

テラヘルツ電磁波による $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ の表面バンドベンディング方向の調査と光変調反射分光法を用いた定量化

竹内日出雄,^A 橋本淳,^B 柳沢淳一,^A 中山正昭^B

^A 滋賀県立大学工学部電子システム工学科

^B 大阪市立大学大学院工学研究科電子情報系専攻

Direction of the surface band bending in $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ investigated by terahertz electromagnetic wave and its quantification using photoreflectance measurements

H. Takeuchi,^A J. Hashimoto^B, J. Yanagisawa,^A and M. Nakayama^B

^ADepartment of Electronic Engineering Systems, The University of Shiga Prefecture, Shiga, Japan

^BDepartment of Applied Physics, Osaka City University, Sugimoto, Sumiyoshi-ku, Osaka, Japan

Abstract

We have investigated the polarity of terahertz (THz) electromagnetic waves from a $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ epitaxial layer with $x = 0.43\%$ to clarify the effects of nitrogen incorporation on the direction of the surface band bending. The THz-wave polarity of the $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ sample is reversed compared with that of an $i\text{-GaAs}/n\text{-GaAs}$ sample that has an upward surface band bending; namely, the $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ sample has a downward band bending. The polarity reversal is attributed to the phenomenon that the conduction band bottom is lowered by the band anticrossing due to the nitrogen incorporation, which changes the direction of the surface band bending. We also measured the photoreflectance (PR) spectrum of the $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ sample to quantify the surface electric field produced by the surface band bending. The PR spectrum exhibits the Franz-Keldysh oscillations (FKOs) from the $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ layer. From the FKOs, the surface electric field is estimated to be 24 kV/cm.

1. 序論

$\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ では、その窒素濃度の関数としてバンドギャップエネルギーが負性ボウイングを示すことが知られている[1]。 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ および $\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}_{1-x}\text{N}_x$ に関するこれまでの研究で[2,3], ホスト材料である GaAs と $\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ の伝導帯と窒素準位がバンド反交差を起こし、低エネルギー(E_-)サブバンドと高エネルギー(E_+)サブバンドが形成されることが報告されている。これらのうち E_- サブバンドがバンド端に相当し、結果として、バンドギャップエネルギーは、負性ボウイングを示す。

ところで他の化合物半導体のように、 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ エピタキシャル層も表面バンドベ

ンディングを有すると考えられる。この現象は、表面上に存在する多数の深い準位によって支配される。半導体物性の観点に立てば、表面バンドベンディングに対する窒素添加の影響は、興味深い。表面バンドベンディングを調べるために、我々は試料から発生するテラヘルツ(THz)電磁波の極性に着目した。化合物半導体は、フェムト秒パルス光レーザーによって表面を照射されると表面バンドベンディングが引き金となるサージ電流に起因する THz 電磁波を発生する[4]。伝導帯が上向き(下向き)にベンディングしている場合、電子は結晶内部(表面)に向かって流れ出す。THz 電磁波の電場は、サージ電流の時間微分に比例するので[4],

電子走行方向の変化は、THz 電磁波の極性反転を引き起こす。故に THz 電磁波の極性は、表面バンドベンディングの方向を反映する。本研究では、アンドープ $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ ($i\text{-GaAs}_{1-x}\text{N}_x$) エピタキシャル層 ($x = 0.43\%$) の THz 電磁波の極性を解析し、表面バンドベンディングの方向を調べた。さらに光変調反射分光法を用いて、表面バンドベンディングを表面電場として定量化した。

2. 試料および実験方法

本研究で用いた試料は、CrO ドープされた (001) 面方位半絶縁性 GaAs (SI-GaAs) 結晶と $i\text{-GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ ($x = 0.43\%$) エピタキシャル層 (層厚: 500nm) である。加えて、参照試料として $i\text{-GaAs}$ (層厚: 200 nm) / $n\text{-GaAs}$ (層厚: 3 μm ; ドーピング濃度: $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) エピタキシャル層構造を用いた。 $i\text{-GaAs}/n\text{-GaAs}$ 試料の伝導帯エネルギーは、表面フェルミ準位ピンニングに起因するポテンシャル勾配を有しており[5,6]、 $i\text{-GaAs}$ 層内に表面方向の 35 kV/cm の内部電場が形成されている。従って、 $i\text{-GaAs}$ 層内で生成された電子は、 $n\text{-GaAs}$ 層に向かって走行し、一方、正孔は、 $i\text{-GaAs}$ 表面に向かって流れる。従って、 $i\text{-GaAs}/n\text{-GaAs}$ 試料は、THz 電磁波の極性に対する参照試料として有効である。

THz 電磁波の時間領域信号は、パルス幅 70 fs のレーザーパルス光を用いて、大気中室温下で測定された。試料から放射された THz 電磁波は、光ゲート法を用いて低温成長 GaAs エピタキシャル層上に形成されたギャップ幅 5.0 μm のボウタイ・アンテナによって検出された。ポンプ光とゲート光の強度は、40 mW および 4.0 mW であった。一方、それぞれの波長は、ともに 800 nm であった。

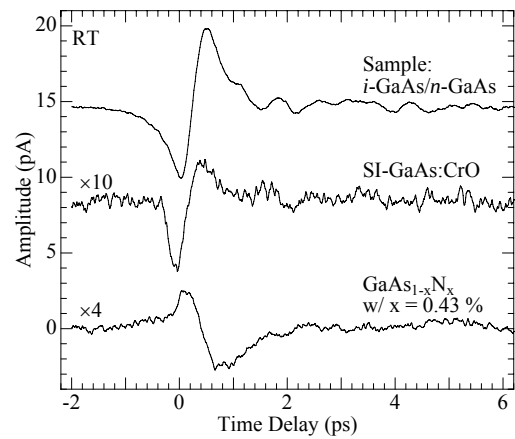


図 1: 遅延時間の関数としてプロットした $i\text{-GaAs}/n\text{-GaAs}$ 、 SI-GaAs および $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料からの THz 電磁波波形。

3. 実験結果と考察

図 1 は、3 つの試料の THz 電磁波波形を示す。全ての試料は、時間遅延 0 ps において振動パターン、いわゆる第一バーストを示す。 $i\text{-GaAs}/n\text{-GaAs}$ 試料の第一バーストは、3 つの試料の中で最も大きな値を示す。これは、サージ電流が発生するのに十分な電場が存在し、かつ $i\text{-GaAs}$ 層が十分厚くフリーキャリア吸収を抑制するためである[6]。時間遅延が増加するにつれ、 $i\text{-GaAs}/n\text{-GaAs}$ 試料の THz 電磁波の極性は負から正へと変化する。これは、 SI-GaAs 試料においても同様である。従って、今回の SI-GaAs 試料は、上向きのバンドベンディングを有する。対照的に、 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料の THz 電磁波の極性は、上記 2 種類の試料と比べると反転している。これは、 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ における光生成キャリアの走行方向が $i\text{-GaAs}/n\text{-GaAs}$ 試料に対して反対であることを示している。従って $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料は、下向きの表面バンドベンディングを有する。これは、窒素添加により表面バンドベンディングが反転することを示している。

次に $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料における表面バンド

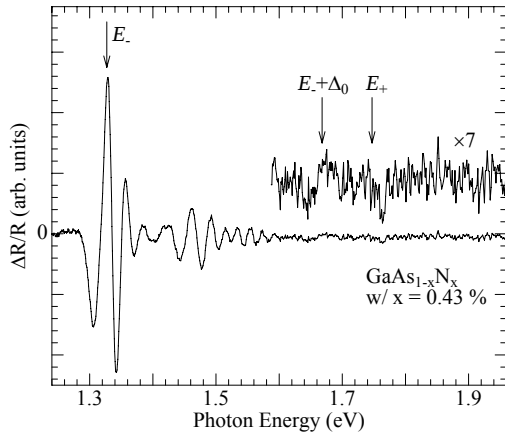


図 2: 室温における $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料からの PR スペクトル。

ベンディングの反転機構について議論する。一般に、表面フェルミ準位は、禁制帯中に存在する多数の深い準位に影響される。深い準位の電子波動関数は、原子サイズオーダーで局在する。窒素原子間の平均距離は、 $x = 1\%$ の場合、数十 nm であると見積られる。加えて、窒素原子の準位は、伝導帯の底より 226 meV 上に存在する。これらの事実、窒素添加によって、深い準位の電子波動関数が影響を受けないことを示している。従って、真空準位を基準とした深い準位は、窒素添加に影響されない。

しかしながらバンド反交差モデルに基づけば、窒素添加は、伝導帯に強い影響を与える。バンド反交差モデルによると、GaAs の伝導帯と窒素準位とが強く相互作用する。結果として、母体 GaAs 結晶の伝導帯が E_- サブバンドと E_+ サブバンドに分裂する。この 2 つのサブバンドのうち E_- サブバンド端は、結晶表面において、表面フェルミ準位ピンニングの原因となる深い準位に近づく。対照的に、熱統計力学によると表面から十分離れた結晶内部では、 $i\text{-GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ のフェルミ準位は、禁制帯のほぼ中央に位置する。真空準位を基準としたフェルミ準位は、熱

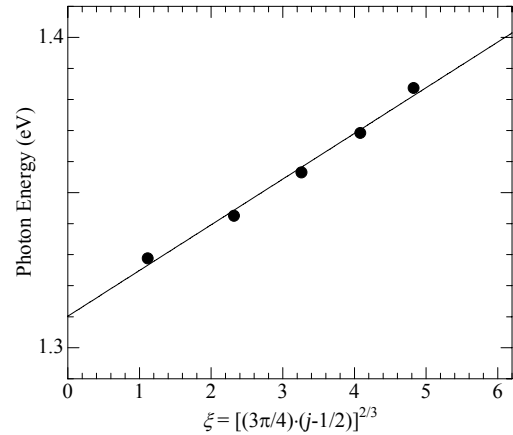


図 3: $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 層からの FK 振動の極値のエネルギーを準指数 ξ の関数とした直線プロット。

統計力学によると結晶表面から内部まで均一である。従って、表面において E_- サブバンド端が表面フェルミ準位に接近することにより、下向きの表面バンドベンディングが形成される。

以上では、表面バンドベンディングの方向を議論してきた。ベンディング量をポテンシャルバンドの勾配に相当する表面電場で定量化するために、我々は、 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料の光変調反射 (PR) スペクトルを測定した。結果を図 2 に示す。1.327 eV (1.747 eV) にて $E_-(E_-)$ とラベルされた矢印の位置は、 Γ 点における $E_-(E_-)$ サブバンドと重い正孔/軽い正孔バンドの間での遷移エネルギーに対応し、1.668 eV にて $E_+\Delta_0$ とラベルされた矢印の位置は、 Γ 点における E_- サブバンドとスピンスプリットオフ正孔バンド間での遷移エネルギーに対応する。ここで E_- , E_+ , と $E_+\Delta_0$ のエネルギーは、バンド反交差モデルによって計算された値である[7]。従って、1.3 eV から始まる振動パターンは、 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 層に起因する Franz-Keldysh (FK) 振動に帰属される。一方、1.4 eV から始まる振動パターンは、GaAs 緩衝層に起因する FK 振動に帰属される。表面電場を求めるために、図 3

に示すように, $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 層からの FK 振動の極値の位置を準指数 $\xi \equiv [(3\pi/4) \cdot (j-1/2)]^{2/3}$ の関数としてプロットした[8]。ここで j は, 基礎遷移エネルギーの位置から各極値に対してナンバリングした指数である。図 3 に示される実線の傾きは, 表面電場強度に対応する。自由電子質量 m_0 を単位としたバンド間換算質量 $0.0689m_0$ を用いることにより[7], 表面電場は, 24 kV/cm であると見積もられる。一般に, $i\text{-GaAs}$ 結晶の表面電場は, たかだか数 kV/cm 程度である。今回の結果は, 窒素添加が表面電場を増強させることを示している。

4. まとめ

我々は, $i\text{-GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ ($x = 0.43\%$) エピタキシャル層の表面バンドベンディングを調べるため, THz 電磁波測定と PR 測定を実施した。THz 電磁波測定から $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料の THz 電磁波の極性が SI-GaAs および $i\text{-GaAs}/n\text{-GaAs}$ 試料の極性と比べて反転していることが判明した。この結果は, $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料が下向きの表面バンドベンディングを有することを示している。 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料における下向きの表面バンドベンディングの原因は, 表面領域における E_s サブバンドがバンド反交差により表面フェルミ準位に向かってシフトする現象に帰される。さらに我々は, $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 試料の表面電場を見積もるために PR スペクトルに観測される FK 振動の解析を行った。そして表面電場強度は, 24 kV/cm であるという結果が得られた。故に我々は, THz 電磁波測定と PR 測定を組み合わせることが $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ エピタキシャル層の表面バンドベンディングを定量的に調べる上で有効であると結論した。

謝辞

本実験に使用した $i\text{-GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ ($x = 0.43\%$) エピタキシャル層試料は, 住友電工株式会社から提供されたものである。ご厚意に感謝の意を表します。

[参考文献]

- [1] For a review, “Dilute III-V Nitride Semiconductors and Material Systems” ed. by A. Erol (Springer, Berlin 2008).
- [2] W. Shan, W. Walukiewics, J. W. Ager III, E. E. Haller, J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, and S. R. Kurz, Phys. Rev. Lett. **82**, 1221 (1999).
- [3] W. Shan, W. Walukiewics, K. M. Yu, J. W. Ager III, E. E. Haller, J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, S. R. Kurz, C. Nauka, Phys. Rev. B **62**, 4211 (2000).
- [4] P. Gu and M. Tani, “Terahertz Optoelectronics” ed. by K. Sakai (Springer-Verlag, Berlin 2005), pp.63-97.
- [5] H. Takeuchi, Y. Kamo, Y. Yamamoto, T. Oku, M. Totsuka, and M. Nakayama, J. Appl. Phys. **97**, 063708 (2005).
- [6] H. Takeuchi, J. Yanagisawa, T. Hasegawa, and M. Nakayama, Appl. Phys. Lett. **93**, 081916 (2008).
- [7] The calculations for the quantities were performed with use of the equations and parameters in Reference 1, pp.128-129.
- [8] D. E. Aspnes, Phys. Rev. B **10**, 4228 (1974).