

# 波形整形したテラヘルツパルスを用いた Ge のアクセプター 一準位間遷移のコヒーレント応答

掃部豊, 永井正也, 蓑輪陽介, 松原英一, 芦田昌明  
阪大基礎工

## Coherent transition between shallow acceptor levels in Ge using the shaped THz pulses

Y. Kamon, M. Nagai, Y. Minowa, E. Matsubara, M. Ashida  
Graduate School of Engineering Science, Osaka University

### *Abstract*

We demonstrate a nonlinear response using shaped incident THz pulses in gallium-doped germanium (Ge:Ga), which has a shallow acceptor level with 12-meV binding energy. While the coherent transition was dominant under the multi-cycle pulse excitation, but that non-perturbative phenomena, such as the ionization of shallow impurities, competed with the conventional coherent transition under the single-cycle pulse excitation.

### 1. はじめに

ラビ振動などの 2 準位電子系のコヒーレント過渡光学応答は、光と物質の相互作用を考える上で最も基本的な現象であり、これまで Slowly Varying Envelope 近似 (SVEA) や回転波近似 (RWA) を用いることで、励起光の中心周波数やパルス面積を基とした理論で議論されてきた。

近年のレーザー技術の進歩により、数サイクル光パルスが容易に得られるようになった。そして高次高調波発生[1]など、SVEA や RWA が適用できない非線形現象が観測されるようになったが、2 準位電子系での実験は、波形制御が容易な RF パルスでの報告しかない。[2]

超短光パルスの波長変換技術の進歩により、テラヘルツ (THz) 周波数帯の高強度のモ

ノサイクルパルスが容易に得られるようになった。非線形結晶による光整流過程で発生したパルスの電場振幅は 1MV/cm を超え、またその絶対位相がロックされていることから、THz 非線形光学応答が観測されるようになった。我々のグループでは、受動素子を用いて高強度のモノサイクル THz パルスの波形を整形する技術を確立している。そこで本研究では、波形整形された THz パルスを用いて、半導体の非線形光学応答が入射電場波形にどのように影響するかを調べた。[3]

### 2. 試料

試料としては、2THz に、アクセプター準位に起因する吸収がみられる p 型のゲルマニウム (Ge) を用いた。ガリウム (Ga) をドーピングしたゲルマニウム (Ge:Ga) におけるアク

セプター準位は約 12meV であり、そのエネルギー準位は水素のリドベルグ原子同様に扱うことができる。図 1(a)は厚さ 0.5mm、抵抗率  $2\Omega\cdot\text{cm}$  の、Ge:Ga における THz 吸収スペクトルである。室温では、自由電子による吸収が低周波数側でみられる。低温では、約 2THz 近傍で 2 つの鋭い吸収線がみられる。この低温における 2 つの鋭い吸収は、図 1(b) のような 2 つの不純物準位間 (C 遷移、D 遷移) の遷移に起因する吸収と同定される。

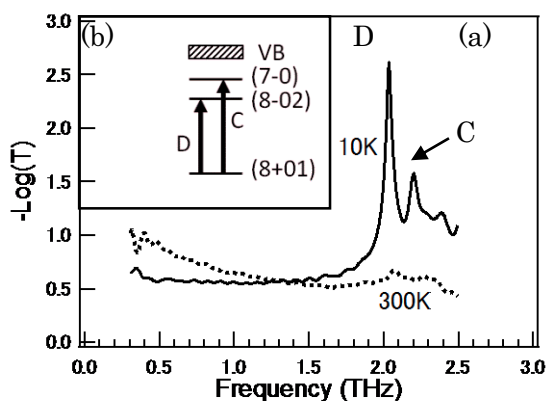
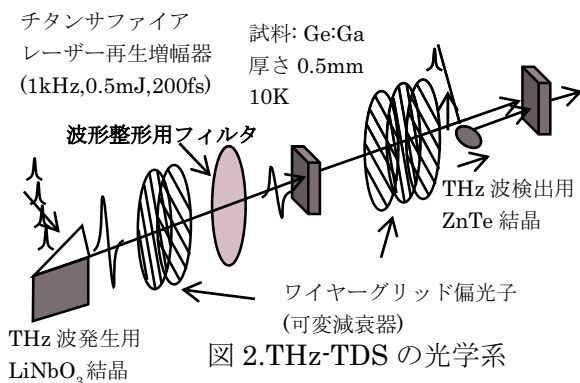


図 1. (a) 低温(10K)、室温(300K)における Ge:Ga (0.5mm,  $2\Omega\cdot\text{cm}$ ) の THz 吸収スペクトル。(b) 不純物準位間遷移(C 線、D 線)のエネルギーダイアグラム。

### 3. 実験方法

#### 3.1 実験配置と波形整形技術



実験では異なる電場波形と電場振幅の

THz パルスをそれぞれ 10K の Ge:Ga に入射しその透過波形をテラヘルツ時間領域分光法(THz-TDS)により測定した。図 2 は本実験における光学系の模式図である。高強度 THz パルスの発生にはパルス面を傾斜させた光パルスの LiNbO<sub>3</sub> 結晶内における光整流効果を用いた。サンプル位置でのパルス強度は LiNbO<sub>3</sub> 結晶直後に配置したワイヤーグリッド偏光子対を用いて調整し、複素透過率の入射電場強度依存性を測定した。サンプルを通過した THz 電場の実時間波形は ZnTe 結晶を用いた電気光学(EO)サンプリング法により測定した。

また、図 2 のように、サンプルの前に、以下で述べるような波形整形用フィルタを挿入することにより、入射 THz 電場波形を制御することができる。以下に詳細を述べる。

#### 3.2 THz パルスの波形整形技術

入射 THz パルスの電場波形の制御は、図 2 の波形整形用フィルタ部分に、①多層金属平行平板、②2.0THz のバンドパス金属メッシュフィルタを挿入することで行った。

図 3 に実験で用いた入射電場の時間波形とスペクトルを示す。エミッタから発生した THz パルスは図 3(a) のような時間波形をしている。これは包絡関数  $A(t)$  として  $A(t)\cos(\omega t)$  で記述できる (cos-like パルス)。しかし、金属平板に平行な偏光配置で THz パルスを入射すると、TE モードの分散の寄与で(b)のような時間波形となる。これは  $A(t)\sin(\omega t)$  と表せる (sin-like パルス)。このように THz パルスの絶対位相を制御できる。また、②を挿入することで、図 3(c) のようにパルスのサイクル数を制御できる。

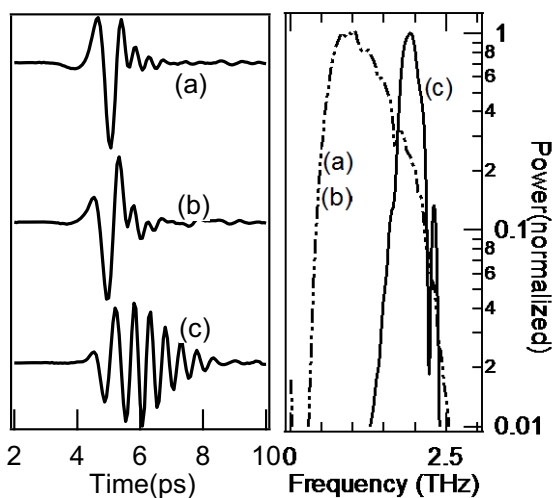


図 3. 実験で用いた電場波形と、それぞれのスペクトル。(a)マルチサイクルパルス(b)モノサイクルパルス

#### 4. 実験結果と考察

##### 4.1 実験結果

図 4. は (a) マルチサイクル、(b) モノサイクル THz パルスを入射した際の Ge:Ga 結晶中での電場波形 (細線) と誘導分極からの再放射成分 (自由誘導減衰成分) (太線) の電場波形を示している。入射光電場は結晶表面におけるフレネル損失を考慮して評価した。また、透過光は入射光と誘導分極からの再放射光の和であることから、再放射成分を抽出することができる。

マルチサイクル励起パルスを入射した場合、振幅の増加によって再放射成分は抑制されていく。入射電場が  $8E_0$  (1.6 kV/cm) の時、D 遷移の吸収飽和により、入射パルスと共に消滅する。 $16E_0$  (3.3 kV/cm) 時の再放射の出現は、D 遷移のラビ振動に対して、わずかに C 遷移の影響を受けているためであると考えられる。

図 5. にこれらの再放射光のパワースペクトルを示す。D 遷移である 2.04 THz のスペクトル成分は、入射電場強度とともに減衰し、 $16E_0$  の電場強度では消失しているこ

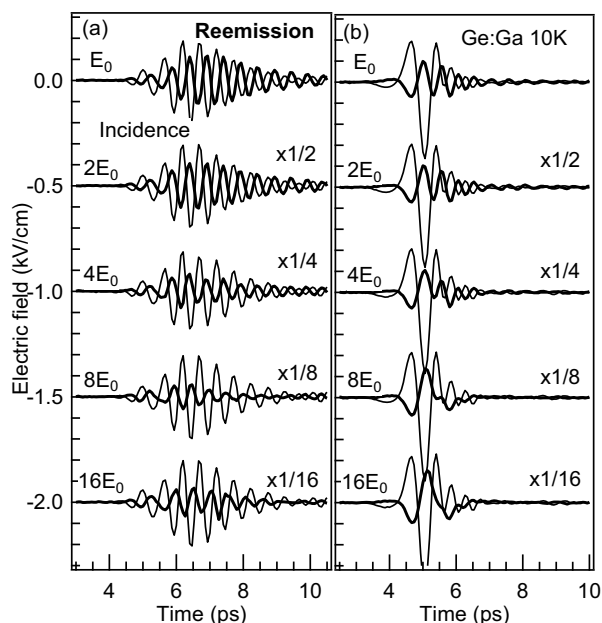


図 4. Ge:Ga 結晶中における電場波形 (細線) と、誘導分極からの再放射成分 (自由誘導減衰成分) の電場波形 (太線)。(a) はマルチサイクル、(b) はモノサイクル THz 入射電場を用いた場合。入射電場波形は入射電場強度で規格化している。

とがわかる。

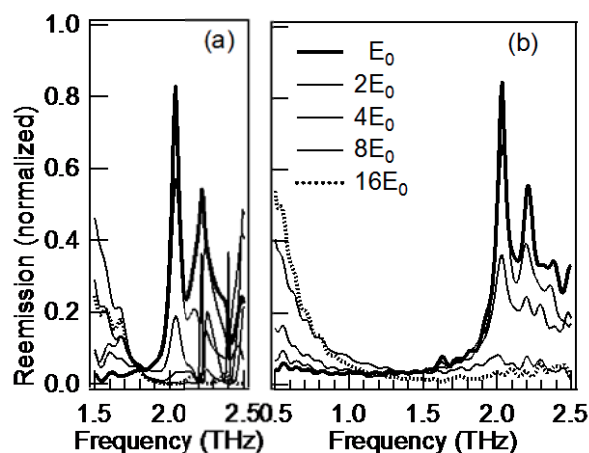


図 5. 入射電場強度を変化させることで誘起された分極からの再放射光のスペクトル。それぞれ図 4. に対応し、入射電場強度で規格化している。

モノサイクル励起パルスを入射した場合、弱励起下ではマルチサイクル励起パルスの時と同様に、D 遷移および C 遷移の自由減衰振動がみられるが、電場強度が、 $16E_0$  (6.4 kV/cm)ではこれらの振動が完全に消失する。図 4.2(b)に示すように低周波側の再放射成分が支配的になる。このようなモノサイクル励起パルスの応答は、金属平行平板を用いて励起パルスの絶対位相を変えても、その振る舞いには元と比べて明確な変化がなかった。

## 4.2 考察

エリア理論は、2 準位電子の状態密度を定義し、リュービル方程式を回転波近似で展開したものとして確立している。計算で得られる密度行列の対角項は、対応する電子準位のポピュレーションであり、非対角項は遷移双極子を表す。この遷移双極子からの放射（時間微分に比例）が、本実験で得られた再放射成分に相当する。そこで、回転波近似を用いずにリュービル方程式を展開して、再放射の時間波形を計算すると、マルチサイクルTHz励起パルスの場合の実験結果がほぼ再現された。モノサイクルパルスにおいても同様の計算が可能であり、再放射成分は入射THzパルスの絶対位相に依存して変化することが予想された。実際に計算結果では 3.2KV/cm 以上で cos-like パルスと sin-like パルスの両者に明確な応答の違いが出るのだが、実験ではそれが再現されなかった。

このような計算と実験結果の不一致について以下のように考察する。Ge:Ga における D 遷移の振動子強度 ( $f=0.095$ )が非常に小さいため、（水素原子の 1s-2p 遷移は

$f=0.42$ )、ラビ振動が生じる入射電場強度に達する前にアクセプターがイオン化してしまった結果、低周波成分に由来する応答が支配的になったと考えられる。（高強度の電場によるトンネルイオン化） [4]

## 5. まとめと展望

THz パルスの位相を制御し、波形を変化させることで、Ge:Ga のアクセプター準位におけるコヒーレント過渡応答を系統的に調べた。モノサイクル励起の場合、高強度の入射光では、2 準位系のコヒーレント過渡応答の CEP 依存性が見え始める電場強度以下で、アクセプターのイオン化が起こってしまう。

これをイオン化が生じる電場強度以下でラビ振動を観測するためには、より大きな遷移双極子モーメント(Ge:Sb の  $P_{\pm}$ 遷移の振動子強度  $f=0.21$ )をもつ不純物準位遷移(n 型 Ge)か、イオン化が生じにくい結合量子井戸のサブバンド間遷移の系が望ましい。 [5]

## 参考文献

- [1] A. Baltuska et al., Nature **421**, 611 (2003).
- [2] H. Li et al., Phys. Rev. Lett. **104**.103001 (2010).
- [3] M. Nagai et al., New J. Phys. **15** 06512 (2013).
- [4] E. Rotsaert et al. J. Appl Phys. **65**, 730 (1989).
- [5] P. Clauws et al., Phys. Rev. B **38**, 12377 (1988).