

光ポンプ-テラヘルツプローブ分光装置の開発と その電荷キャリアダイナミクスへの応用

(神戸大院・理¹, 分子フォト²) ○平岡 翔¹, 太田 薫², 富永 圭介^{1, 2}

Development of the optical pump - terahertz probe spectrometer and its application to the charge carrier dynamics

(¹Graduate School of Science and ²Molecular Photoscience Research Center, Kobe University)

○Sho Hiraoka¹, Kaoru Ohta², and Keisuke Tominaga^{1,2}

[序] 半導体中における電荷キャリアの特性を調べる事は光エレクトロニクス等の基礎となりうる。半導体を光で励起することにより電荷キャリアが生成されると、テラヘルツ帯(0.1~10 THz)の幅広い領域に吸収を持つ。そのため、超短パルス光を用いた光ポンプ-テラヘルツプローブ分光法により、半導体中の電荷キャリアダイナミクスを実時間で追跡することができる。特に、分光学的手法を用いることで、非接触で半導体試料のキャリア密度や移動度を測定することが可能になる。本研究では、光ポンプ-テラヘルツプローブ分光装置の開発を行い、電子励起状態での電荷キャリアダイナミクスの観測を試みた。ここでは、高出力フェムト秒パルスにより発生させたエアプラズマを利用し、広帯域テラヘルツ波を発生、検出する装置を開発した。[1] また、いくつかの典型的な試料の測定を行い、高波数領域も含めた電荷キャリアダイナミクスの観測とその結果の解釈を行う事を目指した。[2, 3]

[実験] 光ポンプ-テラヘルツプローブ分光では、チタンサファイア再生増幅器の出力の基本波または第二高調波により試料を励起し、その後のテラヘルツ帯におけるスペクトルの変化を観測することができる。図1に本研究で開発した装置の模式図を示す。

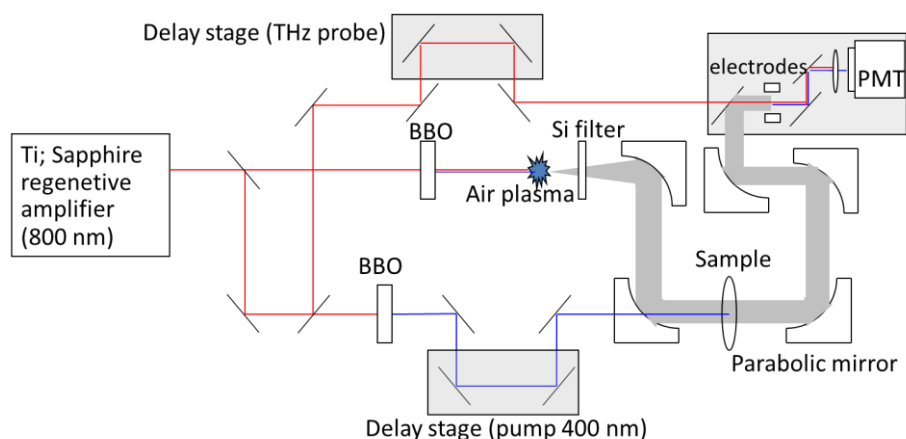


図1. 光ポンプ-テラヘルツプローブ分光装置模式図

チタンサファイア再生増幅器（中心波長 800 nm、繰り返し 1 kHz）からの出力を三つに分け、ポンプ光、テラヘルツ波の発生、検出用のプローブ光に用いた。プローブ光となるテラヘルツ波は基本波と、BBO 結晶を通過させることにより得た第二高調波を空気中で集光し、生成

したエアプラズマ中での非線形相互作用により発生させた。またテラヘルツ波の検出は、試料を透過したテラヘルツ波(E_{THz})と基本波(E_{ω})を電極間に集光させ、空気中で発生する第二高調波を利用した。ここで、外部電極からのバイアス電圧を加えることで、発生する第二高調波は式(1)のように表される。

$$E_{2\omega} \propto \chi^{(3)} E_{\omega} E_{\omega} (E_{THz} + E_{LO}) \quad (1)$$

式(1)から第二高調波の強度は式(2)のように表される。

$$I_{2\omega} \propto (\chi^{(3)})^2 I_{\omega}^2 (E_{THz}^2 + 2E_{THz} E_{LO} + E_{LO}^2) \quad (2)$$

ここで、 E_{LO} は電極からの外部電場、 $\chi^{(3)}$ は三次の非線形感受率である。第二高調波はボックスカー積分器を用いて検出している。外部電圧を+1.5 kV と-1.5 kV とし、500 Hz で変調させることにより式(2)のテラヘルツ波の電場に比例する第二項のみを第二高調波の光強度の検出から得る事ができる。ポンプ光は 250 Hz で変調し、ポンプ-プローブ信号を得た。

試料には、GaAs(100)基板、および典型的な有機半導体ポリマーであるポリ(3-ヘキシルチオフェン-2,5-ジイル ; P3HT)を用いた。P3HT に関しては、クロロホルムに溶解させた後、基板にドロップキャストすることによりフィルム状のサンプルを作製した。

[結果と考察] 図 2 に窒素雰囲気下で生成・検出を行ったテラヘルツ波の電場のパワースペクトルを示す。図 2 から約 20 cm^{-1} ~ 300 cm^{-1} 程度までのテラヘルツ波が発生・検出できていることを確認した。

また、試料に GaAs 基板を用いて得た光ポンプ-テラヘルツプローブ信号の結果を図 3 に示す。ここで ΔE はポンプ光あり、なしの場合のテラヘルツ波の電場の差を表し、ポンプ光とプローブ光の遅延時間 (τ) は 2 ps である。図 3 からは、プローブ光の遅延時間後期にわたるまで続く振動成分が見られる。これは、約 8 THz 付近に存在する GaAs のフォノン吸収を反映したものと考えられる。

発表では、得られたポンプ-プローブ信号から電気伝導度を求め、P3HT も含めた議論を行う。

[参考文献]

- [1] J. Dai, X. Xie, and X.-C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 103903 (2006).
- [2] O. Eseturk, J. S. Melinger, and E. J. Heilweil, *J. Appl. Phys.* **103**, 023102 (2008).
- [3] M. C. Beard, G. M. Turner, and C. A. Schmuttenmaer, *Phys. Rev. B*, **62**, 15764 (2000).

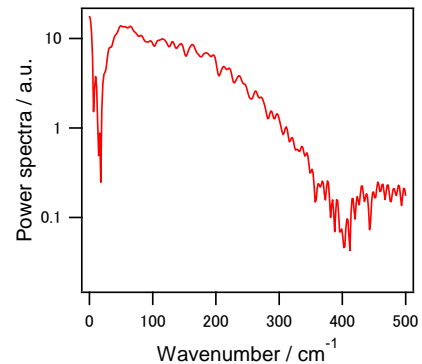


図 2. 窒素雰囲気下でのパワースペクトル

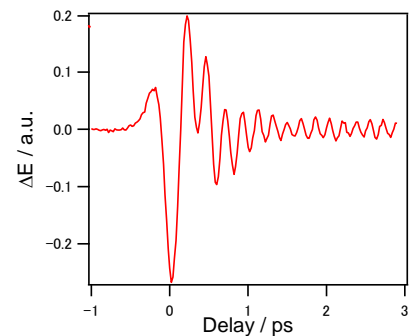


図 3. $\tau = 2 \text{ ps}$ での GaAs からの差信号