

i-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造における コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波に対する内部電場効果の影響

中森一平、竹内日出雄、中山正昭
大阪市立大学大学院 工学研究科 電子情報系専攻

Built-in electric field effects on terahertz radiation from coherent LO phonons in *i*-GaAs/*n*-GaAs epitaxial structures

Ippei Nakamori, Hideo Takeuchi, and Masaaki Nakayama

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Osaka City University

We have investigated characteristics of terahertz electromagnetic waves radiated from coherent longitudinal optical (LO) phonons in undoped GaAs/*n*-type GaAs epitaxial structures with various *i*-GaAs layer thicknesses, ranging from 200 nm to 1200 nm. We found that the intensity of the terahertz waves considerably depends on the *i*-GaAs layer thickness. The analysis of Franz-Keldysh oscillations, appearing photoreflectance spectra, demonstrates that the built-in electric field strength in the undoped GaAs layer increases from 6.1 kV/cm to 28.4 kV/cm with a decrease in the thickness. We revealed that the amplitude of the terahertz wave is proportional to the built-in electric field strength in the *i*-GaAs layer, indicating that the efficiency of the terahertz radiation is dominated by the initial polarization of the LO phonons induced by the built-in electric field, which provides a simple strategy for the enhancement of the terahertz radiation from the coherent LO phonons.

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]。特に、コヒーレント縦光学(LO)フォノンに起因するTHz電磁波の生成は、単色性THz波という観点から注目を集めている。しかしながら、これまで研究対象とされてきたバルク単結晶では、コヒーレント LO フォノンからのTHz波強度は一般的に弱い。これは、コヒーレント LO フォノンに起因する動的双極子モーメントがバルク内では結晶格子の並進対称性によって打ち消されるからである。近年、我々は、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造という単純な構造を有する試料を用いて、表面領域での対称性の破れ[2]に注目してコヒーレント LO フォノンからの高強度なTHz波を室温において観測した[3,4]。しかしながら、増強機構の詳細に関しては、分かっていない。

本研究では、様々な *i*-GaAs 層厚を有する *i*-GaAs/*n*-

GaAs 構造におけるコヒーレント LO フォノンからの THz 波放射の増強機構について研究を行った。はじめに、光変調反射(PR)スペクトル測定を行い、Franz-Keldysh(FK)振動の解析により *i*-GaAs 層の内部電場を定量的に評価した。引き続き THz 波測定を行い、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造におけるコヒーレント LO フォノンからの THz 波放射を観測した。THz 波をフーリエ変換し、コヒーレント LO フォノンバンドの積分強度が *i*-GaAs 層厚に大きく依存することが判明した。この結果に対して、コヒーレント LO フォノンの初期分極を誘起する内部電場の効果について着目し、THz 波放射の増強機構について議論する。

2. 試料および実験方法

試料は、有機金属気相成長法を用いて(001)面方位半絶縁性 GaAs 基板上に成長された *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造である。*i*-GaAs 層と *n*-GaAs 層の層厚は、それぞれ d nm (d

= 200, 500, 800, 1200)および 3 μm であり、*n*-GaAs 層のドーピング濃度は、 $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ である。この試料構造では表面フェルミ準位ピンングによって *i*-GaAs 層全体に均一な内部電場が形成され、その強度は、*i*-GaAs 層厚 d によって制御可能である[5]。我々は、PR 分光法を用いて、内部電場の存在に起因する FK 振動[6]の解析を行った。励起光として波長 632.8 nm の He-Ne レーザーを使用し、チョッパーを用いて 630 Hz で変調した。プローブ光は、タングステンハロゲンランプと分解能 0.5 nm のシングル分光器を用いて得た。THz 波の測定には、光ゲート法を用いた。レーザーパルス時間幅と繰り返し周波数は、それぞれ 50 fs および 90 MHz である。ポンプ光とゲート光の強度は、20 mW および 10 mW である。ポンプ光とゲート光の光子エネルギーは、ともに 1.57 eV である。ポンプ光は、試料に対して 45° の角度で入射された。試料表面でのスポット径は、約 100 μm である。検出素子には、低温成長 GaAs 基板の上に形成したギャップ幅 6 μm の光伝導ダイポールアンテナを用いた。尚、本研究で用いたポンプ光の光子エネルギーにおける GaAs の吸収係数は、 $14 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ である[7]。この吸収係数を考慮すると、*i*-GaAs 層厚が 1200 nm の場合、入射光子の約 80% が *i*-GaAs 層で吸収される。これは、全ての試料においてポンプ光が *i*-GaAs 層全体を励起することを示している。測定は、室温下、 N_2 パージのもとで行われた。

3. 実験結果と考察

各試料の PR スペクトルを図 1(a)に示す。全てのスペクトル上に FK 振動が観測されている。FK 振動は、電場の存在により生じるので、本結果は、*i*-GaAs 層における内部電場の存在を示している。各試料の内部電場強度を見積もるために、FK 振動のピークおよびディップを準指数の関数としてプロットした。その結果を図 1(b)に示す。準指数は、以下の式で定義される。

$$\xi \equiv \left[\left(\frac{3\pi}{4} \right) (j - 1/2) \right]^{2/3} \quad (1)$$

ここで指数 j は、FK 振動のピークおよびディップに対応す

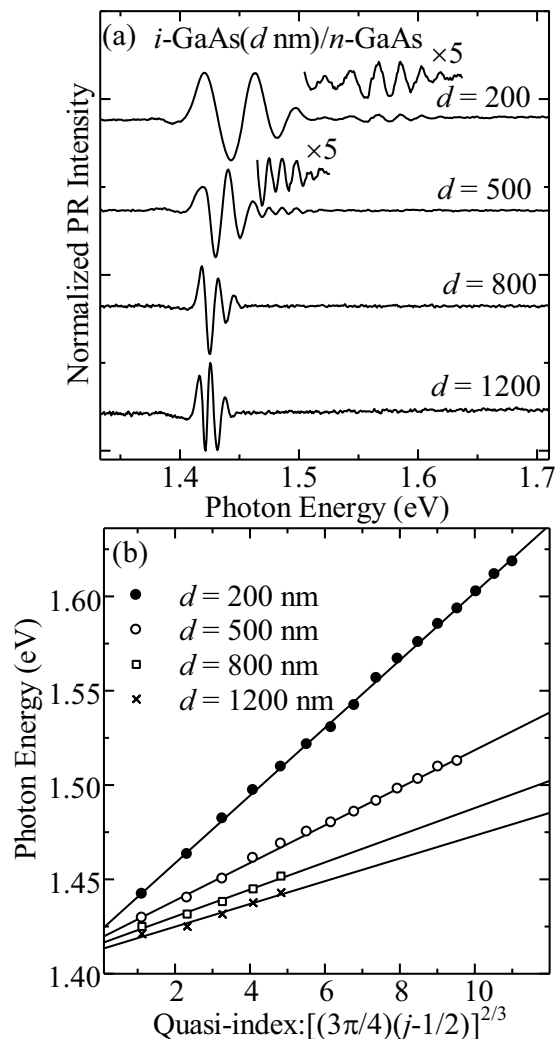


図 1:(a)*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造の PR スペクトル。(b)*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における FK 振動のピークおよびディップを準指数 ξ の関数としてプロットした結果。

る。図 1(b)の実線は、実験結果に対して線形関数をフィットした結果であり、実験結果と良く一致している。この一致は、*i*-GaAs 層において均一な内部電場が形成されていることを示している。線形関数の傾きは、以下の電気光学定数に対応する[6]。

$$\hbar\theta = \left[\frac{e^2 \hbar^2 F^2}{2\mu} \right]^{1/3} \quad (2)$$

ここで F と μ は、それぞれ内部電場強度および換算有効質量である。この式は、傾き $\hbar\theta$ が F の増加に伴い大きくなることを示している。従って図 1(b)に示す結果は、*i*-GaAs 層の内部電場強度が *i*-GaAs 層厚の減少とともに増加することを反映している。内部電場強度は、式(2)より *i*-GaAs 層厚 200, 500, 800 および 1200 nm の試料におい

て、それぞれ 28.4, 12.1, 8.2 および 6.1 kV/cm と見積もられる。尚、本計算では Γ 点における GaAs での換算有効質量 μ を $0.0556 m_0$ とした[8]。

次に、THz 波波形を図 2(a) に示す。時間遅延 0 ps 周辺に光生成キャリア・サージ電流に起因する単周期振動、いわゆるファーストバーストが観測される。ファーストバーストに引き続く周期 113 fs の振動パターンは、コヒーレント GaAs LO フォノンに由来する。図 2(a) に示す THz 波波形を解析するために、フーリエ変換を行った。その結果を図 2(b) に示す。周波数範囲 0~5 THz において観測されるブロードなバンドは、ファーストバーストに対応する。ここで、8.8 THz で観測されるコヒーレント GaAs LO フォノンに起因する鋭いバンドに注目する。上で述べたように、*i*-GaAs 層の内部電場強度は、*i*-GaAs 層厚の減少に伴い増加する。従って、コヒーレント LO フォノンからの THz 波増強が内部電場と深く関わっていると推測される。

最後に、コヒーレント LO フォノンからの THz 波の増強効果を議論する。図 3 の白丸は、各試料のフーリエパワースペクトルにおけるコヒーレント LO フォノンバンドの積分強度 $I_{LO,FP}$ を *i*-GaAs 層の内部電場強度の関数としてプロットした結果である。尚、 $I_{LO,FP}$ の値は、最大強度で規格化している。図 3 に示すように、 $I_{LO,FP}$ は、12.1 kV/cm 以下の領域では内部電場強度の増加に伴い増大し、28.4 kV/cm においてわずかに減少する。このように $I_{LO,FP}$ は、内部電場強度に対して複雑な挙動を示している。そこで我々は、以下に示す 2 つの補正を行い、内部電場効果の抽出を行った。一つ目は、THz 波発生領域である *i*-GaAs 層の層厚に由来する体積効果による補正である。これは、 $I_{LO,FP}$ を *i*-GaAs 層厚で割ることに相当する(単位厚さあたりの強度での比較)。二つ目は、各試料での *i*-GaAs 層で生成される全キャリア数が異なることによる効果である。コヒーレント LO フォノンは、光生成キャリアのサージ電流によるポテンシャル湾曲の瞬間的な変化によって誘起される[9]。光生成キャリアの総数は、層厚 d の *i*-GaAs 層に

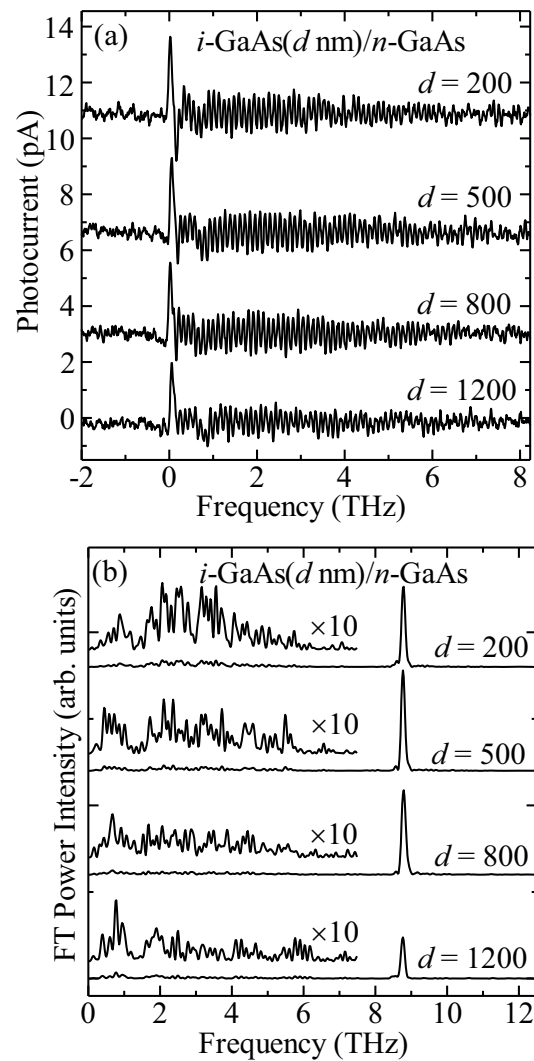


図 2:(a)*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造の時間領域 THz 波波形。(b)THz 波波形のフーリエパワースペクトル。

おいて吸収される光子の総数に比例すると仮定できる。従って、 $I_{LO,FP}$ を *i*-GaAs 層で吸収された光子の総数で補正する必要がある。これがいわゆる有効励起強度補正である。

層厚 d nm を有する *i*-GaAs 層における有効励起強度 P_{eff} は、以下の式で与えられる。

$$P_{eff} = P_0 [1 - \exp(-\alpha d)] \quad (3)$$

ここで P_0 と α は、ポンプ光強度および吸収係数である。上記 2 つの補正を行ったコヒーレント LO フォノンからの THz 波強度 $I_{LO,FP}^{con}$ は、従って次式で与えられる。

$$I_{LO,FP}^{con} = I_{LO,FP} / (d P_{eff}) \quad (4)$$

式(4)を用いて、各試料の $I_{LO,FP}^{corr}$ を計算した。ここで、吸収係数 α の値は、 $14 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ とした。図3に示している黒丸は、最大強度で規格化された $I_{LO,FP}^{corr}$ を内部電場強度の関数としてプロットしたものである。この結果から明らかのように、 $I_{LO,FP}^{corr}$ は、内部電場強度の増加に伴い単調に増大する。この振る舞いを評価するために、二次関数を $I_{LO,FP}^{corr}$ にフィットした。実線は、フィットした結果であり、 $I_{LO,FP}^{corr}$ の内部電場強度に対する結果とよく一致している。フーリエパワースペクトル強度は、振幅の絶対値の2乗である。従って、フィッティング結果は、コヒーレント LO フォンからの THz 波振幅が内部電場強度に比例することを示している。THz 波の振幅は、コヒーレント LO フォンの初期分極に比例する。一般に、分極 P と電場 E との関係は、 $P = [\chi]E$ で与えられる。ここで $[\chi]$ は、電気感受率テンソルである。従って、 i -GaAs/ n -GaAs 構造において、 i -GaAs 層の内部電場による初期分極の増大がコヒーレント LO フォンからの THz 電磁波放射の増強の原因であると結論される。

4. まとめ

我々は、 i -GaAs 層の内部電場に着目し i -GaAs/ n -GaAs 構造におけるコヒーレント LO フォンからの THz 波増強機構を調査した。PR スペクトルにおいて観測された FK 振動の解析から、内部電場強度は、 $d = 200, 500, 800$ と 1200 nm の試料において、それぞれ $28.4, 12.1, 8.2$ および 6.1 kV/cm と見積もられた。コヒーレント LO フォンからの THz 波強度は、 i -GaAs 層厚に大きく依存する。THz 波の増強機構を議論するために、我々は、THz 波放射領域すなわち i -GaAs 層における体積効果および有効励起強度を考量して、フーリエパワースペクトルにおけるコヒーレント LO フォンバンドの積分強度に対して補正を行った。その結果、補正後の THz 波バンドの強度が i -GaAs 層における内部電場強度の2乗に比例することが判明した。フーリエパワースペクトルの積分強度は、THz 波の振幅の絶対値の2乗に比例するので、本結果は、内部電

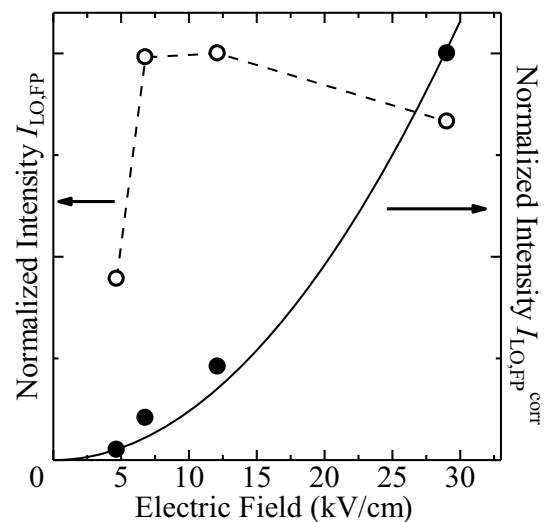


図3: i -GaAs 層における内部電場の関数としてプロットしたコヒーレント LO フォンバンドの積分強度 $I_{LO,FP}$ (白丸)と、補正後の積分強度 $I_{LO,FP}^{corr}$ (黒丸)。

場によって誘起された初期分極の増大がコヒーレント LO フォンから放射される THz 波強度の増強につながることを示している。

参考文献

- [1] For a review, P. Gu and M. Tani, Terahertz Optoelectronics, edited by K. Sakai (Springer, Berlin, 2005), pp. 63–97, and relevant references therein.
- [2] C. H. Lee, R. K. Chang, and N. Bloembergen, Phys. Rev. Lett. **18**, 167 (1967).
- [3] H. Takeuchi, J. Yanagisawa, S. Tsuruta, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, Jpn. J. Appl. Phys. **49**, 082001 (2010).
- [4] H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, J. Appl. Phys. **110**, 013515 (2011).
- [5] H. Takeuchi, Y. Kamo, Y. Yamamoto, T. Oku, M. Totsuka, and M. Nakayama, J. Appl. Phys. **97**, 063708 (2005).
- [6] D. E. Aspnes and A. A. Studna, Phys. Rev. B **7**, 4605 (1973).
- [7] D. E. Aspnes and A. A. Studna, Phys. Rev. B **27**, 985 (1983).
- [8] D. F. Nelson, R. C. Miller, C. W. Tu, and S. K. Sputz, Phys. Rev. B **36**, 8063 (1987).
- [9] T. Pfeifer, T. Dekorsy, W. Kütt, and H. Kurz, Appl. Phys. A **55**, 482 (1992).