

令和 3 年 6 月 16 日現在

機関番号：34406

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03497

研究課題名(和文) 異種テラヘルツ過渡現象が共存した半導体結晶からの電磁波放射応答の解明

研究課題名(英文) Elucidation of electromagnetic wave emission responses in semiconductor crystals under the coexistence of different kinds of terahertz-range transient phenomena

研究代表者

長谷川 尊之 (Hasegawa, Takayuki)

大阪工業大学・工学部・講師

研究者番号：00533184

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、GaAsエピタキシャル薄膜における異種のテラヘルツ領域過渡現象が共存した条件でのテラヘルツ電磁波放射を調査した。さまざまな励起条件下での電磁波時間波形を系統的に計測し、実験結果は光励起プラズモンと縦光学フォノンの結合振動を考慮して解析した。本解析から、非平衡キャリア輸送過程および縦光学フォノン-プラズモン結合モードからの電磁波放射の重畳を定量的に説明した。さらには、内部電場に依存する電子輸送特性が、テラヘルツ電磁波時間波形を特徴づける重要な要素の1つであることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

テラヘルツ電磁波の発生方法は多数存在するが、半導体表面の過渡現象を利用する方法は、デバイス加工や複雑なレーザー系を必要としない等の利点がある。本研究で明らかにした異種過渡現象共存下のテラヘルツ電磁波放射の物理描像は、テラヘルツ電磁波発生機構のさらなる理解につながるものであり、学術的意義がある。また、テラヘルツ電磁波放射の制御に関する新知見は、本発生機構に基づくテラヘルツ電磁波応用の発展に貢献することが期待される。

研究成果の概要(英文)：This study investigated terahertz wave emissions under the coexistence of different kinds of terahertz-range transient phenomena in GaAs epitaxial thin films. The systematic measurements of terahertz waveforms at various excitation conditions were carried out, and the experimental results were analyzed by the consideration of coupled oscillations of photoexcited plasmons and longitudinal optical phonons. The present analysis elucidates the superposition of the terahertz wave signals originating from the non-equilibrium carrier transport and the longitudinal optical phonon-plasmon coupled mode. Moreover, it was found that the transport property of electrons depending on the internal electric field is one of the important factors to characterize the terahertz waveform.

研究分野：光物性

キーワード：テラヘルツ電磁波 キャリア輸送 プラズモン コヒーレントフォノン キャリアダイナミクス 超高速現象

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ振動数領域の電磁波(テラヘルツ電磁波)は、物性研究、分析、イメージングなど様々な分野で強みを有していることから、その発生方法に関する研究が国内外で精力的に行われてきた。半導体表面の光励起超高速過渡現象(以下では過渡現象と略す)を利用する方法は、デバイス加工や複雑なレーザー系を必要としない利点があり、その応用範囲は広い。また、発生源となる過渡現象には、非平衡キャリア輸送、プラズモン、コヒーレントフォノンなど様々な種類が存在し、電磁波放射特性は多様である。一方、半導体中には異種の過渡現象が同時に励起し得るため、複数の電磁波成分が重畳して観測される場合がある。しかしながら、これまでなされてきた研究では、各電磁波成分と過渡現象との対応関係を個別に議論しており、過渡現象の共存が電磁波放射にどのように反映されているのかは不明であった。つまり、本発生機構の包括的な解明には至っていなかった。

2. 研究の目的

本研究は、半導体結晶における光励起からテラヘルツ電磁波放射に至るまでの過程を詳細に調査し、異種の過渡現象が共存した条件での電磁波放射応答を解明することを目的とした。レーザー光源および実験システムを継続的に改良して様々な励起条件下でのテラヘルツ電磁波時間波形を計測し、理論計算に基づいた解析から定量的に解明することを目指した。さらには、本発生機構に基づくテラヘルツ電磁波放射の制御に関する知見を得ることを最終目標とした。

3. 研究の方法

主な試料は、有機金属気相成長法で(001)面 GaAs 基板上に作製された非ドープ GaAs (*i*-GaAs) 層と *n* 型 GaAs (*n*-GaAs) 層のエピタキシャル層構造である。図 1 は、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造における伝導帯底のポテンシャル構造を 2 種類の *i*-GaAs 層厚について計算したものである。図中の *d* は、*i*-GaAs 層厚をナノメートル単位で示している。*i*-GaAs 層におけるポテンシャルは、表面フェルミレベルピンニングによって直線的なスロープを持ち、その電場強度は *i*-GaAs 層厚 (*d*) に依存する。また、電場強度は試料温度によっても調整が可能である。本構造を試料とした先行研究から、*i*-GaAs 層の内蔵電場に起因した 2 種類の過渡現象 [非平衡キャリア輸送および縦光学フォノン プラズモン結合 (LOPC) モード] が同時に励起され、それらのテラヘルツ電磁波が重畳して観測されることが明らかになっている。

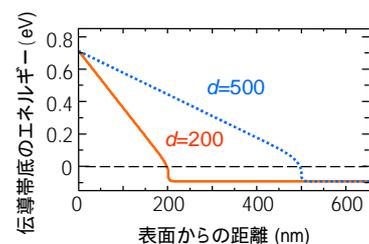


図 1

テラヘルツ電磁波時間波形計測

図 2 は、計測システムの概略である。光源には、モード同期 Ti:sapphire レーザーシステムを用いた。2 種類の共振器(市販品と自作品)を使い分けることで、光励起条件を幅広く変化させた。テラヘルツ電磁波の検出は、(110)面 ZnTe 結晶による電気光学サンプリング法を用いた。テラヘルツ電磁波の経路は乾燥窒素素でパージし、パージ領域における光学部品の一部は外部から制御できるように電動ステージ上に搭載した。また、ペルチェ式の温度制御ステージを導入できるようにして、テラヘルツ電磁波の温度依存性(内蔵電場強度依存性)の測定も可能にした。

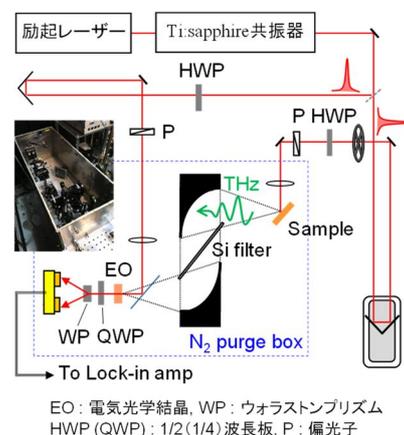


図 2

EO: 電気光学結晶, WP: ウォラストンプリズム
HWP (QWP): 1/2 (1/4) 波長板, P: 偏光子

光パルスペア励起条件下でのテラヘルツ電磁波時間波形計測

テラヘルツ電磁波時間波形の詳細な調査を行うために、光パルスペアを励起源としたテラヘルツ電磁波時間波形計測システムを構築した。具体的には、図 2 の光学系に光パルスペアを生成するための光学系を増築した(図 3 中の黄色の箇所)。本光学系に入射した光パルスは、半透明ミラーで 2 つに分割され、一方は角度調整機構のみを備えた折り返しミラー(FIX)を経由し、もう一方は piezo 駆動で並進動作が可能でミラー(PZT)を経由して試料に照射される。PZT の並進動作によって、光パルスペアの時間間隔がフェムト秒オーダーで制御可能である。

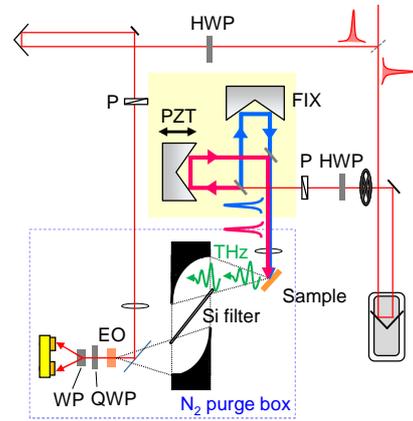


図 3

4. 研究成果

(1) テラヘルツ電磁波のパワースペクトルの解析

初年度は、テラヘルツ電磁波時間波形のフーリエ変換(FT)パワースペクトルに焦点を置いて調査を行った。FT パワースペクトルに基づく従来の研究では、ガウシアン関数等を用いたフィッティングが主流であったが、本研究では過渡現象の特性に対応したスペクトルによるフィッティングを検討して実施した。図 4 の丸印は、(a) $d=200$ 試料および(b) $d=500$ 試料における励起光エネルギー 1.57 eV で観測したテラヘルツ電磁波時間波形の FT パワースペクトルを示す。*i*-GaAs 層における内蔵電場強度は、28 kV/cm($d=200$ 試料)と 12 kV/cm($d=500$ 試料)である。赤線はモンテカルロシミュレーションで計算した *i*-GaAs 層の非平衡キャリア輸送過程に対応するパワースペクトルであり、青線は Hasselbeck らによって提案された理論式で計算した LOPC モード下分岐(電子性の強い結合モード)のパワースペクトルである[Phys. Rev. B65, 233203 (2002)]。緑線は二成分の合計値を示している。この方法から、FT パワースペクトルがおおよそ再現でき、かつフィッティングから様々な物理量を見積もることが可能であることを見出した。さらには、Hasselbeck らの LOPC モードの式には、内部電場の時間変化の寄与(光励起キャリアによる遮蔽の効果)が現象論的に考慮されているが、その効果を調節することによって *i*-GaAs 層厚(d)の違いによるスペクトルの変化を再現することが示された(図 4)。本解析結果から示唆された内部電場の時間変化の寄与をより詳しく調べるためには、テラヘルツ電磁波の時間波形を直接解析することが肝要であるという考えに至り、時間波形の解析へと研究を展開した。

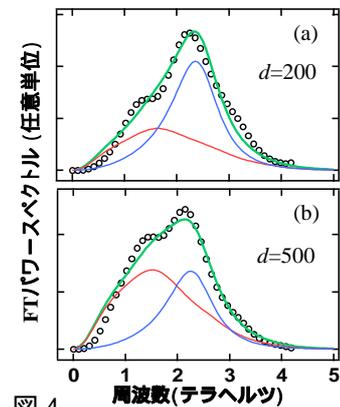


図 4

(2) テラヘルツ電磁波時間波形の解析

時間波形の解析では、Kuznetsov らによって提案されたプラズモン-フォノンモード方程式を用いた[Phys. Rev. B51, 7555 (1995)]。本方程式は、電子分極と格子変位(プラズモンと縦光学フォノン)の強制振動の式のペアになっており、2 式は内部電場強度によって結合している。本方程式は、既に時間分解ポンププローブ法によって観測した LOPC モードの解析に適用されていたことから、それを参考にしてテラヘルツ電磁波時間波形のフィッティングに応用した。フィッティングの際には、特に電子分極の時間発展のプロファイルに着目した。図 5 は、上記方程式を用いて計算した異なるプラズモン減衰時間における電子分極の時間発展を示す。どちらの場合においても、速やかに立ち上がって落ち着くステップ型の成分が含まれる。本研究では、電子分極の時間発展にあらわれる非コヒーレント成分(ステップ型)とコヒーレント成分(減衰振動型)

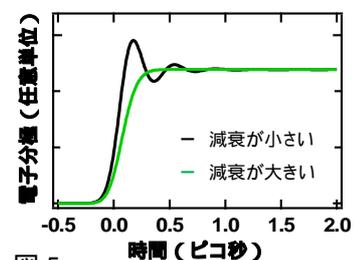


図 5

が、それぞれ非平衡キャリア輸送過程と LOPC モード下分岐に相当すると考え、各成分からテラヘルツ電磁波時間波形を計算した。なお、計算方法の細部については、異なる光励起条件、*i*-GaAs 層厚、及び試料温度において計測した様々なテラヘルツ電磁波時間波形に適用して検討と改良を行うことで決定した。

図 6 は、 $d=200$ 試料における励起光エネルギー 1.57 eV で異なる励起密度でのテラヘルツ電磁波時間波形の測定結果 (白丸) およびフィッティング結果 (緑線) である。図中の赤線が非平衡キャリア輸送成分、青線が LOPC モード成分、そして緑線がそれらの合計である。各成分の振幅は、励起密度に対してほぼ線形の依存性を示した。この振る舞いは、両過渡現象の性質に一致している。また、フィッティングに用いた減衰時間やプラズマ振動数は、妥当な値である。以上のように、Kuznetsov らの方程式を用いることで、非平衡キャリア輸送過程と LOPC モード下分岐によるテラヘルツ電磁波時間波形の重畳を再現することができた。また、本結果から重要な知見を得た。具体的には、非平衡キャリア輸送過程と LOPC モード下分岐は、どちらも電子分極の時間発展の一側面であり、それぞれの過渡現象のダイナミクスは関連し合っている。すなわち、両過渡現象のテラヘルツ電磁波放射応答は、同時に解析することが本質的である。

テラヘルツ電磁波時間波形のフィッティングから、もう一つの重要な知見を得た。Kuznetsov らの方程式では、励起状態数の時間変化の項が含まれており、一般に励起光パルスの時間幅 (励起状態の生成レート) が考慮される。一方、本研究で用いた試料は空乏層厚が数百ナノメートルもあることから、電子-正孔対が空間分離して分極を形成する時間も過渡現象のダイナミクスに寄与すると考えた。そこで、励起状態数の上昇時間に励起パルス幅よりも長い値を与えた。具体的には、モンテカルロシミュレーションで電子輸送速度が最大値に到達する時間 (バリスティックな輸送が維持される時間に相当) と同程度にすることで、内蔵電場強度の異なる 2 つの試料 ($d=200$ 試料および $d=500$ 試料) のテラヘルツ電磁波時間波形をフィッティングできることが分かった。つまり、電子輸送過程がテラヘルツ電磁波時間波形を特徴づける重要な要素の 1 つであることが示された。

(3) 光パルスペア励起条件でのテラヘルツ電磁波放射

はじめに、実験システムの検証とシンプルな解析を行うために、2 つの光パルスの照射位置を僅かにずらして、各照射位置から発生したテラヘルツ電磁波の同時計測を行った。図 7 は、 $d=200$ 試料における PZT または FIX を経由した光パルスで発生させたテラヘルツ電磁波時間波形である。各光パルスの強度は同じであり、それぞれの光パルスから発生したテラヘルツ電磁波時間波形の形状はほぼ一致している。図 8 の黒丸は、各光パルスを同時に照射して計測したテラヘルツ電磁波時間波形であり、緑線は図 7 の波形を計算で足し合わせたものである。両信号はよく一致しており、各光パルスで発生したテラヘルツ電磁波を同時に検出していることが示されている。

次に、光パルスの時間間隔を少しずつ変化させながら、テラヘルツ電磁波時間波形を測定した。図 9(a) は、異なる光パル

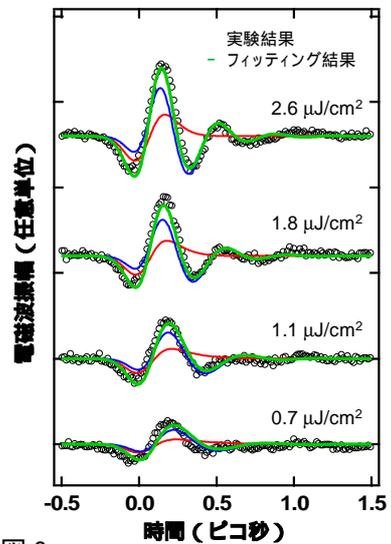


図 6

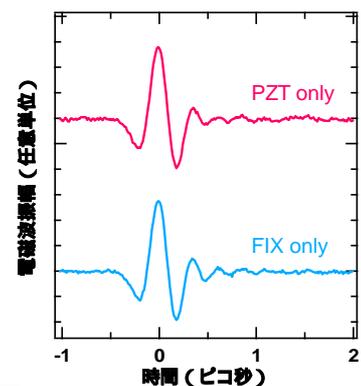


図 7

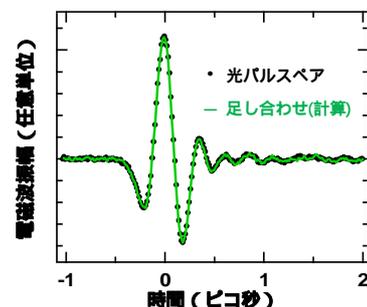


図 8

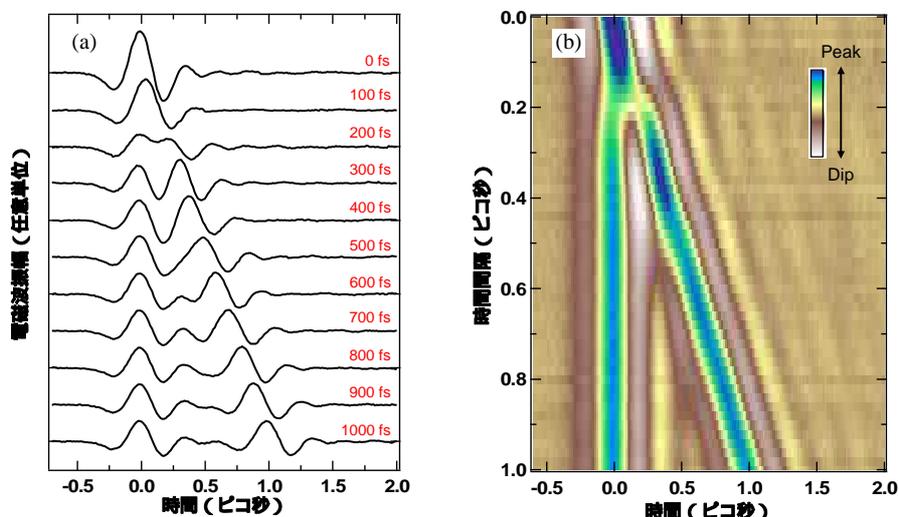


図 9

ス時間間隔におけるテラヘルツ電磁波時間波形を示しており、9(b)は 9(a)の時間波形をイメージ図にまとめたものである。なお、時間間隔は、FIX ミラーを経由した光パルスを基準にして、PZT ミラーを経由した光パルスの遅延時間に相当する。図 9 より、遅れて放射されたテラヘルツ電磁波のピーク位置のシフトが明確に現れている。これらの時間波形は、(2)で述べた方法でテラヘルツ電磁波時間波形を計算し、時間軸のみをずらした同じ時間波形を重ね合わせることでフィッティングが可能である。また、同様の計算から、ある時刻における電磁波振幅の時間間隔依存性を再現することも確かめた。

次に、光パルスペアを試料の同領域に照射してテラヘルツ電磁波を発生させ、それらの時間波形を同時に計測した。光パルスの時間間隔が小さい場合には、テラヘルツ電磁波時間波形が、重なり方に依存して、時間間隔で複雑に変化する様子が観測された。一方、時間間隔が光パルス幅と比べて十分に大きい場合には、後続光パルスにより発生したテラヘルツ電磁波の振幅が先行時の場合と比べて低下する振る舞いが観測された。図 5 に示したように、励起後十分に時間が経過したとき、電子分極は準安定状態に落ち着く。この時、内蔵電場強度は非励起時と比べて低下している。本研究で対象としている過渡現象では、内蔵電場強度が大きいほどテラヘルツ電磁波放射の振幅が大きくなることが明らかとなっている。以上の実験事実と考察から、後続光パルスにより発生したテラヘルツ電磁波の振幅の低下は、内蔵電場強度の低下に起因していると考えられる。応用的観点では、内蔵電場強度の時間変化は、光パルスペアの時間間隔に依存することから、本結果は時間間隔の制御でテラヘルツ電磁波時間波形を広く制御できる可能性を示唆している。

(4)電磁波放射に適した半導体構造の検討

本研究で対象とした過渡現象において、テラヘルツ電磁波放射に適した半導体構造を検討した。空乏層内での分極の形成時間をテラヘルツ電磁波時間波形のフィッティングで考慮したが、その寄与は、特に高周波成分、すなわち LOPC モードの振動振幅に強く影響する。具体的には、LOPC モードからのテラヘルツ電磁波放射を強く生じさせるためには、空乏層領域における分極の形成を速やかに生じさせることが重要であると考えられる。一般に、電子輸送速度(最大値)は内部電場の増加につれて大きくなるが、同時に散乱確率が増加するために、バリスティックな輸送過程の持続距離は短くなる。空乏層厚を薄くすることでこれを補うことも考えられるが、その場合にはキャリア生成数(光吸収量)が低下するために電磁波放射強度も低下する。以上により、LOPC モードからの強い電磁波放射を生じさせるためには、十分な光吸収量が得られる厚みで、かつバリスティックな輸送過程が支配的になる内蔵電場強度の空乏層を設計することが求められる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

| | |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名 Takayuki Hasegawa, Yuta Okushima, Yoshihito Tanaka | 4. 巻 14 |
| 2. 論文標題 Characteristics of terahertz wave emissions under the coexistence of different sub-picosecond transient phenomena in GaAs epitaxial films | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Applied Physics Express | 6. 最初と最後の頁 041005-1--4 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/abec59 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Ryu-ichi Yoshikado, Takayuki Hasegawa, Yoshihito Tanaka, Shuhei Tsubota, and Seiichi Sato | 4. 巻 1220 |
| 2. 論文標題 Photocurrent characteristics of nanostructured thin films consisting of surface-modified silicon nanoparticles | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series | 6. 最初と最後の頁 012048-1--4 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1742-6596/1220/1/012048 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 長谷川尊之 |
| 2. 発表標題 表面電場制御による光励起過渡現象からのテラヘルツ波放射の調査 |
| 3. 学会等名 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 長谷川尊之 |
| 2. 発表標題 光パルスベア励起下でのGaAsナノ構造膜のテラヘルツ波放射の観測 |
| 3. 学会等名 2020年第81回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 丸井雅也, 長谷川尊之, 田中義人 |
| 2. 発表標題 GaAsナノ構造膜におけるテラヘルツ波放射の内蔵電場依存性 |
| 3. 学会等名 第30回光物性研究会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 長谷川尊之, 奥島雄大, 田中義人 |
| 2. 発表標題 光励起分極 - 格子結合ダイナミクスに基づくサブピコ秒過渡現象からのテラヘルツ波放射 |
| 3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 丸井雅也, 長谷川尊之, 田中義人 |
| 2. 発表標題 GaAsナノ構造膜の内蔵電場制御によるテラヘルツ波放射の制御 |
| 3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Takayuki Hasegawa, Yuta Okushima, and Yoshihito Tanaka |
| 2. 発表標題 Coexistence dynamics of terahertz wave emissions in a GaAs nanostructured film |
| 3. 学会等名 The 21st International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON21) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 長谷川尊之, 奥島雄大, 田中義人 |
| 2. 発表標題 GaAsナノ構造膜における内蔵電場に起因した二種テラヘルツ波放射の共存ダイナミクス |
| 3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会 (東京工業大学 大岡山キャンパス) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 長谷川尊之 |
| 2. 発表標題 半導体ナノ構造膜の内蔵電場制御に基づいたテラヘルツ波研究 |
| 3. 学会等名 Workshop on Quantum Walks at SPring-8 (SPring-8普及棟中講堂) (招待講演) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 長谷川尊之, 奥島雄大, 田中義人 |
| 2. 発表標題 ビルトイン電場に基づく光励起キャリアのテラヘルツ波放射の解析 |
| 3. 学会等名 第29回光物性研究会 (京都大学 宇治キャンパス) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 吉角龍一, 長谷川尊之, 田中義人, 坪田秀平, 佐藤井一 |
| 2. 発表標題 表面修飾Siナノ粒子で形成した構造膜の光電流特性 |
| 3. 学会等名 第29回光物性研究会 (京都大学 宇治キャンパス) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 長谷川尊之, 奥島雄大, 田中義人 |
| 2. 発表標題 GaAsナノ構造膜における弱励起条件でのテラヘルツ波放射特性 |
| 3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会 (同志社大学 京田辺キャンパス) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 長谷川尊之 |
| 2. 発表標題 半導体キャリアダイナミクスを介したレーザーからテラヘルツ波への変換プロセス |
| 3. 学会等名 第30回光科学異分野横断セミナー (大阪府立大学 中百舌鳥キャンパス) (招待講演) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Takayuki Hasegawa, Yuta Okushima, Masaaki Nakayama, and Yoshihito Tanaka |
| 2. 発表標題 Excitation energy dependence of carrier-induced terahertz wave radiation in a GaAs epitaxial film |
| 3. 学会等名 The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (Nara Kasugano International Forum, Nara, Japan) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Ryu-ichi Yoshikado, Takayuki Hasegawa, Yoshihito Tanaka, Shuhei Tsubota, and Seiichi Sato |
| 2. 発表標題 Photocurrent characteristics of nanostructured thin films consisting of surface-modified silicon nanoparticles |
| 3. 学会等名 The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (Nara Kasugano International Forum, Nara, Japan) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|