ZnSe/BeTe タイプⅡ非対称多重量子井戸における発光ダイナミクス

鈴木 洋介、三野 弘文、音 賢一[A]、室 清文[A]、秋本 良一[B]、嶽山 正二郎[C]
千葉大院･自然科学、千葉大･理[A]、産総研･超高速光デバイスラボ[B]、東大物性研[C]

Photoluminescence dynamics in ZnSe/BeTe type-II asymmetric multi-quantum wells

Y. Suzuki, H. Mino, K. Oto [A], K. Muro [A], R. Akimoto [B] and S. Takeyama [C]

Graduate School of Science and Technology, Chiba University
[A] Department of Physics, Faculty of Science, Chiba University
[B] AIST Ultrafast Photonic Devices Laboratory
[C] Institute for Solid State Physics, University of Tokyo

Abstract

We have performed photoluminescence (PL) excitation and time-resolved PL measurements in ZnSe/BeTe type-II asymmetric multi-quantum wells, in which two kinds of ZnSe layers (well width:8 nm and 4 nm) exist. Even when the 4 nm ZnSe layers are resonantly photo-excited, the spatially indirect PL (type- II PL) due to the recombination between electrons in the 8 nm ZnSe layers and holes in BeTe layers were dominantly observed. The type- II PL of 4 nm layers shows fast rise-time and decay. On the other hand, that of 8 nm layers shows delayed rise-time and long radiative lifetime. These results suggest that the existence of efficient electron transport mechanisms from high energy 4 nm layers to low energy 8 nm layers. High-density accumulated electrons provably induce these phenomena.

1. 序論

半導体タイプⅡ量子構造では電子と正孔がそれぞれ隣接する別々の層に閉じ込めを受けるため、電子と正孔の再結合寿命は～μ秒と非常に長い。従って、比較的弱い光励起でも生成されるキャリアの蓄積と冷却が生じ、熱平衡状態に陥った高密度電子正孔状態が形成される。この性質は強力なレーザー励起を用いなくても電子・正孔の多体効果を詳細に調査でき、且つ、未だその検証を巡って様々に研究が展開されている励起子高密度凝縮相（ボーズ凝縮、電子 - 正孔 BCS 状態等）を調べる上でも大変有利である[1][2]。

我々はこれまでに ZnSe/BeTe タイプⅡ量子構造において、液体ヘリウム温度付近で出現する鋭いスペクトル構造の極めて強い発光が、空間分離型電子・正孔に特有の励起子複合状態[3]や、その高密度効果によって引き起こされることを指摘し、高密度凝縮相の存在の可能性も述べてきた[4][5]。しかしながら、ヘテロ界面の垂直方向に相関を持った複数の電子・正孔からなる励起子複合状態や、凝縮相の本質を捉え、その存在を確実なものとするには、ヘテロ界面における電子・正孔再結合の詳細（特に遷移エネルギーの変化や、再結合が生じる界面の特定など）を正確に把握す

ることが必要である。そこで、図１に示すように二種類のヘテロ界面において空間分離された電子・正孔再結合の遷移エネルギーを、意図的にずらした非対称多重量子井戸を対象とし、発光励起スペクトル（PLE）測定及び時間分解発光測定を行った。ここでは特に、狭い井戸に生成される多数の電子がエネルギーの低い広い井戸へ、非常に高いエネルギー障壁を越えて輸送される特異な振る舞いについて報告する。

2. 実験配置

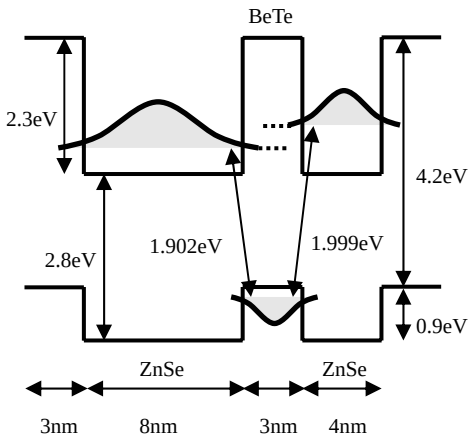

図１：タイプⅡ非対称多重量子井戸のバンド図

試料は、絶縁性の GaAs（001）基板上に MBE 法で結晶成長させたタイプⅡ非対称多重量子井戸ZnSe/BeTe/ZnSe(4 nm/3 nm/8 nm)で、周期は ZnSe/BeTe を単位として 12 周期である（図１参照）。Buffer 層には厚さ 1.5 nm の BeTe と 30 nm の ZnSe、Cap 層には 15 nm の ZnSe が用いられている。ZnSe、BeTe、GaAs のそれぞれの格子ミスマッチは１％以下と非常に小さく、ヘテロ界面において歪みの極めて小さな良質の試料成長が可能である。

励起光源として波長可変のTi:Sapphireレーザーの倍波（パルス幅 200 fsec）を使用した。PLE測定では、測定温度 4.2 K、励起強度 0.5 w/cm^2、励起波長を 400 nm（3.1 eV）から 445 nm（2.78 eV）まで変化させ、繰り返し 76 MHz（13 nsec間隔）で光励起を行った。この場合、空間分離された電子と正孔の再結合発光（タイプⅡ発光）の発光寿命はμ秒オーダーであることを考慮すると、実質的にはCW励起とみなしても良い。時間分解発光測定では、再生増幅器を用いて、繰り返しを 250 kHz（4μsec 間隔）に減らし、パルス幅 120 fsecで光励起を行った。測定温度 1.4 K、励起強度 0.3 w/cm^2、励起波長 400 nm（3.1 eV）に固定し、すべてのZnSe層を励起した条件の下で測定を行った。

3. 結果と考察

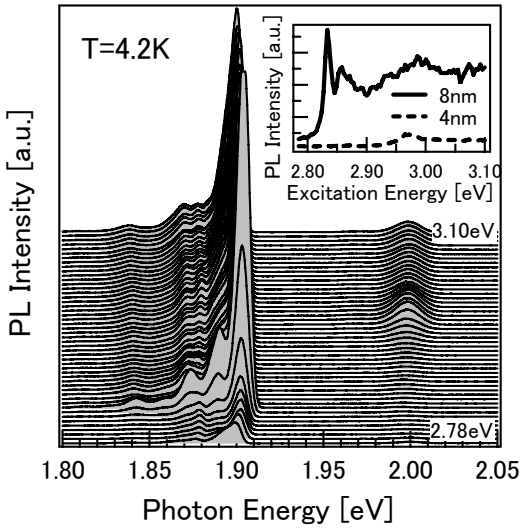

図２：タイプⅡ非対称多重量子井戸における発光スペクトルの励起波長依存（データの間隔は6meV程度）。挿入図は井戸幅8nmおよび4nmにおけるタイプⅡ発光でのPLEスペクトル。

図２は、発光スペクトルの励起波長依存を示している。発光ピークが 1.902 eV 付近と 1.999 eV 付近に現れた。1.902 eV 付近に現れ

た発光ピークは、井戸幅 8 nm の ZnSe 層内の電子と隣り合う BeTe 層内の正孔との再結合発光であり、1.999 eV 付近に現れた発光ピークは井戸幅 4 nm の ZnSe 層内の電子と隣り合う BeTe 層内の正孔との再結合発光である（図１参照）。図２中の挿入図は、各々8 nm および4 nm 量子井戸のタイプⅡ発光に対する PLE スペクトルを示している。この結果から、広い井戸および狭い井戸の励起子直接遷移の共鳴エネルギーは 2.8334 eV、2.9653 eV であることが見出された。しかし、ここで注目すべきは、狭い井戸の励起子を共鳴励起した際にも、広い井戸のタイプⅡ発光が支配的であることである。ZnSe 層に生成された電子にとって、BeTe 層の障壁は約 2 eV と大きい。したがって、波動関数の染み出しは BeTe 層の井戸幅 3 nm と比べて極めて小さく、電子は生成された井戸に留まるはずである。その場合狭い井戸のタイプⅡ発光が広い井戸に比べて極端に弱くなることは考えにくい。この特異な振る舞いの詳細を調べるために時間分解発光測定を行った結果について次に述べる。

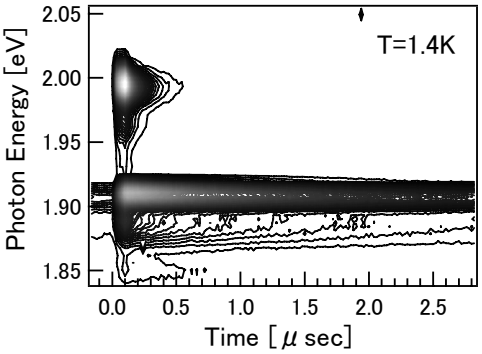

図３：時間分解タイプⅡ発光スペクトル

図３は、試料の温度 1.4 K における時間分解発光スペクトルの 2 次元プロットである。図から明らかなように、励起直後は狭い井戸（高エネルギー側）の発光強度が広い井戸（低エネルギー側）の発光強度よりも大きいが、広い井戸のタイプⅡ発光に比べて、狭い井戸のタイプⅡ発光は極端に寿命が短くなっている。それぞれの発光を時間に対して積算すると、図２の 400 nm 励起（3.1 eV）の結果と一致する。

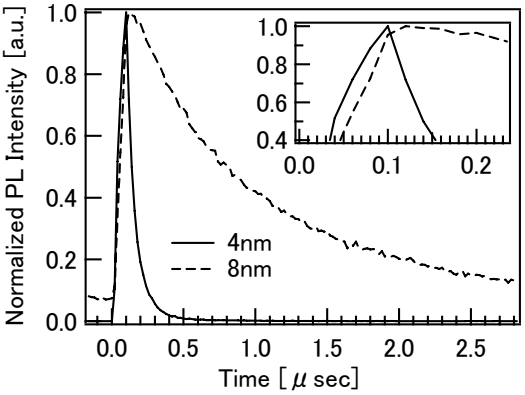

図４：狭い井戸及び広い井戸のタイプⅡ発光強度の時間変化

図４は、時間分解発光スペクトル測定で得られたデータの詳細を得るために、それぞれの井戸における発光成分全体を積算し、その発光強度変化を時間に対してプロットしたものである。得られたデータから発光強度の時間変化を単一指数関数でフィッティングし発光寿命を求めると、広い井戸が 0.60 μ sec であり、狭い井戸が 0.078 μ sec と見積もられた。図中の挿入図は発光が立ち上がる時間域の拡大図である。発光の立ち上がりを比較すると、狭い井戸の発光はレーザーの励起とともに素早く立ち上がる。一方、広い井戸の発光は狭い井戸の発光に比べて 20 nsec 程度遅れて立ち上がることが確認された。

図５は、図３における時間分解タイプⅡ発光スペクトルの高エネルギー側（狭い井戸）および低エネルギー側（広い井戸）の発光ピ

ークエネルギーの時間変化を示している。狭い井戸のピークエネルギーは、時間とともにレッドシフトしている。同じ時間域において広い井戸のピークエネルギーはブルーシフトし、狭い井戸の発光がみられなくなる時間領域以降においては、なだらかにレッドシフトしている。この応答は図４で示した両井戸の発光強度変化と類似している。発光強度及び遷移エネルギーが密度に依存すると考えた場合、これらの結果は、狭い井戸から広い井戸へ電子が効率良く供給される事で広い井戸の電子がより高密度状態となり、バンドフィリングなどの効果によってブルーシフトし、その後、輻射遷移によるキャリア密度の減少に伴ってレッドシフトするとして説明できる。つまり狭い井戸の速い減衰は、狭い井戸から広い井戸への電子の輸送によるものと考えられる。以上の結果は一電子近似の下では生じない特異なトンネル現象が、高密度に蓄積された電子によって引き起こされていることを強く示唆する。

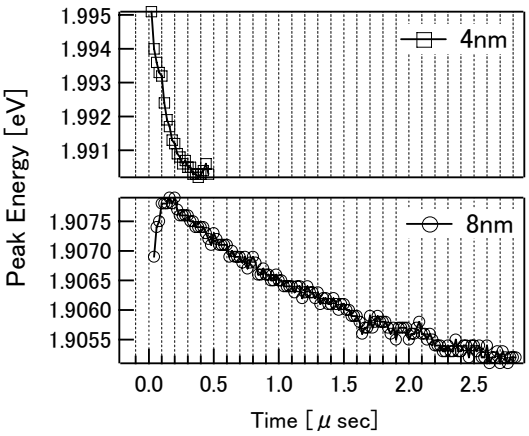

図５：狭い井戸（4 nm 量子井戸）および広い井戸（8 nm 量子井戸）におけるタイプⅡ発光のピークエネルギーの時間変化

4. まとめ

ZnSe / BeTe タイプⅡ非対称多重量子井戸を対象として PLE 測定、及び時間分解発光測定を行った。その結果、二種類ある ZnSe 層の狭い井戸の励起子を共鳴励起した際にも、広い井戸の電子と BeTe 層の正孔によるタイプⅡ発光が支配的に観測されることを見出した。また、狭い井戸の電子と BeTe 層の正孔によるタイプⅡ発光の寿命は、広い井戸のそれと比べて極めて短いこと、さらに、広い井戸のタイプⅡ発光が、狭い井戸のタイプⅡ発光よりも遅れて立ち上がることを明らかにした。以上の結果は ZnSe / BeTe タイプⅡ非対称多重量子井戸において、エネルギーの高い狭い井戸の電子が、非常に高いエネルギー障壁を有する BeTe 層をトンネルし、エネルギーの低い広い井戸へ効率良く輸送される特異な機構の存在を示唆する。

5. 謝辞

本研究は、文部省科学研究費補助金、特定領域研究「100 テスラ領域の強磁場スピン科学」（領域番号 451）の補助の下に行われた。

参考文献

[1]H.Ichida et al., Phys. Rev. 63, 195316-6 (2001).

[2]L. V. Butov et al., Nature 418, 751-754 (2002).

[3]T. Tsuchiya, J. Lumin. 87-89 (2000) 509.

[4]H. Mino et al., Physica E 22 (2004) 640-643.

[5]三野弘文 他, 光物性研究会論文集（2005）229.