

GaAs/AlAs 多重量子井戸構造における 励起子—電子非弾性散乱による発光特性

中西沙絵佳、古川喜彬、中山正昭
大阪市立大学大学院工学研究科

Photoluminescence from exciton-electron inelastic scattering in a GaAs/AlAs multiple-quantum-well structure

Saeka Nakanishi, Yoshiaki Furukawa, and Masaaki Nakayama

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

We have investigated the characteristics of photoluminescence (PL) from exciton-electron inelastic scattering in a GaAs (5.1 nm)/AlAs (5.1 nm) multiple-quantum-well structure. The excitation power dependence of PL spectra was measured in a wide temperature region from 10 to 285K. We detected a sharp PL band which appears with a threshold-like nature at each temperature. In a low temperature region below ~ 80 K, the energy spacing between the sharp PL band and heavy-hole exciton almost agrees with the exciton binding energy. This indicates that the sharp PL band originates from exciton-exciton inelastic scattering. In contrast, in a high temperature region above ~ 90 K, the energy spacing continuously increases with an increase in temperature. The temperature dependence of the energy spacing is explained by a theoretical model for exciton-electron inelastic scattering considering energy and momentum conservation in the scattering process. Thus, it is concluded that the mechanism of the sharp PL band related to exciton inelastic scattering changes with temperature. In addition, we confirmed that the exciton-electron scattering produces an optical gain using a variable stripe length method for PL measurements.

1. はじめに

励起子非弾性散乱は、励起子束縛エネルギーが大きいワイドギャップ半導体における高密度励起条件特有の光学現象の一つとして知られている[1]。その主な発光機構として、励起子—励起子散乱と励起子—電子散乱が挙げられる。励起子—励起子散乱発光とは、第一量子状態 ($n=1$) に存在する二つの励起子が衝突することにより、一方の励起子は高次 ($n \geq 2$) の状態へ、他方は運動量保存則とエネルギー保存則を保って、光子分枝へ散乱され発光する現象である。この発光の特徴は、 $n=1$ 励起子エネルギーより、 $n=1$ 状態と散乱先である高次の状態のエネルギー差だけ低エネルギー側で発光することである。高温領域において、励起子は熱解離するため、励起子—電子散乱の発現が期待される。励起子—電子散乱発光とは、伝導帯の電子と $n=1$ の励起子が衝突することにより、電子はホットキャリアになり、励起子は光子分枝へ散乱され発光する現象である。これらの励

起子非弾性散乱は誘導放出を生じることから、CdS[2, 3]や ZnO[4]、GaN[5, 6, 7]を対象として盛んに研究されている。

一方、GaAs バルク結晶では、励起子束縛エネルギーが 4.2 meV と小さいために、励起子非弾性散乱は全く観測されない。しかし、2009 年、Nakayama らは、GaAs/AlAs 多重量子井戸構造において、量子閉じ込め効果による励起子束縛エネルギーの増大に起因して、励起子—励起子散乱が発現することを発光スペクトルの観点から明らかにした[8]。さらに、発光ダイナミクスの観点から、GaAs/AlAs 多重量子井戸構造における励起子—励起子散乱発光のポラリトン特性を明らかにした[9]。しかし、GaAs/AlAs 量子井戸構造における、励起子—電子散乱については未だ報告されていない。

以上を踏まえて、我々は GaAs/AlAs 多重量子井戸構造を試料として、高密度励起条件下における発光スペクトルの温度依存性を系統的に測定し、励起子

非弾性散乱発光の温度依存性を調べた。その結果、10K から 70K の低温領域では励起子—励起子散乱、170K から 285K の高温領域では励起子—電子散乱による発光が観測された。さらに、variable stripe length (VSL) 法[10]により、室温における励起子—電子散乱による光学利得の存在を実験的に明らかにした。

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された GaAs (5.1 nm)/AlAs (5.1 nm)の多重量子井戸構造 (60 周期) を用いた。

発光スペクトル (PL) の測定には、励起光源として YAG レーザーの第 2 高調波 (532 nm、パルス幅 1 ns、繰り返し周波数 10 kHz) を用いた。発光は 32 cm シングル分光器に取り付けられた CCD 検出器 (波長分解能 : 0.15 nm) により検出した。

VSL 法では、PL 測定と同様の光源を用い、励起光をシリンダリカルレンズによりストライプ状に整形した。試料端面からの発光は光ファイバにより集光された。

3. 実験結果と考察

図 1(a)は、10K における発光スペクトルの励起密度依存性を示している。最低励起密度 ($0.20I_0$) において、励起子発光 X が観測される。励起密度を増加させると、X バンドの低エネルギー側に、 $0.35I_0$ において閾值的に鋭い発光バンド P が出現する。破線は発光励起 (PLE) 分光法により見積もられた励起子エネルギー ($E_x=1.670\text{eV}$) を示している。励起子—励起子散乱発光エネルギーは[4]散乱先の量子数を n として以下の式で与えられる。

$$\hbar\omega_p = E_x - \left(1 - \frac{1}{n^2}\right)E_b - 3\sigma k_B T_{\text{eff}} \quad (1)$$

ここで、 σ は 1 以下の定数、 T_{eff} は励起子系の有効温度である。試料の励起子束縛エネルギーは 16.5 meV であり [11]、点線は励起子エネルギーより $3/4E_b$ (12.4 meV) だけ低いエネルギーを示している。P バンドは点線のエネルギーにおいて出現することから、 $n=2$ 分枝への励起子—励起子散乱発光に起因す

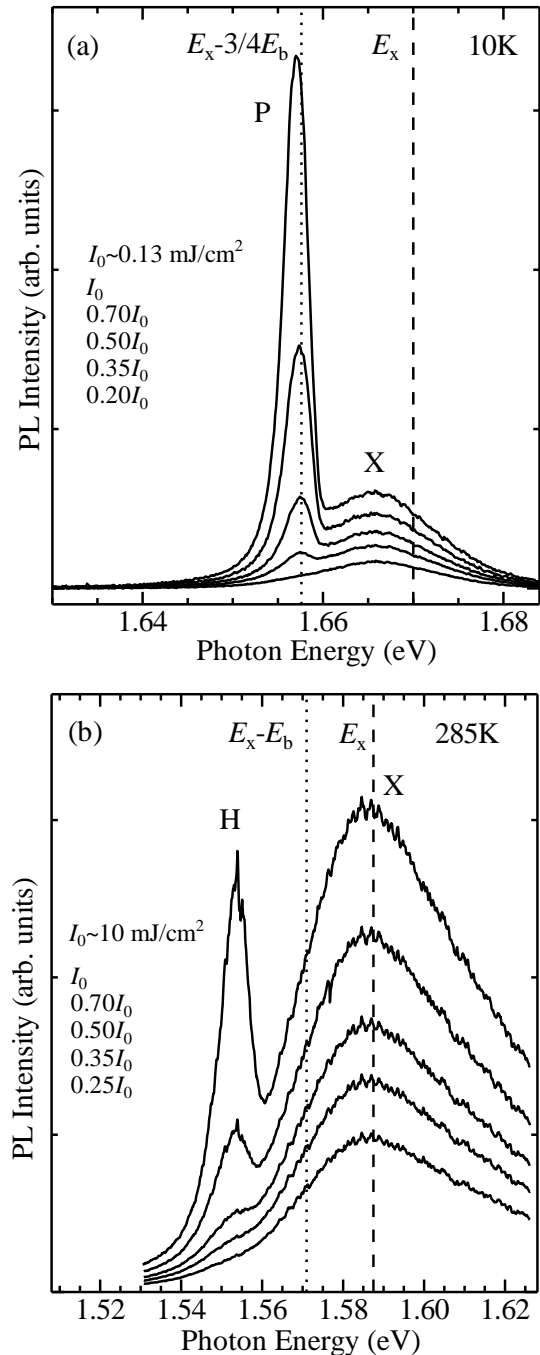


図 1 : GaAs (5.1 nm)/AlAs (5.1 nm) 多重量子井戸構造における発光スペクトルの励起密度依存性。測定温度は(a)10K と(b)285K。

ると結論できる。以下、この発光を散乱先の量子数を付記して P_2 発光と呼ぶ。

図 1(b)は、285K における発光スペクトルの励起密度依存性を示している。10 K と同様に、最低励起密度において、励起子発光 X が主体的であり、 $0.50I_0$ において閾值的に鋭い発光バンド H が出現する。破

線は 285K における PLE スペクトルから見積もられた励起子エネルギー、点線は励起子エネルギーより励起子束縛エネルギーだけ低いエネルギーを示している。H バンドは点線より低エネルギー側に出現し、このことは H バンドの起源が励起子—励起子散乱ではないことを示唆している。

図 2 は励起子エネルギーを基準とした閾値近傍における鋭い発光バンドのピークエネルギーを温度に対してプロットした結果を示している。80K 以下の低温領域では、鋭い発光バンドは励起子エネルギーの $3/4E_b$ だけ低エネルギー側 (破線) に出現することから、 P_2 発光に起因する。それに対し、90K 以上の高温領域では、温度上昇に伴い低エネルギー側へシフトする振る舞いを示す。励起子—電子散乱過程では、運動量保存則とエネルギー保存則から発光エネルギーは次式で与えられる。[4]

$$\hbar\omega_H = E_x - \left(\frac{m_{h\parallel}^*}{m_{e\parallel}^*} + 2\sqrt{\frac{M_{x\parallel}^*}{m_{e\parallel}^*}} \right) \frac{\hbar^2 \mathbf{K}_1^2}{2M_x^*} \quad (2)$$

ここで、 \mathbf{K}_1 は始状態の励起子波数ベクトル、 $m_{e\parallel}^*$ と $m_{h\parallel}^*$ は面内の電子と正孔有効質量、 $M_{x\parallel}^*$ は面内の励起子重心有効質量である。面内有効質量は、 $m_{h\parallel}^* = 0.11m_0$ [12, 13]、 $m_{e\parallel}^* = 0.0665m_0$ [14] を用いた。なお、始状態の励起子と電子は熱平衡状態であると仮定した。式(2) に示す発光エネルギーは励起子運動エネルギー項を含むことから、発光形状は励起子密度分布を反映する。励起子密度分布は量子井戸構造における状態密度の乱れ Γ を考慮した 2 次元状態密度[15]を用いて次式で与えられる。

$$I_H \propto \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{E_K}{\Gamma}\right)} \exp\left(-\frac{E_K}{k_B T}\right) \quad (3)$$

従って、励起子—電子散乱発光のピークエネルギーは、 $\partial I_H / \partial E_K = 0$ から、次式で与えられる。

$$\hbar\omega_{H,\text{peak}} = E_x(T) - \left(\frac{m_{h\parallel}^*}{m_{e\parallel}^*} + 2\sqrt{\frac{M_{x\parallel}^*}{m_{e\parallel}^*}} \right) \Gamma \ln\left(\frac{k_B T}{\Gamma} - 1\right) \quad (4)$$

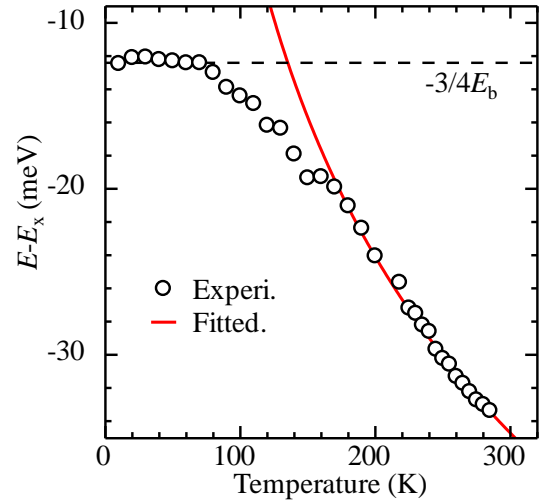


図 2：励起子エネルギー(E_x)を基準とした閾値近傍における鋭い発光バンドのピークエネルギーの温度依存性。

図 2 の実線は、式(4)に示す励起子—電子散乱発光のピークエネルギーを用いたフィッティング結果であり、170K から 285K までの実験結果を良く再現している。フィッティングパラメーターは Γ のみであり、 $\Gamma = 4.2 \text{ meV}$ である。なお、 Γ の値は 10K における励起子発光のバンド半幅に近い値である。以上の結果から、170K 以上の高温領域で観測された閾値特性有する鋭い発光バンドは励起子—電子散乱に帰属される。90K から 160K の中間温度領域では、励起子—励起子散乱と励起子—電子散乱が競合するため、フィッティング結果から外れると考えられる。

最後に、VSL 法により、励起子—電子散乱による室温での光学利得を評価した。VSL 法とは、試料端面からの発光スペクトルのストライプ長依存性を測定する方法であり、光学利得を実験的に求めることができる。なお、VSL 法により求められる光学利得は、光路の光学損失を含んだものである。あるエネルギーにおいて光学利得が存在すれば、式(5)に示すように、試料端面から放出される発光強度はストライプ長に対して指数関数的な増大を示す[10]。

$$I(\hbar\omega) = \frac{I_s(\hbar\omega) \{ \exp[g(\hbar\omega)L] - 1 \}}{g(\hbar\omega)} \quad (5)$$

ここで、 I_s は自然放出光強度、 g は光学利得、 L はストライプ長である。

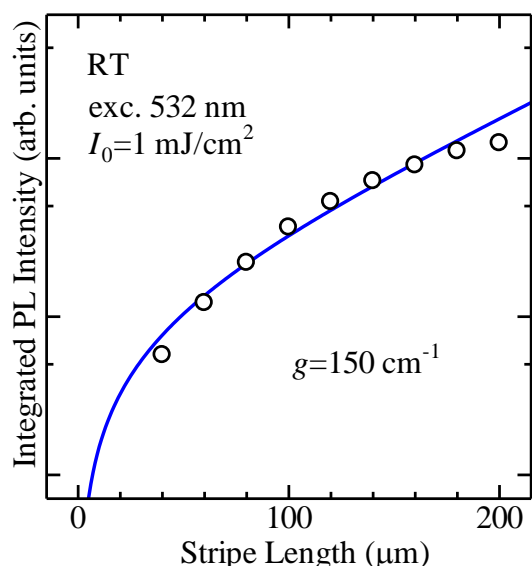


図3:室温における励起子—電子散乱発光の積分強度のストライプ長依存性。実線は式(5)に基づくフィッティング結果を示している。

図3は、GaAs (5.1 nm)/AlAs (5.1 nm)多重量子井戸構造における励起子—電子散乱発光の積分強度をストライプ長に対して片対数プロットした結果を示している。励起密度は 1 mJ/cm^2 とした。実線は式(5)を用いたフィッティング結果であり、光学利得は 150 cm^{-1} と見積もられた。以上の結果は、励起子—電子散乱による室温での光学利得の発生を明らかにしている。

4. まとめ

GaAs(5.1 nm)/AlAs(5.1 nm)多重量子井戸構造を試料として、高密度励起条件下における発光スペクトルの温度依存性を系統的に測定した。10K から 285K までの全ての温度において、閾値特性を有する鋭い発光バンドが観測された。励起子エネルギーを基準とした閾値近傍における鋭い発光バンドのピークエネルギーの温度依存性を解析した結果、鋭い発光バンドは 80K 以下の低温で励起子—励起子散乱、170K 以上の高温で励起子—電子散乱に起因することを明らかにした。さらに variable stripe length 法を用いて、励起子—電子散乱による室温での光学利得の発生を明らかにした。

参考文献

- [1] For a review, C. Klingshirn and H. Haug, Phys. Rep. **70**, 315 (1981).
- [2] J. M. Hvam, Phys. Rev. B **4**, 4459 (1971).
- [3] T. Fischer and J. Bille, J. Appl. Phys. **45**, 3937 (1974).
- [4] C. Klingshirn, Phys. Status Solidi B **71**, 547 (1975).
- [5] I. M. Catalano, A. Cingolani, M. Ferrara, M. Lugará, and A. Minafra, Solid State Commun. **25**, 349 (1978).
- [6] K. Kazlauskas, G. Tamulaitis, A. Zukauskas, T. Suski, P. Perlin, M. Leszczynski, P. Prystawko, and I. Grzegory, Phys. Rev. B **69**, 245316 (2004).
- [7] M. Nakayama, H. Tanaka, M. Ando, and T. Uemura, Appl. Phys. Lett. **89**, 031909 (2006).
- [8] M. Nakayama, T. Hirao, and T. Hasegawa, J. Appl. Phys. **105**, 123525 (2009).
- [9] Y. Furukawa, H. Takeuchi, and M. Nakayama, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 054709 (2014).
- [10] K. L. Shaklee, R. F. Leheny, and R. E. Nahory, Phys. Rev. Lett. **26**, 888 (1971).
- [11] L. C. Andreani and A. Pasquarello, Phys. Rev. B **42**, 8928 (1990).
- [12] C. Weisbuch, Semiconductors and Semimetals, ed. R. Dingle (Academic Press, San Diego, 1987) Vol. 24, p. 1.
- [13] B. V. Shanabrook, O. J. Glembocki, D. A. Broido, and W. I. Wang, Phys. Rev. B **39**, 3411 (1989)
- [14] D. F. Nelson, R.C. Miller, C. W. Tu, and S. K. Sqtz, Phys. Rev. B **36**, 8063 (1987)
- [15] R. Cingolani, Y. Chen, and K. Ploog, Phys. Rev. B **38**, 13478 (1988).