

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 22 日現在

機関番号：13102

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2016

課題番号：25707026

研究課題名(和文)半導体超格子におけるテラヘルツ利得の増強と電場効果制御

研究課題名(英文) Enhancement and field-effect control of terahertz gain in semiconductor superlattices

研究代表者

鶴沼 毅也 (Unuma, Takeya)

長岡技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：20456693

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 22,300,000円

研究成果の概要(和文)：GaAsとAlAsをナノレベルの厚さで交互に積層した半導体超格子において、テラヘルツ電磁波への増幅作用(利得)を高温での物理的性質と制御性に重点を置きながら調べた。80 K(-193 )から298 K(25 )までの温度範囲に亘って、積層方向の直流電圧下で光パルスによって作られた電子は、電圧制御される振動周波数と特殊な初期位相を持つテラヘルツ放射時間波形を示すことが分かった。位相情報を利用して得られた複素伝導度スペクトルから、半導体超格子における電子系のコンデンサー的な性質(従来の反転分布の概念には基づかない)に由来した室温テラヘルツ利得の存在を実証した。

研究成果の概要(英文)：We investigated the amplification effect on (i.e., the gain for) terahertz electromagnetic waves in semiconductor superlattices with an emphasis on its physical nature and controllability at high temperatures, which artificial crystals contained an alternate stack of nanometer-thick GaAs and AlAs layers. Electrons created by optical pulses under dc voltage in the stacking direction were found to exhibit temporal waveforms of terahertz emission with a voltage-controlled oscillation frequency and a unique initial phase throughout the temperature range of 80-298 K. The complex conductivity spectra obtained using the phase information have offered direct evidence for the existence of room-temperature terahertz gain in semiconductor superlattices that originates from a capacitive nature of the electron system (without the conventional concept of population inversion).

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 光学利得 シュタルク効果 量子ビート 非平衡系

## 1. 研究開始当初の背景

(1)テラヘルツ波は THz (=  $10^{12}$  Hz)の周波数を持つ電磁波であり、電波と光の中間に位置している。従来のエレクトロニクスとフォトニクスで培われてきた基本的概念や技術をこの周波数領域へそのまま適用することには限界があり、物性物理学の観点から概念の拡張や新奇現象の探索が近年盛んに進められてきた。その知見に基づいて小型で高機能の光源・検出器が開発されれば、テラヘルツ波の特性を生かした高速無線通信や非破壊検査への応用も加速すると期待される。

(2)テラヘルツ波に対する増幅作用(利得)を持つ材料・構造はこれまで限られており、小型の固体レーザーで室温動作と波長可変動作を実現するには工夫が求められている。例えば、キャリアの反転分布を形成することにより光子エネルギー $\hbar\omega$ で発振する既存の半導体レーザー(テラヘルツ量子カスケードレーザー)においては、 $kT > \hbar\omega$  ( $k$ : ボルツマン定数,  $\hbar$ : 換算プランク定数)となる温度  $T$  で反転分布を維持しづらいうことが問題となっている。周波数 $\omega/2\pi \sim 2$  THz を典型値として考えると  $\hbar\omega/k \sim 100$  K ( $-173$  ) であるため、素子を低温まで冷却する必要がある。

(3)本研究課題で対象とした半導体超格子は、異なる半導体材料を nm レベルの厚さで交互に積層した人工結晶である。その内部には、積層構造に由来したエネルギーバンド(ミニバンド)が形成され、積層方向へ直流電場  $F$  が印加されるとミニバンドが等間隔のエネルギー準位群(シュタルクラダー)に分裂することが知られている。このときの準位間隔は  $eFd$  ( $e$ : 素電荷,  $d$ : 超格子周期)であり、印加電場  $F$  によって  $eFd/h$  をテラヘルツ領域の周波数に調節することができる。シュタルクラダーの形成は直流伝導の妨げになるため、超格子は一般に非線形の直流電流 - 電圧特性を示す。

(4)過去の数件の理論的研究によって、シュタルクラダー上の電子系は反転分布を伴わずに、テラヘルツ利得を低温 ( $kT < eFd$ ) から高温 ( $kT > eFd$ ) まで持つことが予測されている [H. Willenberg *et al.*, Phys. Rev. B **67**, 085315 (2003) など]。研究代表者らは、低温 10 K ( $-263$  ) において GaAs 系超格子のシュタルクラダー上に分布した電子の集団の量子ビート(プロッホ振動)が持つ特殊な位相を観測し、この電子系固有のコンデンサー的な応答がテラヘルツ利得の存在に本質的であることを 2010 年に報告した [T. Unuma *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 125329 (2010)]。しかし、温度が室温まで上昇して  $kT$  が  $eFd$  を上回る時に、振動の位相とテラヘルツ利得がどのように振る舞うのかということはこれまで実験的に検証されていなかった。

## 2. 研究の目的

本研究では、直流電場の印加された半導体超格子において、室温までテラヘルツ利得を発生させるための非平衡物理の理解と制御を目的とした。独自の時間原点決定法を備えたテラヘルツ放射分光を用いることにより、励起光パルスでシュタルクラダー上に作られた電子のプロッホ振動の位相情報を、試料温度、印加電場、励起光子エネルギーなどに対して系統的に調べることができる。シュタルクラダーが反転分布を伴わない非平衡系であることの特徴を、時間領域で観測される信号から抽出することを計画した。さらに、超格子に室温テラヘルツ利得が存在するという直接的証拠を、複素伝導度のスペクトル形状から提示することを目指した。

## 3. 研究の方法

### (1)半導体超格子の試料設計・作製

材料パラメータと結晶成長法が確立されている GaAs, AlAs, およびそれらの混晶を用いた複数の超格子構造を設計した。その際、クローニツヒ・ペニーモデルに基づいてミニバンドがどのような配置で形成されるかを計算した。例えば GaAs (7.5 nm)/AlAs (0.5 nm) 超格子においては、伝導バンド中に 45 meV の幅を持つほぼ孤立した基底ミニバンドが形成される(後述の測定条件では上位のミニバンドは無視できる)ことが分かった。さらに、直流電場を印加した場合のシュレーディンガー方程式を有限要素法に基づいて数値的に解き、シュタルクラダーを構成するエネルギー準位および波動関数を求めた。

分子線エピタキシー法で(001)  $n$ -GaAs 基板上に結晶成長された実際の超格子試料には、積層方向へ電圧を印加するための電極加工を施した。裏面へ AuGeNi を蒸着・アニールして基板とのオーミックコンタクトをとり、表面へ半透明の NiCr を蒸着して超格子層とのショットキーコンタクトをとった(下記のテラヘルツ放射分光においては、NiCr 電極を通過させて近赤外光パルスの照射とテラヘルツ放射波の収集を行う)。

### (2)温度可変テラヘルツ放射分光の測定システム構築および測定実施

本補助金で購入したフェムト秒レーザーと顕微クライオスタットを用いて、試料温度を系統的に変化させながらテラヘルツ放射波形を調べる分光測定システムを構築した。クライオスタットには近赤外入射光(励起光パルス)とテラヘルツ放射波のための透明窓を取り付け、 $45^\circ$  入射に適した試料ホルダーを自作した。試料に予め直流電圧を印加した状態で近赤外光パルスを照射すると、価電子バンドから伝導バンドへ励起された電子が試料外部へテラヘルツ波を放射する。

温度に対して母体材料のバンドギャップが変化するため、励起光パルスの中心波長を調節することにより、伝導バンドに形成され

ている超格子ミニバンド内のねらった位置に電子を作った。温度は 80 K (−193 ) から 298 K (25 ) まで変化させた。厚さ 0.1 mm の(110) ZnTe センサーを使用し、3.5 THz までフラットな感度で、テラヘルツ放射波の電場時間波形を測定した。

### (3)最大エントロピー法による時間原点決定

テラヘルツ放射波形における時間原点の位置(励起光パルスのピークで作られた電子がテラヘルツ放射を開始する時刻:  $t = 0$ )は、プロッホ振動の位相を求めるために重要である。そこで、情報理論に基づく最大エントロピー法をテラヘルツ放射波形へ適用することにより [T. Unuma *et al.*, *Opt. Express* **18**, 15853 (2010)], 時間原点を決定した。

### (4)テラヘルツ放射波形のシミュレーション

観測されたテラヘルツ放射波形を系統的に再現するために、電流  $J(t)$  を  $e^{-\gamma t} \cos(\omega_B t + \alpha)$  型の減衰振動に仮定し、 $dJ/dt$  (テラヘルツ波の電場に比例する量) をシミュレートした。その際、測定系の周波数帯域が 3.5 THz までに限られていることを考慮し、対応する時間分解能 0.27 ps で  $dJ/dt$  を畳み込んだ後に測定データと比較した。この比較から、減衰振動の位相緩和時間  $1/\gamma$  と初期位相  $\alpha$  (フィッティングパラメータ) が各測定温度において得られた。

### (5)複素伝導度スペクトルの算出

光パルスによって伝導ミニバンドに作られた電子は、予め印加されている直流電場を時刻  $t = 0$  に突然感じ始める。したがって、観測されるテラヘルツ放射波形は、印加電場に対する電子系のステップ応答を表す。このことに基づいて、放射波形にフーリエ変換を施せば、テラヘルツ領域の複素伝導度スペクトルを算出することができる。複素伝導度の実部の符号が負になる周波数では、超格子は負の抵抗率(あるいは負の吸収係数)を持つ媒質として振る舞うことになるため、テラヘルツ波に対する利得が存在すると判定することができる。

## 4. 研究成果

(1)熱エネルギーが準位間隔を上回るような温度領域 ( $kT > eFd$ ) における半導体超格子のテラヘルツ応答の基礎的理解

GaAs (7.5 nm)/AlAs (0.5 nm) 超格子試料の温度  $T = 150$  K におけるテラヘルツ放射波形を図 1 に示す。(a)は励起光子エネルギー  $E_{pm}$  を 1.518 eV に固定し、直流印加電場  $F$  のみを変化させた場合の測定結果である。現れた信号は  $eFd/h$  に近い周波数を持ちながら印加電場  $F$  と共に変化しており、電子のプロッホ振動に帰属される。(b)は印加電場  $F$  を 13 kV/cm に固定し、励起光子エネルギー  $E_{pm}$  を変化させることによって伝導ミニバンドの底から中腹に電子を作った(直流の光電流は

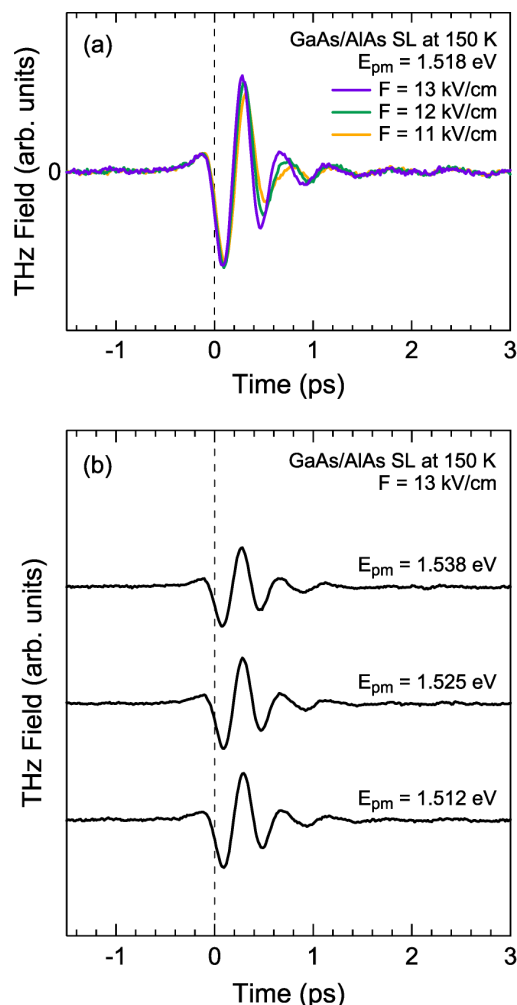


図1 温度 150 K における GaAs/AlAs 超格子試料のテラヘルツ放射波形: (a)積層方向の直流印加電場  $F$  に対する依存性, (b)励起光子エネルギー  $E_{pm}$  に対する依存性 [雑誌論文 より引用]

0.40 mA にそろえている) 場合の測定結果である。信号は形状の変化をほとんど示さず、常に  $-\sin \omega_B t$  型の減衰振動に近い時間発展をすることが分かった。同様の結果は、GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 超格子についても得られた。

これらの特徴は、研究代表者らが 2010 年に低温 10 K において報告した電子系固有のコンデンサー的な応答 [T. Unuma *et al.*, *Phys. Rev. B* **81**, 125329 (2010)] とよく似ている。温度  $T = 150$  K における上記の結果では、印加電場  $F = 13$  kV/cm に対して  $eFd/h = 2.5$  THz および  $T_c = eFd/k = 120$  K であり、 $T > T_c$  の大小関係が成り立っている。このように熱エネルギー  $kT$  が準位間隔  $eFd$  を上回る状況においても、低温と同様の性質が新たに確認されたことが重要な点である。

(2)半導体超格子中を流れる過渡電流の温度依存性の解明

温度  $T = 80-298$  K におけるテラヘルツ放射波形の測定結果 ( $\omega_B/2\pi = 2.3$  THz の場合) を図 2 に黒丸で示す。縦軸値のスケールは(a),

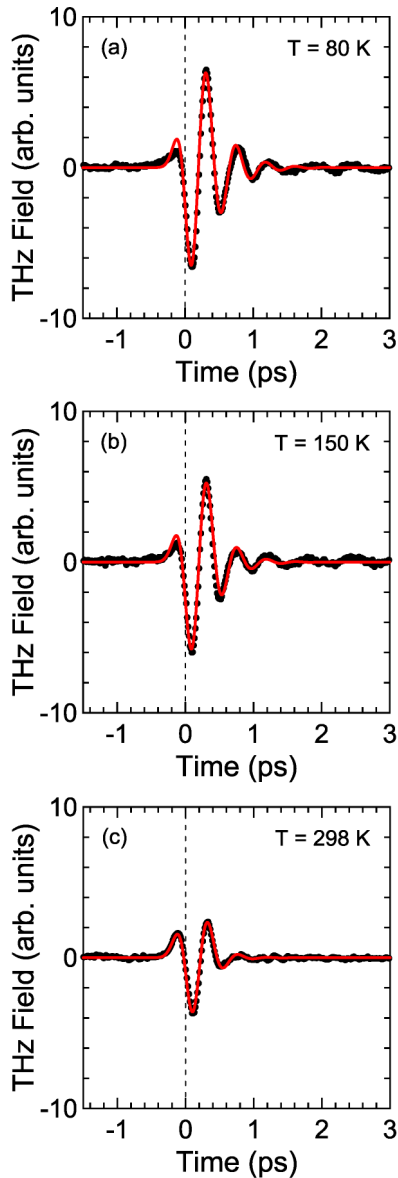


図2 温度 80–298 K におけるテラヘルツ放射波形 (黒丸：測定結果，赤線：シミュレーション結果) [雑誌論文 より引用]

(b), (c)に共通である。減衰振動は,  $T = 80$  K において 1.5 ps 程度続いている。温度  $T$  が上昇して  $T_c (= 110$  K) を超えるとき, その信号は劇的には変化しないことが分かった。  $T = 150$  K においては振動の減衰がわずかに速い点のみが異なっており,  $T = 298$  K においては減衰が一層速くなった様子が見られる。温度の上昇と共にテラヘルツ放射の強さは単調減少している。

測定結果の詳細は, シミュレーションとの比較を通して理解することができる。電流を  $e^{-\gamma t} \cos(\omega_0 t + \alpha)$  型の減衰振動に仮定してシミュレートしたテラヘルツ放射波形を, 図2に赤線で示す。その際, パラメータである位相緩和時間  $1/\gamma$  および初期位相  $\alpha$  は表1のようになった。図2の各温度において, シミュレーション結果は測定結果をよく再現している。

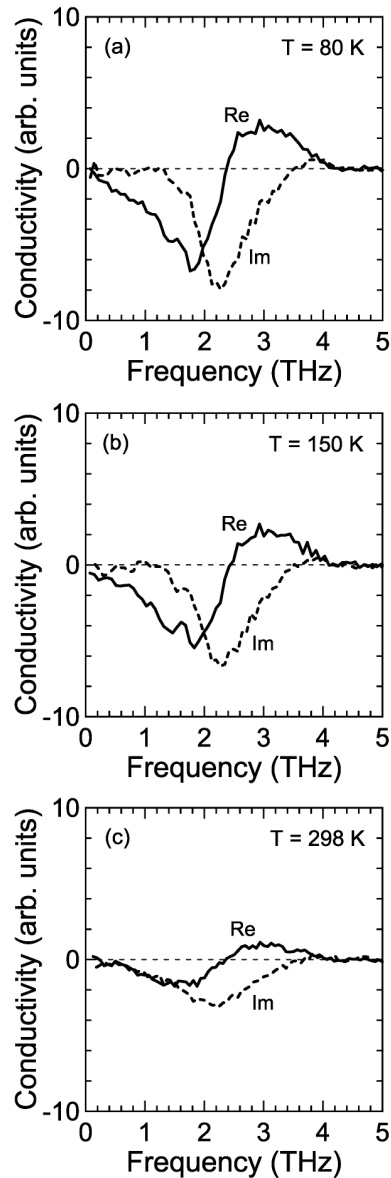


図3 温度 80–298 K における複素伝導度スペクトル (実線：実部, 破線：虚部) [雑誌論文 より引用]

表1 温度 80–298 K において求められた位相緩和時間と初期位相 [雑誌論文 より引用]

温度 $T$ (K)	位相緩和時間 $1/\gamma$ (ps)	初期位相 $\alpha$ (rad)
80	0.31	0.38
150	0.27	0.38
298	0.19	0.28

$t < 0$  における小さな放射ピークの現れ方は各温度で似ており,  $t > 0$  における放射の強さは温度に依存した位相緩和時間に支配されていることが明らかになった。

(3) 位相緩和時間と初期位相の温度依存性に関する解釈

位相緩和時間  $1/\gamma$  は, 温度が 80 K から 298 K まで上昇するにつれて, 0.31 ps から 0.19 ps

まで減少した。これは、フォノン散乱過程が温度の上昇と共に活性化されて、シュタルク準位にぼけを与えたことを示している。一方、初期位相 $\alpha$ は、各温度において $\pi/2$ ( $= 1.57$  rad)より遥かに小さいことが分かった。これは、シュタルク準位が温度の上昇と共にかなりぼけたとしても、(コンデンサーの充電現象に類似して)電流が時刻 $t=0$ に最大から流れ始めることを意味する。背景で述べたように、シュタルク準位のぼけが小さい低温 10 K においては、すべての準位に同数ずつ分布した電子の集団(反転分布を伴わない)がコンデンサー的な応答を示すことを研究代表者らは以前に報告している[T. Unuma *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 125329 (2010)]。その性質が室温まで保存されることを今回新たに見出した。

#### (4)半導体超格子における複素伝導度スペクトルの算出と室温テラヘルツ利得の実証

温度 $T=80\text{--}298$  Kにおけるテラヘルツ放射波形(図2の黒丸)から得られた複素伝導度スペクトルを図3に示す。縦軸値のスケールは(a), (b), (c)に共通である。温度の上昇と共に伝導度の大きさが単調減少していることは、図2でテラヘルツ放射の強さが単調減少していたことに遡れるため、フォノン散乱の影響であると考えられる。室温までの各温度においては、初期位相 $\alpha$ が非常に小さいせいで複素伝導度の虚部は $\omega_B/2\pi=2.3$  THzで負のピークをとり、実部はその周波数を境にして負から正へと(利得領域から損失領域へと)変化していることが分かった。実部の正と負のピークは、 $\sim\gamma/\pi$ だけ離れている。

このように、複素伝導度スペクトルの温度依存性から、超格子における電子系のコンデンサー的な性質(従来の反転分布の概念には基づかない)に由来した室温テラヘルツ利得の存在を実証することに成功した。

### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計1件)

Akiyoshi Naka, Kazuhiko Hirakawa, and Takeya Unuma, "Capacitive response and room-temperature terahertz gain of a Wannier-Stark ladder system in GaAs-based superlattices," Applied Physics Express **9**, 112101-1 ~ 112101-4 (2016), 査読有  
DOI: 10.7567/APEX.9.112101

[学会発表](計2件)

中章圭, 平川一彦, 鶴沼毅也, 「GaAs系超格子におけるテラヘルツ複素伝導度スペクトルの温度依存性」, 日本物理学会第72回年次大会, 2017年3月19日, 大阪大学豊中キャンパス(大阪府豊中市)

中章圭, 鶴沼毅也, 「GaAs系超格子におけるテラヘルツ複素伝導度スペクトルの温度依存性」, 日本物理学会第71回年次大会 2016

年3月21日, 東北学院大学泉キャンパス(宮城県仙台市)

[その他]  
ホームページ等  
<https://quantum.nagaokaut.ac.jp>

### 6. 研究組織

#### (1)研究代表者

鶴沼 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

#### (2)研究分担者

なし