

平成21年 5月29日現在

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2006～2008

課題番号：18340090

研究課題名（和文） 半導体量子構造におけるテラヘルツ電磁波発生機構

研究課題名（英文） Generation mechanism of terahertz electromagnetic waves in semiconductor quantum structures

研究代表者

中山 正昭 (NAKAYAMA MASAOKI)

大阪市立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30172480

研究成果の概要：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フォノン（位相の揃った縦型光学格子振動）から、高強度かつ高単色性のテラヘルツ（THz： 10^{12} Hz）電磁波が発生する機構を明らかにした。また、励起子（電子と正孔のクーロン束縛状態）の量子干渉効果（2種類の励起子状態の量子力学的干渉）がコヒーレントフォノンの駆動力となり、THz電磁波が増強されることを実証した。さらに、GaAs/AlAs 超格子を試料として、電場による電子・正孔波動関数の局在過程において、THz 領域で振動数可変のブロッホ振動（電子・正孔波束のコヒーレント振動現象）の新奇な振る舞いを見いだした。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	8,700,000	2,610,000	11,310,000
2007年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2008年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
年度			
年度			
総計	15,000,000	4,500,000	19,500,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：テラヘルツ電磁波、多重量子井戸構造、超格子、コヒーレント光学フォノン、ブロッホ振動、光ゲーティング法、ポンプ・プローブ分光、ワニエ・シュタルク局在

1. 研究開始当初の背景

本研究の主課題の一つであるコヒーレント光学フォノンによる THz 電磁波発生については、バルク結晶を対象とした研究がなされているが、極めて微弱な電磁波しか発生できないというのが通説であった。研究代表者は、長年にわたる半導体量子構造のフォノンに関する研究から、光学フォノンの量子閉じ込めによる並進対称性の破れが、強い THz 電磁波の発生に本質的であると考えた。これは一種の「コロンブスの卵」的発想であり、本

来が THz 領域の分極振動である光学フォノンから、バルク半導体では強い THz 電磁波が発生しないということは、結晶内部で並進対称性による分極のキャンセレーションが生じているためである。したがって、半導体量子構造特有の量子閉じ込め効果により、ヘテロ接合界面においてフォノンの並進対称性を破り、かつ、フェムト秒パルスレーザー励起によって生成された各層でのコヒーレントフォノンの同位相分極振動の重ね合わせを生じせしめることにより、高強度で高単色

性のテラヘルツ電磁波を発生させることが可能であるという着想に至った。

次に、超格子におけるブロッホ振動について述べる。ブロッホ振動は、Wannier-Stark (WS) 局在と密接に関連している。WS 局在とは、超格子の成長方向に電場(F)を印加した場合、ミニバンド形成の要因である共鳴トンネル条件が破綻して、電子・正孔波動関数が局在化し、固有状態が eFD (D は超格子周期) のエネルギー間隔条件で量子化される現象を意味する。この WS 局在の時間領域現象がブロッホ振動であり、そのブロッホ振動数は $\nu = eFD/h$ で定義され、電場強度 F によって波長可変な THz 電磁波を発生する。従来の研究では、まず「ブロッホ振動ありき」であり、ブロッホ振動の生成過程に関しては全く注目されていなかった。

2. 研究の目的

半導体量子構造 (多重量子井戸構造、超格子) を対象として、フェムト秒パルスレーザー励起によって誘起されるテラヘルツ (THz) コヒーレント現象 (コヒーレントフォノンとブロッホ振動) からの THz 電磁波発生機構を時間領域コヒーレント振動の観点から解明し、従来の手法では未踏であった高強度、高単色性 (長い位相緩和時間) の THz 電磁波光源を開拓するための物性物理学的基礎を確立する。その具体的項目を以下に記す。

(1) 半導体量子構造における量子閉じ込めコヒーレント光学フォノンからの THz 電磁波発生機構:

- ① 閉じ込め効果によるフォノンの並進対称性の破れと THz 電磁波発生との関連。
- ② 励起子-フォノン相互作用による THz 電磁波の増強 (増幅)。

(2) 超格子におけるブロッホ振動からの THz 電磁波発生機構:

- ① ミニバンド状態からブロッホ振動の物理学的起源である WS 局在状態への移行過程と THz 電磁波発生機構との関連。
- ② 光励起条件の選択によるブロッホ振動 (光励起波束) の制御

3. 研究の方法

試料は、分子線エピタキシー法により結晶成長した多様な層厚の GaAs/AlAs 多重量子井戸構造と超格子である。また、バイアス電圧 (電場) を印加するために、p-i-n ダイオード構造 (i 層が多重量子井戸または超格子) の試料を使用した。

THz 電磁波の測定は、光源として波長可変フェムト秒パルスレーザー (パルス幅: 50fs, 繰り返し: 80MHz) を使い、低温成長 GaAs 上にパターンニングしたダイポールアンテナを利用し光ゲーティング法で時間領域信号を測定した。ブロッホ振動の研究では、波

長可変フェムト秒パルスレーザー (パルス幅: 80fs, 繰り返し: 75MHz) を光源として、ポンプ・プローブ法による測定を行った。

各試料の励起子遷移エネルギーの測定には、光変調反射分光法、電場変調反射分光法、光電流分光法を用いた。

4. 研究成果

(1) 低温領域での縦光学(LO)フォノンからの THz 電磁波発生とその特徴

図 1 (a)は、(GaAs)₃₅/(AlAs)₃₅ 多重量子井戸構造 (50 周期) と GaAs 薄膜 (バルク結晶の参照試料) の 150K における時間領域 THz 信号である。ここで、試料の添字は、原子層 (monolayer, ML=0.283nm) 単位の層厚を示している。0ps 近傍のシングルショット信号は、光励起キャリアの過渡電流によるものであり、通常の THz 分光の研究ではこれが対象となっている。シングルショット信号の後の振動構造が GaAs 型コヒーレント LO フォノンによる THz 電磁波である。図 1 (b)は、図 1 (a) の時間領域信号のフーリエ変換スペクトルである。0~4THz 近傍までのブロードなスペクトルが、時間領域信号のシングルショット信号によるものであり、8.7THz のシャープな信号がコヒーレント LO フォノンに対応する。

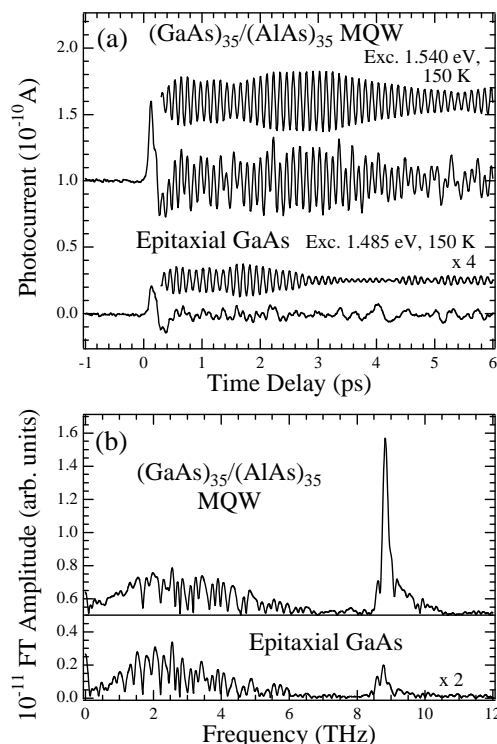


図 1 (a) : (GaAs)₃₅/(AlAs)₃₅ 多重量子井戸構造 (50 周期) と GaAs 薄膜 (バルク結晶の参照資料) の 150K における時間領域 THz 信号。(b) (a) の時間領域信号のフーリエ変換スペクトル。

図1は、以下のことを示している。

① 多重量子井戸構造のコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波は、参照試料の GaAs 薄膜よりも圧倒的に強い。

② コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波は、緩和時間が極めて長い。これは、高単色性を意味している。

以下では、これらの物理的原因について考察する。

(GaAs)₃₅/(AlAs)₃₅ 多重量子井戸構造におけるコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波の周期数依存性 (20~100 周期) を測定したところ、THz 電磁波強度は、周期数に比例するという結果が得られた。この結果は、各 GaAs 層で生成された THz 電磁波が、同位相で重なり合って強め合っていることを意味している。これは、LO フォノンが各層で閉じ込められて、界面において対称性が破れているために、振動分極のキャンセレーションが生じないことを反映している。尚、THz 電磁波のパワーは、10K で μW オーダーである。

緩和時間が極めて長いのは、多重量子井戸構造ではフォノン分散が量子化されるためである。光学フォノンの緩和は、一般に音響フォノンへの散乱に起因する。バルク結晶では、散乱過程におけるエネルギーと波数の保存則は容易に満たされるが、多重量子井戸構造では、フォノン分散の量子化のために上記の保存則を満足することが難しい。このために、音響フォノンへの散乱が抑制されて、極めて長く振動が維持される。

以上が、多重量子井戸構造におけるコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波発生の特徴であり、高強度かつ高単色性が実現できている。尚、励起エネルギー依存性に関しては、励起子エネルギー近傍での励起が高効率である。

(2) 室温におけるコヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波の増強

低温では、上で述べたように、コヒーレント LO フォノンから高強度の THz 電磁波が発生できるが、室温では、位相がランダムな熱的フォノンによって攪乱を受けて、強度が大きく低下する。ここでは、室温で、THz 電磁波を増強する機構について述べる。

図2(a)は、(GaAs)_m/(AlAs)_m 多重量子井戸構造 (m=19~30) の室温における THz 電磁波時間領域信号を示している。図2(b)は、図2(a)のフーリエ変換スペクトルである。30ML の試料では、コヒーレント LO フォノンからの信号は微弱であり、上記の熱的フォノンによる攪乱の影響が明確に現れている。ここで注目すべきことは、コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波信号強度が、層厚に顕著に依存していることであり、21ML の試料が

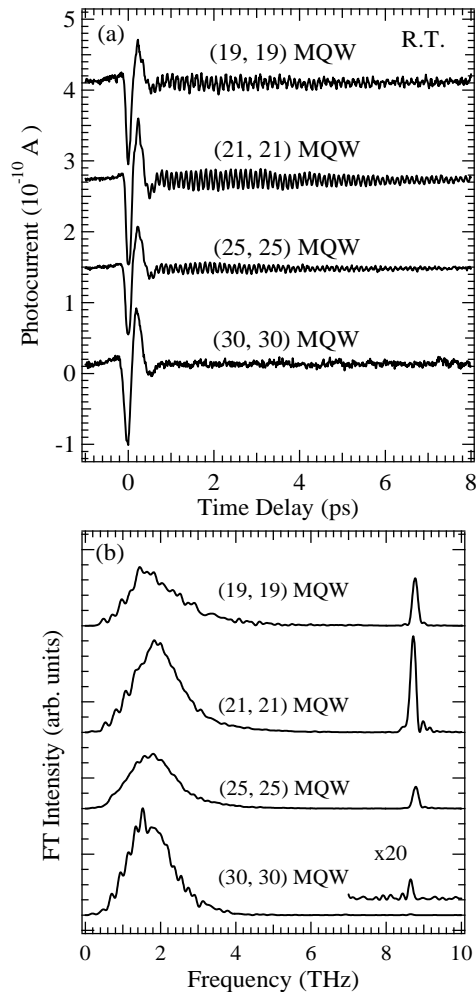


図2(a) : (GaAs)_m/(AlAs)_m 多重量子井戸構造 (m=19~30) の室温における THz 電磁波時間領域信号。(b) : (a)のフーリエ変換スペクトル

最大強度を示している。この結果は、コヒーレント LO フォノンが、層厚の調整によって増強できることを意味している。以下で、その増強機構について述べる。

図3は、(GaAs)_m/(AlAs)_m 多重量子井戸構造 (m=19~30) の室温における THz 電磁波強度の重い正孔(HH)励起子と軽い正孔(LH)励起子のエネルギー差依存性を示している。ここで、GaAs の LO フォノンエネルギーは、36meV である。図3から、コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波強度が、明確な共鳴増強を示していることが明らかである。そして、その共鳴条件は、試料の HH 励起子と LH 励起子のエネルギー差が、GaAs の LO フォノンエネルギーと一致する場合である。この結果から、電子系の HH 励起子と LH 励起子の量子干渉が、コヒーレント LO フォノンの駆動力として作用していると考えられる。21ML 試料のポンプ光エネルギー依存性の測定結果において、HH 励起子と LH 励起子の

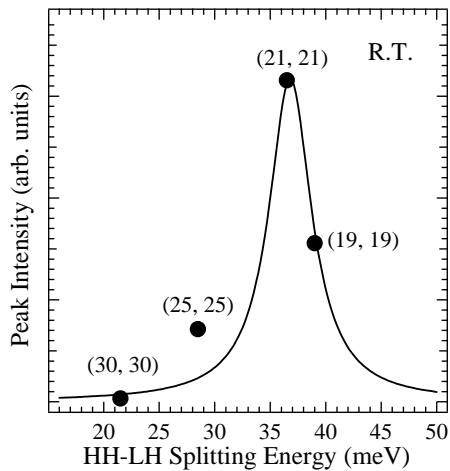


図 3 : $(\text{GaAs})_m/(\text{AlAs})_m$ 多重量子井戸構造 ($m=19\sim 30$) の室温における THz 電磁波強度の HH 励起子と LH 励起子のエネルギー差依存性

中心エネルギーにおいて (HH-LH 励起子量子干渉が生じる条件)、コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波強度が最大強度となった。この結果は、上記の考察の妥当性を支持している。また、電場印加条件での量子閉じこめシュタルク効果によって励起子エネルギーを制御し、同様の増強作用が生じることを明らかにしている。

コヒーレント LO フォノンからの THz 電磁波強度の緩和時間に注目すると、室温においても極めて長い。以上のことより、コヒーレント LO フォノンから、高強度で高単色性の THz 電磁波が室温においてさえ発生できることが明らかであり、今後の波及効果が期待できる。

(3) ブロッチ振動

GaAs (6.8nm)/AlAs(0.9nm)超格子を試料とし、反射型ポンプ・プローブ分光法を用いて、ブロッチ振動の振る舞いを詳細に研究した。尚、試料は、バイアス電圧を印加できるように p-i-n 構造となっている (i が超格子層)。本研究では、特に、ミニバンド状態から WS 局在状態への移行過程に着目した。

図 4 (a)は、GaAs (6.8nm)/AlAs(0.9nm)超格子における反射型ポンプ・プローブ信号のバイアス電圧依存性を示している。0V 周辺の振動周期が等しく緩和時間の長い振動は、ミニバンド状態における HH 励起子と LH 励起子の量子ビートである。即ち、このバイアス電圧領域では、ミニバンドは破綻していない。逆方向バイアスが -1V 近傍で、振動プロファイルが大きく変化していることが分かる。この振動プロファイルの変化が、ミニバンド状態が破綻し、WS 局在状態へ移行しているこ

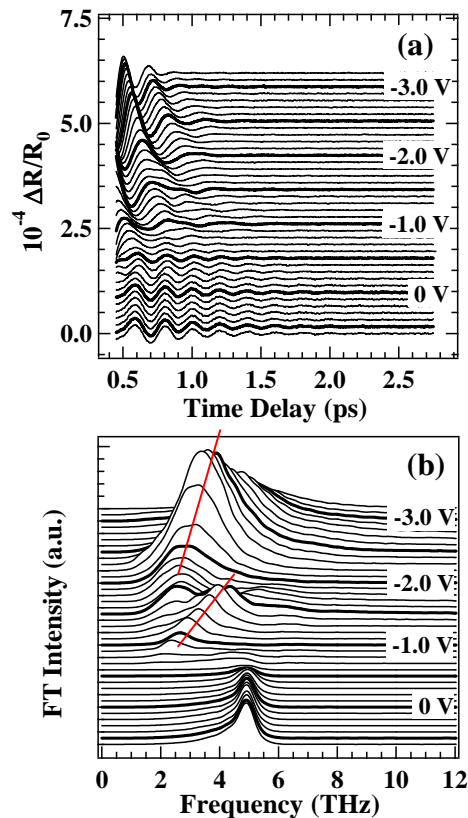


図 4 (a) : GaAs/AlAs 超格子における反射型ポンプ・プローブ信号のバイアス電圧依存性。 (b) : (a)のフーリエ変換スペクトル

とを示唆している。上記のミニバンド状態から WS 局在状態への移行過程は、電場変調反射分光法によるバンド間遷移エネルギーのバイアス電圧依存性の測定結果と矛盾無く一致している。

図 4 (b) は、図 4 (a)の時間領域信号のフーリエ変換スペクトルである。上で述べた振動プロファイルの劇的な変化が、フーリエ変換スペクトルから見て取れる。さらに、逆方向バイアスが大きい WS 局在領域では、フーリエ変換スペクトルのピーク振動数のバイアス電圧依存性に、2種類の領域があることが分かる。

図 5 (a)は、フーリエ変換スペクトルのピーク振動数のバイアス電圧依存性を定量的にまとめたものであり、図 5 (b)はその有効電場強度依存性を示している。ここで、有効電場強度とは、光励起キャリアによる電場に対するクーロン遮蔽効果を考慮したものである。最も注目すべきことは、通常の (常識的な) ブロッチ振動数である eFD/h が高電場領域で生じ、ミニバンドが破綻した直後の低電場領域では、 $2eFD/h$ の振動数を有する新奇なブロッチ振動が生じていることである。これまでのブロッチ振動に関する全ての研究では、 eFD/h の振動現象しか観測されておらず、 $2eFD/h$ の振動数を有するブロッチ振動は、本

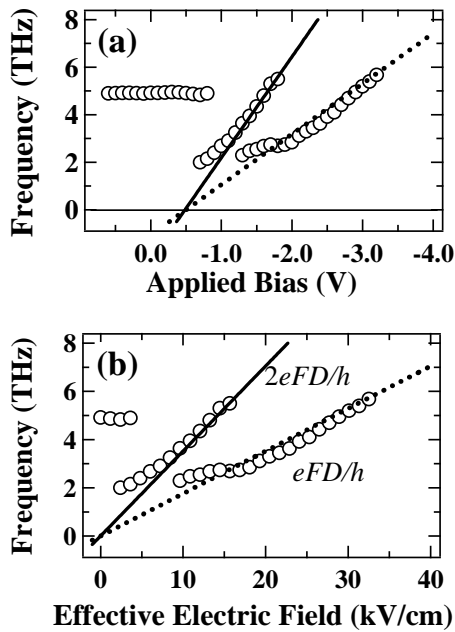


図5 (a): フーリエ変換スペクトルのピーク振動数のバイアス電圧依存性。(b): フーリエ変換スペクトルのピーク振動数の有効電場強度依存性

研究において初めて見いだされた。これについて、以下で考察する。

$2eFD/h$ の振動数を有するブロッホ振動は、2周期離れたWS局在状態の量子干渉に相当する。即ち、局在波動関数が、2周期離れた量子井戸まで十分な存在確率を有する場合(弱局在条件)、このような特異な現象が生じる。波動関数存在確率の数値計算の結果も、上記の弱局在性を裏付けている。

以上から、本研究によってブロッホ振動の本質的かつ新たな振る舞いが明らかとなった。従来の eFD/h の振動に加えて $2eFD/h$ の振動の存在は、THz電磁波発生源としてのブロッホ振動の振動数可変性を高めるものである。

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 10件)

- ① K. Mizoguchi, Y. Kanzawa, S. Saito, K. Sakai, and M. Nakayama, Enhanced terahertz emission from coherent longitudinal optical phonons in a quantum well structure under applied bias: Appl. Phys. Lett. **94**, pp.171105-1--171105-3 (2009). 査読有り
- ② T. Hasegawa, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, Pump-energy dependence of usual and unusual Bloch oscillations in a GaAs/AlAs superlattice: phys. stat. sol. (c) **6**,

- pp.264-267 (2009). 査読有り
- ③ M. Nakayama and K. Mizoguchi, Interactions between coherent optical phonons and excitonic quantum beats in GaAs/AlAs multiple quantum wells: strategy for enhancement of terahertz radiation from coherent optical phonons: phys. stat. sol. (c) **5**, pp.2911-2916 (2008). 査読有り
- ④ T. Hasegawa, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, Excitonic quantum beat at the mini-Brillouin-zone boundary in a GaAs/AlAs superlattice: J. Lumin. **128**, pp.1056-1058 (2008). 査読有り
- ⑤ M. Nakayama, S. Itoh, K. Mizoguchi, S. Saito, K. Akahane, N. Yamamoto, and K. Sakai, Enhancement of terahertz radiation from coherent optical phonons via impulsive interference of excitons in GaAs/AlAs multiple quantum wells: J. Lumin. **128**, pp. 1043-1045 (2008). 査読有り
- ⑥ M. Nakayama, S. Ito, K. Mizoguchi, S. Saito, and K. Sakai, Generation of intense and monochromatic terahertz radiation from coherent longitudinal optical phonons in GaAs/AlAs multiple quantum wells at room temperature: Appl. Phys. Express **1**, pp.012004-1--012004-3 (2008). 査読有り
- ⑦ T. Hasegawa, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, Observation of the second-nearest-neighbor Bloch oscillation in a GaAs/AlAs superlattice: phys. stat. sol. (c) **5**, pp.203-206 (2008). 査読有り
- ⑧ T. Hasegawa, K. Mizoguchi, M. Nakayama, Transformation process from quantum beats of miniband excitons to Bloch oscillations in a GaAs/AlAs superlattice under applied electric fields: Phys. Rev. B **76**, pp.115323-1--115323-6 (2007). 査読有り
- ⑨ M. Nakayama, K. Mizoguchi, O. Kojima, T. Furuichi, A. Mizumoto, S. Saito, A. Shouji, and K. Sakai, Terahertz radiation from coherent confined optical phonons in GaAs/AlAs multiple quantum wells: phys. stat. sol. (a) **204**, pp.518-521 (2007). 査読有り
- ⑩ K. Mizoguchi, A. Mizumoto, M. Nakayama, S. Saito, A. Shoji, K. Sakai, N. Yamamoto, and K. Akahane, Characterization of terahertz electromagnetic waves from coherent longitudinal optical phonons in GaAs/AlAs multiple quantum wells: J. Appl. Phys. **100**, pp.103527-1--103527-7 (2006). 査読有り

[学会発表] (計 17件)

- ① 大島悟郎, 神澤悠輔, 齋藤伸吾, 溝口幸司, 中山正昭, GaAs/AlAs多重量子井戸

- 中におけるコヒーレントL0フォノンからのTHz電磁波のコヒーレント制御(物理学会、2009年3月28日、立教大学)
- ② 長谷川尊之, 溝口幸司, 中山正昭, GaAs/AlAs超格子におけるシュタルク階段状態特有の重い正孔-軽い正孔励起子量子ビート (物理学会、2008年9月20日、岩手大学)
- ③ K. Mizoguchi, Y. Kanzawa, M. Nakayama, S. Saito, K. Sakai, Terahertz wave from coherent L0 phonon in a GaAs/AlAs multiple quantum well under an electric field (XVI International Conference on Ultrafast Phenomena, 12 June 2008, Stresa, Italy)
- ④ 長谷川尊之, 溝口幸司, 中山正昭, GaAs/AlAs超格子に埋め込まれた単一量子井戸における量子ビートに対する電場効果(物理学会、2008年3月25日、近畿大学)
- ⑤ M. Nakayama and K. Mizoguchi, Interactions between coherent optical phonons and excitonic quantum beats in GaAs/AlAs multiple quantum wells: strategy for enhancement of terahertz radiation from coherent optical phonons (34th International Symposium on Compound Semiconductors, 16 October 2007, Kyoto)
- ⑥ 神澤悠輔, 溝口幸司, 齋藤伸吾, 阪井清美, 中山正昭, 電場印加によるGaAs/AlAs多重量子井戸中のコヒーレントL0フォノンからのテラヘルツ電磁波の増強(物理学会、2007年9月23日、北海道大学)
- ⑦ 長谷川尊之, 溝口幸司, 中山正昭, GaAs/AlAs超格子における弱局在条件でのプロッホ振動(物理学会、2007年9月21日、北海道大学)
- ⑧ T. Hasegawa, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, Observation of the second-nearest neighbor Bloch oscillation in a GaAs/AlAs superlattice (15th International Conference on Nonequilibrium Carrier Dynamics in Semiconductors, 25 July 2007, Tokyo)
- ⑨ M. Nakayama, S. Itoh, K. Mizoguchi, S. Saito, K. Akahane, N. Yamamoto, and K. Sakai, Enhancement of terahertz radiation from coherent optical phonons via impulsive interference of excitons in GaAs/AlAs multiple quantum wells (16th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids, 19 June 2007, Segovia, Spain)
- ⑩ 伊藤修一, 溝口幸司, 山本直克, 赤羽浩一, 齋藤伸吾, 東海林篤, 阪井清美, 中山正昭, 室温におけるGaAs/AlAs多重量子井戸中のコヒーレントL0フォノンからのTHz電磁波発生(物理学会、2007年3月19日、鹿児島大学)
- ⑪ 悦田祥平, 溝口幸司, 中山正昭, GaAs/AlAs多重量子井戸構造における電場下での励起子量子ビートとコヒーレント縦光学フォノンの結合(物理学会、2007年3月19日、鹿児島大学)
- ⑫ 長谷川尊之, 溝口幸司, 中山正昭, GaAs/AlAs超格子におけるミニバンド状態励起子量子ビートからプロッホ振動への移行過程(物理学会、2007年3月19日、鹿児島大学)
- ⑬ 溝口幸司, 水元章裕, 中山正昭, 齋藤伸吾, 東海林篤, 阪井清美, 山本直克, 赤羽浩一, GaAs/AlAs多重量子井戸におけるコヒーレントL0フォノンからのテラヘルツ電磁波の電場依存性(物理学会、2006年9月26日、千葉大学)
- ⑭ 中山正昭, 励起子量子ビートによるコヒーレント光学フォノン制御:THz電磁波増幅の可能性(物理学会、2006年9月24日、千葉大学)
- ⑮ 長谷川尊之, 溝口幸司, 中山正昭, GaAs/AlAs超格子におけるミニバンド状態励起子量子ビート(物理学会、2006年9月24日、千葉大学)
- ⑯ M. Nakayama, K. Mizoguchi, O. Kojima, T. Furuichi, A. Mizumoto, S. Saito, A. Shouji, and K. Sakai, Terahertz radiation from coherent confined optical phonons in GaAs/AlAs multiple quantum wells (International Conference on Superlattices, Nano-structures and Nano-devices, 1 August 2006, Istanbul, Turkey)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中山 正昭 (NAKAYAMA MASA AKI)
 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

溝口 幸司 (MIZOGUCHI KOHJI)
 大阪府立大学・大学院理学研究科・教授
 研究者番号：10202342

(3) 連携研究者

なし。