

研究種目：基盤研究（A）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18201027
 研究課題名（和文） 量子ナノ構造系のテラヘルツダイナミクスの解明と制御に関する研究
 研究課題名（英文） Physics and applications of terahertz dynamics of quantum nanostructures

研究代表者
 平川 一彦（HIRAKAWA KAZUHIKO）
 東京大学 生産技術研究所・教授
 研究者番号：10183097

研究成果の概要：

本研究では、電子とテラヘルツ電磁波との相互作用の詳細な検討から、バルク半導体や半導体超格子構造中の電子の特異な伝導ダイナミクスとそれがもたらす利得スペクトルを明らかにした。さらに利得を応用したテラヘルツ発振器の実現に向けたテラヘルツ共振器構造の試作と評価を行った。また、光の回折限界を大きく超えて、テラヘルツ電磁波で単一の量子ドットや分子の伝導ダイナミクスを測定するためのナノギャップ電極試料構造を作製し、ナノ領域特有の新規な伝導特性を見いだした。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006 年度	15,000,000	4,500,000	19,500,000
2007 年度	13,200,000	3,960,000	17,160,000
2008 年度	11,700,000	3,510,000	15,210,000
年度			
年度			
総計	39,900,000	11,970,000	51,870,000

研究分野： 複合新領域

科研費の分科・細目： ナノ・マイクロ科学 ・ マイクロ・ナノデバイス

キーワード： ナノ制御・テラヘルツ電磁波・量子ナノ構造・分子素子

1. 研究開始当初の背景

近年、デバイスの極微細化は著しく進み、量子効果デバイスでは典型的な活性領域の寸法が約 10nm、さらに分子 1 個を用いたデバイスでは活性領域は約 1nm 程度であり、そのような極微領域の伝導がデバイスの特徴づけている。このような極微領域では、電子状態は量子力学的によく記述された状態にあり、電子波束のコヒーレンスが保たれやすい状況にある。

量子計算では、単一量子系のできるだけ純

粋なコヒーレンスを利用して、量子ビットとなす。ところが、完全に散乱がなくコヒーレントな系の伝導は回路論的には”reactive”であり、直流の伝導もなければ、電気信号に対する損失も利得もない。従って、量子ナノデバイスが機能を果たすためには、その用途に応じて、電子波束のデコヒーレンスと伝導特性の理解と制御が必要不可欠である。

2. 研究の目的

サブピコ秒の時間スケールで高速に運動す

る電子は、その速度の微分に比例する電磁波を放出・吸収し、その周波数はテラヘルツ (THz) 領域にある。従って、電子が放出・吸収するTHz電磁波を検出・解析することにより、電子の実時間領域における伝導ダイナミクスに関する情報が得られるはずである。

本研究においては、THz電磁波の放射・吸収をプローブとして以下の2点を目標として研究を遂行する。

(1) バルク半導体および半導体超格子構造中の電子波束の伝導ダイナミクスの解明とその応用

(2) 回折限界を大きく超えた極微ナノ構造(単一量子ドットや分子)における新規な伝導ダイナミクスの解明と応用

3. 研究の方法

(1) バルク半導体および半導体超格子構造中の電子波束の伝導ダイナミクスの解明とその応用:

我々は、これまでの研究により、フェムト秒レーザパルスにより半導体中に励起されたキャリアが放射するTHz電磁波から、電子系の伝導度スペクトルを求めることができることを世界で初めて示した。

この時間分解THz分光法を用いて、バルク半導体や半導体超格子中の電子波束のデコヒーレンス機構を解明するとともに、電子系のTHz利得スペクトルを測定し、バルク半導体や量子効果デバイスが示す利得の周波数限界などを明らかにする。

(2) 回折限界を大きく超えた極微ナノ構造(単一量子ドットや分子)における新規な伝導ダイナミクスの解明と応用:

Stranski-Krastanow モードで自己組織的に成長された量子ドットやフラーレンなど、単一分子に電極を形成し、その伝導を測定することが可能になりつつある。本研究では、このような単一量子ナノ構造に極微細なギャップを有する電極を形成し、量子ドットや単一分子に電気的にアクセスし、さらにTHz電磁波を照射することにより、電気抵抗変化から、単一の量子ナノ構造の伝導ダイナミクスの理解とその応用を探索する。

4. 研究成果

(1) バルク半導体中の谷間遷移とテラヘルツ利得

GaAsなどのバルク半導体は、その特異なバンド構造ゆえ、有効質量の小さな Γ 谷から、有効質量の大きなL谷、X谷に電子が谷間遷移することによる微分負性抵抗が現れ、Gunnダイオードの動作原理として広く用いられている。しかし、その測定の困難さから、バルク半導体の微分負性抵抗スペクトルの測

定は行われてこなかった。我々は、THz時間分解分光法を用いて、バルク半導体中の伝導ダイナミクスと谷間遷移利得スペクトルを加速電界300 kV/cmまで測定した。その結果、50 kV/cm以上では加速電界の増加とともに谷間の波動関数の混合による電子の加速質量の増加が観測された。また、THz放射スペクトルの測定を行い、真性微分負性抵抗の領域が約1 THzまで広がっていること、さらにその帯域がサテライト谷から Γ 谷に光学フォノンを放出しながら緩和する過程で律速されていることを初めて明らかにした。

この成果は、バルク半導体を用いても、もし適切な方法で高電界ドメインを抑制する(Gunn発振を抑圧する)ことができれば約1 THzまで発振器(レーザ)を実現することができることを示しており、応用上重要な知見である。

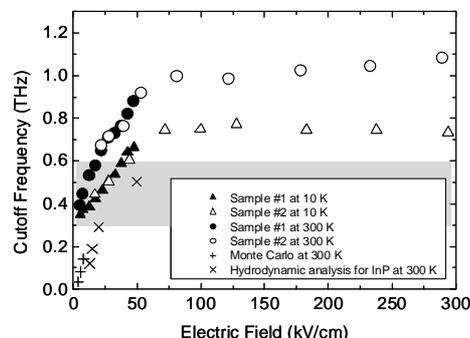


図1 バルク GaAs 中の谷間遷移微分負性抵抗の遮断周波数と加速電界の関係

(2) 半導体超格子中の電子のプロッホ振動とその初期位相

半導体超格子中をプロッホ振動する電子は、直流からプロッホ周波数までの広い周波数領域で微分負性抵抗を示し、電磁波に対する利得を有している。従来、半導体超格子中の伝導は、ミニバンドと呼ばれる半古典的なバンド伝導のモデルと、ワニエ・シュタルク梯子状態と呼ばれる量子力学的な準位の描像が、混在して用いられてきた。しかし、この2つの伝導モデルが等価であるかどうかの議論はこれまでなされていない。我々は、超格子中でプロッホ振動する電子が放射するTHz電磁波の波形を解析することにより、2つの描像の妥当性について議論した。

図2は、ミニバンドの底から上端まで、励起用フェムト秒レーザの波長を変化させて、測定したプロッホ振動する電子が放射するTHz電磁波の波形を示したものである。図からわかるように、明瞭なプロッホ振動が観測されている。このときの波形の dephasing を支配している機構は界面ラフネス散乱であることを系統的に試料を変えた測定より明らかにした。また注目すべき点は、励起波長

を変化させても、波形は変化しないことである。さらに、最大エントロピー法 (MEM) により、THz 放射における時間原点を求めたところ、図 3 (a) に示すような位置に決定することができた。このことは、ブロッホ振動する電子が放射する電磁波は $-\sin\omega_B t$ のようにスタートすることを示している。従って、この結果は、ブロッホ振動する電子が作る電流は励起波長によらず、いつも電流最大から $\cos\omega_B t$ のようにスタートすることを示しており、半古典的なミニバンド伝導モデルでは全く説明することができない。一方、超格子を図 3 (c) のような等間隔の準位を内包した特殊なキャパシタと見なせば、変位電流が $\cos\omega_B t$ のように変化すべきであることが自然と導ける。このことは、ブロッホ振動の初期位相を正しく理解するには、ミニバンド描像は適切ではなく、ワニエ・シュタルク梯子と

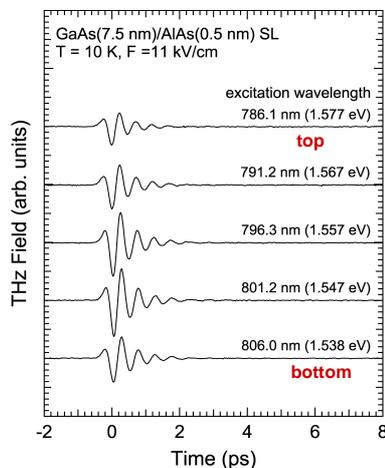


図 2 半導体超格子中でブロッホ振動する電子が放射する THz 電磁波の波形。パラメータは励起レーザーパルスの中心波長。

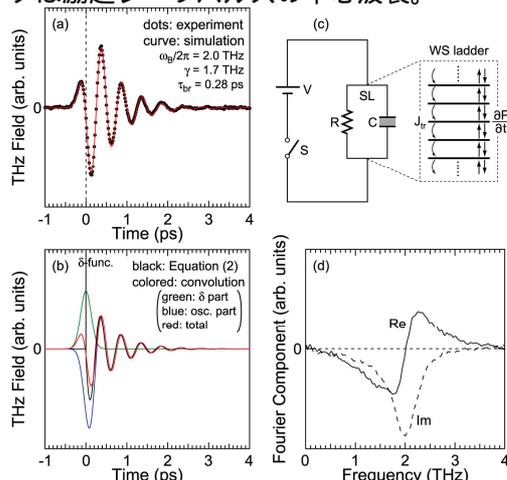


図 3 (a), (b) ブロッホ振動する電子の放射電磁波の解析。THz 電磁波の波形は、時間原点におけるデルタ関数と減衰する $-\sin\omega_B t$ の波形で説明できる。(c) 超格子のブロッホキャパシタモデル、(d) THz 波形から求めたブロッホ振動電子の伝導度スペクトル。

いう量子力学的な描像を用いることが必要不可欠であることを示している。この結果は、バンド伝導と量子準位の描像の違いを明らかにしたものとして、固体物理の根幹に関わる重要な知見である。

(3) 半導体超格子とテラヘルツフォトニック結晶の相互作用とその応用

ブロッホ振動する電子は THz 領域に利得を有するが、発振器を実現するためには共振器構造を付与することが不可欠である。本研究では、TM モードに対してフォトニックバンドギャップを有すると期待される六角格子八チの巣状の金属電極を超格子ウェーハ上に形成し、試料からの THz 放射を観測した。図 4 に示すように、フォトニック結晶によるブリルアンゾーンの形成により、ブロッホ周波数がフォトニックバンドギャップに近づく、THz 放射スペクトルが大きく変調を受けることが明らかになった。現状では、共振器構造による THz 放射の増強は観測されていないが、ブロッホ発振器に向けた試みとして、大きな第一歩であると考えている。

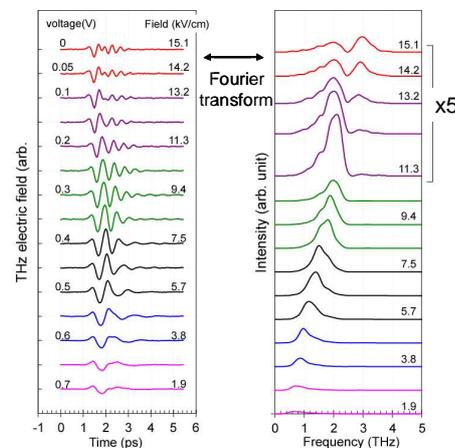


図 4 フォトニック結晶電極を表面に形成した超格子試料と THz 放射波形・スペクトル

(4) 電氣的にプローブした単一量子ドットの光応答

自己組織化 InAs 量子ドット中では電子の運動は完全に量子化され、殻構造を持つとともに、大きな電子間相互作用のため、得意な物理を示す。我々は、InAs 量子ドットにナノギャップを有する電極を形成し、ドットを介する単一電子伝導に様々な物理や機能を付加する研究を行っている。本研究では特に単一量子ドットトランジスタに THz 電磁波を

照射し、量子ドットの内部電子状態を明らかにするとともに、伝導のダイナミクスを明らかにすることを目的に研究を行った。

残念ながら現段階では、THz 分光系の立ち上げや THz 照射のアラインメントの困難さから、THz 照射による信号は得られていないが、現在、継続して実験を行っている。

予備実験として、図5は可視光を照射したときの、単一量子ドットトランジスタのクーロン振動スペクトルを示したものである。可視光照射によりクーロンピークが低ゲートバイアス側にシフトしている。可視光を遮断しても数千秒の間、ピークシフトは残った。これは光照射により発生した正孔が近傍の量子ドットにトラップされ、長い寿命でとどまるためと理解され、今後の量子ドットの光検出器への応用についての重要な知見が得られた。

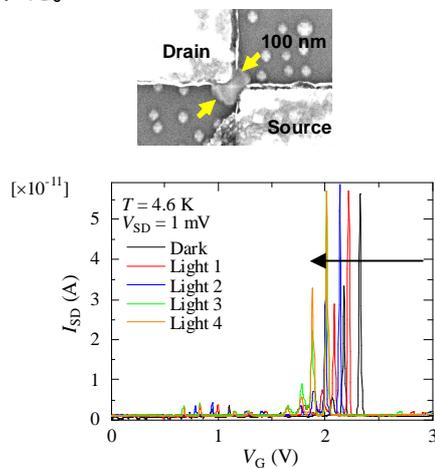


図5 異なる強度の可視光を照射したときのクーロン振動の変化の様子。強い可視光を照射すると低ゲートバイアス側にピークがシフトする。

(5) 通電断線法を用いた単一分子接合作製の高精度化とエレクトロマイグレーションの素過程の解明

様々な機能を有する分子をエレクトロニクスに応用する試みが近年盛んに研究されている。我々は、電子ビーム露光法で作製された極微金属接合に通電し、エレクトロマイグレーションにより精密に断線させ、原子レベルのギャップを高い歩留まりで作製するアルゴリズムを確立した。単一分子接合のTHz 分光は(4)と同様の理由で継続中であるが、副産物として、エレクトロマイグレーションの素過程を明らかにすることができた。

金属線に大きな電流を流すと断線するという現象はよく知られている。また、超 LSI 中では非常に高密度に張りめぐらされた配線の中を大きな電流が流れるため、配線の断裂が大きな故障原因となっている。これらの

現象は、広く“エレクトロマイグレーション現象”と呼ばれており、電流による加熱や電流を運ぶ電子が原子に衝突することにより原子が次第に動いていく現象(電子風モデル)として理解されてきた。

我々は、ナノメートル寸法の極微細金属接合を作製し、ナノ金属接合から原子が一つずつはずれていくときの条件を詳細に計測することにより、エレクトロマイグレーションが起きて原子が移動するためには、図6に示すように、原子の表面拡散ポテンシャルで決まる臨界電圧以上の電圧が必要であり、この電位差分のエネルギーを持った1電子が原子に衝突して、原子移動が起きることが明らかになった。また、臨界電圧を超えなければ、たとえ 10^{10} A/cm² という従来では不可能と考えられてきた大きな電流密度で電流を流しても金属は安定であることも明らかになった。

この知見は、超 LSI の配線の信頼性や適切な配線材料の選択に非常に有用な知見を与えるとともに、単一分子デバイスの実現に大きな道を拓くものである。

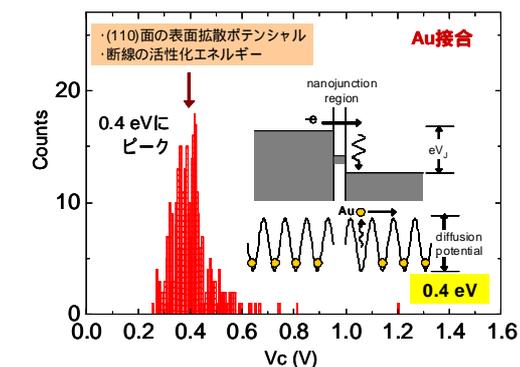
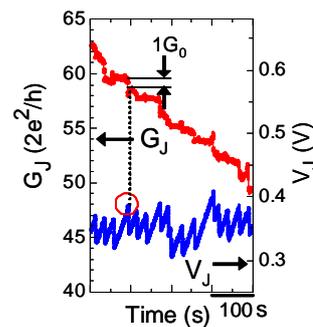


図6 極微金接合の通電断線過程における印加接合電圧とコンダクタンス(上)、原子がはずれるときの接合電圧のヒストグラム。接合電圧が金の表面拡散ポテンシャルに等しい時、最も高い頻度で原子がはずれる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計21件)

- (1) A. Umeno and K. Hirakawa: "Non-thermal origin of electromigration at gold

- nanojunctions in the ballistic regime", Applied Physics Letters, vol. 94, pp. 162103-1~3 (2009).
- (2) H. Yasuda, T. Kubis, P. Vogl, N. Sekine, I. Hosako, and K. Hiramawa: "Non-equilibrium Green's function calculation for four-level scheme terahertz quantum cascade lasers", Applied Physical Letters, vol. 94, pp.151109-1~3(2009).
 - (3) K. Shibata and K. Hiramawa: "The Kondo effect observed up to $TK \sim 80$ K in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes", Journal of Crystal Growth, vol. 311, Issue. 7, pp.1795-1798 (2009).
 - (4) K. Shibata, M. Jung, K. M. Cha, M. Sotome, and K. Hiramawa: "Effect of In-Ga intermixing on the electronic states in self-assembled InAs quantum dots probed by nanogap electrodes ", Applied Physics Letters, vol 94, pp.162107-1~3 (2009).
 - (5) Y. M. Zhu, T. Unuma, K. Shibata, K. Hiramawa, Y. Ino, and M. Kuwata-Gonokami: "Power dissipation spectra and terahertz intervalley transfer gain in bulk GaAs under high electric fields", Applied Physics Letters, vol. 93, pp. 232102-1~3 (2008).
 - (6) Y. M. Zhu, T. Unuma, K. Shibata, and K. Hiramawa: "Femtosecond acceleration of electrons under high electric fields in bulk GaAs investigated by time-domain terahertz spectroscopy", Applied Physics Letters, vol. 93, pp.042116-1~3 (2008).
 - (7) K. Shibata and K. Hiramawa: "High Kondo temperature ($TK \sim 80$ K) in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes", Applied Physics Letters, vol. 93, pp. 062101-1~3 (2008).
 - (8) Y. M. Zhu, T. Unuma, K. Shibata, K. Hiramawa, Y. Ino, and M. Kuwata-Gonokami: "Femtosecond very high-field transport in bulk GaAs investigated by time-domain terahertz spectroscopy", Physica Status Solidi (c), vol. 5, No.1, pp. 240-243 (2008).
 - (9) T. Kondo and K. Hiramawa: "Terahertz radiation from ultrahigh-speed field-effect transistors induced by ultrafast optical gate switching", Applied Physics Letters, vol. 91, pp.191120-1~3 (2007).
 - (10) K. Hiramawa, T. Unuma, and N. Sekine: "Dispersive terahertz Bloch gain in semiconductor superlattices", AIP Conf. Proc., vol.922, p.191 (2007).
 - (11) K. Shibata, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hiramawa, and S. Tarucha: "Lateral electron tunneling through single self-assembled InAs quantum dots coupled to superconducting nanogap electrodes", Applied Physics Letters, vol. 91, No. 11, pp. 112102-1~3 (2007).
 - (12) K. Shibata, M. Jung, K. Hiramawa, T. Machida, and H. Sakaki, S. Ishida and Y. Arakawa: "Electronic properties of self-assembled InAs quantum dots on GaAs surfaces probed by lateral electron tunneling structures", Journal of Crystal Growth, vol. 301, pp. 731-734. (2007).
 - (13) T. Unuma, N. Sekine, and K. Hiramawa: "Dephasing of Bloch oscillating electrons in GaAs-based superlattices due to interface roughness scattering", Applied Physics Letters, vol. 89, No. 16, pp. 161913-1~3 (2006).
 - (14) K. Hiramawa and N. Sekine: "Carrier dynamics and dispersive terahertz Bloch gain in semiconductor superlattices (invited)", Physica E, Vol. 32, Issues 1-2, pp. 320-324 (2006).
 - (15) 平川一彦, 関根徳彦, 島田洋蔵, "半導体超格子のプロッホ振動:非古典的振動子のテラヘルツ利得", 「応用物理」, No.6, (2006).
- ほか 6 編
- [学会発表](計 6 1 件)
- (1) K. Hiramawa, T. Ihara, Y. Sakasegawa, T. Unuma, and N. Sekine: "Dispersive terahertz Bloch gain in semiconductor superlattices" (invited), International meeting on frontiers of physics 2009 (IMFP 2009), Awana Genting Highlands, Malaysia, Jan. 12-16 (2009)
 - (2) K. Hiramawa, T. Unuma, and N. Sekine: "Dispersive terahertz Bloch gain in semiconductor superlattices", GDR-E 2008 THz Workshop, Paris, France, Sep. 25-26 (2008)
 - (3) K. Shibata and K. Hiramawa: "The Kondo effect observed up to $TK \sim 80$ K in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes", 15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2008), The University of British Columbia, Vancouver, Canada, Aug.3-8 (2008)
 - (4) K. Hiramawa, T. Unuma, Y. M. Zhu, N. Sekine: "Negative differential conductivities and terahertz gain in bulk semiconductors and superlattices" (invited), Device Research Conference (DRC 2008), Santa Barbara, CA, USA, June 23~25 (2008)
 - (5) K. Hiramawa: "Physics and applications of InAs quantum dots coupled to nanogap leads"(invited), 9TH International Workshop on Expert Evaluation & Control of Compound Semiconductor Materials & Technologies (EXMATEC 2008), June 1~4

- (2008)
- (6) K. Shibata, M. Jung, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hirakawa, T. Machida, S. Tarucha: "Electron tunneling through single self-assembled InAs quantum dots coupled to nanogap electrodes", 34th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2007), Kyoto, Japan, Oct. 15-18 (2007)
- (7) K. Hirakawa, T. Unuma, and N. Sekine: "Dispersive terahertz Bloch gain in semiconductor superlattices (invited)", 19th International Conference on Noise and Fluctuations(icnf 2007), Yoyogi, Tokyo, Japan, Sep. 9-14 (2007)
- (8) Y. M. Zhu, T. Umuna, K. Shibata and K. Hirakawa: "Femtosecond electron acceleration in bulk GaAs investigated by time-domain THz spectroscopy", The 7th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Pacific Rim 2007), COEX Convention Center, Seoul, Korea, Aug. 26-31 (2007)
- (9) K. Hirakawa, T. Unuma, Y.M. Zhu, and N. Sekine: "Negative differential conductivities and terahertz gain in bulk semiconductors and superlattices", 7th Topical Workshop on Heterostructure Microelectronics (TWHM2007), Kazusa Arc, Kisarazu, Chiba, Aug. 21-24 (2007)
- (10) Y. M. Zhu, T. Unuma, K. Shibata, and K. Hirakawa: "Femtosecond very high-field transport in bulk GaAs investigated by time-domain terahertz spectroscopy" 15th International Conference on Nonequilibrium Carrier Dynamics in Semiconductors (HCIS 15), University of Tokyo Hongo campus, Tokyo, Japan, July 23-27 (2007)
- (11) T. Unuma, K. Hirakawa, Y. Ino, and M. Kuwata-Gonokami: "Temporal origin of terahertz emission and the initial phase of Bloch oscillations in GaAs/AlAs superlattices", 15th International Conference on Nonequilibrium Carrier Dynamics in Semiconductors (HCIS 15), University of Tokyo Hongo campus, Tokyo, Japan, July 23-27 (2007)

ほか 5 0 件

〔図書〕(計 1 0 件)

- (1) 平川一彦: "量子ナノ構造とテラヘルツ光デバイス"(6.7) 日本学術振興会 光電相互変換第 1 2 5 委員会編「発光と受光の物理と応用」(分担執筆) 培風館、pp.256-268 (2008) .
- (2) 平川一彦: "半導体超格子とプロッホ振動"(第 8 章テラヘルツの科学、第一節半導体、8.1.4.1)「テラヘルツ技術総覧」

NGT (2007) .

- (3) 平川一彦: "半導体極微細構造中の電子の動きを直接観る"(第 10 章、第 4 節)「非侵襲・可視化技術ハンドブック」NTS (2007) .
- (4) 平川一彦: "テラヘルツ波半導体デバイス"、エレクトロニクス材料・技術シリーズ「高周波半導体材料・デバイスの新展開」シーエムシー出版(分担執筆) pp. 250-266 (2006) .

ほか 6 件

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称:「量子カスケードレーザー」

発明者: 関根徳彦、平川一彦

権利者: 独立行政法人情報通信研究機構

種類: 特許

番号: 特願 2006 -181502

出願年月日: 平成 18 年 6 月 30 日

国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

なし

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究代表者

平川 一彦 (HIRAKAWA KAZUHIKO)

東京大学・生産技術研究所・教授

研究者番号: 10183097

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

荒川 泰彦 (ARAKAWA YASUHIKO)

東京大学・先端科学技術センター・教授

研究者番号: 90134642

藤田 博之 (FUJITA HIROYUKI)

東京大学・生産技術研究所・教授

研究者番号: 90134642

柴田 憲治 (SHIBATA KENJI)

東京大学・生産技術研究所・助教

研究者番号: 00436578