

テラヘルツ量子カスケードレーザーを用いた半導体磁気光学

河野 淳一郎

ライス大学電気・コンピュータ学科(米国テキサス州ヒューストン市)

Magneto-Optical Spectroscopy of Semiconductors Using Terahertz Quantum Cascade Lasers

Junichiro KONO

Department of Electrical and Computer Engineering, Rice University, Houston, Texas 77005, U.S.A.

(Received October 7, 2005)

We have used quantum-cascade lasers operating at 4.7 THz, 3.5 THz, and 2.3 THz to perform THz magneto-optical studies of semiconductors. We observed cyclotron resonance in InAs and InSb quantum wells from liquid-helium temperatures to room temperature. This represents the first spectroscopic application of THz quantum-cascade lasers. Results show that these compact lasers are convenient and reliable sources with adequate power and stability for this type of far-infrared magneto-optical study of solids. Their compactness promises interesting future applications in solid-state spectroscopy. As an example, the development of an ultracompact optically-detected THz resonance spectroscopy system will be described.

Key Words: Quantum cascade lasers, THz magneto-optical spectroscopy, Cyclotron resonance, Semiconductors

1. はじめに

過去数年の間、テラヘルツ帯域(周波数0.4-40 THz, 波長30-3000 μm , 光子エネルギー0.4-40 MeV)において作動する量子カスケードレーザーが開発された¹⁻³⁾。これは、高性能固体素子を欠き「テクノロジーギャップ」⁴⁾ともよばれる未開発周波数帯を埋めるための非常に画期的な進歩である。このようなコンパクトな固体テラヘルツ光源には様々なセンシングやイメージングの応用が期待されている⁵⁾。本稿では、テラヘルツ量子カスケードレーザーの固体物性実験への応用の最初の例として、固体における典型的なTHz励起の一つである半導体サイクロトロン共鳴(CR)の実験について紹介する⁶⁾。

2. 量子カスケードレーザーの特徴

中赤外領域で動作する量子カスケードレーザーの技術は非常に発達しており、例えばガスや化学物質の検知の応用において 10^{-4} から 10^{-6} の高感度を達成している⁷⁻⁹⁾。そのような応用分野においては、波長可変性、高出力、および単一モード発振が不可欠である。一方、固体のテラヘルツ分光の応用においては、狭い線幅はそれほど重要ではない。なぜなら、固体中での共鳴は原子・分子気体中での共鳴に比べものすごく広い共鳴線幅を持っているからである。従って、波長掃引によるテラヘルツスペクトロスコピーを固体中で行おうとすれば、まず不可能であろうほど広い帯域での波長連続可変性を要求される。しかしながら、この問題は、電場や磁場、電圧、または

温度のような他の実験パラメーターをスキャンすることによって回避できる。我々はテラヘルツ透過光強度を磁場の関数として測定することにより、サイクロトロン共鳴の実験を行った。以下に示すように、テラヘルツカスケードレーザーは、使いやすく、強度・波長の安定性もあり、また線形光実験を高い信号・ノイズ比で行うのに十分なパワーを持つ。さらに、他のテラヘルツ光源・分光器(例えば、フーリエ変換赤外分光器(FTIR)、自由電子レーザー(FEL)、二酸化炭素レーザーポンプ分子ガスレーザー、差周波発生器、光パラメトリック発振器)と比べてはるかにコンパクトであり、空間に制限があるような応用においては有益である。

3. 実験方法

サイクロトロン共鳴は、半導体のバンドパラメーター(特にバンド端での有効質量)を決定するための非常に便利で有益な方法である¹⁰⁾。また、キャリアの散乱確率、電子・フォノン相互作用、様々な多体効果を調べるのにも有用である。入射光の波長または印加磁場の強度の関数として試料を透過した電磁波を測定することによって共鳴を検出する。共鳴のエネルギーは、 $\omega_c = eB/m^*$ (ω_c はサイクロトロン周波数、 e は電子の電荷、 m^* は電荷キャリアの有効質量)で与えられ、磁場 B に比例して増加する。典型的な実験系では、上述のTHz光源の一つと超伝導磁石を組み合わせ、低温・強磁場下でTHz分光を行う。

我々は、約4 mWの最大cwパワーで4.7テラヘルツ(64 μm)や2.3テラヘルツ(127 μm)の発振周波数を持つGaAs/

AlGaAs QCLs²⁾を光源として用いた．25%のオン・オフ比，135 Hzの繰り返し周波数でパルス移動した．試料はz-cutクォーツ光学窓 ($f/2.4$)を持つ10テスラ超伝導磁石内に置かれた．THzビームはパラボリックミラー対によってフォーカス・集光され，最終的に液体ヘリウム温度のシリコンポロメーターによって検出された．大気中での吸収を防ぐため，光路内は乾燥した窒素でバージした．レーザーの波長ドリフトは30秒間に約20 MHz，また，サイクロトロン共鳴測定中の長期的波長ドリフトも小さく，重要ではなかった．短期の強度揺らぎは1秒の間に約0.5%であり，長期の強度揺らぎは湿度の揺らぎ以外は観測されなかった．試料としては以下の二つの異なる二次元電子系を用いた：(1) $1.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ の総電子密度と $120,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ の移動度を持つ20周期InAs/AlSb多重量子井戸，そして(2) $100,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ の移動度をもつ単一30-nm InSb/Al_{0.09}In_{0.91}Sb量子井戸．

4. 実験結果

Fig. 1は，60から300 Kの温度でのInAs量子井戸における4.7 THzビームの透過の地盤依存性を示している．1.5 Kにおける共鳴磁場の光周波数依存性と，4.7 THzにおけるサイクロトロン質量の温度依存性は，それぞれFig. 2(a)，Fig. 2(b)に示されている．Fig. 2(a)における直線は1.51 (T/THz)の傾斜を持ち，有効質量 $0.042m_0$ ($m_0 = 9.1 \times 10^{-31} \text{ kg}$: 真空での自由電子質量)に相当する．8バンドk, pモデルに基づいたランダウ準位の計算およびシュブニコフ・ドハース振動から求められた電子密度から，4.7 THzにおける共鳴は(2,) (3,)の遷移として理解できる．(これらの数値はランダウ指数であり， \uparrow はスピンの向きを表している)．Fig. 2(b)に示すように，観測されたサイクロトロン質量は温度の上昇に伴い増加するが，これは理論から単純に予想される動きと全く逆である．バンドギャップは温度の上昇に伴い減少するので，有効質

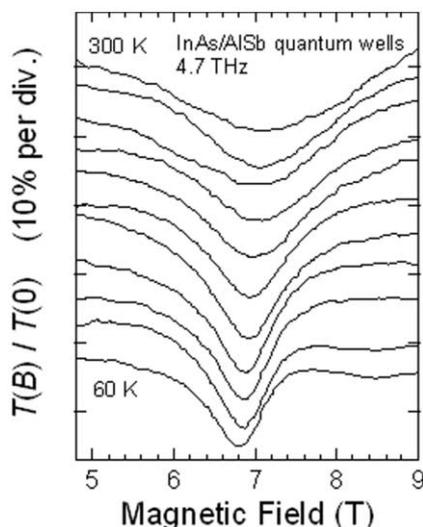


Fig. 1 Cyclotron resonance spectra for InAs/AlSb quantum wells at various temperatures (60-300 K), taken with a 4.7 THz quantum cascade laser.

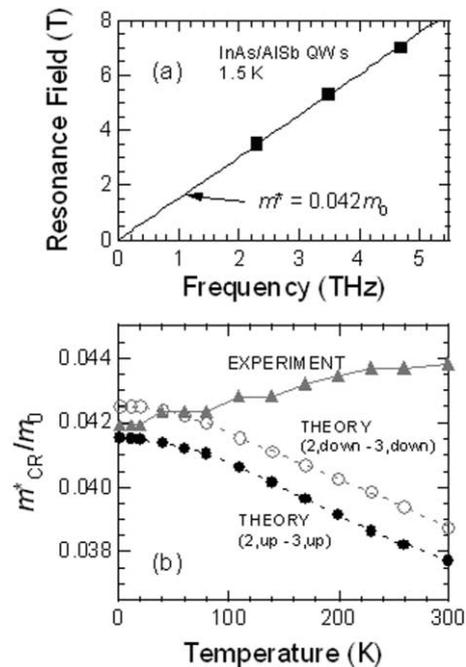


Fig. 2 (a) Resonance field as a function of photon frequency at 1.5 K for the InAs/AlSb quantum wells. The straight line has a slope of 1.51 T/THz, corresponding to an effective mass of 0.042 m_0 . (b) Cyclotron mass versus temperature at 4.7 THz for the InAs/AlSb quantum wells. The experimental mass (triangles) increases with increasing temperature, whereas the theoretical masses (open and filled circles) for two possible CR transitions show the opposite behavior.

量は伝導帯と価電子帯の間の反発の増加のために減少するべきである．この意外な温度依存性を強調するために，Fig. 2(b)に二つの理論曲線を示す．これらの曲線はそれぞれ(2,) (3,)と(2,) (3,)の遷移に相当しており，歪や量子閉じ込め，バンドギャップの温度への依存性をを含む修正されたPidgeon-Brownモデル¹¹⁾によって計算された．共鳴の線幅は高温では明らかに幅が広く，さらに高いランダウレベルでの遷移(例えば3から4)が起き，高い質量に貢献するのをもっともである．また，他のバンドパラメーター(特にいわゆる'F-パラメーター')の温度依存性および温度に依存した電子・格子相互作用の効果なども観測されるサイクロトロン質量に影響することが考えられる．これらを考慮に入れたランダウ順位の計算は現在進行中である．

サイクロトロン共鳴における非線形現象¹²⁻¹⁴⁾を探索するために，我々は次にテラヘルツ強度依存性を調べた．InSb量子井戸に対する結果をFig. 3に示す．ここでは4.7 THz QCLが使われ，試料温度は1.5 Kであった．ここで，InSbの伝導帯の大きな非放物線性のために，スペクトルは3.13 Tと3.34 Tの二箇所に共鳴を持つ．二つのデータは二つの強度(約50 $\mu\text{W}/\text{cm}^2$ と約50 mW/cm^2)に対応するが，二つとも全く同じであり，共鳴飽和のきざしはまったく見えない．これは，強度50 mW/cm^2 がまだサイクロトロン共鳴飽和強度に満たないことを意味する．参考までに，バルクInSbのサイクロトロン共鳴の強度依存性においては，

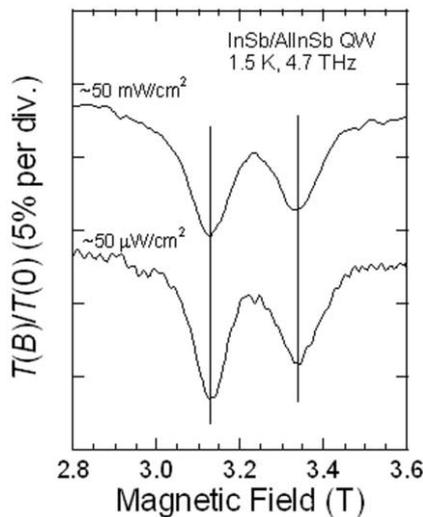


Fig. 3 Transmission as a function of magnetic field of an InSb/Al_{0.09}In_{0.91}Sb quantum well. The QCL's wavelength is 64 μm (4.7 THz), and the sample temperature is 1.5 K.

飽和状態が約 10^{-1} W/cm²で起こり始める事を示している¹⁴⁾。THz非線型効果の研究のためにはさらに高強度のTHz量子カスケードレーザーが必要である。

5. 超小型光検知THz共鳴システム

最後に、我々は、量子カスケードレーザーのコンパクトさを最大に利用した超小型の光検知THz共鳴(Optically-Detected THz Resonance: ODTR)システムを開発中である。Fig. 4の写真を見てほしい。ODTR¹⁵⁾では、THz共鳴は光ルミネセンス(以下PL)の強度が偏光の変化として検出される。典型的な半導体のPLは近赤外可視の領域で発生するので、THz共鳴を高感度の光検出器(例えば光電子増倍管)で検知する事が出来、結果的に従来のTHz分光に比べてすぐれたS/N比を得ることができる。通常のODTRシステムでは炭酸ガスレーザー励起分子ガスレーザー¹⁵⁾または自由電子レーザー¹⁶⁾を用いるが、我々はTHzソースとしてTHz QCLを使用している。Fig. 2(左)のように、QCLを直接サンプルホルダーに取り付け、レーザーと試料の間の距離、したがって強度のロス、を最小化する。QCLを冷やすために別冷却器が必要ないことはいままでのま。さらに、試料にコンタクトをつけることにより、Fig. 2(右)のように、ODTRのほか、磁場中電子輸送測定や光伝導などの複数の実験を一つのサンプルで行う事が出来る。

6. おわりに

結論として、我々は半導体における磁気光学スペクトロコピーを行うために、テラヘルツ量子カスケードレーザーを使用した。この新奇な光源は、既存の遠赤外レーザーに比べコンパクトで、コスト的にも安く、簡単に使用できる。線形光学測定を高い信号・ノイズ比で行うのに十分なパワーを有し、そのコンパクトさは新しい応用分野を期待させる。一例として、我々は目下、種々の超

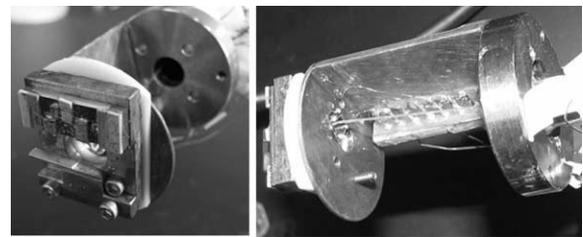


Fig. 4 (left) THz quantum cascade laser mounted on the bottom of the sample holder in a superconducting magnet. (right) Optical fiber touching the sample for maximum PL excitation/collection efficiency, together with electrical contacts for performing magneto-transport experiments.

伝導磁石中で使用できる超小型光検知THz共鳴システムを開発中である。

謝 辞

この研究は、以下の人々と共同で行われた：D. C. Larrabee, G. A. Khodaparast, F. K. Tittel, M. Rochat, L. Ajili, J. Faist, H. Beere, E. Linfield, Y. Nakajima, M. Nakai, S. Sasa, M. Inoue, S. J. Chung, M. B. Santos, R. Srivastava, and X. Wang。研究をサポートしてくれたNational Science Foundationに感謝する。

参考文献

- 1) R. Koehler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi: *Nature* **417** (2002) 156.
- 2) M. Rochat, L. Ajili, H. Willenberg, J. Faist, H. Beere, G. Davies, E. Linfield, and D. Ritchie: *Appl. Phys. Lett.* **81** (2002) 1381.
- 3) B. S. Williams, H. Callebaut, S. Kumar, Q. Hu, and J. L. Reno: *Appl. Phys. Lett.* **82** (2003) 1015.
- 4) See, e.g., *New Directions in Terahertz Technology*, edited by J. M. Chamberlain and R. E. Miles (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1997)
- 5) See, e.g., *Sensing with Terahertz Radiation*, edited by D. M. Mittleman (Springer, Berlin, 2003)
- 6) D. C. Larrabee, G. A. Khodaparast, F. K. Tittel, J. Kono, M. Rochat, L. Ajili, J. Faist, H. Beere, E. Linfield, Y. Nakajima, M. Nakai, S. Sasa, M. Inoue, S. J. Chung, and M. B. Santos: *Opt. Lett.* **29** (2004) 122.
- 7) See, e.g., F. Capasso, C. Gmachl, D. L. Sivco, and A. Y. Cho: *Phys. Today* **55**, p. 34, May 2002, and references cited therein.
- 8) A. A. Kosterev, R. F. Curl, F. K. Tittel, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho: *Optics Lett.* **24** (1999) 1762.
- 9) A. A. Kosterev and F. K. Tittel: *IEEE J. Quant. Electron.* **38** (2002) 582.
- 10) J. Kono: in: *Methods in Materials Research*, eds. E. N. Kaufmann et al. (John Wiley & Sons, New York, 2001) Unit 9b.2.
- 11) C. R. Pidgeon and R. N. Brown: *Phys. Rev.* **146** (1966) 575.
- 12) G. A. Rodríguez, R. M. Hart, A. J. Sievers, F. Keilmann, Z. Schlesinger, S. L. Wright, and W. I. Wang: *Appl. Phys. Lett.* **49** (1986) 458.
- 13) S. K. Singh, B. D. McCombe, J. Kono, S. J. Allen, Jr., I. Lo, W. C. Mitchel, and C. E. Stutz: *Phys. Rev. B* **58** (1998) 7286.
- 14) E. Gornik, T. Y. Chang, T. J. Bridges, V. T. Nguyen, J. D. McGee, and W. Müller: *Phys. Rev. Lett.* **40** (1978) 1151.
- 15) J. Kono, S. T. Lee, M. S. Salib, G. S. Herold, A. Petrou, and B. D. McCombe: *Phys. Rev.* **52** (1995) R8654.
- 16) J. Cerne, J. Kono, M. S. Sherwin, M. Sundaram, A. C. Gossard, and G. E. W. Bauer: *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 1131.