

GaSb/GaAs エピタキシャル構造において同時観測された GaAs と GaSb のコヒーレント LO フォノンダイナミクスの 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 dynamics of coherent longitudinal optical GaAs and GaSb phonons simultaneously observed in 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 report on difference in the decay times of the coherent GaAs and GaSb longitudinal optical (LO) phonons simultaneously observed in a GaSb/GaAs epitaxial structure, using terahertz spectroscopy. The time partitioning Fourier transform analysis of the observed terahertz waves reveals that the decay time of the coherent GaSb LO phonon at the Γ point of the Brillouin zone [LO(Γ)] is longer than that of the coherent GaAs LO(Γ) phonon. This suggests that the decay channel is different in each LO phonon. We focus our attention on the difference in the phonon dispersion curves of GaAs and GaSb. Taking account of the energy and momentum conservation rule, it is reasonable to assign that, in GaSb, the LO(Γ) splits into the IA($\zeta, \zeta, 0$) and IIA($\zeta, \zeta, 0$) acoustic phonons with $\zeta = 0.7$ in the Σ space. The phonon density state of the IIA($\zeta, \zeta, 0$) with $\zeta=0.7$ is relatively small in comparison with those of the GaAs LO(L) and TA(L) phonons. We conclude that the above-mentioned phonon density of state leads to the relatively long decay time of coherent GaSb(Γ) LO phonon

1. 序論

時間領域テラヘルツ(THz)分光は、フェムト秒パルスレーザーシステムの発展と共に顕著な進展を遂げている[1]。その結果、コヒーレント光学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。加えて THz 分光は、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、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

[2]。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。実際我々は、これまでに GaSb/GaAs エピタキシャル構造において 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 GaAs LO フォノンからの THz 波とトップ層のコヒーレント GaSb LO フォノンが

らの THz 電磁波が同時に観測できることを報告してきた[3]。これらのフォノンが同時に観測されることは、フォノンの時間領域 THz 分光に対して、新たな課題を提起している。それは、観測された各コヒーレント LO フォノンの緩和過程である。

本研究では、我々は、時間領域 THz 分光の特徴を生かして、GaSb/GaAs エピタキシャル構造において同時観測されたコヒーレント GaAs LO フォノンとコヒーレント GaSb LO フォノンの緩和過程に着目した。その結果、コヒーレント GaSb LO フォノンの緩和時間は、コヒーレント GaAs LO フォノンより長いことが判明した。この結果に対して、フォノン緩和過程と密接に関係する分散曲線という観点から議論を行う。

2. 試料構造

本研究で用いた試料は、分子線エピタキシー法によって(001)面方位 GaAs 基板上に成長されたアンドープ GaSb(900 nm)/アンドープ GaAs(200 nm)構造である。ここで括弧内の数値は、各層の層厚を示している。以降、この試料を GaSb/GaAs エピタキシャル構造と呼ぶ。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、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。遅延時間測定範囲は、-2 ps から 8 ps に設定された。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。ここで注目すべき点がある。それは、励起ビームの侵入長が 160 nm であり[4]、GaSb トップ層の層厚より十分短いと

いう事実である。従って、緩衝層中の GaAs LO フォノンは、光学的には生成されないと予測される。実際我々は、Raman 散乱スペクトルを測定し、GaAs LO フォノンが観測されないことを報告している[3]。

3. 実験結果と考察

観測された THz 波波形を図 1(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が出現する。単周期振動（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唆する。

観測されたモードとその時間発展を解析するために、我々は、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[5]を行った:

$$I(\omega, \tau) = \left| \int_{\tau}^{8\text{ps}} A(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (1)$$

式(1)から明らかのように時間分割 Fourier パワースペクトル $I(\omega, \tau)$ は、時間窓 $[\tau, 8 \text{ ps}]$ に存在するモードの強度を示している。従って、値 τ を増加させることにより振動モードの時間発展、すなわち減衰過程を調べることができる。なお τ が THz 波の測定開始遅延時間と同じ値の -2 ps の場合、式(1)は、通常の Fourier パワースペクトルを与える。

図 1(b)に式(1)を用いて得られた時間分割 Fourier パワースペクトルを示す。 τ の値が -2 ps のスペクトルに着目する。このスペクトルは、二つのバンドを示している。周波数 7.0 THz においてピークを有するバンドが観測されている。このピーク周波数は、ブリルアンゾーン Γ 点における GaSb LO フォノンの振動数と等しい。従って、周波数

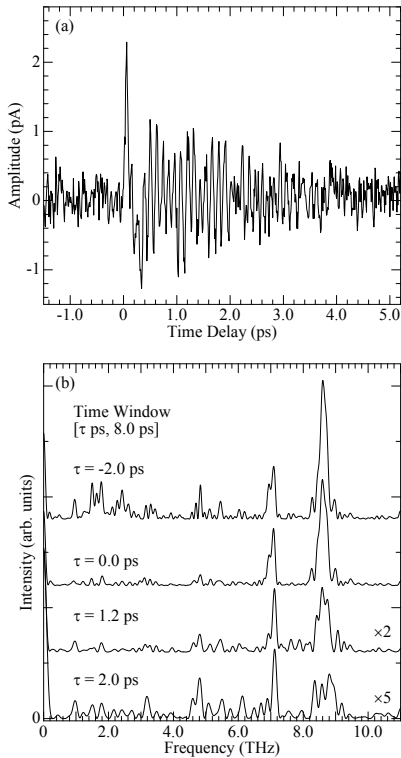


図1: (a)GaSb/GaAs エピタキシャル構造のTHz 波波形。(b)THz 波波形の Fourier 変換パワースペクトル。

7.0 THz のバンドは、トップ層のコヒーレント GaSb LO(Γ)フォノンに帰属される。特筆に値するのは、8.6THz に緩衝層のコヒーレント GaAs LO(Γ)フォノンが観測されていることである。この現象は、以下のように説明される。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。これによって、表面ポテンシャルの変調が生じる。表面ポテンシャルは、緩衝層の GaAs 層まで連続しているために GaSb と GaAs のコヒーレント LO フォノンが同時励起される。

次に、 τ の値を変化させ、コヒーレント GaSb LO(Γ)フォノンとコヒーレント GaAs LO(Γ)フォノンの減衰過程に着目する。図 1(b)から明らかなように、コヒーレント GaAs LO(Γ)フォノンはコヒーレント GaSb LO(Γ)フォノンより早く減衰している。すなわちコヒーレント GaSb LO フォノンの緩和

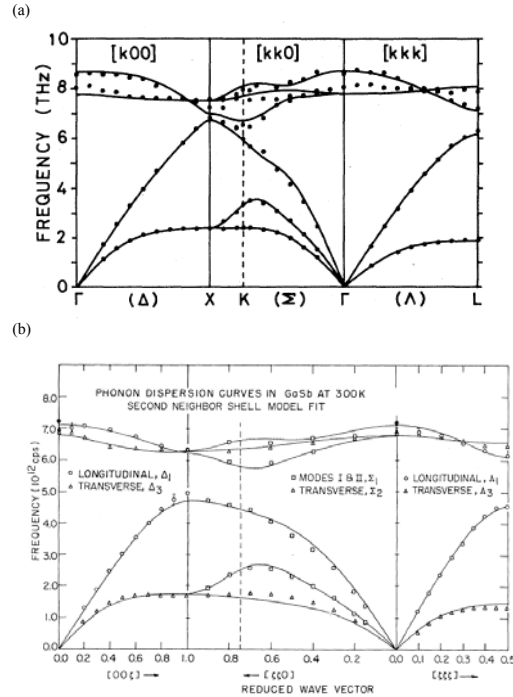


図2: (a) GaAs におけるフォノン分散曲線。Reprinted figure with permission from Ref. 6. Copyright (1985) by the American Physical Society. (b) GaSb におけるフォノン分散曲線。Reprinted figure with permission from Ref. 8. Copyright (1975) by the American Physical Society.

時間は、相対的に長い。このことは、コヒーレント GaSb LO(Γ)フォノンの緩和過程に抑制が働いていることを示唆している。

上記現象を考察するためにフォノンの減衰過程を支配する分散曲線に着目する。GaAs におけるフォノン分散曲線を図 2(b) に示す[6]。GaAs(Γ) LO フォノンの減衰過程に関しては、Valée らがコヒーレントアンチストークス Raman 散乱分光を用いて詳細に調べている。その結果を参照すると、GaAs(Γ) LO フォノンは、ブリルアンゾーンの L 点の LO フォノン[LO(L)]と横音響(TA)フォノンに緩和する[7]。各フォノンの周波数に着目すると GaAs LO(Γ), LO(L)と TA(L)フォノンの周波数は、それぞれ 8.8 THz, 7.1 および 1.8 THz である。エネルギー保存則を考慮すると、始状態と終状態でエネルギー保存則が満たされているので、上記フォ

ノン緩和過程は、妥当である。ここで L 点におけるフォノン分散曲線に着目する。LO(L)および TA(L)フォンの分散曲線は、それぞれ極小および極大となっている。このことは、それぞれのフォノン状態密度が大きいことを示している。従って、LO(L)フォノンと TA(L)フォノンの L 点における状態密度が大きいということが、比較的短い GaAs LO(Γ)フォノンの緩和時間につながったと考えられる。

GaSb(Γ)フォンの緩和過程に関しては、これまで報告がない。図 2(b)に GaSb におけるフォノン分散曲線を示す[8]。ここで GaSb LO(Γ)フォノンも LO(L)および TA(L)に緩和すると仮定し、エネルギー保存則を満たしているかどうかを確認する。なお図 2(b)中で L 点は、 $[0.5, 0.5, 0.5]$ で表記されている。GaSb LO(Γ), LO(L)と TA (L) フォノンの周波数は、それぞれ 7.1 THz, 6.1THz および 1.6 THz である。従って、始状態と終状態でエネルギー保存則は、満たされていない。このことは、GaAs LO(Γ)フォノン緩和過程と違うことを示している。

ここで我々が着目したのが Σ 空間 $[\zeta, \zeta, 0]$ における音響フォノンである。ここで IA フォノンと IIA フォノンは、それぞれミドルブランチおよびアッパーブランチの縦横混成音響フォノンモードである。指数 ζ の値が 0.7 の場合、IA フォノンと IIA フォノンとの周波数は、それぞれ 2.6 THz および 4.4 THz である。それらの値の和は、GaSb LO(Γ)の周波数と一致する。従って、GaSb LO(Γ)の緩和先としては、 Σ 空間の $[0.7, 0.7, 0]$ における IA フォノンと IIA フォノンと考えるのが合理的である。なおここでフォノン分散曲線に注目する。 $\zeta = 0.7$ における IA フォノンの分散曲線は、極大となっている。対照的

に IIA フォノンの分散曲線は、極大にも極小にもなっていない。従って IIA フォノンの状態密度は、比較的小さい。これがコヒーレント GaSb(Γ)フォノンの比較的長い緩和時間の主要因であると考えられる。

4. まとめ

我々は、GaSb/GaAs エピタキシャル構造からの THz 波発生を研究した。時間分割 Fourier 変換解析を行い、GaSb の LO(Γ)フォノンの方が GaAs LO(Γ)フォノンより長いことが判明した。フォノン分散曲線を考慮すると、GaSb LO(Γ)フォノンは、GaAs(Γ)と異なり L 点の LO フォノンと TA フォノンとに緩和しないことが判明した。GaSb LO(Γ)は、 Σ 空間の $[0.7, 0.7, 0]$ における IA フォノンと IIA フォノンとに緩和すると考えることが合理的であると結論した。

- [1] For a review, Terahertz Optoelectronics edited by K. Sakai, (Springer, Berlin 2005).
- [2] For a review, 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.
- [3] H. Takeuchi *et al*, Appl. Phys. Lett. **98**, 151905 (2011).
- [4] D. E Aspnes and A. A. Studna, Phys. Rev. B **27**, 985 (1983).
- [5] D. Gabor, J. IEEE **93**, 429 (1946).
- [6] S. Tamura and T. Harada, Phys. Rev. B **32**, 5245 (1985).
- [7] F. Vallée and F. Bogani, Phys. Rev. B **43**, 12049 (1991).
- [8] M. K. Farr *et al.*, Phys. Rev. B **11**, 1587 (1975).