

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 4 月 19 日現在

機関番号：24402

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13341

研究課題名(和文)コヒーレント縦光学フォノン - プラズモン結合モードによる周波数可変テラヘルツ波発生

研究課題名(英文) Generation of frequency-tunable terahertz electromagnetic waves from coherent longitudinal optical phonon-plasmon coupled modes

研究代表者

中山 正昭 (NAKAYAMA, Masaaki)

大阪市立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30172480

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：ノンドープGaAs/n型(p型)GaAsエピタキシャル構造を試料として、時間分解テラヘルツ(THz)分光法を用いてTHz電磁波の系統的な測定を行った。時間領域信号のフーリエ変換から、周波数が顕著な励起強度依存性を示す2つのTHzバンドを見出した。縦光学フォノン - プラズモン結合(LOPC)モードの周波数のキャリア濃度依存性に関する理論に基づいて解析を行い、上記の2つのTHzバンドがコヒーレントLOPCモードの上下分枝であること、及び、ノンドープGaAs層での光生成電子濃度によって周波数が決定されることを明らかにした。即ち、コヒーレントLOPCモードからの周波数可変THz電磁波発生を実証した。

研究成果の概要(英文)：We measured systematically terahertz (THz) electromagnetic waves in undoped GaAs/n-type GaAs and undoped GaAs/p-type GaAs epitaxial structures with time-domain THz spectroscopy. From the Fourier transform of the time-domain signals, it was found that there are two THz bands, the frequencies of which markedly depend on an excitation power. From the analysis of the excitation-power dependence based on a theory for the carrier-density dependence of the frequency of the longitudinal optical phonon-plasmon coupled (LOPC) mode, we revealed that the above two THz bands correspond to the lower and upper branches of the coherent LOPC mode and that the frequency is determined by the photogenerated electron density in the undoped GaAs layer. Consequently, we have demonstrated the generation of frequency-tunable THz electromagnetic waves from the coherent LOPC mode.

研究分野：半導体光物性

キーワード：コヒーレント縦光学フォノン - プラズモン結合モード テラヘルツ電磁波 時間分解テラヘルツ分光法
テラヘルツ周波数可変性 GaAsエピタキシャル構造

1. 研究開始当初の背景

コヒーレント縦光学(LO)フォノン-プラズモン結合 (LO phonon-plasmon coupled: LOPC) モードからの THz 電磁波発生は、半導体表面からの放射現象の一つとして、Kersting ら (オーストリア: TU-Wien) [1]、Hasselbeck ら (米国: Univ. New Mexico) [2]、谷ら (日本: NICT) [3]によって研究されてきたが、ドーピングしたバルク半導体が試料であった。この場合、LOPC モードからの THz 電磁波周波数はドーピング濃度によって決定され、光励起により周波数を制御することが出来ないと報告されている。しかしながら、原理的には、LOPC モードの周波数はキャリア濃度 (プラズマ振動数) に依存して大きく変化する。本研究の開始時点では、LOPC モードからの周波数可変 THz 電磁波発生は確立されていなかった。

2. 研究の目的

コヒーレント LOPC モードを周波数可変 THz 電磁波発生源として応用するための物理学的ストラテジーを確立することを目的とする。具体的には、ノンドープ GaAs/ n 型 GaAs (i-GaAs/n-GaAs) と i-GaAs/p-GaAs エピタキシャル構造を試料として、この構造特有の i-GaAs 層の空間的に均一な表面電場を利用し、フェムト秒パルスレーザー励起により瞬時的ドリフト運動キャリア (プラズモンとして作用) とコヒーレント LO フォノンを同一空間 (i-GaAs 層) で分極結合させてコヒーレント LOPC モードを生成し、時間分解 THz 分光法により、THz 電磁波周波数の励起強度 (光生成キャリア濃度) 依存性、即ち、周波数可変 THz 電磁波発生機構を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 試料

有機金属気相エピタキシー法により作製した下記の一連のものを用いた。

① i-GaAs(d_1 nm)/n-GaAs 構造: 基板 (001)面 n 型 GaAs

i-GaAs 層厚: $d_1=100, 200, 500, 800$ nm

n-GaAs 層: 層厚 3.0 μ m、ドーピング濃度 3×10^{18} cm $^{-3}$

② i-GaAs(d_2 nm)/p-GaAs 構造: 基板 (001)面 p 型 GaAs

i-GaAs 層厚: $d_2=200, 500, 800$ nm

p-GaAs 層: 層厚 3.0 μ m、ドーピング濃度 3×10^{18} cm $^{-3}$

(2) i-GaAs 層の電場強度評価

光変調反射 (photoreflectance: PR) 分光法によって観測される Franz-Keldysh 振動の解析から、THz 電磁波発生層である i-GaAs 層の電場強度を評価した[4]。変調光源には YAG レーザーの第 2 高調波(532nm)、プローブ光源にはタングステンランプを分光した光を用いた。Si フォトダイオードで受光し、変調信号をロックインアンプにより検出した。

(3) 時間領域 THz 電磁波測定

フェムト秒 Ti:sapphire パルスレーザー (パルス幅 50fs、中心波長 800nm) を光源とし、検出器として低温成長 GaAs 上に形成された光伝導ダイポールアンテナ (ギャップ間隔: 5 μ m) を用いた光ゲート法により時間領域 THz 電磁波信号を検出した。図 1 は、測定系の概略図を示している。ポンプパルスで THz 電磁波を発生させ、それを一對のパラボリックミラーを用いて光伝導アンテナに集光した。時間領域信号は、ゲートパルスの逐次時間遅延 (10fs ステップ) により時間掃引を行い、光伝導アンテナをゲートパルス照射によってオン状態にして THz 電磁波を電流信号として取り出し、ロックインアンプで検出した。測定系を窒素ガスでパージし、THz 電磁波に対する水蒸気の吸収を防いだ。全ての測定は、応用を考慮して室温において行った。

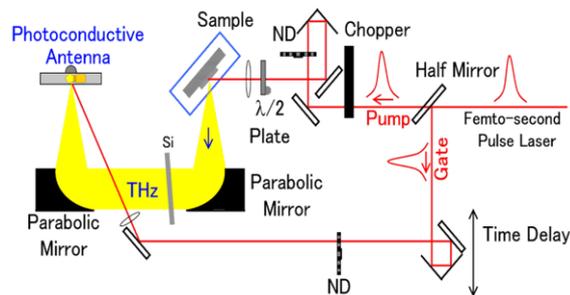


図 1: 時間領域 THz 電磁波測定系の概略図。

4. 研究成果

(1) i-GaAs 層の電場強度の評価

i-GaAs/n-GaAs と i-GaAs/p-GaAs 構造では、表面フェルミレベルピニングによって、i-GaAs 層に均一な電場が生じる。この i-GaAs 層の電場が、光生成キャリアの縦方向ドリフト電流 (瞬時的過渡電流) を誘起し、それがプラズモンとして作用する。さらに、i-GaAs 層の LO フォノン分極を増大させて、プラズモンとの効率的な結合、即ち、LOPC モードを生成する。以上のことが、本研究における物理の基本コンセプトである。表 1 に、PR 分光法によって観測した Franz-Keldysh 振動の解析から得られた i-GaAs/n-GaAs 構造における i-GaAs 層の電場強度をまとめている。

表 1: i-GaAs/n-GaAs 構造における i-GaAs 層の電場強度

i-GaAs 層厚(nm)	100	200	500	800
電場強度(kV/cm)	50	28	11	8.6

このように、顕著な電場が i-GaAs 層に生じている。また、i-GaAs/p-GaAs 構造においても同様な電場強度である。

(2) i-GaAs/n-GaAs 構造におけるコヒーレント LOPC モードからの周波数可変 THz 電磁波

図 2(a)は、i-GaAs(200 nm)/n-GaAs 構造における異なる励起強度での THz 電磁波の時間

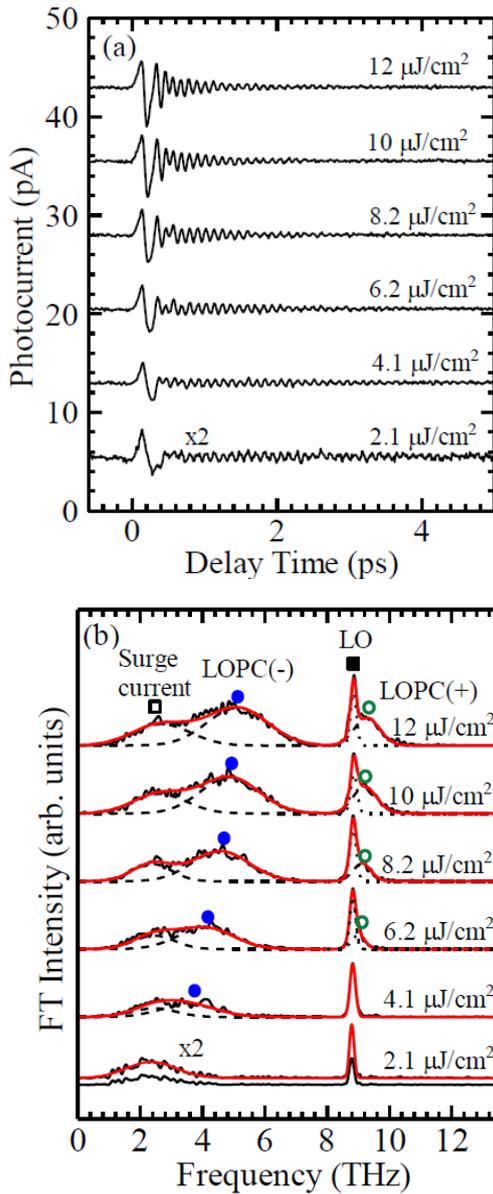


図 2: i-GaAs(200 nm)/n-GaAs 構造における異なる励起強度での (a)THz 電磁波の時間領域信号と (b)その FT スペクトル。

領域信号を示している。遅延時間 0ps 近傍のモノサイクル信号は、光生成キャリアの瞬間的過渡電流 (i-GaAs 層の電場によるドリフト電流に相当) によるものである。その後、振動パターンが出現している。時間領域信号の周波数成分を解析するために、図 2(b)は、各時間領域信号のフーリエ変換 (Fourier transform: FT) スペクトル、即ち、THz スペクトルを示している。ここで、破線は現象論的にガウス関数を用いて FT スペクトルをフィッティングした結果を示しており、4 つの THz バンドが存在することが分かる。4 つの THz バンドは、周波数が励起強度に依存する 2 つのバンドと依存しない 2 つのバンドに分類できる。周波数が励起強度に依存しない 2 つのバンドの内、8.8THz のシャープなバンドは、GaAs のコヒーレント LO フォノンに帰属できる。2.2THz 近傍にピークを示すブロード

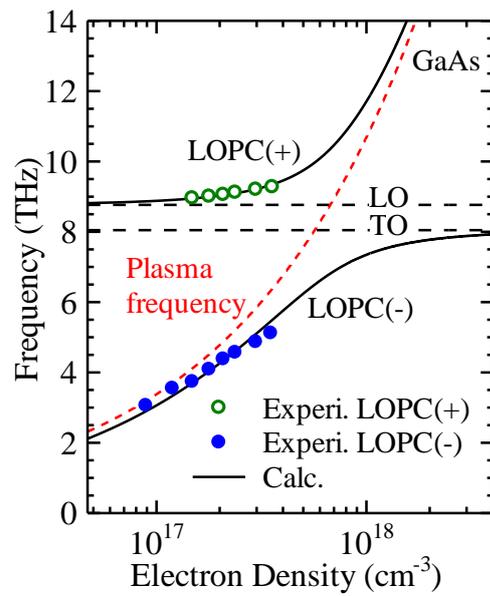


図 3: GaAs の LOPC モード周波数の電子濃度依存性の計算結果 (実線) と FT スペクトルにおいて観測された周波数が励起強度に依存する 2 つの THz バンドの周波数の光生成電子濃度依存性。

なバンドは、上記の瞬間的過渡電流によるものである。

周波数が励起強度に依存する 2 つの THz バンドは、コヒーレント LOPC モードによるものと考えられる。この考察を明確にするために、LOPC モード周波数のキャリア濃度依存性に関する理論式に基づいて解析する。LOPC モードは、LO フォノンとプラズモンとの結合モードであるので、LOPC(+) と LOPC(-) の 2 つのモードが存在する。この 2 つのモードの振動数 (ω_{L+} と ω_{L-}) は、次式によって与えられる[5]。

$$\omega_{L\pm}^2 = (1/2)[\omega_{LO}^2 + \omega_p^2 \pm \sqrt{(\omega_{LO}^2 + \omega_p^2)^2 - 4\omega_p^2\omega_{TO}^2}] \quad (1)$$

ここで、 ω_{LO} と ω_{TO} はそれぞれ LO と TO フォノン周波数、 ω_p はプラズマ周波数を意味しており、次式で定義される。

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

ここで、 n はキャリア濃度、 ϵ_∞ は背景誘電率、 m^* はキャリアの有効質量である。図 3 は、GaAs の LOPC モード周波数の電子濃度依存性の計算結果 (実線) と FT スペクトルにおいて観測された周波数が励起強度に依存する 2 つの THz バンドの周波数の光生成電子濃度依存性 (実験結果) を示している。実験結果は計算結果と良く一致しており、周波数が励起強度に依存する 2 つの THz バンドの低振動数側が LOPC(-)モード、高振動数側が LOPC(+)モードに帰属できることが明らかである。このことは、LOPC モードからの周波

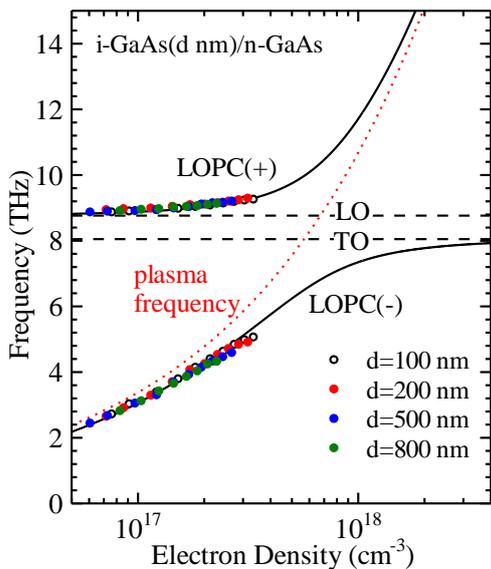


図4：i-GaAs (d nm)/n-GaAs 構造 ($d=100$ 、 200 、 500 、 800) において観測されたコヒーレント LOPC(+)と LOPC(-)モードの振動数の光生成電子濃度依存性と GaAs の LOPC モード周波数の電子濃度依存性の計算結果 (実線)。

数可変 THz 電磁波発生を観測したことを明確に示している。

図4は、i-GaAs (d nm)/n-GaAs 構造 ($d=100$ 、 200 、 500 、 800) において観測されたコヒーレント LOPC(+)と LOPC(-)モードの振動数の光生成電子濃度依存性と GaAs の LOPC モード周波数の電子濃度依存性の計算結果 (実線) を示している。全ての試料において、実験結果と計算結果は良く一致している。この事実、これまでバルク半導体では不可能であったコヒーレント LOPC モードからの周波数可変 THz 電磁波発生が i-GaAs/n-GaAs 構造において実現できることを立証している。その最大の物理的要因は、上で述べた i-GaAs 層における空間的に均一な電場であると考えられる。本研究での周波数可変領域は、LOPC(-)モードにおいて 2.4 から 5.1 THz、LOPC(+)モードにおいて 8.9 から 9.3 THz である。なお、本研究では、フェムト秒パルスレーザーはプライマリオシレータのみであり、再生増幅器を用いて励起光を高強度化すれば、周波数可変範囲はさらに広がると期待できる。

(3) i-GaAs/p-GaAs 構造におけるコヒーレント LOPC モードからの周波数可変 THz 電磁波

i-GaAs/p-GaAs と i-GaAs/n-GaAs 構造の最も大きな違いは、i-GaAs 層の電場方向である。i-GaAs 層の静電ポテンシャルは、表面フェルミレベルピンニングによって発生するために、i-GaAs/p-GaAs と i-GaAs/n-GaAs 構造ではポテンシャルの傾きが逆転し、その結果、電場の方向が逆転する。電場の方向を光生成キャリアのドリフト電流の方向で表現すると、i-GaAs/n-GaAs 構造の場合は n-GaAs 層に向か

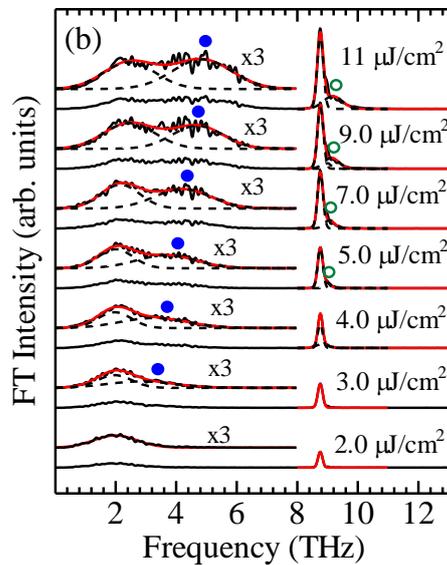
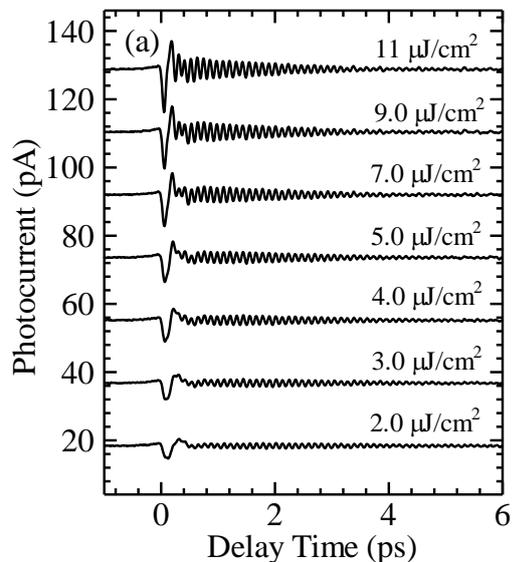


図5：i-GaAs(200 nm)/p-GaAs 構造における (a) 異なる励起強度での THz 電磁波の時間領域信号と (b) その FT スペクトル。

って流れ、i-GaAs/p-GaAs 構造の場合は表面に向かって流れる。

図5(a)は、i-GaAs(200 nm)/p-GaAs 構造における異なる励起強度での THz 電磁波の時間領域信号を示している。図2(a)の i-GaAs(200 nm)/n-GaAs 構造の時間領域信号と比較すると、遅延時間 0 ps 近傍でのモノサイクル信号の極性が反転していることが分かる。これは、先に述べた光生成キャリアのドリフト電流の向きが反転していることを反映している。図5(b)は、各時間領域信号の FT スペクトルを示している。図2(b)の i-GaAs(200 nm)/n-GaAs 構造と同様に、4つの THz バンドが観測され、その内の2つの THz バンドの周波数が励起強度に依存しており、コヒーレント LOPC モードに帰属できる。

図6は、GaAs の LOPC モード周波数の電子濃度依存性の計算結果 (実線) と i-GaAs (200 nm)/p-GaAs 構造の FT スペクトルにお

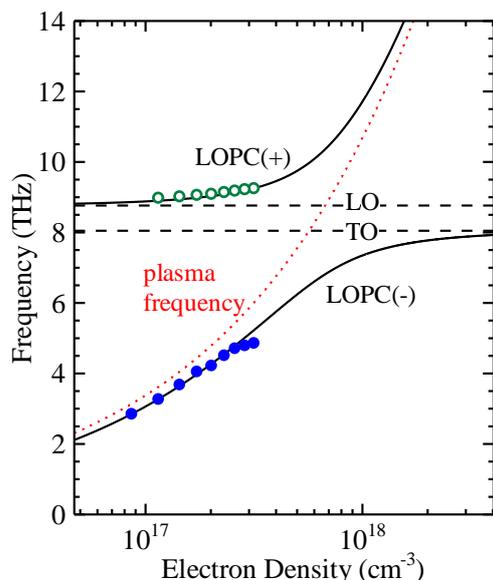


図 6: GaAs の LOPC モード周波数の電子濃度依存性の計算結果 (実線) と i-GaAs (200 nm)/p-GaAs 構造の FT スペクトルにおいて観測された周波数が励起強度に依存する 2 つの THz バンドの周波数の光生成電子濃度依存性。

いて観測された周波数が励起強度に依存する 2 つの THz バンドの周波数の光生成電子濃度依存性 (実験結果) を示している。実験結果は計算結果と良く一致しており、i-GaAs/n-GaAs 構造と同様に、i-GaAs/p-GaAs 構造においても、コヒーレント LOPC モードからの周波数可変 THz 電磁波発生が明らかである。i-GaAs 層厚が 500 と 800nm の試料においても、同様の結果が得られた。なお、i-GaAs/n-GaAs と i-GaAs/p-GaAs 構造において、光生成キャリアのドリフト電流の方向が逆転しているにも関わらず、どちらの構造においても LOPC モードを構成するプラズモン成分は光生成電子である。

<引用文献>

- ① R. Kersting, J. N. Heyman, G. Strasser, and K. Unterrainer, Phys. Rev. B **58**, 4553-4559 (1998).
- ② M. P. Hasselbeck, D. Stalnaker, L. A. Schlie, T. J. Rotter, A. Stintz, and M. Sheik-Bahae, Phys. Rev. B **65**, 233203-1-4 (2002).
- ③ P. Gu, M. Tani, K. Sakai, and T. R. Yang, Appl. Phys. Lett. **77**, 1798-1800 (2000).
- ④ S. Tsuruta, H. Takeuchi, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama, J. Appl. Phys. **113**, 143502-1-5 (2013).
- ⑤ I. Yokota, J. Phys. Soc. Jpn. **16**, 2075 (1961).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① Hideo Takeuchi, Takahiro Sumioka, and

Masaaki Nakayama, Longitudinal optical phonon-plasmon coupled mode in undoped GaAs/n-type GaAs epitaxial structures observed by Raman scattering and terahertz time-domain spectroscopic measurements: Difference in observed modes and initial polarization effects: IEEE Trans. THz Sci. Technol. **7**, pp.124-130 (2017) 査読有
DOI: 10.1109/TTHZ.2017.2650220

- ② Takayuki Hasegawa and Masaaki Nakayama, Unique characteristics of nonequilibrium carrier transport dynamics in an undoped GaAs/n-type GaAs epitaxial structure: Appl. Phys. Express **9**, pp. 071001-1--071001-4 (2016) 査読有
DOI: 10.7567/APEX.9.071001

[学会発表] (計 9 件)

- ① 竹内日出雄、住岡隆裕、中山正昭: アンダードープ GaAs/n 型 GaAs エピタキシャル構造における縦光学フォノン・プラズモン結合モードの時間領域テラヘルツ分光とラマン散乱分光、日本物理学会、2017 年 3 月 19 日、大阪大学 (大阪府豊中市)
- ② 住岡隆裕、竹内日出雄、中山正昭: 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の減衰過程、日本物理学、2017 年 3 月 18 日、大阪大学 (大阪府豊中市)
- ③ 住岡隆裕、竹内日出雄、中山正昭: 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の減衰ダイナミクス、第 27 回光物性研究会、2016 年 12 月 2 日、神戸大学 (兵庫県神戸市)
- ④ 住岡隆裕、竹内日出雄、中山正昭: i-GaAs/n-GaAs と i-GaAs/p-GaAs エピタキシャル構造におけるテラヘルツ電磁波放射特性の対比、日本物理学会、2016 年 9 月 15 日、金沢大学 (石川県金沢市)
- ⑤ Takahiro Sumioka, Hideo Takeuchi, and Masaaki Nakayama: Appearance of coherent LO phonons during the decay of LO-phonon-plasmon coupled mode in an undoped GaAs/n-type GaAs epitaxial structure, 19th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids, 2016 年 7 月 18 日、Chimie ParisTech (Paris, France)
- ⑥ 住岡隆裕、竹内日出雄、中山正昭: i-GaAs/n-GaAs エピタキシャル構造におけるコヒーレント LO フォノン プラズモン結合モードからのテラヘルツ電磁波発生ダイナミクス II、日本物理学会、2016 年 3 月 19 日、東北学院大学 (宮城県仙台市)
- ⑦ 住岡隆裕、竹内日出雄、中山正昭: i-GaAs/n-GaAs エピタキシャル構造にお

けるコヒーレント LO フォノン-プラズモン結合モードからのテラヘルツ電磁波発生ダイナミクス、第 26 回光物性研究会、2015 年 12 月 12 日、神戸大学（兵庫県神戸市）

- ⑧ 住岡隆裕、竹内日出雄、中山正昭：
i-GaAs/n-GaAs エピタキシャル構造におけるコヒーレント LO フォノン-プラズモン結合モードからのテラヘルツ電磁波発生ダイナミクス、日本物理学会、2015 年 9 月 16 日、関西大学（大阪府吹田市）
- ⑨ T. Sumioka, H. Takeuchi, and M. Nakayama:
Dynamical properties of terahertz radiation from coherent longitudinal optical phonon-plasmon coupled modes in an undoped GaAs/n-type GaAs epitaxial structure, 40th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, 2015 年 8 月 26 日, The China University of Hong Kong (Hong Kong, China)

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

- 出願状況（計 0 件）
○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等
該当無し。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中山 正昭 (NAKAYAMA, Masaaki)
大阪市立大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：3 0 1 7 2 4 8 0