

L_z -gradient QW 中の高密度励起条件下における 励起子拡散プロセス

小西俊矢, 吉崎雄亮, 北野敬明^A, 河本泰佑^A,

岩満一功, 島本知茂^B, 藤井淳浩^B, 赤井一郎^B

熊本大学大学院自然科学研究科, ^A熊本大学理学部, ^B熊本大学衝撃・極限環境研究センター

S. Konishi, Y. Yoshizaki, T. Kitano^A, T. Kawamoto^A

K. Iwamitsu, T. Shimamoto^B, A. Fujii^B, I. Akai^B

Excitonic diffusive processes in L_z -gradient quantum well under high density excitation
Graduate school of science and technology, Kumamoto University

^AFaculty of Science, Kumamoto University

^BShockwave and condensed matter reserch center, Kumamoto University

In semiconductor quantum structures, much attention has been focused on propagation and diffusion processes of confined excitons. In our work, we have studied propagation and diffusion phenomena of high density excitons confined in a L_z -gradient GaAs quantum well (QW) structure, in which the confined energy varies along the lateral direction due to a variation of the well thickness (L_z). We found that many body interactions among high density excitons bring non-radiative annihilation processes and dominate isotropic diffusive processes through repulsive interactions among high density excitons.

1 Introduction

半導体量子構造において閉じ込め効果を受けた励起子の伝播や拡散に関する研究は非常に活発に行われてきた^[1-3]。特に最近、その中でも高密度励起に関する研究に注目が集まっている^[4-6]。加えて、空間ポテンシャル中での励起子と電子-正孔対の伝播と拡散の現象に関する研究においては非常に興味深いものがある^[7,8]。

我々は、井戸幅の一方方向への変化による閉じ込めエネルギー勾配を持つ GaAs L_z -gradient QW 中の励起子の伝播と拡散現象について研究を行ってきた。その結果、エネルギー勾配による駆動力を受けた QW 励起子が異方的な伝播をしていることが分かった^[9]。今回、 L_z -gradient QW 中の閉じ込めを受けた励起子の異方伝播と等方的拡散の実験結果を示し、高密度条件下でのこれらプロセスについて明らかにする。

2 Experimental

2.1 L_z -gradient QW

用いてる試料は MBE 法によって作成した。図 1 は L_z -gradient QW 中のポテンシャル構造である。バリア層は $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.33$) で構成されている。図 1 に示してあるように、サンプルの Y 軸の正方向に QW の井戸幅 L_z が増している。

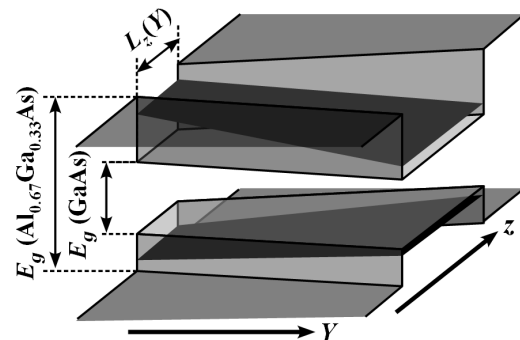


図 1: L_z -gradient QW 中のポテンシャル構造
サンプルの Y 軸の正方向に井戸幅 L_z が増している。

そのような L_z の勾配によって、QW 中に閉じ込められた励起子による発光バンドは図 2 に示したように励起位置に依存した異なるピークエネルギーを持つ。図 2 の○に示した様に L_z -gradient QW 中の heavy-hole (hh) 励起子による発光ピークのエネルギーが変化しており Y が 0 付近のエネルギー勾配は、 -0.9 meV/mm になっているこの値は、hh 励起子が Y 軸の正の方向に $+1.4 \times 10^{-19} \text{ N}$ の駆動力を受けていることに対応する。

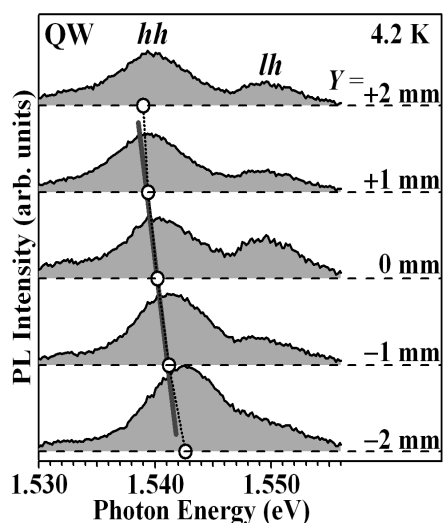


図 2: L_z -gradient QW 中の Y 位置における発光スペクトルの変化。励起密度は 44 kW/cm^2

2.2 μ PL measuring system

L_z -gradient QW 中の励起子の拡散と伝播の定量的な評価のために、我々は図 3 に示した顕微発光スペクトルの分光法を用いている。我々のシステムは bundle fiber と multi-track spectrographic CCD を使用する事により広い空間の顕微発光スペクトル ($\sim 10 \mu\text{m}$, Y 軸方向) を高い空間分解能 ($\sim 1 \mu\text{m}$) で同時に検出することができる。試料は Nd:YAG laser ($\lambda=532 \text{ nm}$) で励起され、励起密度は $2.7\sim 130 \text{ kW/cm}^2$ で変化できる。サンプル表面での励起スポットの直径は $1.20\pm 0.01 \mu\text{m}$ であり、システムの拡大率は 250 倍である。

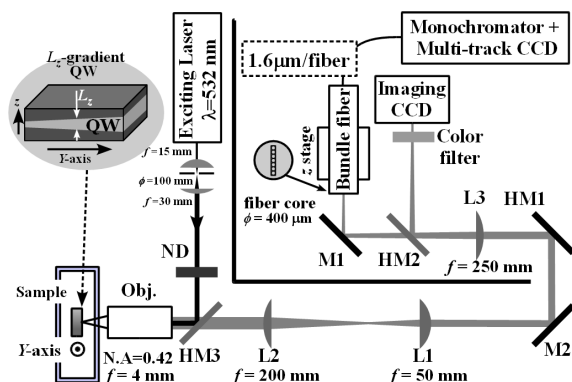


図 3: 顕微発光分光システム

3 Results and discussion

極低温では、ヘテロ界面の揺らぎはポテンシャルエネルギー極小点における QW 励起子の局在化をもたらす。従って、自由励起子の高密度効果による伝播と拡散プロセスを調べるために局在化エネルギー ($\sim 2.5 \text{ meV}$) よりも高温での顕微発光スペクトルを測定しなければいけない。今回、すべての測定は 40 K ($= 3.4 \text{ meV}$) にて行った。

3.1 Asymmetric propagation of excitons

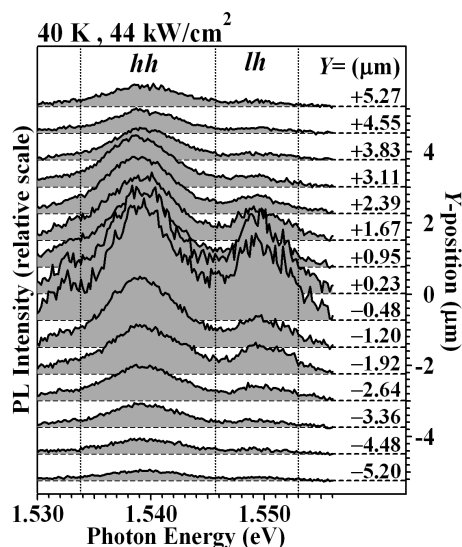


図 4: 励起強度 44 kW/cm^2 における $Y=-5.20 \mu\text{m}$ から $+5.27 \mu\text{m}$ までの顕微発光スペクトルの変化

図 4 は励起レーザーの励起強度 44 kW/cm^2 , $Y=-5.20 \mu\text{m}\sim +5.27 \mu\text{m}$ の範囲での複数位置における QW 励起子の顕微発光スペクトルを示している。励起レーザーは $Y=0$ で直径 $1.2 \mu\text{m}$ のスポットに集光している。励起スポット付近 ($Y\sim 0$) の発光スペクトルから QW 中で高密度励起条件が実現されていることが分かる。ここで全ての吸収光子が QW 励起子に変換されていると仮定すると、 40 K の励起子寿命が 200 ps で、励起強度は $\sim 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ のオーダーであり QW 励起子のモット密度よりもはるかに大きい値ということが分かる^[10]。低密度励起条件下では hh 励起子だけの発光バンドが現れるが、対照的に図 4 のように我々の実験では、2 つの発光バンドが現れている。これは heavy-hole (hh) と light hole (lh) 間の質量の違いから発光バンドのエネルギー分裂が説明できるので、これらの発光バンドはそれぞれ試料中の hh 由来の励起子と lh 由来の励起子に割

り当てることができる。我々のQWシステム中では実際の密度は非輻射緩和などなんらかのロスによって 10^{13} cm^{-2} 以下になっていると考えられるが、図4にあるようにlh励起子準位の分布による発光バンドの観測から高密度条件が実現されていることが分かる。

またこの図で L_z -gradient QW中で駆動力による励起子の非対称な伝播が見て取れる。Yが負の領域において $Y = -5.20 \mu\text{m}$ の顕微発光スペクトルにあるように励起スポット($Y \sim 0$)から離れた場所で発光が著しく弱まっている。一方、Yが正の方向では励起子が駆動力を受け発光が遠い領域($Y = +5.27 \mu\text{m}$)まで残っている。

図5の真ん中のグラフが 44 kW/cm^2 励起条件下におけるlh励起子(O)、hh励起子(●)と励起レーザー(破線)の空間的強度分布である。これらのhh, lh励起子の発光強度は、以下に述べるエネルギー領域におけるスペクトル積分から得られたものである。hh励起子: $1.534 \sim 1.546 \text{ eV}$, lh励起子: $1.546 \sim 1.553 \text{ eV}$ (図4の垂直の破線)。また、励起スポットは狭い空間分布を持っている(FWHM $\sim 1.2 \mu\text{m}$)。lh励起子の場合は励起スポットの外にわずかな広がりしか持たないが一方、hh励起子の幅広い空間的広がりやその非対称性がはっきりと現れている。このようにhh励起子の発光が負の領域よりも正の方向に遠くまで残っているのは、まさに L_z -gradient QW中でhh励起子が駆動力を受けて異方伝播をしているという振る舞いと一致している。

また、最近の我々の研究ではそのような異方伝播は大きい励起子の移動度が理由であるということが分かっている^[9]。 L_z -gradient QW中における励起子の特異な伝播や拡散は以下の式によって理解できる。

$$\frac{\partial n(x, Y)}{\partial t} = D \nabla^2 n(x, Y) - v_Y \frac{\partial n(x, Y)}{\partial Y} - \frac{n}{\tau} + G(x, Y)$$

ここで、 $n(x, Y)$ と $G(x, Y)$ は励起子と励起レーザーの空間分布でありパラメーター D と τ は励起子の拡散係数と寿命である。この式の右辺第1項は励起子の拡散プロセスを表しており、QW励起子の対称的な広がりを与えている。図5に見られるQW励起子の非対称的な分布を説明するために右辺の第2項を導入しなければいけない。ここで v_Y はエネルギー勾配上で駆動力を受けている励起子の伝播速度である。伝播速度はQW励起子の移動度 μ と駆動力 F_Y を用いて $\mu F_Y / e$ と表せる。低密度で熱平衡な場合、移動度はアインシュタイン

の関係式に従う($\mu = De/k_B T$)。しかしながら、図5にあるような実験結果を再現する μ の値は非常に大きくなってしまふ($\mu > 10^3 \text{ m}^2/\text{Vs}$)。このアインシュタインの関係式との不一致はまた、我々の実験条件が高密度励起条件になっていることを意味している。

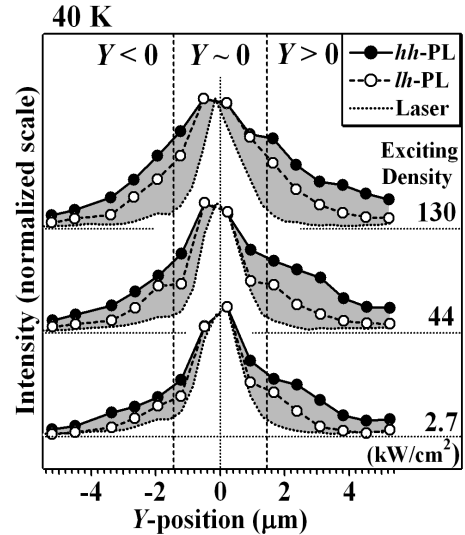


図5: 励起レーザーとhh, lh励起子由来発光バンドの空間的強度分布

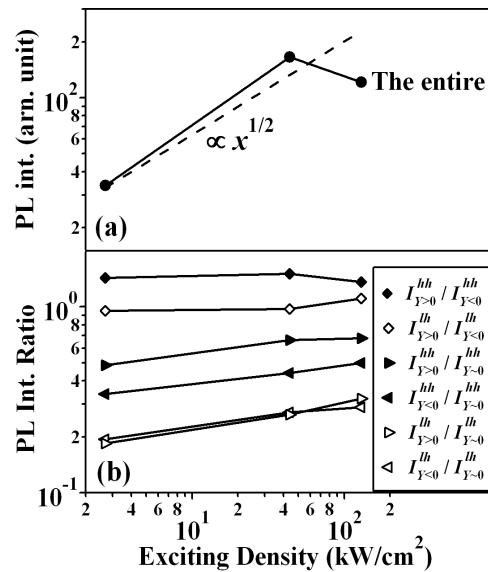


図6: 全発光強度 (a) と3領域($Y > 0, Y \sim 0, Y < 0$)の発光強度比 (b) の励起強度依存性

3.2 High density excitation effect

L_z -gradient QW中における励起子の伝播と拡散プロセスに対する高密度効果を明らかにするため、 hh , lh 励起子発光バンドの空間的強度分布の励起強度依存性を測定した。図5がその実験結果である(上:130 kW/cm², 中:44 kW/cm² 下:2.7 kW/cm²)。図5で縦軸はそれぞれの図の最大値で規格化している。図6(a)はすべての領域($Y=-5.20 \sim +5.27 \mu\text{m}$)での hh , lh 励起子の全発光強度の励起強度依存性を示している。この図から励起強度の増加に伴ってサブリニアに増加していること、励起強度が44 kW/cm²以上で飽和していることが分かる。この結果は、QW中の高密度励起子間多体効果により L_z -gradient QW中でなんらかの非輻射の消滅過程が起きていることを示唆している。

また図5において発光強度の空間分布で高密度効果が現れている。励起強度の増加に従い、もっとも小さい励起強度(2.7 kW/cm²)よりも空間的強度分布がより拡がりを持っていることが分かる。130 kW/cm²の励起密度では、励起スポットから離れた位置($|Y|>1.45 \mu\text{m}$)の発光強度は hh 励起子だけでなく lh 励起子においても十分強い。この結果はQW中の高密度な励起子間の多体効果が L_z -gradient QW中で励起子の拡がりを増強していることを表している。このことから、我々はそのような多体効果を説明するために、3領域($Y<0, Y\sim 0, Y>0$)の発光強度 $I^{Y<0}, I^{Y\sim 0}, I^{Y>0}$ 間の比に着目した。図6(b)はこれらの比の励起強度依存性を示している。それぞれ黒が hh 励起子、白が lh 励起子の発光強度比であり $\blacktriangleleft, \triangleleft$ と $\blacktriangleright, \triangleright$ がそれぞれ $I^{Y<0}/I^{Y\sim 0}, I^{Y>0}/I^{Y\sim 0}$ の比、 \blacklozenge, \lozenge が $I^{Y>0}/I^{Y<0}$ の比である。ここで、前者は励起子の等方的拡散性を後者は励起子の異方的伝播性を意味している。この図から \blacklozenge, \lozenge ははっきりとした励起強度依存性はみられないことが分かる。これらは正の領域と負の領域の発光強度間の非対称性を表している。即ち、エネルギー勾配による駆動力を受けた励起子の非対称伝播はQW励起子間の多体効果によって増強されないということが言える。また一方で、 $\triangleleft, \triangleleft$ と $\blacktriangleright, \triangleright$ は励起強度の増加に伴って、値が大きくなっていることが分かる。これらは、励起スポット付近とそこから離れた位置での発光強度比を意味しているので、このことから等方的な拡散過程は励起強度の増加によって増強され、さらにそのような過程は励起スポット付近の高密度励起子間の斥力相互作用が支配的であるということを示唆している。

4 Summary

顕微発光分光システムを用いて、 L_z -gradient QW中で閉じ込めを受けた励起子による顕微発光スペクトルと空間的強度分布の測定を行った。44 kW/cm²以上の励起強度において lh 励起子の発光バンドは高密度励起効果の結果として励起スポット付近で観測され、さらに我々は閉じ込めエネルギーの勾配により生じる駆動力を受けた励起子の異方的な伝播現象を発見した。空間分布の励起強度依存性から以下の3つが分かった。(1)高密度励起子間の多体効果による非輻射の消滅プロセスが生じている。(2)異方的な伝播プロセスは励起強度の変化の影響を受けない。(3)等方的な拡散プロセスは励起スポット付近の高密度励起子間の斥力相互作用によるものと考えられる。

References

- [1] Q. Wu, R. D. Grober, D. Gammon and D. S. Katzer, Phys. Rev. Lett. **83**, 2652 (1999).
- [2] H. Hillmer, S. Hansmann, A. Forchel, M. Morohashi, E. Lopez, H. P. Meier and K. Ploog, Appl. Phys. Lett. **53**, 1937 (1988).
- [3] W. Heller, A. Filoramo, Ph. Roussignol and U. Bockelmann, Solid-State Electronics **40**, 725 (1996).
- [4] K. Bando, I. Akai, T. Karasawa, K. Maehashi and H. Nakashima, Nonlinear Optics **29**, 197 (2002).
- [5] L. M. Smith, J. S. Preston, J. P. Wolfe, D. R. Wake, J. Klem, T. Henderson and H. Morkoç, Phys. Rev. **B39**, 1862 (1989).
- [6] H. Zhao, S. Moehl, S. Wachter and H. Kalt, Appl. Phys. Lett. **80**, 1391 (2002).
- [7] N. Naka and N. Nagasawa, Phys. Rev. **B70**, 155205 (2004).
- [8] J. P. Wolfe, W. L. Hansen, E. E. Haller, R. S. Markiewicz, C. Kittel and C. D. Jeffries, Phys. Rev. Lett. **34**, 1292 (1975).
- [9] I. Akai, et al. Phys. Procedia **29**, 1 (2012).
- [10] B. Deveaud, L. Kappei, J. Berney, F. Morier-Genoud, M. T. Portella-Oberli, J. Szczytko and C. Piermarocchi, Chem. Phys. **318**, 104 (2005).