

圧縮歪 InGaAs/InGaAlAs 量子井戸に於ける 室温励起子の光学的評価

平山雄三†, Woo-Young CHOI, and Clifton G. FONSTAD

Department of Electrical Engineering and Computer Science
and Research Laboratory of Electronics,
マサチューセッツ工科大学,
Cambridge, MA 02139, USA

† 東芝研究開発センター 〒210 川崎市幸区小向東芝町1

あらまし

圧縮歪を有する InGaAs/InGaAlAs 量子井戸に於ける室温励起子を吸収測定, 変調透過測定および PL 測定により光学的に評価し, 励起子遷移のエネルギー, 振動子強度, 結合エネルギー, 還元有効質量の井戸層厚依存性を明らかにした。遷移エネルギーの値は歪によるヘビーホールとライトホールの分離を考慮した計算結果と良く一致した。歪系に於ける振動子強度は格子整合系に比べ 35 から 45 % 小さかった。これは歪系での面内有効質量の減少により励起子半径が増加したためと考えられる。

和文キーワード

励起子, 歪量子井戸, InGaAs, 吸収, PL

Optical study on exciton in InGaAs/InGaAlAs quantum-well structures

Yuzo HIRAYAMA †, Woo-Young CHOI, and Clifton G. FONSTAD

Department of Electrical Engineering and Computer Science
and Research Laboratory of Electronics,
Massachusetts Institute of Technology,
Cambridge, MA 02139, USA

† On leave from Toshiba Co., Research and Development Center,
1 Komukai Toshiba-cho, Saiwai-ku, Kawasaki, 210 Japan

Abstract

The physical properties (transition energy, oscillator strength, linewidth, binding energy and reduced effective mass) of room temperature excitons in compressively strained InGaAs/InGaAlAs multi-quantum-well (MQW) structures as a function of the well width have been investigated by absorption measurements, photomodulated transmittance measurements, and PL measurements. Measured transition energies are in good agreement with a model which includes the heavy hole and light hole splitting due to the strain. The oscillator strengths are smaller for the strained layer MQWs than for the lattice-matched MQWs by 35 to 45 %. This is due to the larger exciton radius for the strained MQWs resulting from smaller in-plane reduced effective masses.

英文 key words

exciton, strained quantum well, InGaAs, absorption, PL

1. はじめに

近年、大容量光通信システムや、光情報処理システムへの応用に向けて高性能半導体レーザーの開発が盛んである。特に最近では特性向上をはかる手段として歪を量子井戸層に加えた歪量子井戸構造 [1] を活性層に持つ半導体レーザーの開発が盛んである。実際に低しきい値、高出力、超高速応答に応用して優れた特性が理論的、実験的に報告されており [2] - [5]、さらに最近では歪量子井戸構造の層厚や層数等のパラメータの最適化についての検討も進んできている。

一方、多体効果の一種である励起子は量子井戸中において波動関数が閉じこめられるためバルクに比べて大きな結合エネルギーが得られ、そのため室温においても強い励起子吸収が観測されている [6]。さらに量子井戸中の励起子を利用したデバイスも検討されている。従って歪量子井戸中に於ける励起子の物理パラメータを知ることは基礎物性の点からもかつ、応用上も重要であると考えられるが報告は少ない [7]。

本報告では光通信で用いられる $1.5\mu\text{m}$ 帯での発光、受光材料である $\text{InGaAs}/\text{InGaAlAs}$ 系の圧縮歪量子井戸に着目し、励起子の遷移エネルギー、振動子強度、結合エネルギー、還元有効質量等のパラメータを井戸層厚依存という観点から無歪系と比較しながら述べる。

2. 実験方法

素子構造

量子井戸の厚さの異なる 3 種類の歪 $\text{InGaAs}/\text{InGaAlAs}$ 量子井戸構造 (サンプル A, B, C) を分子線エピタキシー (MBE) 法により (001) Fe-InP 基板上に成長した。比較のために格子整合した $\text{InGaAs}/\text{InAlAs}$ 量子井戸 (サンプル D) も準備した。歪量子井戸の構造模式図を図 1 に、および 4 種類のサンプルの構造パラメータを表 1 に示す。サンプル A, B, C はそれぞれ 2.5 nm 、 5.0 nm 、 7.5 nm の厚さを持つ歪量子井戸層を 4 層ずつ有している。 InGaAs 量子井戸層に於ける In の組成はサンプル A, B, C ともに 0.652 である。これは量子井戸面内で 0.83% の圧縮歪に相当する。障壁層は厚さ 8.5 nm であり組成は $\text{In}_{0.47}\text{Ga}_{0.255}\text{Al}_{0.275}\text{As}$ である。障壁層は 0.43% の引張歪を有している。クラッド層は障壁層と同じ組成を持ち量子井戸層の上下にそれぞれ $0.04\mu\text{m}$ のアンドープ層とさらに厚さ $0.12\mu\text{m}$ 、および $0.16\mu\text{m}$ のドープしたクラッド層が形成してある。ドーピングは Be と Si によりそれぞれ p と n タイプにし、濃度はどちらも $5 \times 10^{17}\text{ cm}^{-3}$ とした。

量子井戸層の厚さ、組成は X 線回折のサテライトパターンデータにシミュレーション結果をフィッティングすることにより求めた。図 2 にサンプル C の場合の結果を示す。いずれのサンプルも実験結果とシミュレーション結果が良く合うことと、鏡面の良好なモロロジーが得られて

いることから歪の緩和はほとんど無いことを確認した。

尚、比較に用いたサンプル D は格子整合した 7.2 nm 厚の InGaAs 量子井戸層と、同じく 7.2 nm 厚の InAlAs 障壁層からなる。また、これらのサンプル作成の詳細については文献 [8] に述べられている。

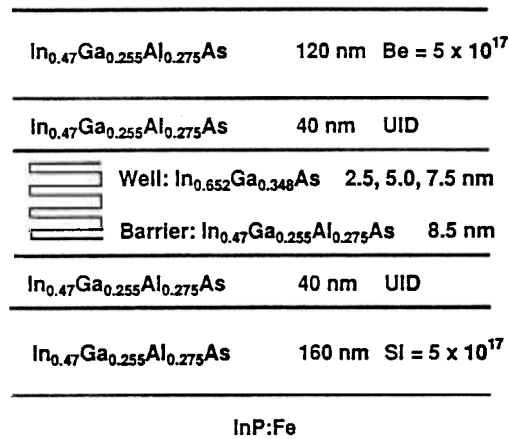


図 1 サンプルの構造模式図

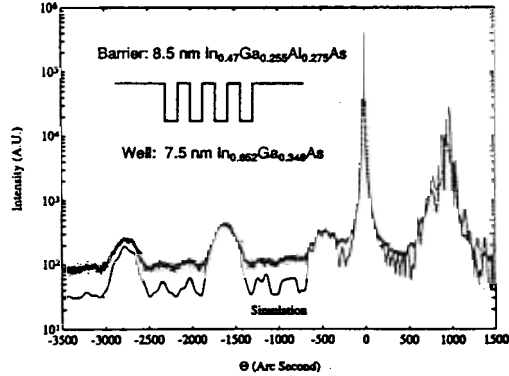


図 2 X 線ロックインカーブとシミュレーション結果

表 1 サンプル一覧

Sample No.	No. of well	L_w (nm)	L_b (nm)	In composition
A	4	2.5	8.5	0.652
B	4	5.0	8.5	0.652
C	4	7.5	8.5	0.652
D	1	7.2	7.2	0.652

表 1 サンプル一覧

2. 2 吸収測定および光変調透過測定

それぞれのサンプルについて室温に於ける吸収スペクトルを測定した。測定系はロックイン

・アンプ、分光器、タングステンランプ、PbS受光器からなる[9]。試料の裏面はBrメタノールで鏡面に仕上げ、試料すなわち量子井戸層に垂直に光を入射させた。測定した吸収スペクトルを後に述べる方法で解析することにより励起子の各種パラメータを求めることができる。

さらに励起子吸収遷移のエネルギー位置を正確に知るために光変調透過測定を各のサンプルについて行った。このような光変調分光法は一般に感度が高いことで知られる。ここで用いた光変調透過測定法はフォトフレクタンズ法と類似のものであり、反射率の変化を測定するかわりに透過率の変化を測定するものである。出力1mWのアルゴンレーザ光を図3に示すようにチョッパーを介して試料に入射し、試料内部のビルトイン電界を変調した。通常の吸収測定に比べてシグナル・ノイズ(SN)比の良い鋭い信号が励起子吸収の位置で得られた。

Photo-Modulated Transmission Measurement

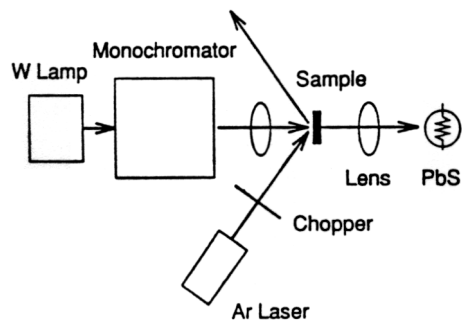


図3 光変調透過測定の実験配置図

E_{ph} は励起子エネルギーギャップ、 Γ は線幅、 S は励起子吸収の積分強度である。エネルギーギャップ、線幅、吸収強度のポンプ光による変化の度合いが括弧内の意味するところである。第1項が支配的である時は正と負に変化する分散曲線となる。第2項、第3項が支配的なのは対称なスペクトルになると考えられる。実際はこれらが混じり合うためより複雑であると考えられるが、許容遷移に対しては第1項、禁止遷移に対しては第3項が支配的である。e1-hh1はサンプルAからDに対して0.99、0.87、0.81、そして0.86 eVと求められた。サンプルCとDではhh2からe2への遷移も認められる。禁止遷移であるe1-hh2やe1-hh2間の遷移もサンプルCとDでそれぞれ観測された。

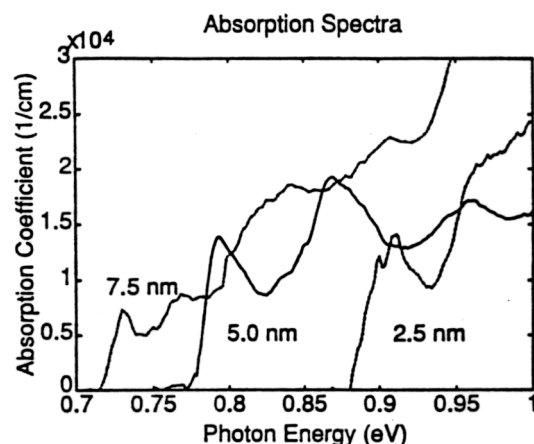


図4 吸収スペクトル

3. 結果と考察

3.1 励起子遷移エネルギー

図4に至量子井戸サンプルA、B、Cの室温での吸収スペクトルを示す。伝導帯の1番目のサブバンドe1とヘビーホールの1番目のサブバンドhh1の間での明瞭な励起子遷移が観測された。エネルギー値はサンプルA、B、Cで、それぞれ0.897(第2のピークは0.913)、0.792、0.731 eVであった。

図5に光変調透過測定法によるスペクトルの例としてサンプルCの場合を示す。比較のために通常の吸収スペクトルを重ねて示してある。いずれのサンプルにおいても鋭いピークが観測された。一般にポンプ光の強度変化に応じて誘電関数の虚数部分は次のように変化すると考えられる[10]、[11]。

$$\begin{aligned} \epsilon_i = & \frac{\partial \epsilon_i}{\partial E_{ph}} \times \left(\frac{\partial E_{ph}}{\partial P} \right) \\ & + \frac{\partial \epsilon_i}{\partial \Gamma} \times \left(\frac{\partial \Gamma}{\partial P} \right) \\ & + \frac{\partial \epsilon_i}{\partial S} \times \left(\frac{\partial S}{\partial P} \right) \end{aligned} \quad (1)$$

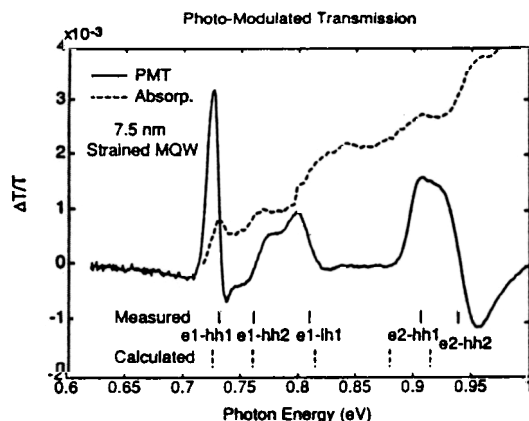
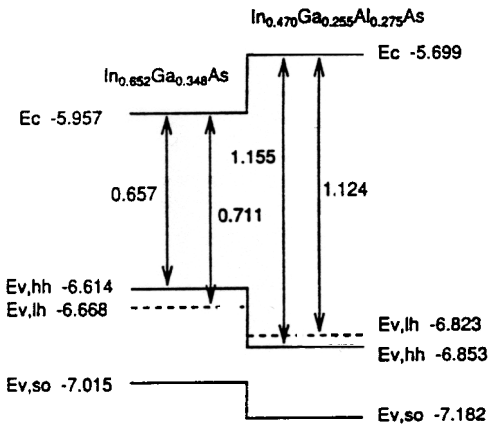


図5 光変調透過測定によるスペクトル

一方、遷移エネルギーは有効質量近似により理論的に求めることができる。歪によるヘビーホールとライトホールの Γ 点に於けるスプリットを考慮した。バンドダイアグラムはmodel

solid theoryにより計算した [12]。必要なパラメータは2元系のパラメータからVegard's lawにより求めた。計算に用いた InGaAs/InGaAlAs のバンド・ラインナップを図6に示す。



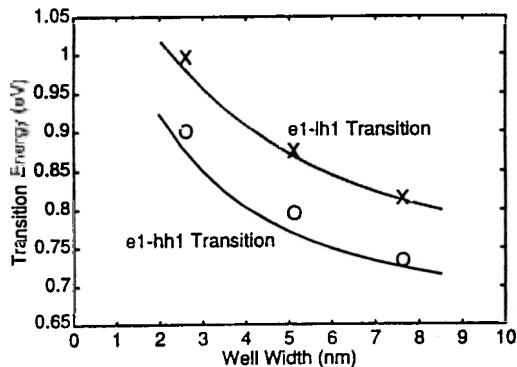
InGaAs/InGaAlAsのバンド構造図

サブバンドのエネルギーは effective mass envelope function 法により伝導帯の非線形性を考慮して求めた。励起子吸収のエネルギーは

$$E_{ph} = E_e + E_h + E_g - E_b \quad (2)$$

で与えられる。EeとEhは電子と正孔のサブバンドエネルギー、Egはバンドギャップ、Ebは励起子結合エネルギーである。

図7に実験値と計算した吸収エネルギーとを比較して示した。フィッティングパラメータを用いてないにも関わらず、良い一致が見られた。歪系に於いてはヘビーホールと、ライトホールとのスプリットは約80 meVであり無歪系の40 meVと比べ、2倍になっている。このように歪によるヘビーホールと、ライトホールとのスプリットが明かに観測された。



遷移エネルギーの井戸層厚依存性

3. 2 振動子強度と励起子半径

励起子吸収データを最小自乗法によりガウス分布関数でフィッティングすることにより積分強度Sを求めた。サンプルAについては2つのガウス分布関数を当てはめた。図8にフィッティングした曲線を示す。積分強度は振動子強度を井戸層厚Lzで割った値に比例する。

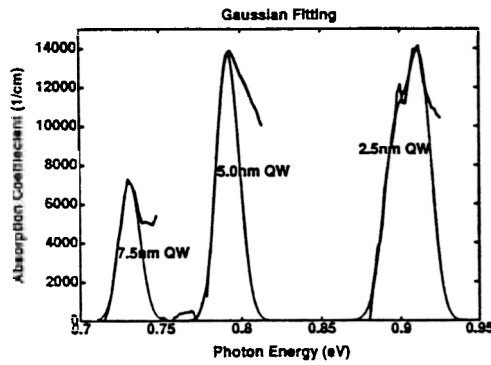


図8 ガウス分布関数によるフィッティング

図9に積分強度を井戸層厚に対して示す。格子整合系に対する文献 [13]、[15] のデータも合わせてプロットしてある。Sはそれぞれ406, 240, 116, and 213 eV/cmであった。同じ井戸層厚ではSの値は格子整合系にくらべ35から45%小さい。Sは格子整合系、歪系ともにLzが5 nm以上の範囲で1/Lz²の依存性を有しているが5 nm以下の狭い井戸層厚では依存性は少ない。

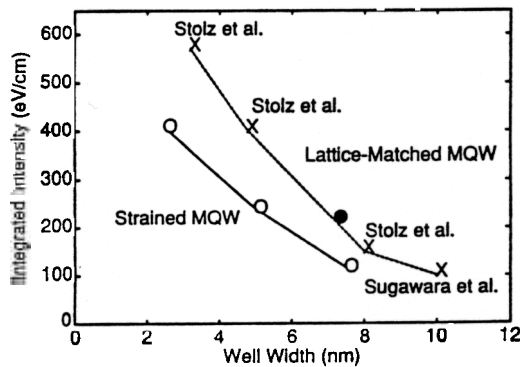


図9 積分強度の井戸層厚依存性

積分強度は有効質量近似のもとで次のように与えられる [13]。

$$S = \frac{4e^2 \hbar}{(\epsilon_0 c n_0^2 E_{ph} \lambda e x^2 L_z)} |\langle P_{cv} \rangle|^2 |\langle \phi_e(z) | \phi_h(z) \rangle|^2 \quad (3)$$

ここで e は電子の電荷、Pcv はマトリックスエ

レ
は
は

Exciton Radius (nm)

図

し
う
子

3

ネ
め

Eb

こ
量

方
内
井
ネ
ル
を

ω

φ

こ
こ
の
で
存

ル
飽

メント、 $\phi_e(z)$ は電子の波動関数、 $\phi_h(z)$ は正孔の波動関数、 ϵ_0 は真空中の誘電率、 c は光速、 n は屈折率である。

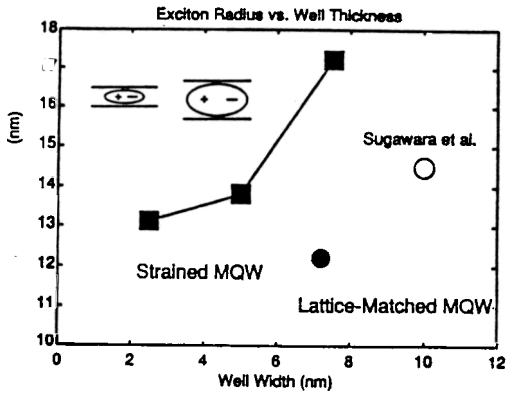


図10 励起子半径の井戸層厚依存性

この式に実験から得られた積分強度の値を代入して励起子半径が求められる。図10に示すようにサンプルAからDでそれぞれ13.1、13.8、17.2、そして12.2 nmであった。歪系での励起子半径の増大がSの減少の主たる要因である。

3. 3 結合エネルギーと還元有効質量

2次元励起子半径は次式で与えられる結合エネルギーを変分法により最小化する事により求められる[14]。

$$E_b(\lambda_{ex}) = -\hbar^2 / (2\mu\lambda_{ex}^2) + e^2 \langle \phi | 1/\rho | \phi \rangle / (4\pi\epsilon) \quad (4)$$

ここで μ は井戸層に平行な面内での還元有効質量($1/\mu = 1/m_e || + 1/m_h ||$)、 ρ は $(r^2 + (z_e - z_h)^2)^{1/2}$ であらわされる。 z_e と z_h は井戸層に垂直な方向の電子、正孔の座標である。 r は井戸層面内での電子と正孔の相対位置である。第1項は井戸中の電子と正孔の相対運動に対する運動エネルギーであり、第2項はクーロンポテンシャルエネルギーである。基底状態の試行波動関数を次のように選ぶことができる。

$$\psi = \phi_e(z_e) \phi_h(z_h) \phi_{ex}(r) \quad (5)$$

$$\phi_{ex}(r) = (2/\pi)^{1/2} \exp(-r/\lambda_{ex}) / \lambda_{ex} \quad (6)$$

ここで λ_{ex} は励起子のボーア半径である。ここで既に励起子半径が実験から求められているので有効還元質量と結合エネルギーを逆に計算できる。図11に結合エネルギーの井戸層厚依存性を示す。格子整合系に対する文献[13]、[15]のデータも合わせて示した。結合エネルギーは井戸層厚が減少すると共に増加するが飽和傾向にある。歪系で井戸厚2.5 nmでは7.8 meVであった。格子整合系に比べ歪系では1から

2 meV小さかった。

図12に有効還元質量の井戸層厚依存性を示す。文献[13]、[16]から引用した格子整合系のデータを合わせてプロットしてある。歪系の還元有効質量は0.031から0.038 m_0 であり格子整合系の65%程度である。ヘビーホール面の正孔質量が圧縮歪により減少したこと、組成変化による電子と正孔の有効質量の変化が要因である。簡単な計算結果によれば井戸層厚が2.5 nmから7.5 nmの範囲で歪系の還元有効質量は0.027から0.032 m_0 、格子整合系では0.031から0.039 m_0 と求められ、実験から得られた傾向と一致する。

このように還元有効質量の減少が励起子半径を大きくし、積分強度を減少させたと解釈できる。以上のように歪系の量子井戸でQCSE等を用いたデバイスを作成する際の重要な知見が得られた。引っ張り歪を用いることにより逆の特性を得ることも可能と考えられる。

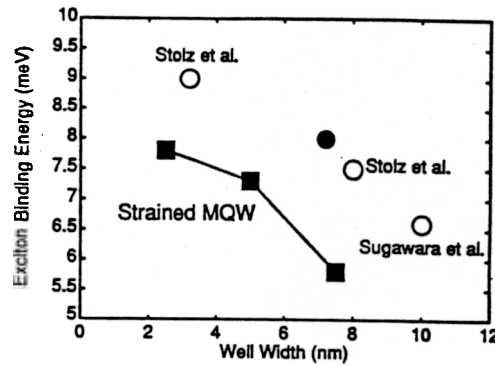


図11 励起子結合エネルギーの井戸層厚依存性

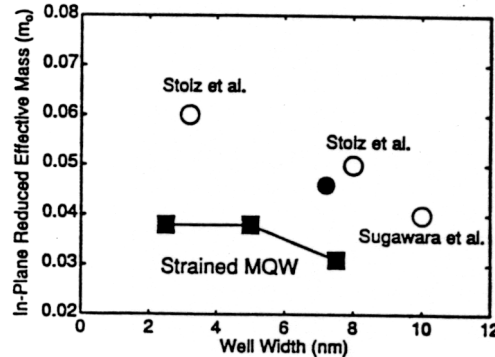


図12 面内還元有効質量の井戸層厚依存性

3. 4 PLとの比較

サンプルBの室温PL測定結果[17]を図13に示す。吸収スペクトルと比較するとピークの値が異なっている。その差は7 meVであり既に見積もった励起子結合エネルギー7.3 meVと近い

値である。このことからPLのピークはバンド間の遷移をあらわしていると予想される。

さらに詳しく調べるためにPLの温度依存性を調べた。サンプルCの結果を図14に示す。このサンプルでは各温度領域に於いて2つのPLピークが観測された。低温になるにつれて低エネルギー側のピーク強度が増大する。このピークが励起子発光によるものと考えられる。例えば90 Kでは2つのピークのエネルギー差は5.5 meVであり先に求めた結合エネルギー5.8 meVと近い値である。高エネルギー側のピークはバンド間の発光である。10 Kでは2つのピークのエネルギー差が7.5 meVに増大している。これは励起子が不純物単位等に束縛されたためと考えられる。

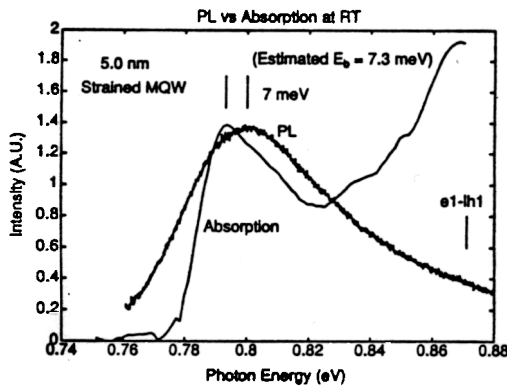


図13 サンプルBの室温PL

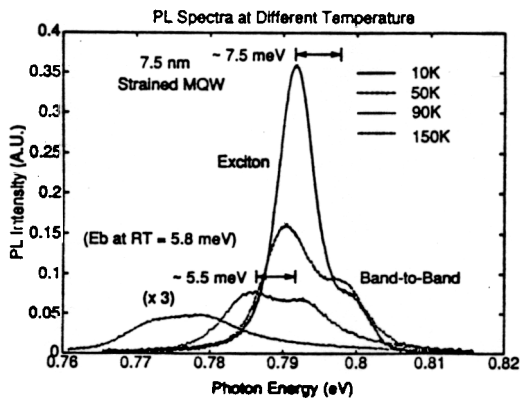


図14 サンプルCに於けるPLの温度依存性

これらの結果から温度が100 K以下では束縛励起子、100 Kから200 Kでは自由励起子、200 Kから300 Kではバンド間での遷移が観測されている物と推測できる。

4. 結論

圧縮歪を有するInGaAs/InGaAlAs量子井戸に於ける室温励起子の物理的性質、すなわち遷移エ

ネルギー、振動子強度、結合エネルギー、還元有効質量の井戸層厚依存性を吸収測定、光変調透過測定、PL測定により評価した。遷移エネルギーは歪によるヘビーホールとライトホールのスプリットを考慮した計算値と良い一致を示した。また振動子強度は歪系に於いて小さかった。これは面内還元有効質量が歪系で小さく励起子半径の増大を招いた結果と解される。励起子結合エネルギーの値は温度をパラメータにしたPL測定から得られた結果と良く一致した。これらの知見は実際にデバイスに応用していく上で重要である。今後フェムト秒領域での時間分解測定による励起子ダイナミクスの研究が課題である。

謝辞

One of the authors (Y.H.) would like to thank Professor E.P.Ippen for his continuous encouragement and useful discussions. This research was supported in part by the National Science Foundation, Contract ECS-9008485, and by the Army Research Office, Contract DAAL03-91-G-0051.

参考文献

- [1] E.Yablonovitch and E.O.Kane, J. Lightwave Technol. LT-4, 504 (1986); see also, "Correction," J. Lightwave Technol. LT-4, 961 (1986).
- [2] I.Suemune, L.A.Coldren, M.Yamanishi, and Y.Kan, Appl.Phys.Lett. 53, 1378 (1988).
- [3] Y.Hirayama, M.Morinaga, M.Tanimura, M.Onomura, M.Funewizu, M.Kushibe, N.Suzuki, and M.Nakamura, Electron. Lett. 27, 241 (1991).
- [4] Y.Hirayama, M.Morinaga, N.Suzuki, and M.Nakamura, Electron. Lett. 27, 875 (1991).
- [5] Y.Hirayama, M.Morinaga, M.Onomura, M.Tanimura, M.Tohyama, M.Funewizu, M.Kushibe, N.Suzuki, and M.Nakamura, IEEE J. Lightwave Technol. 10, 1272 (1992).
- [6] D.S.Chemla, D.A.B.Miller, P.S.Smith, A.C.Gossard, and W.Wiegmann, IEEE J. Quantum Electron. QE-20, 265 (1984).
- [7] N.Yokouchi, T.Uchida, T.Uchida, T.Miyamoto, F.Koyama, and K.Iga, Japanese J. Appl. Phys. 30, L885 (1991).
- [8] Woo-Young Choi and C.G.Fonstad, J. Crystal Growth 127, 555 (1993).
- [9] Y.Hirayama, Woo-Young Choi, L.H.Peng, and C.G.Fonstad, J. Appl. Phys. 74, 540 (1993).
- [10] B.V.Shanabrook, O.J.Glebocki, and W.T.Beard, Phys. Rev. B35, 2540 (1987).
- [11] W.M.Theis, G.D.Sanders, C.E.Leak, K.K.Bajaj, and H.Morko Phys. Rev. B37, 3042 (1988).
- [12] C.G.Van de Walle, Phys. Rev. B39, 1871 (1989).
- [13] M.Sugawara, T.Fujii, S.Yamazaki, and K.Nakajima, Phys. Rev. B42, 9587 (1990).
- [14] G.Bastard, E.E.Mendez, L.L.Chang, and L.Esaki, Phys. Rev. B26, 1974 (1982).
- [15] W.Stolz, J.C.Maan, M.Altarelli, L.Tapfer, and K.Ploog, Phys. Rev. B36, 4301 (1987).
- [16] W.Stolz, J.C.Maan, M.Altarelli, L.Tapfer, and K.Ploog, Phys. Rev. B36, 4310 (1987).
- [17] Woo-Young Choi, Y.Hirayama, and C.G.Fonstad, in Conference proceedings of Fifth International Conference on InP and Related Materials, WBI, Paris (1993)

あ

和文

Abs

英文