

TR-O-0110

29

In系超格子におけるワニエシュタルク
局在効果とその応用

富永 浩司 細田 誠

1996. 3. 7

ATR光電波通信研究所

In系超格子におけるワニエシュタルク局在効果とその応用

富永浩司 細田誠

概要

これまでATRではGaAs基板上のGaAs/AlAs超格子を利用したワニエシタルク型SEEDの研究を進めてきたが、動作波長に制約があるため透過型素子を作製するのにGaAs基板を除去する必要があったため、素子の小型化、高速化に問題があった。また、近年盛んに研究が行われている歪み超格子の導入は素子特性に新たな可能性を切り開く手段として期待されているがこれまで歪み超格子におけるワニエシタルク局在効果についてはあまり調べられていなかった。

本報告ではIn材料の導入により達成した動作波長の長波長化や歪み効果の利用について報告する。

目次

第1章 序論	1
1-1 はじめに	1
1-2 ワニエシユタルク局在効果	1
第2章 InGaAs/InAlAs 無歪み超格子	5
2-1 はじめに	5
2-2 素子構造	5
2-3 光学特性	7
2-4 まとめ	10
第3章 GaAs/InAlAs 系歪み超格子	14
3-1 はじめに	14
3-2 素子の構造および作製	15
3-3 素子特性	15
3-3-1 X線による評価	15
3-3-2 光電流測定	18
3-3-3 障壁層中のInの影響	25
3-4 まとめ	29
第4章 疑似基板上に作製した歪み超格子	31
4-1 はじめに	31
4-2 素子構造	31
4-3 素子特性	33
4-3-1 X線回折	33
4-3-2 PL特性	35
4-3-3 光電流特性	35
4-4 まとめ	38
第5章 まとめ	39
謝辞	40
参考文献	41

第1章 序論

1-1 はじめに

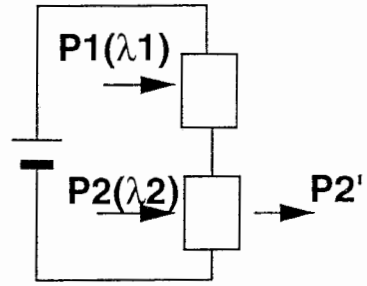
半導体多重量子井戸 (MQW: Multi-Quantum-Well) における量子閉じ込めシュタルク効果¹⁾ (QCSE: Quantum Confined Stark effect) や、半導体超格子 (SL: Superlattice) におけるワニエシュタルク局在効果²⁾ (Wannier-Stark localization effect) 等の非線形電気光学効果を用いた光変調器は、小消費電力、高感度、高集積化が容易等の理由から、近年非常に注目を集めており様々な研究が行われている。中でも、Bar-Joseph³⁾ や Schneider⁴⁾ 等により研究が着手されたワニエシュタルク局在効果を利用した自己電気光学効果素子 (SEED: Self-electro-optic effect device) は、様々な機能を簡単に実現できるため有望である。これまでATRでは主としてGaAs/AlAs超格子におけるワニエシュタルク局在効果について研究を重ね、その基礎物理を解明すると共に多機能性の実証 (図1-1) を行い、ワニエシュタルク型SEEDが次世代光素子の実現にとって極めて有用であることを示してきた。

一方、近年、歪みの効果の利用による素子特性の改善を目指して、各種超格子系への歪みの導入が盛んに行われており、半導体レーザの低しきい値化、偏波無依存性光変調器への応用等が研究されている。しかし、GaAs基板上のワニエシュタルク型SEEDへの歪みの導入は臨界膜厚等の問題からこれまで積極的に行われていない。

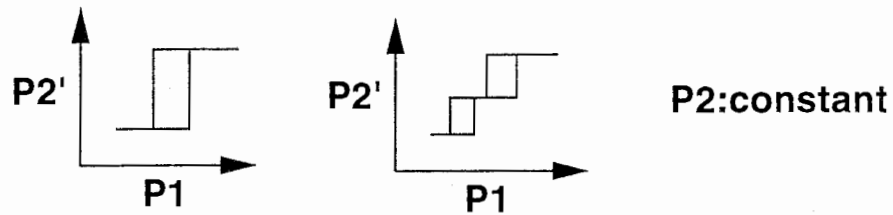
本研究では、In材料を導入した超格子におけるワニエシュタルク局在効果とその応用に関して調べた結果について報告する。

1-2 ワニエシュタルク局在効果

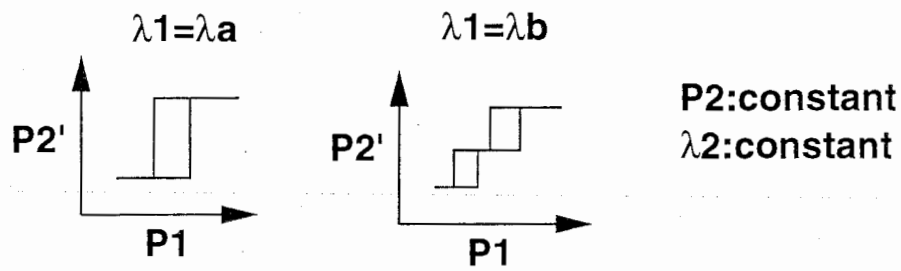
次章以下の理解を容易にするため図1-2にワニエシュタルク局在効果について示す。ワニエシュタルク局在効果は半導体超格子における電気光学的非線形効果の一つで、障壁層が薄く井戸層間の結合が比較的強い超格子において観測される。電界が弱いときは波動関数が薄い障壁層を通して超格子いっぱいになり広がりミニバンドを形成するため、光吸収はミニバンド端で起こり図の実線で示されるように明確なピーク構造を有しない吸収特性を示す。これに電界を印加すると超格子中に広がっていた波動関数が本来の井戸層中に局在化するため光吸収はこの量子準位で起こるようになり図の点線のように励起子吸収による明確なピーク構造を有する吸収特性に変化する。この時、吸収端が短波長側にずれる (ブルーシフトする) ためあらかじめ素子への入射波長をこの領域に設定し



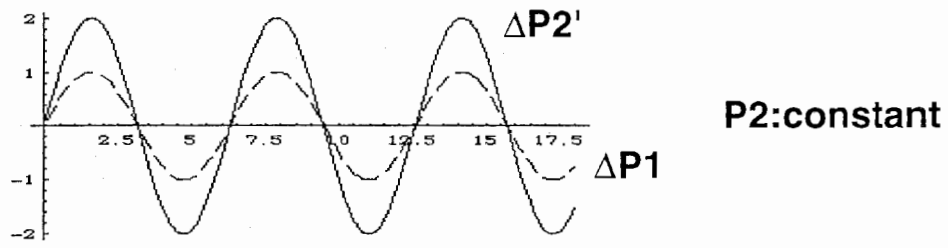
Bistability and multi-stability



Bistable or tristable selectivity by the operating wavelength



Proposal of optical gain using WSL-type SEED



Optical differentiator using WSL-type SEED

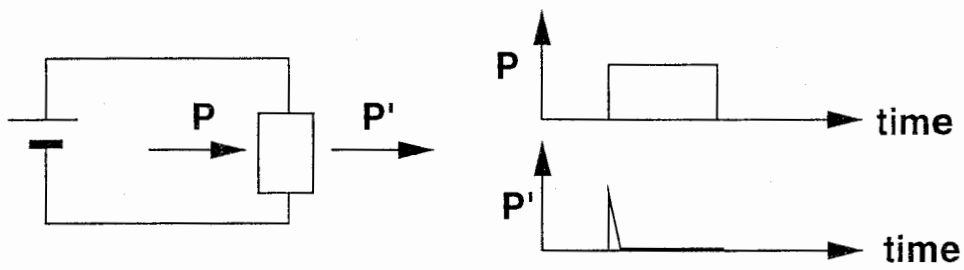
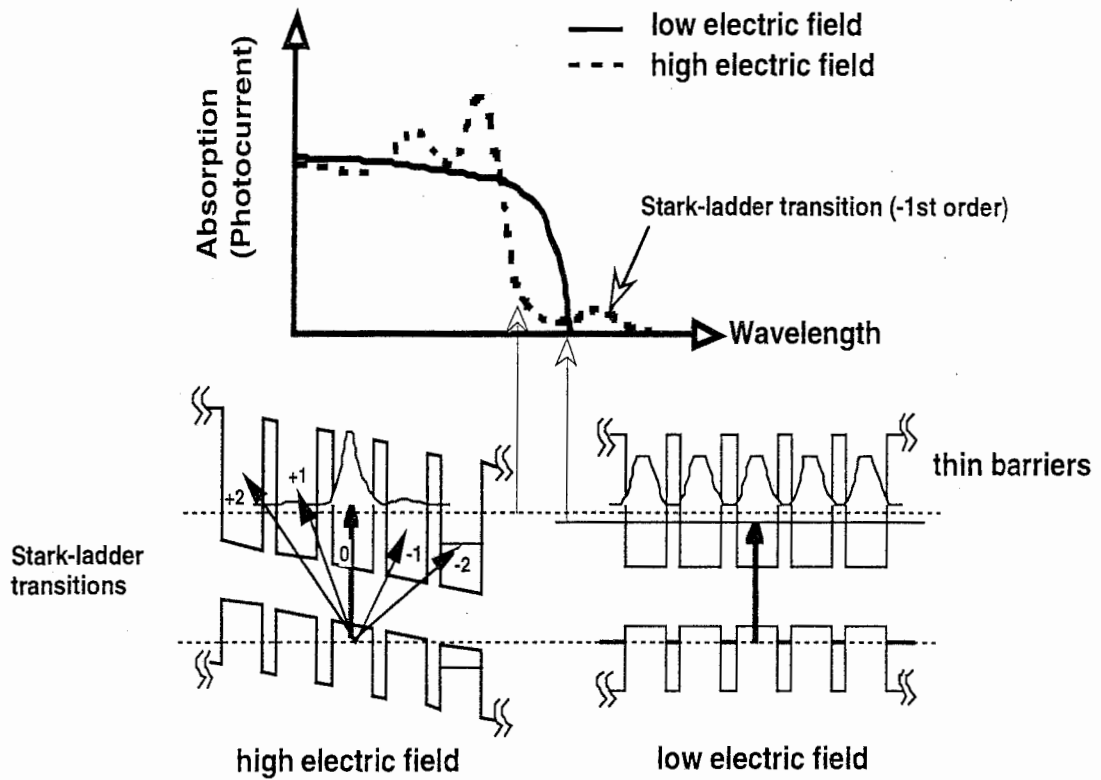


図1-1 ワニエシュタルク型 SEED の多機能性

Wannier-Stark localization effect



Wannier-Stark localization type self-electro-optic effect devices (→ WSL type SEEDs)

high speed switching ⇐ thin barriers
 many peaks in i-v characteristics
 (many negative resistance regions) ⇐ Stark-ladder transitions

図 1-2 ワニエシュタルク局在効果

ておけば負性抵抗特性が得られ、光変調器、光スイッチング素子への応用が可能となる。
QCSE 型の光素子が吸収端のレッドシフトを利用しているのとは対照的である。

ワニエシュタルク型 SEED は、

(1) 薄い障壁層を通してしみだした波動関数に基づくシュタルク階段遷移による吸収が存在するため、その光電流電圧特性が多峰になり様々な機能を容易に実現できる。

(2) 障壁層の厚さが QCSE 型の超格子に比べて薄いため超格子中のキャリア輸送が早く高速動作に有利であると期待できる。

等の特徴を有しており内外で精力的な研究が進められている。

第2章 InGaAs/InAlAs 無歪み超格子

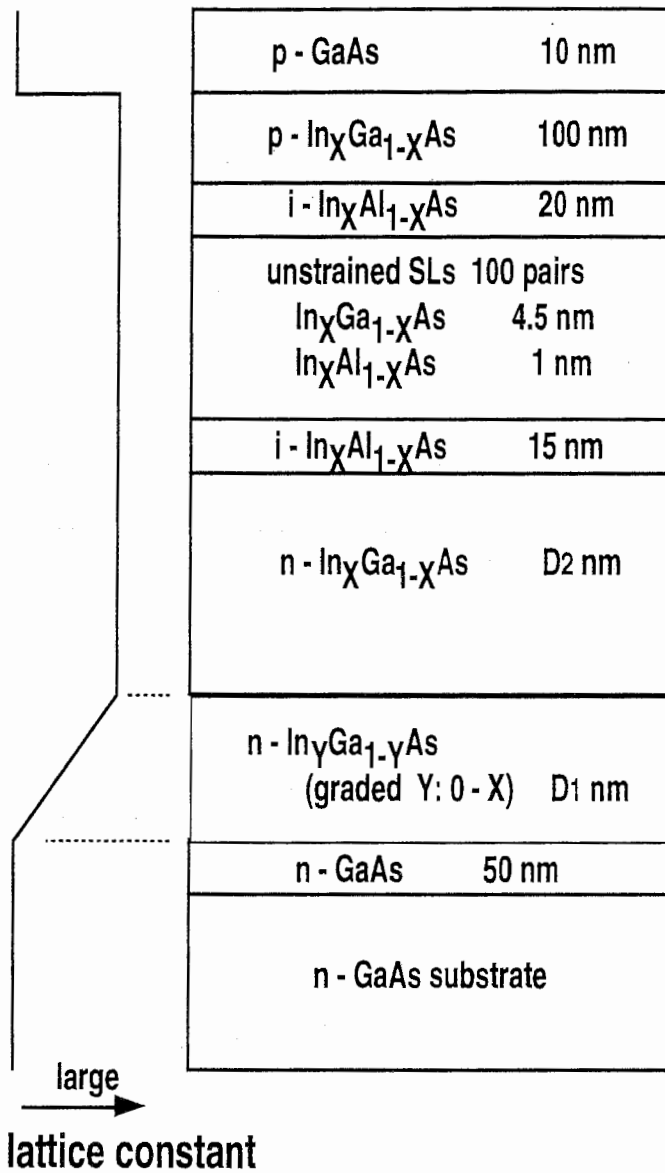
2-1 はじめに

これまでGaAs基板上に作製した超格子におけるワニエシュタルク局在効果およびそれを応用した光素子について多くの研究が成されてきたが、これらは超格子としてGaAs基板に格子整合したGaAs/AlAs超格子あるいはGaAs/AlGaAs超格子を用いてきた。しかし、この格子整合の制約によりその動作波長はGaAs基板の吸収端波長より短波長にすることができず、従ってこれらの光素子アレイを多段接続した並列処理システムの実現に必要な透過型素子の作製には基板による吸収から逃れるために光路上のGaAs基板をエッチング等により除去する必要がある。しかしこのエッチング工程は素子の小型化を妨げる要因となり高集積化に不利な上、素子のCR時定数を小さくして応答速度の高速化を図る上でも問題となる。また近年、高出力、高品質光源としての評価が高まっているNd:YAGレーザやInGaAs系半導体レーザ等はその発振波長がGaAs基板の吸収波長より長い従って従来の格子整合系超格子ではこれらの光源を利用することができなかった。動作波長の長波長化の手段の一つとしてInGaAs/GaAs系超格子の採用があり、QCSE型の光変調器では1 μ m帯でのスイッチング動作が実現されている。しかし、ワニエシュタルク型の超格子は障壁層が井戸層に比べて比較的薄いためGaAs/InGaAs超格子を採用した場合厚い井戸層に歪みが蓄積してしまい臨界膜厚の問題から良好なワニエシュタルク局在効果を得ることが難しかった。

そこで本章ではGaAs上のInGaAs疑似基板上に作製したInGaAs/InAlAs無歪み超格子の採用により実現できたGaAs基板上ワニエシュタルク型SEEDの長波長化について述べる。

2-2 素子構造

図2-1に採用した素子の構造を示す。MBE装置によりまずn-GaAs基板上に薄くGaAsバッファ層を積んだ後、In組成Yを0からXまで1%/10nmで変化させたIn組成グレーデッド $\text{In}_Y\text{Ga}_{1-Y}\text{As}$ バッファ層と歪みが緩和した十分に厚い $\text{In}_X\text{Ga}_{1-X}\text{As}$ バッファ層を続けて成長して疑似基板とする。これにより基本となる格子定数は本来のGaAsの格子定数から $\text{In}_X\text{Ga}_{1-X}\text{As}$ の格子定数に変わる。この疑似基板上に $\text{In}_X\text{Ga}_{1-X}\text{As}/\text{In}_X\text{Al}_{1-X}\text{As}$ 超格子を成長するわけであるが井戸層、障壁層ともIn組成を疑似基板のIn組成に合わせているため超格子中には歪みは存在せず臨界膜厚の問題から解放され、任意の膜厚の井戸層、障壁



MBE growth at 540 °C

	SL1	SL2	SL3
X	0.12	0.17	0.30
D1	200	200	1270
D2	800	800	50

400 X 400 μm^2

图 2 - 1 素子構造

層を任意の周期だけ成長する事が可能となる。SL1、SL2、SL3の3つの素子を用意し各In組成および疑似基板の膜厚を図2-1中の表のように設定した。素子をX線で評価したところ良好な周期性を示した。また、AFM (Atomic force microscopy) による表面モフォロジーの観察ではメインリッジが(01 $\bar{1}$)方向に沿ったクロスハッチ模様が観測された。

2-3 光学特性

図2-2に素子SL2 (In組成0.17)の室温における光電流特性を示す。上のグラフは同時に測定した透過光強度を示す。電界は1.5Vのbuilt-in電圧を仮定して計算している。光電流特性において、低電界時には明確なピークのないミニバンド状の吸収特性を示し、電界を強くするにつれて局在化した励起子による吸収ピークを示すと同時にその長波長側に電界印加とともに長波長側にシフトしていく-1次のシュタルク階段遷移による吸収が観測されている。これらは、ワニエシュタルク局在効果の特徴でありGaAs基板と約1.2%の格子不整合がある疑似基板上の超格子であるにもかかわらず明確なワニエシュタルク局在効果が観測されていることが確認できた。ブルーシフトが生じている波長帯は従来のGaAs基板に格子整合した超格子系では実現できなかった約930nmでGaAs基板の吸収端より長波長である。従って基板の除去をしなくてもブルーシフトする波長領域での透過光測定が可能である。図2-2の透過光強度は基板除去を行わずに測定した特性であるが、吸収に相当する光電流特性を丁度上下逆にしたような特性が得られており透過型素子の実現できているのがわかる。

図2-3に素子SL2の室温における光電流電圧特性(i-v特性)を示す。広い照射波長範囲において負性抵抗特性が得られているのがわかる。照射波長932nm時には電界の印加により光電流が約2分の1に変化する負性抵抗領域が得られており、GaAs/AlAs超格子に比べて遜色のない特性である。照射波長938nm時には印加している逆バイアスが2V付近と5V付近の2カ所で負性抵抗特性が得られているが低電圧側は-2次、高電圧側は-1次のシュタルク階段遷移によるもので、これらの複数の負性抵抗領域を利用することによりGaAs/AlAs超格子を用いて示された様々な多機能性をGaAs基板を透過する波長領域においても実現できることを示している。本素子では最大2つの負性抵抗領域しか得られていないがこれは周期が5.5nmと比較的大きいためである。多くの負性抵抗領域は高次のシュタルク階段遷移に起因しており、従ってワニエシュタルク局在準位の量子コヒーレンスが良好である必要がある。⁵⁾ 本素子では疑似基板に格子整合している限り井戸幅、

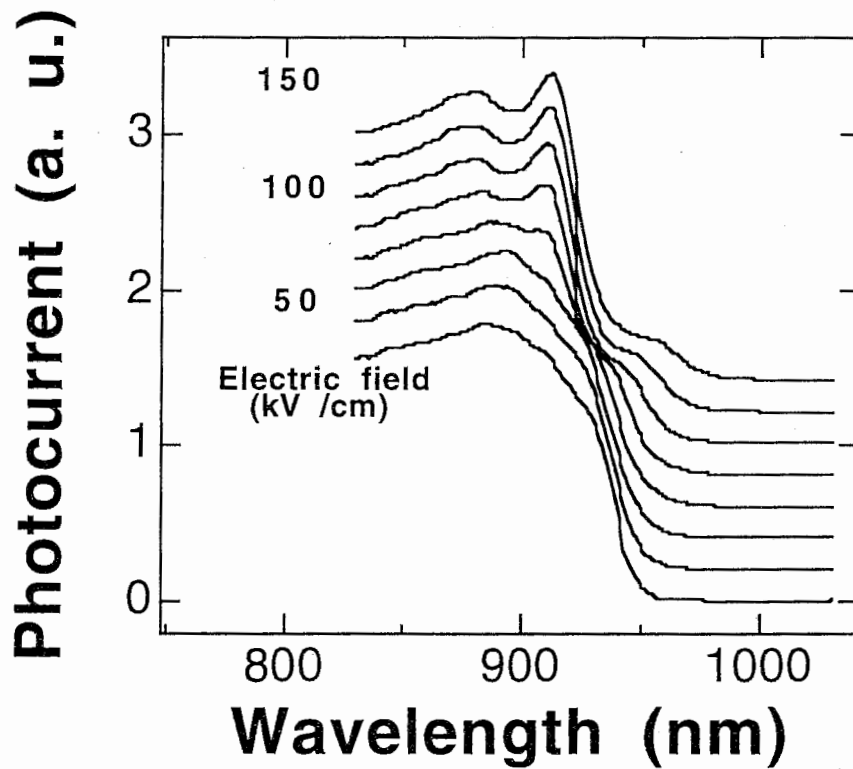
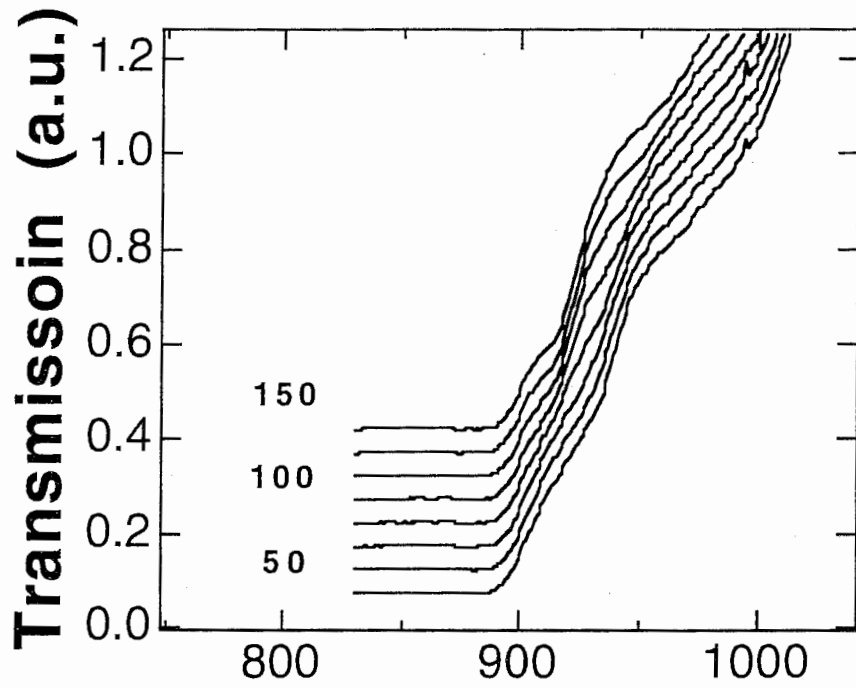


図 2 - 2 素子 SL2 (In 組成 0.12) の光電流および透過光強度特性

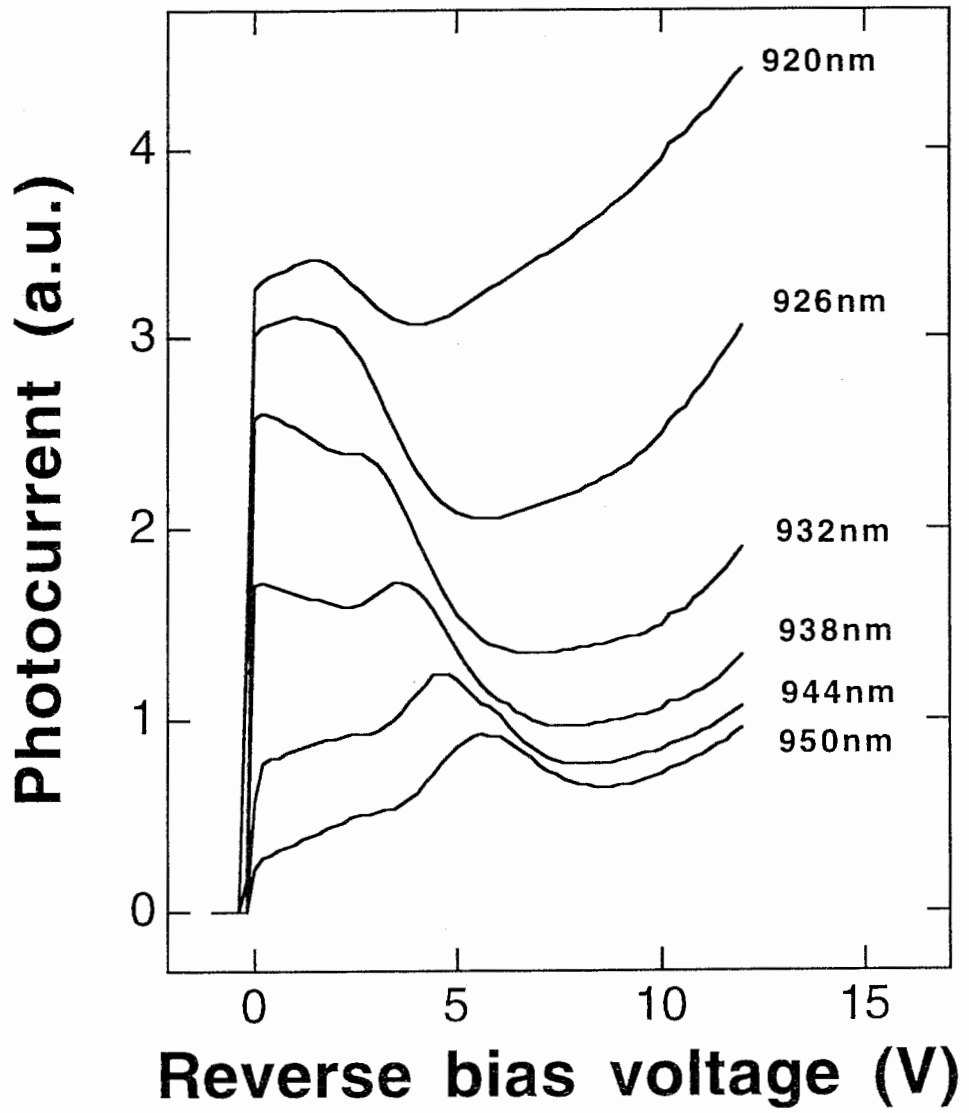


図2-3 素子 SL2 (In 組成 0.17) の光電流 - 電圧特性

障壁層の厚さを任意に設定できるので周期を小さくすることで、より多くの負性抵抗領域の利用が可能である。

図2-4に各素子の室温における光電流特性を示す。点線は逆バイアスが0Vでほぼフラットバンドに近い条件、実線は逆バイアスが6Vで波動関数が各井戸層に局在化した条件での特性である。全ての素子においてワニエシュタルク局在効果による吸収端のブルーシフトが観測されており、InGaAs疑似基板上の無歪み超格子が実用上問題ないことがわかる。In組成の増大と共に吸収端は長波長側にシフトしておりIn組成が0.3の素子SL3では $1\mu\text{m}$ をこえる波長帯での負性抵抗が実現できている。また、吸収端のブルーシフト量はSL1、SL2、SL3において26、30、33meVとなっておりIn組成を増やすにつれて減少しているが、これはバンドオフセットの減少に基づくもので理論計算結果とよく一致している。

図2-5に各素子の吸収端エネルギーの実験値と計算値を示した。実線および黒丸がミニバンド形成時の吸収端エネルギー、破線および白丸が局在化したe1-hh1遷移のエネルギーを表す。井戸層および障壁層の厚さは4.5nmおよび1nmとし、疑似基板上の超格子を無歪みと仮定し歪みの効果は計算に考慮していない。図より実験値と計算値により一致が得られている。図2-5によるとGaAs基板の除去を必要としない透過型ワニエシュタルク型SEEDはIn組成を0.14以上に設定すればよく、またIn組成約0.22でInGaAs半導体レーザに適した980nmの動作波長が得られることがわかる。さらにIn組成を0.3にすれば、丁度ブルーシフト領域にNd:YAGレーザの発振波長である $1.06\mu\text{m}$ を含むため、Nd:YAGレーザを光源としたワニエシュタルク型SEEDが実現できることがわかる。実際にNd:YAGレーザを光源にして素子SL3(In組成0.3)のSEED特性を調べたところ、電源電圧を7、8VとしたS-SEED構成で双安定動作を示した。

2-4 まとめ

GaAs基板上のInGaAs疑似基板上に成長したInGaAs/InAlAs無歪み超格子(In組成0.12、0.17、0.30の3素子)におけるワニエシュタルク局在効果について調べた結果、超格子部と基板の間の格子不整合にもかかわらず、全ての素子において明確なワニエシュタルク局在効果が観測された。In組成0.17の素子の動作波長は933nmでGaAs基板の吸収端波長よりも長く基板除去を必要としない透過型ワニエシュタルク型SEEDが実現できた。また、In組成0.3の素子は $1.06\mu\text{m}$ 領域でブルーシフトを示しNd:YAGレーザを光源

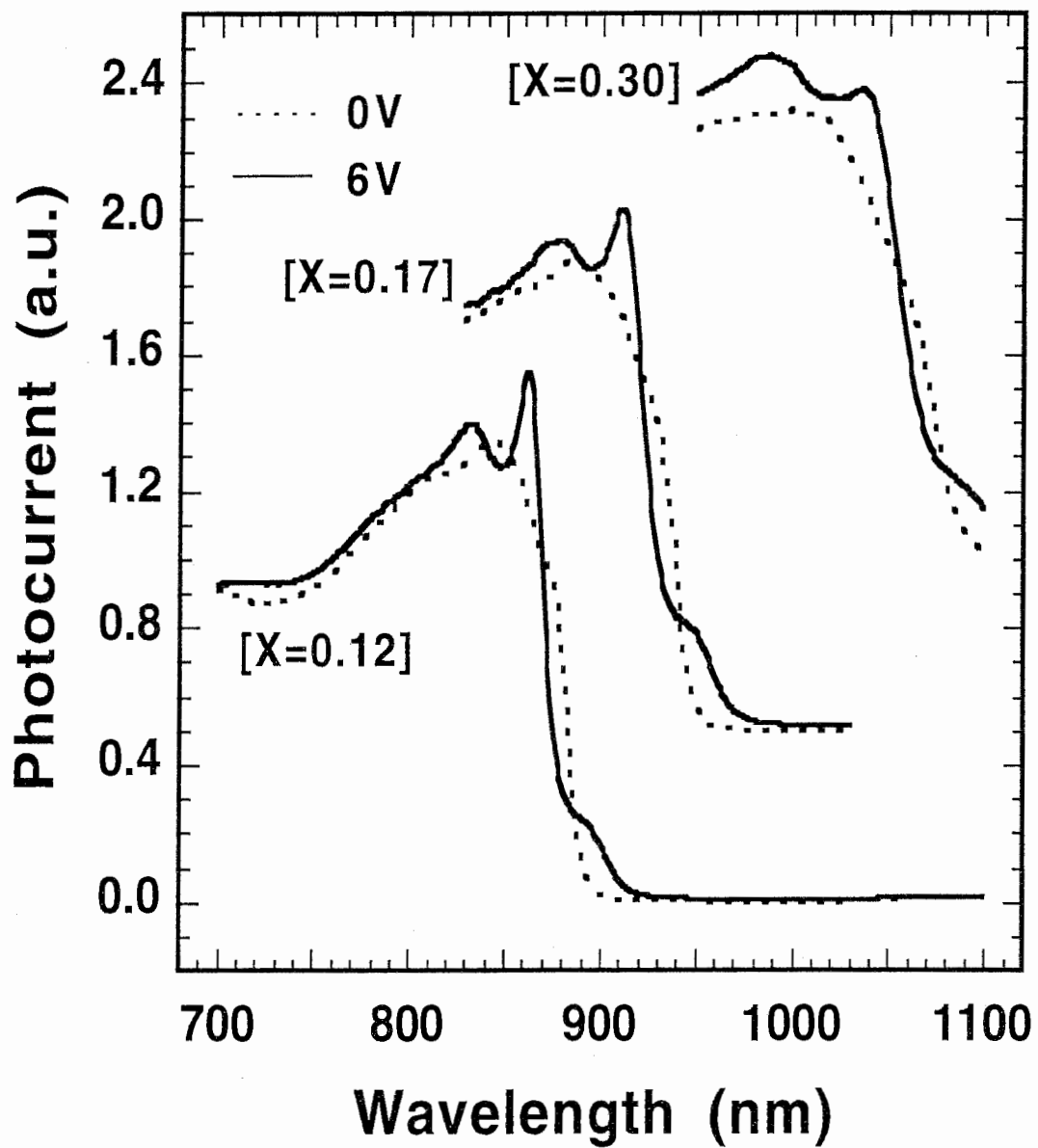


図 2 - 4 3 素子の光電流特性

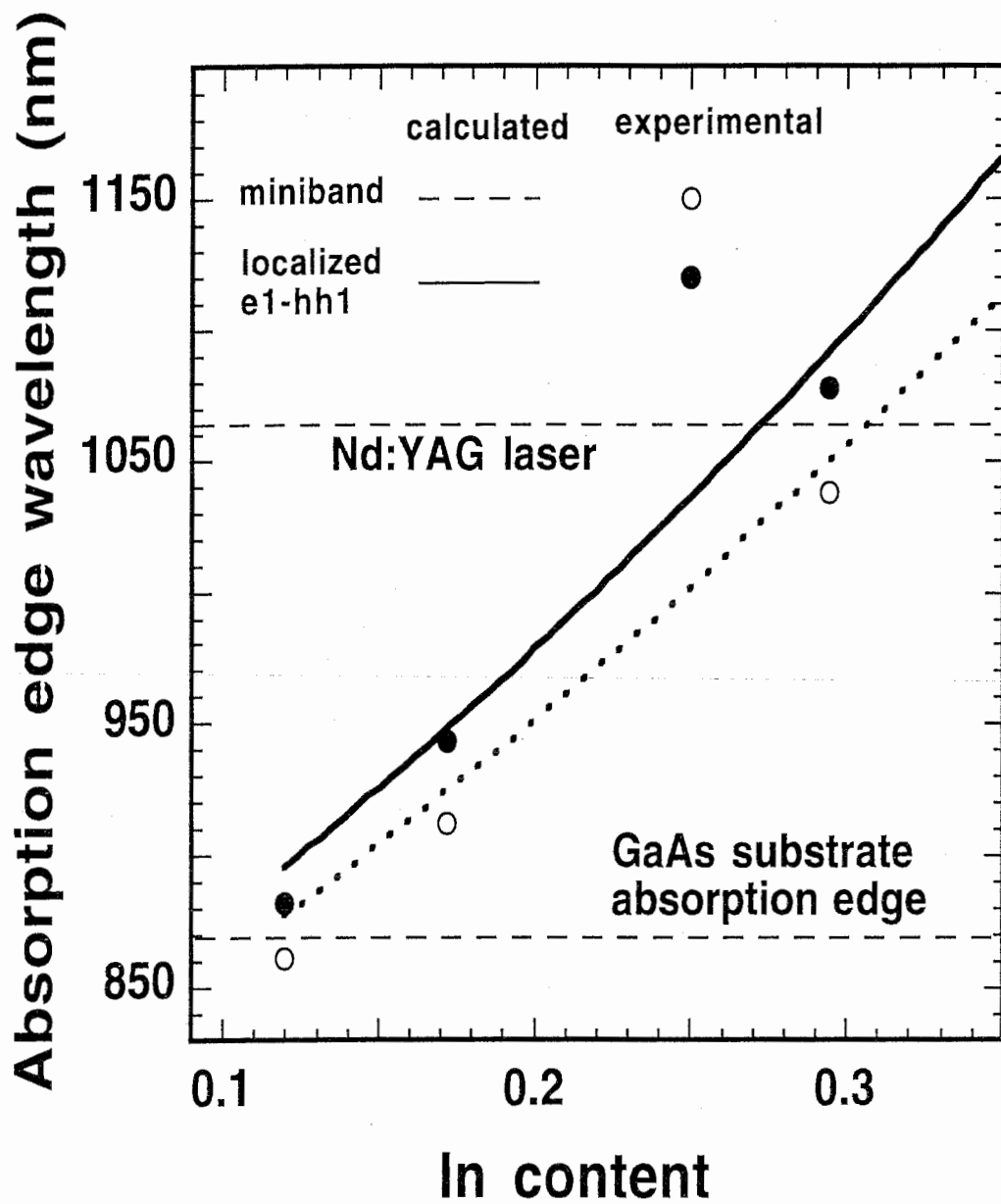


図 2 - 5 吸収端エネルギーの計算値と実験値

とした S-SEED 構成で双安定動作を示した。

これらの結果より GaAs 基板上的 InGaAs 疑似基板の上に作製した InGaAs/InAlAs 無歪み超格子が、GaAs 基板上ワニエシタルク型 SEED の動作波長の長波長化に有効であることがわかった。

第3章 GaAs/InAlAs系歪み超格子

3-1 はじめに

これまでワニエシュタルク局在効果の基礎物理の解明や素子応用は、主として無歪みのGaAs/Al (Ga) As系を用いて行われてきた。一方、超格子中へ歪みを導入することにより価電子帯のバンド構造を制御できるため、近年、歪み超格子を利用した様々な取り組みが行われている。光変調器の分野においては、超格子中の井戸層に引っ張り歪みを導入する事によりe1-hh1励起子による吸収波長とe1-lh1励起子の吸収波長を整合させ、信号光の偏波面 (TE、TMモード) に依存しない1.5 μm 帯QCSE型光変調器がInP基板上で実現されている⁶⁾。あるいは、圧縮歪みを加えたInGaAsP井戸層と引っ張り歪みを加えたInGaAsP障壁層を組み合わせた歪み補償型歪み超格子を用いて、高いサチュレーション特性を有するQCSEタイプの吸収型変調器をInP基板上で実現している。⁷⁾ またGaAs基板上では、井戸層にInGaAsを採用したInGaAs/AlGaAs MQWを用いて基板除去を必要としない透過型光変調器がQCSEタイプで実現されている⁸⁾。

一般に、歪みの利用にあたっては基板の格子定数と異なる歪み層の膜厚を臨界膜厚以下に押さえる必要がある。井戸層と障壁層の厚さの比がそれほど大きくないQCSE型の超格子では、成長時に井戸層 (障壁層) で蓄積された歪みが次の障壁層 (井戸層) で緩和されながら成長するため比較的厚く良好な歪み超格子の作製が容易である。また、歪み超格子の構成材料のいずれが井戸層になりいずれが障壁層になるかは材料のバンドギャップによって決まり、歪みが引っ張り歪みになるか圧縮歪みになるかは材料の格子定数と基板の格子定数の大小関係によって決まるが、InPに格子整合した $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 、 $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$ はそのIn組成を変えることにより格子定数、バンドギャップを変化させることができるため任意の歪みを有する井戸層、障壁層の作製が可能である。このためInP基板上における歪みの利用は比較的盛んに行われてきた。一方、GaAs基板上のワニエシュタルク型の超格子に関してはこれまで歪みの効果を積極的に利用した報告はそれほど多くない。これまでの報告では、歪みはInGaAs井戸層の圧縮歪みに限られており^{9, 10)}、特に、多機能性の実現に重要な広いミニバンドを有する歪み超格子に関する報告はない。障壁層の厚さが井戸層に比べてはるかに薄いワニエシュタルク型の超格子では臨界膜厚の問題から厚く良好な歪み超格子の作製が難しかったためである。

そこで本章では、GaAs/InAlAs歪み超格子を用いることによりGaAs基板上で初めて実現できた、広いミニバンド幅を有する歪み超格子におけるワニエシュタルク局在効果

について述べる。

3-2 素子の構造および作製

図3-1に本章で用いた素子の構造を示す。4種類の素子の成長を日本真空(ULVAC)製MBEによりnタイプのGaAs基板に行った。基板温度はIn原子の離脱を抑制するために通常のGaAs成長時より低い540°Cとした。各素子の超格子部は厚さ3.0nmのGaAs井戸層と厚さ0.9nmのInAlAs障壁層からなり、障壁層であるInAlAsのIn組成以外の構造は同じにしてある。素子1(S1)、2(S2)、3(S3)、4(S4)のIn組成をそれぞれ0、0.1、0.2、0.3とし超格子の周期を60とした。これらのIn組成は同条件で成長したInAlAs厚膜をX線で評価することにより求めた。障壁層の成長では素子1のAlAsと素子4の $\text{In}_{0.3}\text{Al}_{0.7}\text{As}$ では成長速度が異なる(それぞれ500nm/h、714nm/h)ため、障壁層の膜厚をそろえるために成長時間の調整を行い素子1の6.1秒に対して素子4では4.4秒とした。これらの素子では成長層の大部分を占めるGaAsが基板に格子整合しており、格子定数がGaAsより大きいInAlAs障壁層に圧縮歪みがかかっていると期待される。最もIn組成の大きい素子4の障壁層の歪みは2%以上となる。

各素子を成長後、光電流測定のために400 μm 角のメサ形状にエッチングしpinダイオードを形成した。p側の電極にはp-GaAsキャップ層上にリング状のAu電極を蒸着により形成し、n側の電極には基板裏面に融着したIn-Ga融液を用いた。これらの素子に対して構造評価をコンピューターコントロールされた2結晶X線回折装置(理学製 SLX-1: 50kV、150mA; Cu-K α 線: 波長1.540540オングストローム)で行った。また、光学的特性の評価を光電流測定により行った。

3-3 素子特性

3-3-1 X線による評価

図3-2(a)に4つの素子の(400)X線回折パターンを示す。66°付近にある鋭いピークはGaAs基板のピークでその低角側に見られるピークが超格子の平均格子定数を反映した0次のサテライトピークと考えられる。通常のMQWの回折パターンでは高次のサテライトピークも観測されるが、今回の測定では歪み超格子の周期が小さいため0次のみ観測されている。注目すべき点は、この平均格子定数のピークが障壁層のIn組成の増大と共に低角側にシフト、すなわち格子定数が大きくなっていく点である。これは

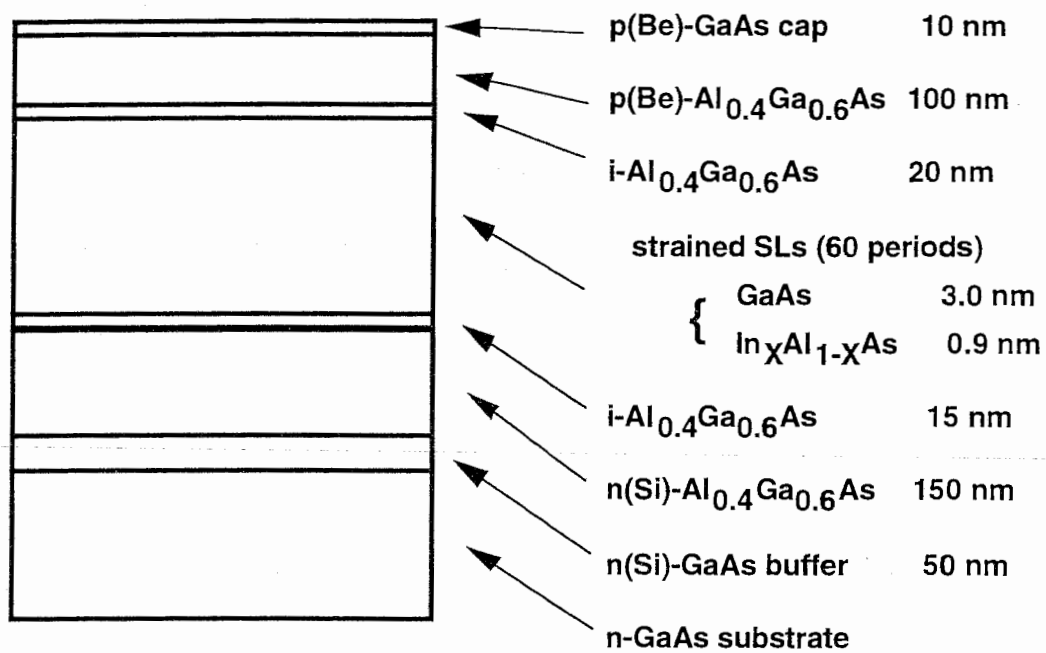
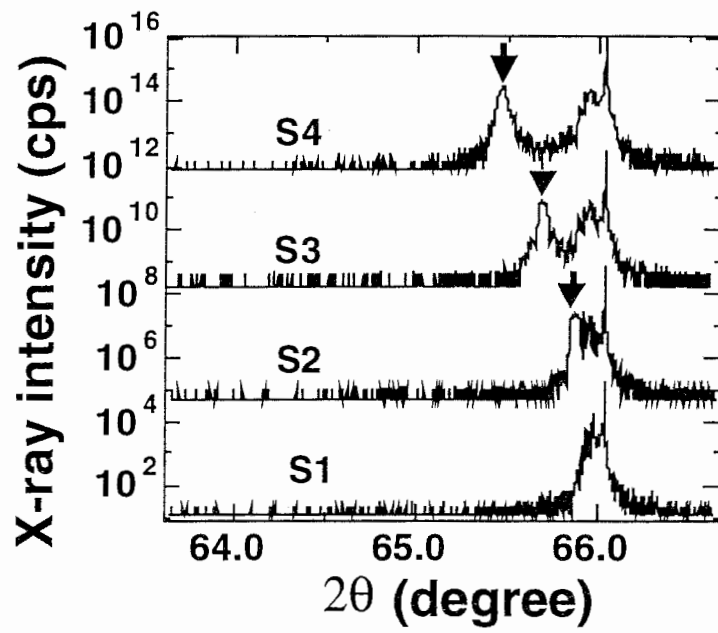
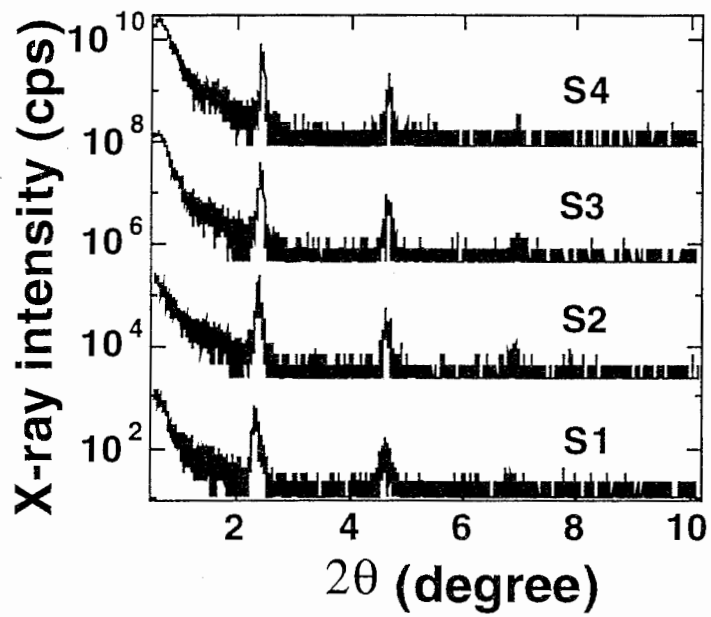


図 3 - 1 GaAs/InAlAs 素子の構造



(a)



(b)

図 3 - 2 X線回折パターン

従来の無歪みの超格子では見られなかった特徴で、障壁層の格子定数がIn組成の増大と共に大きくなることに加え、面内方向に2軸性の圧縮歪みを受けて成長方向に結晶格子が歪んだことに起因する。これらの効果を考慮して設計値より計算した平均格子定数の角度は素子2、素子3、素子4の対して 65.8° 、 65.6° 、 65.4° となり図3-2(a)に示した実験値 65.9° 、 65.7° 、 65.5° とほぼ一致している。

図3-2(b)に各素子の小角X線散乱の測定結果を示す。各素子に対して超格子の周期性に起因するピークが3次まで見えており、そのピーク位置は 2.3° 、 4.6° 、 6.9° でほぼ等しい。このことから障壁層の成長速度がお互いに異なり、歪みの影響で成長方向の格子定数が変化しているにも関わらず、4つの素子がほぼ同じ周期で作製できていることがわかる。小角散乱のピークから計算した超格子の周期は 3.85nm で設計値である 3.9nm にほぼ一致している。

3-3-2 光電流測定

光電流測定の光源にはハロゲンランプの出射光を分光器に通して単色光としたものを用い、この光を素子に照射した時に流れる光電流をピコアンペア電流計で計測した。図3-3に室温における光電流の逆バイアス依存性を示す。(a)は障壁層にInを含まない通常のGaAs/AlAs超格子を有する素子1、(b)は障壁層中の歪みが最も大きいGaAs/ $\text{In}_{0.3}\text{Al}_{0.7}\text{As}$ 歪み超格子を有する素子4に対する測定結果を示す。

両素子共に明確なワニエシュタルク局在効果を示した。すなわち、弱電界では明確なピーク構造を有しないミニバンド状の吸収端を示し、逆バイアスを印加するにつれてその吸収端が高エネルギー側(ブルー側)にシフトすると共にe1-hh1、e1-lh1局在励起子による吸収ピークが顕著になっている。素子4に対するこの吸収端のブルーシフト量は 95meV であった。これは 190meV のミニバンド幅に相当し、後で論じるKronig-Pennyモデルによる計算値 191meV に一致する。これは臨界膜厚の問題から障壁層をあまり薄くできなかった従来の(AI)GaAs/InGaAs歪み超格子では実現できなかった大きな値である。さらに、中電界領域では励起子ピークの両側に高次のシュタルク階段準位による吸収特性が明確に観測できる。特に、障壁層の歪みが大きい素子4において-2次のシュタルク階段遷移による吸収さえ観測されていることは注目すべきである。

より明確に高次のシュタルク階段準位による遷移を示すために、図3-4(a)に電界を横軸に素子4のファンチャートを示す。一般にこうしたファンチャートを描くに

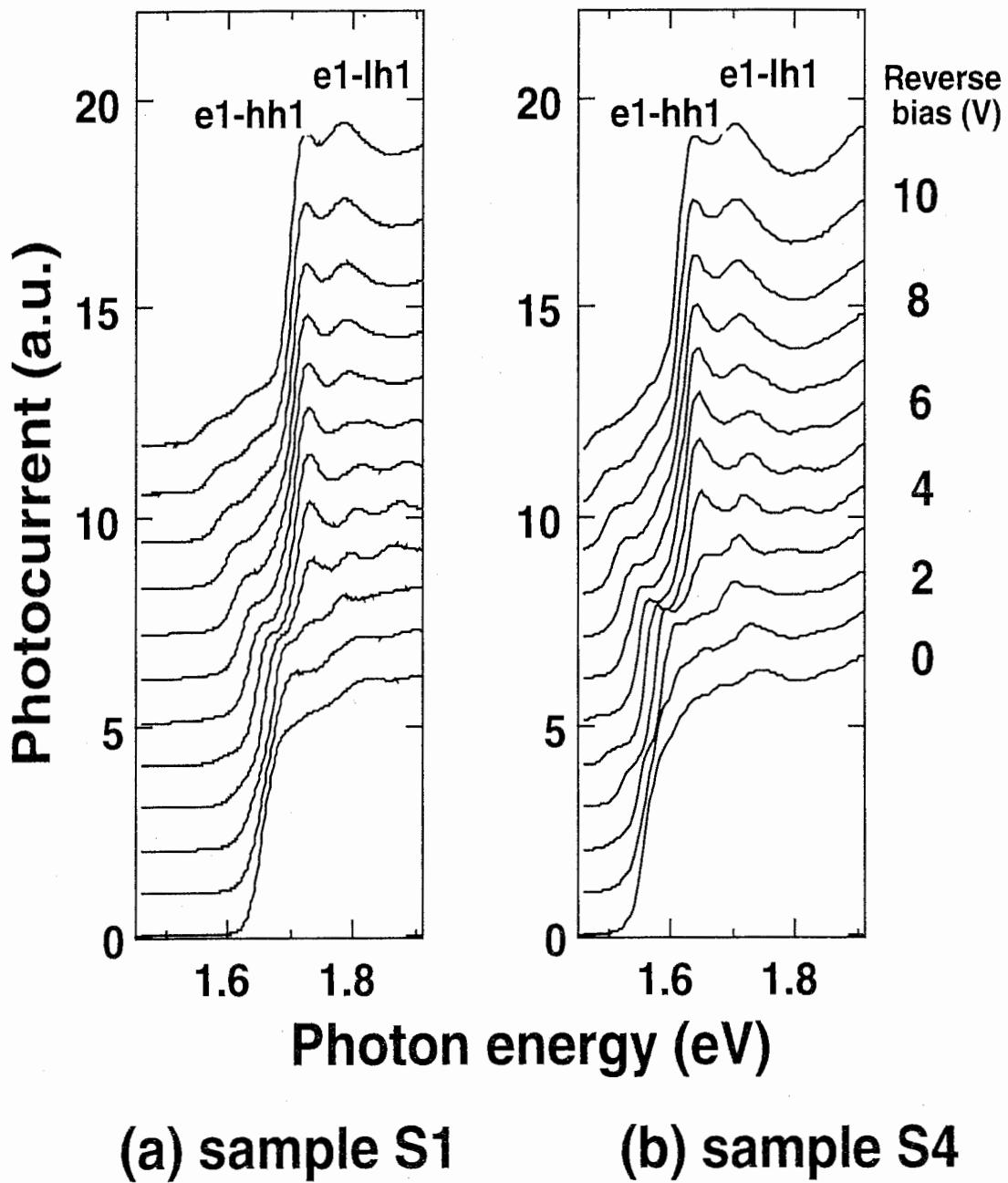
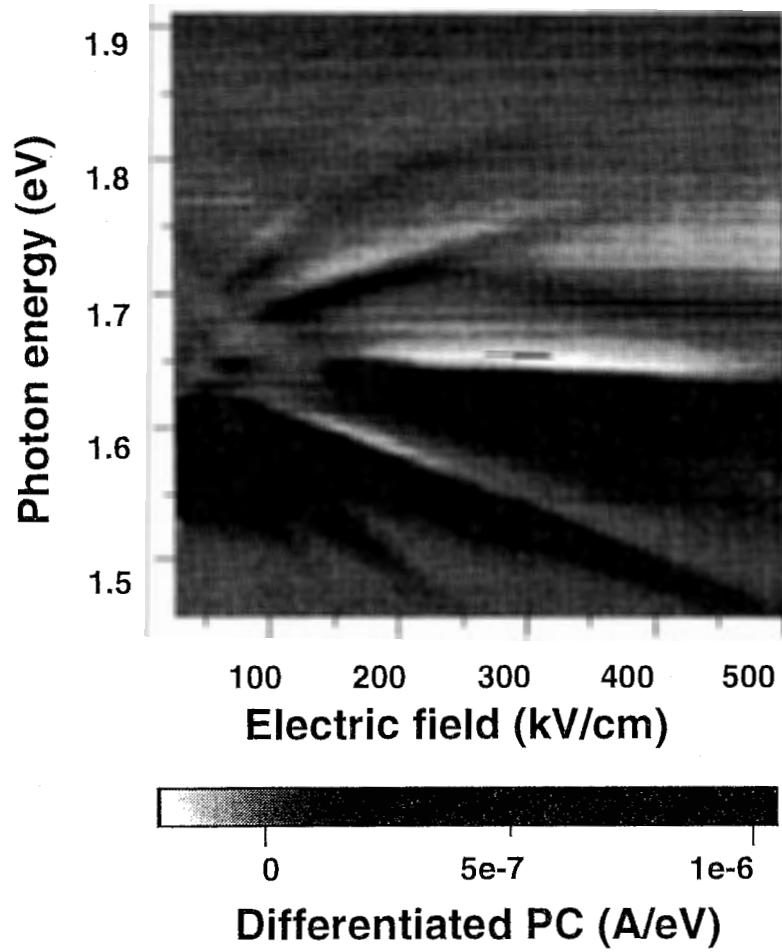
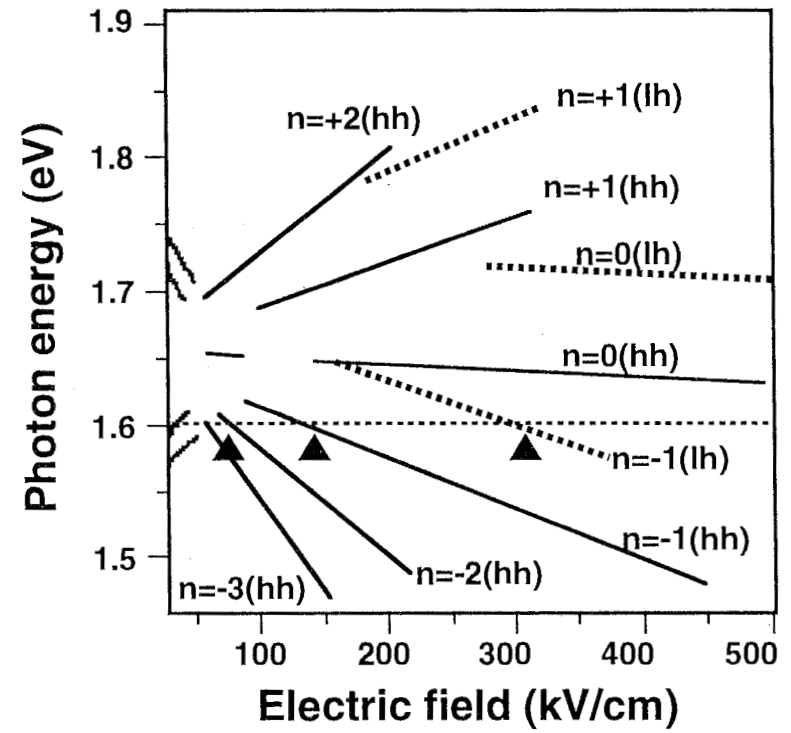


図 3 - 3 光電流の照射エネルギー依存性



(a)



(b)

図3-4 素子4のファンチャート

は、光電流や光反射率の電界依存性を測定後それらのデータからシュタルク階段準位による遷移エネルギーを全電界領域に渡って読みとり再プロットするのが通常である。しかし、この手法は手間がかかる上スペクトル上で明確なピークを構成する場合はよくても、肩にしかならないような遷移のエネルギー値を特定することが困難である。そこで今回はこの作業を避けるためにデータを3次元的に表す手法を採用した。また、光電流の変化を強調するために電流をエネルギーで数値的に微分した微分光電流に注目した。図3-4 (a)において明暗(グレイスケール)は、微分光電流の強度を表すのに用いられている。電界の導出に当たっては、built-in 電圧を1.3Vと仮定した。図より、光電流変化を敏感に反映する微分光電流スペクトルでは図3-3では見えなかったものも含めて電界に依存したいくつかのラインがはっきりと現れているのがわかる。これらのラインだけを取り出し、それぞれのピークが起因する遷移を明らかにしたものを図3-4 (b)に示す。なお、高次のシュタルク階段準位に相当するラインについては図3-4 (a)のコントラストを部分的に強調することにより得ている。図において実線はheavy-holeが関与した遷移、点線はlight-holeが関与した遷移を表し、例えば、表記「 $n=-1$ (hh)」は、 $e1$ -hh1サブバンドに関係した-1次のシュタルク階段遷移を表す。この手法によりheavy-holeに関しては-2次から+3次、light-holeに関しては-1次から1次までのシュタルク階段遷移が印加電界に依存してそのエネルギー値を変えていく様子が確認できる。各ラインの傾きは理論的に計算される値 $ne(Lz+Lb)$ にほぼ一致した(n はシュタルク階段遷移の次数、 Lz 、 Lb は井戸層、障壁層の厚さ)。各0次のピークは、電界の印加に従って緩やかにエネルギー値が小さくなっており、障壁層が薄く閉じ込めの効果が小さいワニエシュタルク型の超格子においても一端波動関数が各井戸層に局在化した後は通常のMQWと同様にQCSEが起こっているのがわかる。

図において特徴的なのは、特定のラインが特定の電界領域で、例えば $n=0$ (hh)の場合90kV/cmから140kV/cmの範囲で、 $n=-1$ (hh) および $n=+1$ (hh)の場合85kV/cm以下の電界領域で消滅している点である。これらはこの領域でその遷移がピーク構造を有しないことを示している。簡略化された強結合近似^{11, 12)}によればシュタルク階段遷移の振動子強度 I_n は、

$$I_n \approx J_n^2 \left[\frac{-\Delta}{(eFD)} \right] \quad (3-1)$$

で近似される。ただし、 n はシュタルク階段遷移の次数、 J_n はベッセル関数の次数、 Δ はミニバンド幅の半分、 F は印加電界強度、 D は超格子の周期である。以前に、藤原等は無歪みのGaAs/AlAs超格子におけるシュタルク階段遷移の振動子強度の電界依存性をこの式に基づいて論じ、0次の遷移で規格化した振動子強度が理論とよく一致する結果を得ている。^{13, 14)} そこで、今回の歪み超格子においてもこの式を適用して考察する。図3-5に素子4における0次と1次の振動子強度を計算した結果を示す。 Δ 、 D の値としては、実験的に得られた95meV、3.85nmを用いた。図3-4と図3-5を比較すると図3-4の0次のシュタルク階段遷移における100kV/cm付近および1次のシュタルク階段遷移における85kV/cm以下のラインが消滅する電界領域が、図3-5における振動子強度が弱い部分にほぼ一致することがわかる。このことから、歪み超格子における振動子強度も無歪みの超格子と同様に強結合近似で説明できることがわかる。

次に図3-4の弱電界領域に注目すると、丁度ミニバンドの上端、下端付近から発する複雑なパターンが見られる。これらのパターンは、K. H. Schmidt等¹⁵⁾が報告しているものに類似しておりフランツケルディッシュ振動(FKO: Franz-Keldysh Oscillation)によるものと思われる。彼らは低電界領域におけるワニエシュタルク遷移による振動とFKOの共存を示したが、サンプルとして厚さがわずか1原子層のAlAs障壁層を有し量子井戸間の結合が非常に強い無歪み超格子を用いた上、77Kにおける波長変調方式の光電流測定を用いていた。一方、図3-4の結果が得られた素子4の障壁層は0.9nmで彼らの素子に比べると約3倍厚いため井戸間の結合が弱く、また測定は通常の光電流測定を室温で行っている。それにも関わらず高次のシュタルク階段遷移とFKOが観測されていることは、障壁層の歪みにもかかわらず高品質な超格子が作製できていることを示唆している。

図3-6に素子4に様々なエネルギーの光を照射したときに流れる光電流の印加電界依存性を示す。図より、照射波長のエネルギーを選ぶことにより複数の負性抵抗領域が得られることがわかる。これは励起子吸収ピークのエネルギーのレッドシフトを利用したQCSE型の素子には見られないワニエシュタルク型素子特有の特性であり高次のシュタルク階段遷移に起因している。例えば照射エネルギーが1.6eVの時には80kV/cm、140kV/cm、310kV/cm付近に光電流のピークが見られるが、これらはそれぞれ $n=-2$ (hh)、 $n=-1$ (hh)、 $n=-2$ (lh)のシュタルク階段遷移に起因している。これは図3-4(b)に記された黒三角印を見ると容易に理解できる。すなわち、照射エネルギー1.60eVに引かれ

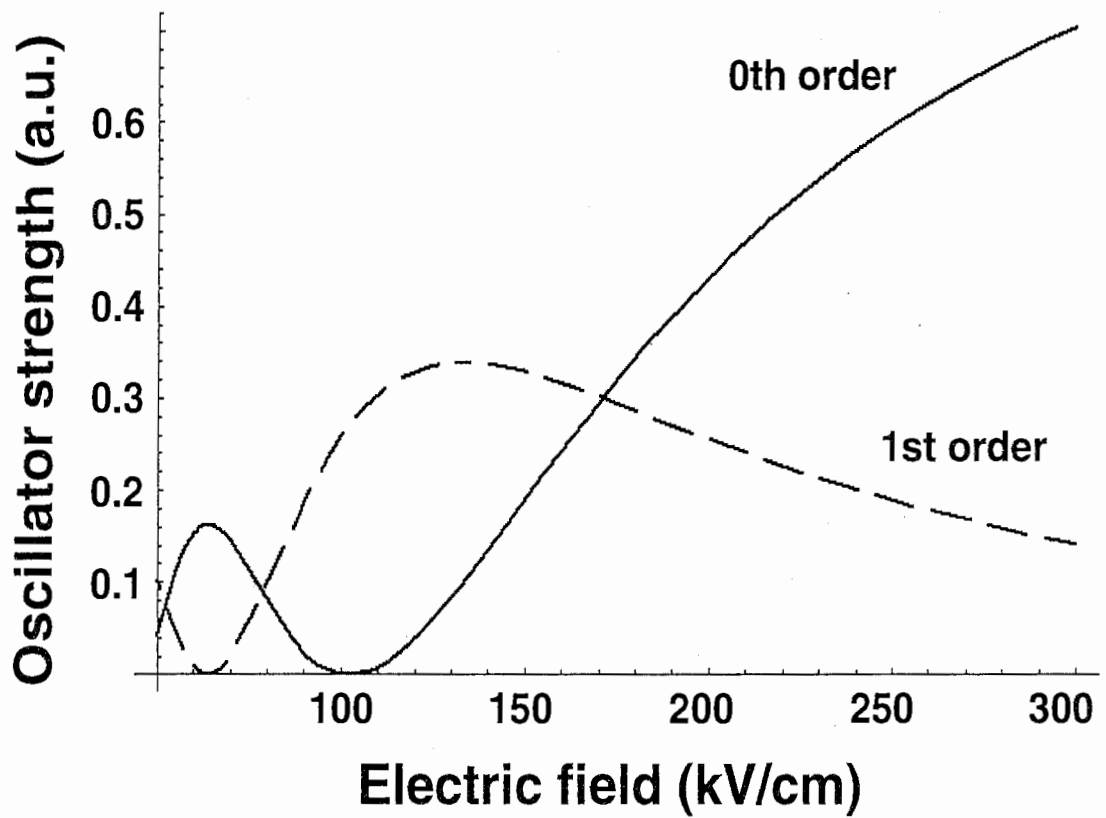


図 3 - 5 振動子強度の電界強度依存性の計算結果

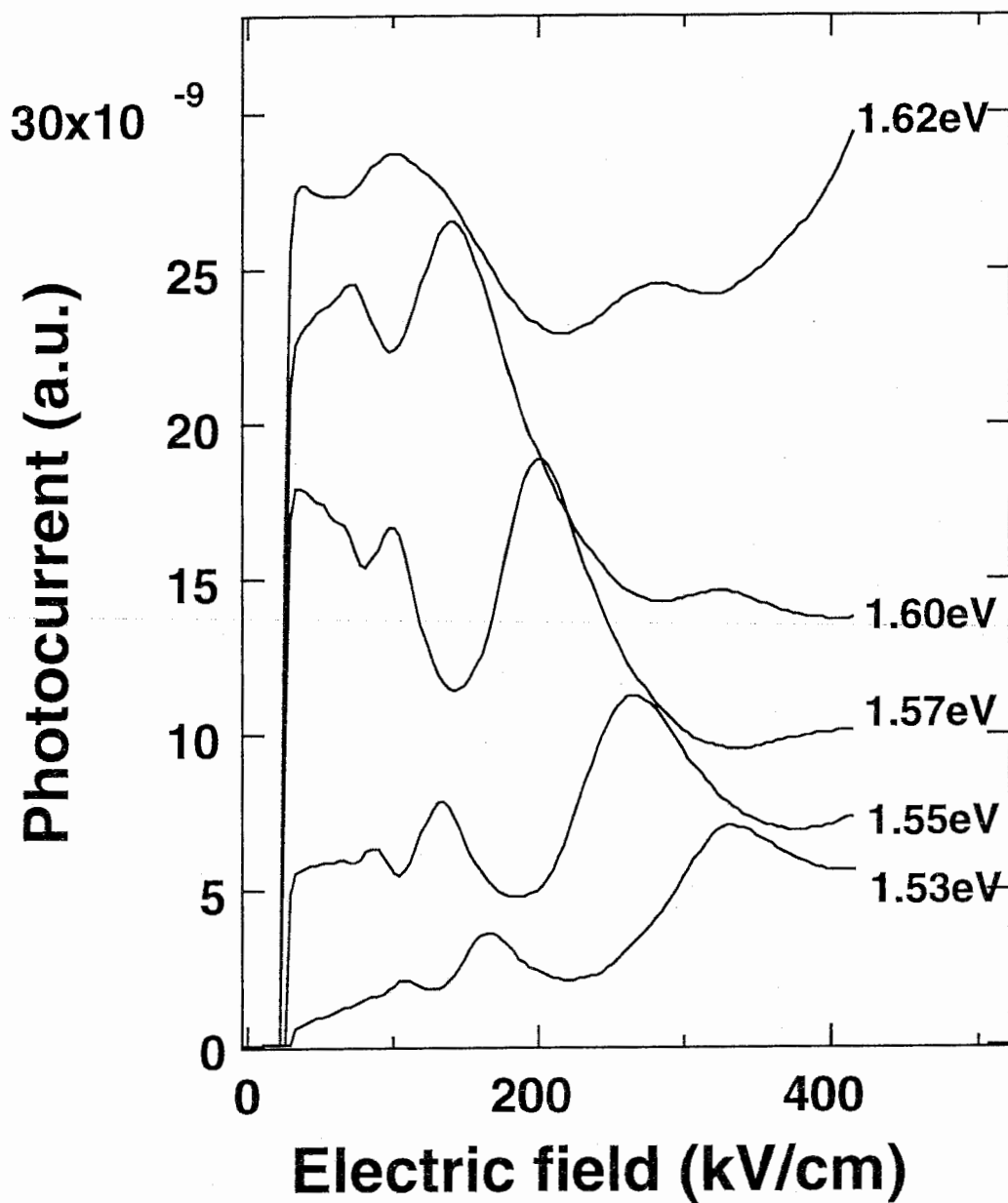


図3-6 素子4の電界強度に対する光電流の依存性 (i-v特性)

た点線に注目すると電界を印加するにしたがって、まず 80kV/cm で $n=-2$ (hh) と交差し、次に 140kV/cm で $n=-1$ (hh)、310kV/cm で $n=-1$ (lh) と次々に交差していくことにより図 3-6 に見られるような複数の負性抵抗領域が観測されるわけである。一般にワニエシュタルク型 SEED の負性抵抗は電界印加時の吸収端のブルーシフトによるとされるが、実際にはシュタルク階段遷移による吸収が負性抵抗領域の出現に大きく関与していることがわかる。この $i-v$ 特性における多峰性は多重安定スイッチング¹⁶⁾ や光トランジスタ¹⁷⁾ の実現には不可欠である。

素子 4 より障壁層の In 組成が小さい素子 2、素子 3 に対しても同様な結果が得られた。これらは、GaAs 基板上において歪んだ障壁層と大きなミニバンド幅を有する短周期超格子が室温において明確なワニエシュタルク局在効果が得られることを示しており、無歪み超格子と同様に歪み超格子もワニエシュタルク局在効果に基づいた光素子応用が可能であることを示している。

3-3-3 障壁層中の In の影響

図 3-7 に 4 つの素子の室温における光電流特性を示す。実線、破線および点線はそれぞれ +0.5V、-10V、-5V バイアス時の特性を示す。ここでバイアスの + (-) 符号は順 (逆) 方向バイアスすなわち素子の p 側を + (-) に印加したことを示している。図 3-4 のファンチャートより求められる素子の built-in 電圧は約 +1.3V のため、+0.5V では 30kV/cm 程度の電界がかかっていることになるが、室温ではこれ以上の順バイアスにおいて電流注入が生じるため +0.5V をもってほぼフラットバンド状態とし、この時の吸収端をミニバンド端とみなした。-5V バイアス時には各素子において複数のピークが見えるが最も吸収が大きい heavy-hole の 0 次吸収の高エネルギー側に見えるピークは heavy-hole の +1 次のシュタルク階段遷移に起因する吸収によるもので、この電界領域ではまだ light-hole による吸収は現れない。-10V バイアス時にはシュタルク階段遷移による吸収は弱まり heavy-hole と light-hole の 2 つの 0 次吸収ピークがメインとなる。実際にはこれらのピークは QCSE により本来の局在準位に基づく遷移エネルギーより若干低エネルギー側にシフトしているが -10V バイアス時のピークエネルギーをもって局在エネルギーの実験値とした。これらの実験値を理論計算結果と共に示したのが図 3-8 である。図中の黒丸、白丸、白四角は、それぞれ図 3-7 より得られたミニバンド端、局在化した電子と heavy-hole 間、電子と light-hole 間の遷移エネルギーの実験値を表す。また挿入図は素子 1 および素子 4

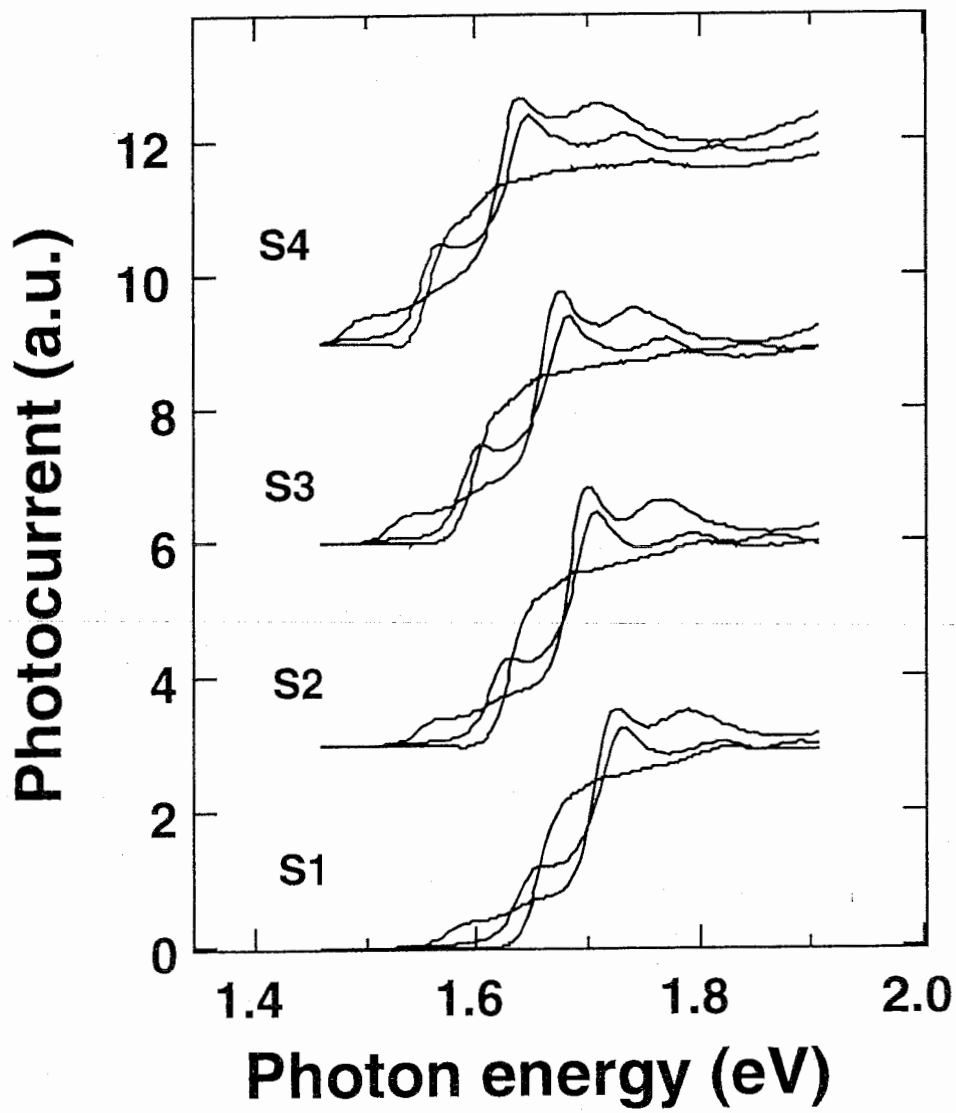


図3-7 各素子の光電流特性

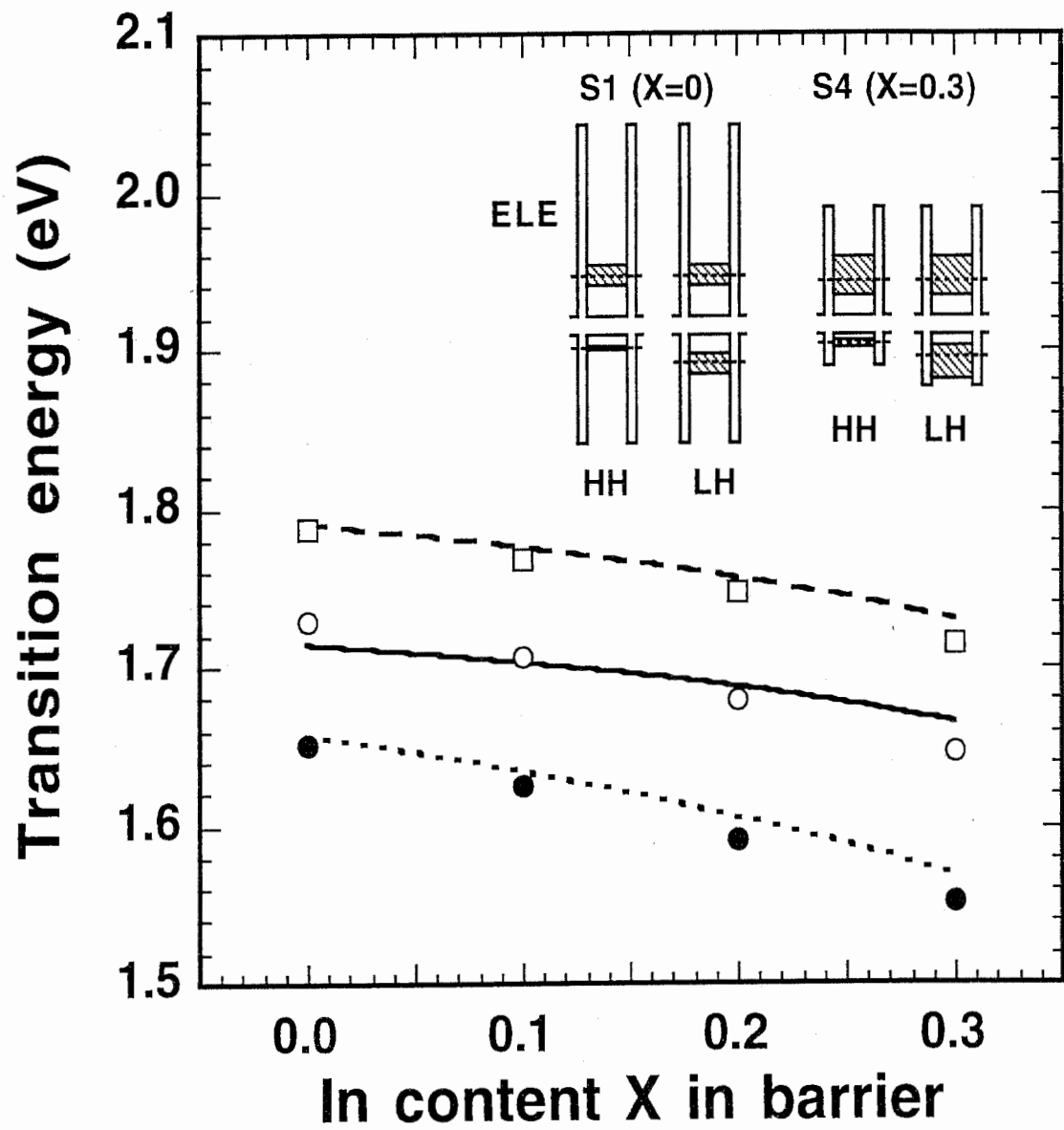


図 3-8 遷移エネルギーの計算値と理論値

における伝導帯、価電子帯のバンド図を表す。斜線部および破線は、フラットバンド時に形成されるミニバンドの様子と電界印加によって局在化した時の準位を表している。歪みがない素子1においては heavy-hole に対するバンドオフセットと light-hole に対するバンドオフセットは等しいが、歪みがかかった素子4では両者に対するバンドオフセットが異なる点が特徴的である。

$k \cdot p$ 摂動理論¹⁸⁾に基づくと歪みに起因するバンドギャップエネルギーの変化量は、heavy-hole、light-hole に対してそれぞれ、

$$\delta E_{gHH} = \delta E_H + \delta E_S, \quad (3-2)$$

$$\delta E_{gLH} = \delta E_H + \frac{(\Delta_0 - \delta E_S)}{2} - \frac{[\Delta_0^2 + 2 \cdot \Delta_0 \cdot \delta E_S + 9 \cdot \delta E_S^2]^{\frac{1}{2}}}{2}, \quad (3-3)$$

ただし、

$$\delta E_H = a \cdot (2 - 2 \cdot C_{12} / C_{11}) \cdot \varepsilon, \quad (3-4)$$

$$\delta E_S = -b \cdot (1 + 2 \cdot C_{12} / C_{11}) \cdot \varepsilon, \quad (3-5)$$

と表される。ここで、 a 、 b はそれぞれ hydrostatic potential と shear potential、 Δ_0 はスピン軌道スプリッティングエネルギー、 ε は面内歪み、 C_{ij} は弾性ステイフネス定数である。遷移エネルギーを理論的に計算するにあたって、有効質量近似の下でクローニツヒペニーモデルを用い、上記の歪みの効果を考慮した。InAlAsの各材料定数で未知のものはInAsとAlAsの値を線形補間することにより求めた。加藤等¹⁹⁾の計算によるとGaAs/InAlAsでは井戸層と障壁層のバンドギャップ差に占める伝導帯バンドオフセットの割合(Q_c)の値を60%から85%の間で変化させても計算結果に大きな影響を与えないので、本計算では Q_c としてGaAs/AlAs系で一般的に用いられている64%を用いた。また、励起子結合エネルギー、バンドノンパラボリティエー効果は考慮していない。さらに計算においては無歪みのGaAs井戸層と緩和していない(完全に歪んだ)InAlAs障壁層を仮定した。

図3-7より局在化したe1-hh1とe1-lh1の両遷移による吸収ピーク共、障壁層のIn組成の増大と共に低エネルギー側にシフトしているのがわかる。この時、低電界時のミ

ニバンドの吸収端も低エネルギー側にシフトしている。さらにワニエシタルク局在効果による吸収端の電界印加によるブルーシフトエネルギーの実験値は、素子1の79meVから素子4の95meVへとIn組成の増大にしたがって大きくなっている。この結果は、ミニバンド幅が増大していることを示しており図3-8の挿入図に示すようにIn組成の増大により伝導帯と価電子帯の双方でバンドオフセットが小さくなり閉じ込めがよくなったことによると説明できる。

しかし、ここで注目したいのはheavy-holeとlight-holeのポテンシャルプロファイルの違いである。図3-7より、In組成の増大に従ってe1-hh1遷移とe1-lh1遷移のエネルギー差が素子1の58meVから素子4の69meVにわずかながら増大しているのがわかる。これは、従来の無歪みGaAs/AlAs系超格子には見られないGaAs/InAlAs歪み超格子特有の特徴であると思われる。GaAs/InAlAs超格子において障壁層のIn組成を増大することによる効果は、障壁層のバンドオフセットが小さくなるという点では従来の無歪みのGaAs/AlAs超格子において障壁層のAl組成を減少させることによる効果と同様である。しかし、GaAs/InAlAs超格子では障壁層が圧縮歪みを受けているため、歪みの効果によりheavy-holeに対するバンドオフセットがlight-holeに対するバンドオフセットに比べて小さくなる。この結果、障壁層のIn組成が大きくなるとこの歪みの効果が大きいほどe1-hh1遷移とe1-lh1遷移のエネルギー差が大きくなったと考えられる。しかし、上記の実験結果は図3-8の理論計算結果とは一致せず、計算ではIn組成の増大と共にエネルギー差は減少している。この理由の一つは、計算において用いた Q_c にあると思われる。Arent²⁰⁾はInGaAs/AlGaAs歪みヘテロ界面におけるバンドオフセットについて調べ、 Q_c がIn組成によって変化する事を示唆している。彼の計算によれば、例えば $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{Al}_{0.05}\text{Ga}_{0.95}\text{As}$ ヘテロ界面の Q_c は80%以上になる。そこで、我々の計算において Q_c を80%と仮定して計算すると実験で得られたエネルギー差の傾向が計算でも得られた。この結果はGaAs/InAlAsヘテロ界面の Q_c の値が最初に仮定した64%より大きい可能性を示唆している。

3-4 まとめ

本章では、歪んだ障壁層を有するGaAs/InAlAs超格子を系統的に作製し、その構造的、光学的特性について調べた。X線測定により超格子の平均格子定数がIn組成の増大に従って成長方向にのびること、および、2%以上の歪みにも関わらず設計どおりの良好な周期性が得られることを確認した。光電流測定は室温において明確なワニエシタル

ク局在効果を示し、歪み超格子であるにもかかわらず約190meVの広いミニバンド幅が得られた。吸収ピークの強度は印加電界によって振動し、その振動子強度は強結合近似モデルから予測される計算値によく一致した。各遷移エネルギーの値は障壁層の圧縮歪みによる価電子帯バンド構造の変調効果を考慮することによりうまく説明できた。これらの結果は、ワニエシュタルク局在効果を用いた素子において障壁層に大きな歪み効果の利用が可能であることを示している。

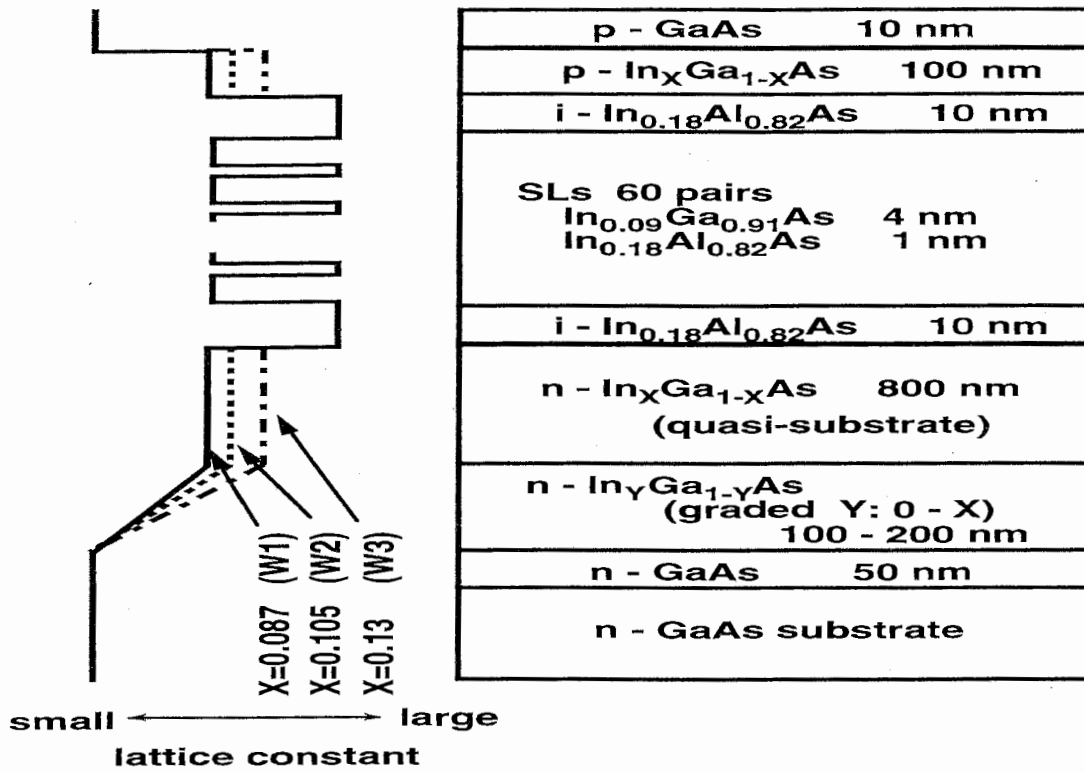
第4章 疑似基板上に作製した歪み超格子

4-1 はじめに

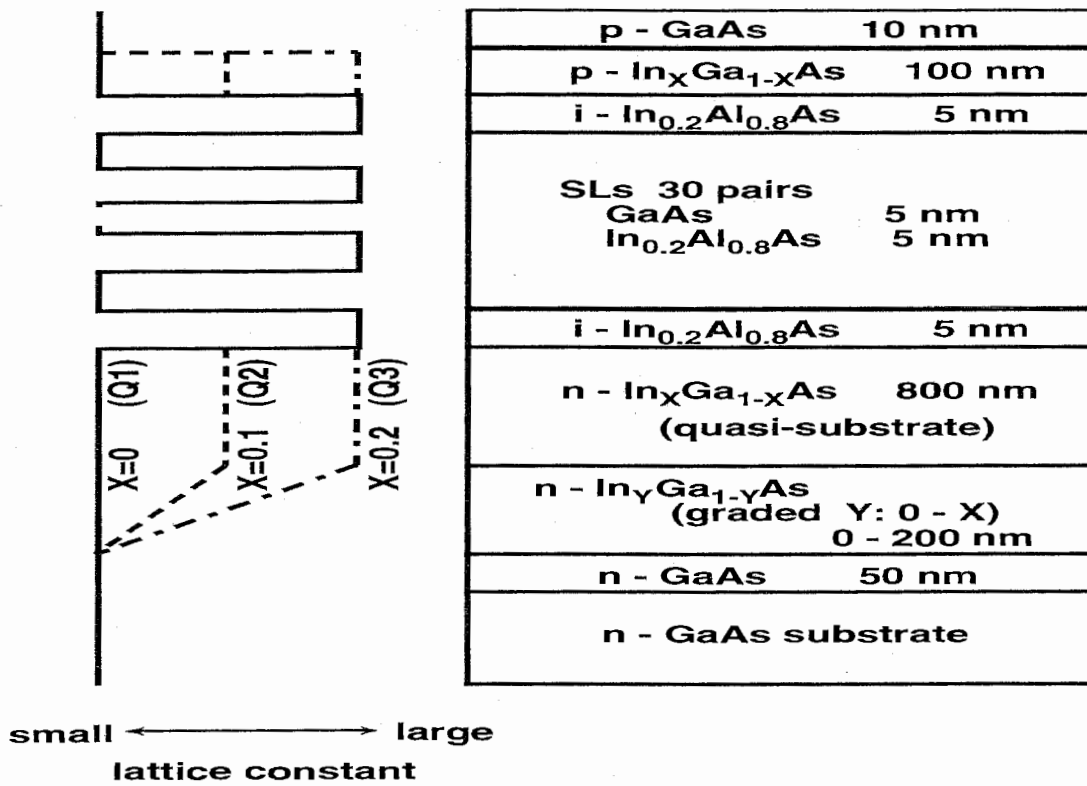
前章では比較的作製が容易な GaAs/InAlAs 歪み超格子について調べ、歪み超格子でも良好な超格子であれば明確なワニエシュタルク局在効果を示し、またその光素子への応用も無歪み超格子と同様に可能であることがわかった。しかし、光素子への応用を考えた場合、歪みとしては前章の障壁層における圧縮歪みよりも井戸層における引っ張り歪みの方が望ましい。歪みの効果で heavy-hole 準位と light-hole 準位のミキシングが可能で偏波無依存性の光変調器が実現できるからである。しかし、一般に引っ張り歪みを受けた井戸層を実現するには、基板より格子定数が小さくバンドギャップが小さい材料が最適である。InP 基板の場合、In 組成が 53% より少ない InGaAs や適当な組成を有する InGaAsP がこれに該当する。一方、GaAs 基板上となるとそのような条件を満たす適当な材料が存在しない。従って何らかの工夫が必要となる。そこでわれわれは第2章で述べた InGaAs 疑似基板と第3章で述べた GaAs/InAlAs 歪み超格子を利用することを考えた。InGaAs の格子定数は GaAs より大きいので InGaAs 疑似基板の採用により見かけ上大きな格子定数を有する基板への成長が可能となる。この時この大きな格子定数が新たな格子定数となるためこの疑似基板上に成長した GaAs 層は引っ張り歪みを受けることになる。つまり、InGaAs 疑似基板上に成長した GaAs/InAlAs 歪み超格子では GaAs 井戸層が引っ張り歪みを受けることになり先に述べた光素子への応用上有利な歪み状態が実現できる。前章までに述べてきたようにいずれも個々には実績のある構造なのでそれらの組み合わせも所望の効果が現れると期待される。そこで本章では、GaAs 基板上に成長した InGaAs 疑似基板上の (In) GaAs/InAlAs 歪み超格子について調べた結果について述べる。

4-2 素子構造

図4-1に素子の構造を示す。素子は2グループ(各グループに3素子ずつ合計6素子)用意した。一方のグループ(素子W1、W2、W3)は、障壁層の厚さが1nmと薄いワニエシュタルク型の超格子(図4-1(a))であり、他方のグループ(素子Q1、Q2、Q3)は、障壁層の厚さが5nmのQCSE型の超格子(図4-1(b))である。各グループ内において3つの素子は同一構造(層厚、組成、周期)の超格子を有しているが、この超格子部を内包するクラッド層と疑似基板となるInGaAsバッファ層のIn組成を変えてある。各素子のIn組成は図に示すとおりである。成長はMBE装置を用いて基板温度540°Cで行った。バッファ層には、第2章で採用したのと同様の構造を採用した。すなわち、



(a) ワニエシュタルク型



(b) QCSE型

第1バッファ層はIn組成Yを0からXまで1%/10nmで変化させたIn組成グレーデッド $\text{In}_Y\text{Ga}_{1-Y}\text{As}$ バッファ層であり、第2バッファ層は歪みが緩和した厚い $\text{In}_X\text{Ga}_{1-X}\text{As}$ バッファ層である。各素子において、この第2バッファ層が疑似基板として働き超格子中の歪みを決定することが期待される。各素子の格子定数の変化を模式的に構造図の左部に示してある。例えば、QCSE型の素子Q1では、歪みを決める基準となる格子定数すなわち疑似基板（この素子の場合はGaAs）の格子定数が井戸層の格子定数に等しく障壁層の格子定数より小さいので、InAlAs障壁層が圧縮歪みを受けていることが期待される。一方、素子Q3では、疑似基板の格子定数が障壁層の格子定数に等しく井戸層の格子定数より大きいので、GaAs井戸層が引っ張り歪みを受けていると思われる。また素子Q2では、GaAs井戸層中の引っ張り歪みとInAlAs障壁層中の圧縮歪みが補償しあう歪み補償型の超格子になっていると考えられる。

MBE成長後、 $400\mu\text{m}$ 角のメサ形状にエッチングし、pinダイオードとした。In組成の高いサンプルについては表面にクロスハッチ模様が観測されたが、小角X線散乱の測定により全ての素子において良好な周期構造の形成が確認された。

4-3 素子特性

4-3-1 X線回折

図4-2にQCSE型素子の(400)X線回折パターンの測定結果を示す。各素子の特性において 66° 付近に見える鋭いピークはGaAs基板に相当し、Q2の 65.5° 、Q3の 64.9° に見える比較的広いピークは疑似基板のピークに相当する。それ以外のピークあるいは肩は超格子の平均格子定数およびそのサテライトピークに相当すると考えられる。これらは各素子において0次のピークをメインとする3本のピークで構成されており疑似基板のIn組成を増大するにつれてお互いの間隔を保ったまま高角側にシフトしているのが特徴的である。すなわち同じ構造を有する超格子でありながらその土台となるInGaAs層のIn組成が大きくなるにつれてその周期をほぼ一定に保ちながら平均格子定数が小さくなっている。これはInGaAs疑似基板のIn組成の増大により超格子が成長方向に縮み面内方向に広がっていることを意味している。先にも述べたようにQ1ではInAlAs障壁層が面内に圧縮歪みを受けて成長方向に伸びる（平均格子定数を大きくする）のに対し、Q3ではGaAs井戸層が面内に引っ張り歪みを受けて成長方向に縮む（平均格子定数を小さくする）と考えられ、上記の実験結果とよく一致するのがわかる。

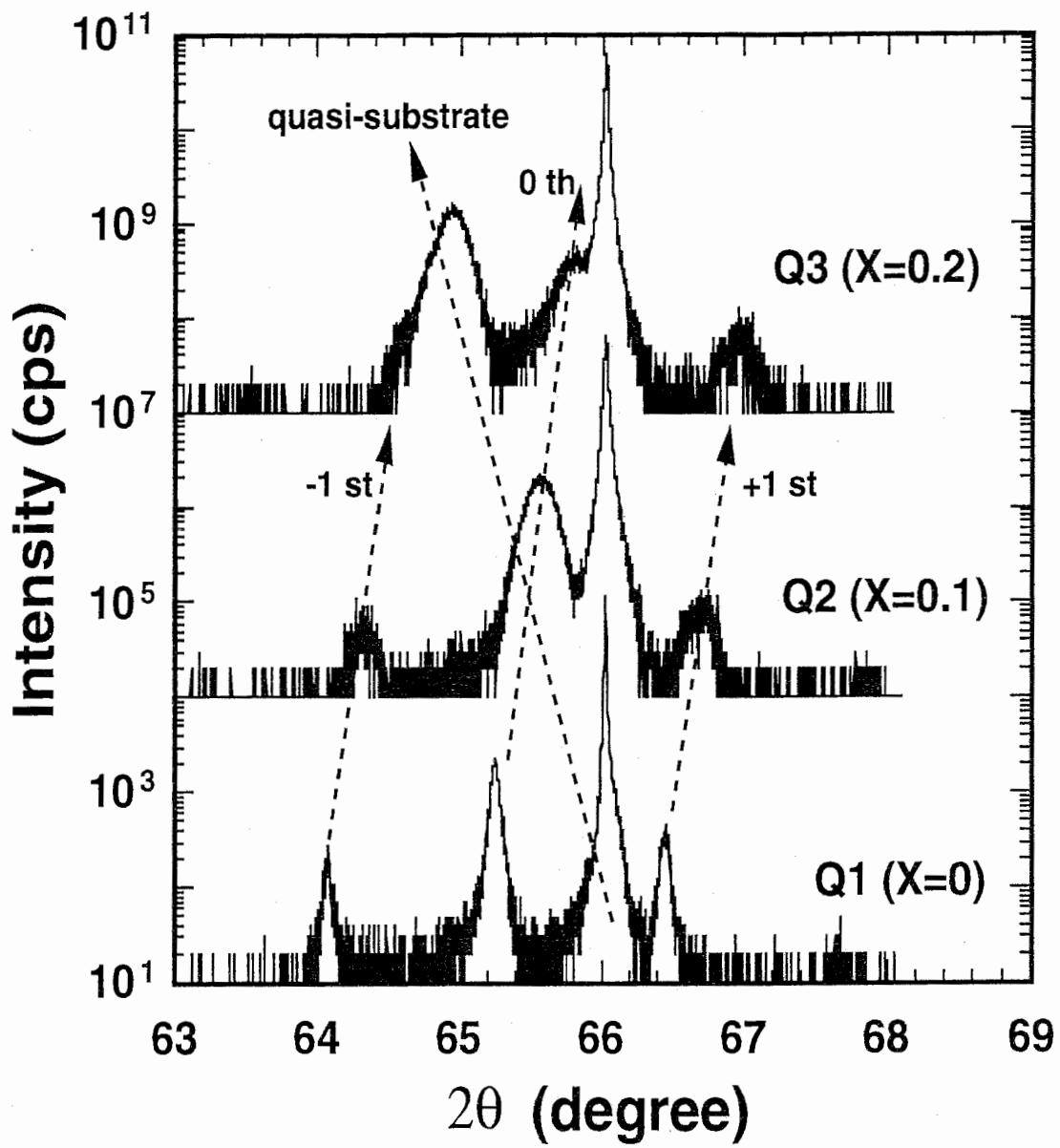


図4-2 QCSE型超格子のX線回折パターン

ワニエシュタルク型の超格子に対しても同様の結果が得られており、疑似基板上に同一条件で成長した同一構造を有する超格子が疑似基板のIn組成に応じて構造的に変調されていることがわかった。

4-3-2 PL特性

図4-3に10Kで測定したPLスペクトルを示す。(a)がワニエシュタルク型超格子、(b)がQCSE型超格子に対する特性である。測定は電極のついていないas-grownの基板に対して行い、光源には波長488nm、光出力8mWのアルゴンレーザを用いた。

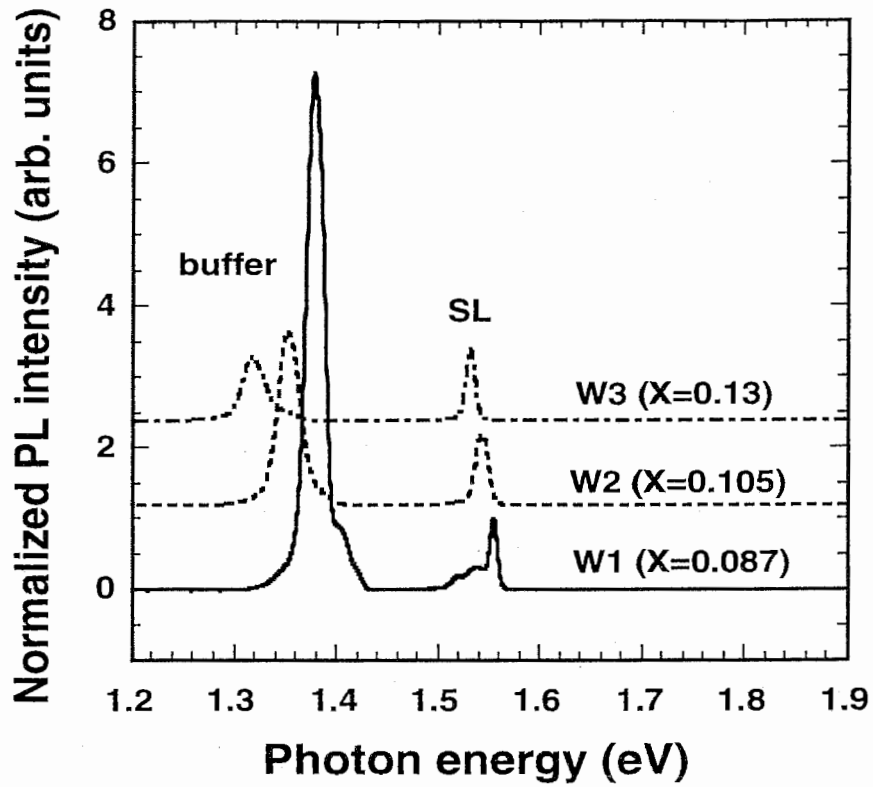
各素子のスペクトルに対して主なピークが2つ観測されている。高エネルギー側の半値幅の小さいピークは超格子における発光ピークと思われ、低エネルギー側のピークはIn組成の増大と共に大きく低エネルギー側にシフトすることからInGaAs疑似基板による発光ピークと考えられる。なお、各スペクトルは高エネルギー側にある超格子からの発光ピーク強度により規格化している。ここで超格子からの発光ピークに注目するといずれのタイプにおいても、各グループ内で超格子が同一構造であるにも関わらずその発光ピークは疑似基板のIn組成の増大により低エネルギー側にシフトしている。これは井戸層のバンドギャップが小さくなっていることを意味している。一般に面内に引っ張り歪みを受けるとその歪みの効果によりバンドギャップが小さくなるが、本実験の素子ではいずれのグループの超格子においても疑似基板のIn組成の増大はInGaAs井戸層あるいはGaAs井戸層への引っ張り歪みの増大を意味するため、上記の実験結果およびX線回折で得られた結果とよく一致する。

これらの結果より、疑似基板上に同一条件で成長した同一構造を有する超格子が疑似基板のIn組成に応じてそのバンド構造が変調されていることが確認できた。

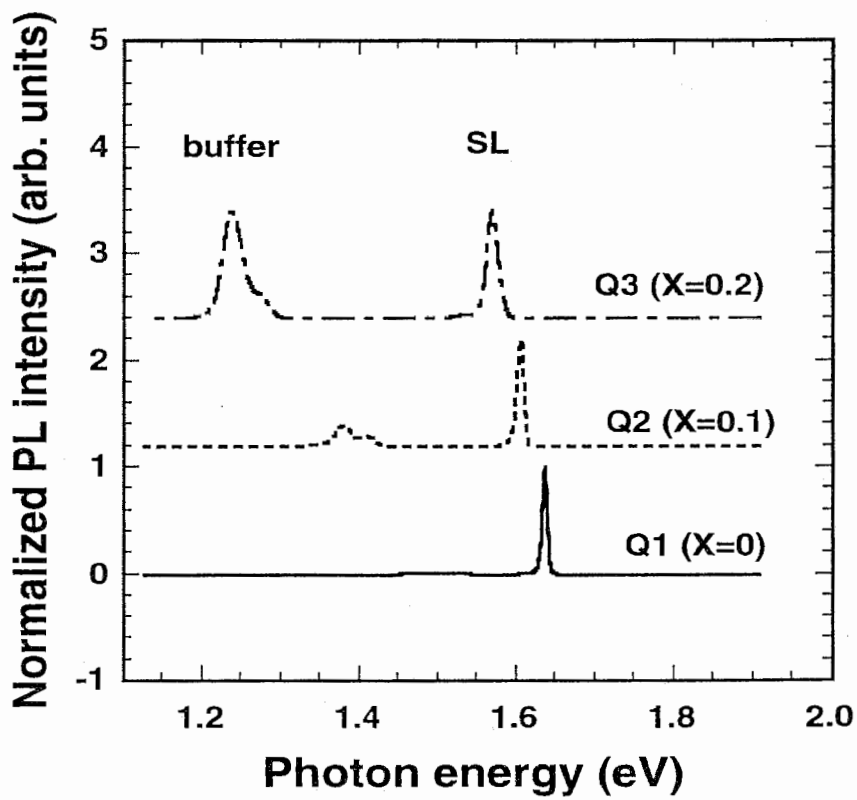
4-3-3 光電流特性

図4-4に室温における光電流特性を示す。(a)はワニエシュタルク型超格子の特性で破線が0Vバイアス、実線が-4Vバイアスの時の特性を示す。3つの素子とも明確なワニエシュタルク局在効果を示しており、-1次のシュタルク階段遷移による吸収も見えている。これらは、基板の格子定数とは異なる格子定数を有する疑似基板上に作製した超格子における初めてのワニエシュタルク局在効果の観測である。

電界をかけることにより局在化した時のe1-hh1遷移エネルギーとe1-lh1遷移エネルギー

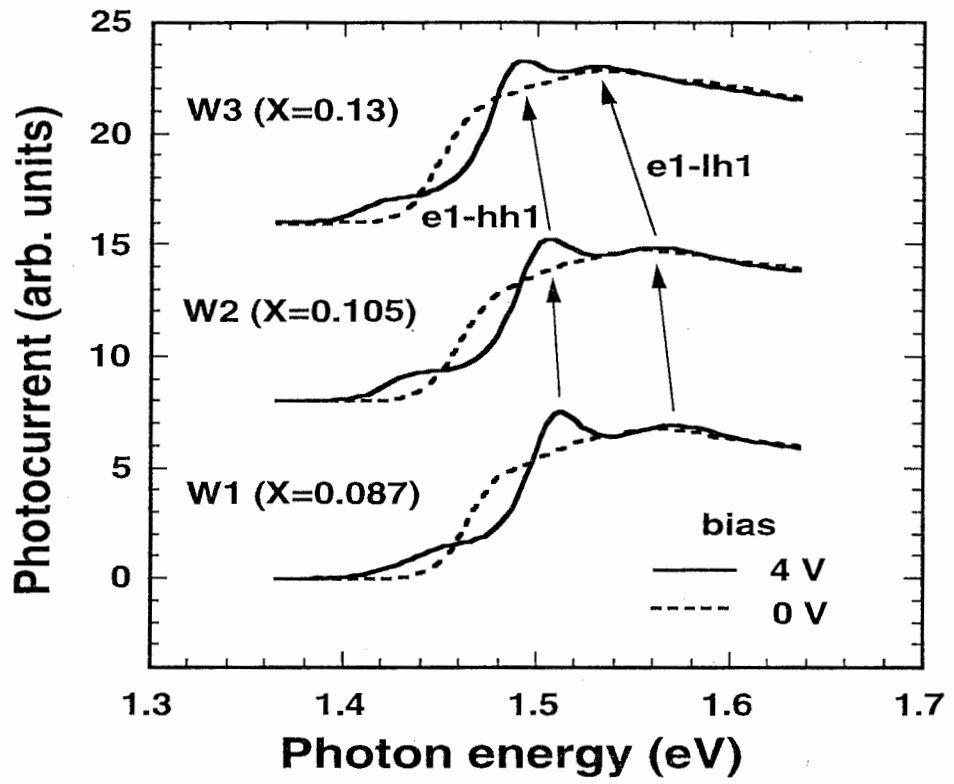


(a)

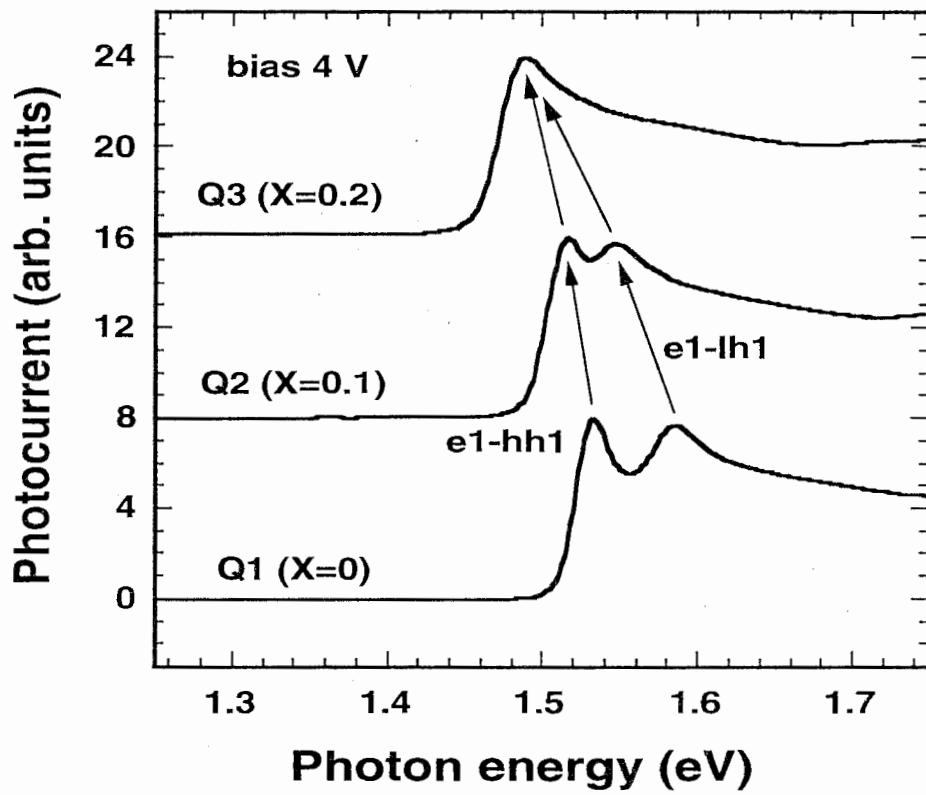


(b)

図 4 - 3 低温における PL 測定結果



(a)



(b)

图 4 - 4 光电流特性

ギーは疑似基板のIn組成の増大にともなって低エネルギー側にシフトしておりPL測定の結果から得られた結果と一致している。さらにe1-hh1遷移エネルギーとe1-lh1遷移エネルギーの差に注目するとIn組成の増大に従って減少しているのがわかる。この傾向は(b)に示したQCSE型の特性において顕著で最もIn組成の大きいQ3では両ピークがほぼ一致して一つのピークしか観測されず、両準位のミキシングが実現されている。

これはIn組成の増大によって井戸層の引っ張り歪みが増し井戸層のバンドギャップが小さくなる際に、light-holeに対する影響がheavy-holeに対する影響より大きいため元々あった有効質量の差に基づく量子効果の差を打ち消してしまったことによると説明できる。

4-4 まとめ

本章ではInGaAs疑似基板上に作製したInGaAs/InAlAs歪み超格子について調べた。その結果、歪み超格子の平均格子定数、歪みを疑似基板のIn組成により制御できることを確認した。これにより超格子中のバンド構造の変調が可能となり適当なIn組成を選ぶことによりこれまで難しかったGaAs基板上における引っ張り歪み井戸層を有する歪み超格子を利用した光変調器を実現できた。

これまで GaAs 基板上的のワニエシュタルク局在効果に基づく光素子は、主として GaAs/AlAs 超格子を用いて研究されてきた。しかし、格子整合系にとらわれていては動作波長領域に限界がある上、また近年、半導体レーザや QCSE 型変調器において導入が盛んな歪み超格子の利用も魅力的である。そこで、本研究では In 材料を導入した GaAs 基板上的のワニエシュタルク局在効果について調べた。その結果、

GaAs 基板上的の InGaAs 疑似基板上的に作製した InGaAs/InAlAs 無歪み超格子の採用により、ワニエシュタルク型 SEED の動作波長の大幅な長波長化を実現できた。

GaAs 基板上的に作製した GaAs/InAlAs 歪み超格子の構造的、光学的特性を調べ、ワニエシュタルク型 SEED においても歪み効果の利用が可能であることを確認した。

GaAs 基板上的の InGaAs 疑似基板上的に作製した InGaAs/InAlAs 歪み超格子の構造的、光学的特性を疑似基板の In 組成で制御できることを示し、井戸層に引っ張り歪みを有する SEED を GaAs 基板上的で実現した。

これらの結果により In 材料の導入がワニエシュタルク型 SEED の応用範囲の拡大および高機能化に有効であることを確認できた。

謝辞

本研究の遂行に際し常にご指導を賜り、また幾多の便宜を図っていただきましたA
T R光電波通信研究所社長 猪股英行博士、前社長 古濱洋治博士（現 郵政省通信
総合研究所 所長）、通信デバイス研究室室長 渡辺敏英博士に深く感謝の意を表しま
す。また、結晶成長におきまして多大のご協力をいただきました大西一氏をはじめとす
る材料グループの方々に感謝致します。

参考文献

- 1) D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood and C. A. Burrus, *Appl. Phys. Lett.* **45**, 13 (1984).
- 2) E. E. Mendez, F. Agulló-Rueda and J. M. Hong, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2426 (1988).
- 3) I. Bar-Joseph, K. W. Goossen, J. M. Kuo, R. F. Kopf, D. A. B. Miller and D. S. Chemla, *Appl. Phys. Lett.* **55**, 340 (1989).
- 4) H. Schneidar, K. Fujiwara, H. T. Grahn, K. v. Klitzing and K. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 605 (1990).
- 5) F. Agullo-Rueda, E.E. Mendez and J.M. Hong, *Phys. Rev.* **B40**, 1357(1987).
- 6) F. Devaux, S. Chelles, A. Ougazzaden, A. Mircea, M. Carré, F. Huet, A. Carencu, Y. Sorel, J. F. Kerdiles and M. Henry, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **6**, 1203 (1994).
- 7) I. K. Czajkowski, M. A. Gibbon, G. H. B. Thompson, P. D. Greene, A. D. Smith and M. Silver, *Electron. Lett.* **30**, 900 (1994).
- 8) K. Fujiwara, K. Kawashima, K. Kobayashi and N. Sano, *Appl. Phys. Lett.* **57**, 2234 (1990).
- 9) B. Pezeshki, D. Thomas and J. S. Harris, Jr., *Appl. Phys. Lett.* **57**, 2116 (1990).
- 10) B. Soucail, N. Dupuis, R. Ferreira, P. Voisin, A. P. Roth, D. Morris, K. Gibb and C. Lacelle, *Phys. Rev.* **B41**, 8568 (1990).
- 11) J. Bleuse, G. Bastard and P. Voison, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 220 (1988).
- 12) R. H. Yan, F. Laruelle and L. A. Coldren, *Appl. Phys. Lett.* **55**, 2002 (1989).
- 13) K. Fujiwara, H. Schneider, R. Cingolani and K. Ploog, *Solid State Comm.* **72**, 935 (1989).
- 14) K. Kawashima, T. Yamamoto, K. Kobayashi and K. Fujiwara, *Phys. Rev.* **B47**, 9921 (1993).
- 15) K. H. Schmidt, N. Linder, G. H. Dohler, H. T. Grahn, K. Ploog and H. Schneider, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2769 (1994).
- 16) K. Kawashima, K. Fujiwara, T. Yamamoto, M. Sigeta and K. Kobayashi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L1542 (1991).
- 17) K. Tominaga, M. Hosoda, K. Kawashima, T. Watanabe and K. Fujiwara, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 141 (1994).
- 18) M. Chandrasekhar and F. H. Pollak, *Phys. Rev.* **B15**, 2127 (1977).
- 19) M. Nakayama, T. Doguchi and H. Nishimura, *J. Appl. Phys.* **72**, 2372 (1992).
- 20) D. J. Arent, *Phys. Rev.* **B41**, 9843 (1990).