

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月8日現在

機関番号：24506

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22740203

研究課題名（和文） 半導体超格子におけるテラヘルツ領域コヒーレント現象に対する
共鳴結合効果研究課題名（英文） Effects of resonant coupling on terahertz-range coherent phenomena
in semiconductor superlattices

研究代表者

長谷川 尊之 (HASEGAWA TAKAYUKI)

兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・助教

研究者番号：00533184

研究成果の概要（和文）：半導体量子井戸構造におけるコヒーレント振動現象（励起子量子ビートとブロッホ振動）を対象とし、波動関数共鳴結合条件でのダイナミクス特性を、フェムト秒ポンプ・プローブ法を用いて調べた。光学遷移エネルギーの反交差現象を生じさせる共鳴結合は、高感度な電場変調反射分光法を用いて検出した。本研究から、コヒーレント振動の振動数および振動強度が、共鳴結合条件において大きく変化することを見出した。さらには、電場変調反射スペクトルから観測した遷移エネルギーおよび遷移確率の電場強度依存性によって、ダイナミクス特性を説明できることを示した。

研究成果の概要（英文）：Effects of resonant wave-function coupling on dynamical properties of coherent oscillations, excitonic quantum beat and Bloch oscillation, in semiconductor quantum-well structures have been studied with the use of a femtosecond pump-probe technique. The resonant couplings, which cause anticrossing behaviors of relevant transition energies, were clearly detected by electroreflectance spectroscopy as a function of electric field strength. It is found that the frequency and intensity of the coherent oscillation change significantly under the resonant coupling conditions. The experimental results are reasonably explained by the electric-field-strength dependence of the energies and transition probabilities of the optical transitions observed from the electroreflectance spectra.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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：量子ビート，ブロッホ振動，超高速分光，半導体超格子

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ (THz) 領域コヒーレント現象である励起子量子ビートとブロッホ振動は、半導体ナノ構造を主な試料として精力的に調べられてきた。ナノ構造では、その構造要素や印加電圧によって電子状態の人為的制御が可能であるため、多

様なコヒーレント振動特性が報告されてきた。近年では、振動特性を制御することによる電磁波放射や超高速光応答等の研究が、次世代光機能デバイスの観点から行われている。

半導体超格子の電子状態は、電場によるワニエ・シュタルク (WS) 局在によって劇的に変化する

る。WS 局在とは、超格子成長方向の電場で、ミニバンドが破綻し、包絡波動関数が局在化する現象である。WS 局在条件では、ミニバンドは eFD (F は電場強度、 D は超格子周期) のエネルギー間隔に量子化される。ブロッホ振動の振動数 ($\nu_{BO} = eFD/h$) は、量子化準位間の量子ビートの振動数に対応し、「印加電圧による振動数の制御」という基礎・応用の両面において重要な特性をもつ。一方、WS 局在状態は、ある程度の広がりを持って局在しているため、特定の電場強度で、隣接井戸層に属する異なる WS 局在状態と共鳴結合を生ずる。共鳴結合条件では、関連する光学遷移のエネルギー反交差および遷移確率の変化が引き起こされる。このエネルギースペクトルの変化は、量子ビートやブロッホ振動の振動特性に大きな影響を与えることが予測される。しかしながら、THz コヒーレント現象の共鳴結合効果を詳細に調べた研究例はなかった。その理由として、簡便な分光法では、共鳴結合条件でのエネルギースペクトルの精密測定が困難なことが挙げられる。共鳴結合は、超格子を含む周期量子井戸構造の本質的な現象である。したがって、THz コヒーレント現象の共鳴結合効果を解明することは大きな意義がある。

2. 研究の目的

半導体超格子の THz 領域コヒーレント現象 (励起子量子ビートおよびブロッホ振動) を対象とし、WS 局在状態の共鳴結合条件でのコヒーレント振動特性を明らかにする。実験結果の解析は、高感度な分光法によって観測したエネルギースペクトルに基づいて行う。本研究を通じて、半導体量子井戸構造における THz コヒーレント現象の新たな一面を見出し、振動特性の制御に関する指針を確立することを最終目的とする。

3. 研究の方法

試料は、電場を印加するために $p-i-n$ 構造に埋め込まれた GaAs/AlGaAs 系超格子である (i 層が超格子層)。電場下での励起子量子ビートおよびブロッホ振動のダイナミクスは、超短パルスレーザー (パルス幅: ~ 70 fs) を用いた反射型ポンプ・プローブ (P&P) 法を用いて観測した。また、電場下でのエネルギースペクトルを、電場変調反射 (ER) 分光法を駆使して精密に測定した。本研究では、GaAs 単一量子井戸 (SQW) が埋め込まれた GaAs/AlAs 超格子 (図 1) を標準試料として用いた。当試料の SQW 層には、重い正孔 (HH) 励起子および軽い正孔 (LH) 励起子から成る単純な 3 準位系が形成されており、フェム

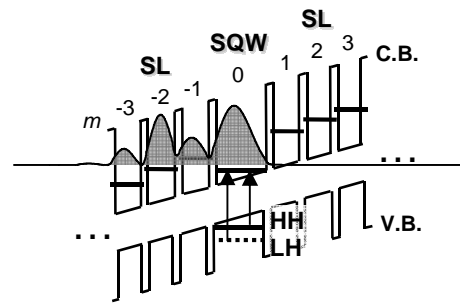


図1: 単一量子井戸が埋め込まれた超格子のポテンシャル構造。

ト秒パルスによる同時励起で量子ビートが生じる。一方、当試料に電場を印加すると、超格子層のミニバンドは離散的なエネルギー状態に移行し、SQW サブバンド状態と、低ポテンシャル側 ($m < 0$) の WS 局在状態が、特定の電場強度で共鳴結合を引き起こす (図 1 は 2 周期低ポテンシャル側の WS 局在状態との共鳴結合を表す)。つまり、HH-LH 励起子間の量子ビートの電場強度依存性から、THz コヒーレント現象の共鳴結合効果を詳細に観測することができる。

4. 研究成果

(1) 単一量子井戸が埋め込まれた超格子における励起子量子ビートの共鳴結合効果

図 2(a) は、無電場条件での ER スペクトルの測定結果である。1.60 eV と 1.63 eV に観測される

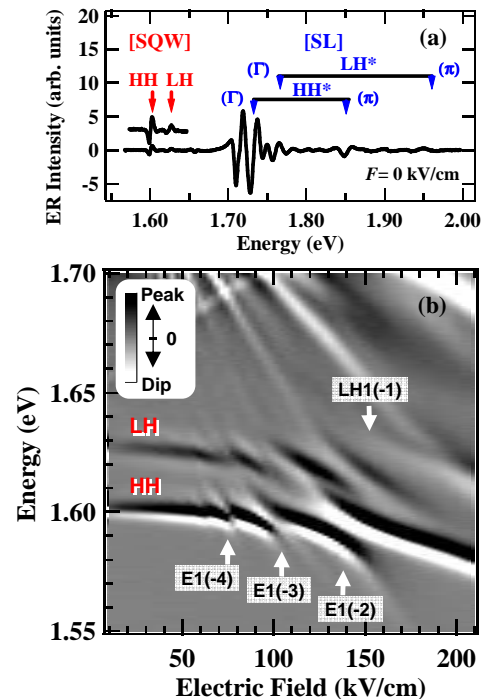


図2: (a)電場変調反射スペクトル (b)スペクトルの電場強度依存性をイメージ図にまとめたもの。

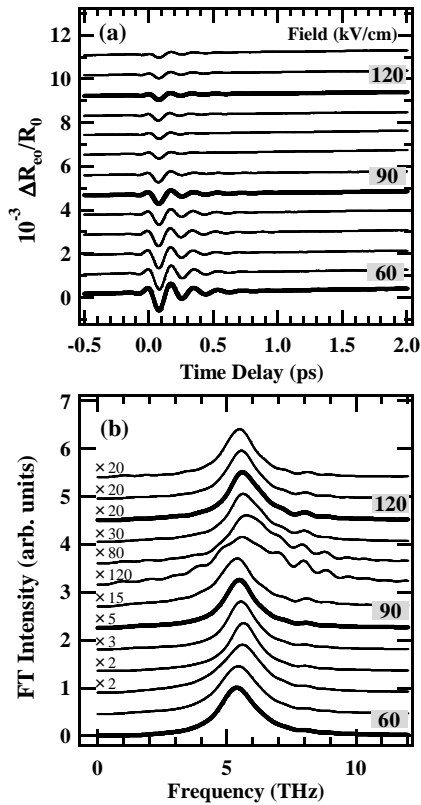


図3: (a)時間分解反射率変化信号、及び、(b)フーリエ変換スペクトルの電場強度依存性。

2つのER信号は、SQW層のHH励起子とLH励起子によるものである。また、1.7 eV以上の矢印は、超格子層のミニバンドの Γ 点と π 点における遷移エネルギーを示している。図2(b)は、SQW層の励起子遷移エネルギー領域におけるERスペクトルの電場強度依存性をイメージ図にまとめたものである。電場強度の増加にともなって、共鳴結合を示すエネルギー反交差が明確に現れている。図2(b)の矢印に属する表記は、共鳴結合に寄与するWS局在状態(E1、HH1、LH1はそれぞれ $n=1$ の電子、重い正孔、軽い正孔状態)を図1の m を用いて表している。本研究では、HH励起子およびLH励起子の共通状態であるE1状態間の共鳴結合に注目した。P&P測定では、ポンプ光の中心エネルギーは、1.610 eV(スペクトル幅: ~ 30 meV)に調節した。

図3は、P&P法を用いて測定した(a)時間分解反射率変化信号、および、(b)図3(a)の信号のフーリエ変換スペクトルを、電場強度に対してまとめたものである。 $F = 60$ kV/cmでの振動数は、図2(b)のHH-LH励起子分裂エネルギーから計算した量子ビートの振動数と一致する。図3から明らかのように、量子ビートの振動数および振動強度が、電場強度の増加で複雑に変化し

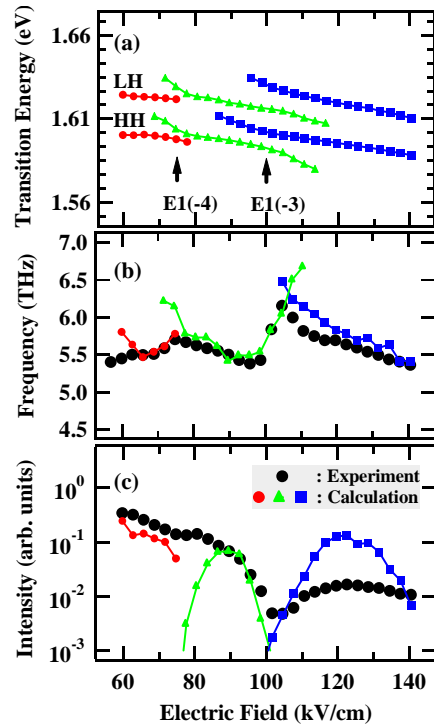


図4: (a)励起子エネルギーの測定結果。量子ビートの(b)振動数、及び、(c)振動強度の測定結果。マーク付きの線は、計算結果を示す。

ている。図4(a)は、図2(b)より見積もった励起子遷移エネルギーの電場強度依存性を示している(共鳴結合の状況から \circ 、 \triangle 、 \square の3つの領域に分類している)。E1状態の共鳴条件では、結合状態および反結合状態の形成に起因して、2種類のHH励起子およびLH励起子が形成される。この振る舞いから、2種類のHH-LH励起子量子ビートの出現が期待される。本研究では、マークで分類した励起子間で量子ビートが生じると仮定した。図4(b)の黒丸は、観測された量子ビートの振動数を示している。また、マーク付きの線は、図4(a)で分類した励起子間で量子ビートが生じるとして計算したものである。図4(b)より、量子ビートの振動数の電場強度依存性が、2種類のHH-LH励起子量子ビートを仮定することで、上手く説明できることが分かる。具体的に述べると、共鳴条件の低電場側では、結合状態が関与する励起子量子ビートが出現し、電場強度の増加に伴って、反結合状態の励起子量子ビートへと移り変わっていくと考えられる。

次に、図4(c)に示した励起子量子ビートの強度について述べる。Leoらによると[K. Leo, PRL **66**, 201(1991)], 3準位系での量子ビートの振動強度は、それぞれの光学遷移における励起のウェイトを掛け合わせた値で決定される。励起のウェイトは、遷移エネルギーでのポンプ光の電場

振幅と遷移確率(振動子強度)の積で定義される。本研究では、図 2(b)の ER 信号のエネルギーおよび振動強度を用いて、励起のウェイトの積を計算した。図 4(c)のマーク付きの線は、励起のウェイトの積の計算結果である。計算結果が、量子ビートの移り変わりを上手く再現していることが分かる。

以上のように、本研究から量子ビートの振動数および振動強度が共鳴結合条件で大きく変化することを見出した。さらには、エネルギースペクトルに基づいた理論計算から、共鳴結合効果を定量的に説明できることを実証した。

(2) 正孔状態の共鳴結合条件でのブロッホ振動ダイナミクス

ブロッホ振動に関する今日まで研究では、共鳴結合効果の若干の考察がなされてきた。しかしながら、注目されてきた電子状態間の共鳴結合条件では、ブロッホ振動の減衰時間が著しく減少するため、振動特性の解析が困難であった。申請者は、ブロッホ振動における量子干渉の共通状態が正孔状態であることに着目し、これまで注目されてこなかった正孔状態間の共鳴結合条件でのブロッホ振動の特性を調べた。その結果、ブロッホ振動の振動数が、共鳴結合条件では期待値($v_{BO}=eFD/h$)から逸脱する振る舞いが観測された。(1)の研究から得られた知見に基づいて考察した結果、観測された特異な振動特性は、正孔状態間の共鳴結合に起因するものと結論付けた。具体的に述べると、HH 状態が、一周期低ポテンシャル側の LH 状態と共鳴結合を引き起こし、エネルギー分裂(反交差)によって 2 種類のブロッホ振動が生じたものと考えられる。以上の結果は、ブロッホ振動ダイナミクスの全く新しい一面を示すものである。

(3) Franz-Keldysh 振動領域での新規量子ビート

Franz-Keldysh(FK)振動は、ミニバンド状態が保たれる低電場領域で発現する現象である。この電場領域では、吸収スペクトルに複数のピーク構造が出現し、各々のエネルギーは電場で特徴的に変化する。これらを離散的な固有状態であると見なせば、同時励起でブロッホ振動のような振動数可変の量子ビートの発現が期待される。しかしながら、FK 振動領域での量子ビートの観測例はなかった。研究を遂行する過程で、FK 振動が明確に観測される試料構造を発見したので、本研究で整備した P&P システムを用いて量子ビートの観測を試みた。その結果、FK 振動が観測

される弱電場領域において、新規な量子ビートが発現することを見出した。具体的には、複数の振動モードが同時に出現し、かつ、振動数が電場強度に依存する。この振動数の電場制御性は、単一モードのブロッホ振動よりも自由度の高いものであり、極めて重要な特性である。

以上のように、本研究の(1)および(2)から、半導体超格子の THz コヒーレント現象の共鳴結合効果、および、その解析手法を明らかにした。さらには、(3)の研究成果も含め、振動特性の制御に関する様々な指針を確立することができた。本研究課題の成果は、超高速光物性分野の基礎・応用研究の両面において重要な知見を与えるものである。

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 5 件)

- ① T. Hasegawa, Y. Takagi, and M. Nakayama, “Frequency-tunable quantum beats under a Franz-Keldysh oscillation condition in a GaAs/Al_xGa_{1-x}As superlattice” Appl. Phys. Express **5**, 041202-1-3 (2012). 査読有
DOI: [10.1143/APEX.5.041202](https://doi.org/10.1143/APEX.5.041202)
- ② T. Hasegawa, Y. Takagi, H. Takeuchi, H. Yamada, M. Hata, and M. Nakayama “Ultrafast optical response originating from carrier-transport processes in undoped GaAs/n-type GaAs epitaxial structures” Appl. Phys. Lett. **100**, 211902-1-4 (2012). 査読有
DOI: [10.1063/1.4720157](https://doi.org/10.1063/1.4720157)
- ③ T. Hasegawa, Y. Takagi, and M. Nakayama, “Electric field effects on excitonic quantum beats in a single quantum well embedded in a GaAs/AlAs superlattice” Phys. Rev. B **83**, 205309-1-6 (2011). 査読有
DOI: [10.1103/PhysRevB.83.205309](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.83.205309)
- ④ T. Hasegawa, S. Okamoto, and M. Nakayama, “Upconversion of photoluminescence due to subband resonances in a GaAs/AlAs multiple quantum well structure” Physica E **42**, 2648-2651 (2010). 査読有
DOI: [10.1016/j.physe.2009.10.003](https://doi.org/10.1016/j.physe.2009.10.003)
- ⑤ M. Nakayama, T. Hirao, and T. Hasegawa, “Photoluminescence properties of exciton-exciton scattering in a GaAs/AlAs multiple quantum well” Physica E **42**, 2644-2647 (2010). 査読有
DOI: [10.1016/j.physe.2009.09.021](https://doi.org/10.1016/j.physe.2009.09.021)

〔学会発表〕(計 13 件)

- ① 長谷川尊之、高木芳弘、中山正昭:
「GaAs/AlGaAs 超格子におけるフランツ・ケルディッシュ振動領域での量子ビート II」
日本物理学会第 67 回年次大会 (関西学院大学 2012 年 3 月) 26pCJ-9.
- ② 山下智也、長谷川尊之、中山正昭:
「GaAs/AlAs 超格子における重い正孔励起子共鳴励起条件でのミニブリルアンゾーン端励起子の発光ダイナミクス」
日本物理学会第 67 回年次大会 (関西学院大学 2012 年 3 月) 26pCJ-7.
- ③ 長谷川尊之、高木芳弘、中山正昭:
「GaAs/AlGaAs 超格子におけるフランツ・ケルディッシュ振動領域での量子ビート」
第 22 回光物性研究会 (熊本大学 2011 年 12 月) IB-23.
- ④ 長谷川尊之、高木芳弘、中山正昭:
「GaAs/AlGaAs 超格子におけるフランツ・ケルディッシュ振動領域での量子ビート」
日本物理学会 2011 年 秋季大会 (富山大学 2011 年 9 月) 22aTM-2.
- ⑤ Takayuki Hasegawa, Yoshihiro Takagi, and Masaaki Nakayama, “Resonant coupling effects on quantum beats in a GaAs single quantum well buried in a GaAs/AlAs superlattice.”
The 15th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS 15), 25-29 of July 2011, Florida, America
- ⑥ 長谷川尊之、高木芳弘、中山正昭:
「GaAs/AlGaAs 超格子におけるミニバンド状態での特異的な励起子量子ビート」 日本物理学会第 66 回年次大会 (新潟大学 2011 年 3 月) 25pHD-6.
- ⑦ 岡崎勇樹、長谷川尊之、高木芳弘:
「分子性結晶におけるピコ秒光誘起電磁パルス」 日本物理学会第 66 回年次大会 (新潟大学 2011 年 3 月) 26aTJ-8.
- ⑧ 宮本修治、堀川賢、戸中大輔、北川靖久、望月孝晏、坂井信彦、小泉昭久、高木芳弘、長谷川尊之、嶋達志、今崎一夫、李大治、大熊晴夫:
「レーザーコンプトン散乱ガンマ線源のエネルギー可変性と偏極度」 日本物理学会第 66 回年次大会 (新潟大学 2011 年 3 月) 25pGAB-10.
- ⑨ T. Hasegawa, Y. Takagi, H. Takeuchi, and M. Nakayama, “Intense emission of terahertz electromagnetic wave originating from a surface surge current in an undoped GaAs/n-type GaAs epitaxial layer structure”, 20th Anniversary Joint-Symposium of School of Science, University of Hyogo, International Symposium on Bioimaging and Surface Sciences, 26-27 of February 2011, Hyogo, Japan
- ⑩ 長谷川尊之、増元真史、高木芳弘:
「非縮退発光励起相関法を用いた非線形発光ダイナミクスの時間分解分光」 第 21 回光物性研究会 (大阪市立大学 2010 年 12 月) III A-92.
- ⑪ 岡崎勇樹、長谷川尊之、高木芳弘:
「ベンジル結晶を用いた光誘起電磁パルスの発生」 第 21 回光物性研究会 (大阪市立大学 2010 年 12 月) III B-101.
- ⑫ 長谷川尊之、増元真史、高木芳弘:
「非縮退発光励起相関法による励起状態の超高速分光 II」 日本物理学会 2010 年秋季大会 (大阪府立大学 2010 年 9 月) 25pPSB-29.
- ⑬ 岡崎勇樹、長谷川尊之、高木芳弘:
「ベンジル結晶における光誘起電磁パルスの発生」 日本物理学会 2010 年秋季大会 (大阪府立大学 2010 年 9 月) 25pPSB-56.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長谷川 尊之 (HASEGAWA TAKAYUKI)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・助教
研究者番号：00533184

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし