

(114)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、下村 哲^A、中山正昭

阪市大院工、愛媛大院理工^A

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 grown on a (114) GaAs substrate

Tatsuya Ohno, Yoshiaki Furukawa, Satoshi Shimomura^A, and Masaaki Nakayama

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

Graduate school of Science and Engineering, Ehime University^A

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 (SQWs) grown on (114) and (001) GaAs substrates 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 in (114) SQWs. This fact is consistent with a reported theoretical study of the exciton-acoustic-phonon scattering rate deriving from deformation potential interactions. Furthermore, the PL rise times of the (114) SQWs are slightly shorter than those of the (001) SQWs. We quantitatively indicate that the piezoelectric scattering effects, which is peculiar to (11 n) plane enhances the exciton-acoustic-phonon scattering.

1.はじめに

非共鳴励起条件での自由励起子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、及び、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。量子井戸系の自由励起子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、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[2]、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[2-8]。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、量子井戸層厚の逆数、及び、温度に比例することを理論的に導出している[4]。我々は、(001)面GaAs基板上の単一量子井戸構造を試料として、発光立ち上がり速度の量子井戸層厚依存性と温度依存性を系統的に測定し、発光ダイナミクスの観点から[4]の理論の妥当性を実験的に明らかにした[9,10]。本研究では、(114)面GaAs基板上の単一量子井戸構造を試料として、(001)面試料と同様に発光ダイナミクスの系統的な測定を行った。(114)面試料の発光立ち上がり速度は、(001)面試料と比較して速くなる結果が得られた。それについて、(11 n)面特有のピエゾ散乱効果の理論[3]に基づいて解析を行った。

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(114)面、及び、(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($L=3.6, 4.8, 7.2, 12.0$)を試料として、発光ダイナミクスの測定を行った。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 20 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では、界面ラフネスの揺らぎによる励起子の局在性を無視することができない。各井戸層厚において、発光スペクトルと発光励起スペクトルからストークスシフトを評価し、30 K 以上では、ストークスシフトが熱エネルギー($k_B T$)よりも小さいことを確認した。このことは、励起子の弱局在が無視できることを示している。

図 1 は、(114)面試料の 30 K における発光立ち上がり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、△

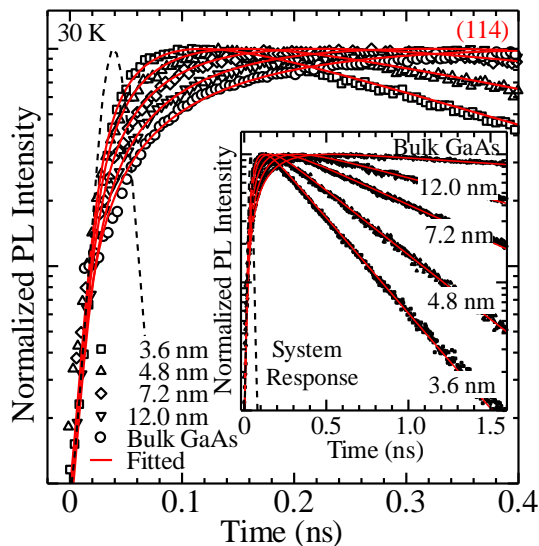


図 1 (114)面試料の 30 K における発光立ち上がりプロファイルの井戸層厚依存性。□は 3.6 nm、△は 4.8 nm、◇は 7.2 nm、▽は 12.0 nm、○は GaAs バルク結晶の実験結果、実線は(2)式を用いた形状解析結果を表す。

は 4.8 nm、◇は 7.2 nm、▽は 12.0 nm、○は GaAs バルク結晶である。各発光立ち上がりプロファイルは、それぞれの最大強度で規格化している。形状解析には、(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 $I_{\text{PL}}(t)$ に、システム応答であるレーザープロファイル（破線） $I_{\text{sys}}(t)$ を畳み込んだ(2)式を用いた。

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

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

挿入図は、発光減衰時間領域での測定結果を示しており、(2)式を用いた形状解析により発光の立ち上がりと減衰を含む全ての時間領域で再現できることが分かる。形状解析から、発光立ち上がり時間が GaAs バルク結晶では 140 ps、井戸層厚 12.0 nm では 116 ps、7.2 nm では 85 ps、4.8 nm では 64 ps、3.6 nm では 53 ps となり、井戸層厚が薄くなるに従って、発光立ち上がり時間が短くな

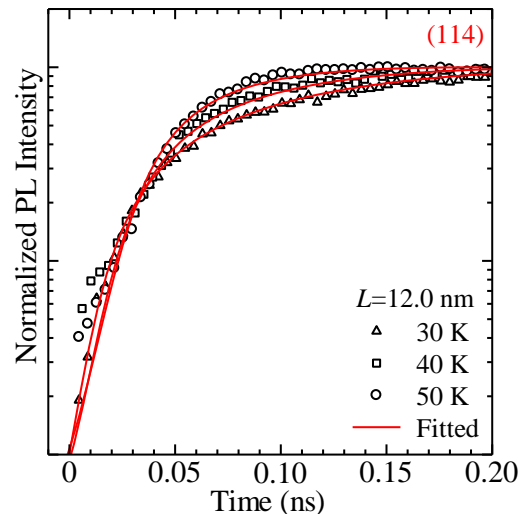


図 2 (114)面試料の井戸層厚 12.0 nm における発光立ち上がりプロファイルの温度依存性。△は 30 K、□は 40 K、○は 50 K の実験結果、実線は(2)式を用いた形状解析結果を表す。

った。

図 2 は、(114)面試料の井戸層厚 12.0 nm の発光立ち上がりプロファイルの温度依存性を示しており、△は 30 K、□は 40 K、○は 50 K である。各発光立ち上がり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 116 ps、40 K では 68 ps、50 K では 41 ps となり、温度上昇に伴い発光立ち上がり時間が短くなった。

図 3(a)は、(114)面試料の 30 K (▲)、40 K (■)、50 K (●)における発光立ち上がり速度の井戸層厚の逆数依存性を示しており、実

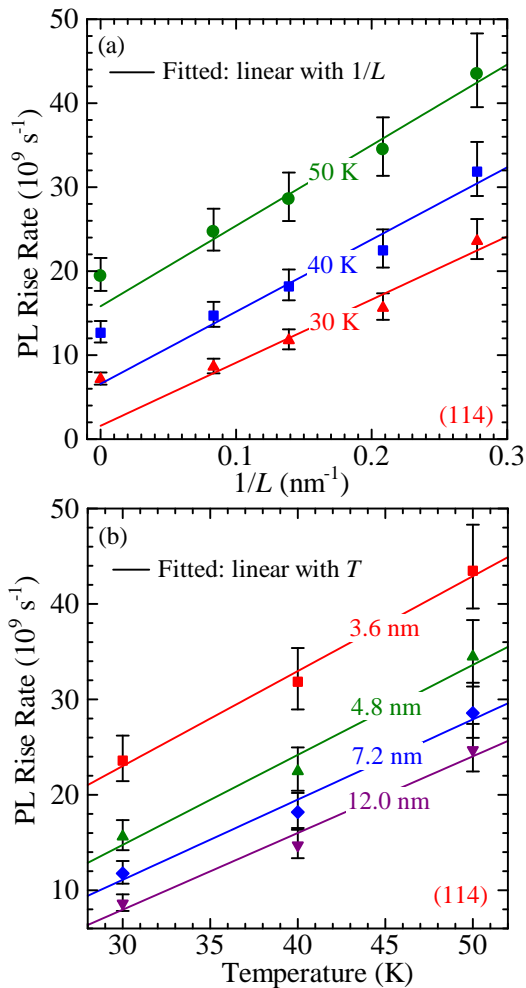


図 3 (a)各温度[30 K (▲)、40 K (■)、50 K (●)]における発光立ち上がり速度の井戸層厚依存性と(b)各井戸層厚[3.6 nm (■)、4.8 nm (▲)、7.2 nm (◆)、12.0 nm (▼)]における発光立ち上がり速度の温度依存性。実線は線形フィッティング結果を表す。

線は各試料の線形フィッティングである。発光立ち上がり速度は、井戸層厚の逆数 ($1/L$) に対し線形に増大する結果が得られた。図 3(b)は、(114)面試料の 3.6 nm (■)、4.8 nm (▲)、7.2 nm (◆)、12.0 nm (▼)における発光立ち上がり速度の温度依存性を示しており、実線で示される線形フィッティングがすべての井戸層厚において実験データと良く一致している。従って、発光立ち上がり速度は温度に対し線形に増大する結果が得られた。図 3(a)と(b)の解析結果から、発光立ち上がり速度は変形ポテンシャル相互作用[4]に由来する励起子-音響フォノン散乱速度が主要因であることを示している。

続いて、(114)面試料と(001)面試料を比較した結果について述べる。図 4 は、30 K での各井戸層厚における発光立ち上がりプロファイルを示している。□は(114)面試料、△は(001)面試料に対応しており、各発光立ち上がりプロファイルは、それぞれの最大強度で規格化している。実線は(2)式を用いた形状解析結果を示している。(114)面試料の発光立ち上がり時間 $\tau_{r(114)}$ と(001)面試料

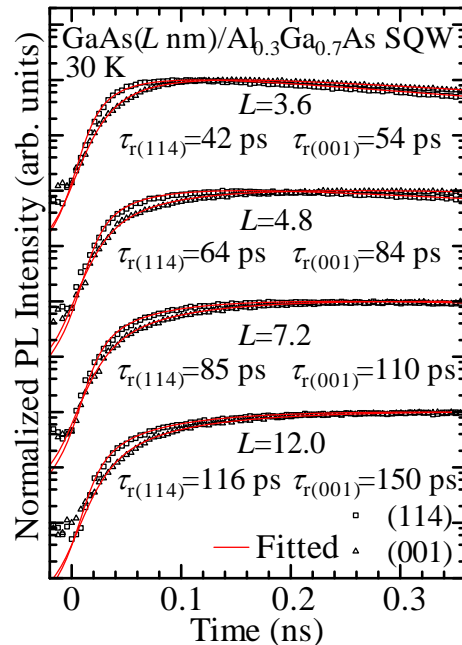


図 4 30 K における各試料[(114)面試料 (□)、(001)面試料(△)]の発光立ち上がりプロファイルの井戸層厚依存性。実線は(2)式を用いた形状解析結果を表す。

の発光立ち上がり時間 $\tau_{r(001)}$ はそれぞれ図中に記載している。(114)面[(001)面]試料の発光立ち上がり時間は井戸層厚 3.6 nm で 42 ps[54 ps]、4.8 nm で 64 ps[84 ps]、7.2 nm で 85 ps[110 ps]、12.0 nm で 116 ps[150 ps]となり、すべての井戸層厚において(114)面試料の方が短くなった。この結果は、(114)面試料において励起子-音響フォノン散乱速度が増強していることを示唆している。これは、(11n)面特有のピエゾ散乱効果が加わっていることに起因すると考えられる。

最後に、(114)面試料における励起子-音響フォノン散乱の増強効果について考察する。一般に、(11n)面では音響フォノン散乱の一種であるピエゾ散乱が生じる。ピエゾ散乱に由来する音響フォノン散乱速度は Lee らにより、井戸層厚の 2 乗に比例することが報告されている[3]。ここで、変形ポテンシャル相互作用に由来する音響フォノン散乱速度は(001)面試料と(114)面試料でほぼ等しいと仮定すると、(3)式で示すようにそれぞれの発光立ち上がり速度の差がピエゾ散乱効果による音響フォノン散乱速度 $W^{(PZ)}$ と考えることができる。

$$\frac{1}{\tau_{r(114)}} - \frac{1}{\tau_{r(001)}} \equiv W^{(PZ)} \propto \frac{1}{L^2} \quad (3)$$

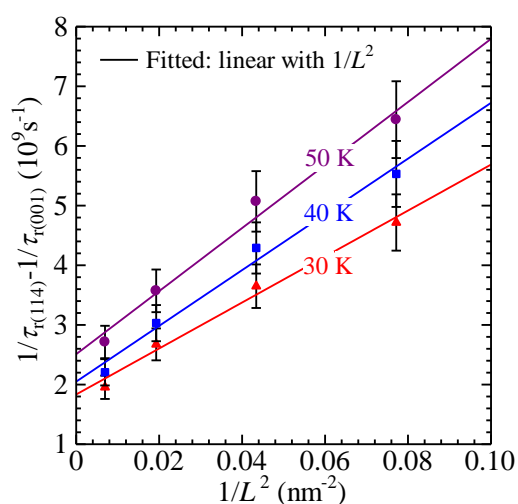


図5 各温度[30 K (▲)、40 K (■)、50 K (●)]における(114)面試料と(001)面試料の発光立ち上がり速度の差の $1/L^2$ 依存性。

図5は、30 K (▲)、40 K (■)、50 K (●)における(114)面試料と(001)面試料の発光立ち上がり速度の差の $1/L^2$ 依存性である。各温度において、実線で示される線形フィッティングは、実験結果と良く一致している。この $1/L^2$ 依存性は、(114)面での発光立ち上がり速度の増強がピエゾ散乱効果に起因することを示している。

4.まとめ

(114)面 GaAs(L nm)/Al_{0.3}Ga_{0.7}As(20 nm)単一量子井戸構造(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、量子井戸層厚の逆数と温度に比例する明確な結果が得られ、変形ポテンシャル相互作用に由来する音響フォノン相互作用が主要因であることが分かった。さらに、(114)面試料と(001)面試料との発光立ち上がり速度の差が、井戸層厚の 2 乗の逆数に比例する結果が得られた。これは、変形ポテンシャル相互作用効果に(11n)面特有のピエゾ散乱効果が加わっていることを反映している。

参考文献

- [1] 総説として、J. Shah, *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructure* (Springer, Berlin, 1996)
- [2] T. C. Damen *et al.*, Phys. Rev. B **42**, 7434 (1990)
- [3] J. Lee *et al.*, Phys. Rev. B **33**, 5512 (1986)
- [4] A. Thilagam and J. Singh, Phys. Rev. B **48**, 4636 (1993)
- [5] Z. L. Yuan *et al.*, J. Appl. Phys. **79**, 424 (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] T. Ohno *et al.*, 第25回光物性研究会論文集, 97-100 (2014)
- [10] M. Nakayama *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 134306 (2015)