

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-プラズモン結合モードからの テラヘルツ電磁波発生ダイナミクス

住岡隆裕, 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

Dynamics of terahertz radiation from
coherent LO phonon-plasmon coupled modes in *i*-GaAs/*n*-GaAs epitaxial structures

T. Sumioka, H. Takeuchi, and M. Nakayama

Department of Applied Physics, Osaka City University

We have investigated the dynamical properties of terahertz radiation from coherent longitudinal optical phonon-plasmon coupled (LOPC) modes in an undoped GaAs/*n*-type GaAs (*i*-GaAs/*n*-GaAs) epitaxial structure using time-domain terahertz spectroscopy. It was confirmed that the frequencies of the lower and upper LOPC modes depend on a photogenerated carrier density and agree with the calculated dispersion relations. We analyzed the dynamics of the LOPC modes with a time partitioning Fourier transform method. As a result, we estimated that the lifetime of the LOPC mode is about 60 fs. In addition, it was found that the peak frequency of the LOPC modes shifts toward a higher frequency side with an increasing in delay time. We concluded that the frequency shifts reflect the photogenerated carrier transport process from the *i*-GaAs layer to the *n*-GaAs layer.

1. 序論

極性半導体中において、LO フォノンはプラズモンと結合し、LO フォノン-プラズモン結合(LOPC)モードを形成することがよく知られている[1]。LOPC モードは上分枝[LOPC(+)]と下分枝[LOPC(-)]から構成され、それぞれの周波数は電子濃度依存性を持つ。このことから、周波数可変 THz 電磁波放射源への応用が期待できる。1966 年に Mooradian と Wright が *n* 型 GaAs 結晶を対象としてラマン散乱による最初の LOPC モードの実験結果を報告している[2]。これ以降、時間幅がフェムト秒オーダーである超短パルスレーザーの発展に伴い、ポンプ・プローブ分光法やテラヘルツ時間領域分光法においても LOPC モードの観測が報告されている[3, 4]。我々もノンドープ GaAs/*n* 型 GaAs (*i*-GaAs/*n*-GaAs) エピタキシャル構造を試料として、テラヘルツ時間領域分光法による LOPC モードからの THz 電磁波放射の観測を報告している[5]。しかし、LOPC モードの発生ダイナミクスについては詳細

な研究が行われていない。本研究では、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造を試料として、時間分解テラヘルツ電磁波の励起強度依存性を測定し、LOPC モードを確認するとともに、時間分割フーリエ変換を用いて、コヒーレント LOPC モードのダイナミクスについて解析した。

2. 試料構造と実験方法

本研究で用いた試料は、(001)面方位半絶縁性 GaAs 基板上に有機金属気相エピタキシー法によって作製された *i*-GaAs(500 nm)/*n*-GaAs(3 μ m, 3×10^{18} cm⁻³)エピタキシャル構造である。この構造では、表面フェルミ準位ピンニングにより、*i*-GaAs 層内に均一な内部電場が生じる[6]。この内部電場強度を光変調反射スペクトルにおいて観測される Franz-Keldysh 振動解析[7]から、実験的に 11.4 kV/cm と見積もった。内部電場の存在により、過渡電流および LO フォノン分極が増大するので、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造では LOPC モードの観測が有利である。励起光

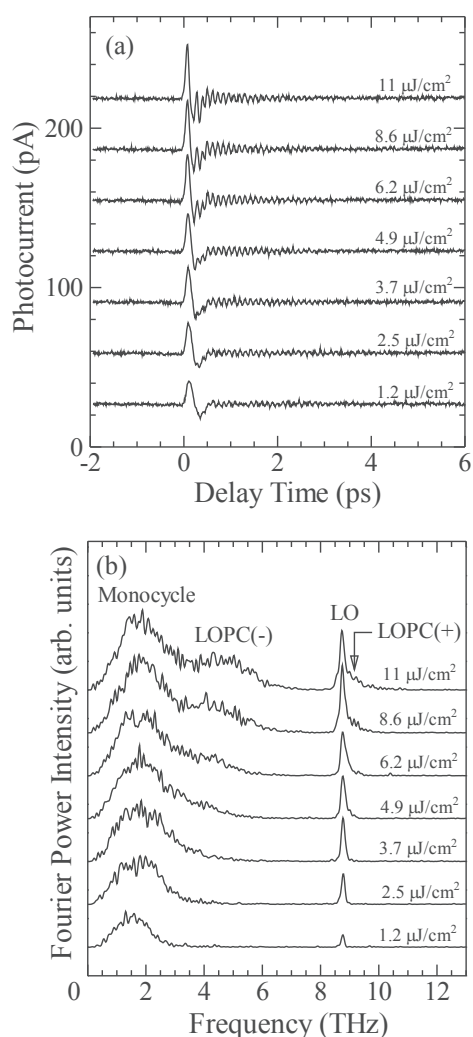


図 1. *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における(a)時間領域テラヘルツ電磁波波形の励起密度依存性と(b)そのフーリエ変換スペクトル。Monocycle はモノサイクル信号, LO はコヒーレント LO フォノン, LOPC(+)と LOPC(-)はコヒーレント LOPC モードの上分枝と下分枝をそれぞれ表している。

源にはパルス幅 50 fs, 繰り返し周波数 90 MHz, ピーク波長 800 nm の Ti:sapphire レーザーを用い, 試料から放射された THz 電磁波は, 低温成長 GaAs 層上に形成された光伝導ダイポールアンテナを用いた光ゲート法によって検出した。ゲート光強度は 10 mW に固定し, 測定は全て室温, 窒素雰囲気で行った。

3.実験結果と考察

図 1(a)は, 時間領域テラヘルツ電磁波波形の励起密度依存性を示している。テラヘルツ電磁波波形に含まれる種々の信号を解析するためにフーリエ変換を行った。その結果を図 1(b)に示している。2 THz 付近のブロードなバンドは, 光生成キャリアによる *i*-GaAs 層から *n*-GaAs 層への過渡電流に起因するモノサイクル信号であり, 8.8 THz の鋭いバンドはコヒーレント LO フォノンに起因する信号である。一方, 周波数が励起密度に依存する 2 つのバンドは高周波数側が LOPC(+), 低周波数側が LOPC(-)からの信号である。LOPC モード成分を現象論的にガウス関数でフィッティングし, ピーク周波数を見積もり, LOPC モード周波数の電子濃度依存性に関する理論[1, 2]に基づく計算結果と比較したのが図 2 である。なお, 実験値の電子濃度は励起密度から見積もった。LOPC モード周波数の実験値と計算曲線は良く一致している。ゆえに, LOPC モード周波数は光生成キャリア濃度のみによって決定されると分かる。この事実は, LOPC モードが *i*-GaAs 層で生成されるということを示している。

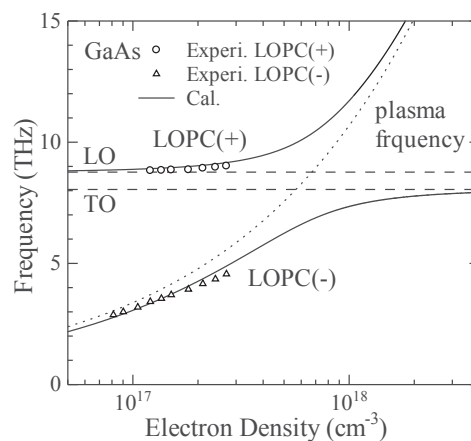


図 2. *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における LOPC モード周波数の電子濃度依存性の実験値と計算曲線との比較。□が LOPC(+), △が LOPC(-)の実験値を表しており, 実線が計算曲線を示している。

次に, 励起密度 $11 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ の時間領域波形を用いて, 式(1)で表される時間分割フーリ

エ変換による LOPCモードのダイナミクスの解析を行った。ここで、 $A(t)$ は時間領域形の振幅、 t_i は遅延時間を表している。

$$I(\omega, t_i) = \left| \int_{t_i}^{6 \text{ ps}} A(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (1)$$

図 3 は、異なる遅延時間における時間分割フーリエ変換スペクトルを示している。LOPCモードは遅延時間 150 fs でほぼ完全に消失している。更に、遅延時間の増加に伴い LOPCモードのピーク周波数が高周波数側にシフトしていることが確認できる。

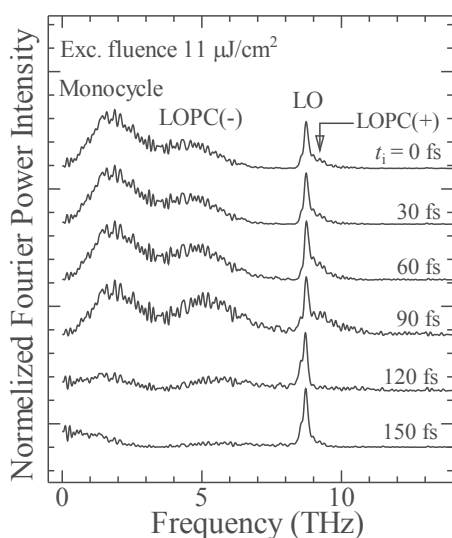


図 3. *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における異なる遅延時間の時間分割フーリエ変換スペクトル。

まず、LOPCモードの寿命について議論する。図 4 は、時間分割フーリエ変換スペクトルの積分強度の遅延時間依存性を示している。○はコヒーレント LO フォノン、□はモノサイクル信号、△は LOPC(-)をそれぞれ表しており、破線は指数関数によるフィッティング曲線である。フィッティング結果から求められた寿命はそれぞれコヒーレント LO フォノンが 0.85 ps、モノサイクル信号が 80 fs、LOPC(-)が 60 fs である。コヒーレント LO フォノンと比較して、LOPC(-)の寿命は 1/10 以下と非常に短い。一方、モノサイクル信号と比較すると、寿命はほぼ同程度である。この事実は、プラズモンが過渡電流として作用することを示

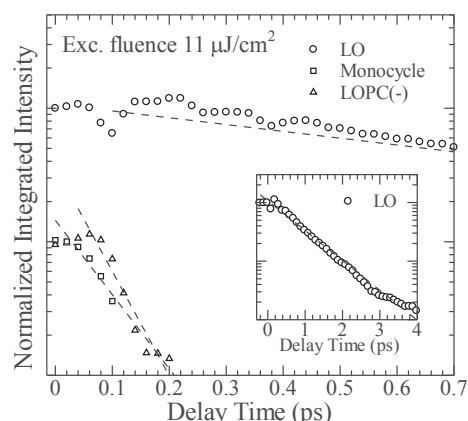


図 4. *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における時間分割フーリエ変換スペクトルの積分強度の遅延時間依存性。○はコヒーレント LO フォノン、□はモノサイクル信号、△は LOPC(-)をそれぞれ表しており、破線は指数関数によるフィッティング曲線である。挿入図はより長い時間領域でのコヒーレント LO フォノンの結果を示している。

している。また、LOPCモードの非常に短い寿命は、電子の *i*-GaAs 層から *n*-GaAs 層へのエスケープ時間を反映していると考えられる。0.05~1 ps の時間領域において、コヒーレント LO フォノンの積分強度は減少し、一方、LOPC(-)の積分強度は部分的に増加している。このことは、コヒーレント LO フォノンがプラズモンと結合し LOPCモードを形成することでコヒーレント LO フォノンの積分強度が減少し、相補的に LOPC(-)の積分強度が増加したと考えられる。この結果は、LOPCモードの結合生成時間の存在を示唆している。次に、0.1~0.2 ps の時間領域において、一度減少したコヒーレント LO フォノンの積分強度が再び増加し、一方、LOPC(-)の積分強度は急激に減少している。このことは、LOPCモードの減衰に伴って、コヒーレント LO フォノンが非結合状態となることを示している。

図 5 は *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における時間分割フーリエ変換スペクトルの(a)LOPC(+)および(b)LOPC(-)のピーク周波数の遅延時間依存性を示している。遅延時間の増加により、LOPC(-)のピーク周波数が約 1.3 THz、LOPC(+)のピーク周波数が約 0.3 THz 程度

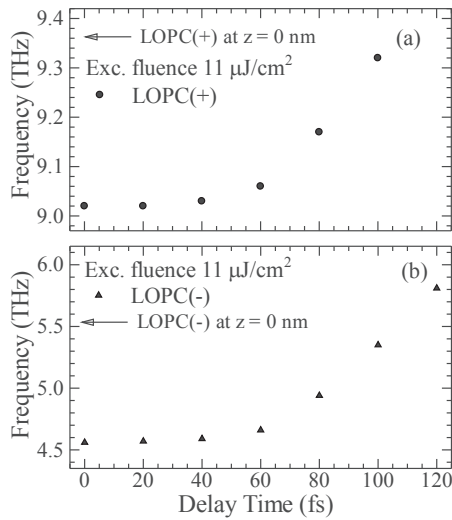


図 5. *i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における時間分割フーリエ変換スペクトルの (a)LOPC(+)と (b)LOPC(-)のピーク周波数の遅延時間依存性。図中の矢印は試料表面($z=0$ nm)における光生成キャリア(電子)濃度に対応する LOPC(+)および LOPC(-)の周波数を示している。

高周波数側にシフトしている。この理由について考察する。光強度は、試料表面からの距離が増大すると、吸収により減少するので、光生成キャリア濃度の空間分布も同様の振る舞いを示す。これを反映し、LOPCモード周波数は試料表面からの距離が増大すると減少する。従って、試料表面近傍の光生成キャリアによる LOPC モードは、相対的に高い周波数を有し、走行距離を反映して、*i*-GaAs 層中に相対的に長い時間残留する。このことが高周波数シフトの原因と考えられる。試料表面($z=0$ nm)における光生成キャリア(電子)濃度に対応する LOPCモード周波数を計算し、その結果を図 5 に矢印で示している。消失直前の遅延時間における LOPC(+)および LOPC(-)のピーク周波数は共に試料表面($z=0$ nm)の LOPCモード周波数とほぼ一致している。このことから、LOPCモードのピーク周波数の遅延時間依存性は光生成キャリア(電子)の輸送過程を反映していると結論できる。

まとめ

本研究では、*i*-GaAs(500 nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造における LOPC モードからのテラヘルツ電磁波放射のダイナミクスを詳細に調べた。時間分割フーリエ変換スペクトルの積分強度の遅延時間依存性の解析から、LOPCモードの寿命を約 60 fs と見積もった。また、LOPCモードの結合生成時間の存在と、LOPCモード減衰後にコヒーレント LO フォノンが非結合状態となる現象を確認した。更に、時間分割フーリエ変換スペクトルの LOPCモードのピーク周波数の遅延時間依存性の解析から、遅延時間の増加に伴う LOPCモードの高周波数側へのシフトを見出した。これについて、LOPCモード消失直前の遅延時間におけるピーク周波数が試料表面($z=0$ nm)の光生成キャリア(電子)濃度に対応する LOPCモード周波数とほぼ一致することを示した。従って、LOPCモードのピーク周波数の時間依存性は光生成キャリアの輸送過程を反映すると結論した。

謝辞

本研究は、JSPS 科研費 No. 15K13341 の助成を受けたものである。

参考文献

- [1] I. Yokota, J. Phys. Soc. Jpn. **16**, 2075 (1961).
- [2] A. Mooradian and G. B. Wright, Phys. Rev. Lett. **16**, 999 (1966).
- [3] A. Kuznetsov, and C. Stanton, Phys. Rev. B **51**, 7555 (1995).
- [4] P. Gu, M. Tani, K. Sakai, T.-R. Yang, Appl. Phys. Lett. **77**, 1798 (2000).
- [5] S. Tsuruta, H. Takeuchi, and M. Nakayama, J. Appl. Phys. **113**, 143502 (2013).
- [6] H. Takeuchi, J. Yanagisawa, T. Hasegawa, and M. Nakayama, Appl. Phys. Lett. **93**, 081916 (2008).
- [7] D. E. Aspnes and A. A. Studna, Phys. Rev. B **7**, 4605 (1973).