

GaAs(001)面にドーピングした窒素アイソエレクトロニック中心からの多励起子光学遷移

井上匠、喜多隆、和田修
神戸大学工学部

Optical transition of multiexciton luminescence from isoelectronic centers of nitrogen doped on GaAs(001)

Takumi Inoue, Takashi Kita, Osamu Wada
Faculty of Engineering, Kobe University

Abstract

We have studied bound-exciton states of isoelectronic centers in nitrogen (N) doped GaAs by photoluminescence (PL) spectroscopy. The nitrogen doping has been performed in atomically controlled way using the (3×3) nitrogen stable surface on GaAs(001), which has succeeded in forming a series of distinct, strong, narrow bandwidth PL lines. The PL lines have been attributed to recombinations from excitons bound to NN-pair centers bonding along the [110] direction. The bound exciton states have been investigated in detail by the excitation power dependence of the PL intensity, linearly polarized PL, and time-resolved PL.

1. はじめに

近年、現在の情報通信技術に代わる技術となる量子情報通信の実現に向けた研究が盛んに行われている。その際に情報の担い手となる光子を発生させる単一光子源が必要となる。現在までに単一光子源として、InAs 量子ドットを多層膜マイクロキャビティに閉じ込めた構造が研究されており、単一光子を取り出すことに成功している。しかし、量子ドットを用いた単一光子源はドットの位置と発光波長が制御できないことが問題となる。

また最近、ZnSe に N をドーピングすることによってできる不純物発光中心を用いた単一光子の取り出しが成功されている[1]。不純物中心発光は特定の波長を持つため、量子ドットに見られた波長不均一の問題はなく、

単一光子源に適している。しかし、孤立した束縛励起子からの特定の波長の発光を得るためには微細なメサ加工が必要となる。よって、単一光子源の実現には発光中心の波長と位置を制御することが必要となる。

そこで、我々は原子層窒化という新しい手法を用いて GaAs に原子レベルで制御して窒素をドーピングし、その窒素に束縛された励起子からの発光に注目してきた[2]。これまでに特定の発光波長を持ち、半値幅がサブ meV のシャープな発光線を観測してきた(図 1)。この 1.4436 eV と 1.4933 eV の発光は TO フォノンレプリカと LO フォノンレプリカを示すことから、発光中心において励起子が強く局在していることが分かる。また、磁場中での PL 測定により triplet exciton からの発光であることを確認している。

これまで PL 励起光強度依存性から多励

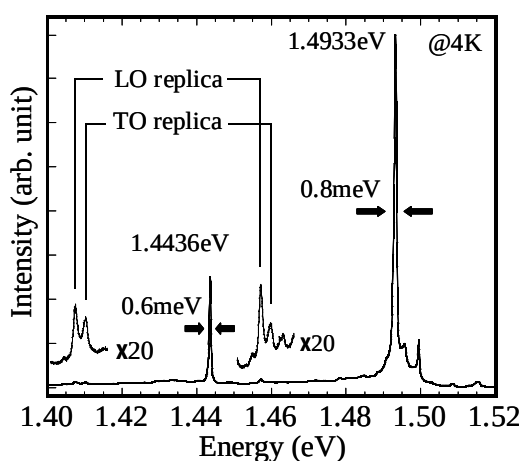


図1 PL スペクトル

起子の生成を示唆するデータを得ている。一方、最近もつれた光子対生成に関連して量子ドットにおける biexciton の発光再結合プロセスが多数報告されており[3]、電子-正孔間の交換相互作用により生じる exciton 微細構造が注目を集めている。本研究では、我々のサンプル特有のシャープな発光線に対して偏光特性を明らかにするとともに時間分解 PL によって励起子束縛状態について調べたので報告する。

2. 試料構造と実験方法

本研究では分子線エピタキシー(MBE)により以下のように試料を作製した。アンドープ GaAs(001)基板上に GaAs バッファ層を 380 nm 成長させ、その成長表面に原子層窒化を行う。基板温度は 570 °C で、成長表面は $(2 \times 4) \alpha$ 表面再構成構造を示す。窒素は RF プラズマソースを用いて 220 W の高周波電力を印加してプラズマを発生させ、窒化を 15 秒間行った。その際、反射高速電子線回折(RHEED)パターンは明瞭な 3 倍パターンを示しており、窒化が行われたことを確認した。この時、窒素密度は $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$

である。その後、GaAs キャップ層を 50 nm 成長した。As 分圧は 3.0×10^{-6} Torr で、As は窒化中も照射した。PL 測定は励起光源に Ar^+ レーザ(488 nm)、時間分解 PL 測定には Ti サファイアレーザ(780 nm)を用いた。測定温度は 4 K で行った。

3. 実験結果と考察

図2にPLの励起光強度依存性を示す。励起光強度を上げていくと従来から議論していた 1.4436 eV と 1.4933 eV のピークに加えて 1.4995 eV と 1.5150 eV に新たなピークが出現した。1.4436 eV と 1.4933 eV のピーク強度が励起光強度に対して線形的に増加するのに対して、1.4995 eV と 1.5150 eV のピーク強度は非線形な増加を示した。これより 1.4995 eV のピークは励起子が分子状になった biexciton からの発光、1.5150 eV のピークは biexciton よりも多くの励起子が結合した multiexciton からの発光であると考えて

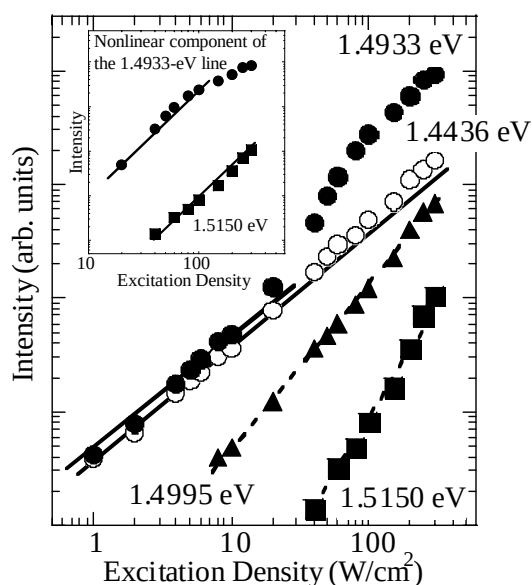


図2 PL 励起光強度依存性
挿入図 1.4933eV の非線形成分と
1.5150eV の励起光強度依存性

られる。また、1.4933 eV の励起光強度依存性については、最初は励起光強度に対して線形的にピーク強度が増加していたが、励起光強度が 30 mW/cm² のあたりで突然非線形なピーク強度の増加を示した。

ここで我々は、1.4933 eV のピーク強度が突然増加した励起光強度と 1.5150 eV のピークが出現し始めた励起光強度がほぼ同等の値であることに注目した。そこで 1.4933 eV のピーク強度の非線形な成分と 1.5150 eV のピーク強度の励起光強度依存性を比較してみると、ほぼ同様の振る舞いを見ることが分かった(図 2 挿入図)。これは以下のように考えることができる。まず励起光強度を上げていくと GaAs edge にたまったキャリアが 1.5150 eV の準位に遷移し、多励起子状態となる。そして多励起子状態から励起子の解離、すなわちエネルギーの緩和が起こることで 1.4933 eV の準位に遷移する。よって、1.4933 eV のピーク強度は突然増加すると考えられる。

図 3 に 1.4436 eV と 1.4933 eV と 1.4995 eV のピークの直線偏光特性を示す。exciton からの発光であると考えられる 1.4436 eV と 1.4933 eV のピークはどちらも[110]偏光で低エネルギー側に、[-110]偏光で高エネルギー側にピークが現れることが分かる。これ

と逆の偏光特性を持てば、すなわち同一の束縛中心である biexciton だということになる。しかし、biexciton からの発光だと考えられる 1.4995 eV のピークの直線偏光特性は、予想に反して 1.4436 eV と 1.4933 eV のピークと同様の偏光特性となった。

このような変化を bright exciton と dark exciton のカップリングから考えてみる。ここで dark exciton とは triplet exciton のことである。最近、磁場による微細構造分裂の制御が報告されているが[4]、これはまさにこのカップリングを利用している。我々の系では磁場を用いずとも bright exciton と dark exciton が強くカップリングしている。それはこれまでの研究で dark exciton からの強い発光が観測されたことから明らかである。今回の実験結果は図 4 のようなモデルになっていることを示している。すなわち bright exciton と dark exciton との強いカップリングによって分裂幅の小さい dark exciton の準位が反転したと考えることができる。

図 5 に 1.4436 eV と 1.4933 eV と 1.4995 eV のピークの時間分解 PL スペクトルを示す。1.4436 eV では $\tau_1 = 14$ ns、 $\tau_2 = 38$ ns の 2 成分、1.4933 eV では $\tau_1' = 8$ ns、 $\tau_2' = 16$ ns、 $\tau_3' = 119$ ns の 3 成分、さらに 1.4995 eV は $\tau_1'' = 14$ ns、 $\tau_3'' = 38$ ns の 2 成分でそれぞ

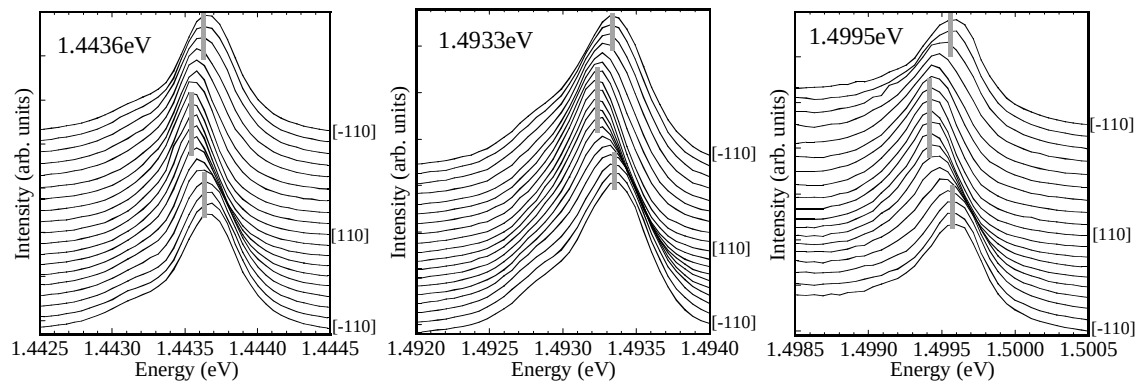


図 3 PL 直線偏光特性

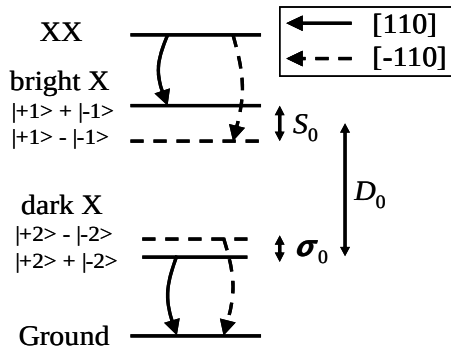


図4 光学遷移モデル

れ実験結果を上手く再現できることが分かった。このように緩和時間はどの発光も ns オーダーであるので、一般に量子ドット内の局在励起子の緩和時間が数 ps から数 100ps であるのに対してかなり大きな値である。これはこれまでの前述の偏光解析や磁気 PL の実験から明らかにしてきているように 1.4436 eV と 1.4933 eV の発光が triplet exciton 発光であることによる。それぞれの速い成分である τ_1 、 τ_1' 、 τ_1'' は励起子の波動関数の空間的な重なり依存したキャリア実空間移動によるものだと考えている。また τ_2 、 τ_2' は 1.4436 eV、1.4933 eV のピークに由来する励起子再結合緩和成分、 τ_3' 、 τ_3'' の原因はいまだ不明だが、1.4436 eV、1.4933 eV 信号の背景にあるブロードな発光が原因であると考えている。

これまでの研究により、窒素添加濃度を増すにつれて 1.4436 eV に対する 1.4933 eV

の信号強度は減衰することから、1.4933 eV の励起子は空間的に広がっており、その影響は $\tau_2 (= 38 \text{ ns}) > \tau_2' (= 16 \text{ ns})$ にも現れている。すなわち強く局在している 1.4436 eV 励起子に比べて非輻射遷移が起こりにくく、結果として緩和時間が長くなったと考えられる。

4. まとめ

GaAs の原子層窒化によって原子レベルで制御したドーピングを実現し、窒素ペアに束縛された多励起子状態について詳細に調べた。biexciton と exciton からの光学遷移は同じ偏光特性を示した。これより bright exciton と dark exciton が強くカップリングしていると考えられる。時間分解 PL 測定より、我々の得た発光線の減衰特性は励起子の波動関数の空間的な広がりを反映していることが分かった。

参考文献

- [1] S. Strauf, Phys. Rev. Lett. **89**, 177403 (2002)
- [2] T. Kita, Phys. Rev. B **74**, 035213 (2006)
- [3] R. Seguin, Phys. Rev. Lett. **95**, 257402 (2005)
- [4] R. M. Stevenson, Phys. Rev. B **73**, 033306 (2006)

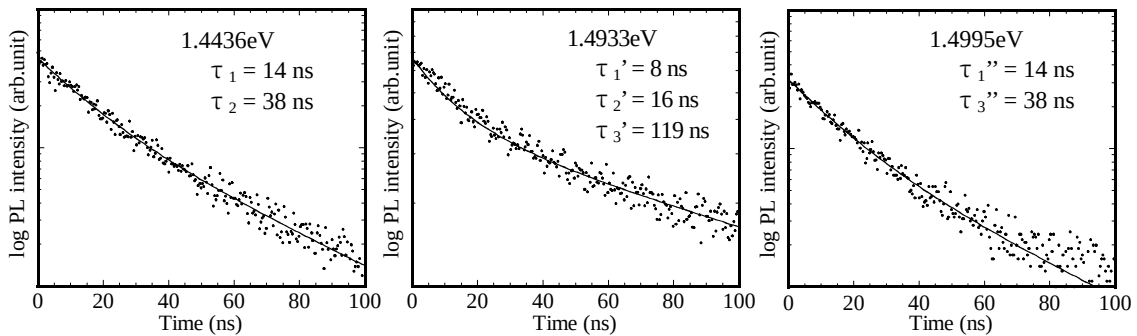


図5 時間分解 PL スペクトル