

GaAs/AlGaAs 超格子におけるワニエ・シュタルク局在状態形成  
とブロッホ振動ダイナミクスに関する分光学的研究

平成 20 年 9 月

大阪市立大学大学院  
工学研究科

はせがわ たかゆき  
長谷川 尊之

# 目次

<b>第1章 序論</b>	<b>1</b>
1-1. はじめに .....	1
1-2. GaAs/AlAs 超格子のバンド構造とミニバンド構造 .....	4
1-3. ワニエ・シュタルク局在効果 .....	8
1-4. 量子ビートとブロッホ振動 .....	10
1-5. 本研究の目的と本論文の構成 .....	12
<b>第2章 GaAs/AlAs 超格子におけるミニバンドからワニエ・シュタルク局在状態への移行過程</b>	<b>14</b>
2-1. はじめに .....	14
2-2. 伝達行列法を用いたワニエ・シュタルク局在状態の計算方法 .....	15
2-3. 実験方法 .....	17
2-3-1. 試料 .....	17
2-3-2. 電場変調反射分光法および光電流分光法 .....	18
2-4. 実験結果と考察 .....	21
2-4-1. 電場下での超格子の固有状態に関する計算 .....	21
2-4-2. ワニエ・シュタルク局在状態の形成 .....	23
2-5. まとめ .....	29
<b>第3章 GaAs/AlGaAs 超格子におけるワニエ・シュタルク局在状態間共鳴結合条件での光電流双安定性</b>	<b>30</b>
3-1. はじめに .....	30
3-2. 自己電気光学効果素子のメカニズム .....	31
3-2-1. 自己電気光学効果 .....	31
3-2-2. 動作点の判定 .....	32
3-2-3. 光電流双安定性 .....	38
3-3. 試料および実験方法 .....	40
3-3-1. 試料 .....	40
3-3-2. 測定方法 .....	41

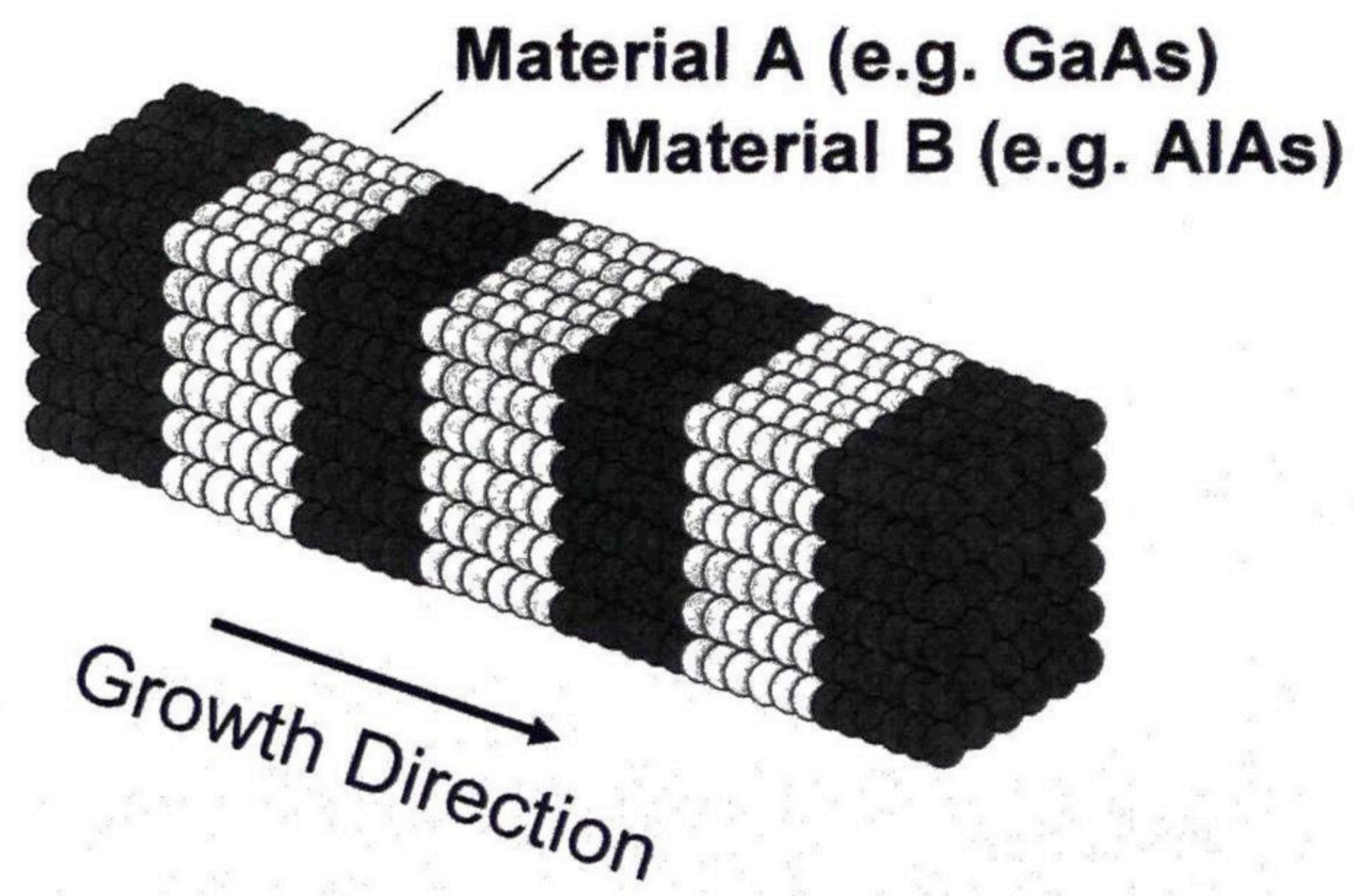
3-4. 実験結果と考察 .....	43
3-4-1. 共鳴結合の検出 .....	43
3-4-2. 共鳴結合条件での光電流双安定性 .....	50
3-5. まとめ .....	52
<b>第4章 GaAs/AlAs 超格子におけるミニバンド状態励起子量子ビートから     ブロッホ振動への移行過程</b>	<b>53</b>
4-1. はじめに .....	53
4-2. 最近接強結合近似モデルによるワニエ・シュタルク局在状態の 理論計算 .....	54
4-3. ブロッホ振動 .....	56
4-4. 実験方法 .....	59
4-4-1. 試料 .....	59
4-4-2. 時間分解反射型ポンプ-プローブ分光法 .....	59
4-5. 実験結果と考察 .....	61
4-5-1. 電場下での超格子の固有状態 .....	61
4-5-2. ブロッホ振動ダイナミクス.....	64
4-6. まとめ .....	74
<b>第5章 総括</b>	<b>75</b>
<b>謝辞</b>	<b>78</b>
<b>参考文献</b>	<b>79</b>

# 第1章 序論

## 1-1 はじめに

半導体超格子 (Semiconductor superlattice) とは、異なる種類の半導体薄膜をナノメートル・オーダーで交互に積層した周期的なヘテロ構造の総称である。超格子の概念は、1970年に Esaki と Tsu によって提案され[1]、“電子・正孔状態に対する量子効果の制御”という独創的な観点から、物性研究、ならびに、半導体量子デバイスの両面において新たな局面を切り拓いてきた[2,3]。図 1-1(a)に、2種類の半導体物質 (A と B) から成る超格子構造の模式図を示す。超格子構造は、分子線エピタキシー (Molecular Beam Epitaxy: MBE) 法や有機金属気相成長法などのヘテロ・エピタキシー技術の著しい発展にともなって、現在では 1 原子層の精度で作製することが可能である。超格子では、各々の物質のバンドギャップや電子親和力の違いを反映し、図 1-1(b)に示すように、伝導帯と価電子帯に対して、超格子積層方向に沿った周期的なポテンシャル構造が生じる。一般に、ポテンシャルが低い層 (A 層) と高い層 (B 層) をそれぞれ量子井戸層と障壁層と呼ぶ。障壁層厚が十分に薄い超格子では、図 1-2(a)に示すように、各々の量子井戸層の電子・正孔包絡波動関数は共鳴トンネル効果により結合し、バルク半導体と同様のブロッホ波状態となる。その結果、超格子周期 ( $D$ ) で決定されるミニブリルアンゾーン ( $0 \leq |k_z| \leq \pi/D$ ,  $k_z$ : 積層方向の波数) 内において、有限のエネルギー幅を持つミニバンド構造が形成される[図 1-2(b)]。特筆すべき特徴は、このミニバンド構造 (ミニバンドのエネルギーや幅) が、超格子の構造要素により幅広く制御することが可能であるということである。このようなバンド構造の制御は、バルク半導体では実現できないことであり、物性研究を行う上で非常に注目されている。今日まで、様々な構造の超格子において、ミニバンドにおける光学遷移[4,5]や、ミニバンドを介した励起子およびキャリアの輸送現象等[6]が報告されてきた。

(a)



(b)

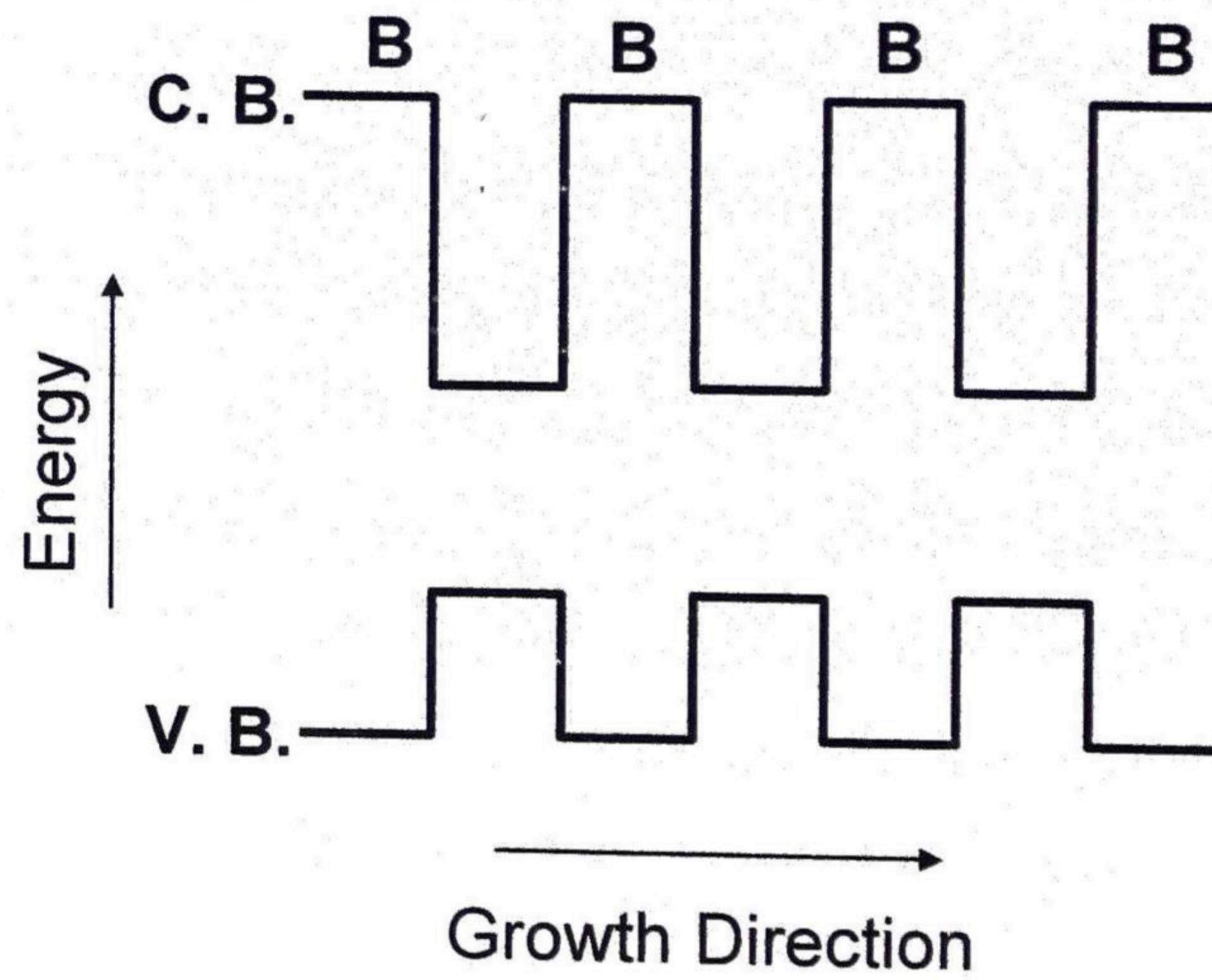


図 1-1 (a) 物質 A と B から成る半導体超格子構造の模式図。(b) 半導体超格子におけるポテンシャル構造の模式図。A 層と B 層は、それぞれ量子井戸層および障壁層である。

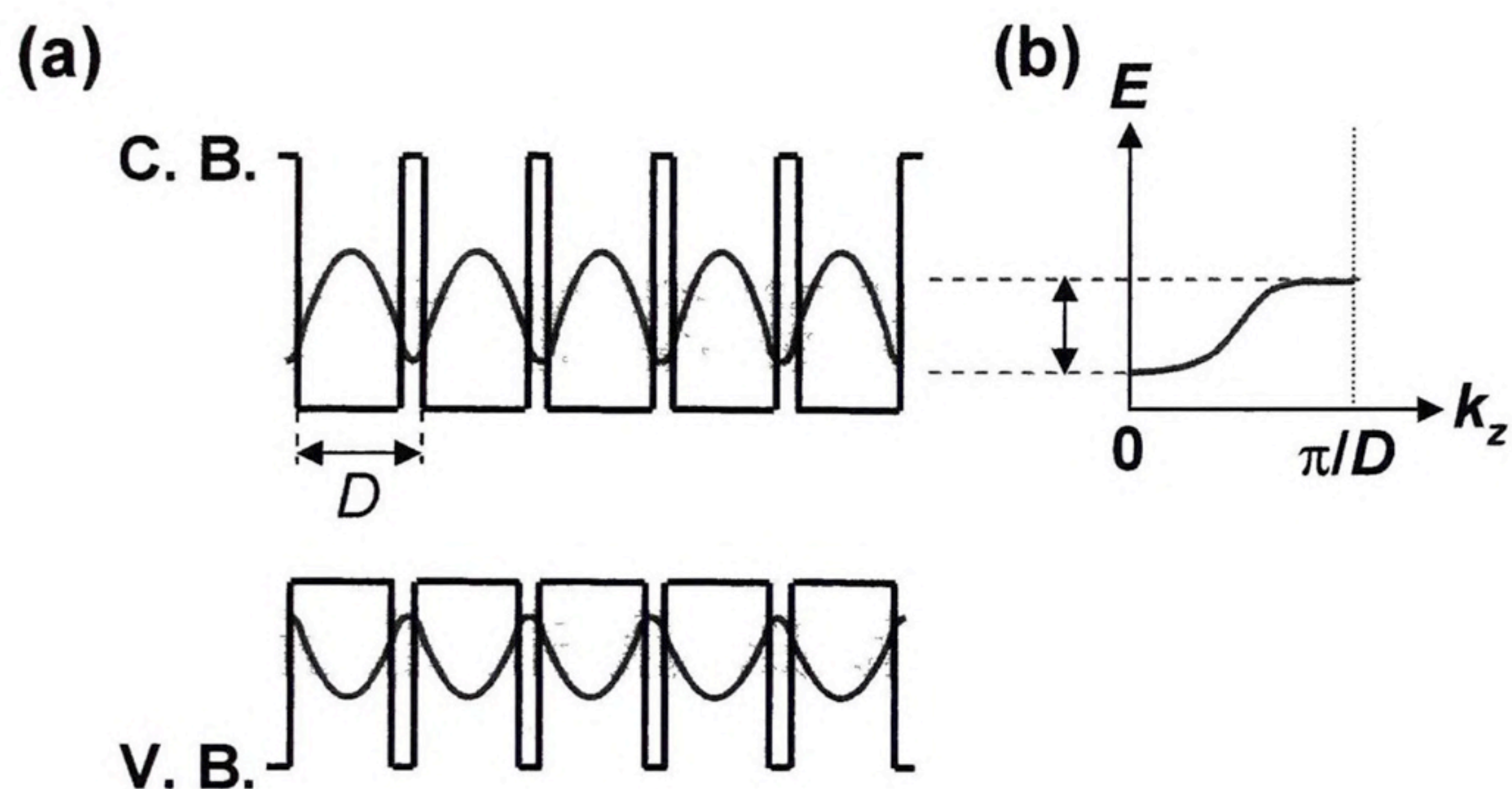


図 1-2 (a) 超格子のポテンシャル構造と電子・正孔包絡波動関数の模式図。  
(b) ミニバンド分散の模式図。

超格子の多様な物性を外部電場により制御しようという試みが、光エレクトロニクスデバイスの観点から盛んに研究されてきた。電場下でのミニバンド状態の最初の明確な解釈と実験結果は、1988年に Mendez ら[7]と Voisin ら[8]によるワニエ・シュタルク (Wannier-Stark: WS) 局在の観測として報告された。WS 局在とは、電場によってミニバンドが破綻し(等エネルギー間隔に分裂)、包絡波動関数が局在化する現象である。WS 局在状態は、1962年に Wannier がバルク半導体中のブロッホ電子を対象として予言した概念であるが[9]、バルク半導体ではバンド幅が大きいため、局在化を引き起こすために必要な電場強度が非常に大きく、試料の破壊などにより観測が困難であった。一方、超格子構造では、バルク半導体のバンド幅と比べて 2~3 桁程度小さいミニバンド幅を形成させることが可能であり、このことが、WS 局在の観測のブレイクスルーとなった。WS 局在は、電場による波動関数の局在性の制御、および、光学遷移エネルギーの制御を可能とする。そのため、物性と素子応用の両面において、非常に盛んに研究が行われてきた[10-16]。

超格子の電子状態における代表的な超高速コヒーレント現象は、WS 局在状態の重ね合わせ波束のブロッホ振動 (Bloch oscillation) として知られている。ブロッホ振動は、

Bloch[17]や Zener[18]によって、WS 局在と同様、バルク半導体を対象に提案された概念であるが、超格子構造においてその観測の可能性が飛躍的に高まることが示唆されたことから、ブロッホ振動に関する研究が大いに注目された。しかしながら、超格子が考案された 1970 年代当初は、結晶成長技術が未熟な段階にあり、また、コヒーレントな電子状態を作り出す手段もなかったことから、ブロッホ振動の観測は達成されなかった。ところが、1990 年代になり、高度な結晶成長技術とフェムト秒波長可変 Ti:sapphire パルスレーザーが確立したことをきっかけとして、ブロッホ振動の観測が次々と報告されるようになり、その詳細が明らかにされてきた[19-25]。特に、1993 年に Waschke らによって報告されたブロッホ振動によるコヒーレントなテラヘルツ (THz,  $1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$ ) 領域振動数の電磁波放射[21]は、重ね合わせ波束のコヒーレントな実空間振動を実証しただけではなく、振動数可変 THz 電磁波発生源としての応用の可能性を知らしめるものとなった。ブロッホ振動現象は、物性と応用の両面で、先端研究として国際的に今も大きな注目を集めている。

本研究の目的は、GaAs/AlGaAs 超格子を対象として、電子状態のエネルギー構造、光機能性、ならびに、超高速コヒーレントダイナミクス観点から、WS 状態について分光学的研究を行うことである。本章では、上記のテーマに関する背景と本論文の構成について述べる。

## 1-2 GaAs/AlAs 超格子のバンド構造とミニバンド構造

この節では、本研究で主要な GaAs/AlAs 超格子におけるミニバンド構造とその計算方法について説明する。GaAs/AlAs 超格子では、GaAs 層と AlAs 層はそれぞれ量子井戸層と障壁層となる。GaAs は閃亜鉛鉱構造型結晶であり、 $\Gamma$ 点の価電子帯は、その基底関数が p 型波動関数であるため、スピン縮退も含めた 6 つの状態により構成されている ( $\Gamma_{15}$  状態)。尚、 $\Gamma$ 点の伝導帯の最低エネルギー状態 ( $\Gamma_6$  状態) は s 型波動関数であるために縮退はない。6 重縮退した価電子帯の状態は、スピン軌道相互作用により、 $\Gamma$  点 ( $k=0$ ) において 4 重縮退した  $\Gamma_8$  状態と、2 重縮退した  $\Gamma_7$  状態にエネルギー分裂する。

$\Gamma_8$ および $\Gamma_7$ 状態を、角運動量  $J$  とその  $z$  成分  $m_J$  を用いて、 $|J, m_J\rangle$  という形で表すと、以下のように表現できる。

$$\Gamma_8: \left| \frac{3}{2}, \pm \frac{3}{2} \right\rangle, \left| \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \quad (1-1)$$

$$\Gamma_7: \left| \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \quad (1-2)$$

$\Gamma$ 点で縮退している $\Gamma_8$ 状態は、 $m_J = \pm 3/2$ 状態の重い正孔 (Heavy Hole) バンドと  $m_J = \pm 1/2$ の軽い正孔 (Light Hole) バンドによって構成されている。 $\Gamma_7$ 状態はスプリットオフ正孔 (Split-off hole) バンドと呼ばれ、 $\Gamma_8$ 状態よりも十分にエネルギーが低いために、バンド間光学遷移を考える際には、考慮しないのが一般的である。

超格子のミニバンド構造の計算方法は、一般にクローニツヒ-ペニー (Kronig-Penney: KP) モデルによる有効質量近似 (包絡関数近似とも呼ぶ) 理論が広く用いられている [26]。このモデルでは、超格子のミニバンド構造の計算は、式 1-3 に示すように、周期ポテンシャルに対する 1次元シュレーディンガー方程式を解く問題へと帰着する。

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_j^*} \frac{d^2}{dz^2} + V_j \right) \phi_{n,k_z}(z) = E_n \phi_{n,k_z}(z) \quad (1-3)$$

ここで、 $m_j^*$ と $V_j$ は、それぞれ  $j$  番目の層における物質の有効質量とポテンシャルを表す。 $\phi_{n,k_z}$ は、包絡波動関数を表し、下付きの  $n$  と  $k_z$  は、バンド指数と  $z$  方向の波数ベクトルを意味する。また  $E_n$  は、エネルギーを表す。井戸層 A (層厚  $d_A$ ) における包絡波動関数は、

$$\phi_{n,k_z}^A(z) = \alpha_A \exp(iq_A z) + \beta_A \exp(-iq_A z) \quad (1-4a)$$

$$q_A = \sqrt{2m_A^* E} / \hbar \quad (1-4b)$$

となり、障壁層 B (層厚  $d_B$ ) の包絡波動関数は、

$$\phi_{n,k_z}^B(z) = \alpha_B \exp(q_B z) + \beta_B \exp(-q_B z) \quad (1-5a)$$

$$q_B = \sqrt{2m_B^* (V - E)} / \hbar \quad (1-5b)$$



となる。2つの物質の界面 ( $z=z_i$ ) での包絡波動関数の境界条件は、

$$\phi_{n,k_z}^A(z_i) = \phi_{n,k_z}^B(z_i) \quad (1-6a)$$

$$\left. \frac{1}{m_A^*} \frac{d\phi_{n,k_z}^A(z_i)}{dz} \right|_{z=z_i} = \left. \frac{1}{m_B^*} \frac{d\phi_{n,k_z}^B(z_i)}{dz} \right|_{z=z_i} \quad (1-6b)$$

となり、超格子周期  $D$  ( $D = d_A + d_B$ ) に対する周期的境界条件 (ブロッホ条件) から、

$$\phi_{n,k_z}^{A,B}(z_i + D) = \phi_{n,k_z}^{A,B}(z_i) \exp(ik_z D) \quad (1-7)$$

という条件が得られる。以上の式から、超格子のミニバンド分散関係に対する式が得られる。

$$\cos(k_z D) = \cos(q_A d_A) \cosh(q_B d_B) + \frac{1}{2} \left( \frac{m_A^* q_B}{m_B^* q_A} - \frac{m_B^* q_A}{m_A^* q_B} \right) \sin(q_A d_A) \sinh(q_B d_B) \quad (1-8)$$

図 1-3 は、式 1-8 を用いて計算した GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子の  $\Gamma$  点ポテンシャル構造における第 3 量子化 ( $n=3$ ) 状態までの電子、重い正孔、軽い正孔ミニバンド分散関係を示している。図中の  $E_g$  (GaAs) と  $E_g$  (AlAs) は、GaAs と AlAs のバルク結晶における  $\Gamma$  点でのバンドギャップエネルギーを示している。超格子構造では、量子閉じ込め効果により、重い正孔と軽い正孔の縮退が解け、それぞれ異なったミニバンド構造を形成する。図 1-3 から、ミニバンド分散には  $k_z=0$  と  $k_z=\pi/D$  (ミニブリルアンゾーンの端) の 2 種類の特異点が存在していることが分かる。 $k_z=0$  と  $k_z=\pi/D$  の波数ベクトルにおける状態密度特異点をそれぞれ  $\Gamma$  点と  $\pi$  点と呼ぶ。この  $\Gamma$  点と  $\pi$  点の光学遷移が、WS 局在の分光学的研究において極めて重要であり、本研究で用いた電場変調反射 (Electroreflectance: ER) 分光法は、状態密度特異点での光学遷移を高感度に観測できる方法である。ER 分光法の詳細については、第 2 章で述べる。

本研究で行ったすべての計算では、バンドオフセット比は、文献[27]より、 $\Delta E_c / (\Delta E_c + \Delta E_v) = 0.66$  を用いた。ここで、 $\Delta E_c$  ( $\Delta E_v$ ) は、伝導帯 (価電子帯) におけるバンド不連続性を表す。有効質量は、表 1-1 の値を用い[15]、電子と軽い正孔については、バンド非放物線性 (nonparabolicity) を考慮した[28]。また、 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  のバンドギ

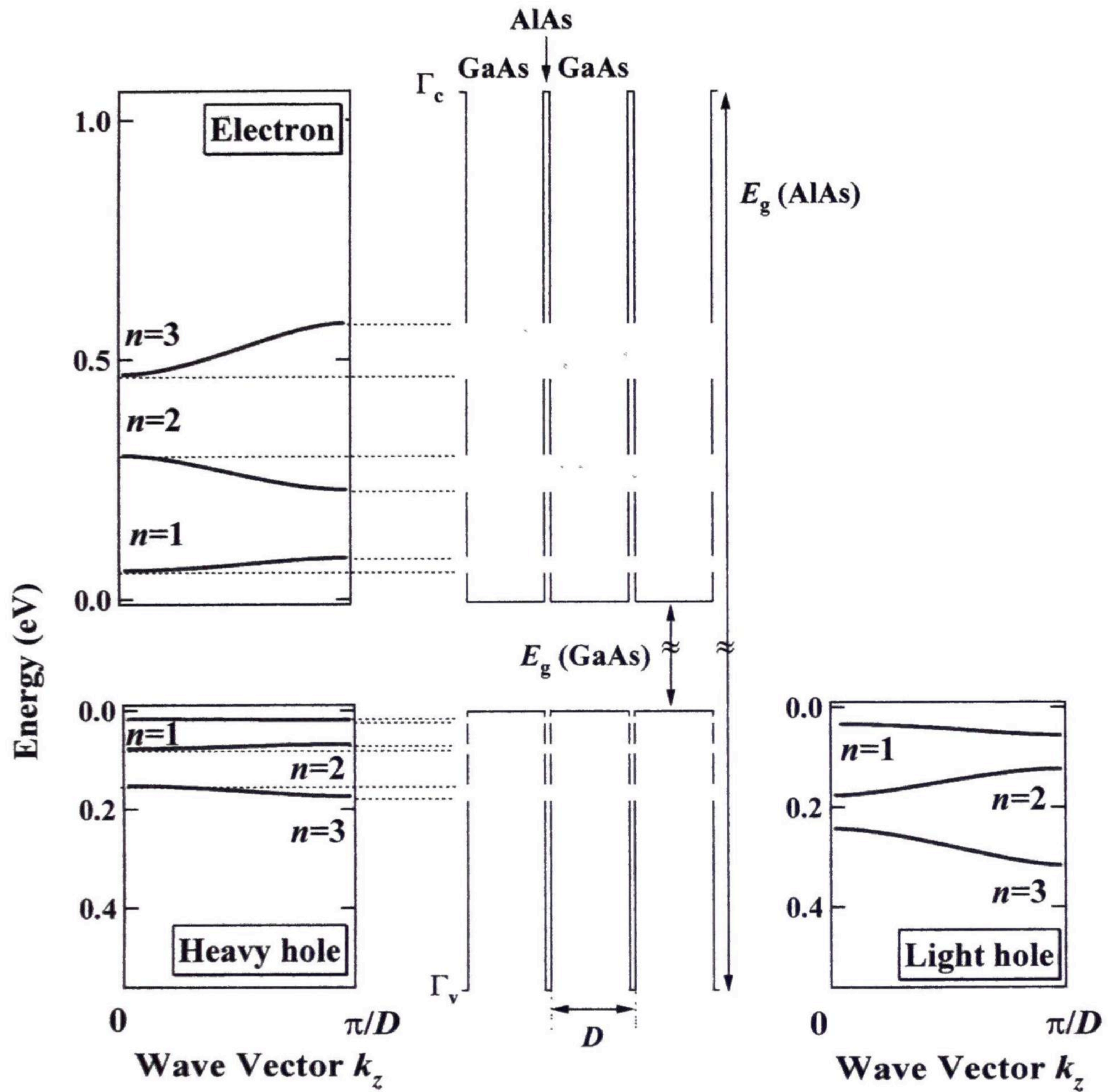


図 1-3 GaAs (6.8 nm)/ AlAs (0.9 nm) 超格子における $\Gamma$ 点のポテンシャル構造と、電子・正孔ミニバンド分散の計算結果。

表 1-1 GaAs と AlAs の $\Gamma$ 点における有効質量。 $m_0$  は、電子の静止質量を表す。

	GaAs	AlAs
電子	$0.0665 m_0$	$0.15 m_0$
重い正孔	$0.34 m_0$	$0.40 m_0$
軽い正孔	$0.117 m_0$	$0.18 m_0$

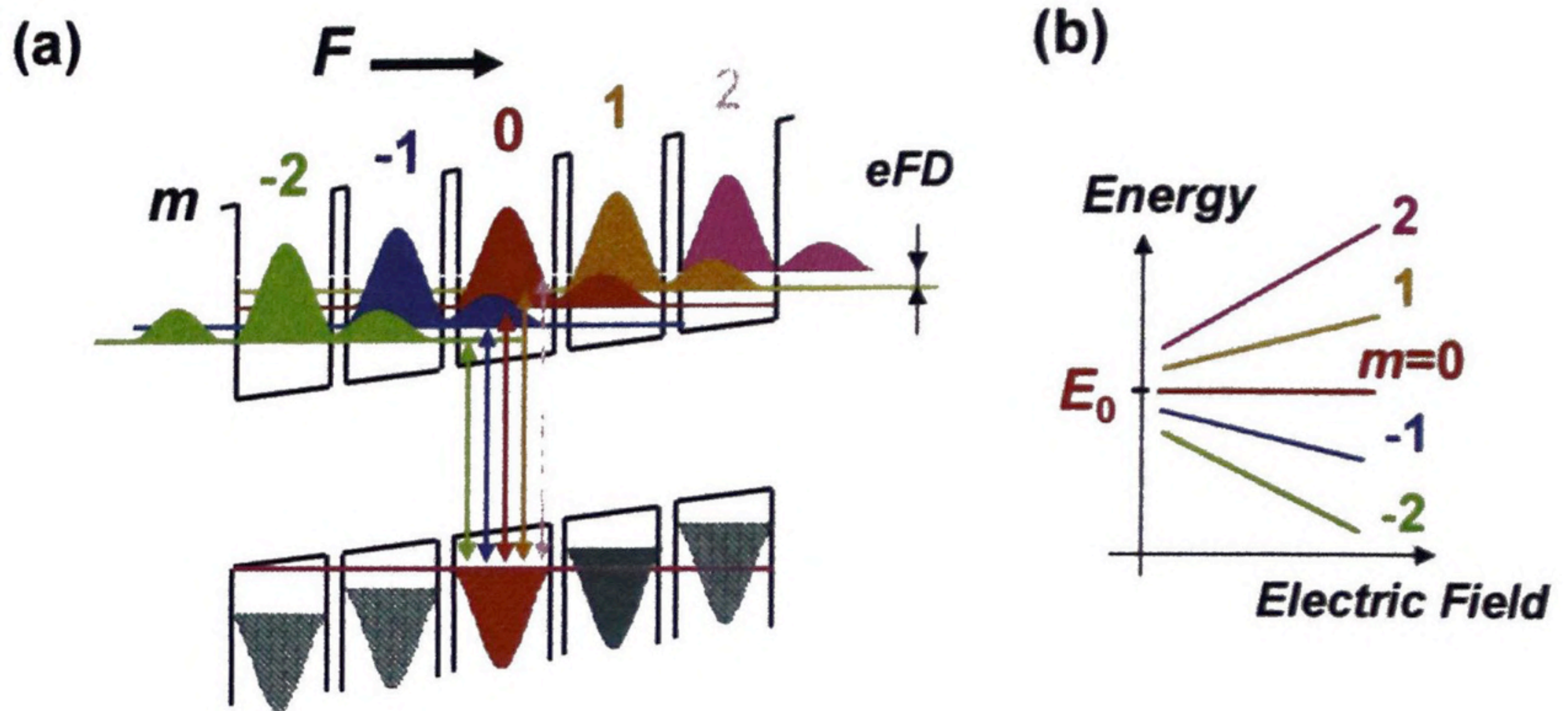


図 1-4 (a) シュタルク階段状態とバンド間シュタルク階段遷移の模式図。  
 (b) バンド間シュタルク階段遷移エネルギーの電場強度依存性の模式図。

ギャップエネルギーおよび有効質量は、それぞれ文献[29]と[30]から引用した。

### 1-3 ワニエ・シュタルク局在効果

本節では、本研究の中心課題である WS 局在効果[10-16]についての概略を述べる。尚、固有状態の計算方法の詳細は第 2 章で述べる。無電場条件において、超格子の量子井戸層の電子・正孔包絡波動関数は、共鳴トンネリングにより結合し、有限のエネルギー幅を有するミニバンドを形成している。WS 局在は、超格子の積層方向の電場 ( $F$ ) により生じる隣接量子井戸間での静電ポテンシャル差 ( $eFD$ ) のために、ある電場強度 (臨界電場強度) において、ミニバンド形成の原因である共鳴トンネル条件が破綻し、電子・正孔包絡波動関数が隣接する量子井戸層にある程度の振幅を持ちながら局在化する現象である。WS 局在条件では、図 1-4(a)に示すように、包絡波動関数は並進対称性を持ちながら各量子井戸層を中心に局在し、その固有エネルギーは隣接量子井戸間での静電

ポテンシャル差を反映し、 $eFD$  だけ異なる。この様な電子状態は、シュタルク階段状態と呼ばれ、ある正孔状態を基準とすると、矢印で示すようなバンド間シュタルク階段遷移を引き起こす。バンド間シュタルク階段遷移エネルギーの電場強度依存性は、

$$E_m = E_0 + meFD \quad (m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (1-9)$$

で与えられる。ここで、式中の  $m$  は、基準量子井戸の正孔状態と電子状態間の距離を超格子周期で表したものであり (電子に対して高ポテンシャル側を正と定義した)、シュタルク階段指数と呼ばれる。図 1-4(b)は、バンド間シュタルク階段遷移エネルギーの電場強度依存性の模式図を示しており、遷移エネルギーが電場に対して線形に、かつ、扇状に広がる特徴 (fan chart と呼ぶ) を示す。以上の様に、WS 局在は、電場による波動関数の局在性の制御、および、光学遷移エネルギーの制御を可能とする。電場印加による WS 局在状態の形成過程は、1988 年に Mendez ら[7]と Voisin ら[8]により明確に観測された。その後、光電流分光法[10-12]や ER 分光法[15]を用いて、電場印加による WS 局在状態の形成過程が次々と観測され、その詳細が明らかにされてきた。しかしながら、これまでの研究のほとんどは  $n=1$  ミニバンドの WS 局在状態への移行過程に焦点を置いており、高次 ( $n \geq 2$ ) のミニバンドの WS 局在状態形成過程を系統的に研究した例はほとんどない。超格子の量子化電子・正孔状態は、一般に複数 ( $n=1, 2, \dots$ ) のミニバンドを形成していることから、高次 ( $n \geq 2$ ) のミニバンドの WS 局在について研究することは、WS 局在状態の特性を包括的に解明するために非常に大きな意義がある。

WS 局在の代表的な量子力学的現象の一つとして、WS 局在状態間の波動関数共鳴結合が知られている[12,14,31,32]。この現象は、電場印加による量子井戸間での静電ポテンシャル差 ( $meFD$ ) が、異なる量子化状態 (例えば、 $n=1$  電子状態と  $n=2$  電子状態) のエネルギー差 ( $\Delta E$ ) に一致した場合、WS 局在状態の包絡波動関数の空間広がりを反映し、 $m$  周期離れた量子井戸間での波動関数の共鳴結合が生じるというものである。波動関数共鳴結合は、結合・反結合状態の形成に起因した関連のある光学遷移エネルギーの反交差現象、及び、遷移確率の大きな変化をもたらす[14,16]。共鳴結合条件での光学特性の大きな変化は、光機能性素子への応用の可能性を示唆するが、応用例はこれまでに報告されていない。

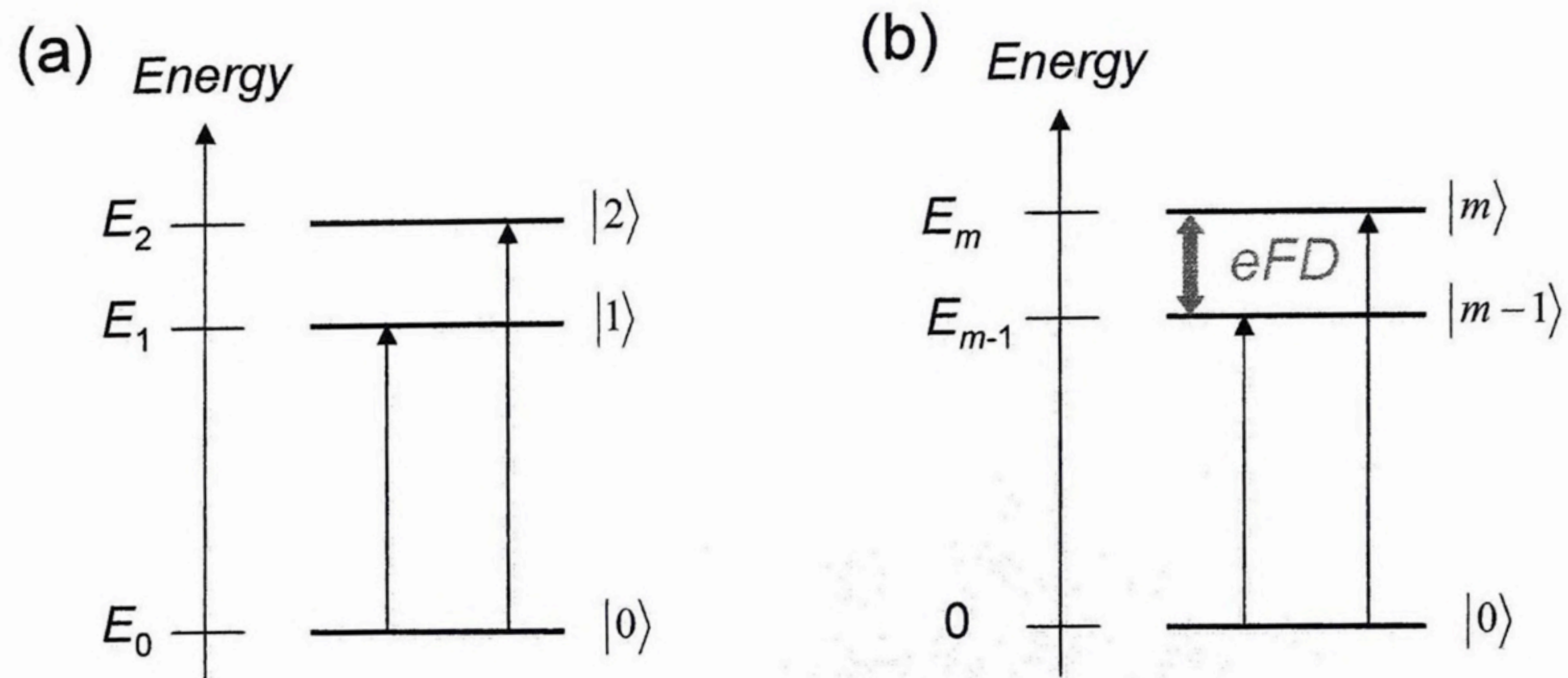


図 1-5 (a) 一般的な 3 準位系の概念図。(b) 3 準位系に集約したバンド間シュタルク階段遷移の概念図。

WS 局在の素子応用の代表例は、自己電気光学効果素子 (Self-Electro-Optic Effect Device: SEED) である[33,34]。SEED は、Miller により、量子閉じ込めシュタルク効果 (Quantum-Confined Stark effect: QCSE) [35]を対象に考案されたものであり、光非線形性を持つ電子回路として働くことから、光コンピューターのデバイスや光通信におけるスイッチング素子として期待されてきた。SEED のパフォーマンスは、電場による光学遷移エネルギーの制御性で主に決定されることから、QCSE に比べて自由度の高い WS 局在状態のバンド間シュタルク階段遷移を適用することで、より多機能な動作が実現されることとなった[36-39]。SEED の代表的な動作としては、光電流双安定性[36,37]や光双安定性[38,39]などがある。SEED 動作の詳細については第 3 章で述べる。

#### 1-4 量子ビートとブロッホ振動

本節では、ブロッホ振動現象[19-25]の概略を、代表的なコヒーレント現象の一つである量子ビート[40]に基づいて説明する。尚、ブロッホ振動の詳細については、第 4 章

で述べる。一般的な量子ビートは、図 1-5(a)に示すように共通の基底状態とエネルギーが近接した 2 つの励起状態から成る 3 準位系により説明される。広いエネルギー幅を有する超短光パルスによって、状態 $|1\rangle$ と状態 $|2\rangle$ を同時に励起すると、2 状態の波動関数の線形結合で記述されるコヒーレントな重ね合わせ状態 (波束) が形成される。ここで、状態 $|1\rangle$ と状態 $|2\rangle$ は、時間依存シュレーディンガー方程式に基づいて、それぞれ固有エネルギー $E_1$ と $E_2$ に対応する固有振動数を有することから、その重ね合わせ状態の確率密度の時間発展には、 $\nu = \Delta E/h$  ( $h$ はプランク定数、 $\Delta E = E_2 - E_1$ ) で与えられるうなり (ビート) が出現する。これが量子ビート現象である。次にブロッホ振動について考える。式 1-9 に示したように、バンド間シュタルク階段遷移のエネルギーは、 $eFD$  の等しいエネルギー間隔を有していることから、図 1-5(b)に示す様な 3 準位系に集約することができる。但し、ここでは励起子遷移を考えている。ブロッホ振動は、広いエネルギー幅を有する超短光パルスで異なるバンド間シュタルク階段遷移をコヒーレントに励起することで引き起こされ、その振動数は  $\nu_{BO} = eFD/h$  で与えられる。つまり、ブロッホ振動は、図 1-5(b)に示した 3 準位系における、シュタルク階段状態間の量子ビートと捉えることができる。一般に観測されるシュタルク階段状態間のエネルギー差 ( $eFD$ ) は、大きくても 100 meV 程度であるので、ブロッホ振動の振動数は、THz 領域振動数に位置していることがわかる。電場強度で振動数可変な THz 領域振動のブロッホ振動は、四光波混合法により明確に実証された[19]。また、この非定常波束は、積層方向に対してコヒーレント振動を行うことから、ブロッホ振動による THz 電磁波放射[21]や、ブロッホ振動の振動数での内部電場の変調[23,41]といった興味深い現象が多数報告されてきた。また、ブロッホ振動のコヒーレントダイナミクスのミニバンド幅依存性や温度依存性なども詳細に研究されてきた[22,24]。ブロッホ振動現象は、物性と応用の両面で、先端研究として今も大きな注目を集めている。しかしながら、ブロッホ振動に関するこれまでの研究のほとんどは「ブロッホ振動ありき」で行われており、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程におけるブロッホ振動ダイナミクスは考慮されてこなかった。この移行過程において、WS 局在状態の局在性は、電場強度で非常に複雑に変化する。ブロッホ振動波束は、WS 局在状態の重ね合わせで形成されることを考えると、この移行領域において、新しいタイプのブロッホ振動の出現が期待される。WS 局在状

態の局在性の詳細は第4章で述べる。

## 1-5 本研究の目的と本論文の構成

WS局在は、超格子のミニバンド形成の要因である共鳴トンネル結合が電場によって破綻し、電子・正孔包絡波動関数が局在化するという現象であり、超格子物性の最も本質的なものである。また、この現象は、超格子の多様な光機能性を発現することから、SEED等の光機能性素子としての応用が期待されている。更には、WS局在状態の動的過程であるブロッホ振動が、振動数可変なTHz電磁波発生機構として、THzテクノロジーの観点から、注目を集めている。本研究では、GaAs/AlGaAs超格子を対象として、 $n=1$ と高次( $n=2$ )のミニバンドのWS局在状態への移行過程、WS局在状態間の共鳴結合条件での光学特性の変化と光機能性素子への応用、ミニバンドからWS局在状態への移行過程におけるブロッホ振動のコヒーレントダイナミクスについて分光学的に明らかにすることを目的とした。その内容の具体的な項目と概要は、以下の通りである。

### 1. ミニバンドからWS局在状態への移行過程 (第2章) [42,43]

GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子を試料とし、第1と第2ミニバンドのWS局在状態への移行過程について、ER分光法により精密に測定した結果について述べる。伝達行列法を用いた固有状態の電場強度依存性の計算結果に基づいて、実験結果を定量的に解析し、WS局在状態を形成する臨界電場とミニバンド幅との相関について考察する。

### 2. WS局在状態間共鳴結合条件での光電流双安定性 (第3章) [44]

GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子を試料とし、空間的に隔てられた $n=1$ 電子WS局在状態と $n=2$ 電子WS局在状態間の波動関数共鳴結合条件における光学遷移のエネルギー、及び、遷移確率の変化を明らかにする。そして、波動関数共鳴結合条件での光電流-電圧特性における負性微分抵抗の発現、及び、SEEDにおける光電流双安定

性動作について述べる。

3. ミニバンド状態励起量子ビートからブロッホ振動への移行過程 (第4章) [45,46]  
GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子を試料とし、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程におけるブロッホ振動ダイナミクスを時間分解反射型ポンプ-プローブ分光法を用いて、系統的に測定した結果について述べる。ER 分光法による光学遷移エネルギーの電場強度依存性、及び、伝達行列法による WS 局在状態の理論計算結果に基づいて、実験結果を定量的に解析し、移行過程特有のブロッホ振動ダイナミクスについて考察する。

最後に、第5章で、本研究の成果を総括する。



## 第 2 章 GaAs/AlAs 超格子におけるミニバンドからワニエ・シュタルク局在状態への移行過程

### 2-1 はじめに

超格子における WS 局在効果は、電場による波動関数の局在性の制御、および、光学遷移エネルギーの制御を可能とし、超格子物性および素子応用の両面から非常に注目されてきた[7-16]。このような理由から、今日まで、WS 局在状態形成に関する様々な研究が行われてきたが、そのほとんどは第 1 量子化 ( $n=1$ ) ミニバンドの WS 局在状態への移行過程に焦点を置いており、高次 ( $n \geq 2$ ) のミニバンドの WS 局在状態形成過程を系統的に研究した例はほとんどない。その主要因は、WS 局在条件下での光学遷移 (バンド間シュタルク階段遷移) を観測するために一般に用いられている光電流分光法の感度が低く、高次の電子状態の光学遷移の検出が極めて困難なことが挙げられる。超格子の量子化電子・正孔状態は、一般に複数 ( $n=1, 2, \dots$ ) のミニバンドを形成していることから、高次 ( $n \geq 2$ ) のミニバンドの WS 局在について研究することは、WS 局在状態の特性の包括的解明に非常に大きな意義がある。

本研究では、*p-i-n* 構造に埋め込まれた GaAs/AlAs 超格子を試料とし、状態密度特異点での光学遷移に対して極めて高感度な ER 分光法を駆使して、 $n=1$  と  $n=2$  ミニバンドの WS 局在状態への移行過程を包括的に解明することを目的とした。実験結果は、伝達行列 (Transfer Matrix; TM) 法による電場下での電子・正孔固有状態の理論計算結果に基づいて定量的に解析した。その結果、 $n=1$  と  $n=2$  ミニバンドの WS 局在状態への移行過程が統一的に解釈できること、具体的には、ミニバンド幅によって決定されることを明

らかにした[42,43]。この成果は、WS 局在状態形成における臨界電場強度のユニバーサリティを示すものである。

## 2-2 伝達行列法を用いたワニエ・シュタルク局在状態の計算方法

電場下での電子・正孔固有状態の理論計算は、一般に TM 法を用いて行われる。TM 法は、静電場が存在する任意の量子井戸構造を対象として、Hutchings によって提案された方法である[47]。静電場  $F$  が存在する場合、式 1-3 の 1 電子 (正孔) 状態のシュレディンガー方程式は、

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_j^*} \frac{d^2}{dz^2} + V_j + qFz \right) \phi_j(z) = E\phi_j(z) \quad (2-1)$$

のように変換される。 $q$  は電荷で、電子 (正孔) の場合  $q = -e (+e)$  である。ここで、座標  $z$  を式 2-2 の無次元座標  $Z_j$  へと変数変換する。

$$Z_j = -\left[ \frac{2m_j^*}{(eF\hbar)^2} \right]^{1/3} [E - V_j + qFz] \quad (2-2)$$

この変数変換により、式 2-1 は Airy の微分方程式となる。

$$\frac{d^2}{dZ_j^2} \phi_j(Z_j) - Z_j \phi_j(Z_j) = 0 \quad (2-3)$$

この微分方程式の一般解は、次式で与えられる。

$$\phi_j(Z_j) = a_j \text{Ai}(Z_j) + b_j \text{Bi}(Z_j) \quad (2-4)$$

ここで、 $\text{Ai}(Z_j)$  と  $\text{Bi}(Z_j)$  は Airy 関数である。

第  $j$  層と第  $j+1$  層の超格子界面における包絡波動関数の境界条件 ( $z = z_{\text{inter}}$ )

$$\phi_j(z_{\text{inter}}) = \phi_{j+1}(z_{\text{inter}}) \quad (2-5a)$$

$$\frac{1}{m_j} \frac{d\phi_j}{dz} = \frac{1}{m_{j+1}} \frac{d\phi_{j+1}}{dz} \Big|_{z=z_{inter}} \quad (2-5b)$$

から、次式の TM 関係式が得られる。

$$\begin{pmatrix} \text{Ai}(Z_j) & \text{Bi}(Z_j) \\ m_j^{-2/3} \text{Ai}'(Z_j) & m_j^{-2/3} \text{Bi}'(Z_j) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_j \\ b_j \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \text{Ai}(Z_{j+1}) & \text{Bi}(Z_{j+1}) \\ m_{j+1}^{-2/3} \text{Ai}'(Z_{j+1}) & m_{j+1}^{-2/3} \text{Bi}'(Z_{j+1}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{j+1} \\ b_{j+1} \end{pmatrix} \quad (2-6)$$

式 2-6 から、各層における包絡波動関数の振幅( $a_j, b_j$ )が得られる。Airy 関数は、

$$\lim_{z \rightarrow \infty} \text{Ai}(Z) = 0, \quad \lim_{z \rightarrow \infty} \text{Bi}(Z) = \infty \quad (2-7)$$

という特性を持つため、最終層 (第  $f$  層、 $Z_f \rightarrow \infty$ ) において、 $(a_f, b_f) = (1, 0)$  となる束縛条件を適用し、透過率  $T$  を次式のように定義する。

$$T = \frac{a_f^2 + b_f^2}{a_i^2 + b_i^2} = \frac{1}{a_i^2 + b_i^2} \quad (2-8)$$

ここで、 $(a_i, b_i)$  は初期層における包絡波動関数振幅を示している。TM 計算では、式 2-8 から得られる透過スペクトルに現れるピークのエネルギーが固有値に相当すると仮定する。TM 法を用いて計算したバンド間シュタルク階段遷移のエネルギーが、ER 分光法を用いて観測された光学遷移エネルギーと幅広い電場領域で良い一致を示すことが実証されている[14,31]。

無電場条件や低電場近傍での固有状態を計算する場合、式 2-6 に示した TM の関係式は、Airy 関数が低電場領域で発散特性を有することから用いることができない。しかしながら、これらの電場領域は、ミニバンド状態から WS 局在状態への移行過程についての研究を行う場合、非常に重要である。この問題点を克服するために、Nakayama らのグループは Airy 関数を用いずに、各々の層における実際のポテンシャルの平均値を静電ポテンシャルとして繰り込んだステップ関数的な超格子構造を計算モデルとして(図 2-1 参照)、ゼロ電場も含めたすべての電場領域で固有状態を計算する方法を提案した[15,16]。ステップ関数型に静電ポテンシャルを繰り込んだ場合、固有関数は式 1-4 と 1-5 に示した各々の層の平面波の線形接合により表される。TM 関係は、

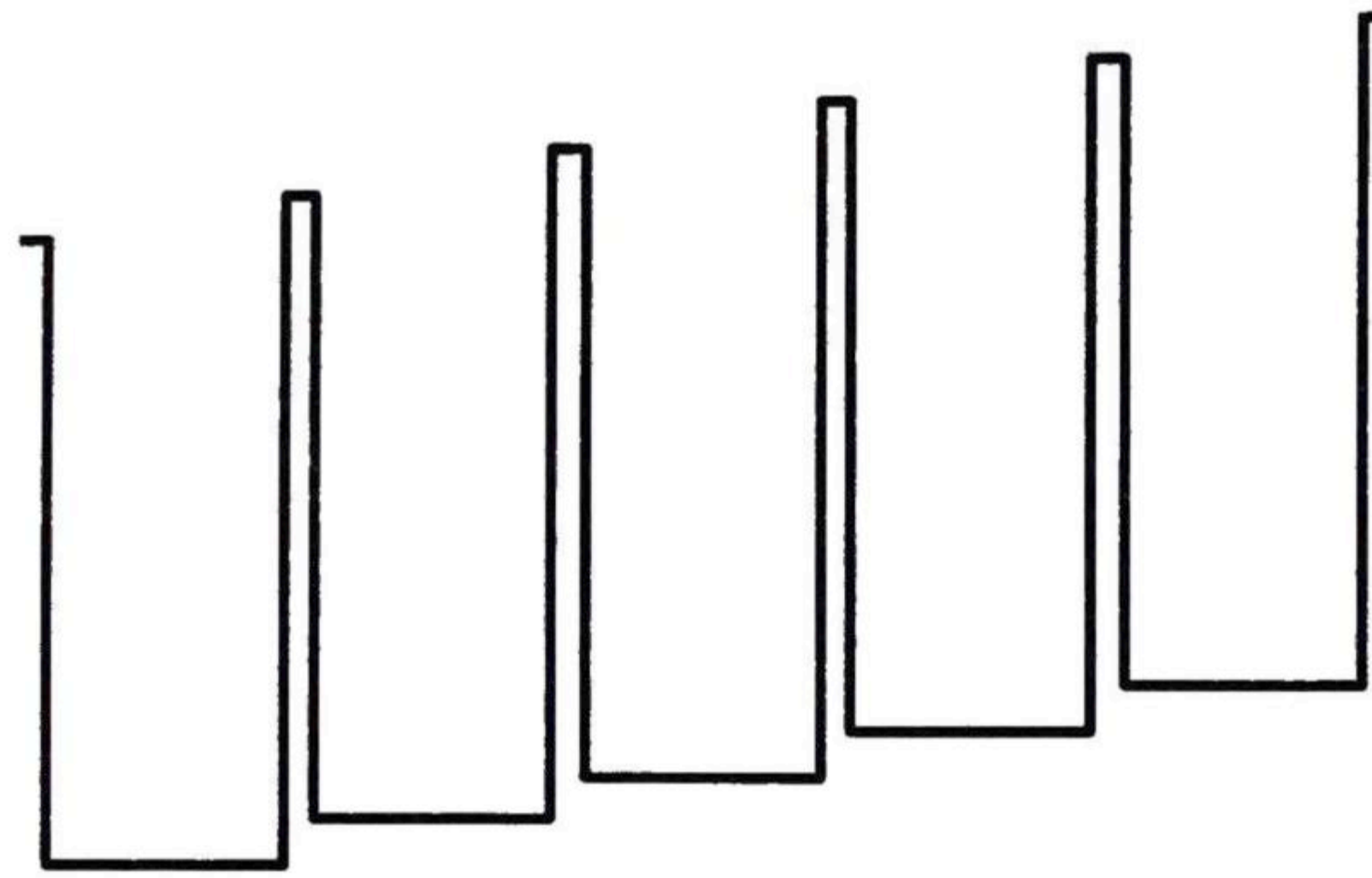


図 2-1 静電ポテンシャルをステップ関数的にとりこんだ超格子の計算モデル。

$$\begin{aligned} & \begin{pmatrix} \exp[ik_j z] & \exp[-ik_j z] \\ (ik_j/m_j)\exp[ik_j z] & -(ik_j/m_j)\exp[-ik_j z] \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_j \\ b_j \end{pmatrix} \\ & = \begin{pmatrix} \exp[ik_{j+1} z] & \exp[-ik_{j+1} z] \\ (ik_{j+1}/m_{j+1})\exp[ik_{j+1} z] & -(ik_{j+1}/m_{j+1})\exp[-ik_{j+1} z] \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{j+1} \\ b_{j+1} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2-9)$$

により表される。

## 2-3 実験方法

### 2-3-1 試料

本研究で用いた試料は、MBE 法により  $n$  型 (001) 基板の上に成長させた 100 周期の GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子を  $p-i-n$  構造に埋め込んだものである。試料の模式図を図 2-2 に示す。真性層 (ノンドープ層;  $i$  層) は超格子と  $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  層 (~50 nm) から成り、 $n$  ( $p$ ) 層は Si (Be) をドーピングした層厚約 1.0  $\mu\text{m}$  (0.2  $\mu\text{m}$ ) の  $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  層である。ドーピング濃度は、 $n$  層が約  $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、 $p$  層が約  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  である。超格子の内部電場  $F$  は、 $F = (V_b - V_a)/L_i$  の関係式より見積もった。ここで  $V_b$  は  $p-n$  接合による拡散

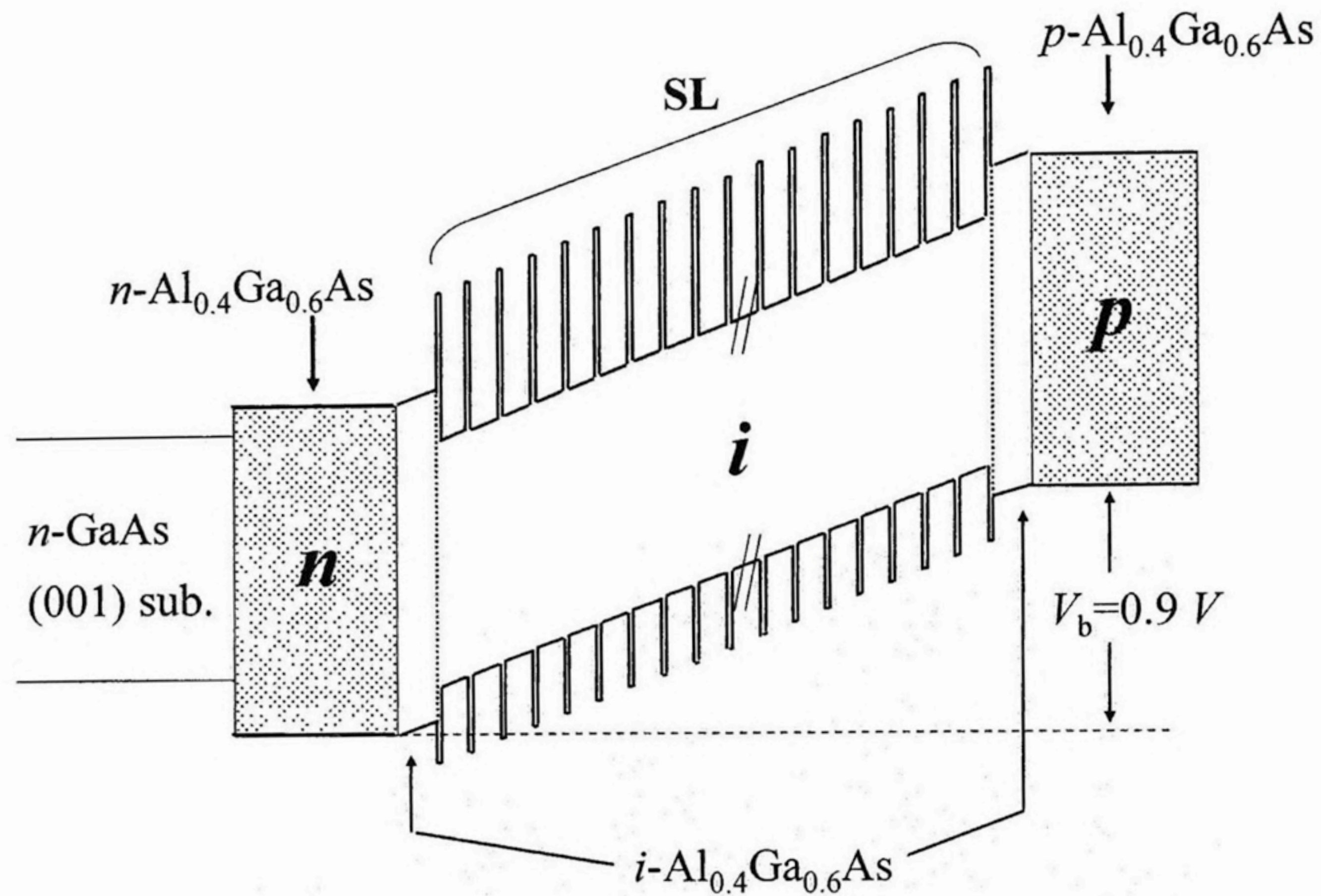


図 2-2 GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子が埋め込まれた  $p$ - $i$ - $n$  構造を有する試料の概略図。

電位、 $V_a$  は印加電圧、 $L_i$  は  $i$  層の長さを表している。 $V_b$  の値は、様々なバンド間シュタルク階段遷移のエネルギーを直線で外挿し、その収束点の電圧から見積もった[48]。すべての光学測定において、試料はクライオスタット内で 10 K に冷却した。

### 2-3-2 電場変調反射分光法および光電流分光法

ER 分光法とは、試料に微小な交流バイアスを印加してバンド構造 (光学スペクトル) を変調し、それに同期した反射光の変調成分を検出することで、高感度に状態密度特異点での光学遷移を観測することができる分光法である。本研究で用いた ER 分光法の測定系の概略図を図 2-3 に示す。プローブ光は、100 W のハロゲンランプをシングル分光器 (JOBIN YVON 製, HR320; 分解能: 0.5 nm) により分光したものである。反射光は Si フォトダイオード (浜松フォトニクス製, S1336) で受光した。試料には、ファンクショ

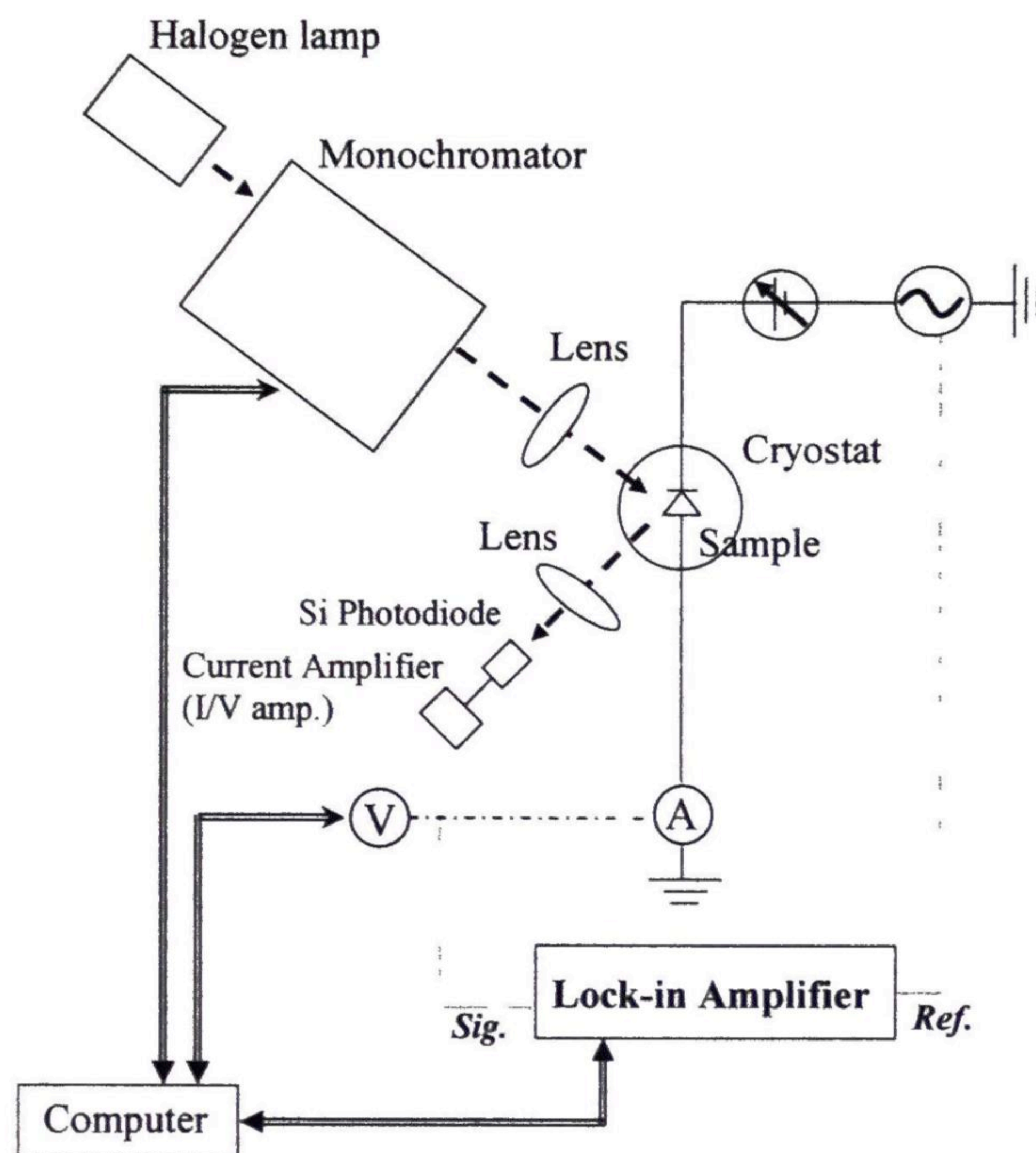


図 2-3 電場変調反射スペクトルと光電流スペクトルの測定系の概略図。

ンジェネレーター (NF ELECTRONIC INSTRUMENTS 製, WF1946) を用いて、DC バイアスに微小な AC バイアス (450 Hz) を重畳し、DC バイアスを中心に電場変調した。AC バイアス振幅は、100 mV 程度とした。反射光の変調成分 ( $\Delta R$ ) は、ロックインアンプ (EG&G PARK 製, Model 5209) により検出した。また、本研究では、試料からの光電流を高感度な電流計 (東亜電波工業社製, PM-18C) を用いて検出し、ER スペクトルと光電流スペクトルを同時に測定した。ER スペクトルと光電流スペクトルの詳細について以下で述べる。

#### (a) 電場変調反射スペクトル

ER 信号 ( $\Delta R/R$ ) は、物質の誘電関数の変調成分 ( $\Delta\varepsilon$ ) で表される[49]。

$$\frac{\Delta R}{R} \propto \Delta\varepsilon(E_g, \Gamma, I, \Delta F) \quad (2-10)$$

ここで、 $E_g$  は光学遷移エネルギー、 $\Gamma$  は現象論的なブロードニング因子、 $I$  は振動子強度、 $\Delta F$  は変調電場を示している。超格子や量子井戸について考える場合、誘電率の電場印加による変化は、励起子性の強い遷移のために、式 2-11 のように展開される[50]。

$$\Delta\varepsilon(E_g, \Gamma, I, \Delta F) = \left( \frac{\partial\varepsilon}{\partial E_g} \frac{\partial E_g}{\partial F} + \frac{\partial\varepsilon}{\partial \Gamma} \frac{\partial \Gamma}{\partial F} + \frac{\partial\varepsilon}{\partial I} \frac{\partial I}{\partial F} \right) \Delta F \quad (2-11)$$

一般的に、 $E_g$  の変調が ER 信号の主要因であると考えられている。WS 局在条件におけるバンド間シュタルク階段遷移のエネルギーの変調は、式 1-9 を用いて、

$$\frac{\partial E_m}{\partial F} = \frac{\partial E_0}{\partial F} + meD \quad (2-12)$$

と表される。式 2-12 の右辺第 1 項は QCSE[35]によるものである。つまり、 $m=0$  の遷移に対しては、変調には QCSE の寄与のみ関与する。Nakayama らは、バンド間シュタルク階段遷移の観測から、 $\partial E_0 / \partial F \ll meD$  であることを実証した[48]。つまり、ER 分光法は、 $m \neq 0$  のシュタルク階段遷移の観測に極めて高感度であることを意味している。

## (b) 光電流スペクトル

図 2-2 に示したような  $p-i-n$  構造試料は、それ自体がフォトダイオードと見なせることから、光電流分光法は、バンド間シュタルク階段遷移を観測するために非常に良く用いられている方法である。光電流スペクトルは、光励起された励起子 (キャリア) 数を反映することから、吸収スペクトルと見なすことができるが、その形状は励起子からキャリアへの解離過程やキャリアの電気伝導率等に強く影響を受ける。また、高次の光学遷移の検出を行う際には、低次の励起子の連続状態による信号がバックグラウンドとして重畳されることから、検出が極めて困難になることが一般的である。

## 2-4 実験結果と考察

### 2-4-1 電場下での超格子の固有状態に関する計算

実験結果を定量的に議論するために、電場下での超格子の電子・正孔固有状態の理論計算を TM 法を用いて行った。本研究では、フラットバンド領域のミニバンド状態から、高電場領域の WS 局在状態への移行過程に焦点を置いているため、2-2 節で述べた Nakayama らのグループが提案した計算方法を用いることにした[15,16]。モデル化した超格子はステップ関数的に近似しているため、QCSE は原理的に含まれない。しかしながら、ステップ関数的にポテンシャルを近似した TM 法による計算結果と、QCSE が含まれる Airy 関数を用いた計算結果との比較から、本研究の試料構造においては、60 kV/cm 以下の電場強度では、計算結果に大きな差がないことを確かめた。本章では、60 kV/cm までの電場強度で実験結果を考察しているため、QCSE の効果は小さい。すべての計算において、超格子は 15 周期の GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) にモデル化して行った。尚、超格子モデルでの GaAs 層厚は、計算した遷移エネルギーと観測されたエネルギーを一致させる様に、試料成長条件 (6.8 nm) からわずかに変化させた。

図 2-4 は、モデル化した GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における (a)  $n=1$  および (b)  $n=2$  電子包絡波動関数の確率密度 (規格化振幅の 2 乗値) の様々な電場強度  $F$  についての計算結果を示している。尚、計算結果は中心量子井戸に属する包絡波動関数である。また、両端の量子井戸層の包絡波動関数は、モデル化した超格子の有限性による境界条件が、大きな影響を与えるために取り除いている。図 2-4 から、包絡波動関数の局在性は、電場強度の増加で徐々に強まるのではなく、非常に複雑に変化することがわかる。WS 局在状態の複雑な局在特性は第 4 章で述べる。ここでは、計算した包絡波動関数における局在性の程度に注目して議論を進める。 $F=2$  kV/cm において、 $n=1$  と  $n=2$  状態の包絡波動関数は、ミニバンド形成を反映して、超格子層全体に広がっている。すなわち、固有状態は非局在化している。 $n=1$  状態の包絡波動関数は、5 kV/cm で中心量子井戸に局在する傾向が現れ、10 kV/cm と 20 kV/cm では、それぞれ 3 周期と 2 周期程度まで局在している。しかしながら、 $n=2$  状態の包絡波動関数は、20 kV/cm においても、まだ局



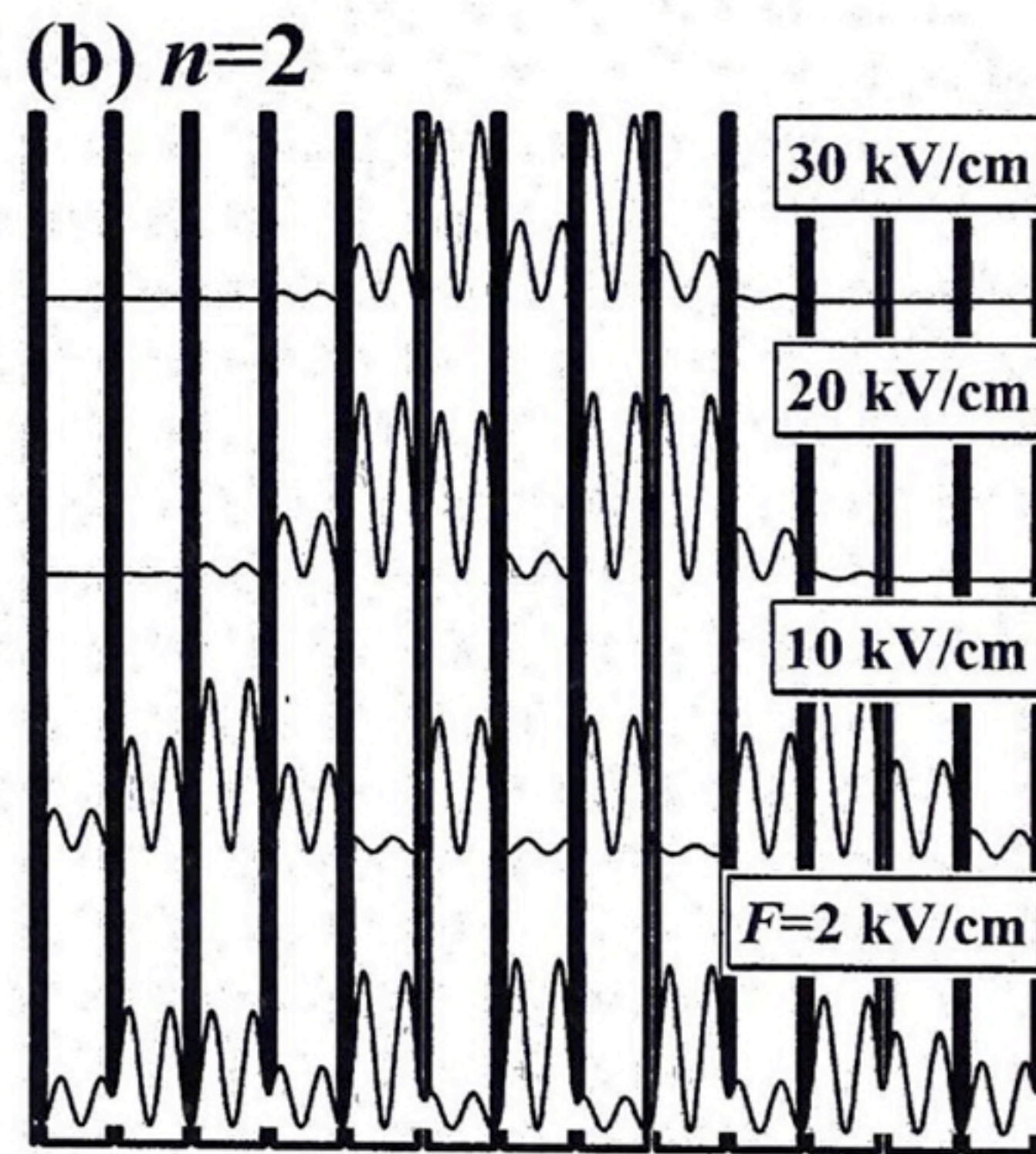
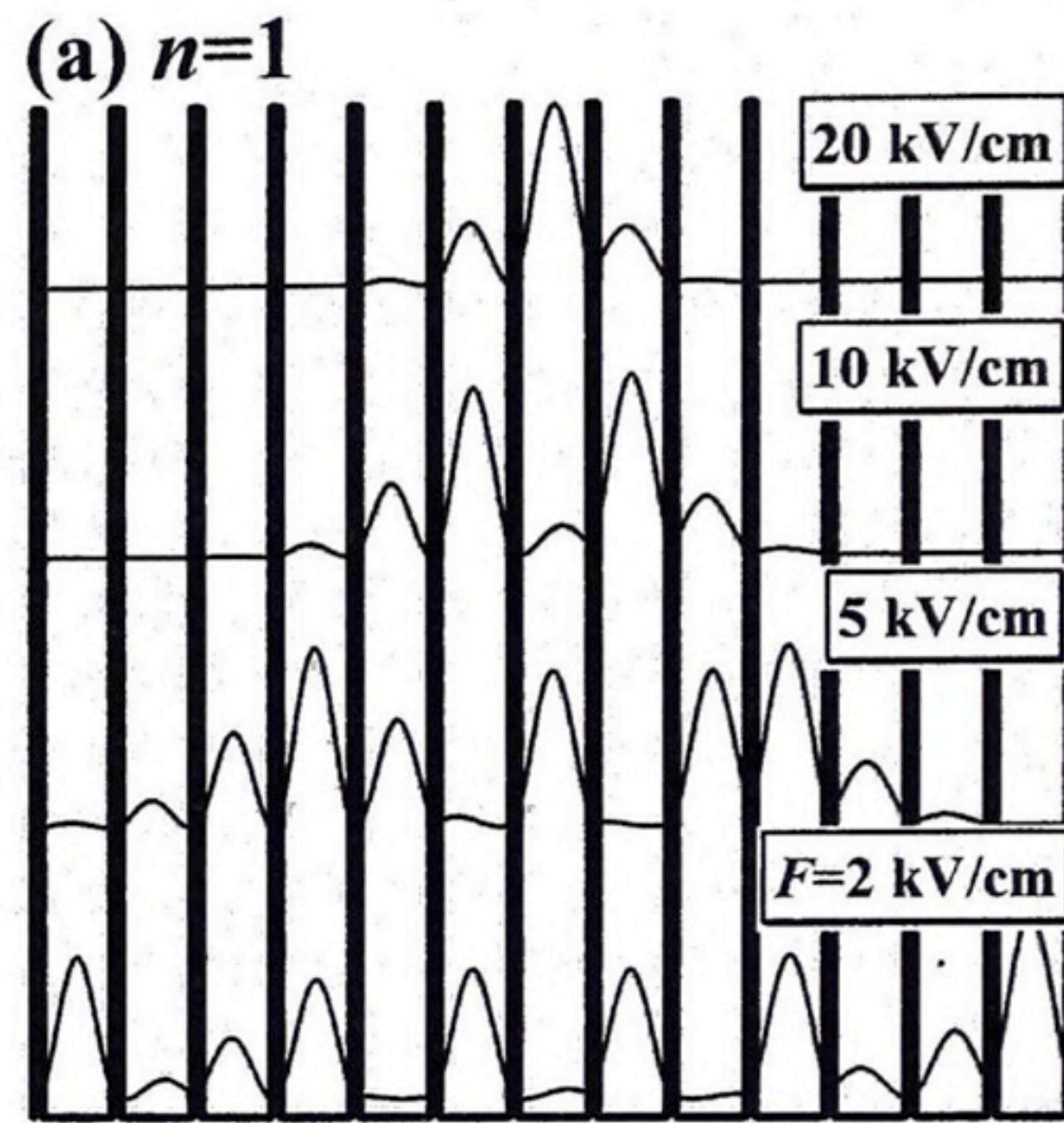


図 2-4 モデル化した GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における (a)  $n=1$  および (b)  $n=2$  電子包絡波動関数の確率密度 (規格化振幅の 2 乗値) の様々な電場強度  $F$  についての計算結果。なお、計算は、モデル化した超格子の中心量子井戸層の固有状態を対象としている。

在化が小さいことが示されており、 $n=1$  状態と比べて、より高い電場強度で局在することがわかる。

次に、 $n=1$  および  $n=2$  電子状態における固有エネルギーの電場強度依存性の計算結果について議論する。図 2-5 は、TM 法により計算した GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格

子における  $n=1$  および  $n=2$  電子固有エネルギーの電場強度依存性を示している。 $F=0$  kV/cm において、 $n=1$  と  $n=2$  電子状態それぞれの固有エネルギーの最低値と最高値のエネルギー間隔は、有効質量近似に基づいた KP モデルによる計算結果と良く一致する。尚、表 2-1 に、電子 (EL)、重い正孔 (HH)、軽い正孔 (LH) 状態についてのミニバンド幅の計算結果をまとめている。KP モデルと TM 法による計算結果との一致から、ステップ関数型ポテンシャル近似での TM 法の計算が正確であることが明確に示されている。図 2-5 の計算結果に注目すると、ある電場強度において、固有エネルギーが電場強度に対して線形の依存性を示し始めることがわかる。この振る舞いは、電子状態が、ミニバンドから  $eFD$  で量子化されたシュタルク階段状態へと移行したことに起因している。ここで、この電場強度を、WS 局在状態形成のための臨界電場と考える。図 2-5 から、超格子の有限性の効果が無視できる中心付近の量子井戸における計算結果に注目して臨界電場強度を見積もった。具体的には、 $m=\pm 3$  の固有エネルギーが  $meFD$  の依存性を持ち始める電場強度を臨界電場と定義した。図 2-5 の計算結果から、 $n=1$  と  $n=2$  電子状態についての臨界電場は、それぞれ 5 kV/cm と 12 kV/cm である。臨界電場強度の違いは、 $n=1$  と  $n=2$  電子状態のミニバンド幅の違いに起因している。ミニバンド幅の広さは、量子井戸間での包絡波動関数の結合の強さを反映するので、ミニバンド幅の広い  $n=2$  電子状態の方がより高い臨界電場となる。図 2-5 の計算結果から、 $n=1$  と  $n=2$  の WS 局在状態間のエネルギー共鳴による反交差現象[12,14,31,32]は現れていない。これは、60 kV/cm までの電場強度では、比較的遠い量子井戸に属する電子状態間の弱い共鳴結合が生じるために、エネルギー反交差が無視できる程小さいためである。明確な反交差は 80 kV/cm 以上の電場強度で出現する。以上の計算結果に基づいて、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程についての実験結果を議論していく。

#### 2-4-2 ワニエ・シュタルク局在状態の形成

以下では、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程に関する実験結果について述べる。図 2-6 は、GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における様々な電場強度での ER ス

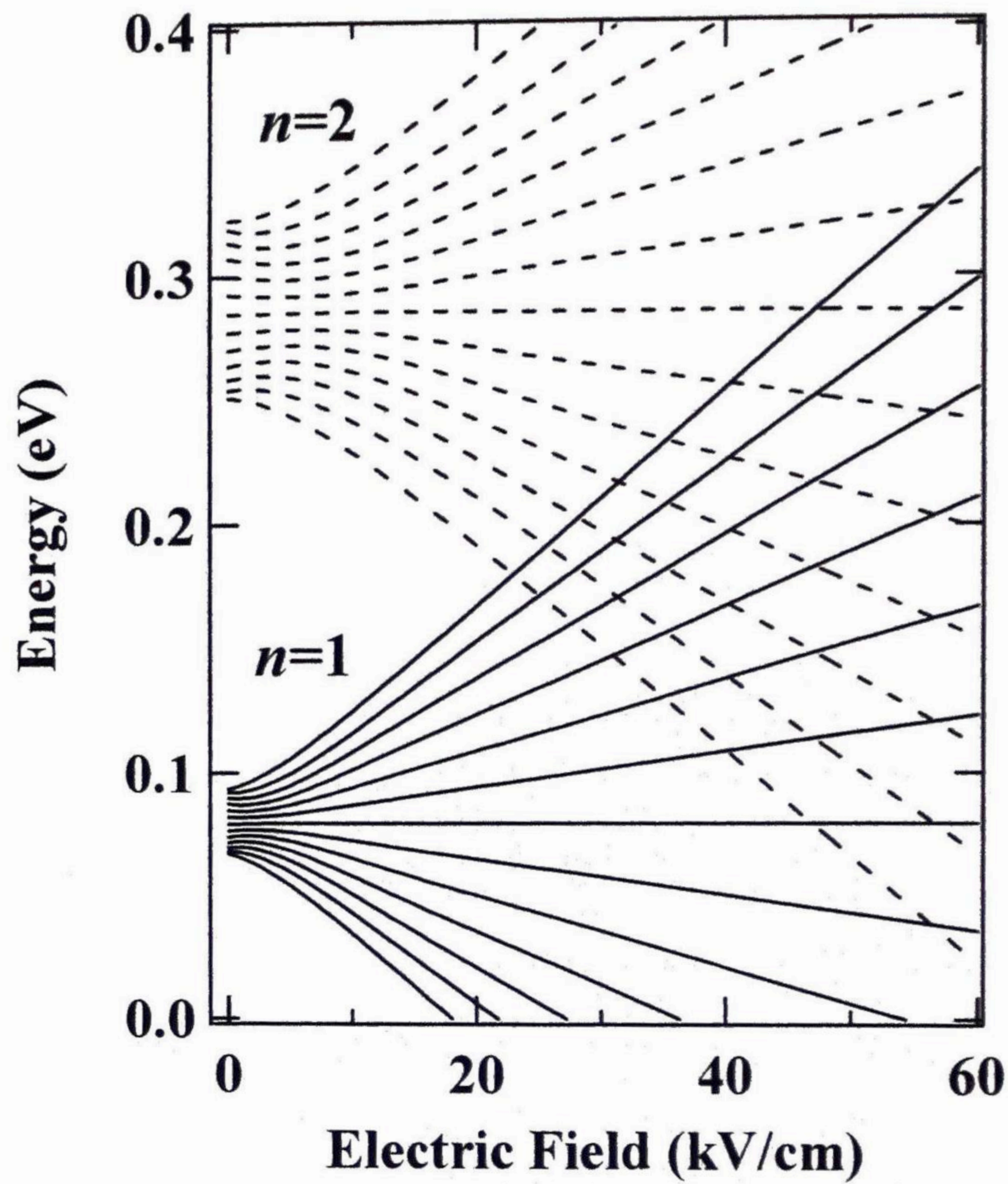


図 2-5 GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における  $n=1$  (実線) と  $n=2$  (破線) 電子固有エネルギーの電場強度依存性についての計算結果。

表 2-1 クローニッヒ-ペニーモデルと伝達行列法により計算した  $n=1$  と  $n=2$  についての電子 (EL)、重い正孔 (HH)、軽い正孔 (LH) 状態のミニバンド幅。

Miniband state	$n=1$ EL	$n=2$ EL	$n=1$ HH	$n=2$ HH	$n=1$ LH	$n=2$ LH
KP model (meV)	29.5	79.0	2.6	10.6	25.0	58.5
TM method (meV)	28.8	77.3	2.5	10.3	24.6	57.1

ペクトルおよび光電流スペクトルの測定結果を示している。各々のスペクトルは、ピーク強度で規格化している。ここで、ER スペクトルと光電流スペクトルは同時に測定したものである。 $F=0$  kV/cm での ER スペクトルに属する矢印は、KP モデルにより計算した H11, L11, H22, L22 遷移のエネルギーを示している。ここで、 $Hn_e n_h$  ( $Ln_e n_h$ ) の表記は、 $n_e$  次量子 EL 状態と、 $n_h$  次量子 HH (LH) 状態間の遷移を表しており、 $\Gamma$  と  $\pi$  はそれぞれミニバンド分散の  $\Gamma$  点と  $\pi$  点での光学遷移を意味する。WS 局在の研究に一般に用いられている光電流分光法では、 $n=1$  状態に関連したいくつかのピーク構造は観測されているが、 $n=2$  状態については明確なピーク構造は観測されていないことがわかる。一方、ER 分光法では、 $n=1$  状態に加え、 $n=2$  状態に関連した光学遷移が明確に検出されており、電場強度の増加に伴う信号形状の変化も明白である。また、 $F=0$  kV/cm では、ミニバンド分散の  $\Gamma$  点と  $\pi$  点での光学遷移による信号が観測されている。図 2-6 における ER スペクトルと光電流スペクトルとの比較から、ER 分光法は、ミニバンドや WS 局在条件での光学遷移に対して極めて高感度であることがわかる。

ミニバンドから WS 局在状態への移行過程を明確にするために、ER スペクトルの電場強度依存性を系統的に測定し、直感的に評価が可能なイメージ図で処理した。図 2-7(a) と図 2-7(b) は、それぞれ  $n=1$  と  $n=2$  ミニバンドのバンド間光学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で処理したものであり、右側に示すカラースケールにより ER 信号強度を表している。赤線と青線は、それぞれ TM 法により計算した  $Hn_e n_h$  と  $Ln_e n_h$  遷移のエネルギーを示している。図 2-7 の左側に示された矢印は、KP モデルで計算したミニバンドの  $\Gamma$  点または  $\pi$  点での  $Hn_e n_h$  と  $Ln_e n_h$  遷移エネルギーを指している。また 1.78 eV 以上のエネルギー領域の ER イメージ図の強度は[図 2-7(b)]、ER 信号強度が弱いために、信号強度を 20 倍している。ER スペクトルから正確な遷移エネルギーを見積もるためには、バンド間シュタルク階段遷移に対応する誘電関数に基づいて、形状解析を行う必要がある[51]。しかしながら、本研究では、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程の振る舞いに焦点を置いているので、ER スペクトルの形状解析により求まる正確な遷移エネルギーはそれほど重要ではない。よって遷移エネルギーの見積もりの不確定性は、ER 信号の幅に相当し、 $n=1$  状態の遷移エネルギーに対しては、 $\pm 3$  meV であり、 $n=2$  状態の遷移エネルギーに対しては、 $\pm 6$  meV である。

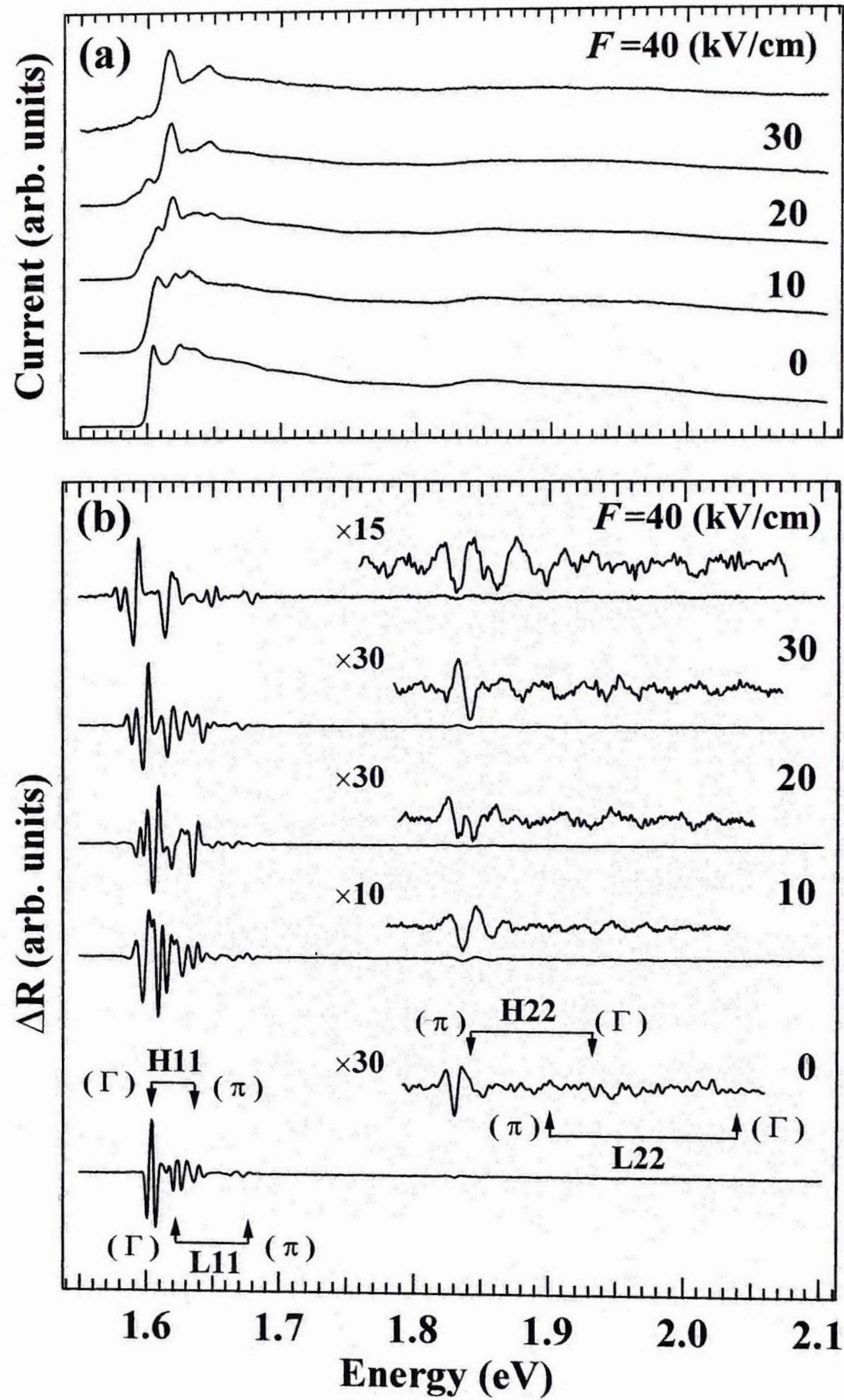


図 2-6 GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における様々な電場強度での(a)光電流スペクトル、および、(b)電場変調反射スペクトルの測定結果。 $F=0$  kV/cm での電場変調反射スペクトルに属する矢印は、クローニツヒ-ペニーモデルで計算した H11, L11, H22, L22 遷移のエネルギーを示しており、 $\Gamma$ と $\pi$ はそれぞれミニバンド分散の $\Gamma$ 点と $\pi$ 点での光学遷移を意味する。

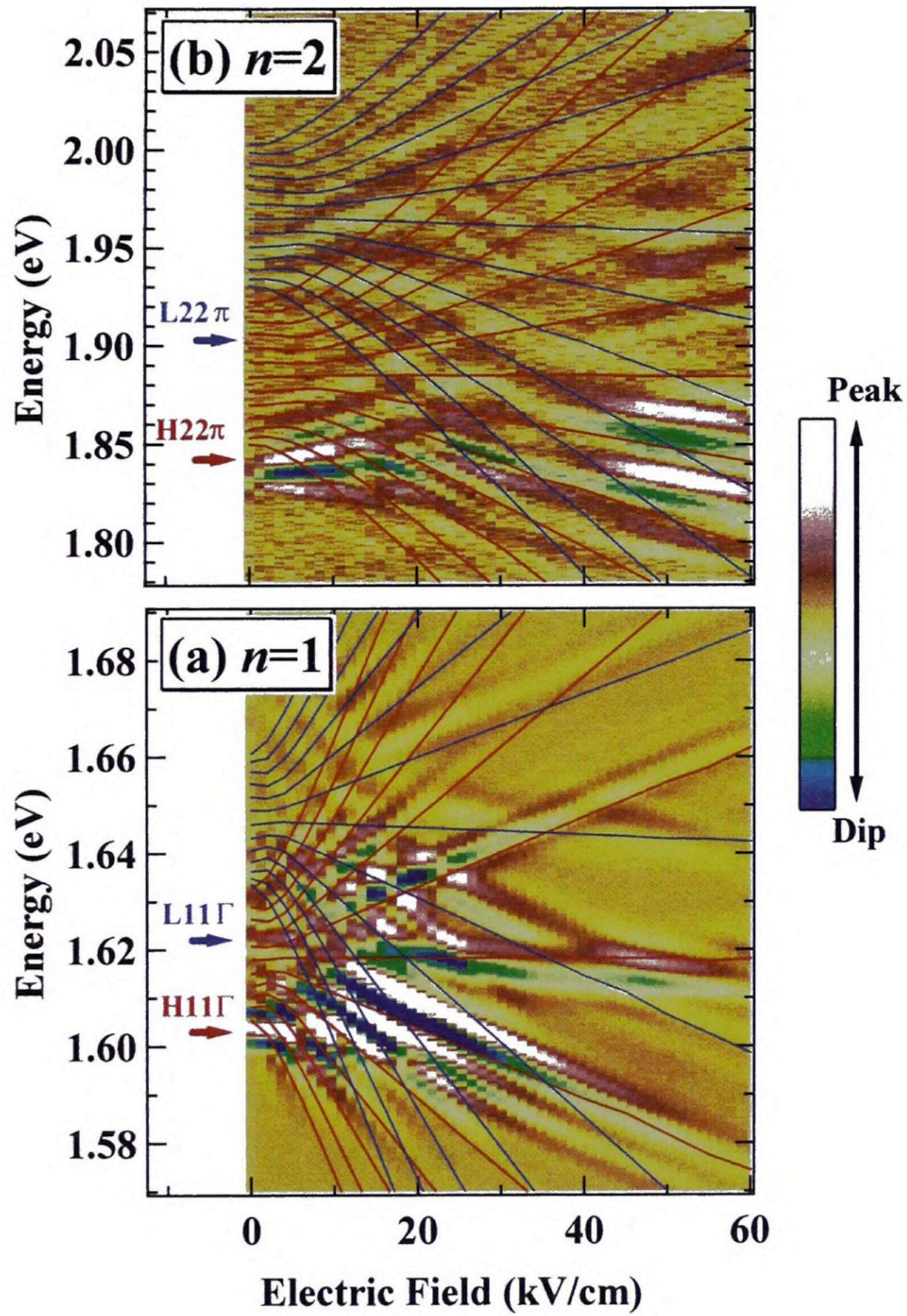


図 2-7 GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における(a)  $n=1$  と(b)  $n=2$  ミニバンドのバンド間光学遷移エネルギー領域での電場変調反射スペクトルのイメージ図。電場変調反射信号の強度は、右側に示すカラースケールにより表している。赤線と青線は伝達行列法により計算した  $Hn_e n_h$  と  $Ln_e n_h$  遷移エネルギーを示している。また、 $F < 0$  kV/cm に示された矢印は、クローニツヒ-ペニーモデルで計算したミニバンドの  $\Gamma$  点または  $\pi$  点での  $Hn_e n_h$  と  $Ln_e n_h$  遷移エネルギーを指している。

図 2-7 において、 $n=1$  および  $n=2$  のミニバンド状態から、WS 局在状態 ( $meFD$  の依存性) への移行過程が明確に現れている。尚、低電場領域で観測された ER スペクトルの微細構造は、フランツ-ケルディッシュ (Franz-Keldysh; FK) 振動 [52] によるものである。つまり、図 2-7 のイメージ図から、ミニバンド状態、FK 振動、WS 局在状態という電場印加による電子状態の移行過程が明確に確認できる。図 2-7 に示した ER スペクトルの実験結果から、バンド間遷移エネルギーの電場強度依存性は、大きく 2 つの領域に分類できる。一つは、遷移エネルギーが電場強度に依存しない領域であり、他方は、バンド間遷移エネルギーが、電場強度に対して線形の依存性を持つ領域である。この線形の電場強度依存性は、バンド間シュタルク階段遷移によるものである。また遷移エネルギーの電場強度依存性は、TM 法による計算結果と良く一致している。これらの事実は、図 2-5 の計算結果から示された臨界電場が存在することを明確に示している。図 2-7 の実験結果から見積もった臨界電場の値は、H11, L11, H22, L22 遷移に対して、それぞれ 5, 7, 15, 20 kV/cm である。この見積もりでは、電場強度にほぼ独立なミニバンドのバンド間光学遷移に起因する ER 信号が消滅する電場強度を臨界電場強度と定義した。見積もりの不確定さは、 $\pm 2$  kV/cm 程度である。以下では観測された臨界電場について議論する。

Tanaka らは、H11 遷移と L11 遷移エネルギーの電場強度依存性を、ER 分光法を用いて詳細に測定し、H11 遷移と L11 遷移に対する臨界電場が、全ミニバンド幅 (電子と正孔ミニバンド幅の和) によって決定されることを実証した[15]。本研究では、 $n=1$  状態に加え、 $n=2$  状態のミニバンドについての情報も得られており、WS 局在状態形成の特性を包括的に評価することができる。表 2-1 の計算結果から見積もった H11, L11, H22, L22 遷移に対応する全ミニバンド幅は、それぞれ 32, 55, 90, 138 meV であり、H11 遷移の全ミニバンド幅で規格化すると、1 : 1.7 : 2.8 : 4.3 である。図 2-7 から見積もった臨界電場は H11, L11, H22, L22 遷移に対して 5, 7, 15, 20 kV/cm であり、H11 遷移の臨界電場で規格化すると、1 : 1.4 : 3.0 : 4.0 である。すなわち、全ミニバンド幅と臨界電場の値の間に線形的相関があることが明らかである。本研究の結果から、WS 局在状態形成のための臨界電場が、 $n=1$  と  $n=2$  ミニバンドにおいて統一的に全ミニバンド幅によって決定されることを明らかとした。

## 2-5 まとめ

GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子を試料とし、バンド間光学遷移エネルギーの電場強度依存性を ER 分光法と光電流分光法を用いて系統的に測定し、 $n=1$  と  $n=2$  ミニバンドについての WS 局在状態への移行過程を研究した。ミニバンドの光学遷移、およびバンド間シュタルク階段遷移に対して極めて高感度な ER 分光法の測定結果から、 $n=1$  ミニバンドと  $n=2$  ミニバンドの WS 局在状態への移行過程を同時に観測することに成功した。H11, L11, H22, L22 遷移の実験結果は、TM 法による固有状態の電場強度依存性から定量的に解析した。その結果、 $n=1$  と  $n=2$  ミニバンドの両方において、全ミニバンド幅と WS 局在状態形成の臨界電場の間に線形的相関があることを得た。つまり、WS 局在状態への移行過程が、統一的に全ミニバンド幅によって決定されることを明らかにした。



## 第 3 章 GaAs/AlGaAs 超格子におけるワニエ・シュタルク局在状態間共鳴結合条件での光電流双安定性

### 3-1 はじめに

量子井戸構造を負荷回路に接続するだけで、光電流双安定性等の動作が得られるという SEED の概念は、Miller により提案され[33,34]、素子の簡便さと高い機能性から、多くの研究者が注目し、様々な研究が行われてきた[36-39]。SEED の光電流双安定性動作を実現するためには、量子井戸構造の光電流-電圧特性に負性微分抵抗性が不可欠である。現在考案されている超格子をベースとした SEED 素子において、この要求は、バンド間シュタルク階段遷移エネルギーの電場 (バイアス電圧) によるシフトで満たしている。

WS 局在条件での代表的な量子力学的現象として、WS 局在状態間の波動関数共鳴結合が知られている[12,14,31,32]。共鳴結合条件において、関連するシュタルク階段遷移のエネルギー、及び、遷移確率は大きく変化する。このことは、共鳴結合が生じるエネルギー領域に励起光のエネルギーを調節して光電流-電圧特性を測定すると、負性微分抵抗性が出現することを示唆する。Schneider らは、この方法を用いて、負性微分抵抗性を実現したが[53]、共鳴結合を利用した SEED 動作は、これまでに実現されていない。

本研究では、GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As 超格子を試料とし、WS 局在状態間の波動関数共鳴結合条件における光電流特性の変化を、SEED の観点から詳細に解明することを目的とした。光電流分光法、及び、シュタルク階段遷移に対して極めて高感度な ER 分光法を駆使して、バンド間遷移エネルギーの電場強度依存性の測定を行い、様々な共鳴結合による光学特性の変化を検出した。また、観測された共鳴結合の同定を定量的に行うために、

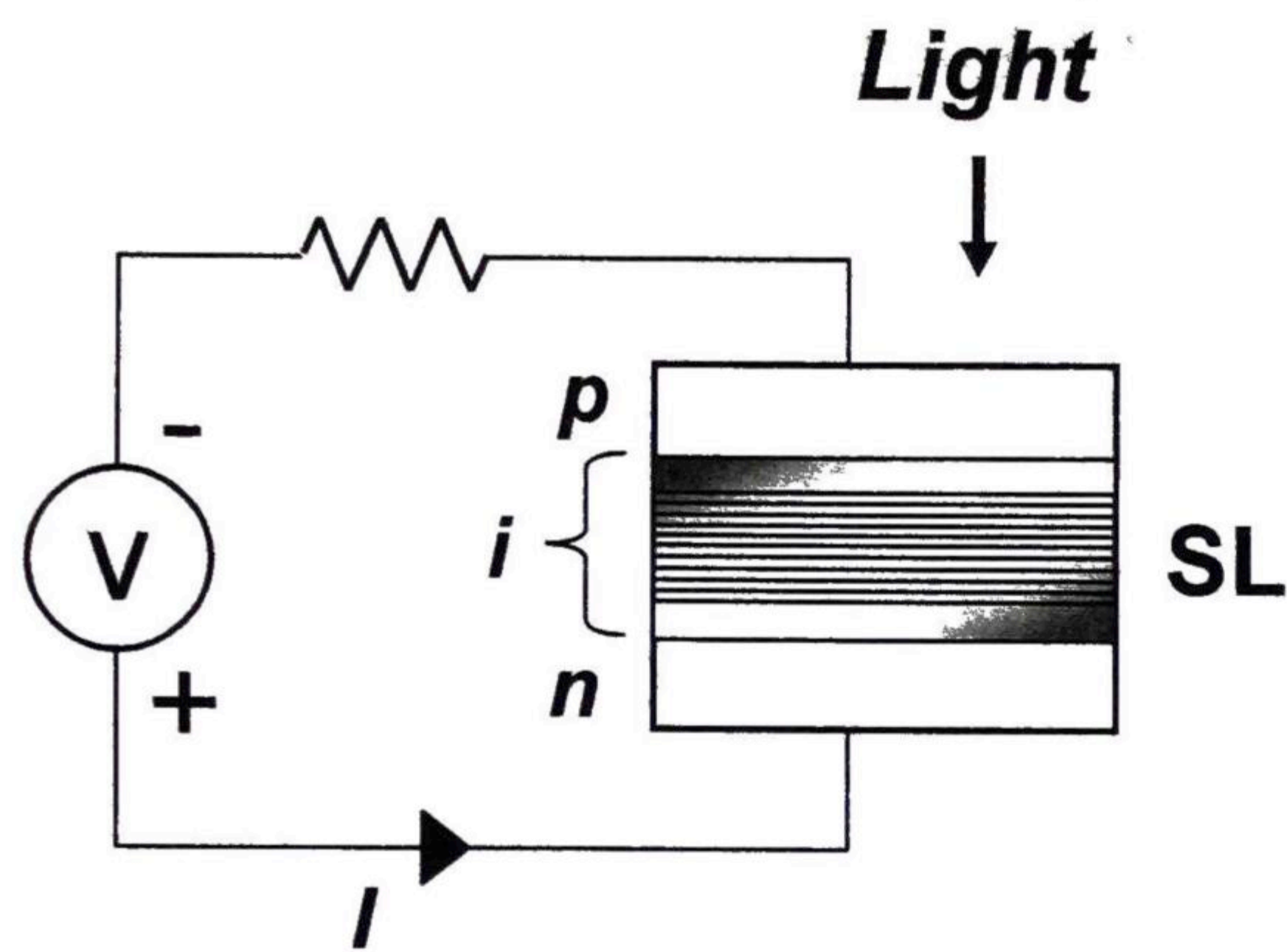


図 3-1 一般的な自己電気光学効果素子 (SEED) の概略図。

Airy 関数を用いた TM 法による固有エネルギーの電場強度依存性を計算した。その結果、波長選択励起した光電流・電圧特性に共鳴結合による負性微分抵抗性が出現することを見出し、更には、 $100 \mu\text{W}$  近傍の入射光強度に対する SEED の光電流双安定性動作を実現した[44]。

## 3-2 自己電気光学効果素子のメカニズム

### 3-2-1 自己電気光学効果

図 3-1 に示すように、超格子を負荷回路に接続して一定電圧を印加する。超格子を光励起すると光電流が回路を流れ、負荷抵抗による電圧降下が生じ、超格子へ印加される電圧が減少する。超格子の印加電圧が変化すると、電子状態が変化することから、光電流量や透過光強度が変化するといった自己フィードバック現象が生じる。これを、自己電気光学効果という。以上のように、超格子が接続された負荷回路は、光非線形性を持つ電子回路としてはたらく。この現象を用いた光機能性素子のことを、一般に SEED と

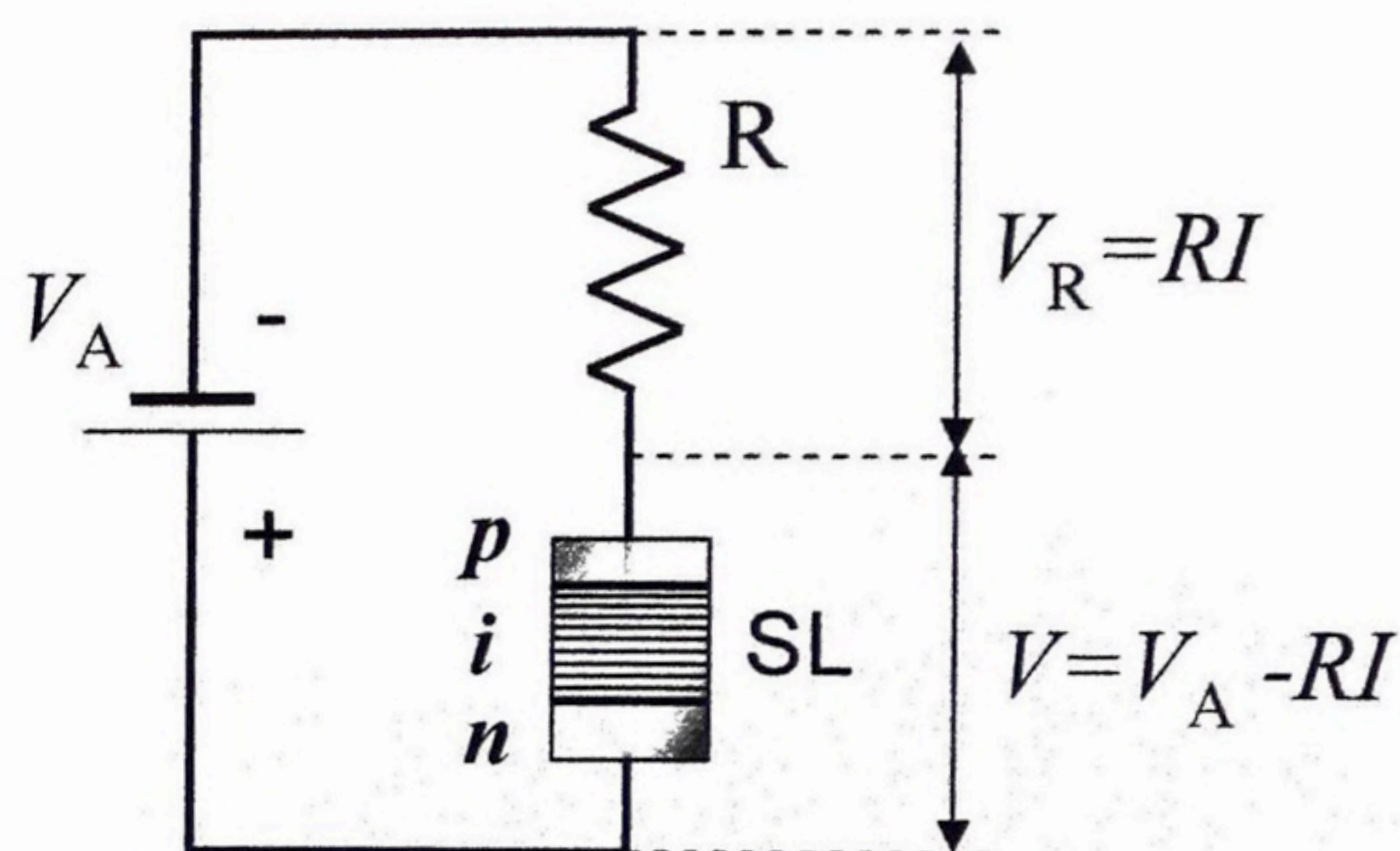


図 3-2 超格子が接続された負荷回路における電圧分配の模式図。

呼び、小型集積化可能、高感度、小電力といった特徴を持ち、光スイッチングや光コンピュータのデバイスとして期待されてきた。図 3-1 に示した抵抗を利用した SEED を、Resistor-Biased SEED (R-SEED) と呼ぶ[34]。また、様々な動作機構が考案され、抵抗の役割をもう 1 つの超格子で補った Symmetric-SEED (S-SEED) などがある[38,39]。

### 3-2-2 動作点の判定

本研究で用いた超格子試料は、 $n$  型 GaAs 基板上に作製されたものであり、図 3-1 に示したような試料からの透過光は生じない。そのため、以後は光電流の SEED 動作について説明する。

SEED 回路の動作点について考える場合、基本的には単純な電子回路での取り扱いで理解できる。図 3-2 に示す様に、超格子を、抵抗  $R$  と直列に接続し、回路全体に電圧  $V_A$  を印加する。超格子に印加される電圧  $V$  は、 $V_A$  から抵抗による電圧降下  $V_R$  を差し引いた値となり、

$$V = V_A - RI \tag{3-1}$$

で表される。ここで、 $I$ は回路を流れる電流値を表している。電流  $I$ について式変形を行うと、

$$I = \frac{V_A - V}{R} \quad (3-2)$$

となる。式 3-2 は一般的に負荷線と呼ばれており、超格子の内部電圧と、回路を流れる電流値との関係を表す。

図 3-3 の実線は、負性微分抵抗性を有する光電流-電圧特性の励起光強度 (P1~P5) 依存性の模式図を示している。本論文で議論する励起光強度の範囲では、光生成キャリアによるクーロン遮蔽の影響は無視でき、図の様に形状は大きく変化しない。超格子の光電流-電圧特性の負性微分抵抗性は、図 3-4 に示す用に、励起光のエネルギーを固定し、超格子に逆バイアス電圧 (電場) を加えていくことで得られる。具体的に述べると、バンド間シュタルク階段遷移のエネルギーが、電場強度の増加でシフトするため、ある電場強度で励起光と光学遷移のエネルギー共鳴が生じ、励起効率の増大に伴う光電流値の増加がピーク構造として現れる。図 3-3 の点線は、抵抗  $R=3.9 \text{ M}\Omega$ 、印加電圧  $V_A=-10 \text{ V}$  での負荷線を示している。超格子を負荷回路に接続した場合、光電流-電圧特性と負荷線の交点が励起光強度に対する動作点となる。光電流-電圧特性の負性微分抵抗性に起因して、P3 の励起光強度では交点が 3 つ存在する。しかしながら、負荷線から得られたすべての交点が安定点 (動作点) ではない。動作点を議論するためには、局所安定性理論[34]、または大域安定性理論[39]による解析が必要となる。

### (a) 局所安定性理論による解析

ここでは、局所安定性理論による動作点の評価方法について説明する。ある動作点での電圧  $V$  から、 $\Delta V$  だけ電圧を変化させた場合の系の時間変化を考える。回路中の動的過程を計算するために、超格子素子を図 3-5 に示すように低電流源とキャパシタが並列接続したものと考える。実際に、本研究で用いた超格子素子は  $i$  層を  $p$  層と  $n$  層で挟み込んだものであり、キャパシタンスを有している。回路を流れる電流について考えることで、式 3-3 の様な微分方程式を立てることができる。

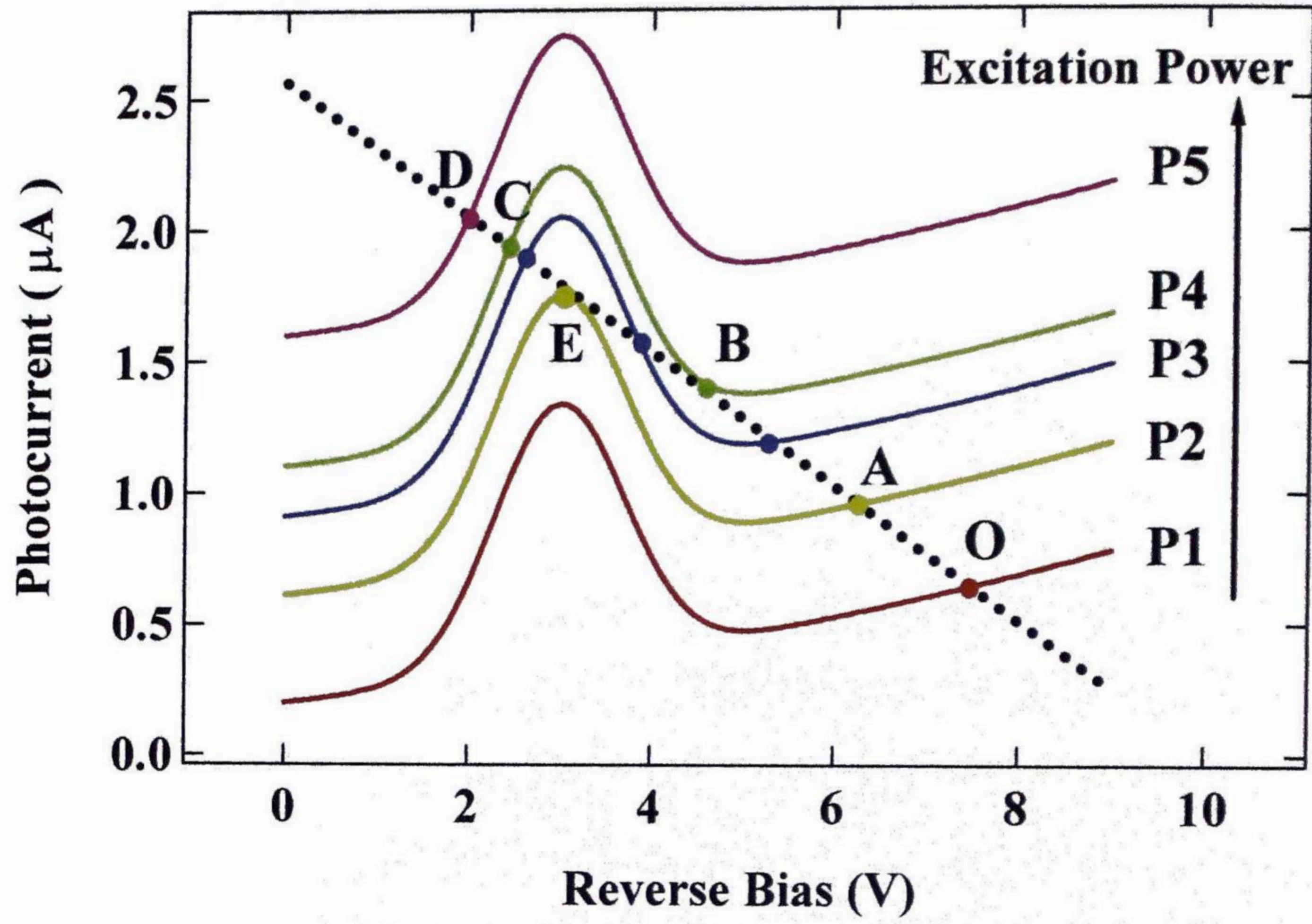


図 3-3 実線は、超格子の光電流-電圧特性の励起光強度依存性を模式的に表しており、点線は、抵抗  $R=3.9 \text{ M}\Omega$ 、印加電圧  $V_A=-10 \text{ V}$  での負荷線。

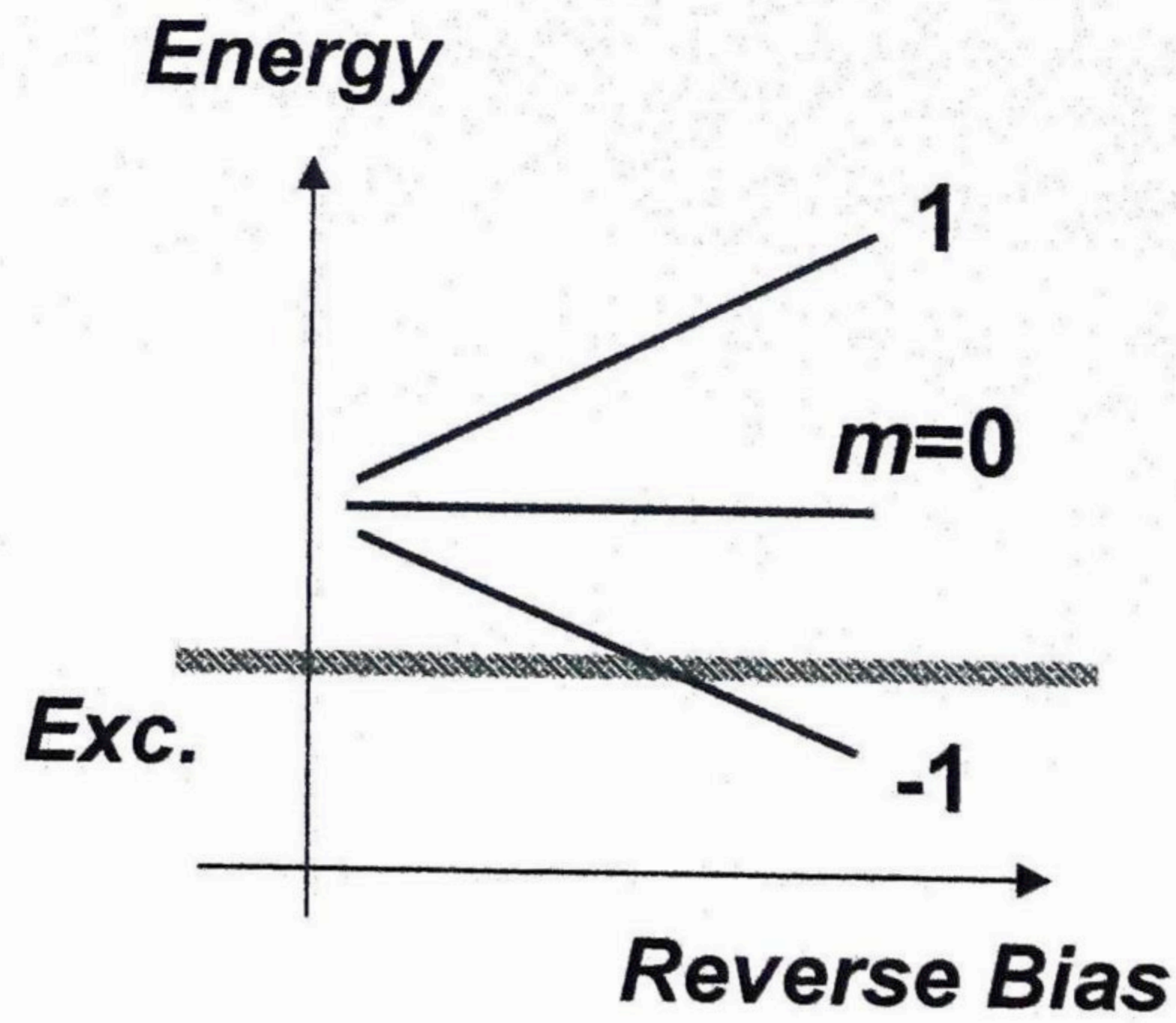


図 3-4 バンド間シュタルク階段遷移エネルギーのシフトと、励起光エネルギーとの関係の模式図。

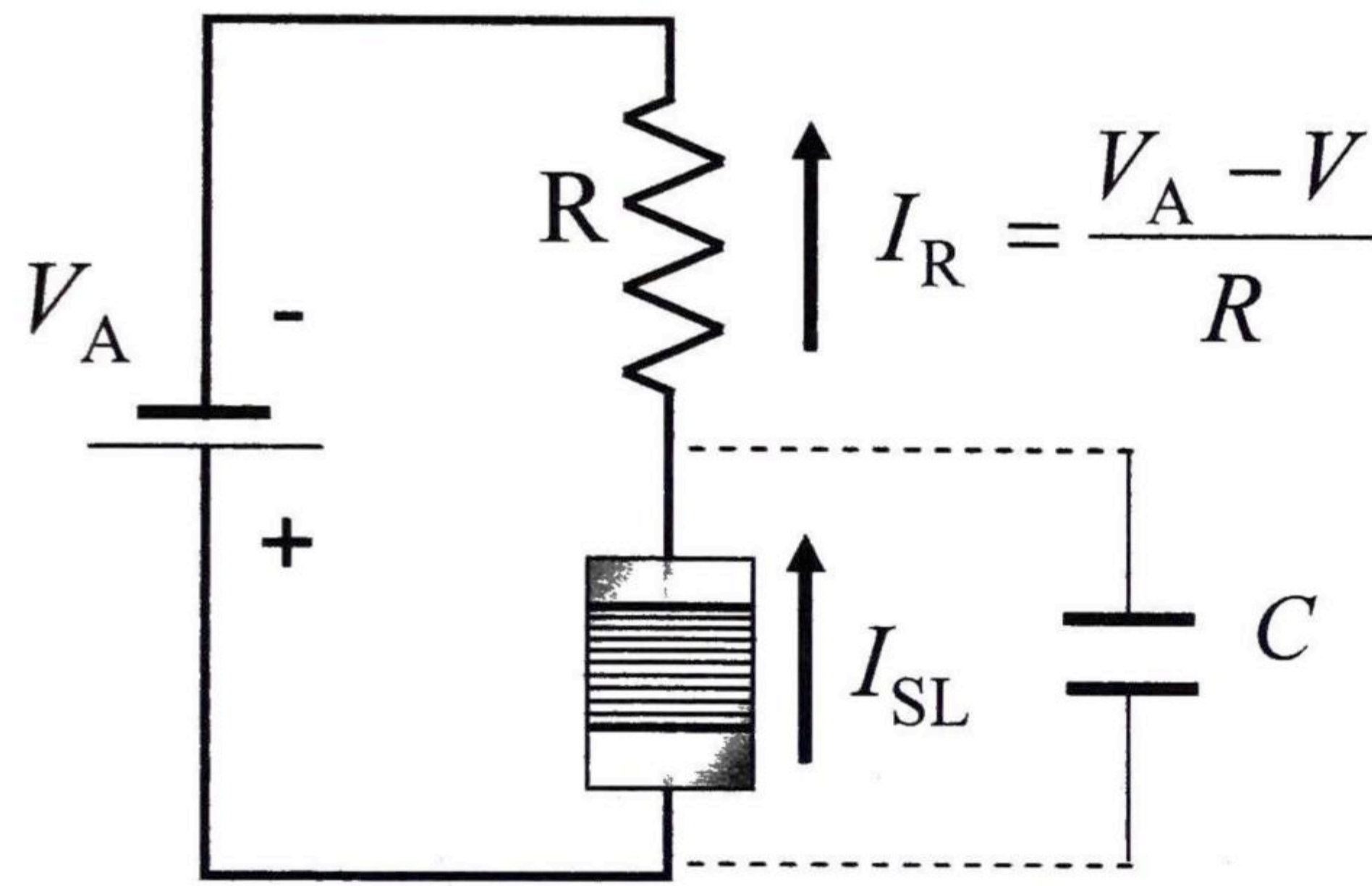


図 3-5 系の時間変化を考える場合の負荷回路の模式図。

$$I_{SL}(V) + \frac{dQ}{dt} = I_R(V) \quad (3-3)$$

ここで、 $Q$  は、超格子層に溜まっている電荷を表し、 $I_{SL}$  と  $I_R$  は、超格子から生じる光電流と、抵抗を流れる光電流値を表しており、十分時間が経つと  $I_{SL} = I_R$  となる。 $Q = CV$  の関係を用いて、超格子の印加電圧の時間変化について解くと、

$$I_{SL}(V) + C \frac{dV}{dt} = I_R(V)$$

$$\frac{dV}{dt} = \frac{1}{C} [I_R(V) - I_{SL}(V)] \equiv \frac{1}{C} \Delta I(V) \quad (3-4)$$

を得る。局所的な  $V$  の変化は、 $\Delta I$  を  $V_x$  の周りでテイラー展開して、

$$\frac{dV}{dt} \cong \frac{1}{C} \Delta I(V_x) + \frac{\partial}{\partial V} \left( \frac{\Delta I(V)}{C} \right)_{V=V_x} \Delta V \quad (3-5a)$$

$$V = V_x + \Delta V \quad (3-5b)$$

を得る。

$$A \equiv \frac{\partial}{\partial V} \left( \frac{\Delta I(V)}{C} \right)_{V=V_x} \quad (3-6)$$

と置くと、式 3-5 から変化量の時間変化に対する微分方程式

$$\frac{d\Delta V}{dt} = A\Delta V \quad (3-7)$$

を得る。式 3-7 の一般解は、

$$\Delta V \propto \exp[At] \quad (3-8)$$

となる。この式では、 $A$  の符号により発散解または収束解が得られる。発散解は系が不安定であることを示している。不安定条件について式を解くと、

$$A \equiv \frac{1}{C} \frac{\partial}{\partial V} \left[ \frac{V_A - V}{R} - I_{SL}(V) \right]_{V=V_x} = \frac{1}{C} \left[ -\frac{1}{R} - I_{SL}'(V_x) \right] > 0$$
$$\therefore -\frac{1}{R} > I_{SL}'(V_x) \quad (3-9)$$

の関係式が得られる。 $I_{SL}'(V_x)$  が負で、勾配が負荷線よりも急であれば、その領域では不安定であることを示す。

局所安定性理論による解析結果を図 3-6 に示す。図 3-6 の太線は、図 3-3 における励起光強度 P3 での光電流-電圧特性を示しており、点線は光電流-電圧特性を電圧に対して一階微分したものを示す。また横軸に平行な破線は  $-1/R$  (-0.26) の値を示しており、光電流-電圧特性の 1 階微分がこの値よりも小さな値をとる領域での交点は不安定点となる。よって、P3 の励起光強度で光電流-電圧特性と負荷線の交点は 3 つ存在するが、動作点は a と c であることを示している。

## (b) 大域安定性理論による解析

局所安定性理論による解析では、系が時間的に安定か不安定かが分かるだけで、 $V$  がどちらに移動していくのか見分けにくい。またどの程度安定であるのか視覚的に分からない。よって、上記の問題を解消するためには、広い電圧範囲に適用できる解析法が必要である。以下に記述する大域安定性理論による解析では、上記の問題点を解消できる。

$V$  の時間変化についての式 3-4 を、系の運動方程式と考える。また、系の運動はある

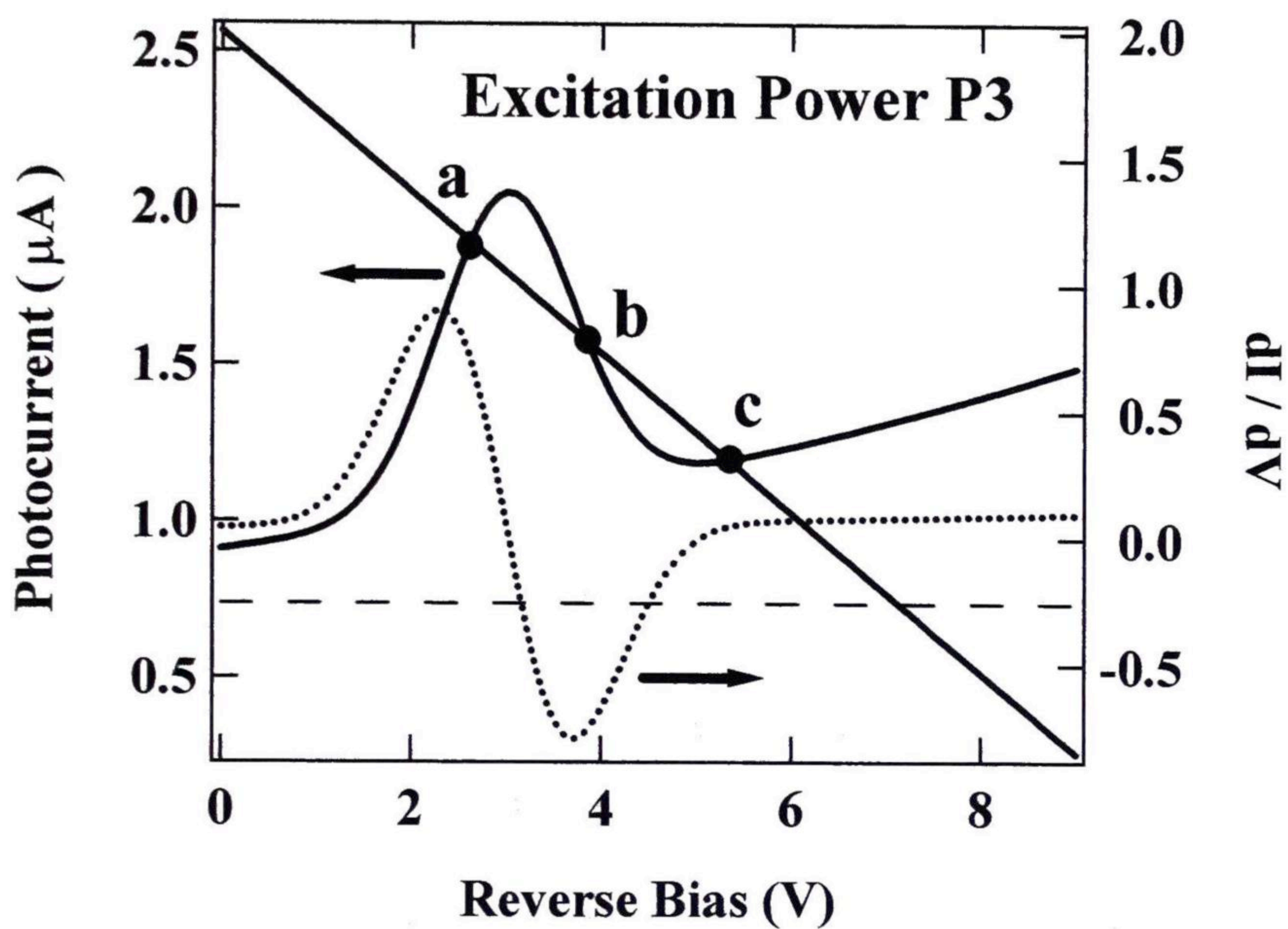


図 3-6 局所安定性解析による動作点の判定。

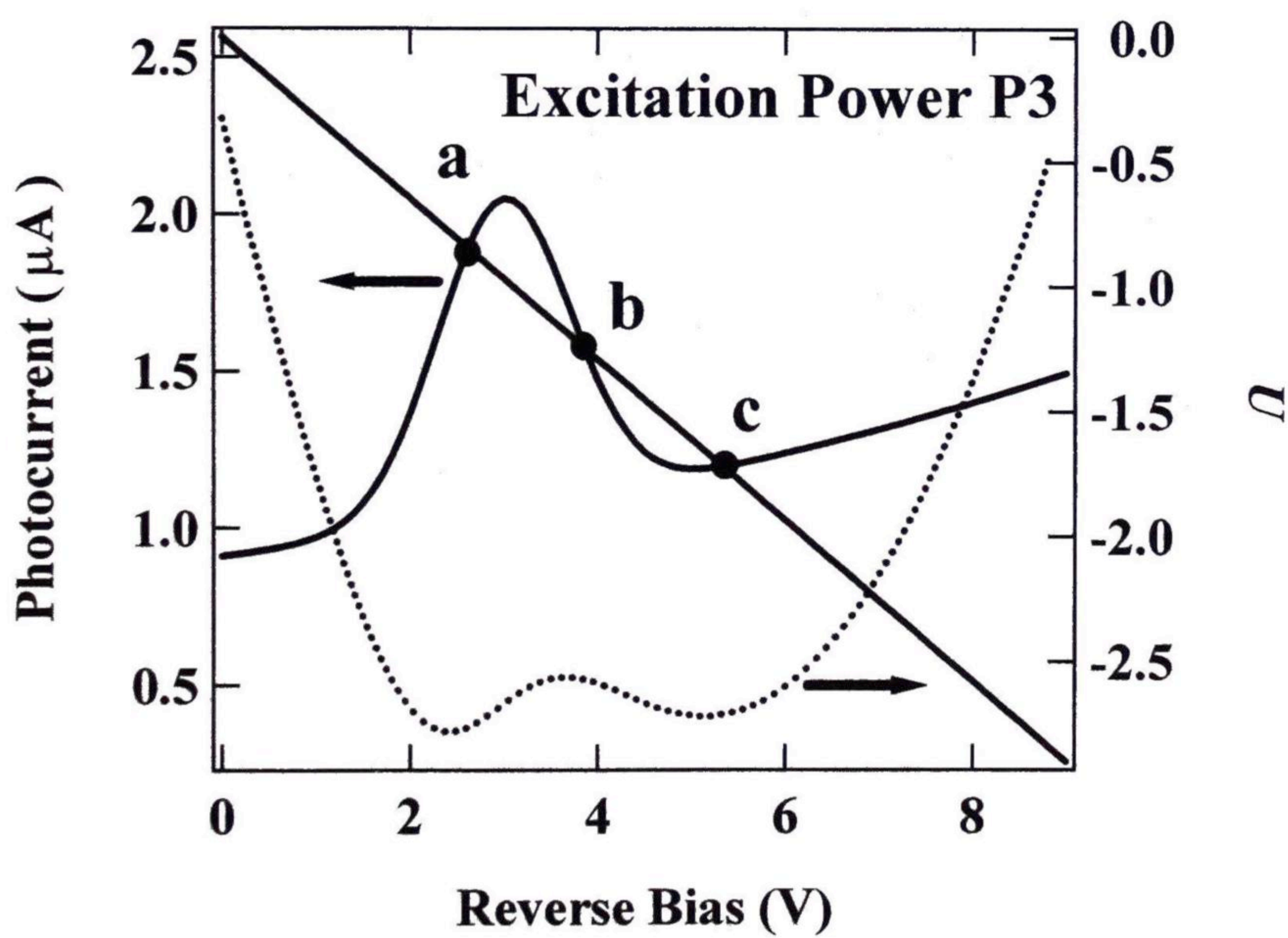


図 3-7 大域安定性解析による動作点の判定。



ポテンシャル関数によって決定されると仮定する。これによって、微分方程式の大域安定性や  $V$  の時間変化は、ポテンシャル関数の形状の解析に帰結する。

式 3-4 をポテンシャル関数  $U$  を用いて、

$$\frac{dV}{dt} = -\frac{\partial U}{\partial V} = -\frac{1}{C} [I_{SL}(V) - I_R(V)] \quad (3-10)$$

のように表す。よって、 $U(V)$  について求めると、

$$U(V) = \frac{1}{C} \int_0^V [I_{SL}(V') - I_R(V')] dV' \quad (3-11)$$

となる。式 3-11 から、ポテンシャル形状が求まり、負荷線との交点の安定性がより視覚的に分かる。動作点の大域安定性による解析結果を図 3-7 に示す。図 3-7 の太線は、図 3-3 における励起光強度  $P3$  での光電流-電圧特性を示しており、点線はポテンシャル関数  $U(V)$  の計算結果である。ポテンシャル関数は、 $a$  と  $c$  において極小値となっており、安定点であることが明確である。 $b$  においては極大値となっていることから、不安定点であることが分かり、 $b$  から少しでも電圧が低くなれば  $a$  へ、少しでも電圧が高くなれば  $c$  へ動作点が移動することが視覚的に理解できる。以上のように、大域安定性解析では、局所安定性解析と比べ、より多くの情報を得られることが分かる。

### 3-2-3 光電流双安定性

図 3-8 は、図 3-3 の光電流-電圧特性と負荷線から、式 3-11 を用いてポテンシャル関数を計算したものを示している。図 3-3 と図 3-8 を対応させながら動作点の励起光強度依存性について議論を進める。励起光強度が  $P1$  の場合、負荷線との交点は 1 つだけであり(点  $O$ )、ポテンシャル関数の極小点も 1 つだけ存在する。 $P2$  に励起光強度を増加させると、高バイアス側の安定点  $A$  に加え、低バイアス側にもう 1 つの安定点  $E$  が存在する。励起光強度を  $P1$  から  $P2$  へと増加させていく過程では、 $O$  から  $A$  へと安定点が移動していくので、もう 1 つの安定点  $E$  へは移らない。更に励起光強度が増加した  $P3$  では、負荷線との交点は 3 つ存在する。しかし、真ん中の交点是不安定点であることが図 3-8 から理解できる。ここでも動作点は高バイアス側に留まっている。励起光強度が

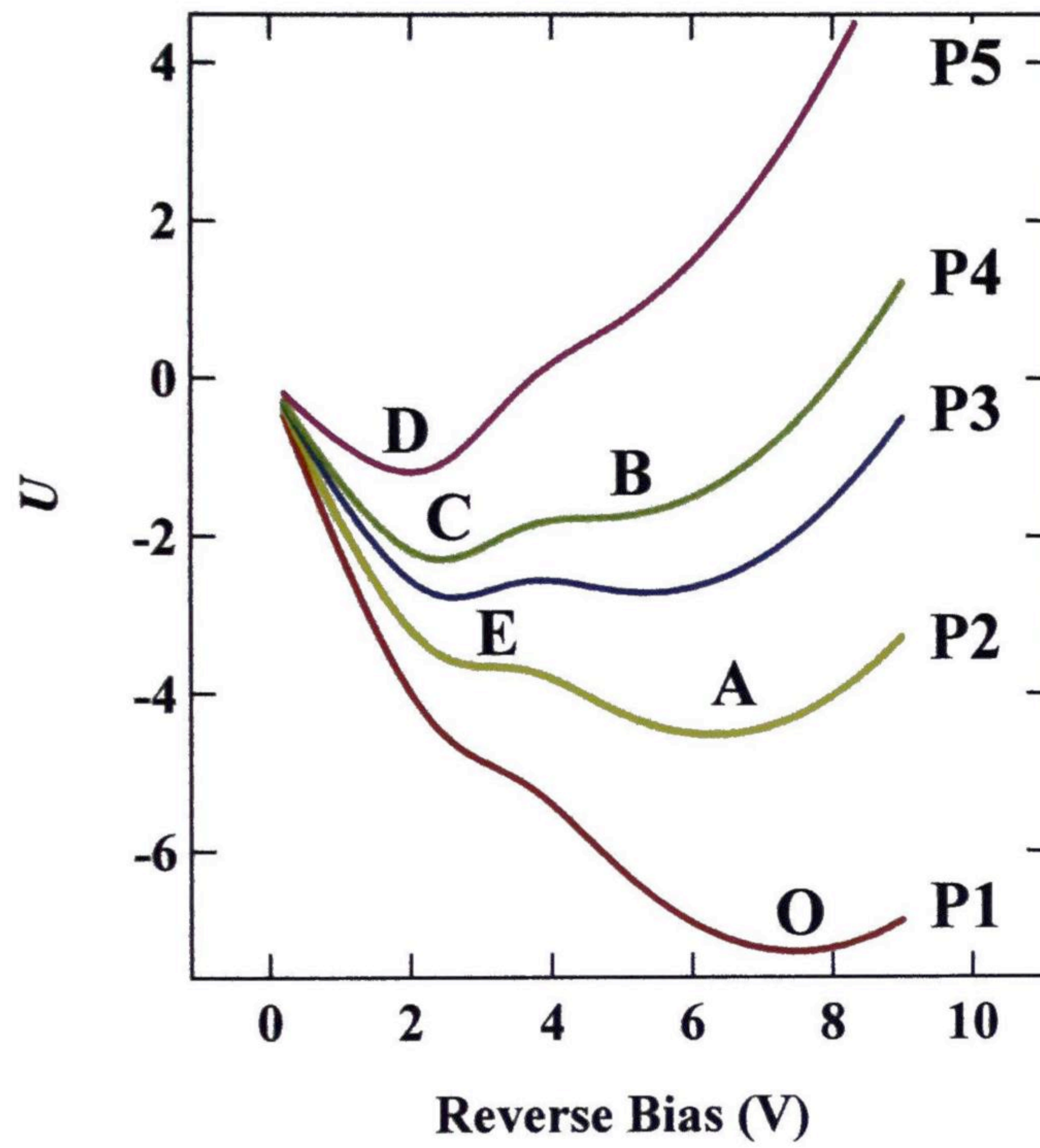


図 3-8 大域安定性解析によるポテンシャル関数の励起光強度依存性 (P1<P2<P3<P4<P5)。

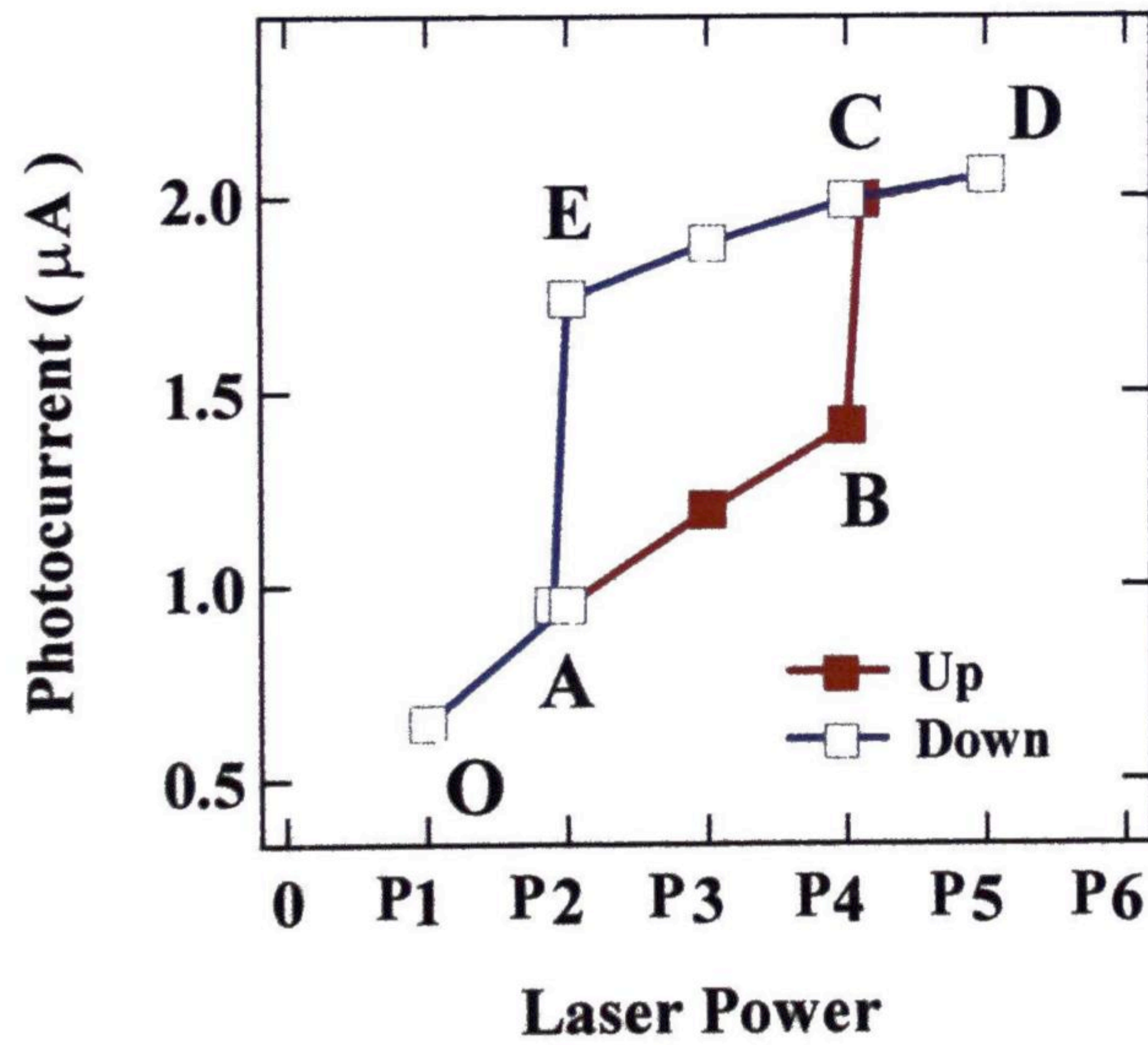


図 3-9 励起光強度を増加させていく過程(■)と減少させていく過程(□)での光電流値のプロット。

P4 に達すると交点は再度 2 つに減少する。ここで、B におけるポテンシャル関数は、ほとんど平坦であることがわかる。P4 からわずかに励起光強度を増加させると、B 近傍で負荷線との交点は消滅する。その結果、超格子の内部電場は大きく減少し、動作点は C 近傍へと移動する。励起光強度が P5 に達すると、動作点は D へと移動する。次に励起光強度を減少させてゆく過程を考える。励起光強度が P5→P3 へと下げていくと、動作点は、D から D→C→E へと連続的に変化する。ここで、励起光強度を P2 からわずかに減少させた場合、E 近傍での負荷線との交点は消滅する。この場合、超格子の内部電場は増大し、動作点は A 近傍へと移動する。以上の過程を、励起光強度に対する動作点の光電流値としてプロットしたものが図 3-9 である。励起光強度を増加させていく過程(■)と下げてゆく過程(□)で、明らかに光電流値のヒステリシスが現れている。この現象を光電流双安定性という。これは、光電流-電圧特性の負性微分抵抗性により、励起光強度 P3 近傍で、回路に 2 つの安定点が存在することに起因する。

### 3-3 試料および実験方法

#### 3-3-1 試料

本研究で用いた試料は、MBE 法を用いて  $n$  型 (001) 基板の上に成長させた 70 周期の GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子を  $p$ - $i$ - $n$  構造に埋め込んだものである。試料の模式図を図 3-10 に示す。 $n$  ( $p$ ) 層は、Si (Be) をドーピングした層厚約 1.0  $\mu\text{m}$  (0.2  $\mu\text{m}$ ) の Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As である。ドーピング濃度は、 $n$  層が約  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、 $p$  層が約  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  である。超格子の内部電場  $F$  は、 $F = (V_b - V_a) / L_1$  の関係式より見積もった。 $p$ - $n$  接合における拡散電位  $V_b$  は 1.5 V である。すべての光学測定において、試料はクライオスタット内で 10 K に冷却した。

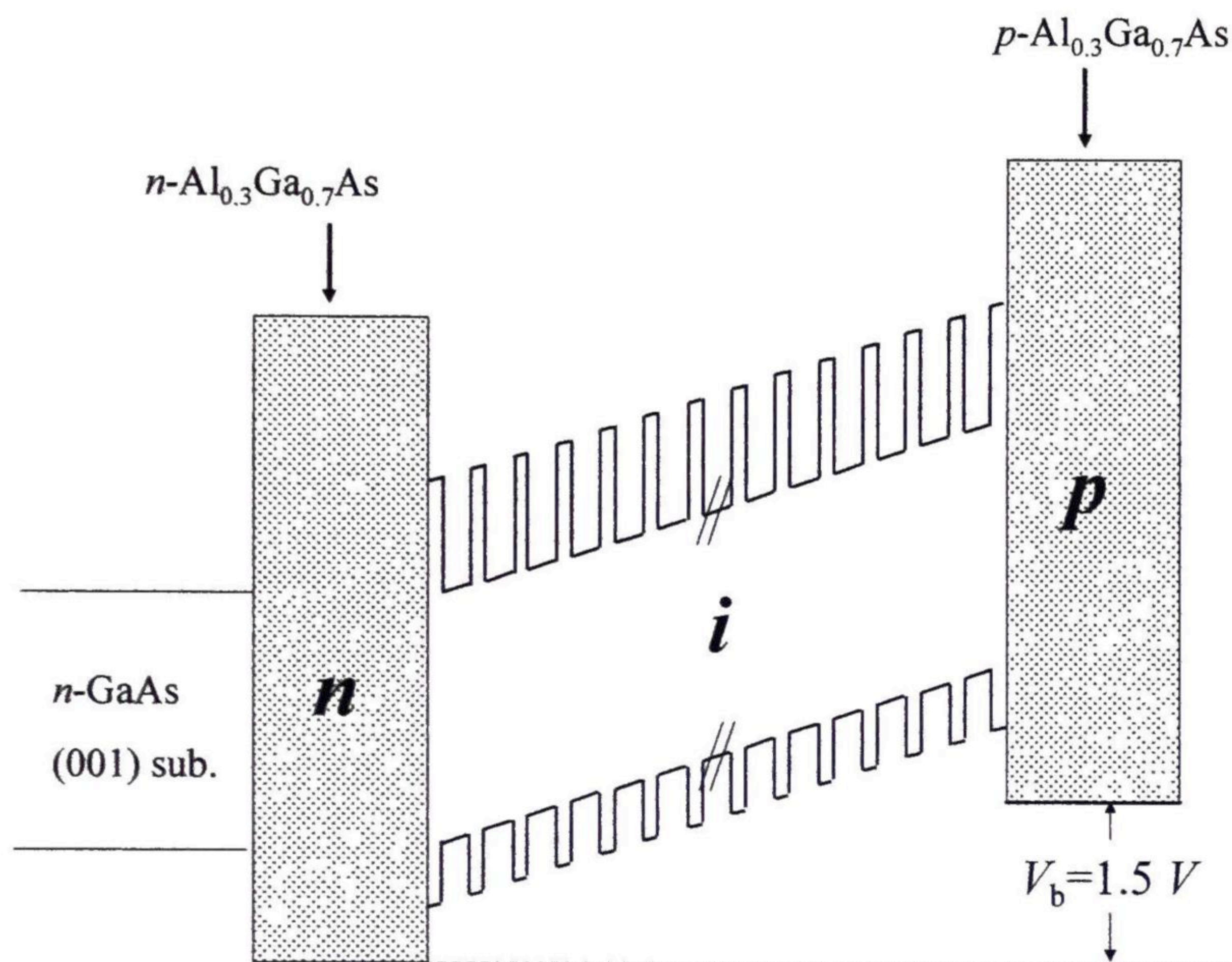


図 3-10 GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子が埋め込まれた *p-i-n* 構造を有する試料の概略図。

### 3-3-2 測定方法

#### (a) 波長選択励起・光電流-電圧特性

光電流-電圧特性の測定系の概略図を図 3-11 に示す。励起光源はレーザーダイオード (Laser Diode; LD) 駆動装置 (旭データシステムズ, ALP-7033CA および ALTH-103C) によって制御された LD (スペクトル半値幅: < 1 meV) を用いた。波長の選択は、LD の温度を制御することで行った。また、レーザーのスペクトルは分光器 (分解能: 0.5 nm) により詳細にモニターした。試料への電圧印加と光電流値の測定は、コンピューター制御されたデジタル・エレクトロメーター (ADVANTEST 製, TR8652) を用いて行った。

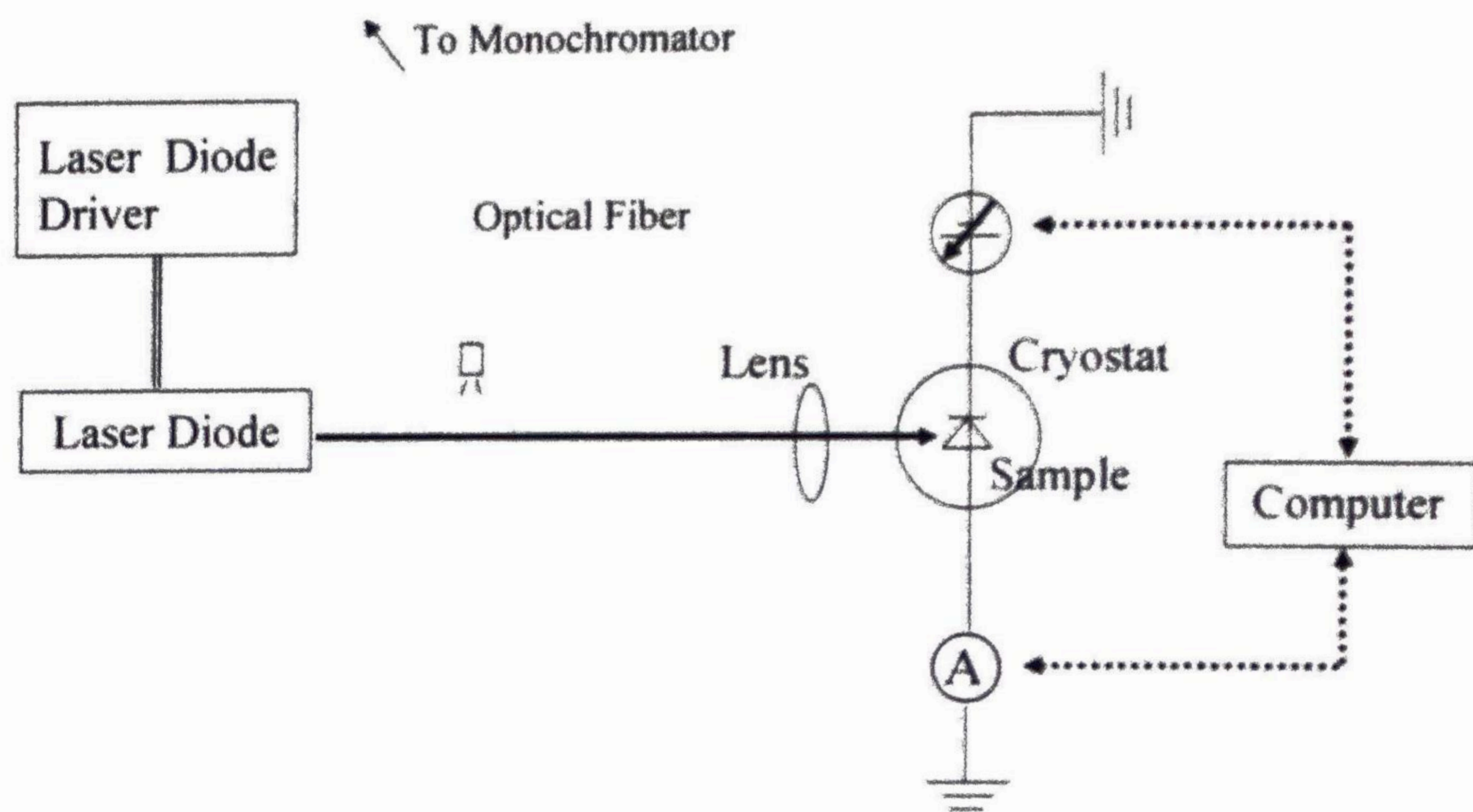


図 3-11 波長選択励起・光電流-電圧特性の測定系の概略図。

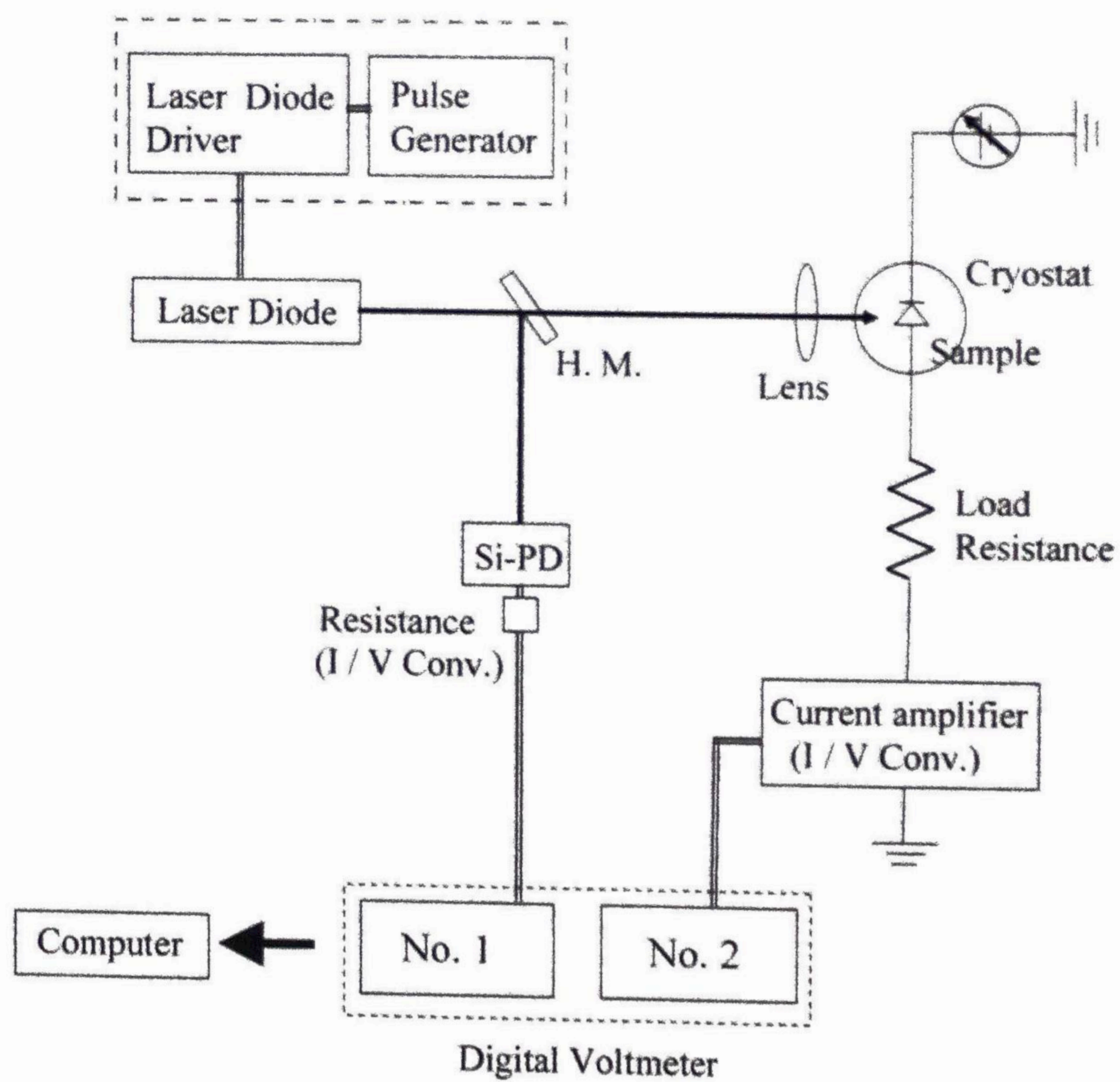


図 3-12 光電流双安定性の測定系の概略図。

## (b) 光電流双安定性の測定

光電流双安定性の測定系の概略図を図 3-12 に示す。励起光源は、光電流-電圧特性の測定で用いた LD 駆動装置をパルスジェネレーターからのアナログ信号で外部制御し、レーザー強度を 0.01 Hz の三角波に変調したものをを用いた。レーザー光はビームスプリッターにより 2 つに分け、一方を励起光強度のリファレンスのために Si フォトダイオードに照射し、もう一方を試料に照射した。試料は、負荷回路に接続し、直流電圧発生器 (ADVANTEST 製, R6144) により定電圧を印加した。試料から生じた光電流値は、低ノイズの高速電流/電圧変換アンプ (Stanford Research Systems, MODEL SR570) により電圧に変換し、Si フォトダイオードから得られた電圧と同時に、それぞれデジタルボルトメータで測定した。測定した 2 つの値は、GPIB 制御でパソコンに同時に読み込んだ。励起光強度の見積もりは、Si フォトダイオードの電圧と、試料の前で測定した光強度の関係に基づいて行った。

## 3-4 実験結果と考察

### 3-4-1 共鳴結合の検出

まず、WS 局在状態間の共鳴結合を明確にするために、Airy 関数を用いた TM 法により計算した電子固有エネルギーの電場強度依存性について述べる。計算モデルとして、半無限の  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  で挟み込んだ 11 周期の  $\text{GaAs}$  (6.9 nm)/ $\text{Al}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{As}$  (4.3 nm) 超格子を用いた。層厚および障壁層である  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  の混晶比は、計算結果を観測した遷移エネルギーに合わせて、作製条件の値からわずかに変化させた。ゼロ電場条件におけるミニバンドエネルギーは、有効質量近似に基づいた KP モデルを用いて計算した。図 3-13(a) は、モデル化した超格子における電子固有エネルギーの電場強度依存性の計算結果である。ここで、図 3-13(a)中の横線は、伝導帯のポテンシャル障壁の高さを表し、 $F=0$  kV/cm での縦線は、KP モデルで計算した  $n=1$  (E1)、 $n=2$  (E2)、 $n=3$  (E3) 電子ミ

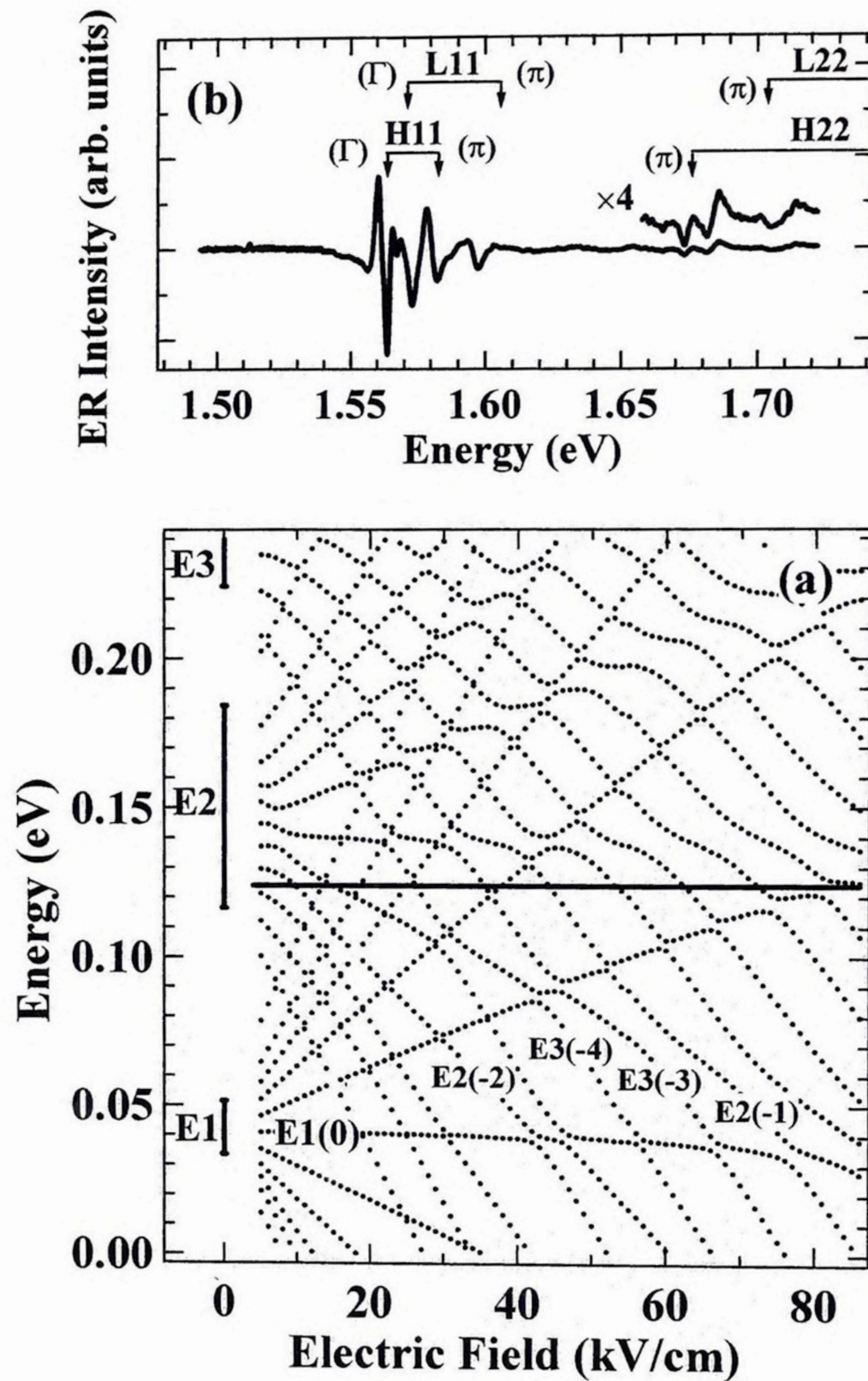


図 3-13 (a) 11 周期の GaAs (6.9 nm)/Al<sub>0.12</sub>Ga<sub>0.88</sub>As (4.3 nm) 超格子を半無限の Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 層で挟み込んだモデルを用いて伝達行列法により計算した電子固有エネルギーの電場強度依存性の計算結果。図中の横線は伝導帯のポテンシャルエネルギーを示しており、 $F=0$  kV/cm での縦線は、クローニツヒ-ペニーモデルで計算した無電場条件での  $n=1$  (E1)、 $n=2$  (E2)、及び、 $n=3$  (E3) ミニバンドのエネルギー幅を表している。(b) GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子における  $F=0$  kV/cm での電場変調反射スペクトルの測定結果。矢印は、クローニツヒ-ペニーモデルにより計算した無電場条件での H11、L11、H22、L22 遷移エネルギーを示しており、 $\Gamma$ と $\pi$ は、それぞれミニバンド分散の $\Gamma$ 点 ( $k_z=0$ ) と $\pi$ 点 ( $k_z=\pi/D$ ) での光学遷移を意味している。

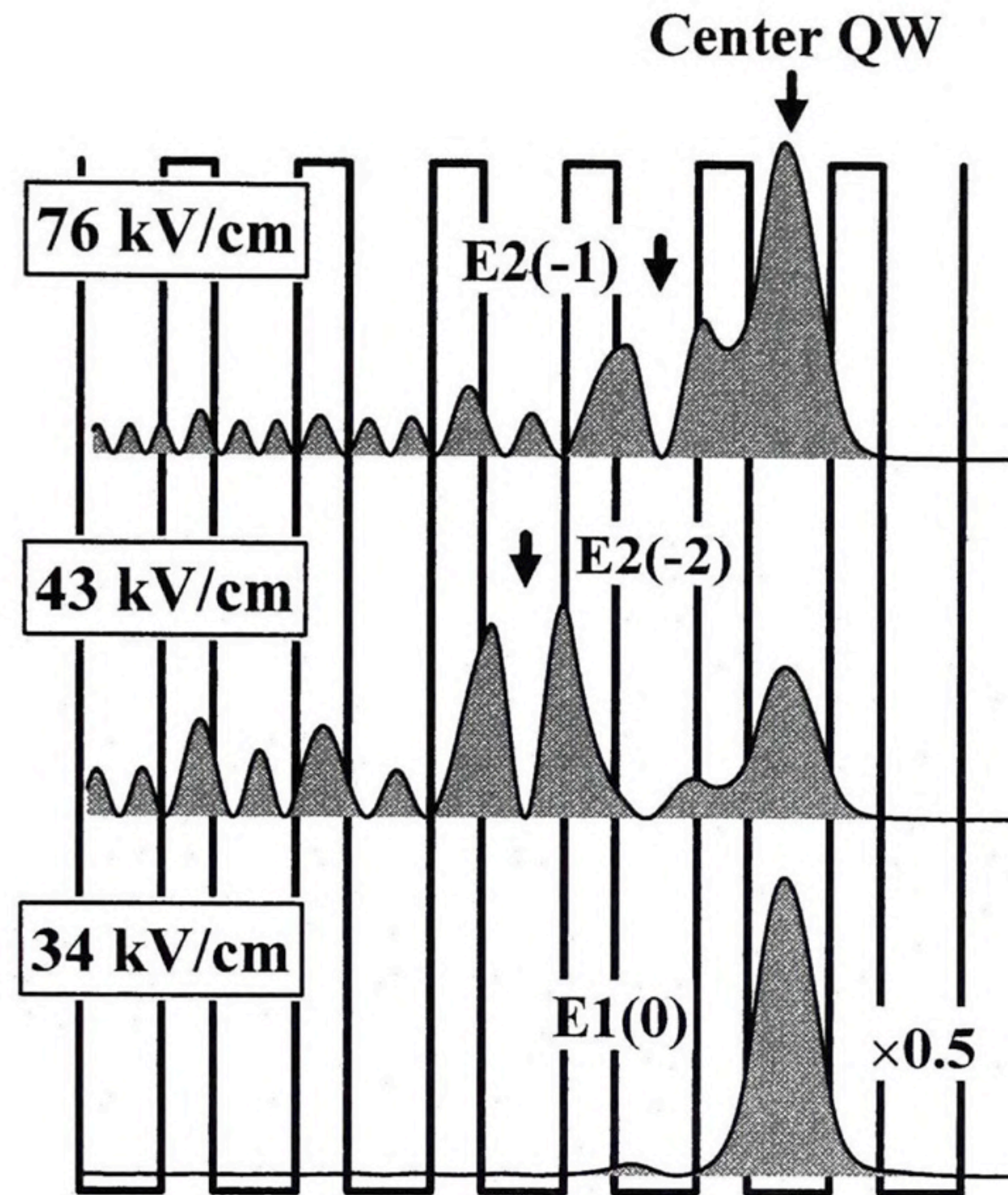


図 3-14 モデル化した超格子における様々な電場強度での電子包絡波動関数確率密度の計算結果。図中の E1 と E2 は、それぞれ  $n=1$  と  $n=2$  電子状態を表しており、括弧内の数字は、基準量子井戸をゼロとした超格子周期単位での井戸の指数。

ニバンドのエネルギーを示している。図 3-13(a)から、 $n \geq 2$  の電子ミニバンドは、ポテンシャル障壁上に位置していることがわかる[32,54,55]。図中の丸括弧内の数字  $m$  は、モデル化した超格子における中心量子井戸から  $m$  周期離れた量子井戸に属する電子状態の固有エネルギーを示している。図 3-13(a)から、異なる WS 局在状態間の様々な共鳴結合が、反交差現象として明確に現れていることがわかる。正孔状態の固有エネルギーの電場強度依存性は、低いポテンシャル障壁に起因して、非常に複雑化しているため、本研究では正孔状態間の共鳴結合を考慮することができない。しかしながら、正孔状態間の共鳴結合は、本研究で共鳴結合を議論する電場領域よりも低電場 ( $\sim 20$  kV/cm) で主に生じるために、解析に影響はない。図 3-13(b)は、 $F=0$  kV/cm において測定した ER スペクトルを示している。図中の  $Hn_e n_h (Ln_e n_h)$  の表記において、H は重い正孔 (HH) 励



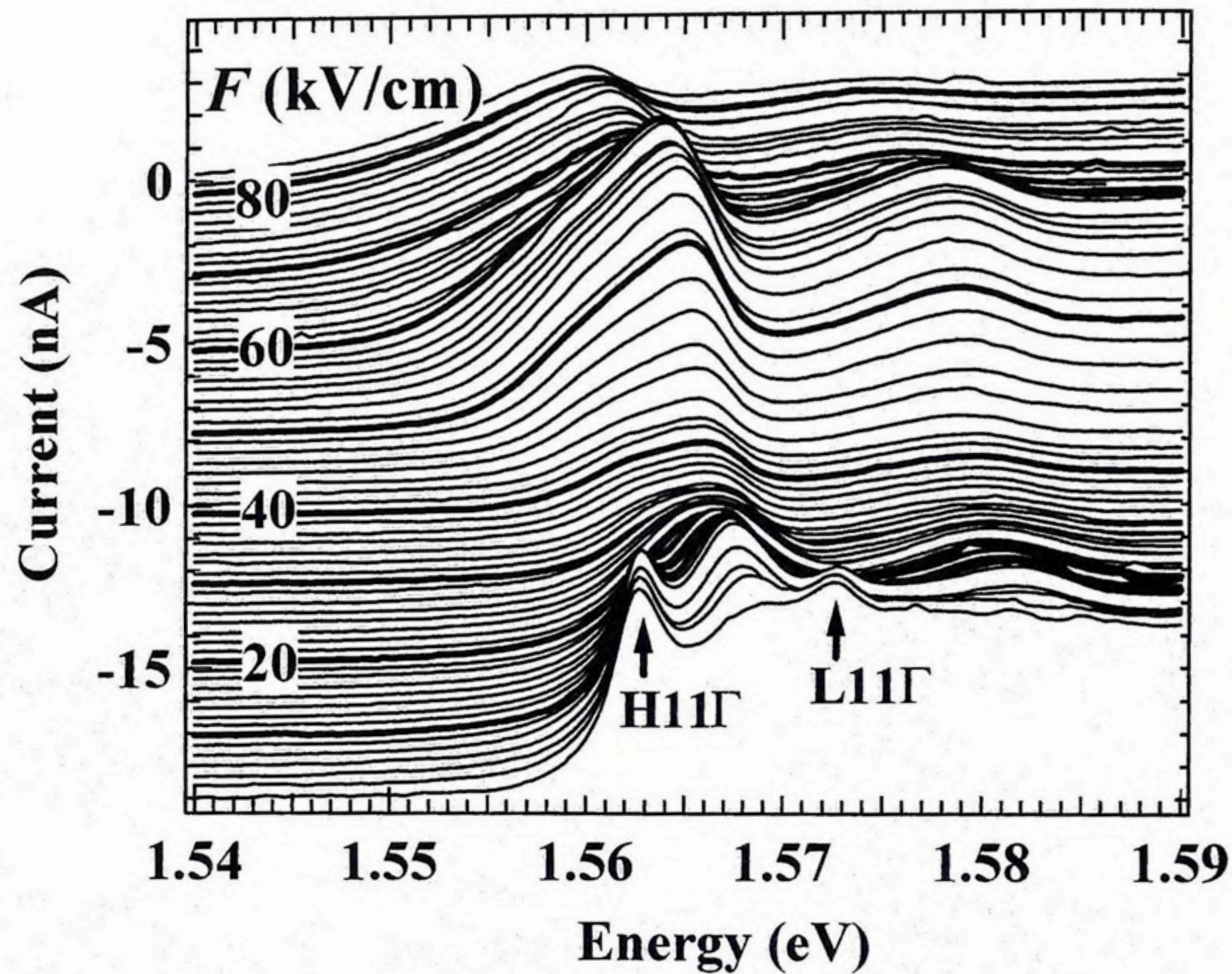


図 3-15 GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子における光電流スペクトルの電場強度依存性の測定結果。それぞれの光電流スペクトルは、形状を明確にするために、0.3 nA のオフセット電流を加えている。H11 $\Gamma$ と L11 $\Gamma$ で示された 2 つのピークは、それぞれミニバンドの $\Gamma$ 点における H11 励起子、及び、L11 励起子遷移を示している。

起子、L は軽い正孔 (LH) 励起子、 $n_e(n_h)$  は電子 (正孔) 状態の量子数を表している。また、 $\Gamma$  と  $\pi$  は、それぞれミニバンド分散の  $\Gamma$  点 ( $k_z=0$ ) と  $\pi$  点 ( $k_z=\pi/D$ ) での光学遷移を意味し、矢印はその計算結果である。ER スペクトルから、ポテンシャル障壁上にもミニバンドが形成されていることが明確に観測される。

図 3-14 は、様々な電場強度で計算した E1(0) 状態の包絡波動関数の確率密度を示している。43 kV/cm および 76 kV/cm の電場強度は、それぞれ E1(0)-E2(-2) 共鳴、および、E1(0)-E2(-1) 共鳴が生じる条件である。図 3-14 から、エネルギー共鳴条件における包絡波動関数の共鳴結合が明確に現れている。すなわち、包絡波動関数は  $n=1$  と  $n=2$  の両方の波動関数の特徴を備えている。また、非共鳴条件の場合と比較して、包絡波動関数は非局在化していることがわかる。量子井戸系における光学遷移の遷移確率は、電子・正

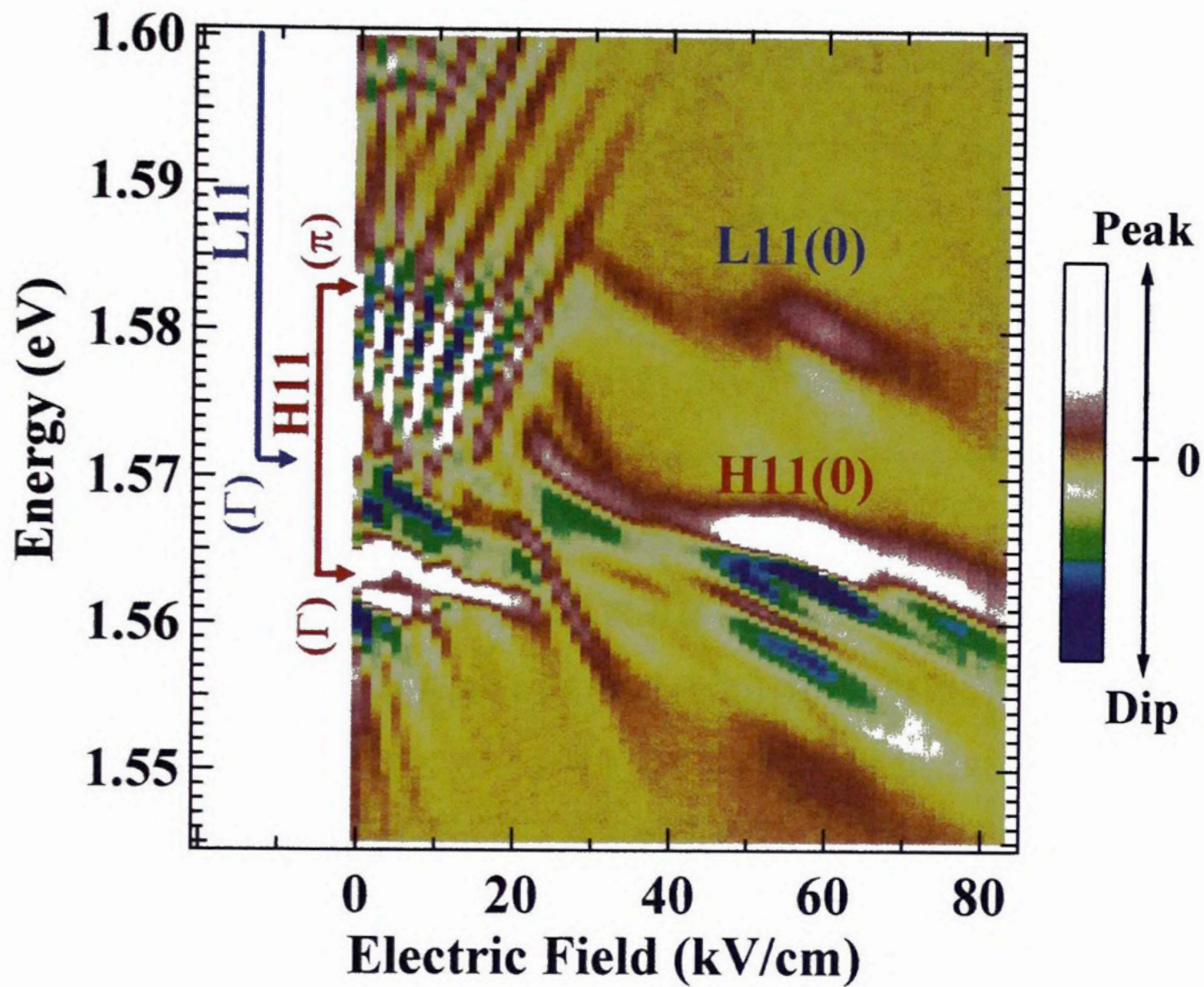


図 3-16 GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子における電場変調反射スペクトルの電場強度依存性についてのイメージ図。電場変調反射信号の強度は、右側にカラースケールで示している。F<0 kV/cm に示した矢印は、クローニツヒ-ペニーモデルにより計算したミニバンドのΓ点およびπ点での H11 および L11 遷移エネルギーを示している。

孔包絡波動関数の重なりを反映することから、共鳴結合条件において、光学遷移確率が大きく変化することが予測される。

図 3-15 は、光電流スペクトルの電場強度依存性の測定結果を示している。最低電場強度 (~3 kV/cm) において、H11Γと L11Γで示された 2 つのピークは、それぞれミニバンドのΓ点における H11 励起子、及び、L11 励起子遷移を示している。電場強度の増加に伴って、1.568 eV と 1.582 eV 付近に、新たなピーク構造が観測される。これらのピークは、WS 局在条件での H11(0)遷移及び L11(0)遷移に起因する (括弧内の数字はシュタルク階段指数)。図 3-15 から、H11(0)遷移及び L11(0)遷移の光電流強度は、電場強度に

対して非常に大きく変化していることがわかる。具体的に述べると、光電流強度は 40 kV/cm 近傍で極小値をとり、60 kV/cm 近傍で極大値をとる振る舞いを示す。電場強度の増加による遷移エネルギーの低エネルギーシフトは、QCSE[35]に起因するものである。

観測された光電流強度の電場強度依存性の起源を明らかにするために、光電流スペクトルと同時に測定した ER スペクトルに注目した。図 3-16 は、ER スペクトルの電場強度依存性をイメージマップにまとめたものである。ER 信号の強度は、右側にカラースケールで示している。10 kV/cm 近傍で観測されている振動構造は、ミニバンドに起因した FK 振動[52]によるものである。電場強度の増加に伴って、包絡波動関数の局在化を反映して FK 振動は消滅し、H11(0)遷移及び L11(0)遷移に起因した ER 信号が、それぞれ、1.568 eV と 1.582 eV 付近に現れる。注目すべきことに、これらの信号強度の電場強度依存性は、光電流スペクトルから観測されたものと同様な振る舞いをしている。また、42 kV/cm と 75 kV/cm 近傍では、ER 信号の反交差現象が観測されている。50~70 kV/cm 近傍で観測されている H11(0)遷移の低エネルギー側の ER 信号は、界面テラスに起因するものである。共鳴結合と光電流強度の変化との関係を以下で議論する。

図 3-13(a)に示した TM 計算結果に注目すると、E1(0)-E2(-2)及び E1(0)-E2(-1)の E1-E2 結合が、それぞれ 43 kV/cm と 76 kV/cm で生じることが期待される。更に、E1(0)-E3(-4)及び E1(0)-E3(-3)の E1-E3 結合も期待される。しかしながら、E3 状態はポテンシャル障壁よりもはるかに高エネルギー側に位置しているために[図 3-13(a)を参照]、そのエネルギーには不確定性が大きい。更に、E1(0)-E3(-4)及び E1(0)-E3(-3)共鳴の結合強度は、距離が離れた量子井戸間での共鳴であるために、E1-E2 のものに比べて相対的に弱い。それ故、ここでは、E1-E2 結合のみを考慮する。E1-E2 結合は、E1(0)状態の包絡波動関数の結合量子井戸間での非局在化、および波動関数混成による結合・反結合状態の形成を引き起こす。そのため、H11(0)及び L11(0)遷移の遷移確率は大きく低下する。光電流スペクトルの測定において、プローブ光のエネルギー分解能 ( $\sim 1$  meV) は、図 3-16 に示されている結合及び反結合状態間の分裂エネルギーよりも小さい。このことは、光電流強度が共鳴結合に敏感に影響を受けることを意味する。つまり、共鳴結合条件において、H11(0)及び L11(0)遷移の光電流強度が遷移確率の低下を反映して減少する。以上の理由

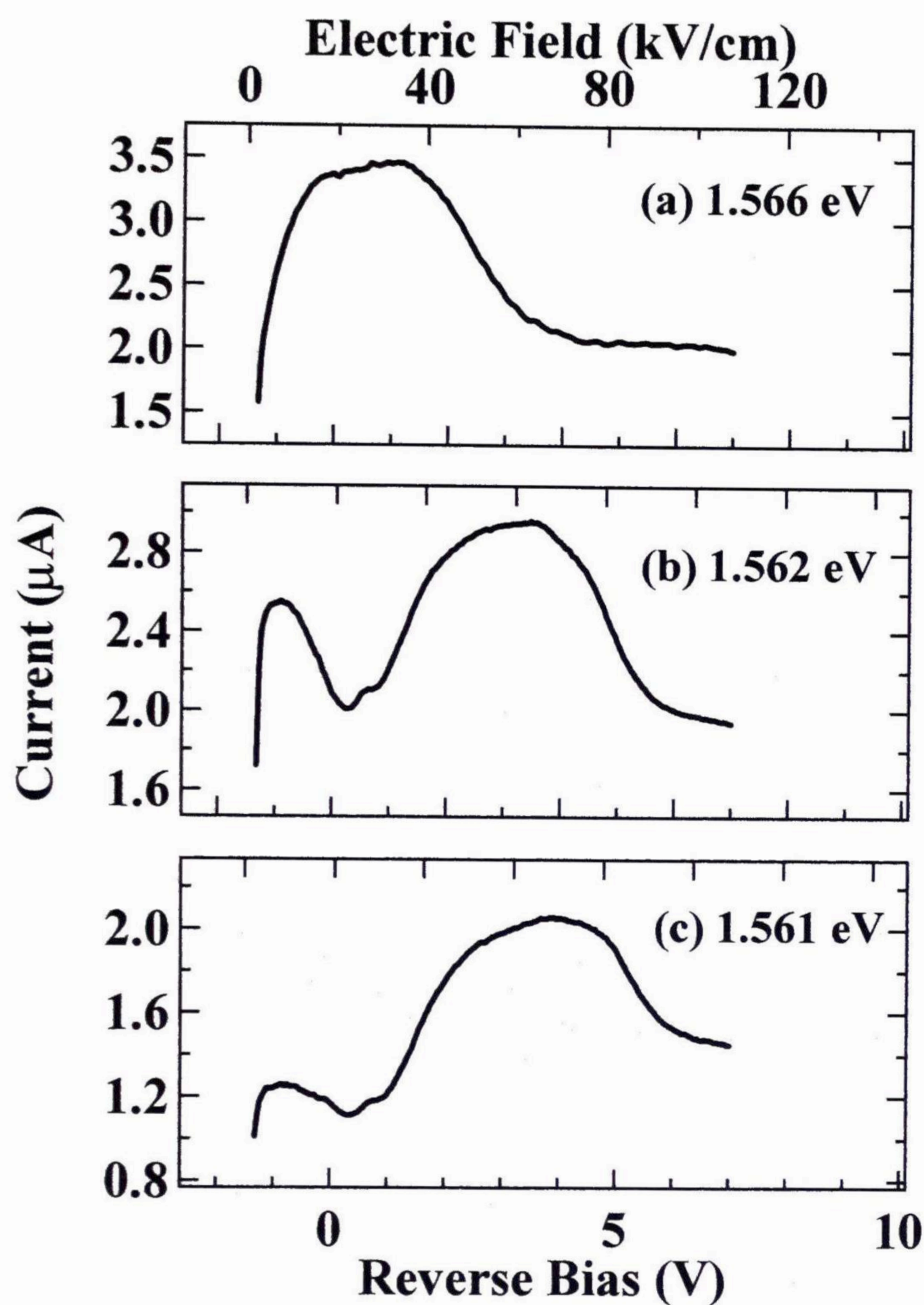


図 3-17 GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子における異なる励起光エネルギーでの光電流-電圧特性の測定結果。入射光強度は、約 100 μW (~60 mW/cm<sup>2</sup>) に固定した。

から、図 3-15 に示されている光電流強度の電場強度依存性を説明できる。つまり、H11(0) 及び L11(0)遷移に起因する光電流強度は、E1-E2 共鳴結合に起因して、40 kV/cm と 70 kV/cm 付近で減少する。言い換えると、50~60 kV/cm の電場領域での H11(0)及び L11(0) 遷移の光電流強度の増加は、光学遷移が共鳴結合の影響を受けないことを反映している。

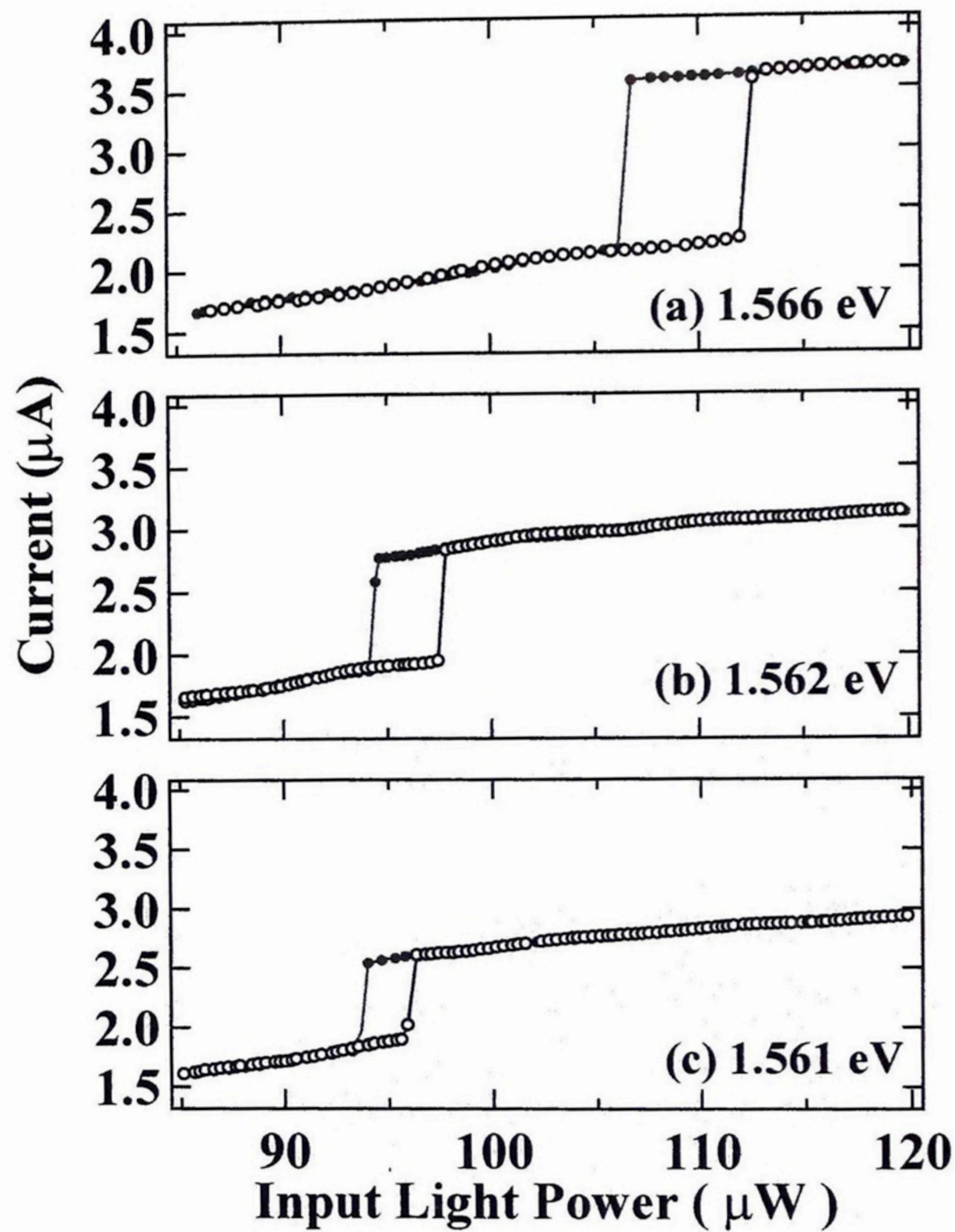


図 3-18 GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子における異なる励起光エネルギーで測定した光電流値の入射光強度依存性の測定結果。超格子は抵抗 (4.0 MΩ) と接続され、回路全体に、逆バイアス電圧 (14.0 V) が印加されている。白丸 (黒丸) は、励起光強度を増加 (減少) していく過程での光電流値を示している。

### 3-4-2 共鳴結合条件での光電流双安定性

図 3-15 及び図 3-16 から、励起光エネルギーを H11(0)遷移、または、L11(0)遷移のエネルギーへと調節することで、波動関数共鳴結合により光電流-電圧特性に負性微分抵抗性が現れることが期待できる。図 3-17 は、H11(0)遷移エネルギー近傍の励起光エネルギーで測定した光電流-電圧特性である。励起光強度は約 100 μW に固定した (励起密

度は $\sim 60 \text{ mW/cm}^2$ )。様々な励起光強度で測定した光電流-電圧特性から、 $100 \mu\text{W}$  程度の励起光強度では、光生成キャリアによる内部電場のクーロン遮蔽は無視できることを確認している。図 3-17 から明らかなように、すべての光電流-電圧特性において、上述した共鳴結合に起因する負性微分抵抗性が観測されている。即ち、 $1.566 \text{ eV}$  での負性微分抵抗性は、 $E1(0)$ - $E2(-2)$ 結合に起因するものであり、 $1.561 \text{ eV}$  および  $1.562 \text{ eV}$  での負性微分抵抗性は、電場強度依存性から、 $E1(0)$ - $E2(-1)$ 結合に起因するものである。尚、図 3-17(b) の  $6 \text{ kV/cm}$  近傍でのピーク構造は、 $1.562 \text{ eV}$  の励起光エネルギーが、ミニバンド状態での  $H11\Gamma$  遷移エネルギーに相当することから、ミニバンドから  $WS$  局在状態への移行過程によるものであると考えられる。

上記の負性微分抵抗性に由来する SEED 動作を実現するために、超格子に負荷抵抗 ( $4.0 \text{ M}\Omega$ ) を接続し、逆バイアス電圧 ( $14.0 \text{ V}$ ) を印加した (R-SEED)。抵抗値と印加電圧の値は、大域安定性理論に基づく光電流-電圧特性と負荷線との関係から決定した。図 3-18 は、SEED 回路における光電流強度の入射光強度依存性を示している。入射光エネルギーは、光電流-電圧特性の測定で用いたものと同じである。図中の白丸及び黒丸は、それぞれ入射光強度を増加させていく過程と減少させていく過程での光電流強度を示している。すべての励起光エネルギーにおいて、光電流双安定性が明確に実現されている。入射光エネルギー  $1.566 \text{ eV}$  での光電流双安定性は、 $1.561 \text{ eV}$  と  $1.562 \text{ eV}$  でのものと比べてスイッチング比が高い。これは、図 3-17 に示されている様に、共鳴結合条件での光電流強度の変化量が、 $1.566 \text{ eV}$  の励起光エネルギーにおいて最も大きいことを反映している。 $1.566 \text{ eV}$  での光電流双安定性動作の on/off 比は、約 1.6 であり、この値はシュタルク階段遷移エネルギーのシフトを用いた従来の SEED の on/off 比と同程度である[37]。

### 3-5 まとめ

GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子を試料とし、WS 局在状態間の波動関数共鳴結合条件での光電流特性の変化を、SEED の観点から詳細に研究した。ER スペクトルの電場強度依存性から、第2最近接量子井戸、及び、第1最近接量子井戸間での E1-E2 の共鳴結合が遷移エネルギーの反交差現象として明確に検出された。また、共鳴結合条件での遷移確率の低下を反映し、H11(0)および L11(0)遷移に起因する光電流スペクトルの信号強度が顕著に減少することが観測された。H11(0)遷移近傍での励起光エネルギーにおいて測定した光電流-電圧特性から、共鳴結合条件において、光電流-電圧特性に負性微分抵抗性が明確に生じることを確認した。更には、この負性微分抵抗性を用いることで、100 μW 程度の入射光強度に対する SEED の光電流双安定性動作を実現した。

## 第4章 GaAs/AlAs 超格子におけるミニバンド状態 励起子量子ビートからブロッホ振動への 移行過程

### 4-1 はじめに

ブロッホ振動は、超短光パルスで同時に励起された複数の WS 局在状態が波束となって、超格子内をコヒーレントに振動する現象であり、物性および振動数可変 THz 電磁波発生器への応用の両面から、今日まで盛んに研究が行われてきた[19-25]。WS 局在条件において、超格子のミニバンド状態は、 $eFD$  ( $F$  は電場強度、 $D$  は超格子周期) のエネルギー間隔を有する離散的なシュタルク階段状態に分裂し、バンド間シュタルク階段遷移を引き起こす。広いエネルギー幅を有する超短光パルスで、異なるバンド間シュタルク階段遷移をコヒーレントに励起すると、WS 局在状態の重ね合わせから成る非定常波束が生成され、 $v_{\text{BO}}=eFD/h$  の固有振動数で超格子の積層方向をコヒーレントに振動する。これがブロッホ振動であり、その振動数は、最近接量子井戸に属する WS 局在状態間の量子ビートの振動数に一致する。

Dignam らは、ブロッホ振動に関する理論的研究において、波束の時間進展は、ポンプ光パルスで同時に励起される包絡波動関数の密度のウェイトに強く依存するということを予測した[56]。最近接強結合近似モデルに基づくと[57]、WS 局在条件における包絡波動関数の局在性は、電場強度で次第に増大してゆくのではなく、非常に複雑な振る舞いをするのが予測される。この特性に起因したバンド間シュタルク階段遷移の遷移確率の複雑な電場強度依存性が実験的に観測されている[58]。以上の理由から、包絡波動関数の複雑な局在特性は、ブロッホ振動の挙動にも大きな影響を与えることが予測されるが、この様な観点からブロッホ振動について研究した例はこれまでにない。また、



複雑な局在特性は、ミニバンドから WS 局在状態への移行領域において顕著に現れるが、この移行領域におけるブロッホ振動ダイナミクスはほとんど考慮されていない。

本研究では、GaAs/AlAs 超格子を試料とし、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程におけるブロッホ振動ダイナミクスを、時間分解反射型ポンプ-プローブ分光法を駆使し、WS 局在状態の局在性の観点から解明することを目的とした。観測されたコヒーレントダイナミクスは、ミニバンド遷移およびシュタルク階段遷移に対して極めて高感度な ER 分光法による光学遷移エネルギーの電場強度依存性、及び、TM 法により計算した WS 局在状態の局在性に基づいて解析した。超格子の印加電圧を系統的に変化させて行ったポンプ-プローブ分光実験により、ミニバンド励起子の量子ビートからブロッホ振動へのコヒーレントダイナミクスの移行過程が明確に観測された。更には、ミニバンド励起子量子ビートが消滅した (ミニバンド破綻) 直後の電場領域において、包絡波動関数の弱局在性に起因した  $\nu_{2BO}=2eFD/h$  の振動数を有する特異なブロッホ振動が生じることを見出した[45,46]。

## 4-2 最近接強結合近似モデルによるワニエ・シュタルク局在状態の理論計算

一次元周期的結晶における電子状態の電場強度依存性については、単一バンドの最近接強結合近似において、理論的な考察がなされてきた[59]。超格子については Bleuse ら[57]が最初に適用し、その後、WS 局在状態の解釈に広く用いられている。以下にそのモデルについて説明する。

$2N+1$  個の量子井戸が存在する超格子において、無電場条件での電子・正孔包絡波動関数は、

$$\phi_{k_z}(z) = \frac{1}{\sqrt{2N+1}} \sum_{m=-N}^N \exp(ik_z mD) f(z - mD) \quad (4-1)$$

$$k_z = j \frac{\pi}{ND} \quad (j = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm N) \quad (4-2)$$

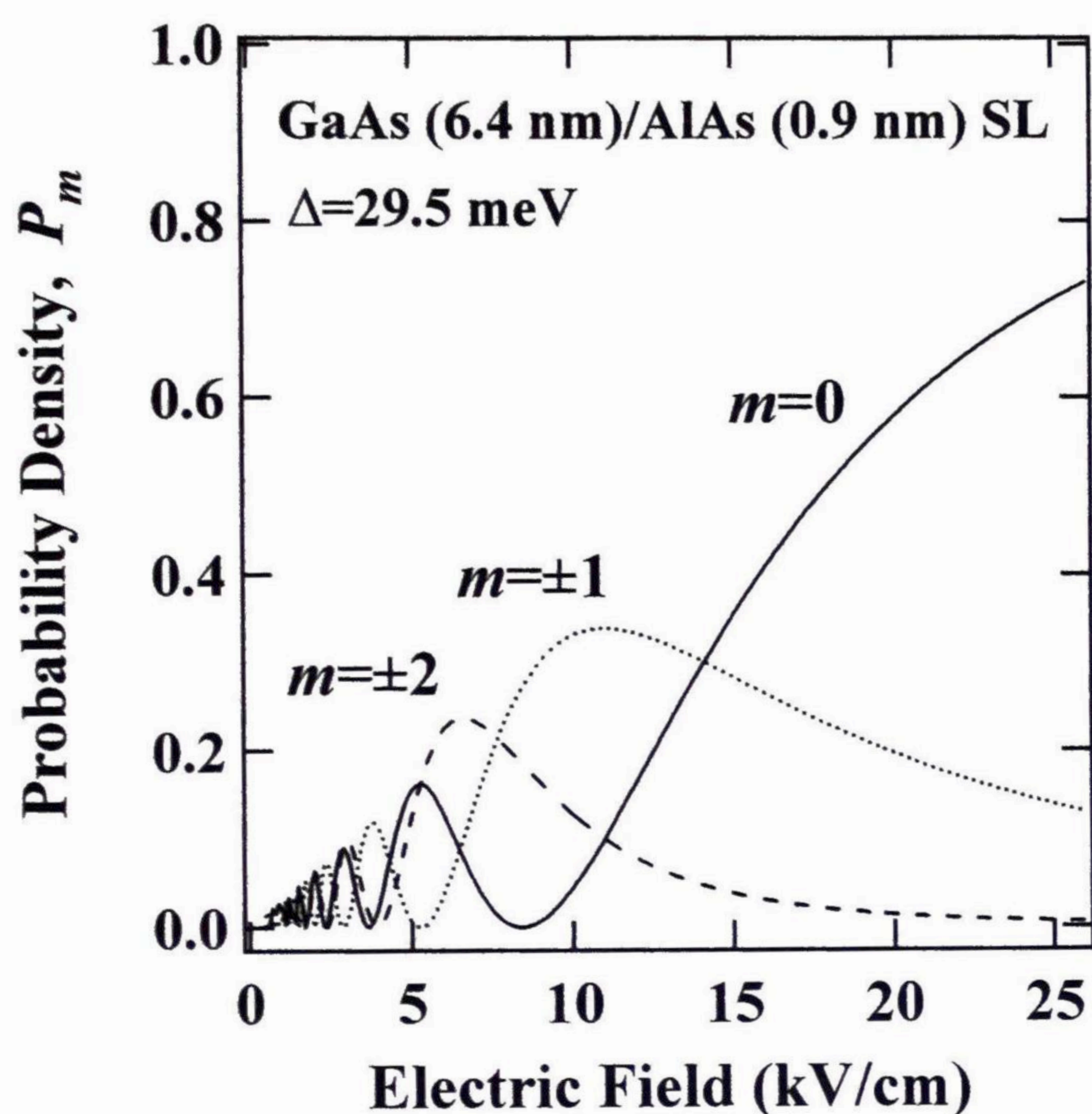


図 4-1 強結合近似モデルで計算した GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における  $m$  周期離れた量子井戸における電子包絡波動関数の確率密度 ( $P_m$ )。図中の  $\Delta$  は、電子ミニバンド幅の値を表す。

で表される。ここで、 $f(z - mD)$  は、孤立量子井戸における包絡波動関数を示している。この場合のエネルギー固有状態は、

$$\varepsilon(k_z) = \varepsilon_0 - \frac{\Delta}{2} \cos(k_z D) \quad (4-3)$$

で与えられる。ここで、 $\varepsilon_0$  は孤立量子井戸における固有エネルギー、 $\Delta$  はミニバンド幅である。電場が印加されると、ミニバンドはシュタルク階段状態に分裂する。

$$\varepsilon_p = \varepsilon_0 + peFD \quad (p = 0, \pm 1, \pm 2 \dots, \pm N) \quad (4-4)$$

WS 局在状態の電子・正孔包絡波動関数は、

$$\chi_p(z) = \sum_{m=-N}^N J_{m-p}\left(\frac{L}{D}\right) f(z - mD) \quad (4-5a)$$

$$L = \frac{\Delta}{2eF} \quad (4-5b)$$

で表される。ここで、 $J_{m-p}$ は、 $(m-p)$ 次のベッセル関数である。式4-5bの $L$ は一般に局在長と呼ばれている[16]。局在の基準となっている量子井戸から、 $m$ 周期離れた量子井戸における波動関数の確率密度は、

$$P_m = \left| J_m\left(\frac{L}{D}\right) \right|^2 \quad (4-6)$$

で与えられる。

図4-1は、式4-6を用いて計算した、GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における電子状態の包絡波動関数の確率密度 ( $P_m$ ) の電場強度依存性を計算したものである。図から明らかなように、包絡波動関数の確率密度が、電場に対して複雑な振動プロファイルを示していることがわかる。またこの複雑な振る舞いは、低電場領域において特に顕著である。高電場領域における高い $P_0$ の値は、包絡波動関数が中心量子井戸に強く局在することを反映している。

### 4-3 ブロツホ振動

静電場が存在する超格子における波束のブロツホ振動を説明するためには、加速理論に基づいた半古典的な取り扱いと、WS局在状態間の量子干渉に基づいた量子力学的な取り扱いが一般に用いられている[25,56]。前節で説明した強結合近似モデルに基づいて、これらの概要について簡単に説明する。

#### (a) 半古典的アプローチ (加速理論)

散乱過程を無視した場合、積層方向の静電場は、電場方向のブロツホ電子の波数を

$$k_z(t) = k_0 + \frac{eF}{\hbar} t \quad (4-7)$$

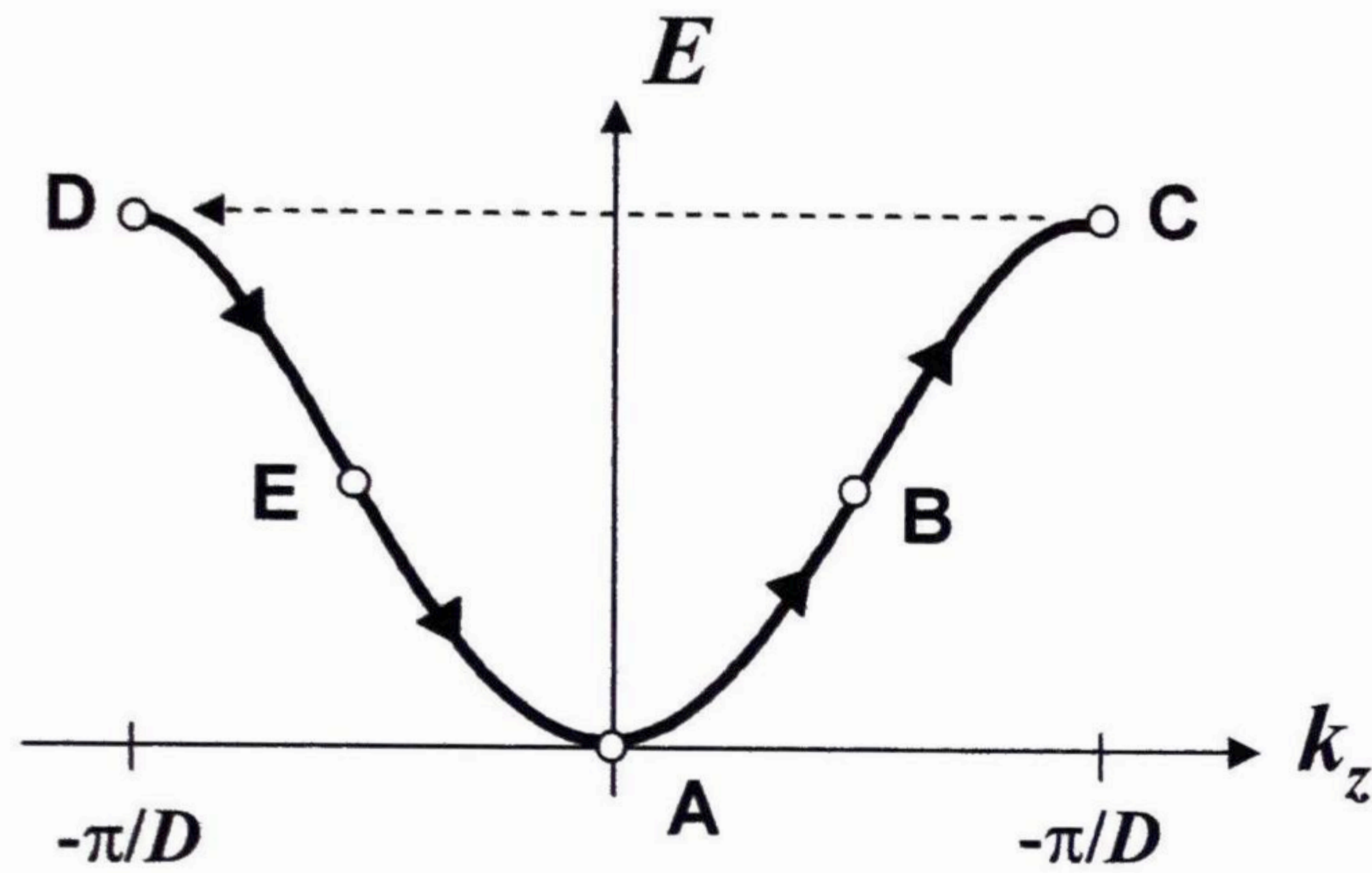


図 4-2 ミニバンド分散における電子運動量の時間変化についての模式図。

のように変化させる。図 4-2 は、ミニバンド分散における電子の時間進展の模式図を表している。無電場条件において、電子は点 A にいるとする。電場が印加されると、電子は、式 4-7 に従って、点 B の方向に向かって変化してゆく。点 C のミニブリルアンゾーンの境界 ( $\pi/D$ ) に到達した際に、電子は  $\pi/D$  (点 C) から  $-\pi/D$  (点 D) へとブラッグ反射される。点 D に反射された電子は、ミニブリルアンゾーン内を点 E の方向へと移動してゆく。以上の様に、静電場におかれた電子は、ミニバンド分散上を周期運動することになり、このことは、電子が静電場下において、速度を周期的に反転し、実空間のある限られた範囲を往復運動し続けることを意味する。実空間における電子の速度  $v_R$  は、式 4-3 のミニバンド分散を用いて、

$$v_R = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon}{\partial k} = \frac{D\Delta}{2\hbar} \sin(kD) = \frac{D\Delta}{2\hbar} \sin\left(\frac{eFD}{\hbar}t\right) \quad (4-8)$$

で与えられる。また、位置の時間発展  $z(t)$  は、

$$z(t) = z_0 - L \cos\left(\frac{eFD}{\hbar}t\right) \quad (4-9)$$

となる。式 4-9 より、電子は  $v_{BO} = eFD/\hbar$  の振動数で実空間を振動し、その振幅は  $L = \Delta/2eF$  で与えられることが分かる。

上記のブロッホ振動の解釈は、直感的に非常に理解しやすい。しかしながら、このモデルでは、静電場が存在してもミニバンドが保持されていることを仮定としており、本研究で対象とした WS 局在の描像は考慮されていない。WS 局在を考慮したブロッホ振動の厳密な解釈は、以下に示すような WS 局在状態間の量子干渉により説明される。

### (b) 量子力学的アプローチ (WS 局在状態間の量子干渉)

最近接強結合近似において、電場下での超格子の固有エネルギー、及び、固有関数は、式 4-4 および式 4-5 で与えられる。広いエネルギー幅を有する超短光パルスで異なるシュタルク階段遷移を同時励起した場合、生成される非定常波束は、ウェイトを  $C_p$  とした包絡波動関数の重ね合わせにより、

$$\psi(z, t) = \sum_p C_p \chi_p(z) \exp(-i \frac{peFD}{\hbar} t) \quad (4-10)$$

と表される。式 4-10 を用いて位置の期待値を求めると、

$$\begin{aligned} \langle z \rangle &= \int \psi^* z \psi dz \\ &= \int \sum_p C_p^* e^{i \frac{peFD}{\hbar} t} \sum_m J_{m-p}(\frac{L}{D}) f^e(z - mD) z \sum_{p'} C_{p'} e^{-i \frac{p'eFD}{\hbar} t} \sum_{m'} J_{m'-p'}(\frac{L}{D}) f^e(z - m'D) dz \\ &= \sum_p \sum_{p'} \sum_m C_p^* C_{p'} e^{i \frac{(p-p')eFD}{\hbar} t} J_{m-p}(\frac{L}{D}) J_{m-p'}(\frac{L}{D}) \int f^e(z - mD) z f^e(z - mD) dz \\ &= \sum_p \sum_{p'} \sum_m C_p^* C_{p'} e^{i \frac{(p-p')eFD}{\hbar} t} J_{m-p}(\frac{L}{D}) J_{m-p'}(\frac{L}{D}) mD \end{aligned} \quad (4-11)$$

となる。ベッセル関数の公式

$$2\nu J_\nu(\theta) = \theta \{J_{\nu-1}(\theta) + J_{\nu+1}(\theta)\} \quad (4-12)$$

$$\sum_{k=-\infty}^{\infty} \{J_{\nu+k}(\theta) J_k(\theta)\} = J_\nu(0) \quad (4-13)$$

を用いて式 4-11 を整理すると、

$$\langle z \rangle = D \sum_p C_p^2 p + L \sum_p C_{p-1} C_p \cos\left(\frac{eFD}{\hbar} t\right) \quad (4-14)$$

が得られる。式 4-14 の右辺第 2 項は、ブロッホ振動の振幅と振動数を表しており、振幅は重ね合わされる包絡波動関数のウェイト  $C_p$  に依存することがわかる。Dignam らは、バンド間シュタルク階段遷移の遷移確率、および、超短光パルスの強度のスペクトル分布を考慮して、ウェイト  $C_p$  を決定し、様々な励起条件におけるブロッホ振動の波束ダイナミクス特性を理論的に研究した[56]。

## 4-4 実験方法

### 4-4-1 試料

試料は、MBE 法を用いて作製した 100 周期の GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子を *p-i-n* 構造に埋め込んだものである。試料構造の概略図は、図 2-2 に示している。すべての光学測定において、試料はクライオスタット内で 10 K に冷却した。

### 4-4-2 時間分解反射型ポンプ-プローブ分光法

本研究では、量子ビートとブロッホ振動の観測を、超高速コヒーレント現象の観測に一般に良く用いられている時間分解反射型ポンプ-プローブ分光法により行った。図 4-3 は、本研究で用いた反射型ポンプ-プローブ分光システムの模式図を示している。レーザー光源には、繰り返し周期 80 MHz、パルス幅 70 fs 程度のモード同期 Ti:sapphire パルスレーザーを用いた。パルスレーザーシステムは、半導体レーザー励起 Nd:YVO<sub>4</sub> レーザー (Spectra Physics 社製: Millennia Vs) と Ti:sapphire レーザーユニット (Spectra Physics 社製: Broadband Tsunami) により構成されている。レーザーユニットから出力された光は、プリズム対により群速度分散補償をかけた後、ビームスプリッターにより、約 10:1

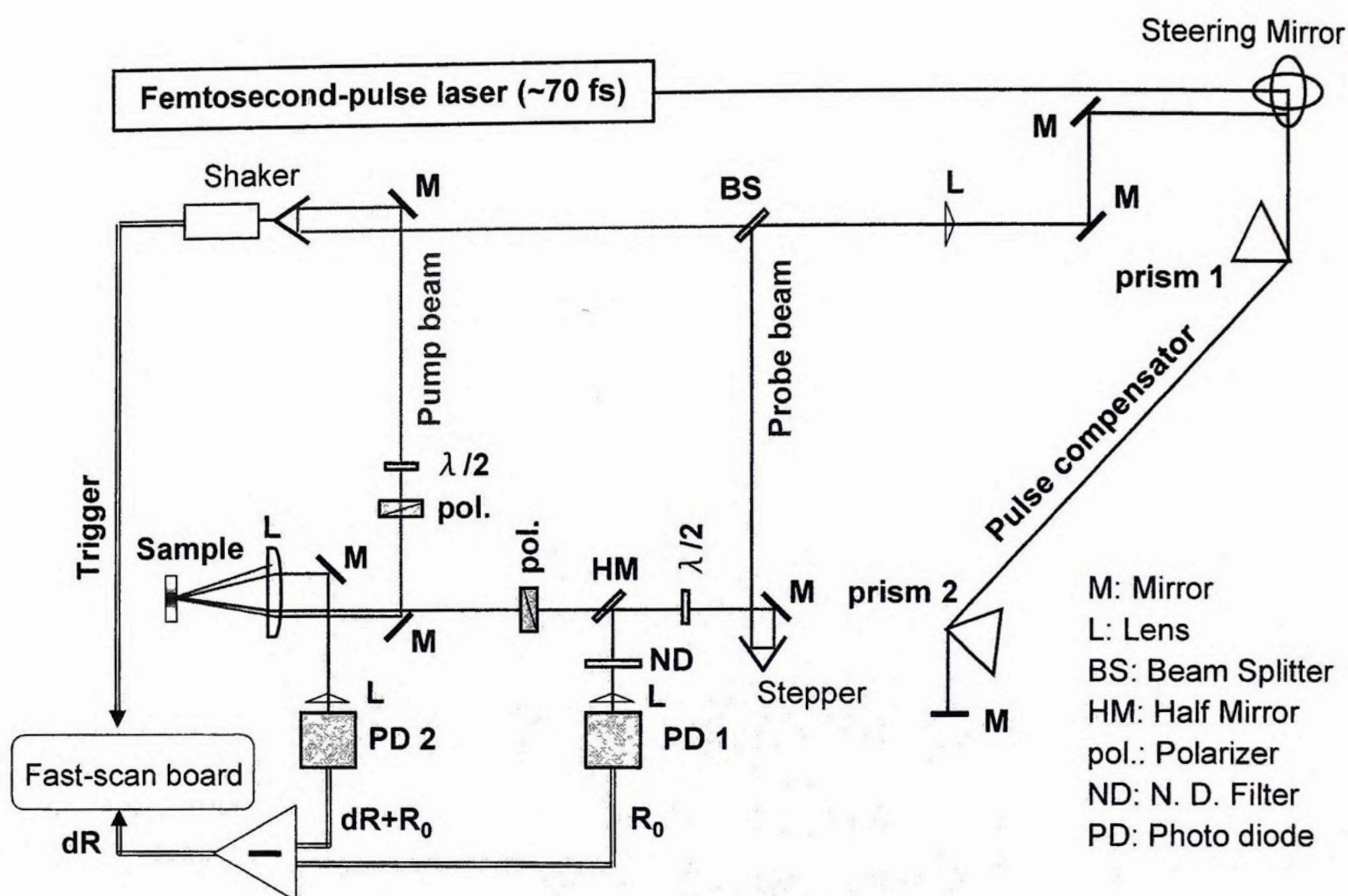


図 4-3 時間分解反射型ポンプ-プローブ分光の測定系の概略図。

の比率でポンプ光とプローブ光に分割される。ポンプ光およびプローブ光は、それぞれ光学遅延回路を通過した後、レンズによりサンプル上の一点に集光される。なお、プローブ光は、レンズに入る手前のハーフミラーで2つに分けられ、サンプルに入射しない方を参照光として用いる。サンプルからの反射光と参照光を、各々シリコンフォトダイオードにより検出し、2つの電流信号の差をアンプで増幅することにより、 $10^{-7} \sim 10^{-3}$  という微小な反射率変化を検出することができる。ここで、ポンプ光に対するプローブ光の光学遅延、すなわち、サンプルに到達するまでの光路長の差を変化させることにより、反射率の時間変化をレーザーパルスの時間幅の分解能で測定することができる。本研究では、高いS/N比の信号が得られる高速掃引法[60]を用いて測定を行った。高速掃引法では、ステッパを固定し、ポンプ光の光学遅延をシェーカーを用いて一定周期で変動させ、この周期に同期させた高速A-D変換器により時間領域信号(遅延時間情報)を一

挙に取り込む。これにより、単位時間あたりのデータ取り込み回数が格段に増し、積算を行うことにより測定精度を上げることが可能となる。本研究の測定では、プローブ光へのポンプ光の寄与を取り除くために、ポンプ光とプローブ光の偏光方向を直交させている。また、ポンプ光強度は、光励起キャリアによる内部電場のクーロン遮蔽を少なくするために、約 3.0 mW (約 120 nJ/cm<sup>2</sup>) に抑えている。

## 4-5 実験結果と考察

### 4-5-1 電場下での超格子の固有状態

はじめに、TM 法により計算した電子・正孔包絡波動関数の重なり積分の電場強度依存性の計算結果を示す。TM 計算では[15,16]、計算モデルは静電ポテンシャルをステップ関数的に組み込んだ 13 周期の GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子とした。尚、GaAs 量子井戸層の層厚は、計算結果を観測した遷移エネルギーに合わせるように、作製条件の値 (6.8 nm) からわずかに変化させた。

図 4-4 は、WS 局在条件での  $n=1$  電子 (E1) 状態と  $n=1$  重い正孔 (HH1) 状態の包絡波動関数の重なり積分の 2 乗値 ( $\int[E1(m)-HH1(0)]$ ) の電場強度依存性を示す。ここで、括弧内の数値 ( $m$ ) は、中心量子井戸 ( $m=0$ ) から  $m$  周期離れた量子井戸に属する WS 局在状態を示しており、+(-)の符号は、高(低)ポテンシャル側を意味している。HH 状態の包絡波動関数は、有効質量が電子よりも重いことを反映して低電場領域 ( $\sim 5$  kV/cm) で完全に局在化するために、重なり積分の 2 乗値は、主に電子状態の包絡波動関数の確率密度を反映する。ここで、重なり積分の 2 乗値は、対応するシュタルク階段遷移の遷移確率に相当すると仮定する[56]。この仮定に基づくと、シュタルク階段遷移の遷移確率は、主に電子状態の包絡波動関数の局在性により決定されると考えられる。図 4-4 に示す様に、 $\int[E1(0)-HH1(0)]$ と  $\int[E1(-1)-HH1(0)]$ の値は、10 kV/cm 以上で大きな値を示している。このことは、 $eFD$  のエネルギー間隔を有する  $m=0$  と  $-1$  のシュタルク階段遷移が同時に励起されることを示しており、 $eFD/h$  の振動数を有する通常のブロッホ振動の出



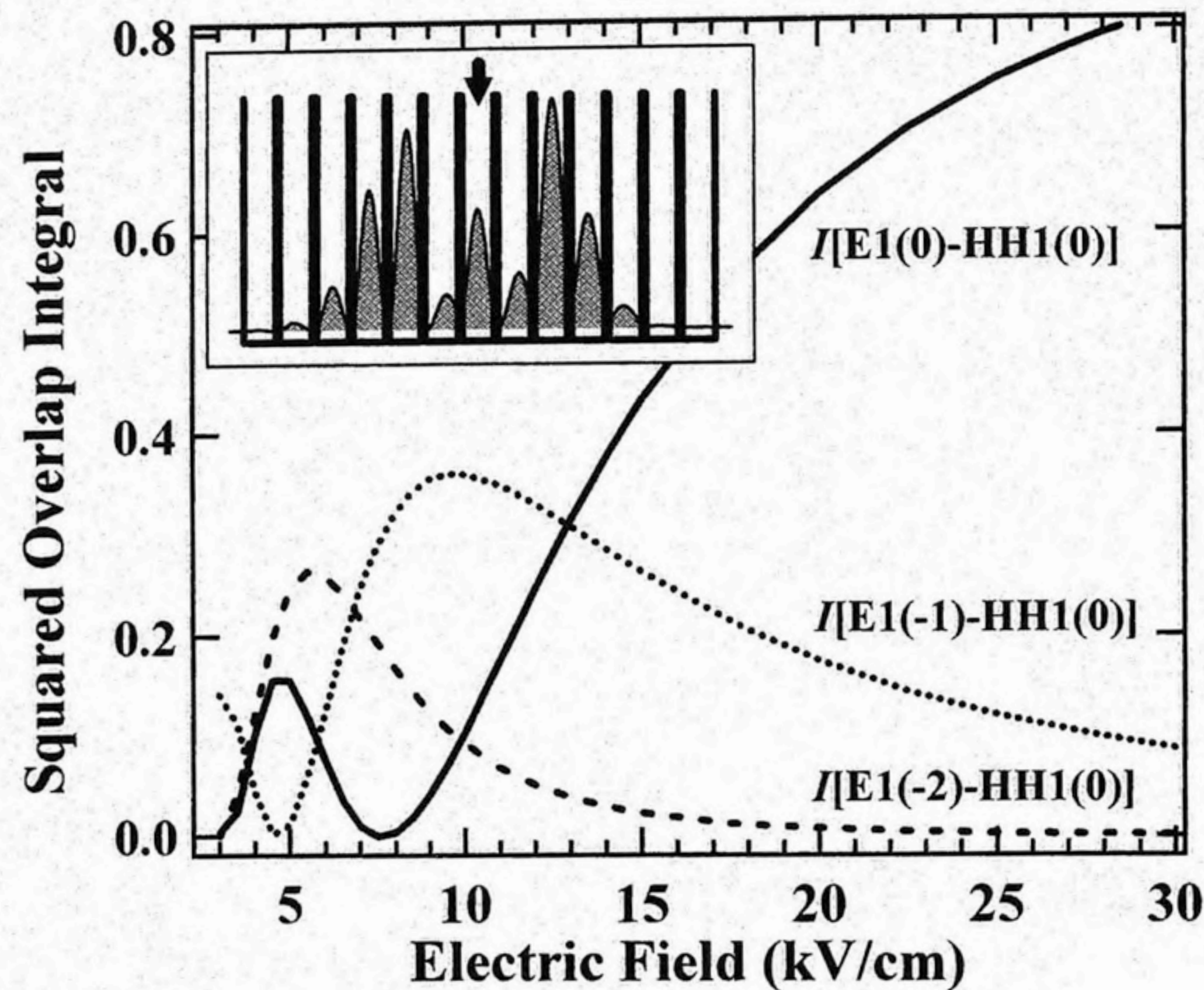


図 4-4 GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における電子・正孔包絡波動関数の重なり積分の 2 乗値。挿入図は、6 kV/cm における電子包絡波動関数の確率密度の計算結果。

現期待される。注目すべきことは、 $I[E1(-2)-HH1(0)]$  の値が電場強度の低下に伴って大きくなり、6 kV/cm 近傍では、 $I[E1(-1)-HH1(0)]$  よりも大きな値を示すことである。このことは、第 2 最近接量子井戸層における電子包絡波動関数の確率密度が、第 1 最近接量子井戸層のものよりも高いことを意味している。その具体的な例として、図 4-4 の挿入図に 6 kV/cm における電子包絡波動関数の確率密度を示す。この電場領域では、 $m=0$  と  $-2$  のシュタルク階段遷移が選択的に励起されて、 $E1(-2)$  と  $E1(0)$  の WS 局在状態 (エネルギー差  $2eFD$ ) の量子干渉が生じることが予測される。すなわち、振動数が  $2eFD/h$  で与えられる特異なブロッホ振動の出現が期待できる。

図 4-5 は、ER スペクトルの印加電圧 (電場強度) 依存性をイメージマップにまとめたものである。図 4-5 において、ER 信号の強度は、右側に示すカラースケールで示しており、赤線および青線は、TM 法で計算した  $E1-HH1$  ( $H11$ ) および  $E1-LH1$  ( $L11$ ) 遷移のエネルギーである (括弧内の数字はシュタルク階段指数  $m$ )。また、 $H11\Gamma$  ( $L11\Gamma$ ) で表記された左側の矢印は、KP モデルで計算したミニバンドの  $\Gamma$  点での  $H11$  ( $L11$ ) 遷移のエ

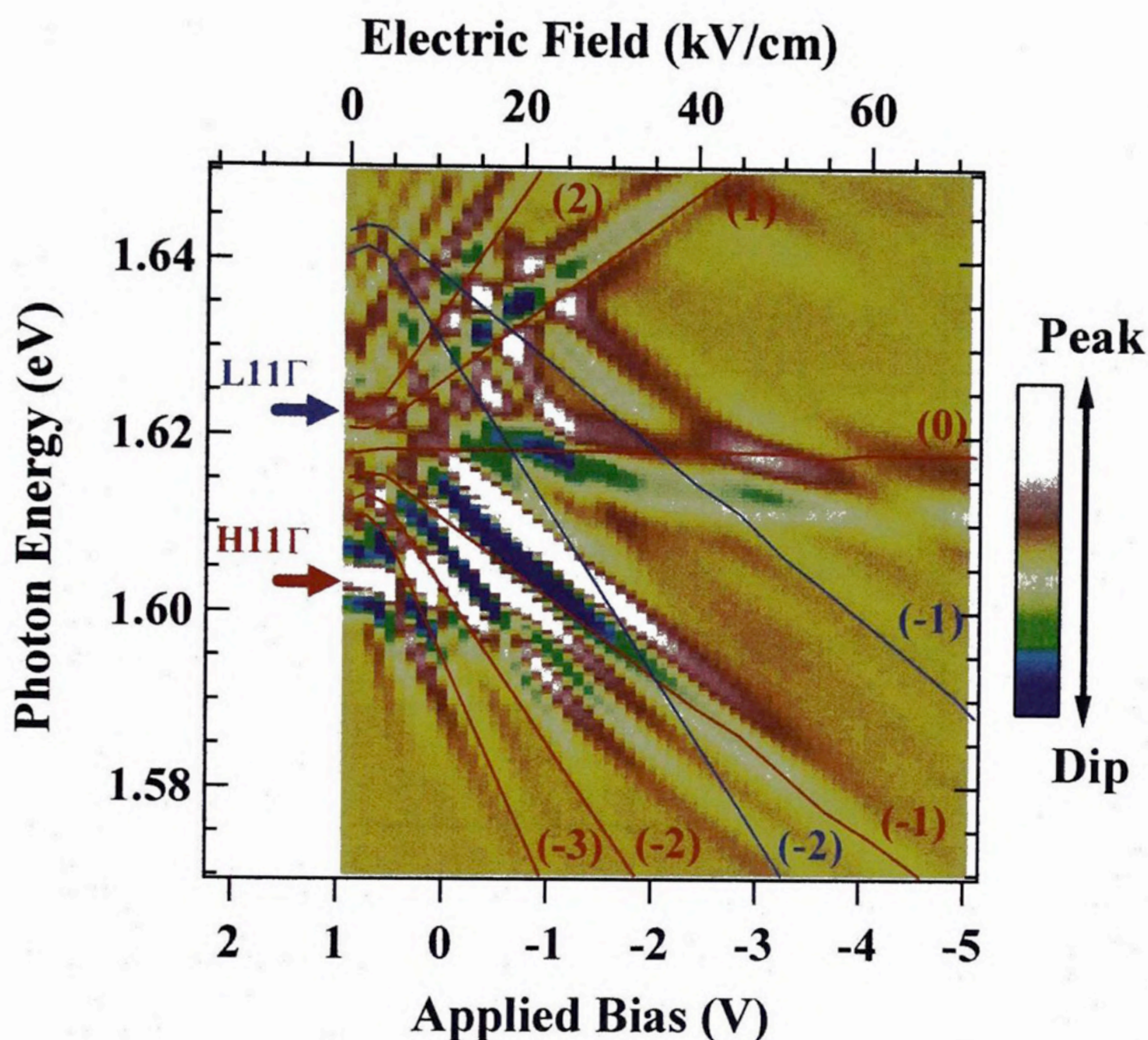


図 4-5 GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における電場変調反射スペクトルの印加電圧 (電場強度) 依存性をイメージマップにまとめたもの。電場変調反射信号の強度は、右側に示すカラースケールにより表している。 $V > 1.0$  V での矢印は、クローニツヒ-ペニーモデルで計算したミニバンドの $\Gamma$ 点での H11 と L11 遷移エネルギーを表している。また、図中の赤線 (青線) は、伝達行列法で計算した H11 (L11) 遷移エネルギーの電場強度依存性を表しており、括弧内の数字はシュタルク階段指数を示している。

エネルギーである。図 4-5 から、電場強度の増加に伴って、H11 $\Gamma$  (L11 $\Gamma$ ) 遷移に対応する ER 信号が 5 (7) kV/cm 近傍で消滅し、電場に線形に依存するシュタルク階段遷移へと移行することがわかる。このことは、電子状態が、電場によりミニバンド状態から WS 局在状態へと移行したことを示す。後に示す主要なポンプ-プローブ分光実験では、ポンプ光の中心エネルギーを 1.600 eV に固定しており、ミニバンド条件では H11 $\Gamma$  (L11 $\Gamma$ ) 遷移を、WS 局在条件では  $m=0, -1, -2$  の H11( $m$ ) 遷移を同時に励起することが期待される。

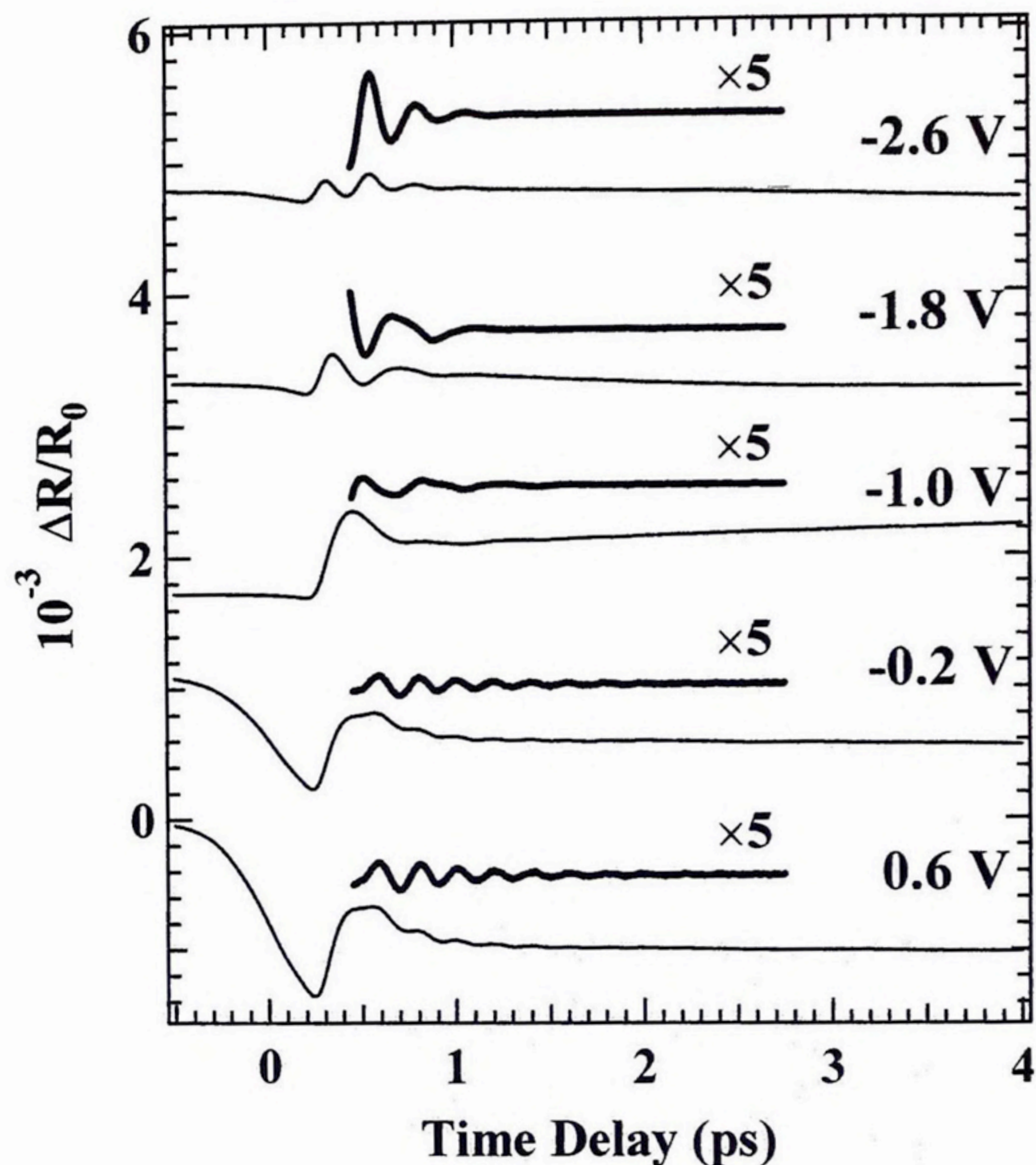


図 4-6 GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における様々な印加電圧で測定した時間分解反射率変化信号。図中の太線は、振動成分を数値的に抜き出して拡大したもの。ポンプ光エネルギーは、1.600 eV に固定している。

#### 4-5-2 ブロツホ振動ダイナミクス

以下では、ポンプ-プローブ分光実験により観測したブロツホ振動ダイナミクスについて述べる。図 4-6 は、様々な印加電圧で測定した時間分解反射率変化信号を示している。尚、ポンプ光エネルギーは 1.600 eV に固定している。ここで、図中の太線で示した信号は、振動成分を数値的に抜き出したものである。図 4-6 から、振動成分の周期および振幅が、印加電圧 (電場強度) に対して著しく変化していることがわかる。加えて、電子系の多体効果により生じていると考えられている時間分解反射率変化信号の 0 ps

近傍の初期形状が[61]、-1.0 V以上の逆バイアス電圧から大きく変化している。この初期形状の変化は、図4-5で説明したように、ミニバンドからWS局在状態への電子状態の移行過程を反映していると考えられる。

図4-7は、(a) 時間分解反射率変化信号の振動成分、及び、(b) (a)の時間領域信号のフーリエ変換 (FT) スペクトルの印加電圧依存性を示す。尚、ポンプ光エネルギーは1.600 eVに固定している。ここで、ポンプ-プローブ分光でのパルス照射条件では、光生成キャリアの蓄積による内部電場のクーロン遮蔽により、印加電圧から単純に有効電場強度を見積もることができないことに留意する必要がある[22]。図4-7から明らかな様に、-0.3~-0.7 Vまでの逆バイアス領域では、振動周期 (振動数) が変化しないことがわかる。この領域での振動数は約4.9 THzであり、これは $F=0$  kV/cmでのERスペクトルから見積もられるH11 $\Gamma$ -L11 $\Gamma$ 励起子間の量子ビートの期待値 (4.8 THz) と一致する。それゆえ、このコヒーレント振動は、ミニバンド励起子による量子ビート[62]であると言える。つまり、この量子ビートの消失は、電子状態がミニバンドからWS局在状態へと移行したことを反映している。図4-4で説明した様に、弱局在条件では第2最近接量子井戸における包絡波動関数の確率密度が高いことから、ミニバンド励起子量子ビートが消失した直後の電場領域において、 $2eFD/h$ の振動数を有する特異なブロッホ振動の出現が期待できる。図4-7(b)から、WS局在条件において2種類のFTピークが出現していることがわかる。点線で示す様に、FTピークの印加電圧 (電場強度) 依存性は、明らかに異なる。加えて、-1.5 VでのFTスペクトルは、ダブルット構造を有している。以上の実験結果は、図4-4に示す包絡波動関数の重なり積分の2乗値の電場強度依存性から予測した2種類のブロッホ振動の出現を示唆している。つまり、弱局在条件では $2eFD/h$ の振動数を有する特異なブロッホ振動が出現し、局在性の増加に伴って、通常のブロッホ振動へと移行するというものである。

実験結果を解析するためには、クーロン遮蔽を考慮して、内部電場強度を正確に見積もる必要がある。図4-8 (a)は、FTスペクトルから見積もった振動数を印加電圧に対してプロットしたものである。図4-8(a)から、ミニバンド励起子の量子ビートに対応する4.9 THzの印加電圧に依存しないピークに加えて、2種類の印加電圧に依存するピークが存在する。ここで、上記のWS局在状態の特性に基づいて、印加電圧に対して振動

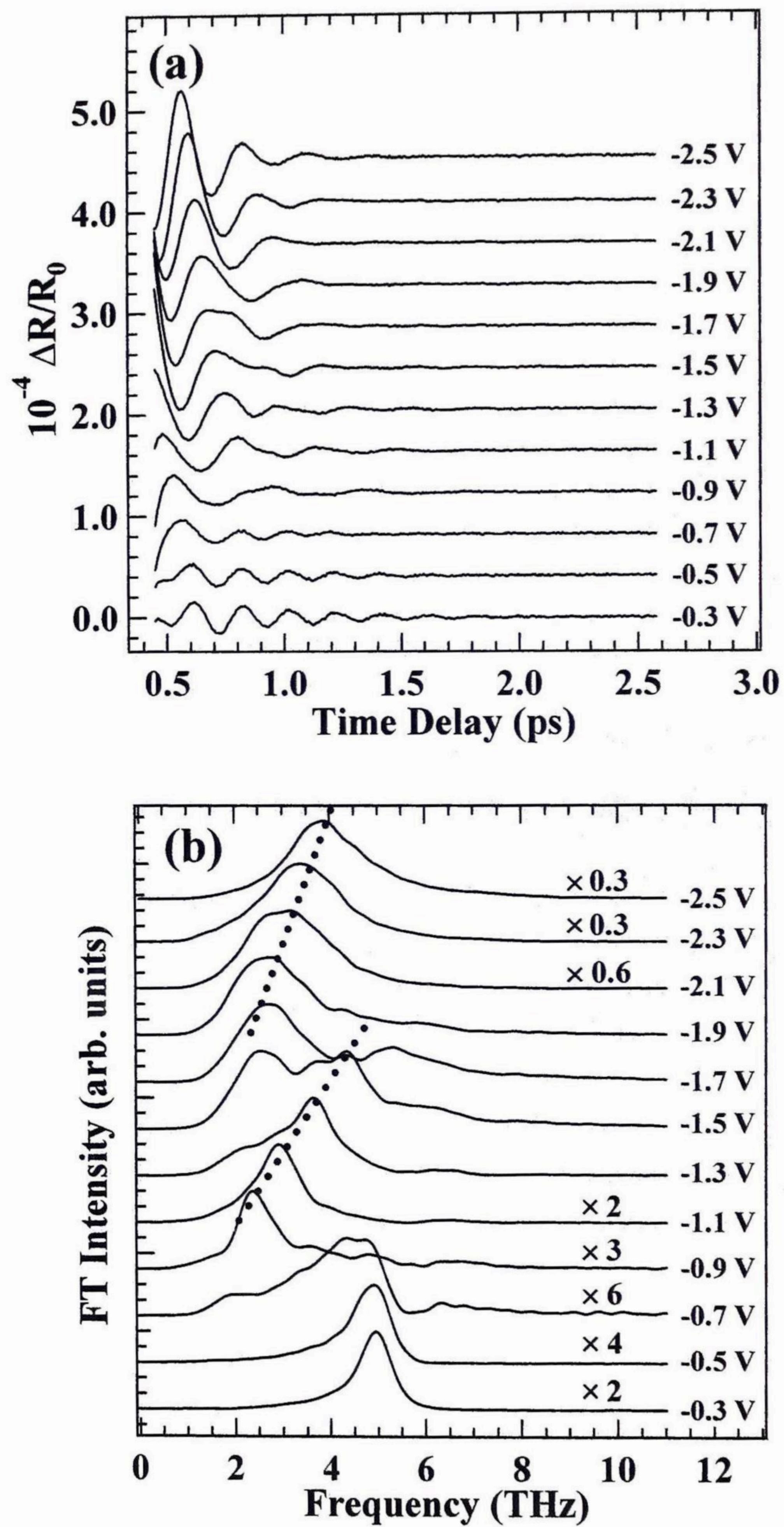


図 4-7 (a) GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における時間分解反射率変化信号から抜き出した振動成分の印加電圧依存性。(b) (a)の時間領域信号のフーリエ変換スペクトルの印加電圧依存性。尚、ポンプ光エネルギーは 1.600 eV に固定している。

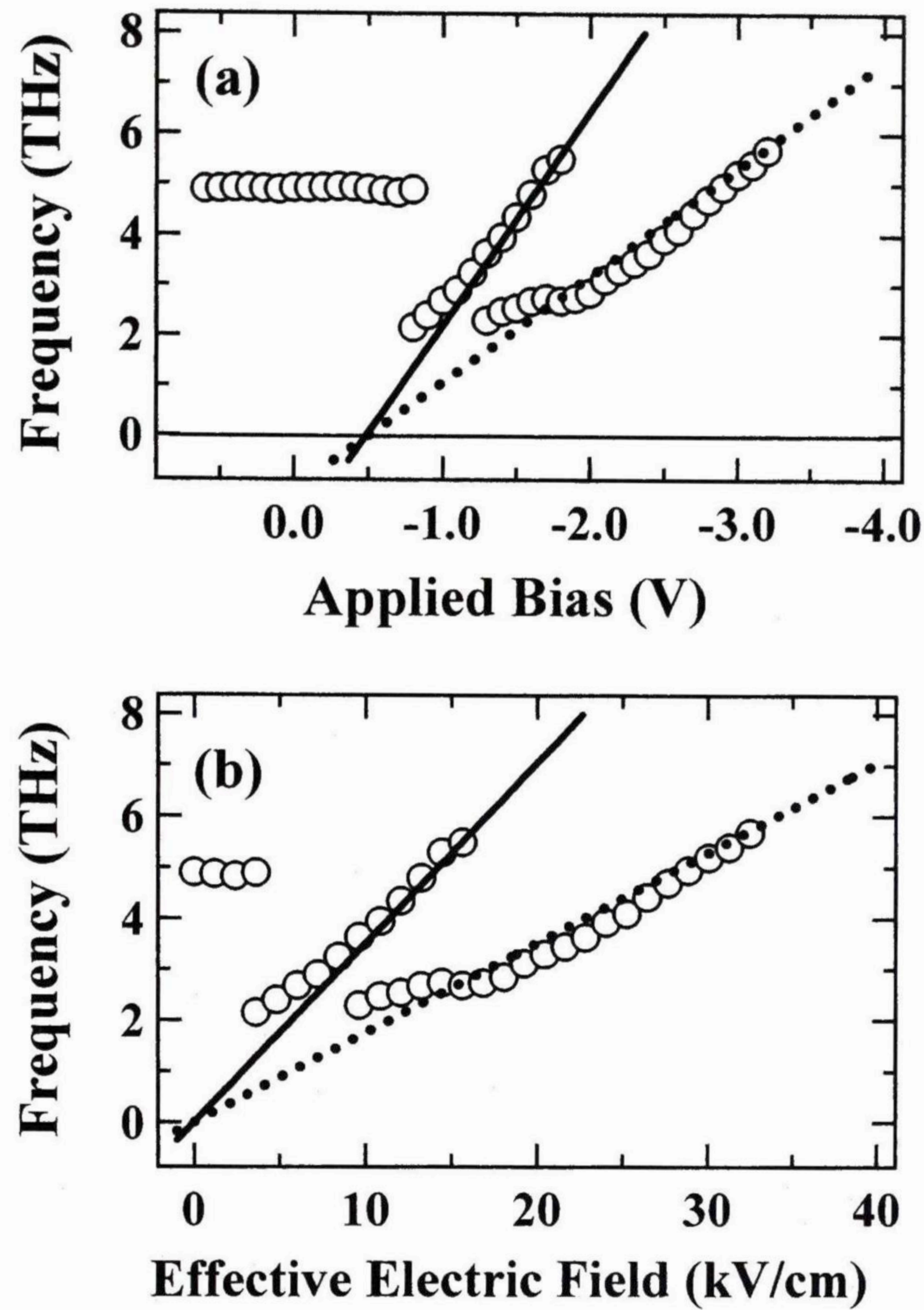


図 4-8 図 4-7(b)のフーリエ変換スペクトルから見積もった(a)振動数の印加電圧依存性と(b)振動数の有効電場強度依存性。有効電場強度 ( $F_e$ ) は、 $F_e = [(V_b - V_a) - 1.4] / L_i$  の式より計算した。図中の実線と直線は、それぞれ  $2eF_e D / h$  と  $eF_e D / h$  の計算結果を示す。

数が大きく変化する振動構造と、なだらかに変化する振動構造は、それぞれ  $2eF_e D / h$  と  $eF_e D / h$  の振動数を持つブロッホ振動であると仮定する。ここで、 $F_e$  は、 $F_e = [(V_b - V_a) - 1.4] / L_i$  で定義される有効電場強度である。1.4 V のオフセット値は、超格子層の両端に蓄積した光励起キャリアによる内部電場のクーロン遮蔽効果を現象論的に取り込んだものである。図 4-8(b)は、FT スペクトルから見積もった振動数を有効電場強度に対してプロ

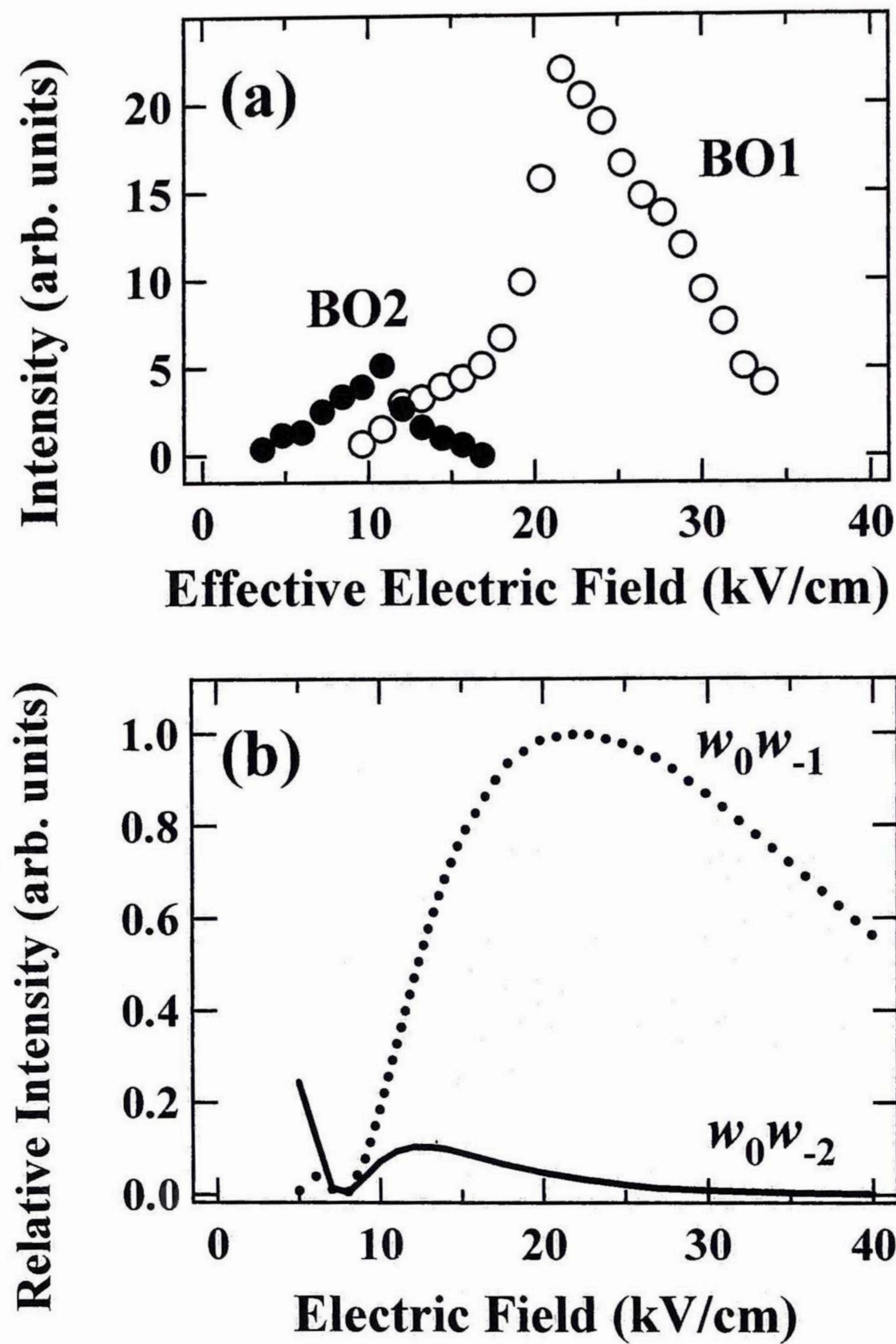


図4-9 (a)フーリエ変換スペクトルの積分強度の有効電場強度依存性。  
 (b) スペクトルウェイトの積の電場強度依存性の計算結果。

ットしたものである。図中の実線および破線は、 $2eF_e D/h$  と  $eF_e D/h$  の計算直線である。実線および破線は、ピーク振動数の電場強度依存性を良く再現している。このことは、 $F_e$ の見積もりの妥当性を実証する。

図 4-8(b)から、ミニバンド励起子の量子ビートは、 $F_e=4$  kV/cm 近傍で消失しており、この電場強度は、図 4-5 に示す H11 $\Gamma$  (ミニバンド状態遷移) の ER 信号が消失する電場強度 (5 kV/cm) と良く一致している。つまり、 $F_e=4$  kV/cm 近傍において、ミニバンド

状態が破綻し、H11(0) および H11(-2) 励起子の量子干渉からなる特異なブロッホ振動 ( $v_{2BO}=2eFD/h$ ) が出現し、続いて 10 kV/cm 近傍から、包絡波動関数の局在性の増強を反映して通常のブロッホ振動 ( $v_{BO}=eFD/h$ ) へと移行していると結論できる。さらに、図 4-8(b)の 12 kV/cm 近傍において、振動数が  $2eFD/h$  と  $eFD/h$  の 2 種類のブロッホ振動が共存していることが分かる。これは、図 4-5 に示した様に、 $m=-1$  と  $-2$  の H11( $m$ ) 遷移が同時に生じていることに起因する。図 4-8(b)において、実験結果が計算直線からずれる電場領域が存在することがわかる。このずれは、内部電場の不均一性によるものであると考えられる。

次に、ブロッホ振動の強度について議論する。図 4-9(a)は、通常のブロッホ振動 (BO1)、および、特異なブロッホ振動 (BO2) に関連する FT バンドの積分強度を有効電場強度に対してプロットしたものである。図 4-9(a)において、BO1 (BO2) の強度が最大値となる有効電場強度は、22 (11) kV/cm である。実験結果を解析するために、基底状態 ( $|0\rangle$ ) と 2 つの励起状態 [ $|H11(0)\rangle$ 、および、 $|H11(m)\rangle$  ( $m=-1$  or  $-2$ )] から成る 3 準位系を考える。この 3 準位モデルにおいて、ポンプ-プローブ分光で観測されるブロッホ振動の強度は、次式のように表すことができる[63,64]。

$$I_{BO} \propto w_0^2 + w_m^2 + w_0 w_m [1 + \cos(\Delta E t) e^{-\gamma t}] \quad (4-15)$$

ここで、 $w$  は光学遷移の励起のウェイト、 $\Delta E$  と  $\gamma$  は、2 状態間のエネルギー差と減衰速度を示している。また、下付きの  $m$  は、シュタルク階段指数を示す。励起のウェイト  $w$  は、 $S_{\text{Pump}}[E_m(F)]$  と  $T[E_m(F)]$  の積で定義される。ここで、 $S_{\text{Pump}}[E_m(F)]$  は、電場強度  $F$  に依存するシュタルク階段遷移エネルギー  $[E_m(F)]$  でのポンプ光の電場振幅であり、 $T[E_m(F)]$  は遷移確率である。式 4-15 から、ブロッホ振動の強度は  $w_0 w_m$  によって決定されると仮定する。 $S_{\text{Pump}}[E_m(F)]$  の計算において、 $E_m(F)$  は図 4-5 に示される ER スペクトルの電場強度依存性から見積もった。ER スペクトルから正確な遷移エネルギーを見積もるためには、誘電関数に基づいて ER スペクトルを形状解析する必要がある[51]。しかしながら、シュタルク階段遷移に対する正確な誘電関数を決定するためには非常に複雑な計算を行う必要がある。ここで、光電流スペクトルのピークが遷移エネルギーに対応することに着目し、ER スペクトルと光電流スペクトルの信号形状の比較から、遷移エ



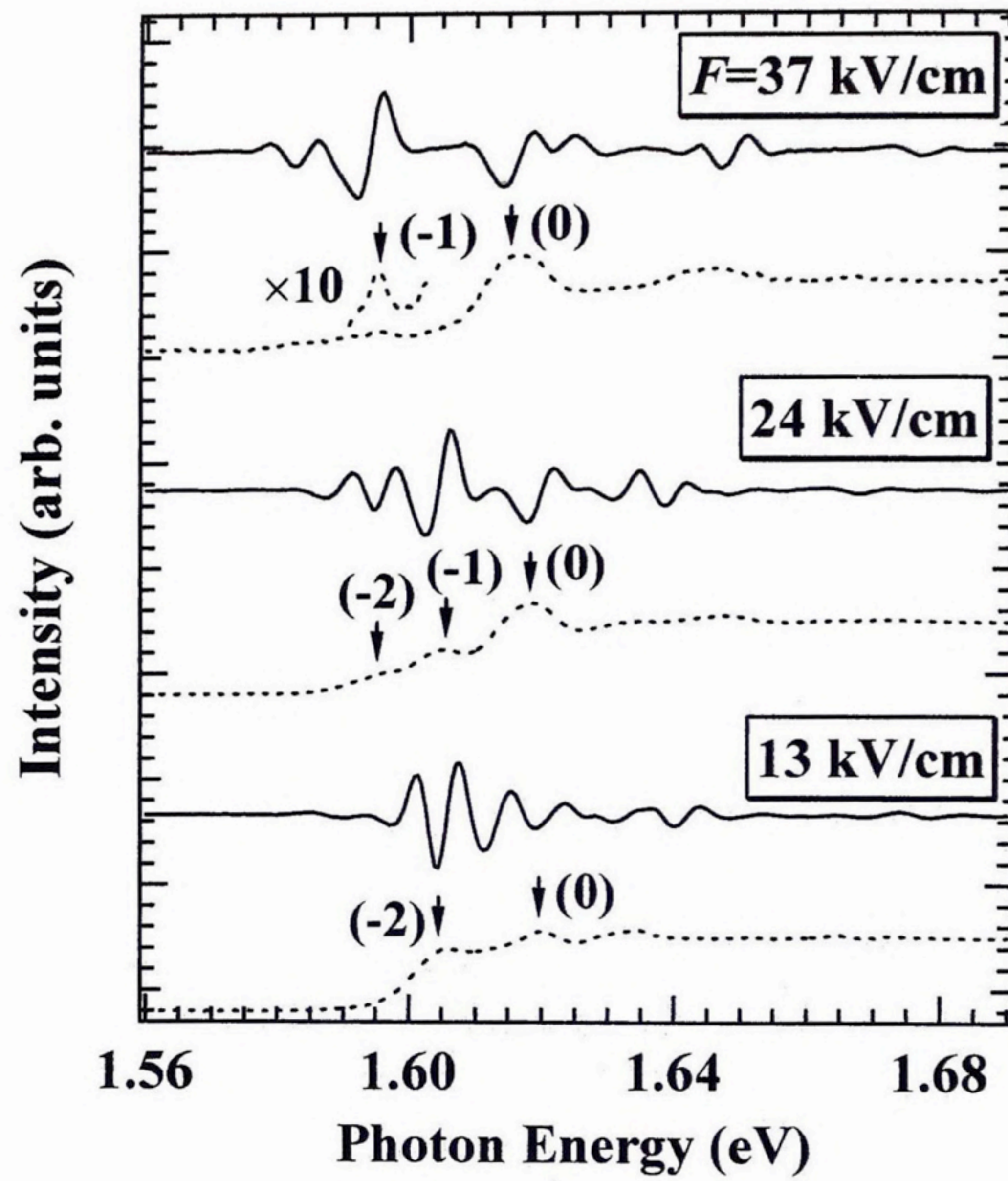


図4-10 GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における異なる電場強度で測定した電場変調反射スペクトルと光電流スペクトル。破線が光電流スペクトルを示す。図中の矢印は、光電流スペクトルのピークを示しており、括弧内の数字は、H11 遷移のシュタルク階段指数を意味している。

エネルギーの見積もりを行った。

図4-10は、異なる電場強度でのERスペクトルと光電流スペクトルを示す。ここで、光電流スペクトルは、破線で表している。図中の矢印は、光電流スペクトルのピークを示しており、括弧内の数字は、H11遷移のシュタルク階段指数を意味している。ERスペクトルと光電流スペクトルの比較から、H11(0)遷移とH11(-2)遷移に対しては、ERスペクトルのディップエネルギーが遷移エネルギーに相当し、H11(-1)遷移に対しては、ピークエネルギーが遷移エネルギーに相当すると仮定した。遷移エネルギーの見積もりの不確定性は、ERスペクトルの信号幅によって決定され、 $\pm 3$  meV程度である。ポンプ

光のスペクトル形状は、半値全幅が 30 meV のガウシアン形状に近似した。 $\Gamma(E_m(F))$ の計算では、図 4-4 に示した重なり積分の 2 乗値がシュタルク階段遷移の遷移確率を決定すると仮定して用いた。

図 4-9(b)は、BO1 と BO2 に対応する、 $w_0w_{-1}$  と  $w_0w_{-2}$  の電場強度依存性の計算結果を示している。計算結果は、図 4-9(a)の BO1 と BO2 の強度がピークとなる電場強度を良く説明している。図 4-9(b)の計算結果に注目すると、 $w_0w_{-2}$  は、8 kV/cm 近傍でディップ形状を示している。これは、図 4-4 に示した  $\Gamma[E1(0)-HH1(0)]$  のディップ形状を反映している。しかしながら、このような振る舞いは、実験結果からは観測されていない。また、計算結果は、実験結果と比べて、電場強度に対して緩やかに変化している。実験結果と計算結果の違いについて議論する。本研究の計算では、光学遷移に影響を与える励起子効果や内部電場の不均一性の影響を考慮していない。これらの要因は、遷移確率  $\Gamma(E_m(F))$  に影響を与えることが予測される。更には、散乱プロセスによるコヒーレント振動のダンピングも考慮に入れていない。ダンピング効果は、特に高電場領域でのブロッホ振動強度に対して影響を与えることが予測される。正確なブロッホ振動強度の電場強度依存性を再現するためには、上述した複雑な問題を理論的に取り扱う必要がある。それでもなお、図 4-9 の結果は、WS 局在状態の特性 (遷移確率および光学遷移エネルギーの電場強度依存性) を繰り込んだ単純な計算によって、ブロッホ振動強度の電場強度依存性を半定量的に説明できることを示している。

次に、BO1 と BO2 の波束ダイナミクス特性のポンプ光エネルギー依存性について議論する。図 4-11(a)は、 $F_e=24$  kV/cm における BO1 に対応する FT スペクトルのポンプ光エネルギー依存性を示している。図 4-11(a)において、FT バンドの強度は、ポンプ光エネルギーに対して、緩やかに変化していることが分かる。具体的には、1.605 eV から 1.590 eV へのポンプ光エネルギーの変化に対して、FT バンドの強度は約 3 倍程度増加する。図 4-5 の ER スペクトルから見積もった H11(0)遷移および H11(-1)遷移のエネルギーは、それぞれ 1.618 eV と 1.606 eV である。つまり、図 4-11(a)の結果は、ポンプ光エネルギーを H11(0)遷移エネルギーから遠ざけるにつれて BO1 の強度が増大することを示す。Dignam らは、ポンプ光の中心エネルギーに対する BO1 による超格子内の双極子モーメントの和を計算し、ポンプ-プローブ信号強度と関連する全双極子モーメントは、

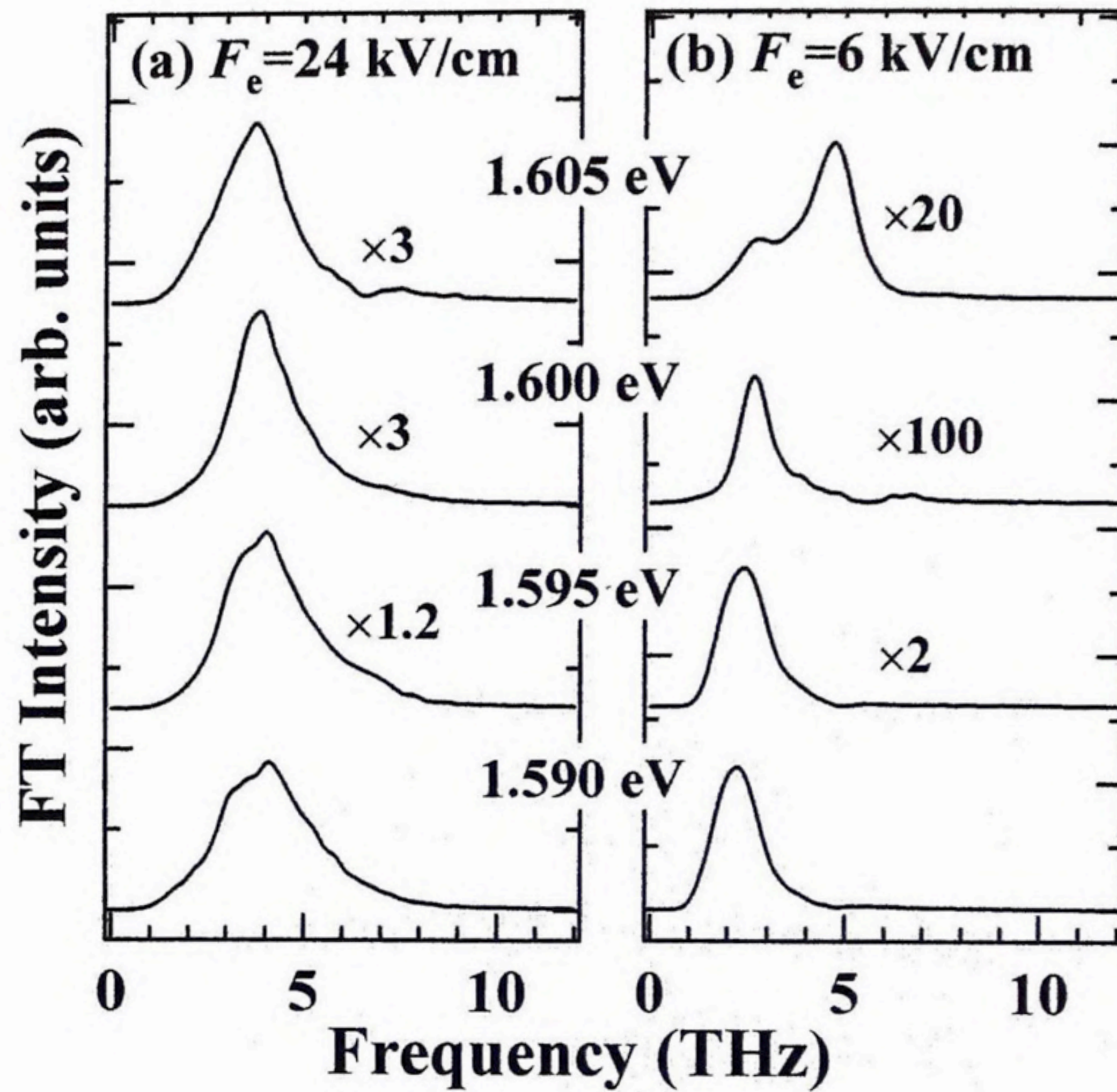


図4-11 (a) 通常のブロッホ振動 ( $\nu_{BO}=eFD/h$ ) に対応する  $F_e=24$  kV/cm でのフーリエ変換スペクトルのポンプ光エネルギー依存性、および、(b) 特異なブロッホ振動 ( $\nu_{2BO}=2eFD/h$ ) に対応する  $F_e=6$  kV/cm でのフーリエ変換スペクトルのポンプ光エネルギー依存性。

H11(0)遷移近傍にポンプ光を調節することで打ち消し合うということを実証した[56]。H11(0)遷移近傍の励起条件では、H11(+1)-H11(0)と H11(-1)-H11(0)の量子干渉が同じウェイトで生じる。つまり、全双極子モーメントの打ち消し合いは、BO1の波束が、方向が反対称な H11(+1)-H11(0)と H11(-1)-H11(0)の量子干渉の空間発展の重ね合わせで表される (Breathing-mode motion) ことによるものである。Sudziusらは、GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 超格子において、BO1の波束の空間振幅が、H11(0)遷移のエネルギー付近でポンピングすることで最小値となり、H11(0)遷移とポンプ光のエネルギー差の増大に従って、緩やかに増大することを実証した[41]。すなわち、図4-11(a)に示されるBO1のFT強度のポンプ光エネルギー依存性は、理論[56]および実験[41]から報告されているBO1の特徴と一致する。尚、本研究で用いた試料では、H11(0)遷移付近のポンプ光エネルギーにおいて、

H11 励起子と L11 励起子間の量子ビートが優勢的に現れたために、BO1 の信号を明確に観測することができなかった。

図 4-11(b)は、 $F_e=6$  kV/cm での BO2 に関連する FT バンドのポンプ光エネルギー依存性を示している。但し、2.2 THz の FT バンドが BO2 に対応し、ポンプ光エネルギー 1.605 eV での 4.9 THz の FT ピークは、ミニバンド励起子の量子ビートである。ブロッホ振動と励起子量子ビートの共存は、超格子の内部電場の不均一性によるものであると考えられる。図 4-11(b)から、BO2 の強度は、ポンプ光エネルギーに対して極めて大きく変化していることが分かる。ブロッホ振動強度のこのような挙動は、これまでに報告されていない。以下で、BO2 のポンプ光エネルギー依存性について考察する。

BO2 が観測される低電場領域において、図 4-5 から分かる様に、H11( $m$ )遷移のエネルギーは互いに近接している。ER スペクトルから見積もった  $F_e=6$  kV/cm における H11(0)、H11(-2)、H11(-3)、H11(-4)遷移のエネルギーは、それぞれ 1.622、1.612、1.605、1.595 eV である。尚、H11(-1)遷移のエネルギーは、対応する ER 信号が観測されないために、見積もることができなかった。H11( $m$ )遷移のエネルギーが近接していることを考えると、BO2 は H11(0)-H11(-2)、H11(-1)-H11(-3)、H11(-2)-H11(-4)と言った様々な状態間の量子干渉により生じていると予測される。すなわち、ポンプ光エネルギーの変化は、BO2 を引き起こす様々な量子干渉の重ね合わせの程度を変化させる。このことが、BO2 の強度の著しい変化を生じさせる原因であると考えられる。BO2 のポンプ光エネルギー依存性の詳細なメカニズムを明らかにするためには、この現象に適用する新たな理論的モデルを構築する必要がある。

最後に、図 4-11 に示されている FT バンドの幅について簡単に述べる。図 4-11 から明らかのように、BO1 と BO2 の FT バンドは、ポンプ光エネルギーに対し、強度だけでなく幅も変化していることが分かる。FT バンドの幅は、ブロッホ振動の信号の位相緩和時間に対応する。ブロッホ振動の位相緩和は、THz 電磁波放射や波束の散乱といった様々なエネルギー散逸過程により生じており、それらが絡み合っって位相緩和時間を変化させていると考えられる。

## 4-6 まとめ

GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子を試料とし、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程におけるブロッホ振動波束のコヒーレントダイナミクスに関する研究を、WS 局在状態の局在性の観点から行った。電場によるミニバンド状態から WS 局在状態への移行過程は、ER 分光法による遷移エネルギーの電場強度依存性から明確に観測した。系統的なポンプ-プローブ分光の結果から、ミニバンド励起子の量子ビートが消失した (ミニバンド破綻) 直後の電場強度において、振動数が  $2eFD/h$  に依存する特異なブロッホ振動 (BO2) が生じることを見出した。また、電場強度の増加に伴って、包絡波動関数の局在性を反映し、BO2 から従来のブロッホ振動 (BO1) へと移行することを観測した。BO1 と BO2 の強度の電場強度依存性は、ER スペクトルより見積もった遷移エネルギー、および、TM 法により計算した電子・正孔包絡波動関数の重なり積分の 2 乗値の電場強度依存性を用いた 3 準位モデルによる単純な計算によって、半定量的に説明することができた。更には、BO1 と BO2 に対するポンプ光エネルギー依存性から、BO2 を生じさせる量子干渉が、BO1 と比べて、ポンプ光エネルギーに極めて敏感であることを明らかにした。この様なミニバンド励起子量子ビートからブロッホ振動への移行過程特有の現象を観測したのは、本研究が初めてである。

## 第5章 総括

本研究では、*p-i-n* 構造に埋め込まれた GaAs/AlGaAs 超格子を対象として、(1) WS 局在状態の形成過程における臨界電場、(2) WS 局在状態間の共鳴結合現象を用いた光電流双安定性、(3) ミニバンドから WS 局在状態への移行過程におけるブロッホ振動ダイナミクスについて分光学的に明らかにした。本研究で得られた知見を以下にまとめる。

1. GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子を試料として、ミニバンドの光学遷移、及び、バンド間シュタルク階段遷移に対して極めて高感度な ER 分光法を駆使して、バンド間光学遷移エネルギーの電場強度依存性を測定し、 $n=1$  と  $n=2$  ミニバンドの WS 局在状態の形成過程についての詳細な研究を行った。また、TM 法を用いて電子・正孔固有状態の電場依存性を計算し、実験結果を定量的に解析した。以下に得られた成果を示す。

(1) 系統的な ER スペクトルの電場強度依存性から、 $n=1$  および  $n=2$  ミニバンドの WS 局在状態への移行過程を同時に観測することに成功した。

(2)  $n=1$  および  $n=2$  ミニバンドの両方において、全ミニバンド幅 (電子と正孔ミニバンド幅の和) と WS 局在状態形成のための臨界電場との間には、線形的相関があることを明らかにした。

これらの結果は、WS 局在状態の形成過程における臨界電場強度のユニバーサリティを示すものである。

2. GaAs (6.8 nm)/Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>As (4.0 nm) 超格子を試料とし、WS 局在状態間の波動関数共鳴結合条件での光電流特性の変化について、SEED の観点から詳細な研究を行った。共鳴結合による光学特性の変化は、ER 分光法および光電流分光法を用いて検出した。また、TM 法を用いて、共鳴結合が生じる電場強度を計算し、実験結果を定量的に解

析した。以下に得られた成果を示す。

(1) ER 分光法を用いて高感度の光学遷移の電場強度依存性の測定を行い、ポテンシャル障壁下の  $n=1$  電子ミニバンドと障壁上の  $n=2$  電子ミニバンドの WS 局在状態間の共鳴結合を、光学遷移エネルギーの反交差現象として検出した。また、共鳴結合条件において、光学遷移の遷移確率の低下を反映し、ER 信号強度、及び、光電流強度が顕著に減少することが観測された。

(2) 波長選択励起した光電流-電圧特性の測定から、共鳴結合条件において、明確な負性微分抵抗性が発現することを確認した。

(3) 超格子を負荷抵抗に直列に接続した SEED 型回路における光電流強度の入射光強度依存性の測定から、光電流の双安定性動作を実現した。本研究で得られたスイッチング比は、約 1.6 であり、この値は、シュタルク階段遷移のエネルギーシフトを用いた従来の SEED と同程度であることを確認した。

これらの結果は、WS 局在状態間の波動関数共鳴結合のオプトエレクトロニクス応用を実現した初めての研究成果であり、SEED の新たな可能性を示すものである。

3. GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子を試料として、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程におけるブロッホ振動のコヒーレントダイナミクスを、時間分解反射型ポンプ-プローブ分光法を用いて詳細に研究した。実験結果は、ER スペクトルの電場強度依存性、及び、TM 法による WS 局在状態の理論計算結果に基づいて、定量的に解析した。以下に得られた成果を示す。

(1) 系統的に印加電圧 (内部電場強度) を変化させて行ったポンプ-プローブ分光実験から、ミニバンド励起量子ビートからブロッホ振動へのコヒーレントダイナミクスの移行過程が明確に観測された。

(2) ミニバンド励起量子ビートが消失した直後の電場領域において、 $\nu_{2BO}=2eFD/h$  の振動数を有する特異なブロッホ振動 (BO2) が生じることを見出した。BO2 は、第 2 最近接量子井戸に属する WS 局在状態間の量子干渉から生じるものである。また、電場強度の増加に伴って、包絡波動関数の局在性の増加を反映し、通常のブロッホ振動 (BO1:  $\nu_{BO}=eFD/h$ ) へと移行していくことを観測した。

(3) WS 局在状態の局在性を反映するバンド間シュタルク階段遷移の遷移確率と、ポンプ光強度のスペクトル分布を考慮した3準位モデルから、BO1 と BO2 の強度が最大となる電場強度を半定量的に再現できることを明らかにした。

(4) BO1 と BO2 に対するポンプ光エネルギー依存性から、BO2 を生じさせる量子干渉が、BO1 と比べて、ポンプ光エネルギーに極めて敏感であることを明らかにした。

これらの結果は、ブロッホ振動のコヒーレントダイナミクスの更なる制御性を示すものであり、新たな振動数可変 THz 電磁波源の開拓に繋がるものである。

以上、本研究で得られた成果は、超格子の光物性および光機能性に対する WS 局在効果についての詳細な知見を明示するものであり、超格子をベースとした光機能性素子の研究および開発に対して重要な指針を与えるものである。



## 謝辞

本研究は、大阪市立大学大学院工学研究科中山正昭教授のもと、電子情報系専攻光物性工学講座にて行われたものである。研究を遂行するにあたり、多くの方に御指導と御協力を頂きました。ここに謹んで感謝致します。

本研究を進めるにあたり、中山正昭教授からは、終始熱心な御指導とご助言を賜りました。同大学院工学研究科に在籍しておられた溝口幸司教授 (現 大阪府立大学大学院理学系研究科) には、超高速分光に関する研究において、有益な助言や議論を賜りました。同大学院工学研究科の金大貴准教授には、多くの助言や激励を賜りました。同大学院工学研究科の細田誠教授と寺井章教授には、本論文をまとめる上で適切なお指導を頂きました。また、細田誠教授には、本論文第3章で取り上げた SEED に関する研究を行う際に、丁寧なお説明や貴重な助言を多数頂きました。

同研究室に所属した当初から、小島磨先輩 (現 神戸大学大学院工学研究科) には、基本的な測定装置の使い方からポンプ-プローブ分光の実験方法まで、様々な面で多くの助力を頂きました。また、市田秀樹先輩 (現 大阪大学 先端イノベーションセンター VBL 部門) には、実験装置に関する貴重な助言を多数頂きました。

互いに励まし合いながら研究を行った奥田耕司氏 (現 太陽鉄工株式会社)、富平和之氏 (現 富士写真フイルム株式会社)、仲井浩一氏 (現 シャープ株式会社)、水元章裕氏 (現 京セラ株式会社) に感謝致します。

長年の学生生活を陰ながら支え続けてくれた両親に深く感謝致します。

最後になりましたが、私の研究生生活を理解し、温かく見守り続けてくれた妻の奈美に心から感謝致します。

## 参考文献

- [1] L. Esaki and R. Tsu, *IBM J. Res&Dev.* **14**, 61 (1970).
- [2] 総説として、C. Weisbuch, *Semiconductors and Semimetals: Applications of Multiquantum Wells, Selective Doping, and Superlattices*, edited by R. Dingle, *Semiconductors and Semimetals series*, Vol. 24 p.1 (Academic Press, New York, 1987).
- [3] 総説として、江崎 玲於奈 監修、榊 裕之 編著、超格子ヘテロ構造デバイス、工業調査会 (1988).
- [4] 総説として、E. L. Ivchenko and G. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures*, edited by Manuel Cardona (Springer, Berlin, 1995).
- [5] 総説として、F. T. Vasko and A. V. Kuznetsov, *Electronic States and Optical Transitions in Semiconductor Heterostructures*, edited by R. Stephen Berry (Springer, New York, 1999).
- [6] 総説として、A. Sibille, *Semiconductor Superlattices*, edited by H. T. Grahn (World Scientific, Singapore, 1995).
- [7] E. E. Mendez, F. Agulló-Rueda, and J. M. Hong, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2426 (1988).
- [8] P. Voisin, J. Bleuse, C. Bouche, S. Gaillard, C. Alibert, and A. Regreny, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1639 (1988).
- [9] G. H. Wannier, *Rev. Mod. Phys.* **34**, 645 (1962).
- [10] F. Agulló-Rueda, E. E. Mendez, and J. M. Hong, *Phys. Rev. B* **40**, 1357 (1989).
- [11] K. Fujiwara, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, 1718 (1989).
- [12] H. Schneider, H. T. Grahn, K. v. Klitzing, and K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2720 (1990).
- [13] R. P. Leavitt and J. W. Little, *Phys. Rev. B* **42**, 11784 (1990).
- [14] I. Tanaka, M. Nakayama, H. Nishimura, K. Kawashima, and K. Fujiwara, *Phys. Rev. B* **46**, 7656 (1992).

- [15] I. Tanaka, M. Nakayama, H. Nishimura, K. Kawashima, and K. Fujiwara, *Phys. Rev. B* **48**, 2787 (1993).
- [16] 総説として、M. Nakayama, *Optical Properties of Low-Dimensional Materials*, edited by T. Ogawa and Y. Kanemitsu (World Scientific, Singapore, 1995), Chap. 3.
- [17] F. Bloch, *Z. Phys.* **52**, 555 (1928).
- [18] C. Zener, *Proc. R. Soc. London Ser. A.* **145**, 523 (1934).
- [19] J. Feldmann, K. Leo, J. Shah, D. A. B. Miller, J. E. Cunningham, T. Meier, G. von Plessen, A. Schulze, P. Thomas, and S. Schmitt-Rink, *Phys. Rev. B* **46**, 7252 (1992).
- [20] K. Leo, P. Haring Bolivar, F. Brüggenmann, R. Schwedler, and K. Köhler, *Solid State Commun.* **84**, 943 (1992).
- [21] C. Waschke, H. G. Roskos, R. Schwedler, K. Leo, H. Kurz, and K. Köhler, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3319 (1993).
- [22] P. Leisching, P. Haring Bolivar, W. Beck, Y. Dhaibi, F. Brüggenmann, R. Schwedler, H. Kurz, K. Leo, and K. Köhler, *Phys. Rev. B* **50**, 14389 (1994).
- [23] V. G. Lyssenko, G. Valušis, F. Löser, T. Hasche, K. Leo, M. M. Dignam, and K. Köhler, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 301 (1997).
- [24] N. Sekine, Y. Shimada, and K. Hirakawa, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 4794 (2003).
- [25] 総説として、K. Leo, *High-Field Transport in Semiconductor Superlattices*, (Springer, Berlin, 2003).
- [26] G. Bastard, *Phys. Rev. B* **24**, 5693 (1981).
- [27] 総説として、L. J. Sham and Y. T. Lu, *J. Lumin.* **44**, 207 (1989).
- [28] D. F. Nelson, R. C. Miller, and D. A. Kleinman, *Phys. Rev. B* **35**, 7770 (1987).
- [29] D. E. Aspnes, S. M. Kelso, R. A. Logan, and R. Bhat, *J. Appl. Phys.* **60**, 754 (1986).
- [30] D. F. Nelson, R. C. Miller, C. W. Tu, and S. K. Sputz, *Phys. Rev. B* **36**, 8063 (1987).
- [31] M. Nakayama, I. Tanaka, H. Nishimura, K. Kawashima, and K. Fujiwara, *Phys. Rev. B* **44**, 5935 (1991).
- [32] M. Nakayama, M. Ando, I. Tanaka, H. Nishimura, H. Schneider, and K. Fujiwara, *Phys. Rev. B* **51**, 4236 (1995).

- [33] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Appl. Phys. Lett.* **45**, 13 (1984).
- [34] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, T. H. Wood, C. A. Burrus Jr, A. C. Gossard, and W. Wiegmann, *IEEE J. Quantum Electron.* QE-**21**, 1462 (1985).
- [35] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Phys. Rev. B* **32**, 1043 (1985).
- [36] H. Schneider, K. Fujiwara, H. T. Grahn, K. v. Klitzing, and K. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 605 (1990).
- [37] K. Kawashima, K. Fujiwara, T. Yamamoto, M. Sigeta, and K. Kobayashi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, 1542 (1991).
- [38] K. Kawashima, K. Fujiwara, T. Yamamoto, and K. Kobayashi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, 2682 (1992).
- [39] M. Hosoda, K. Kawashima, K. Tominaga, T. Watanabe, and K. Fujiwara, *IEEE J. Quantum Electron.* QE-**31**, 954 (1995).
- [40] 総説として、J. Shah, *Ultrafast spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*, (Springer, Berlin, 1996).
- [41] M. Sudzius, V. G. Lyssenko, F. Löser, K. Leo, M. M. Dignam, and K. Köhler, *Phys. Rev. B* **57**, R12693 (1998).
- [42] T. Hasegawa and M. Nakayama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, 8340 (2005).
- [43] T. Hasegawa and M. Nakayama, *J. Lumin.* **122-123**, 841 (2007).
- [44] T. Hasegawa and M. Nakayama, *J. Appl. Phys.* **101**, 043512 (2007).
- [45] T. Hasegawa, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, *Phys. Rev. B* **76**, 115323 (2007).
- [46] T. Hasegawa, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, *Phys. Stat. Sol. (c)* **5**, 203 (2008).
- [47] D. C. Hutchings, *Appl. Phys. Lett.* **55**, 1082 (1989).
- [48] M. Nakayama, I. Tanaka, T. Doguchi, H. Nishimura, K. Kawashima, and K. Fujiwara, *Solid State Commun.* **77**, 303 (1991).
- [49] D. E. Aspnes, *Surf. Sci.* **37**, 418 (1973).
- [50] B. V. Shanabrook, O. J. Glembocki, and W. T. Beard, *Phys. Rev. B* **35**, 2540 (1987).

- [51] K. Gibb, M. M. Dignam, J. E. Sipe, and A. P. Roth, *Phys. Rev. B* **48**, 8156 (1993).
- [52] K. H. Schmidt, N. Linder, G. H. Döhler, H. T. Grahn, K. Ploog, and H. Schneider, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2769 (1994).
- [53] H. Schneider and K. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **58**, 1994 (1991).
- [54] J. E. Zucker, A. Pinczuk, D. S. Chemla, A. Gossard, and W. Wiegmann, *Phys. Rev. B* **29**, 7065 (1984).
- [55] F. C. Zhang, N. Dai, H. Luo, N. Samarth, M. Dobrowolska, J. K. Furdyna, and L. R. Ram-Mohan, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3220 (1992).
- [56] M. Dignam, J. E. Sipe, and J. Shah, *Phys. Rev. B* **49**, 10502 (1994).
- [57] J. Bleuse, G. Bastard, and P. Voisin, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 220 (1988).
- [58] I. Tanaka, M. Nakayama, H. Nishimura, K. Kawashima, and K. Fujiwara, *Solid State Commun.* **92**, 385 (1994).
- [59] P. Feuer, *Phys. Rev.* **88**, 92 (1952).
- [60] G. C. Cho, W. Kütt, and H. Kurz, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 764 (1990).
- [61] G. Bartels, G. C. Cho, T. Dekorsy, H. Kurz, A. Stahl, and K. Köhler, *Phys. Rev. B* **55**, 16404 (1997).
- [62] T. Hasegawa, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, *J. Lumin.* **128**, 1056 (2008).
- [63] K. Leo, J. Shah, E. O. Göbel, T. C. Damen, S. Schmitt-Rink, W. Schäfer, and K. Köhler, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 201 (1991).
- [64] K. Leo, J. Shah, T. C. Damen, A. Schulze, T. Meier, S. Schmitt-Rink, P. Thomas, E. O. Göbel, S. L. Chuang, M. S. C. Luo, W. Schäfer, K. Köhler, and P. Ganser, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-28**, 2498 (1992).