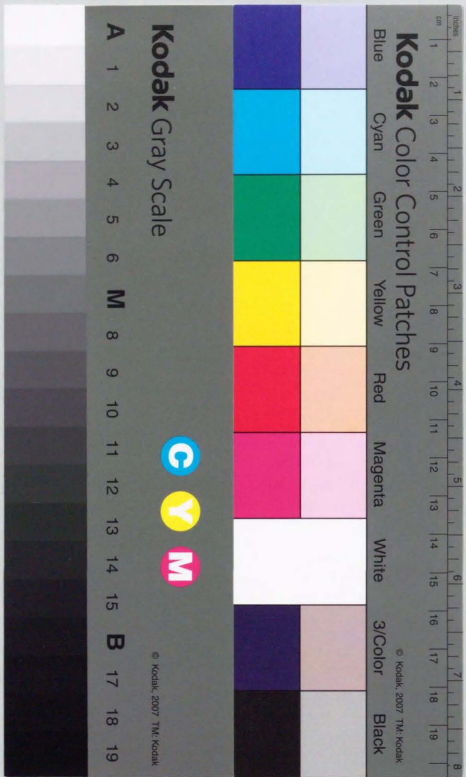


超短パルスレーザを用いた  
量子井戸構造中のキャリアダイナミックスの研究

松末 俊夫



①

超短パルスレーザを用いた  
量子井戸構造中のキャリアダイナミックスの研究

1993年

松末 俊夫

## 目 次

1. 序論	1
1. 1 研究の背景	1
1. 2 研究の目的	2
1. 3 超短パルスレーザを用いた時間分解分光法の特徴	2
1. 4 ピコ秒・フェムト秒計測技術の概要	3
第1章参考文献	10
2. 量子井戸構造におけるキャリアの発光再結合過程	11
2. 1 序論	11
2. 2 高ドープ量子井戸構造における発光再結合定数とその温度依存性	11
2. 2. 1 序論	11
2. 2. 2 実験方法	12
a. 実験原理および変調ドープ量子井戸構造における発光再結合過程の特徴	12
b. 試料構造および測定法	12
2. 2. 3 実験結果および考察	13
a. キャリア寿命および発光再結合係数の温度依存性	13
b. 自由キャリアによるバンド間発光再結合理論との比較	16
c. 非発光過程に関する検討	17
2. 2. 4 結論	18
2. 3 発光再結合過程のドーピング密度依存性	19
2. 3. 1 序論	19
2. 3. 2 試料構造および測定法	19
2. 3. 3 実験結果および考察	19
a. キャリア寿命の温度依存性	19
b. キャリア寿命のキャリア密度依存性と励起子効果	20
2. 3. 4 結論	22
2. 4 結論	22
第2章参考文献	23

3. 障壁層から量子井戸層へのキャリア注入過程	24
3.1 序論	24
3.2 試料構造および測定法	25
3.3 実験結果および考察	26
3.3.1 キャリア注入時間の障壁層幅依存性	26
3.3.2 拡散・捕獲モデルによる検討	29
3.3.3 障壁層および井戸層の時間積分発光強度比からの検討	32
3.3.4 キャリア注入時間の井戸幅依存性	34
3.4 結論	34
第3章参考文献	36
4. 量子井戸構造における電子のトンネル過程	37
4.1 序論	37
4.2 量子井戸層(2D)から三次元領域(3D)へのトンネル過程	38
4.2.1 序論	38
4.2.2 バンドギャップ中の有効質量を用いた多重反射形式による解析	40
4.2.3 二重障壁共鳴トンネルダイオードのスイッチング時間との対応	41
4.2.3 結論	42
4.3 量子井戸(2D)から他の量子井戸層(2D)へのトンネル過程	43
4.3.1 序論	43
4.3.2 試料構造および測定法	44
4.3.3 実験結果	46
4.3.4 共鳴状態近傍	48
a. 散乱付随トンネル過程	48
b. 共鳴幅および共鳴効果	51
4.3.5 非共鳴トンネル過程	54
a. 共鳴前	54
b. 共鳴後	55
c. コヒーレントトンネル脱出過程	55
d. LOフォノン支援井戸間トンネル過程	56
4.3.6 量子井戸トンネル障壁の特徴	59
4.3.7 結論	60
4.4 結論	61
4.5 補節	61
4.5.1 二重量子井戸構造における波動関数	61

4.5.2 トンネル振動	62
4.5.3 コヒーレント共鳴トンネル脱出モデル	63
第4章参考文献	67
5. 量子井戸構造における面内拡散過程	70
5.1 序論	70
5.2 拡散過程の概要	70
5.3 拡散過程の定式化	72
5.4 拡散過程の井戸幅および温度依存性	73
5.4.1 序論	73
5.4.2 実験方法	74
a. 過渡回折格子法の原理および測定法	74
b. 試料構造	75
5.4.3 実験結果および考察	77
a. 高温(>80K)における拡散過程: LOフォノン散乱による自由キャリアの両極性拡散	77
b. 低温(<80K)における拡散過程: 励起子の拡散	77
c. 拡散距離の温度依存性	81
5.4.4 結論	82
5.5 AlAsアイランド挿入による拡散過程の抑制	82
5.5.1 序論	82
5.5.2 試料構造および測定法	83
5.5.3 界面構造の概要	84
5.5.4 拡散定数の温度・キャリア密度依存性および異方性	86
5.5.5 ラフネス散乱モデルによる理論計算との比較	86
5.5.6 結論	91
5.6 磁場中の拡散過程	91
5.6.1 序論	91
5.6.2 試料構造および測定法(ファイバマスク法)	92
5.6.3 実験結果: 拡散定数の磁場依存性(50~132K)	94
5.6.4 考察: 伝導度テンソルの磁場効果およびサイクロトロン軌道間の ホッピング拡散	96
5.6.5 結論	97
5.7 結論	98

5.8 補節 .....	99
5.8.1 ステップインデックスファイバのモード .....	99
第5章参考文献 .....	100
6. アイランド挿入量子井戸構造における励起子のコヒーレントダイナミクス ..	102
6.1 序論 .....	102
6.2 試料構造および測定法(過渡縮退四光波混合自己回折法) .....	102
6.3 実験結果および考察 .....	104
6.3.1 位相緩和の抑制 .....	107
6.3.2 干渉ビート .....	109
6.4 結論 .....	114
第6章参考文献 .....	115
7. 結論 .....	116
謝辞 .....	120

## 1. 序論

### 1.1 研究の背景

電子波長と同程度(～10nm)の寸法を持つ異種物質を組み合わせた量子マイクロヘテロ構造中では、量子力学的なトンネル効果や干渉効果が顕在化する。そのため量子効果による特異な電子物性が発現し、物理的に興味深い現象を現す。それらの現象は、新しい機能、超高速性、優れた変調特性などを持つデバイスの実現へ応用することが期待できるため、工学的にも極めて興味深い。そのため物理的研究とともに工学的研究が、作製技術、物性評価、デバイス構造の面から進められてきている<sup>[1]</sup>。特に、Esakiらによる1970年代の先駆的研究<sup>[2]</sup>に始まる半導体超格子・量子井戸構造に関する研究は、大きな流れとなり現在も活発に研究が進められている。すでに、その研究の中から、高電子移動度トランジスタ(HEMT)、量子井戸レーザ、自己電気光学効果素子(SEED)等に代表される優れた素子が実用化されている。さらに、最近、構造を多次元化した量子細線、量子箱の研究へと発展している。

このような量子マイクロヘテロ構造の素子応用を進めていく際に、静的物性だけでなく、キャリアダイナミクスを明らかにする必要性が高まってきた。理由の第1は、量子効果による現象を的確に理解するためである。干渉効果やトンネル効果などは概念的な理解が困難である。特に、散乱のある場合の影響などは、理論的に明確な予測ができない。現象の時間的振舞いに関しては、さらにおわかっていない。そのためキャリアダイナミクスを実験的に明らかにすることが、現象を理解する上で大いに役立つ。理由の第2は、量子効果素子の究極特性(特に高速性)を明確にするためである。第3は、素子の動作に関与する複雑な物理過程を微視的に理解し、明らかにされた知見を、素子の改善や新たな素子の開発に応用するためである。また、作製された量子マイクロヘテロ構造の評価手段としても必要とされる。

しかし、典型的な時間領域であるピコ秒領域のダイナミクスは、実験的な困難のため、少数の研究グループによる一部の過程に関する測定のみが行われているのみで、ほとんど研究されていなかった。Solliららは、二重障壁共鳴トンネルダイオードの電気的高周波測定を始め、発振の最高周波数が18GHzとピコ秒領域での測定を行っている<sup>[3]</sup>。しかし、試料や測定系におけるCR時定数による制約のため、固有のダイナミクスを明確にすることが難しかった。また、Hiroseら<sup>[4]</sup>、Arakawaら<sup>[5]</sup>によるキャリアの発光再結合寿命の測定が、CWレーザとA/O変調器などの外部変調器を組

み合わせて行われたが、ナノ秒領域が限界であった。

一方、短パルスレーザ技術が急速に発展してきた。1966年には、DeMarrara<sup>[6]</sup>により、モードロックによるピコ秒パルス発生法が開発された。その後、多くの研究者による改良の結果、パルス幅の短縮、安定性の向上、波長領域の拡大、出力の増大等が飛躍的に進んだ。時間分解光検出技術に関しても、1949年にCourteney-Pratt<sup>[7]</sup>により、10nsの時間分解能を持つストリークカメラが開発された。その後の改良の結果、1979年には、Tsuchiya<sup>[8]</sup>により、10ピコ秒の時間分解能で、比較的感受度よく、実時間光検出が可能となった。

そこで、この新しい光学測定技術を用いて、量子井戸構造中のキャリアダイナミクスの研究を進めていくことにした。検出法に関しては、研究の進展に伴い、非線形分光法なども用いた。

## 1. 2 研究の目的

本研究の目的は、量子井戸構造中のキャリアダイナミクスのうち、(1)デバイス(特に光デバイス)動作上、重要であり、物理的にも興味深い発光再結合過程、キャリアの障壁層から井戸層への注入過程、トンネル過程、井戸面内拡散過程、位相緩和過程に関して実験的に明らかにし、(2)その物理モデルを確立すること、(3)素子特性との関わりや、特性の改善および制御の指針を得ること、さらに、(4)新たな物理現象の発見とその素子応用を探索することなどにある。また、作製された量子マイクロヘテロ構造の構造や品質の評価としての面も念頭にいった。

## 1. 3 超短パルスレーザを用いた時間分解分光法の特徴

実験は主に、ピコ秒あるいはフェムト秒レーザによる時間分解分光法<sup>[9]</sup>[時間分解蛍光測定法、トランジェント・グレーティング法、過渡縮退四光波混合自己回折法、空間限定・時間分解蛍光測定法(ファイバマスク法)<sup>[10]</sup>]を用いた。この測定法の利点には、(1)電気的高周波測定では問題となる試料や測定系におけるCR時定数による制限がないため、本質的なキャリアダイナミクスが測定できること、(2)波長選択により、物理過程の選別が可能なおことがある。また(3)励起子系、電子・正孔系の物理過程が直接的に測定でき、さらに、(4)レーザ特有のコヒーレンスを用いて、コヒーレンス現象を解明できるなど、優れた特徴を合わせ持つ。

## 1. 4 ビコ秒・フェムト秒計測技術の概要

時間分解分光法によるピコ秒・フェムト秒計測は、光源の超短パルスレーザと時間分解検出系から成っている。本研究では、2種類の光源を主に用いた。1つは、YAGレーザを用いた能動モードロックレーザに、同期励起型色素レーザをつないだピコ秒レーザ光源である。もう1つは、CW Arレーザで励起する受動モードロックTi:サファイアレーザを用いたフェムト秒レーザ光源である。時間分解検出には、ストリークカメラおよび非線形分光法を用いた。以下に、用いたシステムを中心にして、ピコ秒・フェムト秒計測技術の動作原理、特徴および操作上の注意点を述べる。

### (ピコ秒レーザ光源)

主に用いたシステムの構成を図1.1に示す。YAGレーザを用いた能動モードロックレーザ(スペクトラ・フィジックス社・モデル3600)とそこからの出力パルスを励起パルスとして用いる同期励起型色素レーザ(スペクトラ・フィジックス社・モデル375)から成っている。

まず、モードロック法の原理<sup>[11]</sup>を述べる。レーザの共振器内に、光シャッタ(ここではA/O変調器)を置く。このシャッタをON/OFFすることによって、共振器内にパルスが発生する。このON/OFFを共振器を光が1周するタイミング(周期 $2L/C$ )に合わせてを繰り返し、縦モード間の結合が進むと、パルスが鋭鋭化し、超短パルスが形成される。この時のパルスの電界 $e(t)$ は、各縦モード( $j$ )を用い、

$$e(t) = \sum_j E_j \exp\{i[(\omega_0 + j\Delta\omega)t + \phi_j]\} \quad (1.1)$$

と書け、スペクトル幅 $n\Delta\omega$ に対応する時間幅( $\Delta t \sim 1/n\Delta\omega$ )程度のパルスが発生可能となる。スペクトル幅は、レーザのゲインのスペクトル幅と光シャッタの特性に依存する。

光シャッタの役割を果たすA/O変調器(図1.2)は、レーザ共振器の共振周波数( $C/2L$ )の $1/2$ の周波数で定在波が立つように駆動すると、その回折率が0から最大値を $2L/C$ の周期で繰り返す。この時、A/O変調器を往復する間に回折しなかった光および2度回折して元に戻った光が発振するような配置にミラーを設置する。発振に関与する回折光は音波からエネルギー $m\Delta\omega$ ( $m=0, \pm 1, \dots$ )を受け取るため、縦モード間の結合が生じ、回

折効率が最大になるタイミングでパルスが発生する。図1. 1のシステムの場合、パルス幅は、YAG結晶のゲイン幅により制限され、FWHMが約100 psとなる。

このパルスは波長が1.06  $\mu\text{m}$ であるので、次段のレーザを励起するのに適当な波長にするため、共振器の外においたKTP結晶を用い、2次の光学非線形効果によって第2高調波(波長532 nm)を発生させる。この時、パルス幅は非線形効果により、約80 psに圧縮される。このパルスを次段の同期励起型色素レーザに入射する。

同期励起型色素レーザ<sup>[11]</sup>は、モードロックレーザパルスを励起用に用い、そのパルス周期に同期するように共振器長を正確に合わせる。そうすると、図1. 3に示すように励起パルスの時間スペクトルのうちの初期の何割かで色素のゲインが閾値を越え、急速に発振パルスが増幅される。その結果、励起パルスが終わる前にゲインが下がり、閾値以下になり、増幅が止まる。これを繰り返すうちに、パルス幅が圧縮される。最終的に得られるパルス幅は、色素のゲイン、励起パルスのパワーとパルス幅、発振パワー、パルス周期と共振器長のマッチングを始め、様々な要因に依存する。典型的には、励起パルス幅の1/10程度になる。

図1. 1のシステムでは、共振器内にキャビティ・ダンパ<sup>[12]</sup>(スペクトラ・フィジックス社・モデル344)を組み込んでいる。この装置の働きは、高繰り返しパルスを間引くこと、パルスのエネルギーを高めることである。原理は、パルス取り出し時以外は、共振器のQ値を高い値に保ち、共振器内に、パルスを高いパワーの状態に蓄積させておく。パルス取り出し時に、パルスの到着タイミングに合わせて、取り出し部を開放する(Q値を下げる)と、強い強度のパルスが取り出せる。本システムでは、Q値のON/OFFをA/O変調器で行っている。Q値の高い状態では、A/O変調器をOFFにする。Q値を下げる状態では、ONにしてパルスを回折し、外部に取り出す。パルスの増幅率は蓄積時間と共振器のロスおよび取り出し効率に依存する。本システムの場合、800 KHz(蓄積時間1.2  $\mu\text{s}$ )までは繰り返し周波数を下げるに従って増幅率が上がり、間引かない場合の約20倍になる。それ以降は増幅率は一定となる。

(フェムト秒レーザ光源)

用いたシステムの構成は、励起光源用のCW Arレーザ(コヒーレント社・モデルInnova300)と次段のTi:サファイアモードロックレーザ(コヒーレント社・モデルMIRA900)から成っている。Ti:サファイ

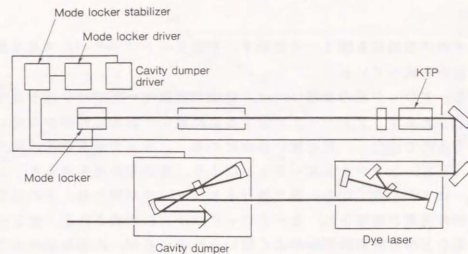


図1. 1 ピコ秒レーザシステム構成図<sup>[12]</sup>。

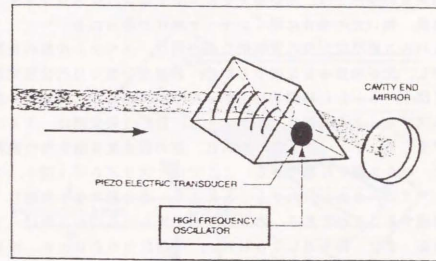


図1. 2 A/O変調器を用いたモードロックの模式図<sup>[12]</sup>。

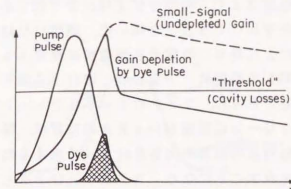


図1. 3 同期励起色素レーザの動作原理<sup>[11]</sup>。

アレーザの内部構成を図1.4に示す。受動モードロック発生部とパルス圧縮部から成っている。

受動モードロック法の原理<sup>[11]</sup>は、前述の能動モードロック法と基本的な部分は同じであるが、光シャッタに関する点に違いがある。外部から光シャッタを駆動するのではなく、光が強い場合にのみ、シャッタが自動的に開く機構を用いる。もし、フラクチュエーションにより、強い光が発生すると、シャッタが開き、ロスが小さくなり、通り抜けるとシャッタが閉じる。その結果、強い光の部分の発振が増強され、モードロックパルスが形成される。光シャッタには、色素などの可飽和吸収体がよく用いられているが、このシステムでは、ミラーのKerr効果による屈折率変化を利用している(図1.5)。光ビームの強度は、中央部が強く、周辺部は弱いため、強い光が入力すると屈折率分布ミラーが形成される。その条件で、ビーム径が小さくなるように設計しておき、ビーム径の大きい条件では、周辺部光をカットするようなスリットを入れておく。その結果、強い光の場合に開くシャッタ動作が得られる<sup>[14]</sup>。

得られるパルス時間広がり<sup>[14]</sup>の究極的な最小値は、スペクトル幅の逆数程度である。しかし、光が物質中を伝播する際に、群速度分散や自己位相変調のため、チャープ(図1.6)した時間的に広がったパルスになる。群速度分散は、主に、ビームスプリッタや複屈折フィルタで生じ、自己位相変調は、Ti:サファイア結晶で生じる。チャープしたパルスは、逆の群速度分散を持つ機構で補償することで、パルス幅を圧縮できる。ここでは、プリズム対(図1.7)を用いている。プリズムを出し入れすることにより、逆分散の量を調節し、最適なパルスを形成することができる。本システムで得られるパルス幅は、150 fs程度である。また、繰り返し76 MHz、平均出力600 mW、波長域は720~810 nmである。

(ストリークカメラ)

ピコ秒領域で比較的感度よく、時間分解光検出が可能である。本研究では、浜松ホトニクス社製モデルC1587を用いた。原理<sup>[13]</sup>は図1.8に示す。光電面に入射した光により発生した電子を光電面に垂直(z)方向に加速した後、トリガ信号に同期して時間的に一定の率で増加する掃引電界でそれと直行(x)方向に加速する。さらに、マイクロチャンネルプレートで増幅後、スクリーンに入射する。スクリーンに到着したx方向の位置は、電子が掃引電界による加速区間を通過した時点の電界の大きさによって決まるため、トリガ信号と入射光との時間間隔を表すことになる。スクリーンは2次元であるため、分光器を通すことによってy方向を波長軸として使える。従って、スクリーンに入

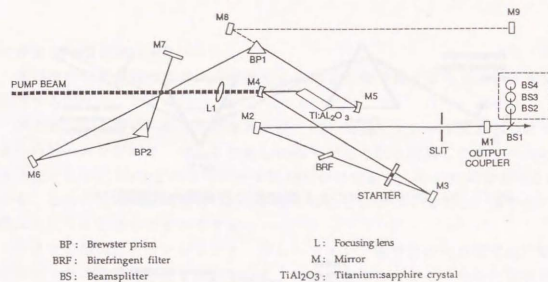


図1.4 Ti:サファイアモードロックレーザの内部構成図<sup>[14]</sup>。

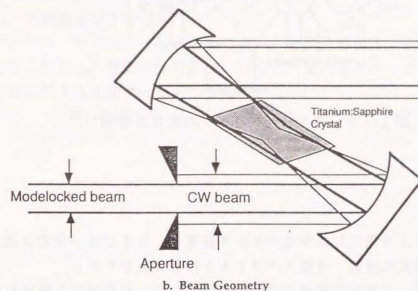
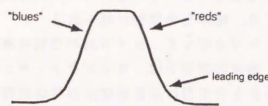


図1.5 受動モードロック用の光シャッタの概念図<sup>[14]</sup>。



Positive Chirp — Red Frequency Components Lead The Blues (Results From + GVD)

図1.6 チャープの説明図<sup>[14]</sup>。



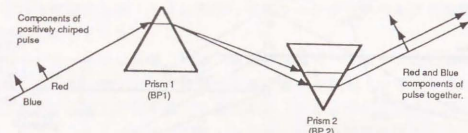


図 1. 7 プリズム対による群速度分散補償の原理図<sup>(14)</sup>。

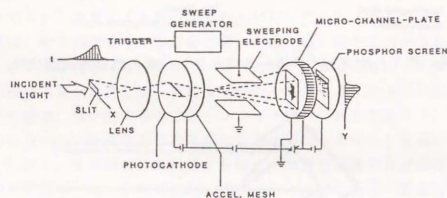


図 1. 8 ストリークカメラの動作原理図<sup>(13)</sup>。

射した電子により発生したルミネッセンス強度を、SITカメラで2次元的に読み取り、入射光の波長・時間スペクトルを得ることができる。

本研究では、x方向の電界の掃引モードとして、同期掃引と呼ばれるモードを主に用いた。このモードでは、一定周期をもつトリガ信号に掃引を同調させるため、高繰り返しが可能で、そのため感度がよい。トリガ信号は、モードロックドライバから供給し、モードロックレーザーパルスに同期した正弦波(82 MHz)の掃引電界を発生させる。その電界のうち、時間に線形なゼロをよき近傍を使うことにより、線形な時間軸が得られる。

検出時間分解能は、トリガジック、カメラ系の空間分解能、分光器による時間広がり等で決まる。通常の測定では、キャビティ・ダンパをCWモードにした場合は、トリガジックと分光器による時間広がり同程度であり、そうでない場合は、分光器による時間広がりに制限され、FWHMで約80psである。また、ダイナミックレンジは2~3けたである。

(非線形時間分解分光法)

光非線形材料や試料自体の光非線形性を用いる方法で様々なバリエーションが存在する<sup>(9)</sup>。

例えば、よく用いられる和周波発生法では、短パルスレーザー光を2つに分け、1つのビームを試料に入射して発生した信号光とそれと同期したもう一方のパルス光をLiIO<sub>3</sub>などの2次の光非線形材料に照射し、その和周波信号を検出する。2つの光の時間間隔を行路差を変えることによって掃引し、信号光の時間スペクトルを得ることができる。

本研究で用いたトランジェント・グレーティング法や自己回折法では、試料自体の3次の光非線形性を用いている。初期のパルスによって生じた励起状態に次のパルスを角度をつけて入射すると、励起状態の位相と光の位相が干渉し、非線形効果により回折光が発生する。2つのパルスの時間間隔を掃引して、回折光の強度変化を測定し、励起状態の様子の時間変化が評価できる。それぞれの詳細は、各研究項目で述べる。

この方法では、光検出器は低速の物でよい。時間分解能は、レーザーパルス幅程度である。ただし、精密な解析には、パルスの真の時間スペクトルの形状や非線形効果に関する情報が必要となる場合がある。

## (第1章参考文献)

1. 例えば, 超格子ヘテロ構造デバイス, 江崎玲於奈, 榊裕之編
2. L. Esaki and R. Tsu, IBM. J. Res. Develop. 14, 61 (1970).
3. T. C. L. G. Sollner, P. E. Tannenwald, D. D. Peck and W. D. Goudhue, Appl. Phys. Lett. 45, 1319 (1984)
4. S. Hirose and T. Kamiya, Gallium Arsenide and Related Compound, Inst. Phys. Conf. Ser. No. 65, 193 (1983).
5. Y. Arakawa, H. Sakaki, M. Nishioka and J. Yoshino, Appl. Phys. Lett. 46, 519 (1985).
6. A. J. DeMaria, D. A. Stetser and H. Heynau, Appl. Phys. Lett. 8, 174 (1966).
7. J. S. Courtney-Pratt, Research Supplement (London), 2, 287 (1949).
8. 土屋裕, 犬塚英治, テレビ学会全国大会予稿集, 407 (1979).
9. Ultrashort Laser Pulses and Applications (Topics in Applied Physics Vol. 60), edited by W. Kaiser (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
10. 秋山英文, 松末俊夫, 榊裕之, 物理学会第47回年会 28pW-5 (1992).
11. C. V. Shank, in Ultrashort Laser Pulses and Applications (Topics in Applied Physics Vol. 60), edited by W. Kaiser (Springer-Verlag, Berlin, 1988), Chap. 2.
12. Instruction Manual of 344 Cavity Dumper (Spectra Physics).
13. 土屋裕, 東京大学工学部学位論文 (1985).
14. Mira Model 900 Laser Operation's Manual (Coherent).

## 2. 量子井戸構造におけるキャリアの発光再結合過程

### 2. 1 序論

量子井戸(QW)構造におけるキャリアの発光再結合過程は, 光デバイス動作特性を支配する重要な過程である。それまで, ノンドープGaAs/AlGaAs QWを用いて, キャリア寿命を測定するいくつかの実験が行われていた<sup>1)~5)</sup>。大部分は, 低温での測定であるが, 励起子効果や非発光成分の寄与が不明確であった。また, 他の実験では, 高温で, 自由キャリアによるバンド間発光再結合寿命の測定が行われているが, やはり, 非発光成分, キャリア密度やその他の実験的な不確定性のため, 十分な評価ができていない状況ではなかった。

本研究<sup>6), 7), 8)</sup>では, 変調ドープGaAs/AlGaAs構造を用い, ピコ秒レーザによる時間分解蛍光測定を行い, 自由キャリア領域から励起子領域の発光再結合過程を, 低温から室温にわたって, 系統的に調べた。変調ドープ構造には, キャリア密度を正確に制御できる点の他, 弱励起では, 減衰時間が一定になる点など, いくつかの実験的な利点がある。本研究により, 自由キャリア領域では, バンド間発光再結合モデルで理解できること, 低ドープの励起子が安定に存在する場合においても, キャリア寿命に関しては, 励起子効果が小さく, それは, 熱分布する励起子のうち発光可能な励起子の割合が小さいためであることなどが明らかになった。

相前後して, 残された課題についてもいくつかのグループによる様々な側面からの研究が進展している。特に, 励起子効果について, 振動子強度と可干渉面積との関係<sup>9)</sup>や励起子の選択励起した場合のキャリア寿命の短縮<sup>10)</sup>などが報告されている。本研究による成果と合わせて, 発光再結合過程に関する理解が深まっている。

### 2. 2 高ドープ量子井戸構造における発光再結合係数とその温度依存性

#### 2. 2. 1 序論

量子井戸を利用した光素子において発光再結合過程は動作特性を支配する重要な過程である。例えば, 量子井戸レーザにおいては, 閾値や応答速度等に影響を与えるが, レーザの場合は, キャリア密度が大きいため, 自由キャリアによる再結合過程が特に重要となってくる。その場合の自由キャリアの発光再結

合速度は、

$$dn/dt = dp/dt = -B \cdot n \cdot p = -p/\tau_p \quad (2.1)$$

$$B = 1/(\tau_p \cdot n) \quad (2.2)$$

と、ほとんどキャリア密度に依存しない量  $B$  (発光再結合係数) と、電子密度 ( $n$ ) および正孔密度 ( $p$ ) で表される<sup>(11)</sup>。

今までのノンドープの試料を用いた実験では、レーザー光による励起電子・正孔密度の不確定性が入った他、エキシトン効果の混在や、非発光成分の寄与のため、真の発光再結合係数の正確な評価ができていない。そこで、本研究では、変調ドープ量子井戸を用いて、発光再結合過程を調べた<sup>(6,7)</sup>。

## 2. 2. 2 実験方法

### a. 実験原理および変調ドープ量子井戸構造における発光再結合過程の特徴

実験の概念図を図 2. 1 に示す。GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 量子井戸構造の AlGaAs 層に高ドーピングを行い、短パルスレーザーによる励起 (弱励起) 後の蛍光の減衰時間を測定することにより、発光再結合係数を信頼性よく決定した。高ドーピングを行ったことは、以下の 3 つの重要な点を持つ。第 1 は、図 2. 3 に示すように、励起子の寄与が抑制され、そのため、発光再結合過程は、自由キャリアで支配される<sup>(12)</sup>。第 2 は、この場合の蛍光 (PL) 強度  $I_{PL}$  は、ドーピング密度  $n_0$ 、励起密度  $\Delta n$  を用い、

$$I_{PL} = d\Delta n/dt = -B(n_0 + \Delta n) \cdot \Delta n \sim -Bn_0\Delta n \quad (2.3)$$

$$dI_{PL}/dt \sim -Bn_0I_{PL} = -I_{PL}/\tau_{PL} \quad (2.4)$$

となる<sup>(11)</sup>。したがって、 $B$  は  $1/(\tau_{PL} \cdot n_0)$  となるため、正確に求める  $\tau_{PL}$  とドーピング電子密度  $n_0$  で決定することができる。第 3 は、発光再結合成分に対する非発光再結合成分の相対的寄与が抑制される。これは、発光再結合速度が  $Bn_0\Delta n$  であり、ドーピング密度  $n_0$  に比例することによる。

### b. 試料構造および測定法

試料作製には、分子線エビタキ法を用い、GaAs (001) 基板上に、

基板温度 660°C で成長を行った。まず、GaAs バッファ層を 3000 Å 成長し、GaAs (90 Å) / n-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As (240 Å) 50 周期、その後 GaAs キヤップ層を 200 Å 成長した。n-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As は、40 Å のスペーサ層を成長後、Si を  $\sim 8 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$  で 120 Å ドーピングし、後の 80 Å をスペーサ層としてある。スペーサ層を非対称にした理由は、結晶成長中、Si が成長方向へ偏析する<sup>(13)</sup>のを補償するためである。ホール測定により、測定したキャリア密度は、井戸 1 層当り  $1 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$  であった。

測定は、図 2. 2 に示すように、モードロック色素レーザー (ピリジン 2) からのレーザーパルスで、試料を励起した後の PL を、分光器を通した後、ストリークカメラで時間分解検出した。時間積分測定の場合は、GaAs 光電面の光電子倍增管 (浜松ホトニクス・R636) を用いた。レーザーのパルス幅は  $< 30 \text{ps}$ 、波長  $\sim 735 \text{nm}$ 、強度  $\sim 50 \text{mW/cm}^2$ 、ビーム径  $\sim 450 \mu\text{m}$ 、繰返し  $41 \text{MHz}$  であり、検出系の分解能は  $\sim 100 \text{ps}$  である。レーザーのエネルギーは、井戸層のみを励起するようになっている。励起キャリア密度は、 $10^9/\text{cm}^2$  程度であり、ドーピング量 ( $10^{12}/\text{cm}^2$ ) に比べ、十分に小さい。

### 2. 2. 3 実験結果および考察

#### a. キャリア寿命および発光再結合係数の温度依存性

図 2. 3 は、18K での PL スペクトルと吸収スペクトルを示す。波長 795 nm の比較的幅の広い PL ピークは、FWHM が 130 nm であり、ドーピングされた QW に典型的な形状である。このピークは、電子および重い正孔の基底サブバンド間遷移によるものである。スペクトル広がりのため、軽い正孔が関与するピークは分離していない。820 nm 付近のピークは、GaAs 基板からのものである。

ストリークカメラで測定した PL 強度  $I(t)$  の時間変化の典型的な例 [強励起 (a)、弱励起 (b)、(c)] を図 2. 4 に示す。弱励起 ( $\Delta n < 10^{11} \text{cm}^{-2}$ ) の場合、予想されるように、 $I(t)$  は、指数関数的に減衰している。それと対照的に、 $\Delta n$  がドーピング密度より大きい場合は、励起初期の減衰時間が短くなっている。これも、前述の議論で予想される振舞いである。

弱励起で PL 強度の減衰時間  $\tau_{PL}$ 、すなわちキャリア寿命を測定した結果を図 2. 5 に示す。同時に示している発光再結合係数  $B$  は、 $1/(N_0 \tau_{PL})$  より評価した。キャリア寿命は、300K で 5.2 ns であり、温度が下がるとそ

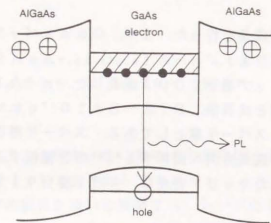


図 2. 1 試料構造および発光再結合過程の模式図。

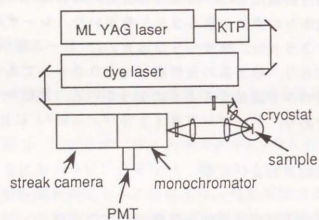


図 2. 2 測定系。

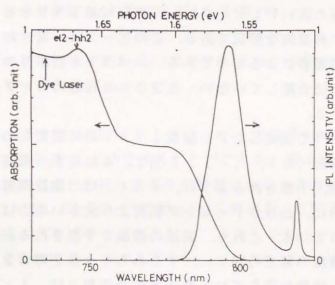


図 2. 3 GaAs/n-AlGaAs MQW (井戸幅90Å) のPLスペクトルおよび吸収スペクトル。T = 1.8 K。

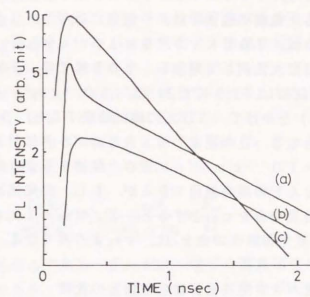


図 2. 4 発光強度の時間変化の測定例。

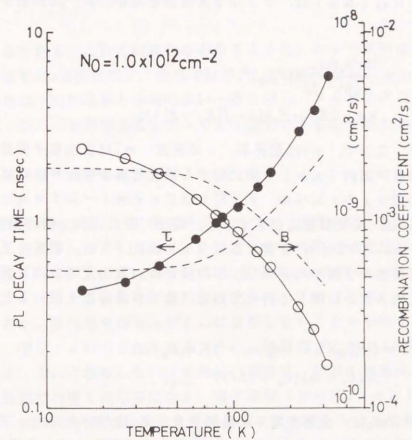


図 2. 5 キャリア寿命 ( $\tau$ ) および発光再結合定数 ( $B$ ) の温度依存性。破線は理論計算値 (本文参照) を示す。

れにはほぼ比例して短くなり、100Kで1.1nsとなる。さらに温度が下がると、減少傾向が弱まる。低温の極限では、一定値に近づき、15Kで430psとなる。従って、Bは、300Kで $1.9 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$ であり、温度の減少と共に、温度にはほぼ反比例して増加し、100Kで $8.7 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$ となる。低温では飽和し、15Kで $2.3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ となる。Bに井戸幅 $L_w (= 90 \text{ \AA})$ をかけて、3次元の値に換算すると、300Kで $1.7 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ となる。この値は、GaAsのバルクに対して、一般的に言われている値 $\sim 2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ に近い。後述するように、本実験では、非発光過程は、ほとんどの場合無視できるが、もし、非発光過程がいくらか影響する場合は、非発光寿命を $\tau_{nr}$ とすると、 $1/\tau_{pl} = 1/\tau_r + 1/\tau_{nr}$ となる。従って、真の発光再結合寿命 $\tau$ は、 $\tau_{pl}$ より長くなる。

#### b. 自由キャリアによるバンド間発光再結合理論との比較

実験データを解釈するため、 $\tau_c$ とBの温度依存性の理論的検討を行った。自然放出レート $R_{sp}(\hbar\omega)$ は、フェルミ黄金律を用い、k-選択則が成り立つとして、

$$R_{sp}(\hbar\omega) = \frac{16e^2 n_r \hbar \omega}{m_0^2 \hbar^2 c^3} \sum_{ij} \langle |P_{ci-ij}|^2 \rangle \times \rho_{cv} f(E_{ci} - F_c) [1 - f(E_{ij} - F_v)], \quad (2.5)$$

と書ける<sup>11)</sup>。ここで、 $n_r$ は屈折率、 $c$ は光速、 $m_0$ は自由電子質量、 $\rho_{cv}$ は電子・正孔の井戸内(x,y)方向に関する換元状態密度、 $F_{c(v)}$ は伝導帯(価電子帯)の擬フェルミレベル、 $f(E)$ はFermi-Dirac分布関数を表す。 $\rho_{cv}$ は、有効質量近似をすると、電子・正孔のxy面の換元質量 $m_{r,ss}$ を用いて、 $m_{r,ss}/2\pi\hbar^2$ と書ける。 $\langle |P_{cv}|^2 \rangle$ は、電子・正孔間の運動量遷移行列要素の2乗平均を表し、平均操作は、放出光の方向と偏光、および電子と正孔のスピンに関して行っている。k-p摂動論を用いると、

$$\langle |P_{cv}|^2 \rangle = \langle |P_{ci-1j}|^2 \rangle = (m_0/m_c - 1)(m_0 E_g / 12) \times (E_g + \Delta)(E_g + 2\Delta/3)^{-1} \eta_{cv,ij}^2, \quad (2.6)$$

と書ける<sup>11)</sup>。 $m_c$ は、伝導帯電子の有効質量、 $E_g$ はバンドギャップ、 $\Delta$ はスピン軌道分離エネルギー、 $\eta_{cv}$ は電子と正孔の波動関数の重なり積分を表す。このモデルを用い、全発光再結合レート(=BN $\cdot\Delta N$ )と寿命を計算する。

熱平衡化の速度は速いので、電子および正孔はそれぞれ、伝導帯および価電子帯において量子準位内および量子準位間で熱平衡分布をしているとみなす。分散関係の非放物線性、サブバンド間結合、励起子効果、多体効果などは無視した。それらがキャリア寿命におよぼす効果は、ファクタ2程度以下であり、温度依存性に対しては、さらに効果が小さいと考えられる。

計算結果は、図2.5の破線で示す。

高温でキャリア寿命が温度に比例する理由は、キャリアがボルツマン分布をするため、励起準位を無視するため、

$$\frac{1}{\tau} = \frac{8e^2 n_r}{m_0^2 \hbar^2 c^3} \langle |P_{cv}|^2 \rangle \frac{\pi \hbar^2}{m_c + m_v} N_0 \frac{E_{ul}}{kT}, \quad (2.7)$$

と近似できるからである。 $E_{ul}$ では、電子の基底準位と正孔の基底準位間のエネルギー差である。一方、低温で、キャリア寿命が一定値になる理由は、キャリア分布が縮退するため、

$$\frac{1}{\tau} = \frac{8e^2 n_r}{m_0^2 \hbar^2 c^3} \langle |P_{cv}|^2 \rangle E_{ul} \quad (2.8)$$

となるからである。これらの式からわかるように、キャリア寿命は、 $N_0$ に対しては、高温で $N_0$ に反比例し、低温では $N_0$ によらなくなる。

計算結果は、実験結果と比較的良好一致を示し、ドーピングQWの発光再結合過程が、このバンド間発光モデルでよく説明できることがわかる。

#### c. 非発光過程に関する検討

次に、発光再結合過程が非発光過程に比べて、支配的であることを確認するため、PL強度 $I_{pl}$ やPL寿命 $\tau_{pl}$ の温度依存性や励起強度依存性を調べた。

励起強度 $I_{ex}$ に対し、 $I_{pl}$ が $I_{ex}^a$ に比例するとした時のaは、0.8~1.0となり、 $I_{pl}$ は、 $I_{ex}$ にはほぼ線形に変化した。このことは、非発光成分は、無視できるか、非発光寿命 $\tau_{nr}$ が $I_{ex}$ に依存しないことを示唆する。

$\tau_{pl}$ は、図2.4に示されているように、強励起( $\Delta N > 10^{12}/\text{cm}^2$ )の場合を除き、 $I_{ex}$ に依存しない。強励起の場合は、初期の減衰時間が短く、その後、弱励起での値と同じ値になる。電子密度( $N = N_0 + \Delta N$ )が、強励起( $N_0 < \Delta N$ )の時は時間的に変化する。弱励起では変化しない実験結果は、bimolecular発光過程によってよく説明できるが、非発光過程では説明しにくい。なぜなら、非発光寿命は、オージェ過程の場合を除き、通常励起強度

に依存しないか強励起で減少するからである。

PL強度  $I_{PL}$  の温度依存性は、図 2. 6 に示す。ここでは、温度により PL 波長が変化するため、検出系の感度スペクトルの補正を行っている。その際、検出系の感度スペクトルの較正は、次のようにして行なった。まず、W ランプのスペクトルを分光器を通し、PMT で測定し、次に、W ランプの発光スペクトルを 2800℃ の黒体輻射と見なして測定スペクトルを補正し、検出系の感度スペクトルとした。

160K 以下では、 $I_{PL}$  が、ほぼ一定であり、このことは、非発光成分が無視できることを示唆する。160K 以上では、 $I_{PL}$  が幾分減少し、何らかの非発光成分が現れていると思われる。200K 程度で非発光成分が活性化しているとみなすと、その活性化エネルギーは、約 20 meV となる。しかし、 $I_{PL}$  の減少は大きくはない。300K で、減少率は 40% であり、その時の  $\tau_{nr}$  は、 $\tau_{PL} / \tau_{nr} = 0.4$  の関係を使うと、1.2 ns と評価できる。この  $\tau_{nr}$  を考慮すると、300K での真の  $\tau_{PL}$  (B) は、5.2 ns ( $1.9 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 / \text{s}$ ) から 9.0 ns ( $1.1 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 / \text{s}$ ) に補正される。

## 2. 2. 4 結論

変調ドープ構造を用い、量子井戸構造中の自由キャリアの発光再結合係数を  $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  のキャリア密度、15~300K の温度領域で実験的に決定した。また、バンド間発光再結合理論を用いて、実験結果がよく説明できることを示した。

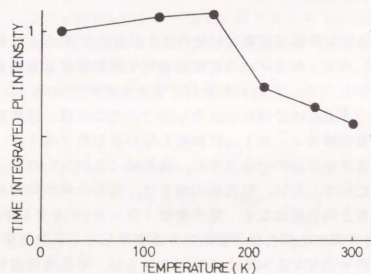


図 2. 6 PL 強度の温度依存性。

## 2. 3 発光再結合過程のドーピング密度依存性

### 2. 3. 1 序論

量子井戸構造における自由キャリアや励起子の発光再結合過程は、2次元電子物性や様々なデバイス応用の面から基本的で重要な課題である。これまで、いくつかの論文が報告されている<sup>(1)-(5)</sup>が、真のキャリア寿命に関しては、明確になっていなかった。前節では、高ドーピング量子井戸構造を用い、自由キャリアの発光再結合過程を詳しく調べた。本研究では、ドーピングキャリア密度  $N_D$  が異なる変調ドープ QW 構造を用い、自由キャリア領域から、励起子効果が大きい領域にわたって、系統的に調べた<sup>(9)</sup>。

### 2. 3. 2 試料構造および測定法

試料として、ドーピング密度の異なる変調ドープ量子井戸構造を 4 種類 (A~D) 作製した。試料の作製方法および構造は、2. 2 節と同様である。90 Å-GaAs / 240 Å-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As の多重量子井戸構造 (15~50 周期) に Si を選択ドープしてある。量子井戸部は、GaAs を 90 Å 成長後、ノンドープ Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As を  $L_{S1}$ 、n-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As を  $L_D$ 、ノンドープ Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As を  $L_{S2}$  成長した。試料 (A) は、 $L_{S1} = 90 \text{ Å}$ 、 $L_D = 20 \text{ Å}$ 、 $L_{S2} = 130 \text{ Å}$ 、周期 15、試料 (B) は、 $L_{S1} = 80 \text{ Å}$ 、 $L_D = 40 \text{ Å}$ 、 $L_{S2} = 120 \text{ Å}$ 、周期 15、試料 (C) は、 $L_{S1} = 60 \text{ Å}$ 、 $L_D = 80 \text{ Å}$ 、 $L_{S2} = 100 \text{ Å}$ 、周期 15、試料 (D) は、 $L_{S1} = 40 \text{ Å}$ 、 $L_D = 120 \text{ Å}$ 、 $L_{S2} = 80 \text{ Å}$ 、周期 50 である。ホール測定で測定したキャリア密度は、それぞれ、(A) 1. 3、(B) 2. 8、(C) 5. 3、(D)  $10 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} / \text{we} 11$  である。キャリア寿命の測定は、2. 2 節と同様に、モードロック色素レーザー (波長 ~ 7200 Å) を用いてキャリアを励起し、ストリークカメラで PL の時間分解測定を行った。

### 2. 3. 3 実験結果および考察

#### a. キャリア寿命の温度依存性

図 2. 7 に、4 つの試料におけるキャリア寿命の温度依存性を示す。挿入図

は、同様の構造の吸収スペクトルを示す。キャリア密度  $N_0$  が  $2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  までは励起子効果が顕著に現れているが、 $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  以上では、励起子の寄与が消滅していることがわかる。

まず、励起子が消滅している高ドーパの試料 (C, D) について考える。キャリア寿命は、低温では、ほぼ一定 ( $\sim 400 \text{ ps}$ ) の値をとり、温度上昇とともに単調に増加する。高温では、一部非発光再結合の寄与があると推定されるが、前述の自由キャリアの発光再結合モデルで比較的良好に説明できる。すなわち、電子分布が縮退する ( $E_F \gg kT$ ) 低温では、キャリア寿命は一定値になり、ボルツマン分布になる高温では、 $T$  に比例する。自由キャリアのモデルで説明できることは、吸収スペクトルに示されているように、高ドーピングにより励起子効果が消滅していると考えられる<sup>(12,14)</sup> ことから、妥当である。励起子発光の成分が大きいと考えられる低ドーパの試料 (A,  $1.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ) においても、キャリア寿命は、温度にほぼ比例して増加している。この温度依存性は、次のように説明できる。

発光再結合可能な励起子は、運動量保存則により、重心運動量  $K$  が再結合で放出する光の運動量 ( $\sim 0$ ) と等しいものに限られる (図 2. 8)。  $K \sim 0$  の励起子の割合  $r(T)$  は、温度が上がると減少する。ボルツマン分布で近似すると、 $r(T) = 1 - \exp(-\Delta/kT)$  と書ける。ここで、 $\Delta$  は状態のエネルギー広がりを表し、均一広がり等に関係すると考えられる。従って、実効キャリア寿命は、 $K \sim 0$  の励起子のキャリア寿命  $\tau_0$  を用いて、 $\tau_0/r(T) \sim \tau_0 \cdot kT/\Delta$  ( $\Delta \ll kT$  の場合) となり、 $T$  に比例すると予測される。

#### b. キャリア寿命のキャリア密度依存性と励起子効果

励起子効果を検討するため、各温度におけるキャリア寿命のドーピング密度依存性を図 2. 9 (a) に示す。図 2. 9 (b) には、自由キャリアの発光再結合モデルによる計算値を示す。励起子の振動子強度は、自由キャリアの振動子強度に比べて、大きいと考えられている。それに反し、キャリア寿命の密度依存性の測定値は、自由キャリアだけを考えた計算結果とよく似ていて、励起子効果による顕著な変化は見られない。この事実は、吸収スペクトルに現れる顕著な励起子効果と対照的である。その理由は、前述のように、発光過程においては、熱分布した中で  $K \sim 0$  の励起子のみが発光再結合可能であるため、励起子の寄与が小さくなることによっていると考えられる。

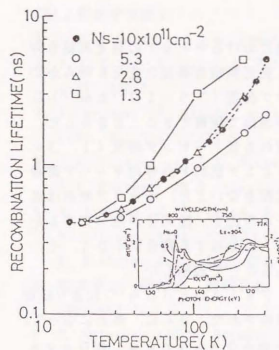


図 2. 7 ドーピング量 ( $N_s$ ) の異なる試料におけるキャリア寿命の温度依存性。挿入図は、同様の構造の吸収スペクトルを示す。

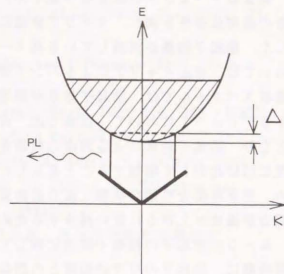


図 2. 8 励起子の発光許容状態の概念図。

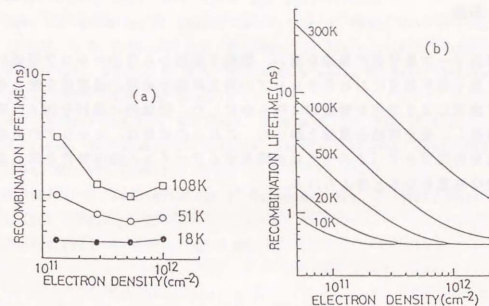


図 2. 9 キャリア寿命のドーピング電子密度依存性。(a) 測定値、(b) 励起子効果を無視した発光再結合理論による計算値。

## 2. 3. 4 結論

異なるドーピング密度をもつ量子井戸構造におけるキャリアの発光再結合寿命の温度依存性を調べ、キャリア密度による発光再結合過程の変化を明らかにした。励起子効果が消滅している高ドーピング密度 ( $> 5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ) においては、自由キャリアによるバンド間遷移理論で理解できることを示した。吸収スペクトルでは、励起子効果が顕著に現れる低ドーピング密度 ( $1.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ) において、低温では、高ドーピング試料と同等のキャリア寿命となり、励起子効果による寿命の短縮化等は起きないこと、キャリア寿命は温度にほぼ比例して増加することを示した。その原因を、励起子が熱分布するため、発光再結合可能な状態 (重心運動量  $\sim 0$ ) に分布する割合が小さく、その割合が温度が上がるに従い減少するためであることで説明した。

$K \sim 0$  の励起子の振動子強度に関しては、Feldmannら<sup>19)</sup>によりほぼ同時期に、励起子の可干渉面積との関係が報告された。さらに、最近になって、 $K \sim 0$  の励起子の選択励起による励起子の短寿命化 ( $\sim 10 \text{ ps}$ ) がDeveaudら<sup>11)</sup>により観測された。また、発光可能な励起子に関しては、その後、ポラリトン描像を基にした理論的検討がされている<sup>11)</sup>。それによると、光と励起子系の分散関係において、反交差する運動量より小さい運動量領域の励起子が発光可能としている。

## 2. 4 結論

$n$ 型変調ドーピング量子井戸構造を用い、励起子領域から自由キャリア領域にわたって、量子井戸構造におけるキャリアの発光再結合過程の温度依存性とそのキャリア密度による変化を実験的に明らかにした。理論的に検討を加え、実験結果を解釈し、発光再結合機構を論じた。これらの成果は、キャリアの発光再結合過程を利用するデバイスやそれが関与するデバイスの動作特性を考える上でも重要な知見となると考えられる。

## (第2章参考文献)

1. G.W. 'tHooft and C.v. Opdorp, Appl. Phys. Lett. 42, 813 (1983).
2. E.O. Gobel, H. Jung, J. Kull, and K. Ploog, Phys. Rev. Lett. 51, 1588 (1983).
3. Y. Arakawa, H. Sakaki, M. Nishioka, and J. Yoshino, Appl. Phys. Lett. 46, 519 (1985).
4. J.E. Fouquet and A.E. Siegman, Appl. Phys. Lett. 46, 280 (1985); J.E. Fouquet, Ph.D. thesis, Stanford University, 1985.
5. D. Bimberg, J. Christen, A. Werner, M. Kunst, G. Weimann, and M. Schlapp, Appl. Phys. Lett. 49, 76 (1986); J. Christen and D. Bimberg, Surf. Sci. 174, 261 (1986).
6. 松木俊夫, 榊裕之, 西岡政雄, 荒川泰彦, 第47回応用物理学会, 29p-C-10 (1986).
7. T. Matsusue and H. Sakaki, Appl. Phys. Lett. 50, 1429 (1987).
8. 松木俊夫, 土屋昌弘, 榊裕之, 東京大学生産技術研究所電気話会報告, Vol. 38, No. 34 (1988).
9. J. Feldmann, G. Oeter, E.O. Gobel, P. Daeson, K. Moore, C. Foxon and R. J. Elliott, Phys. Rev. Lett. 59, 2337 (1987).
10. B. Deveaud, F. Clerot, N. Roy, K. Satzke, B. Sermage and D. S. Katzer, Phys. Rev. Lett. 67, 2355 (1991).
11. See, for example, G. Lasher and F. Stern, Phys. Rev. A 133, 553 (1964); H.B. Bebb and E.W. Williams, in Semiconductors and Semimetals, edited by R.K. Willardson and A.C. Beer (Academic, New York, 1972), Vol. 8, Chap. 4.
12. R.C. Miller and D.A. Kleinman, J. Lumin. 30, 520 (1985).
13. K. Inoue, H. Sakaki, J. Yoshino, and Y. Yoshioka, Appl. Phys. Lett. 46, 973 (1985).
14. H. Sakaki, H. Yoshimura and T. Matsusue, Jpn. J. Appl. Phys. 26, L 1104 (1987).
15. J. Aaviksoo, J. Lumin. 48 & 49, 57 (1991).



### 3. 障壁層から井戸層へのキャリア注入過程

#### 3. 1 序論

キャリア注入過程は、図3. 1に示すように、障壁層でのキャリアの拡散、バリスティック移動、井戸層への捕獲、井戸層でのエネルギー緩和などからなっている。このような過程は、量子井戸レーザ等のキャリア注入型光デバイス の時間応答などに密接に関係している。拡散やバリスティック移動の寄与は、障壁層の厚さや障壁層中での散乱時間に依存する。捕獲やエネルギー緩和に関しては、井戸内量子準位と障壁層のバンド端との相対関係により、大きく変化する可能性がある。

それまでの関連する研究は、AlGaAsバルク中の拡散について、Hilmerら<sup>[11]</sup>の10 $\mu$ m程度の距離を拡散する時間をパルスレーザを用いて測定した初歩的な実験があった。

Shichijoら<sup>[12]</sup>は、井戸幅(L<sub>w</sub>)の異なる量子井戸を並べた構造において、障壁層をCWレーザで励起した場合の各井戸層からのPL強度の測定をしている。L<sub>w</sub>が100Å程度より小さくなるとPL強度が減少し、それが捕獲率が低下することによるとしている。

また、Mishimara<sup>[13]</sup>は、異なる井戸幅(L<sub>w</sub>)の量子井戸層が並ぶ構造で、各井戸層からの発光強度の励起強度依存性を測定し、それがL<sub>w</sub>に対して振動することから、井戸層への捕獲のしやすさが、伝導帯の量子準位と障壁のバンド端との相対関係によって変化するためであるとしている。

理論的には、Brumら<sup>[14]</sup>が量子井戸構造における電子および正孔の井戸層への注入時間を計算していた。QWの量子準位が、障壁層のバンド帯よりLOフォノンエネルギーだけ下に位置するようにL<sub>w</sub>の時、注入時間が極小値をとることを示した。ただし、障壁層での拡散やキャリア移動を考慮せず、波動関数が、1 $\mu$ mオーダーの厚さの障壁層全体に広がっていると仮定し、電子と正孔の相関も無視している。

このように、キャリアの井戸層への注入過程に関連するいくつかの報告がされていたが、そのキャリア注入ダイナミクスを直接的に測定し、明確にした研究は、ほとんどない状況であった。

本研究では、時間分解蛍光測定法により、異なった障壁幅、井戸幅を持ち、外側をAlAsで囲んだGaAs/AlGaAs量子井戸構造でのキャリア注入ダイナミクスを系統的に調べ、物理モデルの検討を行った<sup>[5]</sup>。本研究とは同時期に独立して、Uchikiら<sup>[8]</sup>は、同様の測定法で、キャリアの井戸

層注入過程の研究を行っている。彼らの用いた試料は、AlGaAsの組成が異なる他、AlGaAs障壁層中に3種類の井戸幅が異なるGaAs井戸層を並べているため井戸間の相関の寄与が入ったり、障壁層の外側が、n-GaAs層になっているため、障壁層のキャリアが外側へ流出したりするなど、複雑な過程になっている。本研究ではより単純な過程になる構造を持ち、井戸幅、障壁幅の異なる複数の試料を用いているため、相補的な知見を与えるとともに、測定結果の意味がより明確であると考えられる。

相前後して、様々な量子井戸構造、組成、温度において、関連する課題についての研究が進展している。組成が一定の障壁層構造に関するもの<sup>[8,7,11]</sup>の他、組成を変化させたGRIN構造に関する研究<sup>[7]</sup>が行われている。また、障壁幅のより薄い構造で、キャリア移動の関与しない場合の井戸への捕獲時間が報告されている<sup>[9]</sup>。

本研究やこれらの研究により、キャリアの井戸層への注入過程の様々な側面が明らかになり、理解が大きく進んでいる。

#### 3. 2 試料構造および測定法

実験には、図3. 2に示すように、両側をAlAsで囲んだ障壁層(Al<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>As)の中央または端にGaAs井戸層を持つ試料を用いた。試料は、MBE法を用いて、半絶縁性GaAs(001)基板に、基板温度600°Cで結晶成長を行って作製した。GaAsバッファ層を60秒の成長中絶後、AlAsを80Å、Al<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>Asを厚さL<sub>B1</sub>、GaAsを厚さL<sub>w</sub>、Al<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>Asを厚さL<sub>B2</sub>、AlAsを80Åの順で成長し、最後にGaAsキャップ層を200Å成長した。L<sub>w</sub>は、55Å、70Å、90Å、120Å、L<sub>B1</sub>、L<sub>B2</sub>は、500Å、2000Å、8000Å、1.6 $\mu$ mとした。

測定原理は、図3. 2に示す。レーザパルスで障壁層および井戸層にキャリアを励起する。生成されたキャリアは、井戸面に垂直(z)方向に吸収係数で決まる空間分布をする。励起後、障壁層中のキャリアは、数10ps以下でバンド端付近へエネルギー緩和するとともに、拡散過程等障壁層中を移動する。井戸層近傍に存在するキャリアは、ある割合で井戸に注入される。その結果、障壁層中のキャリア寿命は、発光再結合寿命に比べて短くなる。一方、井戸層中のキャリア密度は、障壁層からのキャリア注入レートが大きい場合、初め増加した後、減少に転じる。キャリア密度はPL強度に反映されるので、障壁層および井戸層それぞれからのPL強度の時間変化を測定し、キャリアダイナミクスを評価できる。測定系は前章と同様(図2. 2)に、モードロック色糸

レーザ（ヒリジン2）からのレーザパルスで、試料を励起した後のPLを、分光器を通した後、ストロークカメラで時間分解検出した。時間積分測定の場合、GaAs光電面の光電子倍增管（浜松ホトニクス・R636）を用いた。レーザのパルス幅は $<30\text{ ps}$ 、繰り返し $41\text{ MHz}$ であり、検出系の分解能は $\sim 80\text{ ps}$ である。試料は、Heガス循環型クライオスタットで冷却した。 $L_B$ 依存性により、拡散過程の寄与、 $L_w$ 依存性により、井戸層中の行路長変化による古典的效果や、井戸内準位と障壁層バンド端との相関等の量子効果などを調べた。

### 3. 3 実験結果および考察

#### 3. 3. 1 キャリア注入時間の障壁層幅依存性

図3. 3は、 $L_{B1}=L_{B2}=2000\text{ \AA}$ 、 $L_w=55\text{ \AA}$ の試料において、井戸層からのPLピークに検出波長を設定した場合の励起スペクトルを示す。励起エネルギーが障壁層のバンドギャップを越えると、PL強度が顕著に増加している。障壁層上を励起した場合に、大量のキャリアが井戸へ注入されていることがわかる。障壁層上を励起した場合に発光の時間変化を測定すると、図3. 4のようになる。障壁層発光の発光寿命は短く、井戸からの発光の立ち上がりは、障壁層からのキャリア注入に対応して遅くなっている。

このような発光の時間変化から物理量として、障壁層中のキャリア井戸層へ注入される特性時間 $\tau_{B \rightarrow w}$ を正確に抽出するため、以下の手順で解析を行った。レート方程式を、

$$\frac{dn_B}{dt} = g_B - \frac{n_B}{\tau_{B \rightarrow w}} - \frac{n_B}{\tau_B} \quad (3.1)$$

$$\frac{dn_w}{dt} = g_w + \frac{n_B}{\tau_{B \rightarrow w}} - \frac{n_w}{\tau_w} \quad (3.2)$$

$$I_B = \frac{n_B}{\tau_B} \quad (3.3)$$

$$I_w = \frac{n_w}{\tau_w} \quad (3.4)$$

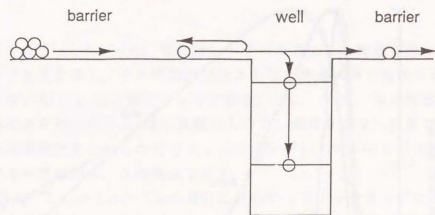


図3. 1 障壁層から量子井戸層へのキャリア注入過程の概念図。

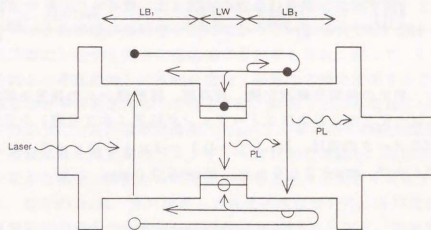


図3. 2 試料のバンド構造図および実験の原理図。

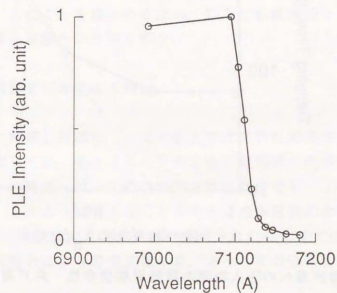


図3. 3 励起スペクトル。

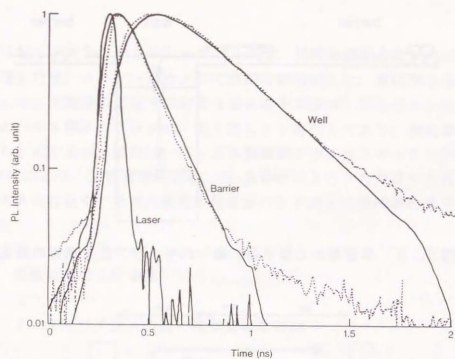


図3-4 発光の時間分解測定例。井戸層、障壁層からの発光を破線で示す。実線は、レーザーパルスおよびフィッティング結果(本文参照)を示す。用いたパラメータの値は、 $N_B(t=0) = 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ,  $N_W(t=0) = 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ,  $\tau_B = 240 \text{ ps}$ ,  $\tau_W = 320 \text{ ps}$ 。

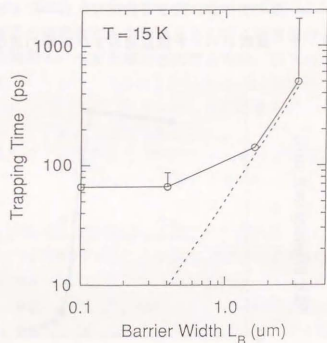


図3-5 井戸層への注入時間の障壁層幅依存性。井戸層は、障壁層(幅  $L_B = L_{B1} + L_{B2}$ )の中央にある。破線は、拡散・捕獲モデル(本文参照)による計算値。

のように立てた。 $g_i (i=B, W)$ はレーザーパルスによる障壁層および井戸層へのキャリア生成を表し、その時間形状はストロークカメラで測定した時間スペクトルを用いた。 $n_i$ は各層のキャリア密度、 $\tau_B, \tau_W$ は、発光再結合寿命を表し、妥当な値を用いた。 $I_i$ は、各層からのPL強度を表す。測定した各層からの発光の時間変化をこれらの式でフィッティングし、 $\tau_B \rightarrow \mu$ を求めた。フィッティングカーブは図3-4の実線で示す。

$L_W = 5.5 \text{ \AA}$ ,  $L_{B1} = L_{B2} = L_B$ の構造において、フィッティングにより抽出した $\tau_B \rightarrow \mu$ を図3-5に示す。 $L_B = 0.1 \text{ \mu m}$ については、障壁層発光が弱くて時間分解測定ができなかったため、井戸層での発光の立ち上がりから抽出している。 $L_B \geq 1.6 \text{ \mu m}$ では、 $\tau_B \rightarrow \mu$ が $L_B$ の2乗に比例する傾向を示す。バリスティック移動やドリフト移動による移動時間は、距離に比例する。また、障壁層のキャリアの波動関数が障壁層全体に広がっている場合では、 $\tau_B \rightarrow \mu$ は、波動関数が井戸層に存在する割合に反比例すると考えられ、従って、 $L_B$ に比例すると予想される。それに対し、拡散時間は、距離の2乗に比例することから拡散律速であることが推定される。このことは、次のことにも現れている。

図3-6のように、井戸層が障壁層( $L_B = 1.6 \text{ \mu m}$ )の端に位置する構造において、励起波長を障壁層のバンドギャップ付近で微調し、励起キャリアの空間分布を変えた場合、井戸からの発光の立ち上がりが大きく変化することが観測される。図中の $\beta_B$ は、井戸層からの発光強度について、井戸励起の場合に対する障壁層励起の場合の比を示している。 $\beta_B$ が小さいほど、障壁層中の吸収係数が小さく、その結果、障壁層中に励起されたキャリアの空間分布が一様になる。近づく。 $\beta_B = 1.9$ に比べ、キャリア分布がより一様である $\beta_B = 9.4$ の場合には、立ち上がりが非常に遅くなっている。この大きな変化は、拡散律速であることを示唆している。このことを確かめるため、以下で拡散捕獲モデルを検討し、それに基づく計算と実験との比較を行う。

### 3. 3. 2 拡散・捕獲モデルによる検討

キャリアは井戸層に到達した場合、一定の割合で井戸内に捕獲されると考える。キャリア移動に関しては、キャリアの平均自由行程区間の内側は、バリスティック運動をし、その外側へは、拡散で移動すると見なせる。このことをモデル化すると、図3-7のように考えることができる。各区間の大きさは、平均自由行程 $L_0$ である。障壁層および井戸層に励起されたキャリアが移動と、井戸層への捕獲、発光再結合により時間化する。キャリアの空間分布の初期値

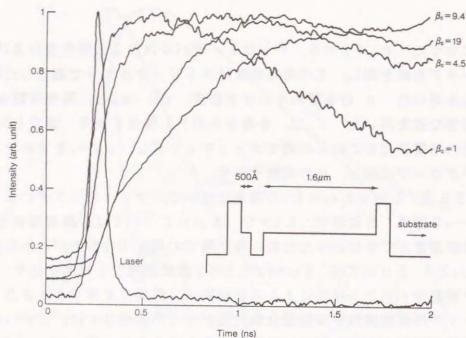
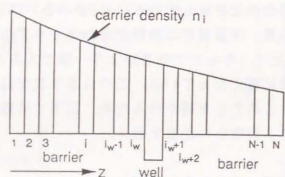


図3.6 励起波長を障壁層のバンド端近傍で変化させた場合の井戸層からの発光の立ち上がりの変化。β<sub>0</sub>は、時間積分発光強度の井戸層のみを励起した場合の時間積分発光強度に対する比。左端のパルス波形は、レーザーパルスを示す。挿入図は、試料構造を示す。



Rate equations:

$$\frac{dn_i}{dt} = (n_2 - n_1) \frac{v}{2L_D} - \frac{n_i}{\tau_B}$$

$$\frac{dn_j}{dt} = (n_{j-1} + n_{j+1} - 2n_j) \frac{v}{2L_D} - \frac{n_j}{\tau_B}, \quad (2 \leq j \leq i_w - 1, i_w + 2 \leq j \leq N - 1)$$

$$\frac{dn_{j_w}}{dt} = [n_{j_w-1} + T n_{j_w+1} - (2-R) n_{j_w}] \frac{v}{2L_D} - \frac{n_{j_w}}{\tau_B}$$

$$\frac{dn_{j_w+1}}{dt} = [T n_{j_w} - (2-R) n_{j_w+1} + n_{j_w+2}] \frac{v}{2L_D} - \frac{n_{j_w+1}}{\tau_B}$$

$$\frac{dn_w}{dt} = (1-T-R) (n_w + n_{j_w+1}) \frac{v}{2L_D} - \frac{n_w}{\tau_w}$$

図3.7 拡散・捕獲モデルの説明図。

は、障壁層の吸収係数および井戸層の吸収率で決まる。レート方程式は、特性速度  $v$  (～平均的バリスティック速度) をもつ粒子 (密度  $n_i$ ) が隣の区間 ( $i+1$  または  $i-1$ ) に入る毎に、記憶を失う (ランダム化) した式となっている。この場合、拡散定数  $D$  との対応は、 $D \sim vL_0/2$  となる。井戸層・障壁層界面では、確率  $R$  で反射し、確率  $T$  で井戸層を通り抜け、 $(1-T-R)$  の割合が捕獲されるとしてある。このモデルは、1粒子近似を行っている。キャリアには、電子および正孔が存在するが、電子と正孔が空間分離した場合に、クーロン力による強い復元力が働くため、一緒に拡散移動する (両極性拡散, ambipolar diffusion<sup>[9])</sup>) と考えられるためである。例えば、 $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  の電子・正孔が  $10 \text{ \AA}$  分離したとすると、その復元力として働く電界は、 $140 \text{ V/cm}$  となる。この電界中で電子が  $10 \text{ \AA}$  を戻る時間は、 $\mu = 1000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  とすると、 $0.7 \text{ ps}$  となり、十分に短い。最近、Kuhnら<sup>[10]</sup> は、2粒子を考慮した場合の拡散の理論的計算を行い、我々の測定条件では、両極性拡散でよく記述されることを示している。両極性拡散では、電子の拡散定数を  $D_e$ 、正孔の拡散定数を  $D_h$  とすると、 $2/D = 1/D_e + 1/D_h$  と書ける (5.1節参照)。  $D_e \gg D_h$  と考えられるため、 $D \sim 2D_h$  となる。

$T$  や  $R$  は、構造や温度に依存する。 $R$  については、現実のキャリアのエネルギー広がりや構造の不均一性で平均すると、1に比べて十分に小さいと予想される。 $(1-T-R) (=C)$  は、古典的近似を行うと、障壁層から井戸領域に移動してきたキャリアが井戸内単位へ緩和する時間を  $\tau_{rx}$  を用いて、

$$C = (1-R) \left[ 1 - \exp\left(-\frac{L_w}{v\tau_{rx}}\right) \right] \quad (3.5)$$

になると考えられる。 $v = 10^6 \sim 10^7 \text{ cm/s}$ 、 $L_w = 55 \text{ \AA}$ 、 $\tau_{rx} = 10 \text{ fs}$  とすると、 $[ ]$  内の項の値は、 $1 \sim 0.42$  となる。

これらの式を用い、キャリアの分布とその時間変化を計算した。図3.8(a)のように、井戸層近傍でキャリアが急激に減少していることがわかる。これは、過程が拡散的であることにも対応している。発光強度の時間変化については、図3.8(b)に示すように、障壁層発光は、一定の時間定数で減少し、井戸発光は立ち上がりが遅くなっていることが確認できる。1つのパラメータセットを用いた  $L_0$  依存性は、図3.5の破線で示すように、 $\tau_{e \rightarrow w}$  は、 $L_0$  の2乗に比例する。用いたパラメータの値は、障壁層の吸収係数が  $15000 \text{ cm}^{-1}$ 、井戸層での吸収率が2%、 $v = 8.7 \times 10^6 \text{ cm/s}$ 、 $L_0 = 5000 \text{ \AA}$ 、 $T$

= 0, R = 0である。この時の対応するDは22 cm<sup>2</sup>/sになる。

### 3. 3. 3 障壁層および井戸層の時間積分発光強度比からの検討

$L_B \leq 0.4 \mu\text{m}$ では、 $\tau_{B \rightarrow W}$ が飽和する傾向をもつ。これは、時間分解能や発光の初期過程の複雑さに起因するものその他、バリステック効果が寄与することも予想される。

そこで別の側面からメカニズムを検討するため、障壁層発光と井戸層発光それぞれの時間積分強度から障壁層に励起されたキャリアが障壁層にとどまって発光する割合を求めた。障壁層、井戸層での励起キャリア密度  $n_B^{(0)}$ 、 $n_W^{(0)}$  は、

$$n_B^{(0)} = [1 - \exp(-\alpha_B L_B)] g \quad (3.6)$$

$$n_W^{(0)} = [\exp(-\alpha_B L_B / 2) \alpha_W] g \quad (3.7)$$

( $\alpha_B$ : 障壁層の吸収係数,  $\alpha_W$ : 井戸での吸収率,  $g$ : 励起強度)

と書ける。 $n_B^{(0)}$ のうち、割合  $f$  で障壁層にとどまり、 $(1-f)$  が井戸層に注入されるとおくと、障壁層の発光量  $I_B$ 、井戸層の発光量  $I_W$  は、

$$I_B = f \cdot n_B^{(0)}, \quad I_W = (1-f) n_B^{(0)} + n_W^{(0)} \quad (3.8)$$

となる。従って、妥当な  $\alpha_i$  と  $I_W / I_B$  の測定値を用い、

$$f = (1 + n_W^{(0)} / n_B^{(0)}) / (1 + I_W / I_B) \quad (3.9)$$

から、 $f$  を評価できる。ただし、障壁層発光は、電子と正孔が両方存在する必要があることから、井戸注入が速い方の粒子に対する  $f$  で決まる。拡散律速の場合は、前述の両極性拡散機構が成り立ち、電子と正孔の  $f$  は同程度と考えられる。

このようにして求めた  $f$  を図3.9に示す。 $L_B$  が  $0.4 \mu\text{m} \rightarrow 0.1 \mu\text{m}$  で急激に  $f$  が減少していることがわかる。

また、

$$f \sim (1/\tau_n) / (1/\tau_n + 1/\tau_p) \quad (3.10)$$

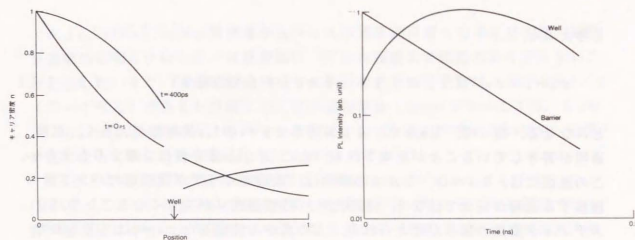


図3.8 拡散・捕獲モデルによる計算結果。

- (a) キャリアの空間分布の時間変化。励起直後およびその400 ps 後を示す。  
 (b) 井戸層および障壁層からの発光強度の時間変化。

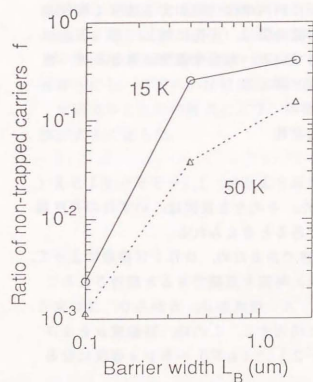


図3.9 障壁層に励起されたキャリアが障壁層で発光する割合の障壁層幅 ( $L_B$ ) 依存性。

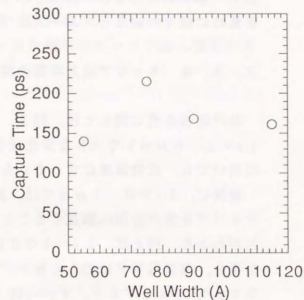


図3.10 井戸層へのキャリア注入時間の井戸幅依存性。  
 $L_{B1} = L_{B2} = 0.8 \mu\text{m}$ 。

と考えると、

$$\tau_{\theta \rightarrow u} = \tau_{\theta} / (1/f - 1) \sim f \tau_{\theta} \quad (f \ll 1 \text{ の場合}) \quad (3.11)$$

とみなせる。従って、 $L_{\theta} \leq 0.4 \mu\text{m}$ でも $\tau_{\theta \rightarrow u}$ の $L_{\theta}$ 依存性が大きく、拡散過程が寄与していることが示唆される。ただし、 $L_{\theta}$ 依存性は2乗よりも大きい。この原因には、 $L_{\theta} = 0.1 \mu\text{m}$ の場合、励起キャリアが障壁層のバンド端へ緩和する過程が完全ではなく、そのため、特性速度 $v$ が大きくなることやバリスティック効果の寄与が考えられる。上の式から評価した $\tau_{\theta \rightarrow u}$ は、15Kで $\tau_{\theta} \sim 400 \text{ps}$ とすると、 $L_{\theta} = 0.4 \mu\text{m}$ で170ps、 $L_{\theta} = 0.1 \mu\text{m}$ で1psとなる。50Kでは $\tau_{\theta} \sim 600 \text{ps}$ とすると、 $L_{\theta} = 0.4 \mu\text{m}$ で30ps、 $L_{\theta} = 0.1 \mu\text{m}$ で0.7psとなる。 $L_{\theta} = 0.1 \mu\text{m}$ での $\tau_{\theta \rightarrow u}$ の値は、散乱時間と同程度となり、この障壁幅領域で、バリスティック領域に入り始めることを示唆する。Deveaudら<sup>[9]</sup>は、薄い障壁幅を持つInGaAs/InP量子井戸で測定( $T = 70 \sim 300 \text{K}$ )を行い、 $L_{\theta} < 500 \text{\AA}$ で拡散が寄与なくなると報告している。その領域では、井戸層領域に存在する障壁層のバンド端エネルギーを持つキャリアが井戸内準位へ緩和する過程(彼らは、量子捕獲過程と呼ぶ)が支配的になり、捕獲時間は、正孔に対し、0.3ps以下、電子に対し1ps以下という値を得ている。物質や温度が異なるが、半定量的に我々の結果とスムーズにつながると言える。

### 3.3.4 キャリア注入時間の井戸幅依存性

井戸幅依存性に関しては、図3.10に示すように、 $L_{\theta} = 55 \sim 115 \text{\AA}$  ( $L_{\theta} = 1.6 \mu\text{m}$ )で大きな変化はなかった。その主な原因は、いずれの井戸幅においても、拡散律速になっているためであると考えられる。

最後に、 $L_{\theta} > 0.1 \mu\text{m}$ では、拡散律速であるため、GRIN構造によって、キャリアを井戸方向へ加速することで、注入時間を短縮できると期待されることがわかる。例えば、 $L_{\theta} = 4000 \text{\AA}$ で、Al組成を0.6から0.2に変えた場合、実効電界 $F$ は約10kV/cmに相当する。この時、移動度 $\mu$ を400cm<sup>2</sup>/Vsとすると、 $\tau_{\theta \rightarrow u}$ は $(L_{\theta}/2) / (\mu F) = 5 \text{ps}$ 程度になると予想される。

### 3.4 結論

Al<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>As障壁層からGaAs量子井戸層へのキャリア注入過程を実験的に明らかにした。障壁層幅0.1μm程度まで拡散の寄与が大きいことを示した。また、拡散捕獲モデルでの検討により拡散定数は、22cm<sup>2</sup>/s ( $T = 15 \text{K}$ )であると評価した。井戸幅依存性( $L_{\theta} = 55 \sim 115$ ,  $L_{\theta} = 1.6 \mu\text{m}$ )は小さいが、その主な原因は、いずれの井戸幅においても、拡散律速になっているためであると考えられる。

$L_{\theta}$ が500Å以下の領域に関しては、後に、Deveaudら<sup>[9]</sup>が、InGaAs/InPの量子井戸構造を用いた実験を行っている。その領域では、井戸層領域に存在する障壁層のバンド端エネルギーを持つキャリアが井戸内準位へ緩和する過程(彼らは、量子捕獲過程と呼ぶ)が支配的になり、捕獲時間は、正孔に対し、0.3ps以下、電子に対し1ps以下と報告している。また、明確な井戸幅依存性( $L_{\theta} = 9 \sim 100 \text{\AA}$ )は現れていない。

相前後して、様々な構造、組成、測定条件での研究が進展している。Uchikiら<sup>[6]</sup>は、GaAs/Al<sub>0.35</sub>Ga<sub>0.65</sub>As量子井戸構造において、77Kで拡散係数が16cm<sup>2</sup>/s、井戸幅50Åで捕獲効率が75%と報告している。Hillmerら<sup>[11]</sup>は、Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>Asの両側にGaAs量子井戸を配置した構造で、拡散係数が1.5~3cm<sup>2</sup>/s ( $T = 40 \sim 120 \text{K}$ )等の結果を得ている。Pollandら<sup>[7]</sup>は、GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As単一量子井戸構造で障壁層を様々な形状(flat, 線形GRIN, 放物線GRIN等)にし、井戸への捕獲効率等の検討を行っている。

本研究やこれらの研究により、障壁層から井戸層へのキャリア注入過程の理解が大きく進んだ。

### (第3章参考文献)

1. H. Hillmer, G. Mayer, A. Forchel, K.S. Lochner and E. Bauser, Appl. Phys. Lett. 49, 948 (1986).
2. H. Shichijo, R.M. Kolbas, N. Holonyak, Jr., R.D. Dupuis and P.D. Dapkus, Solid State Commun. 27, 1029 (1978).
3. T. Mishima, J. Kasai, M. Morioka, Y. Sawada, Y. Katayama, Y. Shirai and Y. Murayama, Surf. Sci. 174, 307 (1986).
4. J.A. Brum and G. Bastard, Phys. Rev. B33, 1420 (1986).
5. 松末俊夫, 土屋昌弘, 榊裕之, 第48回応用物理学会 17a-ZB-6 (1987).
6. H. Uchiki, T. Kobayashi and E. Tokunaga, Phys. Stat. Sol. (B) 150, 667 (1988).
7. H. J. Pollard, K. Leo, K. Rother, K. Ploog, J. Feldmann, G. Peter, E.O. Gobel, K. Fujiwara, T. Nakayama and Y. Ohta, Phys. Rev. B38, 7635 (1988).
8. B. Deveaud, J. Shah, T.C. Damen, and W.T. Tsang, Appl. Phys. Lett. 52, 1886 (1988).
9. Sze, Physics of Semiconductor Devices (John Wiley & Sons, New York, 1981).
10. T. Kuhn and G. Mahler, Solid State Electron. 32, 1851 (1989).
11. H. Hillmer, A. Forchel, T. Kuhn, G. Mahler and H.P. Meier, Phys. Rev. B43, 13992 (1991).

### 4. 量子井戸構造における電子のトンネル過程

#### 4. 1 序論

量子効果によるトンネル現象は、干渉効果と組み合わせることにより、様々な機能を持つ素子が可能となる。図4. 1に示すように、単一トンネル障壁をトンネルする電子の透過確率は、エネルギー的に広がる(3D-3Dトンネル過程)が、二重障壁構造の場合、干渉効果により、井戸内で形成される量子準位に対応するエネルギーでのみ選択的にトンネル可能となる(3D-2Dトンネル過程)。さらに、井戸を追加した二重井戸構造は、入射側の電子のエネルギーも特定値に限定される(2D-2Dトンネル)ため、変調特性がきわめて優れた素子応用が期待できる。さらに、これらは、きわめて微小(10nmオーダー)な空間領域の現象であるため、高速性に優れ、素子の微細化にも適応すると期待される。そのため、様々なトンネル素子の研究が進展してきた。

例えば、第2の構造(3D-2D)を利用して、入射側の電子のエネルギー領域( $E_a \sim E_a + E_F$ )を外側電圧により、実効的に変化させ、電流のON/OFFに結びつけた二重障壁共鳴トンネルダイオード<sup>(1)・(2)</sup>は、優れた負性抵抗素子として実現されている。また、第3の構造(2D-2D)の変調特性と高速性の利点を使うと、光シユタルク効果等を利用した光制御による超高速変調器が可能である。

しかし、干渉現象が伴う3D-2Dや2D-2Dのトンネル過程の微視的な理解は明確ではなかった。特に、その時間的な振舞いについては、物質パラメータの曖昧さによるだけでなく、トンネル過程の概念的な理解が不十分なため、未知の状況であった。そのため、実験的に明らかにする必要があったが、現象の典型的な特性時間がピコ秒オーダーであるため、実験が困難であった。

それまで、2D-3Dトンネルに関しては、Solinger<sup>(3)</sup>により、二重障壁共鳴トンネルダイオード(DBRTD)の電気的高周波特性を測定する実験が続けられていた。発振の最高周波数が18GHzとの測定値が得られているが、測定系の時定数による制限やその寄与の評価の不明確さなどがあるため、トンネル過程固有のダイナミクスを明らかにしているとは言えない状況であった。その後、超短パルスレーザを用いた時間分解分光法による測定が、薄い障壁層を持つ量子井戸構造に対して、Tuchiya<sup>(4)</sup>を始めとして、いくつかのグループで行われた<sup>(5)</sup>が、実験結果の理論的解析は十分ではなかった。

理論面では、DBRTDに関して、模式的な状況を仮定したときの時間的振

舞いや、電界印加時の状況をより現実的に取り入れた場合の数値計算によるダイナミクスの研究等がされてきた。その結果、散乱のない場合の時間的振舞いは、物質パラメータを仮定するとある程度理解されてきた。しかし、現実存在する散乱やX点の影響等については、理論的枠組みが確立されていないため、様々な予想がされ、混乱している状況であった。

一方、2D-2Dトンネル過程に関しては、ダイナミクスの系統的な研究はなく、わずかに、静特性に関して、Nakagawaら<sup>[6]</sup>による三重障壁共鳴トンネルダイオード構造によるI-V特性の研究があったのみである。

理論的には、理想的な状況を仮定した量子力学の教科書的な議論しかされていなかった。2D-3Dトンネル過程の場合と同様に、散乱や、電子と正孔の相関(励起子効果・分極)、多谷(Γ点、X点、L点)の影響などに関しては、十分な検討がされていない。

本研究<sup>[7-17]</sup>では、量子井戸構造における基本的な電子のトンネル過程として、量子井戸中の電子の基底準位が関与する過程を系統的に調べた。量子井戸から3次元領域へのトンネル過程について、Tsuchiyaら<sup>[4]</sup>の実験結果を用い、理論的再検討を行って、理解を明確にした<sup>[17]</sup>。その結果をふまえ、次に、二重量子井戸構造におけるトンネル過程について、バイアス電界を印加し、共鳴状態および非共鳴状態のトンネル過程を実験的に明らかにした。理論的に検討を加え、実験結果と比較を行い、その物理機構を明確にした<sup>[7-17]</sup>。

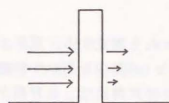
その後、トンネル過程に関連する様々な課題、特に、トンネル振動<sup>[18]</sup>、正孔のトンネル過程<sup>[19]</sup>、励起子効果<sup>[20]</sup>、X点の影響<sup>[21]</sup>について、多くの研究が進展している。また、二重量子井戸構造におけるトンネル振動によるTHz波の発生<sup>[22]</sup>、赤外光励起により励起準位間が共鳴条件にある非対称二重量子井戸における一方の井戸から他方の井戸への電子のくみ上げ<sup>[23]</sup>など、デバイス応用につながる新規な機能が実証されている。

#### 4. 2 量子井戸層(2D)から三次元領域(3D)へのトンネル

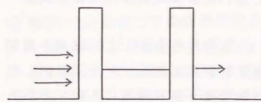
##### 4. 2. 1 序論

まず井戸内の電子が薄い障壁層をトンネルして失われる過程を再検討した。この過程は、最も単純なトンネル過程であり、また二重障壁共鳴トンネルダイオードにおける電子の井戸内への蓄積、透過に密接に関連している。実験はTsuchiyaらにより行われた<sup>[4]</sup>。

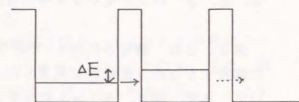
実験は図4.2挿入図に示すように、短パルスレーザ光によって、井戸内に



(a) 単一障壁構造。



(b) 二重障壁共鳴トンネル構造。



(c) 二重量子井戸構造。

図4.1 種々の構造におけるトンネル過程の概念図。ポテンシャル構造、量子準位、入射および透過波の波束(矢印)を示す。

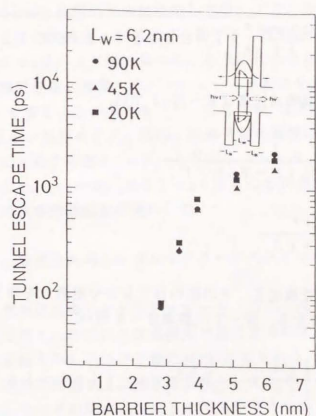


図4.2 GaAs/AlAs単一量子井戸構造における井戸内電子のトンネル脱出時間の障壁層幅( $L_0$ )依存性<sup>[4]</sup>。井戸幅 $L_w$ は、6.2nm、測定温度は20K、45Kおよび90K。挿入図は、試料のバンド構造と測定原理を表す。



電子・正孔を光励起し、その後の発光の減衰時間 $\tau_{PL}$ を測定する。電子のトンネル脱出時間 $\tau_T$ は、 $1/\tau_{PL} = 1/\tau_R + 1/\tau_T$ の関係をを用いて評価する。用いた試料は、対称なGaAs/AlAs単一量子井戸構造で、井戸幅が6.2 nm、障壁層幅 $L_B$ は2.8~6.4 nmの範囲で変化させた。

#### 4. 2. 2 バンドギャップ中の有効質量を用いた多重反射形式による解析

図4. 2は、測定された $\tau_T$ であり、強い $L_B$ 依存性を示す。この結果を精密に解釈するため、直観的に見通しの良い多重反射形式の解析<sup>[24]</sup>を再検討した<sup>[17]</sup>。まず、図4. 3(a)に示すような対称な量子井戸構造に入射するあるエネルギー $E$ を持つ電子波の透過を考える。ここでは、散乱を無視する。透過率 $|T|^2$ は、障壁層による多重反射を考えると単一障壁の透過・反射係数 $t$ 、 $r$  [ $=|r| \exp(i\delta_r)$ ]を用いて、

$$|T|^2 = \frac{1}{1 + \frac{2|r|^2}{|t|^4} [1 - \cos 2(kL_w + \delta_r)]} \quad (4. 1)$$

と解析的に書ける。共鳴点近傍 ( $E \sim E_n$ ) では、

$$|T|^2 \sim \frac{1}{1 + [(E - E_n)/\Gamma]^2} \quad (4. 2)$$

$$\Gamma = \frac{\hbar k |t|^2}{2m_w L_w |r|} \quad (4. 3)$$

とローレンツ型関数で表せる。その際のローレンツ定数 $\Gamma$ を使うとトンネル時間 $\tau_{trans}$ は $\hbar/\Gamma$ となる。従って、群速度 $v$ を用い、

$$\tau_{trans} = \frac{2m_w L_w |r|}{\hbar k |t|^2} = \frac{2L_w}{v |t|^2} \quad (|r| \sim 1) \quad (4. 4)$$

と書ける。この式は、共鳴点では反射波が消え、透過波のトンネル流のみ存在するため、 $1/\tau_{trans}$ は透過側の障壁をたたく頻度 $v/(2L_w)$ と $|t|^2$ の

積となることを表す。 $|t|^2$ は、障壁高さ $V$ 、障壁層での有効質量 $m_B$ とその井戸層での値 $m_w$ との比 $\gamma (=m_B/m_w)$ を使って、

$$|t|^2 = 16\gamma \{E(V-E) / [V + (\gamma-1)E]^2\} \times \exp\{-2L_B [2m_B(V-E)]^{1/2}/\hbar\} \quad (4. 5)$$

と書け、 $L_B$ に対して指数関数的に依存する。

一方、井戸に励起された電子のトンネル脱出(図3. 3(b))の場合、トンネル流は、左右両方向に存在するため、 $\tau_T = \tau_{trans}/2$ となる。また、散乱があっても、それに伴うエネルギー広がり $\Delta E$ が $|t(E \pm \Delta E)|/|t(E)| \sim 1$ である限り、 $\tau_T$ に影響しない。

この理論予測を、図4. 2の測定結果と比較する。比較はトンネル以外のキャリア寿命成分[0.3(20K)~1.2 ns(90K)]の寄与が無視できる $L_B \leq 3.4$  nmの範囲で行う。障壁高さ $V$ は0.96 eV (Miller則)と1.36 eV (Dingle則)の間にあるとされている<sup>[25]</sup>。パラメータとして $m_B$ を前者の $V$ の値に対して0.12、後者の値に対して0.08にとると、 $\tau_T$ の実測値と予測値が一致する(誤差は $L_B$ 換算で $\pm 0.14$  nm以内)。この $m_B$ はバンド端の値 $\sim 0.15$ に比べ小さいが、禁制帯中の値であることで理解できる。実際、2バンド $k \cdot p$ 摂動論を用いると、 $m_B = m^*(1 + E/E_B)$ と書くことができる<sup>[26]</sup>。ここで $m^*$ はAlAsの伝導帯端の有効質量、 $E_B$ はバンドギャップ、 $E$ は、伝導帯端を基準にしたエネルギーを表す。今の場合に対応する値 $m^* = 0.15 m_0$ 、 $E_B = 3.11$  eV、 $E = -1.3$  eVを用いると、 $m_B = 0.087 m_0$ となることわかる。以上の検討により、トンネルの基本的過程を明確にした。

#### 4. 2. 3 二重障壁共鳴トンネルダイオードのスイッチング時間との対応

一般に、二重障壁共鳴トンネルダイオード(DB-RTD)のスイッチング時間はCR時定数 $\tau_{CR}$ やコレクタ電極側の空乏層中の走行時間 $\tau_{tr}$ に加えて、共鳴トンネル過程そのものに伴う遅れ $\tau$ に左右される。ここでは、トンネル脱出過程などと密接に対応する二重障壁共鳴トンネルダイオードのトンネル領域での固有スイッチング時間 $\tau_{switch}$ との関係を考えてみる(図4. 4)。非共鳴(OFF)から共鳴状態(ON)にした場合(図4. 4(a))、まず散乱のない場合は、前述のように、固有スイッチング時間 $\tau_{switch}$ は $\tau_{trans} = 2\tau_T$ となる。井戸内での散乱時間(位相緩和時間) $\tau_{scatt}$ が $2\tau_T$ 以下の場合は、

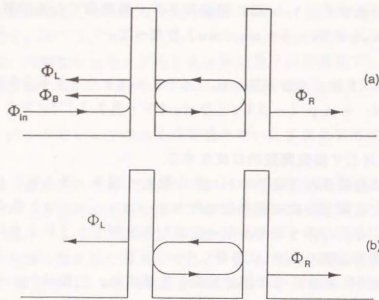


図4.3 対称二重障壁構造におけるトンネル過程での各進行波の概念図。  
 (a) 左側の領域から、共鳴するエネルギーで入射波 $\phi_{in}$ が入射した場合、 $\phi_B$ は $\phi_{in}$ がB1の障壁層で反射した波を表す。(b) 量子井戸中のキャリアが脱出する場合。

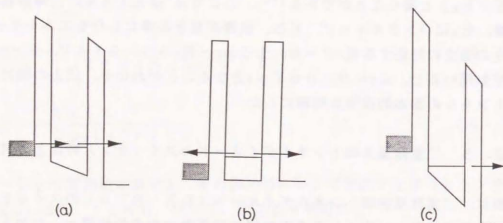


図4.4 二重障壁共鳴トンネルダイオードのオン/オフスイッチングの概念図。バンド図およびトンネル流を示す。(a) オンにした場合、(b) エミッタ層を共鳴準位より下げてオフにした場合、(c) エミッタ層を共鳴準位より上げてオフにした場合。

コヒーレントな蓄積効果が $\tau_{scat}$ で切れることから、固有の $\tau_{switch}$ は $\tau_{scat}$ になるとも考えられる。典型的には、 $\tau_{scat}$ はピコ秒オーダーないしは、それ以下である。ONからOFFの場合は、散乱の有無にかかわらず、エミッタ側のバンドが量子準位の上にある場合(図4.4(c))は、コレクタ側のみトンネル可能なので、 $\tau_{switch} = 2\tau_T$ 、そうでない場合(図4.4(b))は、 $\tau_{switch} = \tau_T$ となる。このように、 $\tau_T$ はDB-RTDのスイッチング時間に関する重要な要素である。

#### 4.3 量子井戸(2D)から他の量子井戸層(2D)へのトンネル過程

##### 4.3.1 序論

本研究<sup>[7,10,12,13,14]</sup>では、前節の成果をふまえて、結合二重量子井戸構造において、量子井戸間や、一方の量子井戸から他方の量子井戸を経由して3D状態へトンネルする過程を調べる。いくつかのモデルと測定結果を比較し、共鳴および非共鳴状態における緩和過程の影響を明らかにする。本研究の一部<sup>[7,10,12,13]</sup>は、報告されていたが、Oberliら<sup>[27,28]</sup>は、我々と独立に、同様な光学測定法を用いて、二重量子井戸間のトンネル過程を調べている。彼らは、一方の量子井戸の基底準位から他方の量子井戸の第1励起準位へのトンネル過程を、共鳴および非共鳴状態で調べた。本研究では、電界を印加し、いろいろな共鳴条件で基底準位間のトンネル過程を2つの量子井戸の蛍光(PL)の減衰時間と時間積分PL強度を解析することによって系統的に調べた。従って、彼らの研究に対し、相補的な知見を与える。

本研究では、図4.5に示すようなポテンシャル構造を持つ2種類の二重量子井戸構造について、主に調べた。左側のGaAs量子井戸(LQW)は、井戸幅が71Åで、厚さ31Åの薄いAlAs障壁層を介して、井戸幅が51Åの右側のGaAs量子井戸(RQW)と結合している。左端のAlAs障壁層は、十分に厚い(100Å)。右端のAlAs障壁層の厚さは、試料1では31Å、試料2では100Åである。図4.5(a)のフラットバンド状態では、量子準位の計算値は、GaAsの伝導帯端から測って、LQWが69.0meV、RQWが112.5meVである。

電子のトンネルダイナミクスは、図4.5に示すように、電界印加により大きく変化すると予想される。試料1において、図4.5(a)のようなLQWの量子準位 $E_{L1}$ がRQWの量子準位 $E_{R1}$ より下にある共鳴前の状態では、LQWからRQWを通して、右側の電極層へトンネルする確率は小さい。それは、

$E_{L1}$ レベルの波動関数がRQWに存在する割合が非常に小さいからである。図4.5(b)に示す共鳴状態では、2つのQWの基底準位が一致し、電子はQW間で行き来する(トンネル振動)。その結果、LQWから右側の電極層へのトンネルが大きくなる。さらに、電界を印加し、図4.5(c)に示す $E_{L1}$ が $E_{R1}$ の上に位置する共鳴後の状態になると、波動関数のRQWへの浸み出しが再び小さくなる。そのため、右側の電極層へのコヒーレントなトンネルは減少する。一部は、RQWにトンネルして、散乱により $E_{R1}$ レベルへ緩和した後、外側へトンネルすると考えられる。

#### 4.3.2 試料構造および測定法

試料は、MBE法で3種類(試料1, 2, 3)を作製した。試料1および2は、前述の通りである。試料3は、井戸間の障壁層幅を厚くし、トンネルがどのように抑制されるか調べるために用いた。(001)表面をもつ半絶縁性GaAs基板に、成長温度600°Cで成長を行った。500Å GaAs/50Å Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 5周期の超格子バッファを成長し、0.7μmのn<sup>+</sup>GaAs( $n_d \sim 8 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ )を成長後、ノンドープGaAsを50nm成長し、その上にDQW, Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 200Å, GaAs 100Åを成長した。DQWの井戸間障壁は試料1および2では31Å, 試料3では57Åである。右端障壁は試料1では31Å, 試料2および3では、100Åとして電極層へのトンネルを抑制した。膜厚は、RHEED振動をモニタして正確に制御した。さらに、平坦な界面を得るため、井戸/障壁層界面で成長中断<sup>(29)</sup>を1分間行なった。成長層は、残留不純物(C)が $10^{14} \sim 10^{16} \text{cm}^{-3}$ の高品質膜である。表面に半透明ショットキー電極(Au 150Å)を蒸着し、n<sup>+</sup>層との間に電圧を加えた。

測定は図4.6のようにML色素レーザーで井戸内に電子・正孔を生成し、その後の発光の時間変化を測定した。各QWからの発光を分光器で選別した後、ストリークカメラで時間分解検出を行なった。時間積分検出の場合は、光電子増倍管を用いた。レーザー光のパルス幅は、約10ps、検出系の時間分解能は、約70psである。各QWの電子数を同時にモニタするために、レーザー波長を両井戸のe1-h1遷移波長とe2-h2遷移波長の間に設定し、両QWに同量の励起を行った。励起後の電子・正孔は、ピコ秒程度のエネルギー緩和により、各QWの伝導帯あるいは価電子帯の基底量子準位端に緩和する。その後電子はトンネルや発光過程で消滅する。この消滅の様子は、PL強度の減衰として現れるので、PL強度の時間変化を調べて、電子密度をモニタし、それ

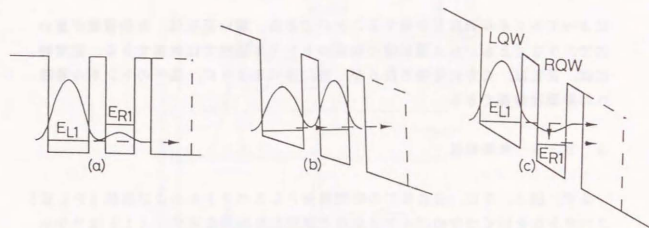


図4.5 GaAs/AlAs非対称二重量子井戸構造のバンド構造とキャリアダイナミクスの概念図。(a)~(c):伝導帯のバンド図とLQW中の電子のトンネル過程の電界による変化。 $E_{L1}$ ,  $E_{R1}$ は各量子井戸の基底量子準位を示す。右端の障壁層の実線は試料1, 点線は試料2(層幅が厚い)を表す。共鳴前(a)はトンネル過程が抑制される。共鳴時(b)は井戸間のトンネルが促進され、外部へのトンネル過程が増える。共鳴後(c)は再びトンネル過程が減るが、そのトンネル成分には、コヒーレント過程と準位間遷移を伴う過程が含まれる。

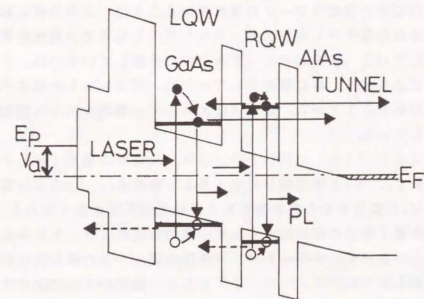


図4.6 実験の概念図。試料のバンド構造と光励起および励起後のキャリア緩和過程を示す。 $E_F$ はn<sup>+</sup>GaAs層のフェルミレベル、 $E_p$ はショットキー電極のフェルミレベル、 $V_a$ は印加電圧を示す。レーザーで生成された電子は、トンネルや発光再結合(PL)によって消滅する。

によってトンネル過程を評価することができる。重い正孔は、有効質量が重いので、少なくともパルス励起後の初期のトンネル過程では無視できる。定期的には、正孔は、QWに蓄積されるが、後に述べるように、電子のトンネル過程への影響は無視できる。

#### 4. 3. 3 実験結果

まず、図4. 7に、20Kでの時間積分PLスペクトルおよび励起(PLE)スペクトルをいくつかのバイアス条件で測定した結果を示す。(1)はフラットバンド状態、(2)は準共鳴領域の始まり、(3)は共鳴状態、(4)は準共鳴領域の終わり、(5)は共鳴後の状態に対応する。バイアス条件についての詳細は、後で図4. 9を説明する時に述べる。実線は、LQWおよびRQWのPLスペクトル、破線はLQWのPLEスペクトルを示す。矢印は、PL測定時のレーザのエネルギーを表す。

各バイアス条件でのPLスペクトルは、LQWおよびRQWの各々からの発光に対応する2つのピークを持ち、その強度が、バイアス条件により大きく変化している。LQWのPLEスペクトルには、LQWおよびRQWの励起子ピークが現れている。図中の励起子の表示で、' (ダッシュ) が付いているのは、RQW、'の付いていないのはLQWに関する励起子である。1~3のバイアス条件で、RQWの励起子ピークが現れていることは、この条件において、RQWで励起された電子がLQWにトンネルして、LQWでの発光に寄与していることを示している。各励起子ピークが2つに分離しているのは、1MLの井戸幅ゆらぎによる<sup>129)</sup>。各QWのPLピークは、ダブルットの低エネルギー側のピークに対応することから、電子は低エネルギー側のレベルへ緩和した後、発光再結合している。

図4. 8(a), (b)に試料1のLQW, RQWの発光(PL)寿命(キャリア寿命) $\tau_1$ ,  $\tau_2$ と時間積分発光(PL)強度 $I_1$ ,  $I_2$ の印加電圧 $V_0$ 依存性を示す。 $V_0$ が変化すると発光寿命および発光強度は大きく変わる。これは、2つのQWの量子準位の相対的エネルギー差の変化により、トンネル過程が大きく変わることを示す。フラットバンド条件は図4. 7の挿入図に示すI-V特性からわかるように、 $V_0 \sim 0.7$ Vである。後述のように図中のA-Bの範囲が非共鳴領域[図4. 5(a)], C-Eで共鳴効果が顕著に現れ、F-Gで再び非共鳴状態[図4. 5(c)]になる。また、D点が共鳴位置と考えられる。以下で、各領域別に、電子のトンネルダイナミクスを詳細に検討し、理論的モデルと比較する。

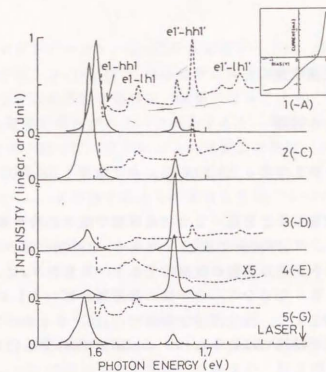


図4. 7 PLスペクトル(実線)およびLQWのPLEスペクトル(破線)。挿入図は、ゲート電流のバイアス電圧依存性を示す。実線は、時間分解測定時における光照射下での電流、破線は、暗電流を表す。

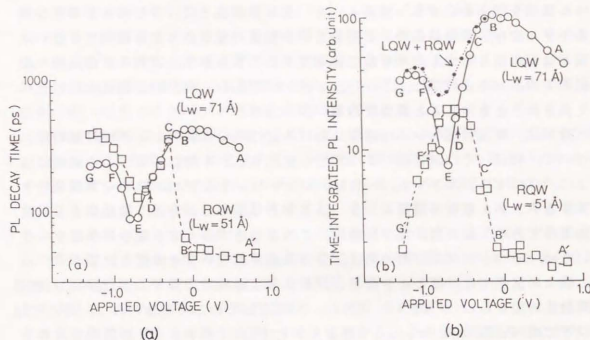


図4. 8 GaAs/AlAs非対称二重量子井戸構造(試料1)における発光寿命(a)と時間積分発光強度(b)の印加電圧依存性。LQW, RQWは左右の量子井戸からのPLを示し、LQW+RQWは、LQWの値とRQWの値の和を示す。図中のA~Gは、共鳴、非共鳴領域の区分(本文参照)を表す。

#### 4. 3. 4 共鳴近傍状態

##### a. 散乱付随トンネル過程

C-E領域では、PL寿命 $\tau_L$ および $\tau_R$ 、PL強度 $I_L$ および $I_R$ は、 $V_0$ によって激変している。

$\tau_L$ と $\tau_R$ が、ほぼ等しいことは、2つのQW間で電子の行き来が頻繁であることを示唆している。 $V_0$ が減少すると、 $\tau_L$ と $\tau_R$ は急激に減少する。このキャリア寿命の激変は、トンネル過程が支配的であり、それが $V_0$ により大きく変化することを示している。なぜなら、QW間の障壁層が厚い(100Å)構造でのキャリア寿命の測定より、発光再結合寿命 $\tau_{rec}$ はフラットバンド状態で約400psで、共鳴後の状態では約500psと評価でき、 $V_0$ にあまり依存しないからである。

図4.8(b)に示すように、 $I_L$ は $V_0$ の減少により、単調に減少する。一方、 $I_R$ は増加し、最大値に到達する。この領域の端(E)では、 $I_L$ は $I_R$ の約1/3に減少する。後の検討により、共鳴点と考えられるD点では、 $I_L$ と $I_R$ は等しくなる。以下で、この結果を理論的モデルと比較し、この領域でのトンネル機構を明らかにする。補節4.5.3に示すように、コヒーレントトンネルモデルでは、実験結果のPL寿命とPL強度の電界依存性を説明できない。緩和過程の寄与を含んだモデルで説明できることを示す。このことは、我々の試料でのトンネル時間は、100psオーダーであり、典型的な散乱時間に比べて大きいことを考えると妥当である。

最初に、散乱付随トンネル過程における2つのQW間のトンネル移動時間について、特に、それが電界によってどう変化するかを検討する。この過程には、2つのプロセスが関与する。一方は、コヒーレントなプロセスのQW間を行き来するトンネル振動(補節4.5.2)であり、もう一方は、散乱による準位間遷移である。QW間の電子移動は、この2つのプロセスを経なければならないため、そのトンネル移動時間は、2つの過程の遅い方で律速される。

我々の試料では、ほとんどの場合、トンネル振動の周期 $T_{osc}$ に比べて、準位間散乱時間 $\tau_{scatt}$ が大きい。例外は、共鳴点とそのごく近傍のみで、ここでは、以下でべるように、 $\tau_{scatt}$ (数ps)と $T_{osc}$ (<7ps)が同程度と考えられる。

$\tau_{scatt}$ の大きさは、次のように考えることができる。二重量子井戸構造の2つの固有状態を考え、各々の波動関数とエネルギーを $\psi_i$ 、 $E_i$ および $\psi_j$ 、 $E_j$

とする。散乱ポテンシャル $V_{scatt}$ による遷移レートは、 $|\langle \psi_i | V_{scatt} | \psi_j \rangle|^2$ に比例する。 $\psi_i$ および $\psi_j$ は各QWの局在基底状態の線形結合で表せ(補節4.5.1)、その結合係数は、電界によって大きく変化する。準共鳴領域で $V_{scatt}$ の電界依存性が小さいと仮定すると、遷移レートは $|\langle \psi_i | \psi_j \rangle|^2$ に支配される。従って、遷移レートの電界依存性は、 $\psi_i$ と $\psi_j$ の重なり積分の変化を反映している。ただし、全空間に対する重なり積分は、直交性により、ゼロになる。 $\tau_{scatt}$ を評価する上での適当な量は、1つの井戸や障壁層内での積分である。それは、電子-LAフォノン散乱や界面ラフネス散乱などの重要な散乱ポテンシャルでは、各領域での散乱が独立に生じるためである。

補節4.5.1の式を用いて、1つのQW内での重なり積分は、 $|\langle \psi_i | \psi_j \rangle|^2 (well) = |a_i^L a_j^L|^2 = |a_i^R a_j^R|^2$ と書け、井戸間障壁内での積分は、 $|\langle \psi_i | \psi_j \rangle|^2 (barrier) = |(a_i^L a_j^R + a_i^R a_j^L) \langle \Phi_i^R | \Phi_j^L \rangle|^2$ と書ける。ここで、 $\Phi_i^R$ 、 $\Phi_j^L$ は各QW間の局在状態、 $a_i^L$ は、 $\psi_i$ 、 $\psi_j$ を $\Phi_i^R$ 、 $\Phi_j^L$ の線形結合で表した場合の、結合係数を表す。

我々の試料では、障壁層内の積分値に対し、井戸内の積分値が支配的である。従って、 $1/\tau_{scatt}$ は、 $|a_i^L a_j^L|^2 (= |a_i^R a_j^R|^2)$ に比例すると考えられる。この散乱過程は、関与する散乱前および散乱後の波動関数の形状が、単一QWの場合と同様であることから、単一QWにおける基底サブバンド内散乱と類似性を持っている。共鳴点では、 $a_i^L = 1/\sqrt{2}$ となるので、 $\tau_{scatt}$ は、単一QWでの基底サブバンド内散乱時間と同程度になると予想される。その値は、理論や電子移動度の測定値から評価して、数ps以下と考えられる。

$\tau_{scatt}$ の電界依存性の計算結果を図4.9に示す。図では、 $\tau_{scatt}$ の最小値を、単一QWのサブバンド内散乱時間の典型的な値1psにとっており、 $\tau_{scatt}$ は、電界によって大きく変化している。共鳴点から電界が $\Delta F$ 以上はなれると $\tau_{scatt}$ は非常に大きくなる。この $\Delta F$ は、共鳴点の2つの準位のエネルギー分離 $\Delta E_{osc}$ と2つのQWの井戸中心間の距離( $=2\lambda$ )の積に等しい。

LQWに生成された電子の運動を考える。まず井戸間結合により、井戸間でトンネル振動を起こす。それとともに、右端障壁に衝突した電子は一定の率で右の電極側へトンネルする。前者の振動周期 $T_{osc}$ の予測値は7psと短い。後者は近似的に二重量子井戸の定常波動関数(図4.5参照)のトンネル脱出と見なせる。その時間は、共鳴点で最小となり、その値( $\sim 230ps$ )は同寸の単一障壁のトンネル脱出時間 $\tau_0$ の2倍となる。この値は散乱時間に比べて大きいので、LQWの電子は右の電極側へトンネルする前に準位間遷移を起こすと予想される。

この場合の実効遷移は、 $T_{osc}$ と準位間遷移時間 $\tau_0$ の遅い方で律速される。

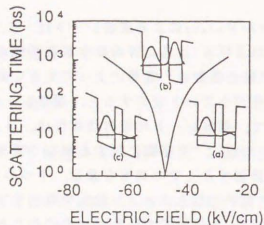


図4.9 基底準位間の散乱時間のバイアス電界依存性. 各QWの波動関数の重なり積分から評価した計算値. 最小値を1 psに規格化してある. 挿入図は、(a)共鳴前、(b)共鳴点、(c)共鳴後の基底準位の関係とLQWの波動関数の概念図を示す.

$T_{000}$ は共鳴点で最大となる。 $\tau_{000}$ は共鳴点では準位内緩和時間と同程度の数ps以下と予測され、共鳴点ではトンネル振動あるいは準位間遷移で決まる数ps程度の時間で、QW間に散乱緩和による電子移動が発生する。共鳴点から外れると、 $T_{000}$ は急減するが、 $\tau_{000}$ が増大するため、緩和移動の寄与は激減する。このような共鳴点近傍でのQW間の緩和と移動は、LQWとRQW間に準熱平衡的な電子分布を引き起こす。従って、各QWの電子密度( $N_L$ ,  $N_R$ )の比 $r$ ( $=N_L/N_R$ )は、各QWの準位 $E_L$ ,  $E_R$ を用いて、 $\exp[-(E_L - E_R)/kT]$ と近似できる。100 ps程度のゆっくりしたトンネル現象では、この割合を保持して時間変化すると考えられる。

この時、電子密度は、単一障壁のトンネル脱出時間 $\tau_B$ と発光再結合寿命 $\tau_R$ を用いて、

$$\frac{d(N_L + N_R)}{dt} = -\frac{N_R}{\tau_B} - \frac{N_L + N_R}{\tau_R} \\ = -\left(\frac{1}{\tau_B(1+r)} + \frac{1}{\tau_R}\right)(N_L + N_R) \quad (4.6)$$

と書ける。この式から、

$$\tau_{PL}(LQW) = \tau_{PL}(RQW) = 1 / \left[ \frac{1}{\tau_B(1+r)} + \frac{1}{\tau_R} \right] \quad (4.7)$$

となる。また、各井戸における発光効率を各井戸での発光再結合した電子密度( $N_{PL}$ )とレーザパルスで励起された電子密度( $N_{exc}$ )の比 $N_{PL}/N_{exc}$ で定義すると、LQW, RQWの発光効率 $\eta_L$ ,  $\eta_R$ は、

$$\eta_L = 2r / [\tau_R + (1+r)\tau_B] \quad (4.8)$$

$$\eta_R = 2 / [\tau_R + (1+r)\tau_B] \quad (4.9)$$

となる。我々の実験条件では、2つのQWの励起キャリア密度は、ほぼ等しいため、 $\eta_L$ ,  $\eta_R$ の相対強度とLQW, RQWのPL強度 $I_L$ ,  $I_R$ の相対強度は一致する。 $r$ は、共鳴領域の始端では、大きな値を持ち、負に電界をかけていくと減少し、共鳴点では $\sim 1$ となり、共鳴領域の終端で0に近づく。この式から共鳴点( $r \sim 1$ )では $\eta_L = \eta_R$ となり、両QWのPL強度が等しくなる(D点)。 $I_L$ は、負に電圧をかけていくと $r$ が減少し、その結果 $I_L$ が減少する。一方、 $I_R$ は、最初増加し、一定値に近づく。これは、共鳴領域の終端のE点で $I_L < I_R$ であることをよく説明する。 $\tau_{PL}$ に関しては、共鳴領域全域で、LQWとRQWのキャリア寿命が等しいこと、共鳴点(D)で $\sim 2\tau_B$ であること、共鳴点を越えると減少し、共鳴領域の終端(E)で $\sim \tau_B$ になることなどの予測は、測定結果によく合っている。これらの特徴は、補節4.5.3に示すように、散乱を考えないモデルでは説明できない。

以上のことから、共鳴領域では、井戸間移動は急速に生じ、緩和過程により井戸間で準熱平衡分布が達成される。その結果、LQWからRQWを経て、右側の電極層へトンネルする過程は、散乱付随トンネル過程が支配的である。また、共鳴点は2つのQWのPL強度およびキャリア寿命が等しいDであることがわかる。

#### b. 共鳴幅および共鳴効果

共鳴効果の現れるエネルギー幅を検出し、不均一等の影響を考察する。キャリア寿命の実験結果が両QWで同等である領域の1/2を共鳴幅と考える。図4.8から電圧幅にして $\Delta V_a = 0.2$  Vとなる。この値から、2つのQWのエネルギーレベル差の変化を見積る場合、注意する必要がある。計算によると、共鳴は、電界 $F_{res} = -4.7$  kV/cmで生じる。この電界が、ノンドープ領域間に均一にかかるとうると、共鳴時の印加電圧は、 $F_{res} \times 1.2 \times 10^{-8} \text{ m} + 0.7$  V = 0.1 Vとなると予測される。これに対し、実験値は、 $-0.5$  Vとなっているが、励起パワーを約1/5にして弱励起で測定したPL強度の電圧依

存性のカーブと比較すると、電圧軸方向に $-0.5$  V 平衡移動していることがわかった。(時間分解測定時に弱励起では感度不足のため、実験は中励起で行った。)これは、フラットバンド(+0.7 V)から、電圧を負に変えていく場合、初めのうち、電界がQW間にかかっていない状況になっていることを示している。この原因を考えてみると、電圧軸をずらす要因として、まず、フォトカレントによるS1ドープ電極領域での電圧降下がある。図4.7の挿入図に示すように、フォトカレントは、 $1.2$  mA以下であり、順方向抵抗は、 $140 \Omega$ である。したがって、電圧降下は、 $1.2 \text{ mA} \times 140 \Omega = 0.17 \text{ V}$ 程度と見積れる。この値だけでは説明できない。次に、正孔の蓄積による寄与を見積ってみる。レーザにより井戸内に励起生成された正孔は、ある割合の電子が発光再結合される前にトンネルするために、発光再結合する相手を失う。さらに、ノンドープ層で生成された正孔が一部流入すると予測される。これらの取り残された正孔は、蓄積された後、いずれ非発光過程により、消滅すると考えられる。蓄積量は、(取り残された正孔の生成レート)  $\times$  (非発光消滅寿命)である。今、妥当な値として、生成レート $\sim 1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} / 24 \text{ ns}$ 、正孔寿命 $1 \mu\text{s}$ とすると、 $4.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ になる。正孔は、基底エネルギーレベルの低いLQWに蓄積されると考えられるので、この時、QW間に逆方向に電界が $\sim 2.9 \text{ kV/cm}$ がかかっていることになる。正孔の蓄積量は、電圧にあまり依存しないと考えると、これは、電圧軸のシフト(0.3 V)を引き起こす。

以上のことを考えると、電圧軸のシフトがよく説明できる。この時、電界のバイアス電圧による変化量 $\Delta F$ は、電圧の変化量をノンドープ層厚(1200 Å)で割った値で近似できる。従って、 $\Delta V a = 200 \text{ mV}$ は、 $\Delta F = 200 \text{ mV} / 1200 \text{ Å}$ に対応する。2つの量子井戸の中心間距離が92 Åなので、エネルギー幅に直すと $200 \text{ meV} / 1200 \text{ Å} \times 92 \text{ Å} = 15 \text{ meV}$ と評価できる。この値は、共鳴結合によるエネルギー分離の計算値 $\sim 0.57 \text{ meV}$ や散乱による均一広がり( $\sim 1 \text{ meV}$ )<sup>130)</sup>に比べ、はるかに大きい。従って、共鳴幅には、(1)井戸幅のゆらぎによる広がり、(2)電界の不均一性、(3)励起キャリアによる誘起電界等が大きく寄与していることを示唆している。第1の寄与について、まず、PLE(図4.7)で、1MLだけ井戸幅の異なる2つの励起子ピークが分離して現れている。これは、GaAsと、その上に成長したAlAsとの界面が、励起子の直径( $\sim 200 \text{ Å}$ )より大きい100 Å以上のオーダーで平坦な領域が続いていることを示す<sup>131)</sup>。PLEのエネルギー分離(LQWの $e1-h1$ に対し、8.2 meV、RQWの $e1-h1$ に対し、14.4 meV)より、伝導帯側の寄与を評価すると、井戸幅1

ML差による電子の基底量子準位のエネルギー差 $\Delta E_{n1}$ は、LQWで5 meV、RQWで10 meVとなる。それぞれのスペクトルピークに対しての広がりは、LQWの $e1-h1$ に対し、 $\sim 4.8 \text{ meV}$ 、RQWの $e1-h1$ に対し、 $\sim 3.4 \text{ meV}$ である。このうち、伝導帯側の電子による寄与は、2つのQWで同程度となり、 $\sim 2.6 \text{ meV}$ と評価できる。この広がり $\Delta E_{\text{rough}}$ は、AlAsとその上に成長したGaAsとの界面に100 Å以下の領域で存在する凹凸<sup>131, 132)</sup>によると考えられる。

このような井戸幅のゆらぎがある状況では、共鳴幅が広がると考えられる。LQW(RQW)の $\Delta E_{n1}$ でエネルギー分離した電子の基底量子準位を $E_{l1}$ 、 $E'_{l1}(E_{r1}, E'_{r1})$ とする。 $E'_{l1}$ 、 $E'_{r1}$ は、 $E_{l1}$ 、 $E_{r1}$ の準位が存在する領域に比べて井戸幅が1MLだけ狭い領域の準位を表す。即ち、 $E_{l1}$ 、 $E_{r1}$ に比べて $\Delta E_{n1}$ 分エネルギーレベルが高い。電界が負方向にだんだん関わってくると、まず、 $E'_{l1}$ と $E_{r1}$ が共鳴を起こし、次に $E_{l1}$ と $E_{r1}$ 、さらに $E'_{l1}$ と $E'_{r1}$ 、最後に、 $E'_{l1}$ と $E'_{r1}$ が共鳴を起こす。それぞれの共鳴点間のエネルギーは、約5 meVである。この値は、各量子準位のエネルギー幅 $\Delta E_{\text{rough}}$ と同程度のため、隣の共鳴点とオーバーラップし、それぞれの共鳴点は区別できなくなると予想される。したがって、バイアス電圧を掃引して観測される共鳴構造は、鋭い構造のないブロードなものとなり、共鳴幅は、2つのQWのエネルギー分離 $\Delta E_{n1}$ (LQWでは5 meV、RQWでは10 meV)を加えた15 meV程度になる。

ショットキー障壁高さの局所的ゆらぎ( $< 0.1 \text{ eV}$ )による共鳴幅の広がり、数meV以下と見積られる。

また、キャリアのQW面内で不均一に分布している場合の影響についても、数meV以下と考えられる。なぜなら、 $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ の電子によるポテンシャル変化は、約6 meVとなるが、励起キャリア密度は $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 以下である。

次に、不均一性のある場合共鳴効果の現れ方が弱くなると予想されるので、それについて検討する。共鳴領域と非共鳴領域が不均一に空間分布している場合、実効トンネル移動時間は、共鳴領域、非共鳴領域間の横(井戸面内)方向移動と、共鳴領域でのトンネルによる縦(井戸間)方向移動の2つの過程が寄与すると考えられる。それぞれの過程の特性時間の相対的な大小関係によって、2つの場合に分けられる。

第1は、共鳴、非共鳴領域間の横方向移動が共鳴トンネル時間 $\tau_{\text{res}}$ に比べて速い場合である。この場合、共鳴領域に電子が存在する確率が、共鳴領域の全領域に対する面積比で決まるため、実効トンネル時間は、 $\Delta E_{\text{res}} / \Delta E_{\text{inhom}}$

。× $\tau_1^*$ となる。

第2は、界面が平坦な領域の寸法が大きく、共鳴、非共鳴領域間の横方向移動が遅い場合である。この場合、非共鳴領域から共鳴領域へ流れ込んだ電子は、非共鳴領域へ出る前に、トンネル移動を起こす。そして、この電子の流れ込みに必要な時間が、実効トンネル時間を与えるようになる。

我々の試料では、少なくとも、不均一性の半程度を占める井戸幅のゆらぎについては、典型的な平坦領域の寸法が、100~1000Åである。100~1000Åの距離を電子が走行するのに要する時間は、kT (~2meV)のエネルギーを持つとして、0.1~1psとなり、非常に速い。従って、第1の場合に相当する。実効トンネル時間を前述の関係式から見積ると、~30psとなる。この値は、実験結果に矛盾しない。

共鳴効果がどの程度の膜厚まで現れるかを見るために、井戸間の障壁幅を5.6Åと大きくした結合二重量子井戸構造で測定を行ったが、共鳴効果は現れなかった。L<sub>0</sub>=5.6Åの場合、共鳴点でのトンネル振動周期は約60psと予測される。従って、共鳴点近傍のトンネル移動は、散乱時間(数ps以下)ではなく、このトンネル振動で律速された15ps (=60ps/4)程度の時間定数で生じるはずである。実験結果は、不均一性の影響のため、実効共鳴トンネル時間が発光再結合寿命の~400psより数倍以上大きくなったことを示している。

#### 4. 3. 5 非共鳴トンネル過程

##### a. 共鳴前

図4.5(a)に示すように、フラットバンド状態では、LQWの量子準位がRQWの量子準位よりずっと下になるので、LQWから外側へのトンネルは、抑制されると予想される。LQWの発光寿命 $\tau_{el}$ は、図4.8(a)のA-B領域では、310~400psと非常に長く、この値は、発光再結合寿命 $\tau_{rec}$ に近い値である。トンネル脱出時間 $\tau_t$ を、 $1/\tau_t = 1/\tau_1 + 1/\tau_{rec}$ および $\tau_{rec}$ が400psであることを使って評価すると、1.4ns以上となることがわかる。 $\tau_1$ が非常に大きい値を持つことは、弾性的トンネル過程も散乱付随トンネル過程も抑制されていることを示している。それは、LQWの波動関数 $\psi_L$ が外側の領域やRQWの領域に浸み出す割合が小さいことによる。

RQWの発光寿命 $\tau_e$ および発光強度 $I_s$ は、LQWの場合と大きく異なる。それは、2つのトンネル脱出過程の寄与を受けるためである。1つは、右側の

障壁層から外部へトンネルする過程、もう1つは、井戸間の障壁層をトンネルしてLQWに流れ込む過程である。前者の外部へのトンネル脱出時間 $\tau_e$ は、前述のように約110psと予測される。後者のLQWのトンネル移動時間 $\tau_{il}$ は、散乱要因や関与する波動関数の重なり積分等に依存するため、理論的予測が難しい。これについては、後で詳しく検討するが、ここでは、 $1/\tau_e = 1/\tau_e + 1/\tau_{rec} + 1/\tau_{il}$ の関係を用いて評価する。 $\tau_e$ は、RQWの発光寿命の測定値(<50ps)、 $\tau_e$ は、量子井戸層から右側の障壁層を通過して外部へトンネル脱出する時間(~110ps)、 $\tau_{rec}$ は、発光再結合時間(~400ps)である。井戸間トンネル時間 $\tau_{il}$ は、約120psとなる。この値は、 $\tau_e$ と同程度であるが、LQWのPLEスペクトルにおいて、RQWの励起子ピークが現れていることを考えると妥当な値であると言える。

RQWのPL効率は、 $\tau_e/\tau_{rec}$ で与えられ、測定値を用いると、50ps/400ps (=13%)以下になると期待される。図4.8(b)で示すように、RQWのPL効率の実験値は数%となっていて、若干の差があるが、半定量的には合っている。

##### b. 共鳴後

共鳴領域を越えて、さらに真に電界を印加していくと、LQWの基底準位がRQWの基底準位の上に位置するようになる。その結果、RQWからLQWへの電子移動は無視できるようになる。また、LQWからRQWや外部へのトンネルも抑制される。このことは、図4.8のE-F領域でLQWのPL寿命とPL強度が増加していることに現れている。

それに対して、RQWのPL強度は減少している。それは、LQWからの電子の流入が減少することやRQWから外部へトンネルするレートが電界による右端障壁層の実効的ポテンシャル高さの低下により増加することのため、RQWの電子密度が減少するからである。

一方、RQWのPL寿命 $\tau_s$ は、この領域(E-F)で増加している。これは、LQWからの電子が少ないながらも流入していることによる。この流入する電子は、LQWのPL寿命 $\tau_t$ でゆっくり減衰する。

##### c. コヒーレントトンネル脱出過程

共鳴後の $\tau_t$ は、図4.8で示すように約240psまで増加する。この電界領域での $\tau_{rec}$ が約500psとして、 $\tau_t$ は約460psと評価できる。この



電界領域では、共鳴近傍と同じように、弾性的トンネル過程と散乱付随トンネル過程が寄与し得る。

この2つの過程の寄与を評価するため、右端の障壁層が厚い(100 Å)試料2において、PL寿命とPL強度を測定し、試料1の測定結果と比較した。試料2では、QWから外側の領域へのトンネルはほとんど無視できる。従って、発光再結合過程やその他の過程が同じであるなら、試料1における $\tau_{\text{eff}}$ および $I_{\text{e}}$ と試料2における $\tau_{\text{eff}}$ および $I_{\text{e}}$ の差は、コヒーレントトンネル脱出過程の有無によることになる。

図4. 10は試料2におけるLQWのPL寿命 $\tau_{\text{eff}}$ とPL強度 $I_{\text{e}}$ を示す。共鳴前の $\tau_{\text{eff}}$ は約300 psである。試料1では、約240 ps(図4. 8(a))である。この違いを、LQWからRQWを経て外側へトンネルするコヒーレントトンネル脱出過程の寄与に帰すると、そのトンネル時間 $\tau_{\text{tunnel}}$ は、 $1/(1/240 \text{ ps} - 1/300 \text{ ps})$ から評価できる。1. 2 ns以上の非常に大きな値となる。このことは、電界による障壁ポテンシャルの低下が起こりうる共鳴後の領域でも、LQWの波動関数 $\psi$ はRQWにあまり浸み出していないことを意味する。また、試料1でのトンネル過程では、コヒーレントトンネル脱出過程以外の過程が支配的であることを示す。

別のトンネル過程である散乱付随トンネル過程を検討する。この過程は、試料1と試料2において同等に存在する。試料2の $\tau_{\text{eff}}$ の測定値300 ps、 $\tau_{\text{sc}} \sim 500 \text{ ps}$ と、 $1/\tau_{\text{eff}} = 1/\tau_{\text{sc}} + 1/\tau_{\text{tunnel}}$ から、散乱付随トンネル時間 $\tau_{\text{sc}}$ を評価すると、約800 psとなる。この値は、QWから同厚(31 Å)の障壁層を通して3D領域へトンネルする場合の100 psに比べて、非常に大きい。右端にもう1つの障壁層があることによって、干渉効果が生じ、LQWへのトンネルが大きく抑制されていると言うことができる。この場合の $\tau_{\text{sc}}$ の支配要因は、両QWの基底準位の波動関数間の重なり積分の大きさであり、その減少が $\tau_{\text{sc}}$ の増大に現れている。

今後の検討を要する2つの課題をあげる。1つは、共鳴前のRQWからLQWへの散乱付随トンネル時間 $\tau_{\text{sc}}$ の値(120 ps)が、共鳴後のLQWからRQWへの $\tau_{\text{sc}}$ の値(800 ps)に比べて、小さい点である。井戸間障壁層の複雑なバンド構造による効果や両方の場合で支配的な散乱要因が異なることなどが関係しているのかもしれない。もう1つは、共鳴後のコヒーレントトンネル脱出時間(1. 2 ns)が理論予測に比べて小さいことである。詳細な検討を要する。

#### d. LOフォノン支援井戸間トンネル過程

図4. 10のPh点に示すように、試料2におけるLQWのPL寿命とPL強度の電界依存性に-0. 9 V付近でくぼみ構造が現れる。くぼみの極小点でのPL寿命は約250 psである。共鳴後における発光再結合過程等の寄与の典型的な値として500~300 psとすると、この時のトンネル時間は、500~1000 psと評価できる。くぼみの極小点Phと共鳴点Reの間の電界差は600 mVである。この値は、ノドープ領域に一樣に電界がかかっているとすると、2つのQWの基底準位間のエネルギー差 $\Delta E_{\text{LQ}}$ が4. 4 meVであることに対応する(詳細は後述)。このエネルギー差の値は、くぼみが井戸幅ゆらぎに関係するものとするときと大きすぎる。以下に述べるように、このくぼみは、 $\Delta E_{\text{LQ}}$ がLOフォノンのエネルギーと等しくなったときにLOフォノン放出が可能となり、散乱付随トンネル過程が共鳴的に促進されることによると考えられる。

井戸間電子移動に寄与する散乱要因には、LOフォノン散乱、LAフォノン散乱、不純物散乱、界面ラフネス散乱、電子・電子散乱等<sup>[33, 34, 35]</sup>がある。準位間エネルギー差が、LOフォノンのエネルギー $E_{\text{LO}}$ より大きくなった場合は、LOフォノン放出が可能となり、LOフォノン散乱が大きな寄与を与えると考えられる。従って、バイアス電界が負の方向に強くなり、LQWの基底準位がRQWの基底準位よりLOフォノンのエネルギー分だけ高く位置するよう

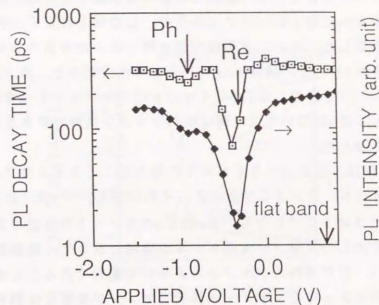


図4. 10 GaAs/AlAs非対称二重量子井戸構造(試料2)における発光寿命と時間積分発光強度。LQWからPLに関する測定結果。Reは共鳴点。Phはフォノン放出を伴うトンネル(本文参照)の寄与を示す。

になると、LQWからRQWのトンネルレートの増大されると予想される。LOフォノンエネルギーは、バルクGaAsの場合は、約36meV、バルクAlAsの場合は、約50meVである。井戸層や障壁層中のLOフォノンは、様々なモードを持つ<sup>136-139)</sup>。これらのモードのエネルギーは、バルクの場合と異なるが、30~50meVの範囲に入る。

観測されたくぼみの起源をLOフォノン支援トンネル過程によるとした正当性を確認するため、Ph点(図4.10)でのLQWとRQWの基底準位間のエネルギー差 $\Delta E_{LR}$ について検討する。共鳴領域の議論で述べたように、2つのQWのPL強度が等しくなるRe点が共鳴点である。Ph点とRe点との電界差は600meVである。ノンドープ層(1200Å)に様に電界がかかるとすると、井戸中心間(92Å)の電界降下は、全体の7.3%の44meVとなる。 $\Delta E_{LR}$ は、44meV $-\alpha$ ( $\alpha>0$ )と考えられる。 $\alpha$ は、2つのQWのStarkシフトの差や共鳴状態の項で述べた正孔の蓄積による電界スクリーニング等による効果であり、数meV程度と考えられる。従って、 $\Delta E_{LR}$ は、GaAsQWの局在LOフォノンのエネルギー(約36meV)に近いことがわかる。

次に、LOフォノンモードのうち、どのモードがトンネル過程に支配的に寄与しているかを、散乱レートの観点から検討する。LOフォノンモードには、GaAsQW内の局在モード、GaAs/AlAsの界面モード、AlAs障壁層内の局在モードが存在する。これらの寄与を評価するため、 $\Delta E_{LR}$ がLOフォノンエネルギーに等しいバイアス条件で、LQWとRQWの波動関数間の重なり積分を計算した。そのQW領域内での積分値の絶対値の2乗を $S_0$ 、障壁層内でのそれを $S_1$ とする。補節4.5.1の方法に従うと、 $S_0$ は $|a^{+1}a^{-1}|^2 + |a^{+2}a^{-2}|^2$ となり、 $S_1$ は $|a^{+1}a^{-2} + a^{-1}a^{+1}|^2 < \Phi_R | \Phi_L >|^2$ となる。ただし、 $S_0$ については、両QWのフォノンは独立であるとして、両QWからの寄与を加えた。

$S_0$ の計算結果は、 $\Delta E_{LR}=36\text{meV}$ の場合は $1.3 \times 10^{-4}$ 、 $\Delta E_{LR}=50\text{meV}$ の場合は $6.5 \times 10^{-5}$ となる。それに対し、 $S_1$ は、 $\Delta E_{LR}$ がどちらの場合でも $1.3 \times 10^{-8}$ となる。 $S_0$ は $S_1$ の50~100倍である。このことは、Ph点でのLOフォノン支援トンネル過程において、障壁層内のフォノンの寄与に比べ、井戸層内のフォノンの寄与が支配的であることを示唆している。従って、GaAs局在フォノンか界面フォノンが重要な役割を担っていると考えられる。

この解釈に関連して、PL寿命の電界依存性を検討する。図4.10のPh点から、バイアス電界をさらに負に加えていくと、トンネルレートは減少する。

$S_0$ が電界即ち $\Delta E_{LR}$ に依存しないことを考えると、この依存性は障壁層内のフォノンによる散乱では説明しにくい。それに対し、 $S_1$ は $\Delta E_{LR}$ に反比例するため、Ph点を越えて負の電界がさらに印加されるとトンネルレートが抑制される。従って、実験結果の電界依存性は、井戸層内のフォノンによる散乱でよく説明できる。界面フォノンは井戸内にも大きな振幅を持っているので、井戸内局在フォノンと同様な電界依存性を持つと考えられる。この2つのモードの相対的な寄与については、今後の検討を要する。

最後に、規格化フォノン散乱時間 $\tau_{PNS}$ を評価し、理論値との比較を行う。 $\tau_{PNS}$ は、測定値 $\tau_{PN}$ に状態間の重なり積分の2乗をかけて規格化した量である。 $\tau_{PNS}$ は500~1000ps、 $S_0$ は、 $1.3 \times 10^{-4}$ であるので、 $\tau_{PNS}$ は $7.0 \times 130\text{fs}$ となる。この値は、バルクGaAsやGaAsQWにおいて、LOフォノンエネルギーより大きなエネルギーを持つ電子のLOフォノン散乱時間と同程度である。また、Priceの方法<sup>140)</sup>に基づく、バルクLOフォノンをういた理論的計算によると、 $\tau_{PNS}$ は約50fsとなり、比較的よく一致する。

#### 4.3.6 量子井戸トンネル障壁の特徴

以上で検討した主要な過程と実効的トンネル過程の時間スケールの概略を図4.11に示す。ここでは、発光再結合過程の寄与は除いている。

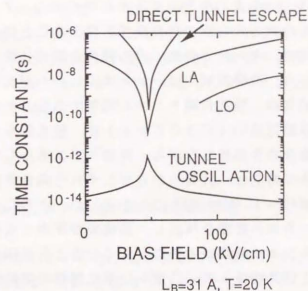


図4.11 二重量子井戸構造におけるトンネル過程の諸プロセスの時間定数の概念図。LQWの電子がトンネル移動する時間のバイアス電界依存性を示す。

ここで、二重障壁（膜厚 $L_0$ が2枚）量子井戸構造（試料1でのRQW）のトンネルバリアとしての特徴を単一障壁と比較しよう。共鳴条件下では、トンネルレートは膜厚 $L_0$ の単一障壁の $1/2$ の大きさとなるが、この大きさは、膜厚 $2L_0$ の単一障壁のトンネルレートに比べると、はるかに大きい。非共鳴の場合は、逆に、膜厚 $2L_0$ の単一障壁に比べ、トンネルレートが大きく抑制される。従って、共鳴・非共鳴の制御により、トンネル輸送を大きく変調できる。

制御に必要な井戸間の相対エネルギー変化は、共鳴幅で決まり、究極的には、井戸間結合の強さ、即ち共鳴時の対称・反対称状態間のエネルギー分離程度となる。バイアス電界で制御する場合、制御に必要な電界は、制御に必要な相対エネルギー変化を井戸中心間の距離で割った値、典型的には $<1\text{ mV}/10\text{ nm} = 10\text{ kV/cm}$ となる。この制御に要する相対エネルギー変化や制御電界は、共鳴幅が電子分布のエネルギー幅（典型値 $\sim 10\text{ meV}$ ）で決まる二重障壁共鳴トンネル構造での値（典型値 $\sim 10\text{ mV}/10\text{ nm} = 100\text{ kV/cm}$ ）に比べると小さい。

#### 4. 3. 7 結論

二重量子井戸構造におけるトンネル過程の基本プロセスを実験的に調べ、実験結果を説明するモデルを示した。

まず、GaAs量子井戸（LQW:  $L_0 = 70, 5\text{ \AA}$ ）中の電子が両側を薄い障壁層で囲まれた量子井戸（RQW:  $\text{AlAs}/\text{GaAs}/\text{AlAs} = 31, 1\text{ \AA}/50, 8\text{ \AA}/31, 1\text{ \AA}$ ）をトンネルするダイナミクスを調べた。試料に、電界をかけ、LQWとRQWの結合条件を変えることにより、共鳴および非共鳴トンネル領域で、キャリア寿命、PL強度を測定した。キャリア寿命、PL強度の実験結果から、共鳴領域では、トンネルレートが大きくなること、その場相のトンネル過程は、散乱付随トンネル機構であることを示した。ここでは、QW間の電子移動は速い（ $<300\text{ ps}$ ）が、散乱寄与を大きく受けるため、QW間で熱平衡分布を保持しながら、外側へトンネルしていくと解釈された。従って、トンネル時間は、共鳴点から少しずれた条件で最小となり、その値は、共鳴点での値の $\sim 1/2$ となることを示した。さらに、共鳴幅、共鳴強度について、不均一分布の影響を検討し、共鳴幅が不均一広がりで支配されること、QW間共鳴トンネル時間が1桁以上遅くなることを示した。次に、非共鳴領域（共鳴前および共鳴後）で、二重トンネル障壁の弾性的トンネル脱出時間が $800\text{ ps}$ 以上となり、トンネル抑制効果が著しいことを示した。また、同等の量子井戸間結合を持つ結合量子井戸を用いた測定で、QW間のエネルギ

準位差がLOフォノンのエネルギーより大きくなった共鳴後の領域で、GaAs LOフォノンによると推定されるLOフォノン支援トンネル過程を測定した。そのトンネル時間を評価し、 $500 \sim 1000\text{ ps}$ であることを示した。この値を、波動関数の重なり積分の2乗の大きさを考慮して規格化したトンネル時間に換算すると $50 \sim 100\text{ fs}$ となる。

トンネル振動については、位相緩和時間（数ps以下）内の時間スケールでは、重要となってくる。最近になり、Leoら<sup>[18]</sup>は縮退四光波混合測定等によりビートを観測し、実験的に検証した。また、Roskosら<sup>[22]</sup>によりサブミリ波の発生が確認されている。

#### 4. 4 結論

量子井戸構造における基本的な電子のトンネル過程として、量子井戸中の電子の基底準位が関与する過程を系統的に調べた。量子井戸から3次元領域へのトンネル過程について、Tsuchiyara<sup>[4]</sup>の実験結果を用い、理論的再検討を行って、理解を明確にした。次に、二重量子井戸構造におけるトンネル過程について、バイアス電界を印加し、共鳴状態および非共鳴状態のトンネル過程を実験的に明らかにした。理論的に検討を加え、実験結果と比較を行い、その物理機構を明確にした。ここで得られた成果は、トンネル応用デバイスの動作特性の理解にも重要な知見になると考えられる。

その後、トンネル過程の関連する様々な課題、特に正孔のトンネル過程<sup>[19]</sup>、励起子効果<sup>[20]</sup>、X点の影響<sup>[21]</sup>について、多くの研究が進展している。また、二重量子井戸構造におけるトンネル振動によるTHz波の発生<sup>[22]</sup>、赤外光励起により励起準位間が共鳴条件にある非対称二重量子井戸における一方の井戸から他方の井戸への電子のくみ上げ<sup>[23]</sup>など、デバイス応用につながる新規な機能が実証されている。

#### 4. 5 補節

##### 4. 5. 1 二重量子井戸構造における波動関数

結合量子井戸構造においては、固有状態の波動関数 $\psi_i$ 、 $\psi_j$ は2つの井戸の局在状態の波動関数 $\phi_L$ 、 $\phi_R$ が結合したものとなる。 $\phi_L$ と $\phi_R$ のエネルギーレベルが離れると、 $\psi_i$ 、 $\psi_j$ は、それぞれの井戸にほぼ局在した状態となる。共鳴点では、 $\phi_L$ 、 $\phi_R$ が対称および非対称結合した状態になり、波動関数の存在

確率は、両方の井戸に等しく存在する。一般的に、 $\psi_+$ 、 $\psi_-$ は、 $\Phi_L$ 、 $\Phi_R$ の線形結合で、

$$\Psi_{\pm} = a_{\pm}^L \Phi_L + a_{\pm}^R \Phi_R, \quad (4.10)$$

と近似的に表すことができる<sup>14)</sup>。結合係数は、バイアス電界に依存する。シュレディンガー方程式は、次の2次元の固有値問題で近似できる。

$$\begin{pmatrix} E_L - E_{\pm} & -u \\ -u & E_R - E_{\pm} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{\pm}^L \\ a_{\pm}^R \end{pmatrix} = 0, \quad (4.11)$$

ここで、

$$E_L = E_L^0 - e F d \quad (4.12)$$

$$E_R = E_R^0 + e F d \quad (4.13)$$

である。2dは、2つの井戸の中心間距離、 $E_{L(R)}^0$ は無電界時のLQW(RQW)の基底準位のエネルギー、uは井戸間の結合強度を表すエネルギー定数を表す。2バンド強結合法によるuの計算値は、試料1、試料2 ( $L_B = 31.1 \text{ \AA}$ )の場合、0.285 meVである。

#### 4.5.2 トンネル振動

図4.12の挿入図のように、結合QW(LQWとRQW)間では、定常波動関数(試料1における擬束縛状態に相当)が存在する。しかし、定常状態が形成される時間より短い励起により、1つのQW内に局在状態を形成した場合、QW間でコヒーレントな過程であるトンネル振動を生じることが予想される。

初期値のLQWに局在する状態を定常解 $\psi_+$ 、 $\psi_-$ を用いて、

$$\psi_u(0) = C_+ \psi_+ + C_- \psi_- = \Phi_L \quad (4.14)$$

と書く。その後の状態の時間発展は、

$$\begin{aligned} \psi_u(t) = & C_+ \psi_+ \exp(-i E_+ t / \hbar) \\ & + C_- \psi_- \exp(-i E_- t / \hbar) \end{aligned} \quad (4.15)$$

と書ける<sup>14)</sup>。ここで、 $E_+$ 、 $E_-$ は、 $\psi_+$ 、 $\psi_-$ のエネルギー値である。これより、電子のLQW中の存在確率は、

$$P_L(t) = |\langle \Phi_L | \psi_u(t) \rangle|^2 = 1 - 4 |C_+|^2 |C_-|^2 \sin^2 [(E_- - E_+) t / 2 \hbar] \quad (4.16)$$

となる。従って、振幅が $4 |C_+|^2 |C_-|^2$ 、周期が $\hbar / (E_- - E_+)$ で存在確率が振動することがわかる。 $C_+$ 、 $C_-$ 、 $E_+$ 、 $E_-$ は、補節4.5.1に示す方法で計算できる。

計算によると、電子密度の時間発展が図4.12のようになる。共鳴点では、周期も振幅も最大となる。共鳴点からはなれると、両方も急激に減少する。周期の計算結果を図4.13に示す。 $L_B = 31 \text{ \AA}$ の場合、周期Tの値は、共鳴点で7 psである。この周期は、定常固有状態を形成するのに必要な時間に相当する。また、確率密度が振幅の1/2だけ減少するのに要する時間は、周期の1/4である。

#### 4.5.3 コヒーレント共鳴トンネル脱出モデル

コヒーレントな共鳴トンネル透過プロセスを考える。このモデルは、現実存在する散乱を考慮していないため、モデルが予測する共鳴領域におけるPL寿命とPL強度の電界依存性は、実験結果をよく説明できないことを後半部で示す。

このモデルの重要な部分は、図4.14の挿入図に示すように、結合量子井戸中の擬束縛状態のトンネル脱出過程である。ただし、プロセスを明確にするため、擬束縛状態に至るまでの初期過程についても、後で述べる。

LQWの電子は、共鳴点直前では、少しRQWに波動関数が浸み出し[図4.14の挿入図(a)]、トンネルが増える。共鳴点では、LQWとRQWに等分布し[図4.14の挿入図(b)]、トンネルレートが最大となる。共鳴後は、RQWへの浸み出しが抑制され、トンネルレートは小さくなる[図4.14の挿入図(c)]。

このことを定量的に明らかにするために、次の方法を用いて計算を行った。計算には、2バンド強結合法を用いた。

ある電圧を印加した構造に一定波長の電子を入射する。その場合のQW中に蓄積される電子密度を入射電子のエネルギーの関数としてプロットする。その曲線は、擬束縛準位に対応するエネルギーでローレンツ型のピークを持つが、

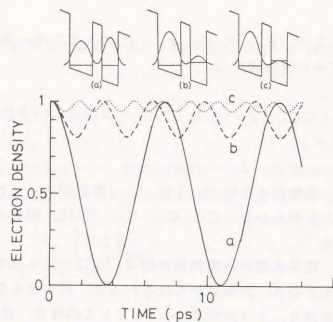


図4. 12 電子密度のトンネル振動.  $L_w$  (LQW) =  $71 \text{ \AA}$ ,  $L_w$  (RQW) =  $51 \text{ \AA}$ ,  $L_b$  (central barrier) =  $31 \text{ \AA}$ . (a) 共鳴点 ( $\Delta E_{LR} = 0 \text{ meV}$ ), (b)  $\Delta E_{LR} = 1.14 \text{ meV}$ , (c)  $\Delta E_{LR} = 2.28 \text{ meV}$ .

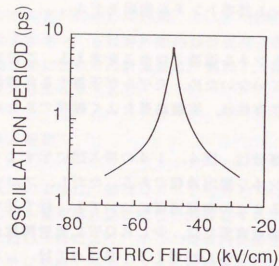


図4. 13 トンネル振動周期のバイアス電界依存性.

そのピークの $\Gamma$ を抽出し、 $\tau_e / \Gamma$ の関係から、その電圧でのトンネル脱出時間を得た.

図4. 14は、電圧を振って計算した理論値である. このプロセスによるトンネル脱出時間 $\tau_e$ は、共鳴点で最小となる. また、共鳴幅は、共鳴点でのエネルギー分裂値に等しい. そして、共鳴点での値は、同じ障壁層幅と井戸幅を持

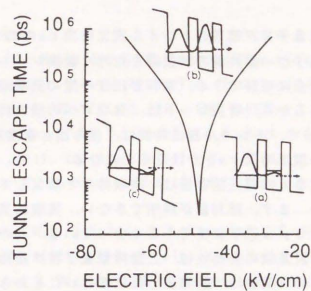


図4. 14 コヒーレントトンネル脱出過程によるトンネル脱出時間のバイアス電界依存性の予測.

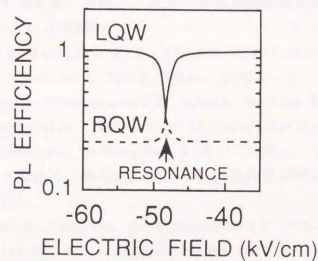


図4. 15 コヒーレントトンネル脱出過程によるPL強度のバイアス電界依存性の予測.

つ単一トンネル障壁量子井戸構造のトンネル脱出時間 $\tau_0$ の約2倍である。このような振舞いは、電子が一番外側の障壁層をたたく衝突レートを次のように考えることで、ほぼ完全に理解できる。電界がほぼ一定の共鳴点近傍では、衝突速度はほぼ一定であるから、衝突レートは、RQWへの浸み出し密度の割合 $P_R$ に比例する。従って、トンネル脱出時間は、浸み出し密度割合 $P_R$ の逆数に、単一障壁のトンネル脱出時間 $\tau_B$ をかけたものになる。

このプロセスによる $\tau$ の電圧依存性は、実験結果と類似しているが、詳しくみるとそうではない。まず、絶対値が説明できない。実験結果(本文図4.8)は、 $\tau$ の最小値は90 p s以下にまで小さくなっている。この値は、計算値の約1/2である。(計算値の妥当性は、二重障壁量子井戸構造でのトンネル脱出時間の実験値からの予測値は、計算値とほぼ等しいことからわかる。)

さらに、PL強度の振舞いは、このプロセスでは以下に示すように、実験結果を解釈できない。このプロセスの予測は、図4.15に示すようにLQWのPL強度は、共鳴点では、 $(1/\tau_R) / (1/\tau_R + \tau_I) \sim 0.4$ に減少し、RQWの強度と等しくなる。RQWについては、共鳴点でトンネル脱出時間が $\sim 2$ 倍になるため、PL強度が $\sim 2$ 倍になる。実験結果は、この予想とは違って、PL強度の電圧依存性が大きく、E点では、LQWの強度はRQWの1/3まで低下している。



#### (第4章参考文献)

1. L. L. Chang, L. Esaki and R. Tsu, Appl. Phys. Lett. 24, 593 (1974).
2. T. C. L. G. Sollner, W. D. Goodhue, P. E. Tannenwald, C. D. Parker and D. D. Peck, Appl. Phys. Lett. 43, 588 (1983).
3. T. C. L. G. Sollner, P. E. Tannenwald, D. D. Peck and W. D. Goodhue, Appl. Phys. Lett. 45, 1319 (1984).
4. M. Tsuchiya, T. Matsusue and H. Sakaki: Phys. Rev. Lett. 59, 2356 (1987).
5. M. K. Jackson, M. B. Johnson, D. H. Chow and T. C. McGill, Appl. Phys. Lett. 54, 552 (1989); T. B. Norris, X. J. Song, W. J. Schaff, L. F. Eastman, G. Wicks and G. A. Mourou, Appl. Phys. Lett. 54, 60 (1989).
6. T. Nakagawa, H. Imamoto, T. Kojima and K. Ohta, Appl. Phys. Lett. 49, 73 (1986).
7. M. Tsuchiya, T. Matsusue and H. Sakaki, Ultrafast Phenomena VI (Springer Series in Chemical Physics 48), edited by T. Yajima, K. Yoshihara, C. B. Harris and S. Shionoya, p. 304 (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
8. 松末俊夫, 土屋昌弘, 榊裕之, 東京大学生産技術研究所電気談話会報告, Vol. 39, No. 34 (1988).
9. H. Sakaki, M. Tsuchiya, H. Kurata and T. Matsusue, 16th Int. Conf. on Quantum Electronics TuB-2 (Tokyo, 1988).
10. T. Matsusue, M. Tsuchiya and H. Sakaki, Quantum Wells for Optics and Optoelectronics (1989 Technical Digest Series Vol. 10), p. 266 (Opt. Soc. America, Washington, D. C., 1989).
11. 松末俊夫, 土屋昌弘, 榊裕之, 第36回応用物理学関係連合講演会, 2a-s-5 (1989).
12. T. Matsusue, M. Tsuchiya, J. Schulman and H. Sakaki, Extended Abstracts (in Japanese) of 50th Autumn Meeting of the Japan Society of Applied Physics, 1076 (Fukuoka, 1989).
13. H. Sakaki, T. Matsusue and M. Tsuchiya, IEEE J. Quantum Electron. QE-25, 2498 (1989).
14. T. Matsusue, M. Tsuchiya, J. N. Schulman and H. Sakaki, Phys. Rev. B42, 5719 (1990).
15. 松末俊夫, 土屋昌弘, 秋山英文, 榊裕之, 応用物理第61巻, 154

- (1992).
16. H. Sakaki, T. Matsusue, M. Tsuchiya and H. Yoshimura, 4th Int. Symp. on Foundations of Quantum Mechanics (Kokubunji, 1992).
  17. T. Matsusue, M. Tsuchiya and H. Sakaki, Presented in 1989 OSA Topical Meeting on Quantum Wells for Optics and Optoelectronics, WD-1 (Salt Lake City, 1989).
  18. K. Leo, J. Shah, E.O. Gobel, T.C. Damen, S. Schmitt-Rink, W. Schafer and K. Kohler: Phys. Rev. Lett. 66, 201 (1991)
  19. M. Nido, M.G.W. Alexander, W.W. Ruhle and K. Kohler, Phys. Rev. B43, 1839 (1991).
  20. A.M. Fox, D.A.B. Miller, G. Livescu, J.E. Cunningham and W.Y. Jan, Phys. Rev. B44, 6231 (1991).
  21. M.G.W. Alexander, M. Nido, K. Reimann, W.W. Ruhle and K. Kohler, Appl. Phys. Lett. 55, 2517 (1989).
  22. H.G. Roskos, M.C. Nuss, J. Shah, K. Leo, D.A.B. Miller: 8th Int. Conf. on Ultrafast Phenomena, FA2 (Juan-les-Pins, 1992)
  23. H. Akiyama, H. Sugawara, Y. Kadoya, A. Lorke, S. Tsujino, T. Matsusue and H. Sakaki, submitted to Quantum Electronics and Laser Science Conf (Baltimore, 1993).
  24. M. Tsuchiya, Ph. D. Thesis, University of Tokyo, 1987.
  25. Kroemer Surf. Sci. 174, 299 (1986).
  26. See, for example, H.B. Bebb and E.W. Williams, in Semiconductors and Semimetals, edited by R.K. Willardson and A.C. Beer (Academic, New York, 1972), Vol. 8, Chap. 4.
  27. D.Y. Oberli, J. Shah, T.C. Damen, C.W. Tu, T.Y. Chang, D.A.B. Miller, J.E. Henry, R.F. Kopf, N. Sauer and A.E. DiGiovanni, Phys. Rev. B40, 3028 (1989).
  28. D.Y. Oberli, J. Shah, T.C. Damen, J.M. Kuo, J.E. Henry, J. Lary and S.M. Goodnick, Appl. Phys. Lett. 56, 1239 (1989).
  29. H. Sakaki, M. Tanaka and J. Yoshino, Jpn. J. Appl. Phys. 24, L417 (1985).
  30. L. Schultheis, A. Honold, J. Kuhl, K. Kohler and C.W. Tu, Phys. Rev. B34, 9027 (1986).
  31. M. Tanaka and H. Sakaki, J. Crystal Growth 81, 153 (1987).
  32. H. Sakaki, T. Noda, K. Hirakawa, M. Tanaka and T. Matsusue, Appl. Phys. Lett. 51, 1934 (1987).
  33. R. Ferreira and G. Bastard, Phys. Rev. B40, 1074 (1989).
  34. B. Movaghar, J. Leo and A. MacKinnon, Semicond. Sci. Technol. 3, 397 (1988).
  35. H.W. Liu, R. Ferreira, G. Bastard, C. Delalande, J.F. Palmier and B. Etienne, Appl. Phys. Lett. 54, 2082 (1989).
  36. A.K. Sood, J. Menendez, M. Cardona and K. Ploog, Phys. Rev. Lett. 54, 2115 (1985).
  37. A.K. Sood, J. Menendez, M. Cardona and K. Ploog, Phys. Rev. Lett. 54, 2111 (1985).
  38. R. Fuchs and K.L. Kliewer, Phys. Rev. 140, A2076 (1965).
  39. M.V. Klein, IEEE J. Quantum Electron. QE-22, 1760 (1986).
  40. P.J. Price, Annal. Phys. 133, 217 (1981).
  41. See, for example, C. Weisbuch, Semiconductor and Semimetals, Vol. 24, edited by R. Dingle, Chap. 1 (Academic Press, San Diego, 1987).
  42. See, for example, E.O. Kane, Tunneling Phenomena in Solids, edited by E. Burstein and S. Lundqvist, Chap. 1 (Plenum Press, New York, 1969); S. Luryi, Solid State Com. 65, 787 (1988).
  43. J.N. Schulman and M. Waldner, J. Appl. Phys. 63, 2859 (1988).

## 5. 量子井戸構造における面内拡散過程

### 5. 1 序論

キャリアを量子井戸に注入すると、そのキャリアは図5. 1に示すように面内を拡散する。この拡散過程は、量子井戸デバイスの特性と重要に関わっている。例えば、キャリア注入型（特に横方向注入型）デバイスでは究極的な応答速度に影響を及ぼし、また微細寸法素子では、キャリアとその素子の側面との相互関係の大きさを決定する。また、キャリア誘起に伴う非線形光学効果や共鳴トンネル効果を利用したデバイスでは、一般に、面内不均一性があるため、注入キャリアが面内で拡散し、これらの効果の大きさを左右するものと予想される。さらに、(光)並列素子の微細化の限界、キャリア誘起回折格子やキャリアの空間閉じ込めを利用した光素子(変調器やメモリ)の動作特性などには、面内拡散が重要な役割を果たす。

ところが、光励起キャリアの拡散は、理論的にも実験的にも未解明部分が多い。それは、励起子、電子、正孔の混在により、拡散過程が複雑になることや、実験的な測定が困難であることのためによる。少数の研究者らによって、いくつかの側面からの実験的研究が開始されていた<sup>[1]-[3]</sup>が、(1)構造や実験条件が限られること、(2)測定上に問題点があることなど、系統的研究が待たれていた。そこで、本研究<sup>[4]-[12]</sup>では、拡散速度を実験的に決定し、それが構造や実験条件でどのように変化するかを系統的に明らかにすることにより、その物理機構の理解や制御可能性を探った。

本研究と相前後して、様々な構造、実験条件、実験方法を用いた面内拡散に関する研究が報告されている<sup>[13]-[17]</sup>。本研究の試料と組成が異なっているもの<sup>[17]</sup>、面内方向に電界を印加したものの<sup>[16]</sup>などにより、別の側面からの知見も増えている。しかし、理想化、単純化したモデルによる解釈にとどまっている状況にある。実験面での進展とともに、より現実的な状況を記述する理論の進展が必要とされている。

### 5. 2 拡散過程の概要

まず、拡散現象の概略を説明する。図5. 1のように、光励起されたキャリア(励起子、電子・正孔対)は、エネルギーの緩和とともに、空間的に移動していく。そのため、密度などに空間分布があれば、時間とともに一様化(拡散)していく。その過程では、図5. 2のように、様々な散乱や相互作用によって

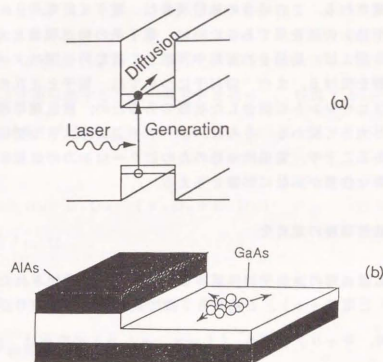


図5. 1 量子井戸構造における面内拡散の模式図。(a)バンド図およびレーザー光によるキャリア励起とその後の面内移動、(b)構造断面図およびキャリアの拡散。

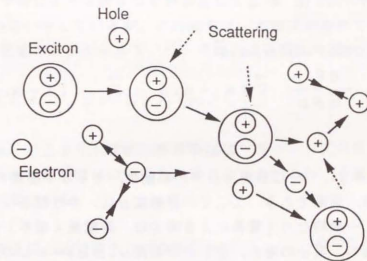


図5. 2 拡散過程の概念図。



拡散が律速される。この場合の拡散現象は、電子（正電荷）、正孔（負電荷）、励起子（中性）の混在系であるために、電子系の輸送現象と大きく異なると予想される。例えば、励起子の解離や再結合、荷電粒子間のクーロン力を初め、様々な影響を受ける。また、励起子については、電子と正孔の多くの状態の波動関数がコヒーレントに結合した状態であるため、散乱確率等が電子や正孔単体の場合と大きく変わる。さらに、ボーア半径より大きな空間領域ではボーズ粒子的であることや、電気的中性のためにクーロン力の効果を受けにくいことなどの特異な性質が拡散に影響を与える。

### 5.3 拡散過程の定式化

次に、拡散過程の運動学的枠組みを検討する。光励起されたキャリアは、励起子(x)と電子(e)、正孔(h)間で解離、結合を繰り返しながら拡散する。この時、キャリア密度 $n_i$  ( $i=x, e, h$ )の変化は、拡散流 $\vec{J}_i$ を用いて、

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = -\vec{\nabla} \cdot \vec{J}_i + G_i + R_i \quad (i=x, e, h) \quad (5.1)$$

と書ける。ここで、 $G_i$ 、 $R_i$ は、それぞれ、解離・結合等による発生および消滅を表す。 $\vec{J}_i$ は局所フェルミレベル $E_{Fi}$ 、電界 $F$ を用いて、線形近似の範囲で、

$$\begin{aligned} \vec{J}_i &= -\mu_i n_i \vec{\nabla} E_{Fi} - q_i \mu_i n_i \vec{F} \\ &= -\mu_i n_i \frac{dE_{Fi}}{d\delta n_i} \vec{\nabla} \delta n_i - q_i \mu_i n_i \vec{F} \quad (i=x, e, h) \end{aligned} \quad (5.2)$$

と書ける。 $\mu_i$ 、 $\delta n_i$ 、 $q_i$ は各キャリアの移動度、キャリア密度の平衡値( $n_i^{(0)}$ )からの変位、荷電である。ここでの移動度 $\mu$ は、中性粒子(励起子)にも適用するため、一般的な力(電界による場合は、荷電量×電界)に対する量にとつてある。即ち、電子の場合、通常の移動度 $\mu_0$ と $\mu_0 = e\mu$ の関係になる。この式より、

$$D_i = \mu_i n_i dE_{Fi} / d\delta n_i \quad (5.3)$$

と書け、非縮退時、左辺は、 $\mu_i kT$ に等しい(アインシュタインの関係式<sup>(10)</sup>)。電子・正孔は空間分離すると強い電界 $F$ を発生し、等流( $\vec{J}_0 = \vec{J}_n$ 、 $\delta n_0 = \delta n_n$ : 両極性拡散<sup>(10)</sup>)になるとすると、 $D_{0,n} [ = -(\vec{J}_0 + \vec{J}_n) / \vec{\nabla}(\delta n_0 + \delta n_n) ]$ は、

$$D_{0,n} = (n_0 + n_n) D_0 D_n / (n_0 D_0 + n_n D_n) \quad (5.4)$$

となる。全拡散流 $\vec{J}_{tot}$ は、

$$\vec{J}_{tot} = D_0 \vec{\nabla} \delta n_x + D_{0,n} \vec{\nabla} (\delta n_0 + \delta n_n) \quad (5.5)$$

となる。キャリア密度の熱平衡値 $n_i^{(0)} = 0$ の場合は、

$$\vec{J}_{tot} \sim [r_x D_x + (1-r_x) D_{0,n}] \vec{\nabla} n_{tot} \quad (5.6)$$

と書ける。 $r_x$ は、励起子の割合( $n_x / n_{tot}$ )である。今の場合、拡散の時間スケール( $\sim 100$  ps)に比べ、励起子の解離結合の時間スケールが小さいので、 $x=e+h$ の化学平衡が、局所的に成り立つと考えられる。そのため、 $r_x$ は、化学平衡によって決まっているとしてよい。第2式の式変形は、 $r_x$ の空間微分が小さいとしているが、この近似は、本研究の条件ではよい。また、 $\mu_i$ は各種の散乱ポテンシャル $V_i^{(j)}$ 、それによる散乱時間 $\tau_i^{(j)}$ と、

$$\mu_i = \Sigma \langle \tau_i \rangle / m_i \sim \Sigma 1 / (m_i \langle V_i^{(j)2} \rangle) \quad (5.7)$$

の関係がある。以上より、拡散の律速要因は、各キャリアの密度比、散乱時間、フェルミレベルの密度微分に分けられることがわかるが、それらが構造や測定条件で様々な変化する。

## 5.4 拡散過程の井戸幅および温度依存性

### 5.4.1 序論

温度や井戸幅は、基本的な実験条件であり、その依存性を明らかにすることは、拡散過程の概略を知る上で不可欠である。そればかりでなく、拡散過程を微視的に理解する上でも大いに役立つ。

種々の散乱による散乱時間は異なる温度変化をし、それに伴い支配的な散乱の種類が温度領域により異なってくる。また、散乱の種類により井戸幅依存性も異なる。さらに、励起子、電子、正孔が拡散に寄与する大きさは、温度に依存する。従って、拡散過程の温度依存性や井戸幅依存性を詳細に検討することで、関与する散乱や励起子、電子、正孔の寄与に関する知見等を得ることが可能であると期待される。

本研究<sup>(4-6)</sup>では、井戸幅の異なる3種類の量子井戸構造における拡散定数を低温(～10K)から高温(～300K)にわたって実験的に明らかにし、その結果を基にして、拡散のメカニズムを理論的に検討する。

#### 5. 4. 2 実験方法

##### a. 過渡回折格子法の原理および測定法

測定は、以下に述べる過渡回折格子法(トランジェント・グレーティング法)<sup>(9)</sup>を用いた。3次の光非線形効果による縮退四光波混合過程の一種を利用する方法である。この測定法の特徴には、キャリア密度がほぼ一定条件下での測定であることや、種々の緩和時間が同様の測定系で測定できることなどがある。

原理を図5.3に示す。パルスレーザ光を2本の励起光と探索光に分けた後、励起光を角度をつけて同時( $t=0$ )に試料に入射する。発生した干渉光を吸収して生じたキャリアの密度 $N$ は、 $N_0 + N_1 \cos(2\pi x/\Lambda)$ となる。 $x$ は入射面と試料の交線方向、 $\Lambda$ は格子周期を表す。キャリアの空間分布の拡散によって一様化する様子は、

$$\partial N / \partial t = D \nabla^2 N - N / \tau_R \quad (5.8)$$

$$N(x, t) = N_0 \exp(-t/\tau_R) + N_1 \exp[-(4\pi^2 D / \Lambda^2 + 1/\tau_R)t] \cos(2\pi x/\Lambda) \quad (5.9)$$

と書ける。 $D$ は拡散定数、(5.8)の右辺第2項は、キャリア寿命 $\tau_R$ による減衰成分を表す。この時、キャリア密度に比例して屈折率が変化するため、回折格子が形成される。その結果、励起光より遅れて(遅延時間 $\tau$ )探索光を入

射すると回折光が発生する。その回折光の強度( $\eta$ )は、回折格子の屈折率の振幅の2乗に比例するため、

$$\eta(\tau) \sim [N(0, \tau) - N(\Lambda/2, \tau)]^2 = N_1^2 \exp[-2(4\pi^2 D / \Lambda^2 + 1/\tau_R)\tau] \quad (5.10)$$

と書ける。従って、回折光強度は、探索光の遅延時間 $\tau$ とともに一定の割合で減衰する。その場合の減衰時間 $\tau_{\text{eff}}$ は、

$$1/\tau_{\text{eff}} = 8\pi^2 D / \Lambda^2 + 2/\tau_R \quad (5.11)$$

となり、 $\tau_{\text{eff}}$ の測定で $D$ が評価できる。

測定系は図5.4に示す。モードロック色素レーザからのパルス光を、励起子吸収ピークに波長を合わせ、繰り返し4MHzで用いた。励起光の偏光は、試料入射面に垂直、探索光の偏光は、入射面に平行にした。回折光は、ピンホール、偏光板、分光器を通した後、光電子増倍管で検出した。この時、回折光以外のバックグラウンドを取り除くため、励起光の1つと探索光をそれぞれ周波数 $f_1$ と $f_2$ でチョッピングし、回折光の和周波成分( $f_1 + f_2$ )をロックイン検出した。 $\Lambda$ は、発光再結合成分や初期(<50ps)のエネルギー緩和過程の寄与が小さくなるように、2.8～3.5 $\mu\text{m}$ に設定した。ただし、発光再結合成分 $\tau_R$ は、発光寿命の測定値を用いて補正をした。試料は、循環型Heガスクライオスタットまたはガスフロー型液体Heクライオスタットを用いて冷却した。

##### b. 試料構造

試料は、30周期のGaAs/AlAs QWからなり、井戸幅の異なる構造を3種類作製した。結晶成長には、分子線エピタキシー法を用いた。半絶縁性GaAs(001)基板上に、基板温度600℃で成長を行った。まず、GaAsバッファ層を成長後、Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>Asを3000Å、その後、GaAs/AlAs QWを30周期、最後に、GaAsキャップ層を200Å成長した。QWの井戸層/障壁層界面では、GaAs成長後60秒、AlAs成長後10秒の成長中断を行った。QWの井戸幅は、53.8Å, 70.8Å, 105Åの3種類、障壁層幅は79.2Åである。

透過配置測定のため、基板側をエッチングして使用した。エッチング工程は、

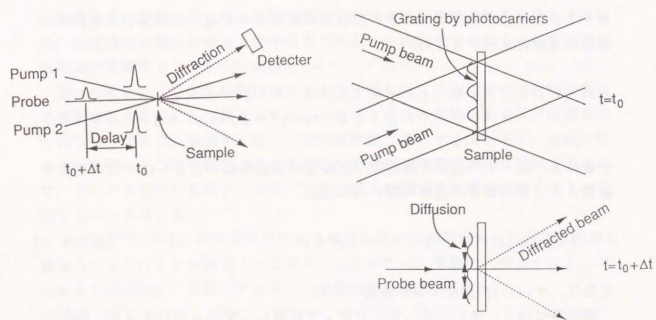


図5.3 トランジェント・グレーティング法の原理.

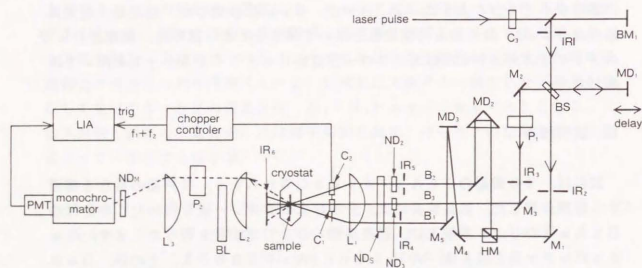


図5.4 測定系. HM: ハーフミラー, BS: ビームスプリット, M, BM, MD: ミラー, L: レンズ, ND: NDフィルタ, IR: アイリス, BL: ビームブロック, P: 偏光素子, C: チョップ, B: レーザ光.

4 mm角程度の試料を、まず、100 μm厚程度まで、基板側をラッピングした後、サファイア板(厚さ1.5 mm)にエポキシ系接着剤(アラルダイト)を薄く塗り、結晶成長面が接触する方向にして接着する。その際、サファイア板は複屈折性があるので、偏光測定をする場合を考慮して、主軸を基板の[110]方向に合わせた。次に、試料の周辺部をレジスト(OMR)でおおう。レジストでおおわれていない中央部(基板側)を硫酸系エッチャント(H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>=1:2)で10 μm程度までエッチングし、その後、選択エッチャント(NH<sub>4</sub>OH:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>=1:25)を用いて、Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As層までエッチングした。

#### 5. 4. 3 実験結果および考察

拡散定数の温度依存性の測定結果を図5.5に示す。図には、あらわに温度に依存する項を落とし、散乱時間の温度依存性を示すため、D/kTで換算したμを、同時に表示してある。

##### a. 高温(>80K)における拡散過程:

##### L Oフォノン散乱による自由キャリアの両極性拡散

80K以上では、D/kT(〜μ)は、温度上昇と共に、急激に減少する。この減少はL Oフォノン散乱の増加によると考えられる。この温度領域では、励起子は解離されるため、励起子効果は小さい。また、拡散の空間スケールは、1 μmオーダーであるので、次のように考える。電子・正孔の両極性拡散機構によっているとすることがわかる。今、10<sup>18</sup> cm<sup>-2</sup>の電子・正孔が10 Å分離したとすると、その時の復元力として働く電界は、10<sup>2</sup> V/cmとなる。この電界中で電子が10 Åを戻す時間は、1 ps以下となり、今見ている拡散の時間スケール100 psに比べ、十分に小さい。実際、室温でのD/kT=4000 cm<sup>2</sup>/eV・sはpおよびn型QWの室温でのμの値220, 5000 cm<sup>2</sup>/eV・sを使って求めた両極性移動度4200 cm<sup>2</sup>/eV・sとはほぼ一致する。

##### b. 低温(<80K)における拡散過程: 励起子の拡散

80K以下では、温度が下がるに従いDは減少し、またμ依存性が大きい。この結果を検討するために、まず、散乱要因を考える。この温度領域で大きく

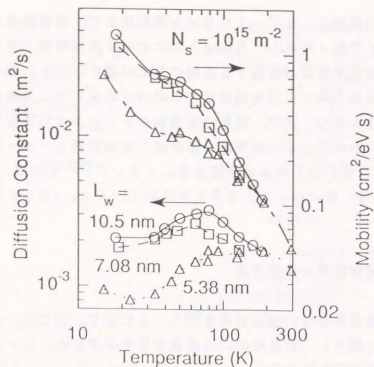


図5. 5 拡散定数および移動度の温度依存性.

寄与する散乱には、変形ポテンシャル (DP) 散乱とラフネス散乱が考えられる。電子移動度におけるラフネス散乱は、 $L_w < 60 \text{ \AA}$  では無視できること<sup>119</sup>や、後述 (5. 5 節) の AlAs アイランド挿入による拡散の抑制効果の大きさからラフネスポテンシャルの振幅の大きさの違いを考慮して見積ると、 $L_w > 70 \text{ \AA}$  では、ラフネス散乱は小さく DP 散乱が支配的であると考えられる。DP 散乱では、散乱ポテンシャルの2乗が  $T$  に比例するため、単純に考えると、 $\tau$  および  $\mu$  は  $T$  に反比例する。従って、 $D$  は、アインシュタインの関係式 ( $D = \mu kT$ ) が成り立つとすると、 $T$  に依存しないはずである。しかし、測定結果は、 $T$  の増加に伴って、 $D$  は増加している。そこで、いくつかの原因を検討する。

まず、励起子、自由キャリア (正孔、電子) の混在比を考える。  $x = e + h$  の化学平衡状態を考えればよい。励起子については、基底状態 ( $1s$ ) のみを考え、結合エネルギーは  $8 \text{ meV}$  で、ボーズ統計に従うとした。また、有効質量を、電子は  $0.067 m_0$ 、正孔は  $0.112 m_0$ 、励起子はその和である  $0.198 m_0$  とした。励起子の割合は、 $N_{100} = 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  において、 $100 \text{ K}$  で  $0.5$ 、 $30 \text{ K}$  で  $0.9$ 、 $10 \text{ K}$  では  $0.997$  となり、温度が下がると励起子の重要度が急激に増加することがわかる。

そこで、電子、正孔および励起子 (基底状態) のそれぞれについて散乱強度とそれから決まる拡散定数  $D$  を検討する。散乱時間  $\tau_i$  は、電子および正孔の散乱ポテンシャル  $V_i(q)$  を用いて、電子および正孔に対して、

$$\frac{1}{\tau_i(E)} = \frac{m_i}{2\pi\hbar^3} \int_0^{2\pi} d\theta (1 - \cos\theta) \left[ \frac{V_i(q)}{S_i(q)} \right]^2, \quad (5. 12)$$

と書け<sup>120</sup>、励起子に対しては、

$$\frac{1}{\tau_X(E)} = \frac{m_X}{2\pi\hbar^3} \int_0^{2\pi} d\theta (1 - \cos\theta) [V_e(q) \gamma_e(q) + V_h(q) \gamma_h(q)]^2, \quad (5. 13 a)$$

$$\gamma_i(q) = \left[ 1 + \left( \frac{m_i}{m_X a_B} q \right)^2 \right]^{-3/2} \quad (i=e, h), \quad (5. 13 b)$$

と書ける<sup>122</sup>。  $S_i$  はスクリーニング関数<sup>120, 211</sup>、 $a_B$  は基底状態 ( $1s$ ) の励起子のボーア半径である。

これらの式からわかるように、励起子の場合、各粒子に対するポテンシャルがその振幅で加わっていること、内部構造に対応する形状因子が入ること、有効質量が違うことなどが電子、正孔の場合と異なっている。DP 散乱では、 $V_i = A_i (3kT / 2\rho u^2 L_w)^{1/2}$  と書ける。  $A_i$  は変形ポテンシャル定数で  $A_e \sim 12 \text{ eV}$ 、 $A_h \sim 6 \text{ eV}$  である。  $\rho$  は体積密度、 $u$  は音速を表す。拡散定数を決める実効的散乱時間  $\langle \tau_i \rangle$  は、分布関数  $f_i$  を用いて、

$$\langle \tau_i \rangle = \int dE E \frac{\partial f_i}{\partial E} \tau_i(E) / \int dE E \frac{\partial f_i}{\partial E} \quad (i=X, e, h) \quad (5. 14)$$

と書ける<sup>120</sup>。この時、 $f_i$  は、電子および正孔に対しては、Fermi-Dirac 分布関数、励起子に対しては、Bose-Einstein 分布関数を用いる。  $\mu$  と  $D$  の関係をつける  $n_i dE f_i / dn_i$  については、図5. 6 のようになる。

$D$  の計算結果を図5. 7 に示す。ただし、絶対値については、正孔のバンド構造の複雑さやポテンシャルの大きさの不確かさのために、1オーダー程度の誤

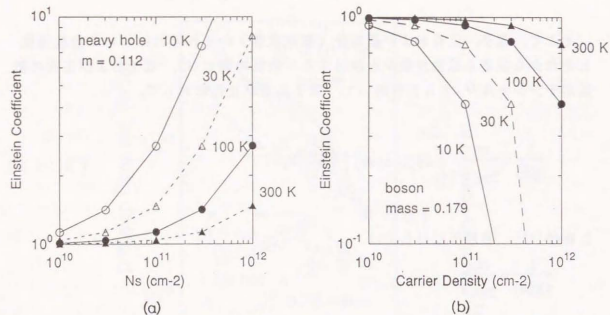


図5.6 アイニシュタイン係数  $[=D/\mu kT = N_s (dE_F/dN_s)/kT]$  のキュリア密度依存性の計算値。

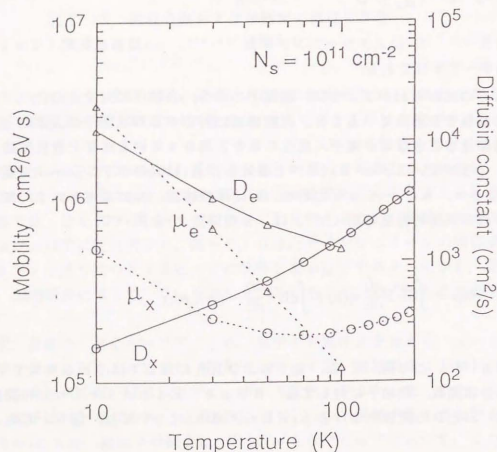


図5.7 励起子 ( $\times$ ) および電子 ( $e$ ) の拡散定数 ( $D$ ) と移動度 ( $\mu$ ) の温度依存性。変形ポテンシャル散乱による計算値。

差があり得ると考えられる。電子や正孔に対しては、温度とともに  $D$  は減少傾向を示す。この原因は、温度上昇による縮退状態から非縮退状態への移行に伴うフェルミレベルの密度微分の減少およびスクリーニング効果の減少による。一方、励起子に対しては、温度上昇に従って、 $D$  は増加する。この依存性の主な原因は、温度上昇により典型的な  $q$  が大きくなり、散乱ポテンシャル形状因子が減少するためである。従って、励起子拡散の寄与の大きい低温では、温度上昇に従い、 $D$  は増加することになり、温度依存性の実験結果が説明できる。また、 $L_w = 70.8 \text{ \AA}$  の  $D$  が、 $L_w = 105 \text{ \AA}$  の  $D$  より小さくなっているのは  $|V|^2$  が  $L_w^{-2}$  に比例するためであると考えられる。 $L_w = 53.8 \text{ \AA}$  の場合は、 $D$   $P$  散乱に加え、ラフネス散乱の影響を考慮する必要があると思われる。

c. 拡散距離の温度依存性

最後に、 $D$  と発光再結合寿命  $\tau_R$  から  $(D\tau_R)^{1/2}$  の式を用いて、評価した拡散距離を、図5.8に示す。拡散距離は、10 Kでは、1  $\mu\text{m}$  程度であるが、温度上昇とともに増加し、室温では4  $\mu\text{m}$  程度になる。

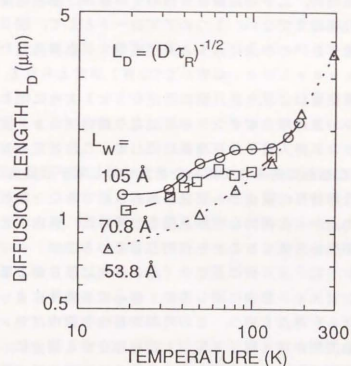


図5.8 拡散距離の温度依存性。

#### 5. 4. 4 結論

井戸幅の異なる量子井戸構造を用い、拡散定数 $D$ の温度依存性とその井戸幅による違いを明らかにした。低温( $\sim 20\text{K}$ )から温度が上がるに従い、 $D$ は増加し、高温( $\sim 80\text{K}$ 以上)では、減少に転じる。高温領域は、 $L$ Oフォノン散乱に支配され、電子と正孔による両極性拡散でよく説明できることを示した。低温領域では、井戸幅が $70.8\text{\AA}$ および $105\text{\AA}$ の場合は、変形ポテンシャル散乱が拡散を支配すると考えられ、温度上昇により $D$ が増加する傾向を電子、正孔、基底状態の励起子を考慮した理論モデルに基づいて説明した。井戸幅が $53.8\text{\AA}$ の場合は、 $\sim 80\text{K}$ 以下では、拡散が大きく抑制され、ラフネス散乱の影響を受けていると考えられる。

また、拡散距離は、 $10\text{K}$ では約 $1\mu\text{m}$ となり、温度とともに増加し、室温で $\sim 4\mu\text{m}$ になることを示した。

#### 5. 5 AlAsアイランド挿入による拡散過程の抑制

##### 5. 5. 1 序論

量子箱構造は、物理的、工学的に興味を集めているが、必要な微小寸法( $\sim 100\text{\AA}$ )の作製技術はまだない。1つのアプローチとして、図5.9(a)のようにGaAs量子井戸の中央にAlAsアイランドを挿入した構造<sup>(23)</sup>(Island-Inserted QW: I<sup>2</sup>QW)が考えられる。この構造では、キャリアは、障壁層により、井戸面に垂直な( $z$ )方向に閉じ込められる。他、AlAsアイランドの斥力ポテンシャルにより面内( $xy$ )方向に変調を受ける。このアイランド挿入量子井戸構造に関して、これまで、Nodaら<sup>(2, 24)</sup>により、様々な結晶成長条件を用いた場合に対し電子移動度による構造評価とそこでの電気伝導特性の観点から研究が進められてきた。本研究<sup>(5, 10)</sup>は、励起子の面内拡散の点から相補的な理解を得ると同時に、面内ポテンシャルが拡散過程に及ぼす効果を理解することを目的としている。

AlAsアイランドは、井戸面に垂直な( $z$ )方向に厚さが1原子層(ML)で、井戸面に平行な( $xy$ )方向に関しては、結晶成長条件によって決まる特性長を持つランダムな構造を持つ。この時の実効的な面内ポテンシャルは、 $z$ 方向に関する波動関数が挿入層(1ML)内に存在する割合に、バンド不連続量をかけた値で近似できる。例えば、 $100\text{\AA}$ の井戸幅の時、励起子に対する面内ポテンシャルは、伝導帯と価電子帯の両方の寄与が加わり、約 $40\text{meV}$ となり、比較的大きな値を持つ。これを模式図で示すと図5.9(b)のよ

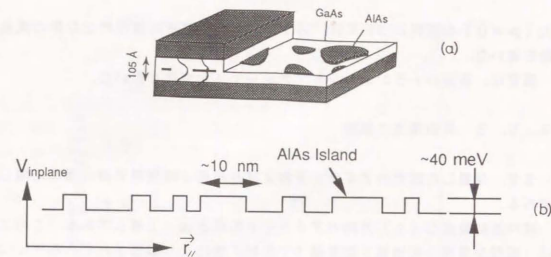


図5.9 アイランド挿入量子井戸構造の模式図。(a)構造断面図、(b)励起子に対する実効的な面内ポテンシャル図。

うに書ける。このような構造における励起子の面内拡散は、面内ポテンシャルによる波動関数の変調、散乱や局在などのため、大きく変わることが予想される。それを明らかにすることは、量子箱構造の物性を知る上で重要であると同時に、強く無秩序化した構造での物性を理解する上でも重要である。

##### 5. 5. 2 試料構造および測定法

試料として、AlAsアイランドの挿入量が異なる4種類の多重量子井戸構造(30周期)を作製した。各試料のアイランド挿入量は、AlAsの照射量を成長膜厚に換算して、0ML, 0.1ML, 0.5ML, および1MLに相当する。試料は分子線エピタキシー法により、半絶縁性(001)GaAs基板上に成長温度 $600^\circ\text{C}$ で結晶成長した。アイランド寸法が励起子の直径程度に大きくなるように、アイランド挿入時は、マイグレーション・エンハンスト・エピタキシー(MEE)法を用いた。バッファ層を成長後、 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ を $3000\text{\AA}$ 成長し、その後、30周期のアイランド挿入量子井戸、最後に、GaAsキャップ層を $200\text{\AA}$ 成長した。各量子井戸は、28MLのAlAsを成長後、成長中断を10秒間、GaAsの成長を18ML、成長中断を60秒間行なった後Asビームを切って、 $p(\leq 1)\text{ML}$ に必要なAlを照射後、20秒成長中断、その後、GaAsを $(19-p)\text{ML}$ 成長し、成長中断を60秒間行なった。この時の成長中断は、Asを照射している。アイランド無挿

入 ( $p=0$ ) の試料については、A1の照射およびその直後の20秒の成長中断を省いた。

測定は、前述のトランジェント・グレーティング法を用いた。

### 5. 5. 3 界面構造の概要

まず、作製した試料のアイランドおよび井戸層/障壁層界面の構造に関して述べる。

井戸面に垂直な ( $z$ ) 方向のアイランドの厚さは、1 MLである。このことは、同様な構造の透過電子顕微鏡 (TEM) 像により確認されている<sup>[21]</sup>。これは、AlAsは、結晶成長時の偏析や相互拡散が小さいことによる。

アイランドの面内 ( $xy$ 方向) 構造については、以下で検討するように、励起子のボーア半径 ( $a_0$ ) と同程度の100 Åオーダの特性長 ( $L_s$ ) を持つ準ランダムな構造と推定される。

まず、 $L_s > a_0$ でないことを示す。挿入量が1 ML未満であるアイランド挿入QWの吸収スペクトルおよびPLスペクトルは、単一ピークをもち、そのエネルギーは、無挿入QWと1 ML挿入QWのそれぞれのピークエネルギーの間にある。これは、 $L_s$ が、励起子のボーア半径 ( $a_0$ ) に比例して、あまり大きくないことを示している。なぜなら、 $L_s > a_0$ であれば、励起子がアイランドのない領域に面内波動関数の変調をほとんど受けずにトラップされるため、無挿入QWと同じエネルギーにピークが存在するはずである。

次に  $L_s < a_0$ でないことを示す。PLスペクトルのピークエネルギーの挿入量依存性を調べると、図5. 10のように超線形的に変化する。これは、 $L_s$ が  $a_0$ に比較して、あまり小さくないことを示す。なぜなら、 $L_s < a_0$ であれば、挿入したアイランドは、厚さ1 MLのAl<sub>0.9</sub>Ga<sub>0.1</sub>Asと同等であり、その場合、ピークエネルギーは、図5. 10の点線に示すように、 $p$ に線形あるいはサブリニアな依存性を示すからである。

これらのことは、 $L_s \sim a_0 \sim 100$  Åであることを示す。結晶成長中、表面には、規則的な成長核が存在しないため、この特性長を持つアイランドが準ランダムに形成されていると考えられる。

また、これに対応して、Nodaら<sup>[23]</sup>は、ドーピングをしたアイランド挿入QW構造を用いた電子移動度のキャリア密度依存性を調べ、アイランドによるラフネスポテンシャルをガウス型自己相関関数で近似した場合の相関長として  $\sim 100$  Åの値を得ている。

井戸層/障壁層界面の凹凸については、 $z$ 方向の振幅は、1 MLである。

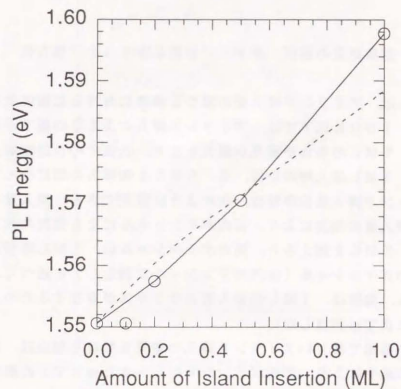


図5. 10 PLピークエネルギーのアイランド挿入量依存性。T = 77 K。○は、測定値、破線はAl<sub>0.9</sub>Ga<sub>0.1</sub>As 混晶が1 ML挿入された場合の計算値。pは、横軸の数値。

面内方向の寸法については、GaAsを成長後、60秒程度成長中断を行い、その上にAlAsを成長した場合の界面では、数1000 Åにわたって、平坦な領域が続いていると考えられる。このことは、PLスペクトルにおいて、井戸幅が1 ML違う領域からの発光ピークが分離する観測結果<sup>[26]</sup>や、TEM像の観測結果<sup>[27]</sup>により推定されている。

一方、AlAsの上にGaAsを成長した場合の界面は、成長中断の有無によらず平坦な領域が数10 Åであると考えられる。なぜなら、PLスペクトルにおいて、界面凹凸により不均一広がりが大きくなる<sup>[28]</sup>ことは、界面が平坦な領域の大きさが励起子のボーア半径程度以下であることを示すからである。また、この大きさと対応して、電子移動度のキャリア密度依存性により求めた面内ポテンシャルの自己相関長は、50~70 Åと評価されている<sup>[19]</sup>。

アイランド挿入による (特にアイランド界面近傍での) 歪みや欠陥、界面準位等に関しては、GaAs/AlAs超格子や、アイランドの特性長が格子定数オーダであるとみなせるAlGaAs混晶での状況から推察すると、問題とならないと考えられる。

#### 5. 5. 4 拡散定数の温度・キャリア密度依存性および異方性

図5. 11は、アイランド挿入量の異なる構造における拡散係数Dの温度依存性を示す。100K以下では、アイランド挿入によるDの低下が顕著である。挿入量が0. 5MLの場合が効果が最大となり、低温でのDは無挿入時の $\sim 1/4$ になる。1ML挿入時のDは、0. 5MLと無挿入の間になっている。

Dのアイランド挿入量依存性は、次のように説明できる。挿入量0. 5ML以下では、挿入量の増加により、面内ポテンシャルによる変調の大きさが大きくなる。0. 5MLを越えると、面内ポテンシャルは、1ML理想的に挿入された構造でのポテンシャル（面内ポテンシャル変調なし）に近づく。従って、Dは増加する。実際は、1MLの挿入層にラフネスが存在するため、Dは、無挿入時の値にまでは回復しない。

また、Dが低温で著しいアイランド挿入の効果を受ける理由は、熱エネルギー（ $kT$ ）の減少により、面内ポテンシャル（ $\sim 40\text{meV}$ ）の影響が増大するためであると考えられる。

100K以上では、Dは、アイランド挿入量による違いが小さく、温度とともに急激に減少する。この温度領域では、Dは、LOフォノン散乱によって決まっているためである。

Dのキャリア密度（ $N_s$ ）依存性は、図5. 12のようになる。0. 5ML挿入構造において、 $N_s$ が $10^{11}\text{cm}^{-2}$ 以下では、 $N_s$ 依存性が小さい。無挿入構造の場合の $N_s$ 増加につれて、Dが増加することと対照的である。15K以下では、 $N_s$ が減少すると、Dが増加を始める。 $N_s > 10^{11}\text{cm}^{-2}$ でのDの $N_s$ 依存性は、多体効果による励起子の消滅の結果、拡散が自由キャリア的になっていく様子を示していると考えられる。

図5. 13に拡散の異方性を示す。低温のDは、[110]方向では、[110]方向の $\sim 1/2$ になっている。結晶方位によって成長過程が違うため、AlAsアイランドに構造異方性が生じ<sup>[23]</sup>、その結果、拡散の異方性を引き起こしていると考えられる。また、異方性が観測されることは、Dが、発光再吸収によるような等方的な擬似拡散ではなく、キャリア固有の拡散によって支配されていることを示している。

#### 5. 5. 5 ラフネス散乱モデルによる理論計算との比較

これらの結果を理解するために、モデル計算を行った。100K以下では、

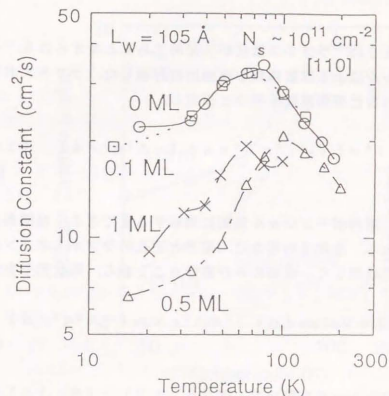


図5. 11 異なるAlAsアイランド挿入量に対する拡散定数の温度依存性。

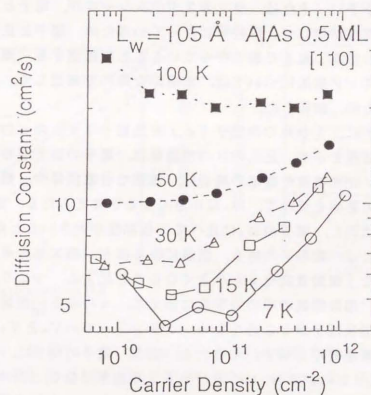


図5. 12 AlAsアイランド挿入量子井構造における拡散定数のキャリア密度依存性。アイランド挿入量は、0. 5ML。



測定結果が示すように、ラフネス散乱が支配的であると考えられる。そこでラフネスポテンシャルによる拡散係数を理論的に評価した。ラフネスポテンシャルは、ガウス型の自己相関関数を持つと仮定し、

$$|V_i(q)|^2 = |V_0|^2 \pi \Lambda^2 \exp(-\Lambda^2 q^2/4), \quad (i=e, h) \quad (5.15)$$

とした。\$V\_0\$ は、面内ポテンシャル振幅に関する量である。相関長 \$\Lambda\$ は \$\sim 100 \text{ \AA}\$ と推定される。励起子の場合、電子と正孔のラフネスポテンシャルは、面内の空間依存性は等しく、振幅のみが異なることから、形状因子を含めて、

$$|V_0^e \gamma_e(q) + V_0^h \gamma_h(q)|^2 \pi \Lambda^2 \exp(-\Lambda^2 q^2/4) \quad (5.16)$$

となる。このポテンシャルを用いて、式(5.12) - (5.14) から、\$D\$ を計算した。スクリーニング関数 \$S\_i(q)\$ は、電子と正孔の複合した寄与<sup>12)</sup> を考慮した。スクリーニング効果は、電子・正孔混在系の場合、電子系や正孔系の場合と比べて小さい。それは、ラフネスポテンシャルが、電子と正孔に対して面内の空間依存性が等しく、同符号になっているため、電子と正孔がポテンシャルの低い同じ空間に集まり易くなっていることに起因する。周囲の井戸層からのスクリーニング効果については、典型的な条件で確認して、10%位下の寄与しかないため、無視した。

図5.14(a)に、10Kでの電子(e)と励起子(x)の \$\mu\$ および \$D\$ の温度依存性の計算結果を示す。正孔の \$D\$ の理論値は、電子の \$D\$ と同程度となるが、現実には、高い正孔密度や高温の場合は、複雑な分散関係や、軽い正孔、高励起サブバンドの影響を受けて、\$D\_h\$ は小さくなると考えられる。図から、励起子の \$D\_x\$ は \$T^3\$ に比例し、電子の \$D\_e\$ に比べて \$T\$ 依存性が大きいことがわかる。この理由は、第1には、励起子の場合、低温になるほど、熱エネルギー \$kT\$ が減り、散乱にともなう運動量変化 \$q\$ も小さくなることによる。つまり、散乱強度の積分において、指数関数の項の依存性に加えて、\$q\$ の小さい領域に重みが増えるため、散乱の形状因子が1に近くなり、ポテンシャルの \$V\_0^e\$ と \$V\_0^h\$ がより加算的に積分されて散乱確率を増すからである。他方、電子の場合は、低温では縮退により、\$N\_0(dE\_{F,e}/dN\_0)\$ の項が \$kT\$ より大きくなり、\$D\$ の減少が押さえられる。励起子の \$D\$ の計算値は、温度の低下とともに、著しく減少し、10Kで \$0.02 \text{ cm}^2/\text{s}\$ まで低下する。この値は、測定値 \$\sim 5 \text{ cm}^2/\text{s}\$ と比

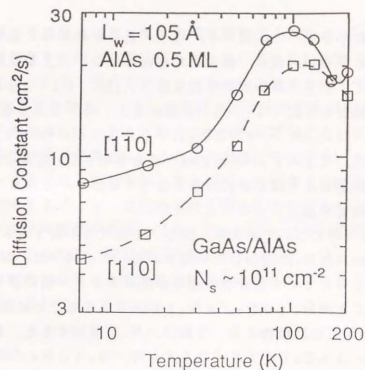


図5.13 AlAsアイランド挿入量子井戸構造における拡散の異方性。[110]および[1-10]方向に関する拡散定数の温度依存性を示す。

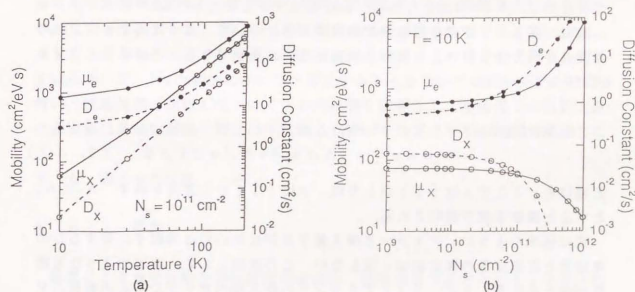


図5.14 励起子(x)および電子(e)の拡散定数(D)と移動度(\$\mu\$)のラフネス散乱による計算値。用いたパラメータの値は、\$L\_w = 105 \text{ \AA}\$, \$m\_x = 0.179 m\_0\$, \$m\_s = 0.067 m\_0\$, \$V\_0^e = 12.5 \text{ meV}\$, \$V\_0^h = 6.4 \text{ meV}\$, \$\Lambda = 90 \text{ \AA}\$, \$a\_s = 61 \text{ \AA}\$。(a)温度依存性。(b)キャリア密度依存性。

較してはるかに小さい。この違いを、電子、正孔が励起子と混在していることだけでは説明しにくい。仮に、混在した自由キャリアによる拡散が支配的であると仮定すると、測定される実効拡散定数  $D_{\text{eff}}$  は、 $(1-r_x)D_{\text{eff}}$  となる。前述の化学平衡をもとに  $(1-r_x)$  を求めると、0.3% となるので、実験を説明するには、 $D_{\text{eff}}$  が、 $\sim 300D_{\text{eff}} \sim 20000 \text{ cm}^2/\text{s}$  となり、非現実的となる。さらに、 $(1-r_x)$  の温度依存性を考えると、予測される  $D_{\text{eff}}$  の温度依存性は、実測値よりはるかに大きくなってしまふ。これらの不一致の原因については、後述する。

次に、 $N_0$  依存性について考える。図5.14(b)に10Kでの計算結果を示す。励起子のDは  $N_0$  の増加に伴い減少する。この減少は、 $N_0$  が増加すると、Bose-Einstein分布の重みが低エネルギー側に移り、ラフネス散乱強度が増すことや  $N_x (dE_F/dN_x)$  が小さくなることに起因する。一方、電子のDは  $N_0$  とともに増加する。これは、 $N_0$  が増加すると、縮退のため関連するエネルギー ( $\sim E_F$ ) が大きくなることや、 $N_0 (dE_F/dN_0)$  が大きくなることによる。 $N_0 < 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  領域では、単純な1s励起子描像が成り立つと考えられる。Dの絶対値は別に、 $D_s$  の理論値は  $N_0$  の減少に対し、微増しており、測定結果の傾向に合っている。 $N_0 > 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  では、位相空間のフィリング効果などにより、励起子状態が崩れて自由キャリア的な拡散に近づくために、 $N_0$  の増加とともに、Dは増大すると考えられる。

次に、図5.13に示したDの面内異方性について、AlAsアイランドの相関長が異方性を持つことを考えると定性的に説明できる。この場合、ラフネスポテンシャルが、

$$|V_i(q)|^2 = |V_0|^2 \pi \Lambda_x \Lambda_y \times \exp[-(\Lambda_x^2 q_x^2 + \Lambda_y^2 q_y^2)] / 4 \quad (5.17)$$

と書ける。ここで  $x$  は  $[110]$  方向、 $y$  は  $[1\bar{1}0]$  方向を表す。 $\Lambda_x < \Lambda_y$  とすると実験事実が説明される。

先に述べたように、アイランド挿入量子井戸においては励起子に対するDの理論値と拡散定数の測定値は一致しない。この原因として、以下のような可能性が考えられる。まず、(1) アイランドの作る面内ポテンシャルの振幅  $\Delta V$  は、理論的には  $\sim 40 \text{ meV}$  と考えられるが、電子移動度の値から求められる実効振幅はその半分程度になることが知られている。この原因は明らかでないが、AlAsアイランドの形状に起因する面と、(2) 低温での励起子のエネルギー ( $\sim$  熱エネルギー) に比べて、 $\Delta V$  ははるかに大きいため、ボルン近似

による理論計算が不正確となり、散乱を過大評価する面がある。こうした強いポテンシャルの存在下では、計算に取り入れられていない拡散成分の考慮が必要である。例えば、(3) 面内ポテンシャルの谷の部分を伝播するパーコレーション経路<sup>[11]</sup>による拡散や、(4) 面内ポテンシャルにより山と谷の間に量子単位やバンドが形成され、それらを介した拡散も寄与すると考えられる。この極限は、規則的な量子箱構造における拡散機構につながる。また、(5) このような不均一な系では、励起子が、エネルギーの局所ミニマム点を占有して他の励起子を排除するフェルミ粒子的傾向を示すことも知られており<sup>[32]</sup>、励起子の分布をずらす可能性がある。(6) フェルミレベルの空間変化は、低温になるほど小さくなるため、拡散を引き起こす力として、フォノン風<sup>[29]</sup> のような別の力が支配的になることも考えられる。これらの寄与がDの低下を妨げる可能性があると思われる。

## 5.5.6 結論

AlAsアイランド挿入量子井戸構造における拡散過程を温度Tやキャリア密度  $N_0$  の異なる様々な条件で調べた。低温で、(1) アイランド挿入による拡散の抑制効果が著しく現れること、(2) アイランド挿入量が0.5MLの場合に最も効果が大きく、 $[110]$  方向の拡散定数Dは、無挿入の場合に比べて約1/4に低下すること、(3) 抑制効果は異方性を持つ ( $D_{[110]} < D_{[1\bar{1}0]}$ ) こと、(4) また、Dのキャリア密度依存性は、 $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  以下の領域では小さいが、 $N_0$  の増加に伴いDが増大することを見出した。モデル計算を行い、実験結果と比較して、いくつかの特徴を説明した。極低温での拡散定数の測定値は単純な励起子散乱の予測値より著しく大きく、その原因を議論した。

## 5.6 磁場中の拡散

### 5.6.1 序論

磁界による量子状態や運動経路の変化は、拡散速度を変化させると予想される。図5.15に磁場による様々な効果の概略を示す。

電子や正孔に対しては、ローレンツ力により、軌道を曲げる[図5.5(a)] ため、拡散が抑制される。さらに、強磁場を印加すると、サイクロトロン軌道を形成し[図5.5(b)]、そのサイクロトロン半径  $r_c$  は、磁場に反比例

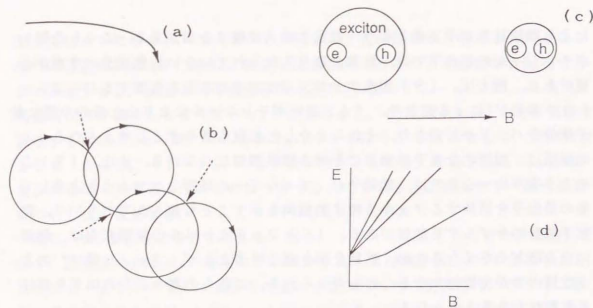


図5.15 拡散過程に影響を与える様々な磁場効果の概念図。(a)ローレンツ力による軌道の曲がり、(b)サイクロトロン軌道の形成、(c)励起子のボーア半径の収縮、(d)ランダウ準位の形成。

して小さくなる。2 $r_c$ 以上離れた空間への拡散には、散乱によるサイクロトロン軌道の破壊が必要となる。また、波動関数の変化や状態密度の離散化により、散乱確率が変化したり、フェルミレベルの密度微分の大きさが変化する。

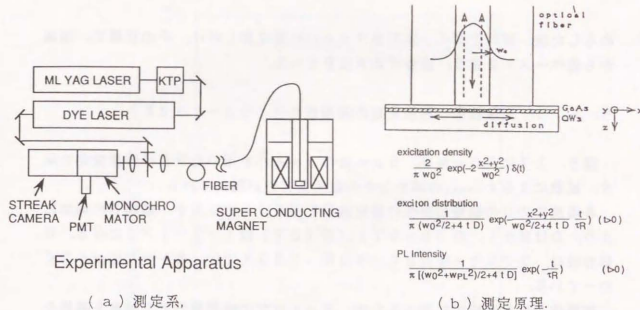
励起子に対しては、電子や正孔に比較すると、磁場効果が小さいと予想される。内部運動に関しては、ボーア半径( $a_B$ )が縮小されることによる効果[図5.15(c)]が生じる。重心運動に関しては、さらに効果が小さい。

これらの様子を調べるにより、拡散過程の微視的理解を深め、さらに、拡散を制御するための指針を得ることができる。

### 5.6.2 試料構造および測定法(ファイバマスク法)

試料は、5.4節で作製した量子井戸を用いた、井戸幅105Å、障壁層幅79.2Åを持つGaAs/AlAs量子井戸30周期から成る。

測定は、超伝導磁石を用いる装置上の制約から、秋山ら<sup>(8)</sup>の開発した光ファイバを利用した空間限定・時間分解フォトルミネッセンス(PL)測定法を用いた。測定系を、図5.16に示す。光ファイバ中を伝播してきたガス分布(ガウス半径 $w_0$ 、補節5.8.1)をした励起パルスにより、キャリアが生成され、一定時間後のPL検出強度は、キャリア分布に光ファイバへの結合関数



Experimental Apparatus

(a) 測定系。

(b) 測定原理.

$$\text{excitation density} = \frac{2}{\pi w_0^2} \exp(-2 \frac{x^2+y^2}{w_0^2}) \delta(t)$$

$$\text{exciton distribution} = \frac{1}{\pi (w_0^2/2 + 4tD)} \exp(-\frac{x^2+y^2}{w_0^2/2 + 4tD}) \quad (b-0)$$

$$\text{PL Intensity} = \frac{1}{\pi [(w_0^2 + w_{PL}^2)/2 + 4tD]} \exp(-\frac{r^2}{r_0^2}) \quad (b-0)$$

図5.16 空間限定・時間分解測定法(ファイバマスク法)の概念図<sup>(8)</sup>。

(ガウス半径 $w_{PL}$ )をたたみ込んだ形で書ける。従って、拡散係数Dは、PL減衰時間 $\tau_{decay}$ を測ることによって、

$$1/\tau_{decay} \sim 8D/(w_0^2 + w_{PL}^2) + 1/\tau_R \quad (5.18)$$

から評価できる。Dの測定には、4 $\mu$ m径(ニューポート社F-SA)または、5 $\mu$ m径(ニューポート社F-SF)の単一モードファイバを用いた。 $\tau_R$ は、50 $\mu$ m径(ニューポート社F-MSD)のグレイデッド・インデックス・ファイバによるキャリア寿命の測定値を用いた。励起パルスは、色素レーザー(色素:スチリル8)からのパルス(パルス幅 $\sim$ 20ps、繰り返し0.8 $\sim$ 41MHz)の他、場合によっては、YAGレーザーからのパルス(波長532nm、パルス幅 $\sim$ 80ps、繰り返し82MHz)を用いた。4 $\mu$ m径および5 $\mu$ m径のファイバは、色素レーザーからのパルスおよびPL光に対しては、単一モードの条件を満たしている。YAGレーザーからのパルスに対しては、単一モードの条件を満たさない。そのため、YAGレーザーからのパルスを用いる場合は、ファイバから出力したモードをモニタしながら、入力条件を調節し、出力モードがHE<sub>11</sub>モードになるようにした。ファイバの長さは、 $\sim$ 15mであり、ファイバ中伝播による時間広がり、50 $\mu$ m径のファイバにおいても、数10ps以下になる。

ファイバの試料取り付け側の先端は、ステンレス性のFCC型コネクタ仕様になっている。試料の取り付けは、ファイバ先端を上向きにしてメタノールで

ぬらした後、試料を置く。試料をファイバに軽く押し付け、その状態で、側面から銀ペーストを塗り、接着する方法をとった。

### 5. 6. 3 実験結果：拡散定数の磁場依存性 (50~132 K)

図5. 17に50  $\mu\text{m}$ 径、5  $\mu\text{m}$ 径のファイバを用いたPLの時間変化を示す。拡散による $\tau_{\text{eff}}$ の減少とその磁場依存性が現れている。

各温度でのDの磁場依存性の測定結果を図5. 18に示す。磁場Bの増加により、Dは減少し、 $D(B=9\text{T})/D(0\text{T})$ は $1/2 \sim 1/3$ になる。B依存性は、77 Kで一番大きく、50 K、132 Kでは、若干依存性が小さくなっている。

磁場依存性を連続的に調べるため、5  $\mu\text{m}$ 径での時間積分PL強度を磁場を掃引しながら測定した。その際、分光器は、スリットを大きくあけ(波長分解能 $\sim 100 \text{\AA}$ )、波長は、PL強度のピークに合わせた。検出には、光電子増倍管を用いた。結果は図5. 19に示すように、磁場の増加に伴い、PL強度が単調に増加し、ピークやディップの構造は見られない。これは、磁場により、単調に拡散が抑制されることを示している。

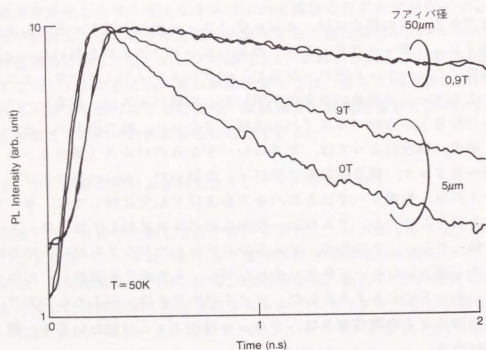


図5. 17 測定例.

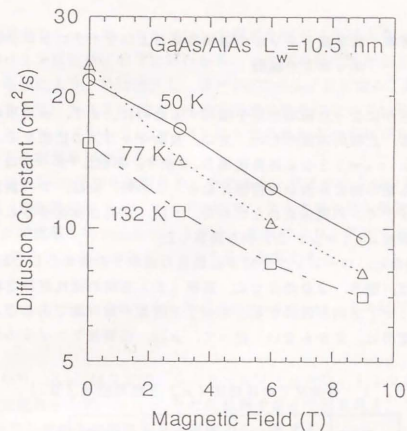


図5. 18 拡散定数の磁場依存性.

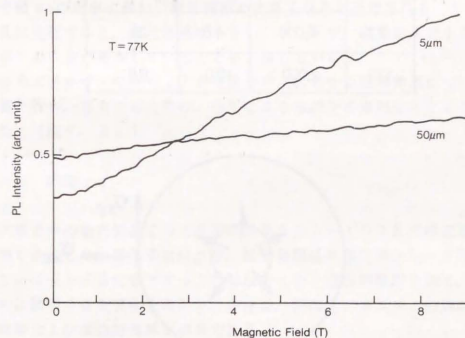


図5. 19 時間積分発光強度の磁場依存性。拡散によるキャリア消滅の寄与が大きいファイバ径5  $\mu\text{m}$ と拡散が無視できる50  $\mu\text{m}$ 径の測定結果を示す。

5. 6. 4 考察: 伝導度テンソルの磁場効果およびサイクロトロン軌道間のホッピング拡散

実験的に明らかになった磁場効果を理解するために、まず、 $\mu$ の項の磁場依存性を検討する。比較的高温のため、主に、自由キャリアの拡散を考える。

表5. 1に $\omega_c \tau_n = 1$ となる臨界磁場 $B_c$ を示す。 $B_c$ は、サイクロトロン軌道が形成される磁場強度か否かの指標となる。この時、 $\mu$ は、 $D$ の測定値を用い、アインシュタインの関係式から求めた。 $\tau$ は、正孔が律速すると考えた場合の正孔の移動度 $\mu_h (= \mu / 2)$ から換算した。

$B < B_c$ の場合は、ローレンツ力による軌道の曲がりの効果として影響する。今の実験条件は、図5. 20のように、回転( $\theta$ )方向の流れが許され、また、拡散には動径( $r$ )方向が関係する。キャリア密度が軸対称であることから、 $\theta$ 方向の内部電界は、かからない。従って、 $\mu$ は、伝導度テンソルの対角成分

表5. 1 各温度での移動度( $\mu$ )と臨界磁場( $B_c$ )。

T(K)	$\mu$ (cm <sup>2</sup> /Vs)	$B_c$ (T)	$\omega_c \tau$ at 9 T
50	7,000	2.9	3.2
77	5,000	4.0	2.5
132	2,000	10.0	0.9

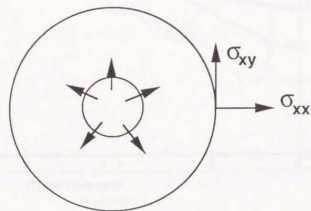


図5. 20 拡散を模式的に表した井戸層の平面図。円は、キャリア密度の等高線、中央部の矢印は、拡散流の方向を示す。

$\sigma_{xx}$ に比例する。 $\sigma_{xx}$ は、ボルツマン方程式を解くことにより、 $< \tau / [1 + (\omega_c \tau)^2] >$ に比例することがわかる。 $\tau$ の磁場依存性が小さいと仮定すると、 $B$ の増加により、 $D$ は減少し、 $B = B_c$ で $\sim 1/2$ となる。測定結果と比較すると、77 K、132 Kでは、ほぼ同程度の変化になっている。しかし、詳細にみると、 $1 / [1 + (\omega_c \tau)^2]$ の $B$ 依存性からのずれがある。その理由は、 $\tau$ の $B$ 依存性等が考えられる。

次に、 $B > B_c$ の場合を検討する。今の場合、サイクロトロン半径は100 Åのオーダー、拡散距離は1 μmオーダーなので、サイクロトロン軌道が散乱により破れることで拡散していくと考えられる。散乱により、サイクロトロン軌道(半径 $r_c$ )間をランダムにホッピングすると仮定すると、

$$D \sim r_c^2 / \tau = (2n+1) \hbar / (m \omega_c \tau), \quad (n \text{ はランダム指数}) \quad (5.19)$$

と書ける<sup>19)</sup>。 $\hbar \omega_c$ は9 Tで、9.3 meV ( $m = 0.112 m_0$ )となる。 $n = 0$ が支配的として、 $D$ は $\omega_c \tau$ に反比例すると予想される。77 Kでの $B > B_c (= 4 \text{ T})$ での $B$ 依存性と、比較的良好に一致する。

励起子に対しては、散乱の形状因子[式(5.13)参照]が $[1 + (q a_B m_i / m_x)^2]^{-3/2}$  ( $i = e, h$ )であることを考えると、磁場印加によるボーア半径 $a_B$ の収縮に伴い、散乱確率が大きくなると予想される。しかし、電子、正孔と比較すると、その効果は小さい。50 Kで、磁場効果が小さい原因は、励起子の成分が寄与していることを示唆している。

フェルミエネルギーのキャリア密度微分の項に対する磁場効果については、数値計算を行い、50 K以上では、9 Tで20%以下の効果にとどまることがわかった。(図5. 21)

5. 6. 5 結論

量子井戸構造中の面内拡散における磁場効果を50~132 Kの温度領域で実験的に明らかにした。磁場印加により、拡散係数は単調に減少し、9 Tで無印加時の $1/2 \sim 1/3$ に低下することがわかった。理論的検討を加え、実験を半定量的に説明するモデルを示した。さらに、詳細なメカニズムの検討には、今後の実験および理論的進展が必要である。

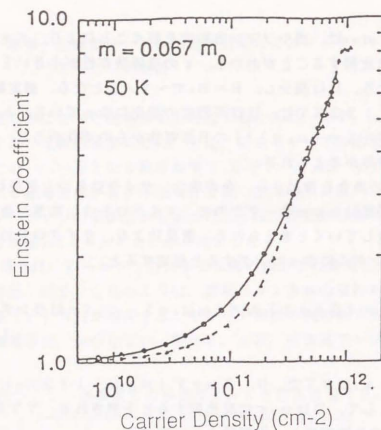


図5. 21 アインシュタイン係数の磁場による変化。実線は0. 1 T, 破線は9 Tでの計算値。

## 5. 7 結論

量子井戸構造における面内拡散過程を様々な側面から実験的に明らかにした。さらに、拡散モデルを検討し、実験結果との比較を行った。実験結果の大きな特徴について、半定量的な説明を行った。一部不一致が存在するが、その原因の可能性について考察した。実験結果全体を詳細に解釈するには、理論のより一層の精密化が必要である。特に、励起子に関して、励起状態の取入れや自由キャリア領域へ移行する際の現実的な描像の確立が重要な課題である。また、正孔に関して、分散関係や散乱ポテンシャルなどの精密化と、それを取り入れた正確な計算が必要である。磁場効果については、自由キャリア拡散に対しては大略が理解されたが、励起子に対しては理論的に未成熟な状況にあり、今後もより一層の研究が必要である。

本研究と相前後して、様々な構造、実験条件、実験方法を用いた面内拡散に関する研究が報告されている<sup>[13-17]</sup>。本研究の試料と組成が異なっているもの

<sup>[17]</sup>、面内方向に電界を印加したもの<sup>[16]</sup>などにより、別の側面からの知見も増えている。しかし、理想化、単純化したモデルによる解釈にとどまっている状況にある。実験面での進展とともに、より現実的な状況を記述する理論の進展が必要とされている。

## 5. 8 補節

### 補節5. 8. 1 ステップインデックスファイバのモード<sup>[21]</sup>

ステップインデックス (SI) ファイバの最低次のモードである  $HE_{11}$  モードのモード分布は、ガウス分布で近似できる。強度が  $1/e$  になる半径 ( gaussian 半径)  $w$  は、コアの直径を  $d$  とすると、

$$w = d (0.65 + 1.619/V^{1.5} + 2.879/V^6) / 2 \quad (5.20)$$

と書ける。  $V$  は、  $V$  数または規格化周波数と呼ばれ、

$$V = \pi N_a d / \lambda \quad (5.21)$$

の式で与えられる。  $\lambda$  は波長を表す。  $N_a$  は、  $NA$  数または開口数と呼ばれ、コアの屈折率  $n_{core}$ 、クラッドの屈折率  $n_{clad}$  を用いて、

$$N_a = (n_{core}^2 - n_{clad}^2)^{1/2} \quad (5.22)$$

と書ける。  $V$  が 2.405 以下の時、SIファイバは単一モードの条件を満たす。

(第5章参考文献)

1. J. Hegarty: "The Physics and Fabrication of Microstructures and Microdevices" edited by M. J. Kelly and C. Weisbuch, P. 280 (Springer-Verlag, Berlin, 1986).
2. H. Hillmer, A. Forchel, S. Hansmann, M. Morohashi, E. Lopez, H. P. Meier and K. Ploog, Phys. Rev. B39, 10901 (1989).
3. A. Miller, R. J. Manning, D. C. Hutchings, D. W. Crust and K. Woodbridge: J. Opt. Soc. Am. B6, 567 (1989).
4. 松末俊夫, 榊裕之, 五神真, 第38回応用物理学関連連合講演会 28a-M-10 (1991).
5. 松末俊夫, 秋山英文, 榊裕之, 五神真, 第52会応用物理学講演会 12a-K-3 (1991).
6. 松末俊夫, 土屋昌弘, 秋山英文, 榊裕之, 応用物理第61巻 154 (1992).
7. 松末俊夫, 秋山英文, 榊裕之, 第53回応用物理学講演会 18a-ZB-6 (1992).
8. 秋山英文, 松末俊夫, 榊裕之, 物理学会第47回年会 28pW-5 (1992).
9. 秋山英文, 松末俊夫, 榊裕之: 物理学会1992年秋の分科会 28pZH4 (1992).
10. T. Matusue, H. Akiyama and H. Sakaki, 6th. Int. Conf. on Supperlattices Microstructures and Microdevices, Fr-P-46 (Xi'an, China, 1992).
11. T. Matusue, H. Akiyama and H. Sakaki, Supperlattices and Microstructures, in press.
12. H. Akiyama, T. Matusue and H. Sakaki, Int. Con. on Ultrafast Electronics, ME6 (San Francisco, 1993).
13. H. Hillmer, A. Forchel, R. Sauer and C. D. Tu, Phys. Rev. B42, 3220 (1990).
14. K. T. Tsen, O. F. Sankey and H. Morkoc, Appl. Phys. Lett. 57, 1666 (1990).
15. D. R. Wake, H. W. Yoon, J. S. Perston, H. Morkoc and J. P. Wolfe, in Ultrafast Phenomena VII, edited by C. B. Harris, E. P. Ippen, G. A. Mourou and A. H. Zewail (Springer-Verlag, Berlin, 1990), p. 262.
16. J. Feldmann, P. Grossmann, W. Stolz and K. Ploog, Semicond. Sci. Technol. 7, B130 (1992).

17. H. Hillmer, A. Forchel, C. W. Tu and R. Sauer, Semicond. Sci. Technol. 7, B235 (1992).
18. See, for example, K. Seeger: "Semiconductor Physics (3rd ed.)", p. 115 (Springer-Verlag, 1985).
19. H. Sakaki, T. Noda, K. Hirakawa, M. Tanaka and T. Matusue, Appl. Phys. Lett. 51, 1934 (1987).
20. T. Ando, A. B. Fowler and F. Stern: Rev. Mod. Phys. 54, 437 (1982).
21. P. J. Price: Phys. Rev. B30, 2234 (1984).
22. P. K. Basu and P. Pay: Phys. Rev. B44, 1844 (1991).
23. T. Noda, J. Motohisa and H. Sakaki: Surf. Sci. 267, 187 (1992).
24. T. Noda, M. R. Fahy, T. Matusue and H. Sakaki: 7th Int. Conf. on Molecular Beam Epitaxy, Fr. 3 (Schwabish Gmund, 1992).
25. 加藤恵士, 野田武司, 私信.
26. H. Sakaki, M. Tanaka and J. Yoshino, Jpn. Appl. Phys. 24, L417 (1985); M. Tanaka and H. Sakaki, J. Crystal Growth 81, 153 (1987).
27. P. M. Petroff, J. Cibert, A. C. Gossard, G. J. Dolan, C. W. Tu, J. Vac. Sci. Technol. B5, 1024 (1987).
28. T. Hayakawa, T. Suyama, K. Takasashi, M. Kondo, S. Yamamoto, S. Yano and T. Hijikata, Surf. Sci. 174, 76 (1986).
29. L. M. Smith, J. S. Preston, J. P. Wolfe, D. R. Wake, J. Klem, T. Henderson, H. Morkoc, Phys. Rev. B39, 1862 (1989).
30. 安藤恒也, 半導体ヘテロ構造超格子, 物理学最前線 13, (共立出版, 1986).
31. A. Yariv, 光エレクトロニクスの基礎, 多田, 神谷訳 (丸善, 1989).
32. J. A. Kash, M. Zachau, E. E. Mendez, J. M. Hong and T. Fukuzawa, 9th Int. Conf. on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems, H-1 (Nara, 1991).

## 6. アイランド挿入量子井戸構造における励起子のコヒーレントダイナミクス

### 6. 1 序論

量子井戸構造内に作られる励起子の振舞いを10 ps以下の時間領域で調べると、コヒーレント現象が顕著に現れる。そのダイナミクスを調べることにより、励起子の位相緩和の様子を明らかにすることができる。さらに、コヒーレント過程では、様々な干渉効果が寄与するため、それを利用して、励起子の微視的なダイナミクスに関する知見を得ることができる。標準的な量子井戸構造に関しては、いくつかの研究グループにより、位相緩和の励起キャリア密度依存性<sup>[1,2]</sup>や温度依存性<sup>[2,3]</sup>、いろいろな干渉ビート等<sup>[4-9]</sup>の研究が行われている。本研究<sup>[10]</sup>では、アイランド挿入量子井戸構造におけるコヒーレントダイナミクスを中心に検討を行い、それと比較するために通常の量子井戸構造についても測定を行った。位相緩和の抑制や巨大な干渉ビートの発現など特徴ある現象を報告する。

### 6. 2 試料構造および測定法（過渡縮退四光波混合自己回折法）

試料は、面内拡散の研究で用いたものうち、GaAs(37ML)/AlAs(18ML)の30周期の多重量子井戸構造およびGaAs井戸層の中央部にAlAsアイランドを0.5ML分挿入したアイランド挿入多重量子井戸構造の2種類を用いた。

測定は、過渡縮退四光波混合<sup>[11]</sup>(transient degenerate four wave mixing)の1つである自己回折(self-diffraction)法を用いた。測定原理を述べる(図6.1)。

レーザーパルスを2つに分離し、最初のパルス(パルス1)で励起したエキシトン状態に、2つ目のパルス(パルス2)をある角度をつけて照射すると、エキシトンの位相と光の位相との干渉により、分極波の干渉縞を生成する。その干渉縞により、自分自身(パルス2)の回折光が生じる。この回折強度は、パルス2の照射時(パルス1からの遅延時間 $\tau$ )における励起子の位相保持状態に関係するため、回折強度 $I_d$ の $\tau$ 依存性を測定することによって、位相緩和の速さ(緩和時間 $T_2$ )を評価できる。

このプロセスは、3次の非線形分極に対応する。信号 $I_d$ の遅延時間依存性<sup>[</sup>

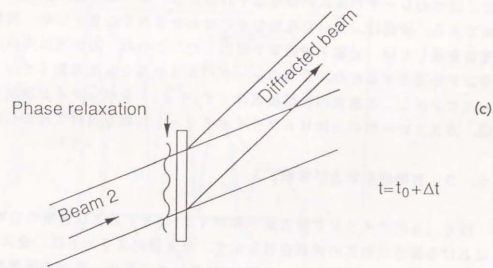
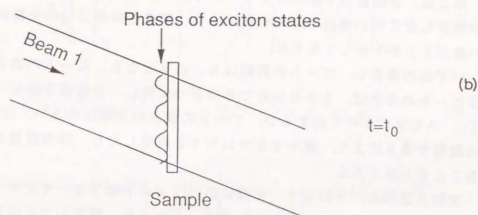
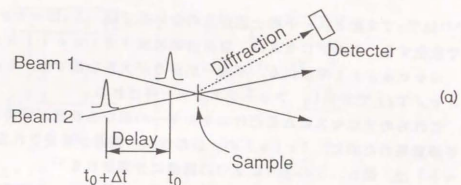


図6.1 測定法(自己回折法)の原理。(a)配置図。(b)最初のパルスの入射による励起子生成。(c) $\tau$ 時間後の次のパルス入射による位相干渉と回折光の発生。



$1^{(2)}$ は $T_2$ で支配され、不均一広がりのない系では、 $I_0$ は $\exp(-2\tau/T_2)$ で変化する。このプロセスは、自由誘導減衰 (free induction decay) と呼ばれる。不均一広がりが大きな系では、 $I_0$ は、 $\exp(-4\tau/T_2)$ で変化し、フォトンエコーと呼ばれる。

これらのプロセスに $\Delta E$ だけエネルギーの異なる状態が同時に関与した場合、干渉効果のために、 $I_0(\tau)$ の $\tau$ 依存性に、振動が重畳される。この振動(ビート)は、図6. 2のように2つの機構に分類される<sup>13)</sup>。

第1は、 $\Delta E$ だけエネルギー差のある2つの準位が、3次の分極波形成プロセスの中で、複合して寄与している場合で、量子干渉ビートと呼ばれる。

第2は、分極波の干渉によるビートである。これは、エネルギー差 $\Delta E$ を持つ独立した2つの準位のそれぞれにより、形成された2つの分極波(エネルギー差 $\Delta E$ )が干渉して生じる。

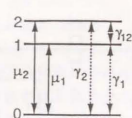
いずれの場合も、ビートの周期は $h/\Delta E$ となる。ビートの深さは、量子干渉ビートの場合は、100%となり得るのに対し、分極波干渉ビートの場合は、 $T_2$ 、 $\Delta E$ 等によって決まるが、ビートの深さの上限は小さい。従って、ビートの周期や深さにより、関与するプロセスを同定したり、物理機構を探ったりすることも可能である。

実験系は図6. 3に示す。光源には、フェムト秒Ti:サファイアレーザー(パルス幅170 fs, スペクトル幅7.5 meV, 繰返し76 MHz)を用いた。2つのレーザーパルスの偏光は平行にとり、ビーム径は、試料上で $\sim 80 \mu\text{m}$ である。波長は、重い正孔励起子に合わせ7870 Åとした。回折光は、分光器を通した後、光電子増倍管で検出した。この時、回折光以外のバックグラウンドを除去するため、2本のレーザーパルスを異なる周波数( $f_1$ ,  $f_2$ )でチャップリングし、回折光の和周波成分( $f_1+f_2$ )をロックイン検出した。試料は、ガスフロー型の液体ヘクライオスタットに取り付けて冷却した。

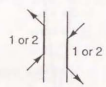
### 6. 3 実験結果および考察

図6. 4にアイランド挿入量子井戸( $I^2QW$ )および通常のQW(NQW)における回折光強度の減衰曲線を示す。分光器のスリットは、全スペクトルを検出するように広くあけた。 $I^2QW$ はNQWに比べ、2つの顕著な差が見られる。第1は、減衰即ち相緩和が非常に遅いこと、第2は、大きなビートが重畳していることである。

量子干渉ビート

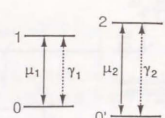


$$\rho = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 & 1 & 2 \\ & & \end{bmatrix}$$

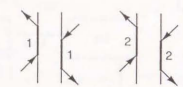


$$P^{(3)} = \mu_{01}^{(3)} \rho_{10}^{(3)} + \mu_{02}^{(3)} \rho_{20}^{(3)}$$

分極干渉ビート



$$\rho_{1'} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ & \end{bmatrix}, \quad \rho_{2'} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0' & 2 \\ & \end{bmatrix}$$



$$P_1^{(3)} + P_2^{(3)} = \mu_{01}^{(3)} \rho_{10}^{(3)} + \mu_{02}^{(3)} \rho_{20}^{(3)}$$

$$I(\tau) \propto [1 + \cos(\Delta\Omega\tau)] e^{-2\gamma\tau} \quad I(\tau) \propto \left[ 1 + \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\Delta\Omega}{2\gamma}\right)^2}} \cos(\Delta\Omega\tau - \phi) \right] e^{-2\gamma\tau} \quad (e)$$

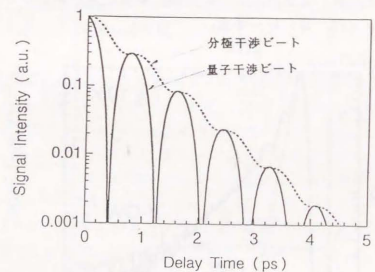


図6. 2 自己回折光における量子干渉ビートと分極干渉ビートの説明図<sup>13)</sup>。0, 0' は、基底状態。1, 2は励起子状態を表す。(a)量子準位図、(b)密度行列、(c)ファインマン図、(d)分極波の式、(e)回折光の遅延時間依存性、(f)典型的なビートの例。

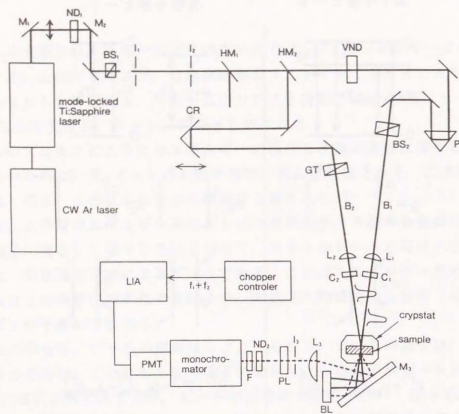


図 6. 3 測定系. HM: ハーフミラー, BS: ビームスプリット, CR: コーナーキューブプリズム, P: 直角プリズム, GT: グラントムソンプリズム, PL: 偏光フィルタ, VND: 可変NDフィルタ, ND: NDフィルタ, F: 色ガラスフィルタ, M: ミラー, L: レンズ, BL: ビームブロック, I: アイリス, C: チョップ, B: レーザ光.

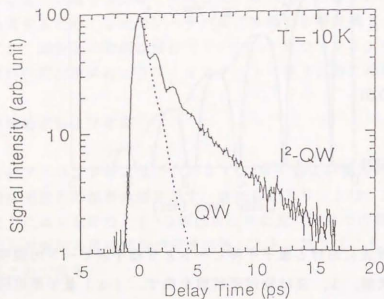


図 6. 4 自己回折光の遅延時間依存性.  $I^2$ QW はアイランド挿入 QW, QW は通常の QW を示す.

### 6. 3. 1 位相緩和の抑制

ディケイレートの抑制について検討を加えるため、まず、ディケイレートの励起強度 ( $P$ ) 依存性を調べた。図 6. 5 に測定結果を示す。 $I^2$ QW については、ビートが減衰した遅延時間  $\sim 5$  ps 後で評価した。 $P=1$  は励起密度が約  $10^{11} \text{ cm}^{-2}/\text{well}$  に相当する。

$I^2$ QW では  $P$  依存性が非常に小さい。一方、NQW は、 $P$  を増加すると、ディケイレートが大きく増大する。これは、キャリア-キャリア散乱による位相緩和の増大のためと考えられる。

この結果を

$$1/\tau = 1/\tau_0 + \gamma P \quad (P \leq 0.3) \quad (6.1)$$

で表すと、 $I^2$ QW では、 $1/\tau_0 = 10^{11}/\text{s}$ ,  $\gamma = 2.2 \times 10^{11}/\text{s}$ , NQW では、 $1/\tau_0 = 2.1 \times 10^{11}/\text{s}$ ,  $\gamma = 3.19 \times 10^{12}/\text{s}$  となる。 $I^2$ QW では、 $1/\tau_0$  が  $\sim 1/2$ ,  $\gamma$  が  $1/10$  程度に抑制されている。(なお、NQW の  $1/\tau$  が頭打ちになっているのは、レーザーのパルス幅に制限されているためである。)

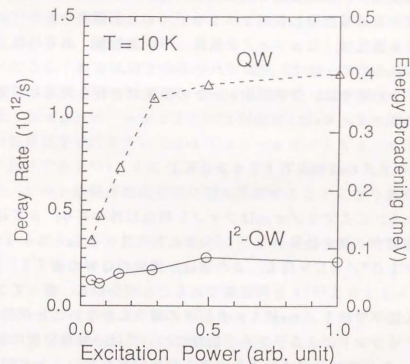


図 6. 5 アイランド挿入 QW ( $I^2$ QW) および通常の QW における位相緩和とレートの励起強度依存性.

$I^2QW$ では、 $\tau$ が $1/10$ 程度に非常に小さいのは、局在ラフネス散乱等のために、 $\tau$ を支配しているキャリアーキャリア散乱が極めて抑制されているためと推定される。以下でその機構を議論する。

キャリアーキャリア散乱の頻度は、衝突頻度と散乱断面積 $\sigma$ に比例する。衝突頻度は、キャリア密度 $N$ とキャリア間の相対速度の平均値 $v$ に比例するので、 $\tau$ は $Nv\sigma$ に比例する。

まず、 $v$ に関して、アイランド挿入により大きな減少が予測される。拡散定数 $D$ の測定(5.5節)によると、 $10K$ では、 $NQW$ の $D \sim 20 \text{ cm}^2/\text{s}$ に対し、 $I^2QW$ では、 $D \sim 5 \text{ cm}^2/\text{s}$ と $\sim 1/4$ になっている。 $v$ は、 $D$ に依存すると考えられるので、キャリアーキャリア散乱が大きく抑制される。

アイランド挿入は、 $\sigma$ にも影響を及ぼすと考えられる。 $I^2QW$ では、エキシトンや $e-h$ ペアが面内ポテンシャルのためにその多くが局在(コヒーレント面積が小さい)していると推定される。(なお面内ポテンシャルは、 $e$ 、 $h$ に対し、同符号のポテンシャルになっているため、同じ空間に局在させる効果を与える。)その結果、キャリア同士の波動関数の重なりが減少し、 $\sigma$ が小さくなる可能性が高い。

さらに、面内運動に関する状態密度が、局在効果のため、準離散的になると散乱の行き先を制限するため、 $\sigma$ の減少を引き起こすと予想される。

次に、励起密度 $P=0$ の極限での減衰レート $1/\tau_{ee}$ に関して論じる。 $1/\tau_{ee}$ には $I^2QW$ と $NQW$ に対し各々 $1 \times 10^{11}/\text{s}$ および $2 \times 10^{11}/\text{s}$ である。これに寄与する散乱は、 $LA$ フォノン散乱、不純物散乱、あるいは、ラフネス散乱が考えられるので、まず、それぞれの寄与を検討する。

$LA$ フォノンの寄与は、位相緩和レートの温度依存性を測定して見積ることができる。まず、 $1/\tau_{ee}$ は

$$1/\tau_{ee} = 1/\tau_{ee0} + \beta T \quad (T < 20 K) \quad (6.2)$$

の式で表される。ここで $1/\tau_{ee0}$ はフォノン散乱以外の寄与、 $\beta T$ はフォノン散乱の寄与を表す。測定結果から、 $I^2QW$ に対し $1/\tau_{ee0} = 8 \times 10^{10}/\text{s}$ 、 $\beta = 2.3 \times 10^9/\text{s K}$ を得る。 $\beta$ の値は、通常の $QW$ の値( $1.9 \times 10^9/\text{s K}$ :  $Lu = 1.20 \text{ \AA}^{(2)}$ )と同程度であることが分かる。従ってフォノンの寄与は $10K$ 以下では $1/\tau_{ee}$ に $1/5$ 以下の寄与しかないことが明らかである。

$AlAs$ アイランドによるラフネス散乱については、拡散定数の測定により、 $I^2QW$ では、 $NQW$ に比べて約4倍大きな散乱強度を持つことが明らかになっている。従って、ラフネス散乱による位相緩和レートへの寄与の上限は、 $I^2Q$

$W$ の $1/\tau_{ee0}$ で押さえられ、 $NQW$ に対しては、その約 $1/4$ と考えられる。

以上のことから、 $10K$ での $1/\tau_{ee}$ に関しては、 $NQW$ では不純物による散乱が支配的であり、 $I^2QW$ では、不純物による散乱の他に、ラフネス散乱が寄与している可能性が高い。なお $I^2QW$ では、 $NQW$ と対比して不純物等による散乱が $1/2$ 以下程度に抑制されていることが示唆される。この原因としては、先にキャリアーキャリア散乱の抑制機構と同様のものが、キャリアー不純物散乱等においても働いていることが考えられる。

### 6.3.2 干渉ビート

次に、図6.4に示したビートについて検討を加える。まず、ビートの起源は、以下の検討から、量子井戸の界面凹凸によるものと推定される。

このビートの周期は、 $1.45 \text{ ps}$ であり、ビートに関与するペアの状態のエネルギー差 $\Delta E_{\text{exc}}$ は $2.85 \text{ meV}$ となる。また、 $NQW$ においても弱いながらもビートが認められ、その周期 $1.83 \text{ ps}$ から $\Delta E_{\text{exc}} = 2.25 \text{ meV}$ と評価できる。これらの $\Delta E_{\text{exc}}$ は、井戸界面の $1 \text{ ML}$ の凹凸に対応するエネルギー差 $\Delta E_{\text{int}}$ (予測値は、 $I^2QW$ に対し $2.8 \text{ meV}$ 、 $NQW$ に対し $2.2 \text{ meV}$ )によく一致する。また、 $I^2QW$ のビートの大きさは励起強度( $6 \times 10^9 \sim 2 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ )にあまり依存せず、凹凸モデルと矛盾しない。

他方、以下に示す機構は、いずれもこの $\Delta E_{\text{exc}}$ や励起強度無依存性を説明しにくい欠点がある。例えば、 $\text{bound exciton-free exciton}$ による干渉では、 $D^*X$ に対しては $\Delta E = 1 \sim 2 \text{ meV}^{(9)}$ 、 $A^*X$ に対しては $\Delta E > 5 \text{ meV}^{(7)}$ となり、具合が悪い。また、 $10^{11}/\text{cm}^2$ の励起強度では、 $\text{bound exciton}$ が飽和し、ビートの減少が予測されるが、その徴候はない。 $\text{biexciton-exciton}$ の干渉は、 $\Delta E$ が $2 \text{ meV}$ 以下である<sup>(9)</sup>うえに、 $\text{exciton}$ 密度に大きく依存する機構であるため、ビート振幅が励起密度に強く依存することになり観測と一致しない。

次に、ビートの大きさを評価するため、ディケイカーブの実験結果を以下の現象論的式、

$$I_a(t) = c_1 [1 + \alpha \cos(\Delta \omega t) \exp(-t/\tau_1)] + c_2 \exp(-t/\tau_2) \quad (6.3)$$

でフィッティングして解を試みた。[ ]内の第3項は、ビート消滅後のや

や遅い緩和の成分に対応し、今の場合は無視してよい。 $\alpha$ は0.36と大きな値をとり、分極波干渉による深さの上限0.13を大きく越えている。従って、量子干渉ビートになっていると結論できる。このことは、従来言われてきた界面ラフネスによるビートが分極波干渉<sup>19)</sup>であるという仮定が少なくとも $I^2QW$ では成り立っていないことを示唆している。

ビート現象に関してさらに検討を加えるため、不均一広がりで支配的されたスペクトル(図6.7挿入図)の中から、特定波長成分のみを調べて、実効的に関与する状態群を選択することを試みた。ここでは、検出波長を選択する方法を用いた。一般的には、関与する遷移プロセスの各々の光子エネルギーがレーザスペクトル幅に対応する広がりを持ち得る。今回のような場合、共鳴遷移が支配的であり、3次分極プロセスで関与する2つの状態の一方のエネルギーは、検出エネルギー $\omega$ に一致すると考えた。

このことを図6.6に代表的なファインマン図を用いて説明する。検出する回折光のエネルギーを $\hbar\omega$ とする。関与するパルス1の光子のエネルギーを $\hbar\omega_1$ 、パルス2のそれを $\hbar\omega_2$ 、 $\hbar\omega_3$ とすると、 $\omega = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$ を満たす。この場合に、関与する状態のエネルギー範囲は、状態の伝播時間を $\tau$ とすると、 $\omega_i \pm 1/\tau$  ( $i=1, 2, 3$ )となる。

$\tau$ が1 psを越えると、図6.6の左線で関与する状態のエネルギーは $\hbar\omega \pm \hbar\Delta\omega$  ( $\hbar\Delta\omega < 1 \text{ meV}$ )に限定される。右線の状態のエネルギー $\hbar\omega_i$ は、レーザスペクトル範囲内をとり得るが、そのうち、左線の状態と量子干渉する状態のみが関与することになる。

図6.7の挿入図に吸収スペクトル、回折光スペクトルを示す。 $I^2QW$ では、不均一広がりによるスペクトル幅の広がりが大きく、吸収や回折光スペクトルは、単一の広がったピークを持つ。分光器のエネルギー分解能を0.9 meVに設定し、各エネルギーで回折光強度 $I_0$ の遅延時間 $\tau$ 依存性(ディケイカーブ)の測定を行った。

各波長でのディケイカーブの測定結果を図6.7に示す。検出エネルギーの違いにより大きな変化が見られる。

これらのディケイカーブ $I_0(\tau)$ からビートの深さ $\alpha$ とビート消滅後(遅延時間 $> 5 \text{ ps}$ )のディケイレート $1/\tau_0$ を抽出した。これらの波長依存性を図6.8に示す。 $\alpha$ は、 $I_0(\tau)$ が前述の式でよく表現されるので、そのフィッティング結果から求めた。 $1/\tau_0$ は、検出波長に殆ど依存しないが、ビート深さは、スペクトルの中央付近を境にして急激な変化が生じ、低エネルギー側ではビート深さが $\sim 100\%$ となる。この顕著な変化は、面内方向の波動関数がスペクトル広がり内のエネルギー位置によって大きく異なっていることを示唆

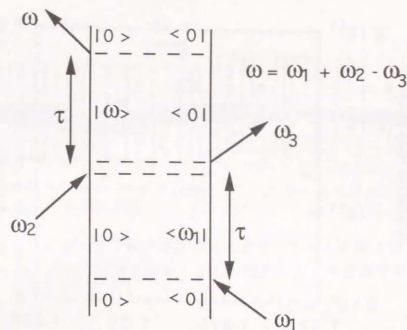


図6.6 検出波長選択時の3次分極波形成過程のファインマン図の例。回折光は $E = \hbar\omega$ に対応する波長で検出する。 $\tau$ は、2つのレーザパルスの遅延時間を表す。レーザ光のスペクトルは $\omega_0 - \Delta\omega$ から $\omega_0 + \Delta\omega$ に広がっている。また、 $\omega_0 - \Delta\omega \leq \omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega \leq \omega_0 + \Delta\omega$ を満たす。

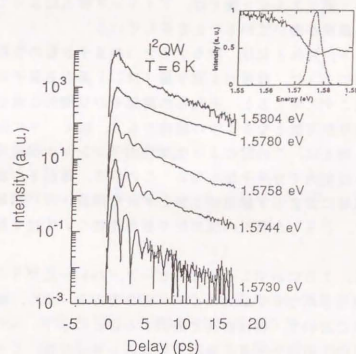


図6.7 アイランド挿入量子井構造における自己回折光の遅延時間依存性の検出エネルギーによる変化。挿入図は、透過スペクトルおよび回折光のスペクトルを示す。

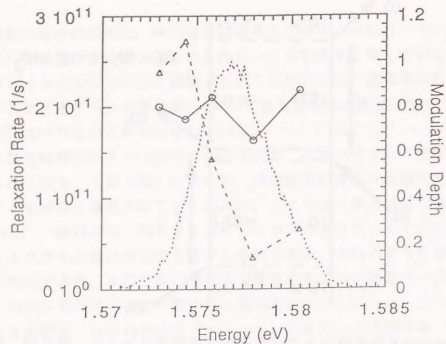


図6.8 位相緩和レート（実線）とビート深さ（破線）の検出エネルギー依存性。点線は、回折光スペクトルを示す。

している。また、低エネルギー側では、アイランド挿入によって量子干渉を促進する何らかの機構が働いていることを示している。

量子干渉ビートが現れるには、関与する2つの量子状態の空間的重なりが必要である。本節のように、膜厚が1原子層（ML）異なる量子井戸の励起子が量子ビートを起こすと考えると、それらの励起子が空間的重なりを持つ必要が生じる。重なりが可能となる1つの機構として、図6.9に示すような機構が考えられる。例えば、この図のような面内ポテンシャル構造があると、励起子のエネルギーは面内で分布を持ち得る。この場合、励起子の波動関数は、特定膜厚の井戸領域に留まらず膜厚が1MLずれた隣接の井戸領域にも、浸出する可能性がある。こうした状況の現実性や妥当性については今後の検討を要する。

最後に、図6.10に示すビートは、ピーク/バレー比が30にも達しており、今までに報告された中で最大のビート深さである。また、縮退四光波混合自己回折光測定において、検出波長を選択することにより、スペクトルに埋もれた量子状態対の干渉系を明確に抽出できることを示した。この簡便な手法が多くの有用性を持つことを示唆している。

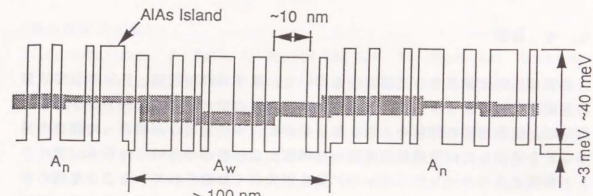


図6.9 アイランド挿入量子井戸構造の面内ポテンシャルの概念図。

$A_w$ ,  $A_n$ は、井戸/障壁界面の1MLの凹凸による領域の区別を表す。

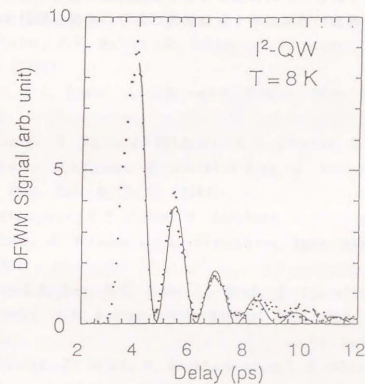


図6.10 低エネルギー側で検出した場合の回折光のビート。実線は、量子干渉ビートの式でのフィッティング結果 ( $\Delta E = 2.85 \text{ meV}$ ,  $T_2 = 3.67 \text{ ps}$ ) を示す。

#### 6. 4 結論

過渡縮退四光波混合自己回折法を用いて、量子井戸箱状態と強い無秩序状態の両側面を持つアイランド挿入量子井戸における励起子のコヒーレント過程を調べた。位相緩和の抑制や大きな量子干渉ビートの発現など際だった特徴を持つことを見出した。位相緩和時間の励起強度依存性が小さいことから、アイランド挿入によりキャリア-キャリア散乱が大きく抑制されていることを明らかにし、その原因を検討した。また、ビートの振舞いを詳しく調べるため、検出波長選択という手法を用いて詳しく調べた。その結果、ビートの深さが長波長側で急激に大きくなり、ほぼ100%の深さになることがわかった。ビートの起源を検討し、井戸幅が1原子層異なる領域に対応する量子準位間の干渉によると推定されることを示した。さらに、挿入したアイランドによる面内ポテンシャルが巨大な量子干渉ビートの発現に寄与する機構の可能性についても議論した。現段階では、現象の理解が不十分な状況にあり、今後も検討が必要である。

#### (第6章参考文献)

1. L. Schultheis, J. Kuhl, A. Honold and C.W. Tu, Phys. Rev. Lett. 5, 1635 (1986); D.S. Kim, J. Shah, J.E. Cunningham, T.C. Damen, S. Schumitt-Rink and W. Schafer, Phys. Rev. Lett. 68, 2838 (1992).
2. J. Kuhl, A. Honold, L. Schultheis and C.W. Tu: "Optical Switching in Low-Dimensional Systems" (NATO ASI Series B: Physics Vol. 194 edited by H. Haug and L. Banyai, p. 267 (Plenum, New York, 1988).
3. L. Schultheis, A. Honold, J. Kuhl, K. Kohler and C.W. Tu, Phys. Rev. B34, 9072 (1986); D.S. Kim, J. Shah, J.E. Cunningham, T.C. Damen, W. Schafer, M. Hartmann and S. Schumitt-Rink, Phys. Rev. Lett. 68, 1006 (1992).
4. K. Leo, T.C. Damen, J. Shah, E.O. Gobel and K. Kohler, Appl. Phys. Lett. 57, 19 (1990).
5. K. Leo, E.O. Gobel, T.C. Damen, J. Shah, S. Schumitt-Rink, W. Schafer, J.F. Muller, K. Kohler and P. Ganser, Phys. Rev. B42, 11359 (1990).
6. K. Leo, T.C. Damen, J. Shah and K. Kohler, Phys. Rev. B42, 11359 (1990).
7. E.O. Gobel, M. Koch, J. Feldmann, G.V. Plessen, T. Meier, A. Schulze, P. Thomas, S. Schumitt-Rink, K. Kohler and K. Ploog, Phys. Stat. Sol. B173, 21 (1992).
8. D. Oershauer, K.H. Panke, W. Langbein, V.G. Lyssenko, H. Kalt, J.M. Hvam, G. Weimann and C. Klingshirn, Phys. Stat. Sol. B173, 53 (1992).
9. E.O. Gobel, K. Leo, T.C. Damen, J. Shah, S. Schumitt-Rink, W. Schafer, J.F. Muller and K. Kohler, Phys. Rev. Lett. 64, 1801 (1990).
10. T. Matsusue, T. Saiki, M. Kuwata-Gonokami, H. Akiyama and H. Sakaki, Int. Conf. on Ultrafast Electronics and Optoelectronics, MD4 (San Francisco, 1993).
11. Ultrafast Laser Pulses and Applications (Topics in Applied Physics Vol. 60), edited by M. Keiser (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
12. T. Yajima and Y. Taira, J. Phys. Soc. Jpn. 47, 1620 (1979).
13. 齋木敏治: 私信.

## 7. 結論

量子力学的波長と同程度の寸法を持つ半導体マイクロ構造では量子効果による特異な物性が発現し、その新機能デバイスへの応用の研究が活発化している。その関連で量子構造中の電子や正孔、その結合状態である励起子のキャリアダイナミクスは、物理的にも究極的なデバイス特性を知る上でも重要である。本研究では、GaAs系の量子井戸構造を対象としてキャリアダイナミクスの基本的な諸側面の解明を試みた。特に、(1) 光物性を支配する発光再結合過程、(2) 障壁層に注入したキャリアの井戸層への捕獲、(3) 量子井戸からのトンネル脱出、(4) 井戸面に沿う励起子の拡散、(5) 励起子のコヒーレントダイナミクスなどについて実験的に明らかにし、理論的検討を行った。実験は、主として、光パルスが発生させるピコ秒あるいはフェムト秒モードロックレーザと、光信号の検出にストロークカメラや非線形分光法等を用いる時間分解分光測定系を構築して行った。また、高度に構造制御された高品質結晶の作製には分子線エピタキシー法を改良しながら用いた。

### (1) 量子井戸構造におけるキャリア発光再結合過程

発光再結合過程を調べるために、非発光成分の影響が小さく、キャリア密度が一定の条件下での実験を試みた。このため、変調ドーピングにより高いキャリア密度を持つ多重量子井戸構造を作製し、発光寿命を測定した。励起光源には、ピコ秒モードロック色素レーザを、検出にはストロークカメラを用いて時間分解分光測定を行った。その結果、10-300Kでの量子井戸構造中のキャリアの発光再結合寿命および発光再結合係数が明らかになった。キャリア寿命は温度が下がるに従い短くなり、低温では、2次元電子の縮退効果のため、飽和傾向を示す。また、発光再結合係数を3次元の値に換算すると、室温では、バルク結晶と同等の値となる。これらの実験結果をk-p摂動論を用いた自由キャリアのバンド間発光再結合理論により説明した。さらに、異なるドーピング密度を持つ量子井戸構造におけるキャリアの発光再結合寿命の温度依存性を調べ、キャリア密度による発光再結合過程の変化を明らかにした。励起子効果が消滅している高ドーピング密度( $>5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )においては、自由キャリアによるバンド間遷移理論で理解できることを示した。吸収スペクトルでは、励起子効果が顕著に現れる低ドーピング密度( $1.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )において、低温では、高ドーピング試料と同等のキャリア寿命となり、励起子効果による寿命の短縮化等は起きないこと、キャリア寿命は温度にほぼ比例して増加することを示した。その原因を、励起子が熱分布するため、発光再結合可

能な状態(重心運動量 $\sim 0$ )に分布する割合が小さく、その割合が温度が上がるとに従い減少するためであることで説明した。

### (2) 障壁層から量子井戸層へのキャリア注入過程

障壁層のキャリアが量子井戸に捕獲される速度を明らかにするため、障壁層を励起した後の障壁層及び井戸層からのそれぞれの発光強度の時間変化や、障壁層からの発光と井戸層からの発光の強度比を時間分解蛍光測定系を用いて調べた。障壁層幅( $L_B$ )の異なる量子井戸構造で測定した結果、 $L_B$ が1000Å以上で障壁層からの発光が見え始めること、数1000Å以上では拡散律速になること、捕獲時間は $L_B = 1.6 \mu\text{m}$ で約140ps(15K)となることなどを示した。さらに、拡散・捕獲モデルを用いて検討を行い、拡散定数が $2.2 \text{ cm}^2/\text{s}$ であること等を明らかにした。

### (3) 量子井戸層からのトンネル過程

まず、薄い障壁層(幅 $L_B$ )に囲まれた量子井戸(2次元系)からバルク領域(3次元系)へのトンネル脱出について、理論的検討を加え、障壁層のバンドギャップ中の有効質量を正しく入れた多重反射理論をもとに理解できること、散乱は脱出速度に影響しないこと、トンネル脱出時間と二重障壁トンネルダイオードのスイッチング時間との対応等を明確にした。

次に、井戸幅の異なる量子井戸が結合した二重量子井戸構造を用い、井戸間のトンネル過程を、電界を印加して詳細に調べた。それぞれの井戸の発光寿命や発光強度の電界による変化を測定した結果、井戸間障壁層幅の薄い(31Å)試料では、電界を変化させると、発光強度や発光寿命に明瞭な共鳴効果が現れることを示した。理論的検討を加え、共鳴時のトンネル過程は、散乱による電子分布の熱平衡化の影響を強く受けるモデルで解釈されることを明らかにした。非共鳴時にはトンネル過程が抑制されるが、井戸間準位差がLOフォノンエネルギーに相当する電界条件下でLOフォノン支援トンネル現象が現れ、その大きさは、バルクのフォノンを用いたフォノン散乱の理論値から説明できることを示した。

### (4) 量子井戸構造における面内拡散過程

量子井戸中の励起子、電子、正孔の井戸面に沿う拡散を調べるために、まず、トランジェント・グレーティング法による時間分解非線形分光測定を行った。井戸幅の異なる量子井戸構造を用い、拡散定数Dの温度依存性とその井戸幅による違いを明らかにした。低温(20K)から温度が上がるとに従い、Dは増加

し、高温（～80K以上）では、減少に転じる。高温領域はLOフォノン散乱に支配され、電子と正孔による両極性拡散でよく説明できることを示した。低温領域では、井戸幅が70、8Åおよび105Åの場合は、変形ポテンシャル散乱が拡散を支配すると考えられ、温度上昇によりDが増加する傾向を電子、正孔、基底状態の励起子を考慮した理論モデルに基づいて説明した。井戸幅が53、8Åの場合は、～80K以下では拡散が大きく抑制され、ラフネス散乱の影響を受けていると考えられる。

また、井戸層の中央にAlAsアイランドを挿入した量子井戸構造において、アイランド状面内ポテンシャルが拡散過程に及ぼす影響を様々な条件で調べた。低温（～80K以下）で、アイランド挿入による拡散の抑制効果が著しく現れる。アイランド挿入量が0、5MLの場合に最も効果が大きく、その抑制の大きさは異方性（ $D_{[110]} < D_{[1\bar{1}0]}$ ）を持つ。[110]方向の拡散定数は、無挿入の場合に比べて約1/4に低下する。また、キャリア密度依存性は、 $10^{11} \text{cm}^{-2}$ 以下の領域では小さい。モデル計算を行い、実験結果のいくつかの特徴を説明した。

さらに、ファイバマスク法（空間限定・時間分解蛍光測定法）を用いて、磁場中の面内拡散を調べた。50～132Kの温度領域で実験的に明らかにした。磁場印加により、拡散定数は単調に減少し、9Tで無印加時の1/2～1/3に低下することがわかった。理論的検討を加え、実験を半定量的に説明するモデルを示した。

#### (5) アイランド挿入量子井戸構造における励起子のコヒーレントダイナミクス

過渡縮退四光波混合自己回折法を用いて、量子井戸箱状態と強い無秩序状態の両側面を持つAlAsアイランド挿入量子井戸における励起子のコヒーレント過程を調べた。位相緩和の抑制や大きな量子干渉ビートの発現など際立った特徴を持つことを見出した。位相緩和時間の励起強度依存性が小さいことから、アイランド挿入によりキャリア-キャリア散乱が大きく抑制されていることを明らかにし、その原因を検討した。また、ビートの振幅いを詳しく調べるため、検出波長選択という手法を用いて詳しく調べた。その結果、ビートの深さが長波長側で急激に大きくなり、ほぼ100%の深さになることがわかった。ビートの起源を検討し、井戸幅が1原子層異なる領域に対応する量子準位間の干渉によると推定されることを示した。さらに、挿入したアイランドによる面内ポテンシャルが巨大な量子干渉ビートの発現に寄与する機構の可能性についても議論した。現段階では、現象の理解が不十分な状況にあり、今後も検討が必要

である。

以上の一連の研究により、量子井戸構造中のキャリアダイナミクスの基本的過程が実験的に明らかになり、その本質的な機構を物理モデルを用いて理解することが可能となった。また、アイランド挿入量子井戸における位相緩和の抑制や量子干渉ビートなどの新たな物理現象を発見することができた。面内拡散を詳細に説明する定量的理論の確立、アイランド挿入量子井戸構造におけるキャリア-キャリア散乱の抑制や、巨大量子干渉ビートの発現に関する機構の解明などでは、多くの知見を得たが、現時点では、幾つかの未解決の課題の存在も指摘した。今後の検討が待たれる。

本研究で得られた発光再結合寿命、発光再結合係数、井戸への捕獲時間、拡散定数、拡散距離、トンネル時間、共鳴効果などは、デバイス特性を考える上でも重要な物理量である。それが半導体構造や外的な実験条件でどのように変わるか、言い換えると、どのように制御できるかに関する知見は、デバイス特性の改善や新しいデバイスの実現に役立つと期待される。研究を進めていくうちに、ダイナミクスを制御する方法に関していくつか可能な方法を考え出すことができた。今後、それについても検討を進めていく必要と価値があろう。



## 謝辞

本研究は、1984年4月、東京大学生産技術研究所第3部構研究室に技官として着任してから、同研究室において現在まで主に行ってきた研究をまとめたものです。その間に、多くの方々からいただいた御指導や助言、協力に深く感謝いたします。

榎裕之教授（生産技術研究所、先端科学技術研究センター、新技術事業団・量子波プロジェクトリーダー）には、指導教官として、終始研究を指導していただきました。また、同教授が自ら示される姿をお手本にすることによって、研究の進め方やまとめ方を初め、研究者としてどうあるべきかなど、日常生活の様々な面にいたるまで、数多くのことを学ばせていただきました。さらに、設備の面でもアクティビティの面でも、優れた研究環境で研究させていただいたことに深く感謝いたします。

五神真講師（物理工学科）には、後期の非線形分光による実験に際して、有益な助言をいただいた他、フェムト秒レーザーシステムを使用させていただきました。

安藤恒也教授（物性研究所）および同研究室の有楽助手には、理論面で、有益な議論をさせていただきました。

山西正道教授（広島大学）および同研究室の李英根助手には、透過測定用材料作製プロセスに関して、御教示いただいた他、有益な議論をさせていただきました。

荒川泰彦助教授（生産技術研究所）には、装置の使用に際しての便宜やその他のサポートをしていただきました。

神谷武志教授（電子工学科）には、キャリア寿命の実験に際し、御指導をいただきました。

藤井陽一教授（生産技術研究所）には、キャリア寿命の実験に際し、設備の利用に便宜を図っていただきました。

濱崎襄二教授（生産技術研究所、現東亜大学・教授）には、初期に、計算機の使用に便宜を図っていただきました。

吉野淳二助手（生産技術研究所、現東京工業大学・助教授）は、同助手が構研究室に在籍中、半導体工学分野に関してほとんど経験のない本研究者を結晶成長や測定に関するノウハウ、理論的解釈など様々な面で指導・助言して下さいました。

秋山英文博士（先端科学技術研究センター・特別研究員）には、後期の2年間、ピコ秒、フェムト秒測定技術やキャリア・ダイナミックスの解釈に関して、

有益な議論をさせていただきました。また、共同研究者として協力していただいたり、同博士が開発した測定法の利用に便宜を図っていただきました。

斎木敏治氏（物理工学科・大学院生）には、コヒーレントダイナミックスの研究に際し、共同研究者として実験、理論の両面で協力していただきました。

土屋昌弘氏（生産技術研究所・大学院生、現電子情報工学科・講師）には、トンネルダイナミックスの研究に際し、共同研究者として協力していただきました。また、同氏が主に行った研究の成果を参考にさせていただきました。

J. N. Schulman客員教授（先端科学技術研究センター、現ヒューズエアクラフト社）には、トンネルダイナミックスの共同研究者として、強結合法を用いた数値計算等の理論的な検討に協力していただきました。

西岡政雄助手（生産技術研究所）には、初期に、同氏が進めていた位相シフト法を用いたキャリア寿命の測定に参加させていただきました。それによって、本研究に関する興味が深まり、また、実験の下地を身につけることができました。その後、装置の借用やその他の様々な面で便宜を図っていただきました。

寒川哲臣氏（生産技術研究所大学院生、現NTT）には、ピコ秒計測システムを構築する際に、協力していただきました。

本久順一氏（新技術事業団・量子波プロジェクト・研究員）には、散乱や輸送現象等の理論面に関して、有益な議論をさせていただきました。

野田武司技官（生産技術研究所）には、ラフネス散乱やアイランド挿入構造に関して有益な議論をさせていただきました。

田中琢爾氏（生産技術研究所・大学院生）には、正孔の分散関係の計算に際し、同氏らが作成した強結合法プログラムの使用の便宜を図っていただきました。

G. Fasol客員助教授（先端科学技術研究センター）には、有益な議論をさせていただいた他、いくつかの英文論文執筆に際し、添削をしていただきました。

浜松ホトニクス社の昼馬輝夫博士、土屋裕博士、小石結博士、鈴木一孝氏には、ストリークカメラの使用に便宜を図っていただきました。この装置なしでは、本研究が遂行できませんでした。

清水明博士（新技術事業団・量子波プロジェクト・研究員、現物理学部・助教授）、江馬一弘助手（物理工学科）、中村有水氏（新技術事業団・量子波プロジェクト・研究員）、永宗靖助手（先端科学技術研究センター）、H. Hillmer博士（シュツトガルト大学）、尾崎政男助手、齋藤敏夫助手、大学院生の田上知紀氏（現日立製作所）、古田知史氏（現NTT）、平川一彦氏（現生産技術研究所・講師）、田中雅明氏（現電子工学科・講師）、吉村尚郎氏

(現東芝), 倉田創氏(現新技術事業団・量子波プロジェクト・研究員), 石川明夫氏(現新日鉄), 菅原宏治氏, 野口裕泰氏, 大野裕三氏, 野口充宏氏, 橋本佳男氏を始め, 多くの方々には有益な議論や協力をしていただきました。

スペクトラフィジックス社レーザー技術グループ, 試作工場, 物性研究所低温液化室の方々にも大変お世話になりました。

最後になりますが, 妻和美に深く感謝します。本論文を清書するに当たり, タイピング作業の大部分は彼女に負っています。それがなければ, 本論文は予定通りに完成しませんでした。また, 父親則, 母トキ子, 兄佳明は, 終始温かく見守り, 激励してくれました。ここに感謝します。

なお, 本研究の遂行にあたっては, 文部省科学研究費, 新技術事業団研究費, 東レ科学技術助成金の援助を受けています。

1993年 1月22日

