

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号：24201

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22760010

研究課題名（和文）半導体物性物理に基づいた周波数バンド可変テラヘルツ電磁波素子構造設計原理構築

研究課題名（英文）Design guideline for frequency tunable terahertz electromagnetic wave emitters on the basis of semiconductor physics

研究代表者

竹内日出雄（Takeuchi Hideo）

滋賀県立大学・工学部・准教授

研究者番号：50512779

研究成果の概要（和文）：周波数可変 THz エミッタの設計原理の構築を行った。アンドープ GaAs/*n*-type GaAs という単純なエピ構造に着目した。*i*-GaAs 層厚を制御することにより、サージ電流を制御し周波数可変性を実現した。縦光学(LO)フォノン・プラズモンを用いた周波数可変エミッタの研究を行った。さらに内部電場の増強に着目し、歪多重量子井戸を用いてコヒーレント LO フォノンからの単色性 THz エミッタの開発を行った。

研究成果の概要（英文）：We, on the basis of semiconductor physics, have investigated frequency tunable terahertz (THz) emitter. *i*-GaAs/*n*-GaAs structures is suitable the frequency tunable THz emitters because their built-in electric field is controlled with the *i*-GaAs layer thickness. In addition, we have found that in the *i*-GaAs(*d* nm)/*n*-GaAs structure has frequency tunability. These characteristics are provided by the coupling mode between the longitudinal optical phonon and plasmon. We have taken account of the fact that the effect of the built-in electric field dominates the characteristics of the THz wave. We have found that the strained multiple quantum wells with the (11*n*) orientation emits the monochromatic the THz wave.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2011年度	300,000	90,000	390,000
2012年度	200,000	60,000	260,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：光物性

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ(THz)電磁波は、ミリ波と赤外光の中間レンジに位置する電磁波である。これまでこの帯域の電磁波は、未踏領域の電磁波とされてきた。しかしながら近年のフェムト秒パルスレーザー光源の発展は、時間領域

THz波の生成を促している。その結果、これまで不可能とされてきたセキュリティ手法の開発、新薬創造および高度通信の発展が期待されている。これまで提案されてきた THz 分光では、THz 波を発生させる素子であるエミッタの周波数を人工的に制御することは、

ほとんどなされていなかった。かつ研究開始当初では、市販の THz エミッタとして低温成長 GaAs 上にマイクロサイズのギャップを有するアンテナを直接パターンニングした素子が用いられていた。このアンテナ素子に用いられる低温成長 GaAs は、通常よりも低温の条件で成長された GaAs エピ層であるため、結晶学的に不安定である。さらにマイクロサイズギャップは、静電気に弱いという欠点もある。以上の事実は、THz 分光分野の発展を、阻害するものであった。

2. 研究の目的

本研究では、エミッタから発生する THz 波を人工的に制御することを目的とした。THz 波の発生メカニズムとして、例えば、フェムト秒パルスレーザー光を照射して半導体結晶の表面に過渡的電流(サージ電流)を生じさせることが挙げられる。このサージ電流は、光と半導体との相互作用によって生じる現象である。従って、半導体光物性に基づき THz エミッタを設計することが重要となってくる。

さらに本研究期間で、THz 分光分野の発展に伴い、エミッタに対する性能として、高強度単色性に対する要求も高まった。こうしたニーズに対して答えることも目的とした。

3. 研究の方法

我々が着目し設計したのは、undoped GaAs(d nm)/ n -type GaAs [i -GaAs(d nm)/ n -GaAs]エピタキシャル構造というシンプルな構造である。なお n -GaAs 層の層厚とドーピング濃度は、それぞれ $3 \mu\text{m}$ および $3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ である。一例として、 i -GaAs(200 nm)/ n -GaAs 構造のポテンシャル構造を図 1 に示す。

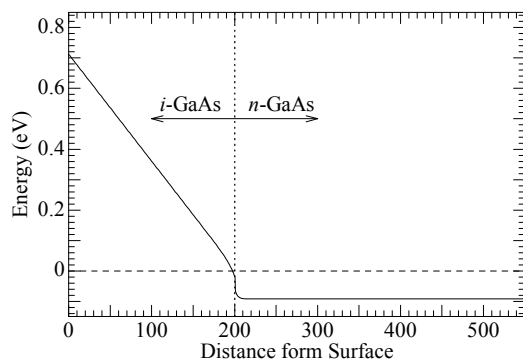


図 1: i -GaAs(200 nm)/ n -GaAs 構造のポテンシャル構造。

図 1 が示すように、 i -GaAs 層においてポテンシャルは、直線的な傾斜を示す。これは、表面フェルミ準位ピンニングという最も基本的な物理現象に由来するものである。このポテ

ンシャル構造は、 i -GaAs 層に内部電場を形成する。このエピタキシャル構造にフェムト秒パルスレーザー光を照射すると、光生成キャリアが発生し、結果としてサージ電流が流れる。ここで注目すべき点は、 i -GaAs 層の内部電場を層厚 d によって制御できることである。 i -GaAs 層内部電場が増強することにより光生成キャリアの運動がより加速される。一般に、THz 波 E_{THz} とサージ電流 J は、以下の関係にある：

$$E_{\text{THz}} \propto \frac{\partial J}{\partial t} \quad (1)$$

式(1)が示すように、サージ電流が加速されることにより、THz 波の時間応答が速くなる。従って、THz 波の周波数が広帯域されると予測できる。本研究で最も重要なのは、 i -GaAs 層の内部電場を精密に評価することである。これを行うために、我々は、光変調反射分光法を用いた。光変調反射とは、試料表面にポンプ光を照射することにより生じるプローブ光の反射率変化を測定する手法である。図 2 に i -GaAs(d nm)/ n -GaAs 試料の光変調反射スペクトルを示す。

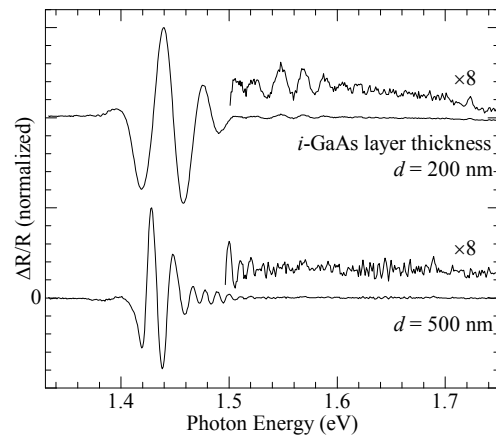


図 2: i -GaAs(200 nm)/ n -GaAs 構造および i -GaAs(500 nm)/ n -GaAs 構造の光変調反射スペクトル。

図 2 が示すように、各試料のスペクトルには、振動パターンが観測されている。この振動パターンは、Franz-Keldysh 振動と呼ばれるパターンである。Franz-Keldysh 振動の出現は、内部電場が形成されていることを示しており、そのパターンを解析することにより内部電場を評価することができる。 i -GaAs(200 nm)/ n -GaAs 構造と i -GaAs(500 nm)/ n -GaAs 構造の内部電場は、それぞれ 28 および 12 kV/cm と見積もることができた。

本研究で THz 波を発生させる手法として、フェムト秒パルスレーザー光を試料表面に照射しダイポールアンテナを用いた光ゲート法を用いた。ポンプ光強度のパルス幅と線

り返し周波数は、それぞれ 50~70 fs および 90 MHz であった。全ての測定は、窒素ガスバージ下の室温で行われた。

4. 研究成果

本研究での成果を 3 つに分けて述べる。

(1) *i*-GaAs(*d* nm)/*n*-GaAs 構造における *i*-GaAs 層厚 *d* を変化させることによる THz 波の周波数可変化。

用いた試料は、*i*-GaAs(*d* nm)/*n*-GaAs 構造 (*d* = 200, 500, 800, 1200 nm) 試料である。各試料における *i*-GaAs 層の内部電場は、28, 12, 8.2, and 6.1 kV/cm である。図 3 に各試料からの時間領域 THz 波波形を示す。各試料において、時間遅延 0 ps においてモノサイクル信号が観測されている。この信号は、サージ電流に起因する。この信号に引き続き、周期 113 fs の振動パターンが観測されている。この振動パターンは、コヒーレント縦光学 (LO) フォノン (周波数 8.8 THz) に起因する。観測された THz 波波形を解析するために Fourier 変換を行った。結果を図 4 に示す。

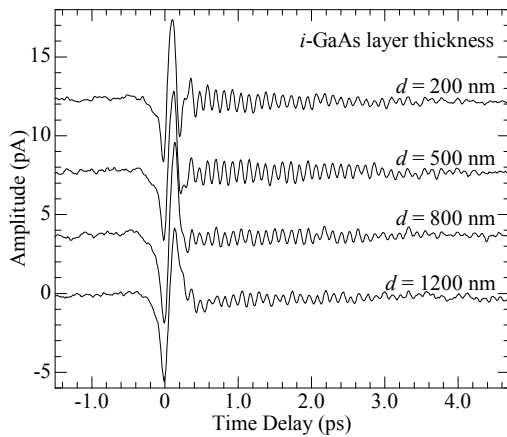


図 3: 各 *i*-GaAs(*d* nm)/*n*-GaAs 構造における時間領域 THz 波波形。ポンプ光強度: 40 mW

図 4 において周波数 0 から 5 THz において観測されるバンドは、サージ電流に起因するものである。一方において観測される先鋭なバンドは、コヒーレント LO フォノンによるものである。ここでは、まずサージ電流に起因するバンドの特徴に着目する。図 4 が示すように、*i*-GaAs(1200 nm)/*n*-GaAs 構造におけるサージ電流・バンドのピーク周波数は、1.8 THz である。サージ電流・バンドの周波数は、*i*-GaAs 層厚 *d* の現象とともに高周波数側にシフトし、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs 構造では、ピーク周波数が 4.0 THz に達している。*i*-GaAs 層厚 *d* の減少は、内部電場の増大に相当する。従って、内部電場によって加速された光生成キャリアの加速運動がサージ電流

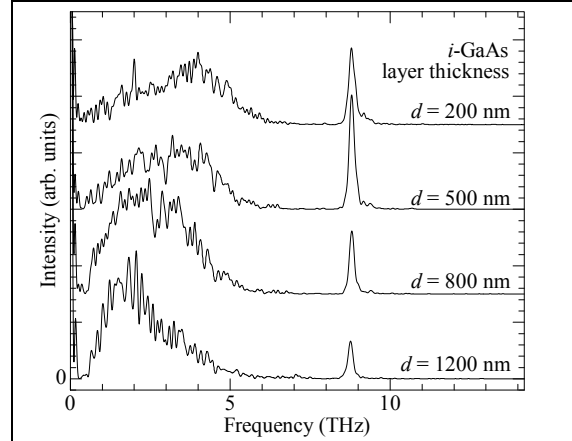


図 4: 図 3 に示される各試料の THz 波波形の Fourier パワースペクトル。

の高速度応答に繋がり、これらの THz バンドの周波数シフトにつながったと結論される。なお本試料では、外部電極を設けていない: 内部電場だけで光生成キャリアの運動を制御し、周波数可変性を達成している。応用という観点に立てば、簡便な THz エミッタを開発したことにより有意義な結果であるといえる。

さらにサージ電流起因の THz バンドの特性を詳細に調べるため、時間発展解析を行った。この解析には、時間分割 Fourier 変換法を用いた。その結果、サージ電流・THz バンドは、時間遅延の増大とともに高周波数側へシフトすることが判明した。このことは、光生成キャリアが内部電場により単調に加速されて、THz 波を発生させることを示す。このことは、内部電場による光生成キャリアの加速運動が図 4 に示すサージ電流・バンドの周波数シフトにつながるということを支持するものである。

(2) コヒーレント LO フォノン・プラズモン結合モードを用いた周波数可変 THz エミッタ

図 4 が示すように、*i*-GaAs/*n*-GaAs 構造では、コヒーレント LO フォノンからの THz 波が検出される。LO フォンは、同じく縦波であるプラズモンと結合する。この結合モードは、LO フォノン・プラズモン結合 (LOPC) モードとよばれる。LOPC モードは、反交差により二つのブランチを有する。LOPC モードにおける上分岐モード ω_{L+} および下分岐モード ω_{L-} の周波数は、次式で表される:

$$\omega_{L\pm}^2 = \frac{1}{2} \left[\left(\omega_p^2 + \omega_{LO}^2 \right) \pm \sqrt{\left(\omega_p^2 + \omega_{LO}^2 \right)^2 - 4\omega_p^2 \omega_{LO}^2} \right] \quad (2a)$$

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

ここで式(1)において、物理量 ω_{L0} 、 ω_{T0} と ω_p は、それぞれL0フォノン、横光学フォノンおよびプラズマ周波数である。式(2b)における ϵ 、 m^* と n は、それぞれ半導体における誘電率、電子有効質量およびキャリア密度である。ここで注目すべき点は、プラズマ周波数がキャリア密度に依存するという点である。フェムト秒パルスレーザー光の尖頭値は、一般的に高く、従って、高密度なキャリアを生成することができる。従って、フェムト秒パルスレーザー光の強度を変化させることにより、LOPCモードの周波数を変化させることができる。このLOPCモードを利用することにより、THz波の周波数を制御できると予測される。

様々なポンプ光強度における*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs構造からのTHz波のFourierパワースペクトルを図5に示す。

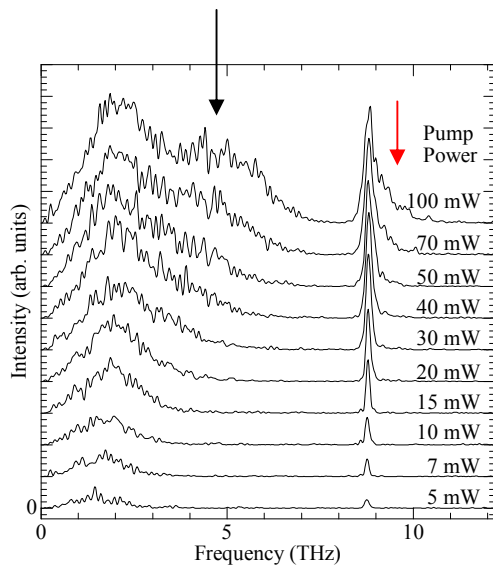


図5: 様々なポンプ光強度における*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs構造からのTHz波のFourierパワースペクトル。

ここで周波数0から7 THzの領域におけるバンドに着目する。周波数2.0 THzに位置するバンドは、サージ電流に起因するバンドである。特徴的なのは、ポンプ光強度20 mW以上において、矢印が示すように、高周波数側に裾を引くバンドが観測されることである。周波数8.8 THz以上の領域では、コヒーレントL0フォノンバンドが観測されている。さらにポンプ光強度20 mW以上では、赤矢印が示すように、コヒーレントL0フォノンバンドの高周波数側に裾を引くバンドが出現する。高ポンプ光強度において観測されるこれらの現象から、コヒーレントLOPCモードが出現していると考えられる。

上記観測された4つのバンドの起因を詳細に調査するため、現象論的に4つのガウス関数を用いて、フィッティングを行ない、中心

周波数を求めた。ここで高ポンプ強度下で出現するバンドの周波数に着目する。ポンプ光強度に依存するバンドの周波数を光生成キャリアの関数としてプロットした。結果を図6に示す。なお挿入図は、フィッティング結果を示している。フィッティング結果と実験で得られたスペクトルとは、よい一致を示している。図6において、黒丸と白丸はそれぞれ解析結果によって得られた低周波数側および高周波数側のポンプ光強度に依存するバンドのピーク周波数を示す。ここで実線は、LOPCモードの分散関係を示す。解析によって得られた周波数は、LOPCモードの周波数と良い一致を示す。このことは、観測されたTHzバンドがLOPCモードに由来することを支持するものである。上記結果は、ポンプ光強度を制御することによりTHz波の周波数および特性を制御できることを示している。成果(1)でも述べたように外部電場等の制御を行うことなくTHz波の周波数および特性を制御できるという上で、応用上価値のある結果である。

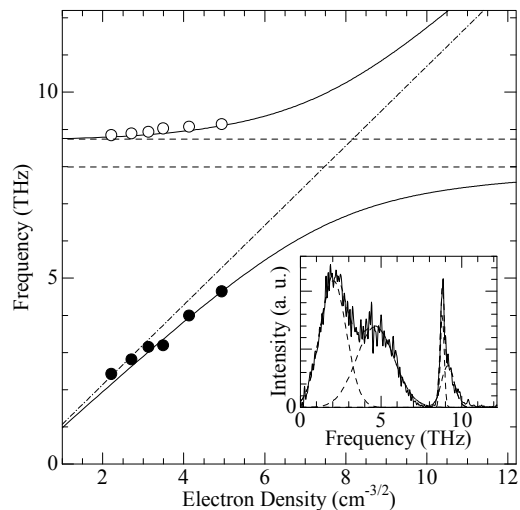


図6: LOPCモードの分散関係。黒丸および白丸: 実験結果。実線: 計算結果。

(3) コヒーレントL0フォノンを用いた単色性THz波の発生と制御

図4が示すように、本研究では、高強度なコヒーレントL0フォノンからのTHz波を検出している。このような現象に関しては、これまで報告が皆無である。L0フォノンの周波数は、物質固有の定数である。これを利用すれば、単色性THz波を得ることができると期待できる。これは、THz分光分野に対して画期的な発展性をもたらす。

図4の結果が示唆するように、コヒーレントL0フォノンバンド強度の増大は、内部電場によって引き起こされると考えられる。内

部電場を利用してコヒーレント L0 フォノンからの高強度 THz 波を発生させることができるということに着目して、(11n) 面方位 $\text{In}_{0.1}\text{Al}_{0.9}\text{As}/\text{GaAs}$ 歪多重量子井戸 (MQWs) という構造に着目した。GaAs は、極性半導体であり、(11n) 面方位試料に歪が印加されると内部電場の一種であるピエゾ電場が発生する。我々は、(11n) 面方位 GaAs 基板上に一種の疑似基板として働く $\text{In}_{0.1}\text{Al}_{0.9}\text{As}$ を $1\ \mu\text{m}$ 堆積させて GaAs 井戸層のみにピエゾ電場が発生するという構造を作製した。この研究では、(112)、(113)、(114) および (001) 面方位 $\text{In}_{0.1}\text{Al}_{0.9}\text{As}/\text{GaAs}$ 歪 MQWs を用いた。(112)、(113) と (114) 方位試料におけるピエゾ電場は、それぞれ 41、72 および 144 kV/cm である。なお (001) 面方位試料では、その対称性に基づけば、内部電場が発生しない。

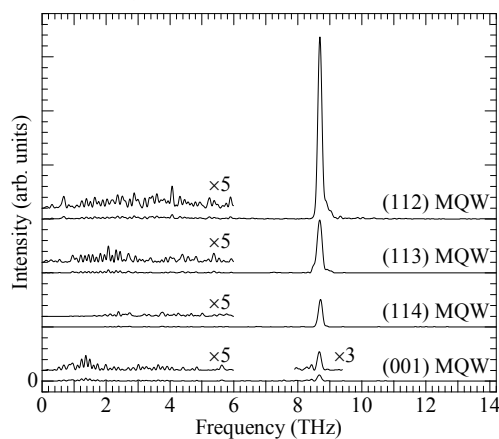


図 8: (11n) 面方位 $\text{In}_{0.1}\text{Al}_{0.9}\text{As}/\text{GaAs}$ 歪 MQWs からの THz 波の Fourier パワースペクトル。

図 8 に各試料におけるコヒーレント L0 フォノンからの THz 波の Fourier パワースペクトルを示す。図 8 が示すように、8.7 THz において、ピエゾ電場を有する (112)、(113) および (114) 面方位試料の場合、高強度かつ先鋭なコヒーレント L0 フォノンの THz バンドが観測されている。なお GaAs 単結晶の L0 フォノン周波数 (8.8 THz) から 0.1 THz シフトしているのは、歪効果である。(11n) 面方位試料からのコヒーレント L0 フォノン THz バンドの強度は、サージ電流によるバンドのそれより圧倒的に凌駕しており、単色性 THz 波を発生させることができていることを示す。以上で述べた成果 (3) は、コヒーレント L0 フォノンからの THz 波を、内部電場により THz 単色光源エミッタを設計するためのガイドランを示していると結論される。

以上 3 つの成果は、外部電場を設けるという複雑な手順を踏むことなく、内部電場により THz 波の特性を引き出せることが可能であることを示す。よって本研究で得られた諸成果は、内部電場制御 THz 電磁波エンジニアリングで

あると結論することができる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 18 件)

H. Takeuchi, J. Yanagisawa, S. Tsuruta, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, "Simple strategy for enhancing terahertz emission from coherent longitudinal optical phonons using undoped GaAs/*n*-type GaAs epitaxial layer structures" *Physica Status Solidi C8* (査読有) 2011 343 - 345. <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201000396>

H. Takeuchi, J. Yanagisawa, S. Tsuruta, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, "Frequency-tunable terahertz electromagnetic wave emitters based on undoped GaAs/*n*-type GaAs epitaxial layer structures utilizing sub-picosecond-range carrier-transport processes" *Journal of Luminescence* (査読有) 131 2011 531-534. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jlumin.2010.09.022>

H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, "Emission of the terahertz electromagnetic wave from coherent longitudinal optical phonons in a GaAs buffer layer optically masked by a GaSb top epitaxial layer", *Applied Physics Letters* (査読有), 98, 2011, 151905 1-3. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3574541>

H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, "Terahertz spectroscopy of dynamics of coupling between the coherent longitudinal optical phonon and plasmon in the surge current of instantaneously photogenerated carriers flowing through the *i*-GaAs layer of an *i*-GaAs/*n*-GaAs epitaxial structure", *Journal of Applied Physics* (査読有), 110, 2011, 013515 1-6. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3603046>

H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, "Detection of a coherent longitudinal optical phonon in a GaAs buffer layer optically covered with a GaSb top epitaxial layer using terahertz electromagnetic wave spectroscopy", *AIP Conference Proceedings*, (査読有), 1416, 2011, 84-87. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3603046>

H. Takeuchi, S. Asai, S. Tsuruta, and M.

Nakayama, "Intense monochromatic terahertz electromagnetic waves from coherent GaAs-like longitudinal optical phonons in (11 \bar{n})-oriented GaAs/In_{0.1}Al_{0.9}As strained multiple quantum wells", Applied Physics Letters (査読有) 100, 242107 1-4 (2012).

<http://dx.doi.org/10.1016/j.phpro.2012.03.687>

H. Takeuchi, S. Tsuruta, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, "Time evolution of terahertz electromagnetic waves from undoped GaAs/ n -type GaAs epitaxial layer structures clarified with use of a time-partitioning Fourier transform method", Physic Procedia, (査読有) 29, 30-35 (2012).

H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, "Photogenerated-carrier-induced band bending effects on generation of a coherent longitudinal optical phonon in a GaAs buffer layer optically masked by a GaSb top epitaxial layer", Physica Status Solidi C 9 (査読有) pp.2610-2613 (2012).
<http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201200160>

H. Takeuchi, S. Tsuruta, and M. Nakayama, "Dynamical characteristics of a coherent longitudinal optical phonon in a GaAs buffer layer optically covered with a GaSb top epitaxial layer investigated with use of terahertz spectroscopy", AIP Conference Proceedings (査読有) 1506, 73-78 (2012).
<http://link.aip.org/link/doi/10.1063/1.4772529>

[学会発表] (計 18 件)

H. Takeuchi, "Simple strategy for enhancing terahertz emission from coherent longitudinal optical phonons using undoped GaAs/ n -type GaAs epitaxial layer structures", The 37th International Symposium on Compound Semiconductors (ICSC2010) May 31-June 4, 2010, Takamatsu Symbol Tower, Kagawa, Japan.

H. Takeuchi, "Frequency-tunable terahertz electromagnetic wave emitters based on undoped GaAs/ n -type GaAs epitaxial layer structures utilizing sub-picosecond range carrier-transport processes", The 17th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids

(DPC'10), June 20-25, 2010, APS Conference Center, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois, USA.

H. Takeuchi, "Time evolution of terahertz electromagnetic waves from undoped GaAs/ n -type GaAs epitaxial layer structures clarified with use of a time-partitioning Fourier transform method", The International Conference on Luminescence & Optical Spectroscopy of Condensed Matter 2011, June 26-July 1 2011, Central Campus of the University of Michigan, Ann Arbor, Michigan, USA.

H. Takeuchi, "Detection of a coherent longitudinal optical phonon in a GaAs buffer layer optically covered with a GaSb top epitaxial layer using terahertz electromagnetic wave spectroscopy", 15th International Conference on Narrow Gap Systems (NGS15) August 1-5, 2011. Virginia Polytechnic Institute & State University, Virginia, USA.

H. Takeuchi, "Photogenerated-carrier-induced band bending effects on generation of a coherent longitudinal optical phonon in a GaAs buffer layer optically masked by a GaSb top epitaxial layer", The 5th International Conference on Optical, Optoelectronics, and Photonic Materials and Application (ICOOPMA) June 3-7, 2012, Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Japan.

[図書] (計 1 件)

H. Takeuchi, INTEC, "Wave Propagation, "Terahertz Electromagnetic Waves from Semiconductor Epitaxial Layer Structures: Small Energy Phenomena with a Large Amount of Information", 2011, Chapter 6

[その他]

ホームページ等

<http://www.a-phys.eng.osaka-cu.ac.jp/hikari-g/hikari-g2002/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹内 日出雄 (Hideo Takeuchi)
滋賀県立大学・工学部・准教授
研究者番号: 50512779