

明滅する量子点——その発生機構について——

分光解析グループ

杉崎 満

単一量子点分光法により、マトリックス中に閉じ込められた自己形成型量子点の光学特性を調べた結果、量子点の中に明滅現象を示すものが含まれていることを見いだした。明滅は規則性を持たないランダムな過程で、励起子間相互作用が状態間の遷移に大きな役割を果たしていることが分かった。温度特性、外場効果などから、明滅現象は、量子点近傍の深い準位における、光励起されたキャリアの捕獲、緩和過程を反映し、局所電場が大きな発光強度の変化をもたらしているとは結論した。

1.はじめに

近年の結晶作成法、及び分光法の発達により、半導体単一量子点を観測することが可能となってきた。その結果、量子点のサイズや形状のばらつきを反映した幅の中に隠されていた、個々の量子点の特性が、次第と明らかになってきた。たとえば、励起子分子^{1,2)}、ゼーマン分裂^{2,4)}、光学異方性^{5,6)}、シュタルク効果^{7,8)}等の微細構造は、単一量子点分光法により観測が可能となった顕著な例と言える⁹⁾。

発光スペクトルのピークエネルギーや強度が、時間と共に大きく変化する現象もまた、単一量子点分光法により発見された興味深い現象である。前者は、スペクトラルディフュージョンと呼ばれ、CdSe¹⁰⁻¹³⁾やInAlAs¹⁴⁾で観測されている。また、後者は、フローレッセンスインターミッテンシー(発光の明滅現象)やランダムテレグラフシグナルなどという名で呼ばれ、これまでに、CdSe、GaAs、及びInPなどの数種類の0次元系半導体において、その存在が報告されてきている^{6,10,14-18)}。しかし、これらの現象の起源については、いくつかの簡単な

モデルが提案されているものの、実験的には、いまだ満足な証明がなされていない。特に、発光の明滅現象においては、なぜ大きな発光強度の変化が起こるか、またそのときの電子状態はどのようになっているのか等の本質的な部分については、本研究以前には、はっきりとした答えがでていなかった。

ここでは、InP自己形成型量子点を用いて測定した、発光の明滅現象の起源に迫る。量子点近傍に存在する欠陥準位に捕らえられたキャリアにより発生する局所的電場が、量子点の光学特性に及ぼす影響について議論し、人工的に明滅現象を再現する方法について述べる。

2.研究の内容

2.1実験方法

試料の作成にはMOVPEシステムを用い、InP量子点はSiを含むGaAsの(001)基板上に堆積した250 nm厚のGa_{0.5}In_{0.5}Pマトリックスにサンドイッチする形で成長させた^{19,20)}。光学測定用の励起光源にはアルゴンレーザーの488 nm線、及びチタンサファイアレー

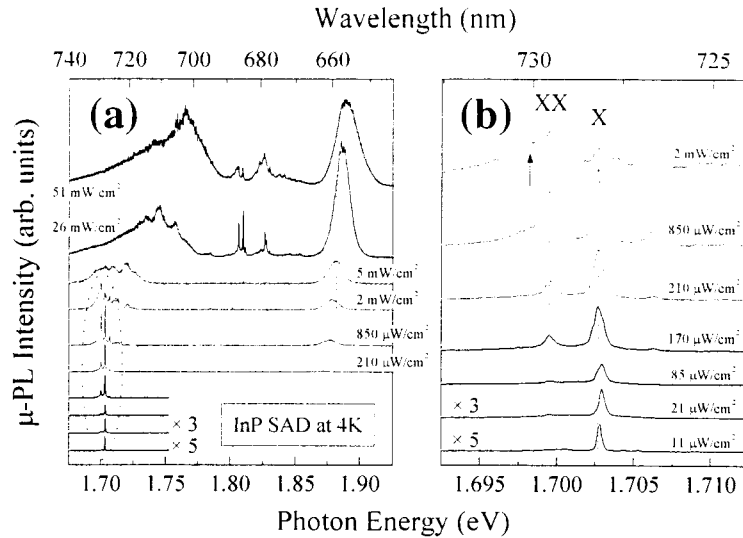


図1:(a) 単一量子点からの顕微発光スペクトルの励起強度依存性. 上から下に行くに従って, 励起強度を下げていく. (b) 図1(a)の点線で囲んだ領域の拡大図. X, XXは, それぞれ, 単一量子点に閉じ込められた1励起子, 及び, 励起子分子 (2励起子) 状態からの発光である.

ザーを用いた. 顕微発光測定の際には, 液体ヘリウム温度まで冷却可能なフロータイプのクライオスタットを用い, サンプルからの発光は顕微鏡の対物レンズで集光した. 顕微発光イメージは, 色ガラスフィルターと電子冷却型CCDカメラを組み合わせることで得ることが出来た. 顕微発光のスペクトルの測定には, 50 cmシングル分光器と液体窒素冷却型CCDを使用し, 積分発光強度の測定には, 光電子増倍管を用いてロックイン検出を行った.

2.2 通常の単一量子点における

顕微発光スペクトル

明減量子点の光学特性について述べる前に, 励起強度を3桁にわたって変化させて測定した, 通常の単一量子点における顕微発光スペクトルを図1に示す. 強励起下における単一量子点の発光スペクトルは, 励起子間相互作用のため, 複数の広い幅を持つ発光帯が観測される. 励起強度を下げていくと, 発光帯の幅は徐々に狭くなって行

き, 極めて弱い励起下においては, 0次元系半導体の特徴である δ 関数型の状態密度を反映した, 非常に細い線幅を持つ発光ピーク(X)が観測される (図1の一番下に示されるスペクトル). この発光線が, 単一量子点中に閉じ込められた1励起子状態の輻射緩和を表している. 1励起子発光の数meV低エネルギー側には, 励起強度に対し二乗で成長する発光線(XX)が観測される. これは, 2励起子状態 (励起子分子) からの発光と考えられる. また, この低エネルギー側の矢印で示した所には, 理論との比較により3励起子状態と考えられる発光帯も観測された²⁰. いくつかの量子点を調べてみると, InP量子点中の励起子分子の結合エネルギーは量子点ごとに少しずつ異なる値を持つが, 平均して約3 meVであることが分かった. これは, バルク結晶における励起子分子の結合エネルギー²⁰に対しおよそ3倍の値を持つ. 以上の結果は, 次元の低下に伴い多励起子状態が安定化する事を示している.

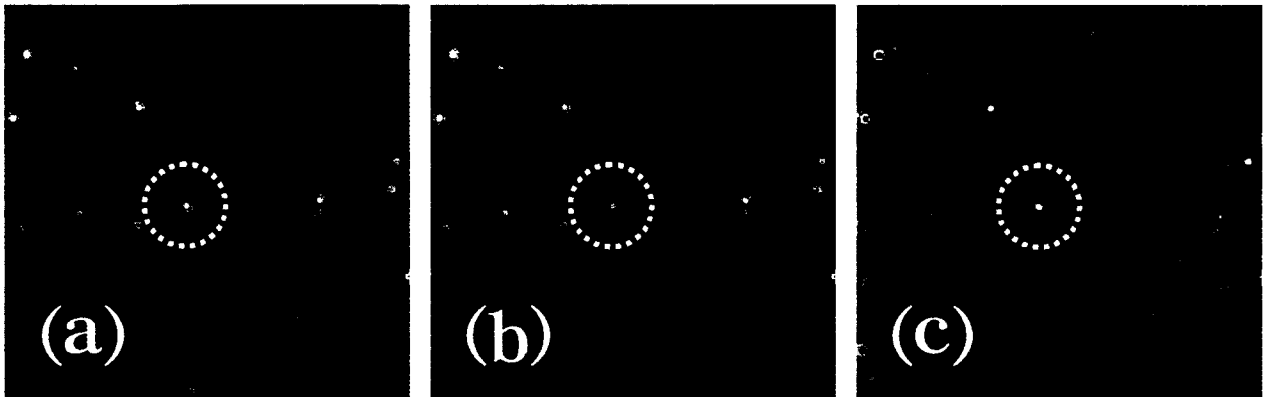


図2:明滅現象を示す量子点の顕微イメージ. 点線で囲まれた量子点以外の発光強度は, 変化していないことに注意. $\sim 100 \text{ mW/cm}^2$ のレーザーを照射すると, (a)と(b)の状態を数msecから数secの間隔でランダムに行き来する様子が観測される. 観測領域のサイズは $44 \mu\text{m} \times 43 \mu\text{m}$. ハロゲン照射のイメージ(c)には傷が見える.

2.3明滅量子点のイメージ観測と解析方法

図2(a), (b)は, 全く同じ場所を約1 sの間隔を置いて測定した顕微発光イメージである. 観測は, 200 msecのシャッタースピードで行った. 図2(a)において, 点線で囲まれた領域に量子点からの発光が, はっきりと観測されるのに対し, 図2(b)では, 発光が非常に弱くなっている. これに対し, それ以外の量子点からの発光強度には, 図2(a)と図2(b)の間に, 全く違いが見られない. 点線で囲まれた量子点からの発光は, 図2(a)と図2(b)の間を, 数百msから数sec間隔で行き来する. このような明滅現象を示す量子点の数は, 試料ごとに異なり, 多いもので, およそ 10^3 個の通常の量子点の中に1個, 少ないものでは, サンプルの小片の中に数個 ($\sim 10^7$ 個に1個)の割合で存在していた. 以後, 便宜上, 図2(a), 2(b)を, それぞれ, on状態, 及びoff状態と呼ぶ.

図3は, 明滅量子点からの積分発光強度の時間変化を9分間に渡って測定したものである. 強い発光を示すon状態と, 発光が弱くなるoff状態の間を行き来している様子が観測されている. また, on状態に比べ

off状態の方が持続時間が短いことも分かる. 量子点の中には, さらに複雑な強度変化をするものもあるが, この現象の物理を探るために, 単純な2準位間の強度変化をする明滅量子点を選んで観測した (複数の準位間を行き来する例は, 後に図10(c)で示す).

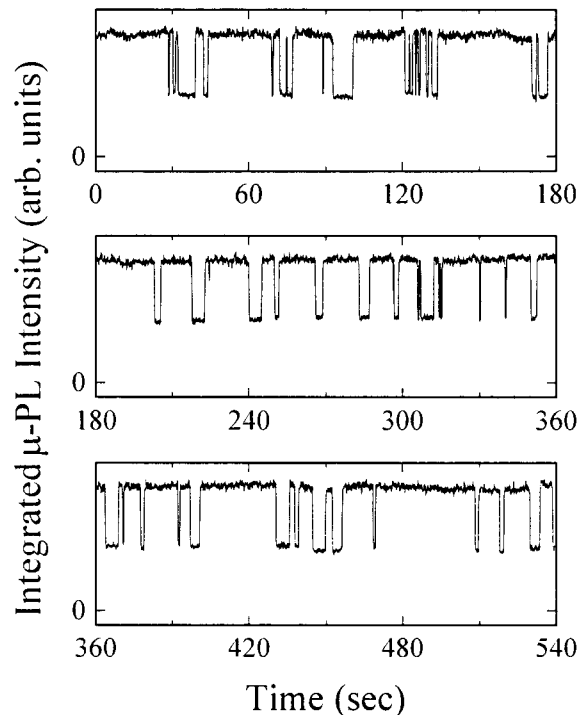


図3:明滅量子点における積分発光強度の時間変化を540 sec間測定したもの. on状態とoff状態の2つ状態間を行き来している様子が見て取れる.

明滅量子点の特性とその起源を明らかにするためには、統計的に現象を解析する必要があります。十分長い時間をかけて測定を行った。図4(a)は、図3に示される量子点について、その積分発光強度の時間変化を1時間に渡って測定したものを、

$$C(\tau) = \frac{\sum_{t=0}^N (I(t) - \bar{I})(I(t + \tau) - \bar{I})}{\sum_{t=0}^N (I(t) - \bar{I})^2}, \quad (1)$$

により定義される相関関数 $C(\tau)$ に変換してプロットしたものである。相関時間 τ が大きくなるにつれ、相関が単調に減少していることが分かる。一方、図4(b)、及び4(c)は、それぞれon状態とoff状態の出現回数 I を、状態の持続時間の関数 τ としてヒストグラム表示したものである。on状態、off状態の何れも、

$$I(t) = C \exp(-t/T), \quad (2)$$

により、良くフィットすることが出来る。ここで、 C は時間に依存しない定数である。以上の結果から、明滅はランダムに起こる現象として考えて良いことを示している。以下、 T をon状態、及びoff状態の平均時間とし(それぞれ T_{on} 、 T_{off} と書くことにする)、また、その逆数 $1/T$ をスイッチングレートと呼ぶことにする。

2.4 励起強度依存性

図5(a)は、励起強度を変えながら測定した、積分発光強度の時間変化である。励起強度が下がるにつれ明滅の頻度が減少し、on状態、及びoff状態の持続時間が増加して行く様子が、はっきりと観測された。図5(b)は、図5(a)に示した量子点について、

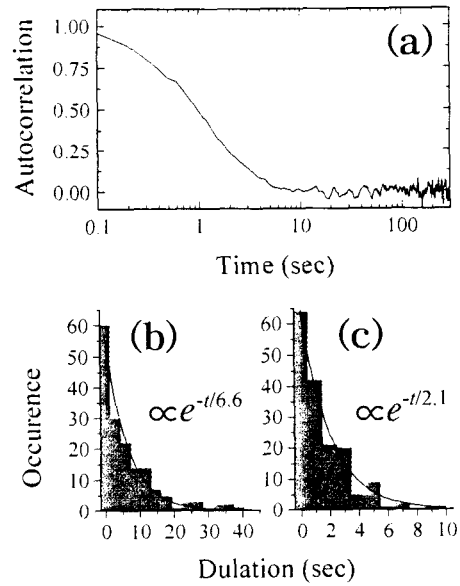


図4:(a) 図3を(1)式により変換した明滅の時間相関。時間原点以外には強い相関が認められない。(b)および(c) on状態、及びoff状態の出現回数を、それらの持続時間でヒストグラム表示したもの。何れの場合も、(2)式でフィットすることができる。

on状態、及びoff状態の持続時間 T の励起強度依存性をまとめたものである。on状態、及びoff状態の持続時間は、それぞれ励起強度 P の -1.5 乗、及び -1 乗に比例している。また、図5(b)~(e)に示されるように、何れの量子点においてもon状態、及びoff状態の持続時間 T は、励起強度 P に対して

$$T \propto e^{-P}, \quad (3)$$

に従い変化していくが、その乗数 P は、量子点ごとに異なることが分かった。このような、切片を持たない指数関数的な励起強度依存性が観測されると言うことは、明滅現象は、光励起されたキャリア間における高次の相互作用の結果現れることを意味している。さらに、量子点の中には図5(d)のように、on状態よりもoff状態の持続時間の方が長いものや、図5(e)のoff状態のよう

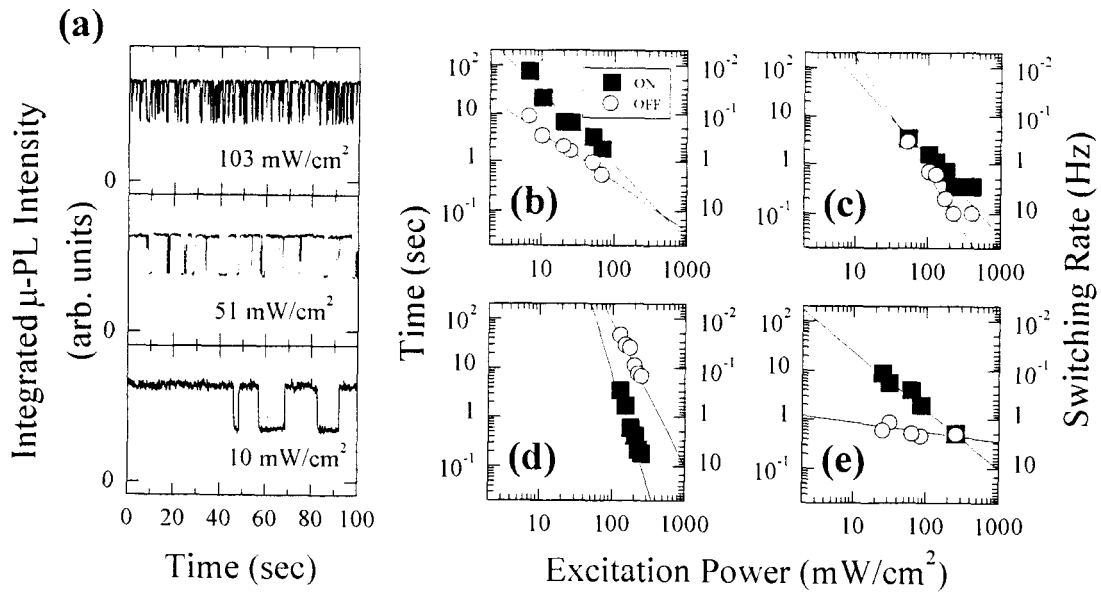


図5:(a) 積分発光強度の励起強度依存性. 励起強度を下げると, on状態, off状態共に持続時間がのびていく. (b)~(e) on状態 (○印), 及びoff状態 (■印) の持続時間の励起強度依存性. 4つ明滅量子点の例を挙げる.

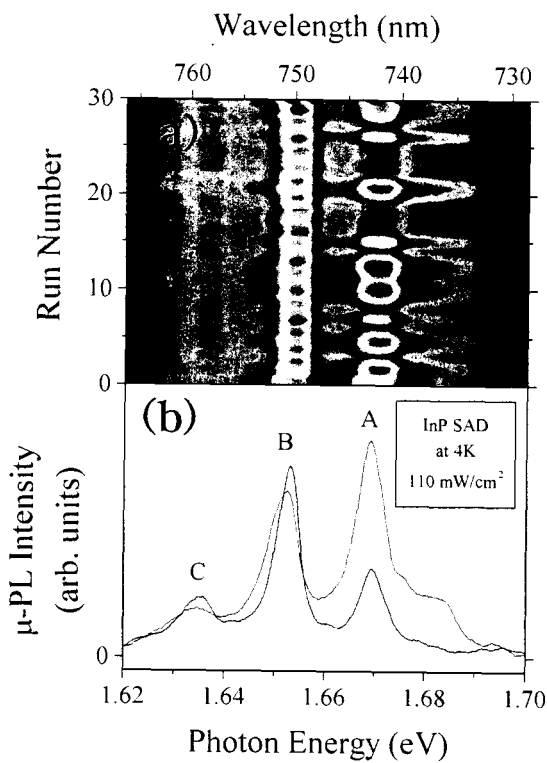


図6:(a) 明滅量子点ただ一つからの顕微発光スペクトルを30回連続測定し, それを等高線表示したもの. (b) on状態 (赤線), 及びoff状態 (青線) における顕微発光スペクトル. 発光強度は, 1.669 eVに現れるピークAがon状態とoff状態の間で最も大きな変化をするのに対し, その低エネルギーのピークB(1.653 eV)とピークC(1.635 eV)は, 発光強度の変化がほとんど見られない.

に, 励起強度にほとんど依存しないものも含まれていることも明らかとなった.

図6(a)は, 明滅量子点ただ一つからの顕微発光スペクトルを30回連続測定し, それを等高線表示したものである. 測定は, 約1 sec間隔で行い, スペクトル1つにつき200 msecの積算を行った. 解析の結果, 顕微発光スペクトルは, 図6(b)に示すように, 二種類に分類され, それぞれ, on状態 (赤線), off状態 (青線) に対応することが分かった. 発光強度は, 1.669 eVに現れるピークAがon状態とoff状態の間で最も大きな変化をする. それに対し, その低エネルギーのピークB(1.653 eV)とピークC(1.635 eV)は, 発光強度の変化がほとんど見られない. 即ち, 明滅現象は, 発光帯全体の強度が変わるのではなく, 特定の発光帯の大きな強度変化によってもたらされる. 低エネルギー側にある発光帯の強度はほとんど変化しないため, 図2(b)に見られるように, off状態になっても, 発光が完全に消失することがない. また, ピークB, 及びCは, on状態

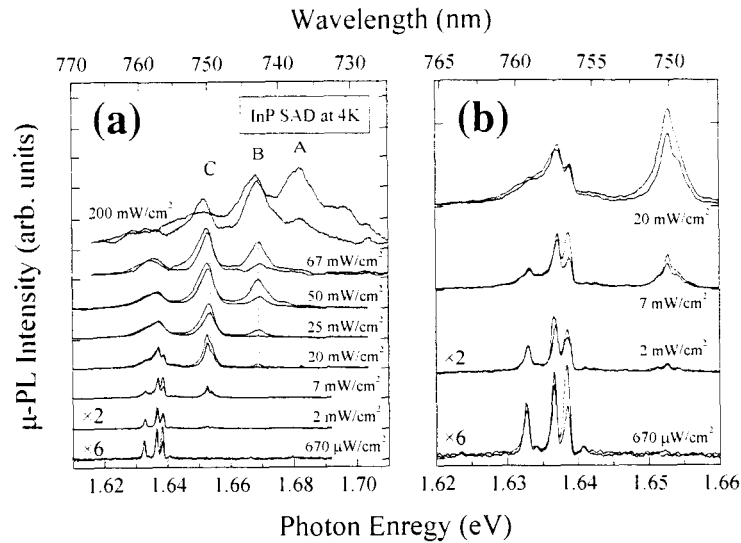


図7:(a) 明滅現象を示す量子点における顕微発光スペクトルの励起強度依存性. on状態, off状態で観測したスペクトルを, それぞれ, 赤線, 青線で示す. (b) 図7(a)の点線で囲んだ領域の拡大図.

からoff状態に移ると発光ピークが, 数meV高エネルギー側にシフトすることも分かった.

図7は, 励起強度を, 200 mW/cm²から670 μW/cm²の広い範囲で変化させたときの明滅現象を示す量子点における顕微発光スペクトルである. on状態, off状態で観測したスペクトルを, それぞれ, 太線, 細線で示す. 最も強い200 mW/cm²の励起下で観測した顕微発光スペクトルを見てみると, 1.68 eVに観測される発光ピークAが, on状態とoff状態の間で最も大きな強度変化をしていることが分かる. また, その隣の1.67 eVに現れる発光帯Bの強度変化はそれほど大きくないが, on状態からoff状態になると, 僅かに高エネルギーシフトをしている. これらの変化は, 図6(b)における励起下で測定したスペクトルと同じである.

励起強度を, これの1/3に下げると(=67 mW/cm²) 1.67 eVに観測される発光帯Bの強度変化が最も顕著になり, その隣に観測される1.65 eVの発光ピークCが, on状

態とoff状態の間でエネルギーシフトをする. このように, 明滅に寄与する発光帯は, 励起強度ごとに異なることが分かる.

最も弱い励起(670 μW/cm²)で観測した顕微発光スペクトルには, 3本の発光線が観測される. これは, 弱励起下で観測した, 通常の量子点からの発光スペクトルでは, 発光線の本数が1本だけ現れることと対照的である[図1(b)参照]. このことは, 明滅現象を示す量子点に閉じこめられた励起子は, 複数の安定状態を持つことを示している.

我々が測定した明滅量子点のほとんどは, 図2(c)のように, 試料表面にある小さな傷の近くで発見された. また, 試料の表面を意図的に傷を付けてみると, 明滅減少を示す量子点の数が増大したことを併せて考えると, InP半導体量子点においては, 量子点近傍に存在する欠陥準位が大きく関与していることが, 予想される⁹⁾.

2.5 明滅現象の発生メカニズム

以上の測定結果から, 明滅現象は, 次のよ

うなメカニズムで起こっていると考えられる。正孔、あるいは電子が高密度に量子点内に生成されると、励起子間相互作用の結果、量子点近傍の欠陥準位に散乱されてしまうものが発生する。この欠陥準位に捕らえられたキャリアーは、局所的な電場を作るために、量子点内の電子正孔間の波動関数の重なりが減少する。特に、高次励起子は波動関数の広がりが大きいため、発光強度の減少が顕著になることも考えられる。これは、顕微発光スペクトルで見られた結果とよく説明している（図6, 7参照）。また、さらに強い局所電場が発生した場合は、バンドベンディングが顕著となり、閉じこめられた電子、及び正孔は、トンネル過程を経てマトリックスに逃げてしまうことも考えられる。何れの場合においても、発光強度は減少し、これがoff状態に相当する。しばらくすると、欠陥に捕らえられたキャリアーは、電子-正孔間再結合、もしくはフォノン緩和等により、欠陥準位からいなくなってしまうために、局所電場が消滅し、系は再び最初の状態に戻る。これがoff状態からon状態の変化に相当する。明滅は、このような過程の繰り返しによって起こっていると解釈することができる。

このモデルの妥当性を調べるために、いくつかの追加実験を行った。

2.6 局在準位の存在

もし状態が、欠陥に起因する局在準位にキャリアーが捕獲されることによって与えられるのであれば、このキャリアーの滞在時間は熱活性化モデルで説明できるはずである。図8は、いくつかの温度で測定した、積分発光強度の時間変化を表す。温度上昇

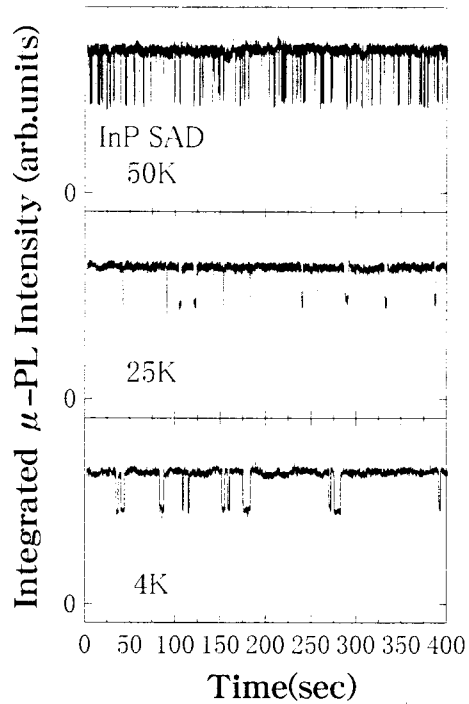


図8:積分発光強度の温度依存性. 温度を上げていくと、明滅の頻度が上がっていく。

に伴い、明滅の頻度が高くなっていく様子がはっきりと分かる。

図9は、図8で得られた結果を解析することによって得られた T_{on} , T_{off} の温度変化を、2つの明滅量子点についてプロットしたものである。注目すべき点は、 T_{off} が、温度 T の関数として、何れの場合も、

$$T_{off}(T) = \frac{T_{off}(0)}{1 + \alpha \exp(-E/k_B T)}, \quad (4)$$

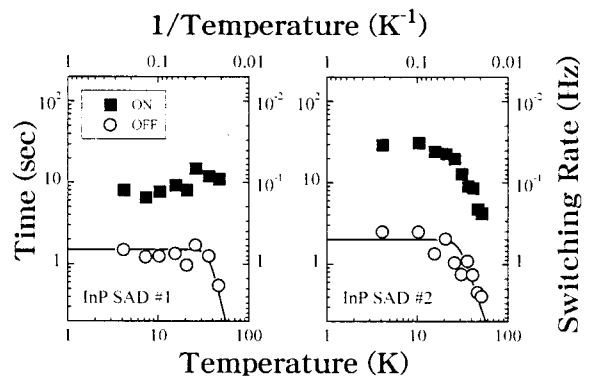


図9:2つの明滅量子点について、 T_{on} , T_{off} の温度変化をプロットしたもの。 T_{off} は、(4)式を用いて再現することができる。

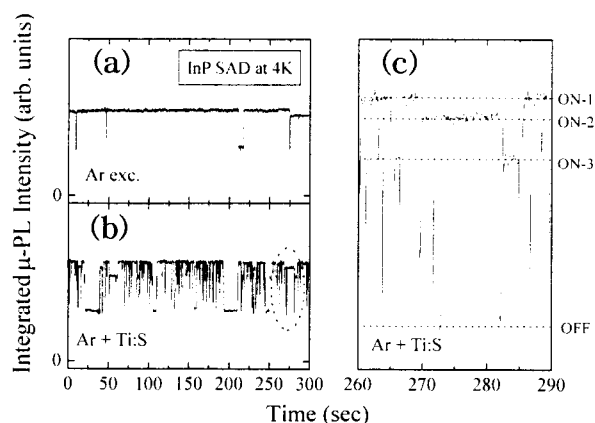


図10:(a) 温度4 Kにおける、明滅現象を示す量子点の積分発光強度の時間変化。(b) アルゴンレーザーに加え、近赤外光を同時照射すると、明滅間隔が狭くなる。(c) 図10(b)の点線で示した領域の拡大図。複数のon状態が存在する。

で表される熱活性化モデルで、実験結果をよく再現することができる。このことは、明滅現象はキャリアが局在準位に捕獲されることによって起こるという、我々が提案したモデルを支持する。

次に、明滅現象に関与する欠陥準位の深さを調べるために、以下のような実験を行った。図10(a)は、微弱なアルゴン(Ar)レーザー光励起下で測定した、明滅現象を示す量子点の積分発光強度の時間変化である。このとき、微弱の近赤外(チタンサファイアレーザー)光を同時照射を行うと、図10(b)に示すように、明滅間隔が劇的に狭くなる現象が観測された。ここで注意すべきことは、近赤外光を照射してもGaAs基板やGa_{0.5}In_{0.5}Pマトリックスからの顕微発光スペクトルのピークシフトが見られないことから、近赤外光照射による温度上昇は、数K以内という点である。すなわち、近赤外光照射に伴う明滅間隔の減少は、図8で見られたような、試料の温度上昇に伴うものではないと言える。

図11(b)は、アルゴンレーザーと同時照

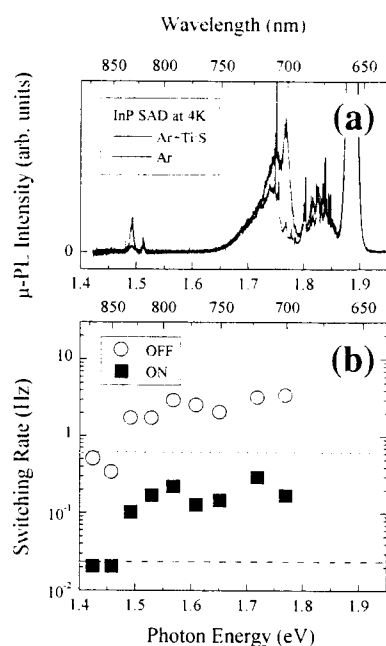


図11:(a) アルゴンレーザー(青線)、及びアルゴンレーザーとチタンサファイアレーザーの同時照射下(赤線)における顕微発光スペクトル。1.75 eVに見られる鋭いピークは、チタンサファイアレーザーの散乱光である。(b) チタンサファイアレーザーのエネルギーに対するスイッチングレート。チタンサファイアレーザーのエネルギーが1.5 eV以上の時、スイッチングレートの増大が見られる。

射を行う近赤外レーザーのエネルギーを変化させたときの、on状態、off状態のスイッチングレートを表している。図11(a)には、参考のため顕微発光スペクトルも表示してある。破線、及び点線は、近赤外レーザーを照射していないときのon状態、off状態のスイッチングレートをそれぞれ表す。近赤外レーザーを照射すると、on状態、及びoff状態共にスイッチングレートは約1桁跳ね上がる。

近赤外レーザーのエネルギーが発光帯の低エネルギー側になっても、スイッチングレートは速いままであるが、1.5 eVより低エネルギー側では、スイッチングレートの増大は見られなかった。このことから、明滅現象には1.5 eV程度に励起の敷居値を持

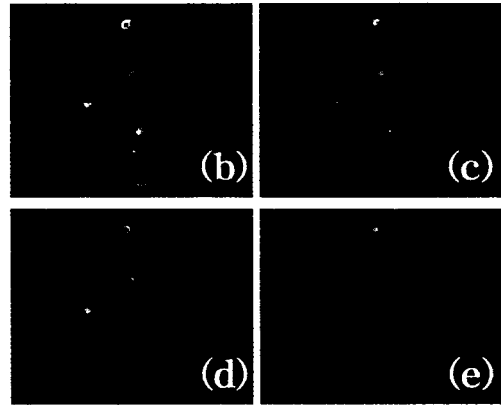
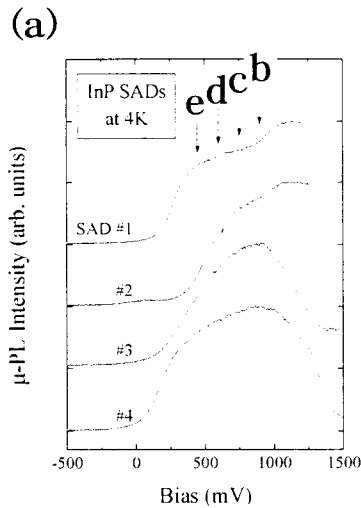


図12:(a) 明滅現象を示さない通常の量子点における，印加電場に対する積分発光強度の変化．(b)～(e) 図12(a)に矢印で示される電場を印加したときの，顕微発光イメージ．図12(b)が，オープンサーキット状態に相当する．

つ欠陥準位が関与していると考えられる．ここで得られた値は，アンチストークスルミネッセンスの測定結果で得られたものと良い一致を示す²³⁾．以上の結果は，我々が提案したモデルにおける1つ目のキーワードである「局在準位」の存在を強く支持する．

2.7 局所電場の存在

次に，局在準位に捕えられたキャリアーが生成する局所電場が，顕微発光スペクトルに及ぼす影響を調べた．図12(a)は，明滅現象を示さない通常の量子点における，印加電場に対する積分発光強度の変化を表す．また，図12(b)～12(e)は，図12(a)に矢印で示される電場を印加したときの，顕微発光イメージである．図12(b)は，光照射時にサンプル両端に発生する電位差に相当する電場を印加したときの，顕微発光イメージで，このときに，ほとんどの量子点の発光強度が最大となる．印加電場を変化させていくと，電子-正孔間の波動関数の重なりが減少していくために，量子点か

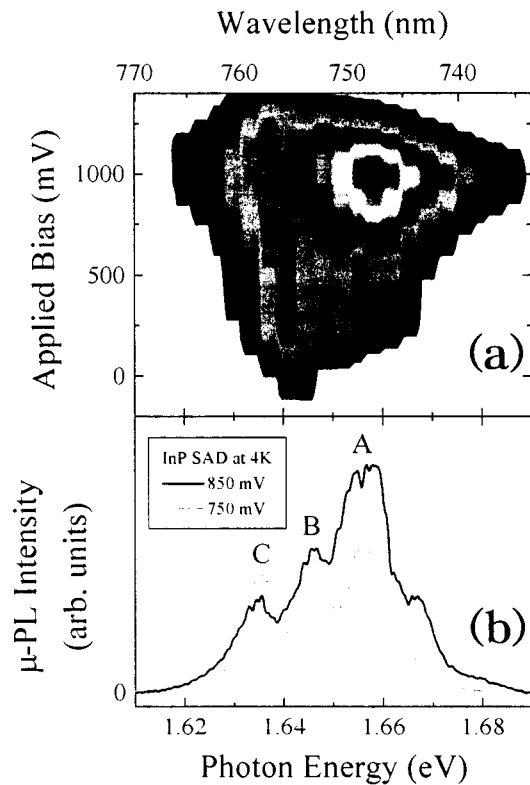


図13:(a) 明滅しない通常の量子点に，印加電場を少しずつ変えながら測定した顕微発光スペクトルを等高線表示したもの．(b) オープンサーキット状態に相当する電場(24 kV/cm)を印加したとき(赤線)，及びそれよりも約10%弱い電場(21 kV/cm)を印加したとき(青線)の顕微発光スペクトル．図6(b)で示した明滅量子点のスペクトルをよく再現している．

らの発光強度は減少していく。

図13(a)は、明滅しない通常の量子点に、印加電場を少しずつ変えながら測定した顕微発光スペクトルを等高線表示したものである。印加電場の変化に伴い、1.66 eV付近に見られる、閉じこめられた励起子の励起状態からの発光強度が大きく変化している。これは、上で述べたように、次数が高い励起子の波動関数ほど広がりを持つために、電場の変化に対して敏感であることを意味している。一方、1.64 eV付近の発光強度は、印加電場に対してシフトを示すものの、それほど大きな強度変化は示さない。

図13(b)は、オープンサーキット状態を再現するように電場(24 kV/cm)を印加したとき(赤線)と、それよりも約10%弱い電場を印加したとき(青線)の顕微発光スペクトルである。わずかな外部電場の変化に対し、顕微発光スペクトルの形状が大きく変化していることが分かる。ここで注目すべき点は、赤線、及び青線で示される顕微発光スペクトルが、それぞれ、先に図6(b)で示した、明滅量子点がon状態、及びoff状態にあるときのスペクトルを非常によく再現していることである。すなわち、最も高エネルギー側に観測される発光ピークAは、印加電場が24 kV/cmから21 kV/cmに変化したときに、最も大きな強度変化を示し、その低エネルギー側に観測される発光ピークB、およびCは、発光強度の変化があまり見られない代わりに、高エネルギー側にピークシフトをしている。

以上の結果から、我々が提案したモデルは妥当であり、「明滅現象における大きな強度変化は、局在準位に捕らえられたキャ

リアーがナノ空間に作る局所電場にその起源がある」と結論した。また、電場測定の結果から、局在準位と量子点との距離を、約20 nmと見積もることができた。

さらに、我々が提案したモデルを用いれば、図10(c)に示したような、複数のon状態が現れる理由についても説明が可能である。すなわち、明滅量子点の近傍には、通常、複数の欠陥準位があり、その欠陥準位に捕らえられる電子の数は時間と共に変化し、当然、とびとびの値をとる。その結果、量子点に加わる電場強度も電子数を反映したとびとびの値となるため、このような複数のon状態を持つシグナルが得られたと考えられる。

3 まとめ

顕微分光法を用いて、InP自己形成型量子点を一つ一つ観測することにより、その中に明滅現象を示す量子点が含まれていることを見いだした。明滅現象は、量子点近傍の欠陥準位における光励起されたキャリアの捕獲、緩和過程を反映し、特に状態間の遷移には、励起子間相互作用が、大きな役割を演じていることが分かった。この欠陥準位の存在は、明滅頻度の温度特性により証明され、1.5 eVという深い準位であることも分かった。また、明滅量子点の顕微発光スペクトルと、外場中における通常量子点のそれとの、形状や発光強度を比較した結果、明滅現象における発光強度の大きな変化は、欠陥準位に捕らえられた、キャリアが作る局所的な電場によってもたらされるものであることを示した。

謝辞

本研究に使用した試料は、量子点形成グループの任紅文氏（現ヒューストン大）により作製された。また測定結果の解釈に当たっては、計算解析グループのセルバクマールナイア氏から、多くの有意義な助言を頂いた。各氏の協力に感謝致します。

参考文献

- ¹ H. Kamada, H. Ando, J. Temmyo, and T. Tamamura, *Phys. Rev. B* **58** (1998) 16243.
- ² A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, and J. P. Reithmaier, *Phys. Rev. B* **58** (1998) R7508.
- ³ M. Sugisaki, H. -W. Ren, K. Nishi, S. Sugou, T. Okuno, and Y. Masumoto, *Physica B* **256-258** (1998) 169.
- ⁴ M. Bayer, A. Kuther, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **60** (1999) 8481.
- ⁵ M. Sugisaki, H. -W. Ren, S. V. Nair, K. Nishi, S. Sugou, T. Okuno, and Y. Masumoto, *Phys. Rev. B* **59** (1999) R5300; M. Sugisaki, H. -W. Ren, S. V. Nair, K. Nishi, S. Sugou, T. Okuno, and Y. Masumoto, in: *Excitonic Processes in Condensed Matter*, ed. R. T. Williams, W. M. Yen (The Electro-chemical Society Proceedings Series, Pennington, NJ, 1998) Proceedings Volume **98-25**, pp. 298-303.
- ⁶ M. Sugisaki, H. -W. Ren, S. V. Nair, J. -S. Lee, S. Sugou, T. Okuno, and Y. Masumoto, *J. Lumin* **87-89** (2000) 45.
- ⁷ J. Lindahl, M. -E. Pistol, L. Montelius, and L. Samuelson, *Appl. Phys. Lett.* **68** (1996) 60.
- ⁸ H. Gotoh, H. Kamada, H. Ando, and J. Temmyo, *Appl. Phys. Lett.* **76** (2000) 867.
- ⁹ 日本語の解説は、杉崎 満, 任 紅文, 舛本 泰章, 「固体物理」 **35** (2000) pp. 335-345, 及び, その中の参考文献を参照
- ¹⁰ M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, and L. E. Brus, *Nature(London)* **383** (1996) 802.
- ¹¹ S. A. Empedocles, D. J. Norris, and M. G. Bawendi, *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 3873; S. A. Empedocles, and M. G. Bawendi, *Science* **278** (1997) 2114.
- ¹² V. Türk, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U. W. Pohl, C. Bimberg, and S. Steingrüber, *Phys. Rev. B* **61** (2000) 9944; V. Türk, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, U. W. Pohl, R. Engelhardt, and C. Bimberg, *J. Lumin* **87-89** (2000) 337.
- ¹³ J. Seufert, R. Weigand, G. Gacher, T. Kümmel, A. Forchel, K. Leonardi, and D. Hommel, *Appl. Phys. Lett.* **76** (2000) 1872.
- ¹⁴ H. D. Robinson and B. B. Goldberg, *Phys. Rev. B* **61** (2000) R5086.
- ¹⁵ A. Gustafsson, M. -E. Pistol, L. Montelius, and L. Samuelson, *J. Appl. Phys.* **84** (1998) 1715.
- ¹⁶ M. -E. Pistol, P. Castrillo, D. Hessman, J. A. Prieto, and L. Samuelson, *Phys. Rev. B* **59** (1999) 10725.
- ¹⁷ D. Bertram, M. C. Hanna, and A. J. Nozik, *Appl. Phys. Lett.* **74** (1999) 2666.
- ¹⁸ F. Koberling, A. Mews, and T. Basché, *Phys. Rev. B* **60** (1999) 1921.
- ¹⁹ H. -W. Ren, M. Sugisaki, J. -S. Lee, S. Sugou, and Y. Masumoto, in: *Excitonic Processes in Condensed Matter*, ed. R. T. Williams, W. M. Yen (The Electro-chemical

Society Proceedings Series, Pennington, NJ, 1998) Proceedings Volume **98-25**, pp. 292-297.

²⁰H. -W. Ren, M. Sugisaki, J. -S. Lee, S. Sugou, and Y. Masumoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** (1999) 507.

²¹S. V. Nair and Y. Masumoto, *J. Lumin* **87-89** (2000) 438; S. V. Nair and Y. Masumoto, *Phys. Status Solidi A* **178** (2000) 303.

²²S. Charbonneau, L. B. Allard, A. P. Roth, and R. T. Sudersena, *Phys. Rev. B* **47** (1993) 13918.

²³I. E. Kozin, I. V. Ignatiev, H. -W. Ren, S. Sugou, and Y. Masumoto, *J. Lumin.* **87-89** (2000) 441; I. V. Ignatiev, I. E. Kozin, S. V. Nair, H. -W. Ren, S. Sugou, and Y. Masumoto, *Phys. Rev. B* **61** (2000) 15633.