Resonant interaction of excitonic quantum beats and coherent LO phonons in GaAs/AlAs multiple quantum wells

○小島 磨、溝口 幸司^A、中山 正昭^A (情報通信研究機構、^A大阪市立大学大学院)

○Osamu Kojima, Kohji Mizoguchi^A, Masaaki Nakayama^A (NICT, ^AOsaka City University)

1. はじめに

半導体多重量子井戸(MQW)における励起子量子ビートおよびコヒーレントフォノンは、励起子やフォノンのダイナミクスに関する物理的興味に加えて、テラヘルツ電磁波発生デバイスへの応用という観点からも盛んに研究されている。しかしながら、励起子エネルギーの制御性を利用した励起子量子ビートとコヒーレントフォノンの相互作用に関する研究は、我々の報告以前にはまったく報告されていなかった。今回、我々は、GaAs/AlAs MQWを試料として、励起子エネルギーを制御し、重い正孔(HH)-軽い正孔(LH)励起子分裂エネルギー(ΔE_{HH-LH})を縦光学(LO)フォノンエネルギーと共鳴させることで、励起子量子ビートとの結合によりコヒーレント LO フォノンの増幅が可能であることを見出したので[1-4]、その結果について報告する。この増幅は、励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンが縦分極を介して共鳴相互作用するために生じる。 ΔE_{HH-LH} が GaAs の LO フォノンエネルギー(E_{LO})とほぼ一致する MQW において、コヒーレント GaAs 型 LO フォノンと励起子量子ビートの強度は、同じポンプ光エネルギー依存性を示す。これは、励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンが共鳴相互作用していることを明確に示すものであり、励起子量子ビートがコヒーレント LO フォノンのドライビングフォースとして働いていると考えられる。

2. 実験

試料には、分子線エビタキシー法により作製した(GaAs)_m/(AlAs)_m MQWを用いた。ここで、添字の $m(m=18, 25, 35)$ は、構成原子層数を表す。以後、各試料を(18,18)、(25,25)および(35,35) MQW と呼ぶ。発光励起(PLE)スペクトルから見積もった ΔE_{HH-LH} は、それぞれ、38、28、15 meV である。 E_{LO} が約 37 meV であるので、(18,18) MQW の ΔE_{HH-LH} は、 E_{LO} とほぼ一致しており、この試料において、励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンの共鳴相互作用が期待できる。時間分解反射率変化の測定は、時間分解反射型ポンプ・プローブ法により行った。光源には、パルス幅約 100 fs のモード同期 Ti:sapphire パルスレーザーを用い、そのエネルギーを 1.56 から 1.72 eV の間で変化させた。ポンプ光強度を $0.18 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ とし、測定は 10 K で行った。

3. 実験結果と考察

図 1 は、上から(35,35)、(25,25)および(18,18) MQW において 10 K で測定した時間分解反射率変化の微分信号である。ポンプ光エネルギーは、各試料における HH 励起子と LH 励起子の中心エネルギーである。各時間領域信号は、二つの振動構造から構成されている。一つは、1.5 ps 以内で減衰する強い振動構造であり、もう一方は、1.5 ps 以降の時間領域で 4.0 ps 以上続く長い振動構造である。強い振動構造の周期は、(35,35)、(25,25)および(18,18) MQW でそれぞれ 275、148 および 109 fs であり、これらの周期は、それぞれの試料における ΔE_{HH-LH} に対応している。したがって、この振動構造は、HH-LH 励起子量子ビートによるものである。一方、

1.5 ps 以降の振動構造の周期は、すべての試料で 113 fs で一定であり、この周期は、 E_{LO} に対応している。したがって、この 4.0 ps 以上続く長い振動構造が、コヒーレント GaAs 型 LO フォノンによるものである。ここで注目すべきは、励起子量子ビートの振幅がすべての試料においてほとんど同程度であるにもかかわらず、コヒーレント LO フォノンの振幅は、構成原子層数に明らかに依存しており、(18,18) MQW のコヒーレント LO フォノンの振幅が、(35,35) MQW の約 20 倍に増幅されている点である。挿入図は、コヒーレント LO フォノンの振幅(A_{LO})を励起子量子ビートの振幅(A_{QB})で規格化し、 ΔE_{HH-LH} と E_{LO} のエネルギー差の絶対値でプロットしたものである。この図は、コヒーレント LO フォノンの振幅が構成原子層数に依存しており、さらに、 ΔE_{HH-LH} を E_{LO} に近づけることで共鳴的にコヒーレント LO フォノンが増幅されることを明確に示している。

(18,18) MQW で観測されたコヒーレント LO フォノン増幅の起源を調べるために、時間領域信号のポンプ光エネルギー依存性を測定した。その結果を図 2 に示す。全てのポンプ光エネルギーにおいて、励起子量子ビートとコヒーレント GaAs 型 LO フォノンによる振動構造が観測されており、それぞれの振幅はポンプ光エネルギーに依存している。(18,18) MQW における励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンの強度のポンプ光エネルギー依存性を明らかにするために、全ての時間領域信号をそれぞれ[0.2–1.5 ps]

図 1. (35,35)、(25,25)および(18,18) MQW における 10 K での時間分解反射率変化の微分信号。挿入図はコヒーレント GaAs 型 LO フォノンと励起子量子ビートの振幅比を、 ΔE_{HH-LH} と E_{LO} のエネルギー差の絶対値でプロットした結果。

と[1.5–4.0 ps]の二つの時間領域に分割し、時間分割フーリエ変換(FT)を行った。そのFT強度をポンプ光エネルギーに対してプロットした結果が図 3(a)である。図中の破線は、PLE スペクトルから見積もった HH 励起子および LH 励起子エネルギーを表している。(18,18) MQW では、励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンとは、どちらも HH 励起子エネルギーと LH 励起子エネルギーとの中心付近でピークを示しており、同じポンプ光エネルギー依存性である。同様の測定を、励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンがほとんど相互作用していないと考えられる(35,35) MQW に対して行った。その結果を図 3(b)に示す。(35,35) MQW では、励起子量子ビートの強度は、HH 励起子エネルギーと LH 励起子エネルギーとの中心付近でピークとなるのに対し、コヒーレント LO フォンは、LH 励起子エネルギー付近でピークを示す。

励起子量子ビートの強度のポンプ光エネルギー依存性は、どちらの試料においても HH 励起子と LH 励起子の中心エネルギー付近でピークを示す。励起子量子ビートの強度が HH 励起子エネルギーと LH 励起子エネルギーとの中心付近で最大となるのは、妥当な結果である。そこで、コヒーレント LO フォノンの結果に着目する。励起子がコヒーレント LO フォノンの生成機構に寄与するのであれば、その強度は、励起子エネルギー近傍で共鳴的に大きくなると考えられる。(35,35) MQW の結果は、この励起子共鳴効果で説明することができる。しかしながら、(18,18) MQW の結果は、このような励起子共鳴効果では説明できない。(18,18) MQW では、コヒーレント LO フォノンと励起子量子ビートのポンプ光エネルギー依存性が同じであることから、コヒーレント LO フォノンが励起子量子ビートと結合していると考えられる。

ここで、励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンの結合機構について議論する。MQW の成長方向に電場が存在する場合、励起子量子ビートによる縦分極が発生する。これは、量子閉じ込めシュタルク効果により、量子井戸内の電子および正孔の包絡波動関数が非対称化することに起因する。一般に、半導体では表面電場が存在しているため、外部電場がなくても励起子量子ビートによる縦分極が発生する。LO フォンンは縦分極であるので、二つのコヒーレント振動のエネルギーが近い場合、縦分極を介して、励起子量子ビートがコヒーレント LO フォノンと相互作用すると考えら

図 2. (18,18) MQW における時間分解反射率変化の微分信号のポンプ光エネルギー依存性。

図 3. (a) (18,18) MQW および(b) (35,35) MQW における励起子量子ビート(○)とコヒーレント LO フォノン(●)の時間分割 FT 強度のポンプ光エネルギー依存性。破線は PLE スペクトルから見積もった励起子エネルギーを表す。

れる。つまり、 $\Delta E_{\text{HH-LH}}$ が E_{LO} とほぼ一致している(18,18) MQW では、励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンが共鳴相互作用により結合するために、励起子量子ビートがコヒーレント LO フォノンのドライビングフォースとして働き、コヒーレント LO フォノンの振幅を 20 倍程度増幅させたと考えられる。

4. まとめ

GaAs/AlAs 多重量子井戸構造を試料として、反射型ポンプ・プローブ法を用い、コヒーレント LO フォノンと励起子量子ビートの共鳴相互作用に関する研究を行った。 $\Delta E_{\text{HH-LH}}$ が E_{LO} とほぼ一致している (18,18) MQW では、一致していない(35,35) MQW とくらべて約 20 倍にコヒーレント LO フォノンが増幅された。この増幅が、励起子量子ビートとコヒーレント LO フォノンの結合に起因していることを、ポンプ光エネルギー依存性から明らかにした。本研究の結果は、コヒーレント LO フォノンの振幅が、励起子量子ビートとの共鳴相互作用により増幅できることを示している。

また、我々は *p-i-n* 構造に埋め込んだ GaAs/AlAs MQW に電場を印加し、量子閉じ込めシュタルク効果により励起子エネルギーと包絡波動関数の対称性を制御することで、コヒーレント LO フォンを増幅できることを見出している[5]。さらに最近、GaAs/AlAs MQW において、フォノンの閉じ込め効果に起因するコヒーレント LO フォノンからの高強度なテラヘルツ電磁波発生が報告されている[6]。したがって、本研究成果の応用により、コヒーレント LO フォンを利用した更なる高強度テラヘルツ電磁波デバイスの開発が将来的に期待される。

- [1] O. Kojima, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, Phys. Rev. B **68**, 155325 (2003).
- [2] O. Kojima, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, J. Lumin. **108**, 195 (2004).
- [3] K. Mizoguchi, et al, Phys. Rev. B **69**, 233302 (2004).
- [4] T. Furuichi, et al, J. Lumin. **112**, 142 (2005).
- [5] O. Kojima, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, Phys. Rev. B **70**, 233306 (2004).
- [6] K. Mizoguchi et al, Appl. Phys. Lett. **87**, 093102 (2005).