

論文の内容の要旨

論文題目 半導体量子井戸における光励起キャリアの非平衡性

(Non-equilibrium energy distribution of photo-excited carriers
in semiconductor quantum wells)

氏名 丸山 俊

半導体においては、発光や利得スペクトルをはじめとする多くの光学特性が、キャリアが準熱平衡分布を形成しているとするモデルで説明され、このモデルの有効性は広く受け入れられてきた。しかしその一方で、著しく高いキャリア温度を持つホットキャリアの形成や、準熱平衡モデルから外れた発光スペクトルなど、非平衡が現れたことを示す実験結果も報告されている。半導体量子井戸においても、膨大な研究が行われてきたが、光励起キャリアの準熱平衡・非平衡に関してコンセンサスは確立していない。その最大の原因は、明確な基準に基づくキャリア分布の評価手法が存在しなかったためである。

本論文は、非ドープ半導体量子井戸内に光励起で生成されたキャリア分布の準熱平衡性・非平衡性を定量評価することを目的とし、発光分光測定を行った結果をまとめたものである。熱平衡系の発光と吸収の間にモデルに依らずに一般的に成り立つKennard-Stepanov(KS)関係式を基準として用いることで、キャリア分布の準熱平衡・非平衡の明確な判定を行うだけでなく、それぞれの特徴の定量的な把握を実現した。その過程で、発光励起(PLE)スペクトルの高精度な測定を実現した。さらに、低温領域において励起子PLEピーク強度が減少するふるまいを観測し、その原因が共鳴Rayleigh散乱(RRS)過程と発光(PL)過程の競合であることを特定した。

本論文は、研究の背景と目的を述べた第1章と、以下に説明する第2-5章の全5章からなる。

第2章では、本研究で用いた試料、測定方法、試料の基礎光学評価の結果を示した。キャリア分布状態の明確な判定を行なうために必要となる均一性の高い試料を得るため、試料構造としては単一のGaAs/AlAs量子井戸を選び、界面ラフネスを低減するための結晶成長時の工夫を取り入れた。また、発光と吸収の光学スペクトル形状を得るため、PLおよびPLE測定用の顕微光学系の開発を行なった。特に、試料発光と励起光のエネルギーが近接するバンド端領域のPLE測定は、励起光散乱が信号光に混入するため極めて困難であるが、暗視野励起測定配置、直交偏光子、フィッティングによるデータ

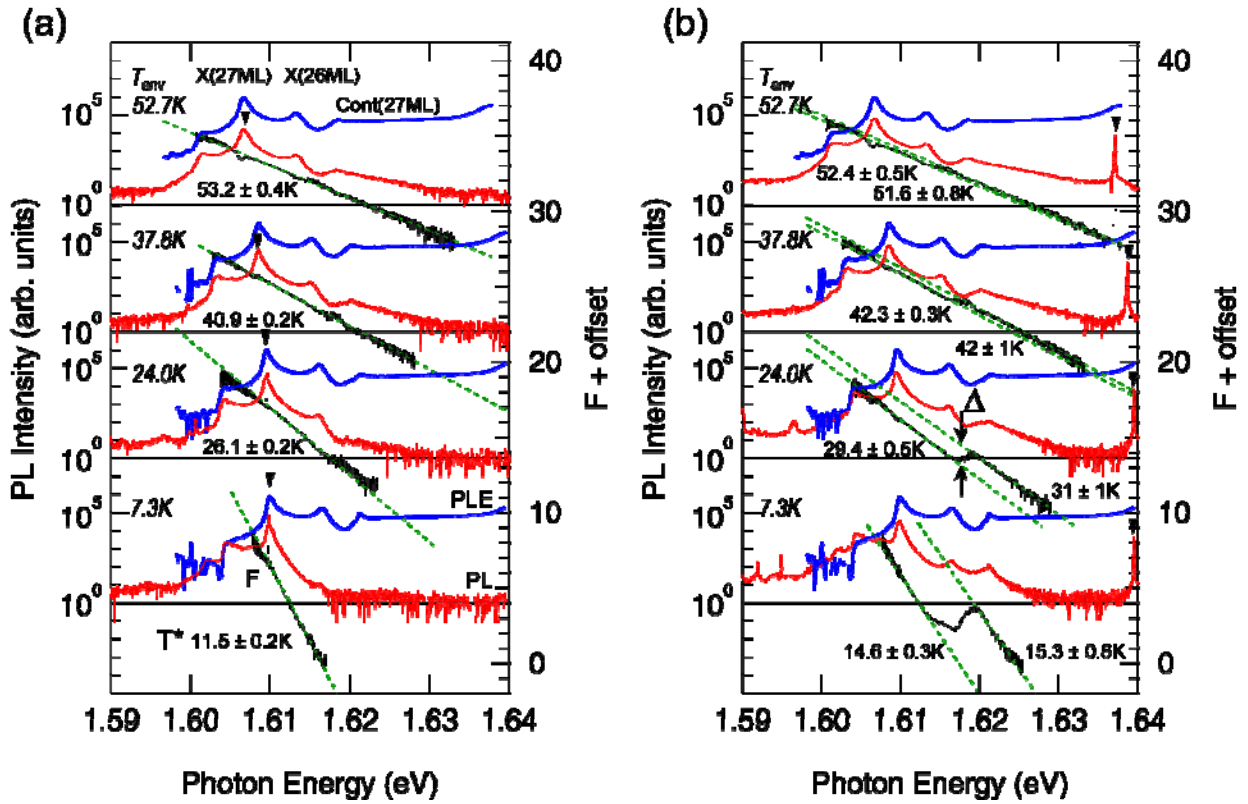


図1 異なる4つの環境温度 T_{env} で測定された PL (赤)、PLE (青)スペクトルと関数 F (黒)のプロット。(a) は PL スペクトルを共鳴励起条件で測定した場合、(b)は非共鳴励起条件で測定した場合の結果。式(2) による直線フィッティング (緑破線) から見積もられる温度 T^* も示した。

処理を組み合わせることで散乱光の除去を徹底することにより克服し、全スペクトル領域のPLEスペクトルを高精度に得る手法を確立した。さらに、スペクトルの誤差見積もりと線形性の確認も行った。

第3章では、線形応答領域で測定されたPL・PLEスペクトルとKS関係式に基づき、光励起キャリア分布の評価と解析を行った結果を示した。KS関係式とは、均一な熱平衡系 (温度 T) の発光 $I(\hbar\omega)$ と吸収 $A(\hbar\omega)$ の線形光学スペクトルの間に成り立つ一般関係式であり、次式で与えられる。

$$\ln\left(\frac{I(\hbar\omega)}{\omega^2 A(\hbar\omega)}\right) = -\hbar\omega/k_B T + C \quad (1)$$

測定で得られたPLとPLEスペクトルから導出される関数 $F(\hbar\omega) \equiv \ln\left(\frac{PL(\hbar\omega)}{\omega^2 PLE(\hbar\omega)}\right)$ をプロットし、KS関係式との一致ないしずれを調べることで、キャリア分布状態を定量化・可視化することができる。スペクトル関数 F は、以下でみるように、その直線性を見ることにより準熱平衡・非平衡を判別できるという明確さ・簡便さを持っている。さらに式(1)の右辺がBoltzmann因子の指数部分と同形であることから分かるように、分布関数 (占有率) に相当する物理的意味も持っている。

第3章の前半では、共鳴励起・非共鳴励起の2つの代表的な励起条件下でのキャリア分布の評価結果を示した。図1(a)に、7-53Kの4つの異なる環境温度 T_{env} で測定された PL (赤) と PLE (青) スペクトルを示した。PL スペクトルは共鳴励起を行った場合の測定結果で、その励起光エネルギーを▼印で示した。PLE スペクトルには、27モノレイヤー (ML) と26MLの井戸幅に対応する1s励起子ピーク (X) と、連続状態 (Cont) のステップ構造がみられる。それぞれの環境温度の PL と PLE スペクトルから関数 F を導出した結果が、図1(a)中の黒線 (エラーバー付き) である。関数 F は、励起光と同じエネルギーをもつデータ点を除き、全エネルギー領域で直線となった。KS関係式と比較するため、

関数 F に対し、 T^* と C をパラメータとする次式を用いたフィッティングを行った（緑破線）。

$$F(\hbar\omega) = -\hbar\omega/k_B T^* + C \quad (2)$$

図中の関数 F の下側に、傾きから導出される温度 T^* を示した。図 2 で詳しく説明するが、 T^* は環境温度 T_{env} より若干高いものの良い一致を示した。この結果から、共鳴励起条件では、光励起キャリアは全エネルギー領域で準熱平衡分布を形成しており、その温度は環境温度よりも若干高いがほぼ一致していると解釈できることが示された。非ドープ量子井戸の発光と吸収の線形スペクトルの間に、全エネルギー領域で熱平衡関係式(2)が成り立つことが実験的に確認されたのは今回が初めてである。

一方、非共鳴励起を行った場合には注目すべき変化が関数 F に現れた。図1(b)に、非共鳴励起を行った場合の PL スペクトル（赤）、PLE スペクトル（青）、関数 F （黒）を示した。関数 F には、1s 励起子と連続状態の 2 つのエネルギー領域の境界で、ステップ状の段差が生じている。その大きさ Δ は環境温度が低いほど増加している。しかしその一方で、2 つの領域の内部では F の直線性が保たれており、かつ 2 つの領域内の関数 F の傾きはほぼ一致した。この特徴的な関数 F の形状は、1s 励起子と連続状態の 2 つの部分系の間には非平衡分布が発生しているが、2 つの部分系の内部ではそれぞれ準熱平衡分布が保たれていると解釈できる。共鳴・非共鳴という励起条件によって、2 つの部分系間の非平衡 Δ の有無が変化することは、本研究によって初めて確認された。

図2は、関数 F を特徴づける 2 つのパラメータ (a) Δ と (b) $T^* - T_{\text{env}}$ の環境温度依存性を示したものである。図2(b)より、環境温度が低いほど $T^* - T_{\text{env}}$ は増加しているが、その値は共鳴励起の場合 4-5K 以下に収まった（●印）。非共鳴励起条件（○印）では共鳴励起条件（●印）よりも増加したが、その差は 3-4K 程度に留まる小さいものだった。一方、図2(a)より、非共鳴励起条件で観測された非平衡 Δ は温度低下に伴い急増している。 $\exp(\Delta)$ は、連続状態（1s 励起子）の占有率が、キャリア全体が準平衡分布を形成している場合に比べて何倍（何分の一）になっているかを示す指標となっていることを示すことができ、図2(a)の右軸に対応する目盛を示した。7K で観測された $\Delta = 5.8$ は、 $\exp(5.8) = 330$ 倍に相当し、2 つの部分系間に生じた非平衡の度合いが非常に大きいことが分かった。

第 3 章の中間部分では、 Δ の大きさを決めている要因を特定するため、基底状態(0)・1s 励起子状態(1)・連続状態(2)からなる 3 準位モデルに基づく解析を行なった。その結果、非共鳴励起条件での Δ の値は、励起子再結合レート γ_{10} と励起子イオン化レート γ_{12} で次式を通して決まることが分

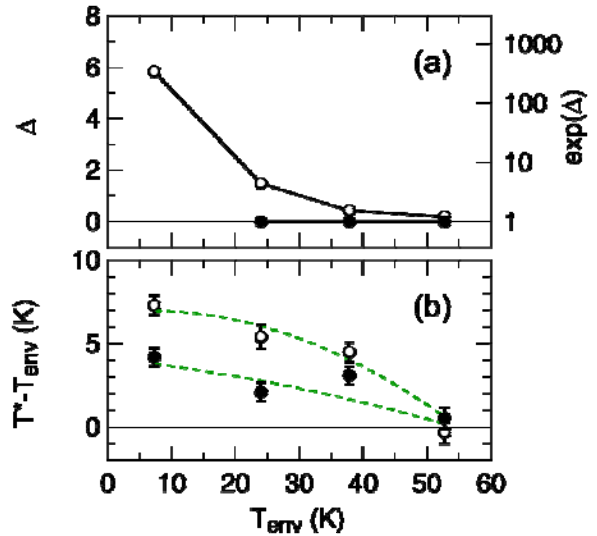


図 2 (a) Δ と (b) $T^* - T_{\text{env}}$ の環境温度 (T_{env}) 依存性。黒丸 (●) と白丸 (○) 印はそれぞれ共鳴励起条件と非共鳴励起条件の結果を示している。緑破線はアイガイドである。

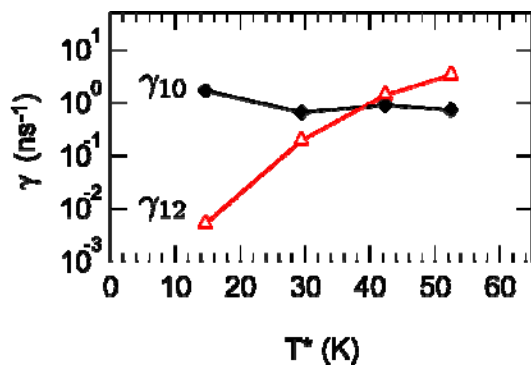


図 3 実験結果から見積もられた励起子再結合レート γ_{10} と、励起子イオン化レート γ_{12} 。

かった。

$$\Delta = \ln(1 + \gamma_{10} / \gamma_{12}) \quad (3)$$

図3は、測定結果から見積もられた γ_{10} 、 γ_{12} の値である。 γ_{10} は温度変化が小さいのに対し、 γ_{12} は大幅な温度変化を示していることから、図2(a)にみられた Δ の大幅な温度変化は、 γ_{12} のそれに起因するものであると特定できた。

第3章の後半では、キャリア分布が励起光エネルギー E_{exc} によってどのように決まるかを系統的に解明するため、 T^* と Δ の E_{exc} 依存性を測定した結果を示した。 Δ は、 E_{exc} が 1s 励起子を励起する領域にある場合 0、連続状態を励起する領域にある場合一定値をとることがわかった。一方 T^* は、 E_{exc} が 1s 励起子を励起する領域にある場合上昇し、連続状態を励起する領域にある場合一定値となった。この結果により、 E_{exc} とキャリア分布の関係が系統的に明らかにされた。光励起で生成されるキャリア形態が励起子であるか連続状態の電子正孔対であるかの違いにより、フォノン系への余剰エネルギーの受け渡し効率が異なることを示唆する興味深い結果となっている。

第4章では、キャリア分布評価を行う過程で確認された PLE スペクトル形状の温度変化の大きさと原因を調べるため、様々な環境温度で PLE スペクトルを調べた結果を示した。励起子準位に対して共鳴励起を行った際に散乱光が急激に増加する現象である RRS 過程と関係があると推測し、PLE スペクトルとともに RRS スペクトルの測定も行い比較した。

図4は、異なる3つの環境温度 (4.6 K、9.0 K、19.2 K) で測定した (a) PLE スペクトルと (b) RRS スペクトルである。温度低下に伴い、27ML の励起子 PLE ピークが大幅に減少していることが確認された (図4(a))。反対に、27ML の励起子の RRS (//) ピーク強度は急激に増加している (図4(b))。PLE と RRS の強度変化は全く同じエネルギー領域で生じており、RRS が強い場合、PLE 強度 (すなわち PL 強度) が減少するという関係があることを示している。より広い温度範囲で測定を行った結果、このような PLE と RRS 強度の相関した温度変化は、30 K 以下の低温領域で顕著となり、PLE ピークの減少量は 4 K で 50% にも及ぶことが分かった。RRS 強度が低温で増加したことは、励起子基底状態の分極緩和時間が低温で長くなったことを示しているが、それによって PLE、すなわち PL 強度が抑制されることは、本研究によりはじめて実験的に示された。30 K 以下の温度領域では RRS 過程との競合によって PLE スペクトルが吸収スペクトル形状からずれることに留意する必要がある。第3章では、関数 F のエラーバーにこの影響を含めることによって考慮した。

最後に第5章で、本研究で得た知見をまとめ、その意義と今後の課題を記した。

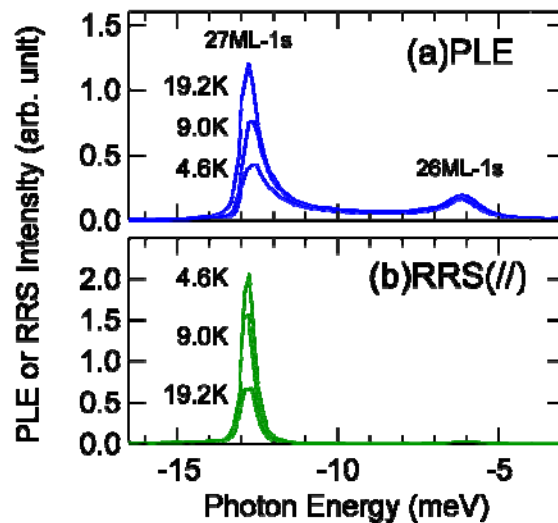


図4 異なる環境温度で測定された(a)PLE と (b)RRS(//)スペクトル。