

# 高温での GaP のフォトリフラクティブ効果 における電子正孔の競合効果

Electron and Hole Competition in Photorefractive Effect in GaP at High Temperature

志村 努\*・本田 澄典\*\*・黒田 和男\*・塚越 幹郎\*\*

Tsutomu SHIMURA, Suminori HONDA, Kazuo KURODA and Mikiro TSUKAGOSHI

## 1. はじめに

フォトリフラクティブ効果は、光の強度分布に応じて結晶内の電位の空間分布が変化し、これにより生じた内部電場により電気光学効果を介して屈折率が変化する現象である<sup>1)</sup>。光の干渉縞の強度分布を屈折率の回折格子として記録することができるため、現像不要の実時間でホログラムの記録が可能である。また書き込んだホログラムを対向する参照波で読み出すことにより、あたかも時間が反転したかのように進行する位相共役波を作り出すこともできる。さらに後に述べる 2 光波混合により光増幅を行うことも可能である。

フォトリフラクティブ結晶としては、ニオブ酸リチウム (LiNbO<sub>3</sub>) やチタン酸バリウム (BaTiO<sub>3</sub>) 等の強誘電性結晶が代表的であるが、半絶縁性の化合物半導体もフォトリフラクティブ効果を示し<sup>2)~5)</sup>、半導体レーザーを光源とした光学系の集積化にはこちらが有利であると考えられている。また半導体フォトリフラクティブ結晶は強誘電体に比べ屈折率変化は小さいものの応答速度が速く、デバイスとしての高速化も期待されている。

われわれはこれまでに III-V 族半導体で GaAs や InP に比べバンドギャップが広く、可視域まで感度を持つ GaP に関して様々な測定を行い、この結晶でのフォトリフラクティブ効果に関わる不純物準位などのパラメータを求めてきた<sup>5)~7)</sup>。本論文では 400 K 付近の高温におけるフォトリフラクティブ効果の測定データから電子と正孔からの寄与を分離し、ドナーとアクセプターの 2 つの不純物準位を考えたモデルにより電子と正孔の競合効果について論じる。

## 2. フォトリフラクティブ 2 光波混合

2 本のコヒーレントな光をフォトリフラクティブ結晶中

で交差させると、生じた干渉縞によって書き込まれた屈折率格子を介して 2 光波は結合する。Maxwell の方程式により電荷は電場の空間微分に比例するため、一般に光の干渉縞とこれにより書かれた回折格子には位相ずれが生じ、一方のビームから他方への非対称な光パワーの移乗がおこる。位相ずれの大きさが格子のピッチの  $\pm 1/4$  のとき最大で、符号によりパワーの移乗の向きが決まる<sup>1)</sup>。

弱いプローブ光をポンプ光により増幅する場合を考えると、プローブ光を常に一定の光量で結晶に入射させながら、図 1 に示すようなタイミングでポンプ光と消去光を結晶に入射させるとする。消去光はプローブ光とはインコヒーレントな光を用いる。不純物準位がひとつの場合にはポンプ光が入射した直後からプローブ光の出力は  $t$  を時間として、

$$I_p(t) = I_{p0} [1 + x \{1 - \exp(-t/\tau)\}] \quad (1)$$

の形で指数関数的に増加する。ここで  $I_p(t)$  は増幅されたプローブ光の出力、 $I_{p0}$  はポンプ光を切った場合のプローブ光の出力、 $x$  は飽和値、 $\tau$  は時定数であり、結晶の方位とキャリアの符号により  $x$  の正負が決まる。2 光波混合の結合定数  $\Gamma$  は、結晶の厚みを  $L$  として

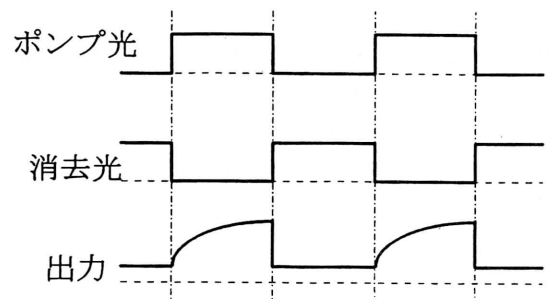


図 1 ポンプ光と消去光の入射のタイミング。ポンプ光が入っている間は、プローブ光は増幅され、指数関数的に飽和値に近づく。

\*東京大学生産技術研究所 第 1 部

\*\*東京理科大学

研究速報

$$\Gamma = \frac{1}{L} \ln(1+x) \quad (2)$$

で求められる<sup>6)</sup>. この結合定数 $\Gamma$ と回折格子のピッチ168との間には,

$$(\Gamma\Lambda)^{-1} = \frac{a}{k_B T} \left( 1 + \frac{\Lambda_D^2}{\Lambda^2} \right) \quad (3)$$

の関係があり, フィッティングによりデバイ長 $\Lambda_d$ が求められる. ただし $a$ は結晶と方位および光の波長により決まる定数,  $k_B$ はボルツマン定数,  $T$ は温度である.

時定数 $\tau$ は,

$$\tau = \tau_{di} \frac{1 + \frac{4\pi^2 \mu \tau_R k_B T}{e\Lambda^2}}{1 + \frac{\Lambda_D^2}{\Lambda^2}} \quad (4)$$

となる<sup>6)</sup>. ただし $\mu$ はキャリアの移動度,  $\tau_R$ は再結合時間,  $\tau_{di}$ は誘電緩和時間である.

フォトリラクティブ効果に寄与する不純物準位が複数である場合には, それぞれの準位の寄与の重ね合わせで,

$$I_p(t) = I_{p0} \left[ 1 + \sum_{i=1}^N x_i \{ 1 - \exp(-t/\tau_i) \} \right] \quad (5)$$

のように表すことができる.

### 3. 実験

#### 3.1 実験方法

前節に示したように, 2光波混合の結合定数 $\Gamma$ と立ち上がりの時定数 $\tau$ を回折格子のピッチ $\Lambda$ と温度 $T$ の関数として測定することにより, 結晶の不純物準位に関する情報が得られる.

図2に実験配置を示す. 一方のHe-Neレーザーは2つにビームを分け, ポンプ光とプローブ光とした. もう一方は消去光として使用した. 偏光は紙面に垂直な方向である. 図1に示したタイミングでポンプ光と消去光を入射させるために, チョッパーを用いた. またポンプ光が結晶中でプローブ光を覆いつくすように, それぞれのビームの直径を1.5 mm および 5 mm とした. ポンプ光強度は 30 mW/cm<sup>2</sup>, プローブ光強度は 0.9 mW/cm<sup>2</sup>, フォトクロミック効果を避けるために, ポンプ光と消去光の強度は等しくした. GaP 結晶は真空槽内に取められ, ヒーターにより温度を変化させた. 干渉縞のピッチはポンプ光とプローブ光の交叉角を変えることにより変化させた. 出力信号はストレージオシロスコープを介して計算機に取り込み, フィッティングを行った.

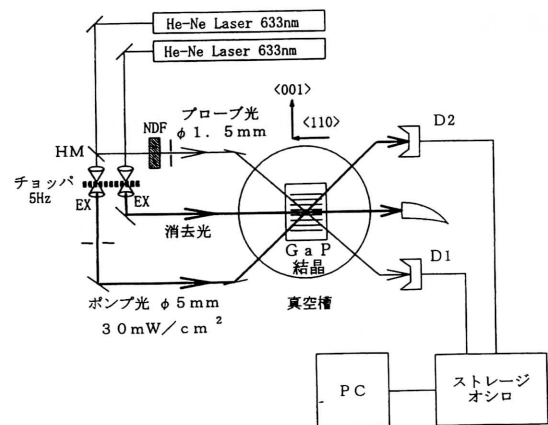


図2 実験配置

#### 3.2 データの解析法

図3に各温度での測定データの例を示す. 測定値は, 室温から 380 K 程度まではひとつの時定数の関数でフィットすることができた. これは電子による格子であることが知られている. これ以上の温度では出力信号に時定数の遅い逆符号の成分が現われ, さらに消去が不十分なために生じたポンプ光が ON 時のプローブ光の跳びが観測された. このことは高温では, 正孔を放出し消去の時定数の長い第2の準位が存在することを示している. そこでフィッティング関数としては, 2つの不純物準位を考え, 回折格子の消え残りを考慮した形の式,

$$I_p(t) = I_{p0} \left[ 1 + x_1 \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right\} - x_2 \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t-t_2}{\tau_2}\right) \right\} \right] \quad (6)$$

を採用した.

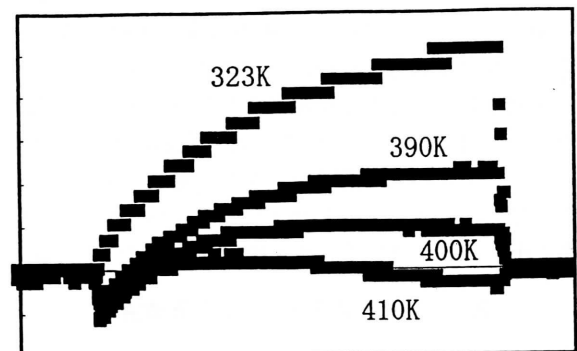


図3 増幅されたプローブ光出力の例. 400 K 付近ではポンプ光が ON になった直後に出力が下がっているのがわかる. これは回折格子の消え残りの影響である.

### 3.3 電子による回折格子

フィッティングにより求めた結合定数のうち電子による成分から式(6)および(2), (3)を使って得たデバイ長の温度依存性を図4に示す. 高温になるほどデバイ長が長くなる傾向があることがわかる. これは電子のトラップとして働くイオン化されたドナーの密度が高温で減少していることを示す.

また式(6)および(4)を使ったフィッティングにより求めた電子の移動度と再結合時間の積を図5に示す. 移動度と再結合時間の積は, ホールの影響が開始する 380 K 付近から急激に大きくなり始めている. このこともイオン化されたドナーの密度が高温で減少していることを示している.

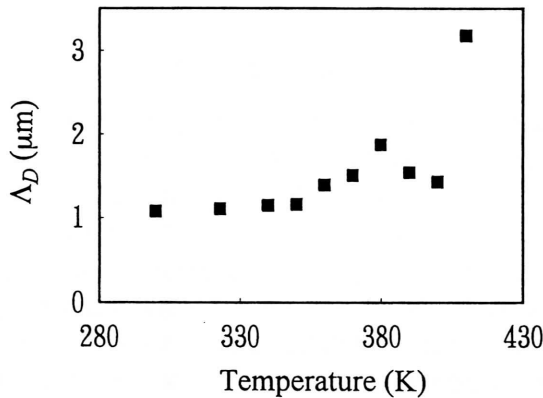


図4 デバイ長と温度依存性

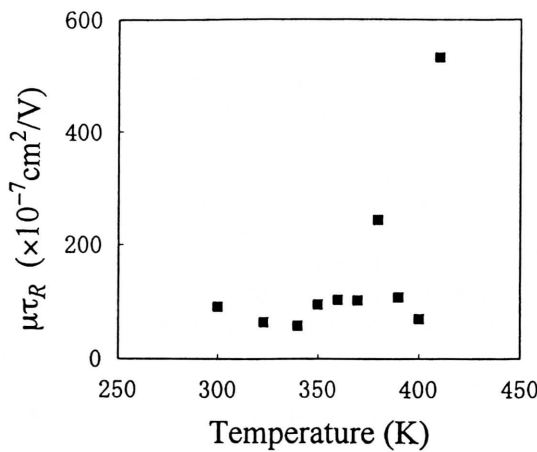


図5 移動度と再結合時間の積の温度依存性

### 3.4 電子および正孔による回折格子の競合

電子および正孔による結合定数の温度依存性を3とおりの格子間隔についてプロットしたものを図6に示す. 電子による格子の結合定数は350 K 付近から高温に向かって

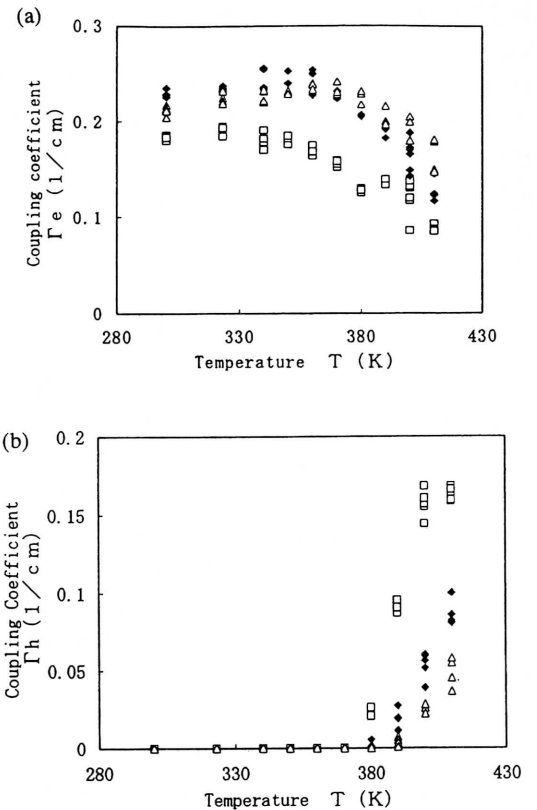


図6 (a)電子による回折格子の結合定数, (b)正孔による回折格子の結合定数. いずれも, □:  $L = 0.6 \mu\text{m}$ , ◆:  $L = 1.0 \mu\text{m}$ , △:  $L = 1.5 \mu\text{m}$  の場合.

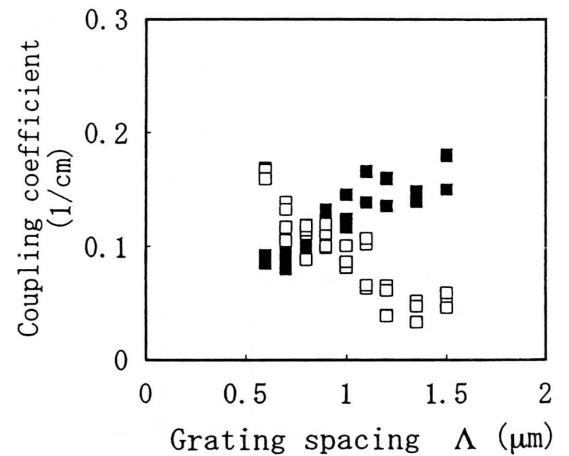


図7  $T = 410 \text{ K}$  における結合定数の回折格子間隔依存性  
■: 電子による成分, □: 正孔による成分.

緩やかに減少している. 格子間隔が広いほど結合定数は大きい. 一方正孔による成分は低温では 370 K 以下ではほとんど0で, 380 K 付近から急激に立ち上がっている. ま

## 研 究 速 報

た格子間隔は電子の場合とは逆に狭いほうが結合定数が大きい。

410 K における結合定数の格子間隔依存性を図 7 に示す。ここでも明らかに電子の場合は格子間隔が大きいほど結合定数が大きい、正孔は逆である。特に注目すべきは、格子間隔の小さい部分で、正孔による結合定数の大きさが電子を上回っていることである。これについては次説で考察する。

## 4. 考 察

高温における GaP のフォトリフラクティブ効果に関与する準位としては図 8 のようなモデルが考えられる。ドナーである P antisite は深い不純物準位となり、電子をキャリアとして放出し、再結合する。この準位は低温から高温までの広い温度範囲にわたってフォトリフラクティブ中心として働く。もうひとつの準位は浅いアクセプター準位で、常温ではほぼ全てイオン化されており、正孔を放出することはできず、フォトリフラクティブ中心としては働かない。

ところが温度が高くなると、イオン化されていたアクセプターが熱励起により電子を放出し、イオン化されたドナーを中性化する。これにより電子による回折格子から見るとトラップ密度が減少したことになり、2 光波混合の結合定数は減少し、デバイ長も長くなる。

一方アクセプターの一部は中性化したことにより、正孔を供給し始める。以前の研究では、この準位は光学不活性で、フォトリフラクティブ中心としては働かず、価電子帯に熱的な励起により正孔を供給し、電子の分布を打ち消すと考えられた。しかし今回の実験では、短い格子間隔の場合に正孔による結合定数が電子による結合定数よりも大きくなるという結果が得られた。これは浅いアクセプター準

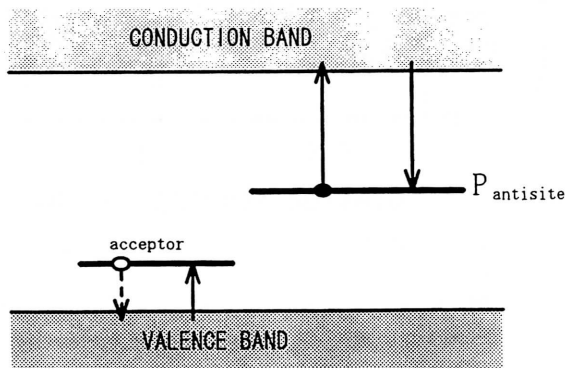


図 8 高温でのフォトリフラクティブ効果に関わるエネルギー準位のモデル。丸印はキャリアを放出してイオン化されている状態を表す。

位が光学活性であるということを示している。

一方高温での実験結果で現われた、正孔による回折格子の消え残りは、やはりアクセプター準位の消去の時定数が長いことを示し、光励起のレートが小さいことを表している。ただし、消え残りは 400 K 付近で最大になり、さらに高温になるとまた減少するという現象も観測された。これは消去の時定数が温度上昇と共に速くなり、結合定数の増加に打ち勝って、消え残りが再び小さくなったと解釈できる。

これらのことから浅いアクセプター準位は高温になるにつれ、徐々に中性にアクセプター密度を増し、正孔の励起レートもそれに伴って増加して正孔の寄与による大きなフォトリフラクティブ効果を示すようになるということが言える。

## 5. ま と め

GaP のフォトリフラクティブ 2 光波混合の立ち上がりを室温から 400 K 付近まで測定することにより、浅いアクセプターのふるまいを調べ、これが電子によるフォトリフラクティブ回折格子と、主たるフォトリフラクティブ中心である深いドナー準位に与える影響を明らかにした。低温での GaP のフォトリフラクティブ効果のふるまいと共に高温でのふるまいも明らかになってきたが、今後の課題は全ての温度域での現象を統一的に説明できる準位のモデルを見いだすことであろう。

(1995年4月24日受理)

## 文 献

- 1) P. Günter and J. P. Huignard eds., "Photorefractive Materials and Their Applications" (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
- 2) M. B. Klein, Opt. Lett. **9** (1984) 350.
- 3) A. M. Glass, A. M. Johnson, D. H. Olson, W. Simpson, and A. A. Ballman, Appl. Phys. Lett., **44** (1984) 948.
- 4) M. Ziari, W. H. Steier, P. M. Ranon, S. Trivedi, and M. B. Klein, Appl. Phys. Lett., **60** (1992) 1052.
- 5) K. Kuroda, Y. Okazaki, H. Okamura, T. Shimura, M. Itoh, M. Chihara, and I. Ogura, Opt. Lett., **15** (1990) 1197.
- 6) Y. Okazaki and K. Kuroda, Opt. Commun., **104** (1994) 357.
- 7) K. Horiuchi and K. Kuroda, Opt. Commun., **113** (1995) 487.