

GaAs/AlAs 多重量子井戸構造における 励起子分子から電子・正孔プラズマへのモット転移

古川 喜彬^A、土家 琢磨^B、中山 正昭^A
大阪市立大学大学院工学研究科電子情報系専攻^A
北海道大学大学院工学研究院応用物理学部門^B

Mott transition from biexcitons to electron-hole plasma in a GaAs/AlAs multiple-quantum-well structure

Yoshiaki Furukawa^A, Takuma Tsuchiya^B, and Masaaki Nakayama^A

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

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Hokkaido University^B

We have investigated the transition process from the excitonic system (the exciton and biexciton) to an electron-hole plasma (EHP) at 10 K in a GaAs (15.0 nm)/AlAs (15.0 nm) multiple-quantum-well structure with the use of photoluminescence (PL) spectroscopy. Under a medium density excitation condition, we clearly observed that the PL band of the biexciton is dominant. It was found that the PL band of the EHP appears from the biexciton-dominant condition with a threshold-like nature. In contrast, the relative intensity of the biexciton PL to the EHP PL remarkably decreases with a further increase in excitation power. This fact demonstrates that the Mott transition occurs from the biexciton. The Mott-transition density was estimated to be $1.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ from the line-shape analysis of the EHP-PL band. The band-gap shrinkage at the Mott-transition density is reasonably explained by a model for the two-dimensional EHP.

1. はじめに

高密度励起条件下の半導体においてよく知られている現象の一つとして、励起子系から電子・正孔プラズマへの転移（モット転移）がある[1]。GaAs/Al_xGa_{1-x}As 量子井戸構造において、量子閉じ込め効果により励起子分子束縛エネルギーが増大する[2, 3]。そのため、GaAs/Al_xGa_{1-x}As 量子井戸構造におけるモット転移では、励起子分子からのモット転移が期待される。しかし、これまでのGaAs/Al_xGa_{1-x}As 量子井戸構造におけるモット転移の研究では、励起子分子の寄与について明らかになっていない。一方、In_xGa_{1-x}As/GaAs 単一量子井戸において、モット転移はキャリア密度に対して連続的に生じるという結果が報告されており[4]、GaAs 系量子井戸構造におけるモット転移の物理描写の詳細は未だ明確ではない。

本研究では、GaAs/AlAs 多重量子井戸構造を対象として、発光スペクトルの励起強度依存性を系統的に測定した。中密度領域では、キャリア密度の増加に伴って、励起子分子発光が明確に観測され、励起子分子発光が支配的になる振る舞いが観測された。高密度領域では、電子・正孔プラズマ発光が閾値的に出現し、キャリア密度の増加に伴って励起子分子発光が相対的に減少する振る舞いが観測された。この結果は、励起子分子から電子・正孔プラズマへの転移を示している。また、発光形状解析から求めたモット転移臨界密度におけるバンドギャップ収縮量について、2次元電子・正孔プラズマに関する plasmon-pole 近似モデル[5]に基づいて考察した。

2. 試料作製と実験方法

本研究では、分子線エピタキシー法を用いて作製した 20 周期の GaAs(15.0 nm)/AlAs(15.0 nm)多重量子井戸構造を試料とした。発光スペクトルの測定には、励起光源として YAG パルスレーザーの第二高調波（発振波長 532 nm、パルス幅 1 ns、繰り返し周波数 10 kHz）を用いた。励起強度依存性の測定において重要となる励起強度の空間分布は、ビームシェイパーを用いることで均一化した。検出には、CCD 検出器を用いた。なお、全ての光学測定は試料温度 10 K で行った。

3. 実験結果と考察

図 1 は発光スペクトルの励起強度依存性の測定結果を示しており、最大励起強度 P_0 は 8 mJ/cm^2 であり、各発光スペクトルはそれぞれの最大強度で規格化している。最低励起強度にあたる $0.00005P_0$ ($0.4 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$) では、X で示される励起子発光が主体的に観測される。励起強度の増加に伴って、励起子発光の低エネルギー側に XX で示される励起子分子発光が連続的に強度を増して出現する。この励起子分子発光バンドは有効温度の上昇に伴い低エネルギー側に裾を引き、逆ボルツマン分布形状を示す。励起強度 $0.009P_0$ ($72 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$) では、励起子分子発光が支配的となる。励起強度 $0.013P_0$ より僅かに高い励起強度 $0.013P_0$ ($1.0 \times 10^2 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$) において、励起子分子発光の低エネルギー側に EHP で示される電子・正孔プラズマ発光バンドが突然出現する。 $0.013P_0$ より高い励起強度領域において、この電子・正孔プラズマ発光バンドが主体的となり、励起子分子発光は相対的に著しく減少する。また、電子・正孔プラズマ発光バンドは、励起強度の増加に伴って低エネルギーシフトする振る舞いを示す。これは、電子・正孔プラズマ状態特有のバンドギャップ再構成を反映した結果である。以上の結果は、励起子分子から電子・正孔プラズマへのモット転移が閾値性を有して生じていることを示しており、モット転移は連続的

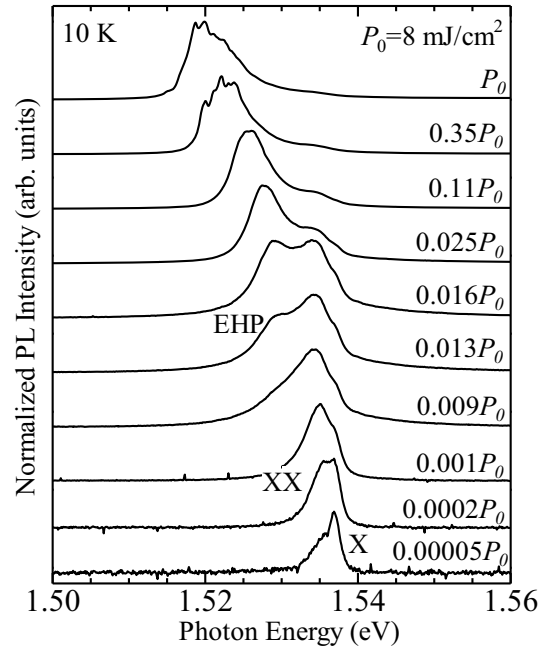


図 1: GaAs(15.0 nm)/AlAs(15.0 nm)多重量子井戸構造における発光スペクトルの励起強度依存性。

に生じるという文献[4]の主張と正反対の結果が得られた。

次に、上記の振る舞いの妥当性を検証するために、発光形状解析を行った。図 2 は、中密度領域に対応する励起強度 0.4 、 1.6 、 $8.0 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$ における発光スペクトルの形状解析結果を示している。丸印は測定結果を示し、それぞれの発光スペクトルは最大強度で規格化している。励起子発光の形状解析にはガウス関数を用い、励起子分子発光の形状解析には状態密度 $D(\hbar\omega)$ と逆ボルツマン分布関数 $f(\hbar\omega)$ の積で示される下記の関数を用いた[6]。

$$I_{XX}(\hbar\omega) \propto D(\hbar\omega)f(\hbar\omega) \propto \frac{\exp[-(E_X - E_{b,XX} - \hbar\omega)/k_B T_{\text{eff}}]}{1 + \exp[-(E_X - E_{b,XX} - \hbar\omega)/\Gamma]} \quad (1)$$

ここで、分母は乱れ因子 Γ を含む 2 次元状態密度を表しており、 E_X は励起子エネルギー、 $E_{b,XX}$ は励起子分子束縛エネルギー、 T_{eff} は励起子分子の有効温度に対応する。励起子発光、励起子分子発光のフィッティング結果は、図中の破線、一点鎖線で示され、その和を実線で示している。各励起強度におけるフィッティング結果は実験結果

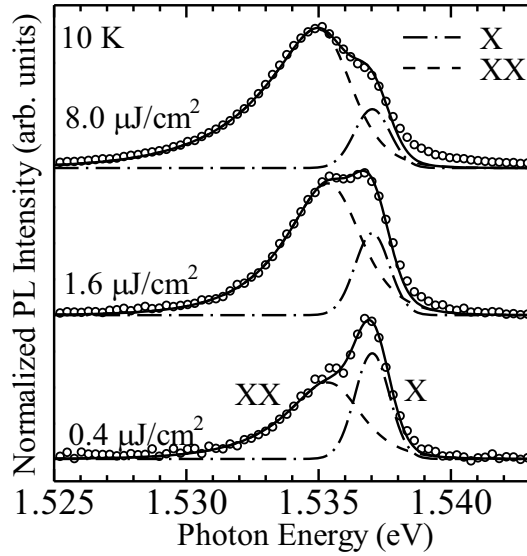


図2: 励起強度 $0.4 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $1.6 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $8.0 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ における発光スペクトルの形状解析結果。

を良く再現している。フィッティング結果から、励起子分子束縛エネルギーは $E_{b,XX} = 1.2 \text{ meV}$ と求められた。この値は、励起子分子一励起子量子ビートから求められた結果とほぼ一致している[3]。

図3は、モット転移閾値近傍に対応する励起強度 $72 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $1.0 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $1.3 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ における発光スペクトルの形状解析結果を示している。丸印は測定結果を示し、それぞれの発光スペクトルは最大強度で規格化している。電子・正孔プラズマ発光の形状解析には、運動量保存則とエネルギー保存則を考慮した下記の式を用いた[7]。

$$I_{\text{EHP}}(\hbar\omega) \propto J_{\text{cv}}(\hbar\omega) f_e(\hbar\omega) f_h(\hbar\omega) \quad (2)$$

ここで、 J_{cv} は結合状態密度、 f_e 、 f_h はそれぞれ電子、正孔のフェルミ分布関数を表し、下記の式で与えられる。

$$J_{\text{cv}}(\hbar\omega) = \frac{\mu}{\pi\hbar^2} \frac{1}{1 + \exp[-(\hbar\omega - E'_g)/\Gamma]} \quad (3)$$

$$f_e(\hbar\omega) = \frac{1}{1 + \exp\{(m_h^*/M)(\hbar\omega - E'_g) - E_{F,e}\}/k_B T_{\text{eff}}\}} \quad (4)$$

$$f_h(\hbar\omega) = \frac{1}{1 + \exp\{(m_e^*/M)(\hbar\omega - E'_g) - E_{F,h}\}/k_B T_{\text{eff}}\}} \quad (5)$$

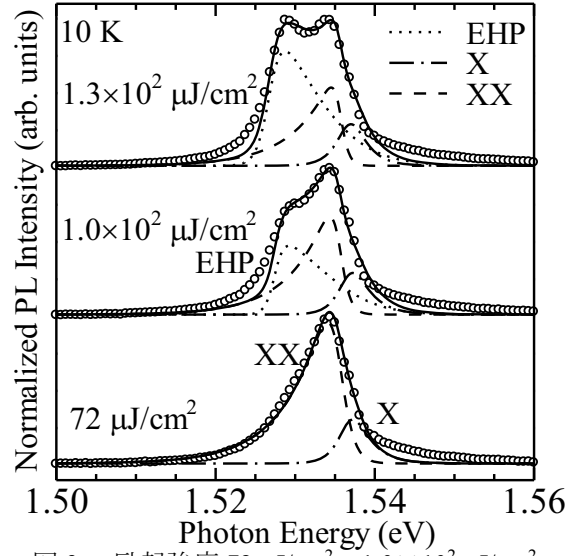


図3: 励起強度 $72 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $1.0 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $1.3 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ における発光スペクトルの形状解析結果。

ここで、 E'_g は再構成バンドギャップエネルギー、 m^* は Γ 点有効質量、 E_F は擬フェルミエネルギーを表し、添え字の e、h はそれぞれ電子、重い正孔を表す。また、 $\mu = 1/(1/m_e^* + 1/m_h^*)$ 、 $M = m_e^* + m_h^*$ で定義される。なお、電子の有効質量は $m_e^* = 0.0665m_0$ を用い[8]、重い正孔の面内有効質量 m_h は、Luttinger ハミルトニアンに基づいて $m_h = 0.1m_0$ と計算した[9]。励起子発光、励起子分子発光、電子・正孔プラズマ発光のフィッティング結果は、図中の一点鎖線、破線、点線で示され、その和を実線で示している。各励起強度におけるフィッティング結果は実験結果を良く再現している。

まず、励起強度 $72 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ の解析結果に注目すると、電子・正孔プラズマ発光バンドは存在せず、発光スペクトルは励起子分子発光と微弱な励起子発光のみからなる。このことは、キャリア密度がモット転移臨界密度に達していないことを示している。次に、励起強度 $1.0 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ の解析結果に注目すると、電子・正孔プラズマ発光が存在し、この励起強度がモット転移臨界密度に対応する。

ここで、励起強度 $1.0 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $1.3 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ において、励起子発光、励起子分子発光、電子・正孔プラズマ発光が同時に

観測されることについて考察する。多重量子井戸では、試料成長方向の励起強度の違いを考慮しなければならない。励起波長 532 nm における GaAs 層の吸収係数をバルク GaAs から見積もると、 $7.9 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ となる[10]。励起エネルギーは、AlAs のバンドギャップエネルギーより十分低いため、AlAs 層の吸収を無視すると、試料の底の井戸層における励起強度は、試料表面の井戸層における励起強度の 10%程度である。すなわち、励起強度 $1.0 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $1.3 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ において、試料成長方向の励起強度の空間分布が無視できず、モット転移臨界密度以上の井戸層とモット転移臨界密度以下の井戸層が共存することから、励起子発光、励起子分子発光、電子・正孔プラズマ発光が同時に観測されたと考えられる。

フィッティングにより得られたモット転移臨界密度は、 $n_M = 1.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ である。量子井戸構造におけるキャリア密度 n とバンドギャップ収縮量 $\Delta E_g = E'_g - E_g$ の関係は、下記の式で与えられる[5]。

$$\Delta E_g = -3.68 a_B^{*2/3} E_{b,X} n^{1/3} \quad (6)$$

ここで、 a_B^* は励起子有効ボーア半径、 $E_{b,X}$ は励起子束縛エネルギーを表す。GaAs(15.0 nm)/AlAs(15.0 nm)多重量子井戸構造では、量子モンテカルロ法[11]を用いた計算値 $a_B^* = 9.1 \text{ nm}$ 、 $E_{b,X} = 9.5 \text{ meV}$ を用いた。式(6)を用いて計算されたバンドギャップ収縮量は、 $\Delta E_{g,\text{theory}} = 18 \text{ meV}$ であり、フィッティングにより求められたバンドギャップ収縮量 $\Delta E_{g,\text{fit}} = 19 \text{ meV}$ と良く一致する。この結果から、励起強度 $1.0 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ におけるキャリア密度とバンドギャップ収縮量の関係は、理論的に説明できることが分かる。また、モット転移臨界密度を一般化するために、 $r_S = (\sqrt{\pi} m a_B^*)^{-1}$ で定義される規格化粒子間距離で表現すると、 $r_{S,M} = 1.6$ となる。電子・正孔プラズマのモット転移臨界密度における化学ポテンシャルは、発光形状解析から 1.537 eV と見積もられる。この値は、励起子分子エネルギーよりも 1 meV 高く、励起子エネルギーとほぼ同じである。

このことは、電子・正孔プラズマ（気相）が励起子分子を基準としていることを示している。

4. まとめ

GaAs(15.0 nm)/AlAs(15.0 nm)多重量子井戸構造を用いて、発光スペクトルの励起強度依存性を測定し、励起子発光、励起子分子発光、電子・正孔プラズマ発光を系統的に観測した。励起強度の増加に伴って、励起子分子発光が支配的になり、励起強度 $1.0 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ において、閾值的に電子・正孔プラズマ発光が出現した。このことは、励起子分子から電子・正孔プラズマへのモット転移が生じることを明らかにしている。閾値における発光形状解析から得られたモット転移臨界密度は $n_M = 1.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ であり、それに伴うバンドギャップ収縮量は、2次元電子・正孔プラズマに関するモデルに基づいて説明できることを示した。

参考文献

- [1] 総説として、H. Kalt, *Optical Properties of III-V semiconductors* (Springer, Berlin, 1996)
- [2] R. C. Miller, *et al.*, Phys. Rev. B **25**, 6545 (1982)
- [3] S. Adachi, *et al.*, Phys. Rev. B **55**, 1654 (1997)
- [4] L. Kappei, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 147403 (2005)
- [5] S. Schmitt-Rink, *et al.*, Solid State Commun. **52** 123 (1984)
- [6] M. Nakayama, *et al.*, Phys. Rev. B **51**, 7870 (1995)
- [7] H. Kalt and M. Rinker, Phys. Rev. B **45**, 1139 (1992)
- [8] D. F. Nelson, *et al.*, Phys. Rev. B **36**, 8063 (1987)
- [9] G. Bastard and J. A. Brum, IEEE J. Quantum Electron. **QE-22**, 1625 (1986)
- [10] D. E. Aspnes, *et al.*, J. Appl. Phys. **60**, 754 (1986)
- [11] T. Tsuchiya and S. Katayama, Solid State Electron. **42**, 1523 (1998)