GaAs/AlGaAs 多重量子井戸のテラヘルツ非線形分光

篠北啓介、広理英基 [A]、角屋豊 [B]、田中耕一郎 [A]
京都大学大学院理学研究科
京都大学物質-細胞統合システム拠点 [A]
広島大学大学院先端物質科学研究科 [B]

Terahertz Nonlinear Spectroscopy on GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Wells

K. Shinokita , H. Hirori[A], Y. Kadoya[B], K. Tanaka[A]
Department of Physics, Graduate School of Science, Kyoto University
Institute for Integrated Cell-Material Sciences, Kyoto University[A]
Graduate School of Advanced Sciences of Matter, Hiroshima University[B]

It is well known that elementary excitations in the terahertz region play important roles in the cooperative phenomena in various materials. Excitation with the intense terahertz pulse has a possibility to promote non-linear response of materials and macroscopic phase transition. In particular, the non-linear responses of semiconductors to the intense terahertz pulse provide far more information on the fine structure of exciton than linear spectroscopy alone. We observed the nonlinear behavior of exciton under the intense terahertz pulse in GaAs/AlGaAs multiple quantum wells. The exciton energy shift indicates that AC Stark effect competes with dynamical Franz-Keldysh effect and that the terahertz pulse ionizes impurity levels.

1 はじめに

半導体の研究においてテラヘルツ領域は多くの素励起が存在する興味深いエネルギー帯である。特に励起子の内部準位に関する多くの研究がテラヘルツ光を用いて行われている [1] 。

近年になって非線形光学過程によるモノサイクルなテラヘルツパルスの高強度化の技術が発達し、数百 kV/cm の高強度なテラヘルツパルスを用いた実験が可能になった [2, 3]。高強度テラヘルツパルスを用いることで励起子の内部準位の励起に伴う励起子の非線形な応答が期待され、またそのコヒーレントなダイナミクスを時間領域で測定することができる。

1THz のテラヘルツパルスを使って励起子の内部準位を調べるには、励起子の束縛エネルギーが 4.2meV である GaAs を用いるのが適している。励起子の内部準位間のエネルギーをよりテラヘルツ光のエネルギーに近づけるには量子井戸構造をもちいて励起子の束縛エネルギーを強くすればよい。そこで本研究では、GaAs と AlGaAs からなる多重量子井戸を用いて高強度テラヘルツパルスによる励起子の非線形な応答の実時間測定を目標とした実験を行った。

2 試料と実験方法

本研究で用いた試料は MBE 法により作製された多重量子井戸である。この多重量子井戸はクォーツ基盤上に貼付けてられており、上か

らベンゾシクロブテンで覆ってある。井戸層は $Al_{0.34}Ga_{0.66}As$(0.283nm)/GaAs(1.132nm) が 9 層続く超格子構造であり、バリア層は $Al_{0.34}Ga_{0.66}As$(9.905nm) からなる。この井戸層とバリア層が 40 回繰り返される多重量子井戸になっていて、その両端の層はそれぞれ n-dope, p-dope されており、室温では 16kV/cm 程度の内部電場が印加されている。

高強度テラヘルツ光発生には $\chi^{(2)}$ 過程による非線形光学過程を用いた。Clark 社製の再生増幅されたチタンサファイヤレーザー (繰り返し周波数 1kHz, 中心波長 780nm, 580mW, パルス幅 120fs) からの光を回折格子でパルス面の空間制御を行い、非線形結晶である Mg:$LiNbO_3$ に入射することで高強度なテラヘルツ光を発生させた。このように空間制御で位相整合条件をうまく満たすことで 100kV/cm 程度の高強度のテラヘルツ電場が得られる [2, 3]。発生したテラヘルツ光は放物面鏡でガイドし、試料の位置で一旦絞ったあと EO サンプリングのため GaP 結晶に照射した。またテラヘルツ電場強度依存性を測定するためにワイヤーグリッドを用いた。

チタンサファイヤレーザーからの光は無偏光ビームスプリッターで分けてテラヘルツ光発生の他に、テラヘルツ光検出あるいはプローブのための白色発生に用いた。検出用のビームは時間遅延をつけた後、GaP 結晶に集光した。テラヘルツ光によって生じた楕円偏光度によりテラヘルツ光の時間波形を測定することができる。

あるいは水に集光して発生させた白色を用いてテラヘルツ照射による試料の吸収のスペクトル変化を測定した。

実験は低温 6K のもとでおこなった。この温度では不純物からの熱的キャリアの励起による内部電場は無視することができ、キャリアは不純物に捕獲されていると考えられる。

3 実験結果と考察

図 1 の挿入図に示したのが励起に用いたテラヘルツ光の電場波形である。テラヘルツ光の電場強度が最大になるときを時間原点とおいた。テラヘルツ電場波形上のそれぞれの点の時刻での吸収スペクトルを図 1 に示した。時刻 $t = -2$ps でみられる 1.646eV と 1.663eV の吸収ピークはそれぞれ重い正孔からなる励起子 (1e1hh) と軽い正孔からなる励起子 (1e1lh) である。これらは量子井戸構造にすることで分離している。

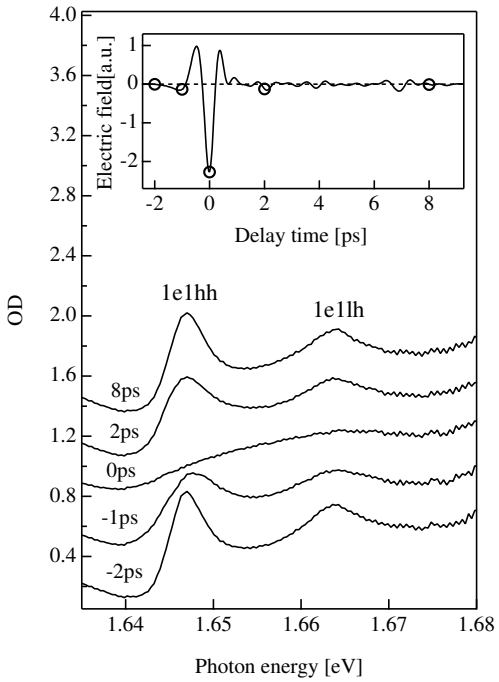

図 1: テラヘルツ光照射による可視領域の吸収の時間変化: 挿入図はテラヘルツ電場の時間波形

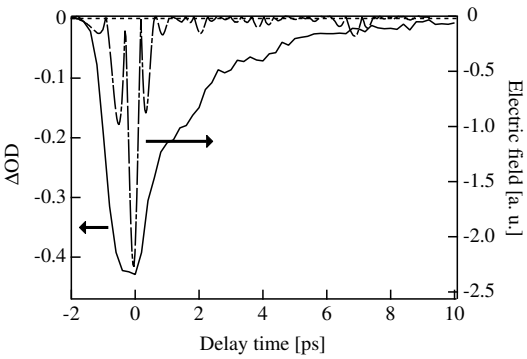

図 2: 1.646eV での吸収ピークの時間発展とテラヘルツ電場波形の絶対値のマイナス

これらの励起子のピークはテラヘルツ電場がかかるにつれブロードになっていき、時刻 $t = 0$ps で完全につぶれて励起子がイオン化していることがわかる。またテラヘルツ光の電場ピークのあとでは励起子ピークが徐々に回復していくが、時刻 $t = 2$ps でも励起子の吸収ピークは完全にはもとに戻らず、$t = 8$ps でようやく励起子ピークがほぼ回復する。

この時間発展を詳しくみるため、1.646eV での重い正孔による励起子の吸収ピークの時間発展を示したのが図 2 である。同時に示したテラヘルツ光の電場波形の絶対値のマイナスと比べると、この応答がテラヘルツ電場に対して即時応答ではなく、指数関数的な寿命を持つことがよくわかる。この応答は [4] などでみられる即時応答とは対照的である。

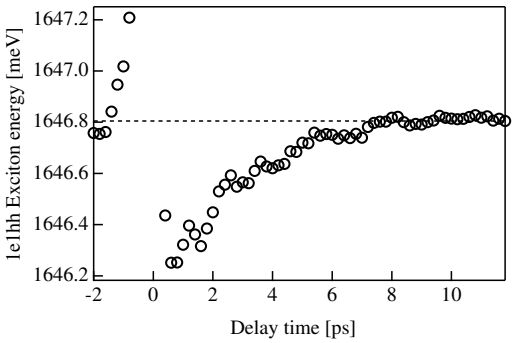

図 3: 重い正孔による励起子の励起子エネルギーの時間発展

さらに図 1 より $t = -2$ps での重い正孔による励起子ピークの位置に比べて $t = -1$ps ではブルーシフトしていることがわかる。また $t = 2$ps では $t = -2$ps のときに比べてわずかにレッドシフトしている。励起子のピークの位置をフィッティングによって求めてその時間発展を示したのが図 3 である。$t = 0$ps 付近では励起子は完全にイオン化してしまっているため励起子のピークの位置は示していない。負の時間では励起子エネルギーがブルーシフトしているのに対して、正の時間ではレッドシフトしていることがわかる。また正の時間での励起子エネルギーのシフトは吸収とよく似た時間発展をすることがわかる。

以下ではテラヘルツ電場に対する即時応答と寿命の 2 つの時間領域に分けてこの現象を議論する。

3.1 励起子のテラヘルツ電場変調

テラヘルツ電場に対して即時応答を示す成分はテラヘルツ電場による励起子エネルギーの変調によるものであると考えた。時刻 $t = 0$ps では完全にイオン化してしまっているため、$t = -1$ps における励起子のエネルギーシフトを異なるテラヘルツ電場強度で測定したのが図 4 である。強度が弱いときは励起子エネルギーはレッドシフトするのに対して、強度が強くなるとブルーシフトしていることがわかる。この応答は AC Stark 効果と動的 Franz-Keldysh 効果の競合によって引き起こされると考えられる [5]。

テラヘルツ電場の強度が弱いときの AC Stark 効果によるエネルギーシフトは

$$\Delta \propto \frac{(\omega_{\mathrm{THz}} - \omega_{12})E_{\mathrm{THz}}^2}{(\omega_{\mathrm{THz}} - \omega_{12})^2 + \Gamma^2} \tag{1}$$

でかける。ここで考えているのは励起子の $1s \to 2p$ 遷移であり、ω_{12} と Γ はそれぞれ $1s \to 2p$ の遷移エネルギーと線幅である。よってテラヘルツ電場の周波数が遷移エネルギーに比べて小さいときはレッドシフトすることがわかる。ただしテラヘルツ電場が強くなると 2 次の応答から線形な応答にかわる。一方で動的 Franz-Keldysh によるエネルギーシフトは常にテラヘルツ電場に対して 2 乗に比例するブルーシフトをもたらす。

本実験では $\omega_{12} > \omega_{\mathrm{THz}}$ とみなせるので、テラヘルツ電場強度を強くすることで AC Stark 効果がしだいに飽和していき動的 Franz-Keldysh 効果が支配的になりレッドシフトからブルーシフトに変化したと考えられる。また図 3 をみると $t = 10$ps では $t = -2$ps よりもブルーシフトしているようにみえるが、これはおそらく今回測定した時間領域の問題である。$t = -2$ps 以前では励起子は $t = 10$ps での励起子エネルギーをもっていると考えられ、したがって実際

には $t = -2$ps でレッドシフトしたのちブルーシフトに移行したのではないかと考えられる。よってこれが正しいとすると、時間領域で AC Stark 効果から動的 Franz-Keldysh 効果への移行が期待される。

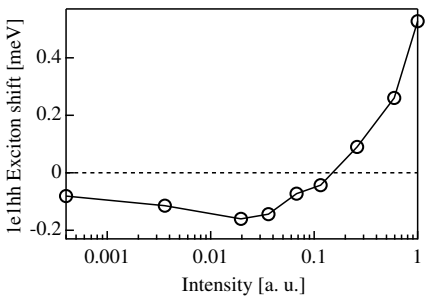

図 4: $t = -1$ps での重い正孔による励起子のエネルギーシフトのテラヘルツ電場強度依存性

3.2 不純物準位のイオン化

正の時間で見られる吸収変化はテラヘルツ電場に対して即時応答でないことから仮想励起ではなく、キャリアの実励起が起こっていると考えられる。このキャリア励起としてはテラヘルツパルスによる価電子帯から伝導帯への多光子励起や不純物準位のトンネル電離などが考えられる。図 5 に示したのが励起子の吸収の寿命と励起子エネルギーシフトの寿命の比較である。これより両者の寿命はほぼ一致しているために同じ現象に起因する応答であると考えることができる。

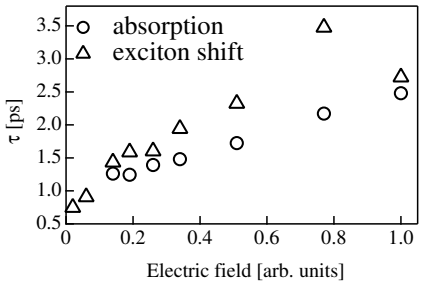

図 5: 励起子の吸収とエネルギーシフトの寿命の強度依存性

さらに図 3 よりその現象は励起子エネルギーのレッドシフトをもたらすことを考慮すると、正の時間における吸収変化は不純物準位のトンネル電離によって生成したキャリアによるものであり、同時に、キャリアがつくる井戸の積層方向の内部電場によって励起子エネルギーがレッドシフトしていると考えられる。

また図 5 より吸収変化の寿命がテラヘルツ電場強度に対して単調に増加することから、キャリアの緩和過程は不純物準位から生成したキャリアがテラヘルツ電場で加速されたのち不純物準位に再び捕獲されていると予想できる。

4 まとめと展望

本研究ではドープされた GaAs/AlGaAs 多重量子井戸の高強度テラヘルツ光照射による可視領域での吸収変化を時間領域で測定した。吸収変化は 2 成分あり、即時応答は励起子の AC Stark 効果と動的 Franz-Keldysh 効果の競合であると考えられる。吸収変化の寿命は不純物準位から生成したキャリアが再び不純物準位に緩和する過程をみているとみなせる。

今後はプラズマ発生による広帯域高強度のテラヘルツパルスを用いることで $1s \rightarrow 2p$ のエネルギーより上のエネルギーでの励起に対する励起子の非線形な応答を詳しく調べていく。

参考文献

[1] R. A. Kaindl *et al.,* Phys. Rev. B **79**, 045320 (2009)

[2] J. Hebling *et al.,* Opt. Express, **10**, 1161 (2002).

[3] M. Nagai *et al.,* Opt. Express, **17**, 11543 (2009).

[4] J. R. Danielson *et al.,* Phys. Rev. Lett. **99**, 237401 (2007)

[5] K. B. Nordstrom *et al.,* Phys. Rev. Lett. **81**, 457 (1998)

[6] S. D. Ganichev *et al.,* Phys. Solid State **39**, 1703 (1997).