

超高速分光法による  
*i*-GaAs/*n*-GaAs 及び GaSb/GaAs エピタキシャル構造  
からのテラヘルツ電磁波放射に関する研究

2014 年 9 月

大阪市立大学大学院  
工学研究科

つるた しゅういち  
鶴田 修一



## 目次

第1章	序論.....	1
1-1	研究の背景.....	1
1-2	半導体からのテラヘルツ電磁波発生機構.....	3
1-2.1	双極子放射.....	3
1-2.2	半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射.....	5
(a)	表面電場による過渡電流モデル.....	5
(b)	光デンバーモデル.....	7
1-2.3	光整流効果.....	8
1-2.4	コヒーレントLOフォノンからのテラヘルツ電磁波放射.....	10
(a)	表面電場の超高速遮蔽モデル.....	11
(b)	瞬間誘導ラマン散乱モデル.....	13
(c)	変位励起モデル.....	13
1-3	本研究の目的及び本論文の構成.....	15
第2章	実験方法と解析方法.....	17
2-1	はじめに.....	17
2-2	実験方法.....	17
2-2.1	時間領域テラヘルツ電磁波測定.....	17
(a)	光伝導アンテナの動作原理.....	20
(b)	ナイフエッジ法を用いたレーザースポット径の見積もり.....	22
(c)	光伝導アンテナの感度特性.....	24
2-2.2	光変調反射スペクトル測定.....	26
2-2.3	ラマン散乱スペクトル測定.....	28
2-3	解析方法.....	29
2-3.1	フランツ・ケルディッシュ振動による内部電場の見積もり.....	29

2-3.2	時間分割フーリエ変換 .....	32
2-3.3	励起キャリア濃度の見積もり .....	32
第3章	<i>i</i> -GaAs/ <i>n</i> -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 ラヘルツ電磁波放射と増強機構.....	34
3-1	はじめに .....	34
3-2	試料構造 .....	35
3-3	光変調反射分光法を用いた <i>i</i> -GaAs 層内の電場強度の実験的評価 .....	37
3-4	テラヘルツ電磁波の実験結果と考察 .....	38
3-4.1	<i>i</i> -GaAs/ <i>n</i> -GaAs エピタキシャル構造からのテラヘルツ電磁波放射 .....	38
3-4.2	<i>i</i> -GaAs/ <i>n</i> -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の増強機構.....	40
3-5	まとめ.....	42
第4章	<i>i</i> -GaAs/ <i>n</i> -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放射 .....	44
4-1	はじめに .....	44
4-2	試料構造 .....	45
4-3	バルク結晶における LO フォノン-プラズモン結合モード.....	45
4-4	実験結果と考察.....	47
4-4.1	<i>i</i> -GaAs/ <i>n</i> -GaAs エピタキシャル構造における 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放射 .....	47
4-4.2	<i>i</i> -GaAs 層内における縦光学フォノン-プラズモン結合モードのダイナミクス 及びコヒーレント縦光学フォノンの減衰時間.....	52
4-4.3	<i>i</i> -GaAs/ <i>n</i> -GaAs エピタキシャル構造におけるテラヘルツ電磁波波形の励起エ ネルギー依存性 .....	58
4-5	まとめ.....	60
第5章	GaSb/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 ヘルツ電磁波放射.....	61

5-1	はじめに .....	61
5-2	試料構造 .....	61
5-3	実験結果と考察 .....	62
5-3.1	GaSb/GaAs エピタキシャル構造におけるラマン散乱測定 .....	62
5-3.2	GaSb/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 ラヘルツ電磁波放射 .....	63
5-3.3	GaSb/GaAs エピタキシャル構造におけるコヒーレント LO フォノンの生成機 構.....	64
5-4	まとめ .....	67
第 6 章	総括 .....	68
謝辞	71	
参考文献	72	

# 第1章 序論

## 1-1 研究の背景

1960年にMaiman [1]によって初めて実現されたレーザーは、科学技術に革新をもたらし、多様な学問分野はもとより、電子・通信システムを初めとした様々な産業分野や医療分野などの発展に寄与し、文明の新たなフェイズの開拓に大きく貢献してきた。1980年頃より、レーザーパルスがフェムト秒オーダーの超短パルスレーザーが開発され、特に、1991年のモード同期型Ti:sapphireパルスレーザーの発明は[2]、フェムト秒パルスレーザーが広く普及する大きな要因となった。フェムト秒パルスレーザーの超短パルス幅を利用した多様な物質の超高速光学応答（超高速分光）[3]は、光物性物理学や量子エレクトロニクスの中核分野となっている。

フェムト秒パルスレーザーが切り拓いた新たな分野の一つとして、近年世界的に注目を集めているテラヘルツ(THz)電磁波工学がある。テラヘルツ電磁波とは、図1.1に示す様に、波長にして30  $\mu\text{m}$ から3 mm、周波数にして0.1 THzから10 THzの電磁波のことを意味する。テラヘルツ電磁波は、電波領域と光領域の間に位置し、電波の透過性と光の直進性の両方を併せ持つことから、センシング及びイメージング光源として期待されており、通信、バイオ、医療、セキュリティー等、様々な分野への応用に向けて盛んに研究が行われている[4]。また、THz周波数帯は、様々な分子の振動数領域であるため、テラヘルツ電磁波を用いた分光法による研究も盛んに行われている[5]。

歴史的には、テラヘルツ電磁波は四半世紀前まで、効率的な発生方法や検出技術が存在していなかったため、他の周波数帯と比して技術面と応用面の研究開発が立ち遅れていた。テラヘルツ電磁波が応用に向けて世界的に研究が展開されるようになった転機は、1984年にAustonらによって報告された半導体光伝導スイッチによるテラヘルツ電磁波の発生と検出の実現である[6]。この手法は、光工学と電波工学の融合型ともいうべきもので、初めてテラヘルツ電磁波の電場振幅を時間領域で計測することが可能となった。この手法では検出素子の室温動作が可能であるために、時間領域テラヘルツ分光の基盤技術となり、現在の光伝導アンテナへと発展した。さらに、レーザー技術の進歩に伴ってテラヘルツ電磁波工学は急速に発展し、非線形光学結晶[7]、光パラメトリック発生[8]、半導体表面[9]、超伝導体[10]、光混合法による連続波発生[11]など様々なテラヘルツ電磁波発生手法が研究されてきた。また、電流注入型のテラヘルツ電磁波放射デバイスとして、量子カスケードレーザーによるテラヘルツ電磁波放射の研究も進められている

[12]。このような一連のテラヘルツ電磁波に関する研究を背景として、本研究では半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射に着目した。

半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射は、1990年に Zhang らによって初めに実現された[9]。半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射の利点は、光伝導アンテナのように素子加工の必要がなく、フェムト秒レーザーの照射のみでテラヘルツ電磁波発生が可能であるため、簡便性の点で他のテラヘルツ電磁波発生手法よりもはるかに汎用性が高いことである。これは、テラヘルツ電磁波を応用する際の大きなメリットと言える。

しかし、実用化に向けて必要な高強度テラヘルツ電磁波放射という条件を達成することは困難であると考えられてきた。その理由として、半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射に関する従来の研究は、半導体バルク結晶が試料として用いられてきたことによる。具体的には、半導体バルク結晶では、テラヘルツ電磁波放射にとって重要なパラメータである表面空乏層幅と表面電場強度が、ドーピング濃度によって決定されて、かつ、その2つがトレードオフの関係となり、テラヘルツ電磁波放射強度に限界があるためである。Zhangらは半導体表面に磁場を印加することで放射強度が増大することを報告している[13]。しかし、磁場をかけることは、本来の利点である簡便性を欠くことになる。このように、半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射は、他の発生手法と比べ簡便であるというメリットがあるが、放射強度が小さいというデメリットがあり、今後の実用化にあたっては、テラヘルツ電磁波放射に最適なモデル設計と、その実現のための基礎研究が求められている。本研究では、この問題意識に立脚して、これまで着目されていなかった「半導体エピタキシャル構造における内部電場の制御」という観点から、テラヘルツ電磁波発生、特に、その増強機構の解明を主目的とした。

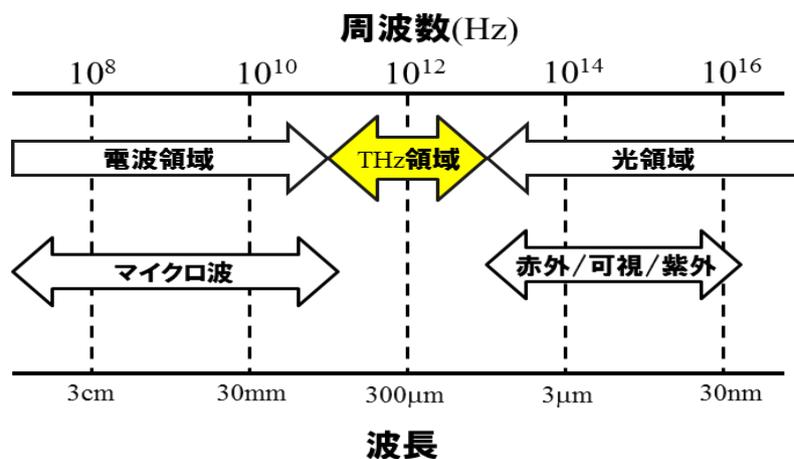


図1.1 テラヘルツ(THz)波付近の電磁波

## 1-2 半導体からのテラヘルツ電磁波発生機構

本節では、半導体からのテラヘルツ電磁波の発生機構について述べる。本研究で着目した半導体からのテラヘルツ電磁波の主要な発生機構は、大きく2種類に分けられる。一つは、フェムト秒レーザー励起直後にモノサイクル信号としてテラヘルツ電磁波波形に現れるため、first burstとも呼ばれている、「瞬間的過渡電流」や「光整流効果」に起因する広帯域単パルステラヘルツ電磁波であり、他方は、「コヒーレント縦光学(longitudinal optical:LO)フォノン」からの単色テラヘルツ電磁波放射である。本節ではこれらのテラヘルツ電磁波発生機構についての説明を行い、本研究成果を議論するための基盤とする。

### 1-2.1 双極子放射

本研究において主に扱うテラヘルツ電磁波放射は、キャリア間の分極やLOフォノン分極の振動により引き起こされた電磁波放射である。これらに起因する電磁波放射は、微小双極子からの電磁波放射と捉えることができる。図1.2(a)のような、電気双極子の双極子モーメントが時間とともに正弦波的に変化したとき、電磁気学的には、特に『ヘルツ双極子』と呼んでいる。本節では、双極子放射の概念を述べる[14]。

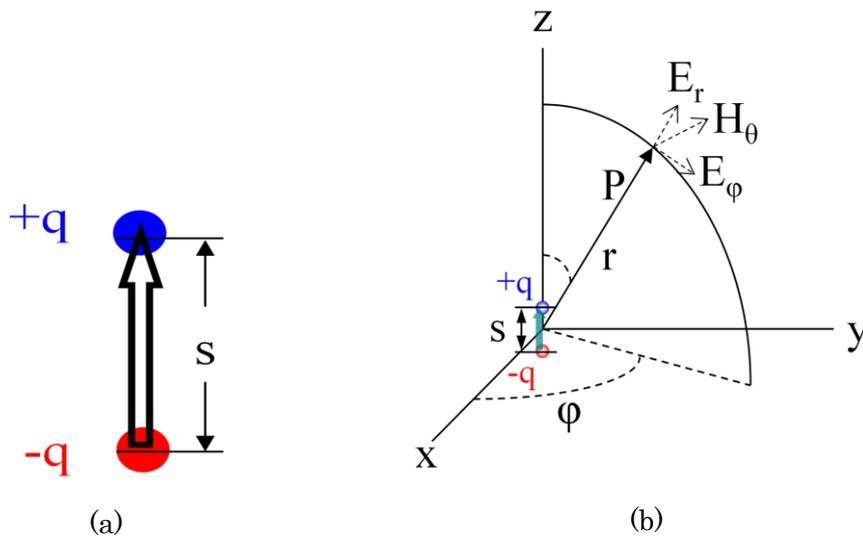


図 1.2 (a)一対の電気双極子及び(b)双極子放射

ここでは、一様に電流  $\mathbf{I}$  が流れる長さ  $s$  の微小双極子からの電磁波放射を考える。図 1.2(b)のように、原点で  $z$  軸方向に向かう長さ  $s$  線分上の電流により生じる電磁場を  $\mathbf{E}$ 、 $\mathbf{H}$  とする。座標で P 点の球座標を  $(r, \theta, \phi)$  とし、 $r$ 、 $\theta$ 、 $\phi$  方向の単位ベクトルを  $\mathbf{e}_r$ 、 $\mathbf{e}_\theta$ 、 $\mathbf{e}_\phi$  とすると、マクスウェル方程式より電場  $\mathbf{E}$ 、磁場  $\mathbf{H}$  はそれぞれ

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t) = & \frac{s}{2\pi\epsilon_0} \left[ \frac{1}{r^3} \int \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] dt + \frac{1}{cr^2} \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] \right] \sin\theta \cdot \mathbf{e}_r \\ & + \frac{s}{4\pi\epsilon_0} \left[ \frac{1}{r^2} \int \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] dt + \frac{1}{cr^2} \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] + \frac{1}{c^2 r} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] \right] \sin\theta \cdot \mathbf{e}_\theta \end{aligned} \quad (1-1)$$

$$\mathbf{H}(t) = \frac{s}{4\pi} \left[ \frac{1}{r^2} \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] + \frac{1}{cr} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] \right] \sin\theta \cdot \mathbf{e}_\phi \quad (1-2)$$

となる。これらの式で  $r^{-3}$  に比例する項は静電磁場を作り出す項であり、電気双極子の場合、電場のみに存在する。また、 $r^{-2}$  の項は誘導電磁場を発生させる項である。そして、 $r^{-1}$  の項が放射界を作り出す項である。充分遠方であれば静電項、誘導項は放射項と比べるとはるかに小さくなり、 $r^{-2}$  以上の高次の項は無視できるので、(1-1)式と(1-2)式は以下のように表される。

$$\mathbf{E}(t) = \frac{s \cdot \sin\theta}{4\pi\epsilon_0 c^2 r} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] \mathbf{e}_\theta \quad (1-3)$$

$$\mathbf{H}(t) = \frac{s \cdot \sin\theta}{4\pi cr} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{I}[t - \frac{r}{c}] \mathbf{e}_\phi \quad (1-4)$$

これは、 $\mathbf{e}_r$  の方向に伝わる電磁波で、電場は  $\mathbf{e}_\theta$  の方向、磁場は  $\mathbf{e}_\phi$  の方向のベクトルをもち、電場と磁場および進行方向は互いに直行し右手直交座標系をなしている。従って、放射される電磁波の電場振幅は空間分布を無視すると(1-3)式より

$$\mathbf{E}(t) \propto \frac{\partial \mathbf{I}}{\partial t} \quad (1-5)$$

となり、電流の時間微分に比例する。この式からわかるように、サブピコ秒オーダーの電流変化は THz オーダーの周波数の電磁波放射を生む。

## 1-2.2 半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射

本小節では、フェムト秒レーザー励起の直後にモノサイクル信号としてテラヘルツ電磁波波形に現れる、広帯域単パルステラヘルツ電磁波である **first burst** の発生原理について説明する。**first burst** の生成機構として主に提案されているのが、フェムト秒レーザー照射による光励起キャリアの過渡運動によって発生する「瞬間的過渡電流」に起因するテラヘルツ電磁波発生である。もう一つは、実励起を伴わない「光整流効果」に起因するテラヘルツ電磁波発生である。前者の「瞬間的過渡電流」起因のテラヘルツ電磁波放射に関して、過渡電流の発生要因によってさらに2つに分けられる。1つは、半導体表面の電場で光励起キャリアが加速されること（ドリフト運動）により生じる「表面電場による過渡電流モデル」であり、他方は、光励起キャリアの拡散運動によって拡散電流が生じる「光デンバーモデル」である。これらのテラヘルツ電磁波発生機構に関する研究は、InP 結晶表面からのテラヘルツ電磁波発生が初めて報告されて以来、InSb、GaSb、InAs、GaAs バルク結晶などを対象に研究されている[15-19]。次の小節では「表面電場による過渡電流モデル」について述べる。

### (a) 表面電場による過渡電流モデル

半導体表面では、バルク結晶内部とは異なり、結晶の周期性が途切れるため結晶内部とは異なるエネルギー状態になることが知られている。そのエネルギー状態を決定する際、フェルミ準位が重要な役割を果たす。結晶内部のフェルミ準位は、その電子と正孔の濃度によって決定されるが、半導体表面ではその特有の結晶欠陥や不純物によりフェルミ準位が変調される[20]。平衡状態では表面と結晶内部のフェルミ準位は同じ値をとるため、表面付近では表面状態と結晶内部との間で電子・正孔の移動が生じる。このキャリアの移動によって表面付近ではバンド構造が歪曲し、表面電場が生じる。その表面電場によって多数のキャリアが表面付近から失われるため、表面付近にキャリアの空乏層が生じる。また、条件によっては電子蓄積層が生じることもある[21]。この表面電場の向きと大きさは、結晶内部におけるフェルミ準位と表面フェルミ準位の位置関係に依存する。

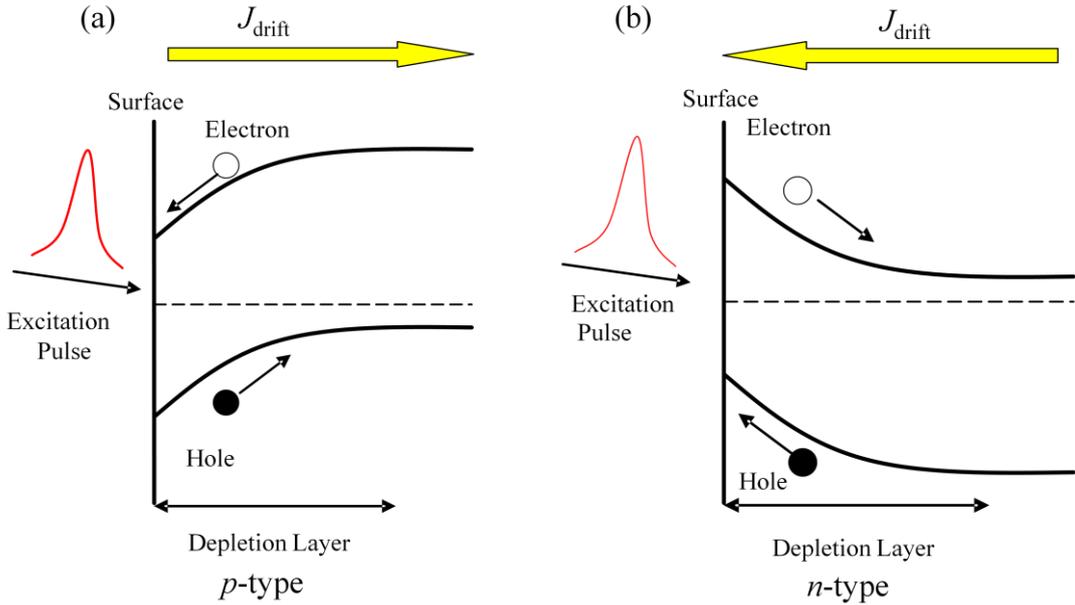


図 1.3 (a) $p$  型、(b) $n$  型半導体の表面付近のポテンシャル構造の模式図

図 1.3(a)と(b)は  $p$  型及び  $n$  型半導体の表面付近の空乏状態のポテンシャル構造の模式図である。半導体表面にフェムト秒レーザー照射によって瞬間的に光励起キャリアを生成すると、電子と正孔は表面電場によってそれぞれ逆方向に加速され、表面鉛直方向に以下の式で表わされる過渡的ドリフト電流が生じる[15]。

$$J_s = \frac{e\alpha}{\hbar\omega} [1 - R(\theta_{op})] \int_0^W E_d(x) e^{-\alpha x} dx \int_{-\infty}^t \mu(t-t') \int_{-\infty}^{t'} e^{-(t'-t'')/t_0} I_{op}(t'') dt'' dt' \quad (1-6)$$

ここで、 $R(\theta_{op})$ は反射率の角度依存性、 $x$ は表面からの距離、 $W$ は空乏層幅、 $\alpha$ は吸収係数、 $E_d$ は内部電場、 $\mu$ は光励起キャリアの移動度、 $I_{op}$ は単位時間当りのパルス強度、 $t_0$ はキャリア寿命を表わしている。(1-5)式で示したように、この過渡電流  $J_s$  の時間微分に比例するテラヘルツ電磁波が放射される。また、図 1.3 からわかるように、 $p$  型半導体と  $n$  型半導体ではドリフト電流の向きが逆である。そのため、放射電磁波の極性も逆になる。これを利用し、表面近傍のポテンシャル湾曲の調査が可能である[22]。また、GaAs等の比較的バンドギャップが大きい物質におけるテラヘルツ電磁波発生は、この表面電場による過渡電流モデルの寄与が大きいと報告されている[23]。次に、もう一つの実励起を伴うテラヘルツ電磁波発生機構である「光デンバーモデル」について述べる。

## (b) 光デンバーモデル

ここでは、光生成キャリアの拡散運動によって発生する過渡電流に起因するテラヘルツ電磁波発生機構である光デンバーモデルについて述べる。

デンバー効果とは、電子と正孔の拡散速度の違いによって拡散電流の差が生じそれに伴って電場(デンバー電場)が生じることである。これは一般的に、電子の拡散速度は正孔の拡散速度より大きく、この拡散速度の違いによって電子と正孔の空間分布に違いが生じるために起こる。特に、光を照射することによってデンバー電場が生じることを光デンバー効果という。光デンバー効果によって、サブピコ秒オーダーで変化する拡散電流が生じた場合、(1-5)式より THz オーダーの周波数の電磁波が放射される。

光デンバー効果によって生じる拡散電流の模式図を図 1.4 に示す。電子の拡散電流( $J_n$ )と正孔の拡散電流( $J_p$ )は、それぞれ以下で与えられる。

$$J_n = +e D_e \frac{\partial \Delta n}{\partial x} \quad (1-7)$$

$$J_p = -e D_h \frac{\partial \Delta p}{\partial x} \quad (1-8)$$

ここで  $e$  は電荷素量を表わし、 $\Delta n$  及び  $\Delta p$  は光生成電子と正孔の濃度、 $D_e$  及び  $D_h$  は電子と正孔の拡散係数を表わしている。拡散係数  $D$  は、アインシュタインの関係により、移動度と下記のように関連づけられる。

$$D = \frac{k_B T \mu}{e} \quad (1-9)$$

ここで、 $k_B$  はボルツマン定数を表し、 $T$  はキャリアの温度、 $\mu$  は移動度を表す。これらことからデンバー効果によって生じる電流( $J_{\text{dif}}$ )は以下のように表わされる。

$$\begin{aligned} J_{\text{dif}} &= J_n + J_p \\ &= e \left( +D_e \frac{\partial \Delta n}{\partial x} - D_h \frac{\partial \Delta p}{\partial x} \right) \end{aligned} \quad (1-10)$$

(1-10)式から、光デンバー効果により放射されるテラヘルツ電磁波は、電子と正孔の移動度、温度の違い、並びにキャリアの濃度勾配に比例することがわかる。InAs や InSb などのナローギャップ半導体では、Ti:sapphire レーザーの波長領域で吸収係数が高く、光生成キャリアの濃度勾配が急峻になるため、テラヘルツ電磁波放射は光デンバー効

果による寄与が大きいと考えられている[15]。

光デンバーモデルの場合、電子と正孔の拡散方向は同じである。従って、電子と正孔によって生じる拡散電流は互いに逆向きになるが、電子は正孔よりも大きな移動度をもつため、(1-9)、(1-10)式から、全体として拡散電流は電子の拡散方向、つまり試料内部方向に生じる。さらに、光デンバー効果による拡散電流は  $n$  型、 $p$  型に関係なく、どんな半導体でも同じ方向に生じるので、放射されるテラヘルツ電磁波も  $n$  型と  $p$  型で同じ波形となる。

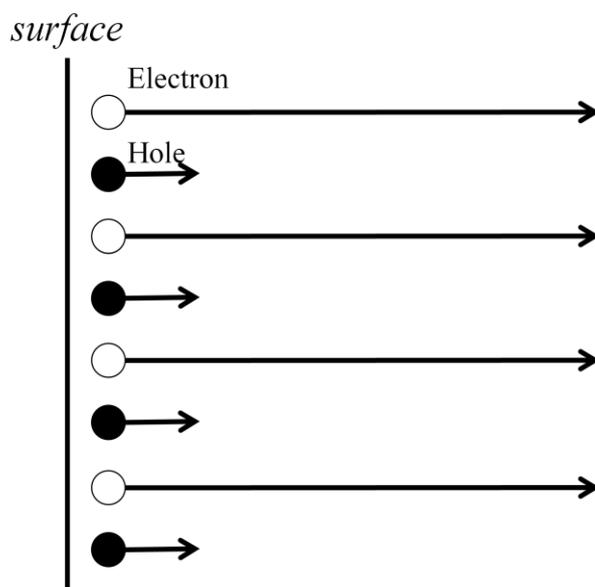


図 1.4 光デンバー効果の模式図

### 1-2.3 光整流効果

本小節では、非線形光学効果の一つである光整流効果によってテラヘルツ電磁波が放射されることを示す。このモデルは、光パルスの電場  $E$  によって誘起される非線形電子分極に起因する効果であり、実励起を必要とせず、その応答は実励起を伴うものに比べて速い。この光整流効果によるテラヘルツ電磁波放射は、1992年に Chuang によって報告され、高強度励起下での主要なテラヘルツ電磁波放射機構として知られている[24]。

この光整流効果によるテラヘルツ電磁波発生は、いわゆる差周波発生法に対応する。入射光の振動数( $\omega_1$ ,  $\omega_2$ )と生成されるテラヘルツ電磁波の間に以下の関係式を持つ。

$$\omega_{\text{THz}} = \omega_1 - \omega_2 \quad (1-11)$$

この生成される  $\omega_{\text{THz}}$  が、入射光の  $\omega_1$  と  $\omega_2$  に比べて極端に小さいために直流的に見なすことができ、この過程は光整流効果と呼ばれている。

光整流効果で誘起される非線形分極  $P^{\text{NL}}$  は、以下の式で表わされる[24,25]。

$$P_i^{\text{NL}}(\omega_{\text{THz}} = \omega_1 - \omega_2) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) d\omega_1 \quad (1-12)$$

$$(\omega_2 = \omega_1 \pm \omega_{\text{THz}})$$

$$P_i^{\text{NL}}(t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} P_i^{\text{NL}}(\omega_{\text{THz}}) \cdot \exp(i\omega t) d\omega \quad (1-13)$$

ここで  $\chi^{(2)}$  は 2 次の非線形感受率である。放射されるテラヘルツ電磁波は、この分極の 2 次の時間微分として与えられる。

$$\mathbf{E}_i^{\text{THz}}(t) \propto \frac{\partial^2 \mathbf{P}_i^{\text{NL}}(t)}{\partial t^2} \quad (1-14)$$

励起光に用いられるフェムト秒レーザーは、不確定性関係のためにある程度広がったスペクトル幅  $\Delta\omega$  を持つ。光整流効果によってテラヘルツ電磁波が放射されるためには、 $\Delta\omega > \omega_{\text{THz}}$  の関係が必要であり、励起光のスペクトル幅  $\Delta\omega$  が大きいほど高周波数のテラヘルツ電磁波の発生が可能になる。これまでにパルス幅 10 fs 程度の超短パルスレーザーを用いることで広帯域化の研究が進められており[26,27]、100 THz を超えるテラヘルツ電磁波を発生したという報告もある[28]。光整流効果は 2 次の非線形効果であるため励起光の電場強度が大きい場合や、電気感受率が高い試料において観測される。

これまで述べてきた 3 つのモデル「過渡電流モデル」、「光デンバーモデル」、「光整流効果」が、first burst の発生機構である。先に述べたように GaAs 等のバンドギャップが比較的大きい物質では「表面電場による過渡電流モデル」で、InAs 等のバンドギャップが比較的大きい物質では「光デンバーモデル」が支配的なテラヘルツ電磁波発生機構と言われている。しかし、励起光強度や温度によって支配的なテラヘルツ電磁波発生機構が変わることが報告されている[29]。

これまで説明したように、テラヘルツ電磁波放射は、原理的に、巨視的な電流、及び分極の時間変化によって引き起こされるものであるため、“コヒーレント” という概念が非常に重要となる。次の小節から、本研究の主対象である「コヒーレントフォノン」について説明する。

## 1-2.4 コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波放射

本節では、「コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波放射」について述べる。フェムト秒レーザー照射によって誘起された、時間・空間で位相が揃った集団格子振動をコヒーレントフォノンと呼び、コヒーレント LO フォノンの場合、巨視的な分極が形成されテラヘルツ電磁波を放射する。コヒーレント LO フォノンの生成機構として、「瞬間誘導ラマン散乱モデル」、「表面電場の超高速遮蔽モデル」、「変位励起モデル」が提案されており、これらについて順に説明する。

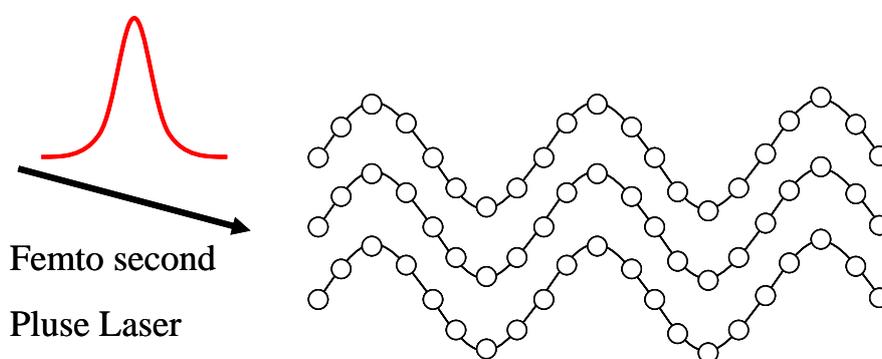


図 1.5 コヒーレントフォノンの概念図

これまで、フォノンの分光学的研究は、主にラマン散乱分光法と赤外分光法を用い行なわれてきた。ラマン散乱とは、入射光としてある単色光を試料に照射した場合、入射光がフォノンやプラズモンに代表される素励起と相互作用することで、入射光とは異なるエネルギーをもつ光が、ある方向に散乱されるという現象である。したがって、ラマン散乱分光法では、入射光と散乱光との間のエネルギー差の関数としてラマン散乱信号が検出される。しかし、近年フェムト秒パルスレーザーの出現により、フォノンの振動周期よりも短い時間領域での測定が可能となり、より本質的なフォノンの情報を得ることができるようになった。フォノンの振動周期よりも短い時間幅を有するパルスレーザーを照射することにより、瞬時に図 1.5 のような位相の揃ったフォノンの集団が生成される。このようなフォノンの集団をコヒーレントフォノンと呼ぶ。コヒーレント LO フォノンの場合は巨視的な分極を形成するため、フォノン振動数に対応した単色テラヘルツ電磁波を放射する。

コヒーレントフォノンの初期の研究対象となった物質は、透明物質中のフォノンモードであった。このようなコヒーレントフォノンの初期の研究対象となった物質は、測定に使用されるレーザーパルス光に対し透明である。Nelson らは、こうした透明物質中でのコヒーレントフォノンの生成機構に対して瞬間誘導ラマン散乱 (Impulsive stimulated Raman scattering, ISRS) 機構というモデルを提唱した[30,31]。その後、試料に対し不透明であるレーザーパルスを使用することで、半導体、半金属などの様々な物質におけるコヒーレントフォノンの生成が報告された。このような、レーザーパルスに対し不透明な試料に生じるコヒーレントフォノンにおいては、上述の ISRS 機構のほかに変位励起 (Displasive Excitation of Coherent Phonon, DECP) 機構[32]や表面電場遮蔽 (Impulsive Surface Screening of Electric Field, ISSEF) 機構[33]が提案されている。コヒーレントフォノンの生成機構については以下の項でさらに詳しく述べる。

化合物半導体中におけるコヒーレント LO フォノンの観測は、ポンプ・プローブ分光法を用いて Cho らにより最初に行なわれ、試料に対し不透明なレーザーパルスを GaAs バルク結晶に照射することにより ISSEF 機構により生じるコヒーレント LO フォノンを観測した[33]。近年では、コヒーレント LO フォノンの振動により生じた分極を利用したテラヘルツ電磁波放射の観測も行なわれている。コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波は、1995 年に Dekorsy らによりはじめて観測された[34,35]。対象としている物質は Te であり、放射されたテラヘルツ電磁波は、入射光の偏光依存性を測定することによりコヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波であることを明らかにしている。その後、Tani らにより、Te、PbTe、CdTe 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放射が報告され[36]、1999 年には Leitenstorfer らによつてはじめて GaAs のコヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波放射が報告された[37,38]。

#### (a) 表面電場の超高速遮蔽モデル

半導体の表面ポテンシャルは、物質へのレーザーパルス光照射によって変化する場合がある。例えば、GaAs のような極性半導体に存在する表面ポテンシャルによる表面電場は、超短パルスレーザー光の照射で生成されるキャリアに起因するクーロン遮蔽効果によって瞬間的に変化する。こうした表面電場の瞬間的な変化は、コヒーレントフォノン生成の引き金になる。この項では、表面電場の遮蔽がコヒーレントフォノン生成に与える影響について述べる。図 1.6 は、GaAs 表面層近傍におけるポテンシャル構造と原

子の位置を、模式的に表したものである。図 1.6(a)と(a')は、それぞれ表面電場が存在しないと仮定した場合のポテンシャル構造および構成原子(Ga、As)の位置を示している。しかしながら実際には、GaAs の表面近傍では、フェルミ準位のピニングによりポテンシャル構造が湾曲している。この表面のポテンシャル構造は、図 1.6(b)のように示すことができる。この状態での構成原子の位置を示しているのが図 1.6(b')である。この図は、連鎖方向に静電場が加わることにより、構成原子がその電荷に応じて変位を起こしていることを示している。この状態で、GaAs 表面にパルスレーザー光を照射した場合、光生成される電子と正孔は、それぞれ図 1.6(c)の矢印方向に動き出す。この光生成キャリアの空間分離により発生した電場は、図 1.6(b)の表面電場と反対の向きをとるため、元々存在した表面電場を弱める。そのため、図 1.6(c)の実線が示すようにポテンシャルの湾曲が瞬間的に減少する。このような条件下での原子の平衡点の位置は、図 1.6(c')のように表面電場が存在しないと仮定した場合の原子の平衡点の位置を示している破線に近づく。ISSEF 機構とは、この新しい平衡点に向かって構成原子が同一位相で動き出すことによりコヒーレントフォノンが生成されるというモデルである。

このモデルは、はじめに Cho らのグループによって提唱された[33]。また Pfeifer らは、GaAs に電極をつけて外場電場を印加することにより、コヒーレントフォノンの振幅が増幅されることを観測し、コヒーレントフォノン生成における電場の効果を確認している[39]。

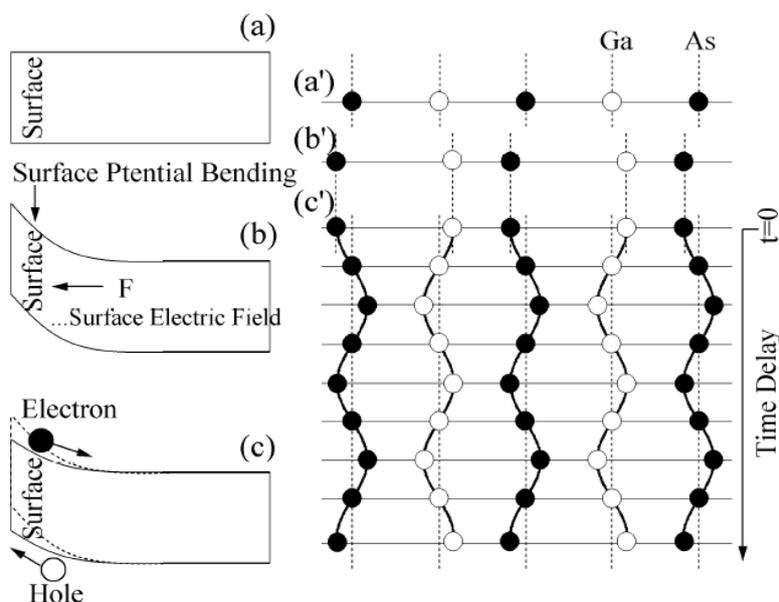


図 1.6 表面電場の超高速遮蔽効果によるコヒーレントフォノン発生

## (b) 瞬間誘導ラマン散乱モデル

まず、この生成機構を説明するために物質に対して透明な単一波長のレーザー光を照射した場合に起こる通常のラマン散乱によりフォノンが生成される過程について説明する。図 1.7(a)は、ラマン散乱過程のエネルギーダイアグラムを示している。この過程では、振動数  $\omega_1$  のレーザー光を照射することにより仮想準位に励起された電子系がフォノンと相互作用することでフォノンを放出し、同時に散乱光を放出することにより基底状態に遷移する。

次に、図中の振動数  $\omega_1$  と振動数  $\omega_2$  が同時に存在する超短パルス光を用いた際に生じるフォノンの生成過程について説明する(図 1.7(b))。超短パルス光を試料に照射した際、振動数  $\omega_1$  の光によって電子系が仮想準位に励起される。励起された電子系がフォノンと相互作用し、フォノンが生成されるが、また同時に、振動数  $\omega_2$  の光により散乱光が誘導放出されるため、高効率でフォノンが生成される。この過程を瞬間誘導ラマン散乱過程という。

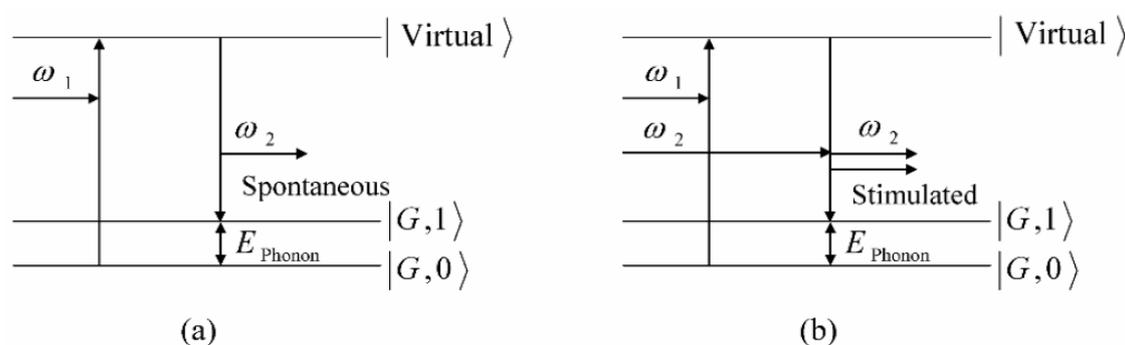


図 1.7 (a)ラマン散乱、(b)誘導ラマン散乱のエネルギーダイアグラム

## (c) 変位励起モデル

レーザー光に対して不透明な物質では、キャリア生成に伴う物質系全体でのポテンシャルの変化が起こる。本項で取り上げる変位励起機構(DECIP)とは、フェムト秒パルスレーザー光照射によるキャリア生成が引き金となってコヒーレントフォノンが生成される機構のことである。図 1.8 に、原子間の距離  $Q$  を関数とした電子の基底状態および実励起状態におけるエネルギーダイアグラムを示した。なお、この図では、基底状態における平衡点  $Q_0^g$  を座標原点としている。この基底状態にある物質系で、電子を励起し

たとすると、系全体での力のバランスが崩れる。このことは、励起状態における原子の平衡点の位置  $Q_0^{ex}$  が基底状態でのそれとは異なっていることを意味している。

こうした系に、フェムト秒レーザーパルスを照射し、電子を実励起したとする。まず初めに、光吸収により、電子は瞬間的に励起状態に遷移する。この遷移の間、物質を構成する原子の位置は変化しないと考えられる。なぜなら物質を構成する原子と電子の質量比は1よりも遥かに小さいため、それらの間での運動の速さの比も小さくなるためである(フランクコンドンの原理)。これは、図の矢印で示したように、垂直遷移が起こることを意味している。このような垂直遷移が起こった直後、原子系は励起状態での平衡点  $Q_0^{ex}$  を目指して、いっせいに振動を開始する。この時、平衡点  $Q_0^{ex}$  のまわりでコヒーレントな振動が生じる。これが DECP 機構である。

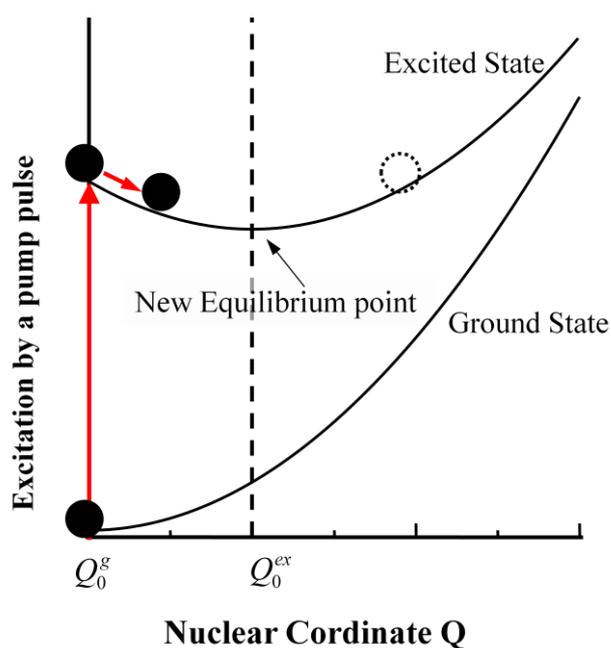


図 1.8 変位励起機構におけるエネルギーダイアグラム

### 1-3 本研究の目的及び本論文の構成

本研究は、半導体エピタキシャル構造を対象として、半導体表面からのテラヘルツ電磁波発生に関する包括的な研究とその制御を目的としている。半導体表面からのテラヘルツ電磁波発生に関する報告は、フェムト秒レーザー照射によってテラヘルツ電磁波発生が実現した初期の頃に行われていたが、最近ではほとんど報告例がないのが現状であり、未だ解明されていない部分が多く残っている。特に、半導体表面からの高強度テラヘルツ電磁波発生は、未解決の状況である。また、LO フォノン-プラズモン結合(LO phonon-plasmon coupled:LOPC)モードに関する研究は、ラマン散乱分光法や反射型ポンプ-プローブ法での研究は数多く報告されているが、テラヘルツ電磁波放射に関する研究は限られている。この原因として考えられるのが、従来の半導体表面からのテラヘルツ電磁波発生の研究対象は主に半導体バルク結晶であるためと考えられる。先にも述べたが、半導体バルク結晶では半導体表面からのテラヘルツ電磁波発生には限界がある。そこで本研究では、比較的作製が容易であるにも関わらず、バルク結晶とは異なる特性を有する *i*-GaAs/*n*-GaAs 及び GaSb/GaAs エピタキシャル構造に着目した。またテラヘルツ電磁波は分光やセンシングなどへの応用が期待されており、そのためには高強度テラヘルツ電磁波エミッターの開発が必須である。本研究では、半導体エピタキシャル構造特有のテラヘルツ電磁波放射機構及びコヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波の増強機構の解明を目的としている。

次に本論文の構成について述べる。

第 1 章は本章であり、研究背景、本研究の中核的物理概念となるテラヘルツ電磁波発生機構、研究目的について述べた。

第 2 章では、実験方法、及び実験によって得られた結果の解析手法について述べる。時間領域テラヘルツ電磁波測定では、励起光源として最短パルス時間幅 50fs を有する Ti:sapphire レーザー、検出系には高周波領域まで感度が高い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テラヘルツ電磁波波形を測定した。さらに、試料の内部電場強度の評価が可能であるフランツ・ケルディッシュ(Franz-Keldysh:FK)振動を測定するための光変調反射(photoreflectance:PR)分光法について概説する。また、この章では、ラマン散乱分光法についても説明する。

第 3 章では、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造におけるテラヘルツ電磁波放射の増強機構について述べる。本章ではまず初めに、PR スペクトル上に現れるフランツ・ケ

ルディッシュ振動の解析を行い、*i*-GaAs 層内の内部電場の実験的評価を行った。次に、時間分解テラヘルツ電磁波測定法を用いて測定したテラヘルツ電磁波波形に対し、層厚及び励起強度で補正を行い、コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波の内部電場依存性と増強機構に関して考察する。

第 4 章では、*i*-GaAs/*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について述べる。LOPC モードの励起光強度依存性から、テラヘルツ電磁波の生成機構について考察する。さらに、LOPC モードの減衰時間を分析し、そのダイナミクスについて考察を行う。

第 5 章では、GaSb/GaAs エピタキシャル構造を対象とした研究結果について述べる。ラマン散乱分光法を用いた結果とテラヘルツ電磁波測定の結果を比較し、光学的にマスクされた、即ち、励起光が届かない GaAs バッファ層におけるテラヘルツ電磁波発生機構を考察する。

最後に、第 6 章で本研究を総括する。

## 第2章 実験方法と解析方法

### 2-1 はじめに

本章では、本研究において用いた実験方法と解析方法について述べる。テラヘルツ電磁波測定に関しては、フェムト秒パルスレーザーを励起光源として、光伝導ダイポールアンテナを検出器として用い、光ゲート法により時間領域テラヘルツ電磁波測定を行った[40]。光ゲート法の原理、光伝導ダイポールアンテナの特性について、詳細に説明する。試料の内部電場を測定するために、PR分光法を用いた[40]。さらに、光学フォノンモードを測定するために、ラマン散乱分光法を用いた。これらの実験方法についても、本章で説明する。解析に関しては、時間領域テラヘルツ電磁波信号の時間分割フーリエ変換、PRスペクトルで観測されるフランツ・ケルディッシュ振動からの電場強度解析について述べる。

### 2-2 実験方法

#### 2-2.1 時間領域テラヘルツ電磁波測定

本小節では、半導体からのテラヘルツ電磁波の時間領域波形を得るために用いた時間領域テラヘルツ電磁波測定の実験系について説明する。図 2.1 はその光学系の概略図である。

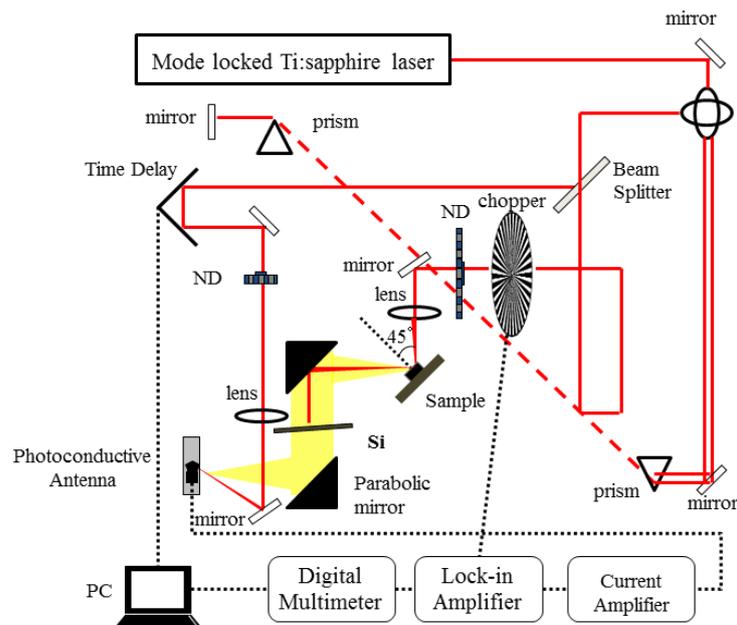


図 2.1 時間分解テラヘルツ電磁波測定システムの概略図

フェムト秒レーザー光源として、Laser Diode 励起 Nd:YVO<sub>4</sub> レーザー(Spectra-Physics 社製 Millenia、発振波長 532 nm)を励起光源としたモード同期チタンサファイアレーザーシステム(Kapteyn-Murnane 社製 : Model MTS Ti:sapphire Laser Kit)を用いた。チタンサファイア結晶を 4.5W で励起した時のフェムト秒レーザーシステムの基本スペックは、パルス時間幅が 50~60 fs、繰り返し周波数が 90 MHz、中心波長が 770~820 nm である。

このレーザーシステムから出射後、分散補償プリズム対を通り、ビームスプリッターによって試料を励起するためのポンプ光と検出器である光伝導アンテナへ導かれるゲート光に分けられる。ポンプ光は、ロックインアンプと同期させたチョッパー、及び ND フィルターを通り、焦点距離 7 cm のレンズを用いて試料に集光される。試料へのポンプ光の入射角は 45°としている。一方、ゲート光は、時間遅延を与えるために可動式のレトロリフレクターを通り、焦点距離 15cm のレンズによって光伝導アンテナに集光される。ポンプ光照射によって放射されたテラヘルツ電磁波は、パラボリックミラー対によって光伝導アンテナに集光される。ここでパラボリックミラー対の間には半絶縁性 Si ウエハを配置し、ポンプ光を遮断している。現在のエレクトロニクスを用いた検出技術では電気信号の応答速度の問題があるため、サブピコ秒という短いテラヘルツ電磁波波形を計測することは不可能である。時間分解テラヘルツ電磁波測定では、繰り返し周波数が 100 MHz 程度のポンプ光によって同じ波形のテラヘルツ電磁波が光伝導アンテナに照射されることを利用して、ポンプ光とゲート光の間に光学的な時間遅延を掃引させてテラヘルツ電磁波波形を計測している。また光伝導アンテナから得られた信号は、信号対雑音比(S/N 比)を向上させるために、ポンプ光に 2 kHz の変調を与えロックイン検出を行っている。光伝導アンテナの動作原理については次節で詳しく述べる。

パルス幅の見積もりには、非線形光学結晶を用いた第 2 高調波発生による強度自己相関法を用いた。図 2.2 に本研究で用いた自己相関関数の測定系の概略図、図 2.3 に自己相関関数測定概念図を示している。この方法は、図 2.3 のように波数ベクトル  $k_1$ 、角周波数  $\omega_1$  をもつポンプ光と、波数ベクトル  $k_2$ 、角周波数  $\omega$  を持つゲート光をそれぞれ非線形光学結晶(LBO(LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>)結晶)のある一点に絞り込み、それらの光の進む向きと非線形結晶の結晶軸とで決定される位相整合条件を満たす方向から放出される第 2 高調波の強度、すなわちポンプ光とゲート光との間での強度相関関数をゲート光の時間遅延  $\tau$  の関数として測定し、レーザーパルス光の時間波形を求める方法である。この強度相関関数  $G(\tau)$  は、ポンプ光とゲート光のパルス波形をそれぞれ  $I_{\text{pump}}$ 、及び  $I_{\text{gate}}$  とすると

$$G(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{pump}}(t) \cdot I_{\text{gate}}(t - \tau) dt \quad (2-1)$$

で与えられる。レーザーパルス光の波形が hyperbolic secant 関数の形状に従う場合は、自己相関関数の時間幅  $\tau_A$  と実際のパルス波形  $\tau_S$  の間には

$$\tau_S \sim 0.648\tau_A \quad (2-2)$$

で与えられる関係が成り立つ。従って、レーザーパルス光の時間幅は、自己相関関数の半値全幅に 0.648 を掛けたものであるとした。

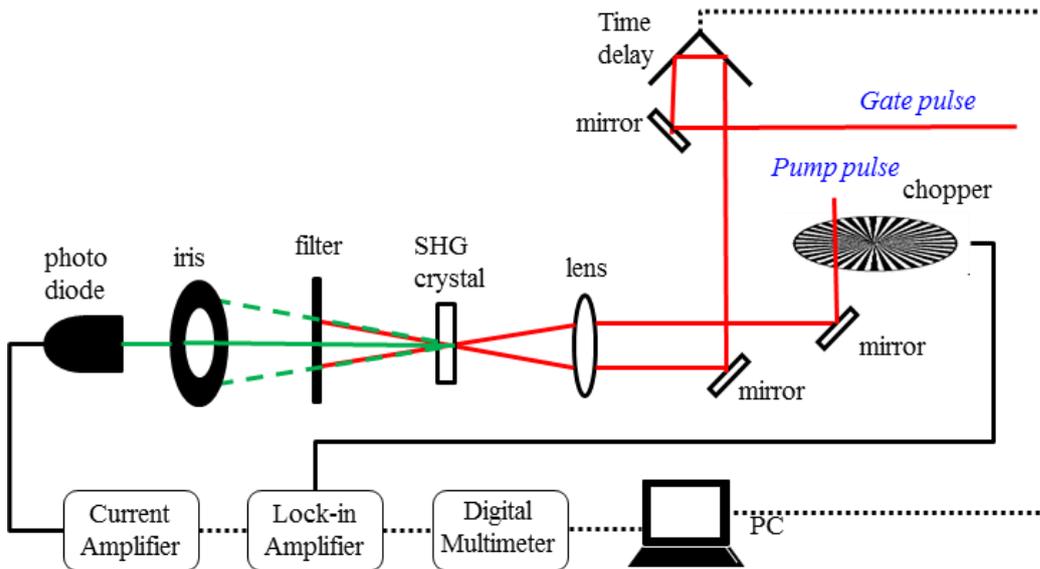


図 2.2 自己相関関数測定系の概略図

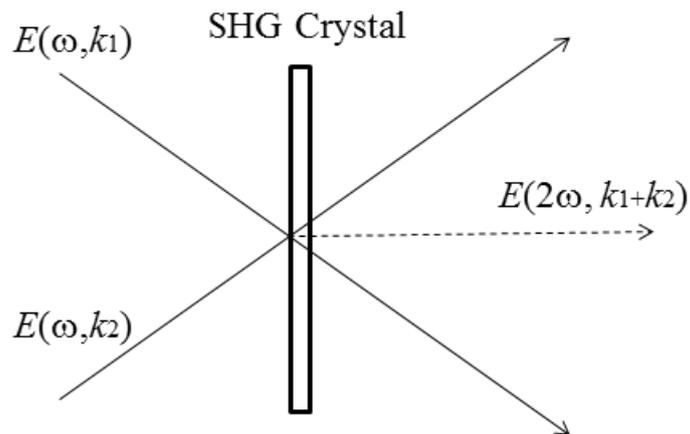


図 2.3 自己強度相関発生概念図

### (a) 光伝導アンテナの動作原理

光伝導アンテナは、1984年に Auston らによって開発され[6]、現在ではテラヘルツ電磁波の発生・検出の両方の目的で広く使用されている。本研究においては、テラヘルツ電磁波の検出に用いている。本項では、光伝導アンテナの動作原理について説明する。図 2.4(a)と図 2.4(b)は、ゲート光が照射されていない場合と照射された場合のダイポール型アンテナの模式図を示している。図 2.4 に示したように、ダイポール型アンテナの中央にはギャップがあり、そこにゲート光を照射すると光生成キャリアによって瞬間的に伝導性が生じる。それと同時に、テラヘルツ電磁波が照射されると、テラヘルツ電磁波の電場によってキャリアが加速されるため電流が流れる。この検出方法を用いれば、電流の大きさによるテラヘルツ電磁波強度の情報以外に、電流の向きによって電磁波の電場の向きの情報を得ることができる。またアンテナの構造上、検出可能なテラヘルツ電磁波の偏光方向はギャップと平行方向に限られる。

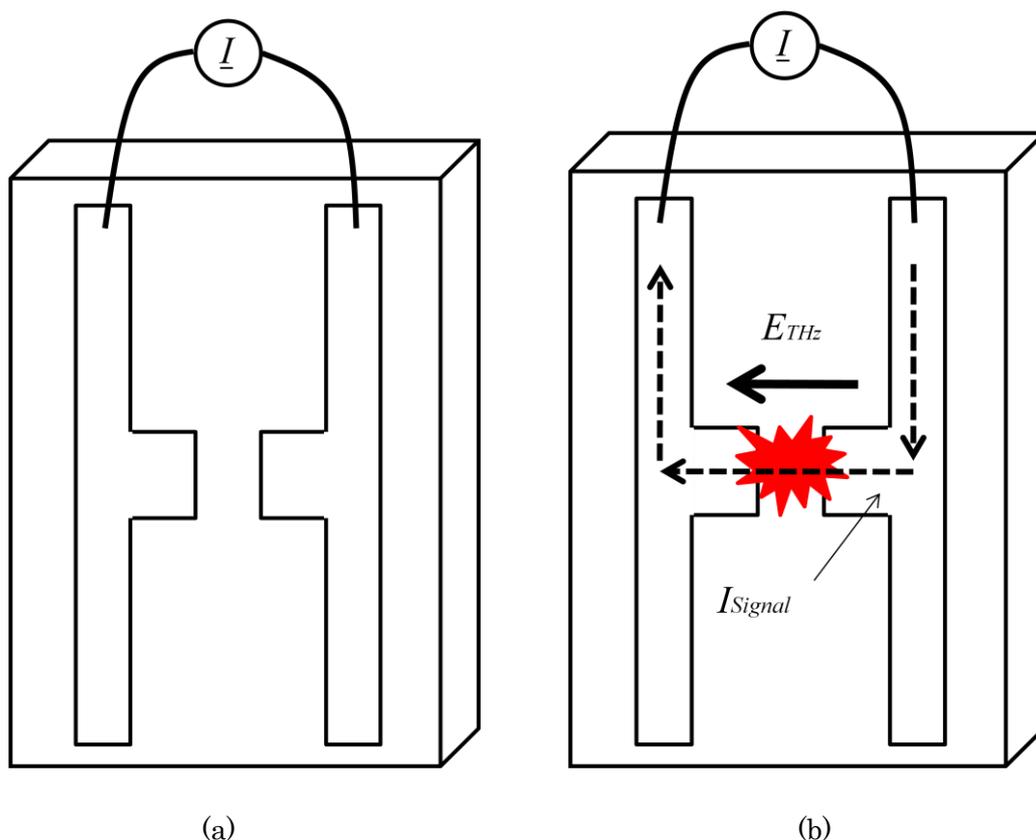


図 2.4 (a)ゲート光照射前、及び(b)照射時の光伝導アンテナの模式図

本研究においては、アンテナ基板に低温成長(LT-)GaAs を用いている。LT-GaAs を用いるメリットは主に以下の3つである。

- (1)ゲート光照射前のアンテナ間の抵抗が高い
- (2)ゲート光照射時のアンテナ間の抵抗が低い
- (3)光励起キャリアの緩和時間が短い

(1)は暗電流が小さいことを意味しており、測定時のノイズの抑制に繋がる。(2)の特徴は、極めて弱いテラヘルツ電磁波の電場成分を検出する上で有利である。(3)の特徴は、テラヘルツ電磁波を検出する際の時間分解能と関係する。以下にその理由を述べる。

観測される信号  $I_{\text{Signal}}(t)$  は、アンテナに照射されるテラヘルツ電磁波の電場  $E_{\text{THz}}(t)$  とアンテナ応答  $N_{\text{gate}}(t)$  の畳み込み積分として表わされる。

$$I_{\text{Signal}}(t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{THz}}(t) N_{\text{gate}}(t - \tau) d\tau \quad (2-1)$$

ここで  $N_{\text{gate}}(t)$  がデルタ関数の場合、 $I_{\text{Signal}}(t)$  は  $E_{\text{THz}}(t)$  と一致する。しかし、 $N_{\text{gate}}(t)$  は実際の測定ではデルタ関数ではなく、ゲート光のパルス時間幅、及び光励起キャリアの緩和時間に依存する。つまり、アンテナの時間分解能を上げるためには、これらの時間を短かくする必要がある。そこでキャリアの緩和時間という観点から選ばれたのが LT-GaAs である[41]。LT-GaAs は、従来の成長温度(600°C)よりも低い約 200°C で成長させ、成長後にアニーリングを施すことで結晶中に As クラスタが形成され、高い格子欠陥濃度 ( $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ) と高抵抗性をもつ。光生成キャリアはこの欠陥に、0.3ps 程度でトラップされる。このように、LT-GaAs は短いキャリア寿命を持ちつつ、比較的の高い移動度を併せ持つ。さらにそのバンドギャップは、室温において 1.42eV 程度であるため、従来のフェムト秒パルス光源である Ti:sapphire パルスレーザーでキャリアの生成が可能である。以上の理由から光伝導アンテナの材料として LT-GaAs が広く普及している。ただし、測定したい周波数帯によっては高抵抗 Si が使われることもある。また、本研究における実験では全てダイポールアンテナを用いたが、光伝導アンテナの形状にはダイポール型以外に様々なものがある。その中でも良く知られているのがボウタイ型アンテナである。図 2.5 はボウタイ型アンテナとダイポール型アンテナの形状の模式図である。

一般的に、ボウタイ型はダイポール型と比べて検出感度が高く、その検出帯域は低周波数側であることが知られている[42]。ダイポール型アンテナでは、アンテナ部分が狭

いために低周波数成分の感度が低く、高周波数成分の感度が高い。これに対し、ボウタイ型はその広いアンテナにより低周波数側の感度が高い。これらは、測定したい周波数帯によって使い分ける。本研究においては、コヒーレント LO フォノンについて議論するため、高周波数側まで感度が高いダイポール型アンテナを用いた。

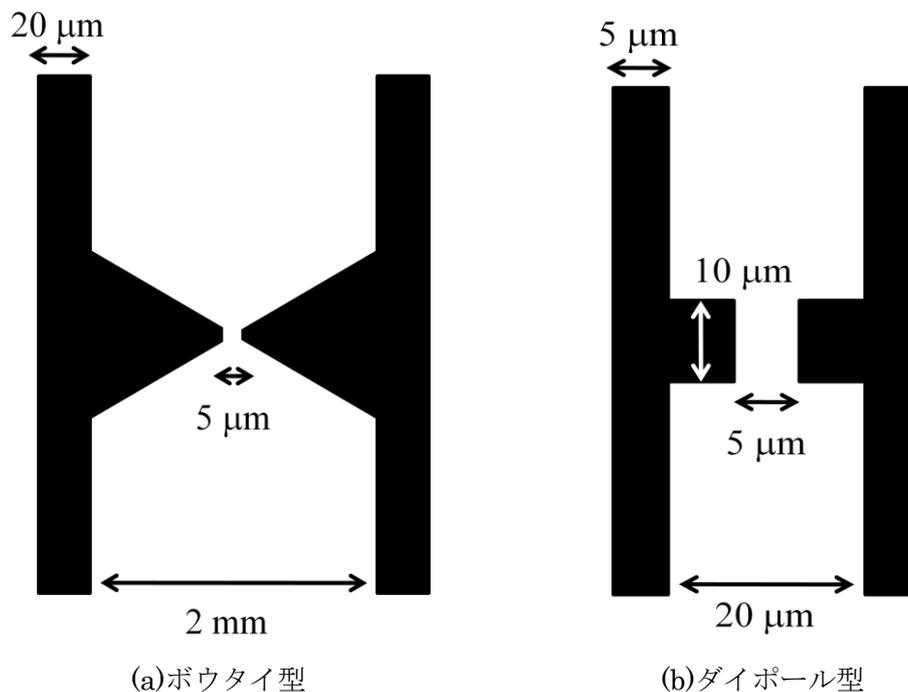


図 2.5 (a)ボウタイ型、及び(b)ダイポール型アンテナの模式図

#### (b) ナイフエッジ法を用いたレーザースポット径の見積もり

ナイフエッジ法とピンホール法は、レーザースポットを見積もるための有用な方法として良く知られている。ここでは、ナイフエッジ法について説明する。本研究においてレーザースポット径に関する情報は、レーザー照射による光生成キャリア濃度の定量的見積もりの際に必要となる。測定の概略図を図 2.6 に示す。

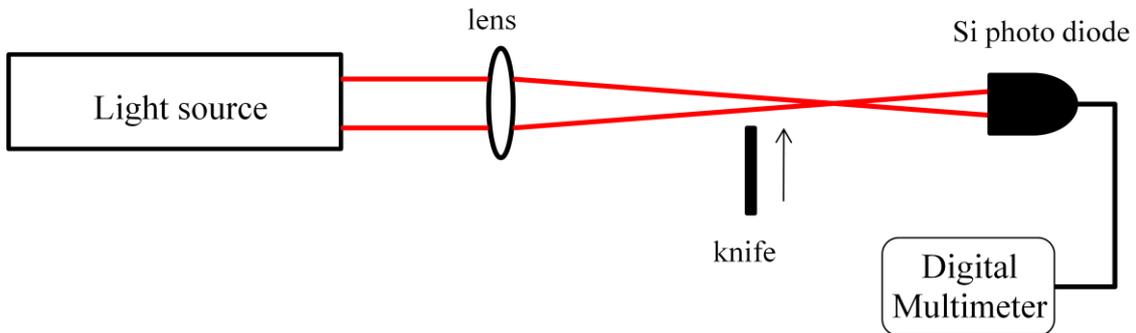


図 2.6 ナイフエッジ法の測定系の概略図

測定したいスポットの位置に、ナイフを配置し、ナイフエッジを空間的に移動させながらレーザー光を切っていく、ナイフの位置とレーザー光の積分強度から、レーザースポット径を見積もる。この方法を用い、テラヘルツ電磁波測定時の試料への集光スポット径を求めた。実験条件は、テラヘルツ電磁波測定に使用している集光レンズ(焦点距離 7cm)を用い、試料が配置されている付近にナイフを配置した。レーザー光の検出には Si フォトダイオードを用いた。図 2.7(a)は測定結果を示している。図 2.7(b)は図 2.7(a)を微分したデータである。図 2.7(b)において強度が  $1/e^2$  になるところをレーザースポット径とすると、レーザースポット径は約  $60\mu\text{m}$  ということがわかる。実際のテラヘルツ電磁波測定において、試料へのレーザーの入射角度は  $45^\circ$  であるため、テラヘルツ電磁波測定時の光生成キャリア濃度を計算する時のスポット径は  $60\mu\text{m}$  以上である。

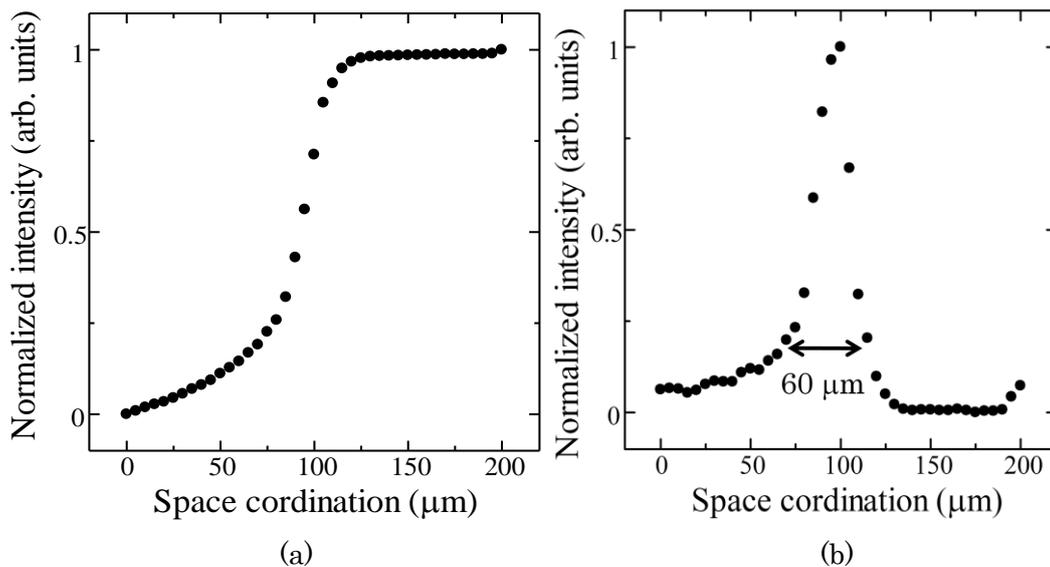


図 2.7 ナイフエッジ法による(a)測定結果と(b)その解析(微分)結果

### (c) 光伝導アンテナの感度特性

本項では、光伝導アンテナの感度特性について述べる。光伝導アンテナによるテラヘルツ電磁波検出とは、1-2.3(b)項で述べたように、テラヘルツ電磁波の電場が、ゲート光によって励起されたキャリアを加速することによって発生する電流を測定する方法である。ここで重要となる現象は、テラヘルツ電磁波が LT-GaAs 基板の中に侵入し光生成キャリアを加速するという点である。言い換えれば、テラヘルツ電磁波が LT-GaAs 基板内に侵入しなければ電流は流れず、テラヘルツ電磁波波形は測定できない。つまりアンテナの感度は、LT-GaAs 基板の反射率の影響を大きく受ける。そこで、まず初めに GaAs 光学フォノン振動数の特異点近傍の反射率の効果について考察する。図 2.8 は、光学フォノン振動数特異点近傍における反射率変化の計算結果である。

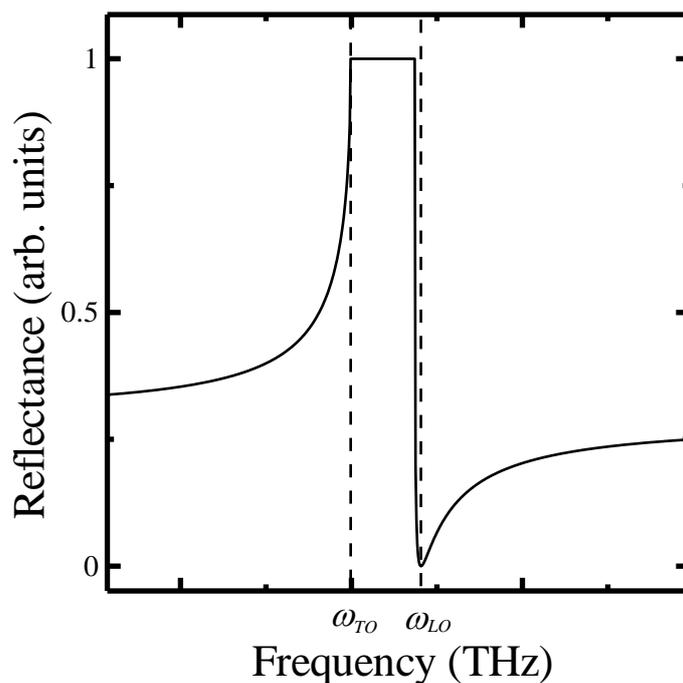


図 2.8 フォノン振動数特異点近傍の反射率

計算には以下の式を用いている[43]。

$$R(\omega) = \frac{[n(\omega) - 1]^2 + \kappa^2(\omega)}{[n(\omega) + 1]^2 + \kappa^2(\omega)} \quad (2-2)$$

ここで  $R$  は反射率、 $n$  は屈折率、 $\kappa$  は消衰係数である。消衰係数、及び屈折率は(2-3)式で表わされるローレンツ振動子モデルに基づく誘電関数応答の実部と虚部から求めている。尚、計算では $\Gamma=0$ とした。

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_b \left( 1 + \frac{f(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2} + i \frac{\omega \Gamma f}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2} \right) = \varepsilon_1(\omega) + i \varepsilon_2(\omega) \quad (2-3)$$

$$n(\omega) = \sqrt{\frac{1}{2} \{ \varepsilon_1(\omega) + [\varepsilon_1^2(\omega) + \varepsilon_2^2(\omega)]^{\frac{1}{2}} \}} \quad (2-4)$$

$$\kappa(\omega) = \sqrt{\frac{1}{2} \{ -\varepsilon_1(\omega) + [\varepsilon_1^2(\omega) + \varepsilon_2^2(\omega)]^{\frac{1}{2}} \}} \quad (2-5)$$

図 2.8 を見ると、TO(transverse optical)フォノン振動数( $\omega_{TO}$ )で反射率が 1 になり、LO フォノン振動数( $\omega_{LO}$ )付近で反射率は 0 に近づく。また、TO フォノン振動数と LO フォノン振動数の間で反射率が 1 になっており、この領域はレストストラーレンバンドと呼ばれている。つまり、LO フォノン振動数付近の周波数の電磁波は LT-GaAs 基板に侵入しやすい。つまり、GaAs の LO フォノン振動数である 8.8THz 付近はアンテナの感度が高いということを意味している。これらに関して実験的に確認を行った結果が図 2.9 である。図 2.9(a)は、InP バルク結晶から放射されたテラヘルツ電磁波波形を、図 2.9(b)は、そのフーリエ変換 (Fourier transform:FT) スペクトルを示している。尚、フーリエ変換スペクトルは、次式によって計算される。

$$I(\omega) = \left| \int_0^{\infty} A(t) \exp(i\omega t) dt \right|^2 \quad (2-6)$$

(2-6)式は、振幅の 2 乗に相当し、厳密にはフーリエパワースペクトルと呼ぶ。測定は、励起光強度 140 mW、パルス時間幅 50 fs、励起エネルギーは 1.57 eV、室温、窒素パーズ下で行った。図 2.9 を見ると、8 THz 以下の周波数領域において光励起過渡電流に起因するテラヘルツ電磁波由来の 5 THz 付近にピークをもつブロードなバンドが観測されている。一方、8 THz 以上の周波数領域において、GaAs のコヒーレント LO フォノン振動数である 8.76 THz と、InP の LO フォノン振動数である 10.4 THz にシャープなスペクトルが観測されている。上で述べたように、GaAs の LO フォノン振動数付近でアンテナの周波数感度は高くなる。つまり、光励起過渡電流の成分が 8.8 THz 程度まで裾を引いており、それが 8.8 THz においてピーク構造として観測されていると考えられる。

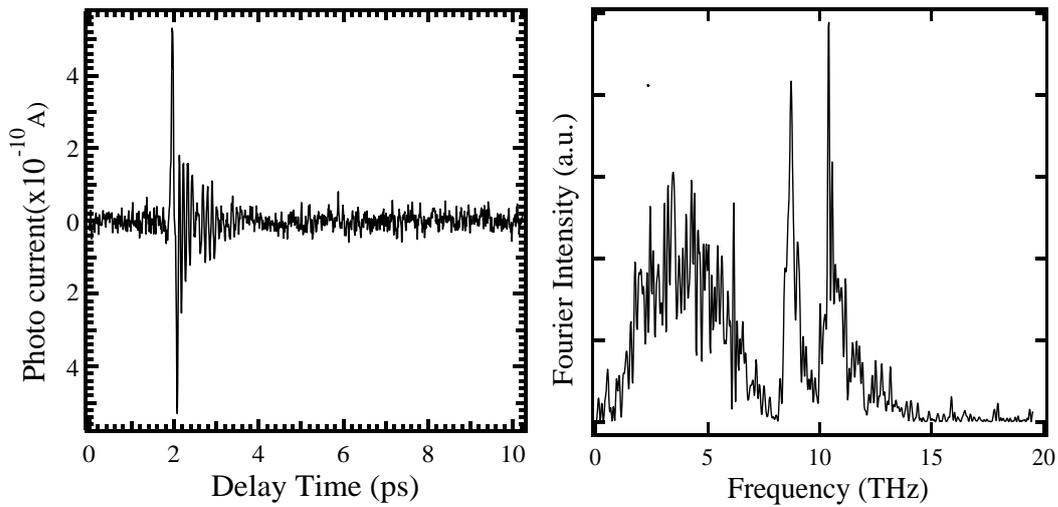


図 2.9 InP 結晶からの(a)テラヘルツ電磁波波形、及び(b)そのフーリエ変換スペクトル

## 2-2.2 光変調反射スペクトル測定

一般に半導体の表面には、ダングリングボンド（不対結合）、タム準位、ショックレー準位などの真性の表面準位や、表面に吸着した分子、表面付近の結晶の不完全性などによる表面準位が存在する。これらの表面準位に電子が捕らえられることにより、表面付近ではエネルギーバンドが湾曲する(図 2.10)。この表面に、バンドギャップエネルギーよりも高いエネルギーをもつ光が入射すると、光励起キャリアが生成され、その静電遮蔽による効果、および表面準位を占有する効果により内部電場は減少する（図 2.10 破線）。その内部電場の変化を受け、反射率がバンド構造の特異点近傍でもっとも大きく変化する[44]。PR 分光法では、連続的に試料に照射しているプローブ光にキャリア生成のための励起光を周期的に重畳し、試料によって反射されたプローブ光の励起光による変調成分を測定する。周期的励起光は、表面準位による内部電場の周期的変調を誘起するため、PR 分光法は一種の電場変調反射(Electroreflectance:ER)分光法といえる。このことから、PR 分光法を用いることによって、電場により変化するバンド構造の特異点近傍におけるバンド間遷移、あるいは励起子遷移を高感度に測定することが可能である。

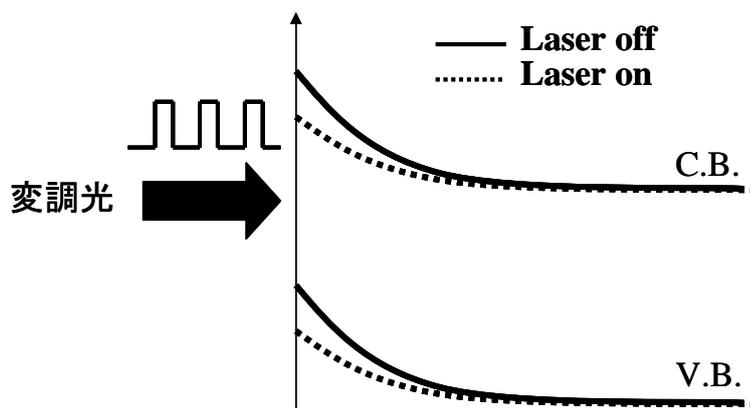


図 2.10 レーザー照射前（実線）、及び照射時（破線）における半導体表面近傍のバンド図

PR 分光法に関する光学系の概略図を図 2.11 に示す。測定においては、シングル分光器（Jobin Yvon 製、HR320 型）で単色化したタングステンランプ（100 W）をプローブ光として試料に照射し、その反射光を Si フォトダイオードで受光した。変調光としては、ライトチョッパーでパルス化（630 Hz）した Ar<sup>+</sup>レーザー（Ion Laser Technology 製、5500A 型、発振波長 514.5 nm、平均出力 30 mW、CW）を用いた。PR 分光法では、レーザー強度を 1 mW 程度に減光した。また、レーザーパワーの安定化のために、レーザーパワースタビライザー（PhotoTecnica 製、LPC-VIS 型）を用いた。フォトダイオードからの信号は、電流-電圧変換器を通した後、直流成分と変調成分に分割し、反射率の直流成分  $R$  はデジタルボルTMーター（FLUKE 製、45 型）を用いて測定し、反射率の変調成分  $\Delta R$  はロックイン増幅器（EG&G PARC 製、5209 型）を用いて測定した。

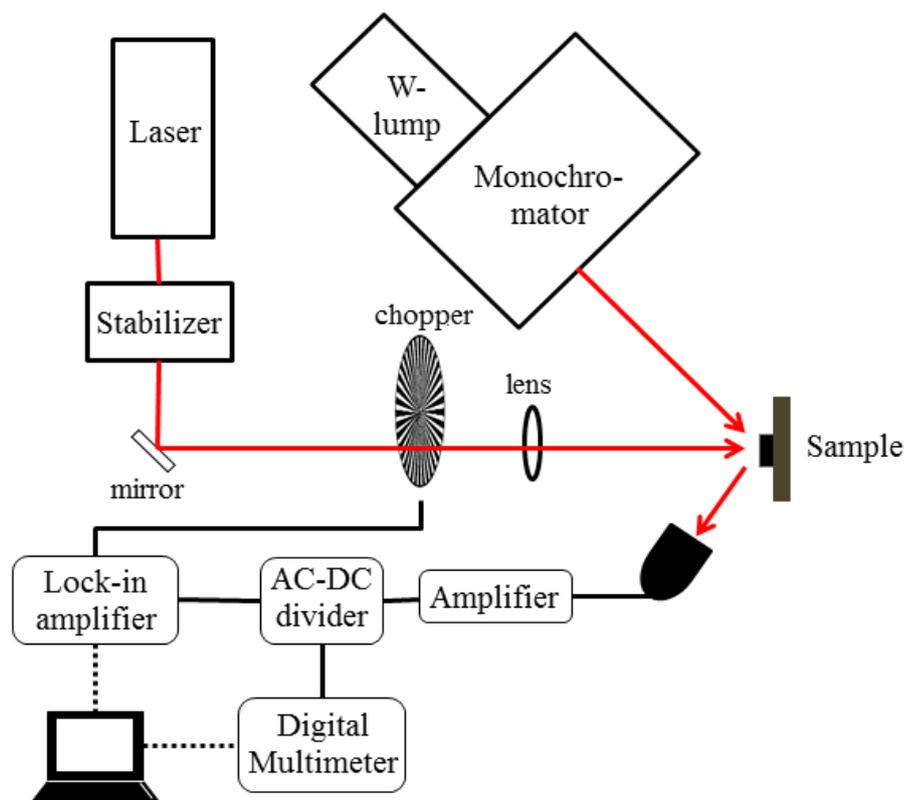


図 2.11 PR 分光法の測定系の概略図

### 2-2.3 ラマン散乱スペクトル測定

ラマン散乱スペクトルの測定に関する光学系の概略図を図 2.12 に示す。励起光源には Ar+レーザー(Coherent 社製、発振波長 514.5 nm、500 mW)を用いた。試料からの散乱光を後方散乱配置にて、分光器(Jobin Yvon 製、iHR550 型)で分光し、CCD 検出器 (Jobin Yvon 社製、SYNAPSE) により検出した。尚、レイリー散乱光を除去するために、ノッチフィルター(Kaiser Optical Systems 社製、HSPE-514.5-1.0)を用いた。ラマン散乱スペクトルを測定する際、ノッチフィルターでレイリー散乱を出来るだけ取り除く必要がある。上記のノッチフィルターは、フィルターに対して真っすぐ入射するレイリー散乱光 (514.5 nm)はほぼ 100%切ることができるが、入射角が大きくなるとほとんど透過してしまう。そのため実験時は、レンズと試料を近づけ散乱光の集光距離を伸ばす等の工夫をしてノッチフィルターへの散乱光の入射角を小さくする必要がある。

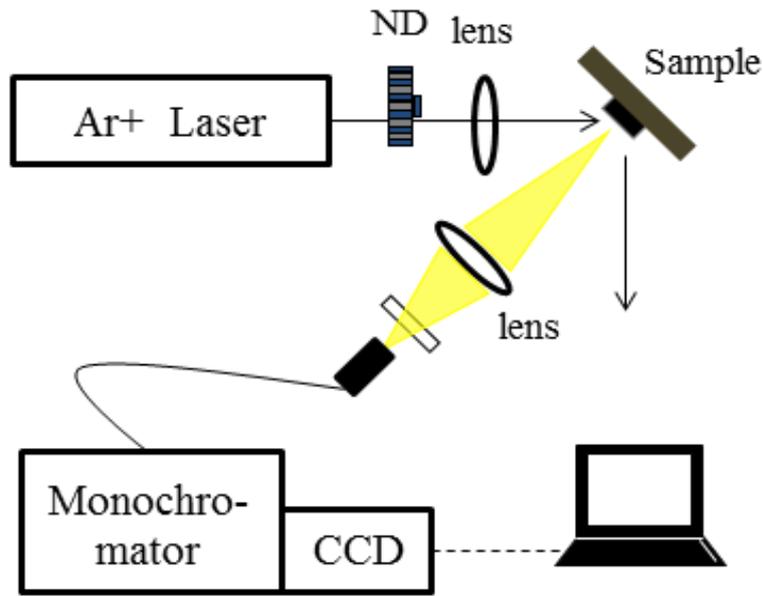


図 2.12 ラマン散乱スペクトルの測定系

## 2-3 解析方法

### 2-3.1 フランツ・ケルディッシュ振動による内部電場の見積もり

PR スペクトルに現れる振動構造はフランツ・ケルディッシュ振動と呼ばれ、電場印加条件下でのバンド端近傍の電子・正孔波動関数に、静電ポテンシャルによる空間的な非対称性が生じることに起因するものであり(図 2.13)、バルク半導体では $\Gamma$ 点吸収端の光学遷移に対して詳細に研究されている。以下にその解析方法を述べる。

一般に、PR 分光法は一種の ER 分光法といえることから、ER 信号に対する理論に基づいたスペクトル形状解析を行う。ER スペクトル強度( $\Delta R/R$ )は物質の誘電関数の変調成分( $\Delta\epsilon$ )で表わされる[45,46]。

$$\Delta R/R = \alpha\Delta\epsilon_1 + \beta\Delta\epsilon_2 \quad (2-7)$$

ここで、 $\alpha$ 、 $\beta$ はセラフィン係数、 $\Delta\epsilon_1$ ( $\Delta\epsilon_2$ )は誘電関数の実部(虚部)の変調成分をそれぞれ表わしている。半導体結晶の基礎吸収端周辺のエネルギー領域では、 $\alpha \gg \beta$ であるため、 $\Delta\epsilon_1$ のみが ER スペクトルに寄与していると近似できる。 $M_0$ 、 $M_1$ 特異点においてフランツ・ケルディッシュ振動が観測されている場合、 $\Delta\epsilon_1$ は次式のように表わされる[45]

$$\Delta\varepsilon_1 = \frac{B\theta^{1/2}}{\omega^2} G(\eta) \quad (2-8)$$

$$\eta = \pm \frac{E_0 - \hbar\omega}{\hbar\theta} \quad (2-9)$$

上式において+は  $M_0$  特異点、-は  $M_1$  特異点に対応する。ここで、 $\hbar\theta$ は電気光学定数と呼ばれる物理量で以下の式で表わされる。

$$\hbar\theta \equiv \left( \frac{e^2 \hbar^2 F^2}{2\mu} \right)^{1/3} \quad (2-10)$$

ここで、 $F$ は内部電場、 $\mu$ は有効換算質量である。また  $G(\eta)$ は電気光学関数と呼ばれ以下のように表わされる。

$$G(\eta) = \pi[Ai'(\eta)Bi'(\eta) - \eta Ai(\eta)Bi(\eta)] + \eta^{1/2} H(\eta) \quad (2-11)$$

ここで  $Ai$ 、 $Bi$  は Airy 関数、 $Ai'$ 、 $Bi'$  は Airy 関数の微分形である。

(2-7)式~(2-10)式から、 $M_0$ 、 $M_1$  特異点におけるフランツ・ケルディッシュ振動は、図 2.14 のような形状となる。フランツ・ケルディッシュ振動は、特異点の結合状態濃度を反映した振動構造を示しており、 $M_0$  特異点である  $\Gamma$ 点においては高エネルギー側に、 $M_1$  特異点においては低エネルギー側に振動構造が観測される。フランツケル・ディッシュ振動の  $j$  番目のエネルギーは次式によって決定される[45,47]。

$$E_j = E_0 + \hbar\theta \left[ \frac{3\pi}{4} \left( j - \frac{1}{2} \right) \right]^{2/3} \quad (2-12)$$

上式からわかるように、フランツ・ケルディッシュ振動のピーク及びディップのエネルギーを疑似指数  $[(3\pi/4)(j-1/2)]^{2/3}$  の関数としてプロットすることによって傾き( $\hbar\theta$ )を求め、(2-10)式から内部電場の見積もりが可能である。

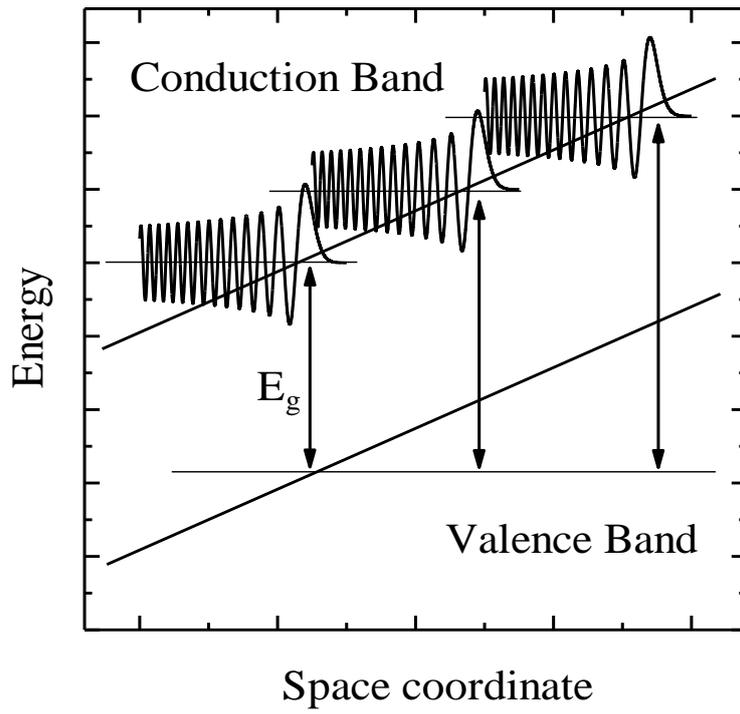


図 2.13 フランツ・ケルディッシュ振動の概念図

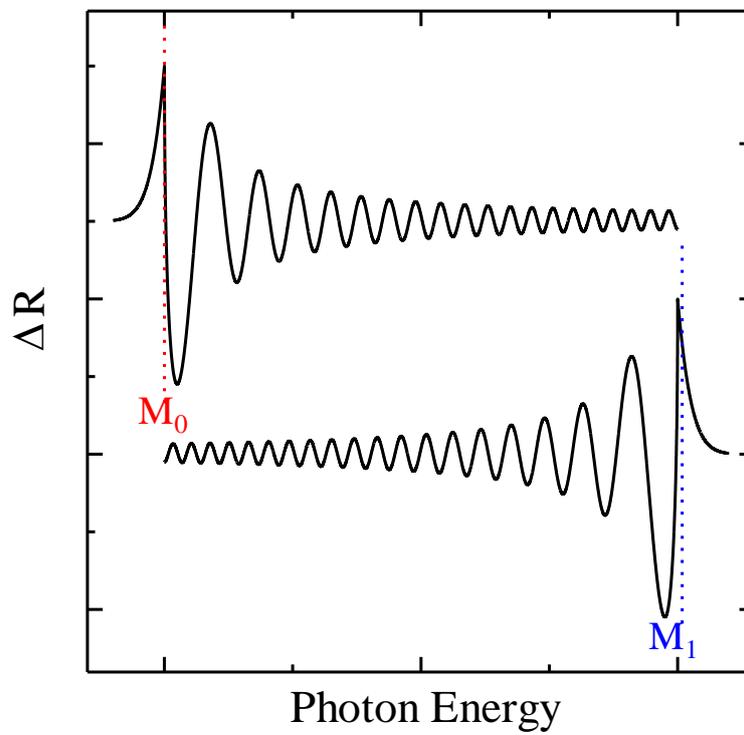


図 2.14 フランツ・ケルディッシュ振動が存在する時の特異点近傍における PR スペクトルの模式図

## 2-3.2 時間分割フーリエ変換

コヒーレントフォノンの時間領域信号のフーリエ変換スペクトル強度は、フォノン振幅の2乗に比例する量であり、強度  $I(\omega)$  は全ての時間領域の情報を含んでおり、周波数領域測定のリマン散乱測定から得られるスペクトルと類似の情報をもっている。フーリエ変換の考え方を拡張すると、

$$I_n(\omega, \tau) = \left| \int_{\tau}^{t_f} A(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (2-13)$$

で定義される時間窓  $[\tau, t_f]$  における時間分割フーリエ変換は、時間遅延  $\tau$  におけるコヒーレントフォノンの過渡スペクトルとなる[48,49]。ここで、 $t_f$  は時間領域信号の最終時間である。コヒーレントフォノンは、一般的には指数関数的に減衰する振動なので、この時間分割フーリエ変換を開始する時間位置  $t_j$  を順次ずらしていくことによって得られるスペクトルのピーク強度、或いは積分強度を時間遅延の関数としてプロットすることにより、近似的にコヒーレントフォノンの減衰時間を求めることができる。ただし、先に述べたように、フーリエ変換スペクトルはフォノン振幅の2乗に相当する量であるから、時間領域での減衰時間は、このプロットによって求められた減衰時間の2倍の値となる。本論文においては、第4章と第5章でこの時間分割フーリエ変換を用いて実験データの解析を行う。

## 2-3.3 励起キャリア濃度の見積もり

本小節では、励起光照射による光生成キャリア濃度の見積もり方について説明する。励起光強度を  $I$  (W)、励起エネルギー  $E$  (eV)、励起スポットの半径を  $r$  (cm)、パルス光の繰り返し周波数を  $\omega$  (Hz) とすると、1パルス当たりのフォトンフラックスは以下のように与えられる

$$F = \frac{I}{\pi r^2 \omega e E} \quad (\text{cm}^{-2}) \quad (2-14)$$

となる。ここで  $e$  は電子の電荷である。実際に半導体に侵入するフォトンフラックスを求めるために反射を考慮すると

$$F_{in} = F\{1 - R\} \quad (\text{cm}^{-2}) \quad (2-15)$$

となる。ここで  $R$  はある励起光エネルギーにおける半導体の反射率である。最後に光の侵入長を考慮する。侵入長を吸収係数  $\alpha$  の逆数と近似すると励起キャリア濃度は、

$$n_c = F_{in} \cdot \frac{1}{\alpha} \quad (\text{cm}^{-3}) \quad (2-16)$$

となる。第4章での励起キャリア濃度の見積もりは、全て上記の計算法を用いている。

## 第3章 $i$ -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放射と増強機構

### 3-1 はじめに

高強度の単色テラヘルツ電磁波放射は、テラヘルツ分光学の研究領域において興味深いテーマであり、分極振動を引き起こすコヒーレント LO フォノンは単色のテラヘルツ波放射のポテンシャルを有している[50]。先行研究においては、半金属やバルク半導体がコヒーレント LO フォノンに起因するテラヘルツ電磁波の発生源として用いられてきた[34-36]。しかし、バルク半導体において、コヒーレント LO フォノンの放射領域は並進対称性が失われている結晶表面近傍の領域に限定されており、この結晶内部では励起光の照射により発生したコヒーレント LO フォノンに起因する双極子モーメントが打ち消し合ってしまうため、バルク結晶からのテラヘルツ波の放射強度は一般的に低い。この解決策として、各界面において並進対称性が失われているという前提で、多重量子井戸構造においてコヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ放射の適合性が提案され、GaAs/AlAs MQWs において、GaAs 型 LO フォノンからの高強度テラヘルツ波発生が 10K ~150K という低温領域において研究され、テラヘルツ波の強度は、界面の数に比例することが確認されている[51-53]。ここで留意すべきは、GaAs 型 LO フォノンからのテラヘルツ波の強度は温度の上昇に伴い、コヒーレンシーの熱的攪乱によって顕著に減少することである[53]。GaAs/AlAs 多重量子井戸構造において室温でテラヘルツ波を増強するためには、重い正孔(heavy hole:HH)励起子と軽い正孔(light hole:LH)励起子の間のエネルギーを GaAs 型 LO フォノンのエネルギーに調整する必要がある。これは、HH 励起子と LH 励起子の間の瞬間的な干渉がコヒーレント LO フォノンの駆動力となるためである[54]。つまり、テラヘルツ波の増強を得るために多重量子井戸構造の結晶成長とポンプエネルギーの厳密なコントロールが必要とされることが、この方法のデメリットと言える。他の解決策としては、人工的に、試料表面近傍に広い電場領域を発生させることにより LO フォノンの分極を発生させることであり、 $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造はこれを可能とする。後節で詳細に述べるが、 $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造においては、表面ポテンシャルピンニングによって  $i$ -GaAs 層のポテンシャル全体が線形の傾きを有し、 $i$ -GaAs 層全体に均一な内部電場が生じる[55,56]。本研究では、

*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造からのテラヘルツ電磁波放射の *i*-GaAs 層厚依存性を系統的に測定した[57,58]。上述した通り、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造における *i*-GaAs 層内の定常的な内部電場が、この高強度テラヘルツ波放射を引き起こすと考察されるが、テラヘルツ波放射が電場によってどのように増強されるかという詳細は明らかになっていない。まず、PR スペクトルに現れるフランツ・ケルディッシュ振動の解析から、*i*-GaAs 層の内部電場の *i*-GaAs 層厚依存性を評価した[57,58]。次に、時間領域テラヘルツ測定を行い、バルク GaAs 結晶と比較して、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造のコヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波強度が、*i*-GaAs に大きく依存することを見出した[58]。その *i*-GaAs 層厚依存性について、LO フォノンの初期分極を誘起する内部電場によるテラヘルツ電磁波の増幅という観点から考察する[58]。

## 3-2 試料構造

本節では、本研究に用いた *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造について説明する。*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造の模式図を図 3.1 に示す。半絶縁性 GaAs 基板(001) 面上にノンドープ GaAs(*i*-GaAs)を 50 nm、*n* 型 GaAs(*n*-GaAs)を 3  $\mu\text{m}$  エピタキシャル成長させ、その上に *i*-GaAs を  $d$  nm エピタキシャル成長させている。*n*-GaAs のドーピング濃度は  $3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ 、*i*-GaAs 層の層厚は 200、500、800、1200 nm の 4 種類である。これらの試料の結晶成長は、住友化学工業(株)において有機金属気相エピタキシー法によって行われた。また、これらのサンプルの参照試料として、半絶縁性 GaAs 基板上に、*i*-GaAs を 3  $\mu\text{m}$  エピタキシャル成長させた試料を用いた。

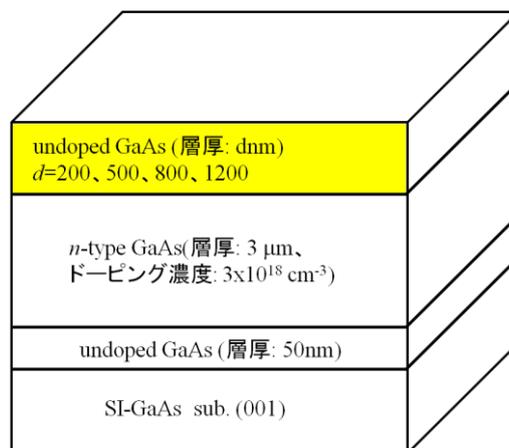


図 3.1 *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造

*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造では、通常バルク結晶とは異なるポテンシャル構造を有する。*i*-GaAs 層厚が 200 と 500 nm の場合の、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造における伝導帯ポテンシャルの計算結果を図 3.2 に示す。図 3.2 の実線は伝導帯、波線はフェルミ準位である。ポテンシャル構造の計算方法の概要として、境界条件として表面フェルミ準位を固定し、ポアソン方程式から導出したポテンシャル、及び、ボルツマン分布を仮定して算出したキャリア濃度をセルフコンシステントに計算を行うという手順で計算されている[59,60]。

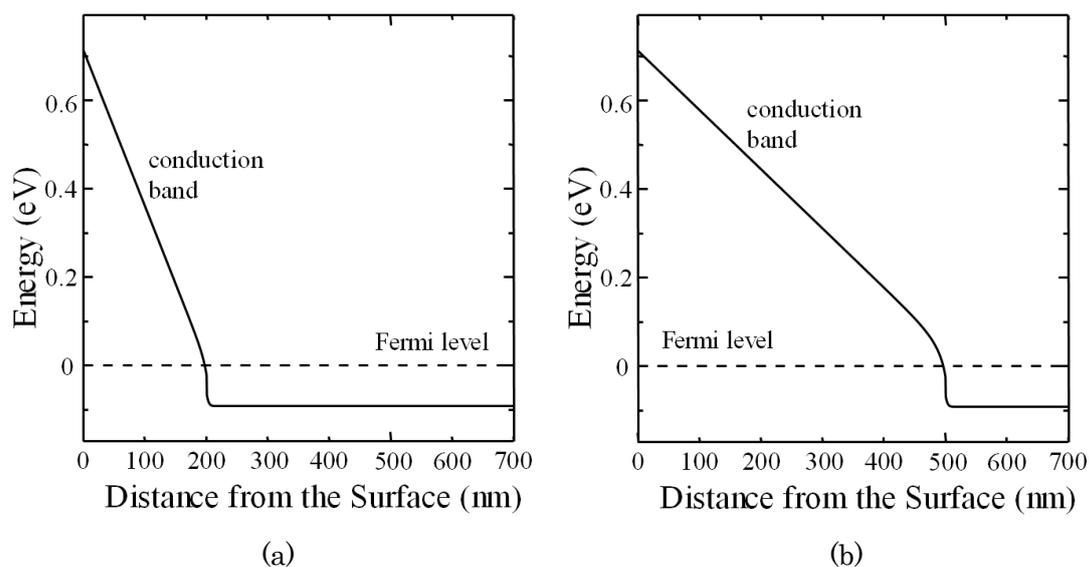


図 3.2 *i*-GaAs 層厚(a)200 nm、(b)500 nm の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造の伝導帯ポテンシャル構造の計算結果

*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造では、結晶表面におけるフェルミ準位ピンニングにより、*i*-GaAs 層の伝導帯は有限の直線的傾きを有している。そのため、*i*-GaAs 層内に均一な内部電場が生じている。この影響により、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造では通常バルク結晶とは異なる 3 つの特性を有する[56]。

1 つ目は、表面電場による過渡電流発生に有利となっていることである。一般的に *n*-GaAs のようなバルク結晶では、空乏層は数 10 nm と狭く、表面電場による過渡電流モデルに起因したテラヘルツ電磁波発生領域が狭い。一方、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造では、*i*-GaAs 層内には均一な内部電場が生じており、*i*-GaAs 層において生成された光励起キャリアは一齐に *n*-GaAs 層に向けて加速される。これは、*i*-GaAs 層全体からテラヘルツ電磁波が放射されることを意味しており、体積効果によって、通常バルク結晶と比較するとより強いテラヘルツ電磁波が放射される。2 つ目は、*i*-GaAs 層は、

均一な内部電場が存在することにより完全に空乏化される。その結果、テラヘルツ電磁波の自由キャリア吸収が抑制されるため、テラヘルツ電磁波放射にとって有利な条件になっている。3つ目は、*i*-GaAs 層厚を変化させることにより、内部電場の制御が可能である。次節にそれぞれの試料における内部電場の実験的評価について述べる。

### 3-3 光変調反射分光法を用いた *i*-GaAs 層内の電場強度の実験的評価

本節では 2-3.1 節で説明した理論に基づき、PR スペクトルの現れるフランツ・ケルディッシュ振動から、*i*-GaAs 層内の内部電場の実験的評価を行う。図 3.3 に *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造の PR スペクトルの *i*-GaAs 層厚依存性を示している。*i*-GaAs 層厚が 200、500 nm の試料において、バンドギャップエネルギーに相当する 1.42 eV 付近から高エネルギー側に明確なフランツ・ケルディッシュ振動が観測されている。フランツ・ケルディッシュ振動の原理から、振動の周期が長い方が内部電場が高い。つまり、図 3.3 から *i*-GaAs 層厚が 200nm、500nm の順に内部電場が高いことが分かる。(2-12)式に基づいて、これらのピーク及びディップを準指数 $[(3\pi/4)(j-1/2)]^{2/3}$ の関数としてプロットしたのが図 3.4 である。このプロットにおける傾きは、2-2.1 節の(2-10)式で示した電気光学定数に相当する値である。これらの傾きから内部電場を見積もった値を表 3.1 に示す。

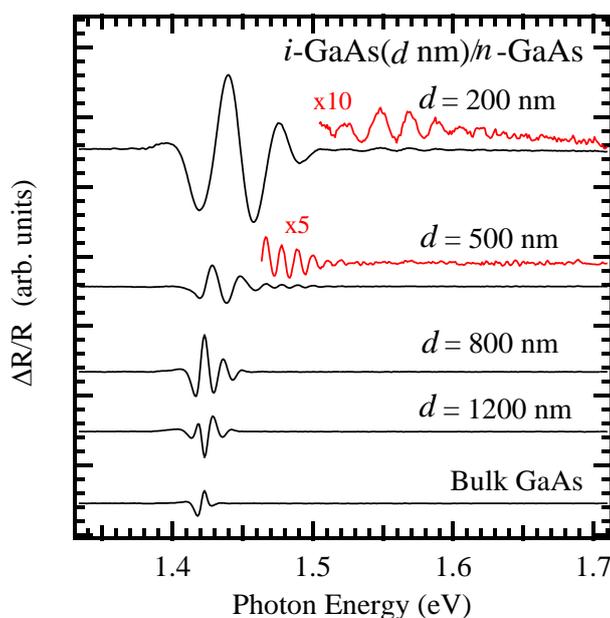


図 3.3 各試料からの光変調反射スペクトル

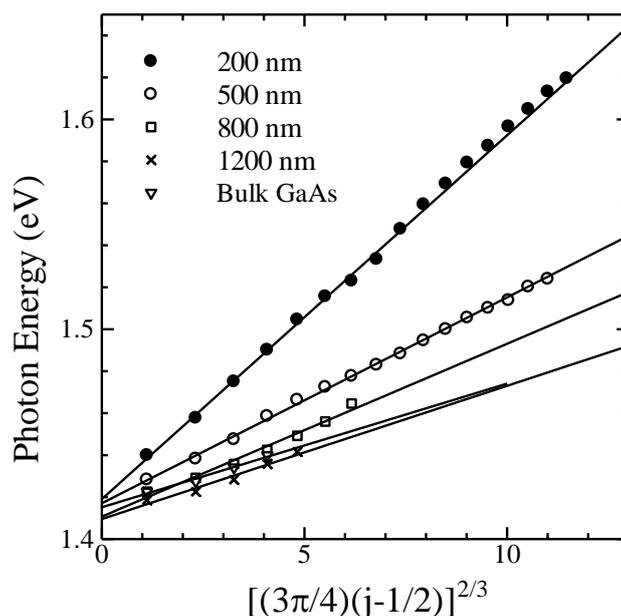


図 3.4 (2-12)式に基づくフランツ・ケルディッシュ振動のエネルギープロット

表 3.1 各試料の *i*-GaAs 層内の内部電場の解析結果

層厚 (nm)	内部電場 (kV/cm)
200	28.6
500	11.5
800	8.2
1200	5.2
undoped GaAs	4.7

内部電場の見積もりの際、有効質量は GaAs の  $\Gamma$  点の値である  $0.0556m_0$  を用いた[61]。層厚の減少に伴い内部電場は大きくなっており、このことから *i*-GaAs 層厚を制御することにより、内部電場を制御が可能であることが実験的に証明された。

### 3-4 テラヘルツ電磁波の実験結果と考察

#### 3-4.1 *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造からのテラヘルツ電磁波放射

本小節から、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造から放射されたテラヘルツ電磁波波形について議論する。図 3.5(a)は、層厚が異なる 4 種類の *i*-GaAs(*d* nm)/*n*-GaAs エピタキ

シヤル構造、及び *i*-GaAs バルク結晶から放射されたテラヘルツ電磁波波形で、図 3.5(b) はそのフーリエ変換(FT)スペクトルである。実験条件は全て、励起強度 20 mW、励起パルス中心エネルギーは 1.56 eV、励起パルスの時間幅は 50 fs である。測定は室温、窒素パージの下で行われた。

図 3.5(a)において、全てのテラヘルツ電磁波波形において、0 ps 付近にモノサイクル信号が観測されている。これは 1-2 節で述べたように、first burst と呼ばれ、キャリアの瞬時的過渡電流に起因したテラヘルツ電磁波である[15]。一方、モノサイクル信号に引き続き、周期 113fs の信号が明確に観測されており、これは GaAs の LO フォノン周波数である 8.8 THz と一致することから、コヒーレント LO フォノンに起因したテラヘルツ電磁波である。

図 3.5(b)のフーリエ変換スペクトルを見ると、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs エピタキシヤル構造から放射された、モノサイクル信号、及び、コヒーレント LO フォノン由来の信号の強度は *i*-GaAs バルク結晶のそれと比較すると、約 5 倍程度となっている。また、過去に Leitenstorfer らによって報告された結果[37,38]と比較しても、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシヤル構造では、より明確なテラヘルツ電磁波波形が観測できている。これは前節で述べた通り、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシヤル構造は、光励起キャリアのドリフト運動による瞬時的過渡電流の発生に有利であると共に、テラヘルツ電磁波の自由キャリア吸収が抑制されているためであると考えられる。このことから、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシヤル構造は、簡便で高強度なテラヘルツ電磁波エミッターの可能性を有していると共に、半導体表面からのテラヘルツ電磁波発生の研究に適していると言える。上述の通り、内部電場強度は *i*-GaAs 層厚の増加に伴い減少する。このように、テラヘルツ電磁波の増強は *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシヤル構造の特有の内部電場と関連していると考えられる。次節では、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシヤ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の増強機構について考察する。

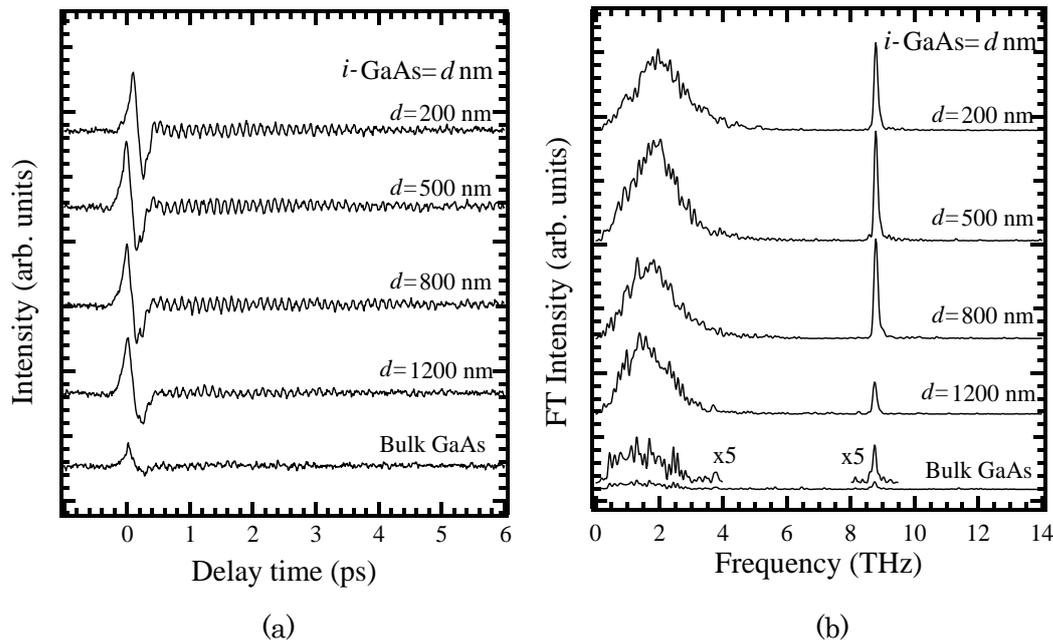


図 3.5 *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造の 20 mW 励起条件における(a)テラヘルツ電磁波波形の *i*-GaAs 層厚依存性、及び(b)そのフーリエ変換スペクトル

### 3-4.2 *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の増強機構

本小節では *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造からのテラヘルツ電磁波放射の増強機構について解析と考察を行う。*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造におけるテラヘルツ波増強機構を解析するにあたり、コヒーレント LO フォノンの生成メカニズムについて述べる。Pfeifer らは、光生成キャリアのサージカレントによって生じる表面ポテンシャル歪曲の瞬時的変化がコヒーレント LO フォノンのトリガーであると報告している [38]。これは、励起光の照射による光生成キャリアの総数がコヒーレント LO フォノンの生成メカニズムの重要な要素になっていることを意味している。この光生成キャリアの効果は、以下に示す有効励起強度によって考慮することができる。

図 3.6 に、*i*-GaAs 層の内部電場の関数として、フーリエ変換スペクトルのコヒーレント LO フォノンバンドの積分強度 ( $I_{LO,FP}$ ) を白丸でプロットしている。 $I_{LO,FP}$  は最大値で規格化している。図 3.6 に示したように、 $I_{LO,FP}$  は内部電場の増加に伴い、12.1 kV/cm までは増加し、28.4 kV/cm でわずかに減少する。28.4 kV/cm 及び 12.1 kV/cm はそれぞれ *i*-GaAs 層厚が 200 及び 500 nm の試料に対応する。ここで留意すべきは、コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波の放射領域は *i*-GaAs 層に限定されていることである。

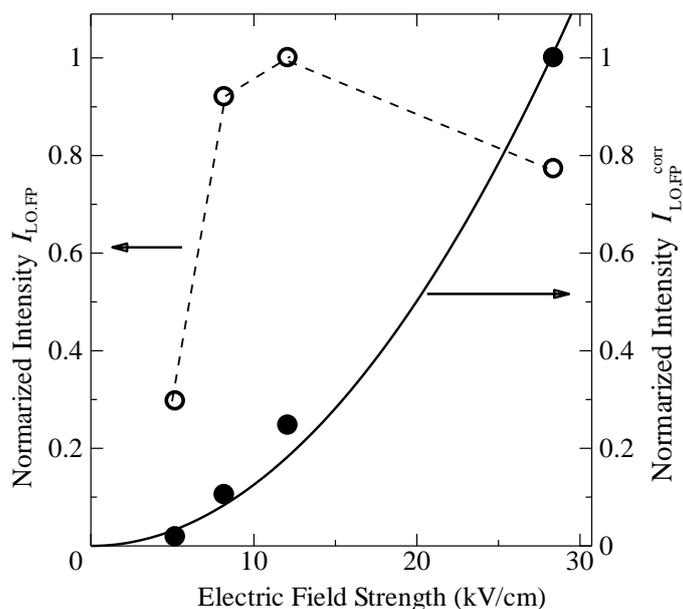


図 3.6 コヒーレント LO フォノンのフーリエ変換スペクトルの積分強度 (○) 及び補正後のフーリエ変換スペクトルの電場強度依存性 (●)。最大値で規格している。

つまり、*i*-GaAs 層厚 200 nm の試料では、テラヘルツ電磁波放射領域が狭いため相対的に *i*-GaAs 層厚 500 nm の試料と比較して実際に放射されているテラヘルツ電磁波の強度が小さくなっていると考えられる。すなわち、コヒーレント LO フォノン信号の強度は、内部電場による LO フォノン分極の増強と電磁波放射領域の層厚効果の兼ね合いによって決定され、*i*-GaAs 層厚 500 nm の試料は 4 つの試料の中で最適な条件になっていると考えられる。

ここで、電場強度依存性を解析するために、次の 2 つの要素を考慮した  $I_{LO,FP}$  の値の補正を行う。1 つ目は、テラヘルツ電磁波の放射体積効果である。この補正は単純で、上述の通り、*i*-GaAs/n-GaAs エピタキシャル構造においてテラヘルツ電磁波の放射領域は *i*-GaAs 層であることから、*i*-GaAs 層厚で  $I_{LO,FP}$  を除す。2 つ目は、有効励起強度による補正である。上で言及したように、光生成キャリアのサージカレントによるポテンシャルベンディングの瞬時的変化によって、コヒーレント LO フォノンは発生する。ここで、ポテンシャルベンディングの瞬時的変化に寄与する光生成キャリアの総数は *i*-GaAs 層厚  $d$  で吸収された総フォノン数と比例すると考えられることから、*i*-GaAs 層の総フォトン数で  $I_{LO,FP}$  の値を補正することが必要となる。これら 2 つの補正について、具体的には以下の手法で計算される。

厚さ  $d$  の *i*-GaAs 層において、有効励起強度は以下の式で表わされる。

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

ここで、 $P_0$  及び  $\alpha$  は、それぞれポンプ光強度及び吸収係数である。従って、補正後の LO フォノンバンド強度は以下の通りとなる。

$$I_{\text{LO,FP}}^{\text{corr}} = I_{\text{LO,FP}} / (dP_{\text{eff}}) \quad (3-2)$$

補正後のテラヘルツ電磁波の強度は、*i*-GaAs 層のコヒーレント LO フォノンからの単位体積当たり、かつ、単位フォトン数当たりのテラヘルツ電磁波放射強度に相当する。式 (3-2) を用いて  $I_{\text{LO,FP}}$  の補正を行った結果 ( $I_{\text{LO,FP}}^{\text{corr}}$ ) を図 3.6 に●で示した。補正を行う際、励起波長に対応する吸収係数を  $\alpha=14 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$  [63] とした。ここで、 $I_{\text{LO,FP}}^{\text{corr}}$  も  $I_{\text{LO,FP}}$  と同様に最大値で規格化し、内部電場の関数としてプロットした。 $I_{\text{LO,FP}}^{\text{corr}}$  の値は内部電場強度の増加に伴い、単調に増加することがわかる。 $I_{\text{LO,FP}}^{\text{corr}}$  の内部電場依存性を解析するため、2次関数でフィッティングを行った結果を実線で示している。フィッティング結果は  $I_{\text{LO,FP}}^{\text{corr}}$  の内部電場依存性とよい一致を示している。ここで、本解析で用いているフーリエ変換スペクトルはフーリエパワースペクトルであり、テラヘルツ電磁波強度の2乗となっている。すなわち、補正したスペクトル強度のフィッティング結果は、コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波の強度が内部電場に比例することを意味している。一般に、分極  $\vec{P}$  と電場  $\vec{E}$  の関係は  $\vec{P} = [\chi] \vec{E}$  で与えられる。ここで  $[\chi]$  は電気感受率テンソルである。上記の解析結果から、コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波放射の増強機構は、*i*-GaAs 層の内部電場による初期分極の増大であると結論される。

### 3-5 まとめ

本章では、*i*-GaAs 層厚が、 $d=200,500,800,1200 \text{ nm}$  の *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の増強機構に関する研究成果について述べた。まず初めに、LO フォノン分極の観点から *i*-GaAs 層の内部電場に焦点を当て、PR スペクトルにおいて観測されるフランツ・ケルディッシュ振動の解析から、*i*-GaAs 層の内部電場を  $d=200,500,800,1200 \text{ nm}$  でそれぞれ 28.4, 12.1, 8.2, 6.2 kV/cm と評価した。次に、時間領域テラヘルツ分光法を用いて、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャ

ル構造からのテラヘルツ電磁波放射を観測した。コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波の強度が明確に *i*-GaAs 層厚に依存することを見出した。コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波強度の電場強度依存性を解析するため、テラヘルツ電磁波発生機構を考慮して、放射体積効果（層厚補正）と有効励起強度による補正を行った。補正後の強度が、*i*-GaAs 層の内部電場強度の 2 乗に比例することを見出し、このことから、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造におけるテラヘルツ電磁波の増強機構は、*i*-GaAs 層の内部電場による LO フォノンの初期分極の増大であると結論された。内部電場の増加がテラヘルツ電磁波の増強につながるという本研究の結果は、高強度テラヘルツエミッターの開発にシンプルな戦略を提案しているものと考えられる。

## 第4章 $i$ -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放射

### 4-1 はじめに

フェムト秒パルスレーザー照射による半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射について、よく知られた2つの生成メカニズムがある。1つは、広帯域テラヘルツバンドを生成する、瞬間的に生成される光励起キャリアによるサージカレント起因のテラヘルツ電磁波放射であり、他方は、シャープなテラヘルツバンドを生成する、コヒーレント LO フォノンに起因するものである。ここで、サージカレントは瞬間的の光生成キャリアの集団的な挙動であり、キャリアの集団的な挙動はプラズモンと呼ばれる。プラズモンはその巨視的な分極を通してコヒーレント LO フォノンと結合し、LOPC モードを形成する[64]。すなわち、プラズモンとコヒーレント LO フォノンが同時に存在している領域においては LOPC モードからのテラヘルツ電磁波が観測されることが期待される。

また、LOPC モードからのテラヘルツ電磁波放射に関する研究は、応用という観点からも興味深い。後節で詳細に述べるが、LOPC モードの周波数はキャリア数に依存する。すなわち、LOPC モードは周波数可変テラヘルツ電磁波エミッターの実現のポテンシャルを有している。しかし、半導体バルク結晶を対象とした Kersting[65]や Hasselbeck[66]らの先行研究において、LOPC モードの周波数は、ドーピングに起因するバックグラウンドキャリアによってのみ影響されると報告されている。一方、本研究で対象としている  $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造は、 $i$ -GaAs 層において、光生成キャリアに起因するサージカレントが発生し、その光生成キャリアの電場遮蔽効果によりポテンシャルが瞬間的に変調され、コヒーレント LO フォノンが生成している[58]。すなわち、 $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造においては、 $i$ -GaAs 層で光生成キャリアとコヒーレント LO フォノンが結合するため、LOPC モードの周波数は光生成キャリアの濃度に依存することが期待される。

本研究では、時間領域テラヘルツ分光法を用い、 $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造における LOPC モードの系統的な実験と解析を行った[67,68]。テラヘルツ電磁波の時間領域波形のフーリエ変換スペクトルにおいて、励起光パワーに依存する2つの周波数バ

ンドを観測し、それらの励起光強度依存性の系統的な測定結果を LOPC モードの理論モデルとの比較により、定量的な解析を行った。さらに、LOPC モードのダイナミクスについて、逆フーリエ変換や時間分割フーリエ変換を用いて解析した。

## 4-2 試料構造

本研究で用いた *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造は前章で用いたものと同様、半絶縁性 GaAs 基板(001)面上にノンドープ GaAs(*i*-GaAs)を 50 nm、*n* 型 GaAs(*n*-GaAs)を 3 μm エピタキシャル成長させ、その上に *i*-GaAs を *d* nm エピタキシャル成長させている。*n*-GaAs のドーピング濃度は  $3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ 、*i*-GaAs 層の層厚は 200、500、800、1200 nm の 4 種類である。これらの試料の結晶成長は住友化学工業(株)において有機金属気層エピタキシー法によって行われた。また、これらのサンプルの参照試料として、半絶縁性 GaAs 基板上に、*i*-GaAs を 3 μm エピタキシャル成長させた試料を用いた。その他、ポテンシャル構造や内部電場の値は前章の 3.2 節で述べた。

## 4-3 バルク結晶における LO フォノン-プラズモン結合モード

極性半導体中において、縦型の振動であるプラズマの振動数が、同じく縦型の振動である LO フォノンの振動数に近づくと両者は巨視的な分極を通して結合し、新たなモードである LO フォノン-プラズモン結合(LO Phonon-Plasmon Coupled Modes:LOPC)モードを形成する[64]。

結晶中にプラズモンと LO フォノンが存在している場合の全体の誘電関数は

$$\epsilon_L(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} + \frac{(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2} \omega_{\text{TO}}^2 \quad (4-1)$$

で与えられる。ここで、右辺の 1 項目は背景誘電率、2 項目はプラズマからの寄与、3 項目は光学フォノンからの寄与である。また、 $\omega_{\text{TO}}$  は TO フォノン振動数、 $\epsilon_0$  は静的誘電率である。ここで、プラズマ周波数  $\omega_p$  は、波数依存性を無視できる場合以下のように表わされる。

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{\epsilon_\infty m^*}} \quad (4-2)$$

また、LO フォノン振動数 $\omega_{LO}$ は Lyddane-Sachs-Teller の関係から、

$$\omega_{LO} = \omega_{TO} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty}} \quad (4-3)$$

で与えられる。縦型モードは $\epsilon(\omega)=0$  で定められるため、(4-1)式の左辺を 0 として $\omega$ に対する 2 次方程式を解くと、

$$\omega_\pm^2 = \frac{1}{2} \left\{ \omega_1^2 - \omega_p^2 \pm \sqrt{(\omega_1^2 + \omega_p^2)^2 - 4\omega_p^2 \omega_1^2} \right\} \quad (4-4)$$

となる。(4-4)式は常に 2 つの実解をもち、それぞれは LOPC 上分枝(upper branch,  $\omega_+$ )モード、及び下分枝(lower branch,  $\omega_-$ )モードと呼ばれている。これら 2 つのモードは $\omega_p$ 、すなわち電子濃度に依存する。GaAs を例として、LOPC モードの振動数の電子濃度依存性の計算結果を図 4.1 に示す。図中の点線は、このプラズマ振動数を電子濃度の関数としてプロットしたものである。図 4.1 が示すように、電子濃度が高くなるにつれて、下分枝モードの振動数と上分枝モードの振動数は、それぞれ TO フォノンの振動数、及びプラズマ振動数に漸近する。逆に、電子濃度が低くなるにつれて、下分枝モードの振動数と上分枝モードの振動数は、それぞれプラズマ振動数、及び LO フォノン振動数に漸近する。

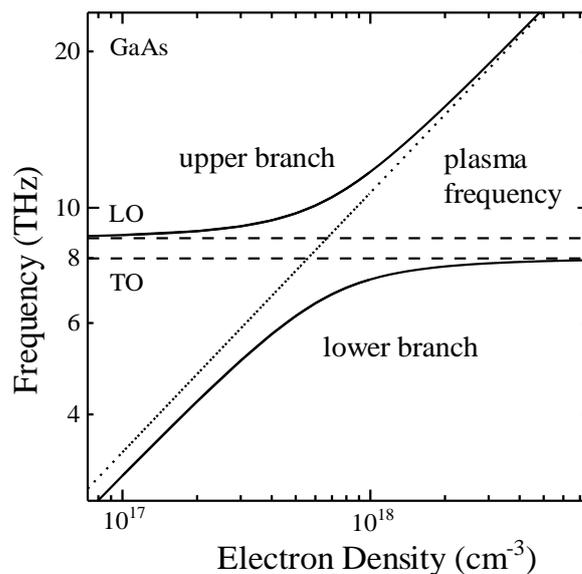


図 4.1 (4-4)式に基づく GaAs における LOPC モードの電子濃度依存性の計算結果

LOPCモードからのテラヘルツ電磁波放射は、1995年 Kuznetsov らによって理論的に予測された[71]。先行研究において、Cho らは LOPC 下分枝モードの振動数に寄与する電子濃度は、バックグラウンドキャリアと光生成キャリアの和になるということを反射型ポンプ-プローブ法を用いた研究で報告している[69]。また、Hase らは LOPC 上分枝モードに対して測定を行い、同様に全キャリア濃度に依存することを見出している[49,70]。

## 4-4 実験結果と考察

### 4-4.1 *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造における 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放射

図 4.2 は、実験条件を励起強度 100 mW、励起パルス中心エネルギーを 1.56 eV、励起パルスの時間幅を 50 fs とした場合の、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造、及び、バルク GaAs 結晶から放射されたテラヘルツ電磁波波形、及びそのフーリエ変換スペクトルを示している。測定は室温、窒素パージの下で行われた。

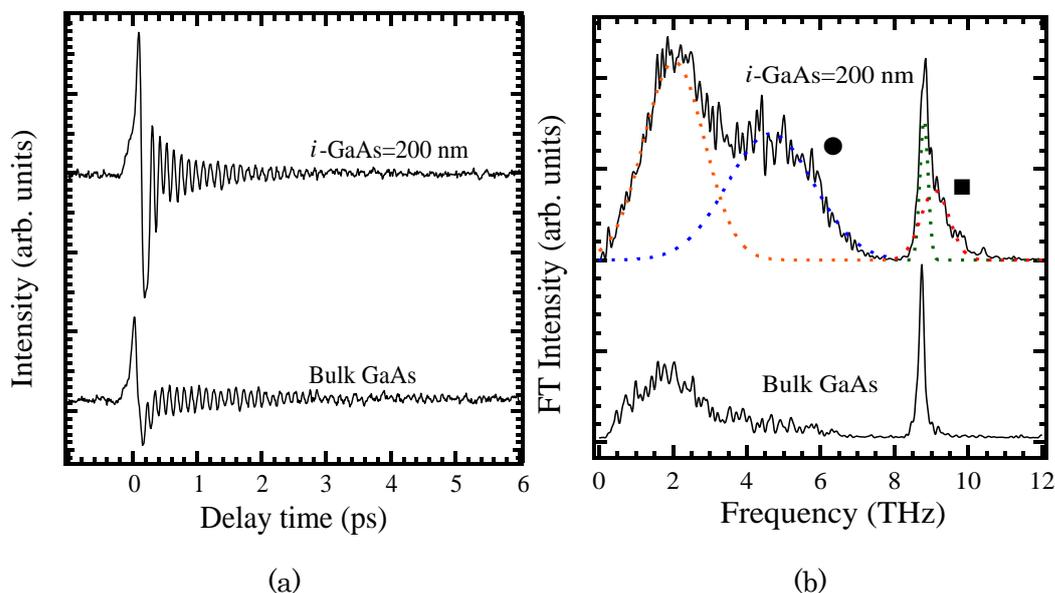


図 4.2 100 mW 励起条件の *i*-GaAs 層厚 200 nm の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造、及びバルク GaAs 結晶における(a)テラヘルツ電磁波と(b)そのフーリエ変換スペクトル

図 4.2(b)中の *i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造のフーリエ変換スペクトルにおいて、光励起過渡電流からのテラヘルツ電磁波である 2 THz 付近の周波数成分と、GaAs のコヒーレント LO フォノン起因の 8.8THz の信号とは別に、●と■で示した成分

を観測した。これら●及び■の成分は、*i*-GaAs バルク結晶ではほとんど観測されていない。ここで、図 4.2(b)中の波線は、ガウス関数でのフィッティング結果で、現象論的に4つのスペクトル成分に分解している。

次に、これらの成分の帰属を行うために、励起強度依存性を測定した。図 4.3 に、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造のテラヘルツ電磁波波形、及びそのフーリエ変換スペクトルの励起強度依存性を示している。励起光強度は 5~100 mW まで変化させた。図 4.3(b)を見ると、●及び■の成分は、励起強度の増加に伴い高周波数シフトしていることがわかる。ここで、先に述べた光整流効果は、フェムト秒レーザーの周波数間のコヒーレントな差周波発生によるテラヘルツ電磁波発生であるので、そのピーク振動数は励起光強度に依存しない。また、キャリア-キャリア(キャリア-フォノン)散乱が生じると電子移動度が小さくなるため、放射されるテラヘルツ電磁波は低周波数シフトするはずである。同じく、表面電場遮蔽が生じているなら表面付近の光生成キャリアの応答が遅くなるため、放射されるテラヘルツ電磁波の周波数は低周波数シフトすると予想される。

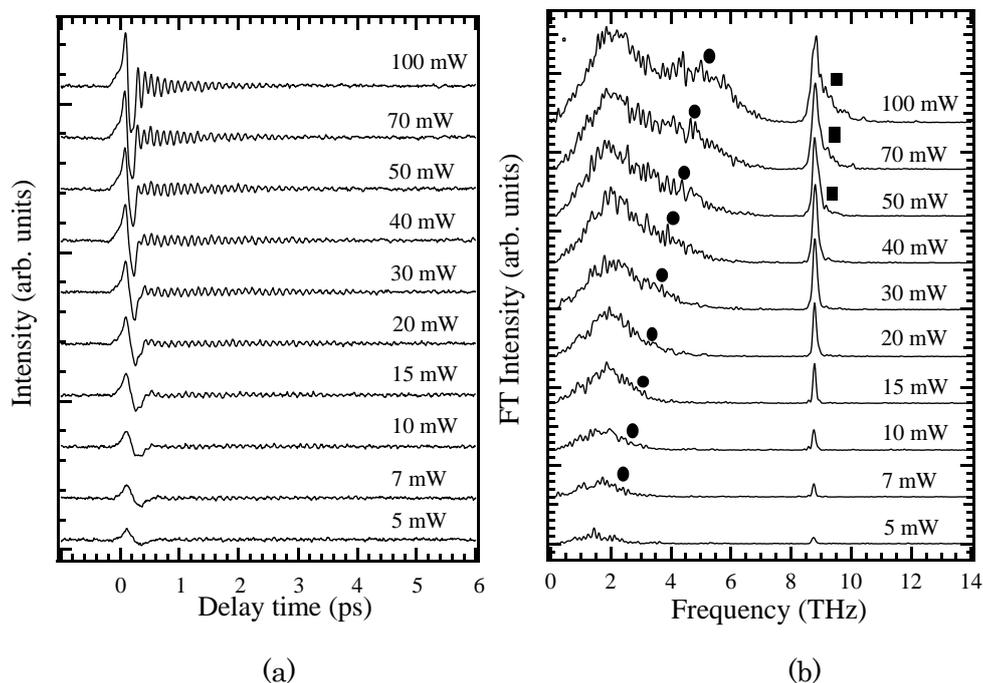


図 4.3 *i*-GaAs 層厚 200 nm の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造からの(a)テラヘルツ電磁波波形の励起光強度依存性、及び(b)そのフーリエ変換スペクトル

以上の考察から、実験結果において観測された励起光強度の増加に伴う高周波数シフトは、LOPC モードの特徴であり、●及び■の成分はそれぞれ LOPC 下分枝モード、

及び LOPC 上分枝モードであると考えられる。次に、図 4.3(b)の●及び■のスペクトル成分を現象論的にガウス関数でフィッティングすることによりピーク振動数を見積もり、GaAs の LOPC モードの周波数の電子濃度依存性の計算結果と比較したのが図 4.4 である。実験値の電子濃度は、2-3.3 節で示した方法で見積もっている。これを見ると、計算結果と実験結果が良い一致を示しており、●及び■の成分は、LOPC 下分枝モード、及び LOPC 上分枝モードから放射されたテラヘルツ電磁波であると結論される。ここで、先行研究において、LOPC モードに寄与するキャリア濃度は、光励起キャリア濃度とバックグラウンドキャリア濃度の和になるということが反射型ポンプ-プローブ法を用いた研究で報告されている[49,69,70]。テラヘルツ電磁波測定でも同じ現象が生じるとすれば、*n*-GaAs 層のドーピング濃度は  $3 \times 10^{18} \text{ (cm}^{-3}\text{)}$  であるため、もし *n*-GaAs 層の LOPC モードを観測しているならば、LOPC 上分枝モード、及び LOPC 下分枝モードはそれぞれプラズマ振動数、及び TO フォノン振動数付近で観測されるはずである。今回の実験結果において LOPC モードの振動数は光生成キャリアにのみ依存していることから、空間的に LOPC モードが形成されている場所は *n*-GaAs 層ではなく *i*-GaAs 層であると結論される。

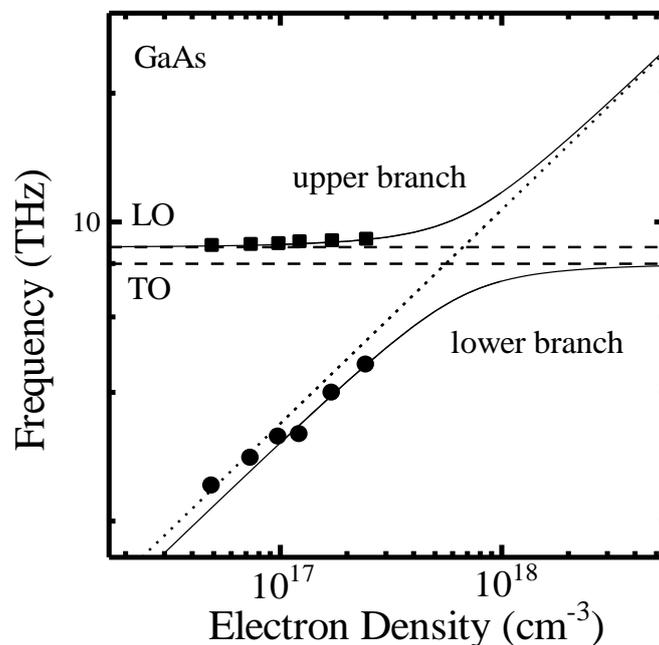


図 4.4 GaAs の LOPC モードの電子濃度依存性の計算結果(実線)、及び、フーリエ変換スペクトルの成分(●及び■)の光励起キャリア濃度依存性

次に、これまで述べてきたことを踏まえ、強励起条件における *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造からのテラヘルツ電磁波放射の *i*-GaAs 層厚依存性について議論する。図 4.5 から図 4.8 に、*i*-GaAs 層厚が 500、800、1200 nm の試料、及び *i*-GaAs バルク結晶からのテラヘルツ電磁波波形、及びそのフーリエ変換スペクトルの励起光強度依存性を示す。図 4.5 から図 4.8 を見ると、*i*-GaAs 層内の内部電場が 11.5 kV/cm の *i*-GaAs 層厚が 500 nm、8.2 kV/cm の 800 nm の試料においても *i*-GaAs 層厚 200 nm の試料(28.6 kV/cm)と同様に LOPC 上分枝モード、及び LOPC 下分枝モードの周波数成分が明確に観測されている。一方、内部電場が低い *i*-GaAs バルク結晶(4.7 kV/cm)では、LOPC モードの成分が観測されていない。第 3 章で述べた通り、LO フォノン分極は *i*-GaAs 層内の内部電場によって増強される。また、LOPC モードは、プラズモンと LO フォノンが巨視的な分極電場を介して結合することにより発生する。これらの事から、*i*-GaAs 層内の内部電場による LO フォノン分極の増大により、LOPC モードの強度も増大され、*i*-GaAs 層厚 200、500、800 nm の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造において LOPC モードが明確に観測されたと考えられる。

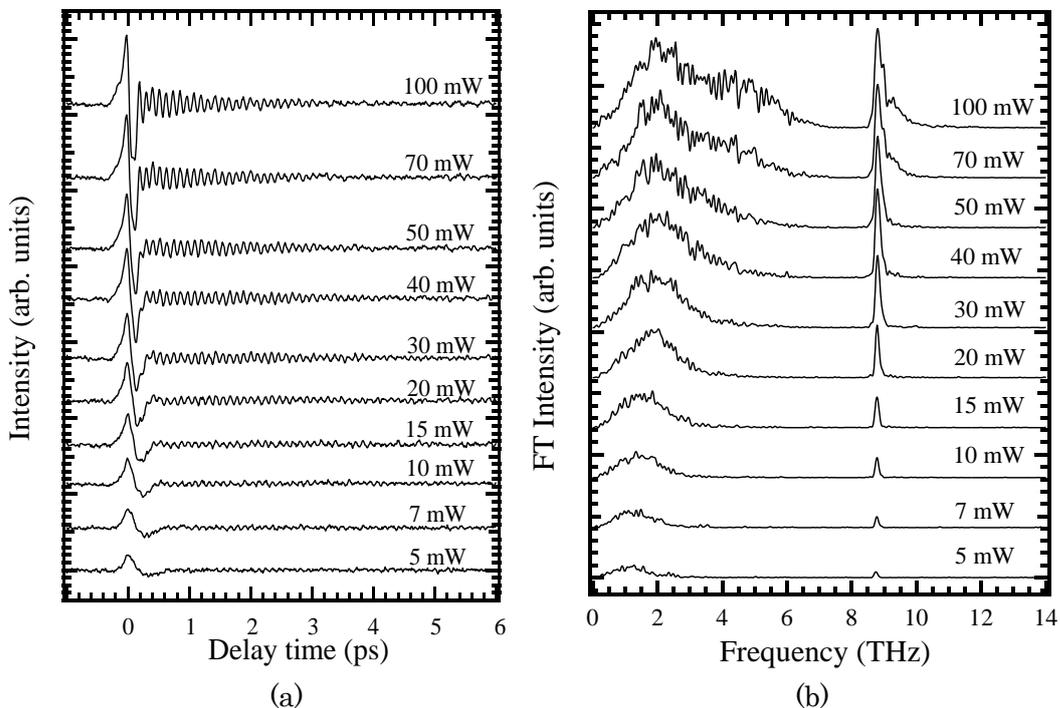


図 4.5 *i*-GaAs 層厚 500 nm の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造からの(a)テラヘルツ電磁波波形の励起光強度依存性、及び(b)そのフーリエ変換スペクトル

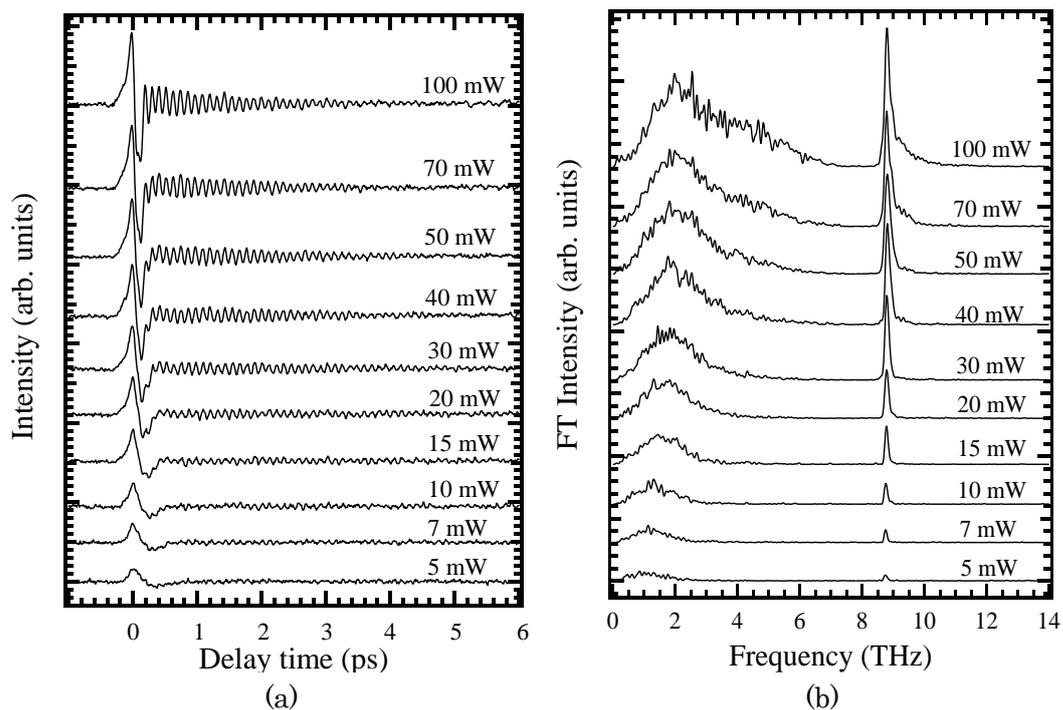


図 4.6  $i$ -GaAs 層厚 800 nm の  $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造からの(a)テラヘルツ電磁波波形の励起光強度依存性、及び(b)そのフーリエ変換スペクトル

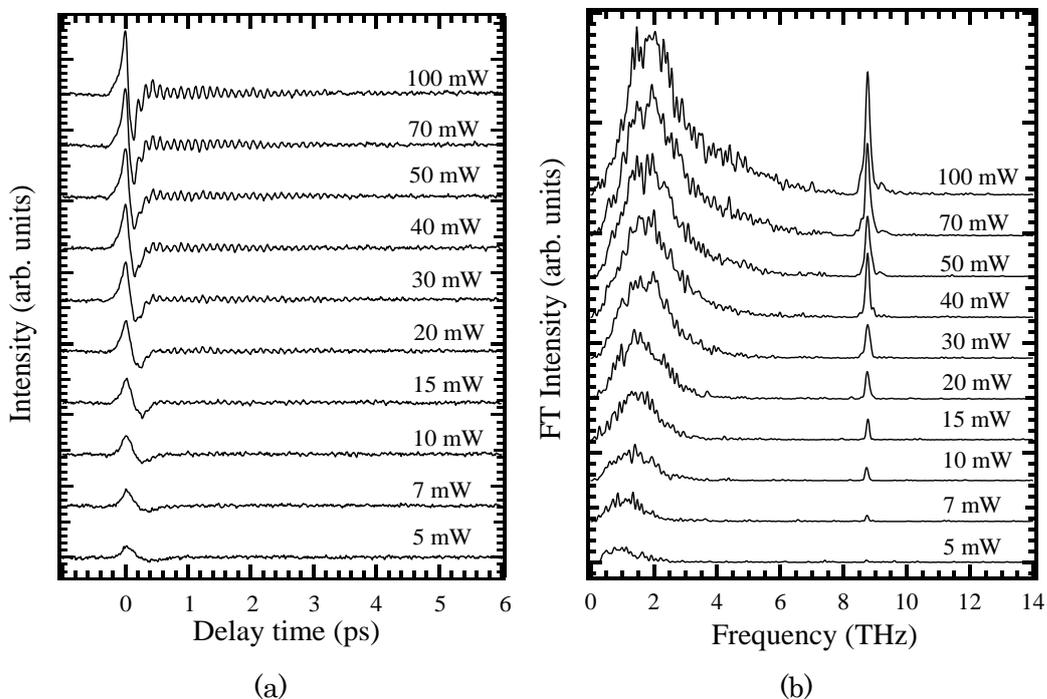


図 4.7  $i$ -GaAs 層厚 1200 nm の  $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造からの(a)テラヘルツ電磁波波形の励起光強度依存性、及び(b)そのフーリエ変換スペクトル

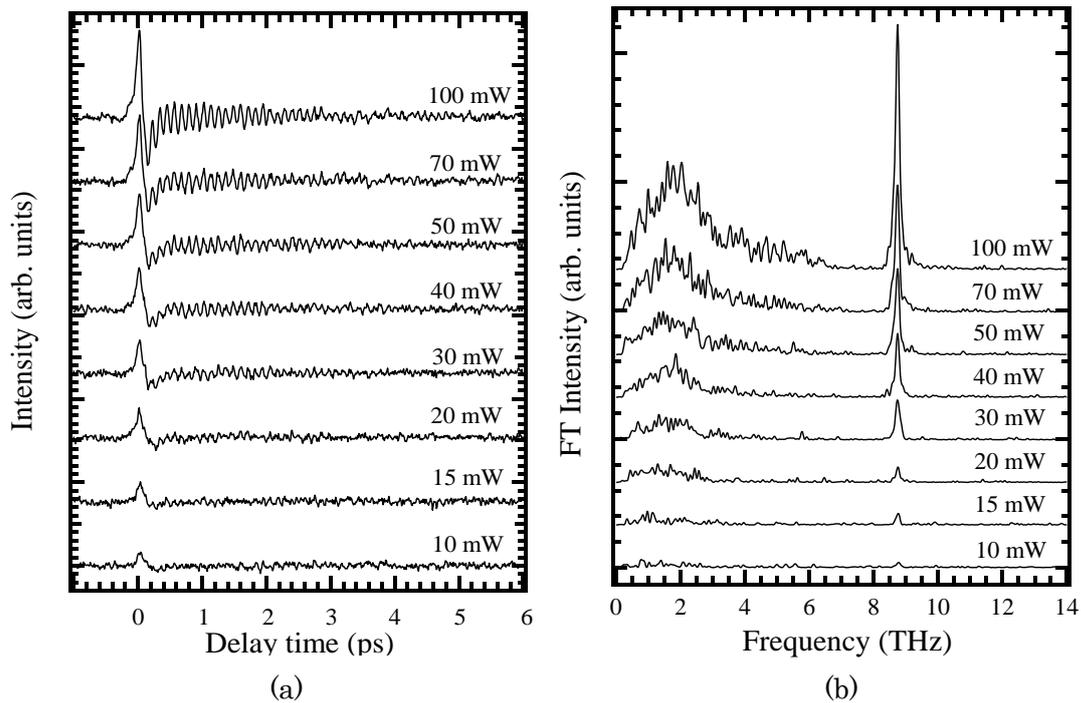


図 4.8 *i*-GaAs バルク結晶からの(a)テラヘルツ電磁波波形の励起光強度依存性、及び(b)そのフーリエ変換スペクトル

#### 4-4.2 *i*-GaAs 層内における縦光学フォノン-プラズモン結合モードのダイナミクス及びコヒーレント縦光学フォノンの減衰時間

本小節では、LOPCモードのダイナミクス及びコヒーレントLOフォノンの減衰時間について議論する。先行研究においてLOPCモードの減衰時間は主に*n*-GaAs結晶を対象に行われている[49]。

図 4.9 は、*i*-GaAs 層厚 200 nm の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造における励起光強度 100 mW 条件でのテラヘルツ電磁波波形の時間分割フーリエ変換スペクトルである。フーリエ変換開始時間は、-0.3~2.0 ps まで変化させている。図 4.9 のフーリエ変換時間窓が[-0.3, 8] ps のスペクトルにおいて、前節で述べた通り、サージカレント起因のテラヘルツバンド、8.8 THz のコヒーレント LO フォノン起因のバンド、並びに LOPCモードの下分枝(L-)及び8.8THzの高周波数側に上分枝(L+)の信号の合計4つの成分が観測されている。ここで、2つの LOPCモードの成分に注目する。時間窓[-0.3, 8] ps のスペクトルでは明確に LOPCモードのL-及びL+の両方の成分が観測されているが、時間窓[0.3, 8] ps ではLOPCモードの2つの成分は両方とも観測されなくなる。つまり、LOPC

モードの減衰時間は 0.6 ps 程度と考えられる。ここで留意すべきは、時間窓[0.3, 8]ps のスペクトルにおいて、サージカレント起因の周波数バンドも完全に減衰していることである。つまり、サージカレント起因のテラヘルツ電磁波と LOPC モードは同期していると考えられる。

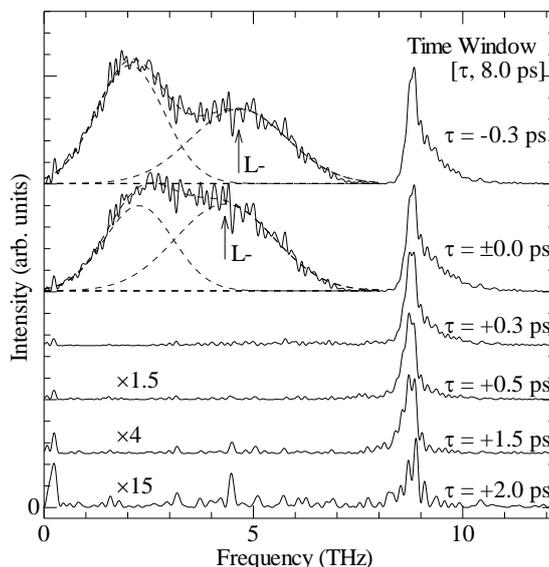


図 4.9 励起光強度 100 mW 条件での、*i*-GaAs 層厚 200 nm の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造からのテラヘルツ電磁波波形の時間分割フーリエ変換スペクトル

LOPC モードは、LO フォノン分極とキャリア分極の相互作用であるため、その減衰時間は光励起キャリアのダイナミクスと原理的に密接に関係している。先行研究において、キャリア濃度が  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  の場合は光励起電子の緩和時間はキャリア-キャリア散乱の寄与が大きくなるという報告が Leitenstorfer らによってされている[37,38]。また、キャリア-キャリア散乱時間は、およそ 100 fs であるということが実験的に調べられている[72]。しかし、今回用いた *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造では、*i*-GaAs 層において生成された光励起キャリアは、均一内部電場により *n*-GaAs 層で一斉に加速されるためキャリア-キャリア散乱の影響はほとんど無視できると考えられる。また、前節で述べたように、LOPC モードは空間的に *i*-GaAs 層で形成されている。つまり、LOPC モードの減衰時間 0.6 ps は、*i*-GaAs 層から *n*-GaAs 層へのキャリアのスweepアウト時間を反映していると考えられる。

次に、上記の結果をテラヘルツ電磁波の時間領域波形から考察する。図 4.10(a)は、試料 *i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造での、励起光強度 100 mW、パルス時間幅 50 fs、励起エネルギー 1.56 eV における、テラヘルツ電磁波波形のフーリエ変換スペクトルである。図 4.10(a)中の 8~12 THz(コヒーレント LO フォノン及び LOPC 上分枝モ

ードの成分)の周波数領域のスペクトルを、逆フーリエ変換を用いて数値的に抽出したのが図 4.10(b)である。以後、このようにして求められた時間領域波形に対して考察を行う。

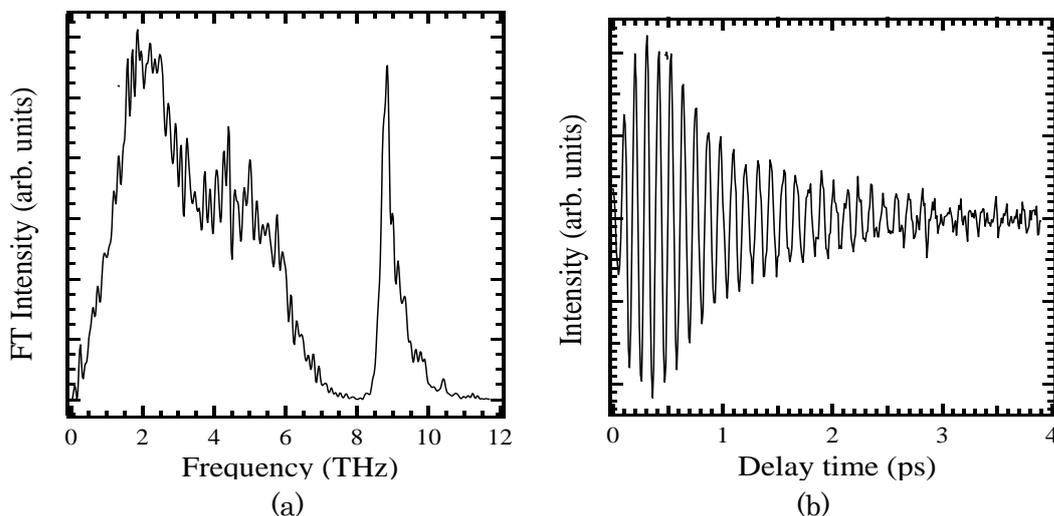


図 4.10 100 mW 励起条件での、*i*-GaAs 層厚 200 nm の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造からの(a)テラヘルツ電磁波波形のフーリエ変換スペクトル、及び(b)フーリエ変換スペクトルの 8~12 THz の周波数領域を逆フーリエ変換を用いて数値的に抽出した時間領域波形

まず初めに、図 4.11 に対して以下に示す単一減衰波でフィッティングを行った。

$$A(t) = A_{LO} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{LO}}\right) \cos(2\pi\nu_{LO}t + \phi_1) \quad (4-5)$$

図 4.11 において、赤色波線が図 4.10(a)の逆フーリエ変換波形、青色実線はフィッティング曲線である。フィッティングパラメーターは、減衰時間が  $\tau_{LO}=1$  ps、振動数は GaAs の LO フォノン振動数である  $\nu_{LO}=8.8$  THz に設定している。これをみると、0.5 ps 以降の時間領域では実験結果とフィッティング曲線が良く一致するが、それ以前の領域では一致していないことがわかる。0.5 ps 以前の時間領域の実験結果の周期は 113 fs より短いことから、この時間領域に LOPC 上分枝モードが混成していると考えられる。

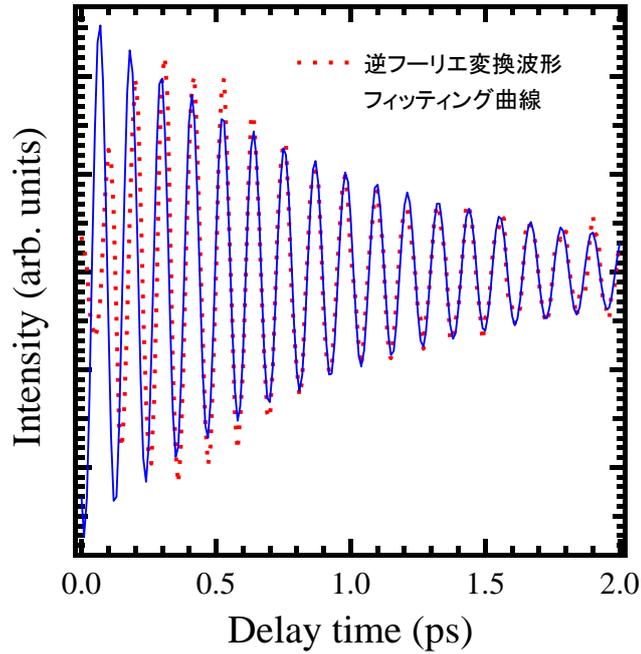


図 4.11 図 4.10(b)の逆フーリエ変換波形と(4-5)式で表わされる単一減衰波によるフィッティング結果

次に、コヒーレント LO フォノンに LOPC 上分枝モードが混成していると仮定し、以下に示す単一減衰波の和でフィッティングを行った結果を図 4.12 に示す。

$$A(t) = A_{LO} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{LO}}\right) \cos(2\pi\nu_{LO}t + \phi_1) + A_{UB} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{UB}}\right) \cos(2\pi\nu_{UB}t + \phi_2) \quad (4-6)$$

図 4.12 の赤色波線が図 4.10(a)の逆フーリエ変換波形、青色実線が(4-6)式に基づくフィッティング曲線である。フィッティングパラメーターは、コヒーレント LO フォノンの減衰時間、及び、振動数がそれぞれ  $\tau_{LO} = 1.0$  ps、 $\nu_{LO} = 8.8$  THz、LOPC 上分枝モードの減衰時間、及び振動数はそれぞれ  $\tau_{UB} = 0.3$  ps、 $\nu_{UB} = 9.6$  THz に設定している。図 4.12 において、フィッティング曲線は実験結果を良く再現していることから、0.5 ps 以前の時間領域に LOPC 上分枝モードが混在していると結論される。つまり、テラヘルツ電磁波の時間領域波形において、コヒーレント LO フォノンと LOPC 上分枝モードの混成状態が初期時間に消失し、その後、純粋なコヒーレント LO フォノンが残留すると言える。

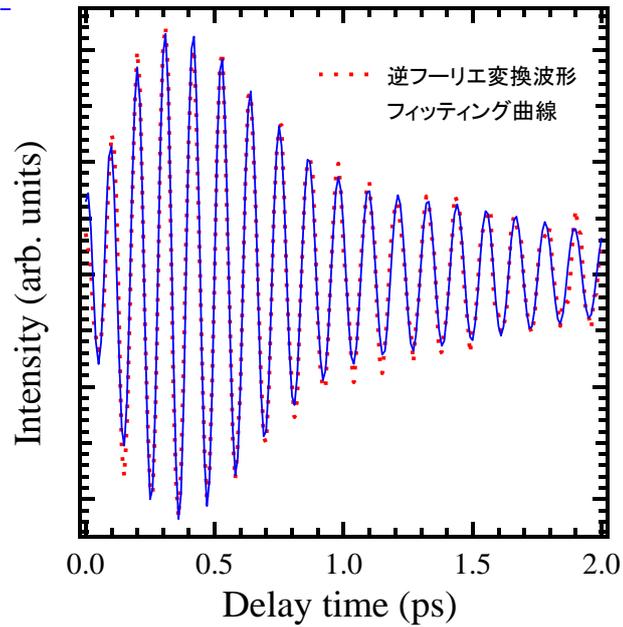


図 4.12 図 4.10(a)の逆フーリエ変換波形と(4-6)式で表わされる減衰波の和によるフィッティング結果

さらに図 4.13 は、100 mW 励起条件での *i*-GaAs 層厚(a)500 と(b)800 nm の試料におけるコヒーレント LO フォノン信号、及び LOPC 上分枝モードの逆フーリエ変換波形と(4-6)式で表わされる減衰波の和によるフィッティング結果を示している。

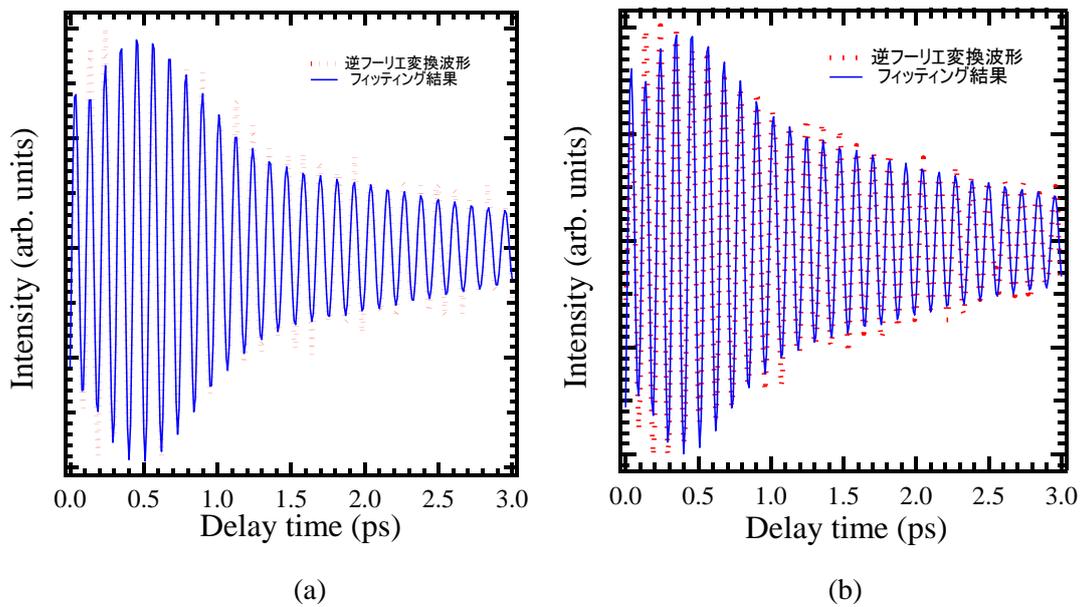


図 4.13 *i*-GaAs 層厚(a)500 nm、及び(b)800 nm における逆フーリエ変換波形と(4-6)式で表わされる減衰波の和によるフィッティング結果

このフィッティングにより見積もられた、*i*-GaAs 層厚 500 と 800 nm における LOPC モードの減衰時間はそれぞれ 0.35 ps と 0.38 ps である。これらの内部電場の増加(*i*-GaAs 層厚の減少)に伴い LOPC 上分枝モードの減衰時間が短くなる振る舞いは、内部電場によるドリフト運動によって、光励起キャリアのスweepアウト時間が早くなることを反映していると考えられる。

最後に、コヒーレント LO フォノンの減衰時間の励起強度依存性及び *i*-GaAs 層厚依存性について考察する。コヒーレント LO フォノンの減衰時間を求める際、上で示したように時間領域波形に対して、(4-6)式を用いてフィッティングを行った。図 4.14 は、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造において、励起エネルギー1.56 eV、パルス時間幅 50 fs の条件での、コヒーレント LO フォノンの減衰時間の励起光強度依存性である。励起光強度の増加に伴い、コヒーレント LO フォノンの減衰時間は短くなる振る舞いが明らかである。これは、励起光強度の増加に伴い、キャリア-LO フォノン散乱の影響が大きくなるためであると考えられる。

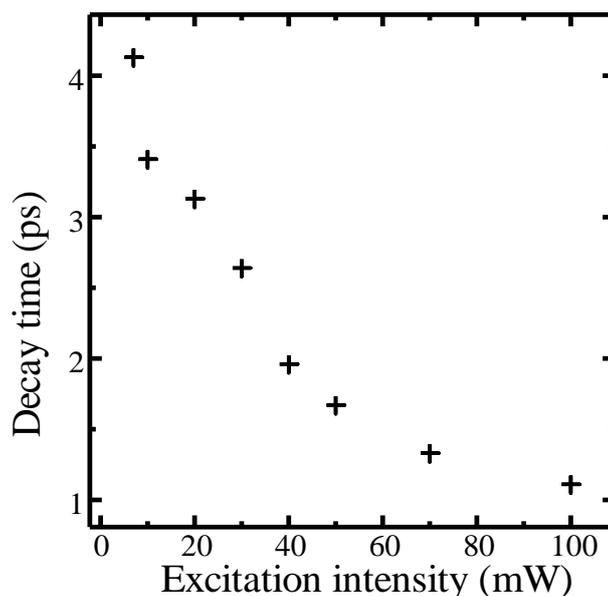


図 4.14 *i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造におけるコヒーレント LO フォノン信号の減衰時間の励起光強度依存性

加えて、コヒーレント LO フォノンの減衰時間の *i*-GaAs 層厚（電場強度）依存性について考察する。図 4.15 はコヒーレント LO フォノンの減衰時間の *i*-GaAs 層厚の電場強度依存性を示している。実験条件は、励起光強度 100 mW、励起エネルギー1.56 eV、パルス時間幅 50 fs に設定している。内部電場の増加に伴いコヒーレント LO フォノン

の減衰時間は短くなる振る舞いを示す。これは内部電場の増加に伴い、LO フォノン分極が大きくなり、そのために電磁波の散逸の影響が大きくなるためだと考えられる。

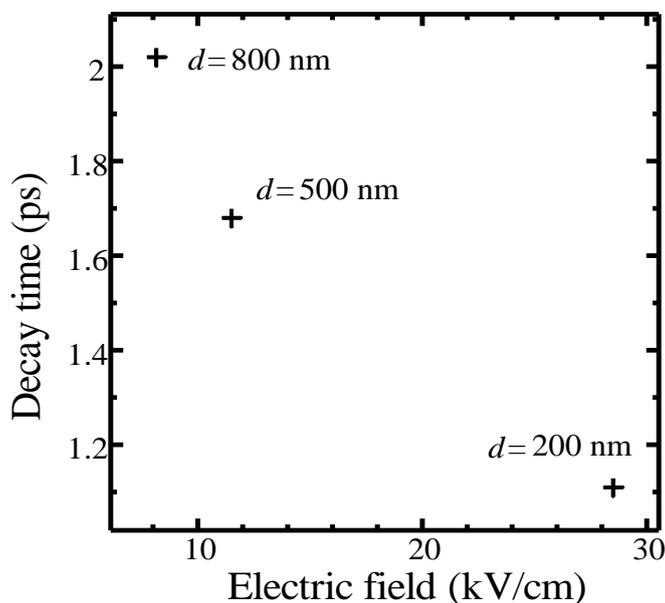


図 4.15 コヒーレント LO フォノン信号の減衰時間の電場強度 (*i*-GaAs 層厚) 依存性

#### 4-4.3 *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造におけるテラヘルツ電磁波波形の励起エネルギー依存性

本小節では、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造における、テラヘルツ電磁波波形の励起エネルギー依存性の実験結果とその考察について述べる。

一般的に半導体においては、励起エネルギーの増加に伴い吸収係数が増加するため侵入長が短くなる。ここで、前節で議論した通り、*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造では、*i*-GaAs 層内において LOPC モードが形成されている。LOPC モードは電子濃度に依存するため、侵入長が短くなると電子濃度が増加し、LOPC 上分枝モード、及び、LOPC 下分枝モードは高周波数シフトすると予測される。表 4.1 は、異なる光子エネルギーの場合の吸収係数、侵入長、キャリア濃度、及び、LOPC 上分枝モードと LOPC 下分枝モードの振動数の計算結果である。

表 4.1 異なる励起エネルギーにおける吸収係数と、侵入長、キャリア濃度、及び、LOPCモードの上分枝と下分枝の計算結果

励起エネルギー (eV)	吸収係数 ( $10^3 \text{ cm}^{-1}$ )[62]	侵入長 (nm)	キャリア濃度 ( $\text{cm}^{-3}$ )	LOPC モード (THz)	
				上分枝	下分枝
1.61	15.2	658	$1.80 \times 10^{17}$	9.02	4.01
1.59	14.4	694	$1.73 \times 10^{17}$	8.99	3.94
1.57	13.8	725	$1.67 \times 10^{17}$	8.97	3.89
1.55	13.1	763	$1.61 \times 10^{17}$	8.96	3.84
1.53	12.4	806	$1.54 \times 10^{17}$	8.95	3.77
1.51	11.8	847	$1.49 \times 10^{17}$	8.94	3.7
1.49	11.2	893	$1.43 \times 10^{17}$	8.93	3.65
1.47	10.8	926	$1.40 \times 10^{17}$	8.93	3.59

キャリア濃度の見積もりの際、レーザースポット径は  $120 \mu\text{m}$ 、励起光強度は  $60 \text{ mW}$  で計算している。表 4.1 を見るとわかるように、光子エネルギーの増加に伴い LOPCモードの振動数は増加する。これらを踏まえ、励起エネルギー依存性の実験結果について考察する。

図 4.16 は、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造における、励起光強度  $60 \text{ mW}$ 、パルス時間幅  $67 \text{ fs}$  の条件でのテラヘルツ電磁波波形の励起エネルギー依存性で、図 4.16(b)はそのフーリエ変換スペクトルである。励起エネルギーは、 $1.50 \sim 1.56 \text{ eV}$  まで変化させている。前節で述べたように、過渡電流由来の  $2 \text{ THz}$  付近の成分の高周波数側に LOPC 下分枝モードの成分が重畳している。図 4.16(b)においても  $7 \text{ THz}$  以下の周波数帯の成分は非常にブロードであることから、同じように LOPC 下分枝モードが観測されていると考えられる。これを踏まえ図 4.16(b)を詳細に見ると、励起エネルギーが低くなるに伴い  $2 \text{ THz}$  の高周波数側の成分がわずかに小さくなっていることがわかる。これは、励起エネルギーの低下に伴い、キャリア濃度が低くなり、LOPC 下分枝モードが低周波数シフトしていることが原因と考えられる。

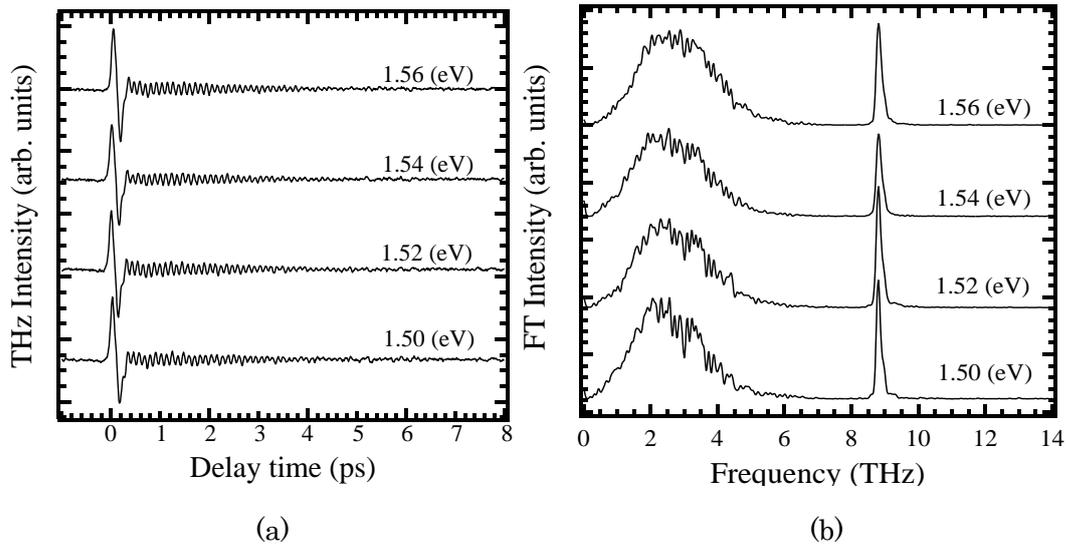


図 4.16  $i$ -GaAs 層厚 200 nm の  $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造における (a) テラヘルツ電磁波波形の励起エネルギー依存性、及び (b) そのフーリエ変換スペクトル

## 4.5 まとめ

本章では、時間領域テラヘルツ電磁波測定を用い、強励起条件における  $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs 構造の LOPC モードからの時間領域テラヘルツ電磁波に関する研究結果について述べた。LOPC モードの電子濃度依存性の計算結果と実験結果の比較を行い、それぞれの周波数モードの帰属を行った。

次に、LOPC モードのダイナミクスについて考察を行った。LOPC モードの周波数は、ポンプ光強度にのみ依存することから、LOPC モードは  $i$ -GaAs 層内で形成されていることが明らかとなった。すなわち、 $i$ -GaAs 層を走行する瞬間的過渡電流が、プラズモンとして作用し、コヒーレント LO フォノンとの結合を形成しているというモデルが成立する。LOPC 上分枝モードの減衰時間は、 $i$ -GaAs 層内の内部電場が高くなるに伴い短くなることを見出した。このことから、LOPC 上分枝モードの減衰時間は  $i$ -GaAs 層における光励起キャリアのスweepアウトを反映していると考察した。さらに、LOPC モードが消失した後に、純粋なコヒーレント LO フォノンが残留することを見出した。応用面では、 $i$ -GaAs/ $n$ -GaAs エピタキシャル構造特有の LOPC モードを利用して、周波数可変テラヘルツ電磁波発生が可能である。

## 第5章 GaSb/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放射

### 5-1 はじめに

ラマン散乱過程において、フォノンは励起光によって直接生成・消滅されるが、一方、コヒーレントフォノンの生成過程において、直接的なトリガーはポンプ光の照射ではなく、ポンプ光の照射によって生成した光励起キャリアの電場遮蔽によるポテンシャルの変化である[33,39]。つまり、理論的には、光学的にマスクされ励起光が届かない領域においても、コヒーレント LO フォンは瞬間的なポテンシャル変化があれば生成されるということが期待される。これまで、コヒーレント LO フォンの研究分野において、主な実験手法は反射型ポンプ・プローブ分光法で、この手法においては、コヒーレント LO フォンは反射率の光変調効果を通して検出される。つまり、上述の方法では、プローブ光の侵入長より深い領域に存在するコヒーレント LO フォンを検出することは不可能である。このような背景のため、コヒーレント LO フォンに関する様々な報告があるにも関わらず、光学的にマスクされた領域におけるコヒーレント LO フォンの研究は行われていない。対照的に、時間領域テラヘルツ分光法では、テラヘルツ電磁波としてコヒーレント LO フォンの信号を直接的に検出することができる。しかし、過去のテラヘルツ電磁波の研究結果において、光学的にマスクされた領域のコヒーレント LO フォンに関する報告はなされていない。本研究では、GaSb/GaAs エピタキシャル構造を試料として、光学的にマスクされた領域におけるコヒーレント LO フォンからのテラヘルツ電磁波発生に成功し、その特性について詳細な解析を行った[73,74]。

### 5-2 試料構造

本研究で用いた試料は、半絶縁性(001)面 GaAs 基板上に分子線エピタキシー法で成長させた GaSb/GaAs 構造である。GaSb 層と GaAs バッファ層の厚さはそれぞれ 900 nm 及び 200 nm とした。図 5.1 は、試料構造の概略図を示している。どちらの層もノンドープとしたため、GaSb 層におけるテラヘルツ波のキャリア吸収は無視できる。

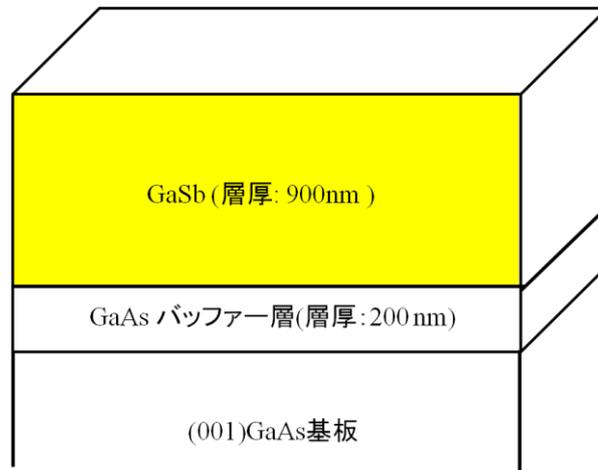


図 5.1 GaSb/GaAs エピタキシャル構造の概略図

## 5-3 実験結果と考察

### 5-3.1 GaSb/GaAs エピタキシャル構造におけるラマン散乱測定

テラヘルツ電磁波測定の前に、GaSb 層によって GaAs 層がマスクされていることを確認するため、後方散乱配置での GaSb/GaAs エピタキシャル構造のラマン散乱測定を行った結果を図 5.2 に示した。励起光の光子エネルギーと励起光強度は、それぞれ 1.58 eV 及び 19 mW とした。図 5.2 を見ると、6.6 THz 及び 7.1 THz の周波数にバンドが観測されている。ここで、GaSb のブリルアンゾーンの  $\Gamma$  点における TO 及び LO フォノンの周波数はそれぞれ 6.8 THz 及び 7.0 THz であることから[75]、これらのバンドは GaSb の TO 及び LO フォノンと帰属される。また、GaAs の LO フォノンは 8.8 THz であるが、ラマン散乱スペクトルでは観測されていない。これは、GaSb の吸収係数より、GaSb 層における励起光の透過長は 160 nm であり[62]、励起光が GaAs 層に届いていないということの証拠となっている。すなわち、GaSb 層は GaAs バッファ層を光学的にマスクしているということである。ここで、TO フォノンバンドは、閃亜鉛鉱構造において(001)面は原則として禁制である。ラマン散乱において、(111)または(110)面は TO フォノンが許容であることから、微弱な GaSb の TO フォノンの観測は、GaSb 層の成長方向が、[111]または[110]方向の間にわずかにずれていることを示唆している。この原因については、GaAs(0.3565 nm)と GaSb(0.410 nm)の間の格子不整合に起因するものと考えられる。

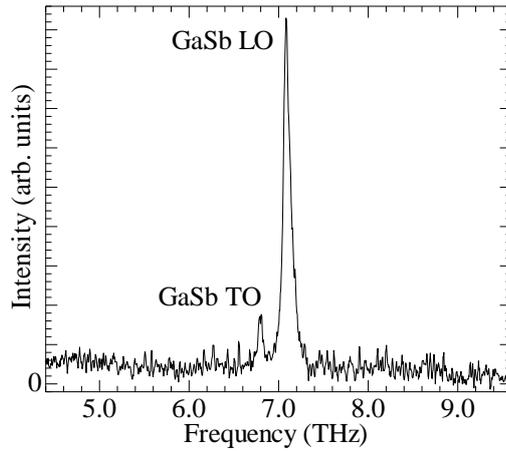


図 5.2 GaSb/GaAs エピタキシャル構造の後方散乱配置におけるラマン散乱スペクトル

### 5-3.2 GaSb/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放射

GaSb/GaAs エピタキシャル構造からのテラヘルツ電磁波放射について述べる。テラヘルツ電磁波の時間領域波形の測定は室温、窒素置換下（湿度：10%）で行った。ポンプ光の直径は 100  $\mu\text{m}$ 、ポンプ光及びゲート光の強度はそれぞれ 120 mW 及び 10 mW、繰り返し周波数は 90MHz とした。ポンプ光のエネルギーは 1.57 eV とし、ラマン散乱測定とほぼ同じエネルギーに設定した。GaSb/GaAs エピタキシャル構造のテラヘルツ電磁波波形を図 5.3(a)に示す。0ps 付近に観測されているサージカレント起因のテラヘルツ電磁波に続き、振動パターンが観測されている。

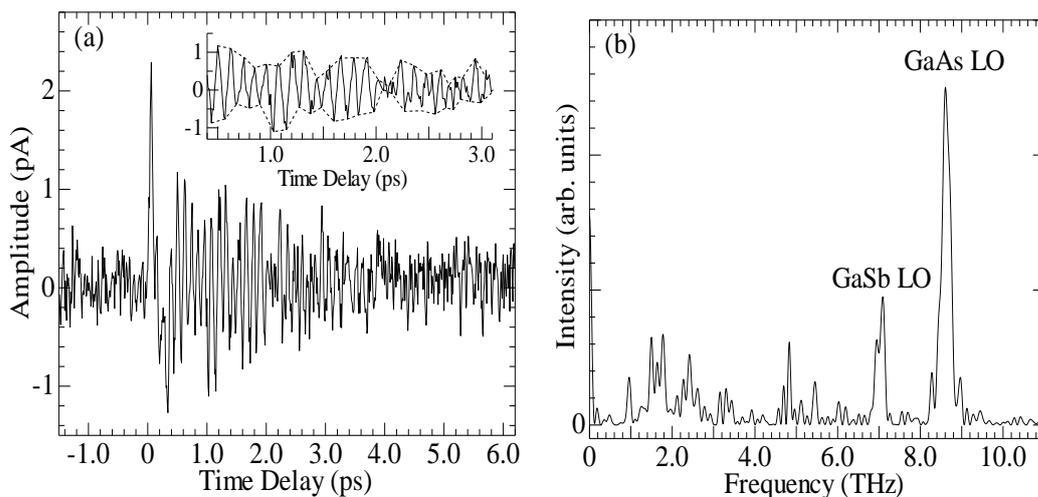


図 5.3 GaSb/GaAs エピタキシャル構造における(a)テラヘルツ電磁波波形と(b)そのフーリエ変換スペクトル

振動構造に着目するために 0.5ps から 3.0ps を抽出し、図 5.3(a)に挿入した。振動にうねり（ビート）が生じており、これは複数のモードが重なり合って振動が観測されていることを示唆している。観測されたモードを詳細に解析するため、テラヘルツ電磁波波形に対しフーリエ変換を行った。フーリエ変換スペクトルを図 5.3(b)に示す。2 THz 近傍のバンドはモノサイクル信号に由来するものであり、7.1THz は GaSb のコヒーレント LO フォノン周波数と一致する。注目すべき現象としては、8.6THz に GaAs のコヒーレント LO フォノンバンドが現れていることである。8.8 THz が GaAs 結晶の LO フォノン周波数であることから、今回観測された GaAs の LO フォノンバンドは  $\Delta\omega = -0.2\text{THz}$  の周波数シフトが生じている。このことは GaSb の格子定数は 0.610 nm で GaAs の格子定数は 0.565 nm であることから、GaAs 層に引っ張り歪みが生じていることを反映している。この  $\Delta\omega$  の値は、格子不整合によって引き起こされる 2 軸歪みを仮定すると、次式で与えられる [76]。

$$\Delta\omega = \alpha\varepsilon \quad (5-1)$$

ここで、GaAs において  $\alpha=11\text{THz}$  であり、 $\varepsilon=1.8\times 10^{-2}$  と評価できる。以上のことから、GaSb 層にマスクされた GaAs バッファ層におけるコヒーレント LO フォノンを観測したと結論される。

### 5-3.3 GaSb/GaAs エピタキシャル構造におけるコヒーレント LO フォノンの生成機構

次に、光学的にマスクされた、GaAs のコヒーレント LO フォノンの生成メカニズムを議論する。一般的に、化合物半導体は表面フェルミレベルピンニングに起因するポテンシャルベンディングを有する。ノンドーパ結晶における表面ポテンシャルベンディングの領域では、ドーパントに起因するキャリアによる表面ポテンシャルベンディングの静電遮蔽が生じない。その結果、ポテンシャルベンディングが生じる領域が、結晶の内側に数  $\mu\text{m}$  伸びていると考えられる。今回の GaSb/GaAs 構造は、GaAs 層バッファ層も含めると、表面からの厚みは 1.1  $\mu\text{m}$  である。すなわち、GaAs バッファ層にも表面ポテンシャルベンディングの影響が及んでいると考えられる。

上記のようなポテンシャル構造を有する試料の表面にポンプ光を照射し、表面領域周辺に高濃度キャリアを生成すると、GaSb/GaAs 界面を含めた GaSb/GaAs 構造全体に渡り瞬間的なポテンシャル変化が生じる。1-2.3(a)で述べた通り、瞬間的なポテンシ

ャルの変化はコヒーレント LO フォノンの生成のトリガーとなることから、この現象は、GaAs のコヒーレント LO フォノン生成の要因であると結論される。

最後に、時間分解フーリエ変換を用い、GaAs と GaSb のコヒーレント LO フォノンの減衰時間を解析する。時間分割フーリエ変換スペクトルは、以下の式によって計算される。

$$I(\omega) \propto \left| \int_{\tau}^{8\text{ps}} A(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (5-1)$$

ここで  $A(t)$  はテラヘルツ波形、 $\tau$  は時間遅延である。図 5.4(a) は、GaSb/GaAs エピタキシャル構造におけるテラヘルツ電磁波波形の時間分割フーリエ変換スペクトルを示している。GaAs の LO フォノンバンドのピークは GaSb のそれと比べ急速に減衰し、 $\tau=2.0\text{ps}$  で GaAs の強度は GaSb の強度よりも弱くなる。LO フォノンの減衰時間を見積もるため、 $\tau$  の関数としてそれぞれのピーク強度をプロットしたのが、図 5.4(b) である。減衰速度を評価するため、単一指数関数でのフィッティング結果を実線で示した。GaAs 及び GaSb の減衰速度は、それぞれ  $1.0$  及び  $0.6 \text{ ps}^{-1}$  と見積もられた。(5-1) 式から明らかなように、時間分割フーリエ変換の値は、テラヘルツ電磁波強度の 2 乗に相当する。したがって、図 5.4(a) のテラヘルツ波の大きさの減衰速度は、時間分割フーリエ変換から見積もられた速度の半分となる。すなわち、テラヘルツ電磁波強度の減衰速度は  $0.50$  及び  $0.30 \text{ ps}^{-1}$ 、減衰時間は  $2.0$  及び  $3.3 \text{ ps}$  となる。過去の時間分解コヒーレントアンチストークスラマン散乱を用いた測定結果によると、GaAs のコヒーレント LO フォノンの減衰時間は  $2.5\text{ps}$  と評価されており[77]、今回の結果とほぼ一致する。

ここで、コヒーレント LO フォノンの減衰時間の見積もり方法の別のアプローチとして、GaAs と GaSb の LO フォノンバンドの半値全幅から減衰時間を見積もる。図 5.4(a) のフーリエ変換スペクトル（強度の 2 乗に相当）において、それぞれ GaAs 及び GaSb の半値全幅の値はそれぞれ  $0.24$  及び  $0.15 \text{ THz}$  である。ここから、強度スペクトルにおいて、GaAs 及び GaSb の LO フォノンバンドの半値全幅の値はそれぞれ  $0.48$  及び  $0.30 \text{ THz}$  となる。つまり、GaAs と GaSb のコヒーレントフォノンの減衰時間は半値全幅の値から  $2.1 \text{ ps}$  と  $3.3 \text{ ps}$  と見積もられる。半値全幅から見積もった減衰時間は、時間分割フーリエ変換法の結果とほぼ一致する。

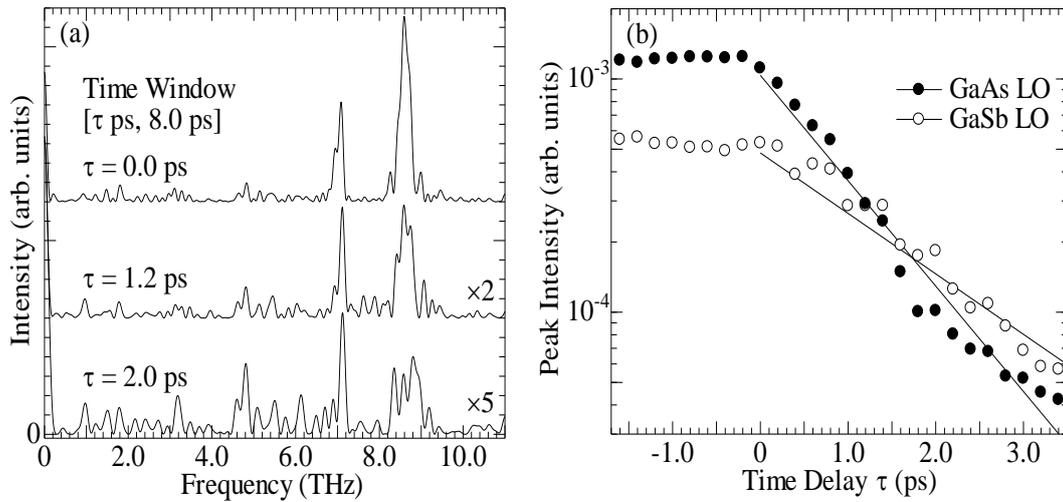


図 5.4 GaSb/GaAs エピタキシャル構造における(a)時間分割フーリエ変換スペクトルと(b)そのピーク強度の時間依存性

最後に、GaAs と GaSb の LO フォノンの減衰時間の違いについて考察する。ここでは、LO フォノンが 2 種類のフォノン（終状態）と相互作用して減衰するという 3 次の非調和性減衰を仮定する。したがって、効率的な減衰が生じる場合、終状態の 2 種類のフォノンの状態密度が大きい必要がある。

GaAs において、 $\Gamma$  点の LO フォノンは、L 点の TA(transverse acoustic) フォノンと L 点の LO フォノンに減衰する。TA(L) と LO(L) フォノンの周波数の和は、LO( $\Gamma$ ) フォノンと一致するため、エネルギー及び運動量の保存則を満たしている。また、GaAs の LO(L) フォノンと TA(L) フォノンは、それぞれ、分散曲線の極小と極大であり状態密度が大きい。上記の GaAs の LO フォノン減衰過程は、既に確立されたものである。次に、GaSb の LO( $\Gamma$ ) フォノンの減衰過程を考察する。GaSb の LO( $\Gamma$ ) フォノンの減衰過程に関する先行研究はないが、図 5.5 に示した GaSb のフォノン分散関係[78]と今回の実験結果から考察する。図 5.5 の GaSb のフォノン分散関係を見ると、 $[\zeta, \zeta, 0]$  方向では、縦モードと横モードの混成が生じるために TA 及び TO フォノンの縮退が解ける。ここで、音響フォノンの縦モード及び横モードの混成モードについて、下方分枝モードと上方分枝モードをそれぞれ I A と II A と呼ぶ。 $[\zeta, \zeta, 0]$  方向において、 $\zeta=0.7$  で I A と II A の値はそれぞれ 4.45、2.60 THz であり、これらの和は GaSb の LO( $\Gamma$ ) の 7.1 THz と一致する。即ち、エネルギー及び運動量の保存則を満たしている。また、II A は  $\zeta=0.7$  でその分散関係は極大となる。即ち、状態密度が大きい。これらより、GaSb の LO( $\Gamma$ ) フォノンの支配的な減衰過程は、 $\zeta=0.7$  の  $[\zeta, \zeta, 0]$  方向における II A 及び I A への緩和であると考えられる。ここで、I A フォノンの分散関係は、 $\zeta=0.7$  で最大ではない。すな

わち、I A フォノンの $\zeta=0.7$ における状態密度は小さい。これにより、GaSb の LO( $\Gamma$ ) フォノンの減衰時間は、GaAs の LO( $\Gamma$ )のそれより長くなると解釈できる。これは、今回のテラヘルツ電磁波測定において、GaSb の LO( $\Gamma$ )フォノンの減衰時間 (3.3ps) が、GaAs の LO( $\Gamma$ )フォノンの減衰時間 (2.0 ps) よりも長くなっていることと定性的に一致する。

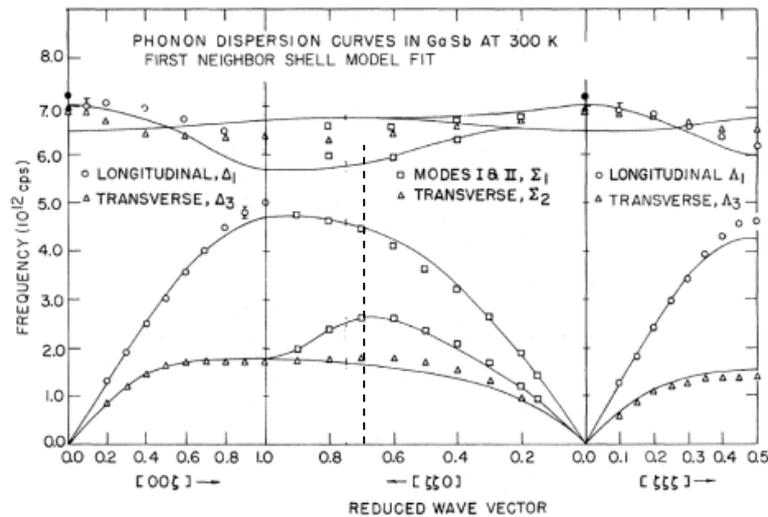


図 5.5 300K における GaSb の分散曲線[78]

## 5-4 まとめ

本研究では、GaSb/GaAs エピタキシャル構造におけるラマン散乱スペクトル及び時間領域テラヘルツ電磁波に関する研究成果について述べた。ラマン散乱スペクトルにおいて、GaAs の LO フォノンは観測されず、GaSb の LO フォノンのみが観測された。これは、励起光が GaAs 層に届いていないためである。すなわち、GaAs 層は GaSb 層によって光学的にマスクされた状態であることを示している。対照的に、時間領域テラヘルツ波測定では、GaAs 及び GaSb の両方のコヒーレント LO フォノンバンドが観測された。光学的にマスクされた GaAs のコヒーレント LO フォノンの生成要因は、ポンプ光の照射により生成したキャリアによる瞬間的電場遮蔽効果に起因した表面ポテンシャル変調が GaAs バッファ層に届いていることであると結論された。このことから、コヒーレント LO フォノンのテラヘルツ電磁波測定は、上層にマスクされた層で生じた現象のプロブとして有効である。また、時間分割フーリエ変換分析から、GaAs と GaSb のコヒーレント LO フォノンの減衰時間をそれぞれ 2.0ps と 3.3ps と見積もった。GaAs と GaSb のコヒーレント LO フォノンの減衰時間の違いは、終状態のフォノン状態密度を反映していると考えた。

## 第 6 章 総括

本論文では、*i*-GaAs/*n*-GaAs 及び GaSb/GaAs エピタキシャル構造を対象として、半導体表面からのテラヘルツ電磁波放射に関する多様な特性の解明と制御を目的として研究を行った一連の成果について詳細に述べた。以下に、本研究の成果を総括する。

### 1. 時間分解テラヘルツ分光法と解析方法 (第 2 章)

本研究における測定手法の中核である時間分解テラヘルツ電磁波測定のために、励起光源としてパルス時間幅 50 fs の波長可変フェムト秒パルス Ti:sapphire レーザーを用い、検出系に高周波数側まで感度が高いダイポールアンテナを用いた光ゲート法による測定システムを構築した。このシステムにおいて、約 10THz までのテラヘルツ電磁波を高精度に測定することが可能となった。また、時間分解テラヘルツ電磁波波形を解析するために、フーリエ変換スペクトル、及び、時間分割フーリエ変換スペクトルの計算手法を確立した。

### 2. *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の増強機構の解明 (第 3 章)

*i*-GaAs 層厚が異なる 4 種類 (200, 500, 800, 1200nm) の *i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造を対象として、時間領域テラヘルツ電磁波を系統的に測定した。その結果、コヒーレント LO フォノンからのテラヘルツ電磁波が、*i*-GaAs 層厚に顕著に依存することを見いだした。その要因を明らかにするために、LO フォノン分極の観点から、*i*-GaAs 層の内部電場に焦点を当て、PR スペクトルで観測されるフランツ・ケルディッシュ振動の解析から、*i*-GaAs 層の内部電場を見積もった。具体的には、*i*-GaAs 層厚が 200、500、800、1200nm において、その内部電場が 28.6、11.5、8.2、5.3kV/cm であると評価した。上記の 4 種類の試料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放射効率を見積もるために、放射体積効果と有効励起強度の補正を行い、補正後の強度が、*i*-GaAs 層の内部電場強度の 2 乗に比例して増強されることを明らかにした。このことから、*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の増強機構は、*i*-GaAs 層の内部電場による LO フォノンの初期分極の増大が原因であると結論した。

内部電場の増大がテラヘルツ電磁波の増強につながるという本研究の結果は、高強度

テラヘルツエミッター開発のためのシンプルな戦略を提案している。

### 3. *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 (LOPC) モードからのテラヘルツ電磁波放射特性 (第4章)

上記の4種類の*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造を対象として、強励起条件における時間領域テラヘルツ電磁波の励起強度依存性を系統的に測定した。その結果、強励起条件特有の新たな2つのテラヘルツバンドを見いだした。LOPCモードの電子濃度依存性の計算結果と実験結果の比較を行い、その2つのテラヘルツバンドが、LOPCモードの下分枝と上分枝モードであることを明らかにした。また、LOPCモードの周波数がポンプ光強度にのみ依存することから、LOPCモードは*i*-GaAs層内で形成されていることを示した。このことは、*i*-GaAs層を走行する瞬間的過渡電流がプラズモンとして作用し、コヒーレントLOフォノンと結合していることを示している。さらに、LOPCモードのダイナミクスについて、その減衰時間が*i*-GaAs層内の内部電場が高くなるに伴い短くなることを見出した。このことから、LOPCモードの減衰時間は、*i*-GaAs層における光生成キャリアのスweepアウトを反映していると結論した。

### 4. GaSb/GaAs エピタキシャル構造における光学的にマスクされた GaAs 層からのコヒーレント LO フォノンによるテラヘルツ電磁波放射 (第5章)

GaSb/GaAs エピタキシャル構造を対象として、ラマン散乱スペクトル及び時間領域テラヘルツ電磁波の測定を系統的に行った。ラマン散乱スペクトルにおいて、GaAsのLOフォノンは観測されず、GaSbのLOフォノンバンドのみが観測された。これは励起光がGaAs層に届いていないためである。対照的に、時間領域テラヘルツ電磁波測定では、GaAs及びGaSbの両方のコヒーレントLOフォノンが観測された。光学的にマスクされたGaAsのコヒーレントLOフォノンの生成機構は、ポンプ光の照射により生成したキャリアの瞬間的電場遮蔽効果に起因した表面ポテンシャル変調がGaAsバッファ層に届き、コヒーレントLOフォノン生成のトリガーとして作用しているためである。このことは、コヒーレントLOフォノンのテラヘルツ電磁波測定は、上層にマスクされた層で生じた現象のプロープとして有効であることを示している。また、時間領域フーリエ変換から、GaAsとGaSbのコヒーレントLOフォノンの減衰時間をそれぞれ2.0psと3.3psと見積もった。このコヒーレントLOフォノンの減衰時間の違いは、終状態のフォノン状態密度を反映していると考察した。

以上、本研究によって、*i*-GaAs/*n*-GaAs 及び GaSb/AlSb エピタキシャル構造からのテラヘルツ電磁波放射がこれまで研究されてきたバルク結晶とは大きく異なる特異的な特性を有することが明らかとなった。本研究における成果は、半導体表面からのテラヘルツ電磁波発生に関して、学術的にも応用的にも新たな見地を与えるものである。今後の展望としては、反射型ポンプ・プローブ法や電気光学サンプリング法など、物理的検出機構が異なる測定方法からのアプローチの結果と対比することによって、半導体表面からのテラヘルツ電磁波の発生と制御の新たな展開が期待される。

## 謝辞

本研究は、大阪市立大学大学院工学研究科電子情報系専攻の中山正昭教授の統括のもとに、光物性工学分野において行われたものである。研究を遂行するにあたり、多くの方にご指導、ご助言、ご協力を頂きました。ここに謹んで感謝致します。

本研究を進めるにあたり、同大学院同専攻の細田誠教授と金大貴教授には、本論文をまとめる上で適切にご指導を頂きました。また、竹内日出雄准教授には、多くのご助言と励ましをいただきました。

修士学生の時、実験装置や研究に関して多くのご助言を頂きました長谷川尊之助教授（現：滋賀県立大学助教授）に感謝申し上げます。

約1年間、共に研究を行い、私の修士2回生を支えてくれた浅井聡太君に感謝します。2年間に渡り、共に励ましあい楽しい時間過ごした、同期の亀田正信君、高山博之君、横田裕樹君に深く感謝します。

研究室において多くの時間を過ごした先輩方、後輩の皆様に感謝します。最後に学生生活を支えてくれた家族、友人に感謝致します。

## 参考文献

- [1] T. H. Maiman, *Nature* **187**, 493(1960).
- [2] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, *Opt. Lett.* **16**, 42 (1991).
- [3] 総説として、J. Shah, *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures* (Springer, Berlin, 1996).
- [4] 総説として、*Handbook of Terahertz Technology for Imaging, Sensing and Communications*, ed. D. Saeedkia (Woodhead Publishing, Oxford, 2013).
- [5] 総説として、*Terahertz Spectroscopy and Imaging*, ed. K. E. Peiponen, A. Zeitler, and M. Kuwata-Gonokami (Springer, Berlin, 2012).
- [6] D. H. Auston, K. P. Cheung and P. R. Smith, *Appl. Phys. Lett.* **45**, 284 (1984).
- [7] D. H. Auston, *Appl. Phys. Lett.* **43**, 713 (1983).
- [8] K. Kawase, M. Sato, T. Taniuchi, and H. Ito, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2483 (1996).
- [9] X.-C. Zhang, B. Hu, J. Darrow, D. Auston, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1011 (1990).
- [10] M. Hangyo, S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, and S. Nakashima, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2122 (1996).
- [11] E. R. Brown, K. A. McIntosh, F. W. Smith, M. J. Manfra, and C. L. Dennis, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 1206 (1993).
- [12] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. Giles Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti and F. Rossi, *Nature* **417**, 156 (2002).
- [13] X.-C. Zhang, Y. Jin, L. E. Kingsley, and M. Weiner, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 2477 (1993).
- [14] 平川 浩正, 「電磁気学」 (培風館, 1986).
- [15] X.-C. Zhang and D. H. Auston, *J. Appl. Phys.* **71**, 326 (1992).
- [16] P. Gu, M. Tani, S. Kono, K. Sakai, and X.-C. Zhang, *J. Appl. Phys.* **91**, 5533 (2002).
- [17] J. N. Heyman, N. Coates, A. Reinhardt, and G. Strasser, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 5476 (2003).
- [18] R. Yano, H. Gotoh, Y. Hirayama, S. Miyashita, Y. Kadoya, K. Kusuda, and M. Yamanishi, *J. Appl. Phys.* **95**, 2141 (2004).
- [19] R. Ascázubi, C. Shneider, I. Wilke, R. Pino, and P. S. Dutta, *Phys. Rev. B* **72**, 045328 (2005).
- [20] S. M. Sze, *Physics of Semiconductor Devices*, 2nd. Ed (Wiely, New York, 1981) p. 245.
- [21] L. Ö. Olsson, C. B. M. Andersson, M. C. Håkansson, J. Kanski, L. Ilver, and U. O. Karlsson, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3626 (1996).
- [22] H. Takeuchi, J. Yanagisawa, J. Hashimoto, and M. Nakayama, *J. Appl. Phys.* **105**, 093539 (2009)

- [23] M. B. Johnston, D. M. Whittaker, A. Corchia, A. G. Davies, and E. H. Linfield, *Phys. Rev. B* **65**, 165301 (2002).
- [24] S. L. Chuang, S. Schmitt-Rink, B. I. Greene, P. N. Saeta, and A. F. J. Levi, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 102 (1992).
- [25] P. N. Saeta, B. I. Greene, and S. L. Chuang, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3482 (1993).
- [26] Q. Wu and X.-C. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1285 (1997).
- [27] R. A. Kaindl, F. Eickemeyer, M. Woerner, and T. Elsaesser, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1060 (1999).
- [28] A. Brodschelm, F. Tauser, R. Huber, J. Y. Sohn, and A. Leitenstorfer, *Ultrafast Phenomena VII*, (Springer, Berlin, 2001), pp. 215-217.
- [29] M. Nakajima, M. Hangyo, M. Ohta and H. Miyazaki, *Phys. Rev. B* **67**, 195308 (2003).
- [30] M. M. Robinson, Y. X. Yan, E. B. Gamble Jr., L. R. Williams, J. S. Meth, and K. A. Nelson, *Chem. Phys. Lett.* **112**, 491 (1984).
- [31] Y. -X. Yan and K. A. Nelson, *J. Chem. Phys.* **87**, 6240 (1987).
- [32] H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus, *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
- [33] G. C. Cho, W. Kütt, and H. Kurtz, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 764 (1990).
- [34] T. Dekorsy, H. Auer, C. Waschke, H. J. Bakker, H. G. Roskos, and H. Kurz, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 738 (1995).
- [35] T. Dekorsy, H. Auer, H. J. Bakker, H. G. Roskos, and H. Kurz, *Phys. Rev. B* **53**, 4005 (1996).
- [36] M. Tani, R. Fukasawa, H. Abe, S. Matsuura, K. Sakai, and S. Nakashima, *J. Appl. Phys.* **83**, 2473 (1998).
- [37] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W.H. Knox, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 5140 (1999).
- [38] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W.H. Knox, *Phys. Rev. B* **61**, 16642 (2000).
- [39] T. Pfeifer, T. Dekorsy, W. Kütt, and H. Kurz, *Appl. Phys. A*, **55**, 482 (1992).
- [40] H. Takeuchi, J. Yanagisawa, S. Tsuruta, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 082001 (2010).
- [41] F. W. Smith, H. Q. Le, V. Diadiuk, M. A. Hollis, A. R. Calawa, S. Gupta, M. Frankel, D. R. Dykaar, G. A. Mourou, and T. Y. Hsiang, *Appl. Phys. Lett.* **54**, 890 (1989)
- [42] M. Tani, S. Matsuura, K. Sakai, and S. Nakashima, *Appl. Opt.* **36**, 7853 (1997).
- [43] C. F. Klingshirn, *Semiconductor Optics* (Springer, Berlin, 2007) P.73
- [44] J. L. Shay, *Phys. Rev. B* **2**, 803 (1970).
- [45] D. E. Aspnes, *Phys. Rev.* **153**, 972 (1967).

- [46] B. O. Seraphin and N. Bottka, *Phys. Rev.* **145**, 628 (1966).
- [47] D. E. Aspnes and A. A. Stunda, *Phys. Rev. B* **7**, 4605 (1973).
- [48] D. Gabor, *J. IEEE* **93**, 429 (1946).
- [49] M. Hase, S. Nakashima, K. Mizoguchi, H. Harima, and K. Sakai, *Phys. Rev. B* **60**, 16526 (1999).
- [50] For a review, P. Gu and M. Tani, *Terahertz Optoelectronics*, edited by K. Sakai (Springer, Berlin, 2005), pp. 63–97, and relevant references therein.
- [51] K. Mizoguchi, T. Furuichi, O. Kojima, M. Nakayama, S. Saito, A. Syouji, and K. Sakai, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 093102 (2005).
- [52] K. Mizoguchi, A. Mizumoto, M. Nakayama, S. Saito, A. Syouji, K. Sakai, N. Yamamoto, and K. Akahane, *J. Appl. Phys.* **100**, 103527 (2006).
- [53] M. Nakayama, K. Mizoguchi, O. Kojima, T. Furuichi, A. Mizumoto, S. Saito, A. Shouji, and K. Sakai, *Phys. Status Solidi A* **204**, 518 (2007).
- [54] M. Nakayama, S. Ito, K. Mizoguchi, S. Saito, and K. Sakai, *Appl. Phys. Express* **1**, 012004 (2008).
- [55] H. Takeuchi, Y. Kamo, Y. Yamamoto, T. Oku, M. Totsuka, and M. Nakayama, *J. Appl. Phys.* **97**, 063708 (2005).
- [56] H. Takeuchi, J. Yanagisawa, T. Hasegawa, and M. Nakayama, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 081916 (2008)
- [57] H. Takeuchi, S. Tsuruta, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, *Phys. Procedure*, **29**, 30 (2012).
- [58] S. Tsuruta, H. Takeuchi, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, *J. Appl. Phys.* **113**, 143502 (2013).
- [59] P. A. Basore, *IEEE Trans. Electron Devices* **37**, 337 (1990).
- [60] D. A. Clugston and P. A. Basore, *Proceeding of the 26th IEEE Photovoltaic Specialists Conference* (IEEE, Piscataway, NJ, 1997) p. 207.
- [61] D. F. Nelson, R.C. Miller, C.W. Tu, and S. K. Sputz, *Phys. Rev. B* **36**, 8063 (1987).
- [62] For a review, B. Jusserand and M. Cardona, *Light Scattering in Solids V*, edited by M. Cardona and G. Güntherodt (Springer, Berlin, 1989), pp. 49-152.
- [63] D. E. Aspnes and A. A. Studna, *Phys. Rev. B* **27**, 985 (1983). The absorption coefficient at each energy was obtained using a linear interpolation.
- [64] I. Yokota, *J. Phys. Soc. Jpn.* **16**, 2075 (1961).
- [65] R. Kersting, J. N. Heyman, G. Strasser and K. Unterrainer, *Phys. Rev. B* **58**, 4553 (1998)
- [66] M. P. Hasselbeck, D. Stalnakar, L. A. Schlie, T. J. Rotter, A. Stintz, and M. Sheik-Bahae, *Phys. Rev. B* **65**, 233203 (2002).
- [67] H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, *J. Appl. Phys.* **110**, 013515 (2011).

- [68] S. Tsuruta, H. Takeuchi, and M. Nakayama, J. Phys.: Conf. Ser. **417**, 012051 (2013).
- [69] G. C. Cho, T. Dekorsy, H. J. Bakker, R. Hovel, and H. Kurz, Phys. Rev. Lett. **77**, 4062 (1996).
- [70] M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, F. Miyamaru, S. Nakashima, R. Fukasawa, M. Tani, K. Sakai, J. Lumin. **76**, 68 (1998).
- [71] A. V. Kuznetsov and C. J. Stanton, Phys. Rev. B **51**, 7555 (1995).
- [72] T. Dekorsy, T. Pfeifer, W. Kutt, and H. Kurz, Phys. Rev. B **47**, 3842(1992)
- [73] H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, Appl. Phys. Lett. **98**, 151905-1( 2011).
- [74] H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, Phys. Status Solidi C **9**, 2610 (2012).
- [75] *Semiconductors-Basic Data*, edited by O. Madelung (Springer, Berlin, 1996).
- [76] M. Nakayama, K. Kubota, T. Kanata, H Kato, S. Chika, and N. Sano, J. Appl. Phys. **58**, 4342 (1985).
- [77] F. Valée and F. Bogani, Phys. Rev. B **43**, 12049 (1991).
- [78] M. K. Farr, J. G. Traylor, and S. K. Sinha, Phys. Rev. B **11**, 1587 (1975).