

# InP(311)B 基板上に積層した 歪補償 InAs 量子ドットにおける光学異方性

鯨岡真美子<sup>A,B</sup>、早瀬(伊師)潤子<sup>A</sup>、赤羽浩一<sup>A</sup>、山本直克<sup>A</sup>、江馬一弘<sup>B</sup>、佐々木雅英<sup>A</sup>  
(独)情報通信研究機構<sup>A</sup>、上智大学理工学研究科物理学専攻<sup>B</sup>

**Optical anisotropy of stacked InAs quantum dots on an InP(311)B  
substrate fabricated by the strain compensation technique**

M. Kujiraoka<sup>A,B</sup>, J. Ishi-Hayase<sup>A</sup>, K. Akahane<sup>A</sup>, N. Yamamoto<sup>A</sup>, K. Ema<sup>B</sup>,  
and M. Sasaki<sup>A</sup>

*National Institute of Information and Communications Technology (NICT)<sup>A</sup>  
Department of Physics, Sophia University<sup>B</sup>*

We studied the optical anisotropy in 150-layer-stacked self-assembled InAs quantum dots grown on an InP(311)B substrate using time-resolved photoluminescence and pump-probe measurements. The sample were fabricated by the strain compensation technique. We observed the in-plane anisotropy of photoluminescence intensity and estimated the degree of polarization at 18 %. Decay time in the time-resolved photoluminescence does not show in-plane anisotropy. Exciton radiative lifetime determined by a pump-probe technique depends on the polarization direction of incident pulses, which reflects the in-plane anisotropy of the transition dipole moments.

## 1. はじめに

半導体量子ドットは高性能光デバイスや量子情報素子への応用が期待されており、近年盛んに研究が行なわれている。特に InAs 系量子ドットは通信波長帯での発光が実現できることから、光通信分野への適用が期待されている。InAs 系自己形成量子ドットの作製には通常 GaAs(001) 基板が用いられるが、InAs と GaAs との間の大きな格子不整合による歪の影響で発光波長が大幅に短波長シフトしてしまうため、通信波長帯発光が困難であった。

最近我々は GaAs よりも格子不整合の小さな InP(311)B 基板を用い、かつドットを埋め込むバリア層で歪を補償することで、通信波長帯で発光する高品質な InAs 量子ドットの作製に成功した [1]。さらに歪が大幅に低減したことを利用し、従来の作製方法では不可能であった 150 層もの量子ドットの積層に成功している。このような超積層構造はレーザーや光増幅器への応用上重要なだけでなく、高 S/N 比での非線形光

学測定を行なう上で有効である [2]。

我々の作製した量子ドットは他にはないユニークな構造を有しており、その光学応答がどのようなものが興味もたれる。本研究では特に面内光学異方性に注目し、光学応答の偏光依存性に関する詳細な研究を行なった。光学異方性は、量子ドット光源における偏光制御や励起子分裂エネルギーの制御において重要な情報を与えるものであり、従って定量的に評価し異方性の起源を明らかにする必要がある。過去の報告では光学異方性が基板の影響を強く受けることが指摘されており [3]、我々の作製した InP(311)B 基板上の量子ドットでは従来の GaAs(001) 基板上の量子ドットとは異なる光学異方性を示すことが予想される。そこで今回我々は、InP(311)B 基板上に成長した歪補償 InAs 量子ドットにおける発光強度、放射寿命の異方性の評価を行なうことを目的として、時間積分・時間分解発光及びポンプ・プローブ法による過渡吸収の偏光依存性を測定した。

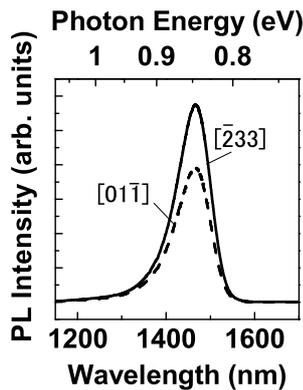


図 1: 3.5 K における発光スペクトル (非共鳴・弱励起)

## 2. 試料

試料は分子線エピタキシー法により作製した 150 層積層自己形成 InAs 量子ドットである。量子ドット層はそれぞれ厚さ 60 nm の  $\text{In}_{0.52}\text{Ga}_{0.1}\text{Al}_{0.38}\text{As}$  バリア層によって埋め込まれている。InP(311)B 基板を用い、かつバリア層の組成を制御することにより歪を補償している (歪補償法) [1]。量子ドットの面密度は  $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  である。原子間力顕微鏡の画像から、量子ドットは結晶軸の  $[\bar{2}33]$  方向にやや長い楕円形状であることがわかっている。量子ドットの平均サイズは、 $[\bar{2}33]$  方向で 51 nm、直交する  $[01\bar{1}]$  方向で 39 nm である。試料の両面には反射防止膜を施し裏面反射を防いでいる。

## 3. 発光スペクトル

図 1 は非共鳴・弱励起下で測定した温度 3.5 K における発光スペクトルであり、前方散乱配置にて測定を行なった。励起波長は 532 nm である。基板に対してほぼ垂直方向に発光する成分のうち、特定の直線偏光成分のみを取り出して検出している。1468 nm (0.85 eV) に強い発光ピークが観測されるが、これは励起子基底状態からの発光であることが確認されている。図 1 に示すように、発光強度は検出する偏光方向によ

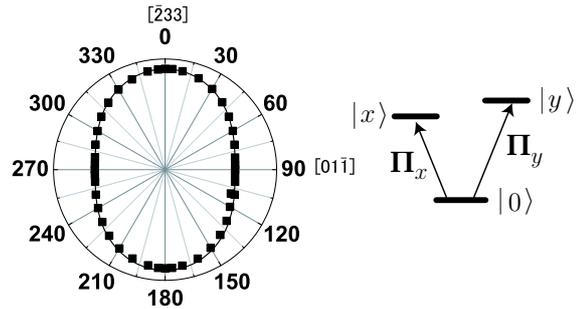


図 2: (左) 発光強度の偏光依存性。実線はフィッティング関数。(右) 非対称ポテンシャルをもつ量子ドットのエネルギー準位

って大きく変化することがわかる。図 2 は 1468 nm における発光強度を、 $[\bar{2}33]$  方向と検出する偏光方向の間の角度  $\theta$  の関数として測定したものである。その結果、 $[\bar{2}33]$  方向の発光が最も強く、連続的に減少して  $[01\bar{1}]$  方向の発光が最小という面内異方性が観測された。これは、 $I_{\text{PL}} = X \sin^2 \theta + Y \cos^2 \theta$  で表される一般的な発光強度の偏光依存性の振る舞いと一致する。発光の偏光度  $(I_{\text{PL}}([\bar{2}33]) - I_{\text{PL}}([01\bar{1}])) / (I_{\text{PL}}([\bar{2}33]) + I_{\text{PL}}([01\bar{1}])))$  を見積もると、18% になることがわかった。これは過去の文献と比較して、量子ドットの集合体としてはやや大きい値である [3]。

発光強度における面内異方性は、量子ドット面内に非対称なポテンシャルが存在することを示唆している。このような場合、励起子状態のよい基底は円偏光状態ではなくエネルギー差のある直交する 2 つの直線偏光状態となる (図 2 右)。発光強度の偏光依存性から、我々のドットでは  $[01\bar{1}]$  と  $[\bar{2}33]$  に平行な直線偏光状態が励起子状態のよい基底になっていることがわかる。

## 4. 時間分解発光測定

発光スペクトルにおいて観測された異方性をより詳細に調べるため、時間分解発光の偏光依存性を測定した。時間分解発光の測定では非共鳴励起となる 810 nm (1.53

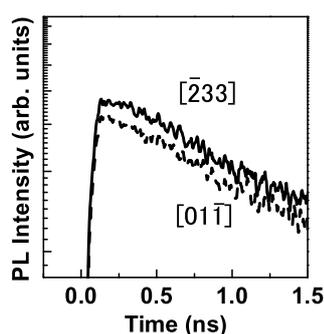


図 3: 時間分解発光強度の偏光依存性。発光のうち  $[233]$ (上) と  $[01\bar{1}]$  (下) 方向に平行な偏光成分を表す。

eV) に合わせた Ti:Sapphire レーザーを励起光源 (励起強度 40 mW) として使用した。発光スペクトル測定の場合と同様に、特定の直線偏光成分のみを正面検出している。検出は分光器とストリークカメラにより行なった。

図 3 に励起子基底状態からの発光を時間分解した測定結果 (温度 3.7 K) を示す。発光強度には異方性が見られるが、発光の減衰時間には異方性が見られなかった。遅い成分を単一指数関数でフィッティングすると、 $[233]$  と  $[01\bar{1}]$  方向の偏光成分の減衰時間は同じ 1.6 ns となった。減衰時間に異方性が見られないことから、発光スペクトルで観測された 18 % もの偏光度は時刻ゼロの初期状態におけるポピュレーションの分布の異方性で決まっているということがわかる。

しかし発光の減衰時間に異方性がないからといって、励起子の放射寿命  $T_1$  に異方性が無いとは限らない。発光の減衰時間は励起子の放射寿命  $T_1$  を反映するが、スピン緩和や非輻射緩和、さらに非共鳴励起の場合他の準位やバリア層からのポピュレーションの移動により、発光の減衰時間が放射寿命に一致しない場合があるためである。そこで共鳴励起することにより他の準位からのキャリアの移動の効果を排除できるポンプ・プローブ法を用いて、放射寿命の測定

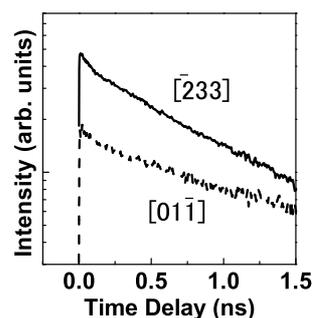


図 4: ポンプ・プローブ法により測定した過渡吸収の入射光偏光依存性。入射パルスの偏光方向が  $[233]$ (上) 方向と  $[01\bar{1}]$  (下) 方向の場合を表す。

を行なうことにした。

#### 4. ポンプ・プローブ測定

ポンプ・プローブ法では、Ti:Sapphire レーザーを励起光源とした optical parametric oscillator (OPO) を用いた。パルス幅は 1.1 ps である。励起波長は共鳴波長の 1468 nm で行った。ポンプ光の励起強度は  $16 \text{ kW/cm}^2$  の弱励起であり、ドット 1 つあたりに生成される励起子は 1 つ以下である。プローブ光強度はポンプ光強度の 0.5 % に設定した。2 つの入射光の偏光を平行配置にし、偏光を  $[233]$  または  $[01\bar{1}]$  に合わせることで、直線偏光状態の片方のみを選択的に励起出来るようにした。

図 4 に過渡吸収測定の結果 (温度 3.2 K) を示す。上が  $[233]$  偏光で励起した場合、下が  $[01\bar{1}]$  偏光で励起した場合である。時間分解発光とは異なり、信号強度・減衰時間共に大きな偏光依存性が見られる。フィッティングの結果、 $[233]$  方向の偏光成分の減衰時間は  $\tau^{[233]} = 1.0 \text{ ns}$ 、 $[01\bar{1}]$  方向の偏光成分の減衰時間は  $\tau^{[01\bar{1}]} = 1.7 \text{ ns}$  となった。

過渡吸収の減衰時間  $\tau$  も放射寿命  $T_1$  のみで決まっているわけではなく、スピン緩和や非輻射緩和の影響を受ける。それらの影響について以下のように考察する。放射

寿命  $T_1$  は遷移双極子モーメント  $\mu$  と次のような関係にある。

$$\frac{T_1^{[01\bar{1}]}}{T_1^{[233]}} = \left| \frac{\mu^{[233]}}{\mu^{[01\bar{1}]}} \right|^2 \quad (1)$$

四光波混合信号の測定から、右辺の遷移双極子モーメント二乗の比は 1.73 であることが確認されている。この値とポンプ・プローブ測定で得られた減衰時間の比の逆数  $\tau^{[01\bar{1}]} / \tau^{[233]} = 1.7$  とが一致していることから、スピン緩和と非輻射緩和の影響は非常に小さく、 $\tau \approx T_1$  となっていると言える。

ここで放射寿命に異方性があるにも関わらず、時間分解発光の減衰時間には異方性が見られなかった原因について考察する。異方性が見えなくなるメカニズムの代表的なものとしてスピン緩和や非輻射緩和が挙げられるが、前述のようにこれらの影響は小さいものと考えられる。従って他の準位やバリア層からのキャリアの注入が主な原因として考えられる。発光測定ではバリア層のバンドギャップよりもさらに高エネルギーを励起しているため、キャリア注入の効果が顕著に現れる可能性がある。発光の減衰時間に異方性がないことは、キャリアの注入レートに異方性があることを示唆しており、今後はこれらの効果を取り入れて時間分解発光の解析を行なう予定である。

今回の測定では発光強度及び放射寿命に大きな面内異方性が観測された。面内異方性の起源としては、(1) ドット形状の非対称性、(2) ドット内部の歪(面内の原子間隔の非対称性、量子ドットと基板・バリア層との格子不整合による)がある。放射寿命の比はドットサイズのアスペクト比の 2 乗とほぼ一致しており、ドット形状の非対称性が大きく影響していると考えられる。しかし時間分解発光の結果は、発光強度の異方性が放射寿命(遷移双極子モーメント)の異方で説明できないことを示しており、単純なモデルでは解釈できない。さらに GaAs(311)B 基板の量子井戸でも同様の異方性が過去に報告されていることや [4]、基板とバリア層

だけのサンプルでも発光に異方性が見られることなどから、基板の影響といったドット形状以外の要因も大きく効いていると考えられる。今後はドット形状以外の要因を考慮に入れた計算を行い、光学異方性の起源を明らかにする予定である。

## 6. 結論

今回我々は InP(311)B 基板上歪補償 InAs 量子ドットにおいて、発光強度とポンプ・プローブ法による過渡吸収の偏光依存性の測定した。発光強度における大きな異方性が観測され、発光の偏光度は 18% であると見積もられた。時間分解発光の測定から、この偏光度は初期状態におけるポピュレーションの分布の違いを反映したものであることが明らかになった。またポンプ・プローブ測定の結果から、 $[01\bar{1}]$  及び  $[233]$  方向に偏光した励起子状態の放射寿命がそれぞれ 1.7 ns と 1.0 ns であることがわかった。これは遷移双極子モーメントの異方性を反映した結果である。

今後は励起条件を変えたポンプ・プローブ測定を行い、過渡吸収と時間分解発光の違いについてより詳しく検証するとともに、異方性の起源についての詳細を明らかにする予定である。

## 参考文献

- [1] K. Akahane, et al., *Journal of Crystal Growth* **245**, 31–36 (2002)
- [2] J. Ishi-Hayase, et al., *Appl. Phys. Lett.* **88**, 261907(2006)
- [3] M. Henini, et al., *Phys. Rev. B* **57**, R6815 (1998)
- [4] N. Nishiyama, et al., *IEEE J. Quantum Electron.* **7**, 242 (2001)