

GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 単一量子井戸構造における自由励起子発光の立ち上がり時間に対する励起子-音響フォノン散乱効果

大野達也、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

Effects of exciton-acoustic-phonon scattering on photoluminescence rise times of free excitons in GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As single quantum wells

Tatsuya Ohno, Yoshiaki Furukawa, and Masaaki Nakayama

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

We have systematically investigated the photoluminescence (PL) dynamics in connection with the exciton relaxation process due to exciton-acoustic-phonon scattering under non-resonant and weak excitation conditions in GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As single quantum wells as functions of the GaAs-layer thickness from 3.6 to 12.0 nm and temperature from 30 to 50 K. We found that the reciprocal of the free exciton PL rise time is inversely proportional to the GaAs-layer thickness and that is proportional to temperature. This fact is consistent with a reported theoretical study of the exciton-acoustic-phonon scattering rate in the free exciton relaxation process in quantum wells. Consequently, it is conclusively verified that the PL rise rate is dominated by the exciton-acoustic-phonon scattering rate influenced by the quantum confinement effect.

1.はじめに

非共鳴励起条件での自由励起子の発光ダイナミクスは、(1)大きい波数ベクトル領域における励起子形成過程、(2)励起子-フォノン散乱による緩和過程、(3)発光による減衰過程の3つの過程によって一般的に決定される[1]。量子井戸、超格子、量子細線、量子ドットという低次元系半導体では、上記の3つの過程が量子閉じ込め効果によって大きな影響を受ける。量子井戸系の励起子の発光ダイナミクスに関しては、発光減衰過程については膨大な研究がこれまで行われてきたが、励起子緩和過程については限られた研究成果しか報告されていない[2-8]。Damenらは、励起子形成が20 ps以内で終わることを明らかにしており[3]、さらに、励起子-LOフォノン散乱は極めて高速(サブpsオーダー)であるために、自由励起子発光の立ち上がり時間を支配する要因は、励起子-音響フォノン散乱過程であ

る[3-8]。ThilagamとSinghは、変形ポテンシャル相互作用による励起子-音響フォノン相互作用の計算を行い、量子井戸系における励起子-音響フォノン散乱速度は、量子井戸層厚に反比例し、温度に比例するというを理論的に導出している[9]。しかしながら、これまでにその理論を系統的に検証した実験結果は報告されていない。

本研究では、GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 単一量子井戸構造を試料として、自由励起子発光の立ち上がり時間の量子井戸層厚依存性と温度依存性を系統的に調べた。その結果、上記のThilagamとSinghの理論が妥当なものであることが明らかとなった。

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(001)面GaAs基板上に結晶成長させた4つの異なる井戸層厚をもつGaAs(L nm)/Al_{0.3}Ga_{0.7}As(20 nm)単一量子井戸構造

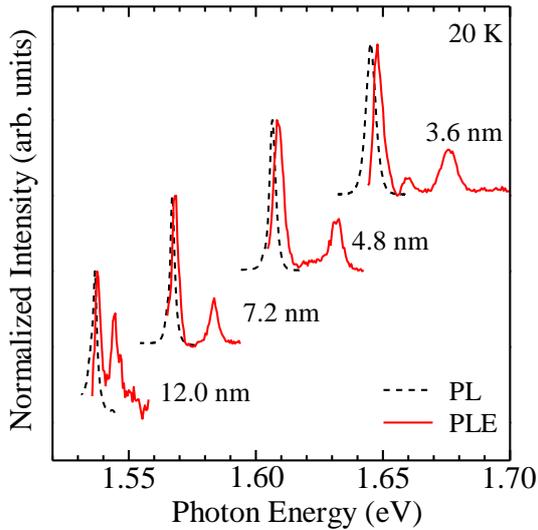


図 1. 20 K での各井戸層厚における発光スペクトル (破線) と発光励起スペクトル (実線)。

($L=3.6, 4.8, 7.2, 12.0$)を試料とした。光学特性に関しては、発光励起スペクトル、発光スペクトル、及び、発光ダイナミクスの測定を行った。発光励起スペクトルの励起光源には連続発振の波長可変 Ti:Sapphire レーザーを用い、検出には 32 cm シングル分光器にとりつけられた CCD 検出器を用いた。発光ダイナミクスの測定には、励起光源として、Ti:Sapphire パルスレーザー (繰り返し周波数: 76 MHz、パルス幅: 110 fs) を用い、励起中心波長は全ての井戸層で非共鳴励起となる 715 nm (1.734 eV)、また、励起密度は十分な弱励起条件となる 30 nJ/cm^2 とした。検出にはストリークカメラ (時間分解能 25 ps) を用いた。測定温度は、30 K、40 K、50 K に設定した。

3. 実験結果と考察

量子井戸構造における自由励起子の発光ダイナミクスの測定には、界面ラフネスの揺らぎによって生じる励起子の局在性を無視することができない。従って、はじめに、発光励起スペクトルと発光スペクトルの測定から見積もったストークスシフトの大きさにより、励起子の局在性を評価した。図 1 は、20 K における発光スペクトル及び発光励起スペクトルを示している。各スペク

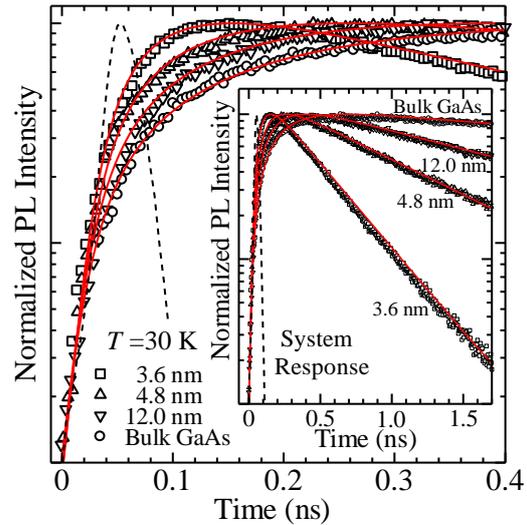


図 2 30 K における発光減衰プロファイルの井戸層厚依存性。□は 3.6 nm、△は 4.8 nm、▽は 12.0 nm、○は GaAs バルク結晶を表す。

トルは最大強度で規格化している。この実験結果より求められたストークスシフト量は、12.0 nm で 0.8 meV、7.2 nm で 0.9 meV、4.8 nm で 1.6 meV、3.6 nm で 2.5 meV と量子井戸層厚が薄くなるに従って、ストークスシフト量が大きくなる結果となった。これは、量子井戸層厚が薄くなるに従って、界面ラフネスによるランダムポテンシャルの効果を大きく受けるため、励起子の局在化が大きくなっていることを明確に反映している。発光ダイナミクスの測定温度 30 K 以上では、ストークスシフト量が熱エネルギー 2.6 meV より小さくなり、全ての井戸層において熱励起により非局在化し、自由励起子として考えることができる。従って、発光ダイナミクスの測定は、30 K 以上で行った。

図 2 は、30 K における発光減衰プロファイルの井戸層厚依存性の実験結果を示しており、□は 3.6 nm、△は 4.8 nm、▽は 12.0 nm、○は GaAs バルク結晶である。各発光減衰プロファイルは、それぞれの最大強度で規格化している。発光減衰プロファイルの形状解析では、(1)式で示される立ち上がり成分と減衰成分からなる指数関数 $I_{PL}(t)$ に、システム応答であるレーザープロファイル (破線) $I_{SYS}(t)$ を畳み込んだ(2)式を用いた。

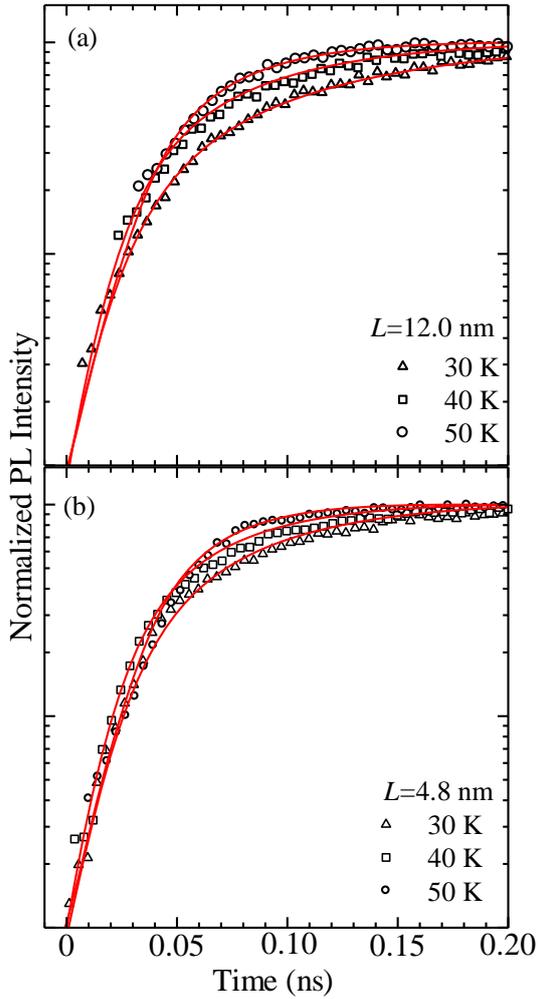


図3 井戸層厚(a)12.0 nmと(b)井戸層厚4.8 nmにおける発光減衰プロファイルの温度依存性。

$$I_{PL}(t) = -I_r \exp\left(-\frac{t}{\tau_r}\right) + I_d \exp\left(-\frac{t}{\tau_d}\right) \quad (1)$$

$$I_{obs}(t) = \int_0^\infty I_{sys}(\tau) I_{PL}(t-\tau) d\tau \quad (2)$$

ここで、 τ_r は発光立ち上がり時間 τ_d は発光寿命を表す。(2)式による形状解析結果は、図2の実線で示している。挿入図は、発光減衰時間領域での結果を示しており、この(2)式の形状解析が、発光の立ち上がりと減

衰を含む全ての時間領域で妥当であることが分かる。形状解析から、発光立ち上がり時間がGaAsバルク結晶では190 ps、量子井戸層厚12.0 nmでは140 ps、7.2 nmでは110 ps、4.8 nmでは92 ps、3.6 nmでは53 psとなり、層厚が薄くなるに従って、発光立ち上がり時間が短くなる結果が得られた。

図3(a)は、井戸層厚12.0 nmの発光減衰プロファイルの温度依存性を示しており、 Δ は30 K、 \square は40 K、 \circ は50 Kである。各発光減衰プロファイルは最大強度で規格化している。形状解析には(2)式を用い、発光立ち上がり時間が、30 Kでは140 ps、40 Kでは80 ps、50 Kでは46 psとなり、温度上昇に伴い発光立ち上がり時間が短くなる結果が得られた。図3(b)は井戸層厚4.8 nmの発光減衰プロファイルであり、発光立ち上がり時間が、30 Kでは92 ps、40 Kでは60 ps、50 Kでは36 psとなり、井戸層厚12.0 nmと同様の温度依存性が得られている。

図4は、30 K(\blacktriangle)、40 K(\blacksquare)、50 K(\bullet)における発光立ち上がり速度の井戸層厚依存性を示しており、全ての温度において井戸層厚の逆数($1/L$)に対して線形に増大する結果が得られている。

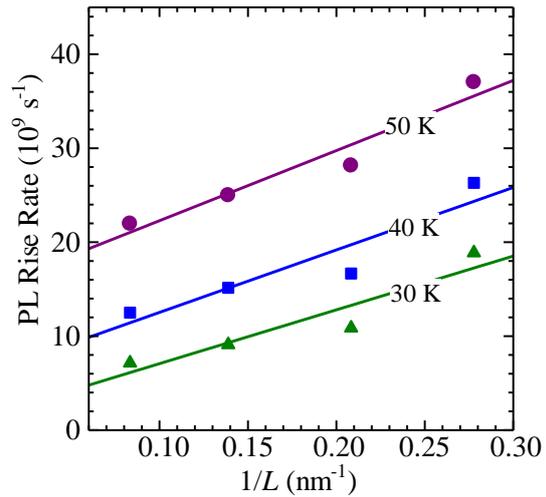


図4 各温度[30 K(\blacktriangle)、40 K(\blacksquare)、50 K(\bullet)]における発光立ち上がり速度の井戸層厚依存性。実線は(4)式でのフィッティング結果を表す。

図 4 の実験結果について、Thilagam と Singh による励起子—音響フォノン散乱確率の理論に基づいて考察する。励起子—音響フォノン散乱速度は(3)式で示される[9]。

$$W = \frac{3k_B T M^*}{2\hbar^3 \rho u^2 L} [D_c - D_v]^2 \quad (3)$$

ここで、 D_c と D_v は伝導帯と価電子帯の変形ポテンシャル、 M^* は励起子の重心有効質量、 ρ は質量密度、 u は音速を表し、これらを定数と仮定する。これにより、励起子—音響フォノン散乱速度は井戸層厚の逆数に対して比例関係となり(4)式が得られる。

$$W = \beta \frac{1}{L} \quad (4)$$

図 4 において、各温度の実験結果を(4)式でフィッティングした結果を実線で示しており、実験結果と良く一致していることが分かる。これは、励起子—音響フォノン散乱速度が量子閉じ込め効果により大きくなることを意味している。

図 5 は、フィッティングにより得られた(4)式の比例係数 β の温度依存性を示している。(4)式に基づいて最小 2 乗線形フィッティングを行うと、図 5 の実線になり、実験結果と良く一致した。これは、励起子—音響フォノン散乱速度が、温度に対して比例関係であることを示している。以上の発光

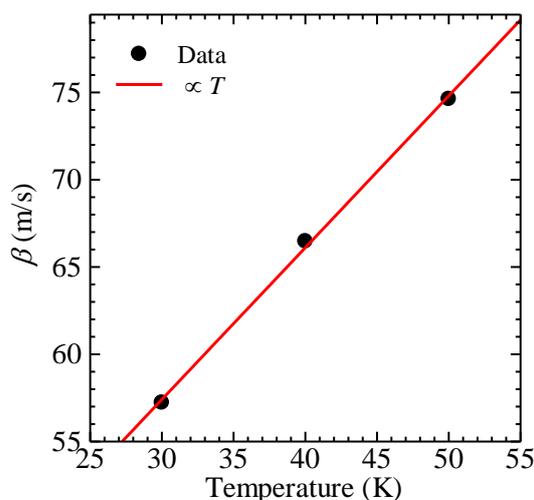


図 5 比例係数 β の温度依存性。実線は最小 2 乗線形フィッティングを表す。

立ち上がり時間の量子井戸層厚依存性と温度依存性の解析結果は、Thilagam と Singh による励起子—音響フォノン散乱確率の理論の妥当性を系統的に示している。

まとめ

GaAs(L nm)/Al_{0.3}Ga_{0.7}As(20 nm)量子井戸構造(L=3.6, 4.8, 7.2, 12.0)を試料として、発光ダイナミクスの観点から、励起子—音響フォノン散乱速度に関する系統的な研究(量子井戸層厚依存性と温度依存性)を行った。励起子—音響フォノン散乱速度を反映する発光立ち上がり速度は、量子井戸層厚に反比例し、温度に比例する明確な結果が得られた。このような系統的な結果は、これまで報告されておらず、Thilagam と Singh による励起子—音響フォノン散乱確率の理論の妥当性を示している。

参考文献

- [1] 総説として、J. Shah, *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductors Nanostructure* (Springer, Berlin, 1996)
- [2] J. Kusano, *et al.*, Phys. Rev. B **40**, 1685 (1989)
- [3] T. C. Damen, *et al.*, Phys. Rev. B **42**, 7434 (1990)
- [4] Z. L. Yuan, *et al.*, J. Appl. Phys. **79**, 424 (1996)
- [5] C. Piermarocchi, *et al.*, Phys. Rev. B **53**, 15834 (1996)
- [6] J. Kovač, *et al.*, Phys. Rev. B **54**, 13440 (1996)
- [7] M. Gulia, *et al.*, Phys. Rev. B **55**, R16049 (1997)
- [8] M. Umlauff, *et al.*, Phys. Rev. B **57**, 1390 (1998)
- [9] A. Thilagam and J. Singh, Phys. Rev. B **48**, 4636 (1993)