

可視ポンプ・広帯域テラヘルツプローブ分光による

シリコンのキャリア散乱機構の研究

物質系専攻 47126026 寺重 翼

指導教員：岡本 博 (教授)、貴田 徳明 (准教授)

キーワード：半導体、キャリアダイナミクス、ポンプ・プローブ分光、テラヘルツ分光

1. 序論

半導体の光電デバイスとしての重要性から、半導体中に光励起された電子-正孔系のダイナミクスがこれまで盛んに研究されてきた。最近のテラヘルツ分光技術の発展によって、シリコンやガリウムヒ素といった半導体中に光生成した電子・正孔系のダイナミクスを直接観測することも可能になってきている。特に興味深いのは、光キャリアの散乱機構である。キャリアの散乱は、有効質量とともに移動度を支配する重要な現象であるからである。理論的な研究によって、半導体中に光生成したキャリアの散乱機構としては、フォノン散乱の他に電子-正孔散乱が重要な役割を果たすことが予想されている[1,2]。実際にシリコンにおいて、低温ではフォノン散乱よりも電子-正孔散乱が支配的な散乱過程となることが、Hendry らの実験によって示されている [3]。彼らはシリコンを対象とした可視ポンプ・テラヘルツプローブ分光によって過渡的な複素光学伝導度スペクトルを測定し、それをドルーデモデルで解析することでキャリアの散乱確率を求めている。しかしながら、彼らの実験では測定可能なスペクトルの帯域が 0.2 THz-1 THz と狭帯域であるために、電子-正孔散乱に由来する散乱確率 γ_{e-h} のキャリア密度依存性や温度依存性を詳細に評価することはできておらず、電子-正孔散乱がどのような機構で生じているのかは明らかになっていない。そこで、本研究では、広帯域なスペクトルを測定可能な可視ポンプ・テラヘルツプローブ分光測定系を構築することで γ_{e-h} のキャリア密度依存性や温度依存性を詳細に評価し、その機構を明らかにすることを目的として実験を行った。

2. 実験

可視ポンプ・広帯域テラヘルツプローブ分光測定系（プローブ帯域 1-7 THz）を構築した。光源はチタンサファイア再生増幅器（パルス幅 25 fs、繰り返し周波数 1 kHz、パルスエネルギー 2.5 mJ、中心波長 800 nm）である。再生増幅器の出力を 2 つに分け、片方をテラヘルツ波の発生・検出に用い、片方をポンプ光に用いた。ポンプ光の光子エネルギーは光パラメトリック増幅器(OPA)を用いて変換した。広帯域のテラヘルツパルスを得るため、テラヘルツ波の発生には空気プラズマ発生法を用いた。発生したテラヘルツ波は、サンプルを透過させたのちに厚さ 300 μm の GaP を用いた電気光学 (EO) サンプリング法で検出した。ポンプ光をサンプルに照射したときと照射しないときの透過テラヘルツ波形を測定し、光キャリア存在下の複素光学伝導度スペクトルを求めた。低温測定には閉サイクル冷凍機を利用した。試料には、厚さ 1 mm および厚さ 20 μm の高抵抗シリコン単結晶を用い、励起後 2 ps の複素光学伝導度スペクトルを測定した。

3. 実験結果と考察

図 1 に、293 K で測定した複素光学伝導度スペクトルを示す。このスペクトルを、電子と正孔の両者を自由キャリアとして考慮した 2 成分のドルーデモデル（以下の式）で解析した。

$$\sigma(\omega) = ne^2 \left[\left(\frac{1}{m_e^* \gamma_e - i\omega} \right) + \left(\frac{1}{m_h^* \gamma_h - i\omega} \right) \right] \quad (1)$$

ここで、 n はキャリア密度、 e は電気素量、 m_e^* と m_h^* はそれぞれ電子と正孔の有効質量であり、 γ_e と

γ_h はそれぞれ電子と正孔の散乱確率である。第一項が電子の寄与を表し、第二項が正孔の寄与を表している。散乱確率は、電子—正孔散乱 γ_{e-h} と電子(正孔)—フォノン散乱 γ_{e-ph} (γ_{h-ph}) からなっており、次式で表される。

$$\gamma_e = \gamma_{e-ph} + \gamma_{e-h} \quad (2)$$

$$\gamma_h = \gamma_{h-ph} + \gamma_{e-h} \quad (3)$$

γ_{e-ph} (γ_{h-ph}) は化学ドーピングによりキャリアを注入したシリコンを対象とした直流伝導度測定から求められている[4]。それによれば室温で $\gamma_{e-ph} = 0.73$ THz, $\gamma_{h-ph} = 1.6$ THz であり、本研究でもこの値を用いて解析した。その結果、測定した複素光学伝導度スペクトルを 2 つのパラメータ(キャリア密度 n および電子—正孔散乱 γ_{e-h}) でフィッティングすることができる。図 1 の実線がフィッティングカーブであり、実験結果をよく再現している。

励起密度を変えながら複素光学伝導度スペクトルを測定し、上記の方法で解析することで γ_{e-h} のキャリア密度依存性を求めた。図 2 は、293 K で測定された γ_{e-h} のキャリア密度依存性である。キャリア密度が比較的低い領域では、 γ_{e-h} はほぼキャリア密度に比例している。これは、先行研究において報告されている通りであり[3]、キャリア数に比例して散乱確率が增大することを示している。一方、キャリア密度が高い領域では、線形の依存性から逸脱し、 γ_{e-h} が飽和するような挙動が観測された。これは、キャリア密度が高い領域では後述するクーロン力の遮蔽の効果が大きくなり、電子—正孔散乱が抑制されるためだと考えられる。

次に、温度を変化させながら複素光学伝導度スペクトルを測定し、 γ_{e-h} の温度依存性を求めた。その結果を、図 3 黒丸に示す。この測定では、キャリア密度が一定になるように励起密度を調整した。 γ_{e-h} の温度依存性については、過去に理論的研究が報告されている[1,2]。それによれば、系の温度がフェルミ温度よりも十分大きい場合(古典極限)には、キャリアを古典粒子として扱うことが可能であり、電子—正孔散乱はラザフォード散乱の機構とクーロン力の遮蔽によって支配される。その結果、電子—正孔散乱は低温になるほど増加する挙動が期待

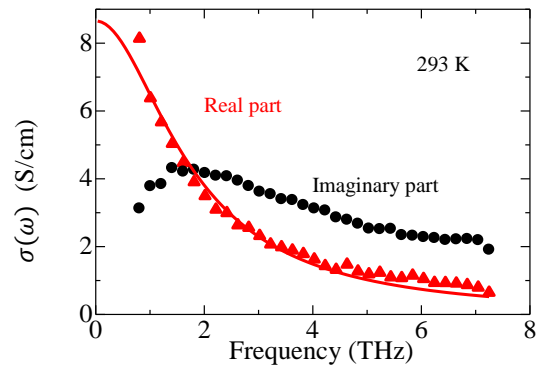


図 1. 複素光学伝導度スペクトル (293 K)。実線はフィッティングカーブ。

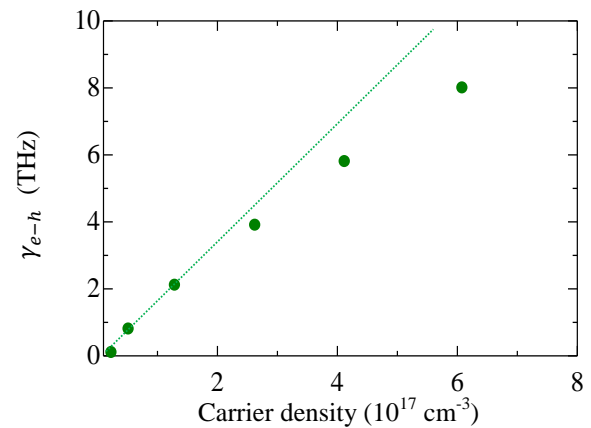


図 2. γ_{e-h} のキャリア密度依存性 (293 K)。ポンプ光の光子エネルギーは 1.77 eV。

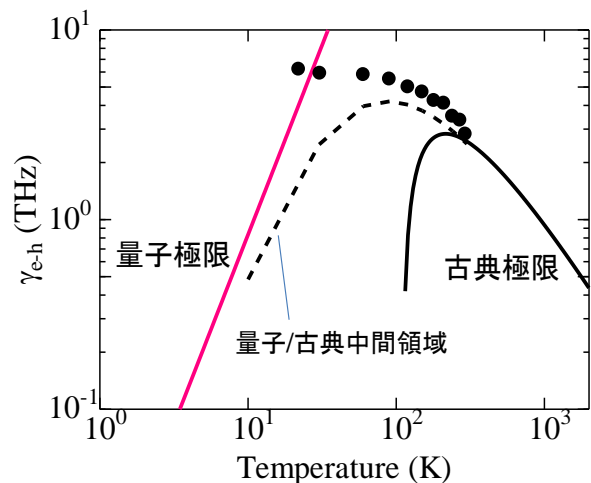


図 3. γ_{e-h} の温度依存性
黒丸が実験値、実線と破線が理論曲線

される。一方、系の温度がフェルミ温度よりも低い場合（量子極限）には、キャリアはフェルミ縮退状態を形成する。この場合には、散乱過程に寄与するキャリア数が減少するため、電子-正孔散乱は減少する。温度がフェルミ温度に近くなると、古典的な効果と量子的な効果が複合すると考えられる。以上の理論に基づいて計算した理論曲線を、図3に実線と破線で示す。300 K以上では、古典極限と中間領域の理論曲線は一致する。実験で求まる γ_{e-h} は、300 Kでは中間領域の理論曲線とほぼ一致しており、低温になるにつれて理論曲線からわずかに逸脱するものの、100 K付近まで理論曲線と定性的に同じ挙動を示す。この温度領域での実験値と理論値の違いの原因は、電子-電子散乱の寄与だと考えられる。多くの半導体では、同符号のキャリア間の散乱は伝導度に影響しないと考えられているが [3]、シリコンのように伝導帯のバンド構造が異方性を持つ場合、電子-電子散乱の効果が無視できなくなることが示唆されている[2]。理論曲線はこの効果を考慮していないため、散乱確率を実験値よりも低く見積もってしまったものと考えられる。80 K以下では、理論曲線は量子効果を反映して減少に転じるが、実験ではこの減少は観測されなかった。この減少が生じない原因としては、光励起後にキャリアが持つ余剰エネルギー($h\nu - E_g$) ($h\nu$ はポンプ光のエネルギー、 E_g はバンドギャップ) が電子-正孔系の温度上昇を引き起こし、実効的なキャリアの温度が格子の温度よりも高くなっていることが考えられる。実際に、先行研究によって、293 Kでは励起後 2 ps でキャリアと格子は熱平衡に達する[5]のに対し、30 Kおよび60 Kでは熱平衡に達するまでに400 psの時間がかかることが示唆されている[6]。

4. まとめと今後の課題

可視ポンプ・テラヘルツプローブ分光測定によってシリコンの過渡複素光学伝導度スペクトルを測定した。そのスペクトルを解析することで、シリコンの光キャリア散乱機構を調べた。解析によってフォノン散乱の寄与と電子-正孔散乱の寄与を分離することで、電子-正孔散乱のキャリア密度依存性と温度依存性を評価することに成功した。これを過去の理論を用いて計算した値と比較し、次のような知見と課題を得た。古典極限の領域である300 Kでは、実験値と理論値が定量的に一致する。また300 Kから100 Kまでの温度領域で、実験値は中間領域の理論値と定性的に一致する。これらのことから、100 K以上の高温領域では、電子-正孔散乱の機構は、ラザフォード散乱の機構とクーロン力の遮蔽で説明できることが分かった。一方、より低温領域において、理論的計算で現れている量子効果に基づく γ_{e-h} の減少は、実験では観測されなかった。これは、励起後2 psではキャリアの実効的な温度が高くなっていることが原因だと考えられる。量子効果を観測するためには、キャリアの温度を低く保ったうえで測定を行う必要がある。これを達成する実験手法の開発が今後の課題である。

参考文献

- [1] M. Combescot *et.al.*, Physical Review B **35** 7986(1987)
- [2] Bo. E. Sernelius, Physical Review B **43**, 7136(1991)
- [3] E. Hendry *et.al.*, Physical Review B **75**, 233202(2007)
- [4] S. M. Sze, Semiconductor Devices: Physics and Technology, 2nd, (Wiley, New York, 1986).
- [5] T. Ichibayashi *et.al.*, Physical Review B **84**, 235210(2011)
- [6] T. Suzuki *et.al.*, Physical Review B **83**, 085207(2011)

学会発表

1. 日本物理学会第68回年次大会

「可視ポンプ・テラヘルツプローブ分光によるSiの光キャリアダイナミクスの研究」他1件