

平成 30 年 5 月 31 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26289088

研究課題名(和文)量子ビートチューニングによる差周波混合テラヘルツ電磁波の増強

研究課題名(英文) Enhancement of terahertz electromagnetic wave of difference wave mixing due to quantum beat tuning

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) 12,600,000円

研究成果の概要(和文)：二つの連続波レーザーを半導体多重量子井戸に照射することで発生する差周波混合によるテラヘルツ電磁波を量子ビートにより増強することを目的に研究を行った。室温において、二つの連続波レーザーを重い正孔励起子と軽い正孔励起子のエネルギーに一致させて照射することで、最大強度が得られることが明らかになった。一般に閃亜鉛鉱構造型の半導体では重い正孔励起子の振動子強度は軽い正孔励起子の3倍であるので、本来であれば、重い正孔励起子で最大強度が得られるはずである。しかしながら、実験では軽い正孔励起子エネルギーで最大強度になっており、このことは量子ビートによる差周波混合過程の増強が可能であることを示唆している。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the enhancement of terahertz electromagnetic waves due to exciton quantum beat generated by difference frequency mixing excited by two continuous wave lasers in a semiconductor multiple quantum well. The maximum intensity was obtained by two continuous wave lasers with the energies of heavy-hole and light-hole excitons at room temperature. Generally, in the zincblende structure semiconductors, the oscillator strength of heavy-hole excitons is three times larger than that of light-hole excitons, so that the maximum intensity was expected at the heavy-hole exciton energy. However, in the experiment, the maximum intensity was obtained at the light-hole exciton energy, which suggests that it is possible to enhance the difference frequency mixing process by quantum beat.

研究分野：半導体光物性

キーワード：励起子 テラヘルツ電磁波 差周波混合 多重量子井戸 GaAs

1. 研究開始当初の背景

近年、テラヘルツ電磁波に関する研究開発が国内外でますます活発になっており、さらなる発展に向け、様々な周波数帯のテラヘルツ電磁波発生素子が必要とされている。これまでによく知られているテラヘルツ電磁波の発生方法としては、半導体基板上の光伝導アンテナに超短パルスレーザーを照射する方法があり、これが一般的な手法として用いられている[1]。さらに半導体表面に超短パルスを照射して生成されるキャリアの移動による電磁波発生[2]や非線形光学効果を利用した高強度な電磁波発生[3]などがある。これらは、概ねピークが1~2テラヘルツ程度で広帯域(半値幅:1テラヘルツ以上)な単サイクルの電磁波を発生させる方法である。その一方で、狭帯域のテラヘルツ電磁波の連続発生の方法としては、量子カスケードレーザーが長年研究されており、さらに最近では非線形光学効果を利用し、差周波混合によって、テラヘルツ電磁波を発生させる方法が注目されている[4]。

そのような状況の一方で、我々は半導体中のコヒーレント振動の一つである励起子量子ビートに注目して研究を行ってきた。量子ビートとは、図1に示すような3準位系において、二つの準位をスペクトル幅が広い超短パルスで同時に励起することで発生するコヒーレント振動現象である。二つの状態を同時に励起することで、重ね合わせ状態が形成され、過渡応答信号に量子ビートによる振動構造が出現する。この量子ビートを超高速光スイッチへ応用することを目的として、これまで研究を行ってきた。

量子ビートは、テラヘルツ電磁波発生源として盛んに研究されていたが、室温で観測された例は極めて数が少ない。その原因として、フォノン散乱などに起因する励起子の高速な位相緩和が考えられてきた。しかしながら、GaAs/AlAs多重量子井戸において量子ビートの温度依存性を測定し、精密な解析を行った結果から、少なくとも150Kまでは励起子の安定性と量子ビートの発生には明確な関係はないことを我々は明らかにした。さらに、不均一広がり幅に起因した複数の量子ビートの発生が高温下で量子ビートを実現できない原因の一つであることも報告した。

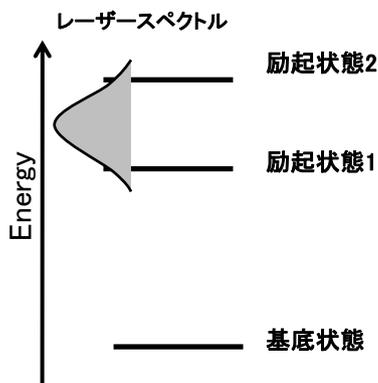


図1 量子ビートの発生機構。

[5]。

2. 研究の目的

上記の研究背景から、照射するレーザーパルスのスペクトル幅を精密に制御することで、量子ビートによる分極を室温でも生成可能であり、この分極を2つの連続波光レーザーを照射して発生する差周波混合光と共鳴させることでテラヘルツ波を増強できると考えた。その例として、量子ビートとの周波数共鳴を利用することでコヒーレントフォノンを増強できることも、報告されている[6]。これらを踏まえて、量子ビートの周波数を、量子閉じ込め効果や電場などで制御することで、周波数可変のテラヘルツ波発生デバイスの実現に向けた知見を得られると考え、本研究に着手した。

3. 研究の方法

試料には GaAs/AlAs 多重量子井戸を用いた。量子井戸では、図2に示すように、量子閉じ込め効果により重い正孔と軽い正孔が分裂しており、この分裂エネルギーは井戸幅などによって制御可能である。この重い正孔-軽い正孔分裂エネルギーの幅に応じて、量子ビートの振動周期が変化するので、これが差周波混合のエネルギーと一致する場合と一致しない場合の共鳴効果を比較することができる。さらに、量子井戸では、図3に示すように、量子閉じ込めシュタルク効果により非対称化された包絡波動関数によって形成される分極が、テラヘルツ電磁波発生の重要な要素となる。そこで、pin構造に量子井戸を埋め込むことで電界を印加し、測定を行った。なお、試料は英国 Sheffield 大学で作製され、す

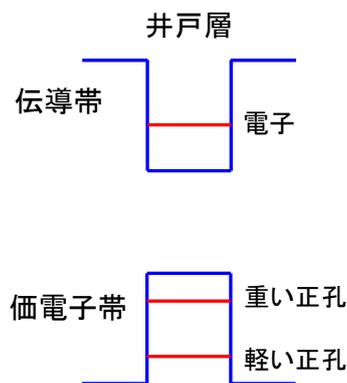


図2 量子井戸の電子状態。

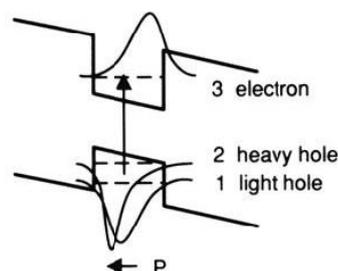


図3 分極の発生原理。

すべての測定は室温で行った。

4. 研究成果

テラヘルツ電磁波の測定を行うために、図 4 の光学系を構築した。励起光源には、半導体レーザーと Ti:sapphire レーザーを連続波モードで使用した。この2つのレーザー光をレンズで集光し、量子井戸試料に照射して発生したテラヘルツ電磁波を放物面鏡で集光して、検出器に入力した。

測定結果を、図 5 に示す。この実験では一つ

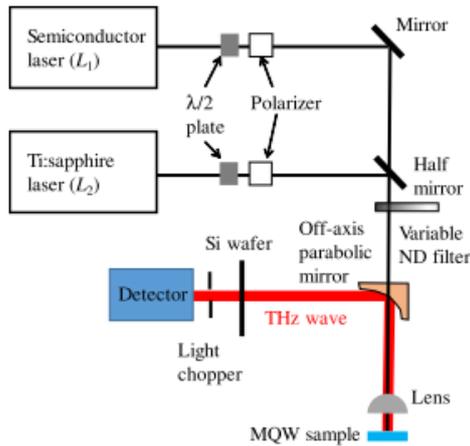


図 4 測定に用いた光学系の模式図。

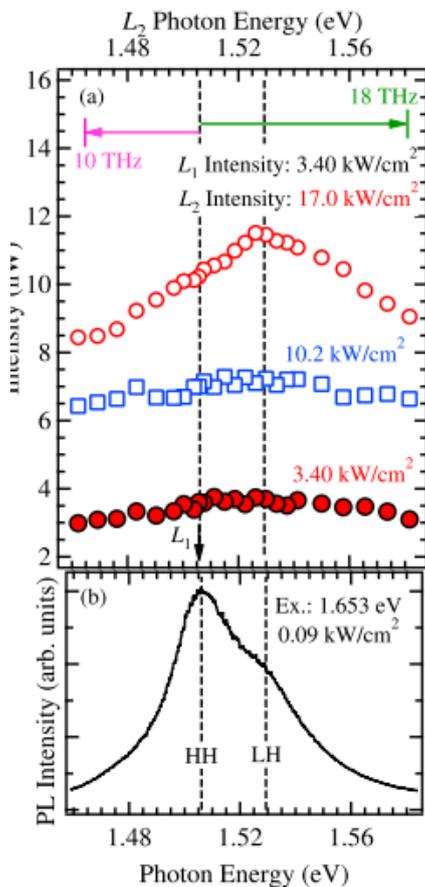


図 5 テラヘルツ電磁波強度のレーザーエネルギー依存性と発光スペクトル。

のレーザーのエネルギーを重い正孔励起子エネルギーで一定とし(図中の L_1 の矢印)、もう一つレーザー (L_2) のエネルギーを様々に変えた。レーザーの励起光強度を二つのレーザーとも 3.4 kW/cm^2 で行った場合、信号は観測されるものの、明確なピーク構造は得られない。それに対し、 L_2 のレーザーの強度を増加させていくと、より明瞭なピーク構造が得られた。

この信号の起源が差周波混合によるテラヘルツ電磁波であることを示すために、励起光強度依存性を測定した結果が図 6 である。信号強度は励起光強度に対して 2 乗で増加しており、これは差周波混合によるテラヘルツ電磁波の特徴である。

ここで、図 5 において LH で示した軽い正孔励起子エネルギーでピークになっていることに注目する。一般に GaAs のような閃亜鉛鉱構造型結晶では、重い正孔励起子の振動子強度は軽い正孔励起子の 3 倍である。したがって、本来であれば、重い正孔励起子エネルギーで最大の強度が得られるはずである、それにもかかわらず、軽い正孔励起子エネルギーで最大強度が得られているということは、図 3 で示したような量子閉じ込めシュタルク効果に起因した分極が差周波混合過程を増強したことに起因していると考えている。

次に、出力のさらなる増強を目指して、量子ビートの生成に関する検討を行った。超短パルスレーザーで量子ビートを発生させる一般的な手法の場合、レーザーエネルギーを二つの励起子エネルギーの中心とすることで、最大強度が得られる[6]。これは材料や測定手法には依存しない。その理由について現象論的に明らかにするために、励起子線の形状が量子ビートに与える効果について、計算を行った。その結果を、図 7 に示す。この計算では、励起子線がフォーク関数で表されると考え、不均一広がり幅 (σ) と均一広がり幅 (γ) を様々に変えて計算を行った。なお、量子ビートの振幅は二つの励起子線の関数の積で与えられるとしている。図 7 で示すように、均一広がり幅が不均一広がり幅の 1/5 程度と小さい場合に励起子エネルギーでピークとなり、それ以外では中心エネルギーで最大となっている。

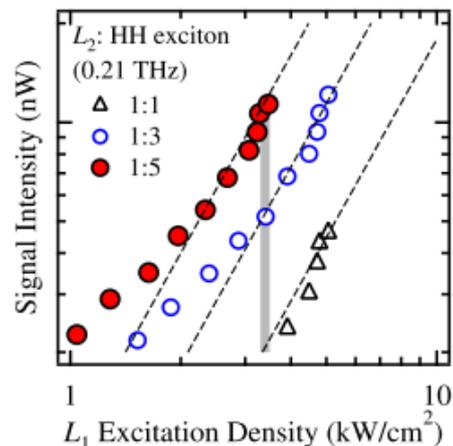


図 6 励起光強度依存性。

また、均一広がり幅が小さい方がピーク強度が大きい。この結果は、振幅の大きさには均一広がり幅が影響する一方で、不均一広がり幅も重要な寄与をしていることを示している。

そして、レーザーに求められる条件を明らかにするために、超短パルスレーザーのスペクトル幅を変えた実験を行った。図 8 の上にレーザースペクトルを制御した結果を示す。レーザーのスペクトルを制御していない条件での測定結果(破線)と比べて、振動構造が明瞭であり、さらに振動の減衰も抑制されている。このことは、量子ビートの発生において、励起に用いるレーザーのスペクトル幅が重要であることと、さらに必ずしもスペクトル幅が広いパルスで励起することが必須ではなく、励起子のみを励起した場合でも可能であることを意味している。これは、本研究のコンセプトをサポートするものである。

図 9 は測定に用いた試料の光変調反射スペクトルを測定した結果である。このスペクトルの E1HH1 で示した構造の高エネルギー側にフランスケルディッシュ振動による振動構造が観測されている。この振動周期を解析した結果、設計で想定される 20 kV/cm 程度の内部電場が存在することを確認した。このことを踏まえて、電場と差周波混合信号との関係を計算したところ、50

kV/cm 程度で最大強度が得られる可能性を得た。

さらに、発生したテラヘルツ電磁波の偏光特性を測定した結果を、図 10 に示す。興味深いことに、明確な対称性を示していない。このことは、今後の電磁波強度の増強に重要な知見になると考えられる。

今後、発生するテラヘルツ電磁波のさらなる高強度化や線幅をより狭くするような実験を行うことで、未知の分子構造の解析などへの応用や、新規な周波数帯での非破壊検査やセキュリティ応用などのへの応用を目指していく。

- [1] Auston et al., Appl. Phys. Lett. 45, 284 (1984).
- [2] Sarukura J. Appl. Phys. et al., 84, 654 (1998).
- [3] Nagai et al., Opt. Express 17, 11543 (2009).
- [4] Tanoto et al., Nat. Photo. 6, 121 (2012).
- [5] Kojima et al., Phys. Rev. B 91, 125307 (2015).
- [6] Kojima et al., Phys. Rev. B 68, 155325 (2003).

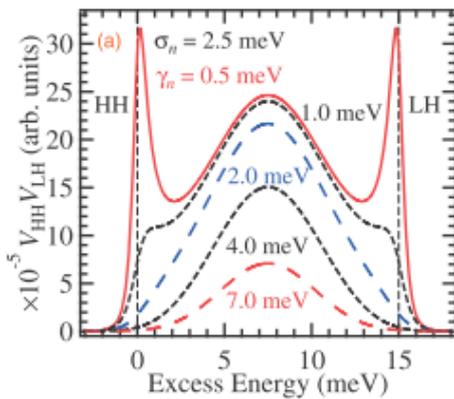


図 7 量子ビートの振幅の計算結果。

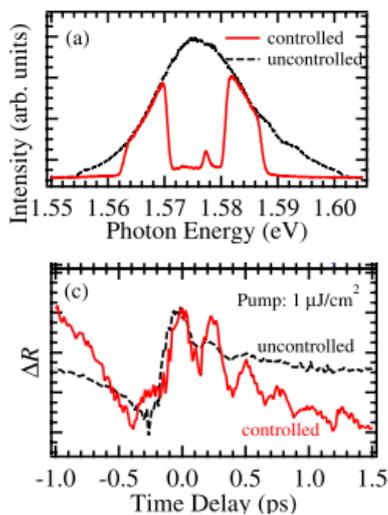


図 8 スペクトルを制御した場合の量子ビートの発生。

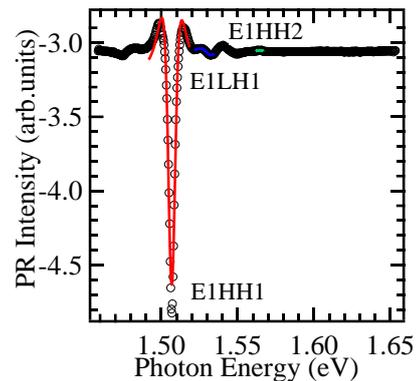


図 9 光変調反射信号。

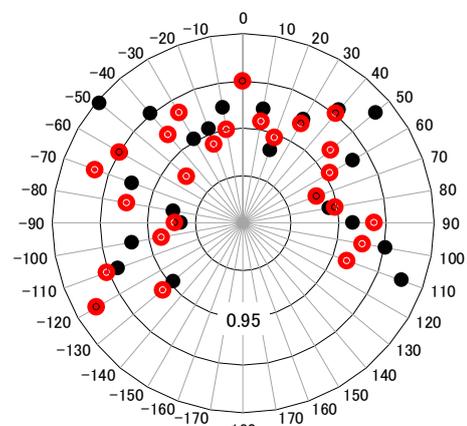


図 10 偏光特性の測定結果。

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 6 件)

1. Rapid dephasing related to intersubband transitions induced by exciton quantum beats observed by a pump-probe technique in a GaAs/AlAs multiple quantum well

O. Kojima, K. Kojima, T. Kita, K. Akahane
Physical Review B 91, 125307 (2015).

2. Effects of exciton line widths on the amplitude of quantum beat oscillations

O. Kojima, T. Kita
Applied Physics Express 9, 062801 (2016).

3. Effects of non-exciton components excited by broadband pulses on quantum beats in a GaAs/AlAs multiple quantum well

O. Kojima, Y. Iwasaki, T. Kita, K. Akahane
Scientific Reports 7, 41496 (2017).

4. Excitation of thin cyanine films via energy transfer from Si substrate

Y. Ito, O. Kojima, T. Kita, Y. Shim
Journal of the Physical Society of Japan 86, 094710 (2017).

[学会発表] (計 33 件)

1. Emission of continuous terahertz wave using exciton interference

O. Kojima
The 7th International Conference on Electronics, Communications and Networks
2017.11, Hualien, Taiwan 招待講演

2. Generation of continuous terahertz wave by differential-frequency-mixing in a GaAs/AlAs multiple quantum well

O. Kojima, Y. Tarui, T. Kita, A. Majeed, E. Clark, P. Ivanov, R. Hogg
Nanophotonics and Micro/Nano Optics International Conference 2017
2017. 9, Barcelona, Spain

3. THz wave generation through 2nd order non-linear excitonic effects in GaAs/AlAs MQWs at room temperature

A. Majeed, P. Ivanov, B. Stevens, D. Childs, O. Kojima, R. A. Hogg
Photonic West 2017
2017. 2, San Francisco, United States

4. Ultrafast optical devices based on exciton quantum beats

O. Kojima
Energy Materials Nanotechnology Meeting on Optoelectronics
2016. 4, Phuket, Thailand 招待講演

5. Effects of homogeneous and inhomogeneous broadenings of excitons on amplitude of exciton quantum beats

O. Kojima, T. Kita
17th International Conference on Modulated Semiconductor Structures, MSS17 2015
2015. 7, Sendai, Japan

6. 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

桜井遼, 小島磨, 喜多隆, R. Hogg
第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 早稲田大学, 2018. 3

7. 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

小島磨
紫翠会第 919 回例会, 関西電力本店ビル, 2017. 9 招待講演

8. Effects of exciton oscillator strength on terahertz generation due to differential-wave-mixing in GaAs/AlAs multiple quantum wells

Y. Tarui, O. Kojima, T. Kita, R. Hogg
日本物理学会 第 72 回年次大会, 大阪大学, 2017. 3

9. GaAs/AlAs 多重量子井戸における励起子励起条件下での差周波混合によるテラヘルツ電磁波の高効率発生

樽井雄規, 小島磨, 喜多隆, A. Majeed, P. Ivanov, E. Clarke, R. Hogg
第 27 回光物性研究会, 神戸大学, 2016.12

10. Effects of magnetic field on terahertz generation due to differential-wave-mixing in a GaAs/AlAs multiple quantum well

Y. Tarui, O. Kojima, T. Kita, A. Majeed, P. Ivanov, E. Clarke, R. Hogg
日本物理学会 第 71 回年次大会, 東北学院大学, 2016. 3

[その他]

ホームページ等
<http://www.research.kobe-u.ac.jp/eng-photonics/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

小島 磨 (KOJIMA, Osamu)
神戸大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号:00415845

(2)研究協力者

HOGG, Richard
英国・グラスゴー大学・教授