

テラヘルツ自由電子レーザーで見る半導体高密度表面キャリアダイナミクス

STUDY FOR DYNAMICS OF HIGH-DENSITY CARRIERS ON THE SEMICONDUCTOR SURFACE PROBING BY THE TERAHERTZ FREE ELECTRON LASER

川瀬啓悟^{#, A)}

Keigo Kawase ^{#, A)}

^{A)} QST

Abstract

THz free electron laser at SANKEN, Osaka University, generates the intense THz pulse train with a duration in the picosecond range and a pulse interval of 37 ns through a few microseconds. Using such a pulse train with that wide temporal range, we study carrier dynamics by measuring the transient variations of the reflecting and transmitting THz pulses from the high-density surface plasma excited by a femtosecond intense laser pulse. We compare GaAs, a direct transition semiconductor, and Si and Ge, indirect transition semiconductors. We report the transient responses of GaAs, Si, and Ge obtained at the experiments and discuss them in detail.

1. はじめに

産研 THz FEL はピコ秒オーダーのパルス幅を持つ THz パルスを 37 ns の間隔で 300 個程度、8 マイクロ秒に亘って発生させるテラヘルツパルス光源である。パルス当たりのエネルギーは波長 70 μm で最大 200 μJ を超える[1]。パルスエネルギーは、固体レーザー駆動のテラヘルツ光源[2]と比べて遜色の無いものであり、高強度テラヘルツパルスとしての利用も期待できる。またパルス列であることを利用して、時間分解テラヘルツプローブ計測の利用も可能である。

高強度テラヘルツパルスの利用方法として、これまでにフェムト秒レーザーで半導体表面を励起し、単一テラヘルツパルスのみを取り出す半導体反射スイッチに着目し、産研 THz FEL において動作特性評価を実施してきた[3-6]。半導体のバンドギャップよりも高い光子エネルギーを持つレーザー光を照射すると、光電効果により半導体表面は電離される。レーザー光が高強度であれば、その表面は高い電離密度状態、すなわち電子-正孔対のプラズマ状態が高密度に存在することとなる。非励起状態の半導体は THz パルスに対してよい透過特性を示す。しかしながら高密度プラズマ状態表面は、金属的な振る舞いに相当し、THz パルスに対して高い反射特性を示す。高反射特性の持続時間は励起レーザーのパルス長と THz パルスの波長、およびプラズマ密度に依存する。直接遷移半導体である GaAs などでは、再結合時間が速く、数 ns のオーダーで非励起状態に緩和する。そのため、GaAs を用いることで、パルス列の中から単一パルスのみを反射させて取り出すことができる。しかしながら、GaAs は伝導帯のバレー間散乱が知られており[7]、高強度 THz パルスを利用する本研究においては、その効果が影響する。一方間接遷移半導体である Si や Ge を用いたスイッチでは、37 ns 間隔のパルス列であっても数個の反射パルスが存在し、透過パルス列は数マイクロ秒に亘ってキャリア吸収による減衰を受ける。このような特徴的な振る舞いを詳細に調べる事は興味深いことである。

そこで本研究では、フェムト秒レーザーパルスで励起された半導体表面のキャリアについて、FEL によるテラヘルツパルス列をプローブとした計測研究を進めている。本報告では、これまでに得られた結果を紹介、議論する。

2. 実験

実験セットアップはこれまでに実施した半導体反射スイッチ実験と同様である[3-6]。反射、および透過パルスエネルギーの測定にはエネルギーメータ(Energy Sensor J-10MB-LE, J-50MB-LE, Coherent Inc.)を用い、パルス分解した過渡的な振る舞いの測定には高速の焦電素子検出器(P5-00, Molelectron Inc.)を用いた。

GaAs におけるバレー間散乱の影響を調べるため、入射 THz パルスの強度依存性を 2 枚のワイヤーグリッド偏光子を用いて計測した。下流の偏光子は水平偏光を保つために固定される。上流の偏光子は自動回転ステージに設置し、入射強度を変えた。フェムト秒レーザーによりスイッチされる反射パルスのエネルギーは J-10MB-LE で計測され、透過パルスのエネルギーは J-50MB-LE で計測された。

半導体表面上にフェムト秒レーザーパルスにより励起された高密度電子-正孔プラズマの過渡的な振る舞いは、議論する時間領域に従い、2 つの方法で測定した。テラヘルツパルスの間隔よりもプラズマ緩和時間が短い GaAs については、レーザーパルス輸送路に挿入された直動ステージの光遅延路と、レーザーシステムのトリガー遅延回路を組み合わせて、時間発展を計測した。光計測にはエネルギーメータ J-10MB-LE と単一のパルス波形として検出する焦電素子検出器 P5-00 の双方を利用した。一方、プラズマ緩和時間が長い Si, Ge については、反射パルスと透過パルスの双方に対して P5-00 を用いて、THz パルス列の時間発展を計測した。

各計測では主にパルスエネルギーが最大付近の波長 70 μm で実施した。

[#] kawase.keigo@qst.go.jp

3. 結果と考察

GaAs のレーザー励起半導体スイッチによる THz パルスの反射と透過の入射 THz 強度依存性の測定結果を Fig. 1 に示す。反射(Fig. 1(a))と透過(Fig. 1(b))はともにワイヤグリッド偏光子の回転による入射強度の変化に伴って変化する。しかしながら反射強度の透過強度に対する比は、入射強度が小さいところで増大している。Figure 1(c)は入射強度最大の時の比で規格化している。表面励起プラズマからの THz パルスの反射は高い電気伝導度によるが、THz パルス自身により伝導電子のバレー間散乱が起こると、伝導電子の有効質量は大きくなる。従ってでんき伝導度が低下して、THz パルスの反射率が低下する。計測結果に見られる低入射強度における反射強度比、すなわち反射率の増大は、高入射強度における反射率の低下を意味する。これはバレー間散乱による反射率の低下と解釈できる。Figure 1(d)は横軸を透過パルスエネルギーの対数として反射強度比をプロットしたものである。GaAs の場合、200 pJ 程度の THz パルスのうち、反射パルスは残留反射の除くと 1 pJ のみであるから、透過パルス強度は入射パルス強度に比例すると見なしてよい。従って、このプロットの横軸は入射強度と見なせる。THz パルスの反射率に関する入射強度依存についての定量的な議論にはまだ至っておらず、本計測結果の詳細な解析は今後の課題である。

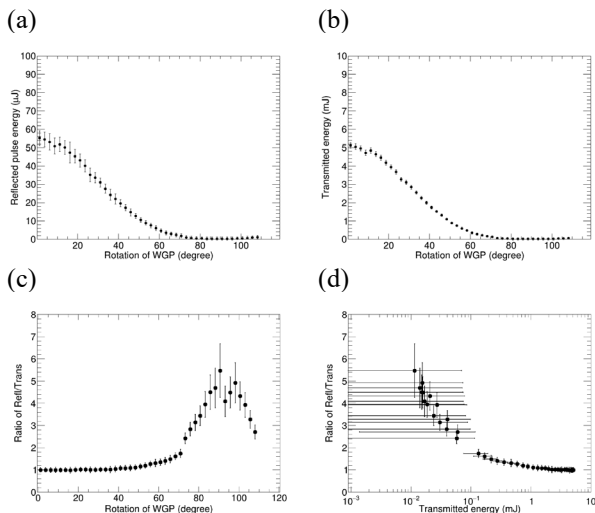


Figure 1: THz intensity dependence of the reflectivity from the laser-activated surface plasma on GaAs. (a) Reflected energy and (b) transmitted energy. (c) and (d) show the ratio of the reflected and transmitted.

レーザートリガーのケーブル遅延を用いて測定した異なるレーザー照射強度に対する GaAs 上のレーザー励起表面プラズマからの反射強度の時間変化を Fig. 2 に示す。反射率はプラズマ密度に依存し、反射率の減衰は臨界値以下のプラズマ密度の減衰を示す[8, 9]。プラズマ密度の減衰メカニズムは光放出を伴う電子-正孔の再結合(輻射再結合)とキャリアと格子欠陥及び不純物との再結合(不純物再結合)が考えられる。前者はプラズマ密度 n について、微分方程式

$$\frac{dn}{dt} = -\xi n^2 \quad (1)$$

で表現される。ここで ξ は時間や密度に依存しない定数と仮定する。この式の解は

$$n(t) = \frac{1}{\xi t + \eta} \quad (2)$$

と表現される。ここで $\eta = 1/n_0$ 、 n_0 は初期密度である。一方後者は、

$$\frac{dn}{dt} = -kn \quad (3)$$

で表現される。ここで k は定数である。この解は、

$$n(t) = n_0 e^{-kt} \quad (4)$$

と表現される。双方の関数で各データをフィットした結果も合わせて提示している。フィット結果を見る限り、ナノ秒スケールでは GaAs 表面のプラズマ密度の減衰は不純物再結合が支配的であることが示唆される。

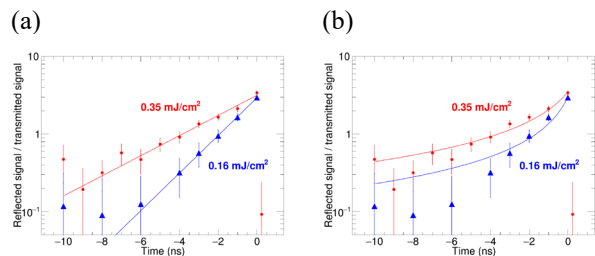


Figure 2: Temporal variations of the relative reflectivity for GaAs. (a) shows the exponential fits and (b) shows the fits by the function of $1/(\xi t + \eta)$ for the same measured data.

次に Si と Ge についての結果を見る。反射パルスを P5-00 で検出したパルス列波形を Fig. 3 に示す。この測定では Ge の場合、スイッチしたタイミングのパルスとその次のパルス程度のみが検出感度を超える信号であったのに対し、Si の場合、数パルスの減衰が確認できる。そのため、ここでは反射パルスに関しては Si のみ議論する。

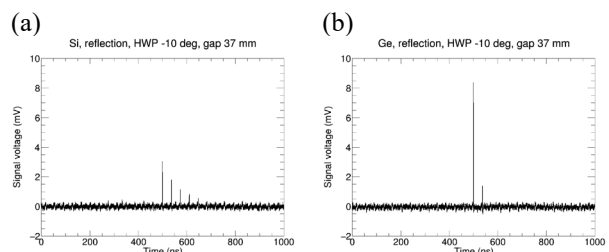


Figure 3: Reflected signals from the laser-activated switching from (a) Si and (b) Ge.

Figure 4 に Si の反射パルス波形データからピーク値のみを抽出したものと、それに輻射再結合、不純物再結合の方程式でフィットした結果を示す。ともに低強度での誤差が大きく、この結果からどちらが支配的な過程かを判断することは難しい。

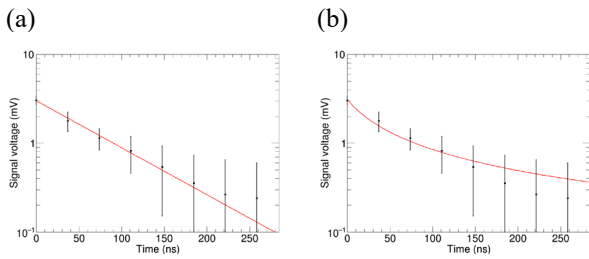


Figure 4: Peak signals of the THz pulses reflected from the laser-activated plasma surface of Si. (a) shows the exponential fit and (b) shows the function of $1/(\xi t + \eta)$ for the same measured data.

Figure 5 は Ge と Si をそれぞれ透過した THz FEL のパルス列波形とそこから抽出したプラズマ密度の減衰を示している。輻射再結合が主なプラズマ緩和過程であると見えるが、Ge では、後半で不純物再結合の効果の影響も見える。一方、Si では双方の強度でともに輻射再結合の方程式に一致する結果を示している。

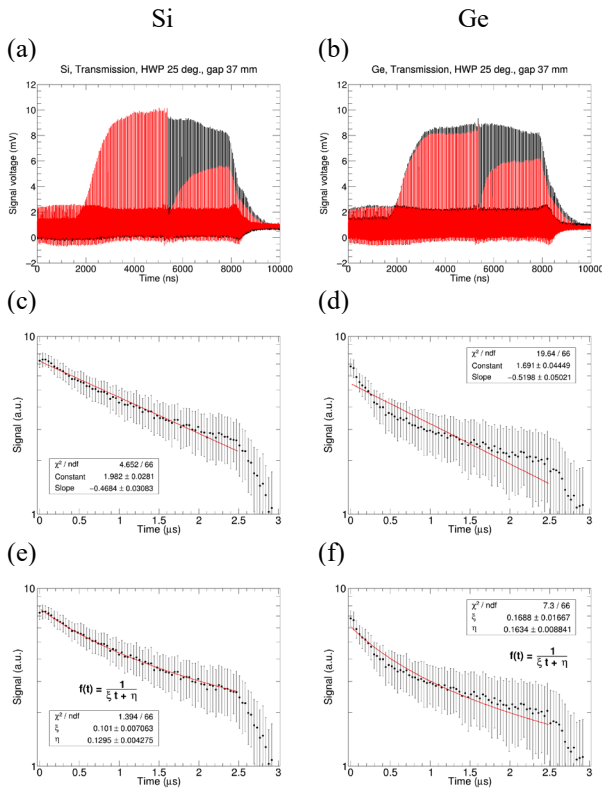


Figure 5: Comparison of the transmitted signals between Si (left column) and Ge (right column). (a, b) show the non-activated (black) and activated (red) waveforms. (c – f) show the simple differences between the black and red waveforms. The red lines are the fitting results by exponential (c, d) and two-body recombination (e, f).

ここで Si と Ge について、800 nm 付近の消費係数を比較する。Si は 0.006, Ge は 0.316 で、それぞれ減衰係数 (μm^{-1}) は 0.0937, 4.932, $1/e$ 深さ (μm) は 10.68, 0.203 である[10]。従って、同じ強度の TiSa パルス照射時、Ge は Si に比べて 50 倍のキャリア密度を持つので、Ge の方が高い輻射再結合確率を持ち、早く不純物再結合が支配

的な領域へ移ると期待でき、結果はこれに矛盾しない。

しかし、より詳細な定量的議論は FEL の変動起因の誤差が大きく困難である。FEL 光の参照強度波形計測系を整備し、この誤差の低減が今後の課題である。また、ここではキャリアの空間的拡散による密度変化を考慮しておらず、それも今後の課題である。

4. まとめ

THz FEL を用いたレーザー励起半導体表面キャリアのダイナミクスについて、GaAs と Si, Ge との比較計測を実施した。GaAs ではナノ秒スケールで不純物再結合によるプラズマ緩和が見られるのに対して、マイクロ秒スケールで Ge では輻射再結合と不純物再結合の双方、Si では輻射再結合が支配的という示唆を得た。今後、FEL の変動による誤差の低減とデータの詳細な解釈を進める。

謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費助成事業(学術研究助成基金助成金)基礎研究(C)(課題番号 20K12491)、同挑戦的研究(萌芽)(課題番号 23K17683)、文部科学省平成 30 年度光・量子飛躍フラッグシッププログラム次世代レーザー基礎基盤研究「自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源のための基礎基盤技術の研究」(課題番号 JPMXS0118070271)の下で実施している。また「物質・デバイス領域共同研究拠点」(課題番号 20222007, 20232004)の枠組みで実施し、実験は大阪大学産業科学研究所量子ビーム科学研究施設を用いて実施した。

参考文献

- [1] K. Kawase *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. in Phys. Res. A 960, 163582 (2020). doi:10.1016/j.nima.2020.163582
- [2] J. A. Fülöp, S. Tzortzakis, T. Kampfrath, Adv. Optical Mater. 8, 1900681 (2020). doi:10.1002/adom.201900681
- [3] K. Kawase *et al.*, “Characterization and Development of THz-FEL by Using Femtosecond Laser”, Proc. 11th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 9 – 11, 2014, Aomori, Japan, pp. 479 - 482 (2014).
- [4] K. Kawase *et al.*, “Single picosecond THz pulse extraction from the FEL macropulse using a laser activating semiconductor reflective switch”, in Proc. FEL2015, Daejeon, Korea, August 2015, pp. 430 - 432.
- [5] K. Kawase *et al.*, “Study of plasma switch for single pulse extraction for the THz FEL”, Proc. 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, September 2 - 4, 2020, Online, pp. 624 - 625.
- [6] K. Kawase and G. Isoyama, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A 1056, 168618 (2023). doi:10.1016/j.nima.2023.168618
- [7] F. H. Su *et al.*, Opt. Express 17, 9620 (2009). doi:10.1364/OE.17.009620
- [8] D. G. McLean *et al.*, Appl. Phys. Lett. 48, 992 (1986). doi:10.1063/1.96634
- [9] T. Vogel *et al.*, Appl. Opt. 31, 329 (1992). doi:10.1063/1.96634
- [10] E. D. Palik (Ed.), Handbook of Optical Constants of Solids, Academic Press Inc. (1985).