

令和 2 年 6 月 17 日現在

機関番号：13102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03232

研究課題名(和文)室温テラヘルツ利得をもつ半導体超格子の構造精巧化と外部共振器制御

研究課題名(英文) Structural elaboration and external cavity control of semiconductor superlattices with room-temperature terahertz gain

研究代表者

鷓沼 毅也 (Unuma, Takeya)

長岡技術科学大学・工学研究科・准教授

研究者番号：20456693

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,200,000円

研究成果の概要(和文)：バイアスされたGaAs系の半導体超格子に対して、内部構造に依存した電子波動関数の空間的形状および分布がテラヘルツ利得の温度特性やバイアス電場特性に重要な要素であることを見出した。特に、孤立した超格子ミニバンドにおけるブロッホ振動に由来した利得のスペクトル線幅、および強いミニバンド間相互作用の存在下におけるブロッホ振動の位相シフトを上記の観点で定量的に説明することができた。また、平面状電極と外部共振器の役割を兼ねた金属メタマテリアルを設計し、超格子試料へ導入した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

異なる半導体材料をナノレベルの厚さで周期的に積層させた半導体超格子について、室温でテラヘルツ電磁波の利得(増幅作用)があることに着目し、内部構造と外部構造の工夫によって利得を操るための新たな物理を提示した。電波と光の中間にあたるテラヘルツ電磁波の小型固体光源は様々な応用へ期待されているものの未だ発展途上にあるため、室温動作と周波数可変性を両立できる人工積層構造の長所を発展させたことに本研究の意義がある。

研究成果の概要(英文)：For biased semiconductor superlattices (SLs) composed of GaAs-based materials, the spatial shape and distribution of electron wavefunctions dependent on their internal structures were found to be significant factors in the characteristics of terahertz gain versus temperature and bias electric field. In particular, this insight allowed us to quantitatively understand the spectral linewidth of terahertz gain originating from Bloch oscillations in an isolated SL miniband and also the phase shift of Bloch oscillations in the presence of strong interminiband interaction. In addition, we designed a metal-based metamaterial serving as both a planar electrode and an external cavity and introduced it into SL samples.

研究分野：半導体物性

キーワード：半導体超格子 テラヘルツ 光学利得 量子ビート トンネル効果 非平衡系

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) テラヘルツ波は THz (= 10^{12} Hz) の周波数をもつ電磁波であり、電波と光の中間に位置する。テラヘルツ波の長所を生かした高速無線通信や非破壊検査などの応用を促進するために、小型で使いやすいテラヘルツ固体光源の開発が課題の一つとなってきた。しかし、従来のエレクトロニクスとフォトニクスで培われてきた基本概念や技術をこの周波数領域へそのまま適用することには限界がある。特に、固体光源の室温動作や周波数可変性を実現する上で新たな工夫が求められている。

研究代表者らは、半導体超格子が低温のみならず室温でもテラヘルツ波の利得 (増幅作用) を有することを、2016 年に実証した [A. Naka, K. Hirakawa, and T. Unuma, *Appl. Phys. Express* **9**, 112101 (2016)]。半導体超格子は、異なる半導体材料をナノレベルの厚さで周期的に積層させた人工結晶であり、周期的構造に由来したエネルギーバンド (ミニバンド) をもつ。積層方向へ直流バイアス電場 F が印加された場合、ミニバンドは等間隔の離散的エネルギー準位群 (シュタルクラダー) に分裂し、準位間隔 eFd に対応する固有周波数 eFd/h (e : 素電荷, d : 超格子周期, h : プランク定数) は F による可変性でテラヘルツ領域を幅広くカバーしうる。

(2) シュタルクラダーにおいて、電子は全ての離散的準位へ均等に (反転分布を伴わずに) 分配され、光パルス照射で作られる場合には (テラヘルツ利得と等価な性質として) 特殊な位相の量子ビート (うなり) を示す [T. Unuma *et al.*, *Phys. Rev. B* **81**, 125329 (2010)]。このうなり現象は eFd/h の周波数で生じ、ブロッホ振動と呼ばれる。しかしシュタルクラダーは、ミニバンドが孤立していると見なせる状況に限られた概念と考えられており [K. Leo, *High-Field Transport in Semiconductor Superlattices* (Springer, 2003)], さらに積層方向へ直流バイアス電場を印加するための二つの電極を暗に仮定している。これらの前提条件が満たされないときに、ブロッホ振動とテラヘルツ利得がどのような影響を受けるのかはよく調べられていなかった。

応用上、格子振動によって離散的準位のブロードニングが大きくなることや、バイアス電場を高くするにつれてミニバンド間相互作用が大きくなることから、上記の前提条件を乱す重要な要因として挙げられる。また、テラヘルツ利得を生かすための共振器を超格子試料へ導入する際に、電極との共存は強い制約の要因となる。これらのような要因について物理的理解を深め、試料構造の設計・作製面から有効な制御方法を見出していく必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、半導体超格子の内部構造と外部構造に独自の工夫を凝らし、テラヘルツ利得を制御する上での鍵となる物理的要素を明らかにすることを目的とした。超格子内部の積層構造を精巧に設計・作製することにより、電子波動関数の空間的形勢および分布を大きく変化させ、利得に対する格子振動やミニバンド間相互作用の影響を理解し整えることを目指した。また、外部に平面状電極と共振器を兼ねる新たな人工物質 (金属メタマテリアル) を設計・作製することにより、デバイス構成上の制約を軽減しつつブロッホ振動と共振させることを目指した。

3. 研究の方法

(1) 半導体超格子試料の設計と作製

材料パラメータと結晶成長法が確立されている GaAs 系材料 (GaAs, AlAs, $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$) で井戸層/バリア層 (電子にとってそれぞれエネルギーの低い層/高い層) を構成し、これらの層を周期的に繰り返した超格子構造を設計した。まず、クローニヒ・ペニーモデルを用いて、ミニバンドが伝導バンドと価電子バンドの中にどう配置されるのかを計算することができる。さらに、有限要素法を用いてシュレーディンガー方程式を数値的に解き、直流バイアス電場が印加された場合の波動関数とエネルギー準位を求めることができる。各層の厚さと材料を調整しながらこれらの計算を繰り返すことにより、実験のねらいに応じた複数の超格子試料を設計した。

例えば、GaAs (7.5 nm)/AlAs (0.5 nm) 超格子は、伝導バンド中に幅 45 meV のほぼ孤立した第 1 ミニバンド (最もエネルギーの低いミニバンド) をもつため、単一ミニバンドでブロッホ振動を発生させテラヘルツ利得を調べるのに適している。また、GaAs (16.3 nm)/ $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ (1.0 nm) 超格子は、伝導バンド中に第 1 ミニバンド (幅 14.8 meV) と第 2 ミニバンド (幅 47.9 meV) を間隔わずか 8.4 meV でもつため、2 つのミニバンドをバイアス電場の下で強く相互作用させた状況を調べるのに適している。超格子構造の積層は、分子線エピタキシー法を用いて n 型 GaAs (001) 基板に行った。このとき、材料が層ごとに切り替わっても、試料は基板を含めて全体で単結晶 (ひとつながりの結晶) となる。積層方向へバイアス電場を印加するため、試料の表面と裏面には電極加工を施した。

(2) 近赤外光のパルス照射によるテラヘルツ放射波形の測定

近赤外域の広い範囲で中心波長を調節できるフェムト秒パルスレーザーを本補助金で導入し、光パルス照射によって多様な GaAs 系超格子試料のテラヘルツ放射波形を測定できる分光装置を構築した。さらに、試料設置部にクライオスタットを導入し、試料温度を低温から室温以上まで変化させられるようにした。各温度において得られる放射波形の特徴は試料に印加される直流バイアス電場によって変化し、横軸を時間として (4) の方法で詳細に解析された。

さらに、光パルス照射によって伝導バンド中のミニバンドに作られた電子はバイアス電場を突然感じるため、放射波形はバイアス電場に対する電子集団のステップ応答を表す。この応答を複素フーリエ変換することによって、横軸を周波数としてテラヘルツ領域の利得スペクトルが得られた[T. Unuma *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 125329 (2010)]。利得スペクトルの特徴を、(5)の理論計算と比較しながら解釈した。

(3) 近赤外光の連続波照射による光電流スペクトルの測定

直流バイアス電場が印加された超格子試料ヘタングステンハロゲンランプからの近赤外光を照射し、生じる電流を光波長に対するスペクトルデータとして測定できる分光装置を構築した。バイアス電場下における離散的エネルギー準位の形成に応じて、電子は特定の波長の近赤外光を強く吸収して価電子バンドから伝導バンドへ励起されるので、光電流スペクトルにはピークが現れる。バイアス電場に対するピークの系統的振る舞いを観測し、離散的準位の形成・消滅を評価した。

(4) テラヘルツ放射波形のフィッティング解析

ブロッホ振動の特徴を示しているテラヘルツ放射波形について、試料内に $e^{-t}\cos(\omega_B t + \alpha)$ 型の減衰振動電流 $J(t)$ が流れたと仮定して、 dJ/dt (放射電場に比例する量) でフィッティングを行った。フィッティングパラメータである固有周波数 $\omega_B/2\pi$ 、緩和時間 $1/\gamma$ 、および初期位相 α を解析から求めた。その際、放射波形の測定データにおける時間原点 (光パルス照射のピークで作られた電子がテラヘルツ放射を始める時刻) を、情報理論に基づいた最大エントロピー法 [T. Unuma *et al.*, Opt. Express **18**, 15853 (2010)] によって決定した (後述の、因果律に基づいた方法を用いることもできる)。

(5) 電子のフォノン散乱を考慮した利得スペクトル線幅の理論計算

電子の微視的散乱を考慮した利得スペクトル計算の理論的枠組み [T. Unuma *et al.*, J. Appl. Phys. **93**, 1586 (2003); Appl. Phys. Lett. **89**, 161913 (2006)] を拡張し、温度が高くなるほど重要となる格子振動 (フォノン) に電子が散乱される過程を取り入れた。(1) で得られた波動関数を用いて 80 K (-193°C) から 320 K (47°C) における利得スペクトル線幅をシミュレートし、(2) で得られた測定結果と定量的に比較することによって、各種フォノン散乱がどれだけ寄与しているかを調べた。

4. 研究成果

(1) 半導体超格子における室温以上のテラヘルツ利得の観測、および利得スペクトル線幅の温度依存性の解明

直流バイアス電場が印加された GaAs (7.5 nm)/AlAs (0.5 nm) 超格子試料のテラヘルツ利得を 320 K (47°C) まで観測することに成功し、デバイス動作においてある程度の発熱を想定しても室温付近の利得特性に大きな影響がないことを明らかにした。さらに、80 K (-193°C) からの温度上昇において LO フォノン (longitudinal optical phonons) の吸収を伴う電子散乱過程が利得スペクトル線幅の増加を支配していること、およびその物理的理由がバイアス電場下における電子波動関数の空間分布にあることを初めて見出した。これは、半導体超格子の構造精巧化において得られた一つの重要な知見である。

(2) ミニバンド間相互作用が強い半導体超格子におけるテラヘルツダイナミクスと電子状態の系統的理解

① ブロッホ振動の位相シフト

GaAs (16.3 nm)/Al_{0.1}Ga_{0.9}As (1.0 nm) 超格子試料において、直流バイアス電場を印加してミニバンド間相互作用の強さを変化させながらテラヘルツ放射波形を測定したところ、低いバイアス電場に対して電子が数回のブロッホ振動を行い、より高いバイアス電場に対して電子がミニバンド間でジューナートンネリングする様子を観測できた (図 1)。80 K (-193°C) から 300 K (27°C) の温度範囲においてブロッホ振動の初期位相は温度に依らず、通常と比べてほぼ 90° ($\pi/2$ rad) だけシフトしていることを初めて見出した (図 2)。さらに、温度上昇に伴うエネルギー準位のブロードニングがこのテラヘルツダイナミクスへどう影響しているかを考察した。

② 電子波動関数の非局在化

電子状態 (波動関数とエネルギー準位) の数値的シミュレーションを行ったところ、通常はバイアス電場下において空間的に限られた範囲のみで大きな値をもつ (ワニエ・シュタルク局在する) 波動関数が、強いミニバンド間相互作用のため空間的に著しく広がっていることが明らかになった。波動関数の空間的広がりに基づいてブロッホ振動の物理的モデルを適切に選ぶと、初期位相が 90° だけシフトするという①の実験結果をよく説明できることが分かった。

③ 離散的エネルギー準位の形成と消滅

電子状態の評価を光電流スペクトルのピークから行ったところ、低いバイアス電場に対して離散的エネルギー準位の間隔がほぼ比例しながら変化し、より高いバイアス電場に対して離散

的準位が徐々に消滅していく様子を観測できた。この振る舞いは、②のシミュレーション結果とよく対応していることが分かった。さらに、温度上昇に伴って離散的準位がブロードになる様子も、80 K (-193°C) から 300 K (27°C) の温度範囲で捉えられた。

上記①～③の成果は、テラヘルツ利得の発生に本質的なブロッホ振動の初期位相が波動関数の局在性によって決まることを意味し、半導体超格子の構造精巧化において得られた二つ目の重要な知見である。

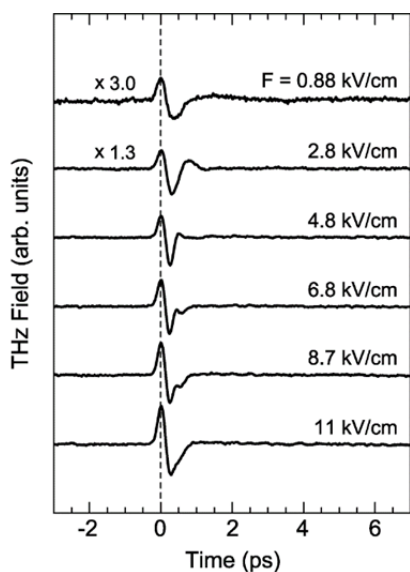


図 1 ミニバンド間相互作用が強い超格子試料 (80 K) におけるテラヘルツ放射波形のバイアス電場 F に対する依存性 [5 の雑誌論文 T. Unuma and S. Maeda, Appl. Phys. Express **12**, 041003 (2019) より引用]

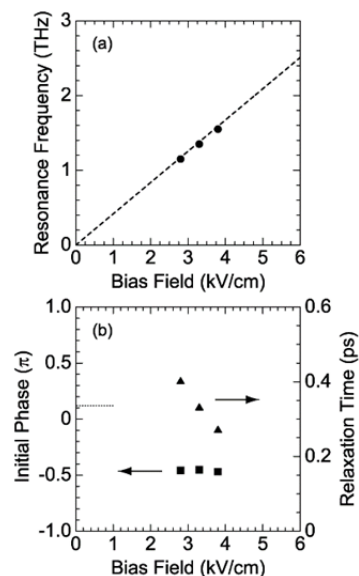


図 2 ミニバンド間相互作用が強い超格子試料 (80 K) におけるブロッホ振動の固有周波数, 初期位相, 緩和時間 [5 の雑誌論文 T. Unuma and S. Maeda, Appl. Phys. Express **12**, 041003 (2019) より引用]

(3) 外部共振器の性能評価および半導体超格子への導入

平面状電極と外部共振器の役割を兼ねる金属メタマテリアルを高抵抗シリコン基板の表面に試作し、テラヘルツ波を透過させて単体での性能を評価したところ、設計から期待された通りに特定の偏光に対してのみ 2.0 THz 付近に共振周波数を示すという結果が得られた。さらに、この金属メタマテリアルを GaAs 系超格子試料の表面へ導入することに成功し、形状の変更によって共振周波数を調節できることも見出した。詳細については、今後の学会発表・論文発表の中で提示していく予定である。

(4) その他の知見

テラヘルツ放射分光における時間原点決定法について、研究代表者らが以前に報告している因果律に基づく手法 [T. Unuma *et al.*, Opt. Express **19**, 12759 (2011)] を一般化し、テラヘルツ放射に瞬时分極の寄与が含まれる場合にも適用可能な枠組みを開発した。因果律は物理の基本概念であり、原因 (光パルスの照射) の前に結果 (テラヘルツ放射) は生じないという観点から時間原点の決定に高い精度をもたらすことが分かった。上記 (1)～(3) の成果を今後さらに発展させていく上で、ブロッホ振動と瞬时分極が同時に発生する状況もありうるため、この時間原点決定の新しい枠組みは有用であると期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 T. Unuma and A. Matsuda	4. 巻 112
2. 論文標題 Temperature-dependent spectral linewidths of terahertz Bloch oscillations in biased semiconductor superlattices	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 162107-1~4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5024342	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Unuma and K. Minami	4. 巻 27
2. 論文標題 Generalized framework for determining time origin in terahertz emission spectroscopy on the basis of causality	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 5136~5143
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.27.005136	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 T. Unuma and S. Maeda	4. 巻 12
2. 論文標題 Phase shift of terahertz Bloch oscillations induced by interminiband mixing in a biased semiconductor superlattice	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 041003-1~4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7567/1882-0786/ab0514	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 3件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Takeya Unuma, Akiyoshi Naka, and Kaz Hirakawa
2. 発表標題 Room-temperature THz gain of biased semiconductor superlattices revealed by phase-sensitive measurements of Bloch oscillations
3. 学会等名 The Twelfth Japan-Finland Joint Symposium on Optics in Engineering（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 T. Unuma, A. Matsuda, A. Naka, and K. Hirakawa
2. 発表標題 Inversionless terahertz gain in semiconductor superlattices up to room temperature and above
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Ultrafast Phenomena and Terahertz Waves (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鶴沼毅也
2. 発表標題 ナノ構造半導体・有機半導体における弱局在電子系のテラヘルツ応答
3. 学会等名 強光子場科学研究懇談会 2018年度第3回懇談会(講演会)(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松田亜玲歩, 鶴沼毅也
2. 発表標題 GaAs系超格子におけるプロッホ振動の緩和時間の温度依存性
3. 学会等名 平成29年度応用物理学会北陸・信越支部学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 前田秀平, 鶴沼毅也
2. 発表標題 ミニギャップの狭いGaAs系超格子におけるテラヘルツ放射の印加電圧依存性
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 前田秀平, 鷗沼毅也
2. 発表標題 ミニバンド間相互作用の強いIGaAs/AlGaAs超格子におけるプロッホ振動の位相シフト
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

長岡技術科学大学 工学研究科電気電子情報工学専攻 量子半導体エレクトロニクス研究室ホームページ
<https://quantum.nagaokaut.ac.jp>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	玉山 泰宏 (Tamayama Yasuhiro) (50707312)	長岡技術科学大学・工学研究科・准教授 (13102)	
研究協力者	平川 一彦 (Hirakawa Kazuhiko)		
研究協力者	秋山 英文 (Akiyama Hidefumi)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 協力 者	金 昌秀 (Kim Changsu)		