

ZnSe/BeTe タイプ II 量子構造における 時間分解発光の電場効果

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

Effect of the electric-field on the time-resolved photoluminescence in ZnSe/BeTe type-II quantum structures

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*

Spatially indirect optical transitions were studied in ZnSe/BeTe/ZnSe quantum well (QW) structures having a type-II band alignment by means of electric-field dependent time-resolved photoluminescence (PL) measurements. Applying the electric-field perpendicular to the QW plane, the indirect transition energy is easily changed by the Stark effect. The electric field modifies the spatially separated electron and hole wave functions in such a way that their overlap integrals and the transition energies for the indirect emission increase at one side of the interface and decrease at the other. We observed a discontinuous Stark shift. This result suggests the existence of the exciton complex, in which electrons and holes are correlated at the two interfaces. The peak shift was smaller than the quantity of the expected Stark shift, and the shift value decreased with a progress of time. This result showed that the high density carriers accumulated by photo-excitation screened the applied electric field.

1. 序論

ZnSe/BeTe タイプ II 量子井戸構造では、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。また、大きなバンドオフセットのため、電子と正孔の波動関数の重なりは小さく、再結合発光寿命は $\sim \mu$ 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励起状態が形成される。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に示すように対称二重量子井戸構造の結晶成長軸方向に外部電場を印加し、時間分解発光測定を行った。一つ目の目的は、外部電場により二つあるヘテロ界面における再結合発光の遷移エネルギーの縮退を解き、なんらかの結合状態を反映した遷移エネルギーおよび発光スペクトルの変化を捉えることにある。二つ目の目的は、外部電場による電子・正孔再結合発光寿命の制御、および高密度にキャリアが蓄積したタイプII量子構造に特有な外部電場遮蔽効果の検証である。

2. 実験配置

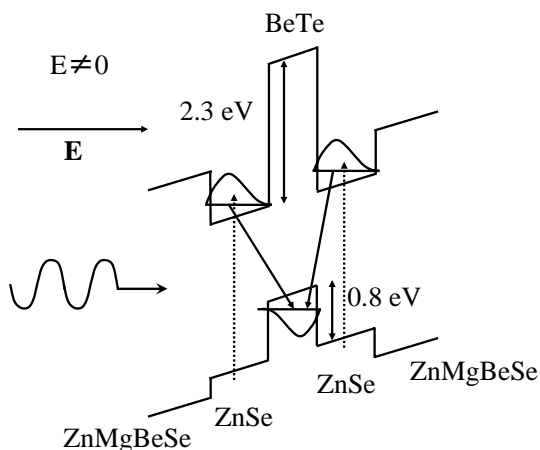


図1：ZnSe/BeTe タイプII対称二重量子井戸に外部電場を印加したときのバンド図

試料は、n-GaAs(100)導電性基板上にMBEで結晶成長させた対称二重量子井戸構造 ZnSe/BeTe/ZnSe (8 nm/3 nm/8 nm) となっている。結晶成長する際 ZnSe を Zn、BeTe を Te で終端している。そのため界面結合は Zn-Te と Te-Zn の組み合わせになっている。井戸層の両側には ZnMgBeSe が 250 nm 積ま

れていて、格子定数をうまく合わせるのとバンドオフセットをつくる役目をしている。Buffer層には厚さ 1.4 nm の BeTe、Cap層には 10 nm の ZnSe が用いられている。ZnSe、BeTe、GaAs のそれぞれの格子不整合は 0.4 % 以下と非常に小さく、またバンドオフセットも非常に大きいため、電子・正孔の波動関数の重なりは非常に小さく、理想的なタイプII構造といえる。そのため電子と正孔の再結合発光は界面のごく近傍のみで起こり、界面結合を反映した発光の直線偏光性がみられる[6]。試料の結晶成長軸方向に電場を印加し、且つ光学測定も可能とするように薄いアルミ (200 Å) を電極として試料表面に蒸着した。

励起光源には 405 nm 半導体レーザー（エネルギー 3.1 eV）の CW モードとパルスモード（パルス幅 200 ns、繰り返し 25 μs）を用い ZnSe 層のみ光励起した。光励起で生成された正孔は ~1.3 ps で BeTe 層へと緩和していく[7]。従って、光励起で生成された電子と正孔のほとんどはタイプII型の空間的に間接な再結合発光をする。

3. 結果と考察

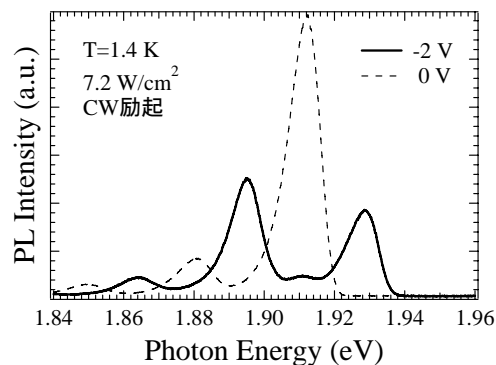


図2：試料に 0V および 2V 電場を印加したときの発光スペクトル

図2は、試料に 0 V および 2 V の電場を印

加したときの発光スペクトルを示している。0 V の発光スペクトルに関して、1.91 eV 付近に現れた発光成分は、2層ある ZnSe 層内の電子と BeTe 層内の正孔との再結合発光である。0 V では、二つの発光成分はエネルギー的に縮退している。また、1.88 eV と 1.85 eV 付近にみられる弱い発光成分は、LO フォノンレプリカによるものである。

次に -2 V の電場を印加したときの発光スペクトルに関して、1.895 eV と 1.93 eV 付近に発光成分がある。図 1 で示したように、それぞれの発光成分は低エネルギー側および高エネルギー側へシュタルクシフトした発光成分である。それぞれの発光は低エネルギー側が Zn-Te、高エネルギー側が Te-Zn 結合界面からのものである。またその発光は、ヘテロ界面の化学結合の方向を反映した直線偏光性を持ち、互いに直交している。そのことを利用し直線偏光解析によって、どちらの界面からの発光であるかを区別することができる。

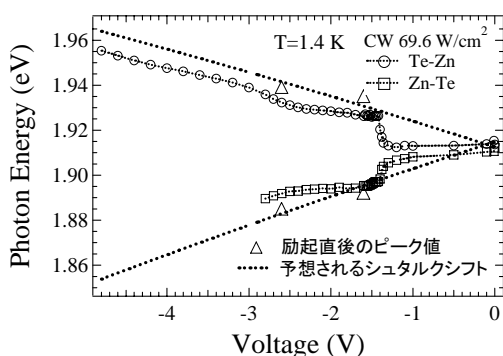


図 3 : 発光ピークの電場依存性

図 3 の○、□は CW 励起下でのシュタルクシフトした遷移エネルギーのピークシフトを示している。印加電場に対して不連続なピークシフトを観測した。-1.4 V 付近から発光ピークが分裂し始めているのがみてとれる。こ

の急峻なピークシフトとともに発光強度が減少する傾向もあった。これは、外部電場によりなんらかの電子・正孔結合状態が分離したことを示唆しているのではないかと考えている。

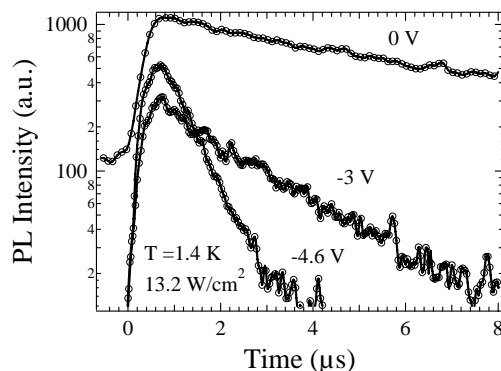


図 4 : 電場印加による再結合発光寿命の減少

図 4 は光パルス励起下において、電場印加によって高エネルギー側にシュタルクシフトした発光 (Te-Zn 界面の発光) の再結合発光寿命を観測した結果である。キャップ層側にマイナス電場を印加することで、Te-Zn 界面では ZnSe 層の電子と BeTe 層の正孔の波動関数の重なる増加に伴う再結合発光寿命の減少を観測した。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、0 V では 8.23 μ s、-3 V では 2.12 μ s、-4.6 V では 0.68 μ s と見積もられた。このように、外部電場によりタイプ II 型の再結合発光寿命をコントロールすることができた[8]。

図 5 は、-1.6 V 電場を印加したときの(a)積算した発光スペクトルと(b)その時間分解発光スペクトルを示している。図 5 (a)にみられるように、-1.6 V の電場では高・低エネルギー側へシュタルクシフトする発光スペクトルは完全には分離していない。1.93 eV 付近にみら

れる Te-Zn 界面の発光寿命は、1.905 eV 付近にみられる Zn-Te 界面の発光寿命よりもかなり短い。これから図 4 でも述べたように、電場印加により、波動関数の重なり積分が大きくなる界面では再結合発光寿命が減少し、重なりが小さくなる界面では再結合発光寿命が長くなっている。

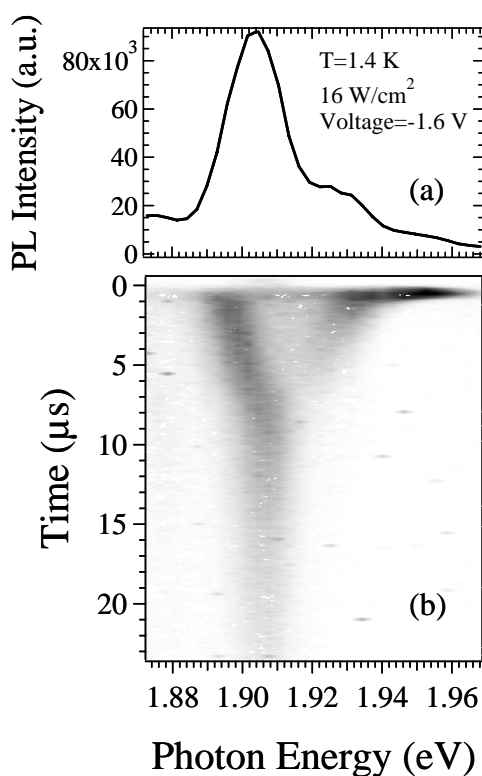


図 5 : 外部電場 $V = -1.6$ V における
(a) 積算発光スペクトル
(b) 時間分解発光スペクトル

図 3 の Δ で示しているが、励起直後のピーク値は.....線で示した予想されるシュタルクシフト量とほぼ等しい。しかし、積算した発光のピーク値は、予想されるシュタルクシフト量よりも小さくなっている。また、発光のシュタルクシフト量は時間の経過とともに減少している。これは、再結合発光寿命が両界面で異なるため、片側の電子が再結合消滅する

ことで内部電場の偏りが生じ外部電場を遮蔽する効果によるものだと考えられる。

以上の結果は、タイプ II 量子井戸に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。

4. まとめ

ZnSe/BeTe タイプ II 量子井戸における高密度電子励起状態の詳細を得るために電場印加時間分解発光測定を行った。その結果、印加電場に対して不連続なシュタルクシフトを観測した。これは、印加電場により電子・正孔結合状態が分離する際、不連続なシュタルクシフトが出現したのではないかと考えられる。また光パルス励起後、時間の経過とともに発光のシュタルクシフト量の減少を観測した。これは高密度にキャリアが蓄積されたタイプ II 量子井戸に特有な電場遮蔽効果によるものと考えられる。さらに電場印加によって、波動関数の重なり積分の増大に伴う再結合発光寿命の減少を観測した。

参考文献

- [1] H. Ichida et al., Phys. Rev. B 63, 195316 (2001).
- [2] L. V. Butov et al., Nature 418, 751 (2002).
- [3] T. Tsuchiya, J. Lumin. 87-89, 509 (2000).
- [4] H. Mino et al., Physica E 22, 640 (2004).
- [5] H. Mino et al., in Proceedings of the 28th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS28) 893, 449.
- [6] A. V. Platonov et al., Phys. Rev. Lett. 83, 3546 (1999).
- [7] A. A. Maksimov et al., JETP Lett. 83, 141 (2006).
- [8] S. V. Zaitsev et al., Phys. Rev. B 66, 245310 (2002).