

金属・量子井戸ヘテロ界面の動的共鳴現象

松井 裕章 (東大工)

近年、ナノ領域で起きる局在表面プラズモンを応用したナノ光デバイスの創製が注視され、太陽電池及び光・電子デバイスへの幅広い研究展開が成されている。特に、局在表面プラズモンに伴う微小空間における著しい電場増強は、之までの半導体技術を凌駕する光機能を発現させる。故に、金属・半導体ヘテロ界面における光学応答の動的共鳴現象の解明は、重要な研究基盤となる。本研究では、金属・量子井戸ヘテロ界面構造に着目し、CdZnO/ZnO 量子井戸内の励起子(電子・正孔対)と、金属間の動的共鳴現象を明らかにする。特に、光励起下で生成される量子井戸内の励起子と、金属ナノ構造近傍で生じる局在表面プラズモンとの共鳴結合に着目する。ファーフィールド及びニアフィールドの光計測を駆使し、局所ナノ空間における量子井戸と、局在表面プラズモンのダイナミクスを解明していく。

1. CdZnO/ZnO 単一量子井戸 (SQW) と光学的性質

Cd_{0.08}Zn_{0.92}O/ZnO 単一量子井戸 (SQW) 構造は、極短波パルスレーザー堆積(PLD)法により形成した。図1に透過電子顕微鏡(HR-TEM)の断面構造を示す。ホモエピタキシャル成長により、転位及び欠陥等は最小限に抑制され、ZコントラストによるSTEM観察から、CdZnO 井戸層が精確に形成されている。図 2 に、測定温度 10K における SQW からの励起子発光エネルギーの井戸幅依存性を挙げる。井戸幅(L_w)の減少と共に、発光ピークは高エネルギー側に線形にシフトする。ZnO は、c軸(0001)方向に自発分極効果が存在する。故に、CdZnO/ZnO ヘテロ構造において大きな電界傾斜(F = 520kV/cm)が生じ、広い井戸幅(L_w = 4.2 及び 4.8 nm)の SQW 試料は、ヘテロ界面において三角ポテンシャル構造が形成される。それは、励起強度の変調による band carrier filling 効果から確認された。本研究では、Cd 濃度及び井戸幅を変化させることで、励起子の量子井戸内への閉じ込め状態(環境)を制御することが可能である。

2. 金属・量子井戸ヘテロ界面における光学応答

図 3(a)に、SQW の励起子エネルギーと、Ag/SQW ヘテロ界面に生じる表面プラズモンとの結合強度(Γ_{sp})の光子エネルギー依存性を次式(1)から導出した。

$$\Gamma_{sp}(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar} \left\langle \vec{d} \cdot \vec{E}(a) \right\rangle^2 \rho(\hbar\omega) [DOS] \quad (1)$$

図 3(a)から、2.9eV 近傍において強い結合強度を示し、量子井

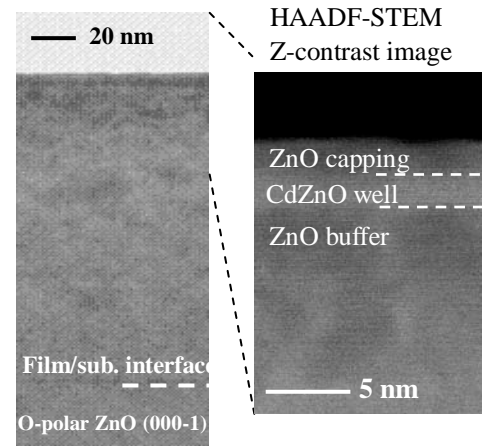


Fig. 1: X-HRTEM image and Z-contrast image of a Cd_{0.08}Zn_{0.92}O/ZnO single quantum well (SQW) structure with the [11-20] direction.

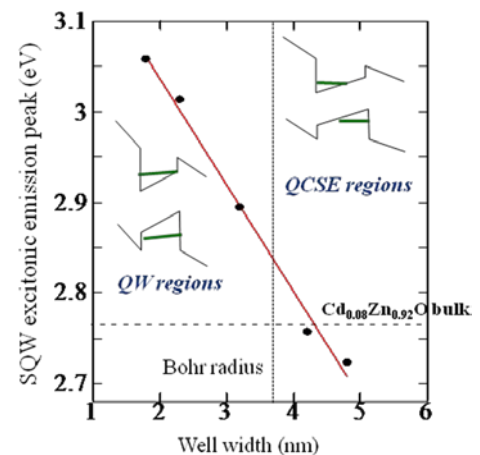


Fig. 2: Dependence of SQW emission peak energy on well width (L_w).

戸がAg層に近いほど結合強度 (Γ_{sp}) が増大する。Ag層と量子井戸構造間の ZnO スペースの層厚(a)が増加した際、 Γ_{sp} は減少する。表面プラズモンによる増強電場内に量子井戸層を設計するためには、数ナノメートル単位で ZnO スペース層を制御することが必須である。図 3(b)に、上記で述べた SQW 試料からの発光スペクトルを示す。量子井戸内から励起子光の光子エネルギーは、Ag/SQW ヘテロ界面で生じる表面プラズモンの共鳴結合領域に相当する。

Ag/SQW ヘテロ構造は、SQW 層の表面上に PLD 法を用いて Ag 層を 9nm 成長させて作製した。STEM 像及び AFM 観察から、Ag 層と ZnO スペース層のヘテロ界面は高平坦であると推察される。図 4 に、Ag/SQW 試料における Ag 層の影響を調査した結果を挙げる。Ag 層が無い領域 (without Ag) は、強い励起子光が観測され、一方、Ag 層が有る領域 (with Ag) では、急激に励起子光強度が抑制された。Difference PL から、消光率は約 10 倍程度である(図 4(b))。これは、量子井戸内の励起子の双極子振動と Ag/ZnO 界面で生じる金属振動との電磁気(クーロン)相互作用が起因する。この消光現象は、量子井戸内に閉じ込められる励起子の環境(状態)に強く依存する。更に、消光効果は、室温においては観測されず、励起子と金属間のエネルギー共鳴は、低温域のみで発現する。今後、超高速分光、金属の微細加工及び近接場光を活用し、金属と励起子間のエネルギー動的な共鳴現象、また、局所ナノ空間における表面プラズモンとの動的共鳴効果の観測へと展開する。

参考文献

- [1] H. Matsui and H. Tabata, Appl. Phys. Lett. **94** (2009) 161907.
- [2] H. Matsui and H. Tabata, Phys. Rev. B **75** (2007) 014438.
- [3] H. Matsui, N. Hasuike, H. Harima, T. Tanaka and H. Tabata, Appl. Phys. Lett. **89** (2006) 091909.
- [4] H. Matsui, N. Hasuike, H. Harima and H. Tabata, J. Appl. Phys. **99** (2006) 024902.
- [5] 松井裕章、田畑仁 応用物理 **75** (2006) 1211.
- [6] 松井裕章、田畑仁 表面科学 **27** (2006) 708.

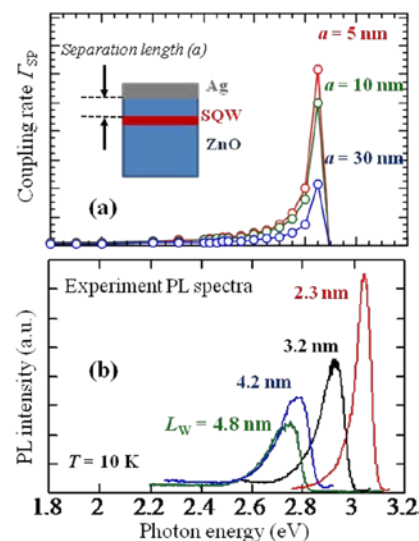


Fig. 3: ZnO spacer thickness versus coupling rate spectra for Ag/SQW structures (a). PL spectra of SQW with different L_w (b).

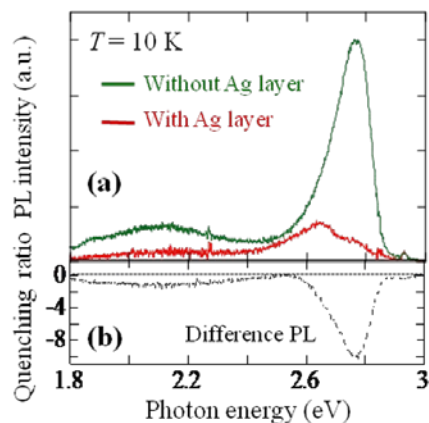


Fig. 4: (a) PL spectra of Ag/SQW structure with L_w of 4.8 nm on sample regions with and without Ag layer. (b) difference PL spectrum.