

GaAs/AlAs 多重量子井戸における励起子-励起子散乱発光

平尾 岳義、長谷川 尊之、中山 正昭
大阪市立大学大学院工学研究科電子情報系専攻

Photoluminescence due to exciton-exciton scattering
in a GaAs/AlAs multiple quantum well

Takeyoshi Hirao, Takayuki Hasegawa and Masaaki Nakayama
Department of Applied Physics, Graduate school of Engineering Osaka City University

We have investigated photoluminescence (PL) properties of a GaAs (20 nm)/AlAs (20 nm) multiple quantum well at 10 K under intense excitation conditions. It has been found that a PL band due to exciton-exciton scattering, the so-called P emission, is observed in addition to the biexciton PL under the excitation energy higher than the fundamental heavy-hole exciton by the energy of the longitudinal optical phonon. On the other hand, the P band could be never observed at an excitation energy far away from the exciton energy, where a band-filling phenomenon appears in the PL spectrum. Furthermore, we confirmed the existence of optical gain leading to stimulated emission in the energy region of the P band with use of a variable-stripe-length method.

1. はじめに

高密度光励起条件下において、励起子の非弾性散乱は誘導放射を引き起こす主要な過程として知られている[1]。励起子非弾性散乱過程においては、2つの $n=1$ 励起子が衝突し、一方が高エネルギー励起子状態 ($n \geq 2$) に散乱され、他方はフォトン分枝に散乱される。この過程では、エネルギー保存則、及び、運動量保存則両方が満たされる。励起子非弾性散乱過程はいわゆる P 発光を引き起こし、主に大きな励起子束縛エネルギーを持つ ZnO[1]などの II-IV 族半導体、及び近年では III-V 窒化物半導体[2,3]で観測されている。GaAs/AlAs 多重量子井戸 (MQW) の発光特性は、長年にわたって盛んに研究されてきたが、励起子-励起子散乱過程に関しては明らかになっていない。本研究では、励起子-励起子散乱 (P 発光) の観点から、GaAs (20 nm)/AlAs (20 nm)

MQW における高密度励起条件下での発光特性を調べた。実験としては、重い正孔(HH)励起子、及び、軽い正孔(LH)励起子エネルギー領域で試料を励起した場合と、励起子エネルギーよりも十分に高エネルギーで励起した場合 (非共鳴励起条件) の発光特性を比較し、励起子エネルギー領域での励起条件において P 発光が観測されることを見出した。さらに、励起子-励起子散乱による光学利得の存在を variable-stripe-length (VSL)法によって確認した。

2. 試料作製と実験方法

試料としては、(001) GaAs 基板の上に、分子線エピタキシー (MBE) 法により作製された GaAs (20 nm)/AlAs (20 nm) MQW を用いた。試料の励起子エネルギーは、発光励起スペクトルから評価した。高密度励起条件下での発光特性の測定では 2 種類のレー

ザーを用いた。HH 励起子、及び、LH 励起子エネルギー領域での励起には、パルス幅 15 ns、繰り返し周波数 15 Hz の Ti:sapphire レーザーを用いた。また、励起子エネルギーより十分高いエネルギーでの励起には、パルス幅 1 ns、繰り返し周波数 10 kHz の YAG レーザーの第 2 高調波(532 nm)を用いた。スポット直径は、試料表面で約 2 mm に設定した。試料からの発光スペクトルは、32 cm シングル分光器に取り付けられたマルチチャンネル CCD で検出した(スペクトル分解能は 0.2 nm)。全ての光学実験は、10K で行った。

3. 実験結果と考察

図 1 は、励起子エネルギーより十分高いエネルギーで励起した場合の発光スペクトルの励起光強度依存性を示している。なお、最大励起光強度は約 1.4 mJ/cm^2 である。GaAs/AlAs MQW の発光特性における数多くの研究では、このように非共鳴励起条件下で行われてきたことをここで強調しておく。図 1 から、励起光強度の増大に伴って、複数のピーク構造が現れることが明確である。この現象は、光励起キャリアによるバンドフィリング現象[4]で説明できる。この励起エネルギー条件では、どのような励起強度においても全く P 発光は観測されなかった。そこで、励起子共鳴エネルギー近傍で励起することを試みた。図 2 は、HH 励起子エネルギー(E_{HH})から LO フォノンエネルギー(E_{LO})だけ高エネルギー側($E_{HH}+E_{LO}$)で励起した場合の発光スペクトルの励起光強度依存性を示している。なお、最大励起光強度(I_0)は約 2 mJ/cm^2 である。また、HH 励起子と LH 励起子の励起子エネルギーを明確にするために、PLE スペクトルを参照データとして上図に示している。励起光強度が $0.01 I_0$ の場合、X で示した発光が支配的である。X バンドは、PLE

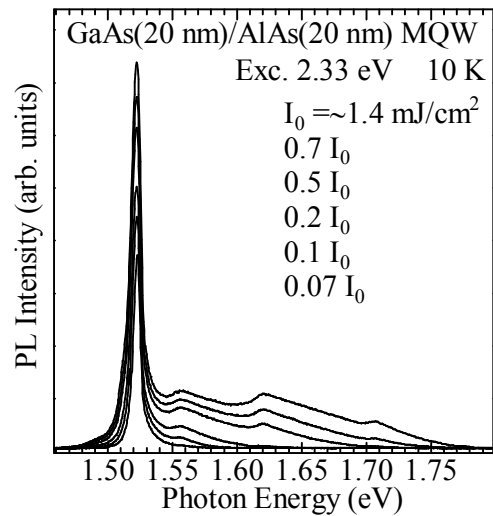


図 1:励起子エネルギーより十分高いエネルギーで試料を励起した場合の発光スペクトルの励起光強度依存性。

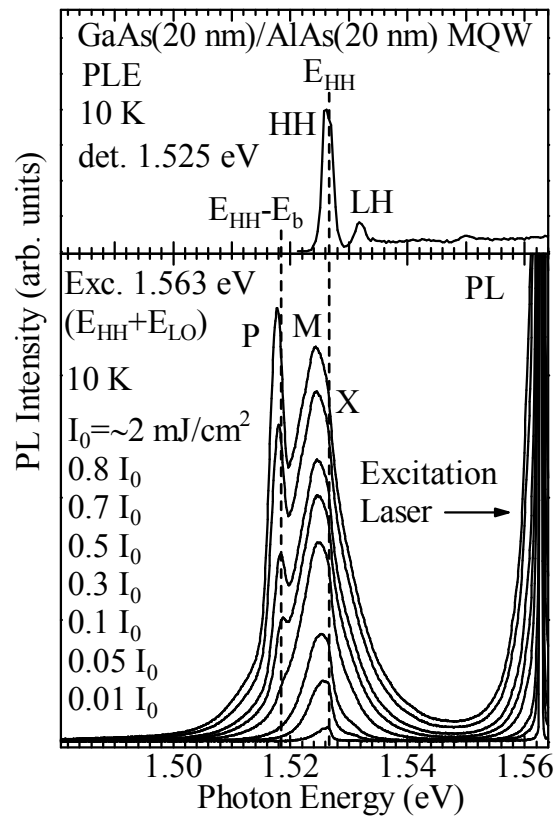


図 2:励起子エネルギーから LO フォノンエネルギーだけ高エネルギー側($E_{HH}+E_{LO}$)で励起した場合の発光スペクトルの励起光強度依存性。上図は、発光励起スペクトルを示している。

スペクトルの HH 励起子エネルギーと一致することから、明確に自由励起子発光に帰属できる。励起光強度を増加させると、 E_{HH} より少し低エネルギー側に M で示した発光バンドが観測される。なお、M バンドは X バンドと重なり合っている。GaAs (20 nm)/AlAs (20 nm)における励起子分子束縛エネルギーは約 1 meV[5]であることから、M で示した発光バンドは励起子分子発光と考えられる。励起光強度が $0.3 I_0$ において、P で示した発光バンドが閾値特性を持って現れ、励起光強度の増大に伴い、発光強度が急激に増加する。励起光強度 $0.3 I_0$ における P バンドのエネルギーと E_{HH} とのエネルギー差は、励起子束縛エネルギー ($E_b=8.4$ meV)[5]とほぼ一致する。図 2 における左側の破線は、上記に対応するエネルギー ($E_{HH} - E_b$) を示している。励起子-励起子散乱過程によって生じる P 発光のエネルギーは、一般に以下の式で表される[7]。

$$\hbar\omega_p = E_{HH} - E_b (1 - 1/n^2) - 3\delta k_b T_{\text{eff}} \quad (1)$$

ここで、 n は励起子の量子数、 δ は 1 より小さな正の定数、 T_{eff} は励起子系の有効温度を表している。P バンドのエネルギーは、閾値強度 ($0.3 I_0$) より励起光強度の増大に対して低エネルギーシフトする。これは、励起子系の有効温度の上昇を示唆している。P バンドの低エネルギー側の裾は、MQW 層の下に存在する GaAs バッファ層からの発光であると考えられる。

図 3 は、P バンド及び M バンドの積分発光強度の励起光強度依存性を示している。積分発光強度を見積もるための発光形状解析において、M バンドの解析には 2 次元状態密度を考慮した逆ボルツマン分布関数[8]を用いた。また、P バンドと X バンドの形状には、近似的にガウス関数を用いた。図 3 から、P バンドの発光強度(I_p)が励起光強

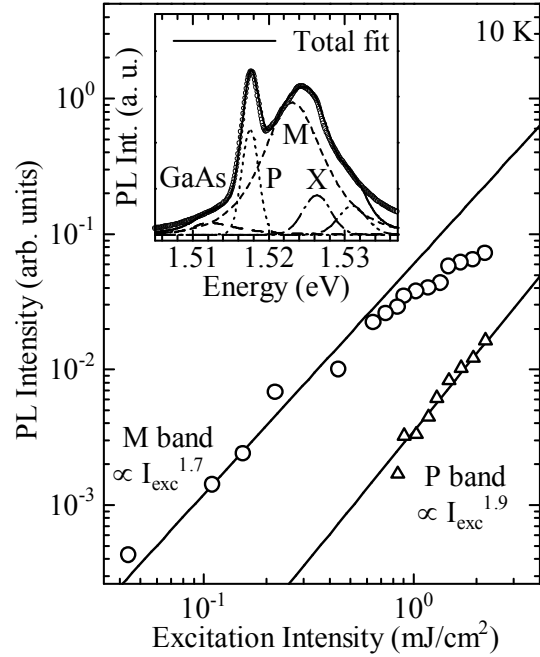


図 3: M バンドと P バンドの積分発光強度の励起光強度依存性。挿入図は発光形状解析の結果を示している。

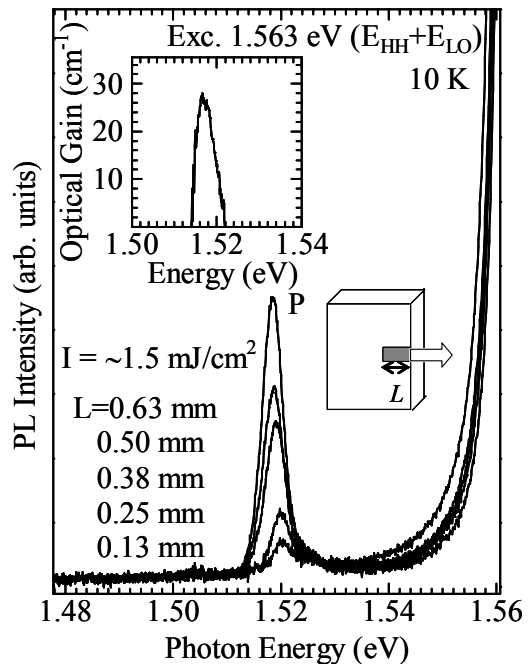


図 4: VSL 法を用いて測定した場合の発光スペクトルのストライプ長依存性。励起エネルギーは $E_{HH}+E_{LO}$ に設定した。

度(I_{exc})に対して超線形的に増加することが明らかである($I_p \propto I_{exc}^{1.9}$)。また、Mバンドの積分発光強度は、励起光強度が比較的低い場合に超線形性を示し、Pバンドの出現によって飽和傾向を示す。励起子-励起子散乱過程と励起子分子形成過程において、どちらも2つの励起子の衝突が必要であるので、原理的には発光強度は励起光強度の2乗に比例する。上記のMバンドの飽和傾向は、Pバンドの要因である励起子-励起子散乱により励起子分子形成が抑制されていることを示している。

最後に、励起子-励起子散乱による光学利得について述べる。図4は、VSL法[9]を用いて測定した発光スペクトルである。励起エネルギーを $E_{HH}+E_{LO}$ 、励起光強度を約 1.5 mJ/cm^2 に設定した。また、測定配置図を図4の挿入図に示している。VSL測定において、励起光のストライプ長を 0.13 mm から 0.63 mm に変化させ、発光を試料端面より検出した。光学利得が励起ストライプ領域に存在するならば、発光強度は、ストライプ長 L に依存し、次式で表される[9]。

$$I(\hbar\omega) = I_s(\hbar\omega) \{ \exp[g(\hbar\omega)L] - 1 \} / g(\hbar\omega) \quad (2)$$

ここで、 $I_s(\hbar\omega)$ は自然放射強度を、 $g(\hbar\omega)$ はストライプ内での損失を含めた光学利得を表している。式(2)を用いることによって、2つの異なるストライプ長における発光強度の比より、光学利得スペクトルが得られる。図4の挿入図は、 $L=0.50 \text{ mm}$ と $L=0.63 \text{ mm}$ における2つの発光スペクトルの強度の比から式(2)を用いて計算した光学利得スペクトルである。光学利得が、Pバンドのエネルギー領域において存在することが明らかである。

4. まとめ

GaAs(20 nm)/AlAs(20 nm) MQW を試料と

して、高密度励起条件下における発光特性に関する詳細な測定を行った。励起子エネルギーより十分に高い励起エネルギーで励起した場合、バンドフィリング現象が観測され、励起子-励起子散乱発光は観測されなかった。励起エネルギーを励起子エネルギー近傍に設定することにより（具体的には $E_{HH}+E_{LO}$ ）、励起子-励起子散乱発光の観測に成功した。さらに、VSL法を用いた実験から、励起子-励起子散乱過程による光学利得の存在を確認した。

参考文献

- [1] For a review, C. Klingshirn and H. Haug, Phys. Rep. **70**, 315 (1981).
- [2] M. Nakayama, R. Kitano, M. Ando and T. Uemura, Appl. Phys. Lett. **87**, 092106 (2005).
- [3] H. Tanaka, M. Ando, T. Uemura and M. Nakayama, phys. Stat. sol. (c) **3**, 3512 (2006).
- [4] For a review, C. Klingshirn, Semiconductor Optics, 3rd ed. (Springer, Berlin, 2007).
- [5] S. Adachi, T. Miyashita, S. Takeyama, Y. Takagi, A. Tackeuchi, and M. Nakayama, Phys. Rev. B **55**, 1654 (1997).
- [6] L. C. Andreani and A. Pasquarello, Phys. Rev. B **42**, 8928 (1990).
- [7] C. Klingshirn, Phys. Status Solidi B **71**, 547 (1975).
- [8] H. Ichida and M. Nakayama, Phys. Rev. B **63**, 195316 (2001).
- [9] K. L. Shaklee, R. F. Leheny and R. E. Nahory, Phys. Rev. Lett. **26**, 888 (1971).