

令和 2 年 8 月 21 日現在

機関番号：14501

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化）

研究期間：2017～2019

課題番号：16KK0129

研究課題名（和文）周波数可変テラヘルツ電磁波光源の実現に向けた励起子物性の制御（国際共同研究強化）

研究課題名（英文）Control of exciton characteristics towards realization of frequency tunable terahertz wave source(Fostering Joint International Research)

研究代表者

小島 磨 (Kojima, Osamu)

神戸大学・工学研究科・准教授

研究者番号：00415845

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 10,800,000円

渡航期間： 6ヶ月

研究成果の概要（和文）：本研究は半導体中の励起子を利用した差周波混合によるテラヘルツ電磁波の発生に関して、励起子の役割を明らかにすることを目的に行われた。半導体素子は国際共同研究先である英国グラスゴー大学で作製され、テラヘルツ電磁波の観測を含む光学測定は神戸大学で実施された。光変調スペクトル測定や超短パルスを用いた第二次高調波に関する測定結果から、単一の励起子準位を励起した場合の効果を明らかにできたが、その一方で、二つの励起子準位を励起した場合の効果については、未だ、不明である。この点については、今後の研究で解明していく。

研究成果の学術的意義や社会的意義

半導体中の励起子は高い振動子強度を有していることから、光デバイスへの応用が期待される一方、GaAsでは束縛エネルギーが小さく、室温で励起子が安定に存在できないとされてきた。そのような状況で、室温で励起子を利用したデバイスへの提案ができた点は重要な意義があると考えている。さらに、半導体レーザーとの組み合わせで小型のテラヘルツ電磁波分光システムを実現できると期待でき、有毒または有害な分子を高速に検出できる小型システムは今後、社会的に必要とされると考えている。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study was to clarify the role of excitons in the generation of terahertz electromagnetic waves by difference frequency mixing using excitons in semiconductors. The semiconductor samples were fabricated at the University of Glasgow, which is an international collaborator, and optical measurements, including observation of terahertz electromagnetic waves, were performed at Kobe University. From the experimental results obtained by the modulation spectroscopy, the second harmonic generation using the ultrashort pulse, and so on, the effects of resonant excitation of a single exciton level could be clarified. On the other hand, the effect of excitation of two exciton levels is still unknown. This point will be clarified in future research.

研究分野：半導体光物性

キーワード：テラヘルツ電磁波 半導体 量子井戸 励起子 非線形光学 差周波混合

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

## 様式 F-19-2

### 1. 研究開始当初の背景

周波数が  $10^{12}$  ヘルツ程度の電磁波であるテラヘルツ電磁波は、その発生、検出および応用に関して、現在、世界的に最も盛んに研究されている周波数帯の電磁波である。特に、有機分子をはじめ、様々な分子がこの周波数帯に特徴的な分光特性を示すことが知られていることから、毒劇物の検知などに利用することが期待される。

我々は、基課題として励起子を利用した差周波混合でのテラヘルツ電磁波の発生に関する研究を行ってきた。これは半導体多重量子井戸に閉じ込められた励起子を共鳴励起することで電磁波を発生させることを目指すものである。この基課題における研究成果をさらに発展させるために、共鳴励起条件下における励起子物性が差周波混合に与える効果を明らかにする必要があると考えた。

### 2. 研究の目的

上記の背景から、本研究では、励起子を利用した差周波混合でのテラヘルツ電磁波の発生に関する研究に関連して、励起子物性の解明および量子井戸構造の設計と作製を行うことを主な目的とした。この目的を達成するために、国際共同研究として、差周波混合に対する励起子物性の効果と歪みや電界などの摂動の効果を解明し、周波数可変テラヘルツ電磁波光源へと展開するために必要な励起子物性と最適な試料構造の設計を行った。

なお、国際共同研究は英国のグラスゴー大学で行った。

### 3. 研究の方法

テラヘルツ電磁波を発生させるための試料には、GaAs/AlAs 多重量子井戸を用いた。本研究は、市販の半導体レーザーと組み合わせて実験を行うことが重要となるが、800 nm 近傍では様々な波長の半導体レーザーが利用可能である。そのため、800 nm 付近で励起子エネルギーを制御可能な GaAs/AlAs 多重量子井戸を用いた。図 1 に示すように、量子井戸では正孔が二つに分裂することから、一つの量子井戸に対して二つの励起子状態(重い正孔励起子と軽い正孔励起子)が作られる。厚さが異なる量子井戸を積層することで、連続的に励起子状態を分布させることができると考えられる。例えば、図 2 に示すように、3つの厚さが異なる励起子状態を重ね合わせることで、より広帯域にテラヘルツ電磁波を発生させることが可能になると考えられる。そこで、厚さが異なる量子井戸を設計し、作製を行った。

テラヘルツ電磁波は図 3 のような光学系で測定した。二つの半導体レーザーの光をハーフミラー上で重ね合わせ、同軸にして試料に照射し、試料の表面から発生したテラヘルツ電磁波を観測した。測定はすべて室温で行った。

### 4. 研究成果

半導体量子井戸では、上述のように本来縮退している重い正孔と軽い正孔が量子閉じ込め効果により分裂する。そして、量子井戸に電界が加わった状態では、量子閉じ込めシュタルク効果によって電子と正孔の包絡波動関数が非対称化しており、正孔の有効質量の違いのために、正孔の重心位置が異なる。これが新たな分極状態を形成し、干渉状態が差周波混合によるテラヘルツ電磁波に反映されると考えている。

図 4 に作製された試料の室温における発光スペクトルを示す。図の一番下のスペクトルは基準となる試料であり、矢印で示すピークはすべての試料で共通する多重量子井戸である。複数の多重量子井戸を重ねることで、短波長側にピークが

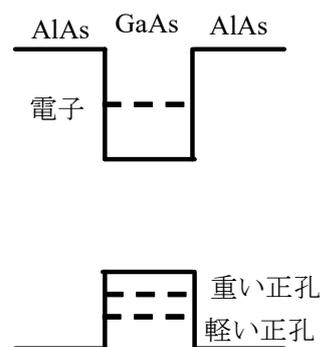


図 1 量子井戸の電子状態。

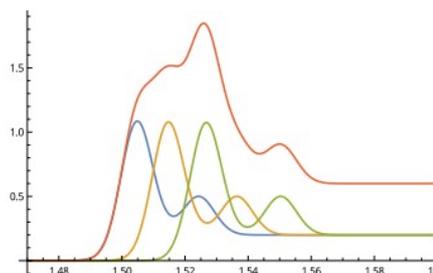


図 2 吸収スペクトルの計算結果の例。

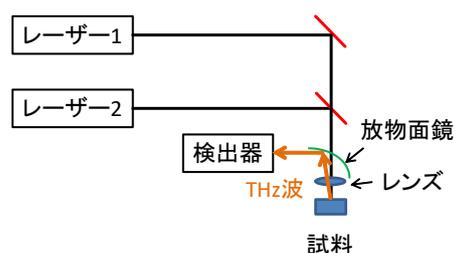


図 3 光学系の模式図。

表れており、励起子準位の重ね合わせ効果を期待できる試料が作製できたといえる。

図5に測定した電磁波強度の周波数依存性を示す。図4の矢印のエネルギーに一方のレーザー光のエネルギーを固定し、もう一方のレーザー光のエネルギーを様々に変えて測定を行った。a、b、cの文字は図4のスペクトルの下からの順番に対応する。また、強度はaの試料における6.7 THz付近の強度ですべて規格化した。この周波数は、aの試料における重い正孔励起子と軽い正孔励起子を励起した場合に対応する。bとcの試料で電磁波強度が増加しており、励起子準位の重ね合わせ効果が得られたと考えている。

また、aの試料において、様々な励起子共鳴励起条件下で発光スペクトルの励起光強度依存性を測定した。その結果、励起光強度が小さい場合、発光強度が励起光強度に対して非線形に増加する一方、励起光強度が大きくなると線形に増加するという結果を得た。これは、励起光強度が小さい場合は、励起子が電子-正孔対に容易に分解されるのに対し、励起光強度が増加すると、励起子が安定に形成されることを意味していると考えられる。つまり、励起子の安定性は電磁波発生において極めて重要であることが明らかになった。

次に、量子井戸に歪みを加えた効果について検討するために、結晶成長時にバッファ層に歪みが加わるようにして試料を作製した。その試料に対して、重い正孔励起子エネルギーと一致するレーザー光を照射し、もう一つのレーザー光をそのエネルギーの極近傍のエネルギーに合わせて照射して、励起光強度を変えることで、重い正孔励起子に変調される様子を測定した。その結果が図6である。白丸の結果が歪みを加えた試料、黒丸が上述のaの試料での測定結果である。歪みを加えることで、大きく反射率が変化しており、二つの分極の重ね合わせ効果が大きくなることを期待できる。

さらに、この差周波混合と同じ二次的非線形光学効果である第二次高調波の発生に関する実験を、超短パルスレーザーを用いて実施した。その結果、励起子エネルギー近傍で確かに差周波混合は発生したものの、明確な励起子性を示すことはなかった。つまり、差周波混合と第二次高調波発生で同じ二次的非線形光学効果でありながらも、発生機構に違いがあると考えられ、今後、解明していきたいと考えている。

以上、周波数可変のテラヘルツ電磁波光源の実現に向けた励起子物性の効果について、重要な知見を得ることができた。今後、さらなる発展を目指していきたいと考えている。また、本国際共同研究をもとに、グラスゴー大学とも密接な関係を築き、研究のさらなる発展につなげていきたい。

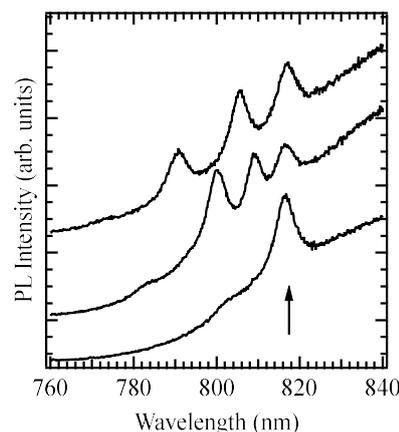


図4 試料の発光スペクトル。

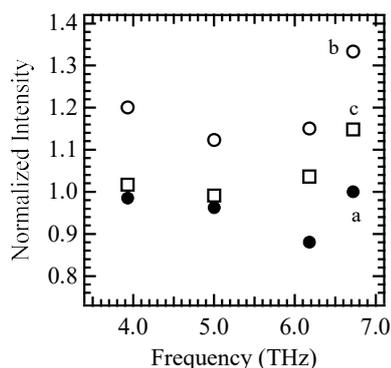


図5 相対電磁波強度。

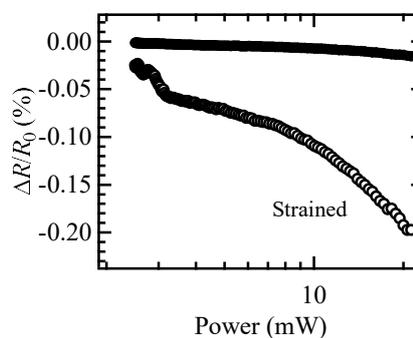


図6 歪みの効果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Kojima Osamu, Izumi Ryo, Kita Takashi	4. 巻 2
2. 論文標題 Effects of a thin nitrogen-doped layer on terahertz dynamics in GaAs containing InAs quantum dots	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 OSA Continuum	6. 最初と最後の頁 1621 ~ 1621
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OSAC.2.001621	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 Yamamoto Shintaro, Kojima Osamu, Kita Takashi	4. 巻 1220
2. 論文標題 Effect of modulation of ultrafast transient carrier dynamics by interface on terahertz signal	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012013 ~ 012013
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1220/1/012013	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 Kojima Osamu, Nagauchi Junpei, Kita Takashi	4. 巻 126
2. 論文標題 Exciton dynamics as a function of excitation intensity and double-pulse excitation in cyanine molecule thin films: Toward low-power optical switches	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 033103 ~ 033103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5090831	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 Razvan Baba, Osamu Kojima, Kristof JP Jacobs, Brett A Harrison, Ben J Stevens, Toshikazu Mukai, Richard A Hogg	4. 巻 10929
2. 論文標題 Characterisation of thin-layer resonant tunnelling diodes grown by MOVPE	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proc. SPIE Quantum Dots and Nanostructures: Growth, Characterization, and Modeling XVI	6. 最初と最後の頁 1092909-1092909
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1117/12.2510119	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 該当する

1. 著者名 Kojima Osamu, Yukako Ito, Kita Takashi, Shim Yong-Gu	4. 巻 59
2. 論文標題 Electron transport in a silicon crystal observed by energy transfer luminescence	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 082005-082005
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/aba3f6	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 Kojima Osamu, Izumi Ryo, Kita Takashi	4. 巻 51
2. 論文標題 Effect of lattice-mismatch strain on electron dynamics in InAs/GaAs quantum dots as seen by time-domain terahertz spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 305102-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1088/1361-6463/aacae0">https://doi.org/10.1088/1361-6463/aacae0</a>	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 Kojima Osamu, Tarui Yuki, Shimazu Hideaki, Kita Takashi, Majeed Avan, Ivanov Pavlo, Clarke Edmund, Hogg Richard	4. 巻 10
2. 論文標題 Wide Frequency Tuning of Continuous Terahertz Wave Generated by Difference Frequency Mixing under Exciton-Excitation Conditions in a GaAs/AlAs Multiple Quantum Well	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 044035-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.10.044035">https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.10.044035</a>	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 該当する

1. 著者名 Majeed Avan, Ivanov Pavlo, Stevens Benjamin, Clarke Edmund, Butler Iain, Childs David, Kojima Osamu, Hogg Richard	4. 巻 8
2. 論文標題 Broadband THz absorption spectrometer based on excitonic nonlinear optical effects	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Light: Science & Applications	6. 最初と最後の頁 29-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1038/s41377-019-0137-y">https://doi.org/10.1038/s41377-019-0137-y</a>	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 該当する

〔学会発表〕 計19件（うち招待講演 7件 / うち国際学会 9件）

1. 発表者名 O. Kojima, T. Kita
2. 発表標題 Extension of excitation energy to generate terahertz wave to smaller than GaAs bandgap energy due to growth of InAs quantum dots and nitrogen doped layer
3. 学会等名 Compound Semiconductor Week 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 O. Kojima, T. Kita
2. 発表標題 Control of exciton interference in GaAs/AlAs multiple quantum wells
3. 学会等名 SemiconNano2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小島 磨, 井山 華澄, 喜多 隆, R. Hogg
2. 発表標題 GaAs/AlAs 多重量子井戸の励起子共鳴励起下での励起子分布
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小島 磨、喜多 隆、Hogg Richard
2. 発表標題 GaAs/AlAs多重量子井戸における連続波励起子共鳴励起による変調効果
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 坂上 寛太、小島 磨、喜多 隆、Hogg Richard
2. 発表標題 GaAs/AlAs多重量子井戸における差周波混合によるテラヘルツ電磁波発生に対する励起子の重ね合わせ効果
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 R. Baba, O. Kojima, K. J. P. Jacobs, B. A. Harrison, B. J. Stevens, T. Mukai, R. A. Hogg
2. 発表標題 Characterisation of thin-layer resonant tunnelling diodes grown by MOVPE
3. 学会等名 Photonic West 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 O. Kojima, T. Kita, R. Hogg
2. 発表標題 Generation of continuous terahertz wave with wide tunable range
3. 学会等名 18th International Conference on Laser Optics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 O. Kojima, Y. Ito, T. Kita
2. 発表標題 Observation of electron transport in a silicon crystal using luminescence of cyanine molecule excited by energy transfer
3. 学会等名 The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 O. Kojima
2. 発表標題 Continuous terahertz wave generation based exciton optical nonlinearity
3. 学会等名 International Conference on Processing and Manufacturing of Advanced Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 O. Kojima
2. 発表標題 Polarization characteristics of terahertz wave generated by differential frequency mixing under exciton excitation condition in a semiconductor quantum well
3. 学会等名 SPIE Optics+Photonics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 桜井遼, 小島磨, 喜多隆, R. Hogg
2. 発表標題 GaAs/AlAs多重量子井戸における重い正孔励起子励起下での差周波混合によるテラヘルツ電磁波の偏光特性
3. 学会等名 応用物理学会関西支部平成30年度第1回講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小島磨
2. 発表標題 GaAs/AlAs多重量子井戸における励起子干渉現象の観測
3. 学会等名 レーザ・量子エレクトロニクス研究会・レーザー学会合同研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小島 磨
2. 発表標題 励起子共鳴下での差周波混合によるテラヘルツ電磁波発生
3. 学会等名 第二回電子材料若手交流会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小島 磨, 喜多 隆, Richard Hogg
2. 発表標題 GaAs/AlAs多重量子井戸における第二次高調波発生
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小島 磨, 喜多 隆, Richard Hogg
2. 発表標題 GaAs/AlAs多重量子井戸の励起子ダイナミクスと二次の非線形光学効果との関係
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小島磨
2. 発表標題 ナノ構造半導体中の励起子の重ね合わせを利用した光デバイスの開発
3. 学会等名 紫翠会第919回例会（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 GaAs/AlAs多重量子井戸端面から放射されるテラヘルツ電磁波の偏光特性
2. 発表標題 桜井遼, 小島磨, 喜多隆, R. Hogg
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 O. Kojima, Y. Tarui, T. Kita, A. Majeed, E. Clark, P. Ivanov, R. Hogg
2. 発表標題 Generation of continuous terahertz wave by differential-frequency-mixing in a GaAs/AlAs multiple quantum well
3. 学会等名 Nanophotonics and Micro/Nano Optics International Conference 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 O. Kojima
2. 発表標題 Emission of continuous terahertz wave using exciton interference
3. 学会等名 The 7th International Conference on Electronics, Communications and Networks (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

神戸大学大学院工学研究科電気電子工学専攻フォトニック材料学研究室  
<http://www.research.kobe-u.ac.jp/eng-photonics/>  
 神戸大学大学院工学研究科電気電子工学専攻フォトニック材料学研究室  
<http://www.research.kobe-u.ac.jp/eng-photonics/>

## 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
主たる渡航先の主たる海外共同研究者	ホッグ リチャード  (Hogg Richard)	グラスゴー大学・James Watt School of Engineering・ Professor	