

Title	MBE低温成長GaAs構造における光励起キャリア捕獲過程の研究
Author(s)	荒谷, 毅
Citation	
Issue Date	2005-06
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2191
Rights	
Description	Supervisor:大塚 信雄, 材料科学研究科, 博士

MBE 低温成長 GaAs 構造における光励起キャリア緩和過程の研究

大塚研究室 140002 荒谷 毅

背景

MBE 低温成長 GaAs(LT-GaAs)薄膜とは、通常の基板温度(600 程度)より低い 400 以下の温度で成長した薄膜で、良質な結晶性を有したまま As を 1%程度過剰に含む。この過剰 As は点欠陥として結晶中に高濃度に存在することにより、LT-GaAs 薄膜は 1 ピコ秒以下の非常に短い光励起キャリアの寿命、高電子移動度や高抵抗などの特異な性質を示すことが報告されている。特に光励起キャリアの寿命が非常に短いことを利用した、光伝導スイッチやテラヘルツ波検出器などへの応用に向けた研究がこの十年盛んに行われてきた。

過剰 As による点欠陥としては主に、アンチサイト As(As_{Ga})と Ga 空孔(V_{Ga})が挙げられる。 As_{Ga} は過剰 As 点欠陥の大部分を占め、理論的にはダブルドナーであり、電気的性質がバルク GaAs における電子の捕獲サイトとして知られる EL2 点欠陥に酷似しており、そのエネルギー準位は伝導帯端から 0.8eV 程の深い準位であると報告されている。 V_{Ga} は理論的にはトリプリアクセプターであり、その準位が荷電子帯端から 0.3eV の高さであり、その濃度は As_{Ga} の数%程度であると報告されている。

1980 年代後半以降のポンププローブ法を用いた LT-GaAs 薄膜の光励起キャリアの捕獲過程に関する多くの研究から、光励起された電子と正孔はそれぞれ、一価にイオン化したアンチサイト $As(As_{Ga}^+)$ 、 As_{Ga} に捕獲され、LT-GaAs 薄膜における光励起キャリアの高速捕獲現象の原因が As_{Ga}^+ による電子の捕獲であることが分かっている。ところが、これまでの研究の多くは光励起キャリアの寿命を短くすることに主眼が置かれてきた。これらの多くの研究にもかかわらず、LT-GaAs 薄膜内部での光励起キャリア捕獲のミクロな過程、例えば過剰 As 点欠陥の濃度や LT-GaAs を含んだ試料の構造にキャリア寿命がどのように依存するかという点は明らかにされてこなかった。そのため、元々 Si など間接遷移型半導体中の遅いキャリア緩和過程について作られた Shockley-Read-Hall (SRH)統計モデル^[1]が LT-GaAs のキャリア寿命の解析に用いられてきた。

目的

そこで本論文では LT-GaAs 薄膜の高速な光励起キャリアのミクロな捕獲課程を明らかにすることを目的として研究を行い、以下の 2 つの研究結果について報告する。

まず、過剰 As 濃度を系統的に変化させた MBE 低温成長 GaAs/AlAs 多重量子井戸構造を作成しフォトルミネッセンス、光吸収、フェムト秒レーザーを用いたポンプ・プローブ過渡透過率測定を行い、光励起キャリアの捕獲時間と過剰 As 濃度との関係を調べた。成長条件から実験的に求めた過剰 As 濃度と過渡吸収プロファイルからフィッティングにより求めた緩和時間との関係を調べた。

次に、GaAs/ $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ 単一量子井戸構造に高濃度過剰 As を含む LT-GaAs 薄膜を空間的に制御して導入した試料を作成しフォトルミネッセンス測定を行い、光励起キャリアの空間的な捕獲過程について調べた。

実験及び結果

1) MBE 低温成長 GaAs/AlAs 多重量子井戸構造における光励起キャリアの捕獲過程(学位論文 3 章)

過剰 As 濃度の異なる 5 つの MBE 低温成長 GaAs/AlAs 多重量子井戸構造(LT1 ~ 5)と通常の条件で成長した HT の計 6 個の試料を作成した。多重量子井戸構造は 50 周期成長の 6.2nm の GaAs 量子井戸層と 3.1nm の AlAs 量子障壁層からなる。LT1 ~ 5 の量子井戸層に含まれる As_{Ga} 濃度と As_{Ga}^+ 濃度は、以前本研究グループにより報告された LT-GaAs 薄膜の成長条件と As_{Ga} 濃度との関係^[2]と Luysberg らにより報告された As_{Ga} 濃度と As_{Ga}^+ 濃度の関係^[3]を用いて求めた。これにより As_{Ga}^+ 濃度は、最も低い LT1 の $7.4 \times 10^{16}(\text{cm}^{-3})$ から最も多い LT5 の $1.54 \times 10^{18}(\text{cm}^{-3})$ となった。これらの試料について PL 測定、光吸収測定、過剰 As 濃度による光学特性の変化について調べた。そして、各資料の吸収スペクトル上から数ヶ所の波長について、ポンププローブ測定を行った。

Fig.1 に、例として LT1 の微分透過率(DTS)の時間変化と吸収スペクトルを示す。795nm 付近の light hole 励起子(lh)ピークで DTS が最大となり、810nm 付近の heavy hole 励起子(hh)ピークより長波長側では負の DTS が得られた。以前、通常条件で作成した GaAs/AlGaAs 多重量子井戸構造に関するピコ秒パルスレーザーを用いた DTS の波長依存性に関する研究^[4]から、Phase space filling 効果や screening 効果により HH と LH で極大となることが報告されている。そこで、LH ピーク近傍の DTS が電子の捕獲過程のみを反映しているものとみなした。

全試料の lh ピーク近傍の波長における DTS profile を Fig.2 に示す。このように過剰 As 濃度が LT1 から 5 へと増加するにつれて増加して行くことが確認できた。これらについて Double exponential fitting を行い、得られた 2 つの時定数の荷重平均を各試料の光励起電子の捕獲時間 $\langle\tau\rangle$ とした。

このようにして求めた捕獲時間の逆数である捕獲速度と As_{Ga}^+ 濃度の関係を Fig.3 に示す。比較的低濃度側の 3 点では、捕獲速度は As_{Ga}^+ 濃度に比例し、その比例定数が、中性子線照射されたバルク GaAs 薄膜の値^[5]とほぼ一致した。

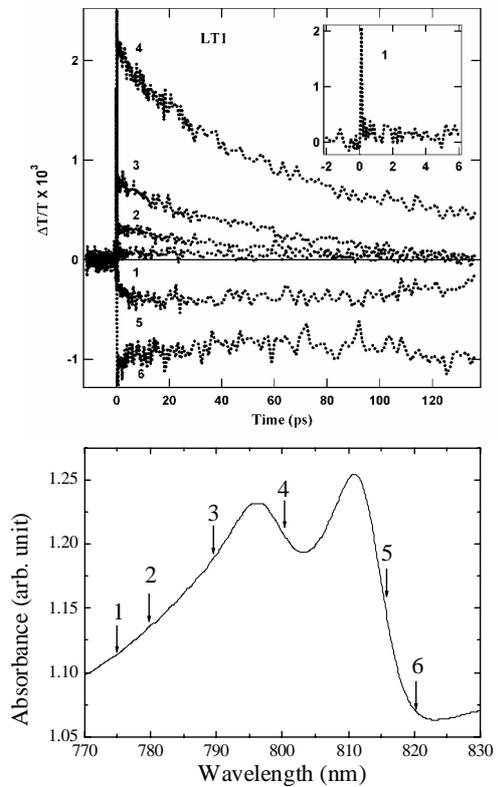


Fig.1 LT1 の DTS Profile(上)の測定波長依存性と室温での光吸収スペクトル(下)。DTS Profile 上の 1 ~ 6 は DTS 測定波長を示し、吸収スペクトル上の 1 ~ 6 に示す波長に対応する。

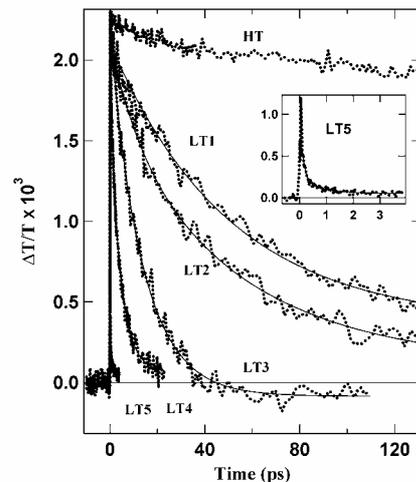


Fig.2 全試料 lh ピーク近傍における DTS Profile。

しかしながら、比較的高濃度の 2 点において、捕獲速度は濃度増加に対して急激に速くなることが確認できた。SRH モデルより導かれた直線関係とは異なる傾向が確認できたため、高濃度過剰 As が存在する場合には別な捕獲過程が起こっている可能性がある。そのため、次に光励起キャリアの空間的捕獲過程について調べた。

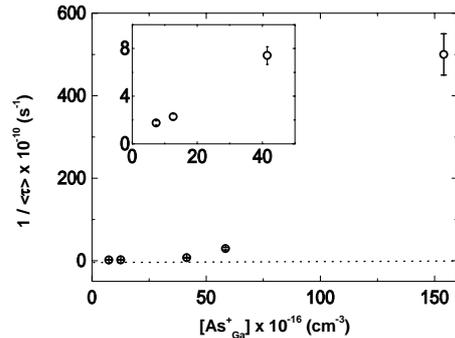


Fig.3 捕獲速度と AsGa+濃度の関係

2) MBE 低温成長 GaAs における光励起キャリアの空間的捕獲過程(学位論文 4 章)

通常の条件で成長した Al_{0.3}Ga_{0.7}As/GaAs 単一量子井戸構造に高濃度過剰 As を含む LT-GaAs 薄膜を選択的に配置した試料を作成し PL 測定を行い、量子井戸からの PL ピーク強度の試料構造の違いによる変化について調べた。

まず、Fig.4 に示すような、井戸層厚が 10nm で障壁層厚が 10nm、7.5nm、5nm と異なる単一量子井戸構造の片側に、それぞれ 50nm の LT-GaAs 薄膜(LT)と GaAs 薄膜(HT)を導入した計 6 個の試料を作成し、PL 測定を行った。障壁層厚毎の 4.5K での PL スペクトルを Fig.5 に示す。

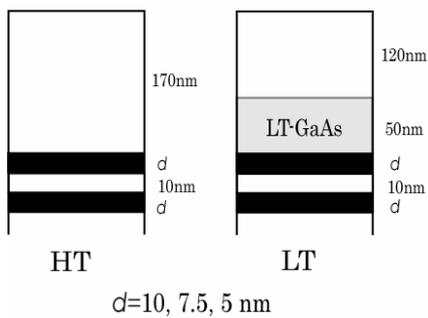


Fig.4 試料構造の概略図、黒が AlAs 薄膜、白が GaAs 薄膜を示す。

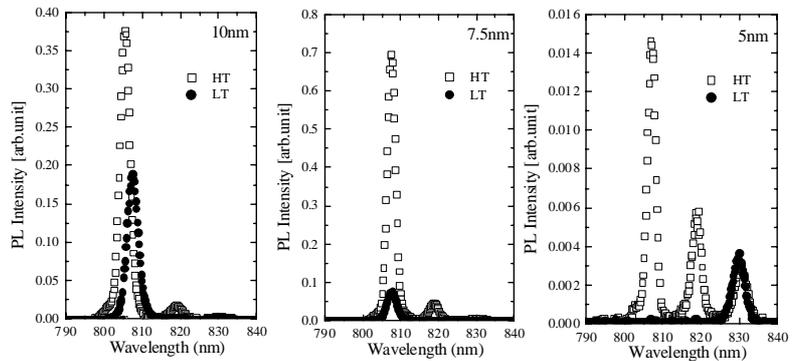


Fig.5 各障壁層厚の HT と LT 試料の 4.5K での PL スペクトル

808nm 付近の単一量子井戸構造に起因する PL ピークについて、LT の HT に対する相対強度が 10nm の障壁層厚では 1/2、7.5nm では 1/10、5nm では 1/100 以下になった。この LT による相対強度の減少が障壁層厚に依存することから、量子井戸のトンネル過程に強く影響を受けることが確認できた。

次に障壁層厚を 10nm と一定にして、量子井戸構造と LT-GaAs 薄膜の間に 30nm、60nm、120nm の spacer 層を導入した試料を作成し、PL 測定を行った。4.5K での結果を Fig.6 に示す。30nm の試料が最も PL 強度が弱く、60nm と 120nm の試料ではピーク強度に大きな違いがなかった。Fig.5 の障壁層厚による PL 強度の変化に比べ、spacer 層の導入による PL 強度の変化は十分小さいことが確認できた。そのため、PL 強度は古典的粒子の拡散より、波動関数の量子障壁層からの染みだしによる効果の影響を強く受けることが確認できた。従って本研究結果は、高濃度過剰 As が含

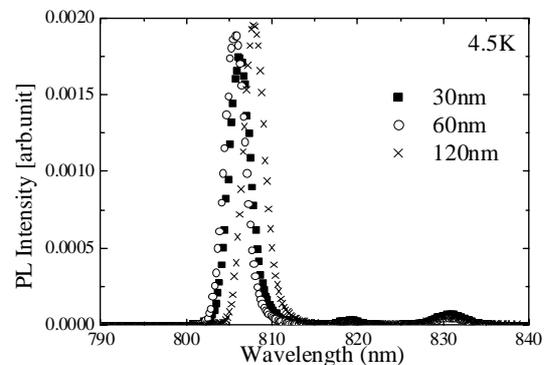


Fig.6 PL 強度の spacer 層厚依存性

まれる LT-GaAs 薄膜における光励起キャリアの捕獲過程について、光励起キャリアの波動関数の十分内側に捕獲サイトとなる過剰 As 点欠陥が存在する場合には直ちに捕獲されることを示唆している。すなわち、LT-GaAs での光励起キャリアの超高速緩和過程の本質的な理解において、これまでの古典粒子としての取り扱いではなく量子力学的な取り扱いが必要であることを示した。

参考文献

- [1] W. Shockley and W. T. Read, Phys. Rev. **87**, 835 (1952).
- [2] A. Suda and N. Otsuka, Surf. Sci. **458**, 162 (2000).
- [3] M. Luysberg, H. Sohn, A. Prasad, P. Specht, Z. Liliental-Weber, E. R. Weber, J. Gebauer and R. Krause-Rehberg, J. Appl. Phys. **83**, 561 (1998).
- [4] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, D. J. Eilenberger, P. W. Smith, A. C. Gossard and W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett. **42**, 925 (1983).
- [5] J. Krüger, Y. C. Shih, L. Xiao, C. L. Wang, J. D. Morse, M. Rogalla, K. Runge and E. R. Weber, *Proceedings of the IEEE-SIMC-9*, 1996, p 345.

論文目次

第1章	序論	... 1
第2章	MBE 低温成長 GaAs 薄膜の光学的性質に関するこれまでの研究の概観	... 7
第3章	MBE 低温成長 GaAs/AlAs 多重量子井戸構造における光励起キャリアの緩和過程	...40
第4章	LT-GaAs 薄膜を有する構造における光励起キャリアの緩和過程	...72
第5章	総括	...91

業績

- [1] T. Obata, S. Fukushima, T. Araya and N. Otsuka
 “Photoluminescence of nearly stoichiometric LT-GaAs and LT-GaAs /AlAs MQW”
 Journal of Crystal Growth **227-228**, 112-116 (2001)
- [2] M. C. Rath, T. Araya, S. Kumazaki, K. Yoshihara and N.Otsuka
 “Relaxation processes of photoexcited carriers in GaAs / AlAs multiple quantum well structures grown by molecular beam epitaxy at low temperatures”
 Journal of Applied Physics **94**, 3173-3180 (2003)
- [3] T. Araya, N. Katou and N. Otsuka
 “Relaxation process of photo-excited carriers in a GaAs structure with a low-temperature-grown layer”
 Journal of Applied Physics, submitted.