GaSb/GaAs エピタキシャル構造の遮光された GaAs 緩衝層に おけるコヒーレント縦光学フォノンからのテラヘルツ分光

竹内 日出雄,^A 鶴田修一,^B 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・応用物理学講座

Terahertz spectroscopy of the coherent longitudinal optical phonon in the optically masked GaAs buffer layer of a GaSb/GaAs epitaxial structure

Hideo Takeuchi,^A Shuichi Tsuruta,^B and Masaaki 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 demonstrate that, in a GaSb/GaAs epitaxial structure, the coherent longitudinal optical (LO) phonon in the GaAs layer optically masked by the GaSb top layer is observed utilizing terahertz spectroscopy. In the terahertz-wave measurement, the Fourier power spectrum of the terahertz waveform exhibits both the GaAs and the GaSb LO phonons; namely, the coherent LO phonon in the optically masked GaAs buffer layer is observed in the terahertz-wave measurement. This fact demonstrates that the instantaneous surface potential modulation originating from the impulsive carrier excitation by the pump pulses reaches the GaAs buffer layer. This surface potential modulation generates the coherent GaAs LO phonon. We also investigate the decay process of the coherent LO phonons using a time-partitioning Fourier transform method.

1. 序論

テラヘルツ(THz)分光は、フェムト秒パ ルスレーザーシステムの発展とともに顕著 な進展を遂げている[1-3]。その結果、コヒ ーレントフォノンに起因する THz 電磁波を 生成および検出することが可能となってい る[4-7]。これら THz 分光現象は、コヒーレ ントフォノン生成機構に関して興味深い課 題を提示している。縦光学(LO)フォノンか らの THz 波放射過程では、まず最初に光生 成キャリアによるサージ電流がスクリーニ ング効果を介して瞬間的バンドベンディン グを生じさせる。その結果、コヒーレント LO フォノンが誘起され、THz 波が放射され る[1-3]。上記 THz 波の放射機構は、コヒー レントフォノンを駆動する本質的なトリガ ーがポンプ光の照射ではなく,照射結果に 伴う光生成キャリアであることを示唆する。 従って,以下の現象の発現が期待される: ある任意のエピタキシャル層が上の層によ って光学的に遮蔽されている場合であって も,コヒーレント LO フォノンに起因する THz 波が生成されるという現象である。

本研究では、我々は、GaSbトップ層によって光学的に遮蔽された GaAs 緩衝層のコ ヒーレント LO フォノンからの THz 波生成 の実現可能性を探索した。結果、コヒーレ ント GaAs LO フォノンからの THz 波が検出 された。我々は、瞬間的バンドベンディン グ変調という観点からコヒーレント LO フ オノン生成機構を議論する。加えて、観測 されたコヒーレント LO フォノンの減衰過



図 1: GaSb/GaAs構造の Raman 散乱スペクトル。 程を時間分割 Fourier 変換を用いて解析する。

<u>2. 試料および実験方法</u>

本研究で用いた試料は、(001) 面方位 GaAs 基板上に分子線エピタキシー法によって成 長された GaSb(900 nm)/GaAs(200 nm)エピ タキシャル構造である。ここで括弧内の数 値は、各層の層厚を示す。以降、この試料 を GaSb/GaAs エピタキシャル構造と呼ぶ。 我々は、最初に Raman 散乱測定を室温下で 行った。励起ビームのフォトンエネルギー と強度は、それぞれ 1.58 eV および 19 mW であった。引き続き、THz 波の測定を行っ た。THz 波は、室温下で測定された。レー ザパルスの時間幅は、約 50 fs であった。ポ ンプビームは、試料に対して 45°の角度で照 射された。 放射された THz 波は、低温成 長 GaAs 基板上に成長されたギャップ幅 6 μm の光伝導ダイポールアンテナで検出さ れた。ポンプビームとゲートビームの強度 は, それぞれ 120 mW と 10 mW であった。 フォトンエネルギーは、1.57 eV であった。 この値は、Raman 散乱測定に用いられた励 起ビームのフォトンエネルギーとほぼ等し い。時間遅延軸のスキャン範囲は、-2 ps か ら8psであった。

<u>3. 実験結果と考察</u>

GaSb/GaAs エピタキシャル構造の Raman 散乱スペクトルを,図1に示す。図が示す ように周波数 6.8 THz と 7.1 THz に二つの Raman バンドが観測される。GaSb 単結晶の 横光学(TO)フォノンと LO フォノンの振動 数がそれぞれ 6.8THz および 7.0 THz である ことを考慮すれば、観測された Raman バン ドは、周波数の順に、GaSb TO フォノンと LO フォノンに帰属される。ここで注目すべ き点は、振動数 8.8 THz の GaAs LO フォノ ンが Raman 散乱スペクトルでは、検出され ないという点である。これは励起ビームの 侵入長が 160 nm であり[11], GaSb トップ層 の層厚より十分短いからである。すなわち GaAs 緩衝層は、確かに GaSb トップ層によ って光学的に遮蔽されている。

次に, THz 波波形を図 2(a)に示す。時間 遅延0 ps 周辺にサージ電流に起因する単周 期振動、いわゆる第一バーストが出現する。 第一バーストに引き続く振動プロファイル は、ビートパターンを示す。ビートパター ンの出現は、多重振動モードが観測されて いることを示す。観測される振動モードを 明らかにするため、フーリエ変換を行った。 その結果である Fourier パワースペクトルを, 図 2(b)に示す。第一バーストのバンドが 2.0 THz 周辺で弱く観測される。加えて 7.0 THz において観測されるバンドは、コヒーレン ト GaSb LO フォノンに帰属される。ここで 強調しなければならないことは, THz 波波 形のFourierパワースペクトルにおいて振動 数 8.6 THz のコヒーレント GaAs LO フォノ ンが観測されるという点である。以上から コヒーレント GaAs LO フォノンは GaAs 緩



図 2: (a)GaSb/GaAs 構造の時間領域 THz 波波 形。(b)THz 波波形の Fourier パワースペクトル。

衝層が GaSb トップ層によって光学的に遮 蔽されている場合においても観測可能であ ると結論される。なお単結晶 GaAs におけ る LO フォノンの振動数が 8.8 THz である ことを考慮すると、GaAs 緩衝層には、フォ ノン周波数シフト-0.2 THz が存在する。格 子不整合によって誘起される二軸性歪を仮 定すると、この-0.2 THz という値は、引っ 張り歪 1.8×10^{-2} に相当する。なお歪の算出 に用いたフォノン変形ポテンシャルは、文 献 11 のものを引用した。文献 11 によると フォノン周波数シフトΔω と二軸性歪 ε と の間には以下の関係がある:



図 3: GaSb/GaAs 構造の時間分割 Fourier 変 換パワースペクトル。

 $\Delta \omega = -3.8 \times 10^{-2} \varepsilon \text{ (cm}^{-1} \text{)}$ (1) この関係式を用いて, 歪量を算出した。応 用という観点に立てば, コヒーレント LO フォノンの THz 分光は, 緩衝層の状態を調 べるプローブとして有効である。

次に、我々は上記現象の要因について議 論する。序論でも指摘したように、ポンプ 光照射により表面近傍に高密度のキャリア が生成される。これらのキャリアは、 GaSb/GaAs 界面を渡って瞬間的表面ポテン シャル変調を引き起こす。これが光学的に 遮蔽された GaAs 緩衝層におけるコヒーレ ント LO フォノンをも生成する能力がある と考えられる。

最後に、観測されたコヒーレント LO フ オノンの減衰過程を調べるため、THz 波の 時間領域信号 *A*(*t*)に対して次式を適用し時 間分割 Fourier 変換を行った:

$$I(\omega,\tau) = \left| \int_{\tau}^{8ps} A(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2$$
(2)

図 3 は,時間分割 Fourier 変換パワースペ クトルを示す。図が示すように,コヒーレ ント GaAs LO フォノンバンドは,コヒーレ ント GaSb フォノンバンドより早く減衰す る。考えられる要因としては、材料に依存 したフォノンの減衰過程あるいはエピタキ シャル層の結晶性品質が考えられる。

<u>4. まとめ</u>

我々は、GaSb/GaAs エピタキシャル構造か らの THz 波を調査した。GaAs 緩衝層が GaSb トップ層によって光学的に遮蔽され ているにも関わらず、THz 波波形のフーリ エ変換スペクトルにおいて、コヒーレント GaAs および GaSb LO フォノンが観測され た。コヒーレント GaAs LO フォノン生成の 要因は、ポンプ光照射により励起された瞬 間的表面ポテンシャルの変調という現象に 帰属された。この現象がトリガーとなって コヒーレント GaAs LO フォノンを生成した と結論された。

謝辞

本研究は、日本学術振興会若手研究 B (No. 22760010)の支援を受けた。

[参考文献]

- [1] For a review, P. H. Boliver, "Coherent terahertz spectroscopy" in *Semiconductor Quantum Optoelectronics* edited by A. Miller, M. Ebrahimzadeh, and D. M Finlayson, (Institute of Physics, London 1999), pp.151-192.
- [2] For a review, Terahertz Optoelectronics edited by K. Sakai, (Springer, Berlin 2005).
- [3] For a review, H. Takeuchi, "Terahertz Electromagnetic Waves from Semiconductor Epitaxial Layer Structures: Small Energy Phenomena with a Large Amount of Information" in *Wave Propagation* edited by Andrey Petrin (INTECH, Vienna 2011) Chapter 6.

- [4] T. Dekorsy, H. Auer, C. Waschke, H. J. Bakker, H. G. Rokos, H. Kurtz, V. Wagner, and P. Grosse, Phys. Rev. Lett. 74, 738 (1995).
- [5]. M. Tani, R. Fukasawa, H. Abe, S. Matsuura,K. Sakai, and S. Nakashima, J. Appl. Phys. 83, 2473 (1998).
- [6] P. Gu, M. Tani, K. Sakai, and T. -R. Yang, Appl. Phys. Lett. 77, 1798 (2000).
- [7]. K. Mizoguchi, T. Furuichi, O. Kojima, M. Nakayama, S. Saito, A. Syouji, and K. Sakai, Appl. Phys. Lett. 87, 093102 (2005).
- [8] H. Takeuchi, J. Yanagisawa, S. Tsuruta, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, Jpn. J. Appl. Phys. 49, 082001 (2010).
- [9] T. Dekorsy, G. C. Cho, and H. Kurtz, "Coherent Phonons in Condensed Media" in *Light Scattering in Solids VIII* edited by M. Cardona and G. Güntherodt, (Springer, Berlin 2000) Chapter 4.
- [10] D. E Aspnes and A. A. Studna, Phys. Rev. B 27, 985 (1983).
- [11] M. Nakayama, K. Kubota, T. Kanata, H. Kato, S. Chika, and N. Sano, J. Appl. Phys. 58, 4342 (1985).