

二光子励起フォトルミネッセンス分光における

GaAs/AlGaAs 量子井戸の光学異方性

森田健, 仁木伸義, 北田貴弘, 井須俊郎

徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部フロンティア研究センター

Optical anisotropy of two-photon excited photoluminescence for GaAs/AlGaAs quantum wells

K. Morita, N. Niki, T. Kitada, and T. Isu

Center for Frontier Research of Engineering, The University of Tokushima,

2-1 Minami-Josanjima-Cho Tokushima, 770-8506

Optical anisotropy of the two-photon absorption in GaAs quantum wells (QWs) on the (001) and high-index $(11\ n)A$ ($n = 3, 4$) GaAs substrates were investigated by a polarization dependence of an excitation light for the two-photon excited photoluminescence (PL). For the PL intensities from the (001) QWs, we obtained the four-fold rotation symmetric distribution in the polarization angle, whether an usual PL with a single photon excitation shows rotational symmetry. The peak intensity ratio ($I_{[1-10]}/I_{[100]}$) was larger when the excited energy was near the band edge, and was about 1.4 - 2. For the PL intensities of the high-index QWs, we obtained two-fold rotation symmetric distribution with maximum in the $[1-10]$ and $[nn-2]$ direction. The peak intensity $I_{[1-10]}/I_{[nn-2]}$ was larger for the (113) QWs than for the (114) QWs, which is consistent to the result of optical anisotropy obtained from the one-photon excited PL. The strong second harmonic generation (SHG) signals from the high-index QWs were also observed due to the inversion symmetry breaking, and the optical anisotropy was also evaluated.

1. はじめに

光学遷移が結晶軸方向によって異なる光学異方性は、偏波面制御を必要とするような面型デバイスにおいて魅力的である。特に高指数面上の歪み量子井戸においては、結晶歪と量子閉じ込め効果によってスプリットオフバンドとホールバンドとの混成が生じ、光学異方性が現れることで知られている。これまで我々は、高指数面上の InGaAs 歪量子井戸について、光学利得の異方性が現れることを、フォトルミネッセンス(PL)法に

よって明らかにしてきた[1]。通常の CW レーザーを用いた PL 法(線形分光法)は、一光子吸収による発光過程であり、(001)面上の量子井戸では異方性が無く、高指数 $(11n)$ 面上の歪量子井戸においても、観測される異方性はそれほど大きくはない。しかし、多光子過程による非線形プロセスにおいては、より強い異方性が生じる可能性がある。半導体のバンドギャップ付近を二光子で励起すると、二光子吸収によって生じたキャリアの再結合による発光を観測する

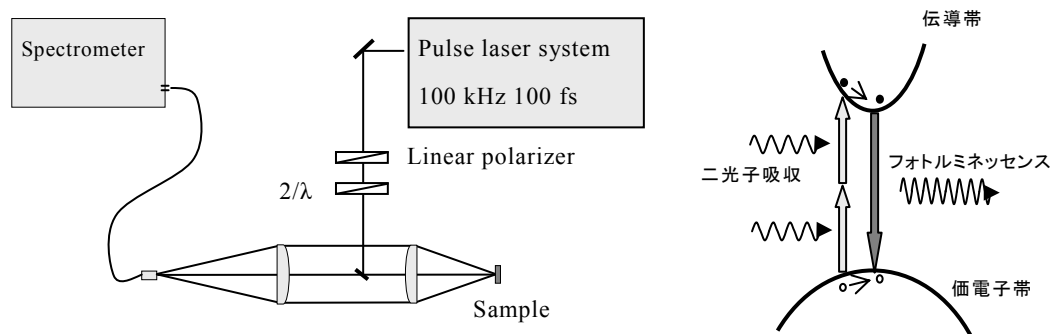


図 1. 二光子励起フォトルミネッセンスの光学測定系とその概念図

ことが可能である。従って、二光子励起した PL における励起光の偏光方向依存性を観測することで、二光子吸収の異方性を評価できる。そこで本研究では、(001)、高指数 $(11n)A$ ($n = 3, 4$) 面上の GaAs 量子井戸における二光子吸収の偏光方向異方性を、二光子励起 PL スペクトルの励起偏波方向依存性によって調べた。また、特に高指数 $(11n)$ 面上の GaAs 量子井戸においては、二光子励起 PL のほかに第二高調発生 (SHG) の光を観測し、その光学異方性についても調べた。

2. 試料と実験方法

本研究で用いた試料は GaAs (001)、 $(11n)A$ ($n = 3, 4$) 面上に分子線エピタキシ成長した 24 周期の GaAs/ $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ (2.5 nm / 7.5 nm) 多重量子井戸である。二光子励起 PL の測定前に、(001)、 $(11n)A$ ($n = 3, 4$) 面の発光ピーク位置は 775-780 nm 付近であることを、一光子励起 PL によって確認した。図 1 に二光子励起 PL の光学測定系とその概念図を示す。励起光源として繰り返し周波数が 100 kHz、パルス幅 100 fs のフェムト秒パルスレーザーシステム (Coherent 社製 OPA9800) を用い測定を行

った。二光子励起を行うために、励起波長 λ_{exc} (1350-1560 nm) は量子井戸の発光波長 (775 nm) の約 2 倍に調整し、励起強度は全て 25mW、室温下で測定した。また、励起パルスレーザー光は試料に垂直に入射させ、その偏光方向を半波長板により回転させることで、二光子吸収過程の偏光方向異方性を調べた。

3. 実験結果と考察

図 2 (a) に (001) 面量子井戸をバンド端よりも高いエネルギー ($\lambda_{exc.} = 1.45\mu\text{m}$) で励起した二光子励起 PL スペクトルを示す。この結果から、スペクトル形状は励起光の偏光方向によってほとんど変化しないことが分かる。また、二光子励起 PL のピーク位置 (775 nm) は、一光子励起 PL のそれとほぼ一致したが、スペクトル幅は広く形状は異なっていることが分かった。これは、強励起によって伝導帯の電子温度が高くなったことによると考えられる。図 2(b) に異なった励起波長における二光子励起 PL 強度の励起偏波方向依存性をプロットした。励起偏波方向における強度分布は、 $[1-10]$ と $[110]$ 方向の場合に最も大きく、 $[100]$ と $[010]$ 方向の場合に

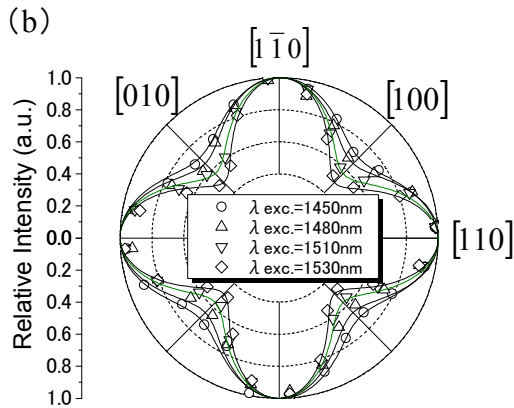
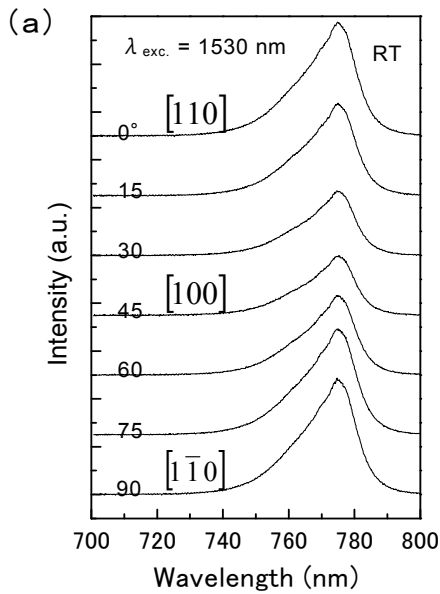


図2.(a) $\lambda_{exc.} = 1530 \text{ nm}$ における二光子励起PLの偏光方向依存性。

(b) 二光子励起PLスペクトルのピーク強度の偏光方向依存性。

最も小さい 4 回対称の形となることが確認できた。また、 $[1-10]$ 方向と $[100]$ 方向の二光子励起 PL 強度の比 ($I_{[1-10]}/I_{[100]}$) は、二光子励起エネルギーが共鳴端に近づくとつれて 1.4 から 2 へ大きくなる傾向があることが分かった。通常(001)面上の量子井戸における一光子励起 PL 強度は、偏光方向に依存しない(強度分布は円状になる)[1]。従って、この 4 回対称の強度分布は非線形光

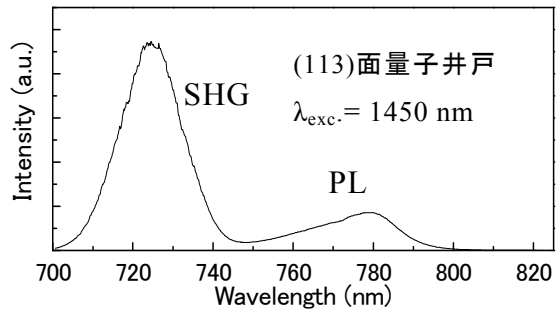


図3. 高指数(113)面上の量子井戸における二光子励起PLスペクトルとSHGスペクトル。

学過程における光学異方性と考えられ、 $[1-10]$ 方向と $[110]$ 方向の分極によるものであることを示唆している。

図 3 に高指数(113)面上の量子井戸を $\lambda_{exc.} = 1450 \text{ nm}$ で励起した二光子励起 PL スペクトルを示す。780 nm 付近に量子井戸からの二光子励起 PL を観測したほか、725 nm 付近にも強いピークが現れることが分かった。高指数(114)面上の量子井戸においても、二光子励起 PL のほかに、同じような強いピークを観測した。この強いピークの起源は、ピーク位置が $\lambda_{exc.}$ のほぼ半分であることと(001)面上の量子井戸では観測できなかったことから、反転対称性が破れた高指数面上の量子井戸で生じた第二高調発生 (SHG) の信号と考えられる。図 4(a)と(b)に、それぞれ(113)面と(114)面上の量子井戸における二光子励起 PL 強度(黒丸)と SHG 信号強度(白丸)の励起偏波方向依存性を示す。二光子励起 PL の励起偏波方向依存性の結果は、図 2(b)の(001)面上量子井戸のそれとほとんど変わらないが、 $[110]$ とそれに垂直な方向 ($[nn-2]$ 方向)で強度が少し異なり、2 回対称の形状を示した。これは高指数面上の結晶配置の対称性に対応して

いる。(113)面と(114)面上の量子井戸における二光子励起 PL 強度比 $I_{[1-10]}/I_{[nn-2]}$ は、それぞれ 0.89 と 0.93 であり、(113)面の方が大きく、これは発光の異方性の基板面方位依存性と対応していることが分かる。

一方、SHG 信号の場合、その強度比 ($S_{[1-10]}/S_{[nn-2]}$) は、二光子 PL と大きく異なり、また(113)面と(114)面上の量子井戸で 0.13 とほとんど変わらないことが分かった。

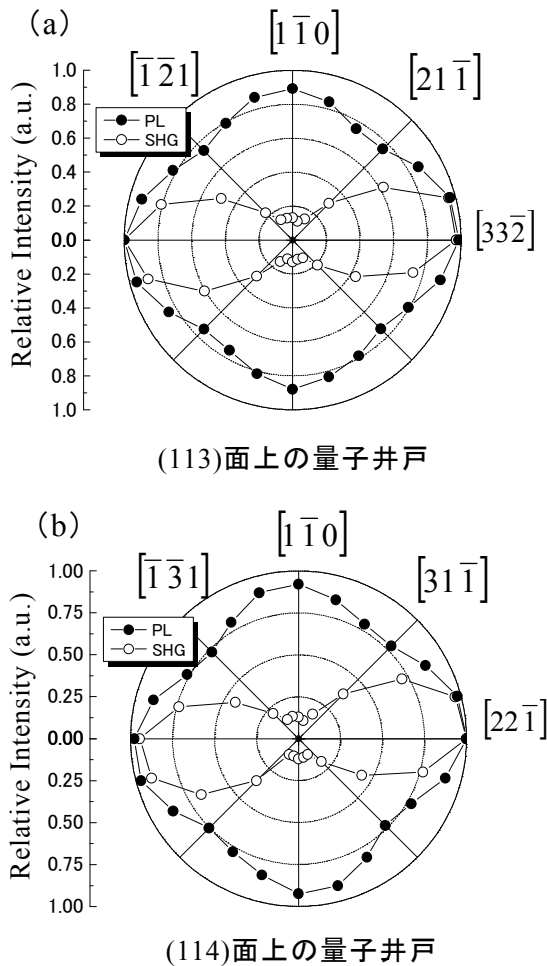


図4. 二光子励起PLスペクトルのピーク強度の偏光方向依存性。(a) (113)面上の量子井戸。(b) (114)面上の量子井戸。

4. まとめ

本研究では(001)、高指数(11*n*)面上のGaAs量子井戸における二光子吸収過程の偏光方向異方性を二光子励起PLによって調べた。(001)面上量子井戸における二光子励起PLの励起偏波方向の強度分布は、[1-10]と[110]方向の場合に最も大きく、[100]と[010]方向の場合に最も小さい4回対称の形となることが確認できた。また、その強度比 ($I_{[1-10]}/I_{[100]}$) は、二光子励起エネルギーが高いエネルギーから共鳴端に近づくにつれて、1.4から2へ大きくなる傾向がある。一方、高指数面上の量子井戸における二光子励起PLの励起偏波方向の強度分布は、2回対称の形状を示し、その強度比 $I_{[1-10]}/I_{[nn-2]}$ は、(113)面と(114)面上量子井戸でそれぞれ 0.89 と 0.93 と求めた。二光子励起PLのほかに、反転対称性が破れによる第二高調発生(SHG)のシグナルも観測し、励起偏波方向に依存した強い異方性 ($S_{[1-10]}/S_{[nn-2]}=0.13$) を観測した。

参考文献

- [1] N. Niki, K. Morita, T. Kitada, and T. Isu, Phys. Stat. Sol. (c) **5**, 2756 (2008).