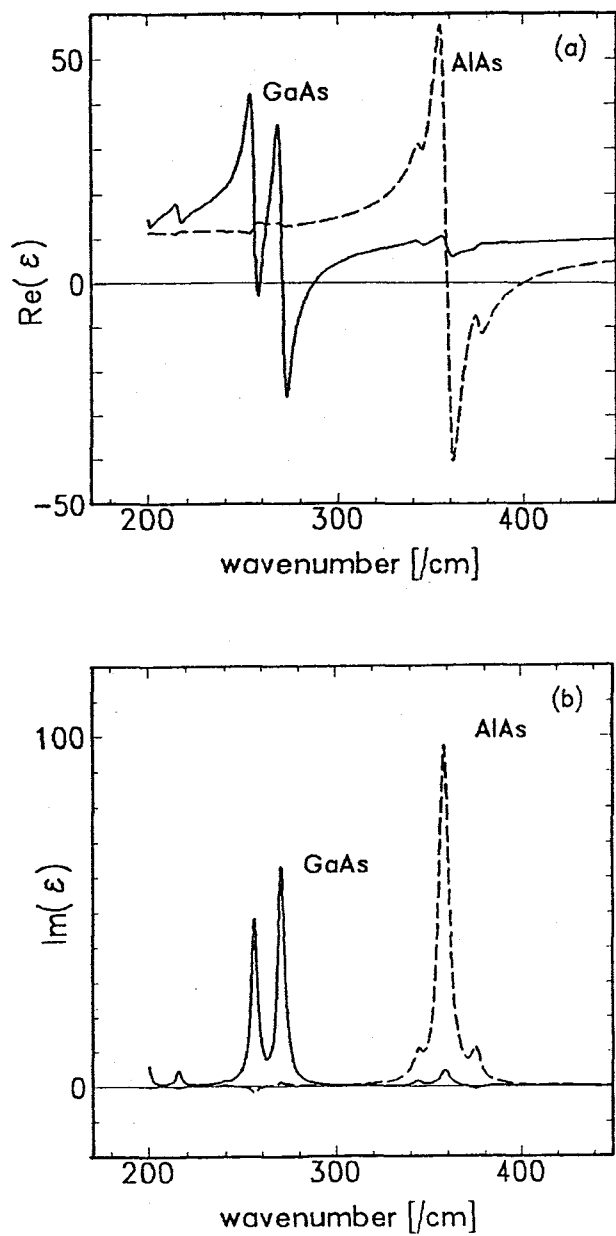


図 7.3 GaAs/AlAs(14.2Å/14.2Å) S L の誘電率。(a) と (b) はそれぞれ、誘電率の実部と虚部を表す。実線は GaAs 層の誘電率であり、破線は AlAs 層の誘電率である。

比較してみる。古典振動子モデルでは誘電率 $\epsilon$ を、

$$\epsilon = \epsilon_{\infty} + \sum_{j=1}^L \frac{S_j \omega_{TOj}^2}{\omega_{TOj}^2 - \omega^2 - i\nu_j \omega} \quad (7.22)$$

で表示できるとする<sup>5,6</sup>。ただし、ここで $j$ は、振動子の個数である。結晶が混晶である場合を除き、GaAs の様な立方晶の III - V 族半導体では、振動子の個数は 1 である。

式 7.22 を用いて、各パラメータを操作し、図 7.2 と図 7.3 に対してベストフィットさせたものが、それぞれ図 7.4、7.5 である。実線が一次元モデルでの各層の誘電率の計算結果であり、点線が式 7.22 において  $L = 1$  とした計算結果である。図 7.4 では点線と実線は比較的良く一致しているが、図 7.5 では両者の食い違いが大きい。

とくに図 7.5 において、式 7.20 を用いた計算結果は、振動子が複数個ある様な形状が顕著であり、古典振動子モデル (式 7.22) において  $L = 1$  とした計算結果とかなり異なることがわかる。そこで、振動子を複数個とした場合を考える。超格子では、格子振動の折り返しによって複数の  $\omega_{TO}$  と  $\omega_{LO}$  が存在するのであるから、式 7.22 で表現される振動子の項が複数個存在する場合も考慮する必要がある。式 7.22 において、形式的に  $L = 2$  として計算された誘電率が、図 7.5 の破線である。となりの層の激しい格子振動の影響による周波数分散は表現できないが、良い近似を与えていることがわかる。

図 7.4 と 7.5 における各層の誘電率の周波数分散の形状をみると、計算された例の範囲では、古典振動子モデルで表現が可能であることがわかる。図 7.4 では 1 個の振動子を考慮したモデル、図 7.5 では 2 個の振動子を考慮したモデルで近似される。すなわち、GaAs/AlAs 超格子において計算した例では、近似としてとなり合う層からの影響を無視し、最も振動子強度が大きい項で表現することができる。その誘電率変化をさらに正確に表現するためには、層自身と隣合う層の折り返し光学格子振動について考慮することが必要となる。

超格子において、誘電率と格子振動の基本的な性質およびその傾向は、一次元モデルで十分考察ができる。しかしながら、一次元モデルでは、波数ベクトルが  $z$  方向以外の向きであるような格子振動の取扱いができないという欠点を持つ。そこで、3 次元的な運動方程式から出発した、誘電率の計算を行う必要がある。

3 次元的取扱いをおこなった超格子の誘電率は、Chu と Chang によって計算されている<sup>3,5</sup>。計算方法について述べると、ほとんど繰り返になってしまうので、結果のみふれる。彼らは、計算を簡単にするため、ダンピングの項を除外した形の誘電率表式を理論計算によって求めた。そこでは、超格子を一つの単結晶として考えている。最終な超格子の誘電率表式は、振動子を複数個おいた古典振動子モデルで表現でき、超格子層成長方向とそれと垂直な方向とで異方性を持つという結論を得た。古典振動子モデルではダンピングの項は、式 7.22 のように分母にはいるので、ダンピングを含めると、誘電率は次のように書き表される。

$$\epsilon_x = \epsilon_{x\infty} - \sum_j \frac{R_{Tj}}{\omega^2 - \omega_{Tj}^2 + i\nu_{Tj}\omega} \quad (7.23)$$

$$\frac{1}{\epsilon_z} = \frac{1}{\epsilon_{z\infty}} + \sum_j \frac{R_{Lj}}{\omega^2 - \omega_{Lj}^2 + i\nu_{Lj}\omega} \quad (7.24)$$

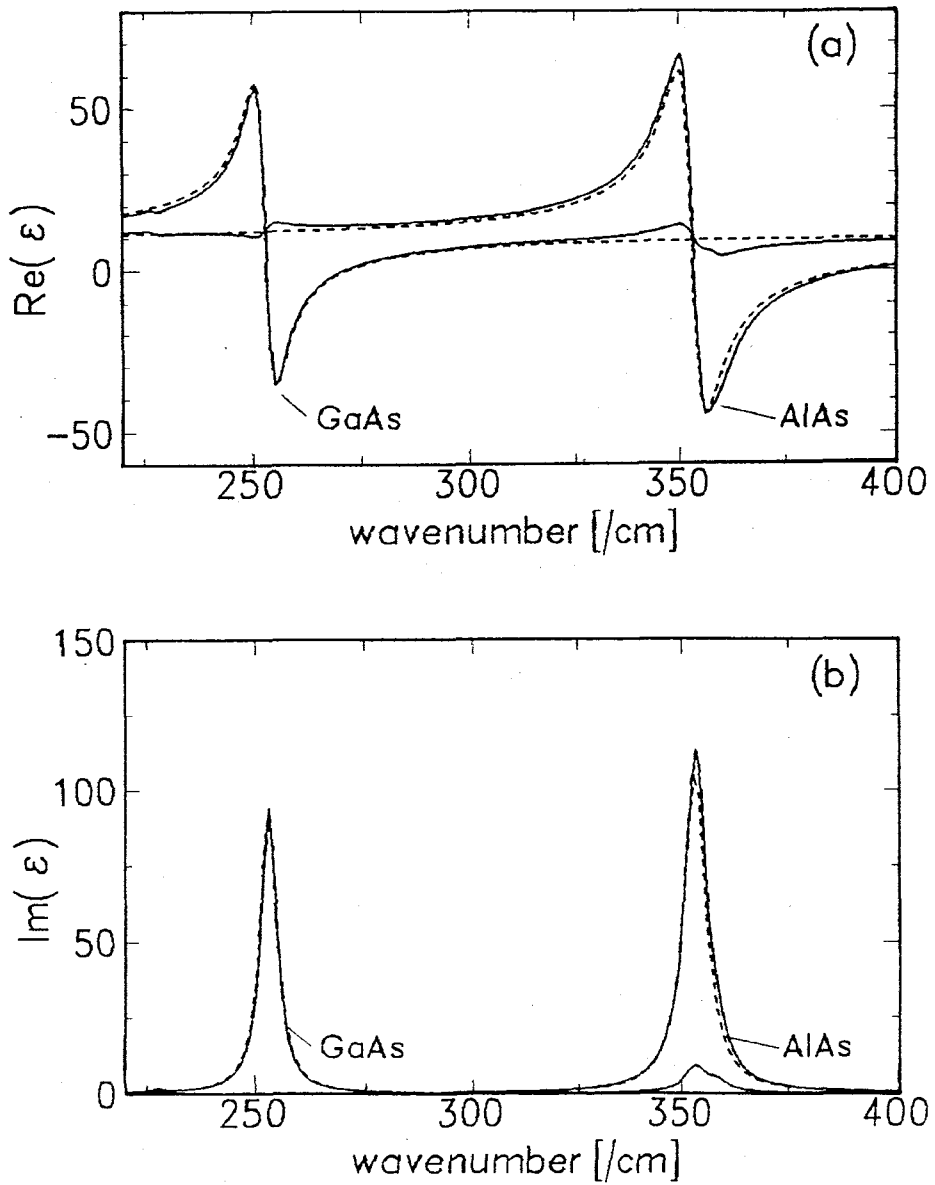


図 7.4 GaAs/AlAs( $5.6\text{\AA}/5.6\text{\AA}$ ) SL における誘電率波長分散。(a) と (b) はそれぞれ、誘電率の実部と虚部を表す。点線は振動子の個数を 1 個にした計算結果であり、破線は振動子の個数を 2 個としたもの。

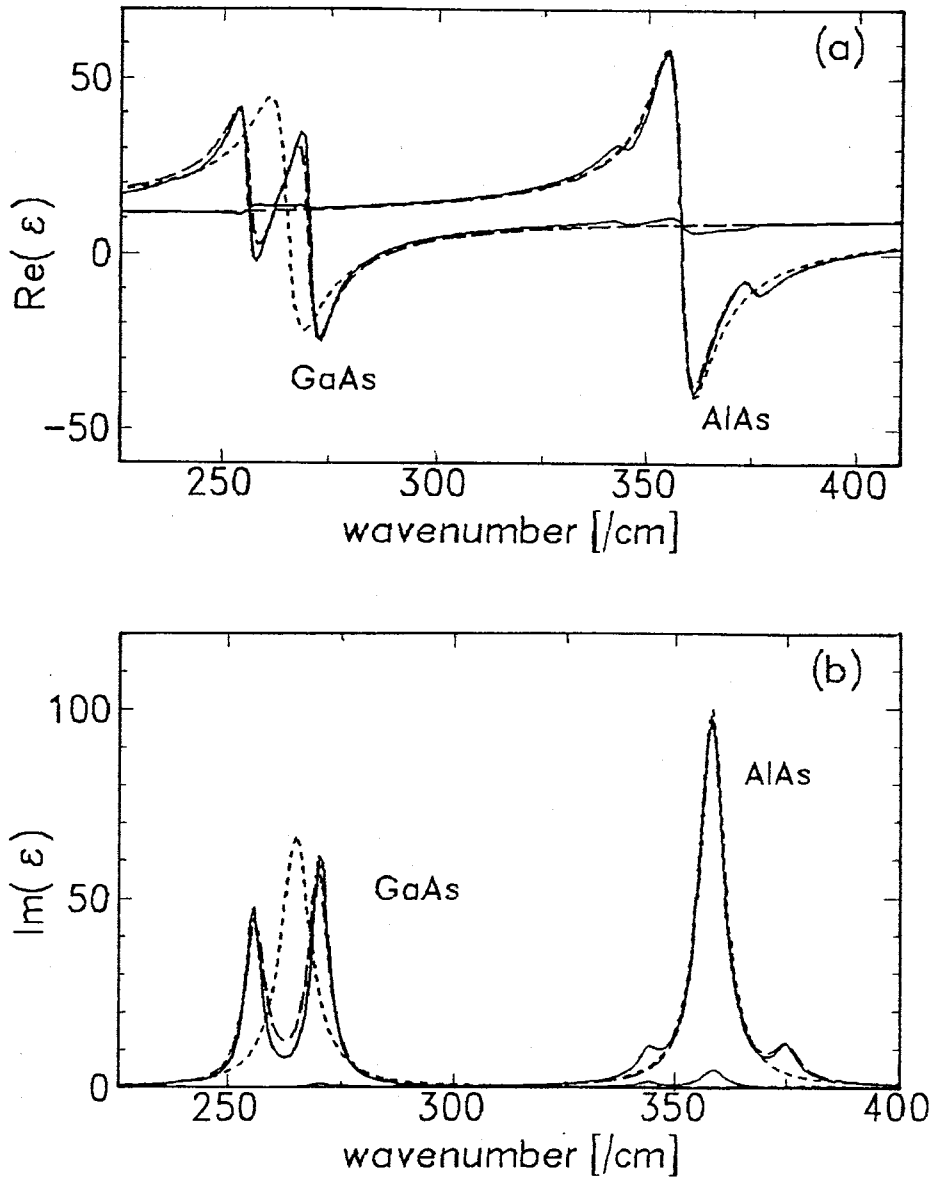


図 7.5 GaAs/AlAs(14.2Å/14.2Å) SLにおける誘電率波長分散。(a)と(b)はそれぞれ、誘電率の実部と虚部を表す。点線は振動子の個数を1個にした計算結果であり、破線は振動子の個数を2個としたもの。

ただし、 $\epsilon_{x\infty}$ と $\epsilon_{z\infty}$ はそれぞれ、x方向とz方向に対する高周波での誘電率である。また、 $\omega_{Tj}$ と $\omega_{Lj}$ はそれぞれ、j番目の横波光学格子振動周波数と縦波光学格子振動周波数である。 $\nu_{Tj}$ と $\nu_{Lj}$ は、j番目の横波と縦波光学格子振動の、それぞれのダンピングをあらわす。 $R_{Tj}$ と $R_{Lj}$ は、j番目の横波と縦波光学格子振動の、それぞれの振動子強度をあらわす。jについての和は、超格子に存在する全ての光学格子振動のモードの個数まで行う。

静電界が加わったときの原子の変位を考えると、超格子の場合もバルクの場合も、変位の大きさは同じはずである。 $\omega = 0$ においては、超格子構造としたための特殊な振動モード等とは関係なく、バルクの場合と同様な原子の変位が生ずる。この結果、発生する分極はバルクの値と同じとなり、ある結晶の $\omega = 0$ での誘電率は、超格子構造においてもバルクの値と同じになる。ゆえに、式 7.23において、 $\omega = 0$ での振動子の項の和は、バルクの場合の振動子強度と一致しなければならない。

次に、 $\nu = 0.4\text{cm}^{-1}$ とにおいて、GaAs層とAlAs層の厚さをともに $14.2\text{\AA}$ とした場合のGaAs/AlAs超格子の誘電率のx方向成分 $\epsilon_x$ とz方向成分 $\epsilon_z$ の実部を、それぞれ図 7.6(a)、(b)中の実線でしめす。同じ図の破線は、図 7.3から次に示す誘電体薄膜積層構造での等価的誘電率の計算式<sup>5,8</sup>を用いて、 $\epsilon_x$ と $\epsilon_z$ を計算した値である。

$$\epsilon_x = \frac{d_{\text{GaAs}}\epsilon_{\text{GaAs}} + d_{\text{AlAs}}\epsilon_{\text{AlAs}}}{d_{\text{GaAs}} + d_{\text{AlAs}}} \quad (7.25)$$

$$\frac{1}{\epsilon_z} = \frac{d_{\text{GaAs}}/\epsilon_{\text{GaAs}} + d_{\text{AlAs}}/\epsilon_{\text{AlAs}}}{d_{\text{GaAs}} + d_{\text{AlAs}}} \quad (7.26)$$

特に $\epsilon_x$ について見られる実線と破線の食い違いは、破線では $\nu$ の値を実際の材料で観測される値と近いものを用いたのに対して、実線の場合は非常に小さい値を想定しているためである。 $\nu$ の値の違いを考慮すると一次元モデルを用いた誘電率計算は、比較的良い近似である。

Chuらは、超格子を単結晶として取り扱い、超格子構造を形成する各層の誘電率を与えていない。一方、1次元モデルの場合に各層の誘電率を計算した結果を3次元モデルへ拡張すると、各層の誘電率は、

$$\epsilon_{x,i} = \epsilon_{\infty x,i} - \sum_n \frac{S_{Tn,i}\omega_{Tn,i}^2}{\omega^2 - \omega_{Tn,i}^2 + i\nu_{Tn,i}\omega} \quad (7.27)$$

$$\frac{1}{\epsilon_{z,i}} = \frac{1}{\epsilon_{\infty z,i}} + \sum_n \frac{S_{Ln,i}\omega_{Ln,i}^2}{\omega^2 - \omega_{Ln,i}^2 + i\nu_{Ln,i}\omega} \quad (7.28)$$

と与えられる。ただし、ここで*i*は、超格子構造を形成する各層の物質を表す。例えば、GaAsとAlAsからなる超格子では、*i*は、GaAsかAlAsのいずれかである。次節におけるATRスペクトルの理論計算では、式 7.27と式 7.28を採用する。

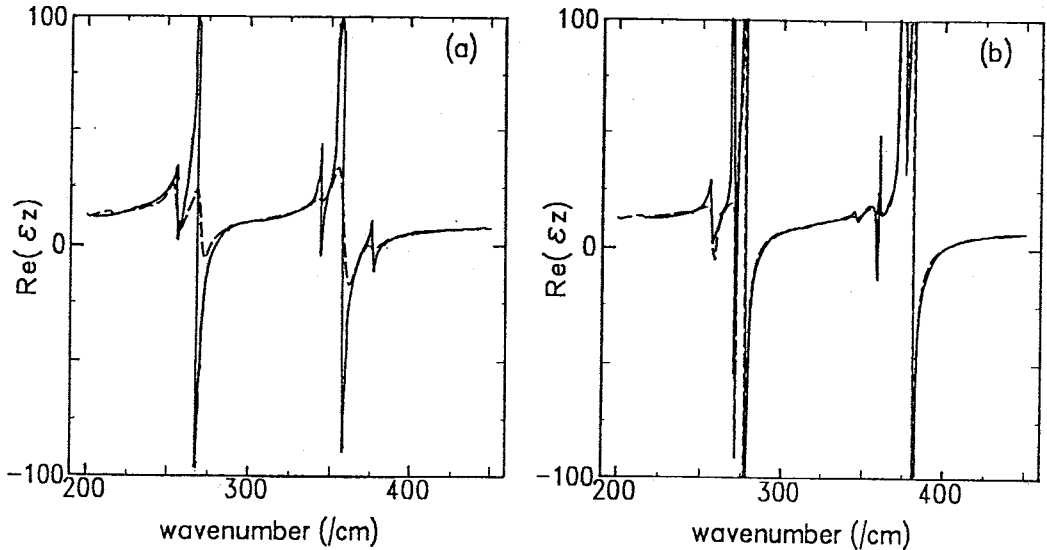


図 7.6 Chu と Chan による超格子の誘電率の実部（実線）と、図 7-3 より計算された超格子層の誘電率の実部（破線）。(a) は x 方向の (b) は z 方向の誘電率。

### 7.3 超格子試料の全反射減衰 (ATR) スペクトルの理論計算

超格子の ATR スペクトルを計算するには、超格子全体を一つの単結晶とみなす場合のぞき、前節で求めた超格子構造における各層の誘電率が必要である。超格子構造においては、計算される周波数スキャン ATR 信号は、図 7.3、7.4 に示すように、各層の誘電率が複雑な変化を示しているため、構造の多いスペクトルとなると予想される。

超格子の ATR スペクトルの理論計算法と、MQW の ATR スペクトルの理論計算法とは、基本的には同一である。異なるのは、超格子の場合、各層に与える誘電率が異方性を持ち、式は複数の振動子を考慮した表現となることである。

MQW の場合と同様に、z 方向に各層が積み重ねられ、表面が x y 平面である試料に、入射光が x z 平面上から角度  $\theta$  で入射されているとする。この時、超格子の各層の誘電率は、z 方向と x y 方向で異なる。この時、第 2 章の式 2.26 において、 $\alpha_A$ 、 $\alpha_B$  は次のように置き換えなければならない。

$$\alpha_j = \sqrt{(\epsilon_{jx}/\epsilon_{jz})k^2 - \epsilon_{jx}\omega^2/c^2} \quad (7.29)$$

ただし、 $j = A, B$  であり、 $\epsilon_{jx}$  は物質  $j$  の x y 方向への誘電率、 $\epsilon_{jz}$  は物質  $j$  の z 方向への誘電率である。

そのほかの各式において、各層の誘電率  $\epsilon_A$  と  $\epsilon_B$  は、それぞれ、x、y 方向の誘電率である  $\epsilon_{Ax}$  と  $\epsilon_{By}$  に置き換える。式の形そのものは、式 2.26 と式 7.29 が異なるだけであとは全く同じとなる。

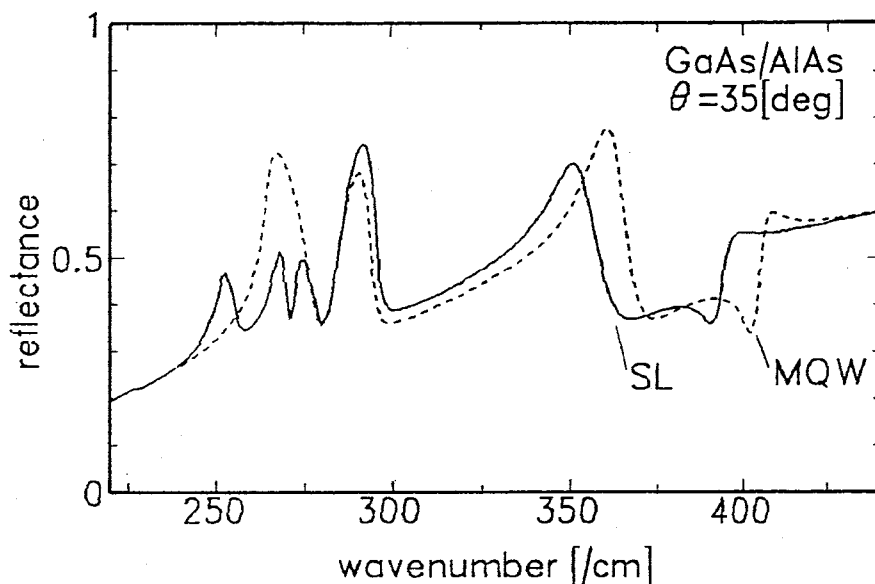


図 7.7 GaAs/AlAs(5.6Å/5.6Å) SL の ATR スペクトル。入射角は 35 度、空気層の厚さは  $3\mu\text{m}$ 、SL 層の厚さは 510nm とした。点線はバルクでの誘電率を用いた計算結果。

GaAs / AlAs 超格子内の GaAs 層と AlAs 層の比誘電率の計算結果を用いて、GaAs 層と AlAs 層ともに 5.6Å の場合と 14.2Å の場合について、周波数スキャン ATR スペクトルをそれぞれ計算したものが、図 7.7、7.8 である。いずれも、入射角は 35 度とし、使用プリズムの材質は KRS-5、空気層ギャップ厚は  $3\mu\text{m}$  とした。また、超格子層の厚さは、510nm とした。図 7.7、7.8 には、比較のため、バルクでの誘電率の値を用いた計算結果（点線）、すなわち、MQW 試料の ATR スペクトルの計算結果も示す。バルクの誘電率の値の計算には、式 6.1 に表 6.1 のパラメータを代入して求めた。

図 7.7、7.8 をみると、MQW 試料の場合と比較して、基本的なスペクトル構造は同じである。また、SL 層も MQW 層も厚さが有限であるために、 $280\text{cm}^{-1}$  に GaAs 基板での SP による反射率の減衰が見られる。しかし、SL 試料においては、反射率が大きく変化する部分に肩があったり、いくつかの小さなディップが見られたりするなど、誘電率の複雑な変化を反映している ATR スペクトル構造が見られる。図 7.7、7.8 ともに  $275\text{cm}^{-1}$  より低周波側に複数のディップが存在し、また図 7.8 には  $345\text{cm}^{-1}$  付近に反射率変化の肩と  $375\text{cm}^{-1}$  に小さなピークがある。これらの構造は、MQW の手法を用いた ATR スペクトル理論計算結果には現れておらず、超格子特有の構造である。全体的に SL 層での SP 励起による

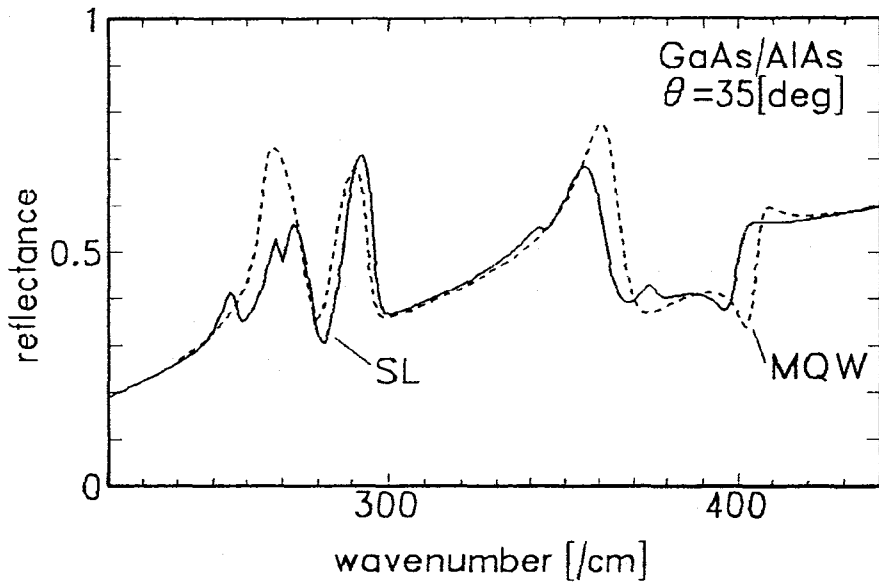


図 7.8 GaAs/AlAs(14.2Å/14.2Å) SL の ATR スペクトル。入射角は 35 度、空気層の厚さは 3 $\mu$ m、SL 層の厚さは 510nm とした。点線はバルクでの誘電率を用いた計算結果。



反射率の減衰が存在する波数は、バルクの誘電率を用いた場合よりも低エネルギー側へシフトしている。これは、周波数の折り返しによって生じた格子振動の分散関係の変化によるものである。

$275\text{cm}^{-1}$ より低周波数にディップが存在するのは、誘電率の図（図 7.4、7.5）からわかるように、誘電率が負となっている S P 活性な周波数領域が、バルクの場合に比べ低周波数側にシフトしているためである。また、図 7.8 において、反射率変化の肩やピークが存在したのは、対応する周波数で AlAs 層の誘電率に構造があったためである。

以上のように、超格子構造において、格子振動の分散関係の折り返し効果によって誘電率の表式が影響を受ける場合、ATR法によってその変化が確認できる。また、ATR スペクトルには、特徴的な構造が現れ、折り返し効果の評価が可能なのもわかった。

## 7.4 GaAs/AlAs 超格子試料に対する実験結果の解析

超格子の誘電率が7.2節で求めた式で表現できる場合、いくつかの特徴的なスペクトル構造がATRスペクトルに現れることがわかった。次に、超格子の誘電率表式の有効性を確かめる必要がある。周波数スキャンATRスペクトルの測定結果と計算結果を比較することで、この有効性の是非を論ずることができる。そこで、GaAs/AlAs 超格子試料に対して、周波数スキャンATRスペクトル測定を行なった。入射角は35度、空気層の厚さは約3 $\mu$ mである。試料のGaAs 井戸幅とAlAs 障壁幅は、共に3.0nmの試料であり、その周期の総数は、120周期であった。250 $\text{cm}^{-1}$ から450 $\text{cm}^{-1}$ の範囲の測定結果を、図7.9に実線で示す。また、入射光をs偏光としたATRスペクトルも測定し、その結果を図7.10の実線で示す。s偏光でATRスペクトルを測定した理由は、(1)前節で計算されたように、反射率変化の肩やピークといったSL構造特有のATRスペクトル変化は、さほど大きいものでないこと、(2)GaAs層とAlAs層の厚さが計算例よりも厚く超格子特有の格子振動の折り返しによるスペクトル構造の大きさが小さいと予測されることのため、より確かな誘電率情報を得るためである。

ATRスペクトルの全体的な特徴は、第6章で取り扱ったMQW試料でのATRスペクトルとほとんど同じである。280 $\text{cm}^{-1}$ 付近と380 $\text{cm}^{-1}$ 付近にSPの励起による反射率の減衰が見られている。そして、380 $\text{cm}^{-1}$ 付近の反射率が減衰している部分では、反射率は、373 $\text{cm}^{-1}$ と387 $\text{cm}^{-1}$ で極小値を示している。第6章に示したMQW試料におけるATRスペクトルの測定結果よりも、井戸幅30ÅのSL試料の方が反射率の変化が大きいのは、SL層全体の厚さが、MQW試料のMQW層の厚さより大きいためである。したがって、このことは、SLとMQWにおけるATRスペクトルの相違点ではない。

MQW試料とのATRスペクトルとの違いを明らかにするため、第6章で取り扱ったように、各層の誘電率がバルク試料と同じ形式で書けるとして、理論計算結果をベストフィットさせたのが図7.9、図7.10の点線である。なお、図7.9、図7.10の両方とも実験値をうまく説明できる誘電率パラメータを用いてベストフィットを行った。s偏光でのATRスペクトルの理論計算法は付録Dに示す。測定結果と計算結果とが一致しない点がある。すなわちこの違いの中に、超格子に特有のATRスペクトルの特徴がある。たとえば、(1)360 $\text{cm}^{-1}$ 付近の反射率変化に肩があらわれている、(2)400 $\text{cm}^{-1}$ 付近に反射率の変化する周波数にズレが見られる、(3)280 $\text{cm}^{-1}$ の反射率の減衰が異常に小さい、などが挙げられる。

次に、超格子構造における各層の誘電率に対して式7.23と式7.24を用いて、ATRスペクトルの測定結果と理論計算が最も良く一致(ベストフィット)するように各変数を変化させた。各層の誘電率パラメータと空気層の厚さが変数である。SLでの各層の誘電率を式(8.15)で表現できるとすると、複数の振動子を考慮にいたった形であるので、パラメータの数が非常に多くなり、ベストフィットで得られた各パラメータの値が正しいものかどうかがわからなくなってしまう。

そこで、近似的な誘電率パラメータを求めることとし、(1)GaAs層内とAlAs層内での各振動子のダンピングの大きさはそれぞれ同じ、(2)振動子の数は2つ、(3)振動子強度

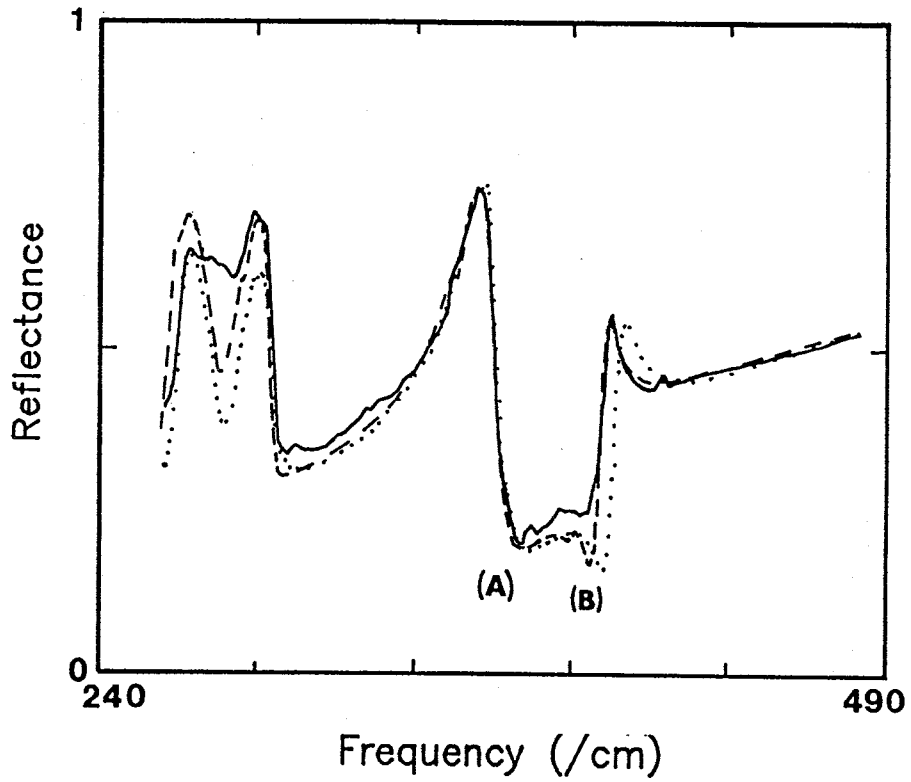


図 7.9 GaAs/AlAs(3.0nm/3.0nm) SL の ATR スペクトル。入射角は 35 度。点線は誘電率の表式において振動子を 1 つとした計算結果、破線は振動子を 2 個としたもの。

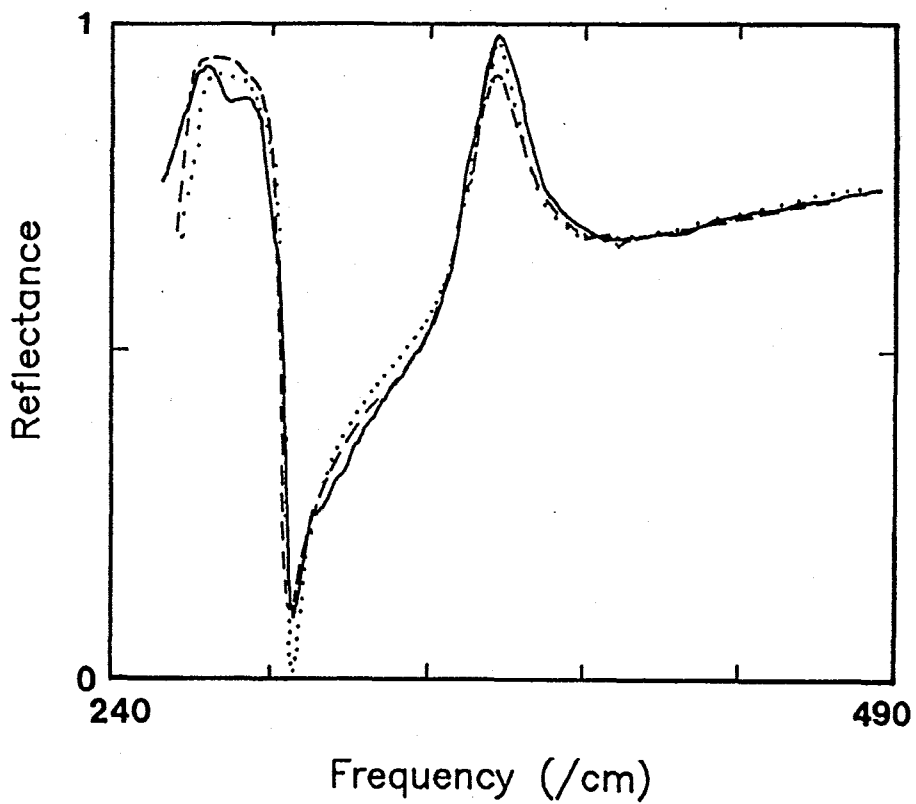


図 7.10 GaAs/AlAs(3.0nm/3.0nm) S L の s 偏光に対する A T R スペクトル。入射角は 35 度。点線は誘電率の表式において振動子を 1 つとした計算結果、破線は振動子を 2 個としたもの。

表 7.1 ベストフィットによって得られた誘電率パラメータ

|      | $\omega_{TO}[\text{cm}^{-1}]$ | $S_{TO}$ | $\omega_{LO}[\text{cm}^{-1}]$ | $S_{LO}$ | $\nu[\text{cm}^{-1}]$ |
|------|-------------------------------|----------|-------------------------------|----------|-----------------------|
| GaAs | 264.5                         | 1.9      | 298                           | 0.015    | 1.5                   |
|      | 260.5                         | 0.2      | 290                           | 0.002    | 1.5                   |
| AlAs | 360.7                         | 1.8      | 402                           | 0.015    | 2.0                   |
|      | 355.2                         | 0.2      | 398                           | 0.002    | 2.0                   |

$S_i$ の和はバルクでの  $S$ の値と同じ、の制限をおいた。(1)については、たとえば、GaAs層に着目すると、周波数の異なる格子振動子でもダンピングの大きさを同じとした。当然、AlAs層においても同様の操作を行った。(2)については、一次元モデルを用いても、三次元のモデルを用いても、計算された誘電率の周波数分散は、2つの振動子を考慮すれば近似できるという7.2節の議論に基づいている。また、(3)については、 $\omega = 0$ での各層の誘電率 $\epsilon_{DC}$ は、 $\epsilon_{DC} = \epsilon(\infty) + \sum S_i$ と表されるので、8.2節で述べたように、 $\epsilon_{DC}$ がバルクの値と変わらないという仮定をおくと、 $S = \sum S_i$ となる。

ベストフィットによって得られたATR理論曲線を、図7.10の破線で示す。この時得られたパラメータは、表7.1に示す。ベストフィットでは、2つの振動子を考慮した誘電率によって計算されたスペクトルは、実験結果とかなりの一致を示した。この結果は、より高次の振動子の項で表されるような周波数分散の構造が小さかったことを示している。誘電率パラメータのダンピングについて考えれば、その値が、振動子の周波数間隔や高次の振動子強度に比べ大きかったことに起因する。測定時の温度を下げるなど、ダンピングの大きさを小さくすれば、この試料において、高次の振動子による項の影響があらわれてくるので、より多くの振動子を考慮に入れる必要が生ずるであろう。三者のATRスペクトルの形状を比較すると、誘電率の表式をバルクと同じとした場合に比べ、超格子のATRスペクトルの特徴を再現していることがわかる。すなわち、超格子の各層における誘電率を7.2節で導いた表式で表わすと、超格子に特徴的な折り返された格子振動による影響をATRスペクトルに再現できる。

得られたパラメータの特徴は、バルクの場合と比べて<sup>9,10</sup>格子振動のダンピングの項が非常に小さいことである。この原因は不明であるが、GaAs/AlAs超格子において各層の光学格子振動は、その層内部に閉じ込められることと関与している可能性が高い。ダンピングの大きさは、結晶欠陥など、結晶の質によって決定される。バルクにおいては、ある部分に結晶欠陥がある場合、格子振動は、その不均一性の影響を受け、誘電率のダンピング項の中にその影響が現れる。一方、超格子構造では、格子振動が局所的な領域に閉じ込められているので、ある層に結晶欠陥が存在すると、振動のモード特性、すなわち、振動周波数や振動子強度が変化し、したがって欠陥によるダンピングの項に対する影響が少ないのではないかと考えられる。いまのところ、この考えは推測にすぎないので、例えば、不純物を空間的に選択ドーピングを行った超格子において、ATR実験を行うなどの検証が必要である。

## 7.5 まとめ

GaAs/AlAs 超格子構造における各層の誘電率を、一次元モデルを用いて計算し、超格子構造となったことによる誘電率変化の傾向を調べた。また、各層の誘電率は、バルクの場合と異なり、複数の振動子の項を考慮する事で表現できる形であることも示した。これは、超格子構造では、格子振動の折り返しが生ずるので、複数の振動モードが存在するためである。

次に、GaAs/AlAs 超格子構造において、格子振動の折り返し効果を取り入れた誘電率の表式を用いて、周波数スキャンATRスペクトルを計算した。計算の結果、超格子のATRスペクトルには、特徴的な構造が現れることがわかった。これは、超格子の誘電率の複雑な周波数分散がATRスペクトルに直接影響を及ぼすためである。この結果はATR法によって、超格子構造での誘電率がバルクの場合とは異なることが確認できることを示している。

さらに、実際のGaAs/AlAs超格子に対してATR法を用い、周波数ATRスペクトルを測定した。得られたスペクトルには超格子特有の構造が現れた。実測ATRスペクトルと理論計算スペクトルとの形状比較より、超格子の各層における誘電率は、8.2節で導いた表式で表されること、超格子に特徴的なATRスペクトルは、折り返された格子振動のモードによる影響であることが証明された。理論値と実験値の形状の比較によって得られた格子振動のダンピングの大きさは、バルクの値と比べ小さい。この原因の追求は、今後の検討課題である。

## 参考文献

- 1 C.Colvard, T.A.Gant, M.V.Klein, R.Merlin, R.Fischer, H.Morkoc, and A.C.Gossard, Phys.Rev.B31, 2080(1985).
- 2 M.Nakayama, K.Kubota, T.Kanata, H.Kato, S.Chika, and N.Sano, Jpn. J. Appl. Phys., 24, 1331(1985).
- 3 H. Chu and Y. C. Chang, Phys. Rev. B38, 12369 (1988).
- 4 M.Haraguchi, M.Fukui, and S.Muto, J. Phys. Soc. Jpn., in press.
- 5 N.Raj, and D.R.Tilley, Chap. 7 in the Dielectric Function of Condensed System, eds. L.V.Keldysh, D.A.Kirahitz, and Maradudin (North Holland, Amsterdam, 1989) p459.
- 6 浜口智尋、固体物性上 (丸善、東京、1976 )
- 7 S.Adachi, J.Appl.Phys., 58, R1(1985).
- 8 N.Raj, D.R.Tilley, Solid State Commun., 55, 373(1985).
- 9 O.K.Kim, and W.G.Spitzer, J. Appl. Phys., 50, 4362(1979).
- 10 S.Perkowitz, R.Sudharsanan, S.S.Yom, and T.J.Drummond, Solid State Commun., 62, 645(1987).

## 第 8 章

### まとめ

最近、半導体分野において注目を浴びている半導体多重量子井戸と超格子について、光学的手法による物性評価をおこなった。半導体多重量子井戸と超格子の代表的な例として、GaAs/AlAs 多重量子井戸および超格子試料を用意した。光学的手法として、変調分光法の一つであるフォトリフレクタンス (PR) 法と、反射率測定法の一つである全反射減衰 (ATR) 法を採用した。

まず、GaAs/AlAs 多重量子井戸試料に関しての PR スペクトル測定および、その解析を行い、次のような結果を得た。

1. バッファ層からの PR スペクトル形状から、バッファ層内に存在する内蔵電界強度を見積もることができることを示し、さらに試料のバッファ層内の内蔵電界強度を評価した。

2. 試料表面上での PR スペクトル形状の場所依存性の測定より、井戸幅と多重量子井戸層幅の変化によって、PR スペクトル形状の場所依存性が説明できることを明らかにした。そして、井戸幅と量子井戸層幅の試料表面上の位置に対する不均一性の評価を行った。

PR スペクトル解析より遷移エネルギーを求め、井戸幅を評価した例は多数報告されているが、形状を含めて試料表面上で井戸幅と量子井戸層幅の不均一性について総合的な評価を行ったのは始めてである。

3. PR スペクトル信号強度の変調周波数依存性から、深い準位の測定が可能であることを理論計算によって示した。

4. GaAs/AlAs 多重量子井戸試料における実験から、試料表面とバッファ層内部で PR スペクトル信号強度の変調周波数依存性が異なることがわかり、これは変調周波数依存性を決定づける深い準位が異なること、試料表面とバッファ層では変調機構が異なることを示した。これまでは、試料表面もバッファ層も同一の変調電界が加わり、PR 信号が現れると考えられていたが、今回の結果は、必ずしもこの考えは正しくないことを明らかにした。

半導体多重量子井戸と超格子における ATR 法による研究から次のような結果を得た。

5. 全反射減衰 (ATR) 法による表面ポラリトン (SP) の励起とその観測が可能であることと、試料の物性評価に用いることができることを数値計算によって示した。

6. 超格子の各層において、光学格子振動の折り返しの効果によって、誘電率はバルクでの表式とは異なり、折り返しによって生じた複数の振動子の和によって表されることを導いた。



7. 5と6の結果を踏まえ、GaAs/AlAs多重量子井戸および超格子試料に対し、ATRスペクトル測定を行い、SPの励起と観測ができること、各層の誘電率から物性評価が可能であることが実験結果からも明かとなった。

8. 多重量子井戸に対する実験から、AlAs層での格子振動のダンピングは、これまで報告例に比べ小さいという結果が得られた。

9. 超格子試料においては、格子振動の折り返し現象によって生ずる誘電率は、数値計算によって予測された表式で表すことができると確かめられた。

10. これまで、ATR法を採用した半導体多重量子井戸や超格子の実験による物性を評価した例はたいへん少なかったが、今回の研究で、ATR法は優れた手法であることが証明された。

今後は、様々な周期長の試料で、超格子における格子振動の折り返しの効果を観測することと、GaAs/AlAs超格子以外の、他の半導体の組み合わせによる超格子におけるポラリトンの観測することが、この方法を超格子物性の評価法として定着させるためにも重要である。

本研究の目的は、「半導体多重量子井戸および超格子試料について光学的評価法であるPR法とATR法を用いて評価を行い、1. PR法については、変調機構の解明とMQW(SL)の光学的性質の評価、2. ATR法についてはポラリトンの観測とそれによる材料評価法の確立」であり、これらの目的は、達成された。

## 付録 A

# 多重量子井戸・超格子構造での A T R 信号理論計算

多重量子井戸 (MQW)・超格子 (SL) 試料に対する Otto 配置での A T R 信号を計算するに当たって、試料とプリズムなどの位置関係を図 A-1 の様におく。すなわち、試料の表面を  $x-y$  平面上とし、試料の深さ方向に  $z$  軸をとる。SL 構造は厚さ無限大の基板上に、物質 A と物質 B の繰り返しによって作られている。A 層、B 層の厚さはそれぞれ、 $d_A$ 、 $d_B$ 、また空気層の厚さは  $d_g$ 、プリズムの誘電率を  $\epsilon_p$ 、空気層の誘電率を  $\epsilon_0$  とおく。A 層、B 層、基板の誘電率は、それぞれ  $\epsilon_A$ 、 $\epsilon_B$ 、 $\epsilon_S$  とおく。周期数つまり A 層と B 層の組数は、 $N$  とする。したがって、MQW (SL) 層の厚さは、 $(d_A + d_B) \times N$  となる。ここで、角周波数  $\omega$  であるような、TM (つまり p) 偏光の入射波が、 $x-z$  平面を入射平面として、プリズム内に入射角  $\theta_i$  で底面に入射していると考え。この時、入射波と反射波の波数ベクトル  $\vec{k}$  は、 $z$  方向成分  $k_z$  と試料平面に平行な成分  $k_{\parallel}$  を持つ。

プリズム中に入射波、反射波の電界をそれぞれ  $\vec{E}_i$ 、 $\vec{E}_r$  とおけば、 $\vec{E}_i$  と  $\vec{E}_r$  は、

$$\vec{E}_i = E_i \left( \vec{x} - \vec{z} \frac{k_{\parallel}}{k_z} \right) \exp\{ik_z(z+d)\} \exp i(k_{\parallel}x - \omega t) \quad (\text{A.1})$$

$$\vec{E}_r = E_r \left( \vec{x} + \vec{z} \frac{k_{\parallel}}{k_z} \right) \exp\{-ik_z(z+d)\} \exp i(k_{\parallel}x - \omega t) \quad (\text{A.2})$$

ただし、

$$k_z^2 = \epsilon_p \frac{\omega^2}{c^2} - k_{\parallel}^2 \quad (\text{A.3})$$

と表現される。ここで、 $\vec{x}$ 、 $\vec{z}$  は  $x$  方向・ $z$  方向の単位ベクトルである。以下で考える波にはすべて、 $\exp\{i(k_{\parallel}x - \omega t)\}$  の係数がかかるが、共通の項であるので省略する。空気層内の電磁波による電界  $\vec{E}_g$  は、

$$\vec{E}_g = E_g^- \left( \vec{x} + \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_g} \right) \exp(-\alpha_g z) + E_g^+ \left( \vec{x} - \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_g} \right) \exp(\alpha_g z) \quad (\text{A.4})$$

$$\alpha_g^2 = k_{\parallel}^2 - \epsilon_g \frac{\omega^2}{c^2} \quad (\text{A.5})$$

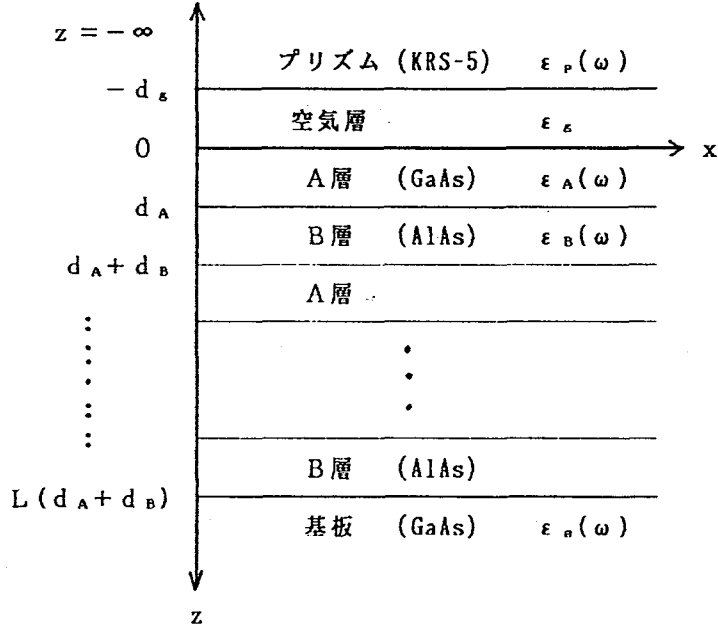


図 A.1 ATR 配置図

と表される。

$n = 0, 2, 4, \dots, 2(N-1)$  とした時、試料表面から数えて、A層は第  $n$  層目を B層は第  $n+1$  層目を占めている。この時、各層内の電界は、

$$\begin{aligned}
 \vec{E}_n = & E_{An}^- \left( \vec{x} + \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A} \right) \exp\{-\alpha_A(z - nd)\} \\
 & + E_{An}^+ \left( \vec{x} - \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A} \right) \exp\{\alpha_A(z - nd - d_A)\} \\
 & + E'_{An}^- \left( \vec{x} + \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A} \right) \exp\{-\alpha_A(z - nd)\} \\
 & + E'_{An}^+ \left( \vec{x} - \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A} \right) \exp\{\alpha_A(z - nd - d_A)\} \quad (A.6)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \vec{E}_{n+1} = & E_{Bn}^- \left( \vec{x} + \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B} \right) \exp\{-\alpha_B[z - (n+2)d + d_B]\} \\
 & + E_{Bn}^+ \left( \vec{x} - \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B} \right) \exp\{\alpha_B[z - (n+2)d]\} \\
 & + E'_{Bn+1}^- \left( \vec{x} + \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B} \right) \exp\{-\alpha_B[z - (n+2)d + d_B]\} \\
 & + E'_{Bn+1}^+ \left( \vec{x} - \vec{z} \frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B} \right) \exp\{\alpha_B[z - (n+2)d]\} \quad (A.7)
 \end{aligned}$$

と表現できる。ただし、 $d$ 、 $\alpha_A$ 、 $\alpha_B$ は次のように定義した。

$$d = (d_A + d_B)/2 \quad (\text{A.8})$$

$$\alpha_A = \sqrt{k_{\parallel}^2 - \epsilon_A(\omega/c)^2} \quad (\text{A.9})$$

$$\alpha_B = \sqrt{k_{\parallel}^2 - \epsilon_B(\omega/c)^2} \quad (\text{A.10})$$

また、基板中の電磁波による電界は、 $p = 2N$ とすると、

$$\vec{E}_S = E_S(\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_S})\exp\{-\alpha_S(z - pd)\} \quad (\text{A.11})$$

と書ける。

ここで、超格子層内の各層の電界について、次の関係式を満足していると考える。

$$E_{A_n}^{\pm} = E_A^{\pm} \exp(-\lambda n) \quad (\text{A.12})$$

$$E_{A_n}'^{\pm} = E_A'^{\pm} \exp\{-\lambda(p - n)\} \quad (\text{A.13})$$

$$E_{B_{n+1}}^{\pm} = E_B^{\pm} \exp\{-\lambda(n + 1)\} \quad (\text{A.14})$$

$$E_{B_{n+1}}'^{\pm} = E_B'^{\pm} \exp\{-\lambda(p - n - 1)\} \quad (\text{A.15})$$

ただし、第2章でもふれたように、 $\lambda$ は正の実数か、正の実部を持つ複素数である。また、計算の便宜上、

$$E_A'^{\pm} = E_A^{\pm} \exp(-\lambda p) \quad (\text{A.16})$$

$$E_B'^{\pm} = E_B^{\pm} \exp(-\lambda p) \quad (\text{A.17})$$

とおく。式 A.12～式 A.17を用いると、各層内の電界を表す式 A.6と式 A.7は、次のように書き換えられる。

$$\begin{aligned} \vec{E}_n = & \exp(-\lambda n) E_A^- (\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A}) \exp\{-\alpha_A(z - nd)\} \\ & + \exp(-\lambda n) E_A^+ (\vec{x} - \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A}) \exp\{\alpha_A(z - nd - d_A)\} \\ & + \exp(\lambda n) E_A'^- (\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A}) \exp\{-\alpha_A(z - nd)\} \\ & + \exp(\lambda n) E_A'^+ (\vec{x} - \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A}) \exp\{\alpha_A(z - nd - d_A)\} \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

$$\begin{aligned} \vec{E}_{n+1} = & \exp\{-\lambda(n + 1)\} E_B^- (\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B}) \exp\{-\alpha_B[z - (n + 2)d + d_B]\} \\ & + \exp\{-\lambda(n + 1)\} E_B^+ (\vec{x} - \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B}) \exp\{\alpha_B[z - (n + 2)d]\} \\ & + \exp\{\lambda(n + 1)\} E_B'^- (\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B}) \exp\{-\alpha_B[z - (n + 2)d + d_B]\} \\ & + \exp\{\lambda(n + 1)\} E_B'^+ (\vec{x} - \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B}) \exp\{\alpha_B[z - (n + 2)d]\} \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

次に、式 A.18 と式 A.19 で表現される電磁波の電界に対して、A 層と B 層の境界面で、接線方向の電界連続と z 方向の電束連続の境界条件を適応する。これらの境界条件は、 $\exp(-\lambda n)$  あるいは  $\exp\{-\lambda(n+1)\}$  の項を持つ波と、 $\exp(\lambda n)$  あるいは  $\exp\{\lambda(n+1)\}$  の項を持つ波とについて、別々に考える事ができる。まず、 $\exp(-\lambda n)$  あるいは  $\exp\{-\lambda(n+1)\}$  の項を持つ波についての、 $z = d$  と  $z = nd + d_A$  における境界条件を記すと、

$$E_A^- + E_A^+ \exp(-\alpha_A d_A) = \exp \lambda \{E_B^- \exp(-\alpha_B d_B) + E_B^+\} \quad (\text{A.20})$$

$$\alpha_B \epsilon_A \{E_A^- - E_A^+ \exp(-\alpha_A d_A)\} = \alpha_A \epsilon_B \exp \lambda \{E_B^- \exp(-\alpha_B d_B) + E_B^+\} \quad (\text{A.21})$$

$$\exp(-\alpha_A d_A) E_A^- + E_A^+ = \exp(-\lambda) \{E_B^- + E_B^+ \exp(-\alpha_B d_B)\} \quad (\text{A.22})$$

$$\alpha_B \epsilon_A \{E_A^- \exp(-\alpha_A d_A) - E_A^+\} = \alpha_A \epsilon_B \exp(-\lambda) \{E_B^- - E_B^+ \exp(-\alpha_B d_B)\} \quad (\text{A.23})$$

となる。一方、 $\exp(\lambda n)$  あるいは  $\exp\{\lambda(n+1)\}$  の項を持つ波については、 $z = nd$  と  $z = nd + d_A$  において、

$$E_A'^- + E_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A) = \exp(-\lambda) \{E_B'^- \exp(-\alpha_B d_B) + E_B'^+\} \quad (\text{A.24})$$

$$\alpha_B \epsilon_A \{E_A'^- - E_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A)\} = \alpha_A \epsilon_B \exp(-\lambda) \{E_B'^- \exp(-\alpha_B d_B) + E_B'^+\} \quad (\text{A.25})$$

$$\exp(-\alpha_A d_A) E_A'^- + E_A'^+ = \exp(\lambda) \{E_B'^- + E_B'^+ \exp(-\alpha_B d_B)\} \quad (\text{A.26})$$

$$\alpha_B \epsilon_A \{E_A'^- \exp(-\alpha_A d_A) - E_A'^+\} = \alpha_A \epsilon_B \exp(\lambda) \{E_B'^- - E_B'^+ \exp(-\alpha_B d_B)\} \quad (\text{A.27})$$

という境界条件式が得られる。

式 A.20 と式 A.21 から、 $E_B^+$  および  $E_B^-$  を求めると、

$$E_B^+ = \frac{\exp(-\lambda)}{2} \{c_- E_A^- + c_+ \exp(-\alpha_A d_A) E_A^+\} \quad (\text{A.28})$$

$$E_B^- = \frac{\exp(-\lambda)}{2} \{c_+ E_A^- + c_- \exp(-\alpha_A d_A) E_A^+\} \exp(\alpha_B d_B) \quad (\text{A.29})$$

と表現できる。ただし、

$$C_+ = 1 + \frac{\alpha_B \epsilon_A}{\alpha_A \epsilon_B} \quad (\text{A.30})$$

$$C_- = 1 - \frac{\alpha_B \epsilon_A}{\alpha_A \epsilon_B} \quad (\text{A.31})$$

とおいた。また、式 A.24 と式 A.25 から、 $E_B'^+$  と  $E_B'^-$  が

$$E_B'^+ = \frac{\exp(\lambda)}{2} \{c_- E_A'^- + c_+ \exp(-\alpha_A d_A) E_A'^+\} \quad (\text{A.32})$$

$$E_B'^- = \frac{\exp(\lambda)}{2} \{c_+ E_A'^- + c_- \exp(-\alpha_A d_A) E_A'^+\} \exp(\alpha_B d_B) \quad (\text{A.33})$$

と表現される。

ここで、式 A.28 A.29 および式 A.22 A.23 より次の方程式が得られる。

$$\begin{bmatrix} c_+ (e^{-\alpha_A d_A} - e^{-2\lambda + \alpha_B d_B}) & c_- (1 - e^{-2\lambda + \alpha_B d_B - \alpha_A d_A}) \\ c_- (e^{-\alpha_A d_A} - e^{-2\lambda - \alpha_B d_B}) & c_+ (1 - e^{-2\lambda - \alpha_B d_B - \alpha_A d_A}) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_A^- \\ E_A^+ \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (\text{A.34})$$

式 A.34において、意味のある  $E_A^-$ 、 $E_A^+$  の解があるためには、行列式が 0 でなければならぬ。したがって、 $\lambda$  についての方程式、

$$\begin{aligned} & (\epsilon_A^2 \alpha_B^2 + \epsilon_B^2 \alpha_A^2) \sinh(\alpha_A d_A) \sinh(\alpha_B d_B) \\ & + 2\epsilon_A \epsilon_B \alpha_A \alpha_B \{ \cosh(\alpha_A d_A) \cosh(\alpha_B d_B) - \cosh(2\lambda) \} = 0 \end{aligned} \quad (\text{A.35})$$

が得られる。この式が、第 2 章の式 2.38 である。また、式 A.32 と式 A.33 および式 A.26 と式 A.27 より、式 A.34 と同様な方程式が得られる。

$$\begin{bmatrix} c_+(e^{-\alpha_A d_A} - e^{2\lambda + \alpha_B d_B}) & c_-(1 - e^{2\lambda + \alpha_B d_B - \alpha_A d_A}) \\ c_-(e^{-\alpha_A d_A} - e^{2\lambda - \alpha_B d_B}) & c_+(1 - e^{2\lambda - \alpha_B d_B - \alpha_A d_A}) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_A'^- \\ E_A'^+ \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (\text{A.36})$$

他の 3 つの境界面についても、接線方向成分の電界の連続と、 $z$  方向成分の電束の連続より、6 つの式が得られる。まず、プリズムと空気の界面、すなわち  $z = -d_g$  において、

$$E_i + E_r = E_g^- \exp(\alpha_g d_g) + E_g^+ \exp(-\alpha_g d_g) \quad (\text{A.37})$$

$$\epsilon_p \alpha_g (-E_i + E_r) = i\epsilon_g k_z \{ E_g^- \exp(\alpha_g d_g) + E_g^+ \exp(-\alpha_g d_g) \} \quad (\text{A.38})$$

が得られる。また、空気層と超格子層の界面 ( $z = 0$ ) では、

$$E_g^- + E_g^+ = E_A^- + E_A^+ \exp(-\alpha_A d_A) + E_A'^- + E_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{A.39})$$

$$\epsilon_g \alpha_A (E_g^- - E_g^+) = \epsilon_A \alpha_g \{ E_A^- - E_A^+ \exp(-\alpha_A d_A) + E_A'^- - E_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A) \} \quad (\text{A.40})$$

となる。さらに、超格子層と基板の界面 ( $z = Nd$ ) では、

$$\begin{aligned} E_S &= \exp\{-\lambda(p-1)\} \{ E_B^- \exp(-\alpha_B d_B) + E_B^+ \} \\ &+ \exp\{\lambda(p-1)\} \{ E_B'^- \exp(-\alpha_B d_B) + E_B'^+ \} \end{aligned} \quad (\text{A.41})$$

$$\begin{aligned} \epsilon_S \alpha_A E_S &= \epsilon_B \alpha_S \exp\{-\lambda(p-1)\} \{ E_B^- \exp(-\alpha_B d_B) - E_B^+ \} \\ &+ \epsilon_B \alpha_S \exp\{\lambda(p-1)\} \{ E_B'^- \exp(-\alpha_B d_B) + E_B'^+ \} \end{aligned} \quad (\text{A.42})$$

となる。

式 A.41 と式 A.42 は、それぞれ式 A.20 A.24 と式 A.21 A.25 を用いると、 $E_B^-$ 、 $E_B^+$ 、 $E_B'^-$ 、 $E_B'^+$  のかわりに、 $E_A^-$ 、 $E_A^+$ 、 $E_A'^-$ 、 $E_A'^+$  を使って書き表すことができる。その結果は、

$$\begin{aligned} E_S &= \exp(-\lambda p) \{ E_A^- + E_A^+ \exp(-\alpha_A d_A) \} \\ &+ \exp(\lambda p) \{ E_A'^- + E_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A) \} \end{aligned} \quad (\text{A.43})$$

$$\begin{aligned} \epsilon_S \alpha_A E_S &= \epsilon_A \alpha_S \exp(-\lambda p) [ E_A^- - E_A^+ \exp(-\alpha_A d_A) ] \\ &+ \epsilon_A \alpha_S \exp(\lambda p) [ E_A'^- - E_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A) ] \end{aligned} \quad (\text{A.44})$$

となる。また、式 A.31 と式 A.36 より、

$$\begin{aligned} E_A'^- &= \frac{-C_- \{ 1 - \exp(-2\lambda + \alpha_B d_B - \alpha_A d_A) \}}{C_+ \{ \exp(-\alpha_A d_A) - \exp(-2\lambda + \alpha_B d_B) \}} E_A^+ \\ &\equiv K E_A^+ \end{aligned} \quad (\text{A.45})$$

$$\begin{aligned} E_A'^+ &= \frac{-C_+ \{ 1 - \exp(2\lambda - \alpha_B d_B - \alpha_A d_A) \}}{C_- \{ \exp(-\alpha_A d_A) - \exp(2\lambda - \alpha_B d_B) \}} E_A^+ \\ &\equiv K' E_A^+ \end{aligned} \quad (\text{A.46})$$

という式が得られる。この式 A.45 と式 A.46 を用いると、式 A.39 A.40 A.43 A.44 の 4 つの式から  $E_A^-$  と  $E_A'^-$  を消去することができる。したがって、

$$E_g^- + E_g^+ = \{K + \exp(-\alpha_A d_A)\} E_A^+ + \{K' + \exp(-\alpha_A d_A)\} E_A'^+ \quad (\text{A.47})$$

$$\begin{aligned} \epsilon_g \alpha_A (E_g^- - E_g^+) &= \epsilon_A \alpha_g \{K - \exp(-\alpha_A d_A)\} E_A^+ \\ &+ \epsilon_A \alpha_g \{K - \exp(-\alpha_A d_A)\} E_A'^+ \end{aligned} \quad (\text{A.48})$$

$$\begin{aligned} E_S &= \exp(-\lambda p) \{K + \exp(-\alpha_A d_A)\} E_A^+ \\ &+ \exp(\lambda p) \{K' + \exp(-\alpha_A d_A)\} E_A'^+ \end{aligned} \quad (\text{A.49})$$

$$\begin{aligned} \epsilon_S \alpha_A E_S &= \epsilon_A \alpha_S \exp(-\lambda p) [K - \exp(-\alpha_A d_A)] E_A^+ \\ &+ \epsilon_A \alpha_S \exp(\lambda p) [K' - \exp(-\alpha_A d_A)] E_A'^+ \end{aligned} \quad (\text{A.50})$$

$$(\text{A.51})$$

という式に変形ができる。

式 A.37 式 A.38、式 A.47～式 A.50 は、線形連立方程式となっているので、行列を用いると、

$$\begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} & M_{13} \\ M_{21} & M_{22} & M_{23} \\ M_{31} & M_{32} & M_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} V_1 \\ V_2 \\ V_3 \end{bmatrix} = E_i \begin{bmatrix} B_1 \\ B_2 \\ B_3 \end{bmatrix} \quad (\text{A.52})$$

$$M_{11} = \begin{bmatrix} 1 & -\exp(\alpha_g d_g) \\ \epsilon_p \alpha_g & -i \epsilon_g k_z \exp(\alpha_g d_g) \end{bmatrix} \quad (\text{A.53})$$

$$M_{12} = \begin{bmatrix} -\exp(-\alpha_g d_g) & 0 \\ i \epsilon_g k_z \exp(-\alpha_g d_g) & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{A.54})$$

$$M_{13} = M_{31} = \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{A.55})$$

$$M_{21} = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 0 & \epsilon_g \alpha_A \end{bmatrix} \quad (\text{A.56})$$

$$M_{22} = \begin{bmatrix} 1 & M \\ -\epsilon_g \alpha_A & \epsilon_A \alpha_g L \end{bmatrix} \quad (\text{A.57})$$

$$M_{23} = \begin{bmatrix} M' & 0 \\ \epsilon_A \alpha_g L' & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{A.58})$$

$$M_{32} = \begin{bmatrix} 0 & -\exp(-\lambda p) M \\ 0 & -\epsilon_A \alpha_S \exp(-\lambda p) L \end{bmatrix} \quad (\text{A.59})$$

$$M_{33} = \begin{bmatrix} -\exp(\lambda p) M' & -1 \\ -\epsilon_A \alpha_S \exp(\lambda p) L' & -\epsilon_S \alpha_A \end{bmatrix} \quad (\text{A.60})$$

$$V_1 = \begin{bmatrix} E_r \\ E_g^- \end{bmatrix} \quad (\text{A.61})$$

$$V_2 = \begin{bmatrix} E_g^+ \\ E_A^+ \end{bmatrix} \quad (\text{A.62})$$

$$V_3 = \begin{bmatrix} E_A^- \\ E_S \end{bmatrix} \quad (\text{A.63})$$

$$B_1 = \begin{bmatrix} -1 \\ \epsilon_p \alpha_g \end{bmatrix} \quad (\text{A.64})$$

$$B_2 = B_3 = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (\text{A.65})$$

ただし、

$$M = -K - \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{A.66})$$

$$M' = -K' - \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{A.67})$$

$$L = -K + \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{A.68})$$

$$L' = -K' + \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{A.69})$$

と表現される。式 A.52より  $|E_r/E_i|^2$  を求めると、

$$R = |N/D|^2 \quad (\text{A.70})$$

ただし、

$$N = \epsilon_A \alpha_g \{A_+ \exp(\alpha_g d_g) - A_- \exp(-\alpha_g d_g)\} \{MC' \exp(\lambda p) - M'C \exp(-\lambda p)\} \\ + \epsilon_g \alpha_A \{A_+ \exp(\alpha_g d_g) + A_- \exp(-\alpha_g d_g)\} \{LC' \exp(\lambda p) - L'C \exp(-\lambda p)\} \quad (\text{A.71})$$

$$D = \epsilon_A \alpha_g \{A_- \exp(\alpha_g d_g) - A_+ \exp(-\alpha_g d_g)\} \{MC' \exp(\lambda p) - M'C \exp(-\lambda p)\} \\ + \epsilon_g \alpha_A \{A_- \exp(\alpha_g d_g) + A_+ \exp(-\alpha_g d_g)\} \{LC' \exp(\lambda p) - L'C \exp(-\lambda p)\} \quad (\text{A.72})$$

$$A_+ = \epsilon_p \alpha_g + i \epsilon_g k_z \quad (\text{A.73})$$

$$A_- = \epsilon_p \alpha_g - i \epsilon_g k_z \quad (\text{A.74})$$

$$C = \epsilon_S \alpha_A L - \alpha_S \epsilon_A M \quad (\text{A.75})$$

$$C' = \epsilon_S \alpha_A L' - \alpha_S \epsilon_A M' \quad (\text{A.76})$$

となる。これが、第2章の式 2.27である。



## 付録 B

### M-TDFFの式の導出

第3章の式 3.2 と式 3.6 を再び示し、便宜のため式番号をそれぞれ、式 B.1と式 B.2とする。

$$\Delta\epsilon = iQ \int_{B.Z.} d^3k \int_0^\infty ds \exp(-\Gamma s) \exp[is(E - E_{cv})] \{ \exp[-i(s\hbar\Omega)^3/3] - 1 \} \quad (\text{B.1})$$

$$e^{-i(s\hbar\Omega)^3/3} = 1 - i(s\hbar\Omega)^3/3 - (s\hbar\Omega)^6/(2!3^2) + i(s\hbar\Omega)^9/(3!3^3) \quad (\text{B.2})$$

式 B.1と式 B.2より、

$$\Delta\epsilon = \frac{2Q}{\pi\omega^2} \int_{B.Z.} d^3k \frac{(\hbar\Omega)^3}{(E - E_{cv} + i\Gamma)^4} - \frac{40Q}{\pi\omega^2} \int_{B.Z.} d^3k \frac{(\hbar\Omega)^6}{(E - E_{cv} + i\Gamma)^7} + \frac{2240Q}{\pi\omega^2} \int_{B.Z.} d^3k \frac{(\hbar\Omega)^9}{(E - E_{cv} + i\Gamma)^{10}} \quad (\text{B.3})$$

が得られる。

3次元の  $k$ 空間に於ける臨界点での光学遷移に対して、バンド間の遷移エネルギー  $E_{cv}$  は、 $k = (k_x, k_y, k_z)$  に関する放物線関数で表現できるとすると、

$$E_{cv} = E_g + \frac{k_x^2}{D_x^2} + \frac{k_y^2}{D_y^2} + \frac{k_z^2}{D_z^2} \quad (\text{B.4})$$

で与えられる。 $E_{cv}$ が式 B.4を用いて表現されるとして、式 B.3の積分式に代入する。このとき、

$$k_x/D_x = r \cos \phi \sin \psi \quad (\text{B.5})$$

$$k_y/D_y = r \sin \phi \sin \psi \quad (\text{B.6})$$

$$k_z/D_z = r \cos \psi \quad (\text{B.7})$$

を用いて、極座標への変換を行う。ただし、

$$D_x D_y D_z = \left( \frac{8\mu_x \mu_y \mu_z}{\hbar^6} \right)^{1/2} \quad (\text{B.8})$$

であり、 $\mu_x$ 、 $\mu_y$ 、 $\mu_z$ はそれぞれ、 $x$ 、 $y$ 、 $z$ 方向への有効還元質量を表している。また、有効還元質量は次のように定義されている。

$$\frac{1}{\mu_i} = \frac{1}{m_{e,i}} + \frac{1}{m_{h,i}} \quad (i = x, y, z) \quad (\text{B.9})$$

$m_{e,i}$  :  $i$  方向の電子の有効質量

$m_{h,i}$  :  $i$  方向の正孔の有効質量

極座標変換によって、式 B.3 より、

$$\begin{aligned} \Delta\epsilon = & \frac{2Q}{\pi\omega^2} \int d\psi \int \sin\phi d\phi \frac{(\hbar\Omega)^3 D_x D_y D_z r 2dr}{(E - E_g + i\Gamma - r^2)^4} \\ & - \frac{40Q}{\pi\omega^2} \int d\psi \int \sin\phi d\phi \frac{(\hbar\Omega)^6 D_x D_y D_z r 2dr}{(E - E_g + i\Gamma - r^2)^7} \\ & + \frac{2240Q}{\pi\omega^2} \int d\psi \int \sin\phi d\phi \frac{(\hbar\Omega)^9 D_x D_y D_z r 2dr}{(E - E_g + i\Gamma - r^2)^{10}} \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

が得られる。この積分を実行すると、

$$\begin{aligned} \Delta\epsilon = & \frac{i\pi Q (\hbar Q)^3 D_x D_y D_z}{4\omega^2 (E - E_g + i\Gamma)^{5/2}} \\ & - \frac{-i\pi Q 5^3 331 (\hbar Q)^6 D_x D_y D_z}{4\omega^2 2^{53} (E - E_g + i\Gamma)^{11/2}} \\ & + \frac{i\pi Q 5^2 11 \times 13 \times 40097 (\hbar Q)^9 D_x D_y D_z}{\omega^2 2^{143} (E - E_g + i\Gamma)^{17/2}} \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

となる。ここで、

$$A = \frac{\pi Q D_x D_y D_z (\hbar\Omega)^3}{\omega^2 F^2} \quad (\text{B.12})$$

$$B_1 = \frac{5^3 331 (\hbar\Omega)^3}{2^{53} F^2} \quad (\text{B.13})$$

$$B_2 = \frac{5^2 11 \times 13 \times 40097 (\hbar\Omega)^6}{2^{143} F^4} \quad (\text{B.14})$$

とおけば、式 3.7 が得られる。

## 付録 C

### 一次元鎖モデルにおけるパラメータの与え方

この付録では、式 7.20 で現れた  $B_{11}$ 、 $B_{12}$ 、 $B_{21}$ 、 $B_{22}$  の各行列の要素がどのように決まるかを示す。以下では、混乱を避けるため、真空の誘電率は  $\epsilon_0$ 、ある物質の比誘電率は全て  $\kappa$  という表現を用いる。また、分極  $P$ 、変位  $u$ 、電界  $E$  などの表現は第 7 章のものと同じである。

始めに、バルク結晶を考えた場合に、第 7 章での  $B_{11}$ 、 $B_{12}$ 、 $B_{21}$ 、 $B_{22}$  に相当する行列  $B_{11}^+$ 、 $B_{12}^+$ 、 $B_{21}^+$ 、 $B_{22}^+$  が、どのような行列であるのかを考える。ここでは、III-V 族化合物半導体の様に、2 種類の原子から構成される結晶を考える。この時、原子の種類によって電気陰性度が異なるので、結晶は電荷が  $z_e$  の正イオンと  $-z_e$  負イオン（ただし、単位体積あたりのイオン対密度は  $N$ ）から構成されているとみなすことができる。結晶の比誘電率は、光の周波数が非常に高い時は  $\kappa_\infty$ 、0 の時は  $\kappa_0$  とする。また、結晶の縦波と横波の格子振動周波数をそれぞれ  $\omega_{LO}$ 、 $\omega_{TO}$  とおく。正イオンと負イオンの電子分極率をそれぞれ  $\alpha_+$  と  $\alpha_-$  とする。

まず、式 7.5 を、形式的にここで考えている結晶に当てはめてみる。1 番目から  $L$  番目までの原子が一つの単位を形成しているとして式 7.5 を表現すると、

$$P = \frac{1}{1 - \frac{N'}{3\epsilon_0}\alpha} \left\{ N' z_e \begin{bmatrix} 1 & -1 & 1 & -1 & \dots & -1 \\ 1 & -1 & 1 & -1 & \dots & -1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 1 & -1 & 1 & -1 & \dots & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} u_1 \\ u_2 \\ \vdots \\ u_L \end{bmatrix} + N' \alpha I E \right\} \quad (C.1)$$

となる。ただし、 $u$  の添え字が奇数の時、その原子は正イオン、偶数の時原子は負イオンである。また、 $N' = 2N/L$ 、 $\alpha = (\alpha_+ + \alpha_-)L/2$  である。

ここで、式 C.1 をあらためて次のように表現する。

$$\begin{aligned} P &= B_{21}^+ u + B_{22}^+ E \\ B_{21}^+ &= \frac{1}{1 - \frac{N'}{3\epsilon_0}\alpha} \end{aligned} \quad (C.2)$$

$$N'z_e \begin{bmatrix} 1 & -1 & 1 & -1 & \dots & -1 \\ 1 & -1 & 1 & -1 & \dots & -1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 1 & -1 & 1 & -1 & \dots & -1 \end{bmatrix} \quad (\text{C.3})$$

$$B_{22}^+ = \frac{1}{1 - \frac{N'}{3\epsilon_0}\alpha} N'\alpha I \quad (\text{C.4})$$

一方、 $B_{11}^+$ 、 $B_{12}^+$ は、式 7.17 と式 7.18 によって、

$$B_{11}^+ = F^+ + \frac{Z^+ B_{21}^+}{3\epsilon_0} \quad (\text{C.5})$$

$$B_{12}^+ = Z^+ \left( I + \frac{B_{22}^+}{3\epsilon_0} \right) \quad (\text{C.6})$$

と表される。ここで、 $F$  は各原子間のバネ定数であるから、

$$F^+ = \begin{bmatrix} f & -f/2 & 0 & \dots & \dots & 0 & -f \cos(qa)/2 \\ -f/2 & f & -f/2 & \ddots & & & 0 \\ 0 & -f/2 & f & \ddots & & \ddots & \vdots \\ \vdots & & & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & & f & -f/2 & 0 \\ 0 & & & \ddots & -f/2 & f & -f/2 \\ -f \cos(qa)/2 & 0 & \dots & \dots & 0 & -f/2 & f \end{bmatrix} \quad (\text{C.7})$$

となる。ただし、 $a$  は単位胞の大きさで、 $q$  は格子振動の波数を表す。また、 $Z^+$  は、各原子の電荷を表すので、

$$Z^+ = z_e \begin{bmatrix} 1 & 0 & \dots & & & 0 \\ 0 & -1 & & \ddots & & \\ & & 1 & & \ddots & \\ \vdots & \ddots & & \ddots & & \vdots \\ & & & & -1 & \\ & & & \ddots & & 1 & 0 \\ 0 & & \dots & & 0 & -1 \end{bmatrix} \quad (\text{C.8})$$

という対角行列で与えられる。

$B_{11}^+$ 、 $B_{12}^+$ 、 $B_{21}^+$ 、 $B_{22}^+$ の各要素を決定するためには、結晶の各原子間のバネ定数  $f$ 、電子分極率  $\alpha$ 、有効電荷  $z_e$  などの諸定数が必要である。そこで、以下これらの定数の計算方法を述べる<sup>1,2</sup>。

表 C.1 計算のもととなった GaAs と AlAs の物質定数

|      | $\omega_{TO}[\text{cm}^{-1}]$ | $\omega_{LO}[\text{cm}^{-1}]$ | $M/m_0$ | $m/m_0$ | $\kappa_\infty$ | $\kappa_0$ |
|------|-------------------------------|-------------------------------|---------|---------|-----------------|------------|
| GaAs | 268                           | 292                           | 69.72   | 74.92   | 11.11           | 13.13      |
| AlAs | 362                           | 404                           | 26.98   | 74.92   | 8.16            | 10.06      |

表 C.2 計算された GaAs と AlAs の物質定数

| material | $z_e/e$ | $N(\alpha_+ + \alpha_-)/\epsilon_0$ | $f_0/m_0 [10^6\text{cm}^{-2}]$ |
|----------|---------|-------------------------------------|--------------------------------|
| GaAs     | 0.51    | 2.314                               | 2.993                          |
| AlAs     | 0.64    | 2.114                               | 3.086                          |

バルク結晶に於いて、正イオンと負イオンの電子分極率の和 ( $\alpha_+ + \alpha_-$ ) と、比誘電率との間に、

$$\frac{\kappa_\infty - 1}{\kappa_\infty + 2} = \frac{1}{3\epsilon_0} N(\alpha_+ + \alpha_-) \quad (\text{C.9})$$

という関係がある。また、原子間のバネ定数  $f_0$  と  $\omega_{TO}$  の間には、

$$f_0 = M_r \frac{\kappa_0 + 2}{\kappa_\infty + 2} \omega_{TO}^2 \quad (\text{C.10})$$

$$M_r = \frac{Mm}{M + m} \quad (\text{C.11})$$

が成立する。ただし、 $M$  は正イオンの質量、 $m$  は負イオンの質量である。

一方、電荷  $z_e$  に対しては、

$$z_e = \sqrt{\frac{\epsilon_0 M_r}{N}} \sqrt{\frac{1}{\kappa_\infty} - \frac{1}{\kappa_0} \frac{3\kappa_\infty}{\kappa_\infty + 2}} \omega_{LO} \quad (\text{C.12})$$

となる。

以上の式 C.9~式 C.12 を用いると、バルク結晶の  $N(\alpha_+ + \alpha_-)$ 、 $f_0$ 、 $z_e$  を定めることができる。GaAs と AlAs による超格子を想定し、表 C.1 の様に GaAs と AlAs の  $\omega_{TO}$  などの定数が与えられている<sup>3</sup>場合に、これらの数値を求めると、表 C.2 に示す値が得られる。なお、表中では後の計算を簡単にするため、無次元化できる定数は無次元化した。また、 $m_0$  は陽子の質量、 $M$  は陽イオンとなる原子の質量、 $m$  は陰イオンとなる原子の質量、 $e$  は電子の電荷量を表す。

次に、第 7 章の  $B_{11}$ 、 $B_{12}$ 、 $B_{21}$ 、 $B_{22}$  を求めてみる。超格子は、2 種類の結晶を層状に積み重ねて構成されている。この構造が、結晶 A による A 層と結晶 B による B 層で構成されているとする。各パラメータに対し、A 層に属するものに A、B 層に属するものに B とい

う添え字をつけ、区別をつける。また、A層とB層の厚さは、それぞれイオン対が  $L_A/2$  個と  $L_B/2$  個ならば厚さとする。

式 C.1～式 C.4を用いると、A層の  $B_{21}^+$  と  $B_{22}^+$  にあたる  $B_{21A}^+$  と  $B_{22A}^+$  および、B層の  $B_{21}^+$  と  $B_{22}^+$  にあたる  $B_{21B}^+$  と  $B_{22B}^+$  が、それぞれ計算できる。この時、 $B_{21A}^+ \sim B_{22B}^+$  は、 $B_{21}$  と  $B_{22}$  の部分行列となっているので、

$$B_{21} = \begin{bmatrix} B_{21A}^+ & 0 \\ 0 & B_{21B}^+ \end{bmatrix} \quad (\text{C.13})$$

$$B_{22} = \begin{bmatrix} B_{22A}^+ & 0 \\ 0 & B_{22B}^+ \end{bmatrix} \quad (\text{C.14})$$

と  $B_{21}$ 、 $B_{22}$  が表現される。 $B_{12}$  についても同様に、

$$B_{12} = \begin{bmatrix} B_{12A}^+ & 0 \\ 0 & B_{12B}^+ \end{bmatrix} \quad (\text{C.15})$$

となる。

$B_{11}$  は、行列  $F$  が

$$F = \begin{bmatrix} f_a & -f_a/2 & 0 & \dots & \dots & 0 & -f'_a \cos(qa)/2 \\ -f_a/2 & \ddots & \ddots & & \ddots & & 0 \\ 0 & \ddots & f_a & -f_a/2 & & \ddots & \vdots \\ \vdots & & -f_a/2 & f_{av}/2 & -f_b/2 & & \vdots \\ \vdots & \ddots & & -f_b/2 & f_b & \ddots & 0 \\ 0 & & \ddots & & \ddots & \ddots & -f_b/2 \\ -f'_b \cos(qa)/2 & 0 & \dots & \dots & 0 & -f_b/2 & f_b \end{bmatrix} \quad (\text{C.16})$$

と表されるので、 $B_{12} \sim B_{22}$  の様に、 $B_{12A}^+$  や  $B_{12B}^+$  を部分行列として表現することができない。ただし、 $f_a$  と  $f_b$  は、それぞれ結晶A、Bのバネ定数である。また、 $f'_a$  と  $f'_b$  は、それぞれ結晶Aの陽イオンと結晶Bの陰イオンを結ぶバネ定数と結晶Aの陰イオンと結晶Aの陽イオンを結ぶバネ定数、 $f_{av}$  は  $f_a$  と  $f_b$  の平均値である。

したがって、 $B_{11}$  は、第7章の式 7.17

$$B_{11} = F + \frac{ZB_{21}}{3\epsilon_0} \quad (\text{C.17})$$

によって計算されなければならない。この時、各原子の電荷を表す行列  $Z$  は、A層での  $Z_A^+$  と、B層での  $Z_B^+$  を部分行列とする対角行列であるので、

$$Z = \begin{bmatrix} Z_A^+ & 0 \\ 0 & Z_B^+ \end{bmatrix} \quad (\text{C.18})$$

と表される。

$B_{11}$ の各要素の計算に当たって問題となるのは、 $f'_a$ と $f'_b$ の値である。 $f'_a$ はA層の陽イオンとB層の陰イオンを結ぶバネ定数であり、 $f'_b$ はB層の陽イオンとA層の陰イオンを結ぶバネ定数である。一般に、これらの定数を厳密に与えることはできない。しかし、GaAsとAlAsの組み合わせの超格子の場合、 $f'_a$ と $f'_b$ は、それぞれGaとAsの間のバネ定数と、AlとAsの間のバネ定数を表すので、 $f_a$ と $f_b$ の値と等しいと仮定した。

以上の計算手続きにより、 $B_{11}$ から $B_{22}$ の各要素を決定した。

## 参考文献

- 1 浜口 智尋、固体物性（上）第5章、p127、（丸善、1975年）
- 2 工藤 恵栄、光物性の基礎、第6章、7章、p215（オーム社、1977年）
- 3 S. Adachi, J.Appl.Phys., 58, R1(1985).



## 付録 D

### s (TE) 偏光入射時の ATR 信号理論 計算

s 偏光入射時には、磁界が入射面に対して平行となるので、付録 A における電界の表式をすべて磁界の表式に置き換えることで、理論計算式が求められる。この時、磁界についての式であるので、各層の誘電率は透磁率に置き換える。試料やプリズムなどの位置関係は付録 A と同じ配置とする。

ここで、角周波数  $\omega$  であるような、TE (つまり s) 偏光の入射波が、 $x-z$  平面を入射平面として、プリズムに入射していると考え、入射波と反射波の波数ベクトル  $\vec{k}$  は、 $z$  方向成分  $k_z$  と試料平面に平行な成分  $k_{\parallel}$  のみを持つ。プリズム中の入射波、反射波の磁界をそれぞれ  $\vec{H}_i$ 、 $\vec{H}_r$  とおけば、

$$\vec{H}_i = H_i(\vec{x} - \vec{z}\frac{k_{\parallel}}{k_z}) \exp\{ik_z(z+d)\} \exp i(k_{\parallel}x - \omega t) \quad (D.1)$$

$$\vec{H}_r = H_r(\vec{x} + \vec{z}\frac{k_{\parallel}}{k_z}) \exp\{-ik_z(z+d)\} \exp i(k_{\parallel}x - \omega t) \quad (D.2)$$

と表現される。 $k_z$  は、式 A.3 で与えられる。ここで、 $\vec{x}$ 、 $\vec{z}$  は  $x$  方向・ $z$  方向の単位ベクトルである。以下で考える波にはすべて、 $\exp\{i(k_{\parallel}x - \omega t)\}$  の係数がかかるが、共通の項があるので省略する。空気層内での電磁波による磁界  $\vec{H}_g$  は、

$$\vec{H}_g = H_g^-(\vec{x} + \vec{z}\frac{i k_{\parallel}}{\alpha_g}) \exp(-\alpha_g z) + H_g^+(\vec{x} - \vec{z}\frac{i k_{\parallel}}{\alpha_g}) \exp(\alpha_g z) \quad (D.3)$$

と表される。ただし、 $\alpha_g$  は式 A.5 で与えられる。

$n = 0, 2, 4, \dots, 2(N-1)$  とした時、試料表面から数えて、A 層は第  $n$  層目を B 層は第  $n+1$  層目を占めている。この時、各層内の磁界は、

$$\begin{aligned} \vec{H}_n = & H_{An}^-(\vec{x} + \vec{z}\frac{i k_{\parallel}}{\alpha_A}) \exp\{-\alpha_A(z - nd)\} \\ & + H_{An}^+(\vec{x} - \vec{z}\frac{i k_{\parallel}}{\alpha_A}) \exp\{\alpha_A(z - nd - d_A)\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + H_{An}^{\prime-}(\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A}) \exp\{-\alpha_A(z - nd)\} \\
& + H_{An}^{\prime+}(\vec{x} - \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_A}) \exp\{\alpha_A(z - nd - d_A)\} \tag{D.4}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\vec{H}_{n+1} & = H_{Bn}^-(\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B}) \exp\{-\alpha_B[z - (n+2)d + d_B]\} \\
& + H_{Bn}^+(\vec{x} - \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B}) \exp\{\alpha_B[z - (n+2)d]\} \\
& + H_{Bn+1}^{\prime-}(\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B}) \exp\{-\alpha_B[z - (n+2)d + d_B]\} \\
& + H_{Bn+1}^{\prime+}(\vec{x} - \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_B}) \exp\{\alpha_B[z - (n+2)d]\} \tag{D.5}
\end{aligned}$$

と与えられる。ただし、 $\alpha_A$ および $\alpha_B$ の定義は付録A中の式A.9と式A.10で与えられる。また、基板中の電磁波による磁界は、 $p = 2N$ とすると、

$$\vec{H}_S = H_S(\vec{x} + \vec{z}\frac{ik_{\parallel}}{\alpha_S}) \exp\{-\alpha_S(z - pd)\} \tag{D.6}$$

と書ける。

以下の手続きは、付録Aの場合とほぼ同じである。付録Aでの超格子各層の電界と同様に、超格子層内の各層の磁界について、次の関係式を満足していると考える。

$$H_{An}^{\pm} = H_A^{\pm} \exp(-\lambda n) \tag{D.7}$$

$$H_{An}^{\prime\pm} = H_A^{\pm} \exp\{-\lambda(p - n)\} \tag{D.8}$$

$$H_{Bn+1}^{\pm} = H_B^{\pm} \exp\{-\lambda(n + 1)\} \tag{D.9}$$

$$H_{Bn+1}^{\prime\pm} = H_B^{\pm} \exp\{-\lambda(p - n - 1)\} \tag{D.10}$$

ただし、 $\lambda$ は正の実数か、正の実部を持つ複素数である。また、計算の便宜上、

$$H_A^{\prime\pm} = H_A^{\pm} \exp(-\lambda p) \tag{D.11}$$

$$H_B^{\prime\pm} = H_B^{\pm} \exp(-\lambda p) \tag{D.12}$$

とおく。

電磁波の磁界に対して、A層とB層の境界面で、接線方向の磁界連続とz方向の磁束密度連続の境界条件を適応する。これらの境界条件は、 $\exp(-\lambda n)$ あるいは $\exp\{-\lambda(n+1)\}$ の項を持つ波と、 $\exp(\lambda n)$ あるいは $\exp\{\lambda(n+1)\}$ の項を持つ波とについて、別々に考える事ができる。まず、 $\exp(-\lambda n)$ あるいは $\exp\{-\lambda(n+1)\}$ の項を持つ波についての、 $z = nd$ と $z = nd + d_A$ における境界条件を記すと、

$$H_A^- + H_A^+ \exp(-\alpha_A d_A) = \exp \lambda \{H_B^- \exp(-\alpha_B d_B) + H_B^+\} \tag{D.13}$$

$$\alpha_B \mu_A \{H_A^- - H_A^+ \exp(-\alpha_A d_A)\} = \alpha_A \mu_B \exp \lambda \{H_B^- \exp(-\alpha_B d_B) + H_B^+\} \tag{D.14}$$

$$\exp(-\alpha_A d_A) H_A^- + H_A^+ = \exp(-\lambda) \{H_B^- + H_B^+ \exp(-\alpha_B d_B)\} \tag{D.15}$$

$$\alpha_B \mu_A \{H_A^- \exp(-\alpha_A d_A) - H_A^+\} = \alpha_A \mu_B \exp(-\lambda) \{H_B^- - H_B^+ \exp(-\alpha_B d_B)\} \tag{D.16}$$

となる。一方、 $\exp(\lambda n)$  あるいは  $\exp\{\lambda(n+1)\}$  の項を持つ波については、 $z = nd$  と  $z = nd + d_A$  において、

$$H_A'^- + H_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A) = \exp(-\lambda) \{H_B'^- \exp(-\alpha_B d_B) + H_B'^+\} \quad (D.17)$$

$$\alpha_B \mu_A \{H_A'^- - H_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A)\} = \alpha_A \mu_B \exp(-\lambda) \{H_B'^- \exp(-\alpha_B d_B) + H_B'^+\} \quad (D.18)$$

$$\exp(-\alpha_A d_A) H_A'^- + H_A'^+ = \exp(\lambda) \{H_B'^- + H_B'^+ \exp(-\alpha_B d_B)\} \quad (D.19)$$

$$\alpha_B \mu_A \{H_A'^- \exp(-\alpha_A d_A) - H_A'^+\} = \alpha_A \mu_B \exp(\lambda) \{H_B'^- - H_B'^+ \exp(-\alpha_B d_B)\} \quad (D.20)$$

という境界条件式が得られる。式 D.13 と式 D.14 から、 $H_B^+$  および  $H_B^-$  が、

$$E_B^+ = \frac{\exp(-\lambda)}{2} \{c_{m-} H_A^- + c_{m+} \exp(-\alpha_A d_A) H_A^+\} \quad (D.21)$$

$$E_B^- = \frac{\exp(-\lambda)}{2} \{c_{m+} H_A^- + c_{m-} \exp(-\alpha_A d_A) H_A^+\} \exp(\alpha_B d_B) \quad (D.22)$$

と表現できる。ただし、

$$C_{m+} = 1 + \frac{\alpha_B \mu_A}{\alpha_A \mu_B} \quad (D.23)$$

$$C_{m-} = 1 - \frac{\alpha_B \mu_A}{\alpha_A \mu_B} \quad (D.24)$$

と  $C_{m\pm}$  を定義した。また、式 D.17 と式 D.18 から、 $H_B^+$  と  $H_B^-$  が

$$H_B^+ = \frac{\exp(\lambda)}{2} \{c_{m-} H_A^- + c_{m+} \exp(-\alpha_A d_A) H_A^+\} \quad (D.25)$$

$$H_B^- = \frac{\exp(\lambda)}{2} \{c_{m+} H_A^- + c_{m-} \exp(-\alpha_A d_A) H_A^+\} \exp(\alpha_B d_B) \quad (D.26)$$

と表現される。

ここで、式 D.21 D.22 および式 D.15 D.16 より次の方程式が得られる。

$$\begin{bmatrix} c_{m+}(e^{-\alpha_A d_A} - e^{-2\lambda + \alpha_B d_B}) & c_{m-}(1 - e^{-2\lambda + \alpha_B d_B - \alpha_A d_A}) \\ c_{m-}(e^{-\alpha_A d_A} - e^{-2\lambda - \alpha_B d_B}) & c_{m+}(1 - e^{-2\lambda - \alpha_B d_B - \alpha_A d_A}) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} H_A^- \\ H_A^+ \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (D.27)$$

式 D.27 において、意味のある  $H_A^-$ 、 $H_A^+$  の解があるためには、行列式が 0 でなければならない。したがって、 $\lambda$  についての方程式、

$$\begin{aligned} & (\mu_A^2 \alpha_B^2 + \mu_B^2 \alpha_A^2) \sinh(\alpha_A d_A) \sinh(\alpha_B d_B) \\ & + 2\mu_A \mu_B \alpha_A \alpha_B \{ \cosh(\alpha_A d_A) \cosh(\alpha_B d_B) - \cosh(2\lambda) \} = 0 \end{aligned} \quad (D.28)$$

が得られる。この式が、第 2 章の式 2.38 と等価な式である。また、式 D.25 と式 D.26、および式 D.19 と式 D.20 より、式 D.27 と同様な方程式が得られる。

$$\begin{bmatrix} c_{m+}(e^{-\alpha_A d_A} - e^{2\lambda + \alpha_B d_B}) & c_{m-}(1 - e^{2\lambda + \alpha_B d_B - \alpha_A d_A}) \\ c_{m-}(e^{-\alpha_A d_A} - e^{2\lambda - \alpha_B d_B}) & c_{m+}(1 - e^{2\lambda - \alpha_B d_B - \alpha_A d_A}) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} H_A'^- \\ H_A'^+ \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (D.29)$$

他の3つの境界面についても、接線方向成分の磁界の連続と、z方向成分の磁束密度の連続より、6つの式が得られる。まず、プリズムと空気の界面、すなわち  $z = -d_g$  において、

$$H_i + H_r = H_g^- \exp(\alpha_g d_g) + H_g^+ \exp(-\alpha_g d_g) \quad (D.30)$$

$$\mu_p \alpha_g (-H_i + H_r) = i \mu_g k_z \{H_g^- \exp(\alpha_g d_g) + H_g^+ \exp(-\alpha_g d_g)\} \quad (D.31)$$

が得られる。また、空気層と超格子層の界面 ( $z = 0$ ) では、

$$H_g^- + H_g^+ = H_A^- + H_A^+ \exp(-\alpha_A d_A) + H_A'^- + H_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A) \quad (D.32)$$

$$\begin{aligned} \mu_g \alpha_A (H_g^- - H_g^+) &= \mu_A \alpha_g H_A^- - H_A^+ \exp(-\alpha_A d_A) \\ &+ \mu_A \alpha_g H_A'^- - H_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A) \end{aligned} \quad (D.33)$$

となる。さらに、超格子層と基板の界面 ( $z = N d$ ) では、

$$\begin{aligned} H_S &= \exp\{-\lambda(p-1)\} \{H_B^- \exp(-\alpha_B d_B) + H_B^+\} \\ &+ \exp\{\lambda(p-1)\} \{H_B'^- \exp(-\alpha_B d_B) + H_B'^+\} \end{aligned} \quad (D.34)$$

$$\begin{aligned} \mu_S \alpha_A H_S &= \mu_B \alpha_S \exp\{-\lambda(p-1)\} \{H_B^- \exp(-\alpha_B d_B) - H_B^+\} \\ &+ \mu_B \alpha_S \exp\{\lambda(p-1)\} \{H_B'^- \exp(-\alpha_B d_B) + H_B'^+\} \end{aligned} \quad (D.35)$$

となる。

式 D.34 と式 D.35 は、それぞれ式 D.13 D.17 と式 D.14 D.18 を用いると、 $H_B^-$ 、 $H_B^+$ 、 $H_B'^-$ 、 $H_B'^+$  のかわりに、 $H_A^-$ 、 $H_A^+$ 、 $H_A'^-$ 、 $H_A'^+$  を使って書き表すことができる。その結果は、

$$\begin{aligned} H_S &= \exp(-\lambda p) \{H_A^- + H_A^+ \exp(-\alpha_A d_A)\} \\ &+ \exp(\lambda p) \{H_A'^- + H_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A)\} \end{aligned} \quad (D.36)$$

$$\begin{aligned} \mu_S \alpha_A H_S &= \mu_A \alpha_S \exp(-\lambda p) [H_A^- - H_A^+ \exp(-\alpha_A d_A)] \\ &+ \mu_A \alpha_S \exp(\lambda p) [H_A'^- - H_A'^+ \exp(-\alpha_A d_A)] \end{aligned} \quad (D.37)$$

となる。また、式 D.24 と式 D.29 より、

$$\begin{aligned} H_A'^- &= \frac{-C_{m-} \{1 - \exp(-2\lambda + \alpha_B d_B - \alpha_A d_A)\}}{C_{m+} \{\exp(-\alpha_A d_A) - \exp(-2\lambda + \alpha_B d_B)\}} H_A^+ \\ &\equiv K_m H_A^+ \end{aligned} \quad (D.38)$$

$$\begin{aligned} H_A'^+ &= \frac{-C_{m+} \{1 - \exp(2\lambda - \alpha_B d_B - \alpha_A d_A)\}}{C_{m-} \{\exp(-\alpha_A d_A) - \exp(2\lambda - \alpha_B d_B)\}} H_A^+ \\ &\equiv K'_m H_A^+ \end{aligned} \quad (D.39)$$

という式が得られる。これらの式から、付録 A と同様に線形連立方程式をたて、行列を用いると、

$$\begin{bmatrix} M_{m11} & M_{m12} & M_{m13} \\ M_{m21} & M_{m22} & M_{m23} \\ M_{m31} & M_{m32} & M_{m33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} V_{m1} \\ V_{m2} \\ V_{m3} \end{bmatrix} = H_i \begin{bmatrix} B_{m1} \\ B_{m2} \\ B_{m3} \end{bmatrix} \quad (D.40)$$

$$M_{m11} = \begin{bmatrix} 1 & -\exp(\alpha_g d_g) \\ \mu_p \alpha_g & -i\mu_g k_z \exp(\alpha_g d_g) \end{bmatrix} \quad (\text{D.41})$$

$$M_{m12} = \begin{bmatrix} -\exp(-\alpha_g d_g) & 0 \\ i\mu_g k_z \exp(-\alpha_g d_g) & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{D.42})$$

$$M_{m13} = M_{m31} = \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{D.43})$$

$$M_{m21} = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 0 & \mu_g \alpha_A \end{bmatrix} \quad (\text{D.44})$$

$$M_{m22} = \begin{bmatrix} 1 & M_m \\ -\mu_g \alpha_A & \mu_A \alpha_g L_m \end{bmatrix} \quad (\text{D.45})$$

$$M_{m23} = \begin{bmatrix} M'_m & 0 \\ \mu_A \alpha_g L'_m & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{D.46})$$

$$M_{m32} = \begin{bmatrix} 0 & -\exp(-\lambda p) M_m \\ 0 & -\mu_A \alpha_S \exp(-\lambda p) L_m \end{bmatrix} \quad (\text{D.47})$$

$$M_{m32} = \begin{bmatrix} -\exp(\lambda p) M'_m & -1 \\ -\mu_A \alpha_S \exp(\lambda p) L'_m & -\mu_S \alpha_A \end{bmatrix} \quad (\text{D.48})$$

$$V_{m1} = \begin{bmatrix} H_r \\ H_g^- \end{bmatrix} \quad (\text{D.49})$$

$$V_{m2} = \begin{bmatrix} H_g^+ \\ H_A^+ \end{bmatrix} \quad (\text{D.50})$$

$$V_{m3} = \begin{bmatrix} H_A^- \\ H_S \end{bmatrix} \quad (\text{D.51})$$

$$B_{m1} = \begin{bmatrix} -1 \\ \mu_p \alpha_g \end{bmatrix} \quad (\text{D.52})$$

$$B_{m2} = B_{m3} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (\text{D.53})$$

ただし、

$$M_m = -K_m - \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{D.54})$$

$$M'_m = -K'_m - \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{D.55})$$

$$L_m = -K_m + \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{D.56})$$

$$L'_m = -K'_m + \exp(-\alpha_A d_A) \quad (\text{D.57})$$

と表現される。式 D.40より  $|H_r/H_i|^2$  を求めると、

$$R = |N/D|^2 \quad (\text{D.58})$$

ただし、

$$\begin{aligned}
 N &= \mu_A \alpha_g \{A_{m+} \exp(\alpha_g d_g) - A_{m-} \exp(-\alpha_g d_g)\} \\
 &\quad \{M_m C'_m \exp(\lambda p) - M'_m C_m \exp(-\lambda p)\} \\
 &+ \mu_g \alpha_A \{A_{m+} \exp(\alpha_g d_g) + A_{m-} \exp(-\alpha_g d_g)\} \\
 &\quad \{L_m C'_m \exp(\lambda p) - L'_m C_m \exp(-\lambda p)\}
 \end{aligned} \tag{D.59}$$

$$\begin{aligned}
 D &= \mu_A \alpha_g \{A_{m-} \exp(\alpha_g d_g) - A_{m+} \exp(-\alpha_g d_g)\} \\
 &\quad \{M_m C'_m \exp(\lambda p) - M'_m C_m \exp(-\lambda p)\} \\
 &+ \mu_g \alpha_A \{A_{m-} \exp(\alpha_g d_g) + A_{m+} \exp(-\alpha_g d_g)\} \\
 &\quad \{L_m C'_m \exp(\lambda p) - L'_m C_m \exp(-\lambda p)\}
 \end{aligned} \tag{D.60}$$

$$A_{m+} = \mu_p \alpha_g + i \mu_g k_z \tag{D.61}$$

$$A_{m-} = \mu_p \alpha_g - i \mu_g k_z \tag{D.62}$$

$$C_m = \mu_S \alpha_A L_m - \alpha_S \mu_A M_m \tag{D.63}$$

$$C'_m = \mu_S \alpha_A L'_m - \alpha_S \mu_A M'_m \tag{D.64}$$

となる。以上でTE (s) 偏光に対するATRスペクトルの計算式が求められた。

# 謝 辞

本研究の遂行と論文作成に際し、終始懇切なる御指導および御教示を賜った大阪大学工学部電子工学科浜口智尋教授ならびに徳島大学工学部電気電子工学科福井萬壽夫教授に深甚なる感謝の意を表します。

本論文の作成にあたり、懇切なる御指導を賜った大阪大学工学部電子工学科吉野勝美教授並びに、大阪大学工学部電子工学科尾浦憲治郎助教授に深甚なる感謝の意を表します。

さらに、筆者が大阪大学大学院工学研究科（電子工学専攻）博士前期課程に在学中、御指導を賜わり、また本論文の作成にあたり御指導を賜った大阪大学工学部西原浩教授、大阪大学工学部裏克己教授、児玉慎三教授に心から感謝致します。

本研究の遂行に対し惜しめない協力を賜った徳島大学工学部電気電子工学科桑原稔技官、また、試料を快く提供していただいた富士通厚木研究所武藤俊一氏に感謝いたします。そして、フォトリフレクタンス法の実験および結果の解析の一部を共同で行った徳島大学大学院工学研究科修士課程の中河義典氏（現藤倉電線）他徳島大学大学院工学研究科物性デバイス講座の学生諸君に感謝致します。

# 論文業績

## 論文

1. "Photoluminescence measurement in GaAs with high spatial resolution" : T. Shirakawa, M. Haraguchi, M. Murakami, and C. Hamaguchi, Jpn. J. Appl. Phys., 24, 1565 (1985)
2. 「全反射減衰法による薄膜・表面物性の評価」: 福井萬壽夫、原口雅宣、日本物理学会誌 第43巻 第11号 862項 1988年
3. "Optical response of semi-infinite and finite GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As superlattices" : Y. Nagano, K. Matsugi, M. Haraguchi, and M. Fukui, J. Phys. Soc. Jpn., 58, 733 (1989).
4. "Experimental observation of attenuated-total-reflection spectra of a GaAs/AlAs superlattice" : M. Haraguchi, M. Fukui, and S. Muto, Phys. Rev., B41, 1254 (1990).
5. "In situ and real-time observation of optical constants of metal films during growth" : M. Yano, M. Fukui, M. Haraguchi, and Y. Shintani, Surf. Science, 227, 129 (1990).
6. "Photorefectance spectra from GaAs buffer layer of GaAs/AlAs multiple quantum well / GaAs buffer / GaAs substrate" : M. Haraguchi, Y. Nakagawa, M. Fukui, and S. Muto, Jpn. J. Appl. Phys., 30, 1367 (1991).
7. "New type of photothermal spectroscopic technique" : H. Saito, M. Irikura, M. Haraguchi, and M. Fukui, Appl. Opt., 31, 2047 (1992).
8. "Optical bistability associated with surface plasmon polariton excitation" : T. Okamoto, M. Haraguchi, and M. Fukui, J. Phys. Soc. Jpn., 61, 1549 (1992).
9. "Studies on surface polaritons in ultrathin films sandwiched by identical dielectrics" : M. Takabayashi, H. Shiba, M. Haraguchi, and M. Fukui, J. Phys. Soc. Jpn., 61, 2550 (1992).
10. "Surface polaritons due to the folded optical phonons in GaAs/AlAs superlattices" : M. Haraguchi, M. Fukui, S. Muto, J. Phys. Soc. Jpn., 62, 340 (1993).



11. "Two modulation mechanisms for photoreflectance from GaAs/AlAs multiple quantum well" : M. Haraguchi, Y. Nakagawa, M. Fukui, and S. Muto, Superlattices and Microstruct. accepted.
12. "Degradation mechanism of Au/AlOx/Al tunnel junction" : Y. Hirao, M. Haraguchi, M. Fukui, Gi X. Guo, A. Yoshida, J. Phys. Soc. Jpn., accepted.
13. "Optical bistability in prism/Ag film/nonlinear film/Air geometry by utilizing surface plasmon and guided wave characteristics" : T. Okamoto, M. Haraguchi, M. Fukui, H. Kawakami, S. J. Al-Bader, J. Phys. Soc. Jpn., accepted.

## 研究会試料

「顕微フォトルミネッセンス法による半絶縁性GaAs基板の評価」: 白川二、村上資和、原口雅宣、濱口智尋、日本学術振興会第145委員会第27回研究会試料、1985年

## 解説

1. 「フォトルミネッセンストポグラフィー」白川二、原口雅宣、久保等、濱口智尋、応用物理 第56巻 第1号 93項 1987年
2. 「高空間分解フォトルミネッセンス」原口雅宣、白川二、濱口智尋、応用物理 第57巻 第1号 136頁 1988年
3. 「最近の半導体超格子研究について」原口雅宣、機能材料 第8巻 6号 15頁 1988年