

# アンドープ GaAs/n 型 GaAs エピタキシャル構造における キャリア輸送を利用した超高速光応答制御

長谷川 尊之<sup>A</sup>, 高木 芳弘<sup>A</sup>, 竹内 日出雄<sup>B</sup>, 山田 永<sup>C</sup>, 秦 雅彦<sup>C</sup>, 中山 正昭<sup>D</sup>

<sup>A</sup>兵庫県立大学大学院物質理学研究科, <sup>B</sup>滋賀県立大学工学部電子システム工学科

<sup>C</sup>住友化学株式会社筑波研究所, <sup>D</sup>大阪市立大学大学院工学研究科

## Control of ultrafast optical responses using a carrier transport in undoped GaAs/n-type GaAs epitaxial structures

T. Hasegawa<sup>A</sup>, Y. Takagi<sup>A</sup>, H. Takeuchi<sup>B</sup>, H. Yamada<sup>C</sup>, M. Hata<sup>C</sup>, and M. Nakayama<sup>D</sup>

<sup>A</sup>Graduate School of Material Science, University of Hyogo

<sup>B</sup>Department of Electronic Engineering Systems, The University of Shiga Prefecture

<sup>C</sup>Tsukuba Research Laboratory, Sumitomo Chemical Co. Ltd.

<sup>D</sup>Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Osaka City University

We report on ultrafast optical responses originating from a transport process of photogenerated carriers in undoped GaAs/n-type GaAs (*i*-GaAs/*n*-GaAs) epitaxial structures at room temperature. The built-in electric field in the *i*-GaAs layer is controlled by its thickness. It is found that the decay time of a photoexcitation-induced reflectivity change in a sub-picosecond range decreases with an increase in the built-in electric field strength. The observed optical response is related to the transport process of photogenerated carriers from the *i*-GaAs layer to the *n*-GaAs layer. The shortest response time about 60 fs, which is shorter than the LO-phonon oscillation period, demonstrates that the *i*-GaAs/*n*-GaAs structure is useful for ultrafast optical applications.

### 1. はじめに

近年、超高速光通信技術の発展が望まれており、そのために必要な超高速光応答材料の開発が盛んに行われている。半導体の光学遷移を利用する場合、光励起状態の高速緩和が必要不可欠である。今日まで、緩和時間の人為的短縮という観点から、様々な半導体ナノ構造が考案され、光学遷移の特性が制御されてきた[1-3]。一方、この方針に基づいた従来の光応答材料では、高度な素子作製技術に加えて、入射光波長や素子温度に注意を払う必要があった。このような背景を踏まえ、我々は、構造および動作機構がシンプルな光応答材料の開発を目指して研究を行ってきた。

我々が提案する光応答材料は、アンドープ GaAs/n 型 GaAs (*i*-GaAs/*n*-GaAs) エピタキシャル構造である。図 1 は、*i*-GaAs(200

nm)/*n*-GaAs 構造における伝導帯の底のポテンシャル構造を、*i*-GaAs 層の表面深さ方向に対して計算したものである[4]。*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造では、フェルミレベルの表面ピンングによって、*i*-GaAs 層内に層厚に依存する内蔵電場が形成される。この内蔵電場によって、*i*-GaAs 層に光励起されたキャリアが、*n*-GaAs 層へ効率的に輸送されることを、テラヘルツ電磁波放射特性から実証してきた[4]。このキャリア輸送過程は、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における *i*-GaAs 層の光励起キャリアの緩和時間の短縮に繋がるため、バルク GaAs よりも高速な光応答が期待される。尚、従来の光応答材料では、キャリア輸送を積極的に利用したものはなかった。

本研究では、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造を試料として、キャリア輸送過程に起因した超高速光応答を、時間分解反射型ポンプ・プローブ法を

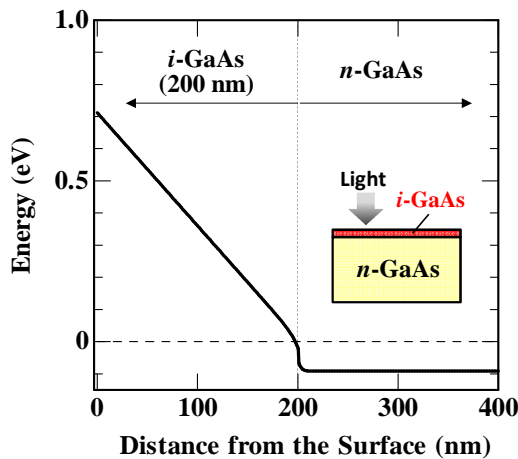


図 1: *i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造における伝導帯の底のポテンシャル構造の計算結果。波線はフェルミエネルギー。挿入図は、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造の模式図。

用いて調べた。その結果、単純な *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造が、超高速光応答を実現するための有力な材料であることを実証した [5]。

## 2. 試料および実験方法

本研究で用いた試料は、有機金属気相成長法によって (001)面方位半絶縁性 GaAs 基板上にエピタキシャル成長した *i*-GaAs(*x* nm)/*n*-GaAs(3 μm)構造で、*n*-GaAs のドーピング濃度は、 $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  である。*i*-GaAs 層厚は *x*=200、500、1200 nm であり、光変調反射分光法から見積もった内蔵電場強度は、それぞれ 28、12、6.1 kV/cm であった。また、6 μm の *i*-GaAs バルク結晶を参照試料として用いた。光応答特性の評価は、Ti:sapphire パルスレーザー (パルス幅: ~70 fs) を光源とした反射型ポンプ・プローブ法を用いて室温において行った。ポンプ光エネルギーは 1.57 eV であり、GaAs バンド端 ( $E_g=1.42 \text{ eV}$ ) に対して非共鳴励起である。吸収係数から見積もった光の侵入長は約 1.6 μm であり、すべての *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造試料において、*i*-GaAs 層全体が光励起されている。

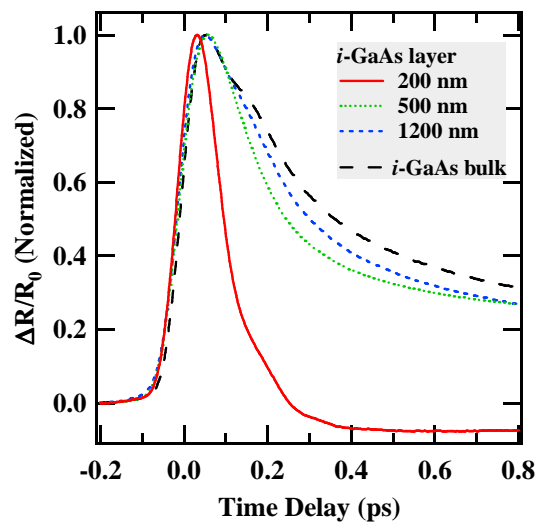


図 2: *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造および *i*-GaAs バルク結晶における室温での時間分解反射率変化。

## 3. 実験結果および考察

図 2 は、3 種類の *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造および *i*-GaAs バルク結晶における室温での時間分解反射率変化 ( $\Delta R/R_0$ ) の測定結果をまとめたものである。 $\Delta R/R_0$  は、形状を比較するために、それぞれの最大値 ( $\Delta R/R_0 \sim 10^{-3}$ ) で規格化している。図 2 のすべての信号において、1 ps 以下の時定数をもつ速い成分と、数 ps 以上続く遅い成分が観測されている。同様な振る舞いは、バルク GaAs で一般に観測されており [6]、 $\Delta R/R_0$  の速い成分は、キャリア散乱や不純物散乱といった光励起キャリアの緩和過程であり、遅い成分はフォノンとの相互作用によるものと解釈されている [7]。図 2 より、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造の速い成分の減衰時間が、*i*-GaAs 層厚の減少 (内蔵電場強度の増大) にともなって、系統的に減少していることが分かる。この振る舞いから、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造で観測される速い成分は、内蔵電場による *i*-GaAs 層から *n*-GaAs 層への光励起キャリアの輸送過程に起因するものと考えられる。内蔵電場強度が最も高い *i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造では、ポンプ光パルスと同程度の極めて速い減衰時

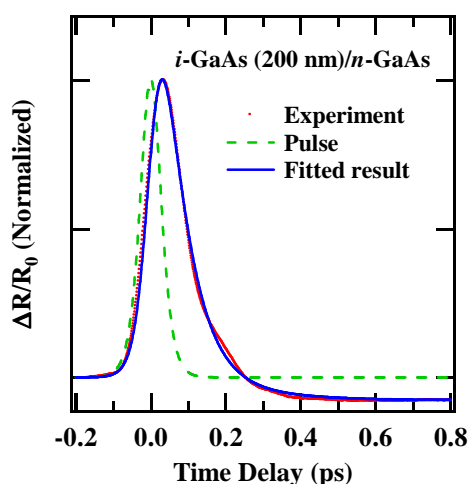


図 3: *i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造で観測された時間分解反射率変化信号のフィッティング結果。

間を観測される。また、遅い成分が負の値を示しており、他の試料とは振る舞いが大きく異なる。

$\Delta R/R_0$ の速い成分の減衰時間を正確に評価するために、指数関数減衰曲線 $[\exp(-t/\tau)]$ とポンプ光パルス形状 ( $\text{sech}^2$ ) の畳み込み積分からフィッティングを行った。尚、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造では、遅い負の成分も考慮した。図 3 は、フィッティング結果の例を示しており、図 4 は見積もった速い成分の減衰時間 $\tau$ を *i*-GaAs 層厚に対してプロットしたものである。図 4 中の波線は、バルク GaAs 結晶の減衰時間である。図 4 より、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造の光応答時間は、バルク GaAs 結晶のものより短く、かつ、*i*-GaAs 層厚で制御できることが示されている。注目すべき点は、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 試料の光応答時間が、散乱過程で支配的な縦光学 (LO) フォノンの振動周期 (~113 fs) よりも短いことである。以下で、観測された光応答特性をキャリア輸送過程の観点から考察する。

図 4 より、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造における  $\Delta R/R_0$ の速い成分の減衰時間は、LO フォノン振動周期よりも短く極めて高速であること

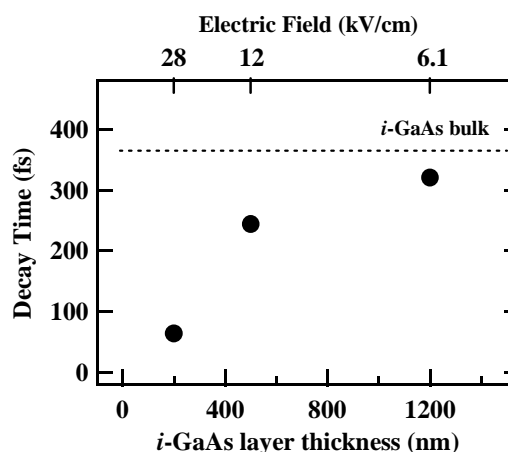


図 4: *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における速い成分の減衰時間の *i*-GaAs 層厚依存性。波線は *i*-GaAs バルク構造の減衰時間を示す。

が示された。電場下でのバルク GaAs 中の光励起キャリア輸送に関する先行研究では[8]、光励起直後 (<100 fs) のキャリアは、散乱過程を受けずにバリスティックに輸送されると結論付けている。この結論に基づくと、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造では、*i*-GaAs 層が光励起キャリアのバリスティック輸送層[9]として機能し、その結果、極めて高速な光応答が現れていると推測される。一方、その他の構造では、速い成分の減衰時間が LO フォノンの振動周期よりも長い。つまり、光励起キャリアは、フォノン散乱を受けながら *i*-GaAs 層を走行していると推測される。以上で述べたキャリア輸送の描像は、 $\Delta R/R_0$ の遅い成分の振る舞いから裏付けられる。前述したように、遅い成分は、フォノンとの相互作用に起因するものである。*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 以外の試料では、バルク GaAs 結晶と同様な正の減衰曲線を示しており、フォノンとの相互作用が生じていることが予測される。一方 *i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造では、遅い成分が負になっており、他の試料とは起源が異なることを示唆している。以下では、負の  $\Delta R/R_0$ の起源について議論する。

図 3 に示した *i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造

のフィッティングから、負の成分の上昇時間および減衰時間は、それぞれ 350 fs と 3.0 ps であることが示された。 $\Delta R/R_0$  は、フレネル公式から単純に求めると、式(1)で与えられる[10]。

$$\frac{\Delta R}{R_0} \cong \frac{4}{n^2-1} \Delta n \quad (1)$$

(1)より、負の  $\Delta R/R_0$  は、負の屈折率変化( $\Delta n$ )を反映することが分かる。バンド端より高エネルギー側での負の  $\Delta n$  の要因としては、フリーキャリア吸収とバンドギャップ収縮が考えられている[11]。バンドギャップ収縮は、高密度励起条件での多体効果に起因するので、時間原点近傍で優勢となるはずである。したがって、負の成分のフィッティング結果(減衰時間が 3 ps)に反するために排除できる。以上の考察より、負の成分の起源は、内蔵電場によって表面近傍に蓄積した光励起正孔によるフリーキャリア吸収が要因だと結論できる。つまり、観測された負の成分の上昇時間は、*i*-GaAs 層表面方向への光励起正孔の輸送時間であり、減衰時間は試料表面近傍での光励起正孔の再結合時間を示している。*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 以外の試料で負の成分が観測されない理由は、相対的に大きな正の成分に埋もれてしまうためであると考えている。

#### 4. まとめ

*i*-GaAs 層厚(内蔵電場強度)の異なる 3 種類の *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造、および、*i*-GaAs バルク結晶を試料として、キャリア輸送過程に起因した超高速光応答について調べた。その結果、*i*-GaAs 層から *n*-GaAs 層への光励起キャリアの輸送時間を反映して、光応答時間が *i*-GaAs 層厚によって制御できることが分かった。さらには、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造の光応答時間は、LO フォノンの振動周期よりも短く極めて高速になることを見出した。この超高速光応答は、*i*-GaAs 層の光励起キャリアが、散乱

過程を受けずにバリスティックに *n*-GaAs 層へ輸送されることに起因すると結論付けた。

謝辞:本研究の一部は、関西エネルギー・リサイクル科学研究振興財団(KRF)の援助を受けて行われたものである。

#### 5. 参考文献

- [1] R. Akimoto, T. Simoyama, H. Tsuchida, S. Namiki, C. G. Lim, M. Nagase, T. Mozume, T. Hasama, and H. Ishikawa, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 221115 (2007).
- [2] H. Yasuda and H. Ishihara, *Phys. Rev. B* **79**, 193308 (2009).
- [3] H. Ueyama, T. Takahashi, Y. Nakagawa, K. Morita, T. Kitada, and T. Isu, *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 04DG06 (2012).
- [4] H. Takeuchi, J. Yanagisawa, T. Hasegawa, and M. Nakayama, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 081916 (2008).
- [5] T. Hasegawa, Y. Takagi, H. Takeuchi, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 211902 (2012).
- [6] M. Tani, K. Sakai, H. Abe, S. Nakashima, H. Harima, M. Hangyo, Y. Tokuda, K. Kanamoto, Y. Abe, and N. Tsukada, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 4807 (1994).
- [7] J. Shah, *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*, (Springer, Berlin, 1996) p.11.
- [8] B. B. Hu, E. A. de Souza, W. H. Knox, J. E. Cunningham, M. C. Nuss, A. V. Kuznetsov, and S. L. Chuang, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1689 (1995).
- [9] S. Preu, F. H. Renner, S. Malzer, G. H. Döhler, L. J. Wang, M. Hanson, A. C. Gossard, T. L. J. Wilkinson, and E. R. Brown, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 212115 (2007).
- [10] H. Abe, H. Harima, S. Nakashima, M. Tani, K. Sakai, Y. Tokuda, K. Kanamoto, and Y. Abe, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, 5955 (1996).
- [11] B. R. Bennett, R. A. Soref, and J. A. del Alamo, *IEEE J. Quan. Elec.* **26**, 113 (1990).