

GaAs/AlAs 超格子における弱局在条件でのブロッホ振動

長谷川 尊之^A、溝口 幸司^B、中山 正昭^A

大阪市立大学大学院工学研究科電子情報系専攻^A

大阪府立大学大学院理学系研究科物理学専攻^B

Bloch oscillation under a weak-localization regime in a GaAs/AlAs superlattice

Takayuki Hasegawa, Kohji Mizoguchi, and Masaaki Nakayama

Department of Applied Physics, Osaka City University^A

Department of Physical Science, Osaka Prefecture University^B

We have investigated the coherent dynamics of excitonic wave packets from the viewpoint of the electric-field-induced transformation from the minibands to the Wannier-Stark (WS) localization in a GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) superlattice embedded in a *p-i-n* diode structure with the use of a reflection-type pump-probe technique. It is clearly confirmed that the coherent-dynamics profile changes from the quantum beat of the miniband excitons to the Bloch oscillation in the WS localization with an increase in an applied bias voltage producing an internal electric field. The key finding is that the Bloch oscillation with the extraordinary frequency of $\nu_{\text{BO}}=2eFD/h$ appears in a weak localization regime in addition to the ordinary Bloch oscillation with $\nu_{\text{BO}}=eFD/h$ in a strong localization regime, where F is the electric field, and D is the superlattice period. The experimental results of the coherent dynamics are reasonably explained by the electric-field-strength dependence of the excitonic-transition energies observed by electroreflectance spectroscopy and that of the localization profiles of the envelope functions of the electron and hole states calculated by a transfer-matrix method.

1. はじめに

ブロッホ振動 (BO) は、複数のワニエ・シュタルク (WS) 局在状態の重ね合わせから成る電子波束が、超格子 (SL) 内をコヒーレントに振動する現象であり、そのコヒーレントダイナミクスを対象として、今日まで様々な研究が行われてきた[1-3]。BO 条件下での電子波束は、テラヘルツ (THz: 1 THz=10¹² Hz) 領域の電磁波を発生することが知られており、電場強度 (印加電圧) で振動数を制御できることから、チューナブルな THz 発生源として、応用の観点からも注目されている[2]。WS 局在は、SL の積層方向の電場 (F) による包絡波動関数の局在に相当し、バンド間シュタルク階段遷移を引き起こす ($E_m=E_0 \pm meFD$, $m=0, 1, 2, \dots$; D は SL 周期、 m はシュタルク階段指数) [4, 5]。BO 波束は、複数のシュタルク階段遷移を広いスペクトル幅を有する超短光パルスでコヒーレントに同時励起することで生成され、その振動数 ($\nu_{\text{BO}}=eFD/h$) は、最近接量子井戸 (QW) 層に属する WS 局在状態間の量子ビート (QB) の振動数に対応する。従来の BO の研究は、WS 局在状態が十分に局在した高電

場領域に焦点を置いており、ミニバンドから WS 局在状態への移行過程[6]における BO 波束ダイナミクスはほとんど未解明である。この移行過程において、包絡波動関数は非常に複雑な局在性を示し、シュタルク階段遷移の遷移確率が電場に対して大きく変化する。(詳細は図1で議論)

本研究では、GaAs/AlAs SL を試料とし、ミニバンドから WS 局在への移行過程における BO 波束ダイナミクスを、時間分解反射型ポンプ-プローブ (PP) 分光法を駆使し、WS 局在状態の局在性の観点から明らかに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電場変調反射 (ER) 分光法[7]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 (TM) 法[5]により計算した WS 局在条件下での包絡波動関数の局在性に基づいて解析した。その結果、ミニバンド励起子 QB 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特性に起因した $2eFD/h$ の振動数を有する特異な BO が生じることを見出した。

2. 試料作製と実験方法

試料は、分子線エピタキシー法を用いて作製した 100 周期の GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) SL を p - i - n 構造に埋め込んだものである (i が SL 層)。QB と BO の時間領域信号は、Ti:sapphire パルスレーザー (パルス幅: ~ 70 fs, スペクトル幅: ~ 30 meV, 繰り返し周期: 80 MHz) を用いた時間分解反射型 PP 分光法により観測した。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 3.0 mW に固定した。ER 分光の測定において、プローブ光は 100 W のハロゲンランプを分光器 (スペクトル分解能 ~ 5 Å) で単色化したものを用いた。また、電場変調に関しては、DC バイアスを中心に微小な AC バイアスを重畳して行った。反射光の変調成分は、ロックインアンプにより検出した。ER 測定条件における内部電場 F は、 $F=(V_b-V_a)/L$ の式から見積もった。ここで、 V_b は p - n 接合による拡散電位 (この試料では 0.9 V)、 V_a は逆方向バイアス電圧、 L は真性層の長さである。実験はすべて 10 K で行った。

3. 実験結果と考察

はじめに、本研究で用いた SL における包絡波動関数の局在性の電場強度依存性を明確にするために、TM 法による WS 局在状態の計算結果を示す。計算モデルとして、SL を 13 周期の GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) として、静電ポテンシャルをステップ関数的に組み込んだ[5]。計算で用いた有効質量とバンドオフセット比は、文献[6]から引用した。尚、GaAs QW 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、作製条件の値からわずかに変化させた。

図 1 は、WS 局在条件での第 1 量子化 ($n=1$) 電子状態 (E1) と $n=1$ 重い正孔 (HH1) 状態の包絡波動関数の重なり積分 2 乗値 ($I[E1(m)$ -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 QW ($m=0$) から m 周期離れた QW に属する WS 局在状態を示しており、+(-) の符号は、高(低)ポテンシャル側の QW 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 (~ 5 kV/cm) で完全に局在するために、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、

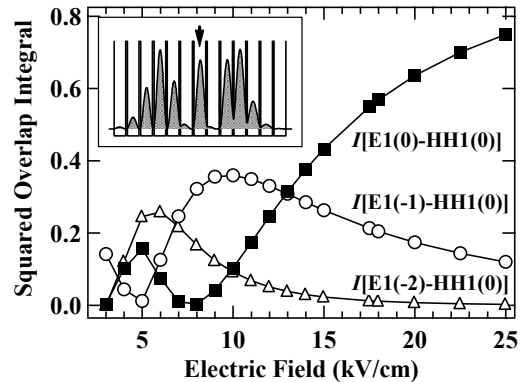


図 1 GaAs (6.4 nm)/AlAs (0.9 nm) 超格子における電子・正孔包絡波動関数の重なり積分の 2 乗値。挿入図は、5 kV/cm における電子包絡波動関数の確率密度。

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[9]。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 1 に示す様に、 $I[E1(0)$ -HH1(0)]と $I[E1(-1)$ -HH1(0)]の値は、10 kV/cm 以上で大きな値を示している。これは、 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 BO の出現が期待される。注目すべきことは、電場強度の低下に伴って、 $I[E1(-2)$ -HH1(0)]の値が大きくなり、6 kV/cm 近傍では、 $I[E1(-1)$ -HH1(0)]よりも大きな

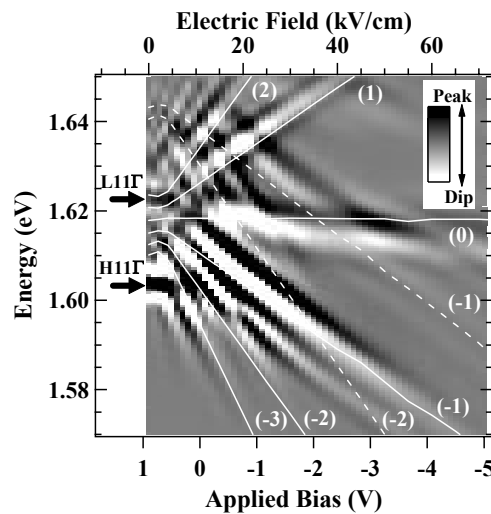


図 2 電場変調反射スペクトルの電場強度依存性のイメージマップ。

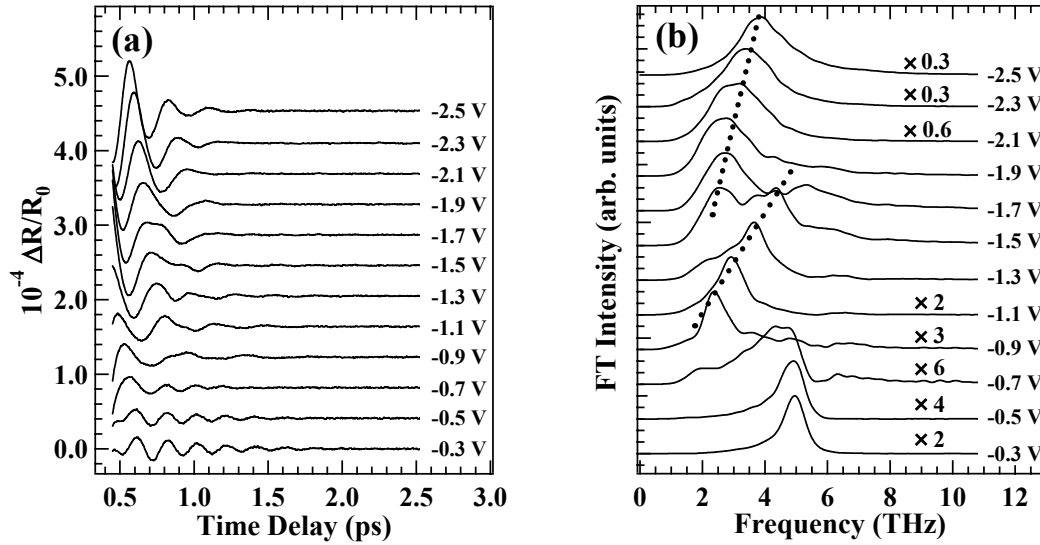


図 3 (a) 時間分解反射率変化信号、及び、(b) 図 3(a)のフーリエ変換スペクトルの印加電圧依存性。

値を示すことである。このことは、第2近接QW層における電子包絡波動関数の確率密度が、第1近接QWのものよりも高いことを意味している。その例として、図1の挿絵に5 kV/cmにおける電子包絡波動関数の確率密度を示す。この電場領域においては、電子包絡波動関数の確率密度を反映して、 $m=0$ と -2 のシュタルク階段遷移が選択的に励起されるために、E1(-2)とE1(0)のWS局在状態の量子干渉が生じると予測される。すなわち、振動数が $2eFD/h$ に依存する特異なBOの出現が期待できる。これが、本研究における重要な点である。

図2は、ERスペクトルの電場強度(印加電圧)依存性をイメージマップでまとめたものである。図2において、ER信号の強度は、右側のグレースケールで示しており、実線および破線は、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 Γ (L11 Γ)で表記された左側の矢印は、Kronig-Penneyモデルで計算したゼロ電場条件におけるミニバンドの Γ 点でのH11(L11)遷移のエネルギーである。図2から、電場強度の増加に伴って、H11 Γ (L11 Γ)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。PP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 Γ (L11 Γ)遷移を、WS局在条件では $m=0, -1, -2$ のH11(m)遷移を同時に励起できる。

図3は、(a)時間分解反射率変化信号、及び、(b)図3(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。ここで、PP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。図3から明らかな様に、 $-0.3 \sim -0.7$ 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 ~ 4.9 THzであり、これは0 kV/cmでのERスペクトルから見積もったH11 Γ -L11 Γ 励起子間のQBの期待値(4.8 THz)と一致する。それ故、このコヒーレント振動は、ミニバンド励起子によるQBである。つまり、このQB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1で説明した様に、弱局在条件では第2近接QW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QB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BOの出現が期待できる。図3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、

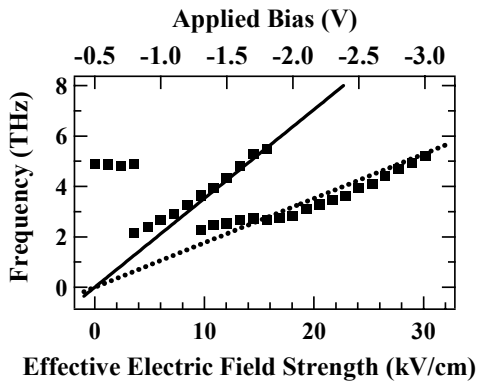


図 4 図 3(b)から見積もった振動数の有効電場強度 (印加電圧) 依存性。

-1.5 V での FT スペクトルは、明確なダブルレット構造を有している。以上の実験結果は、図 1 に示す包絡波動関数の局在性の電場強度依存性から予測した 2 種類 BO 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 BO が出現し、局在性の増加に伴って、通常の BO 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 は、FT スペクトルから見積もった振動数を有効電場強度 (上側の軸は印加電圧を示す) に対してプロットしたものである。有効電場強度 F_e は、 $F_e = [(V_b - V_a) - 1.4]$ の式により計算した。ここで、1.4 V のオフセット値は、内部電場のクーロン遮蔽を現象論的に取り込んだものであり、 $2eF_e D/h$ (実線) および $eF_e D/h$ (点線) の計算スロープが実験結果に最も良く一致する様にした。図 4 から、ミニバンド励起子の QB は、 $F_e = 4$ kV/cm 近傍で消失しており、これは図 2 に示す H11 Γ (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。このことは、有効電場強度の見積もりが適切であることを実証している。つまり、 $F_e = 4$ kV/cm において、ミニバンド状態が破綻して H11(0) および H11(-2) 励起子の量子干渉からなる特異な BO ($\nu_{2BO} = 2eFD/h$) が生じ、続いて 10 kV/cm 近傍から、通常の BO ($\nu_{BO} = eFD/h$) へと移行していると結論できる。さらに、図 4 の 12 kV/cm 近傍において、振動数が $2eFD/h$ と eFD/h の 2 種類の BO が共存していることが分かる。これは、図 2 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ものである。

4. まとめ

GaAs (6.8 nm)/AlAs (0.9 nm) SL 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 BO 波束のコヒーレントダイナミクスを詳細に研究した。系統的な PP 分光の測定結果から、ミニバンド励起子の QB が消失した直後の電場強度において (弱局在領域)、振動数が $2eFD/h$ に依存する特異な BO 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、特異な BO から従来の BO へと移行していくことを実証した。この様なミニバンド励起子 QB から BO 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。さらに、本研究の知見は、新たな波長可変 THz 電磁波源の開拓に繋がるものである。

参考文献

- [1] 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).
- [2] C. Waschke, H. G. Roskos, R. Schwedler, K. Leo, H. Kurz, and K. Köhler, Phys. Rev. Lett. **70**, 3319 (1993).
- [3] For a review, K. Leo, *High-Field Transport in Semiconductor Superlattices*, (Springer, Berlin, 2003).
- [4] E. E. Mendez, F. Agulló-Rueda, and J. M. Hong, Phys. Rev. Lett. **60**, 2426 (1988).
- [5] For a review, M. Nakayama, *Optical Properties of Low-Dimensional Materials*, (World Scientific, Singapore, 1995), Chap. 3, p. 197.
- [6] T. Hasegawa and M. Nakayama, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 8340 (2005).
- [7] T. Hasegawa and M. Nakayama, J. Appl. Phys. **101**, 043512 (2007).
- [8] T. Hasegawa, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, Phys. Rev. B **76**, 115323 (2007).
- [9] M. Dignam, J. E. Sipe, and J. Shah, Phys. Rev. B **49**, 10502 (1994).
- [10] K. Leo, J. Shah, E. O. Göbel, T. C. Damen, S. Schmitt-Rink, W. Schäfer, and K. Köhler, Phys. Rev. Lett. **66**, 201 (1991).