

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：24402

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656018

研究課題名(和文)半導体エピタキシャル構造の内部電場制御によるテラヘルツ電磁波発生の制御

研究課題名(英文)Control of generation of terahertz electromagnetic waves in semiconductor epitaxial structures by internal electric field

研究代表者

中山 正昭 (NAKAYAMA, Masaaki)

大阪市立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30172480

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：以下に示す半導体エピタキシャル構造を試料として、コヒーレント縦光学フォノンからのテラヘルツ(THz)電磁波発生の内部電場による制御機構について研究を行った。

i-GaAs/n-GaAs構造では、表面フェルミレベルピンニングによる表面電場によって、(11n)面GaAs/In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As歪み多重量子井戸構造では、格子歪みによる piezo 電場によって、分極増大を介してTHz電磁波が顕著に増強されることを明らかにした。さらに、p-i-nダイオード構造では、バイアス電圧によって内部電場を制御し、THz電磁波強度を連続的、かつ、劇的に増強できることを実証し、THzデバイスの新たなコンセプトを提示した。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the control mechanisms of the terahertz (THz) electromagnetic waves from coherent longitudinal optical phonons in semiconductor epitaxial structures with use of internal electric fields.

It was found that the THz electromagnetic waves are markedly enhanced by a surface electric field due to surface Fermi level pinning in i-GaAs/n-GaAs epitaxial structures and by a piezoelectric field due to lattice strain in (11n)-oriented GaAs/In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As strained multiple quantum wells via an increase in phonon polarization. Furthermore, it was demonstrated that the THz electromagnetic waves are continuously and drastically enhanced by an applied bias voltage, which controls the internal electric field, in a p-i-n diode structure of GaAs. This provides us a novel concept of a THz device.

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：テラヘルツ電磁波 コヒーレント縦光学フォノン 半導体エピタキシャル構造 i-GaAs/n-GaAs構造 GaAs/InAlAsひずみ多重量子井戸構造 p-i-nダイオード構造(GaAs) 内部電場制御 フォノン分極

## 1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ (THz) 電磁波は、光物性では超高速光学現象として、応用面では、バイオセンシング、化学物質センシング、環境センシング、通信などで大きな注目を集めている。光学フォノンは、その振動数が THz 領域であるために、THz 電磁波源として魅力的なものである。尚、光学フォノンから THz 電磁波放射を得るためには、その振動周期よりも短いパルス幅を有するフェムト秒パルスレーザーを試料に照射して、振動の位相が揃ったコヒーレント光学フォノンを生成する必要がある。

従来のコヒーレント光学フォノンからの THz 電磁波発生には、バルク半導体の表面、もしくは、量子井戸構造が用いられてきたが、THz 電磁波発生を制御するという応用において重要なコンセプトが欠落していた。また、室温において、コヒーレント光学フォノンからの THz 電磁波はフォノンに対する熱的攪乱によって微弱なものとなり、応用における大きな課題となっていた。室温での高強度 THz 電磁波発生に関するこれまでの唯一の例は、GaAs/AlAs 多重量子井戸構造を試料として、コヒーレント縦光学 (LO) フォノンを重い正孔励起子と軽い正孔励起子による量子干渉とエネルギー共鳴させることによって増強させるという研究代表者らによる報告のみである [M. Nakayama et al., Appl. Phys. Express **1**, 012004 (2008)]。しかしこの場合、増強条件 (励起波長と量子井戸構造) は極めて限定されたものとなる。研究代表者は、半導体エピタキシャル構造に関する長年の研究から、その内部電場が構造要素とバイアス電圧によって制御できることに着目した。即ち、内部電場によってコヒーレント LO フォノンの分極を増大し、その分極増大によって THz 電磁波強度を室温において増強するという着想である。

## 2. 研究の目的

半導体エピタキシャル構造 (量子井戸構造を含む) 特有の内部電場に着目し、フェムト秒パルスレーザー励起による THz 電磁波発生を制御する新奇な方法論を確立することを目的としている。具体的には、従来の THz 電磁波発生では全く考慮されてこなかったエピタキシャル構造の設計の観点から、内部電場 (表面電場、格子歪みによるピエゾ電場) の構造的制御とバイアス電圧によるデバイスの内部電場制御を行い、LO フォン分極の増大を生じせしめて、コヒーレント LO フォノンに起因する THz 電磁波発生の制御を室温において行う。即ち、エピタキシャル構造を設計することによって THz 電磁波発生を制御するという新たなパラダイムを開拓する。

## 3. 研究の方法

内部電場制御の観点から、以下に示す 3 種

類の試料を対象とした。

(1) *i*-GaAs(*d* nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造: ここで、*i* はノンドープを、*n* は *n* 型半導体を意味する。作製は、(001)面 GaAs 基板に MOVPE 法によって行い、*i*-GaAs 層の層厚を *d*=200, 500, 800, 1200 nm と変化させた。一方、*n*-GaAs 層に関しては、層厚 3.0 μm、ドーピング濃度  $3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$  に固定した。*i*-GaAs/*n*-GaAs エピタキシャル構造では、表面フェルミレベルピニングにより、*i*-GaAs 層に均一な表面電場が発生し、その電場強度は、*i*-GaAs 層厚に依存する。各試料の電場強度は、光変調反射 (photoreflectance: PR) 分光法を用いて、Franz-Keldysh (FK) 振動を観測し、その解析から実験的に評価した。

(2) (11*n*)面 GaAs(10 nm)/In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As(10 nm)歪み多重量子井戸構造: (112)、(113)、(114)、及び、(001)面 GaAs 基板に MBE 法により作製した。(111)面歪み量子井戸構造では、格子不整合歪みによりピエゾ電場が発生し、電場強度は面方位に依存する。尚、(001)面では、ピエゾ電場は生じない。各試料のピエゾ電場強度は、以下の参考文献に基づいて、理論的に求めた。

E. Anastassakis, Phys. Rev. B **46**, 4744 (1992).

(3) GaAs の *p*-*i*-*n* ダイオード構造: (001)面 *n* 型 GaAs 基板に、MOVPE 法により作製した。試料構造は、*p* 層の層厚 50 nm、ドーピング濃度  $1.0 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ 、*i* 層の層厚 500 nm、ノンドーピング、*n* 層の層厚 3.0 μm、ドーピング濃度  $3.0 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$  に設定した。また、バイアス電圧を印加するために、試料表面に、外径 600 μm、内径 200 μm の Au/AuZn 電極を形成し、その内径領域を光学窓とした。

THz 電磁波の測定は、励起光源として、フェムト秒 Ti:sapphire パルスレーザー (パルス幅: 50~60 fs、繰り返し周波数: 90 MHz) を用い、そのピークエネルギーは、非共鳴条件の 1.55~1.57 eV とした。励起強度密度は、 $5 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  近傍に設定した。検出には、低温成長 GaAs エピタキシャル薄膜上に形成した光伝導ダイポールアンテナ (電極ギャップ: 6 μm) による光ゲート法を用いた。全ての測定は、室温において行い、THz 電磁波に対する大気中の水蒸気による吸収を防ぐために、光学系を窒素ガスでパージした。

## 4. 研究成果

(1) *i*-GaAs(*d* nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造  
図 1 は、*i*-GaAs(200 nm)/*n*-GaAs(3 μm,  $3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ ) エピタキシャル構造におけるポテンシャル構造の計算結果を示している。図から明らかなように、*i*-GaAs 層のポテンシャルは表面フェルミレベルピニングによって直線的なスロープを持ち、その電場強度は空間的に均一で、この場合、32 kV/cm と計算される。実際の試料における *i* 層の電場強度は、PR 分光法を用いて FK 振動を観測し、その結果を解析することにより評価し、次の値が得られた。*d*=200, 500, 800, 1200 nm において、そ

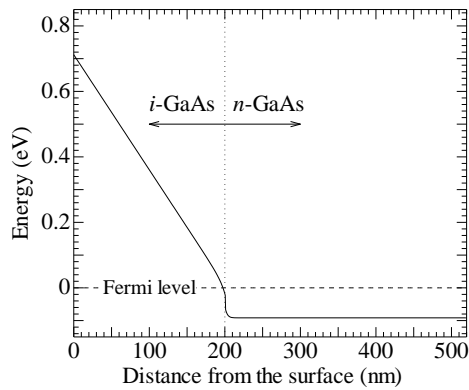


図 1 :  $i$ -GaAs(200 nm)/ $n$ -GaAs(3 $\mu$ m、 $3 \times 10^{18}$  cm $^{-3}$ )エピタキシャル構造における伝導帯の表面近傍のポテンシャルの計算結果。

それぞれ、28.4、12.1、8.2、6.1 kV/cm。即ち、 $i$  層厚が厚くなるにしたがって、表面電場強度が低下する。

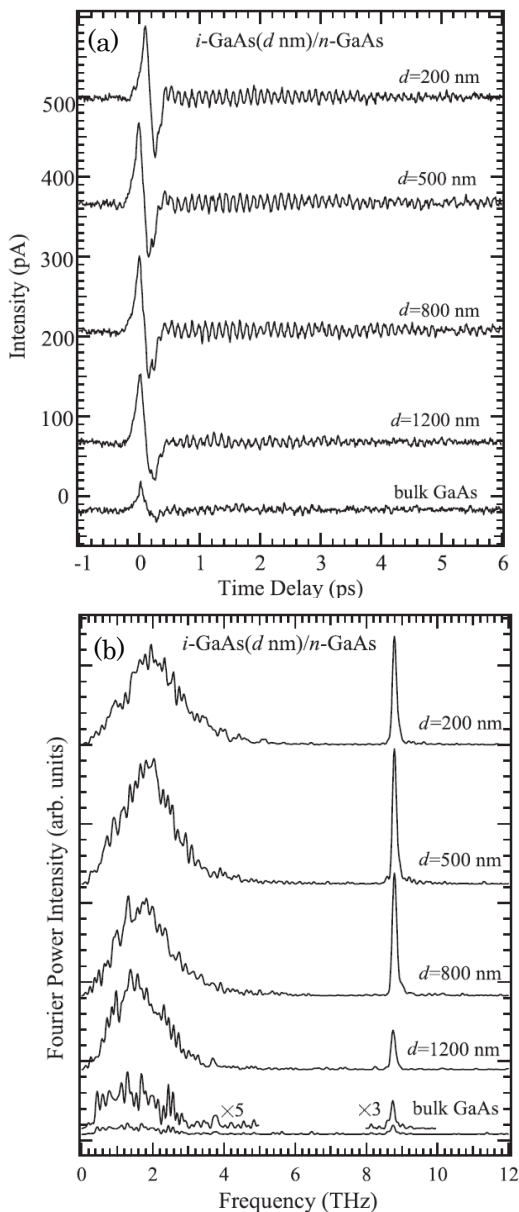


図 2: (a)各試料の時間領域 THz 電磁波信号、(b) (a)のフーリエ変換パワースペクトル(振幅の 2 乗に相当)。

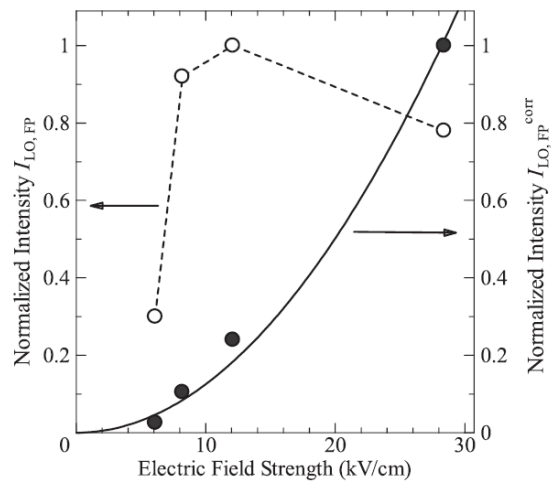


図 3 : 式(1)で補正しない場合 (○) と補正した場合 (●) のコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波の FT 強度の内部電場強度依存性。実線は、電場強度の 2 乗のフィッティング結果を示している ( $I_{LO} \propto F^2$ )。

図 2(a)は、各試料の時間領域 THz 電磁波信号を、図 2(b)は、それらのフーリエ変換 (FT) パワースペクトルを示している。尚、参照試料として GaAs バルク結晶の結果も示している。時間領域信号における 0 ps 近傍のモノサイクル信号は、 $i$ -GaAs 層を流れる光励起キャリアに起因する過渡電流によるものであり、それに続く長寿命の振動構造が、GaAs のコヒーレント LO フォノンによるものである。FT パワースペクトルでは、0~4THz のブロードなバンドが時間領域信号の過渡電流に起因するモノサイクル信号に対応し、8.8THz のシャープなバンドがコヒーレント LO フォノンに対応する。図 2 から、 $i$ -GaAs/  $n$ -GaAs 構造では、バルク結晶と比較して、コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波が、顕著に増強されていることが明らかである。以下では、その増強機構について考察する。

本研究で用いた試料では、THz 電磁波を発生する  $i$  層厚が異なるために、発生効率を議論するためには、層厚効果の補正が必要である。その補正因子は、以下の式で与えられる。

$$1/[1-\exp(-\alpha d)] d \quad (1)$$

ここで、 $\alpha$ は励起波長における吸収係数であり、分母の括弧項は層厚  $d$  における励起光の吸収度合い、即ち、有効励起強度を意味し、層厚  $d$  の除算は発生層のボリューム効果に対する補正である。図 3 は、式(1)で補正しない場合 (○) と補正した場合 (●) のコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波の FT パワー強度の電場強度、具体的には、 $i$  層の表面電場強度依存性を示している。補正したコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波強度は系統的な電場強度依存性を示し、実線で示すように、電場強度の 2 乗に比例している ( $I_{LO} \propto F^2$ )。FT パワー強度は振幅の 2 乗に比例するので、解析結果は、THz 電磁波の振幅が電場強度に比例することを意味している。

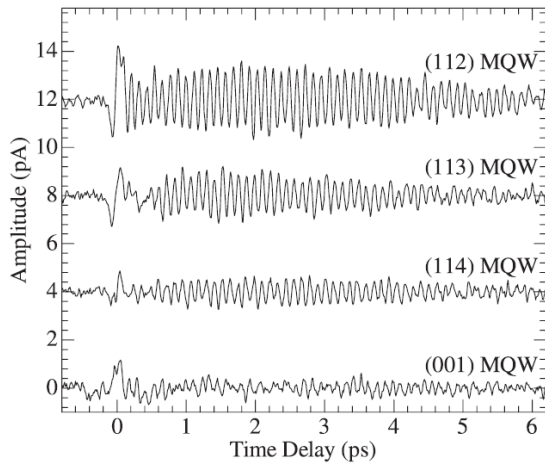


図 4: (11*n*)面 GaAs(10 nm)/In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As (10 nm) 歪み多重量子井戸構造 (*n*=2、3、4、∞) における時間領域 THz 信号。

LO フォノン分極は、電気感受率テンソルを  $[\chi]$  で表すと、 $P_{LO}=[\chi]F$  で与えられる。したがって、コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波の増強機構は、*i* 層の表面電場による LO フォノンの初期分極の増大によるものであると結論できる。

### (2) (11*n*)面 GaAs(10 nm)/In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As(10 nm)歪み多重量子井戸構造

この試料系では、GaAs 基板と多重量子井戸構造との間に、厚さ 1 μm の In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As バッファ層を結晶成長段階で挿入しており、これが疑似基板として作用する。したがって、GaAs 層のみが In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As 層との格子不整合歪みを受ける。このことは、ラマン散乱分光法による LO フォノン振動数のシフト量から実験的に評価している。GaAs 層の格子不整合歪み量は、+0.84% である (+符号は引っ張り歪みを意味する)。この格子歪み量から計算した成長方向の piezoelectric field 強度は、(112)、(113)、(114)、(001)面の多重量子井戸構造において、それぞれ 144、72、41、0 kV/cm である。

図 4 は、(11*n*)面 GaAs(10 nm)/In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As (10 nm)歪み多重量子井戸構造 (*n*=2、3、4、∞) における時間領域 THz 信号を示している。コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波が、piezoelectric field 強度が大きくなるに従って顕著に増大していることが明らかである。図 5 は、コヒーレント LO フォノンの FT パワースペクトルの 1/2 乗、即ち、THz 電磁波振幅の piezoelectric field 強度依存性を示している。コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波振幅が、piezoelectric field 強度に比例していることが明らかである。尚、piezoelectric field が発生しない (001)面試料でのオフセット値は、表面フェルミレベルピンニングによる表面電場の影響であると考えられる。上記の結果は、(1)で述べた *i*-GaAs(*d* nm)/*n*-GaAs エピタキシャル構造の結果と同様である。即ち、統一的に、内部電場による LO フォノン分極の増大が、THz

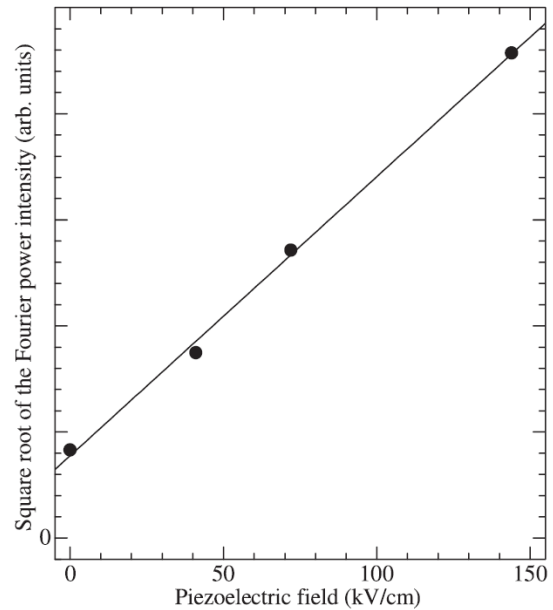


図 5: (11*n*)面 GaAs(10nm)/In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As (10nm) 歪み多重量子井戸構造におけるコヒーレント LO フォノンの FT パワースペクトルの 1/2 乗、即ち、THz 電磁波振幅の piezoelectric field 強度依存性。

電磁波を増強する要因であることを明確に示している。

### (3) GaAs の *p-i-n* ダイオード構造

これまで述べてきた研究成果から、内部電場を制御することによって、LO フォノン分極を介して、コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波強度を制御できることが明らかとなった。この観点から、内部電場をバイアス電圧によって自在に制御できる *p-i-n* ダイオード構造に着目した。

図 6 は、GaAs の *p-i-n* ダイオード構造における時間領域 THz 信号の逆方向バイアス電圧依存性を示している。*i* 層の内部電場は、近似的には、 $F=(V_b-V_a)/d_i$  で与えられる。ここで、 $V_b$  は *p-n* 接合の障壁ポテンシャル、 $V_a$  はバイアス電圧、 $d_i$  は *i* 層の層厚を意味している。したがって、逆方向バイアス電圧が高くなるに従って電場強度が大きくなる。図 6 から、逆方向バイアス電圧 (*i* 層の内部電場強度) が高くなるに従って、連続的、かつ、劇的にコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波が増強されていることが明らかである。FT パワースペクトルから見積もった 0 V を基準とした THz 電磁波強度の増強率は、8 V で約 200 倍と巨大なものである。一方、過渡電流に起因するモノサイクル信号では、3 V 以上の電圧領域で顕著な増強は見られない。その原因としては、過渡電流の起源である光生成キャリアのドリフト速度の飽和が考えられる。

図 7 は、GaAs の *p-i-n* ダイオード構造におけるコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波強度 (FT パワースペクトルの強度) の

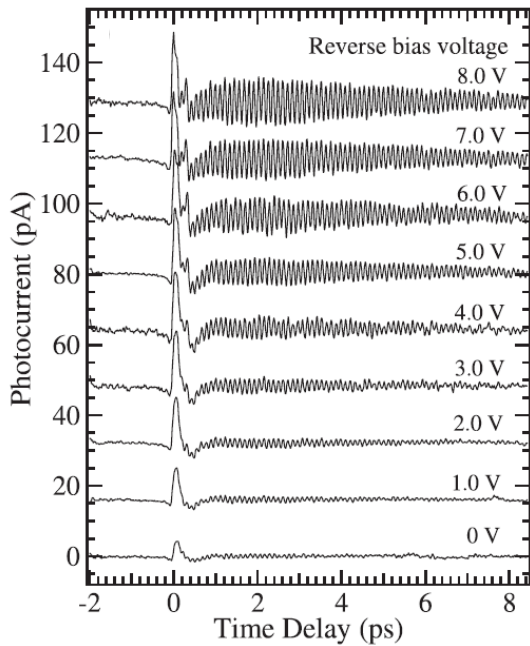


図 6 : GaAs の *p-i-n* ダイオード構造における時間領域 THz 信号の逆方向バイアス電圧依存性。

1/2 乗、即ち、THz 電磁波振幅の電場強度依存性を示している。*i* 層の電場強度は、電場変調反射分光法を用いて FK 振動を観測し、その結果を解析することにより評価した。約 40 kV/cm 以下の低電場領域では、THz 電磁波振幅は電場強度に比例している。一方、全く予期していなかった驚くべき結果として、約 100 kV/cm 以上の高電場領域では、THz 電磁波振幅は電場強度の 2 乗に比例している。このことは、2 次の非線形感受率である  $\chi^{(2)}$  の寄与が増強の主要因となっていることを意味している。GaAs 結晶は閃亜鉛鉱構造で反転対称性があるために、一般に主軸方向では  $\chi^{(2)}=0$  である。*p-i-n* ダイオード構造の場合、積層方向に電場が発生するために反転対称性が破れて、 $\chi^{(2)}$ が生じる [C. H. Lee et al., Phys. Rev. Lett. **18**, 167 (1967)]。以上のことから、コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波強度の 1/2 乗の電場強度依存性は、以下の  $\chi^{(1)}$  と  $\chi^{(2)}$  の線形結合で支配されていると仮定する。

$$\sqrt{I_{\text{LO}}} \propto \chi^{(1)}F + \chi_{zzz}^{(2)}F^2 \quad (2)$$

図 7 の実線は、式(2)に基づくフィッティング結果を示しており、実験結果を良く説明している。フィッティングから得られた  $\chi^{(1)}$  と  $\chi^{(2)}$  の比は、 $[\chi^{(2)}/\chi^{(1)}]F=2.1 \times 10^{-2}F$  (kV/cm) である。この数値は、現時点では現象論的なものであり、THz 領域の  $\chi^{(2)}$  の解明が今後の大きな課題である。

以上の結果は、コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波のバイアス電圧制御を初めて実証したものであり、今後の THz デバイスへの大きな波及効果が期待される。

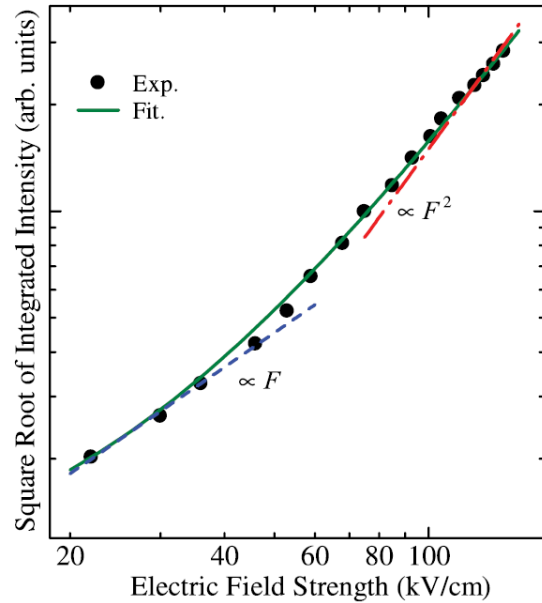


図 7 : GaAs の *p-i-n* ダイオード構造におけるコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波強度の 1/2 乗、即ち、THz 電磁波振幅の電場強度依存性。実線は、式(2)に基づくフィッティング結果を示している。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① M. Nakayama: Radiation of terahertz electromagnetic waves from coherent longitudinal optical phonons in multiple quantum wells, J. Nanoelectron. Optoelectron. Vol. 8, pp. 415-424 (2013) 査読有り  
DOI: 10.1166/jno.2013.1501
- ② M. Nakayama, S. Asai, H. Takeuchi, O. Ichikawa, and M. Hata: Voltage-controllable terahertz radiation from coherent longitudinal optical phonons in a *p-i-n* diode structure of GaAs, Appl. Phys. Lett. Vol. 103, pp. 141109-1--141109-4 (2013) 査読有り  
DOI: 10.1063/1.4823595
- ③ S. Tsuruta, H. Takeuchi, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama: Enhancement mechanism of terahertz radiation from coherent longitudinal optical phonons in undoped GaAs/*n*-type GaAs epitaxial structures, J. Appl. Phys. Vol. 113, pp. 143502-1--143502-5 (2013) 査読有り  
DOI: 10.1063/1.4799060
- ④ S. Tsuruta, H. Takeuchi, and M. Nakayama: Terahertz radiation from the coherent longitudinal optical phonon-plasmon coupled mode in an *i*-GaAs/*n*-GaAs epitaxial structure, J. Phys.: Conf. Ser. Vol. 417, pp.

012051--1-012051-6 (2013) 査読有り

DOI: 10.1088/1742-6596/417/1/012051

- ⑤ H. Takeuchi, S. Asai, S. Tsuruta, and M. Nakayama: Intense monochromatic terahertz electromagnetic waves from coherent GaAs-like longitudinal optical phonons in (11n)-oriented GaAs/In<sub>0.1</sub>Al<sub>0.9</sub>As strained multiple quantum wells, Appl. Phys. Lett. Vol. 100, pp. 242107-1--242107-4 (2012) 査読有り  
DOI: 10.1063/1.4729125

[学会発表] (計 8 件)

- ① 中山正昭、浅井聡太、竹内日出雄、市川磨、秦雅彦: GaAs ダイオード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発生の電圧制御 (物理学会、2014 年 3 月 28 日、東海大学湘南キャンパス)
- ② 竹内日出雄、浅井聡太、鶴田修一、中山正昭: アンダーープ GaAs/n-type GaAs エピタキシャル構造における縦光学フォノンの Raman 散乱分光とテラヘルツ電磁波発生 (物理学会、2014 年 3 月 28 日、東海大学湘南キャンパス)
- ③ 中森一平、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 フォノンからのテラヘルツ電磁波に対する内部電場効果の影響 (第 24 回光物性研究会、2013 年 12 月 13 日、大阪市立大学杉本キャンパス)
- ④ 中森一平、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 フォノンからのテラヘルツ電磁波の増強機構 (物理学会、2013 年 9 月 27 日、徳島大学常三島キャンパス)
- ⑤ M. Nakayama: Radiation of terahertz electromagnetic waves from coherent longitudinal optical phonons in multiple quantum wells, (Collaborative Conference on Materials Research 2013, June 25, 2013, Jeju, Korea) (招待講演)
- ⑥ 浅井聡太、竹内日出雄、中山正昭: (11n) 面方位 GaAs/InAlAs 歪み多重量子井戸におけるコヒーレント LO フォノンからの高強度 THz 電磁波発生 II (2013 年 3 月 29 日、広島大学東広島キャンパス)
- ⑦ 浅井聡太、竹内日出雄、中山正昭: (11n) 面方位 GaAs/InAlAs 歪み多重量子井戸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発生の励起強度依存性 (第 23 回光物性研究会、2012 年 12 月 7 日、大阪市立大学杉本キャンパス)
- ⑧ 長谷川尊之、高木芳弘、竹内日出雄、山田永、秦雅彦、中山正昭: アンダーープ GaAs/n 型 GaAs エピタキシャル層構造におけるキャリア輸送過程に起因した超高速光応答 (物理学会、2012 年 9 月 18 日、横浜国立大学常盤台キャンパス)

## 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 : 30172480

### (2)研究分担者

なし。

### (3)連携研究者

なし。