

GaAs/AlAs タイプ II 超格子における電子・正孔液滴の形成

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

Formation of electron-hole droplets 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 photoluminescence (PL) properties of a $(\text{GaAs})_{12}/(\text{AlAs})_{12}$ type-II superlattice at 10 K from the viewpoint of the formation of electron-hole droplets (EHDs). It was found that a broad PL band appears with a threshold-like nature in the energy region lower than the biexciton-PL band with an increase in excitation-power density. This change suggests the occurrence of a Mott transition. The line shape of the EHD-PL band hardly depends on the excitation-power densities, which is one of the typical properties of EHDs. From the line-shape analysis of the PL spectra above the Mott-transition density, we estimated the stability energy of the EHD to be ~ 2.9 meV relative to the biexciton energy. Furthermore, we observed the temporal change from electron-hole plasma to the EHD with the use of time-resolved PL spectroscopy.

1. はじめに

量子井戸構造や超格子における電子・正孔液滴の安定性は、高密度励起状態における電子と正孔の振る舞いを決定づける上で、重要な問題であり、今なお多くの議論がされている。また、バルク結晶では、電子・正孔液滴の形成は Si や Ge などの間接遷移型半導体において多く報告されている。その最大の理由は、間接遷移に伴う長い励起子寿命によるものであり、励起子やキャリアの冷却効率が優れている点にある。

GaAs/AlAs 量子井戸構造や超格子では、伝導帯の Γ 点における井戸層は GaAs 層、 X 点における井戸層は AlAs 層となり、それぞれ量子閉じ込め効果によりサブバンドが形成される。このことから、伝導帯の電子の最低エネルギー状態は Γ サブバンドと X サブバンドの 2 通りが存在する。前者の場合、光励起された電子と正孔は共に GaAs 層に存在し、タイプ I 構造となる。後者の場合、電子は AlAs 層の X サブバンド、正孔は GaAs 層の Γ サブバンドとなるため、電子と正孔は実空間と運動量空間の両方において

分離されたタイプ II 構造となる。また、伝導帯の X サブバンドが Γ サブバンドより低いエネルギーになることを Γ - X サブバンド交差と呼び、 $(\text{GaAs})_m/(\text{AlAs})_m$ 超格子では $m=13$ モノレイヤーに対応する[1]。ここで 1 モノレイヤーは 0.283nm である。タイプ II 超格子では、光学遷移は、実空間と運動量空間共に間接遷移であることからタイプ II 励起子は、 μs オーダーの長い寿命を持つ[1]。この長い励起子寿命は、励起子やキャリアの冷却の観点から電子・正孔液滴の形成に有利である。しかしながら、これまで GaAs/AlAs タイプ II 超格子における電子・正孔液滴形成に関する明確な研究成果は報告されていない。

本研究では、GaAs/AlAs タイプ II 超格子を対象として、電子・正孔液滴の形成の観点から発光スペクトルの励起強度依存性を詳細に測定した。その結果、タイプ II 励起子発光の低エネルギー側に閾値性を有する電子・正孔液滴発光を観測した。観測された電子・正孔液滴発光に対して形状解析を行い、安定化エネルギーが存在することを

示した。また、時間分解発光スペクトルの測定結果から、電子・正孔プラズマから電子・正孔液滴への転移過程を見いだした。

2. 試料構造と実験方法

本研究では、(001)面 GaAs 基板上に分子線エピタキシー法により作製した $(\text{GaAs})_{12}/(\text{AlAs})_{12}$ 超格子 (80 周期) を用いた。

光学測定では、励起光源として Ti:Sapphire レーザーを用い、励起エネルギーを Γ サブバンド共鳴である 1.797eV に固定した。また、高密度励起の際に重要となる励起光の空間強度分布は、ビームシェイパーを用いることで均一化した。定常発光スペクトルの測定には、レーザーを cw モードで用い、 32cm シングル分光器に取り付けられた CCD 検出器 (波長分解能: 0.15nm) で検出した。時間分解発光スペクトルの測定には、レーザーをパルスモード (パルス幅: 110fs) で用い、パルスピッカーにより繰り返し周波数を 380kHz とした。検出には 25cm シングル分光器に取り付けられたストリークカメラを用いた (波長分解能: 0.30nm)。なお、測定系の時間分解能は 100ps である。測定はすべて試料温度 10K の下で行った。

3. 実験結果と考察

図 1(a)は、定常発光スペクトルの励起強度依存性を示している。最大励起強度は $P_0 \sim 1\text{kW/cm}^2$ であり、各スペクトルは最大強度で規格化している。低密度励起条件である $1 \times 10^{-6}P_0$ では、X で示されるタイプ II 励起子発光が主体的に観測される。このタイプ II 励起子発光寿命は以前の研究成果から、 μs オーダーであることが確かめられている[2]。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 M で示される発光バンドが主体的になる。これは、低エネルギー側に裾を引く逆ボルツマン形状を示すことから、励起子分子発光に帰属できる。励起強度 $0.01P_0$ において、励起子分子発光の低エネルギー側に EHD で示される高密度

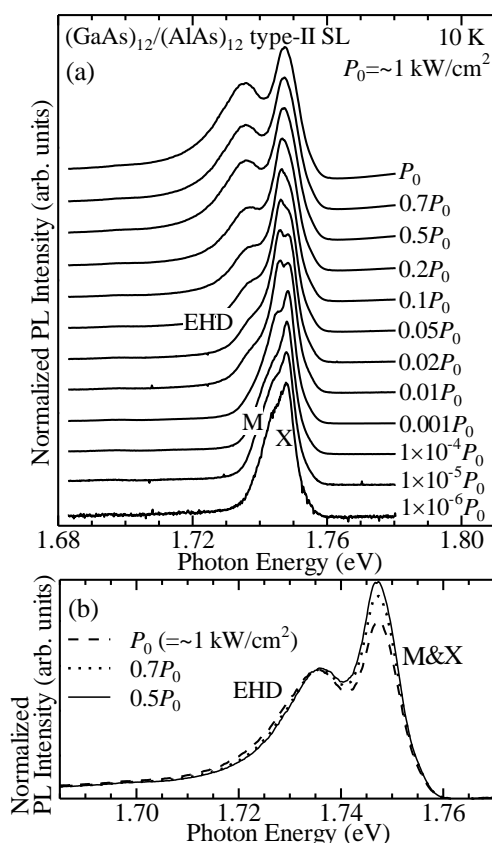


図 1: (a) $(\text{GaAs})_{12}/(\text{AlAs})_{12}$ タイプ II 超格子における定常発光スペクトルの励起強度依存性。(b) 励起強度 $0.5P_0$ 、 $0.7P_0$ 、 P_0 における発光スペクトル。

励起状態特有の発光バンドが閾値的に出現する。この閾値特性は、モット転移が生じていることを示唆している。注目すべきは、モット転移後も励起子発光と励起子分子発光が観測されることである。すなわち、励起子系と高密度キャリア系が同一空間に存在することを示しており、高密度キャリア系の周りを励起子系が取り巻くという電子・正孔液滴の特徴を反映している。

図 1(b)は、励起強度 $0.5P_0$ 、 $0.7P_0$ 、 P_0 における発光スペクトルの励起強度依存性を示している。各発光スペクトルは EHD 発光バンドの最大強度でスケールしている。この結果から、EHD 発光バンドの形状が励起強度にほとんど依存しないことがわかる。これは、EHD 発光バンドの有効温度とキャリア密度が励起強度に依らず、一定であることを示している。すなわち、励起子、励

起子分子、及び電子・正孔液滴は準熱平衡状態に達している。以上のことは、EHD 発光バンドが電子・正孔液滴に起因することを明確に示している。

続いて、電子・正孔液滴のパラメーターを発光スペクトルから求めるために、形状解析を行った。電子・正孔液滴発光の形状解析には以下の式で表される状態密度の乱れ Γ を加味した二次元状態密度を用いた。

$$D_i(E_i) = [m_i^* / (\pi \hbar^2)] [1 + \exp(-E_i / \Gamma_i)]^{-1} \quad (1)$$

ここで、添え字 i は e, h を表す。 m_e^* は AlAs 層における X 点電子の面内有効質量、 m_h^* は GaAs 層における Γ 点重い正孔の面内有効質量を表す。 m_h^* の値は、Luttinger パラメーター γ_1, γ_2 を用いて $m_h^* = m_0^* / (\gamma_1 + \gamma_2)$ と表される[3]。ここで GaAs において $\gamma_1 = 6.8, \gamma_2 = 1.9$ であるから[4]、 $m_h^* = 0.11 m_0^*$ である。また、文献[5]より、 $m_e^* = 0.19 m_0^*$ である。電子・正孔液滴の形状解析は、間接遷移型の電子・正孔プラズマのモデルを用いて（運動量保存則を無視する）

$$I_{\text{EHD}}(\hbar\omega) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} D_e(E_e) D_h(E_h) \times f_e(E_e, E_{F,e}, T_{\text{eff}}) f_h(E_h, E_{F,h}, T_{\text{eff}}) dE_e dE_h \quad (2)$$

と表される[6]。ここで、 f_i はフェルミ分布関数、 $E_{F,i}$ は擬フェルミエネルギー、 T_{eff} は有効温度を表す。また、エネルギー保存則より $\hbar\omega = E_g' + E_e + E_h$ を満たし、 E_g' は再構成バンドギャップエネルギーである。励起子分子発光の形状解析には、以下の式で示される状態密度の乱れ Γ_M を考慮した逆ボルツマン関数を用いた[2]。

$$I_M(\hbar\omega) \propto \frac{\exp[-(E_X - E_{b,M} - \hbar\omega) / (k_B T_{\text{eff}})]}{1 + \exp[-(E_X - E_{b,M} - \hbar\omega) / \Gamma_M]} \quad (3)$$

ここで、 E_X は励起子エネルギー、 $E_{b,M}$ は励起子分子束縛エネルギーを表す。なお、励起子系と電子・正孔液滴は準熱平衡状態であるため、励起子分子と電子・正孔液滴の有効温度は等しいと仮定した。励起子発光の形状解析には、ガウス関数を用いた。

図2は、励起強度 P_0 における発光スペク

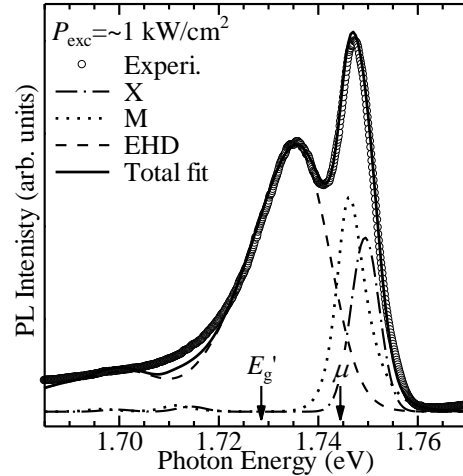


図2: 励起強度 P_0 における発光スペクトルの形状解析結果。

トルの形状解析結果を示している。形状解析には GaAs と AlAs の LO フォノンサイドバンドを考慮した。励起子発光と励起子分子発光におけるゼロフォノンバンドと LO フォノンサイドバンドの強度比は、モット転移閾値より低い励起強度における発光スペクトルの強度比を用いた。電子・正孔液滴における強度比は、LO フォノンと電子・正孔プラズマの相互作用に多体効果が影響するため、フィッティングパラメーターとして取り扱った。図2において、一点鎖線は励起子、点線は励起子分子、破線は電子・正孔液滴の発光形状解析結果を示しており、その合計を実線で示している。求められたフィッティングパラメーターは、 $E_g' = 1.7280$ eV、 $E_{F,e} = 6.0$ meV、 $E_{F,h} = 10.6$ meV、 $\Gamma_e = 2.3$ meV、 $\Gamma_h = 6.3$ meV、 $T_{\text{eff}} = 21$ K、 $E_{b,M} = 3.8$ meV、 $\Gamma_M = 1.2$ meV、 $E_X = 1.7494$ eV である。電子・正孔液滴の化学ポテンシャルは $\mu = E_g' + E_{F,e} + E_{F,h}$ で与えられ、1.7446 eV と求められる。また、フィッティングパラメーターから計算されるキャリア密度は、 $4.9 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ である。ここで、励起子分子を基準とした電子・正孔液滴の安定化エネルギーは、 $\phi = E_M / 2 - \mu = E_X - E_{b,M} / 2 - \mu$ と表され、2.9 meV と見積もられる。求められた安定化エネルギーは、熱エネルギー $k_B T_{\text{eff}} = 1.8$ meV より十分に大きいので、電子・正孔液滴が安定に

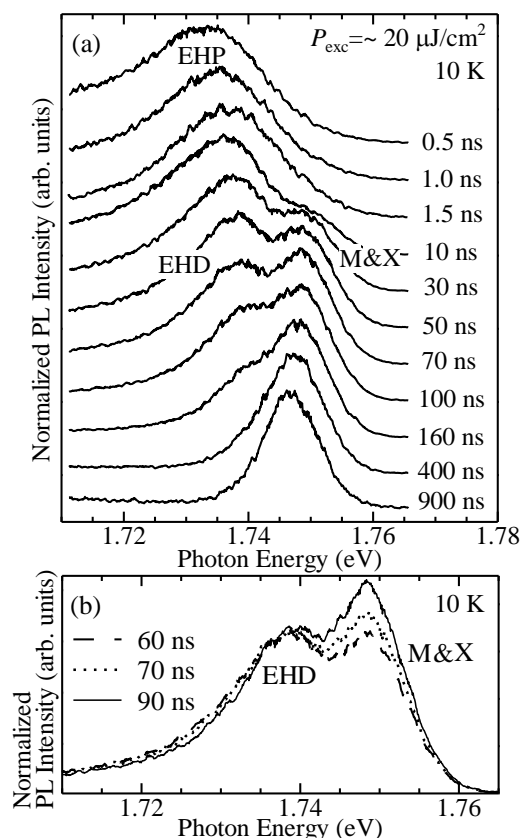


図3: (a) (GaAs)₁₂/(AlAs)₁₂タイプII超格子における時間分解発光スペクトル。(b) 60ns、70ns、90nsにおける時間分解発光スペクトル。

形成されていると結論できる。

最後に、時間分解発光スペクトルの測定結果について述べる。図3(a)は、励起強度 $P_{exc} \approx 20 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ における時間分解発光スペクトルを示している。各発光スペクトルは最大強度で規格化している。0.5ns から 1.5ns のスペクトルに注目すると、ブロードな発光バンドのみが観測される。注目すべきは、励起子と励起子分子発光が観測されないことであり、ブロードな発光バンドが電子・正孔プラズマ（気相）に起因することを示している。10ns 以降のスペクトルに注目すると、電子・正孔プラズマ発光バンドの高エネルギー側に励起子と励起子分子発光が徐々に現れる。尚、スペクトル分解能の問題で、励起子と励起子分子の発光バンドが重なっている。時間経過に伴って、有効温度の減少を反映して電子・正孔プラズマ発

光がシャープニングする。図3(b)は、60ns、70ns、90ns における時間分解発光スペクトルを表しており、それぞれ発光バンドの最大強度で規格化している。この結果から、時間が経過した、言い換えれば、十分に冷却された EHD バンドの発光形状は時間に依存しないことが分かる。すなわち、電子・正孔液滴が安定的に形成されている。また、400ns 以降では、キャリア密度が低くなり、励起子系発光のみが観測される。以上の結果は、電子・正孔プラズマから電子・正孔液滴への動的転移過程を実証するものである。

4. まとめ

本研究では、(GaAs)₁₂/(AlAs)₁₂ タイプ II 超格子を対象として、高密度励起条件下の発光特性を詳細に調べた。その結果、閾値性を有する電子・正孔液滴発光バンドを観測した。閾値以上における発光スペクトルの形状解析から、励起子分子を基準とした電子・正孔液滴の安定化エネルギーは 2.9meV であると見積もられた。この値は熱エネルギー 1.8meV と比べて十分に大きく、電子・正孔液滴が安定に形成されていることを示している。さらに、発光ダイナミクスの測定から、電子・正孔プラズマから電子・正孔液滴への動的転移過程を見いだした。

参考文献

- [1] M. Nakayama, *J. Lumin.* **87-89**, 15 (2000).
- [2] M. Nakayama, K. Suyama, and H. Nishimura, *Phys. Rev. B* **51**, 7870 (1995).
- [3] C. Weisbush, in *Semiconductors and Semimetals*, ed. R. Dingle (Academic Press, San Diego, CA, 1987) Vol. 24, p. 1.
- [4] B. V. Shanabrook, O. J. Glembocki, D. A. Broido, and W. I. Wang, *Phys. Rev. B* **39**, 3411 (1989).
- [5] S. Adachi, *J. Appl. Phys.* **58**, R1 (1985).
- [6] 総説として, H. Kalt, *Optical properties of III-V semiconductors* (Springer, Berlin, 1995) p. 41.