

GaAs/AlAs タイプ II 超格子における Γ -X 共鳴条件での発光ダイナミクス

古川 喜彬、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 dynamics under a Γ -X subband resonance condition in a GaAs/AlAs type-II superlattice

Yoshiaki Furukawa and Masaaki Nakayama

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Osaka City University

We have investigated the applied-bias-voltage dependence of photoluminescence (PL) dynamics of the type-II exciton in a $(\text{GaAs})_{11}/(\text{AlAs})_{18}$ type-II superlattice. The oscillator strength of the type-II exciton is changed dramatically by the energy spacing between the X and Γ subbands, which is controlled by the bias voltage, due to the Γ -X mixing effect, and becomes a maximum under the Γ -X subband resonance condition. Around the resonance condition, it was found that the PL-decay profiles consist of fast and slow components. The slow component is attributed to the PL-decay process of the type-II exciton. From the bias-voltage dependence of the decay rate, we evaluated the enhancement factor of the oscillator strength of the type-II exciton under the Γ -X resonance condition. The fast component is assigned to the electron scattering process from the X subband to the Γ subband, which have not been observed by time-resolved PL spectroscopy. The observed scattering time is almost consistent with the calculated result based on a simple theory for the scattering process.

1. はじめに

層厚が約 13 モノレイヤー (monolayer: ML, 1ML=0.283nm) よりも薄い GaAs/AlAs 超格子では、電子の最低エネルギー状態は AlAs 層の X サブバンドとなる。一方、正孔の最低エネルギー状態は、どのような条件においても GaAs 層の Γ サブバンドであるために、電子と正孔は実空間と運動量空間で分離されたタイプ II 状態となる [1]。また、GaAs/AlAs タイプ II 超格子では、電子と正孔の存在する運動量空間が異なるために原理的には間接遷移型であるが、タイプ II 励起子は Γ -X 混成効果のために準直接遷移型となる [2]。タイプ II 遷移振動子強度は、以下の式で与えられる [2]。

ここで、 ΔE は伝導帯の GaAs の Γ サブバンドと AlAs の X サブバンドのエネルギー差、 $\left\langle \phi_{\text{HH}} \middle| \phi_{X_z} \right\rangle^2$ は X 電子と Γ 重い正孔の包絡波動関数の重なり積分を表す。式(1)から、 Γ サブバンドと X サブバンドのエネルギーが等しくなる、すなわち、 Γ -X 共鳴条件においてタイプ II 遷移振動子強度が飛躍的に増大することが分かる。さらに、X \rightarrow Γ サブバンド間散乱が顕著になることが期待される。

本研究では、これまでほとんど研究がされていなかった Γ -X 共鳴条件に注目し、X \rightarrow Γ サブバンド間散乱時間と、タイプ II 励起子の発光ダイナミクスを詳細に調べた。なお、X サブバンドと Γ サブバンドのエネルギー差は、試料に電圧を印加することで制御した。

$$f \propto \frac{\left\langle \Gamma_e \middle| V_{\text{mix}} \middle| X_z \right\rangle^2}{\Delta E^2} \left\langle \phi_{\text{HH}} \middle| \phi_{X_z} \right\rangle^2 \quad (1)$$

2. 試料作製と実験方法

本研究では、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて作製した 30.5 周期の $(\text{GaAs})_{11}/(\text{AlAs})_{18}$ 超格子を p-i-n ダイオード構造に埋め込んだ試料を用いた (i が超格子層)。添え字は、モノレイヤー単位の層厚を示している。フラットバンド近傍 (逆方向バイアス電圧: $-1.0\text{ V}\sim 1.0\text{ V}$) の発光ダイナミクスの測定には、励起光源に A/O モジュレーターでパルス変調 (1 MHz) された He-Ne レーザー (632.8 nm) を用い、 Γ -X 共鳴近傍 (逆方向バイアス電圧: $2.5\text{ V}\sim 4.5\text{ V}$) の発光ダイナミクスの測定には、チタンサファイアパルスレーザーの第二高調波 (420 nm、パルス幅 2 ps、繰り返し周波数 76MHz) を用いた。検出には、いずれもストリークカメラ (時間分解能 25 ps) を用いた。なお、すべての光学測定は試料温度 6 K で行った。

3. 実験結果と考察

図 1 は、フラットバンド近傍における発光減衰プロファイルの逆方向バイアス電圧依存性を示している。タイプ II 励起子の発光寿命は、逆方向バイアス電圧の増加に従って減少する振る舞いを示す。これには、2つの原因がある。一つが、 Γ -X 混成効果の増大による振動子強度の増大であり、もう一つが、キャリアのスweepアウト (非発光過程) が増大するためである。

図 2 は、 Γ -X 共鳴条件近傍の逆方向バイアス電圧 3.9 V における発光減衰プロファイルを示している。この測定結果から、発光減衰プロファイルには、早い成分と遅い成分が存在することがわかる。遅い成分は、時間スケールから考えて、タイプ II 励起子の発光減衰過程である。速い成分は、約 100ps という短い減衰時間であり、励起子発光に帰属することができない。したがって、 Γ -X サブバンド共鳴条件において期待される電子の $X\rightarrow\Gamma$ サブバンド間散乱であると考えられる。各逆方向バイアス電圧にお

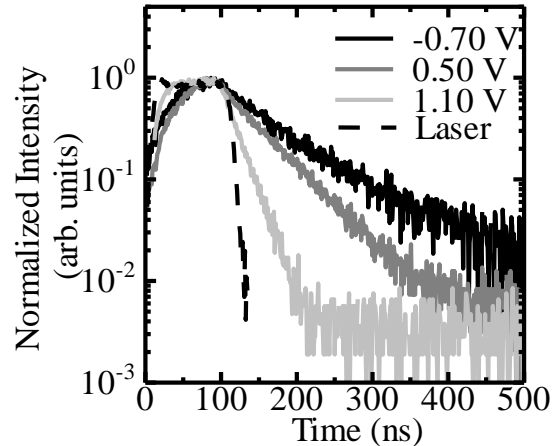


図 1: フラットバンド近傍における発光減衰プロファイルの逆方向バイアス電圧依存性

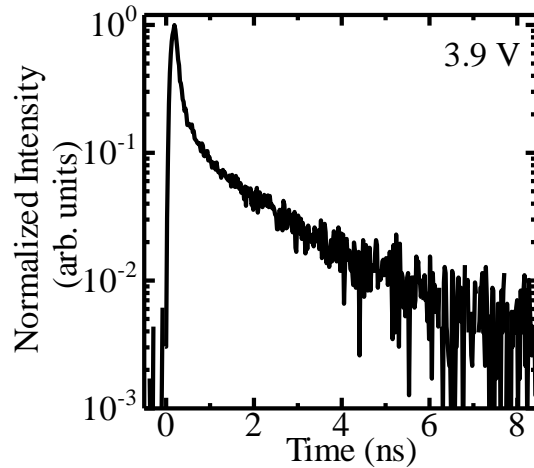


図 2: Γ -X 共鳴条件近傍における発光減衰プロファイル

る発光減衰プロファイルに対して 2 成分指数関数でフィッティングを行い、速い成分とタイプ II 励起子発光の逆方向バイアス電圧依存性を調べた。

図 3 は、タイプ II 励起子の発光減衰時間の逆方向バイアス電圧依存性を示している。発光減衰時間は、逆方向バイアス電圧の増加に伴って減少するが、4 V 付近で最小となり、再び増大するふるまいを示す。式(1)から、 Γ -X 混成効果によってタイプ II 励起子振動子強度が Γ -X 共鳴条件において最大となること、即ち、発光寿命が最短となることが期待される。一方、非発光過程であるキャリアのスweepアウトは、ドリフト速度

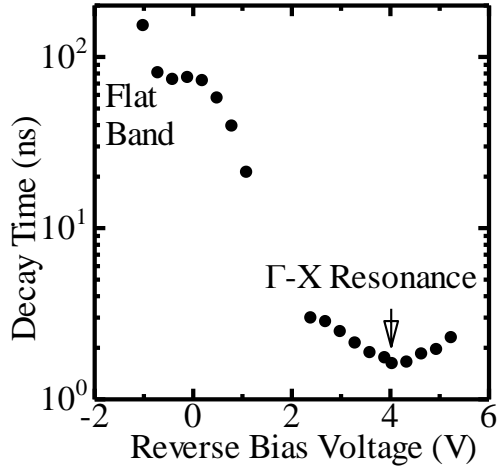


図 3: タイプ II 励起子の発光減衰時間の逆方向バイアス電圧依存性

の原理から、逆方向バイスの増大と共に単調に増大する。したがって、4V 近傍で減衰時間が最小になるという結果は、 Γ -X 共鳴によるタイプ II 励起子の遷移確率の増大が、キャリアのスweepアウト速度を上回っているためであると考えられる。従って、最小値となる 4 V 付近が Γ -X 共鳴条件に対応する。さらに、この測定結果について速度論的な解析を行う。

発光過程の速度論的方程式は以下の式で与えられる。

$$\begin{aligned} \frac{dN(t)}{dt} &= -k_r N(t) - k_{nr} N(t) & (2) \\ N(t) &= N(0) \exp(-k_{obs} t) \\ (k_{obs} &= k_r + k_{nr}) \end{aligned}$$

ここで、 k_r は発光速度、 k_{nr} が非発光速度、 k_{obs} が観測される発光速度を表す。本研究における k_{nr} の起源は、電圧印加によるキャリアのスweepアウトである。フラットバンド近傍と Γ -X 共鳴での発光速度 k_r を比較することで、 Γ -X 共鳴における振動子強度の増強率を見積もる。図 4 は k_{obs} の逆方向バイアス電圧依存性を示している。フラットバンド近傍では、電圧印加によるキャリアのスweepアウトがほとんどなく、非発光

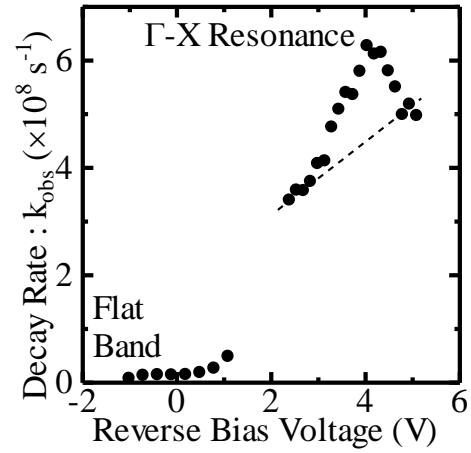


図 4: タイプ II 励起子における k_{obs} の逆方向バイアス電圧依存性

速度 k_{nr} を無視できると仮定して、 $k_r \approx k_{obs} = 6.7 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ となる。また、 Γ -X 共鳴では、観測される発光速度は $k_{obs} = 6.3 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ である。タイプ II 励起子の発光速度を見積もるためには、非発光速度の補正をしなければならない。非発光速度 k_{nr} を、 Γ -X 共鳴による振動子強度の増大の影響が小さく非発光速度が支配的となる Γ -X 共鳴条件から離れたデータの発光速度から見積もって (図 4 の破線)、 Γ -X 共鳴条件での非発光速度は $k_{nr} = 4.6 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ となる。よって、 Γ -X 共鳴条件での発光速度は、 $k_r = k_{obs} - k_{nr} = 1.7 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ となる。従って、フラットバンド近傍と Γ -X 共鳴の発光速度 k_r を比較して、 Γ -X 共鳴によって振動子強度が約 25 倍に増強されたことが明らかとなった。

図 5 は、 Γ -X 共鳴条件近傍における $X \rightarrow \Gamma$ サブバンド間散乱時間と考えられる速い成分の逆方向バイアス電圧依存性を示している。 $X \rightarrow \Gamma$ サブバンド間散乱時間は、逆方向バイアス電圧の印加に従って減少し、 Γ -X 共鳴付近で最小となり、再び増加する振る舞いを示す。これは、 X サブバンドと Γ サブバンドのエネルギー差が変化することに起因し、 X サブバンドと Γ サブバンドのエネルギーが等しくなる Γ -X 共鳴で X サブバンド

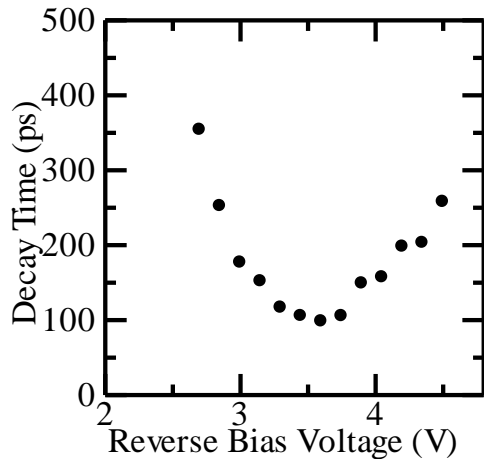


図 5: X→Γサブバンド間散乱時間の逆方向バイアス電圧依存性

からΓサブバンドへの散乱効率が最大となり、散乱時間が最も短くなるためと考えられる。また、Feldmann らによると、GaAs/AlAs 系での X→Γサブバンド間散乱時間 τ_s は、フェルミの黄金律から以下のように表される[3]。

$$k_s = \tau_s^{-1} = 5\text{ps}^{-1} m_\Gamma \langle |\phi_X | \phi_\Gamma| \rangle^2 \quad (3)$$

ここで、 m_Γ は GaAs の Γ 点有効質量、 $\langle \phi_X | \phi_\Gamma \rangle$ は X サブバンドと Γ サブバンドの波動関数の重なり積分を表す。また、Feldmann らは、X→Γサブバンド間散乱時間を GaAs/AlAs 二重量子井戸を用いてポンプ・プローブ法で測定しており、式(3)に基づく計算結果との比較を行っている[4]。これによると、測定値が 30 ps であるのに対して、計算値が 400 ps となり、全く異なっている。これに関して Feldmann らは、理論式を否定する見解を示している。一方、我々の研究の場合、この理論式を用いて計算した X→Γサブバンド間散乱時間は、約 200 ps であり、実験結果と近い値となり、速い成分が X→Γサブバンド間散乱であることを裏付けている。X→Γサブバンド間散乱を発光ダイナミクスから測定したのは、本研究が初めてである。

4. まとめ

(GaAs)₁₁/(AlAs)₁₈ 超格子を用いて、発光ダイナミクスの逆方向バイアス電圧依存性を詳細に調べた。発光減衰プロファイルには、速い成分と遅い成分の 2 成分が存在し、遅い成分はタイプ II 励起子発光であり、発光ダイナミクスの解析から、Γ-X 共鳴によるタイプ II 遷移振動子強度の増大は約 25 倍と見積もることに成功した。速い成分は X→Γサブバンド間散乱であり、Γ-X 共鳴においてその散乱時間は約 100 ps であり、これは理論値とほぼ一致する結果が得られた。

参考文献

- [1] M. Nakayama, T. Isao, K. Ikuo, and N. Nishimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **29**, 41 (1990).
- [2] M. Nakayama, K. Imazawa, K. Suyama, I. Tanaka, and H. Nishimura, *Phys. Rev. B.* **49**, 11191 (1994)
- [3] J. Feldmann, J. Nunnenkamp, G. Peter, E. Göbel, J. Kuhl, K. Ploog, P. Dawson, and C. T. Foxon, *Phys. Rev. B.* **42**, 5809 (1990)
- [4] J. Feldmann, M. Preis, E. O. Göbel, P. Dawson, C. T. Foxon, and I. Galbraith, *Solid State Commun.* **83**, 245 (1992)