テラヘルツ波駆動半導体超格子における光着衣電子・正孔系の擬エネルギー構造と光制御

日野 健一、前島 展也

1. 研究背景

光と電子系が相互作用する際、光子場強度が大きくなるにつれて遷移確率がより減少したり消失 するというような逆説的な予見が行われている。このような効果は、とりわけ、光媒介トンネリン グ(PAT)と呼ばれる現象において顕著に現れる。これは、通常のトンネル現象に際して光の吸収・ 放出が介在することによって、電子トンネリングの確率が変調する現象である。特に、ある特定の 条件下でトンネル確率が零になる動的局在(DL)はPATの最も特徴的な現象である。PATやDLの研究 は、超伝導Josephson接合(S-I-S接合)におけるマイクロ波照射下でのクーパー対のトンネル現象や 振動磁場下での原子の超微細構造におけるLandé *g*-因子の磁場繰り込み効果に始まる。これらは、 近年、半導体超格子(SL)系における電気伝導特性や冷却原子系から成る光超格子において実験的に 検証されている。

ところで、最近の高パワーTHz波光源の技術開発に伴い、テラヘルツ(THz)波に励起された半導体 ナノ構造での量子ダイナミックスの研究が進展してきている。光子場が強くなるに従い光-電子系を 非摂動的に扱う必要があり、これを光の衣を纏った光着衣電子状態とみなす描像が有効になる。と りわけ、光子場が時間周期性を有する場合、これはFloquet状態と呼ばれ、良い量子数として擬エネ ルギーを有するので、擬定常状態と考えることができる。

本研究の物理系は、THz領域の周波数をもつ単色レーザー光に駆動された半導体超格子(SL)である。ここでは、積層方向に静電場および駆動レーザー電場を印加したSLを対象とし、これを(静電場が無印加の場合も含めて)動的Wannier-Stark階段(DWSL)と呼ぶ。この系では、駆動レーザーのピーク電場、周波数、位相によってSLサイト間の結合の強さを変調できるので、キャリアの電気伝導度や擬エネルギーミニバンド幅が自在に制御可能になる。これはPATの一種であり、とりわけ、DLという現象の発現は注目すべきである。しかしながら、DWSLの研究は限定的であり、特に、高駆動レーザー電場領域(≥100 kV/cm)における研究は理論・実験ともに未踏領域といえる。

単一電子系において、駆動レーザー電場の大きさによってDWSLの物理描像は大きく変遷する。低 電場領域(10-30 kV/cm)ではパイエルス位相変換の下で単一サブバンドモデルは正当化されるが、駆 動レーザー電場が増大するとこれは破綻し、ac-Zenerトンネリング(ac-ZT)を介したサブバンド間結 合が重要になる。更に、高電場領域に入ると、結合するサブバンド数は(連続状態も含め)無数にな り、有限数のサブバンド間結合の描像も破綻する。このような相互作用するDWSLは、厳密な意味で の擬エネルギーバンド構造を形成せず、Floquet状態は不安定化し有限の寿命で崩壊すると考えられ る。さらに、このような光着衣電子・正孔系が励起子(光着衣励起子)状態を形成すると、励起子束 縛準位は常に着衣電子・正孔のジョイントサブバンドに埋もれるため、やはり不安定化すると考え られる。よって、駆動レーザー電場強度によって光着衣励起子のスペクトル構造が顕著に変調する と考えられる。

このような多彩な物理を内包する光着衣電子・正孔のDWSLの問題を理解するためには、駆動レー ザー電場の大きさに依存しない統一的な理論を構築する必要がある。

2. 研究目的

本研究では、相互作用する DWSL の問題を多チャンネル散乱問題に帰着させることで駆動レーザー 電場の大きさに依存しない理論を構築する。さらに、この理論を光着衣電子系および光着衣励起子 系に適用して、これらの擬エネルギー共鳴状態とその安定性(寿命)を調べ、内在する物理とその量 子制御の可能性を探索する。

3. 研究方法

(1)数 100kV/cm 程度のピーク電場を有する強い THz 領域の光子場に駆動された半導体超格子を対象 として、PAT や DL における Floquet 電子(光着衣電子)状態の共鳴構造の安定性を、R 行列 Floquet 理論に基づく多チャンネル散乱理論によって解析する。一般に、ある程度強い駆動レーザー電場下 の光着衣電子は、ac-ZTによって全空間に非局在化し得るので、そのFloquet状態は時間に依存する 散乱状態である。しかしながら、無限遠方での空間領域においても光-電子相互作用は消失せずに存 在するので、このままでは散乱問題が設定できない。そこで、レーザー振動数で回転する座標系へ の変換(Kramers-Henneberger 変換)を行うことで、この問題をFloquet状態の擬エネルギーに対す る「時間に依存しない」多チャンネル散乱問題へと帰着する。散乱座標を複数のセクターに分割し、 各セクターでの有限領域で求めた Green 関数によって、R 行列(波動関数ベクトルの対数微分行列の 逆行列)を隣接するセクターへ伝搬する方法をR 行列伝搬法という。これは、高効率性、高安定性、 並びに高精度の面を併せ持つ最も洗練された多チャンネル散乱問題の数値解法である。この手法に よって散乱行列を求め、遅延時間スペクトルなど目的の物理量を導く。遅延時間スペクトルとは、 擬エネルギーに対する光着衣電子の寿命または状態密度に対応する量である。

さらに、この方法を Floquet 励起子(光着衣励起子)状態の問題へと拡張し、遅延時間スペクトルや弱プローブ光照射における光吸収スペクトルを求める。

4. <u>結果および考察</u>

(1) 光着衣電子における動的 Fano 共鳴 [1-3]

ここでは、SLの積層方向に静電場とTHz 波(振幅 F_i および振動数 ω の単色光)が印加されている系(DWSL)を考察する。ただし、Bloch 周波数(Ω)と ω の比 $\zeta=\Omega/\omega$ は正の整数とする。駆動 THz 波の強度が大きくなるにつれて、ミニバンド間結合やそれに伴う電子の連続帯ミニバンドへの励起がより

重要になってくる。この系では、ミニバンド間結合 として、dc 電場および ac 電場に起因するそれぞれ dc- Zener トンネリング (dc-ZT) および ac-ZT の 二つの効果が共存する。ミニバンドのラベルをん 光子サイドバンド指数を *j*とすると、当該の光着 衣状態は量子数(b, j)で表される多重項構造を有 し、隣接する光子サイドバンドはお互いに ac-ZT に よって結合する。とりわけ、THz 波の強度が大きく なり DL が発現する際、親バンド(1,0)は、隣接する バンド($b \ge 2$, $j \le -1$)と擬エネルギー(E)的に縮 退し、Fano 共鳴(FR) に類似した現象が引き起こ される。これを「動的 FR (DFR) | と呼ぶ。重要な ことは、静的な結合に起因する従来のFRとは異な って、DFR を支配する ac-ZT 結合は、THz 波の電場 強度や周波数によって変調可能であることであ る。この意味において、DFR は、超冷却原子系の強 結合 Bose-Einstein 凝縮体における光 Feshbach 共 鳴と類似した効果とみなせる。

図1に、 ζ =2において、静電場 104.5 kV/cm下 SL:35/11ML-GaAs/Ga_{0.75}Al_{0.25}As において、様々な ponderomotive 半径 α = $F_i/m_e\omega^2$ に対する過剰状態密 度 $\rho^{(ex)}(E)$ の計算結果を示す。これは、ある擬エネ ルギーE における系の崩壊寿命に対応する物理量 である。ここで、 α は THz 電場下での電子の古典的 周期運動の軌道半径に対応し、 m_e は電子の有効質 量である。DFR によって、従来非常に安定と考えられ ていた DL 状態[α =108.2 (a. u.)]が不安定化している ことが分かった。



図1. α=1~108.2における擬エネルギーEに 対する過剰状態密度p^(ex)(E)。

(2) フラクショナルDWSLにおける共鳴構造 [4] ここでは、Cが有理数のDWSLを考える。単一ミ ニバンドにおける強束縛模型によると、ζが整数 の場合と異なり、この系では隣接するWSLサイト 間のエネルギー差Ωが、整数個の光子の吸収・放 出過程と非共鳴になるため、PATの効果が抑制さ れる。それゆえ、Floquet状態にミニバンド構造が 形成されたり、DLが発現したりすることはない。 しかしながら、その擬エネルギー構造は特徴的な フラクタル性を示すことが知られている。ところ で、駆動光子場が強くなるに従い、ac-ZTによっ て単一ミニバンド模型は破綻する。さらに、強束 縛模型ではDWSLの共鳴構造を正確には記述し得 ない。そこで、より正確な理論である散乱理論を 適用することによって、この系の擬エネルギー構 造と寿命を解析した。ここでは、問題の簡単化の ため、高周波数近似(ω>> I_p, ここで、I_pはイオン 化ポテンシャル)の適用範囲で数値計算を行った。 図2に、静電場122 kV/cm SL: 35/7ML-



図2. $\alpha = 1 \sim 25$ における擬エネルギー*E*に対する WSLの寿命 $\tau(E)$ 。Inset: α に対する共鳴位置の 変化。

GaAs/Ga0.75A10.25Asにおけるζ=2/3のときのDWSLの寿命τ(E)を示す。αが大きくなるにつれて、共鳴状態のピーク位置が振動しながら、赤方偏移することが分かる。また、それに付随してDWSLの寿命も短くなることが分かる。上記の特異な振動は、元々のWSLのポテンシャルに光子場を繰り込んだ光着衣ポテンシャルによって理解できる。図2の結果は、ζが有理数のDWSLにおいては、たとえ光子場が強くなくても、従来の単純な模型は破綻し、特徴的なフラクタル性も厳密には成立しないことを示している。

(3) 光着衣励起子における動的Fano共鳴 [5]

光着衣電子・正孔多体系と関連する過渡的量子ダ イナミックスの問題を扱う一環として、THz駆動下の 超格子における光着衣励起子の擬エネルギー状態(擬定常状態)の解析を行う。この系では、第1ミニバ ンド起因フォトンサイドバンドに形成される励起子 離散状態は、ac-ZTおよびクーロン結合を介した動的 な結合により、上位のサイドバンドの励起子連続状 熊と相互作用をし、DFRを発現すると考えられる。こ の系にR行列Floquet理論を適用し、多チャンネル散 乱問題として数値解析を行う。ピーク電場Eac=50-450kV/cm、 ω =93meVのレーザーに駆動された SL:35/11ML-GaAs/Ga0.75Alo.25Asに、さらに,弱プロー ブを照射したときの光着衣励起子の吸収スペクトル の計算結果を図3に示す。Eac=50kV/cmにおいて、励起 子スペクトル形状はほぼ対称であり、FRはまだ支配 的ではない。しかるに、 E_a=200kV/cm以上になると 、非対称形状を有する励起子DFRが発現し、その共鳴 位置および非対称性の程度がEacによって大きく変化す ることが分かった。この結果は、光により励起子の電 子状態を量子制御できる可能性を示している。



図3. 光着衣励起子の吸収スペクトル。ここで、自然スペクトルに、1meVの均一広がりをたたみ込んでいる。

謝辞

本研究は、JSPS KAKENHI Grants (No. JP21104504) による研究費支援の基に行われた。

関連論文

- [1] A. Kukuu, T. Amano, T. Karasawa, N. Maeshima, and K. Hino, "Instability of dynamic localization in the intense terahertz-driven semiconductor Wannier-Stark ladder due to the dynamic Fano resonance", Phys. Rev. B 82, 115315_1-10 (2010). <u>https://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.3666475</u>
- [2] Yuya Nemoto, Ken-ichi Hino, and Nobuya Maeshima, "Quasienergy Resonance in Dynamic Wannier-Stark Ladder", Phys. Rev. B 87, 205305 1-14 (2013). <u>https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.20530</u>
- [3] Yuya Nemoto, "Theoretical Study of Resonance Structure in Dynamic Wannier-Stark Ladder Driven by Intense Terahertz Laser" (Doctoral Dissertation, University of Tsukuba, 2015).
- [4] T. Karasawa, N. Maeshima, and K. Hino, "Resonance Structure of Dynamic Fractional Stark Ladders in Laser-Driven Biased Superlattices", Solid State Communications 151, 392-297 (2011). <u>https://doi.org/10.1016/j.ssc.2010.12.011</u>
- [5] Nobuya Maeshima, and Ken-ichi Hino, "Dynamical Fano resonance of an exciton in laser-driven semiconductor superlattices", Phys. Rev. B 85, 205305_1-9 (2012). <u>https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.205305</u>