

GaAs/AlAs 超格子における励起子-励起子散乱発光の 時間・空間分解特性

矢萩拓、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

Time- and spatially-resolved properties of photoluminescence from exciton-exciton scattering in GaAs/AlAs superlattices

Taku Yahagi and Masaaki Nakayama

*Department of Applied Physics and Electronics, Graduate School of Engineering,
Osaka City University*

We have investigated the time- and spatially-resolved properties of photoluminescence (PL) due to exciton-exciton scattering, the so-called P emission, at 10 K in GaAs/AlAs superlattices and a multiple-quantum-well structure for a reference sample. We confirmed that the energy dependence of the decay rate of the P emission is phenomenologically scaled by that of the group velocity of the photon-like lower polariton that is the final state in the exciton-exciton scattering process. Using spatially resolved PL spectroscopy, it was found that the P-PL band is selectively observed at a spot around a sample edge away from an excitation spot. Because the exciton-exciton scattering occurs at the excitation spot, the selective observation of the P-PL band at the sample edge spot indicates that the photon-like lower polariton propagates along the in-plane direction from the excitation spot, leading to conversion to the P emission. The above facts provide us clear evidence for the polariton characteristics of the P emission in the GaAs/AlAs superlattices.

1. はじめに

励起子-励起子散乱発光とは、主量子数 $n=1$ の2つの励起子が衝突し、一方は高次の励起子状態($n \geq 2$)に、他方はエネルギー保存則と運動量保存則を満たしながら光子性下枝ポラリトン分枝に散乱され発光する現象である[1]。また、励起子-励起子散乱過程の終状態が光子性下枝ポラリトンであることから、励起子-励起子散乱発光は、原理的にポラリトン特性を有する[2-5]。

これまでに、ZnO薄膜やGaAs/AlAs多重量子井戸構造を対象として、発光ダイナミクスの観点から、励起子-励起子散乱発光速度の受光エネルギー依存性が、光子性下枝ポラリトンの群速度のエネルギー依存性によりスケーリングできることが明らかになった[2,3]。また、空間分解発光スペクトルの観点からも、励起子-励起子散乱により生成された光子性下枝ポラリトンが試料内部を空間伝播し、並進対称性が破れた試料端において光子に変換されていることが明らかになった[4,5]。しかし、これまでミニバンド構造を有する超格子における励起子-励起子散乱発光は、その現象さえ全く報告されていない。

本研究では、GaAs/AlAs 超格子を対象として、発光ダイナミクス、発光空間イメージ、及び、空間分解発光スペクトルを測定し、励起子-励

起子散乱発光のポラリトン特性を調べた。

2. 試料と実験方法

本研究では、試料としてMBE法により成長された(GaAs)₂₄/(AlAs)₂超格子(ミニバンド幅 : $n=1$ 電子が41 meV、 $n=1$ 重い正孔(HH)が4 meV)、(GaAs)₂₄/(AlAs)₄超格子(ミニバンド幅 : $n=1$ 電子が14 meV、 $n=1$ HH が1 meV)、及び、参照試料として(GaAs)₂₄/(AlAs)₂₄多重量子井戸を用いた。ここで、添字の数字はmonolayer (ML)単位の層厚であり、1 MLは0.28 nmである。ミニバンド幅は、有効質量近似に基づく計算値である。定常発光スペクトルと発光ダイナミクスの測定には、励起光源としてモード同期Ti:sapphireレーザー(パルス幅 : 110 fs、繰り返し周波数 : 76 MHz)を用いた。励起エネルギーは、1.698 eVに設定した。定常発光スペクトルは、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。時間分解発光スペクトルの測定は、ストリークカメラ(時間分解能 : 19 ps、波長分解能 : 0.20 nm)を用いて行った。発光空間イメージと空間分解発光スペクトルの測定には、励起光源としてNd:YAGレーザーの第2高調波(波長 : 532 nm、パルス幅 : 1 ns、繰り返し周波数 : 10 kHz)を用いた。発光空間イメージは、試料からの発光を対物レンズで集光し、CMOSプロファイラーを

用いて倍率20.5倍で測定した。空間分解発光スペクトルは、発光の結像面にピンホール(直径: 50 μm)を設置して空間選択を行い、上記のCCD検出システムで測定した。全ての測定は、10 Kで行った。

3. 実験結果と考察

全ての試料において、本質的に同様の結果が得られたため、本論文では $(\text{GaAs})_{24}/(\text{AlAs})_2$ 超格子における実験結果を記載する。図1は、高励起密度条件下での定常発光スペクトルの励起密度依存性を示しており、一点鎖線は発光励起スペクトルから見積もったHH励起子エネルギー($E_{X,n=1}$)を示している。最大励起密度(I_0)は $1.1 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ である。すべての励起密度においてHH励起子発光であるX発光バンドが観測された。励起密度を増大させると、 $0.1I_0$ において、HH励起子エネルギーより低エネルギー側に、Pで記した新たな発光バンドが閾値特性を有して出現する。破線は閾値近傍におけるP発光バンドのピークエネルギーを示している。励起子-励起子散乱発光エネルギー(E_p)は、散乱過程におけるエネルギー保存則と運動量保存則から以下の式(1)で与えられる[6]。

$$E_p = E_{X,n=1} - (E_{X,n \geq 2} - E_{X,n=1}) - 3\sigma k_B T_{\text{eff}} \quad (1)$$

ここで、 $n \geq 2$ は散乱先の主量子数、 σ は1以下の正の定数、及び、 T_{eff} は励起子系の有効温度を表している。なお、超格子試料における励起子束縛エネルギー(E_b)の値はこれまで報告されていない。多重量子井戸試料における E_b は、理論計算を参照すると13.8 meVである[7]。P発光バンドは励起密度の増大に伴い発光ピークエネルギーが低エネルギー側にシフトしており、これは式(1)の右辺第3項の有効温度を反映している。上記のP発光バンドの特徴は、P発光バンドが励起子-励起子散乱発光に帰属されることを示している。また、式(1)の右辺第3項は、10 K程度の極低温における励起密度閾値近傍では無視することができる[3]。ここで、励起子連続状態($n=\infty$)への散乱を仮定すると、HH励起子と励起密度閾値近傍でのP発光バンドのピークエネルギーの差から、 E_b は5.2 meVと見積もられる。同様の実験結果から、 $(\text{GaAs})_{24}/(\text{AlAs})_4$ 超格子と $(\text{GaAs})_{24}/(\text{AlAs})_{24}$ 多重量子井戸における E_b は、それぞれ7.7 meV、14.6 meVと見積もられた。

励起子-励起子散乱発光のポラリトン特性を調べるために、発光ダイナミクスを測定した。図2は、励起密度 $1.1 \times 10^2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ における励起子-励起子散乱発光の発光減衰プロファイルの受光エネルギー依存性を示しており、短い寿命が励起子-励起子散乱発光、長い寿命がP発光バンドに

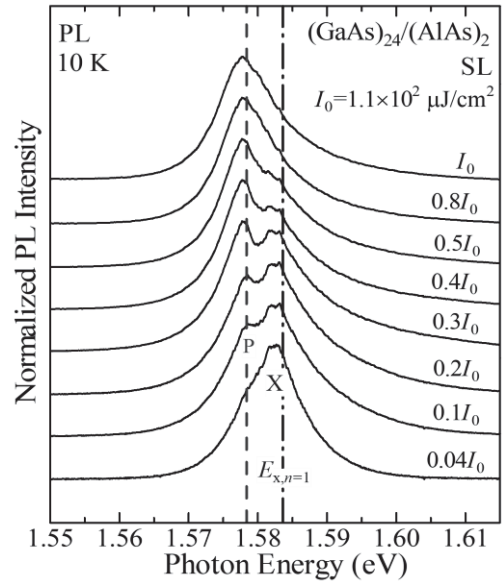


図 1: 高励起密度条件下での定常発光スペクトルの励起密度依存性。一点鎖線は発光励起スペクトルから見積もったHH励起子エネルギーを、破線は励起密度閾値近傍($0.1I_0$)でのP発光バンドのピークエネルギーを示している。

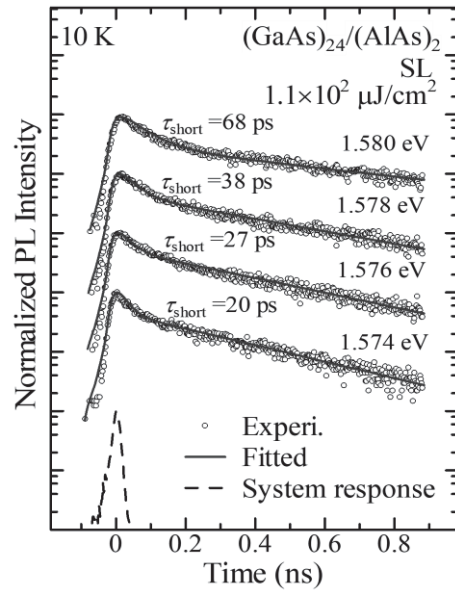


図 2: 励起子-励起子散乱発光の発光減衰プロファイルの受光エネルギー依存性。白丸は実験結果、破線はシステム応答、実線は式(3)を用いたフィッティング結果を表している。

重畳している励起子発光に起因している。発光減衰プロファイルの形状解析において、発光強度の時間変化 $I_{\text{PL}}(t)$ は、指数関数的な立ち上がりを考慮した2重減衰指数関数を用いた。

$$I_{\text{PL}}(t) = -I_{\text{rise}} \exp(-t/\tau_{\text{rise}}) + I_{\text{short}} \exp(-t/\tau_{\text{short}}) + I_{\text{long}} \exp(-t/\tau_{\text{long}}) \quad (2)$$

ここで、 τ_{rise} は立ち上がり時間、 τ_{short} は短い寿命、 τ_{long} は長い寿命を表しており、 $I_{\text{rise}}=I_{\text{short}}+I_{\text{long}}$ である。また、時間分解能程度の発光寿命を厳密に評価するために、発光強度の時間変化 $I_{\text{PL}}(t)$ をシステム応答で畳み込み積分した以下の式(3)を用いて形状解析を行った。

$$I_{\text{fit}}(t) = \int_0^{\infty} I_{\text{sys}}(\tau) I_{\text{PL}}(t-\tau) d\tau \quad (3)$$

図2において、実線は式(3)を用いてフィッティングした結果を表しており、実験結果とよく一致している。受光エネルギーの低下に伴い、励起子-励起子散乱発光寿命が系統的に短くなるという結果が得られた。図3は、励起子-励起子散乱発光速度の受光エネルギー依存性を示している。各シンボルは図中に示した励起密度に対応している。光子性下枝ポラリトンの群速度 $v_g(E)$ は下枝ポラリトンのエネルギー分散関係 $E_{\text{LPB}}(\mathbf{k}_{//})$ を用いて式(4)で表される。

$$v_g(E) = \frac{1}{\hbar} \frac{dE_{\text{LPB}}(\mathbf{k}_{//})}{dk_{//}} \quad (4)$$

ここで、 $\mathbf{k}_{//}$ は面内波数ベクトルである。 $E_{\text{LPB}}(\mathbf{k}_{//})$ は、式(5)で表される量子井戸面内のHH励起子分散関係を考慮したポラリトン方程式より求めた。

$$\frac{\hbar^2 c^2 \mathbf{k}_{//}^2}{E^2} = \epsilon_b + \frac{f}{E_x^2(\mathbf{k}_{//}) - E^2 - iE\Gamma} \quad (5)$$

ϵ_b は背景誘電率、 Γ はブロードニング因子である。 f は振動子強度であり、以下の式(6)で表される。

$$f = 2\epsilon_b E_T \Delta E_{\text{LT}} \quad (6)$$

E_T は横型励起子エネルギーを表し、HH励起子エネルギーに対応する。 ΔE_{LT} は励起子の縦横分裂エネルギーである。また、面内励起子分散関係 $E_x(\mathbf{k}_{//})$ は、式(7)で与えられる。

$$E_x(\mathbf{k}_{//}) = E_T + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_{//}^2}{2M_{//}} \quad (7)$$

ここで、 $M_{//}$ はHH励起子の面内有効質量を表す[3]。なお、 E_x と Γ は、10 Kにおける発光励起スペクトルから見積もった。多重量子井戸試料における ΔE_{LT} は0.70 meVであるが[8]、超格子試料における ΔE_{LT} の値はこれまでに報告されていないためにフィッティングパラメータとした。光子性下枝ポラリトンの群速度のエネルギー依存性を実験結果に対してスケールした結果が図3の実線であり、実験結果とよく一致している。このことは、 $(\text{GaAs})_{24}/(\text{AlAs})_2$ 超格子における励起子-励起子散乱発光がポラリトン特性を有することを明確に示している。他の試料においても、同様の結果が得られた。な

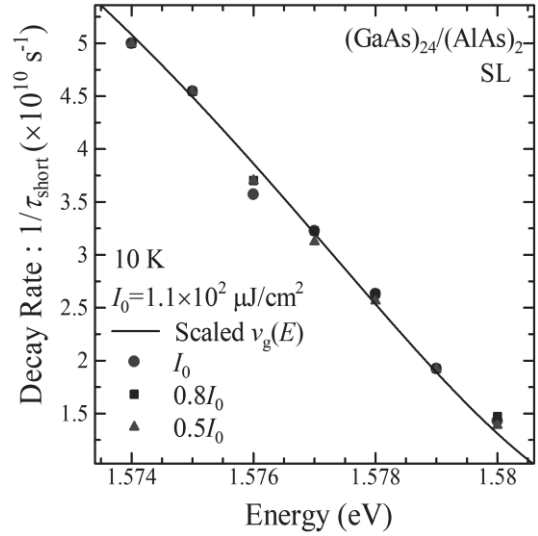


図 3: 励起子-励起子散乱発光速度の受光エネルギー依存性。シンボルは各励起密度での実験結果、実線は光子性下枝ポラリトンの群速度のエネルギー依存性を励起子-励起子散乱発光速度の受光エネルギー依存性に対してスケールした結果を表している。

お、フィッティングパラメータである ΔE_{LT} の値は、 $(\text{GaAs})_{24}/(\text{AlAs})_2$ 超格子と $(\text{GaAs})_{24}/(\text{AlAs})_4$ 超格子においてそれぞれ、0.13 meV、0.21 meVとなった。ミニバンド幅の増大に伴う E_b 及び ΔE_{LT} の低下は、ミニバンド効果による量子閉じ込め効果の減少によるものである。

次に、励起子-励起子散乱発光のポラリトンの空間伝播特性を調べるために、発光空間イメージと空間分解発光スペクトルの測定を行った。図4は、励起密度 $27 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ における発光空間イメージを示している。白破線は試料端であり、発光強度は規格化している。光励起スポットの中心から $60 \mu\text{m}$ 程度離れた試料端において発光スポットが観測された。この発光起源を明らかにするために、光励起スポットと試料端での空間分解発光スペクトルの測定を行った結果を、図5(a)と図5(b)に示している。図5(a)の光励起スポットではHH励起子発光バンドのみが観測されているのに対し、図5(b)の試料端においては励起子-励起子散乱発光バンドのみが選択的に観測されている。このことは、HH励起子発光は光子として空間伝播するため再吸収効果を受けているのに対し、励起子-励起子散乱発光は再吸収効果の影響を受けずに、ポラリトン特性を反映して試料面内を空間伝播していることを示している。以上のことは、光励起スポットにおいて励起子-励起子散乱が生じ、生成された光子性下枝ポラリトンが試料面内を空間伝播し、並進対称性が破れた試料端で光子に変

換されていること、すなわち、励起子-励起子散乱発光のポラリトンの空間伝播特性を示している。

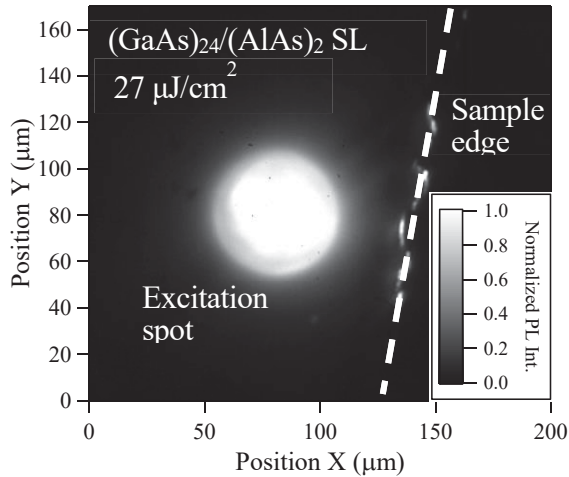


図 4: 励起密度 $27 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ における発光空間イメージ。白破線は試料端を表している。なお、発光強度は規格化している。

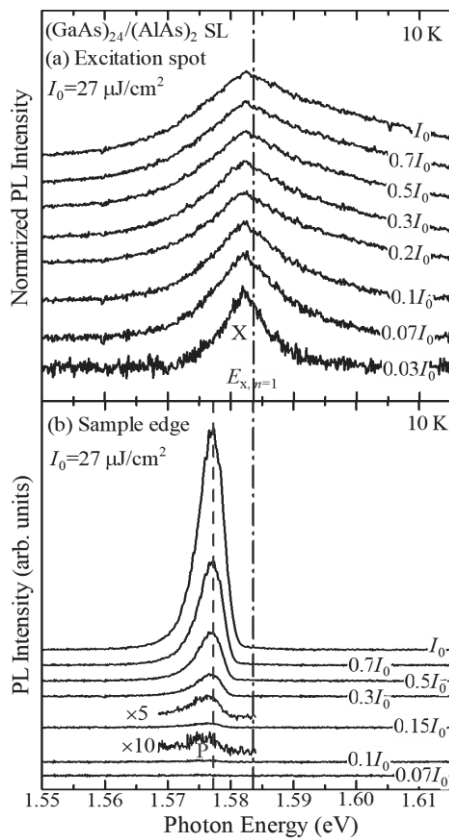


図 5: (a)光励起スポットの中心と(b)試料端での発光スポットにおいて空間選択した空間分解発光スペクトルの励起密度依存性。一点鎖線はHH励起子エネルギー、破線は励起密度閾値近傍でのP発光バンドのピークエネルギーを示している。

4. まとめ

GaAs/AlAs超格子を対象として、初めて励起子-励起子散乱発光を観測し、そのポラリトン特性を調べた。発光減衰プロファイルの解析結果より、励起子-励起子散乱発光速度の受光エネルギー依存性が励起子-励起子散乱過程の終状態である光子性下枝ポラリトンの群速度のエネルギー依存性によりスケールアップできることを明らかにした。この結果は、GaAs/AlAs超格子における励起子-励起子散乱発光がポラリトン特性を有することを明確に示している。また、発光空間イメージの測定により、光励起スポットから空間的に離れた試料端で発光スポットを観測した。光励起スポットと試料端での空間分解発光スペクトルの測定により、光励起スポットではHH励起子発光バンドのみが観測されたのに対し、試料端においては、励起子-励起子散乱発光バンドのみが選択的に観測された。この結果は、光励起スポットにおいて励起子-励起子散乱が生じ、生成された光子性下枝ポラリトンが試料面内を空間伝播し、並進対称性の破れた試料端において光子に変換されていること、すなわち、励起子-励起子散乱発光のポラリトンの空間伝播特性を示している。また、ミニバンド幅の増大に伴って、励起子束縛エネルギーと振動子強度が低下することを系統的に示した。

謝辞 本研究は、JSPS科研費 No. 18K03494の助成を受けたものである。

参考文献

- [1] 総説として、C. Klingshirn and H. Haug, Phys. Rep. **70**, 315 (1981).
- [2] S. Wakaiki *et al.*, Phys. Status Solidi C **8**, 116 (2011).
- [3] Y. Furukawa, H. Takeuchi, and M. Nakayama, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 054709 (2014).
- [4] Y. Furukawa and M. Nakayama, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 094718 (2018).
- [5] M. Nakayama and Y. Nakayama, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 083706 (2019).
- [6] C. Klingshirn, Phys. Status Solidi B **71**, 547 (1975).
- [7] L. C. Andreani and A. Pasquarello, Phys. Rev. B **42**, 8928 (1990).
- [8] E. L. Ivchenko *et al.*, Solid State Commun. **70**, 529 (1989).