

学位論文(要約)

反転分布状態の半導体量子井戸のバンド端における
位相緩和抑制効果

(Suppression of phase relaxation at the band edge of
population-inverted semiconductor quantum wells)

平成29年12月博士(理学)申請

東京大学大学院理学系研究科

物理学専攻

中前 秀一

Abstract

近年、高密度励起された半導体電子正孔系からの異常な短パルス光発生が相次いで報告され、超放射であると主張された。しかしそのようなコヒーレント過渡現象が見られる時間の目安となる分極の位相緩和時間は、超放射様の現象が見られる反転分布領域においてほとんど調べられておらず、超放射の時間スケールとの定量的な比較もなされていない。そこで本研究では半導体量子井戸のバンド端における反転分布領域での位相緩和時間の励起密度依存性を調べることを目的とする。

本研究では反転分布領域の位相緩和時間を測定するために、二波長の同期光源を用いたプレパルス+2パルス四光波混合の実験を行った。二波長を用いることで吸収飽和を避けつつバンドの高エネルギー側にキャリアを励起し、準熱平衡状態となった高密度の光励起キャリアがフェルミ縮退し反転分布領域となったバンド端で四光波混合測定による位相緩和時間の抽出を行った。モードロックチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーの二つの光源を簡便に繰り返しを変えて同期させ、チタンサファイアレーザーに比べて1.5倍の励起密度範囲を調べた。同期のタイミングジッターを7.6 psと評価した。環境温度5 Kで幅7 nmと10.5 nmの30周期GaAs量子井戸を用い、三種類の四光波混合測定法で、励起キャリア分布が非平衡状態の低密度から中密度領域、準熱平衡状態の中密度領域、準熱平衡状態の中密度から反転分布領域を測定した。

低密度から中密度領域での位相緩和時間は、励起密度 $1.5 \times 10^9 / \text{cm}^2$ でサンプルごとに2.5 psから4.0 psとなり、励起密度 $1.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ で測定の分解能0.17 psとなるまで単調減少し、励起キャリアの非平衡、準熱平衡状態を問わずに先行研究と同様の励起密度依存性となった。

一方、励起子吸収ピークが消失し、励起キャリアが電子正孔プラズマ状態となっている準熱平衡状態、反転分布領域での位相緩和時間は、励起密度 $1.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ の測定分解能0.17 psから $8 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ の0.34 psまで増加した。反転分布領域で位相緩和時間が励起密度に対し長くなる依存性を今日始めて見出した。

得られた実験結果を理解するために、半導体Bloch方程式理論を二次摂動レベルへ発展させた第二Born近似での自由キャリア散乱の計算を行った。バンド端で位相緩和時間が励起密度に対し反転分布領域で減少から増加へと転じるという、実験結果を定性的に再現する計算結果を初めて示した。この依存性は、励起密度の増加に伴う位相空間充填効果とクーロン相互作用の遮蔽の増強によってバンド端での散乱が抑制される結果であると考えた。

本研究で得られた結果から、十分に高密度励起されフェルミ縮退した半導体量子井戸のバンド端では、400 fs程度の時間スケールで超放射のようなコヒーレント過渡現象が起こりうるということが明確に示された。

Abstract

In recent years, abnormal short pulse light generation from the highly excited semiconductor electron-hole system has been reported and claimed to be superradiance. However, the phase relaxation time of polarization, which is compared with time scale of such a coherent transient phenomena, is hardly investigated on the excitation density dependence in the population-inverted semiconductor, nor is it compared with the time scale of superradiance. In this study, the excitation density dependence of the phase relaxation time at the band edge of the population-inverted semiconductor quantum wells is investigated.

In order to measure the phase relaxation time of the population-inverted region, experiments of prepulse + 2-pulse four-wave mixing with 2 wavelength synchronous light source were carried out. Using 2 wavelengths, carriers were excited to the high energy side of the band while avoiding absorption saturation, and four-wave mixing was done at the band edge where the high-density excited carrier in the quasi-thermal equilibrium state was Fermi-degenerate and became the population-inverted distribution. The mode-locked Ti:Sa laser and the semiconductor gain-switched laser were synchronized conveniently while changing repetition, and four-wave mixing measurement was done with excitation density range 1.5 times as compared with Ti:Sa laser. The timing jitter of synchronization was evaluated as 7.6 ps. 30-period GaAs quantum wells with widths of 7 nm and 10.5 nm were used at an ambient temperature of 5 K.

In the low to medium density region, the phase relaxation time is 2.5 ps to 4.0 ps for each sample at the excitation density of $1.5 \times 10^9 / \text{cm}^2$, and decreases until the resolution of 0.17 ps at $1.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$. This dependence similar to the previous study.

In the population-inverted quasi-thermal equilibrium state region, where the exciton absorption peak disappears and the excited carriers are in the electron hole plasma state, the phase relaxation time is the resolution of 0.17 at the excitation density of $1.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ and increased to 0.34 ps at $8 \times 10^{12} / \text{cm}^2$. This dependence was found for the first time.

In order to understand the experimental results, calculation of free carrier scattering was done in the second Born approximation which is the second perturbation theory developed from the semiconductor Bloch equations. In calculation, it was first showed that the phase relaxation time changes from decrease to increase with excitation density at the band edge of population-inverted region, which qualitatively reproducing the experiment result. It is considered that this dependence is due to the phase space filling effect and the enhancement of potential screening.

From the results obtained in this study, it is clearly indicated that coherent transient phenomena such as superradiance can occur at the band edge of high-density excited Fermi-degenerate semiconductor quantum wells on the time scale of 400 fs.

目次

第1章 序論	1
1.1 研究背景	1
1.1.1 半導体での超放射	2
1.1.2 四光波混合による位相緩和時間の測定の原理	5
1.1.2.1 四光波混合の概要	6
1.1.2.2 独立した二準位系の場合	6
1.1.2.3 半導体の場合	7
1.1.2.4 量子ビート	8
1.1.3 半導体の位相緩和時間の励起密度依存性の先行研究	9
1.1.3.1 低密度領域	9
1.1.3.2 高密度領域	11
1.1.3.3 先行研究のまとめと課題	12
1.2 研究目的	14
1.3 本論文の構成	15
第2章 実験方法	17
2.1 測定試料	17
2.1.1 30周期7 nmGaAs 多重量子井戸サンプル	17
2.1.2 30周期10.5 nmGaAs 多重量子井戸サンプル	17
2.1.3 透過サンプルのプロセス、マウント	19
2.2 測定試料の光学評価	21
2.2.1 低温でのフォトルミネッセンススペクトルの測定	22
2.2.2 室温での透過率スペクトルの測定	23
2.3 励起光源	26
2.3.1 モードロックチタンサファイアレーザー光源	26
2.3.1.1 Coherent 社製 Mira 900	26
2.3.1.2 Spectra Physics 社製 Tsunami	28
2.3.2 半導体利得スイッチングレーザー光源	29
2.3.3 チタンサファイアレーザーと利得スイッチングレーザーの同期	32
2.3.4 本研究で用いた励起光源の特徴	33
2.4 測定系	35

2.4.1	四光波混合測定の概要	35
2.4.2	過渡吸収信号、スペクトル測定 of 概要	37
2.4.3	繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの測定系	38
2.4.4	繰り返し 8 MHz、バンド間プレパルスの測定系	40
2.4.5	スポット径の測定	40
2.5	励起密度の見積もり	41
2.6	過渡吸収信号の測定による励起光源の同期のタイミングジッターの評価	43
2.7	ロックイン検出法	45
第 3 章	実験結果	48
第 4 章	モデル計算	49
第 5 章	結論と展望	50
5.1	結論	50
5.2	展望	53
付 録 A	抽出された位相緩和時間の誤差	56
A.1	フィッティング方法	56
A.2	フィッティング結果	57
A.3	考察	58
付 録 B	サンプルの貼り付け方法	61
	研究発表	64
	参考文献	67

目 次

1.1	超放射の概要。(a) 基本的な超放射の特徴を示した図。(b) 典型的な超放射の実験でのエネルギー準位図	2
1.2	半導体量子ドットでの超蛍光。(a) エネルギー時間分解像。(b) ピーク強度、(c) パルス幅の励起強度依存性。	3
1.3	ランダウ量子化された量子井戸での超蛍光。(a) 実験方法。(b) 放出パルス波形の励起密度変化。(c) 吸収率変化と放出パルスの時間波形。	4
1.4	フェルミ端での超蛍光。(a) 実験方法。(b) エネルギー時間分解像。	4
1.5	半導体電流注入レーザーでの超放射。(a) マルチセクションレーザーの顕微鏡像。(b) 放出パルスの自己相関波形。	4
1.6	半導体レーザーの光強励起によるフェムト秒パルス発生。(a) 実験方法。(b) 放出パルスのエネルギー時間分解像と (c) 自己相関波形。	5
1.7	四光波混合測定系の概要	6
1.8	均一幅が支配的な場合の (a)TR-FWM、(b)TI-FWM 信号	7
1.9	不均一幅が支配的な場合の (a)TR-FWM、(b)TI-FWM 信号	7
1.10	(a)(b) 量子ビートと (c) 分極干渉	8
1.11	プレパルス + 2 パルス四光波混合による低密度領域の位相緩和時間の密度依存性 (a) 測定系、(b)GaAs バルク、(c)GaAs 単一量子井戸	10
1.12	GaAs 多重量子井戸の低密度領域の 2 パルス四光波混合の減衰の時定数の逆数の密度依存性。(a) 温度依存性。(b) 励起強度に対する時定数の飽和。	10
1.13	2 パルス四光波混合による高密度領域の位相緩和時間の密度依存性。GaAs(a) バルク、(b) 量子井戸。	11
1.14	反転分布領域でのフェルミ面での散乱抑制効果。(a) 吸収スペクトル。(b) ホールバーニング。位相緩和時間の (c) 測定結果と (d) 理論計算結果。	12
2.1	30 周期 7 nmGaAs 多重量子井戸 (MQW) サンプル構造	18
2.2	30 周期 10.5 nmGaAs 多重量子井戸 (MQW) サンプル	18
2.3	サンプルのプロセス	19
2.4	実験に用いた三つのサンプルの接着方法。(a)7 nm 量子井戸、(b)10.5 nm 量子井戸 No.1、(c)10.5 nm 量子井戸 No.2	20
2.5	サンプルのマウント	21
2.6	コールドフィンガー上の PL 測定用サンプル	21

2.7	PL 測定系。黄色が入射レーザー光、赤が対物レンズ (Objective lens) に結合したフォトルミネッセンス (PL)。Polarizer、LPF はそれぞれ偏光子、ロングパスフィルター	22
2.8	(a)7 nm 量子井戸、(b)10.5 nm 量子井戸サンプルの PL スペクトル	22
2.9	透過率測定の設定アップの写真 (a) と概要図 (b)。Pol. は偏光子	23
2.10	室温での透過率スペクトル。(a)7 nm 量子井戸サンプル、(b)10.5 nm 量子井戸サンプル No.1、(c)10.5 nm 量子井戸サンプル No.2	24
2.11	7 nm 量子井戸サンプルの室温での透過率スペクトル (青) と PL スペクトル (赤) の比較	25
2.12	(a) 7 nm 量子井戸サンプルの室温での透過率スペクトルと (b) 先行研究との比較	25
2.13	Mira 出力パルスの自己相関波形 (赤) 順、(青) 逆方向スキャン	27
2.14	Mira 出力パルスのスペクトル	27
2.15	パルスセクター出力光の自己相関波形、	28
2.16	パルスセクター出力光のスペクトル	29
2.17	(a) 半導体利得スイッチングレーザー、(b) アンプユニットの写真と (c) 内部構造	30
2.18	シードレーザーの (a) 出力スペクトル、(b) 自己相関波形	30
2.19	メインアンプの出力。(a) スペクトル。(b) 自己相関波形。(c) 強度。(d) スポット形状。	31
2.20	(a) 基本波スペクトルと (b)SHG スペクトル	32
2.21	(a) 繰り返し 10 MHz と (b) 繰り返し 100 MHz での (赤) メインアンプ出力 (青) SHG 出力 (緑) SHG 変換効率。	33
2.22	モードロック Ti:Sa レーザー (ML-Ti:Sa) と利得スイッチングレーザー (GSLD)、パルスセクターの同期	34
2.23	四光波混合測定の概要	35
2.24	バンド間プレパルスによる反転分布形成の概要図。VB:Valence band、CB:Conduction band	37
2.25	(a)PL スペクトル測定、(b) 過渡吸収信号、過渡吸収スペクトル測定の概要	38
2.26	繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの四光波混合、ポンププローブ測定系	38
2.27	LabView フロントパネル	39
2.28	繰り返し 8 MHz、バンド間プレパルスの四光波混合、ポンププローブ測定系	40
2.29	繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの測定系のサンプル位置でのスポット形状。(a)(b) \mathbf{k}_1 パルス、(c)(d) \mathbf{k}_2 パルス、(e)(f) プレパルス。(a)(c)(e) は X 方向、(b)(d)(f) は Y 方向	41
2.30	繰り返し 8 MHz、バンド間プレパルスの測定系の測定系のサンプル位置でのスポット形状。(a)(b) \mathbf{k}_1 パルス、(c)(d) \mathbf{k}_2 パルス、(e)(f) プレパルス。(a)(c)(e) は X 方向、(b)(d)(f) は Y 方向	42

2.31	(a) チタンサファイアレーザーと (b) 利得スイッチングレーザーをポンプ光とした過渡吸収信号	43
2.32	(赤) 過渡吸収信号と (青) その一次微分波形	44
2.33	(a) ポンプ光の変調周波数、(b) ポンプ光、プローブ光変調の差周波でロックイン検出。PD : フォトダイオード	45
2.34	サンプル表面 (a) ポンプ光 (b) プローブ光のスポットの観察	46
2.35	測定法その 1 : ポンプ変調周波数でロックイン検出。スキャン幅 (a)100 μm (b)10 μm (c)10 μm	46
2.36	測定法その 2 : 差周波数でロックイン検出。スキャン幅 (a)100 μm (b)10 μm (c)10 μm	47
A.1	四光波混合信号の測定結果のフィッティング結果。赤線が測定結果、青線がフィッティング結果。(a) 中密度領域 (図??) のプレパルスのパルスエネルギー 0 nJ、1.2 nJ、(b) 反転分布領域 (図??) の 0 nJ、5 nJ、12.8 nJ	57
A.2	量子ビートのフィッティング方法の比較。赤線が測定結果、青線がフィッティング結果。(a) $\gamma_1 = \gamma_2$ 、(b) $\gamma_1 \neq \gamma_2$	58
B.1	7nm 量子井戸サンプル表面のしわ	61
B.2	エレクトロンワックスのひび割れ。(a) サンプル表面 (b) 裏面	62
B.3	フリースタANDING試料の脱落	63
B.4	ペーパーボンド貼り付け時のサンプル裏面	63

表 目 次

2.1	本研究で用いた励起光源の特徴	34
2.2	繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの測定系のサンプル位置でのスポットの 半値全幅 (FWHM)	41
2.3	繰り返し 8 MHz、バンド間プレパルスの測定系のサンプル位置でのスポットの 半値全幅 (FWHM)	42
2.4	励起密度の見積もりに用いた各係数の値	43
A.1	図 A.1 のフィッティング係数と誤差。誤差は 3σ の値	57

第1章 序論

1.1 研究背景

レーザーの発明により、空間的、時間的に光電場の位相がそろった光を利用することが可能になった。このような位相がそろった光をコヒーレント光という。光が物質に吸収されると、物質中の電子と光電場が相互作用し、電子の励起状態が作られる。入射光がコヒーレント光である場合には、電場の振動に追従して物質中に分極と呼ばれる電荷分布の偏りが生じる。この巨視的な分極は微視的にはコヒーレント光によって電子のコヒーレントな励起状態が作られた結果であると解釈できる。コヒーレント光の入射を止めると物質は分極を持たない状態に戻ることから、物質中には分極を失わせる何らかの緩和過程が存在することがわかる。

短パルスレーザーが発明されたことにより、タイミングをずらした二つの光パルスを、片方を物質中の電子の光励起、もう片方を励起された物質の光応答の測定に用いるという、ポンププローブ法と呼ばれる手法が発達した。この方法では、二つの光パルスの時間遅延を変えながら光応答を測定することで、最初のパルスで作られた物質の励起状態がどのように緩和するかという情報を得ることが出来る。

ポンププローブ法の時間分解能は用いられる光パルスの時間幅で決まる。そのため、パルスレーザーの短パルス化の発展と共に、より短い時間スケールの励起状態の緩和の物理が実験で調べられ、理解されてきた。研究対象となる物質は、励起状態が長く持続する気体原子、気体分子から、励起状態がすばやく緩和する固体へと移り変わっていった。固体中では電子の励起状態はバンドと呼ばれるエネルギー準位が連続した状態となる。固体中にコヒーレントに励起された非平衡状態の電子は、まず電子間散乱により波動関数の位相のコヒーレントな情報を失い、さらにバンド内をエネルギー緩和していく。電子系でエネルギーのやり取りが釣りあう準熱平衡状態に達すると、電子と格子（フォノン）との散乱によって、格子系を含めた準熱平衡状態へと近づいていく。半導体では、エネルギー緩和が起きるバンド構造の中にエネルギーギャップが存在し、このギャップ間のエネルギー緩和（電子の再結合）が起きる。

次に説明する超放射と呼ばれる現象の実験も、励起パルスの短パルス化の発展と共に研究対象が気体原子、分子から固体へと移り変わっていった。超放射ではコヒーレントな励起状態の持続時間が重要であり、その時間スケールは上で説明した電子の励起状態の初期の緩和過程である波動関数の位相のコヒーレントな情報を失う緩和（位相緩和）の時間スケールと密接な関わりを持っている。

節 1.1.1 では超放射の詳細と最近報告された固体からの超放射についてまとめ、その放出パ

ルス幅と位相緩和の時間関係の検証が不十分であることを指摘する。節 1.1.2 では位相緩和を調べるポンププローブ法の一手法である四光波混合について説明する。節 1.1.3 では四光波混合で調べられてきた位相緩和時間の励起密度依存性についてまとめ、これまで調べられてきた実験条件と、調べられていない実験条件について考察する。

1.1.1 半導体での超放射

著作権に係る図表のため非公表

図 1.1: 超放射の概要 [1]。(a) 基本的な超放射の特徴を示した図。(b) 典型的な超放射の実験でのエネルギー準位図

多数の二準位系に作られた分極が、相互作用する電場の波長 λ に比べて小さい領域 $\sim \lambda^3$ に十分高密度に閉じ込められているとき、コヒーレントに位相がそろった分極は、加速された緩和レートで光を放出する。この現象は Dicke によって 1954 年に理論的に予測され、Dicke の超放射 (Superradiance, SR) と呼ばれる [1, 2]。図 1.1 は超放射の特徴を図示している。コヒーレントに位相をそろえあった分極は、個々の二準位系のダイポールモーメントを d 、コヒーレントな二準位系の数を N とすると、巨視的な分極 $P \sim Nd$ を形成し、そこからの電磁波の放射強度 I は N^2 に比例する。また、個々の二準位系はエネルギー緩和時間 T_1 で励起状態 $|e\rangle$ から基底状態 $|g\rangle$ へと緩和するが、巨視的分極 $P \sim Nd$ は加速された緩和レート $\Gamma \sim NT_1^{-1}$ で光を放出する。そのため、そこから放出される電磁波のパルス幅 τ_p は N^{-1} に比例する。

また、インコヒーレントな励起により初め多数の励起された二準位系がコヒーレンスを持たない場合にも、電場との相互作用を通じて分極が互いの位相をそろえあい、巨視的な分極となる。これは超放射の特殊な場合として超蛍光 (Superfluorescence, SF) と呼ばれる。

超放射は分極の集団のコヒーレントな運動であるため、分極のコヒーレンスが失われる時間よりも長い時間では起こりえない。この時間を位相緩和時間 T_2 という。例えば、超放射での発光寿命 $\Gamma^{-1} \sim N^{-1}T_1$ は位相緩和時間 T_2 よりも速い必要があり、そのため超放射のパルス幅 τ_p は $\tau_p < T_2$ を満たす必要がある。

実際に初めて超放射が報告されたのはフッ化水素ガスを用いた実験 [3] で、そのあと超放射の研究の初期にはナトリウム [4]、タリウム [5]、セシウム [6] などの原子気体が対象となった。その理由は、これらの系では $1 \mu\text{m}$ オーダーの非常に長い位相緩和時間を有し、超放射の実現が容易であったためである。これらの超放射のパルス幅は 10 ns オーダーだった。

固体からの超放射が初めて報告されたのは、酸素がドーブされたハロゲン化アルカリを用いた実験だった [7]。この系ではドーブされた酸素イオンは孤立原子系のように振る舞う。この超放射のパルス幅は 1 ns オーダー程度だった。

著作権に係る図表のため非公表

図 1.2: 半導体量子ドットでの超蛍光 [8]。(a) エネルギー時間分解像。(b) ピーク強度、(c) パルス幅の励起強度依存性。

その後、量子ドットからの超放射が報告された。この系では電子は 1 nm オーダーの原子程度の大きさの 0 次元系に閉じ込められ、孤立原子系とみなせるので人工原子とも呼ばれる。NaCl 結晶中に作製された CuCl ナノ結晶 [8] では、励起子分子からの超放射的な短パルス発光が見られた。この実験では、二光子吸収を用いて励起子分子を選択的に励起し、励起子分子準位と励起子準位の間で効率的に反転分布をつくることで超放射が達成された。図 1.2(a) は放出パルスの波長時間分解の結果で、フォトンエネルギー 3.19 eV の励起パルスの 3~4 ps 後に、励起子分子準位と励起子準位の間での発光にあたる 3.17 eV 付近にパルス幅 1 ps 程度の発光が見られ、その発光強度 (b) とパルス幅 (c) の励起密度依存性がおおむね N^2 と N^{-1} にしたがっている様子が見られた。

この研究では放出パルス幅と位相緩和時間の関係は以下のように考察された。ガラス中 CuCl ドットの励起子の位相緩和時間は 130 ps と報告されている。CuCl ドットでの励起子分子の位相緩和時間の測定例はないが、バルク CuCl での励起子分子の位相緩和時間の報告例 16 ps と比べて、CuCl ドットでの励起子分子の位相緩和時間はそれよりも長いと予想される。これは、この実験で得られた超放射のパルス幅約 1 ps に比べ長く、よって超放射の必要条件 $\tau_p < T_2$ が満たされていると考察された。

ここまでの超放射の例では、原子、分子、ナノ粒子、量子ドットなどの 0 次元系での超放射について説明した。一方、1~3 次元系では、電子は連続的なエネルギー準位を持つバンド構造をとり、フォノン散乱が激しく起きる。また、電子同士が互いに運動しながらクーロン相互作用によって散乱しあうので、キャリア間散乱も激しく起きる。そのため、0 次元系と比べ 1~3 次元系では位相緩和時間が数桁短く、また励起密度が増えるほどキャリア間散乱も増えるので位相緩和時間が短くなるという特徴を持つ (節 1.1.2.1 で詳しく説明する)。このため、バルク、量子井戸といった 3, 2 次元系では超放射は起きないと考えられてきた。

ところが近年、半導体バルク、量子井戸構造からの超放射の観測を主張するいくつかの論文が報告された。一つ目は、ランダウ量子化を利用した半導体量子井戸での超放射の実験である [9]。図 1.3(a) は、InGaAs/GaAs 量子井戸構造に垂直に磁場印加とバリア層励起パルスの入射を行い、量子井戸平面方向への放出パルス波形を測定した結果である (b)。弱励起 (0.25 nJ) では ns 程度の自然放出的な長い発光減衰を持つのに対し、強励起 (10 μ J) では幅 20 ps ほどの鋭い光パルス放出が見られた。このとき、量子井戸の垂直方向の透過率は、パルス放出と同時に励起前の透過率まで高速に変化する様子が見られた (c、青線)。これは、超放射によってマクロ

著作権に係る図表のため非公表

図 1.3: ランダウ量子化された量子井戸での超蛍光 [9]。(a) 実験方法。(b) 放出パルス波形の励起密度変化。(c) 吸収率変化と放出パルスの時間波形。

な分極が励起状態から基底状態へ緩和する様子に酷似しており、ランダウ量子化による基底準位間での超放射であると主張された。この実験では、ランダウ量子化を用いることにより量子井戸ではエネルギー準位が離散的になり、キャリア散乱が抑制されることで比較的長い T_2 を持つと考察された。

著作権に係る図表のため非公表

図 1.4: フェルミ端での超蛍光 [10]。(a) 実験方法。(b) エネルギー時間分解像。

二つ目は、同様の実験配置で無磁場下でのフェルミ端における超放射の実験である [10]。図 1.4(a) の実験は図 1.3(a) と同様の実験配置だが、磁場は印加されていない。このとき量子井戸を強く励起することにより、高エネルギー側からバンド端へとレッドシフトしていく発光が見られた (図 1.4(b))。これは、フェルミ端でエンハンスされたクーロン相互作用による超放射であるとされた。フェルミ端では電子間相互作用によりダイポールモーメントが大きくなる。これはフェルミ端異常と呼ばれる。これにより発光寿命 T_1 が短くなり、 $\Gamma^{-1} \sim N^{-1}T_1 < T_2$ の条件が満たされやすくなると考察された。

著作権に係る図表のため非公表

図 1.5: 半導体電流注入レーザーでの超放射 [11]。(a) マルチセクションレーザーの顕微鏡像。(b) 放出パルスの自己相関波形。

三つ目は、マルチセクションレーザーへの電流注入による超放射の実験である [11]。図 1.5(a) は、マルチセクション半導体レーザーの顕微鏡像である。この構造は、通常のダブルヘテロ型

バルク半導体レーザーダイオード構造が電流注入がなされる電極部分（利得領域）と逆バイアス定電圧が印加される部分（吸収領域）とのマルチセクションになっていることが特徴である。この構造にパルス電流を入力すると、吸収領域が過飽和吸収体として働き、通常のレーザー発振条件よりも高密度にキャリアが励起される。このレーザーダイオードに高密度電流、高逆バイアスをかけたときの放出パルスを自己相関により評価すると、そのパルス幅はおよそ 180 fs となり (b)、高いピーク強度によるレーザー端面の損傷が起きた。これは通常のレーザー理論での自由電子から計算される光学利得では説明がつかないような超短パルス、高ピークパワーの光パルス放出だった。位相緩和時間については、室温でのバルク半導体の典型的な位相緩和時間 100 fs とパルス幅が比較され、超放射が起りえる領域であると考察された。

著作権に係る図表のため非公表

図 1.6: 半導体レーザーの光強励起によるフェムト秒パルス発生 [12]。(a) 実験方法。(b) 放出パルスのエネルギー時間分解像と (c) 自己相関波形。

また、光励起による半導体レーザーからのフェムト秒パルス発生が報告された [12]。図 1.6 は、(a) 幅 $1\ \mu\text{m}$ の GaAs ダブルヘテロレーザーの光励起によるレーザー発振の実験結果である。低密度領域では通常のレーザー理論（シングルモードのレート方程式）に一致する放出パルス波形が得られたが、ある励起密度以上では光励起の直後に広いスペクトル幅を持つ短いパルス光が得られた。(b) はそのストリークカメラによる放出パルスの時間、エネルギー分解像である。この高エネルギー側の成分をバンドパスフィルターで取り出し (c) 自己相関波形によってパルス幅を見積もると 670 fs だった。このパルス幅、励起パルスから放出パルスまでの時間遅延は長さ $250\ \mu\text{m}$ の共振器を光パルスが往復する時間 6.6 ps よりも短かった。

ここまで挙げてきた半導体バルク、量子井戸からの超放射の例では、そのパルス幅と位相緩和時間の必要条件 $\tau_p < T_2$ に対する検証が不十分である。これは、超放射が起きるような反転分布状態での半導体バルク、量子井戸での位相緩和時間の測定が詳しく行われていないためであると私は考える。次節では位相緩和時間の測定に用いられてきた四光波混合の測定原理と励起密度依存性に対する先行研究についてまとめ、高密度励起条件で行われた四光波混合の実験条件について考察する。

1.1.2 四光波混合による位相緩和時間の測定の原理

半導体量子井戸、バルクの位相緩和時間は、主に四光波混合によって調べられてきた。この節では、四光波混合による位相緩和時間測定の原理を説明する。

1.1.2.1 四光波混合の概要

この節の内容は教科書 [13] に準じた。

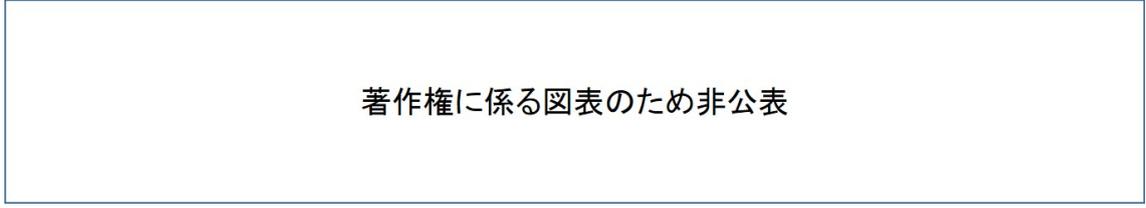


図 1.7: 四光波混合測定系の概要 [13]

四光波混合では、超短パルスレーザーの出力光をビームスプリッターで複数に分け、それぞれの時間遅延を調整しながらサンプルの同一点に別の角度で入射する (図 1.7)。このように同じ波長の光を用いる場合を縮退四光波混合という。最も単純なセットアップでは、 \mathbf{q}_1 、 \mathbf{q}_2 の二つの光パルスを時間遅延をつけながらサンプルに入射する。すると \mathbf{q}_1 パルスによって作られた分極と \mathbf{q}_2 パルスの干渉によってサンプル中に分極の過渡的回折格子が作られる。その結果 \mathbf{q}_2 パルスが位相整合条件を満たす $2\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1$ 方向へ自己回折し、その強度を時間積算して測定する。 \mathbf{q}_1 パルスによって作られた分極は位相緩和によって徐々にコヒーレンスを失うので、回折される \mathbf{q}_2 パルスの回折強度は \mathbf{q}_1 、 \mathbf{q}_2 パルスの時間遅延間隔に依存する。このようにして \mathbf{q}_2 パルスの回折強度を \mathbf{q}_1 、 \mathbf{q}_2 パルスの時間遅延間隔に対して測定することで、位相緩和の速さを知ることが出来る。

1.1.2.2 独立した二準位系の場合

独立した二準位系の運動は半古典近似の範囲では光学 Bloch 方程式に従う。

$$\dot{n} + n/T_1 + (i/\hbar) (\Delta_{ba}p^* - p\Delta_{ba}^*) = 0 \quad (1.1)$$

$$\dot{p} + p(i\Omega + 1/T_2) + (i/\hbar) \Delta_{ba}(1 - 2n) = 0 \quad (1.2)$$

ここで \dot{n} 、 \dot{p} は密度 n 、分極 p の時間微分、 $\Omega = (E_b - E_a)/\hbar$ は二準位のエネルギー準位 E_a 、 E_b の差、 Δ_{ba} はラビ周波数である。エネルギー緩和時間 T_1 と位相緩和時間 T_2 は現象論的に導入した。

分極の運動を電場に対して摂動論的に計算することで 3 次の非線形分極 $p_{221}^{(3)}(t, \tau_d)$ の時間発展が得られ、そこから系の不均一性を反映してマクロな分極 $P_{221}^{(3)}(t, \tau_d)$ が定義される。ここで t は時刻、 τ_d は \mathbf{q}_1 、 \mathbf{q}_2 パルスの時間遅延である。

計算された $S_{221}^{(3)}(t, \tau_d) = \left| P_{221}^{(3)}(t, \tau_d) \right|^2$ が四光波混合信号強度の時間波形となり、これを時間分解四光波混合 (TR-FWM) 信号という、これを時間積算したもの $I_{221}^{(3)}(\tau_d) = \int_{-\infty}^{\infty} dt S_{221}^{(3)}(t, \tau_d)$ を時間積算四光波混合 (TI-FWM) 信号という。

著作権に係る図表のため非公表

図 1.8: 均一幅が支配的な場合の (a)TR-FWM、(b)TI-FWM 信号 [13]

著作権に係る図表のため非公表

図 1.9: 不均一幅が支配的な場合の (a)TR-FWM、(b)TI-FWM 信号 [13]

入力電場波形をデルタ関数として計算したときの、図 1.8 は均一幅が支配的な場合の (a)TR-FWM、(b)TI-FWM 信号と、図 1.9 は不均一幅が支配的な場合の (a)TR-FWM、(b)TI-FWM 信号を理論計算した結果をプロットしたものである。均一幅が支配的なとき、三次の分極は q_2 パルスの入射時刻から減衰する。これを自由分極減衰という。この TR-FWM を時間積分した TI-FWM 信号は、パルス間隔 τ_d に対し減衰し、その時定数は $T_2/2$ となる。一方で不均一幅が支配的な場合には、三次の分極は q_2 パルスの入射時刻から τ_d 後に大きな値を持つ。これは不均一幅による干渉で打ち消されていたマクロな分極が再び大きな値を持つため、フォトンエコーと呼ばれる。これを時間積分した TI-FWM 信号の時定数は $T_2/4$ となる。

このように均一幅と不均一幅が支配的な極限では、TI-FWM の時定数はそれぞれ $T_2/2$ 、 $T_2/4$ となるが、それぞれ同程度の幅を持つ場合には、 $T_2/2$ 、 $T_2/4$ の間の値を持つようになる。以降の先行研究及び本研究の四光波混合測定は、TI-FWM 信号を扱う。

1.1.2.3 半導体の場合

半導体はバンド構造を持ち、エネルギー順位は連続した広がりを持っている。クーロン相互作用を無視すると、各波数状態は独立した固有状態であり、そのスペクトル広がり是不均一広がりともみなすことが出来る。

クーロン相互作用がある場合の励起キャリア、分極の運動は以下の半導体 Bloch 方程式により近似的に記述することが出来る。

$$p_{\mathbf{k}} + p(i\Omega_{\mathbf{k}} + 1/T_2) + (i\Delta_{\mathbf{k}}/\hbar)(1 - n_{e,\mathbf{k}} - n_{h,\mathbf{k}}) = 0 \quad (1.3)$$

$$n_{e,\mathbf{k}} + n_{e,\mathbf{k}}/T_{1e} + (i/\hbar)(\Delta_{\mathbf{k}}p_{\mathbf{k}}^* - p_{\mathbf{k}}\Delta_{\mathbf{k}}^*) = 0 \quad (1.4)$$

$$n_{h,\mathbf{k}} + n_{h,\mathbf{k}}/T_{1h} + (i/\hbar)(\Delta_{\mathbf{k}}p_{\mathbf{k}}^* - p_{\mathbf{k}}\Delta_{\mathbf{k}}^*) = 0 \quad (1.5)$$

$$\varepsilon_{e,\mathbf{k}} = \varepsilon_{e,\mathbf{k}}^0 - \sum_{\mathbf{k}' \neq \mathbf{k}} V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} n_{e,\mathbf{k}'} \quad (1.6)$$

$$\Omega_{\mathbf{k}} = \frac{\varepsilon_{e,\mathbf{k}} + \varepsilon_{h,\mathbf{k}}}{\hbar} \quad (1.7)$$

$$\Delta_{\mathbf{k}} = \Delta_{\mathbf{k}}^0 - \sum_{\mathbf{k}' \neq \mathbf{k}} V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'} \quad (1.8)$$

ここで \mathbf{k} は波数ベクトルで、バンドギャップエネルギー E_2 の直接遷移型半導体では、バンドギャップ近傍で電子、正孔がそれぞれ $\varepsilon_{e,\mathbf{k}}^0 = E_2/2 + \hbar^2 k^2/2m_e$ 、 $\varepsilon_{h,\mathbf{k}}^0 = -E_2/2 - \hbar^2 k^2/2m_h$ のエネルギー分散関係を持つ。 k^2 は波数ベクトル \mathbf{k} のノルムの二乗、 m_e 、 m_h は電子、正孔の有効質量、 $V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$ は相互作用の大きさである。

低密度領域では励起された電子と正孔は励起子と呼ばれる束縛状態を作る。励起子間の相互作用を無視した場合には半導体 Bloch 方程式は Wannier 方程式となり、振動子強度が集中した励起子の基底状態と励起状態の二準位とみなせる。

高密度領域では励起子は乖離し電子正孔プラズマとなる。クーロン相互作用は周囲の電子正孔プラズマによって遮蔽され、スクリーニングされたクーロン相互作用となる。このときエネルギー、ラビ周波数は式 (1.6)、(1.8) のようにリノーマライズされるが、平面波状態がよい基底となり、摂動論的な解析が可能となる。

式 (1.3)、(1.4)、(1.5) では、位相緩和時間 T_2 は現象論的に運動方程式中に導入した。しかし実際には、相互作用を持つ場合には T_2 が励起密度に依存性する。式 (1.6)、(1.8) に導入された相互作用は平均場近似された相互作用であり、この近似の範囲では T_2 は導出されない。 T_2 は相互作用の二次の摂動論から得ることが出来る。また、電子、正孔による散乱だけでなくフォノンとの散乱も T_2 に影響を与える。

1.1.2.4 量子ビート

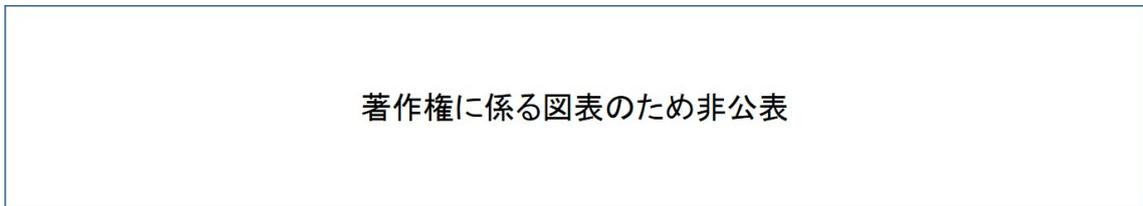


図 1.10: (a)(b) 量子ビートと (c) 分極干渉 [14, 15]。

お互いにきわめて近いがわずかに異なるエネルギー差を持つ二種類の双極子が存在する物質に超短パルスを入射すると、そのスペクトル幅がエネルギー差に比べ十分広ければ、相関を持った二種類の双極子の集団が作られる。それらは異なった周波数で時間発展しながら互いに干渉

しあってマクロな分極となるので、測定される四光波混合信号には周期 $\hbar/\Delta E$ の振動が現れる。これは量子ビートと呼ばれる。

四光波混合信号にこのようなビートが現れるのは次の二つの場合である。一つ目は基底状態が共通で、励起状態にわずかなエネルギー差がある3準位系の場合である。半導体量子井戸構造において価電子帯の重い正孔 (hh) バンドと軽い正孔 (lh) バンドが分裂する場合がこれにあたる (図 1.10(a))。その場合測定される四光波混合信号にはビートが表れる (図 1.10(b))。均一幅を仮定した3準位系でのパルス遅延時間 T に対する量子ビートの TI-FWM 信号 $I(T)$ は式 (1.9) のようになる [14]。

$$I(T) \propto \Theta(T)[w_1^2 e^{-2\gamma_1 T} + w_2^2 e^{-2\gamma_2 T} + 2w_1 w_2 \cos(\Delta E T) e^{-(\gamma_1 + \gamma_2) T}] \quad (1.9)$$

ここで γ_1 、 γ_2 は二つの準位間の位相緩和時間の逆数、 ΔE はエネルギー差、 w_1 、 w_2 は励起スペクトルと二準位の振動子強度の重なりである。

二つ目は、空間的に分離した二種類の双極子が基底準位を共有せずにコヒーレントに励起される場合で、分極干渉と呼ばれる。異なる井戸幅の二重量子井戸の場合がこれにあたる。図 1.10(c) は、高品質で井戸幅が空間的に均一なサンプル (A) と低品質で井戸幅の空間的な揺らぎが大きいサンプル (B) について四光波混合信号である。内挿図は吸収スペクトルだが、高品質サンプルでは複数の井戸幅に対応した吸収ピークを持つのに対し、低品質サンプルは不均一な広がりによりそれらが区別できない。それに対応して四光波混合にビートが現れるかどうかの違いが生まれている。均一幅を仮定した四光波混合信号の TI-FWM 信号 $I(T)$ は式 (1.10) のようになる [15]。

$$I(T) \propto \Theta(T) e^{-2\gamma T} \times \left[1 + \frac{\cos(\Delta\omega T) + (\Delta\omega/2\gamma) \sin(\Delta\omega T)}{1 + (\Delta\omega/2\gamma)^2} \right] \quad (1.10)$$

ここで γ は位相緩和時間の逆数、 $\Delta\omega$ は二つの二準位系の遷移角周波数差である。

1.1.3 半導体の位相緩和時間の励起密度依存性の先行研究

この節では、半導体量子井戸、バルクでの位相緩和時間の励起密度依存性の先行研究について説明する。

1.1.3.1 低密度領域

低温、低密度領域では励起されたキャリアはバンド端で励起子となる。図 1.11 は低密度領域での四光波混合の実験である [16, 17]。(a) は実験配置である。この実験では、十分弱い強度の2パルスの四光波混合 (#1、#2) のほかに、ある程度強い強度のプレパルス (#3) を用いる。プ

著作権に係る図表のため非公表

図 1.11: プレパルス + 2 パルス四光波混合による低密度領域の位相緩和時間の密度依存性 (a) 測定系、(b) GaAs バルク [16] (c) GaAs 単一量子井戸 [17]

レパルスのタイミングを調節して先に励起子、あるいは自由キャリアを励起させた状態での四光波混合測定を行うことで、それぞれ励起子と励起子の散乱、励起子と自由キャリアの散乱の密度依存性が調べられた。励起密度はサンプルの吸収係数から大まかに見積もられた。(b) はバルク GaAs、(c) は幅 12 nm の GaAs 単一量子井戸についての結果で (ただし縦軸は (b) では位相緩和時間、(c) ではその逆数)、それぞれ最短で 7 ps、12 ps の位相緩和時間が得られた。これらの結果によると、励起子が存在する低密度領域では、位相緩和時間の逆数である散乱レートは次元性によらず励起密度に対して直線的な関係性を示した。

$$\tau^{-1} = \tau_0^{-1} + \gamma_{col} N \quad (1.11)$$

ここで τ は減衰時間、 τ_0 は弱励起極限でのキャリア密度に依存しない減衰時間、 N は励起密度、 γ_{col} は比例係数である。この結果は、低密度領域では中性粒子である励起子の散乱が気体分子運動論的に取り扱えることを示している。また励起子と自由キャリアの散乱は、励起子と励起子の散乱よりも 10 倍程度のレートで起きることがわかった。

著作権に係る図表のため非公表

図 1.12: GaAs 多重量子井戸の低密度領域の 2 パルス四光波混合の減衰の時定数の逆数の密度依存性。(a) 温度依存性 [18]。(b) 励起強度に対する時定数の飽和 [19]。

また、2 パルス四光波混合によっても同様に GaAs 多重量子井戸の位相緩和時間の密度依存性が調べられた [18, 19]。励起子共鳴の光パルスを用いた 2 パルス四光波混合では、多数の励起キャリアが緩和し励起子となる前の、自由キャリアと励起子の散乱が位相緩和時間を決める [18, 19]。励起密度はサンプルに吸収された光強度の合計から見積もられた。図 1.12 (a) は縦軸が四光波混合の減衰時間の逆数、横軸が励起密度で、2 パルス四光波混合でも低温、低密度領域では式 (1.11) によく合致し、温度 10 K で時定数の逆数は 1 /ps 以下となった。この研究では線形フィッティングにより τ_0 を見積もり、フォノン散乱の温度依存性が調べられ、室温で

の音響フォノンによる散乱レートは $(950 \text{ fs})^{-1}$ 、光学フォノンによる散乱レートは $(300 \text{ fs})^{-1}$ と見積もられた。

図 1.12 (b) の研究では位相緩和時間の逆数 η の励起パルス強度依存性が調べられた。この実験では遅れて入射するパルスの強度を 13 W/cm^2 に保ち、先行するパルス強度を 800 W/cm^2 まで変化させた。パルス強度が弱い時、時定数の逆数は 0.3 /ps から直線的に増加するが、強度を強くしていくと η は飽和した。測定した励起強度の範囲では励起子ピークの消失、エネルギー変化は見られず、この励起強度に対する η の飽和はサンプルの吸収飽和によって説明された。この実験は繰り返し 82 MHz で行われた。

1.1.3.2 高密度領域

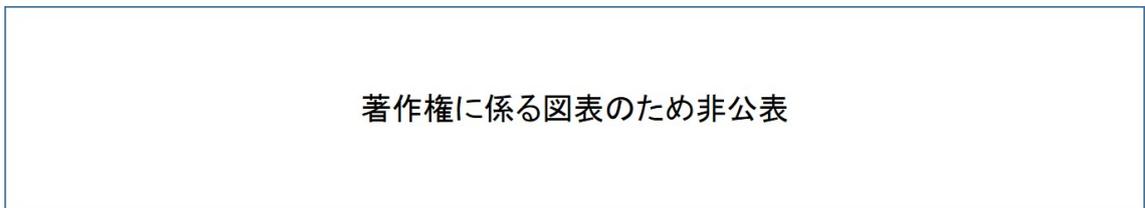


図 1.13: 2 パルス四光波混合による高密度領域の位相緩和時間の密度依存性。GaAs(a) バルク [20]、(b) 量子井戸 [21]。

励起子が存在しないような高密度領域では、自由キャリア間散乱が支配的となる。そのような領域は室温での 2 パルス四光波混合によって調べられた (図 1.13) [20, 21]。その結果、GaAs バルク (a) では励起密度 $10^{18} / \text{cm}^3$ 程度で 1 fs オーダー、GaAs 量子井戸 (b) では、励起密度 $10^{11} / \text{cm}^2$ 程度で 10 fs オーダーの非常に速い位相緩和時間が得られた。さらに、それぞれの場合での励起密度 N に対する位相緩和時間の依存性は、 $N^{-1/3}$ 、 $N^{-1/2}$ に近い値となった。これは、スクリーニングされたクーロンポテンシャルの近距離相互作用を考慮すると、次元性を反映した最近接のキャリアとの距離に依存していると考えられた。 $N^{-1/3}$ 、 $N^{-1/2}$ の依存性からのずれは、スクリーニングされたクーロンポテンシャルの影響であると考えられた。

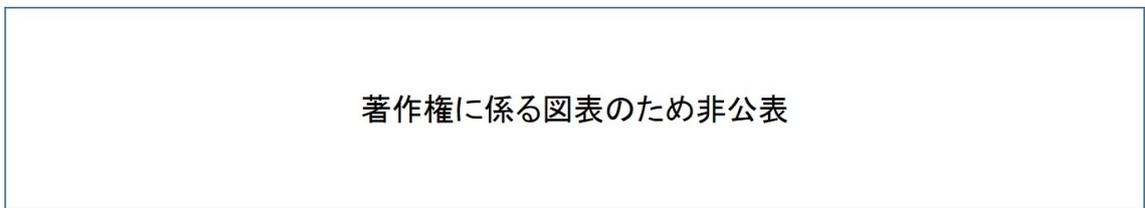


図 1.14: 反転分布領域でのフェルミ面での散乱抑制効果 [22]。(a) 吸収スペクトル。(b) ホールバーニング。位相緩和時間の (c) 測定結果と (d) 理論計算結果。

また GaAs 量子井戸を用いて、高密度領域での位相緩和時間のエネルギー依存性が調べられた [22]。図 1.14 の実験では、低温にしたサンプルに、プリパルス (フォトンエネルギー 2 eV)

を入射することにより、あらかじめ高密度励起状態が用意された。(a) はゲインパルスの入射前後でのサンプルの吸収スペクトルである。入射前には光子エネルギー 1.78 eV に励起子の吸収ピークが見られるが、入射後 12 ps では吸収ピークは減少、消失し、バンドギャップリノーマライゼーションによって 1.68 eV から 1.78 eV まで利得領域が生じている。このとき 1.78 eV は吸収と利得のつりあう透明な領域 (TP) である。利得領域の幅から、励起密度はおおよそ $1.8 \times 10^{12}/\text{cm}^2$ と見積もられた。

まず、この時間遅延での各エネルギー準位での位相緩和時間がホールバーニングの測定により調べられた (b)。波長を変化させたポンプ光 (b 下部) に対し、その 50 fs 後にブロードなプローブ光によって吸収変化スペクトルが測定された (b 上部)。その結果、TP に近づくほどホールバーニングのスペクトル幅は狭くなり、TP の前後では吸収の減少及び増加が見られた。ここから位相緩和時間 T_2 を見積もると、利得領域の低エネルギー側から TP に近づくにつれ T_2 が長くなった (c 黒点)。同じ時間遅延での四光波混合の測定も各エネルギーに対して行われ、見積もられた T_2 は TP で約 0.7 ps となり最長となったが、その前後のエネルギーでは 0.4 ps 程度の測定の時間分解能以下となった (c 白点)。

この結果が理論計算と比較された (d)。計算では以下の式で位相緩和時間が計算された。

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2} \{ \Gamma_{in}^e [\mathbf{k}, f_{Fermi}] + \Gamma_{out}^e [\mathbf{k}, f_{Fermi}] + \Gamma_{in}^h [\mathbf{k}, f_{Fermi}] + \Gamma_{out}^h [\mathbf{k}, f_{Fermi}] \} \quad (1.12)$$

ここで Γ_{in} 、 Γ_{out} はそれぞれ波数 \mathbf{k} への電子、正孔の散乱と波数 \mathbf{k} からの電子、正孔の散乱に対応している。この計算では励起キャリア間の散乱のみが考慮され、キャリアとフォノンの散乱は無視されている。また、異なる波数の分極同士の相互作用 (非対角項) も無視されている。これは、高密度領域では励起子効果が小さくなり、異なる波数がそれぞれ独立である条件に近づくと考えられたためである。計算結果 (d) は、実験結果 (c) を再現した。これはフェルミ液体論で知られているフェルミ面での散乱抑制効果であると主張された。

1.1.3.3 先行研究のまとめと課題

ここまで、四光波混合による半導体バルク、量子井戸の低密度領域、高密度領域での先行研究をまとめた。ここでは、それらの結果の関係と課題について説明する。

図 1.11、1.12 の低温、低密度領域の実験では、励起キャリアは励起子になっている。弱励起極限では、(a) バルクで 7 ps、(b) 量子井戸で 12 ps の位相緩和時間が得られた。弱励起極限では励起子による散乱は小さくなり、位相緩和時間はキャリア密度に依存しない部分で決まっている (式 (1.11) の τ_0)。それは音響フォノン、不純物、量子井戸の場合にはヘテロ界面などと励起子の散乱によって決まっている。このとき、励起密度に対して位相緩和時間は最長となる。励起密度が増えていくと励起子間散乱が増えていき、位相緩和時間は単調に減少する。図 1.11 の実験では (a) バルクで $10^{15}/\text{cm}^2$ 、(b) 量子井戸で $10^{10}/\text{cm}^2$ までの低密度領域が調べられ、位

相緩和時間は1~3 psまで短くなった。

図 1.13 の室温、高密度領域の実験では、励起キャリアは電子正孔プラズマになっている。最低励起密度では10 fs オーダーの速い位相緩和時間となった。これは、高密度励起された自由キャリアが互いに頻繁に散乱することに加え、室温では低温に比べて光学フォノンとの散乱が増えるためである。このときも低密度領域の場合と同様に、最低励起密度で位相緩和時間は最長となり、励起密度が増えていくと自由キャリア間散乱が増えていき、位相緩和時間は単調に減少する。図 1.13 の実験では (a) バルクで $10^{18}/\text{cm}^2$ 、(b) 量子井戸で $10^{10}/\text{cm}^2$ オーダーの高密度領域が調べられ、位相緩和時間は最短で (a) バルクで 3.5 fs、(b) 量子井戸で 16 fs となった。

これらの研究によって、励起子間散乱、自由キャリア間散乱の低密度から透明密度までの位相緩和時間が調べられたと言えるが、反転分布領域は測定されていないと私は考える。なぜなら、図 1.13 の高密度領域の測定では、励起子を作らないために室温で実験が行われているが、そのとき励起キャリアは広いエネルギーにわたって温度分布し、反転分布は作られにくくなる。さらに、図 1.13 の実験は2パルスでの四光波混合によって行われている。このとき励起キャリアは非平衡状態にあり、反転分布とはなっていないと考えた。

図 1.14 の実験は低温、高密度領域で行われ、量子井戸の励起密度 $1.8 \times 10^{12} /\text{cm}^2$ での利得領域から吸収領域までのエネルギー依存性が調べられている。このとき、励起キャリアは励起子 Mott 転移点を超え電子正孔プラズマになっている。四光波混合による測定では、フェルミ面付近で 700 fs の位相緩和時間が測定されたが、その前後の利得、吸収領域は 400 fs 程度の時間分解能のため測定されなかった。代わりに利得領域についてはホールバーニングによって位相緩和時間が測定され、フェルミ面から遠ざかるにつれ位相緩和時間は短くなった。この研究では励起密度依存性は調べられなかった。

このとき、図 1.14 の励起密度依存性はどうなるのかという疑問が生じる。低温実験との対応を考えると、励起キャリアの状態は図 1.11(b)、1.12 では励起子であり、図 1.14 では電子正孔プラズマである。その間には励起子 Mott 転移点が存在し、その前後でキャリア散乱機構は大きく変化すると予想される。よって図 1.11(b) の結果をそのまま外挿して図 1.14 につなげることは出来ない。

室温実験との対応を考えると、図 1.13(b) と図 1.14 はどちらも自由キャリア散乱で考えることが出来る。しかし図 1.13(b) は室温、図 1.14 は低温であり、フォノン散乱の影響が異なっている。図 1.13(b) では高密度領域ではキャリア間散乱に対するフォノン散乱の影響を無視できると考えられている。また、図 1.13(b) は2パルス、図 1.14 はプレパルス+2パルスでの四光波混合の実験で、励起キャリアのエネルギー分布の様子は非平衡状態、あるいは準熱平衡状態で異なっていると考えた。そのような分布の違いによって散乱の密度依存性が同じかどうかは定かではなく、図 1.13(b) の実験と図 1.14 の実験がどのように繋がるのかは不明瞭である。

よって、位相緩和時間の励起密度依存性を、先行研究から反転分布領域まで広げて理解するためには、次のような条件での測定が必要だと私は考える。それは、フォノン散乱を極力抑える低温の環境かつ高密度励起されたキャリアが準熱平衡状態に達し、バンド端でフェルミ縮退した電子が反転分布状態となるような状況での位相緩和時間の励起密度依存性の測定である。

そのために環境温度は低温で、プレパルス+2パルスでの四光波混合の実験で、図 1.11(b) 実験の励起子領域から図 1.14 実験の電子正孔プラズマ領域までを励起密度を変えながら測定する必要がある。

1.2 研究目的

近年相次いで報告された高密度励起された半導体バルク、量子井戸からの特異な短パルス光発生は超放射現象であると主張されたが、そのパルス幅の測定結果とコヒーレント過渡現象が見られる時間の目安となる分極の位相緩和時間の比較はなされていない。

位相緩和時間の励起密度依存性は、四光波混合の実験によって調べられてきた。低温、低密度での励起子による散乱についてはよく理解されている。しかし高密度領域では励起密度に対して位相緩和時間が 10 fs オーダーまで単調減少するという結果や、フェルミ端では散乱抑制により 0.7 ps 程度の長い位相緩和時間をもつ結果が報告されており、キャリア分布の影響に対する実験的検証が不十分で、特に反転分布領域での励起密度依存性が詳しく調べられていない。これが超放射のような半導体の反転分布領域でのコヒーレント過渡現象について、位相緩和時間の観点からの議論がされにくい理由であると考えた。

本研究では、半導体量子井戸のバンド端における反転分布領域での位相緩和時間の励起密度依存性を測定することを目的とする。環境温度 5 K で、弱励起極限から反転分布領域まで光励起キャリアを増加させたとき、四光波混合による位相緩和時間がどう変化するかを測定した。光励起されたキャリアはキャリア間散乱によってエネルギーを分配しあい、1 ps オーダーで非平衡状態から準熱平衡状態へと緩和する。電子正孔対は低密度領域では励起子となり、励起密度を上げていくと中密度領域を経て励起子 Mott 転移点を越え電子正孔プラズマ状態となり、反転分布領域になる。

本研究ではモードロックチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーの二つの光源を簡便に繰り返しを変えて同期させ、チタンサファイアレーザーに比べて 1.5 倍の励起密度範囲で四光波混合測定を行った。同期のタイミングジッターを 7.6 ps と評価した。二波長の同期光源を用いることで吸収飽和を避けつつバンドの高エネルギー側にキャリアを励起し、準熱平衡状態となった高密度の光励起キャリアがフェルミ縮退し反転分布領域となったバンド端で四光波混合を行った。実験では環境温度 5 K で幅 7 nm と 10.5 nm の 30 周期 GaAs 量子井戸を用い、三種類の四光波混合測定法で、励起キャリア分布が非平衡状態の低密度から中密度領域、準熱平衡状態の中密度領域、準熱平衡状態の中密度から反転分布領域を測定した。

低密度から中密度領域での位相緩和時間は、励起密度 $1.5 \times 10^9 / \text{cm}^2$ でサンプルごとに 2.5 ps から 4.0 ps となり、励起密度 $1.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ で測定分解能 0.17 ps となるまで単調減少し、励起キャリアの非平衡、準熱平衡状態を問わずに先行研究と同様の励起密度依存性となった。

励起子吸収ピークが消失し、励起キャリアが電子正孔プラズマ状態となっている準熱平衡状態、反転分布領域での位相緩和時間は、励起密度 $1.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ の測定分解能 0.17 ps から

$8 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ の 0.34 ps まで増加した。反転分布領域で位相緩和時間が励起密度に対し長くなる依存性を今日始めて見出した。

得られた実験結果を理解するために、半導体 Bloch 方程式理論を二次摂動レベルへ発展させた第二 Born 近似での自由キャリア散乱の計算を行った。バンド端で位相緩和時間が励起密度に対し反転分布領域で減少から増加へと転じるという、実験結果を定性的に再現する計算結果を初めて示した。この依存性は、位相空間充填効果とポテンシャルの遮蔽長の減少によってバンド端での散乱が抑制される結果であると考えた。

本研究で得られた結果から、高密度励起されフェルミ縮退した半導体量子井戸のバンド端では、400 fs 程度の時間スケールで超放射のようなコヒーレント過渡現象が起こりうる事が確かめられた。

1.3 本論文の構成

第一章、序論では、研究背景として近年報告された半導体電子正孔系からの超放射の例を挙げ、その時間スケールと位相緩和時間の関係が調べられていないことを指摘した。低密度領域から高密度領域の位相緩和時間を四光波混合によって調べた代表的な先行研究についてまとめ、反転分布領域の励起密度依存性がほとんど調べられていないことを説明した。反転分布が作られやすい実験条件で、反転分布状態での位相緩和時間の密度依存性を知るといふ本研究の研究目的を説明した。

第二章、実験方法では、本研究に用いる三つの半導体量子井戸サンプルの説明とその評価について説明する。励起光源として用いたチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーの同期と、そのタイミングジッターの評価について説明する。四光波混合測定法の概要と、それに用いる二種類の繰り返しの測定系を説明する。励起密度の見積もり方、測定に用いたロックイン検出法について説明を行う。

第三章、実験結果では、測定された四光波混合信号とそこから抽出された位相緩和時間について説明する。実験は 2 パルス四光波混合、バンド端プレパルス + 2 パルス四光波混合、バンド間プレパルス + 2 パルス四光波混合の三種類の方法で行い、それぞれ励起キャリアが非平衡状態の低密度から中密度領域、準熱平衡状態の中密度領域、準熱平衡状態の中密度から反転分布領域での位相緩和時間の励起密度依存性を測定する。反転分布領域で位相緩和時間が励起密度に対して増加するというこれまで知られていなかった結果が得られたことを示す。

第四章、モデル計算では、本実験で得られた反転分布領域での位相緩和時間の密度依存性について、理論計算によって定性的な説明を行う。まず自由電子近似計算によって、励起キャリア密度に対するフェルミ分布の化学ポテンシャルを見積もる。半導体 Bloch 方程式理論を二次摂動レベルへ発展させた第二 Born 近似での自由キャリア散乱の計算によって、バンド端での位相緩和時間の励起密度依存性の計算を行う。計算結果では、反転分布領域で励起密度に対する位相緩和時間の増加が見られ、実験結果を定性的に再現したことを説明する。この結果が位相

空間充填効果による散乱抑制であると解釈できることを説明する。位相緩和時間のエネルギー依存性とキャリア温度依存性、ポテンシャルの遮蔽長依存性の計算を行い、本研究と先行研究の対応関係について考察する。

第五章、結論と展望では、本研究の結論をまとめ、いくつかの展望を述べる。

第2章 実験方法

この章では、本研究に用いる三つの半導体量子井戸サンプルの説明とその基礎的な光学評価の結果について説明する。励起光源として用いたチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーの同期と、そのタイミングジッターの評価について説明する。四光波混合測定法の概要と、それに用いる二種類の繰り返しの測定系を説明する。励起密度の見積もり方、測定に用いたロックイン検出法について説明を行う。

2.1 測定試料

測定には二種類のガリウム砒素 (GaAs) 多重量子井戸サンプルを用いた。試料は GaAs 基板上に分子線エピタキシー法により量子井戸構造を結晶成長し、ウェットエッチングで基板を取り除いた後、透過測定用の基板に貼り付け、クライオスタット中のコールドフィンガーにマウントした。試料構造の設計は私が行い、分子線エピタキシーによる結晶成長は当研究室の金昌秀博士に依頼した。その後のサンプルのプロセスと評価は私が行った。この節では試料構造とプロセス方法、クライオスタットへのマウント方法について説明する。

2.1.1 30周期 7 nmGaAs 多重量子井戸サンプル

図 2.1 は 30 周期 7nmGaAs 多重量子井戸サンプルの試料構造である。VG15052001 はサンプル番号である。サンプルは厚み 500 μm の GaAs 基板上に、50%AlGaAs デジタルアロイ構造の 1 μm のバッファ層、5.6 nm AlAs のバリア、7.0 nm GaAs の量子井戸からなる 30 層の多重量子井戸層、30%AlGaAs のバッファ層、30 nm の GaAs キャップ層が分子線エピタキシー法により結晶成長されている。

2.1.2 30周期 10.5 nmGaAs 多重量子井戸サンプル

図 2.2 は 30 周期 10.5 nmGaAs 多重量子井戸サンプルの試料構造である。VG16072501 はサンプル番号である。サンプルは厚み 500 μm の GaAs 基板上に、50%AlGaAs デジタルアロイ構造の 1 μm のバッファ層、22 nm 32%AlAs のバリア、10.5 nm GaAs の量子井戸からなる 30 層の多重量子井戸層、再び 50%AlGaAs デジタルアロイ構造の 1 μm のバッファ層、30 nm の GaAs キャップ層が分子線エピタキシー法により結晶成長されている。

30MQW
VG15052001

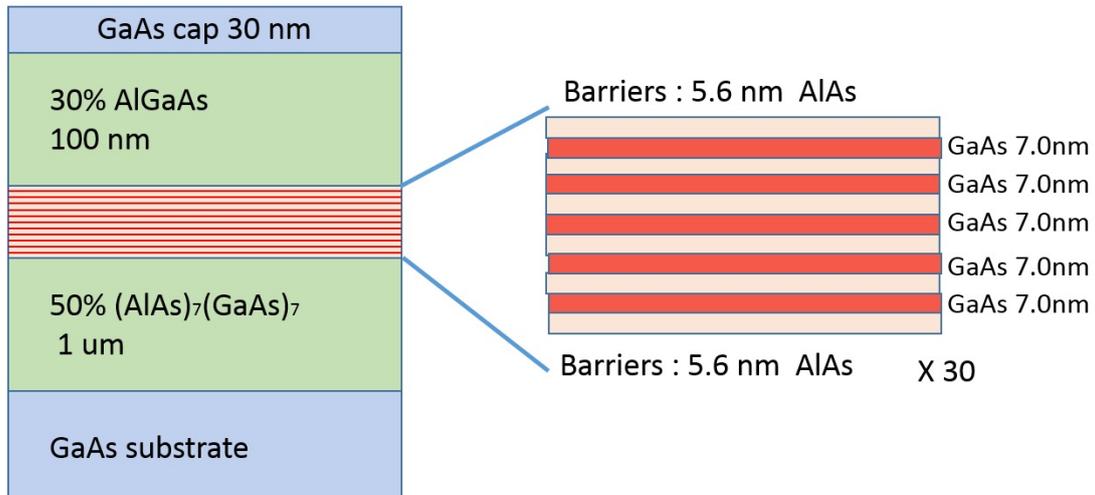


図 2.1: 30 周期 7 nmGaAs 多重量子井戸 (MQW) サンプル構造

30MQW
VG16072501

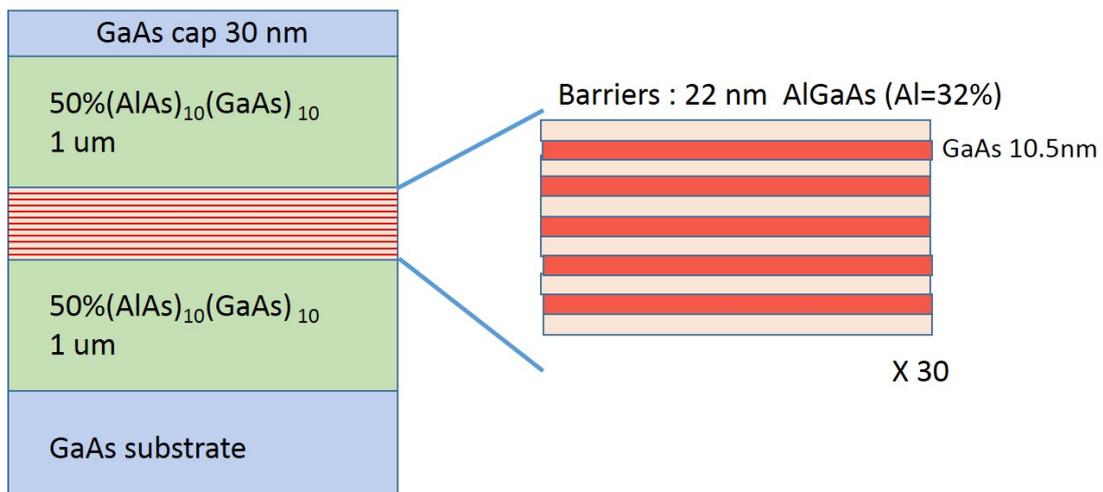


図 2.2: 30 周期 10.5 nmGaAs 多重量子井戸 (MQW) サンプル

10.5 nm 量子井戸サンプルは前述の 7 nm 量子井戸サンプルについての、後述する PL 測定と四光波混合の実験結果から、以下のような目的をもって設計した。

- サンプルの脆さ

GaAs 基板除去後のサンプル厚みは、7 nm 量子井戸サンプルでは 1.5 μm であるが、このサンプルは機械的に脆く、低温測定時のサンプル、接着剤の伸縮により加わる力によってしわや

破損が起きた（付録 B で詳しく説明する）。これを防ぐために 10.5 nm 量子井戸サンプルでは基板除去後のサンプル厚みが厚くなるよう設計した。その結果、機械的な強度が改善した。

- 界面ラフネスの影響

7 nm 量子井戸サンプルでは、後述の低温フォトルミネッセンス（PL）測定において、先行研究よりも著しく広い幅をもつ PL スペクトルが見られた。7 nm 量子井戸サンプルにはサンプル品質には GaAs ヘテロ接合の界面ラフネスの影響があり、井戸幅の揺らぎによる PL スペクトルのブロードニングが起きていると考えられる。そこで、二つ目のサンプルでは井戸幅を 10.5 nm と広くし、界面ラフネスの影響を受けにくくした。その結果、PL スペクトル幅が減少した。

- 量子井戸エネルギー準位の設計

後述するバンド間プレパルスの実験では、利得スイッチングレーザー光源の 774 nm (1.60 eV) の光によってバンドの高エネルギー側にキャリアを励起し、バンド端の励起子共鳴で四光波混合の実験を行う。そのため、低温での励起子準位が 1.60 eV よりも十分低エネルギー側となるサンプルが必要となった。二つ目のサンプルでは井戸幅とバリア組成比を設計し、励起子発光エネルギーが 1.55 eV のサンプルを作製した。

2.1.3 透過サンプルのプロセス、マウント

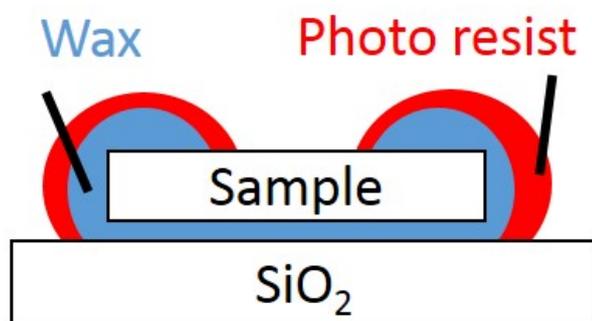


図 2.3: サンプルのプロセス

結晶成長された円形のサンプルをまず短冊状に 1/4 にへき開し、GaAs 基板が外側になるようにエレクトロンワックスでガラス基板に貼り付け 20% ブロムメタノール溶液で厚み 150 μm 程度になるまでエッチングした。その後 150 $^{\circ}\text{C}$ に加熱した 1-メチル 2-ピロリドンでエレクトロンワックスを洗浄し一旦ガラス基板から取り外した。サンプルを 5 mm 角にへき開しエレクトロンワックスで単結晶 SiO_2 、あるいは Al_2O_3 基板に貼り付けた。その際サンプルの側面からエッチングされるのを避けるため図 2.3 のようにエレクトロンワックスとフォトレジストを塗布した。まず 60 $^{\circ}\text{C}$ の濃硫酸 33% 過酸化水素水 66% の溶液で厚み 50 μm 程度までエッチング

し、次にアンモニア水4%過酸化水素水96%の溶液を用いて、GaAsとAlGaAsのエッチング速度の違いを利用した選択エッチング法によってGaAs基板のみを完全に除去した。サンプル外縁部にはGaAs基板がエッチングされずに残っている。透過測定、四光波混合測定はエッチングされた中央部で行う

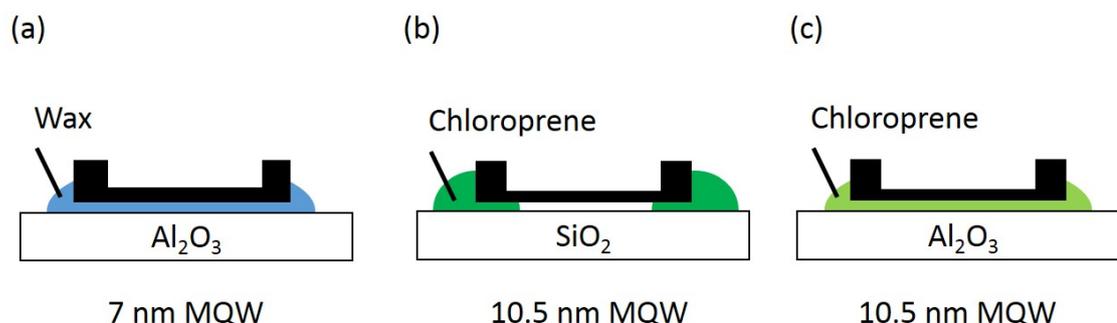


図 2.4: 実験に用いた三つのサンプルの接着方法。(a)7 nm 量子井戸、(b)10.5 nm 量子井戸 No.1、(c)10.5 nm 量子井戸 No.2

エッチング後のサンプルから三種類の実験に用いるサンプルを作製した。いくつかの接着方法で1 cm 角の単結晶 Al₂O₃ 基板または単結晶 SiO₂ 基板に接着した (図 2.4)。単結晶 Al₂O₃ 基板は熱伝導性に優れ、レーザー光の入射時に低温を保ちやすいと考えた [23]。

(a)7 nm 量子井戸サンプルは、室温アセトンでフォトレジストを除去し、そのまま実験に用いた。

(b)10.5 nm 量子井戸の一つ目のサンプルは、過熱した1-メチル2-ピロリドンでフォトレジストとエレクトロニックワックスを洗浄して基板からはがした後、単結晶 SiO₂ 基板にペーパーボンド(クロロプレングムの溶剤形接着剤)で接着した。ただしこのとき透過測定面には接着剤がつかないようにした。以下ではこのサンプルを 10.5 nm 量子井戸 No.1 として呼称する。

(c)10.5 nm 量子井戸の二つ目のサンプルは、過熱した1-メチル2-ピロリドンでフォトレジストとエレクトロニックワックスを洗浄して基板からはがした後、単結晶 Al₂O₃ 基板にシクロヘキサンで希釈したペーパーボンドでサンプル前面を接着した。以下ではこのサンプルを 10.5 nm 量子井戸 No.2 として呼称する。

図 2.4 では作図の都合上 GaAs サンプルは単結晶基板から浮いているように見えるが、実際には GaAs サンプルは単結晶基板に押し付けられるようにして接着されている。接着方法をこのように変えたのは、実験途中で接着方法が原因と考えられるサンプルの破損や温度上昇の問題が起きたためである。サンプル接着面の様子、サンプルの破損については付録 B で詳しく説明する。

単結晶基板に接着されたサンプルは1cmの穴を開けた銅コールドフィンガーにペーパーボンドで貼り付けた (図 2.5)。コールドフィンガーはOxford製マイクロクライオスタット中に設置し、液体 He を用いて温度 5 K に冷却して実験を行った。クライオスタットの中にはヒーターと温度計が内蔵されており、外部コントローラーによって温度のモニターと調整が出来る。

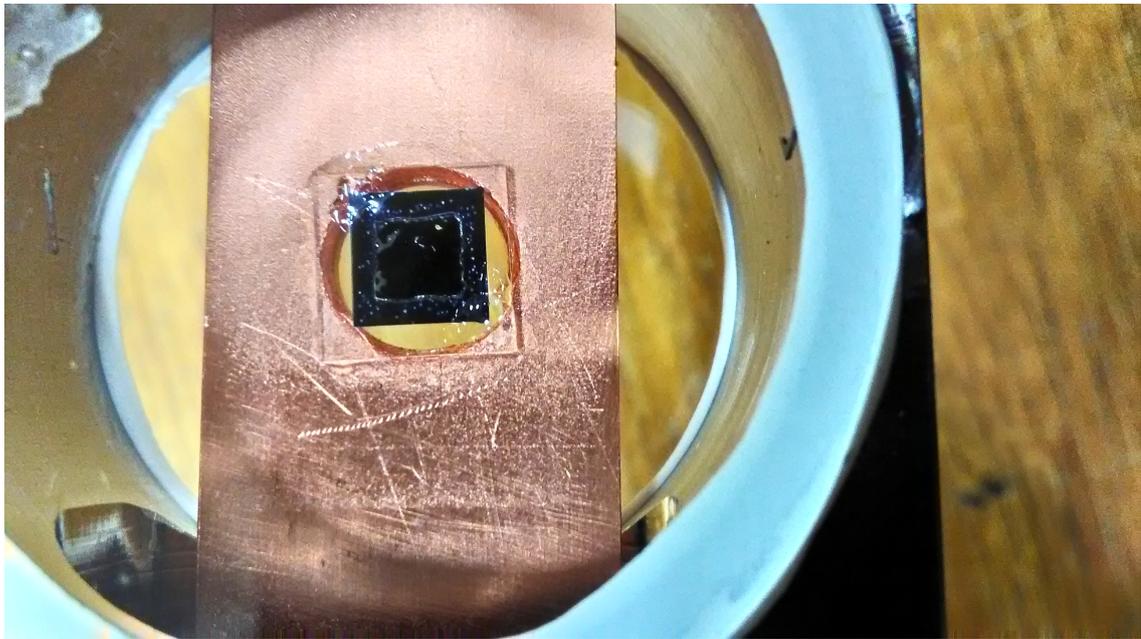


図 2.5: サンプルのマウント

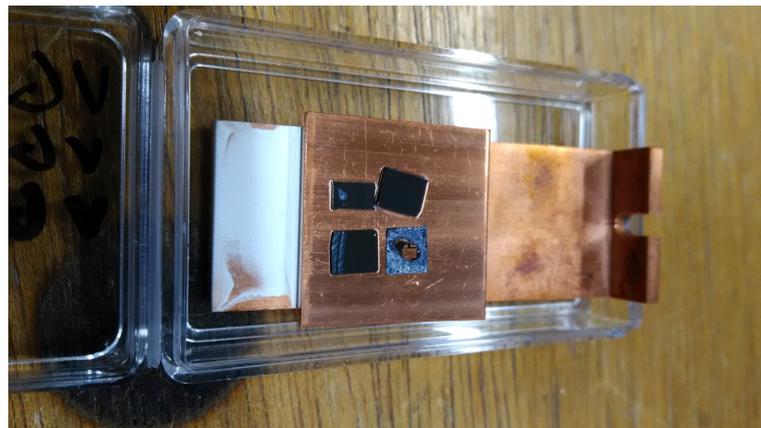


図 2.6: コールドフィンガー上の PL 測定用サンプル

また、サンプル評価が目的のフォトルミネッセンス測定には、 $150\ \mu\text{m}$ まで削ったサンプルの一部を図 2.6 のように銅プレート上にペーパーボンドで接着し、銅プレートを銅コールドフィンガーに銀ペーストで接着したサンプルを用いた。

2.2 測定試料の光学評価

この節では、サンプルのフォトルミネッセンス (PL) スペクトルと透過率スペクトルの測定結果について説明する。これらの結果によって四光波混合を行うバンド端エネルギーや励起密度の見積もりに用いる吸収率が得られた。

2.2.1 低温でのフォトルミネッセンススペクトルの測定

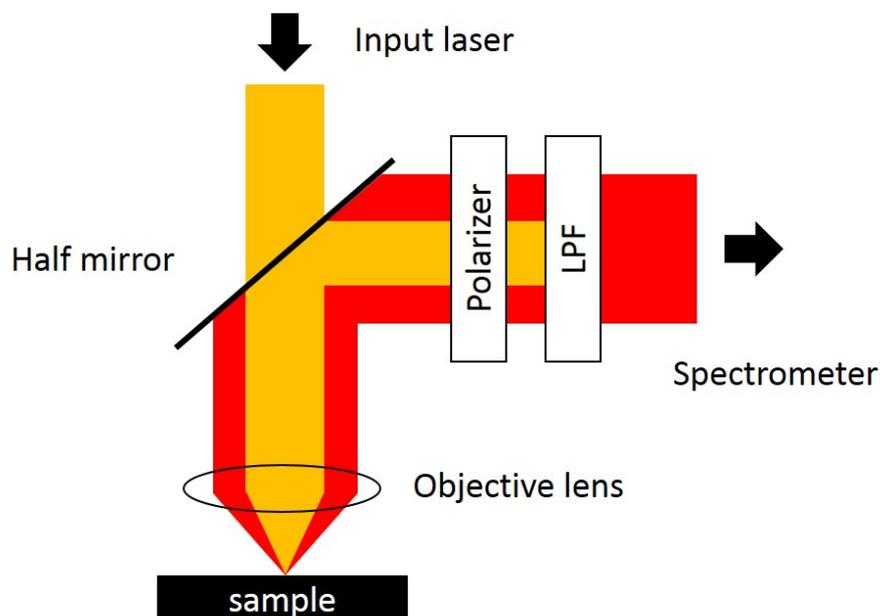


図 2.7: PL 測定系。黄色が入射レーザー光、赤が対物レンズ (Objective lens) に結合したフォトルミネッセンス (PL)。Polarizer、LPF はそれぞれ偏光子、ロングパスフィルター

低温での PL スペクトル測定を行った。図 2.7 は測定系の概要である。測定は CW チタンサファイアレーザーの波長 730 nm、強度 60 nW の光 (黄色) を対物レンズでサンプル上にスポット径 $1\ \mu\text{m}$ で絞り、サンプルの発光 (赤色) を反射配置で対物レンズでコリメートし、ハーフミラーで取り出したあと偏光子とロングパスフィルターで励起光を除去し、分光器で測定した。サンプルはクライオスタット中で 5 K に冷却した。

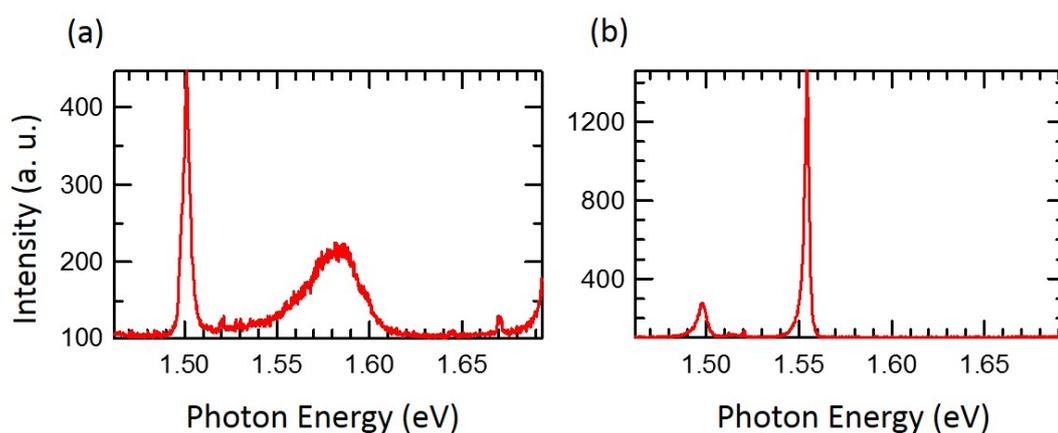


図 2.8: (a)7 nm 量子井戸、(b)10.5 nm 量子井戸サンプルの PL スペクトル

図 2.8 は 7 nm 量子井戸、10.5 nm 量子井戸サンプルの温度 5 K での PL スペクトルである。10.5 nm 量子井戸サンプルについては PL 測定用にマウントされたエッチング前のサンプル (図

2.6) なので、10.5 nm 量子井戸 No.1、No.2 の区別はない。7 nm 量子井戸、10.5nm 量子井戸のどちらにも 1.50 eV にバルク GaAs 基板の発光ピークが見られる。7 nm 量子井戸サンプル (a) には 1.583 eV に半値全幅 30 meV の量子井戸の発光が見られ、10.5 nm 量子井戸サンプル (b) には 1.554 eV に半値全幅 3 meV の量子井戸の発光が見られた。

2.2.2 室温での透過率スペクトルの測定

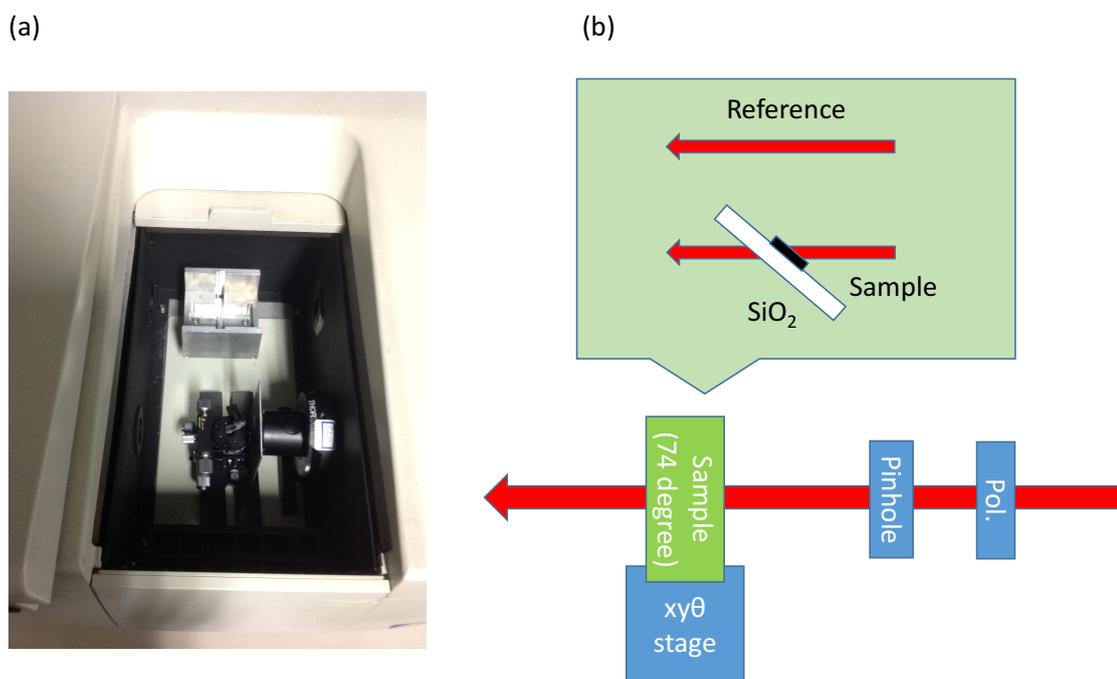


図 2.9: 透過率測定のセットアップの写真 (a) と概要図 (b)。Pol. は偏光子

室温での透過率スペクトルの測定を行った。測定は分光光度計（日本分光 V570）を用いて行った。図 2.9 は分光光度計内のセットアップの写真 (a) と概要図 (b) である。分光光度計では、波長を変化させながらサンプルの透過光とリファレンス光の強度変化を測定し、透過率スペクトルを算出する。しかし、薄膜のサンプルの場合には、薄膜干渉によって測定結果が波状のスペクトルになってしまう。そこで、測定ではサンプルへの入射光を偏光子を用いて P 偏光に限定し、サンプルを回転させてブリュースター角で透過光を測定し薄膜干渉を抑制した。空気の屈折率を 1.0、GaAs の屈折率を 3.5 とし、ブリュースター角を 74° と見積もった。サンプルの透過測定が可能なエッチング部分が分光光度計のビーム径よりも小さかったため、ピンホールを用いてビーム面積を小さくした。このセットアップでまずサンプルをビームライン上からずらした状態でベースラインの測定を行い、それを用いて補正した透過率スペクトルを得た。

図 2.10 は (a)7 nm 量子井戸サンプル (b)10.5 nm 量子井戸サンプル No.1(c)10.5 nm 量子井戸サンプル No.2 の室温での透過率スペクトルである。グラフの縦軸は上端を 1 %、下端を 100 % で対数プロットしている。透過率を T_λ とすると、この表示でのグラフ波形は $A_\lambda = -\log_{10}(T_\lambda)$

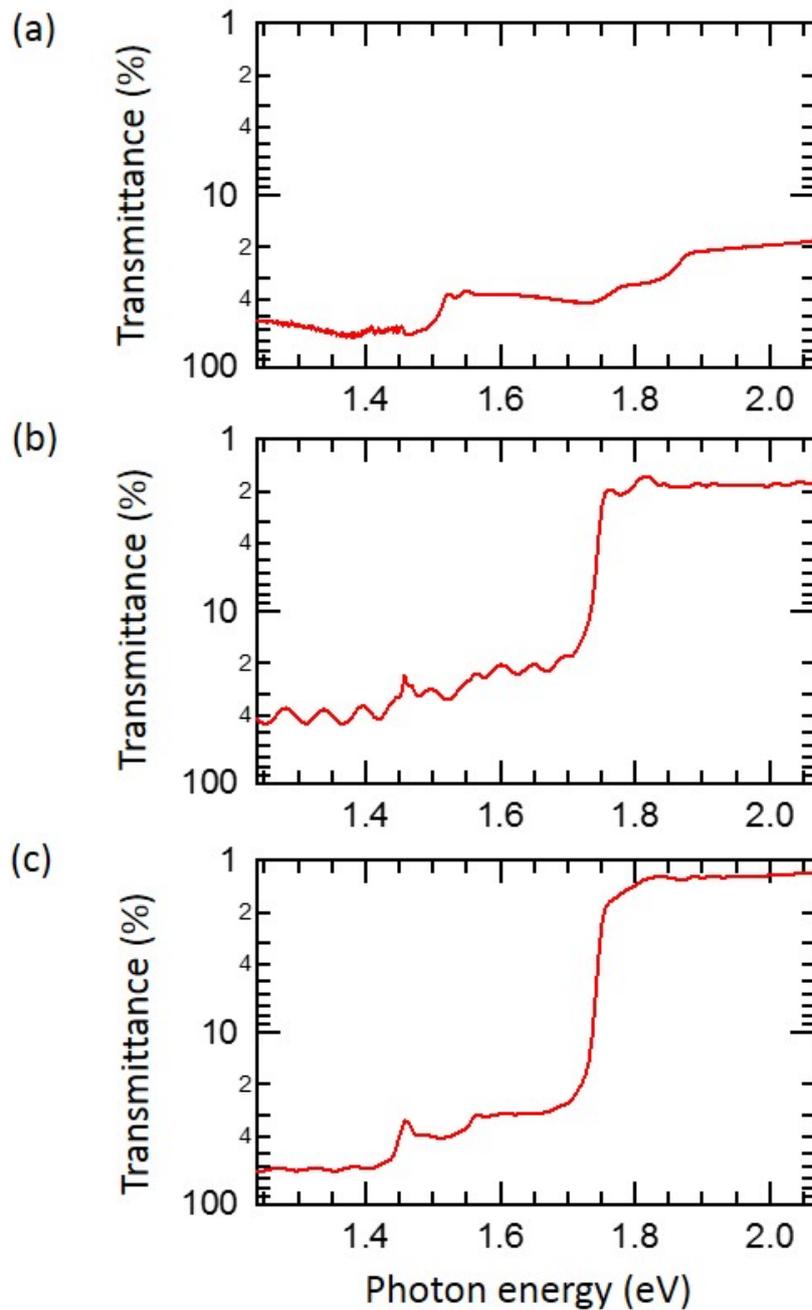


図 2.10: 室温での透過率スペクトル。(a)7 nm 量子井戸サンプル, (b)10.5 nm 量子井戸サンプル No.1, (c)10.5 nm 量子井戸サンプル No.2

で定義される光学密度 (Optical density, O. D.) A_λ と同じ形になる (透過率 10%が光学密度 1、1%が光学密度 2 に対応する)。

図 2.10 では薄膜干渉が抑えられているものの完全には消えなかった。サンプル膜厚の違いにより薄膜干渉周期に違いが見られた。7 nm 量子井戸サンプル (a) では、光子エネルギー 1.52、1.55 eV、そこから少し離れて 1.78 eV、1.88 eV に構造が見られる。二つの 10.5 nm 量子井戸サンプル No.1 (b)、No.2(c) はほぼ同じ波形となった。薄膜干渉のため少しわかりづらいが、1.46、1.47 eV、さらに 1.52、1.76 eV に構造が見られる。

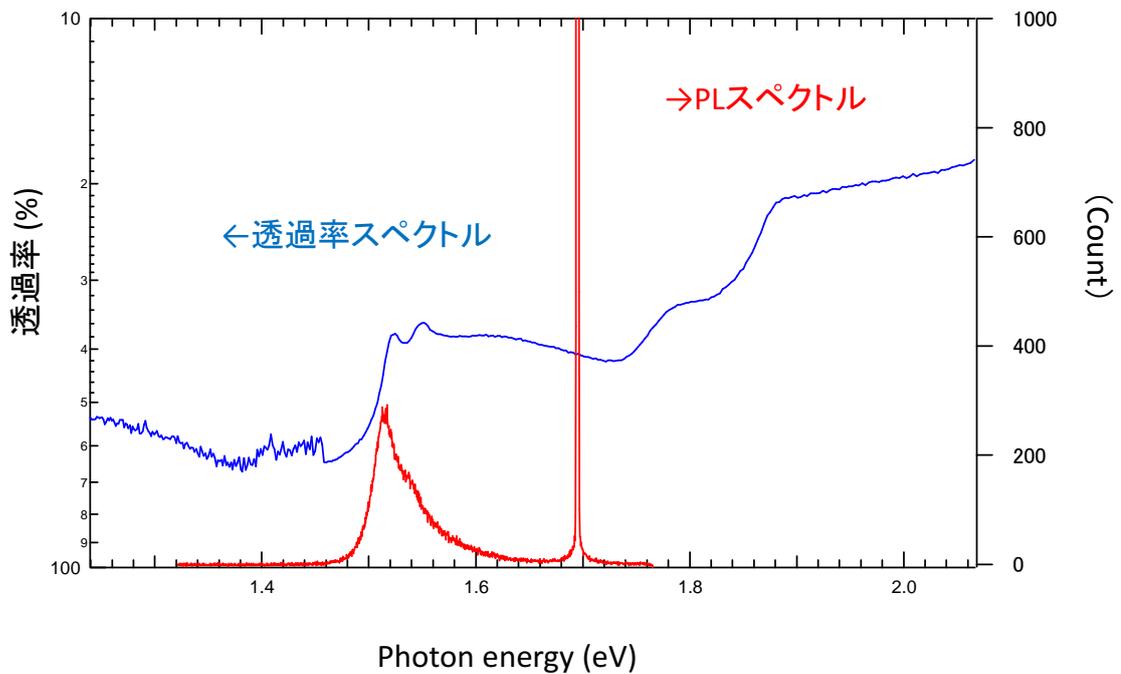


図 2.11: 7 nm 量子井戸サンプルの室温での透過率スペクトル（青）と PL スペクトル（赤）の比較

図 2.11 は 7 nm 量子井戸サンプルの室温での透過率スペクトル（青）と PL スペクトル（赤）とを比較した結果である。PL スペクトルの光子エネルギー 1.695 eV に見られるスパイクは PL 測定の励起レーザー光である。1.52 eV に見られる発光ピークが吸収スペクトルの構造と一致していることから、ここが重い正孔励起子準位であると考えられる。また、PL スペクトルの 1.54 eV に見られるわずかなふくらみは、キャリア温度が室温程度となり高エネルギー側にも広がっていることによる軽い正孔励起子発光であると考えられ、これも透過率スペクトルの構造の位置とよく一致している。

著作権に係る図表のため非公表

図 2.12: (a) 7 nm 量子井戸サンプルの室温での透過率スペクトルと (b) 先行研究 [24] との比較

7 nm 量子井戸サンプルについて、室温での透過率スペクトルを先行研究と比較した。図 2.12 は (a) が今回の測定結果。(b) が先行研究 [24] の幅 8.3 nm の量子井戸の室温での吸収スペクトルである。ただし横軸は波長になっている。これを見比べると、今回の 7 nm 量子井戸サンプルの測定結果とよい一致を示していることがわかる。このことから、7 nm 量子井戸サンプルでの波長 820 nm(1.52 eV)、800 nm(1.55 eV)、の吸収ピークはそれぞれ重い正孔励起子、軽い正

孔励起子の 1s 遷移であることがわかる。波長 690 nm(1.80 eV) の構造は重い正孔励起子の 2s 遷移である。

低温 PL の結果から、四光波混合で励起波長を合わせる重い正孔励起子準位を知ることが出来た。また、室温での吸収スペクトルの測定結果は励起密度を見積もる際に参考にした。

2.3 励起光源

励起光源として、モードロックチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーの二種類の光源を用いた。モードロックチタンサファイアレーザーの波長はバンド端に共鳴させ、ビームスプリッターを用いて四光波混合に用いる二つのパルスと、キャリア励起を目的としたバンド端プレパルスに分けて用いた。半導体利得スイッチングレーザーはモードロックチタンサファイアレーザーと同期させバンド端より高エネルギー側にキャリアを励起するバンド間プレパルスとして用いた。

2.3.1 モードロックチタンサファイアレーザー光源

実験には市販のモードロックチタンサファイアレーザー光源を用いた。チタンサファイア ($\text{Ti} : \text{Al}_2\text{O}_3$) は波長 532 nm の CW レーザーを用いて励起することで、波長 700~1080 nm の幅広い領域にわたって光学利得が得られる結晶である。そのため、レーザー共振器中に適当な光学部品を置くことにより、波長可変やモードロックによる超短パルスの発生が可能となる。本実験では二つの製品を用いた。

2.3.1.1 Coherent 社製 Mira 900

一つ目は Coherent 社製 Mira 900 である。このレーザーは繰り返し周波数 76 MHz でモードロック動作し、5.5 W ポンプ、波長 800 nm での典型的な強度は 500 mW、パルス幅は 100 fs である。

Mira 900 のパルス幅は、スペック上は 100 fs となっているが、これを自己相関測定によって確かめた。測定には厚み 5 mm の β メタホウ酸バリウム (BBO) Type1 結晶にビームスプリッターで分割した二つのパルスを同一点に集光し、パルスの時間間隔を変えながら第二高調波発生 (SHG) させ、青色ガラスフィルタで SHG のみを透過させた後フォトダイオードでその強度を測定した (この測定は後述する図 2.26 の四光波混合測定系を用いて行った)。図 2.27 はその測定結果である。横軸は二つのパルスの光学遅延時間 (ただし原点は任意に決めた)、縦軸は SHG 強度である。グラフの赤色と青色はステージの順方向と逆方向についての測定結果で、これにより移動ステージにバックラッシュ (マイクロメータのネジの遊びに起因する位置の非再現性) がないことが確かめられた。測定された SHG 強度は、光学遅延時間にたいして半値全幅 0.3 ps を持つガウシアンピークとなった。SHG は二つのパルスの重なった強度に応じて発生す

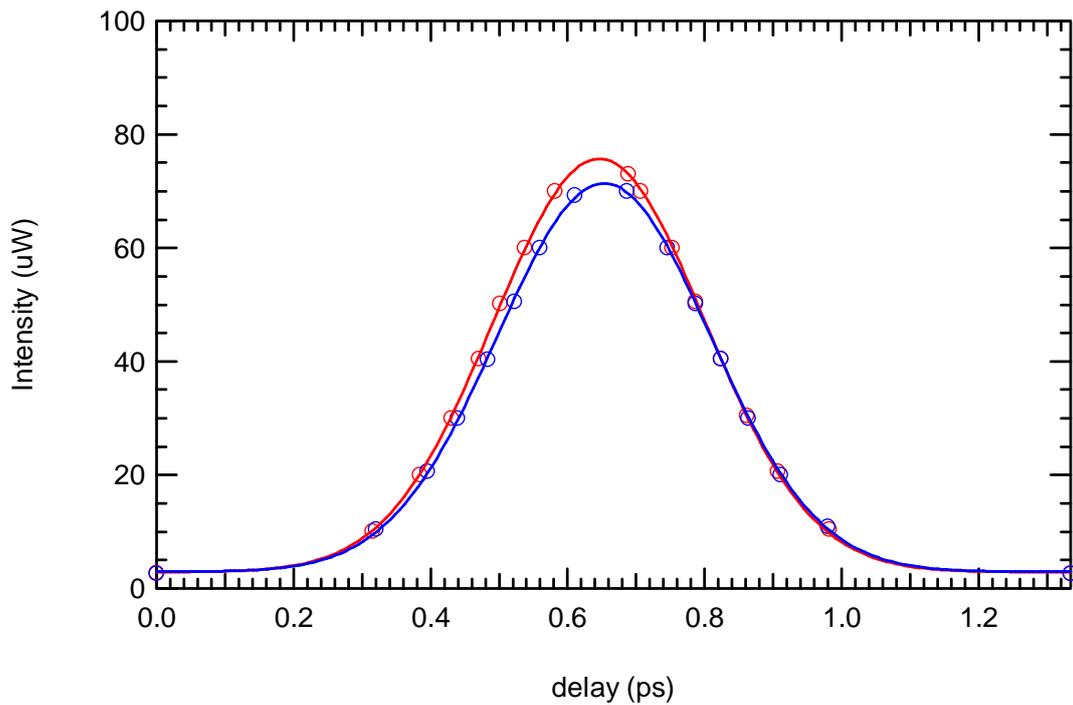


図 2.13: Mira 出力パルスの自己相関波形 (赤) 順、(青) 逆方向スキャン

るので、この幅から元のパルスの時間幅を見積もることが出来る。元のパルスの波形を sech^{-2} 型と仮定し、測定結果をその畳み込み積分であると考え、元のパルス幅は $0.3 \text{ ps} \times 0.648 \sim 0.19 \text{ ps}$ となり、パルス幅は 190 fs であることがわかった。

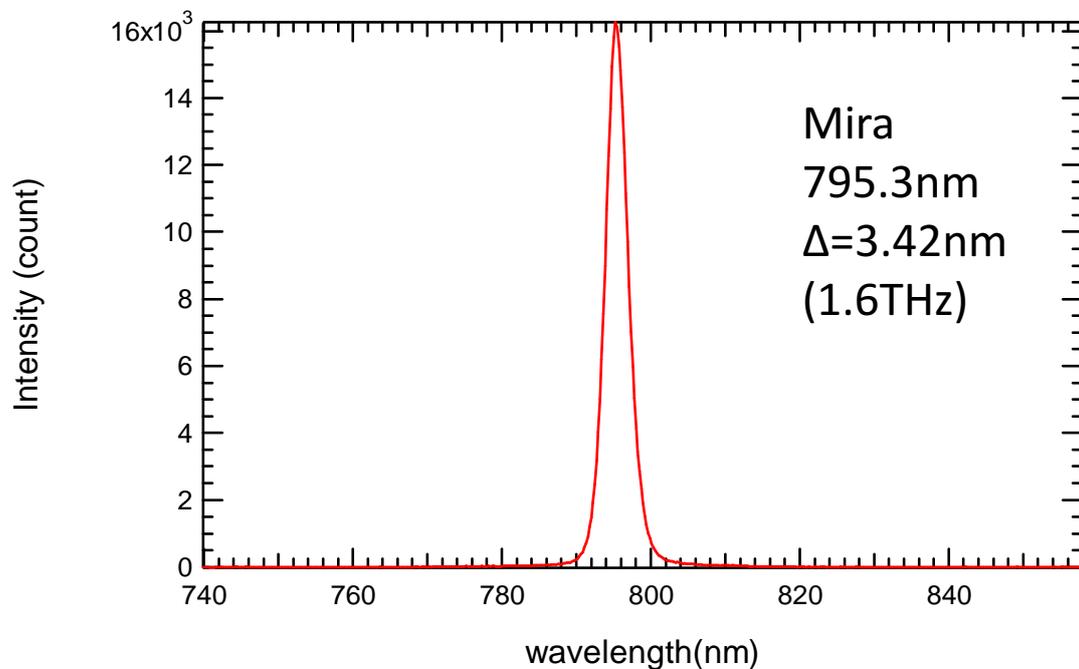


図 2.14: Mira 出力パルスのスペクトル

図 2.14 は分光器で測定した Mira 出力パルスのスペクトルである。波長 795 nm 付近ではス

ペクトル幅は 3.42 nm（帯域幅に直すと 1.6 THz）だった。これと図 2.27 で見積もったパルス幅 190 fs をかけた時間帯域幅積は 0.304 となった。チャープのない光パルスの時間帯域幅積は、パルス波形を sech^2 型を仮定すると 0.315 となり、フーリエ限界パルスに近い値となった。

2.3.1.2 Spectra Physics 社製 Tsunami

二つ目は Spectra Physics 社製 Tsunami である。このレーザーは繰り返し周波数 80 MHz でモードロック動作し、5.5 W ポンプ、波長 800 nm での典型的な強度は 1.1 W、パルス幅は 100 fs である。このレーザーは主にそのオプション製品であるパルスセレクター (Model 3980) と組み合わせて用いた。パルスセレクターは音響光学 Bragg セルを用いて透過レーザー光を決まったタイミングで屈折させパルスを取り出すことにより、レーザーの繰り返しを下げる事が出来る装置である。実験ではパルスセレクターを用いて Tsunami の繰り返しを 8 MHz に下げて用いた。

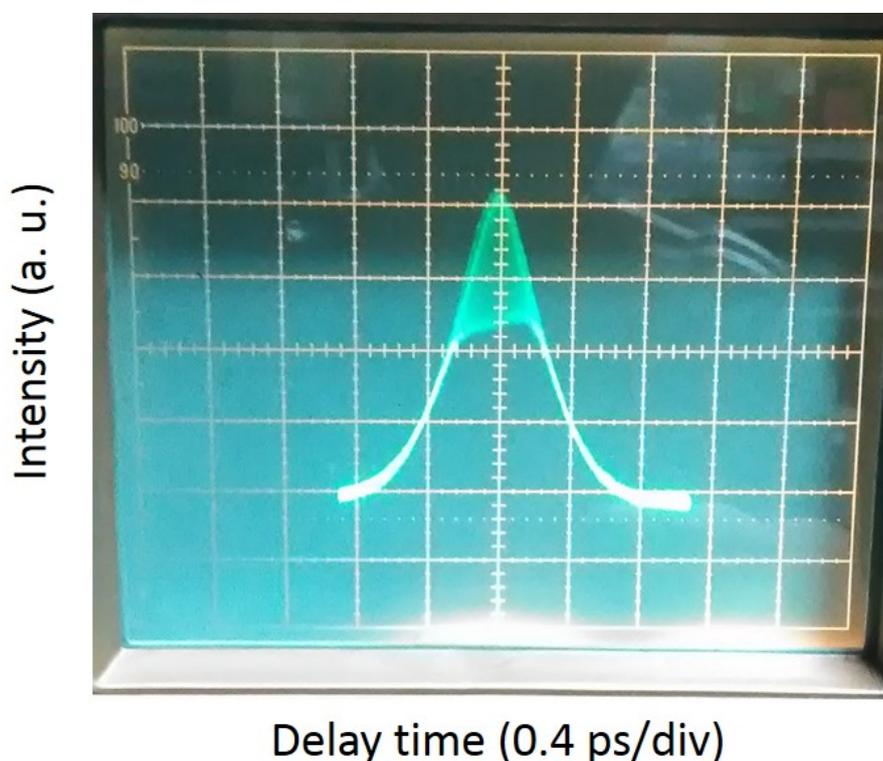


図 2.15: パルスセレクター出力光の自己相関波形、

パルスセレクターに fs パルス光を入力する際、パルスのピーク強度によっては内部の音響光学変調素子の損傷閾値を超えてしまう場合がある。それを防ぐためにパルスセレクターの内部にはパルスストレッチャーが内蔵され、フェムト秒パルスのパルス幅を伸ばすようになっている。パルスセレクターの出力を、自己相関測定器 (APE 製) によって評価した。図 2.15 はその測定結果である。横軸が時間遅延、縦軸が自己相関信号強度であり、自己相関波形の半値全幅

は 0.46 ps だった。元のパルスの波形を sech^{-2} 型と仮定し、測定結果をその畳み込み積分であると考え、元のパルス幅は $0.46 \text{ ps} \times 0.648 \sim 0.30 \text{ ps}$ となり、パルス幅は 300 fs となった。

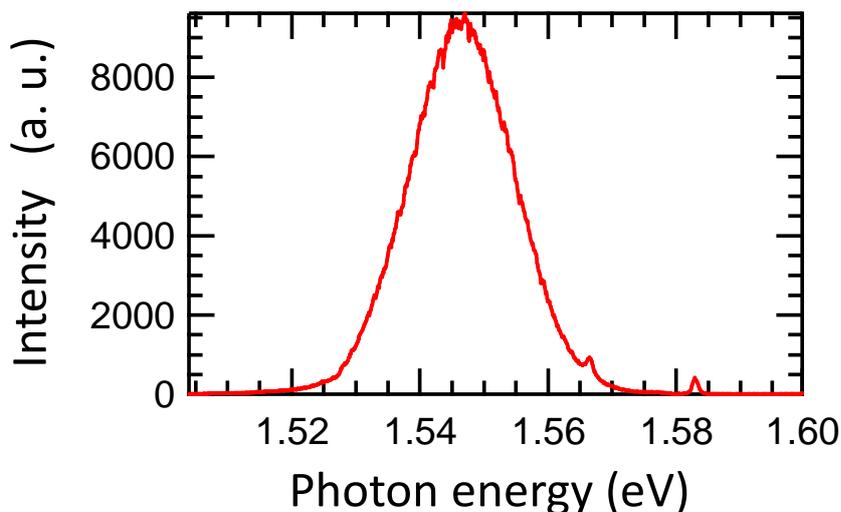


図 2.16: パルスセレクター出力光のスペクトル

図 2.16 は分光器で測定したパルスセレクター出力光のスペクトルである。その半値全幅は 20 meV (帯域幅に直すと 5 THz) だった。これを図 2.15 で見積もったパルス幅とかけた時間帯域幅積は 1.5 となり、 sech^2 型のフーリエリミットパルスを仮定したときの 0.315 よりも大きな値となった。このことから、パルスセレクター内部のパルスストレッチャーによってパルスがチャープされパルス幅が伸びた結果であると考えた。

2.3.2 半導体利得スイッチングレーザー光源

図 2.17 は、実験に用いた半導体利得スイッチングレーザー光源である。この光源は東北大学 Niche 横山研究室で作製されたものである [25]。(a)(b) が実物の写真で、半導体レーザー発振器を含むシードレーザー筐体とファイバーアンプからなるメインアンプ筐体からなる。シードレーザー筐体の内部には、半導体レーザーを駆動するための発振電気回路が内蔵されているが、今回の実験ではチタンサファイアレーザーと同期が可能な外部のパルスジェネレータ (Agilent 81134A) を用いる。パルスジェネレータで作られた幅 100 ps、振幅 500 mV の電気パルスは、二段の高周波増幅器 (rf amp. x2) で増幅された後インジウムガリウム砒素リンの分布帰還型レーザー (InGaAsP DFB) に入力され、利得スイッチングによって波長 $1.55 \mu\text{m}$ のパルス光が放出される。利得スイッチングパルスはファイバーに結合されプリアンプ (Pre amp.) で増幅された後、光学フィルター (Optical filter) で波長 $1.548 \mu\text{m}$ を中心とした成分が切り出される。これがシードレーザー筐体の出力としてファイバーでメインアンプ筐体に入力される。メインアンプ筐体では波長 976 nm のポンプ LD によって励起されたコア径 $20 \mu\text{m}$ のエルビウム添加ファイバー (EDF) によって入力信号が増幅され、光アイソレーターを通して出力される。

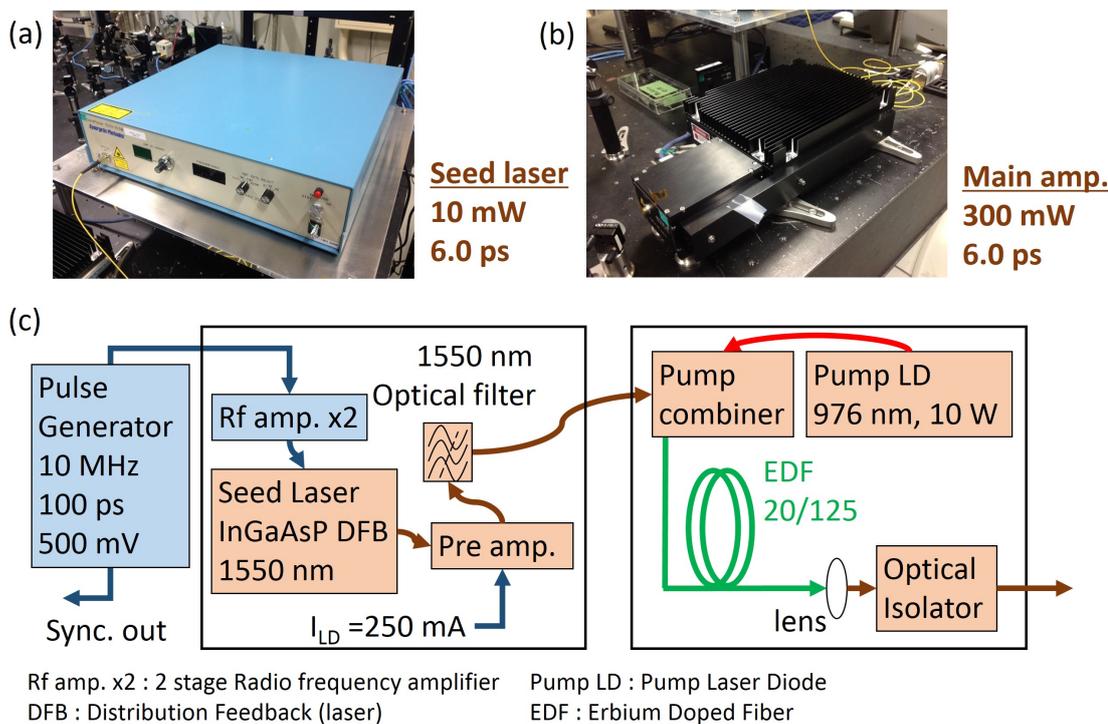


図 2.17: (a) 半導体利得スイッチングレーザー、(b) アンプユニットの写真と (c) 内部構造

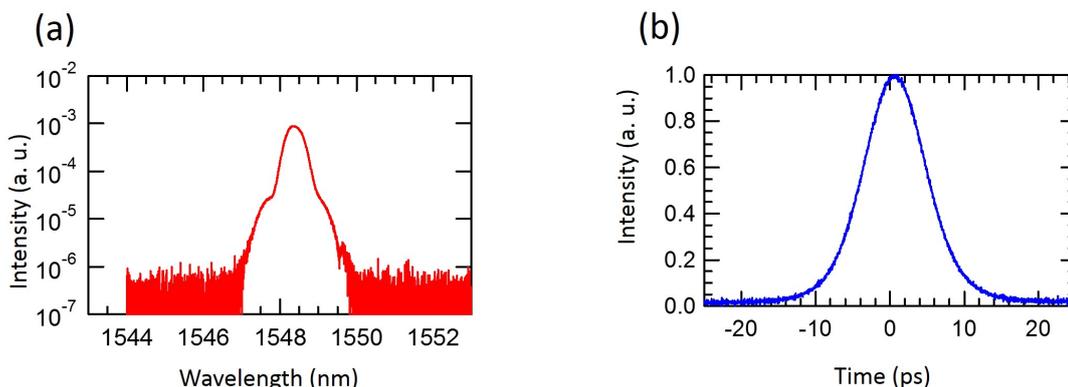


図 2.18: シードレーザーの (a) 出力スペクトル、(b) 自己相関波形

図 2.18 はシードレーザー筐体の出力光パルスのスペクトル (a) と自己相関波形 (b) である。光学フィルターで切り出された光は波長 $1.548 \mu\text{m}$ に中心を持ち、そのスペクトル幅は 0.60 nm (帯域幅 75 GHz) である。自己相関波形から見積もられたパルス幅は 6.4 ps であり、時間帯域幅積は 0.48 で、ガウス型フーリエ限界パルスの値である 0.44 に近い値となっている。

図 2.19 はメインアンプ筐体の出力光パルスのスペクトル (a)、自己相関波形 (b)、ポンプ強度に対する出力強度 (c)、出力光の横モード (d) である。放出光はポンプ強度 3 W まではシードレーザーと同じスペクトル幅となったが、それ以上のポンプ強度では非線形光学効果である自己位相変調によってスペクトル幅がポンプ強度に依存して広がり、三つの山を持つスペクトルとなった。そのときの放出パルス幅は 6.0 ps で、シードレーザーのパルス幅を保っていた。出

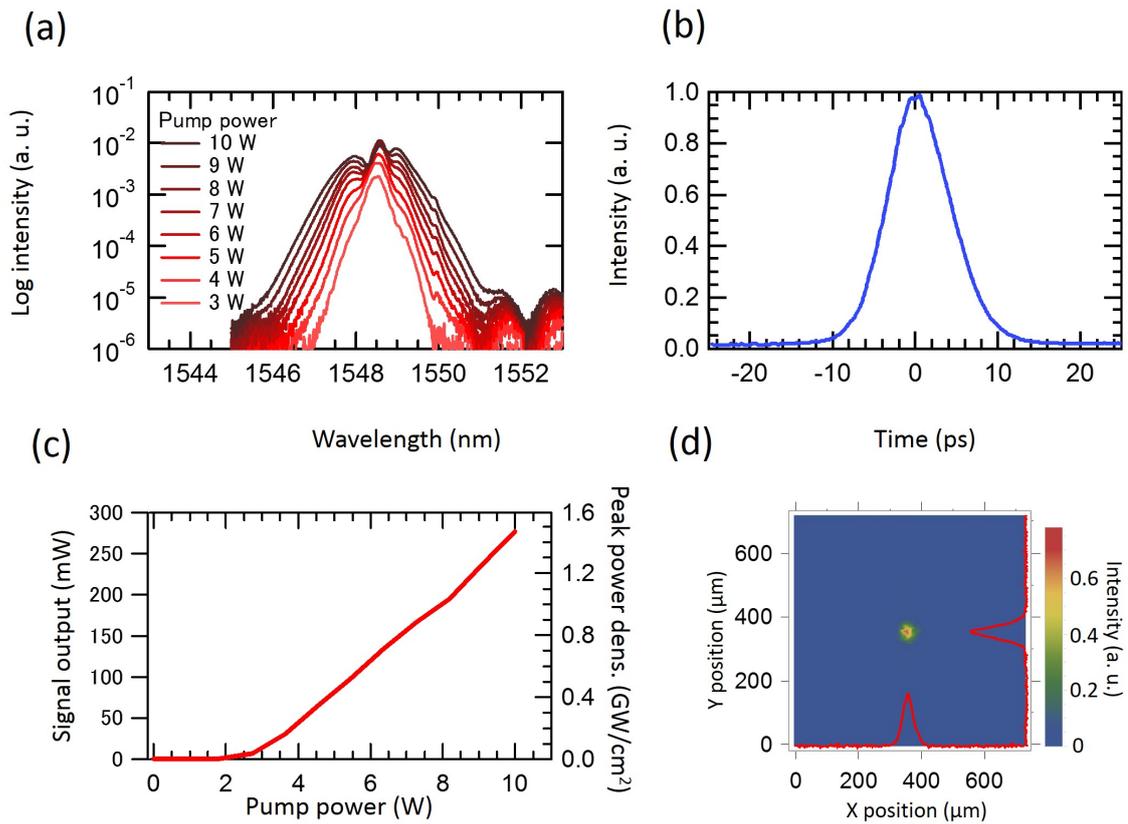


図 2.19: メインアンプの出力。(a) スペクトル。(b) 自己相関波形。(c) 強度。(d) スポット形状。

力強度はポンプ強度 10 W で、280 mW まで増幅された。その間出力光の横モードはガウシアンモードに保たれており、集光することでこの後の SHG 発生を効率よく行うことができた。

メインアンプで増幅された光を MgO 添加分極反転ニオブ酸リチウム結晶 (PPMgLN) に集光して第二高調波発生 (SHG) を行った。図 2.20 は左が入力したメインアンプ出力の基本波のスペクトル、右が出力である SHG のスペクトルである。基本波の中心波長 1548.6 nm に対し、SHG は中心波長 774.3 nm で発生した。メインアンプのポンプ強度に対して縦に並べられており、基本波は自己位相変調によりスペクトルが広がり一つのピークから三つのピークへとその形状が変化している。それに伴って、SHG スペクトルもスペクトルが広がり、一つの山から二つの山へとスペクトル形状が変化した。

図 2.21 は SHG 出力強度とその変換効率である。左がシードレーザーを 10 MHz で駆動したとき、右が 100 MHz で駆動したときの結果である。どちらの繰り返しでも、シードレーザーの出力、メインアンプの出力に大きな変化はなかった (青色曲線)。これは一つのパルスあたりのパルスエネルギーが、繰り返し 100 MHz では 10 MHz のときの 1/10 倍になっていることを示している。このとき、SHG 出力は繰り返し 10 MHz では最大で 130 mW となり、100 MHz では 50 mW となった (赤色曲線)。SHG 強度を基本波の強度で割り、SHG の変換効率を灰色の曲線で示した。繰り返し 10 MHz では、基本波の強度に対して変換効率は徐々に飽和し、最大で 46% となった。一方で 100 MHz では変換効率の飽和は見られず。最大で 16% となった。一般

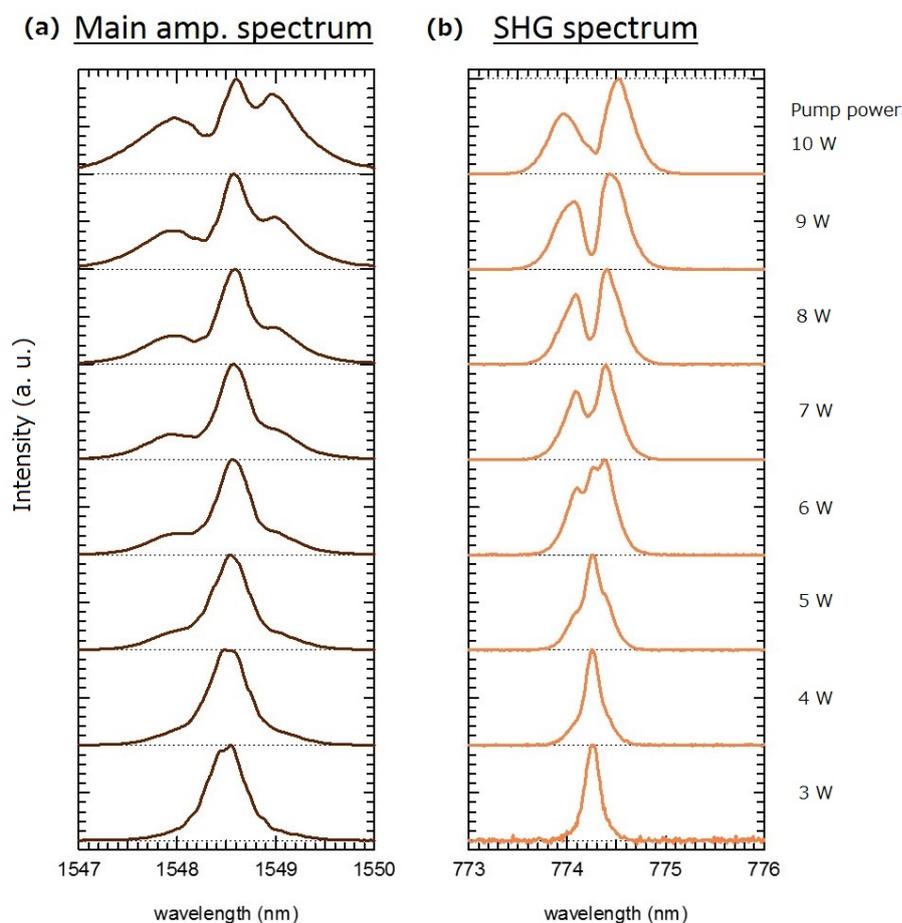


図 2.20: (a) 基本波スペクトルと (b)SHG スペクトル

に第二高調波は光強度が大きいほど高効率に発生させることができる。繰り返し 10 MHz のときにくらべ 100 MHz の場合には入射光のパルスエネルギーが小さくなるために SHG の変換効率が下がっていると考えた。

2.3.3 チタンサファイアレーザーと利得スイッチングレーザーの同期

実験では、モードロックチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザー光源を同期させて実験を行った。図 2.22 はその基本的なセットアップである。まず、モードロックチタンサファイアレーザーの出力の一部をビームサンプラーで取り出し、フォトダイオードで電気信号に変換した後パルスジェネレータ (Agilent 製 81134A) の外部クロック端子に入力し内部発振器と同期させた。次に、パルスジェネレータのデータパターン出力機能を用い、パルスジェネレータの内部クロックに対し 10 回に 1 回電気パルスが発生するようにした。この 8MHz の信号を、一系統は利得スイッチングレーザーに入力し、もう一系統はパルスセレクターのトリガー信号として用いた。繰り返し 8 MHz で動かした場合の利得スイッチング光源、SHG の強度は 120 mW となり、図 2.21 の繰り返し 10MHz のときの変換効率となった。チタンサファイアレーザーの入力強度 1.1 W に対してパルスセレクターの出力強度は 60 mW となり、繰り返し

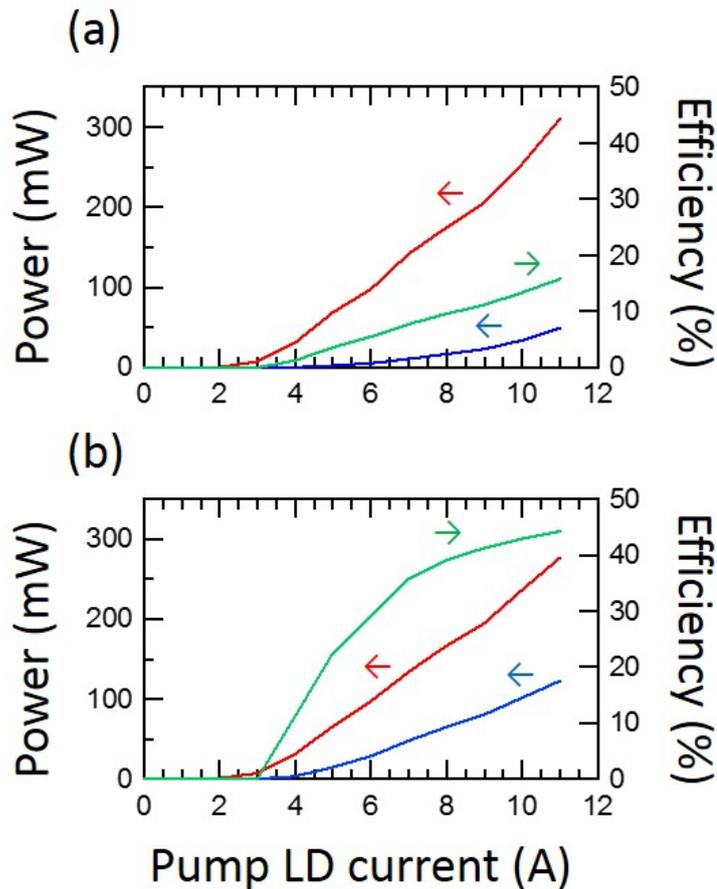


図 2.21: (a) 繰り返し 10 MHz と (b) 繰り返し 100 MHz での (赤) メインアンプ出力 (青) SHG 出力 (緑) SHG 変換効率。

返しさが 1/10 になっていること、パルスセレクター内部の AOM の回折効率が 60% であることなどから、ほぼスペック通りの出力強度が得られた。

一般的に利得スイッチングレーザーには、タイミングジッターと呼ばれる、1 パルスごとのタイミングのばらつきが起きることが知られている。実際に見られるパルスタイミングのばらつきには、電気回路のタイミングジッターも加わっている。タイミングジッターの評価は節 2.6 で説明するサンプルの過渡吸収信号の測定によって行われ、7.6 ps と見積もられた。これは同じくチタンサファイアレーザーと利得スイッチングレーザーの同期を行った先行研究 [26] で見積もられたタイミングジッター 2.7 ps より大きい値となった。

2.3.4 本研究で用いた励起光源の特徴

本研究で用いた励起光源の特徴を表 2.1 にまとめた。Mira 900 と Tsunami はチタンサファイアレーザーであり、利得スイッチングレーザー光源は半導体レーザーダイオードを用いた光源である。Tsunami+パルスセレクター光源は、利得スイッチングレーザー光源と繰り返し周波数 8 MHz で同期させ、チタンサファイアレーザーの波長が可変な二波長の光パルスを用いたポ

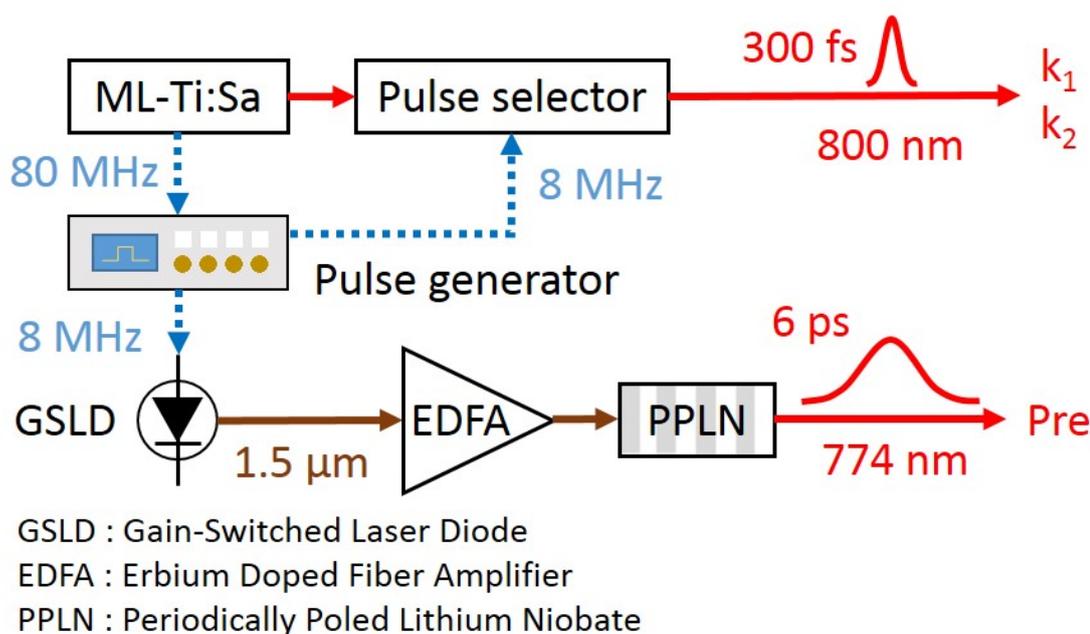


図 2.22: モードロック Ti:Sa レーザー (ML-Ti:Sa) と利得スイッチングレーザー (GSLD)、パルスセクターの同期

ンププローブ実験が可能となっている。この同期光源の特徴は、チタンサファイアレーザーの光信号をサンプリングし、それと同期させたパルスジェネレータでレーザーダイオードをパルス駆動させるという単純さにあり、複雑な光共振器へのフィードバック機構は必要なく、繰り返し周波数の変化への対応が容易な点にある。利得スイッチングレーザーの特徴であるパルスごとのタイミングのばらつき（タイミングジッター）がポンププローブ実験では問題となりうるが、この同期光源のタイミングジッターは7.6 psで、本研究でプレパルスとして用いる用途では問題とならない範囲だった。タイミングジッターの評価については節 2.6 で説明する。

これらの光源のパルスエネルギーを比べると、チタンサファイアレーザーでは5 W 励起で9.9 nJ、7.5 nJであり、利得スイッチングレーザー光源では15 nJで、チタンサファイアレーザー

表 2.1: 本研究で用いた励起光源の特徴

	Mira 900 (5.5 W 励起)	Tsunami (5 W 励起) +パルスセクター	利得スイッチングレーザー +アンプ、SHG
繰り返し周波数	76 MHz	8 MHz	8 MHz
最大出力平均強度	750 mW *	60 mW *	120 mW
パルスエネルギー	9.9 nJ *	7.5 nJ *	15 nJ
パルス幅	190 fs	300 fs	6.0 ps
タイミングジッター	-	-	7.6 ps **
波長範囲	700 ~ 1000 nm	720 ~ 850 nm	774 nm

* Mira 900 と Tsunami+パルスセクターの最大出力強度は波長 800 nm での値

** Tsunami+パルスセクターと利得スイッチングレーザーの同期のタイミングジッター

の1.5倍から2倍のパルスエネルギーを持っている。そのため、利得スイッチングレーザー光源をプレパルスとして用いることで、チタンサファイアレーザーを用いるよりも1.5倍の励起密度範囲を調べることができた。

また、四光波混合測定及びポンププローブ測定で他に重要となる点として、サンプル加熱の問題と平均信号強度が挙げられる。測定の繰り返し周波数が高い場合には、光励起されたキャリアのエネルギーが格子系に移りサンプルが加熱される問題がしばしば起きる。その場合には、パルスセクターを用いて測定の繰り返し周波数を下げ、サンプルに与えられる熱量が排熱量を上回らないように調整される。また、測定の繰り返し周波数が低い場合には、平均信号強度が低下し信号雑音比が悪化するという問題が起きる。Tsunami+パルスセクターと利得スイッチングレーザーの同期光源では、パルスジェネレーターによりパルスセクターのトリガー周波数と利得スイッチングレーザーの繰り返し周波数を制御することで、サンプル加熱を抑えつつ十分な平均信号強度が得られる最適な繰り返し周波数8 MHzで二波長の実験を行うことができた。

2.4 測定系

この節では、四光波混合と過渡吸収信号、過渡吸収スペクトルの測定法の概要と測定系についての説明を行う。

2.4.1 四光波混合測定の概要

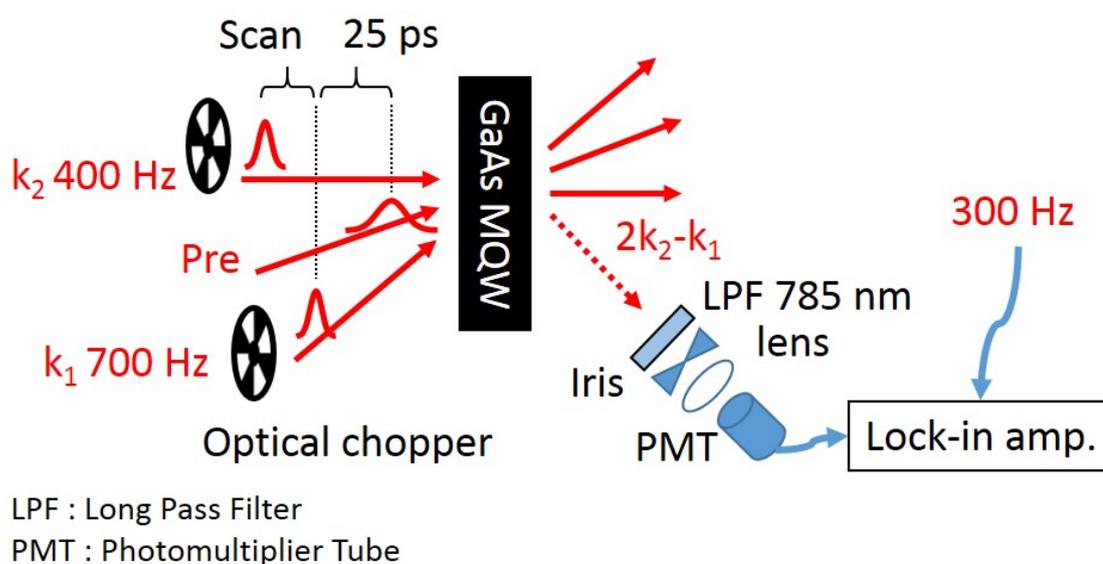


図 2.23: 四光波混合測定の概要

位相緩和時間の測定は四光波混合で行う。図 2.23 は四光波混合測定の実験配置の概要である。環境温度 5 K に冷却されたサンプルにはバンド端での重い正孔励起子の吸収ピークに共鳴させた k_1 、 k_2 パルスを経過させながらサンプルの同一地点に集光し透過させた。 $2k_2 - k_1$ 方向へ放出される四光波混合信号を、アイリス (Iris) で空間的に切り取り、レンズで光電子増倍管 (PMT、浜松ホトニクス製 R636[GaAs 光電面タイプ] 又は R406[銀酸化セシウム光電面タイプ]) に集光した。光電子増倍管によって光信号は電流に変換され、それを 330 k Ω の直列抵抗で電圧に変換した後ロックインアンプに入力した。 k_1 、 k_2 パルスにはそれぞれ異なる周波数の強度変調がオプティカルチョッパーによってかけられており、四光波混合信号はその差周波でロックイン検出した。

実際の実験では、10 mW 程度の k_1 、 k_2 パルスのタイミングを後述する過渡吸収信号測定で合わせ、 $2k_2 - k_1$ 方向への放出光を燐光体 IR カードとナイトビジョン IR スコープを用いて観察した。四光波混合によるスポットは k_1 、 k_2 パルスの片方をサンプル手前で遮った時、どちらを遮った場合にもスポットが消失するという特徴から見つけることができる。四光波混合信号と過渡吸収信号が最大となる波長は一致した。

四光波混合測定を行う波長は、図 2.8 の低温 PL スペクトルの測定結果から、重い正孔励起子共鳴波長付近で、最も四光波混合信号が強くなる波長で実験を行った。7 nm 量子井戸サンプルでは波長 765 nm で四光波混合強度は最大となった。これは低温 PL 測定のピーク位置より 20 meV 高エネルギー側となった。これは図 2.10 の透過スペクトルの結果から、軽い正孔励起子の吸収ピークに共鳴していると考えた。10.5 nm 量子井戸サンプルでは波長 800 nm で四光波混合強度は最大となった。これは低温 PL 測定のピーク位置と一致した。

また、すべての測定で、 k_2 パルス強度が k_1 パルス強度より強い条件で四光波混合測定を行った。これは、それぞれのパルス強度を P_{k_2} 、 P_{k_1} とすると、 $2k_2 - k_1$ 方向への四光波混合の強度は $P_{k_2} \times P_{k_2} \times P_{k_1}$ に比例し、 k_2 パルス強度が強いほうがより強い四光波混合信号を得やすく、信号雑音比が有利になると考えたからである。

また、今回の実験目的である反転分布状態の位相緩和時間を測定するために、 k_1 、 k_2 パルスの 12~25 ps 前にキャリアを光励起するためのプレパルスを入射した。プレパルスには、バンド端に共鳴するバンド端プレパルスとバンドの高エネルギー側にキャリアを励起するバンド間プレパルスの二種類を用いた。バンド間プレパルスを用いる場合には、光電子増倍管の前にカットオフ周波数 785 nm のロングパスフィルタを置きプレパルスによる散乱光が光電子増倍管に入るのを防ぐことで信号雑音比の悪化を防いだ。

バンド間プレパルスを用いるのには二つの理由がある。一つはすでに説明したように光学フィルターを用いることでプレパルスの散乱光が四光波混合測定の妨げとなることを防げるからである。もう一つは、励起子に共鳴したバンド端プレパルスでは、吸収飽和によって反転分布を作ることが困難となるからである。バンド間プレパルスを用いる方法ではこれとは異なり、バンド端より高エネルギー側に電子を励起し、バンド内をエネルギー緩和してきた電子によってバンド端で反転分布状態を作る。図 2.24 はバンド間プレパルスによる反転分布形成とその状況での四光波混合の概要を説明するバンド図である。GaAs のような直接遷移型半導体では価電

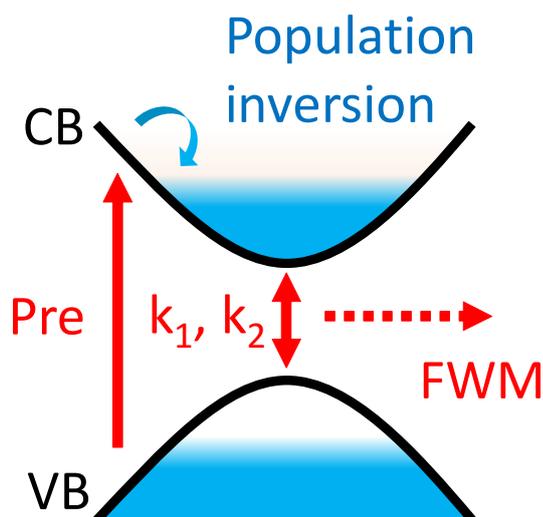


図 2.24: バンド間プレパルスによる反転分布形成の概要図。VB:Valence band、CB:Conduction band

子帯（VB）と伝導帯（CB）は運動量が0である Γ 点で最もエネルギー差が小さくなり、平衡状態では励起キャリアは伝導帯の底と価電子帯の頂点の間に溜まり、その間で再結合が起きる。バンド間プレパルスが入射されるとバンド端より高エネルギー側で電子が価電子帯から伝導帯に励起され、価電子帯では正孔が出来る。励起された非平衡状態の電子、正孔は、100 fs程度の時間スケールで伝導帯、価電子帯内をエネルギー緩和し電子正孔系の準熱平衡状態となる。このときバンド端では反転分布が作られている。四光波混合はこのタイミングでバンド端で行われる。

2.4.2 過渡吸収信号、スペクトル測定の概要

また、この実験配置では、それぞれのビームラインを遮ることによって、PL スペクトルの測定と過渡吸収信号、過渡吸収スペクトルの測定を行った（図 2.25）。(a) PL スペクトルの測定では、 k_1 、 k_2 パルス遮ってプレパルスのみを入射し、 k_1 方向への発光を分光器 (OMA) で測定し、PL スペクトルの励起密度依存性を測定した。(b) 過渡吸収信号、スペクトルの測定では、 k_2 パルス遮りプレパルスを入射し、その後四光波混合測定をするタイミングでの k_1 パルスの透過光強度をフォトダイオード (PD) で、透過スペクトルを分光器で測定した。このようにして測定された透過スペクトルには、プレパルス強度に応じて PL スペクトルが混じるが、これを前述の PL スペクトル測定の結果を用いて差し引いた。得られた k_1 パルスの透過スペクトルを、サンプルを透過させない k_1 パルスのスペクトルをリファレンスとして除算することで、過渡透過率スペクトルを測定した。

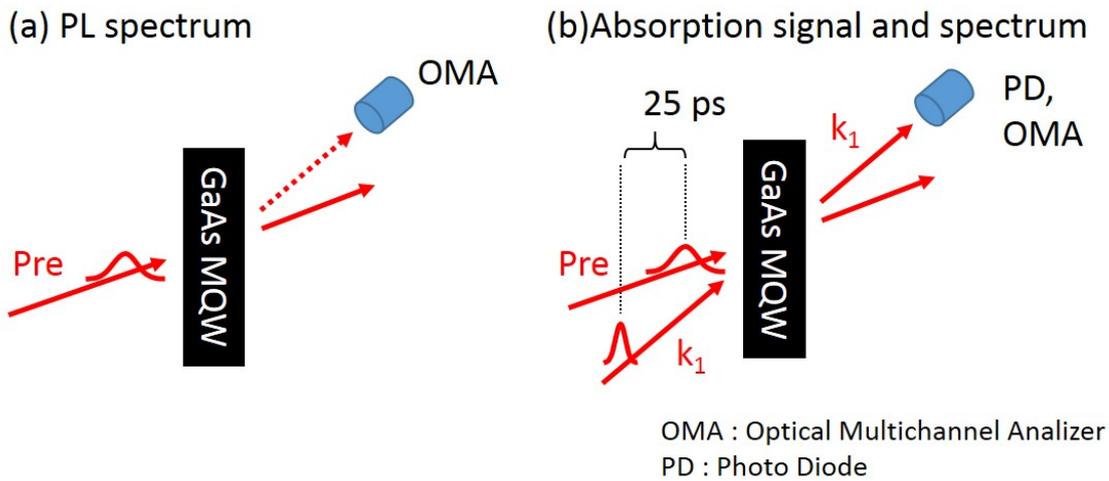


図 2.25: (a)PL スペクトル測定、(b) 過渡吸収信号、過渡吸収スペクトル測定の概要

2.4.3 繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの測定系

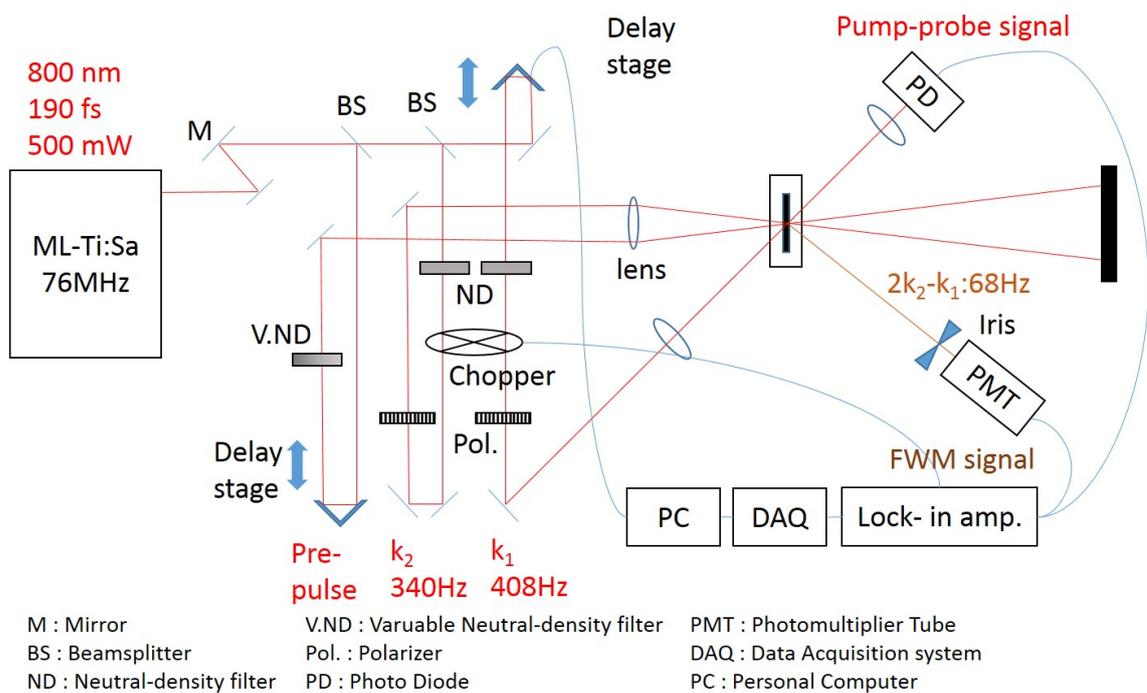


図 2.26: 繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの四光波混合、ポンププローブ測定系

繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの実験では、図 2.26 の実験系を用いた。励起光源にはモードロックチタンサファイアレーザー (Coherent 製 Mira 900) を用いた。波長はバンド端での重い正孔励起子の吸収ピークに共鳴させている。これを二つのビームスプリッター (BS) で強度比 1:1 に分け、一つ目の BS で分けた光をプレパルス、二つ目の BS で分けた光を k_1 、 k_2 パルスとした。それぞれのパルス強度はニュートラルデンシティーフィルタ (ND) と可変ニュート

ラレンシティーフィルタ (V.ND) によって調節され、 k_1 、 k_2 パルスについては偏光子 (Pol.) で互いに平行な直線偏光を取り出した。 k_1 、 k_2 パルスには内側と外側に異なるスロットを持つ高調波光チョッパーブレード (Chopper) を用いて、それぞれ 408 Hz と 340 Hz の強度変調をかけ、四光波混合信号はその差周波の 68 Hz でロックイン検出を行った。プレパルスと k_1 パルスは一軸ステージ (Delay stage) とレトロリフレクタを用いて光学遅延を変化させ、それぞれの光パルスがサンプルに入射するタイミングを変えることが出来る。 k_1 パルスには自動ステージを用いて、パーソナルコンピュータ (PC) からステージ位置を制御することが出来る。 k_1 、 k_2 、プレパルスが BS で分割されてからサンプルに入射するまでの光学距離はほぼ同じに調整されている。 k_1 、 k_2 、プレパルスはそれぞれ光学レンズ (lens) を用いてスポット径 $100 \mu\text{m}$ でクライオスタット中の温度 5 K に冷却されたサンプルに集光されている。サンプルを透過した k_2 、プレパルスはビームブロックで反射が抑えられている。サンプルを透過した k_1 パルスは、サンプルの過渡吸収信号を測定するためにフォトダイオード (PD) に集光され強度が測定される。 $2k_2 - k_1$ 方向に放出された四光波混合信号はアイリスで空間的に切り取られ、光電子増倍管 (PMT) でその強度が測定される。PD と PMT の電気信号は測定に応じてロックインアンプに入力されノイズを取り除かれた後、データ収集装置 (DAQ) で A/D 変換され、PC で記録される。

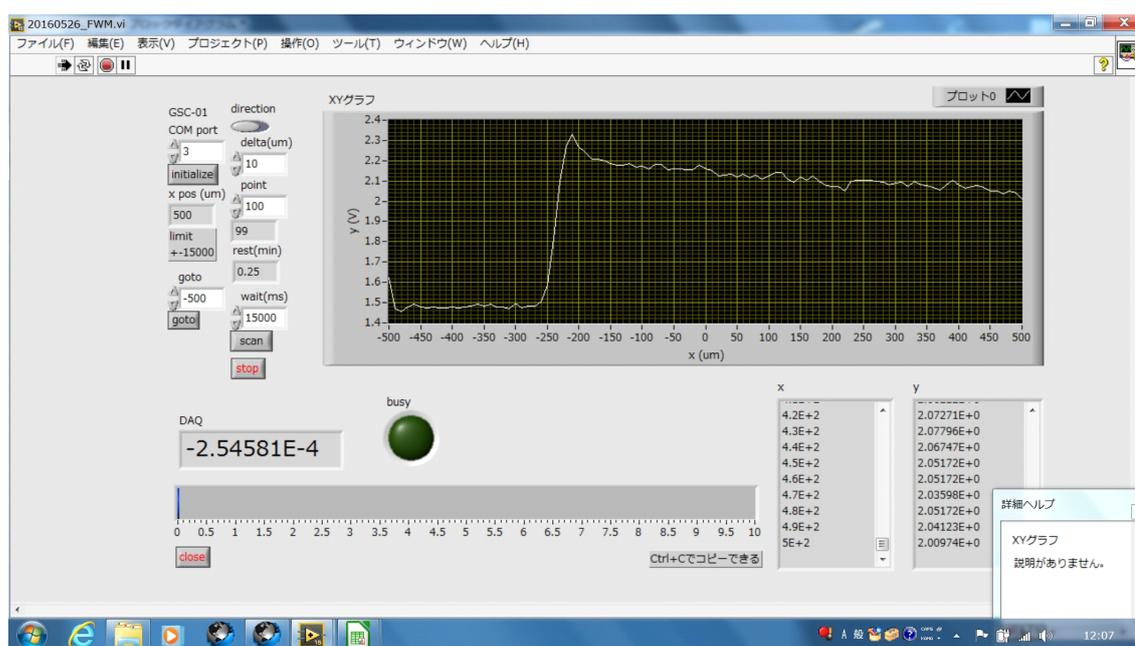


図 2.27: LabView フロントパネル

自動ステージによる k_1 パルスの光学遅延の変化と DAQ によるデータ収集が自動で繰り返し測定されるようにするため、PC 上で LabView プログラムを作製した (図 2.27)。プログラムでは、一回の自動ステージの移動量、測定回数、一回の測定の待ち時間を指定することで、 k_1 パルスの光学遅延に対する PD と PMT の測定電圧を連続して効率よく記録することが出来る。

2.4.4 繰り返し8 MHz、バンド間プレパルスの測定系

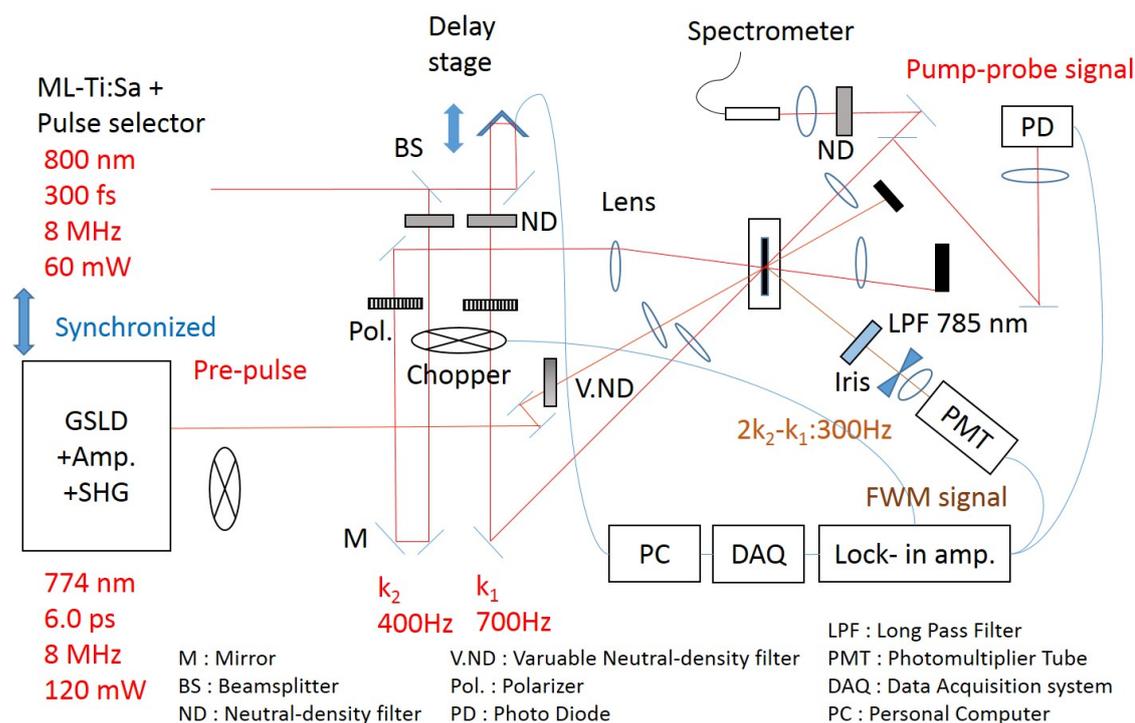


図 2.28: 繰り返し8 MHz、バンド間プレパルスの四光波混合、ポンププローブ測定系

繰り返し8 MHzのバンド間プレパルスを用いる実験では、図2.28の実験系を用いた。この測定系では、パルスセレクターによって繰り返しを落とされたチタンサファイアレーザーからの光はビームスプリッターで二つに分けられ、それぞれ k_1 、 k_2 パルスとしてのみ用いられている。プレパルスは利得スイッチングレーザー光源の光をサンプルに入射している。繰り返し76 MHz実験の時と同様に、チタンサファイアレーザーの波長はバンド端での重い正孔励起子の共鳴に合わせ、パルスセレクターの出力を k_1 、 k_2 パルス、利得スイッチングレーザーのSHG出力をプレパルスとして用いた。

2.4.5 スポット径の測定

前節の測定系のサンプル位置にスリット型ビームプロファイラ (Thorlabs、BP209-VIS) を設置し、スポット径の測定を行った。図2.29は繰り返し76 MHz、バンド端プレパルスの測定系 (図2.26) の直交するX、Y方向のスポット形状である。測定されたスポットの半値全幅は表2.2のようになった。

図2.30は繰り返し8 MHz、バンド間プレパルスの測定系 (図2.28) の直交するX、Y方向のスポット形状である。測定されたスポットの半値全幅は表2.3のようになった。どちらの測定系の場合でも、 k_1 パルスのスポット径はプレパルスのスポット径よりも小さくなっている。

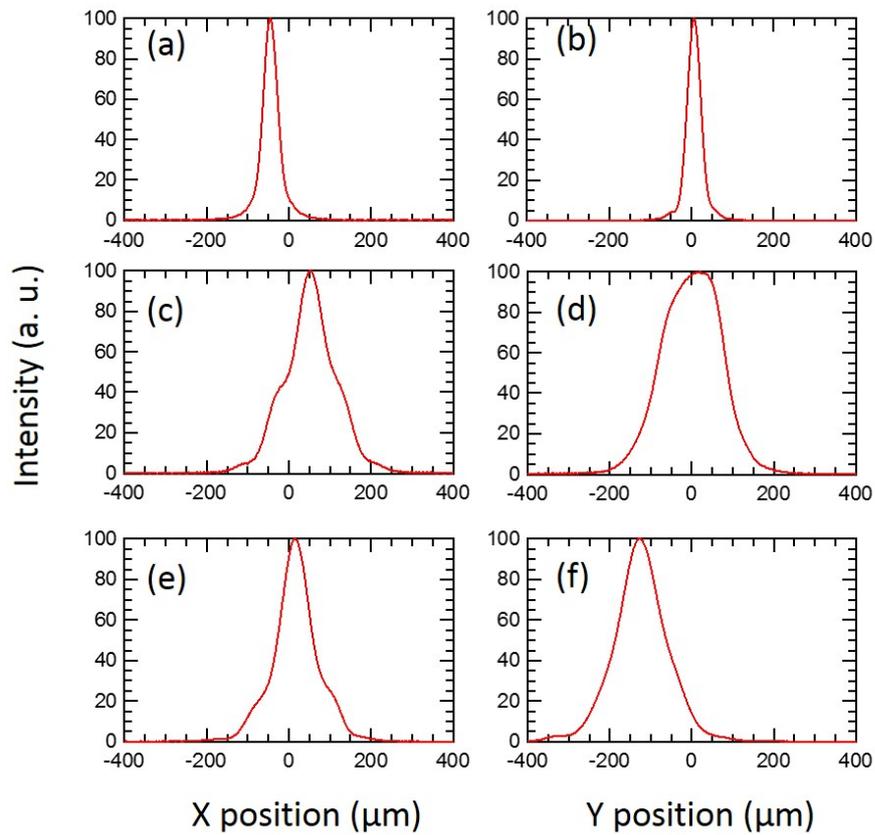


図 2.29: 繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの測定系のサンプル位置でのスポット形状。(a)(b) k_1 パルス、(c)(d) k_2 パルス、(e)(f) プレパルス。(a)(c)(e) は X 方向、(b)(d)(f) は Y 方向

よって励起密度の空間的な不均一による測定結果への影響はないと考えた。ここで測定されたスポット径は、励起密度を見積もる際に用いた。

2.5 励起密度の見積もり

第??章、実験結果では位相緩和時間と励起密度の依存性を調べる。そのとき励起強度から励起密度を推測する必要がある。ここではその方法について説明する。

表 2.2: 繰り返し 76 MHz、バンド端プレパルスの測定系のサンプル位置でのスポットの半値全幅 (FWHM)

Pulse	X FWHM	Y FWHM
k_1	41.4 μm	39.4 μm
k_2	108 μm	176 μm
Pre	87.6 μm	125 μm

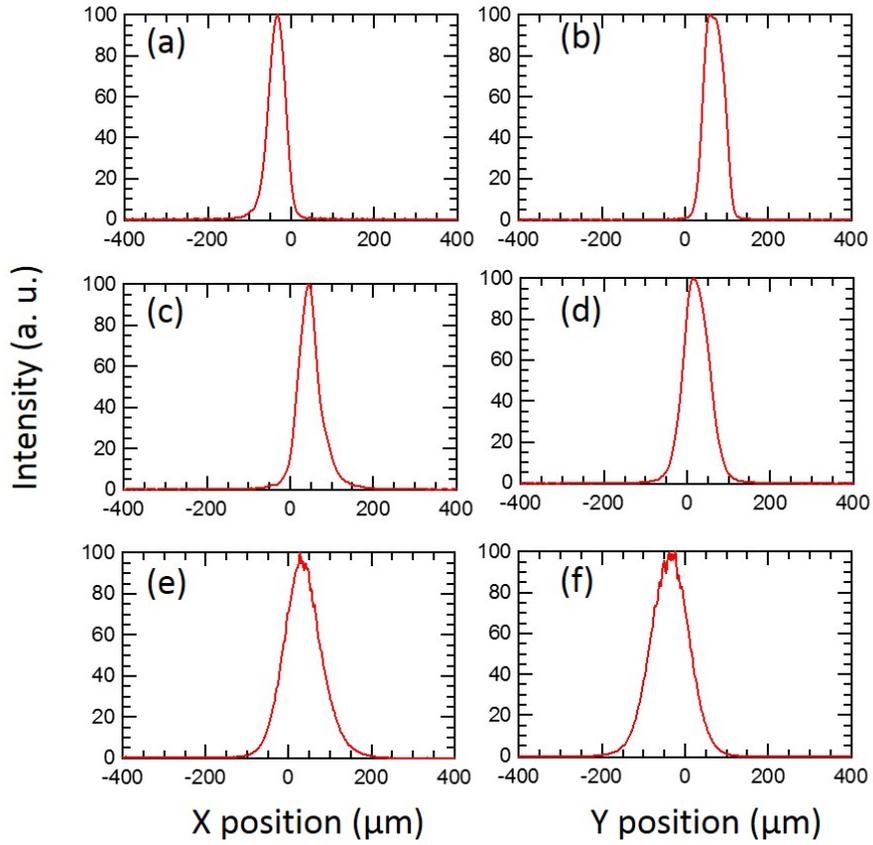


図 2.30: 繰り返し 8 MHz、バンド間プレパルスの測定系の測定系のサンプル位置でのスポット形状。(a)(b) \mathbf{k}_1 パルス、(c)(d) \mathbf{k}_2 パルス、(e)(f) プレパルス。(a)(c)(e) は X 方向、(b)(d)(f) は Y 方向

励起強度に対する励起密度 N は以下のように見積もった。

$$N = \frac{P_{pump}}{P_{ph}} \times \frac{1}{S} \times (1 - R_{glass}) \times (1 - R_{GaAs}) \times \alpha \times \frac{1}{m} \quad (2.1)$$

ここで P_{pump} は励起パルスエネルギー、 P_{ph} は 1 フォトンあたりのエネルギー、 S はスポット面積、 R_{glass} はクライオスタット窓での反射ロス、 R_{GaAs} はサンプル表面での反射ロス、 α はサンプルの吸収率、 m は量子井戸の層数である。

反射ロスはガラスの屈折率を 1.5、GaAs の屈折率を 3.5 としてフレネルの式から見積もった。

表 2.3: 繰り返し 8 MHz、バンド間プレパルスの測定系のサンプル位置でのスポットの半値全幅 (FWHM)

Pulse	X FWHM	Y FWHM
\mathbf{k}_1	47.0 μm	59.9 μm
\mathbf{k}_2	52.3 μm	72.2 μm
Pre	97.2 μm	106 μm

吸収率は図 2.10 の透過率スペクトルの、波長 800 nm から 774 nm の値から大まかに見積もった。よって各係数には表 2.4 のような値を用いた。

表 2.4: 励起密度の見積もりに用いた各係数の値

P_{ph}	2.5×10^{-10} [nJ]
R_{glass}	0.05
R_{GaAs}	0.3
α	0.6
m	30

スポット面積 S は、節 2.4.5 で測定したサンプル位置でのスポット形状から見積もった。直行する X、Y 方向のスポット形状の半値全幅をそれぞれ a 、 b とし、 $S = \pi ab/4$ とした。

励起パルスエネルギー P_{pump} として用いるパルスエネルギーは四光波混合測定法によって異なる。これについては第 3 章の中で説明する。

この見積もりで求められるのはサンプルに吸収された光子の密度で、四光波混合測定の時点では緩和の初期過程での非輻射再結合などにより実際のキャリア密度は減少していると考えられる。また、励起エネルギー、励起強度に関わらず一定のサンプル表面の反射率、サンプルの吸収率を仮定しており、バンド端、バンド間励起の違い、吸収飽和の効果も無視している。励起スポットの空間的な非均一性、励起キャリアの拡散の効果も無視している。

2.6 過渡吸収信号の測定による励起光源の同期のタイミングジッタの評価

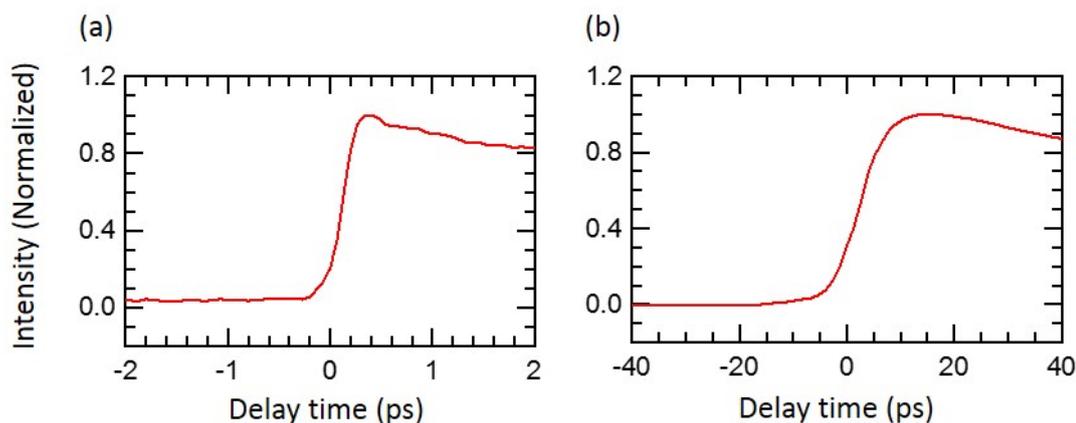


図 2.31: (a) チタンサファイアレーザーと (b) 利得スイッチングレーザーをポンプ光とした過渡吸収信号

図 2.25 で説明したように、サンプルにポンプ光を入射してキャリアを励起し、時間遅延を変えながらプローブ光の透過強度を測定することにより、励起密度の変化を反映した過渡吸収信

号の測定を行った。過渡吸収信号の測定は図 2.28 の測定系、サンプルは 10.5 nm 量子井戸 No.2 を使い、環境温度 5 K でチタンサファイアレーザーの波長は重い正孔励起子の吸収ピークに合わせた。図 2.31(a) はポンプ光, プローブ光共にチタンサファイアレーザーの光パルスを用いたもの、(b) は利得スイッチングレーザー出力をポンプ光、チタンサファイアレーザーをプローブ光として用いたときの過渡吸収信号である。このときの時間遅延の基準点は任意に決めた。(a) の測定結果では、時間遅延 0.0 ps でプローブ光の透過率が 300 fs ほどで急速に上昇し、その後時間遅延の増加に従い緩やかに下降していることがわかる。このことから時間遅延 0.0 ps でポンプ光がサンプルに入射し、ポンプ光のパルス幅 300 fs 程度でキャリアが励起されてサンプルの透過率が上昇し、その後励起キャリアが再結合によってエネルギー緩和する様子が見て取れる。(b) ではポンプ光として利得スイッチングレーザーのパルス幅 6.0 ps の光パルスを入射しているため、透過率変化の時間遅延変化はチタンサファイアレーザーの場合と比べ緩やかになっている。

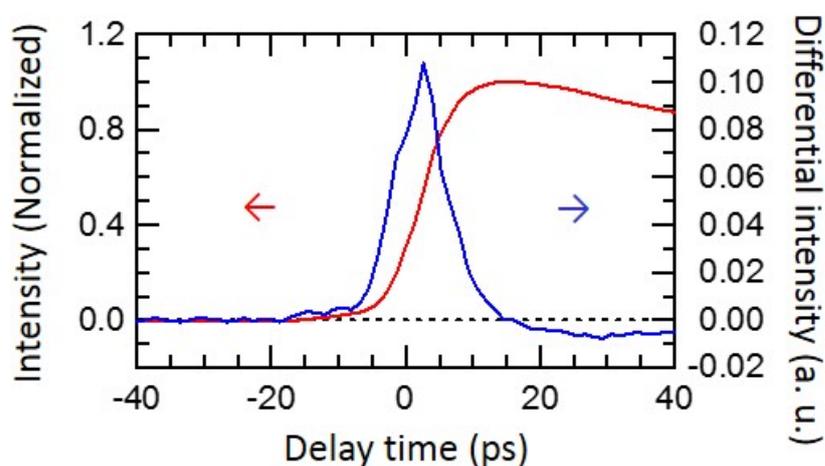


図 2.32: (赤) 過渡吸収信号と (青) その一次微分波形

図 2.25 の利得スイッチングレーザーの過渡吸収信号の測定結果を自己相関波形から見積もったパルス幅と比べることにより、利得スイッチングレーザーのタイミングジッターを見積もった。過渡吸収信号の測定で、励起キャリア密度と透過率変化に線形な関係が成り立っているとすると、透過率変化はポンプ光の積分結果になっているはずである。そこで、過渡吸収信号の立ち上がりについて微分波形をとれば、それはおよそポンプ光波形になっていると考えられる。このとき、ポンプ光とプローブ光の間にタイミングジッターがあれば、測定結果は真のパルス幅とタイミングジッターの畳み込みになっているはずである。図 2.32 は利得スイッチングレーザーの過渡吸収信号 (赤) とその時間についての一次微分波形 (青) である。時間微分はスムージングされた過渡吸収信号から求めた。時間微分波形をガウシアンでフィッティングして求めた半値全幅は、 9.7 ± 0.2 ps となった。誤差はフィッティングの誤差である。図 2.19 (b) で測定した利得スイッチングレーザーの自己相関波形から見積もったパルス幅は 6.0 ps であり、畳み込みを仮定して求めたタイミングジッターは 7.6 ± 0.3 ps となった。

2.7 ロックイン検出法

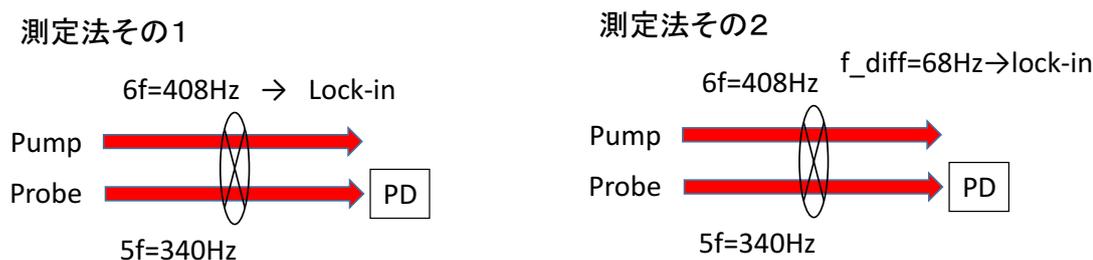


図 2.33: (a) ポンプ光の変調周波数、(b) ポンプ光、プローブ光変調の差周波でロックイン検出。PD: フォトダイオード

図 2.33 はロックイン検出に用いた二種類の方法である。測定の k_1 、 k_2 パルスには内側と外側に異なるスロットを持つ高調波光チョッパブレードを用いて異なる周波数の強度変調がかけられている。 k_1 、 k_2 パルスをそれぞれプローブ、ポンプ光として、ポンプ光は 408 Hz、プローブ光は 340Hz の周期で強度変調されている。測定法その 1 は、ポンプ光の変調周波数 408 Hz をロックインアンプのリファレンスに入力し、プローブ光の透過光変化をフォトダイオードで測定する方法である。測定法その 2 は、ポンプ光とプローブ光の変調周波数の差周波である 68 Hz の信号をリファレンスに入力し、プローブ光の透過光変化を測定する方法である。どちらの方法でも、プローブ光の揺らぎを除去し、ポンプ光由来の信号を検出できると期待される。

この二種類の方法でそれぞれ室温での過渡吸収信号の測定を行った。サンプルは 7 nm 量子井戸サンプルを用いた。光源はモードロックチタンサファイアレーザー (Coherent Mira 900) を用いて図 2.26 の配置で行い、波長は 810 nm (室温での重い正孔励起子に共鳴) に設定した。プローブ光、ポンプ光の強度は ND フィルターを用いてそれぞれ 2.3 mW、21 mW とした。

図 2.34 はサンプル表面を CCD カメラを用いて観察した結果である。CCD カメラは図 2.23 の左側から、光パルスと干渉しないように対物レンズを設置した。そのため観察像はサンプルを斜めから見た様子になっており、モニターにはおよそ 2 mm 程度の範囲が映し出されている。ポンプ光の強度が高いためプローブ光のスポットよりも大きく白いスポットが映っている (CCD カメラの感度の問題で、この白い像がスポット径を表しているわけではない) この表面観察像を見ながらプローブ、ポンプ光の入射位置を大まかに合わせ、プローブ、ポンプ光の時間遅延を変化させながらロックインアンプの出力電圧に変化が見られる位置を探した。二つのスポット位置は、過渡吸収信号が最大となるように (あるいは四光波混合の測定では四光波混合信号強度が最大となるように) 位置を調節することで最適化した

図 2.35 は測定法その 1 での過渡吸収信号の測定結果である。ロックインアンプの時定数は 300 ms、自動ステージの待ち時間は 1 s に設定した。測定は 100 回行い、一回の測定のステージの移動量を (a)100 μm 、(b)10 μm 、(c)1 μm と変化させた。横軸は光学遅延時間の変化量として、複数回の測定 (赤、黄) に対し同じ測定結果が得られた。過渡吸収信号は時刻-1.5 ps で

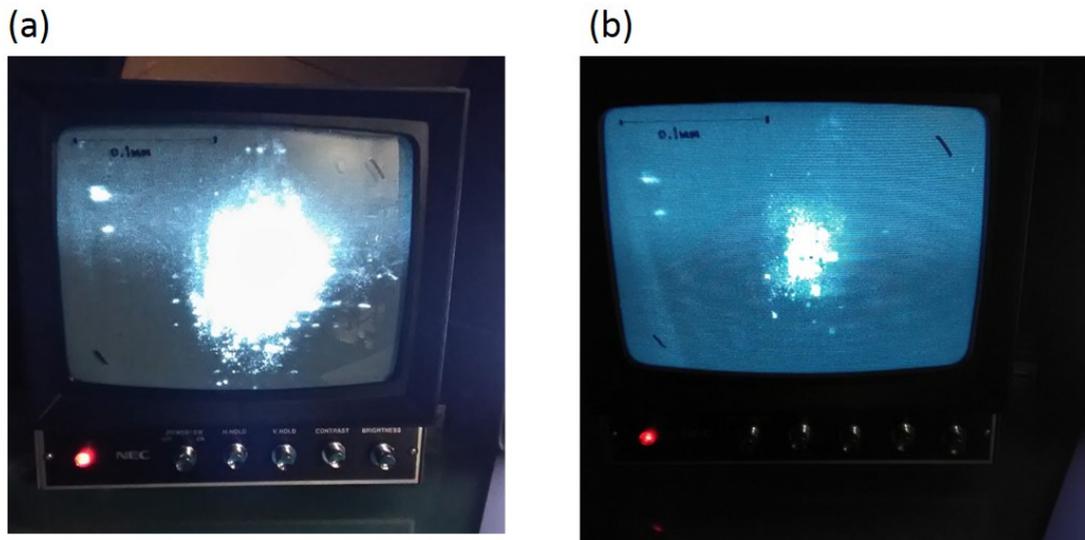


図 2.34: サンプル表面 (a) ポンプ光 (b) プローブ光のスポットの観察

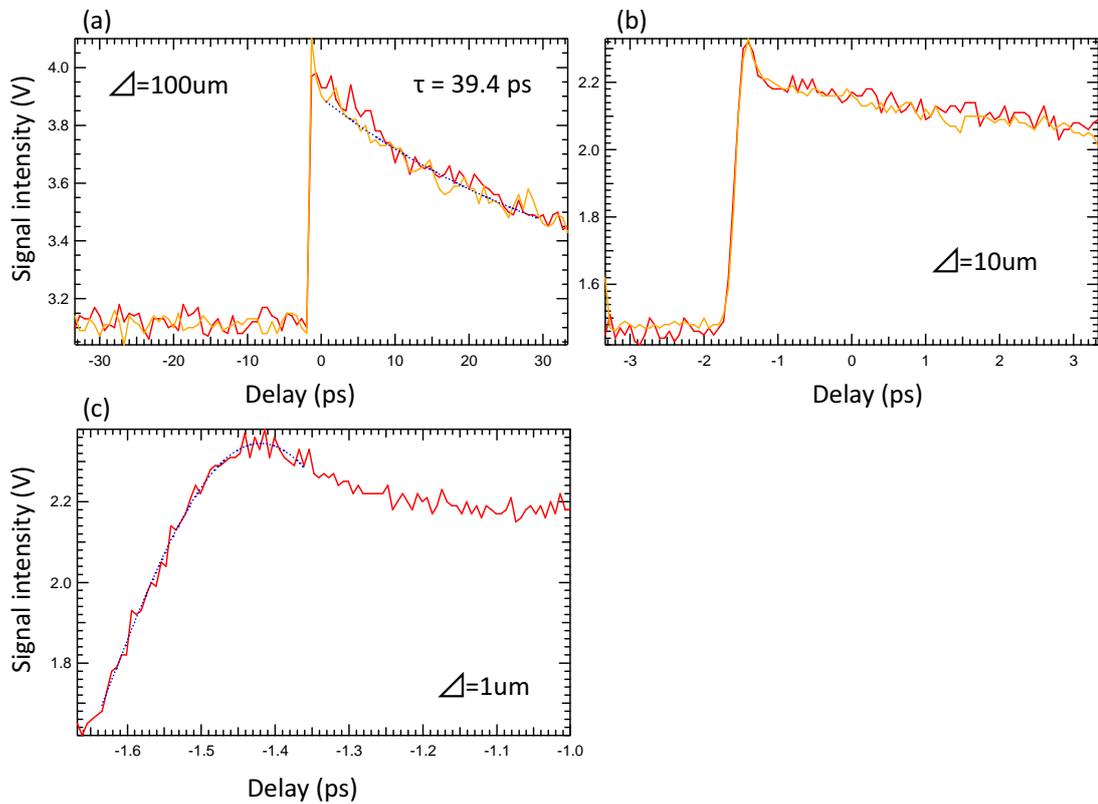


図 2.35: 測定法その1: ポンプ変調周波数でロックイン検出。スキャン幅 (a)100 μm (b)10 μm (c)10 μm

増加し、その後プローブのタイミングが遅くなるにつれて減衰していく結果が得られた。この時刻がプローブ、ポンプ光が重なる点であると考えた。減衰の速さを単一指数関数でフィッティングすると、その時定数は 39.4 ps だった。

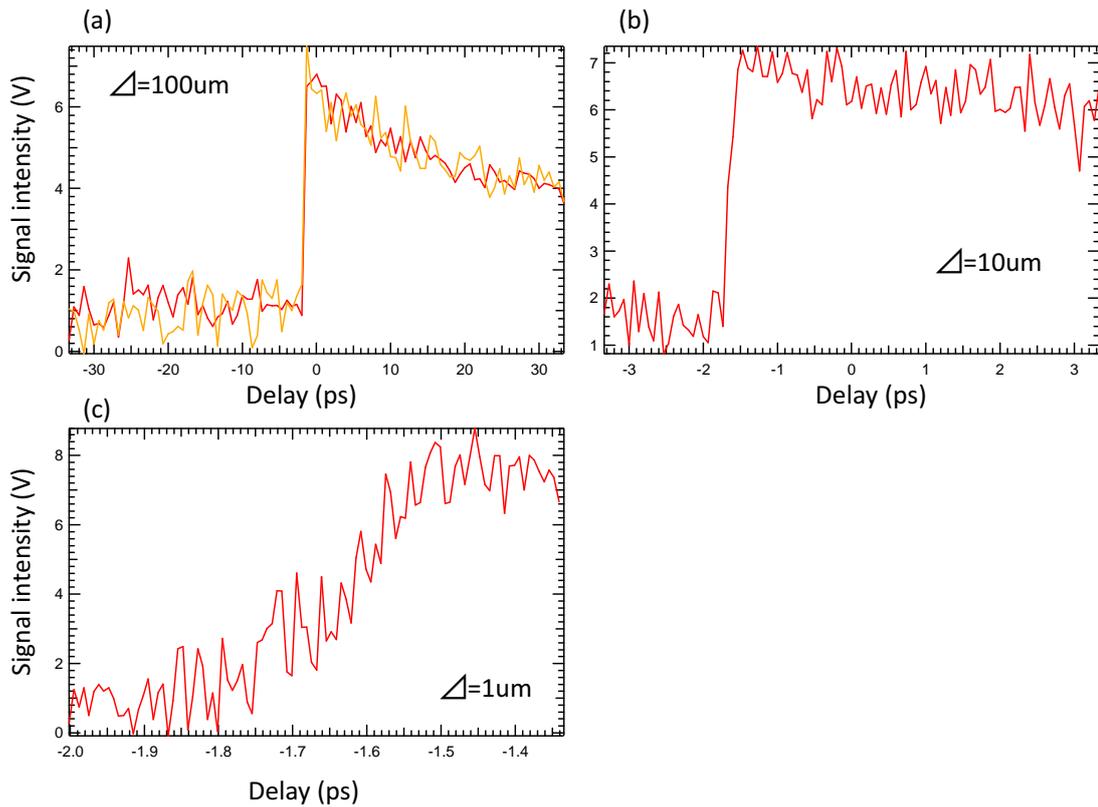


図 2.36: 測定法その 2 : 差周波数でロックイン検出。スキャン幅 (a)100 μm (b)10 μm (c)1 μm

図 2.36 は測定法その 2 での過渡吸収信号の測定結果である。測定法その 1 と同様の測定結果が得られたが、大きく違う点が二つある。まず一つ目は、測定のノイズが明らかに測定法その 2 のほうが大きくなっている。これはロックインのリファレンス周波数が測定法その 1 では 408 Hz であるのに対し測定法その 2 では 68 Hz であることを反映している。二つ目は、測定法その 1 ではポンプ光の入射前 (時刻-1.5 ps 以前) でロックインアンプ出力が 3.1 V あるのに対し、測定法その 2 では (ノイズはあるものの) ほぼ 0 V になっている。これは、測定法その 1 ではポンプ光の散乱光がロックイン検出されてしまうのに対し、測定法その 2 ではロックイン検出されるものはプローブ、ポンプ光両方が入射しているときの信号のみであり、ポンプ光の散乱光が取り除かれているためである。

これらの結果から、各パルスのタイミングを測定することが目的の過渡吸収信号の測定には測定法その 1 を、信号の減衰を測定することが目的である四光波混合の測定には測定法その 2 を用いることにした。

第3章 実験結果

本章の内容は雑誌等で公開予定のため非公開とする

第4章 モデル計算

本章の内容は雑誌等で公開予定のため非公開とする

第5章 結論と展望

この章では、本研究で得られた結論と展望について述べる。

5.1 結論

本研究では、半導体量子井戸のバンド端における反転分布領域での位相緩和時間の励起密度依存性を測定することを目的とした。環境温度 5 K で、弱励起極限から反転分布領域まで光励起キャリアを増加させたとき、四光波混合による位相緩和時間がどう変化するかを測定した。

光励起されたキャリアはキャリア間散乱によってエネルギーを分配しあい、1 ps オーダーで非平衡状態から準熱平衡状態へと緩和する。電子正孔対は低密度領域では励起子となり、励起密度を上げていくと中密度領域を経て励起子 Mott 転移点を越え電子正孔プラズマ状態となり、反転分布領域になる。本研究ではモードロックチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーの二つの光源を組み合わせた三種類の四光波混合測定法を用いて、励起キャリア分布が非平衡状態の低密度から中密度領域、準熱平衡状態の中密度領域、準熱平衡状態の中密度から反転分布領域での位相緩和の時間スケールをそれぞれ測定した。

非平衡、低密度から中密度領域は 2 パルス四光波混合で調べた。この方法ではチタンサファイアレーザーの光パルスをビームスプリッターで二つの \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルスに分け、それぞれの強度とサンプルへ入射する時間遅延を変えながらバンド端での四光波混合を行う。この手法を用いたとき、1 ps オーダーの短い遅延時間では光励起キャリアが非平衡状態となっている状況での位相緩和時間の励起密度依存性が得られると考えた。実験では弱励起極限を含む低密度領域から透明領域以下の中密度領域までを測定し、先行研究の低密度領域の測定と対応する結果が得られると考えた。また、この手法による実験結果は、後述するプレパルスを加えた測定のプレパルス強度が弱い極限を与えた。測定は、二種類のチタンサファイアレーザーを用いて、二つの繰り返し 76 MHz と 8 MHz で行った。

準熱平衡、中密度領域はバンド端プレパルス + 2 パルス四光波混合で調べた。この方法ではチタンサファイアレーザーの光パルスを二つのビームスプリッターで三つの \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 、プレパルスに分け、プレパルスによってバンド端に共鳴して光励起されたキャリアがバンド内を緩和し準熱平衡状態となるタイミングで \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルスでバンド端での四光波混合を行う。この手法では、励起キャリアが準熱平衡状態になっているときの位相緩和時間の励起密度依存性が得られると考えた。しかしバンド端に共鳴させたプレパルスによって光励起キャリアを作るため、吸収飽和により反転分布領域の測定は難しいと予想した。実験では強いプレパルス強度でも信号

雑音比よく測定できる k_1 、 k_2 パルス強度に固定し、プレパルス強度を変化させて、プレパルスによって作られた光励起キャリアの中密度領域の位相緩和時間を測定した。測定には繰り返し 76 MHz のチタンサファイアレーザーを用いた。

準熱平衡、中密度から反転分布領域はバンド間プレパルス + 2 パルス四光波混合で調べた。この方法では異なる波長のチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーを同期させ、半導体利得スイッチングレーザーのプレパルスによってバンドの高エネルギー側に光励起されたキャリアがバンド内を緩和し、準熱平衡状態となるタイミングでチタンサファイアレーザーの k_1 、 k_2 パルスでバンド端での四光波混合を行う。この手法では、バンドの高エネルギー側にキャリアを光励起することで吸収飽和を避け、準熱平衡状態となった高密度の光励起キャリアがバンド端でフェルミ縮退し、反転分布を形成している状況での位相緩和時間の励起密度依存性が得られると考えた。実験では高密度励起に伴うフォトルミネッセンスの増加により四光波混合信号の信号雑音比が悪化したため、十分な四光波混合信号強度を得るために k_1 、 k_2 パルス強度を変えながら測定した。測定には繰り返し 8 MHz で同期させたチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーの光源を用いた。

バンド間プレパルス + 2 パルス四光波混合の実験では、モードロックチタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーを同期させた光源を作製した。チタンサファイアレーザーの出力の一部をビームサンプラーで取り出し、フォトダイオードで電気信号に変換した後パルスジェネレータの外部クロック端子に入力し内部発振器と同期させた。次に、パルスジェネレータのデータパターン出力機能を用いて信号の繰り返しを間引き、内部発信器と同期した二系統のパルスジェネレータ出力をそれぞれ半導体利得スイッチングレーザーの駆動とチタンサファイアレーザーのパルスセレクターのトリガーに用いた。利得スイッチングレーザーの波長 1.5 μm の光パルスは二段のエルビウム添加ファイバーアンプで増幅し、分極反転ニオブ酸リチウム結晶で第二高調波発生させ波長 774 nm、パルス幅 6 ps の光パルスを得た。この方法により簡易に繰り返しを変えて二つのレーザー光源の同期が出来、半導体量子井戸サンプルの過渡吸収信号の測定によりその同期のタイミングジッターを 7.6 ps と評価した。この光源を用いてチタンサファイアレーザーを用いた場合の 1.5 倍の励起密度範囲を、サンプルが加熱されず最大の測定の明るさが得られる繰り返し周波数 8 MHz で四光波混合測定を行った。

プレパルスを用いる励起キャリア分布が準熱平衡状態の実験では、プレパルスをポンプ光、モードロックチタンサファイアレーザーパルスをプローブ光として用いた過渡吸収信号と過渡吸収スペクトルの測定を行った。過渡吸収信号によってプレパルスと四光波混合測定を行うタイミングの時間遅延を決定し、四光波混合測定を行うタイミングでの過渡吸収スペクトルの測定によってプレパルスによって光励起されたキャリアの分布の評価を行った。また、プレパルスを励起光とした時間積分フォトルミネッセンススペクトルの測定も同時に行った。

実験には幅 7 nm と 10.5 nm の 30 周期 GaAs 量子井戸を用い、10.5 nm 量子井戸サンプルで反転分布領域を含めて測定することが出来た。10.5 nm 量子井戸サンプルの四光波混合信号には重い正孔準位と軽い正孔準位の量子ビートが見られ、量子ビートの理論式で四光波混合信号をフィッティングすることにより位相緩和時間を抽出した。

2パルス四光波混合で調べた非平衡、低密度から中密度領域での位相緩和時間は、励起密度 $1.5 \times 10^9 / \text{cm}^2$ でサンプルごとに 2.5 ps から 4.0 ps となり、励起密度 $3 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ で測定 of 分解能 0.17 ps となるまで単調減少した。これは先行研究と同様の依存性だった。二つの繰り返し周波数 76 MHz と 8 MHz で実験したことで、格子温度の上昇の影響を受けずに測定できた。

バンド端プレパルス + 2パルス四光波混合で調べた準熱平衡、中密度領域の位相緩和時間は、プレパルス強度が弱い極限では \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルス強度で決まる 2パルス四光波混合の実験結果と一致した。プレパルス強度を強くしていったときに得られた位相緩和時間は、励起密度 $2 \times 10^{10} / \text{cm}^2$ の 1.3 ps から励起密度 $4 \times 10^{11} / \text{cm}^2$ の 0.34 ps まで単調減少した。これは先行研究と同様の依存性だった。繰り返し周波数 76 MHz で実験したことにより、励起密度 $4 \times 10^{11} / \text{cm}^2$ 以上では格子温度の上昇によって信号雑音比が悪化し測定が出来なくなった。

バンド間プレパルス + 2パルス四光波混合で調べた準熱平衡、中密度から反転分布領域の位相緩和時間は、同様にプレパルス強度が弱い極限では \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルス強度で決まる 2パルス四光波混合の実験結果と一致した。 \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルス強度が弱い状況で、プレパルス強度を強くしていったときに得られた位相緩和時間は、励起密度 $1.6 \times 10^{11} / \text{cm}^2$ の 0.35 ps から励起密度 $8 \times 10^{11} / \text{cm}^2$ の測定 of 分解能である 0.15 ps まで単調減少し、それ以上の励起密度ではフォトルミネッセンスの増加によって信号雑音比が悪化し測定できなくなった。 \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルス強度が強い状況で、プレパルス強度を強くしていったときに得られた位相緩和時間は、励起密度 $8 \times 10^{11} / \text{cm}^2$ での測定 of 分解能 0.17 ps から励起密度 $8 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ の測定 of 分解能である 0.34 ps まで単調増加した。過渡吸収スペクトル、フォトルミネッセンススペクトルの測定結果から、励起密度 $1.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ 以上で光励起キャリアは励起子から電子正孔プラズマ状態へと移り変わり、バンド端で反転分布領域となっていると考察し、位相緩和時間が励起密度に対して増加するのは反転分布領域であることを確かめた。反転分布領域で位相緩和時間が励起密度に対し長くなる依存性はこれまで知られておらず、本研究によって初めて明らかとなった。先行研究との相違点の理由を励起密度や手法の違いから考察し、時間分解能の範囲で先行研究と整合し、反転分布領域の密度依存性を本研究で初めて明らかにしたと結論した。

今回の実験では、準熱平衡、反転分布領域でのみ位相緩和時間が励起密度に対して増加するというこれまで知られていなかった実験結果が得られた。これは、プレパルス + 2パルス四光波混合の実験によって、準熱平衡状態に達した励起キャリアがバンド端でフェルミ縮退し、反転分布領域となる状況が実現されたこと、低温で測定したことによりフォノン散乱の影響を抑え、自由キャリア散乱の励起密度依存性を測定できたためであると考えた。一方で励起キャリアが非平衡の実験では位相緩和時間が励起密度に対して増加するという特徴は見られず、これは非平衡キャリアでは反転分布が作られにくいためであると考えた。

反転分布領域で位相緩和時間が励起密度に対して伸びるという結果を理解するために、半導体 Bloch 方程式理論を二次摂動レベルへ発展させた第二 Born 近似での自由キャリア散乱の計算を行った。バンド端で位相緩和時間が反転分布領域で励起密度に対し減少から増加へと転じるという、実験結果を定性的に再現する計算結果を初めて示した。反転分布領域で位相緩和時間が増加するのは、位相空間充填効果によってバンド端での散乱が抑制されるためであると解釈

した。またこの計算モデルのエネルギー依存性は、先行研究 [22] のフェルミ端での散乱抑制を部分的に再現した。バンド端でのキャリア温度依存性の計算では、低密度側では計算結果に大きな違いは見られなかったが、反転分布領域を含む高密度側では、キャリア温度が高いほど散乱抑制効果が現れる密度が高くなり、位相緩和時間の最小値も短くなった。このことから反転分布領域での位相緩和時間は、励起密度だけでなく励起キャリアのエネルギー分布の状態にも大きく依存することを示した。ポテンシャルの遮蔽長依存性の計算では、遮蔽長が短いほど位相緩和時間は長くなり、遮蔽長が 33 nm から 7.7 nm のとき励起密度に対し極小値を持ち、遮蔽長が 5.3 nm から 3.3 nm のとき励起密度に対し単調減少した。本研究の実験結果では位相緩和時間が励起密度に対して増加する結果が得られたことから、遮蔽長に密度依存性がないと考える場合には、遮蔽長は実効的には 5.3 nm 以上となっていると考えた。また、遮蔽長が励起密度に依存し短くなっていくと考えると、遮蔽によってポテンシャルが弱まり、位相緩和時間は励起密度に対し長くなる結果が得られる場合があることがわかった。よって、本研究の実験での位相緩和時間が励起密度に対して増加するという結果は、励起密度の増加に伴う位相空間充填効果だけでなく、クーロン相互作用の遮蔽の増強による遮蔽長の減少によっても説明できることがわかった。

超放射の放出パルス幅 τ_p と位相緩和時間の間 T_2 の間には $\tau_p < T_2$ の関係が成り立っている必要がある。近年、半導体バルク、量子井戸からの異常な短パルス放出が相次いで報告され、それらは半導体からの超放射であると主張された。四光波混合の先行研究では半導体バルク、量子井戸の位相緩和時間は励起密度に対し単調減少し、高密度領域では 10 fs オーダー以下の非常に高速な位相緩和時間を持つと考えられ、半導体での超放射で報告された 100 fs オーダー以上のパルス幅とは一見矛盾していた。しかし本研究によって、量子井戸について超放射が起きるような反転分布領域では、高密度に励起されたキャリアが準熱平衡状態に達しバンド端でフェルミ縮退していれば、位相空間充填効果によりバンド端で散乱が抑制されることが明らかになった。この結果により、高密度励起されフェルミ縮退した半導体量子井戸のバンド端では、400 fs 程度の時間スケールで超放射のようなコヒーレント過渡現象が起りうるということが明確に示された。

5.2 展望

- 二次元系以外での反転分布領域の位相緩和抑制効果

本研究では、半導体量子井戸を対象とし、反転分布領域で位相緩和抑制効果があらわれることを明らかにした。一方で、半導体バルク、量子細線について同様についても同様に位相緩和抑制効果が現れるかは、実験的、計算的に調べなかった。二次元系以外で、反転分布領域での位相緩和抑制効果がみられるかどうかを実験的、理論的に調べる必要があると考える。

低密度領域では、半導体バルク、量子井戸、量子細線、量子ドットについての位相緩和時間はよく調べられている。量子ドットでは、キャリア間散乱は起きず、位相緩和時間はフォノン

散乱によって決まりバルク、井戸、細線に比べ長い位相緩和時間を持っている。本研究での位相緩和抑制効果は位相空間充填効果によるキャリア間散乱の抑制によって説明したので、量子ドットでは反転分布領域での位相緩和抑制効果は見られないと予想できる。一方でバルク、細線では高密度領域ではキャリア間散乱が位相緩和時間を決める支配的な散乱機構となりうるので、本研究で見られたような位相緩和抑制効果があらわれうると予想できる。しかし、散乱の詳細、クーロンポテンシャルのスクリーニングは次元性によって異なると考えられるので、実際に位相緩和抑制効果があらわれるかどうかは今後の研究で明らかにされる必要がある。

- より精密な位相緩和時間の決定

本研究では、反転分布領域での位相緩和時間を四光波混合によって測定し、十分に高密度励起されフェルミ縮退した反転分布領域の半導体量子井戸のバンド端では、400 fs 程度の時間スケールで超放射のようなコヒーレント過渡現象が起こりうることを示した。一方で、節 1.1.1 で紹介したいくつかの半導体からの超放射実験について、本研究の結果を用いて $\tau_p < T_2$ の条件の検証は行わなかった。これらの実験で用いられるサンプル構造は多岐にわたり、本研究との単純な比較はできない。また、本研究の位相緩和時間の抽出方法は仮定を含んでおり、正確な比較が難しく半定量的な比較にとどまると考えたためである。

本研究で反転分布領域の位相緩和時間を見積もるために測定された四光波混合信号は、価電子帯の重い正孔準位と軽い正孔準位の量子ビート構造を持っている。本研究で用いた 10.5 nm 量子井戸サンプルは重い正孔と軽い正孔励起子のエネルギー間隔が 6 meV で、スペクトル幅 20 meV の励起パルスによってそのどちらの光学遷移も励起されてしまい、量子ビートが現れる。そのため、位相緩和時間の見積もりには量子ビートの理論式によるフィッティングを用いた。フィッティングでは、二つの準位の双極子の位相緩和時間を等しいとしてフィッティングを行ったが、一般的には重い正孔励起子と軽い正孔励起子では位相緩和時間が異なる [27]。本研究では重い正孔励起子と軽い正孔励起子の位相緩和時間をそれぞれ見積もることは出来ず、二つの位相緩和時間を等しいと仮定してその励起密度依存性を調べるにとどまった。このような曖昧さを避けるためには、本研究の 7 nm 量子井戸サンプルの測定結果のように、重い正孔励起子準位のみを励起し、単一指数関数でフィッティングできるような測定結果を得るべきである。時間分解能を保ちつつ重い正孔励起子準位のみを励起するためには、二つの方法がある。一つは励起パルスの中心波長を長波側にずらし、相対的に重い正孔励起子準位のみを励起する方法である。ただしこの方法では四光波混合信号が弱くなってしまうので、本研究のようなバックグラウンドノイズの多い測定では検出上の工夫が必要となる。もう一つはサンプルの重い正孔と軽い正孔励起子のエネルギー間隔を広げる方法である。これは量子井戸の幅を狭くすることで作製が出来るが、基底エネルギー準位も上昇する。GaAs より低エネルギーのバンド端をもつ InGaAs の量子井戸を作製して 774 nm の利得スイッチングレーザー光源を使った本研究の測定系をそのまま用いるか、あるいは異なる波長の二色同期光源（例えば二台同期させたチタンサファイアレーザー光源）を用いる必要がある。

- 半導体レーザーの短パルス限界

半導体量子井戸の反転分布領域の位相緩和時間が明らかになったことは、半導体からの超放射だけでなく、半導体レーザーの短パルス限界を考える場合にも重要な意味を持つ。

通常よく用いられるレーザー理論は励起キャリア密度と共振器内の光子密度の時間変化を記述するレート方程式である。このレート方程式は、半導体ブロッホ方程式から速い位相緩和の極限を仮定することにより導出される。これはレート方程式近似と呼ばれる。半導体レーザーの高速応答時間が位相緩和時間にくらべ短ければレート方程式近似は破綻する。このような状況は、例えば半導体利得スイッチングレーザーの短パルス限界に関する研究において問題となっている [12, 28]。

本研究によって反転分布状態のバンド端での位相緩和時間が 400 fs 程度になりうることが示されたことにより、その時間スケールで半導体レーザーを高速応答させる場合には、もはやレート方程式モデルが使えないことが明らかとなった。これにより、半導体レーザーの短パルス限界を調べる上で、この時間領域ではレート方程式ではなく半導体ブロッホ方程式による理解が不可欠であるとわかった。

さらに、半導体利得スイッチングレーザーと半導体からの超放射では、どちらも半導体バルク、量子井戸構造が用いられる点、高密度励起によって短パルスが発生する点、高密度励起するほど放出パルス幅が短くなる点などで実験方法と測定結果が似通っている。そこでその放出パルス幅によって利得スイッチング、超放射、あるいはその中間的な動作の分類が可能であると期待できる。半導体での純粋な超放射だけではなく、分極のコヒーレンスが関与する時間領域での光パルスの放出現象（広義の超放射）を理解することが、半導体レーザーの短パルス限界を調べる上で重要であると考えられる。

- 励起子 Mott 転移点における位相緩和時間の測定

本研究では、四光波混合の測定にパルス幅 300 fs のパルスを用いた。そのため、測定可能な位相緩和時間の下限はそのパルス幅で決まっていた。本研究では低密度領域、反転分布領域の位相緩和時間を見積もったが、透明密度付近の位相緩和時間は時間分解能のため測定することは出来なかった。透明密度付近では励起子 Mott 転移点があると予想され、その様子は相転移的であるかクロスオーバー的であるかについて議論の対象となっている [29, 30, 31]。四光波混合では不均一幅を除去した精密な均一幅の測定が可能であり、それにより励起子 Mott 転移前後での散乱機構の変化をより明瞭に観察できると考える。しかし先行研究、本研究の結果から、そこでの位相緩和時間は 10~100 fs オーダーで非常に短いと予想され測定の難しい密度領域である。先行研究 [21] の自由キャリア散乱を調べるときに用いられたような 10 fs オーダーのパルス幅の光源を用いる必要がある。

また、励起子と自由キャリア準位の干渉によって四光波混合信号にビートが表れ、バンド端のリノーマライゼーションによる励起子 Mott 転移の様子を実際に調べることができると考える [19]。位相緩和時間が短い場合には、ビート間隔より四光波混合信号の減衰が速くなりビートは見れなくなってしまうが、過渡吸収信号に現れるビートは観察できる可能性がある [32]。

付録 A 抽出された位相緩和時間の誤差

10.5 nm 量子井戸サンプルの四光波混合の測定結果には、量子ビートの構造が見られ、励起密度に対し信号の減衰の速さに変化が見られた。この減衰の速さを特徴づける量を抽出するために、式 (1.9) の量子ビートの理論式を、 \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルス幅で畳み込んでフィッティングを行った。フィッティングにはいくつかの仮定を用い、その方法で抽出された値を本研究での位相緩和時間 T_2 とした。この位相緩和時間は他の先行研究、理論計算と比較する際にずれがあると考えられる。この章では本研究での T_2 の抽出方法とその誤差について議論し、位相緩和時間の励起密度依存性を半定量的に議論するには問題ないと考えたことについて説明する。

A.1 フィッティング方法

フィッティング関数は式 (A.1) の $I'(T)$ を用いた。

$$I'(T) = \int_{-\infty}^{\infty} dt I(t - T_0) e^{-(t - T_0 - T)^2 / \sigma^2} + I_{BG} \quad (\text{A.1})$$

$$I(T) = I_0 [w_1^2 e^{-2\gamma_1(T)} + w_2^2 e^{-2\gamma_2(T)} + 2w_1 w_2 \cos(\Delta E(T)) e^{-(\gamma_1 + \gamma_2)(T)}] \quad (\text{A.2})$$

式 (A.2) は式 (1.9) を再び示した。式 (A.1) は式 (A.2) を \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルスの半値半幅 σ を用いて畳み込み、バックグラウンドの補正 I_{BG} を加えた。これは、フィッティング対象の測定結果からはバックグラウンドは差し引かれているものの、信号強度に対して 3 桁オーダー小さい程度は差し引かれず残っていたためである。 γ_1 、 γ_2 は二つの準位間の位相緩和時間の逆数、 ΔE はエネルギー差、 w_1 、 w_2 は励起スペクトルと二準位の振動子強度の重なりである。

フィッティングでは、二つの準位の位相緩和時間を等しい ($\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$) とした。これは、二つの準位の位相緩和時間を別々に抽出するには複数回のビートの周期が必要であること、先行研究 [27] で調べられた軽い正孔励起子と重い正孔励起子の位相緩和時間が 2.5 倍程度の違いでオーダーでは変わらないと考えたことが理由である。この仮定による誤差への影響は節 A.2 で説明する。

このとき、フィッティングのパラメータは $I_0 w_1^2$ 、 T_0 、 $1/\Delta E$ 、 w_2/w_1 、 γ 、 I_{BG} 、の 6 個となる。フィッティングの収束性をよくする為、いくつかのパラメータは独立に決定し固定した。

- ビートの周期 $1/\Delta E$ は測定結果から読み取り固定した。この値は量子ビートにかかわる二つの準位間のエネルギー差で決まっており、測定結果では励起密度にかかわらずほぼ同じ値となった。

- 励起される二つの準位のスペクトルの重みの比 w_2/w_1 は、過渡吸収スペクトル (図??(c)) の測定結果から 0.4 とした。
- バックグラウンド I_{BG} は測定結果から読み取り固定した。

よってフィッティングは3個のパラメータ $I_0w_1^2$ 、 T_0 、 γ について行った。フィッティングでは波形解析ソフトウェア Igor を用いて非線形フィッティングによるカイ二乗値の極小値を求めた。

A.2 フィッティング結果

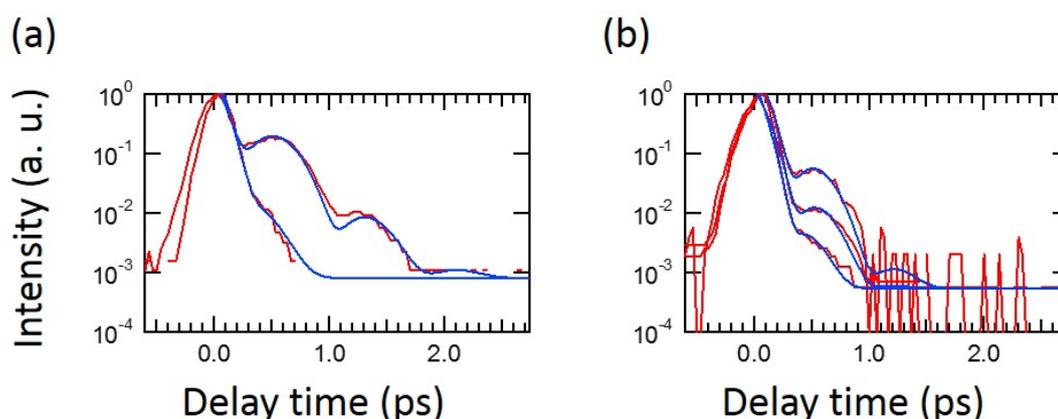


図 A.1: 四光波混合信号の測定結果のフィッティング結果。赤線が測定結果、青線がフィッティング結果。(a) 中密度領域 (図??) のプレパルスのパルスエネルギー 0 nJ、1.2 nJ、(b) 反転分布領域 (図??) の 0 nJ、5 nJ、12.8 nJ

表 A.1: 図 A.1 のフィッティング係数と誤差。誤差は 3σ の値

	$I_0w_1^2$ (a. u.)	T_0 (ps)	$1/\gamma$ (ps)
(a) 0 nJ	4.8 ± 0.6	-0.114 ± 0.007	0.60 ± 0.03
(a) 1.2 nJ	6.9 ± 2.5	-0.02 ± 0.03	0.17 ± 0.02
(b) 0 nJ	2.3 ± 1.5	-0.01 ± 0.02	0.15 ± 0.02
(b) 5 nJ	1.8 ± 1.3	0.00 ± 0.03	0.24 ± 0.05
(b) 12.8 nJ	4.9 ± 0.9	-0.02 ± 0.03	0.34 ± 0.02

図 A.1 に節??の実験結果を代表していくつかの測定点についてのフィッティング結果を示した。赤線が測定結果、青線がフィッティング結果で、(a) は中密度領域 (図??) のプレパルスのパルスエネルギー 0 nJ、1.2 nJ での測定結果、(b) は反転分布領域 (図??) のプレパルスのパルスエネルギー 0 nJ、5 nJ、12.8 nJ の測定結果についてのフィッティング結果である。フィッティング結果は実験結果をよく再現した。フィッティングのパラメータを表 A.1 に示した。 $I_0w_1^2$ はフィッティング係数に対し比較的大きな誤差を持っていた。 T_0 は四光波混合のビート間隔に対

して5%程度の誤差となった。位相緩和時間 $1/\gamma = T_2$ の誤差は係数に対し最大13%の誤差となった。このフィッティングによって得られた位相緩和時間は、ビートの頂点を単一指数関数でフィッティングした結果と一致した。

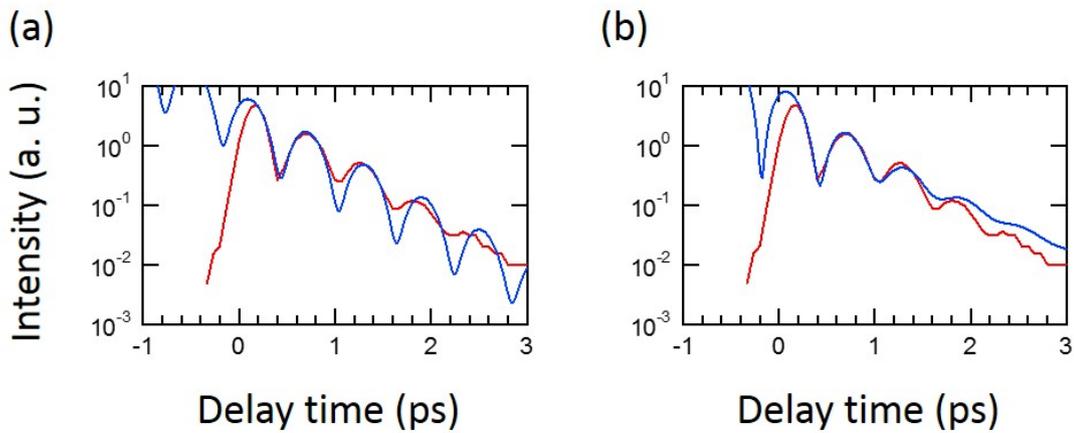


図 A.2: 量子ビートのフィッティング方法の比較。赤線が測定結果、青線がフィッティング結果。(a) $\gamma_1 = \gamma_2$ 、(b) $\gamma_1 \neq \gamma_2$

測定信号に十分に長い周期のビートが測定されている場合、二つの準位の位相緩和時間を分けて $\gamma_1 \neq \gamma_2$ としたフィッティングを行うことができる。図 A.2 は節??、図??(a) の測定結果について、 $\gamma_1 = \gamma_2$ としたフィッティングと $\gamma_1 \neq \gamma_2$ としたフィッティングの比較である。それぞれ抽出された位相緩和時間は (a) $\gamma_1^{-1} = \gamma_2^{-1} = 1.3 \pm 0.2$ ps、(b) $\gamma_1^{-1} = 1.6 \pm 0.2$ ps、 $\gamma_2^{-1} = 0.6 \pm 0.1$ ps となった。 $\gamma_1 = \gamma_2$ としたフィッティングで抽出された位相緩和時間は、 $\gamma_1 \neq \gamma_2$ としたフィッティングで得られた二つの位相緩和時間の間の値となった。このときの γ_1 と γ_2 はそれぞれ重い正孔励起子と軽い正孔励起子の位相緩和時間を表している。この実験結果の励起密度はおよそ $1.0 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ だが、先行研究 [27] の励起密度 $3 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ での重い正孔励起子と軽い正孔励起子の位相緩和時間 4 ps、1.5 ps と比べると、その比はほぼ等しいことがわかった。このことから、 $\gamma_1 \neq \gamma_2$ としたフィッティングでは重い正孔励起子と軽い正孔励起子の位相緩和時間が抽出され、 $\gamma_1 = \gamma_2$ としたフィッティングで抽出された位相緩和時間はその間の値であると考えた。

A.3 考察

本研究で用いたフィッティング方法では、位相緩和時間 $1/\gamma = T_2$ の誤差は係数に対し最大13%の誤差で、ビートの頂点を単一指数関数でフィッティングした結果と一致した。このことから、実験結果で得られた四光波混合の減衰の速さを特徴付ける量としては十分な精度で位相緩和時間を抽出できたと考えた。一方で、フィッティングに用いた仮定により、先行研究、理論計算の位相緩和時間とはずれがあると考えられる。このずれは、フィッティングの誤差13%よりも大きい可能性があるが、オーダーでのずれはなく、位相緩和時間の励起密度依存性を半定

量的に議論するには問題ないと考えた。以下に考えられる誤差の要因を挙げる。

- $\gamma_1 = \gamma_2$ の仮定

前節で説明したように、本研究での量子ビートのフィッティングでは二つの準位の位相緩和時間を等しいと仮定した。このとき抽出される位相緩和時間は、二つの準位の位相緩和時間の間の値となった。測定結果に十分なビートの周期がない場合には、二つの準位を分けたフィッティングを行うことはできなかったが、抽出された位相緩和時間は二つの準位の位相緩和時間とオーダーで合い、その励起密度依存性をよく表す量であると考えた。

- 高次の非線形感受率の影響

四光波混合の理論式では、外部電場に対する3次の摂動の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ による応答を仮定する。しかし外部電場が強い場合には、5次の非線形感受率 $\chi^{(5)}$ による応答が $\chi^{(3)}$ による応答よりも大きくなり、 $\chi^{(3)}$ を仮定した理論式のフィッティングからは正確な T_2 の見積もりが出来なくなる。 $\chi^{(5)}$ の影響は四光波混合信号強度の励起強度依存性から調べることができるが、本研究の実験ではバックグラウンドの影響が大きく、反転分布領域の $\chi^{(5)}$ の影響を調べることはできなかった。先行研究 [14] では電場強度 20 MW/cm^2 で $\chi^{(5)}$ の影響が報告され、これは本研究では2パルス四光波混合での励起密度 $10^{11} / \text{cm}^2$ 以上の領域におおよそ対応し、反転分布領域の測定条件も当てはまる。しかし、本研究では遅延時間 0.6 ps において四光波混合の信号が測定され、その時刻まで分極のコヒーレンスが持続していること明らかである。また、反転分布領域での励起密度依存性は、四光波混合に用いる \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 パルス強度ではなく、十分時間的に離れたプレパルスによって励起されたインコヒーレントなキャリアの励起密度に対するものであること、ビート間隔が弱励起領域で見られる重い正孔と軽い正孔のエネルギー間隔と一致すること、 $\chi^{(3)}$ と $\chi^{(5)}$ の分極の干渉が最も起きるであろう遅延時間0での四光波混合信号の波形に変化が見られないことなどから、 $\chi^{(5)}$ の影響があったとしてもその定性的な励起密度依存性の議論には影響はないと考えた。その場合抽出された T_2 は $\chi^{(3)}$ を仮定した結果とは異なる値となるが、オーダーでは違わないと考えた。

- 測定ごとの励起密度のばらつき

測定された位相緩和時間は同じ測定日のものについては連続的な曲線にのるような値となったが、異なる測定日のものについてはいくらかばらついた結果が得られた。これは、測定日ごとに \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 、プレパルスのサンプルへの重なりが微妙に異なるためであると考えた（スポットは過渡吸収信号、四光波混合信号強度が最大になるように合わせている）。このばらつきは、異なる測定日の結果を含む図??の測定結果のばらつきに表れていると考えた。この誤差は本研究での励起強度に対し線形な関係を仮定する励起密度の見積もりの誤差と同程度かそれ以下であり、定性的な議論には影響しないと考えた。

- サンプル品質のばらつき

式 (1.11) で表されるように、位相緩和時間の逆数である全体の散乱レートは、励起密度に依存する部分と依存しない部分の和で表される。励起密度に依存しない部分は、フォノン散乱、不純物散乱、量子井戸界面ラフネスなどによって決まり、そのうち不純物散乱と量子井戸界面ラフネスはサンプルの品質に大きく依存する。よって励起密度が低い領域では、測定される位相緩和時間はサンプルごとにばらつく。これが、図??の低密度側で見られるサンプルごとの測定結果のばらつきであると考えた。励起密度が高くなると、相対的に励起密度に依存する散乱の割合が増加し、サンプルごとの差は小さくなっていくと考えた。

以上が本研究で抽出された位相緩和時間の誤差についての考察だが、より精度よく位相緩和時間を測定する方法については節 5.2、展望で説明する。

付 録 B サンプルの貼り付け方法

節 2.1.3 ではサンプルのプロセス、マウント方法について説明したが、他の方法ではいくつかの問題が生じた。ここではそれを詳しく説明する。

- 低温実験時のサンプルの損傷

サンプルの測定時には、クライオスタット中で温度 5 K に冷やされ、一つのサンプルは再測定のために室温と低温の間を行き来することになる。そのため、銅コールドフィンガー、単結晶サファイア基板、GaAs サンプルとの間の熱伸縮率の違いにより、サンプルにしわ、ひび割れ、脱落のような破損が起きた。

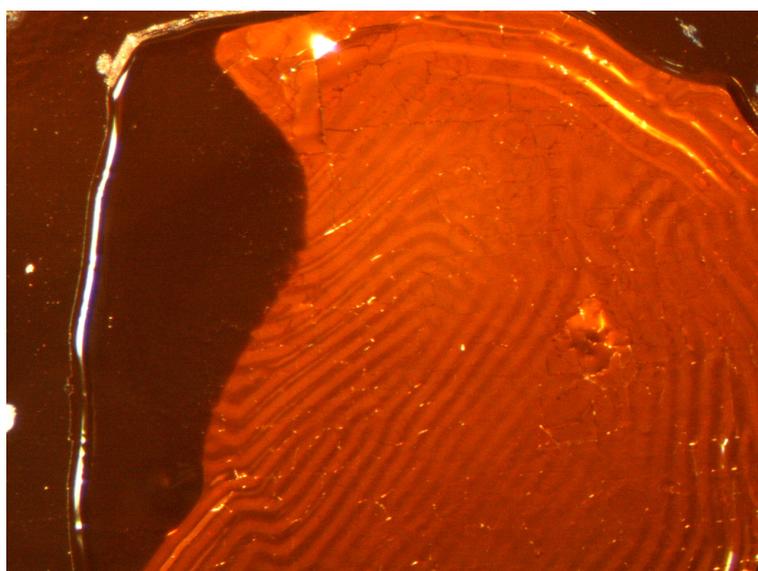


図 B.1: 7nm 量子井戸サンプル表面のしわ

図 B.1 は 7 nm 量子井戸サンプルを、エレクトロンワックスで単結晶サファイア基板に接着し、数回の低温測定を行った後のサンプル表面の写真である。写真中央の明るい部分がエッチングによって GaAs 基板が取り除かれた部分である。7 nm 量子井戸サンプルでは室温での吸収端が 1.52 eV 付近にあり、このようにサンプル裏面からの可視光の一部を透過する。写真のエッチング部にはその形状にそった縞模様が見える。これは、前述したように低温測定を繰り返したため材質による熱伸縮率の違いによりサンプル接着面に力が加わり、ひずみが生じて表面が波打ってしまったものと思われる。この状態では、縞模様が透過光に対し回折格子のように働き透過測定が困難になった。また、よく見ると縞模様だけでなくエッチング部に細かい亀裂が多

数でき、一部が剥がれかけているのがわかる。このような縞模様が生じてしまうのは7 nm 量子井戸サンプルのエッチング部の厚みがおよそ $1.5 \mu\text{m}$ と薄く、機械的に弱いためであると考え、10.5 nm 量子井戸サンプルでは、井戸構造の両側のバッファ層を厚くすることによって改善しようとした。

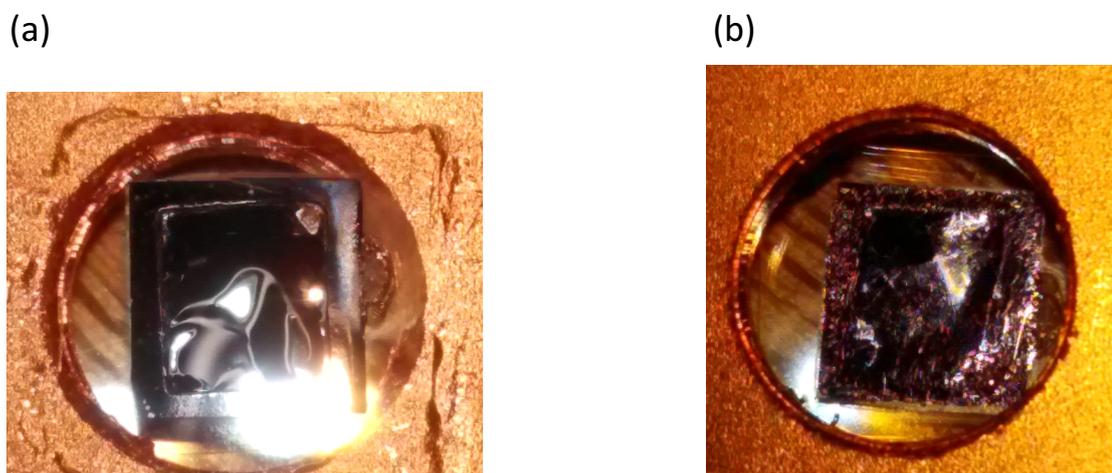


図 B.2: エレクトロニックワックスのひび割れ。(a) サンプル表面 (b) 裏面

図 B.2 は 10.5 nm 量子井戸サンプルを、エレクトロニックワックスで単結晶サファイア基板に接着し、数回の低温測定を行った後のサンプル表面の写真である。10.5 nm 量子井戸サンプルの場合には、室温での吸収端が 1.47 eV 付近にあり可視光を通さないのでエッチング部も黒く見える。(a) が表面だが、7 nm 量子井戸サンプルの場合に見られたような細かい縞模様は見られず、変わりにより長周期の薄膜のたわみが生じていることがわかる。これはサンプル構造のバッファ層をより厚くしたため、エッチング後の薄膜の厚みがおよそ $3 \mu\text{m}$ と 7 nm 量子井戸サンプルに比べ厚くなり、機械的に強靱になったためであると考えられる。しかし、サンプル裏面 (b) をみると、エレクトロニックワックスに細かい亀裂が生じ、サンプルが一部単結晶サファイア基板から剥がれてしまっていることがわかる。この状態では透過光の散乱が増えてしまうため透過測定は困難だった。

サンプル薄膜が単結晶基板に接着されている限り、温度伸縮によるサンプルの破損は避けられないと考え、フリースタANDINGのサンプルの外縁部のみをペーパーボンドで接着した。図 B.3 はその場合の数回の低温測定後に起きたサンプル脱落の様子である。薄膜部は単結晶基板と接着されていないものの、エッチング部の境界に亀裂が生じサンプルが脱落した。また、単結晶基板に接着されていないためコールドフィンガーとの熱伝導性が悪く、強く光を入射した場合にはサンプルの焼損が起きた。図 B.2 の単結晶基板の中央に見える黒い部分はそのときの焦げあとである。

サンプルの破損が一番少なかったのは、シクロヘキサンで希釈したペーパーボンドでフリースタANDINGサンプルを単結晶基板に貼り付ける方法だった。しかしこの場合でも測定時には注意すべき点があった。図 B.4 はそのときのサンプル裏面である。図 B.2 でも見られたよう

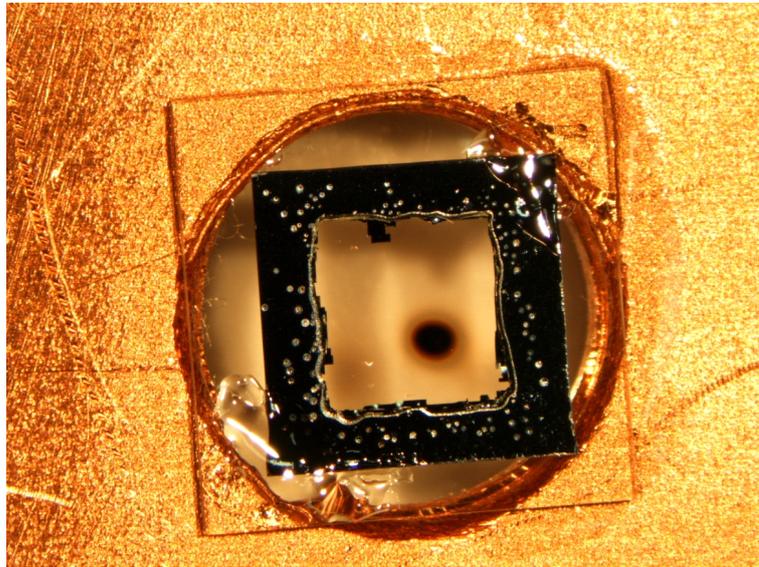


図 B.3: フリースタンディング試料の脱落



図 B.4: ペーパーボンド貼り付け時のサンプル裏面

に薄膜部分は大きく波打っている。そのため単結晶基板に接着されている部分と、単結晶基板から浮いている部分ができる。浮いている部分はコールドフィンガーとの熱伝導性が悪く、強く光を入射した場合にはサンプルの焼損が起きた。接着されている部分はサンプルの加熱は見られず。測定に用いることができた。

研究発表

論文

1. Shaoqiang Chen, Takahiro Nakamura, Takashi Ito, Hidekazu Nakamae, Xumin Bao, Guoen Weng, Xiaobo Hu, Masahiro Yoshita, Hidefumi Akiyama, Jianping Liu, Masao Ikeda, and Hui Yang, "Picosecond tunable gain-switched blue pulses from GaN laser diodes with nanosecond current injections", Optics Express 25, 13046-13054 (2017)
2. Shaoqiang Chen, Takashi Ito, Akifumi Asahara, Hidekazu Nakamae, Takahiro Nakamura, Masahiro Yoshita, Changsu Kim, Baoping Zhang, Hiroyuki Yokoyama, Tohru Suemoto, and Hidefumi Akiyama, "Transient gain analysis of gain-switched semiconductor lasers during pulse lasing", Appl. Opt. 54(35), 10438-10442 (2015).
3. Hidekazu Nakamae, Takahiro Nakamura, Takashi Ito, Toshimitsu Mochizuki, Changsu Kim, Shaoqiang Chen, Masahiro Yoshita, and Hidefumi Akiyama "Gain switching of a double-core-waveguide semiconductor laser via traveling-wave optical pumping", Appl. Phys. Express 7, 062701 (2014).

国内会議

1. 中村孝宏, 中前秀一, 伊藤隆, 金昌秀, 挾間優治, 黒田隆之助, 秋山 英文 "マルチセクション半導体レーザーからの光励起短パルス発生" 日本物理学会 2017 年秋季大会, 岩手大学・上田キャンパス, 2017/9/21-24, 21pB21-3
2. 中前秀一, 伊藤隆, 中村孝宏, 金昌秀, 挾間優治, 秋山英文, 黒田隆之助, 横山弘之 "半導体利得スイッチングレーザーとモードロックチタンサファイアレーザーの同期光源による半導体量子井戸のポンププローブ分光", 日本物理学会 2017 年秋季大会, 岩手大学・上田キャンパス, 2017 年 9 月 21 日 (木) -24 日 (日) , 21pB21-2
3. 中前秀一, 伊藤隆, 中村孝宏, 金昌秀, 挾間優治, 黒田隆之助, 秋山英文, "半導体反転分布状態に対する位相緩和測定", 日本物理学会第 72 回年次大会, 大阪大学・豊中キャンパス, 2017/3/17-20, 19pC-PS-13

4. 伊藤隆, 中前秀一, 挾間優治, 中村考宏, 金昌秀, 小林洋平, 吉田正裕, 秋山英文, ”利得スイッチ半導体レーザーの短パルス発生限界” レーザー学会第37回年次大会 招待講演 (徳島大学常三島キャンパス 2017/01/07-09)
5. 中村考宏, 伊藤隆, 中前秀一, 金昌秀, 挾間優治, 吉田正裕, 大里啓孝, 秋山英文, Peter Vasil'ev, ”マルチセクション半導体レーザーにおける利得と吸収の非線形競合による短パルス光発生” 日本物理学会 第71回年次大会 (東北学院大学泉キャンパス 3/19-22) 20pBH-13
6. 中前秀一, 伊藤隆, 中村考宏, 挾間優治, 金昌秀, 吉田正裕, 秋山英文, 小林洋平, 横山弘之, ”利得スイッチ半導体レーザーパルスのファイバーアンプによる増幅” 日本物理学会 2016年次大会 (東北学院大学泉キャンパス 3/19-22) 21pPSA-24
7. 伊藤隆, 中前秀一, 中村考宏, 挾間優治, 金昌秀, 小林洋平, 吉田正裕, 秋山英文 ”利得スイッチ半導体レーザーによるフェムト秒パルス発生と評価” 2015年第76回応用物理学会秋季学術講演会 (名古屋国際会議場, 2015/9/13-16) 13p-2G-9
8. 中前秀一, 伊藤隆, 中村孝弘, 挾間優治, 金昌秀, 吉田正裕, 秋山英文, 小林洋平, 横山弘之 ”利得スイッチ半導体レーザーをシード光に用いた強励起での時間分解分光” 日本物理学会 2015年秋季大会 (関西大学 千里山キャンパス 2015/09/16-19) 16aCF-7
9. 中村考宏, 伊藤隆, 中前秀一, 金昌秀, 挾間優治, 吉田正裕, 大里啓孝, 秋山英文, Peter Vasil'ev ”マルチセクション半導体レーザーの作製評価と光短パルス発生” 日本物理学会 2015年秋季大会 (関西大学 千里山キャンパス 2015/09/16-19) 18pPSA-44
10. 伊藤隆, 中前秀一, 中村考宏, 挾間優治, 金昌秀, 小林洋平, 吉田正裕, 秋山英文 ”利得スイッチ半導体レーザーにおけるフェムト秒パルス発生のメカニズム” 日本物理学会 2015年秋季大会 (関西大学 千里山キャンパス 2015/09/16-19) 18pPSA-43
11. 中前秀一, 中村考宏, 伊藤隆, 望月敏光, 金昌秀, 吉田正裕, 秋山英文, Loren N. Pfeiffer, Ken W. West (東大物性研, プリンストン大) ”量子井戸キャリア密度の空間的な揺らぎの定量測定”, 物性研究所短期研究会 機能物性融合科学研究会シリーズ (3) 「反応と輸送」 (東京大学物性研究所, 2015/06/24-26) P11
12. 伊藤隆, 中前秀一, 陳少強, 中村考宏, 金昌秀, 望月敏光, 小林洋平, 吉田正裕, 秋山英文 ”利得スイッチ半導体レーザーのサブピコ秒パルス発生における共振器効果” 日本物理学会 2015年春季大会 (早稲田大学 早稲田キャンパス 2015/03/21-24) 24aCP-15
13. 中前秀一, 中村考宏, 伊藤隆, 望月敏光, 金昌秀, 吉田正裕, 秋山英文, Loren N. Pfeiffer, Ken W. West ”二次元電子ガスの空間不均一性の光学測定” 日本物理学会 2014年秋季大会 (中部大学 春日井キャンパス 2014/09/07-10) 7aAV-2

14. 伊藤隆、中前秀一、陳少強、吉田正裕、望月敏光、金昌秀、小林洋平、秋山英文 ”利得スイッチ GaAs バルクレーザーの高密度領域における光インパルス応答特性” 日本物理学会 2014 年秋季大会 (中部大学 春日井キャンパス 2014/09/07-10) 7aAJ-1
15. 中前秀一、伊藤隆、中村考宏、望月敏光、金昌秀、陳少強、吉田正裕、秋山英文 (東大物性研) ”半導体レーザーの利得スイッチングにおける空間的な非一様性の影響” 日本物理学会第 69 回年次大会 (東海大学 湘南キャンパス 2014/03/27-30) (領域 4 2. 量子井戸・超格子)
16. 伊藤隆、中前秀一、陳少強、吉田正裕、望月敏光、金昌秀、小林洋平、秋山英文、Loren N. Pfeiffer、Ken W. West ”ファイバーレーザーパルス光源を用いた GaAs 量子井戸レーザーの高密度励起” 日本物理学会第 69 回年次大会 (東海大学 湘南キャンパス 2014/03/27-30) 29pCK-7
17. 中前秀一、中村考宏、伊藤隆、望月敏光、金昌秀、陳少強、吉田正裕、秋山英文 (東大物性研) ”縦型光励起ダブルコア半導体レーザーの利得スイッチング” 日本物理学会 2013 年秋季大会 (徳島大学 常三島キャンパス 2013/9/25-28) 申込み (5/25)

参考文献

- [1] Kankan Cong, Qi Zhang, Yongrui Wang, G Timothy Noe, Alexey Belyanin, and Junichiro Kono. Dicke superradiance in solids. *JOSA B*, Vol. 33, No. 7, pp. C80–C101, 2016.
- [2] Robert H Dicke. Coherence in spontaneous radiation processes. *Physical Review*, Vol. 93, No. 1, p. 99, 1954.
- [3] N Skribanowitz, IP Herman, JC MacGillivray, and MS Feld. Observation of dicke superradiance in optically pumped hf gas. *Physical Review Letters*, Vol. 30, No. 8, p. 309, 1973.
- [4] M Gross, C Fabre, P Pillet, and S Haroche. Observation of near-infrared dicke superradiance on cascading transitions in atomic sodium. *Physical Review Letters*, Vol. 36, No. 17, p. 1035, 1976.
- [5] A Flusberg, T Mossberg, and SR Hartmann. Observation of dicke superradiance at 1.30 μm in atomic tl vapor. *Physics Letters A*, Vol. 58, No. 6, pp. 373–374, 1976.
- [6] HM Gibbs, QHF Vrehen, and HMJ Hikspoors. Single-pulse superfluorescence in cesium. *Physical Review Letters*, Vol. 39, No. 9, p. 547, 1977.
- [7] Reinhold Florian, Lothar O Schwan, and Dankward Schmid. Time-resolving experiments on dicke superfluorescence of o 2- centers in kcl. two-color superfluorescence. *Physical Review A*, Vol. 29, No. 5, p. 2709, 1984.
- [8] K Miyajima, Y Kagotani, S Saito, M Ashida, and T Itoh. Superfluorescent pulsed emission from biexcitons in an ensemble of semiconductor quantum dots. *Journal of Physics: Condensed Matter*, Vol. 21, No. 19, p. 195802, 2009.
- [9] G Timothy Noe II, Ji-Hee Kim, Jinho Lee, Yongrui Wang, Aleksander K Wójcik, Stephen A McGill, David H Reitze, Alexey A Belyanin, and Junichiro Kono. Giant superfluorescent bursts from a semiconductor magneto-plasma. *Nature Physics*, Vol. 8, No. 3, pp. 219–224, 2012.
- [10] Ji-Hee Kim, G Timothy Noe II, Stephen A McGill, Yongrui Wang, Aleksander K Wójcik, Alexey A Belyanin, and Junichiro Kono. Fermi-edge superfluorescence from a quantum-degenerate electron-hole gas. *Scientific reports*, Vol. 3, , 2013.

- [11] Peter P Vasil'ev. Femtosecond superradiant emission in inorganic semiconductors. *Reports on progress in Physics*, Vol. 72, No. 7, p. 076501, 2009.
- [12] 伊藤隆, 中前秀一, 陳少強, 吉田正裕, 望月敏光, 金昌秀, 小林洋平, 秋山英文 「利得スイッチ gaas バルクレーザーの高密度領域における光インパルス応答特性」 日本物理学会 2013 年秋季大会 (中部大学春日井キャンパス) . 7aAJ- 1.
- [13] Jagdeep Shah. *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures*, Vol. 115. Springer Science & Business Media, 2013.
- [14] K Leo, EO Göbel, TC Damen, J Shah, S Schmitt-Rink, W Schäfer, JF Müller, K Köhler, and P Ganser. Subpicosecond four-wave mixing in gaas/al x ga 1- x as quantum wells. *Physical Review B*, Vol. 44, No. 11, p. 5726, 1991.
- [15] EO Göbel, K Leo, TC Damen, J Shah, S Schmitt-Rink, W Schäfer, JF Müller, and K Köhler. Quantum beats of excitons in quantum wells. *Physical review letters*, Vol. 64, No. 15, p. 1801, 1990.
- [16] L Schultheis, J Kuhl, A Honold, and CW Tu. Ultrafast phase relaxation of excitons via exciton-exciton and exciton-electron collisions. *Physical review letters*, Vol. 57, No. 13, p. 1635, 1986.
- [17] A Honold, L Schultheis, J Kuhl, and CW Tu. Collision broadening of two-dimensional excitons in a gaas single quantum well. *Physical Review B*, Vol. 40, No. 9, p. 6442, 1989.
- [18] Dai-Sik Kim, Jagdeep Shah, JE Cunningham, TC Damen, Wilfried Schäfer, Michael Hartmann, and Stefan Schmitt-Rink. Giant excitonic resonance in time-resolved four-wave mixing in quantum wells. *Physical review letters*, Vol. 68, No. 7, p. 1006, 1992.
- [19] Bipul Pal and AS Vengurlekar. Excitonic polarization dephasing under strong resonant pulsed excitation in gaas quantum wells. *Physical Review B*, Vol. 66, No. 15, p. 155337, 2002.
- [20] PC Becker, HL Fragnito, CH Brito Cruz, RL Fork, JE Cunningham, JE Henry, and CV Shank. Femtosecond photon echoes from band-to-band transitions in gaas. *Physical review letters*, Vol. 61, No. 14, p. 1647, 1988.
- [21] J-Y Bigot, MT Portella, RW Schoenlein, JE Cunningham, and CV Shank. Two-dimensional carrier-carrier screening in a quantum well. *Physical review letters*, Vol. 67, No. 5, p. 636, 1991.

- [22] K Meissner, B Fluegel, H Giessen, G Mohs, R Binder, SW Koch, and N Peyghambarian. Carrier dephasing in the gain region of an inverted semiconductor. *Physical Review B*, Vol. 50, No. 23, p. 17647, 1994.
- [23] Toshimitsu Mochizuki, Toshiyuki Ihara, Masahiro Yoshita, Shun Maruyama, Hidefumi Akiyama, Loren N Pfeiffer, and Ken W West. Fluorescent radiation thermometry at cryogenic temperatures based on detailed balance relation. *Applied Physics Express*, Vol. 6, No. 5, p. 056602, 2013.
- [24] Hiroshi Okamoto. Semiconductor quantum-well structures for optoelectronics—recent advances and future prospects—. *Japanese journal of applied physics*, Vol. 26, No. 3R, p. 315, 1987.
- [25] Hiroyuki Yokoyama, Hengchang Guo, Takuya Yoda, Keijiro Takashima, Ki-ichi Sato, Hirokazu Taniguchi, and Hiromasa Ito. Two-photon bioimaging with picosecond optical pulses from a semiconductor laser. *Optics express*, Vol. 14, No. 8, pp. 3467–3471, 2006.
- [26] Kyoya Tokunaga, Yi-Cheng Fang, Hiroyuki Yokoyama, and Yasuyuki Ozeki. Generation of synchronized picosecond pulses by a 1.06- μm gain-switched laser diode for stimulated raman scattering microscopy. *Optics express*, Vol. 24, No. 9, pp. 9617–9628, 2016.
- [27] J Erland, K-H Pantke, V Mizeikis, VG Lyssenko, and Jørn Märcher Hvam. Spectrally resolved four-wave mixing in semiconductors: influence of inhomogeneous broadening. *Physical Review B*, Vol. 50, No. 20, p. 15047, 1994.
- [28] Hidekazu Nakamae, Takahiro Nakamura, Takashi Ito, Toshimitsu Mochizuki, Changsu Kim, Shaoqiang Chen, Masahiro Yoshita, and Hidefumi Akiyama. Gain switching of a double-core-waveguide semiconductor laser via traveling-wave optical pumping. *Applied Physics Express*, Vol. 7, No. 6, p. 062701, 2014.
- [29] 浅野建一. 講義ノート 電子正孔系の物理. 物性研究・電子版 Vol.3、No.1, 031207 (2013年11月・2014年2月合併号), 2014.
- [30] Yuhei Hayamizu, Masahiro Yoshita, Yasushi Takahashi, Hidefumi Akiyama, CZ Ning, Loren N Pfeiffer, and Ken W West. Biexciton gain and the mott transition in gaas quantum wires. *Physical review letters*, Vol. 99, No. 16, p. 167403, 2007.
- [31] Fumiya Sekiguchi, Toshimitsu Mochizuki, Changsu Kim, Hidefumi Akiyama, Loren N Pfeiffer, Ken W West, and Ryo Shimano. Anomalous metal phase emergent on the verge of an exciton mott transition. *Physical Review Letters*, Vol. 118, No. 6, p. 067401, 2017.

- [32] Thomas Dekorsy, AMT Kim, Gyu Cheon Cho, Stefan Hunsche, Huib J Bakker, Heinrich Kurz, Shun Lien Chuang, and Klaus Köhler. Quantum coherence of continuum states in the valence band of gaas quantum wells. *Physical review letters*, Vol. 77, No. 14, p. 3045, 1996.