

令和 6 年 6 月 18 日現在

機関番号：13102

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01362

研究課題名（和文）半導体超格子の室温テラヘルツ利得における動的電子相関の解明と制御

研究課題名（英文）Physical understanding and control of dynamically correlated electrons with room-temperature terahertz gain in semiconductor superlattices

研究代表者

鵜沼 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） 13,900,000 円

研究成果の概要（和文）：直流電圧を印加した半導体超格子において、ブロッホ振動しながら動的に相関した電子の集団的な振動位相やクーロン相互作用が、テラヘルツ電磁波を増幅する作用（利得）へどのように影響するのかを調べた。相互作用は主に電場遮蔽とフォノンを介して生じ、テラヘルツ利得に本質的なブロッホ振動の初期位相（タイミング）を変化させないことが分かった。さらに、ブロッホ振動の初期位相をミニバンド間トンネリングの確率とともに制御することに成功した。印加電圧に対する電子のステップ応答を扱うための一般的枠組みを構築することにより、観測された初期位相に関する新たな物理的理解を提示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

半導体超格子は、異なる半導体材料をナノメートル級の厚さで周期的に積層した人工結晶であり、テラヘルツ領域において小型固体光源の課題となっている室温動作と周波数可変動作を両立させる利得媒質である。従来、このテラヘルツ利得は複数の電子が独立して運動するという描像に基づいて理解されてきたが、本研究では、利得の応用に即した高い電子密度で重要になる電子同士が作用し合う現象（動的電子相関）に着目した。その物理的理解と制御方法を新たに提示できた。

研究成果の概要（英文）：We investigated how the collective oscillation phase and Coulomb interaction of dynamically correlated electrons during Bloch oscillations affect their terahertz gain in biased semiconductor superlattices. We found that the interaction occurs mainly via field screening and phonons and does not change the initial phase of Bloch oscillations, which is essential for terahertz gain. Furthermore, we succeeded in controlling the initial phase of Bloch oscillations with the probability of interminiband tunneling. By developing a generalized framework for the step response of electrons to bias voltage, we provided a new physical understanding of the observed initial phase.

研究分野：半導体物性

キーワード：半導体超格子 テラヘルツ放射 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 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1)テラヘルツ波は  $\text{THz} (= 10^{12} \text{ Hz})$  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。研究代表者らは2016年に、半導体超格子が室温でテラヘルツ波を増幅する作用(利得)をもつことを実証している[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メートル級の厚さで周期的に積層した人工結晶であり、積層構造に由来したエネルギーバンド(ミニバンド)を提供する。積層方向に直流のバイアス電場  $F$  が印加された場合、電子は共鳴周波数  $eFd/h$  ( $e$ : 素電荷,  $d$ : 積層周期,  $h$ : プランク定数) をもち、バイアス電場  $F$  による周波数可変性でテラヘルツ領域を幅広くカバーしうる。

(2)上記のテラヘルツ利得は、複数の電子が独立して運動するという素朴な描像に基づいてこれまで理解されてきた。しかし、利得の応用に即した高い電子密度においては、電子同士が作用し合う現象(動的電子相関)を無視することは適切でない。光パルス照射によって電子をミニバンド中に作る場合には、ブロッホ振動と呼ばれる周波数  $eFd/h$  の集団運動をテラヘルツ放射として実際に観測することができ、ミニバンドが孤立している場合と孤立していない場合とでは振動の初期位相(タイミング)が異なることも近年判明している[T. Unuma and S. Maeda, Appl. Phys. Express **12**, 041003 (2019)]。

### 2. 研究の目的

本研究では、半導体超格子においてブロッホ振動しながら動的に相関した電子の集団的な振動位相やクーロン相互作用が、テラヘルツ利得へどのように影響するのかを明らかにすることを目的とした。テラヘルツ領域における動的電子相関の物理的理解と制御方法を新たに提示することを目指した。

### 3. 研究の方法

#### (1)半導体超格子の設計と作製

GaAs 系材料 (GaAs と  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ) で井戸層とバリア層(電子にとってそれぞれエネルギーの低い層と高い層)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でどのように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、バイアス電場が印加された状況で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って、実験のねらいに応じた複数の超格子構造を設計した。超格子試料を分子線エピタキシー法で  $n$  型 GaAs (001)基板上に結晶成長し、試料の表面と裏面には電極加工を施した。

#### (2)近赤外の光パルス照射によるテラヘルツ放射の測定

近赤外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用い、GaAs 系超格子試料に光パルスを照射することによって、ブロッホ振動を反映したテラヘルツ放射波形の測定を行った。その際、直流電圧を印加した状態で、試料のミニバンド構造に合わせて光パルスの中心波長を変化させた。また、近赤外光用とテラヘルツ波用の光学窓をもつクライオスタットを測定系内に設置し、試料の温度を変化させた。

#### (3)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もつテラヘルツ放射波形について、超格子試料内に  $e^{-t}\cos(\omega_B t + \alpha)$  型の減衰振動電流  $J(t)$  が流れたと仮定し、 $dJ/dt$  (放射電場に比例する量) を時間分解能  $\tau_{\text{res}}$  で畳み込んでフィッティング解析を行った。解析の結果、フィッティングパラメータである共鳴周波数  $\omega_B/2\pi$ 、位相緩和時間  $1/\gamma$ 、初期位相  $\alpha$ 、および時間分解能  $\tau_{\text{res}}$  を求めることができる。その際、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、情報理論に基づく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。

#### (4)近赤外の連続光照射による光電流スペクトルの測定

本補助金で購入したフーリエ変換赤外分光光度計において、直流電圧が印加された超格子試料を外部検出器として接続し、ランプ光源からの近赤外光を試料へ連続照射することにより光電流スペクトルを測定した。光電流スペクトルに現れるピークから、各印加電圧でのエネルギー準位の形成を系統的に評価した。

### 4. 研究成果

#### (1)半導体超格子における2つのブロッホ振動電子群の相互作用

GaAs (9.2 nm)/ $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  (1.0 nm) 超格子に二連光パルス(時間差をつけた2つの光パルス)

を照射し、時間差を 0 から 1000 ps (10 億分の 1 秒) までの範囲で系統的に変化させながら、孤立した第一ミニバンドに 2 つの電子群を生成した。先に生成された電子群 1 の存在下で、後に生成された電子群 2 のブロッホ振動によるテラヘルツ放射波形を測定し、電子群 2 の共鳴周波数および位相緩和時間が時間差の増加と共に減少することを見出した。この結果は、電子群 1 がブロッホ振動をやめるまでの間に、電場遮蔽とフォノン (格子振動) を介して電子群 2 と相互作用すると考えれば、首尾よく説明できる。また、テラヘルツ利得に本質的なブロッホ振動の初期位相は、電子群 1 から影響されずに電子群 2 で保たれていることが分かった。これは、テラヘルツデバイスへの応用のために非常に好ましい性質である。

## (2) ミニバンド間相互作用の強い半導体超格子におけるブロッホ振動とミニバンド間トンネリング

GaAs (16.3 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (1.0 nm) 超格子において、伝導バンドの第一ミニバンド (幅 14.8 meV) と第二ミニバンド (幅 47.9 meV) はわずかなエネルギーギャップ (8.4 meV) で生じるため、バイアス電場の下で強く相互作用する。この状況下で光パルス照射後のテラヘルツ放射波形を測定することにより、電子のブロッホ振動およびミニバンド間トンネリングの物理的性質を下記 ~ のように系統的に提示した。

極低温 10 K (-263°C) において、ブロッホ振動の位相緩和時間が光パルス照射の中心光子エネルギー  $E_{pm}$  の増加に対して特徴的な減少の仕方をするをを観測した (図 1)。この実験結果は、電子が最初の面内余剰エネルギーとその後のミニバンド内加速による運動エネルギーを得て、その和が LO フォノン (longitudinal optical phonons) のエネルギー (36.5 meV) を超える際に位相緩和が急激に速くなり始める、という現象と極めてよく一致した (図 2)。上記の実験結果および解釈は、ミニバンドが孤立している (波動関数が局在している) 場合の電子の振る舞いとは明確に異なっており、ミニバンド間相互作用によって波動関数が非局在化した状況におけるミニバンド輸送モデルの妥当性を示している。

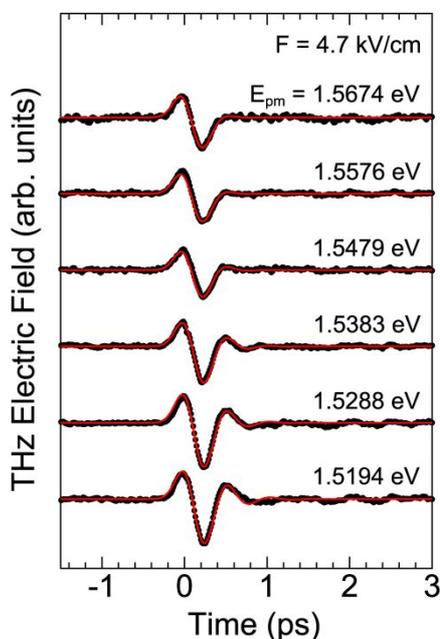


図 1 ミニバンド間相互作用の強い超格子試料に異なる中心光子エネルギー  $E_{pm}$  の光パルスを照射したときのテラヘルツ放射波形 (10 K) [5 の雑誌論文 T. Unuma and A. Abe, Appl. Phys. Express **14**, 051009 (2021) より引用]

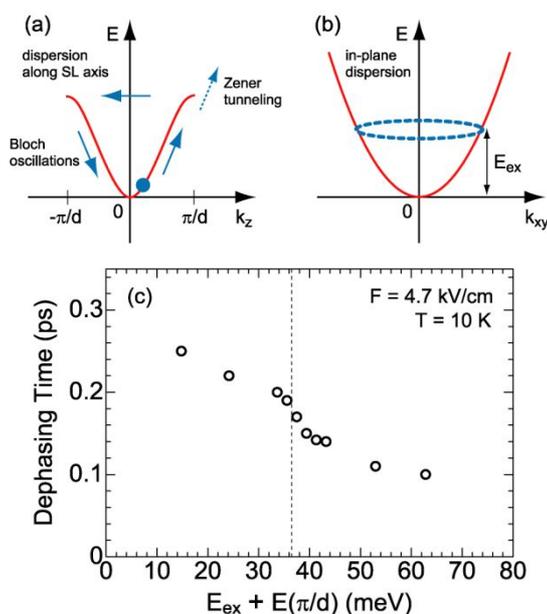


図 2 ミニバンド間相互作用の強い超格子試料における (a) ミニバンド内加速による運動エネルギー  $E(k_z)$ , (b) 光パルス照射時の面内余剰エネルギー  $E_{ex}$ , (c)  $E_{ex} + E(\pi/d)$  に対するブロッホ振動の位相緩和時間 [5 の雑誌論文 T. Unuma and A. Abe, Appl. Phys. Express **14**, 051009 (2021) より引用]

極低温 10 K (-263°C) から室温 300 K (27°C) までの範囲でブロッホ振動が維持され、ミニバンドが孤立している場合と比べて初期位相は温度に依らず  $90^\circ$  ( $\pi/2$  rad) だけ遅れていることが分かった。これは、熱エネルギー (室温で 26 meV) がミニバンド間のエネルギーギャップ (8.4 meV) を大幅に上回っても、電子はブロッホ振動している最中にミニバンド間の熱励起をほとんど受けないことを意味する。さらに、バイアス電場を増加させたときにブロッホ振動とミニバンド間トンネリングが共存・競合する様子を詳細に明らかにした。異なる超格子試料においては、ブロッホ振動の初期位相をミニバンド間トンネリングの確率とともに連続的に制御することにも成功した。

初期位相が  $90^\circ$  遅れた上記ブロッホ振動の背後に、どのような電子と正孔の量子状態があるのかをシミュレートした。その結果、低いバイアス電場の下では、一個の正孔波動関数に対して

数個の特定の電子波動関数が大きな重なり積分を持つことが分かった。それらの電子波動関数は、ミニバンド間相互作用によって超格子ポテンシャルの下流に広がっている一方で、上流の量子井戸数個分に大きな振幅をもつ第一ミニバンド的な特徴も備えていることが明らかになった。光パルス照射の中心光子エネルギーに対して計算された重なり積分のスペクトルは、観測された光電流スペクトルのピークパターンとよく一致した。

### (3) 半導体超格子における電子の3次元初期エネルギー分布がプロッホ振動に及ぼす影響

GaAs (7.5 nm)/AlAs (0.8 nm) 超格子において、積層方向と面内方向の運動自由度を考慮して光パルス照射の中心光子エネルギーを変化させることにより、孤立した第一ミニバンドの周辺で電子に様々な3次元初期エネルギー分布をもたせた。その後のテラヘルツ放射波形を測定・解析した結果、テラヘルツ利得に本質的なプロッホ振動の初期位相は初期エネルギー分布に対して変化しないことが判明した。電子をミニバンドへ励起する上で中心光子エネルギーが不足気味および過剰気味である場合、面内余剰エネルギーはそれぞれ界面ラフネス散乱とフォノン散乱を介してプロッホ振動の位相緩和時間を短くすること、光パルスのスペクトルの一部しか使用しないため（エネルギーと時間の間の不確定性関係によって）時間分解能が悪化することが分かった。

### (4) テラヘルツ放射分光における光パルス照射によるバイアス入力とステップ応答の一般的枠組み

超格子の積層方向に印加するバイアス電場をゼロから増加させていくと、ミニバンドが孤立していると見なせる電場領域では波動関数が局在化し、さらに高い電場領域ではミニバンド間相互作用によって波動関数が非局在化することがシミュレーションから分かる。従来、後者の状況におけるテラヘルツ放射測定をステップ応答の枠組み（光パルス照射の瞬間から電子がバイアス電場を感じるということになるという見方）でスペクトル解析することは困難であった。今回、単一エネルギーバンドの仮定を置かず、半導体材料全般を対象としてテラヘルツ放射分光におけるステップ応答の枠組みを構築することに成功した。この枠組みを超格子構造のプロッホ振動に適用して複素応答関数のスペクトル形状を求め、波動関数が局在化した状況では分極電流の小信号応答、波動関数が非局在化した状況では実電流の大信号応答の特徴が現れていることを明らかにした。このような観点で、プロッホ振動の初期位相に新たな物理的解釈を与えた。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6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, R. Abe	4. 巻 14
2. 論文標題 Dephasing of terahertz Bloch oscillations in a GaAs-based narrow-minigap superlattice excited by tunable pump photon energy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 051009-1~4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/abfa76	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, T. Hoshino, K. Nagahashi, K. Ueda	4. 巻 14
2. 論文標題 Interaction between two Bloch oscillating electron groups in a biased semiconductor superlattice created by a pair of temporally shifted optical pulses	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 061003-1~4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/abffa0	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, Y. Itagaki, S. Asakura	4. 巻 14
2. 論文標題 Room-temperature Bloch oscillations and interminiband Zener tunneling in a GaAs-based narrow-minigap superlattice	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 081003-1~4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ac114f	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, I. Taga, Y. Itagaki	4. 巻 15
2. 論文標題 Electronic states underlying peculiar Bloch oscillations in a biased semiconductor superlattice with interminiband mixing	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 071009-1~4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ac7776	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, K. Ueda, R. Okamoto	4. 巻 16
2. 論文標題 Effects of initial three-dimensional electron energy distribution on terahertz Bloch oscillations in a biased semiconductor superlattice	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 031001-1~4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/acbd0f	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	4. 巻 40
2. 論文標題 Generalized framework for the step response of semiconducting materials to optically switched electrical bias input in terahertz emission spectroscopy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Optical Society of America B	6. 最初と最後の頁 1703~1710
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/JOSAB.488908	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 -

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 植田航輔, 岡本龍一, 鶴沼毅也
2. 発表標題 半導体超格子における電子の初期エネルギー分布とプロッホ振動の関係
3. 学会等名 令和4年度応用物理学会北陸・信越支部学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Unuma, S. Maeda, R. Abe, Y. Itagaki, I. Taga, K. Ueda
2. 発表標題 Phase shift of Bloch oscillations in GaAs-based superlattices with bias-induced interminiband coupling
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Unuma, K. Ueda, R. Okamoto
2. 発表標題 THz emission of Bloch oscillating electrons in GaAs-based superlattices created with in-plane motion
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

長岡技術科学大学 工学研究科工学専攻 電気電子情報工学分野 ナノ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)	
研究分担者	秋山 英文  (Akiyama Hidefumi)  (40251491)	東京大学・物性研究所・教授   (12601)	

	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
研究協力者	金 昌秀  (Kim Changsu)		

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	平川 一彦  (Hirakawa Kazuhiko)		
研究協力者	長井 奈緒美  (Nagai Naomi)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関