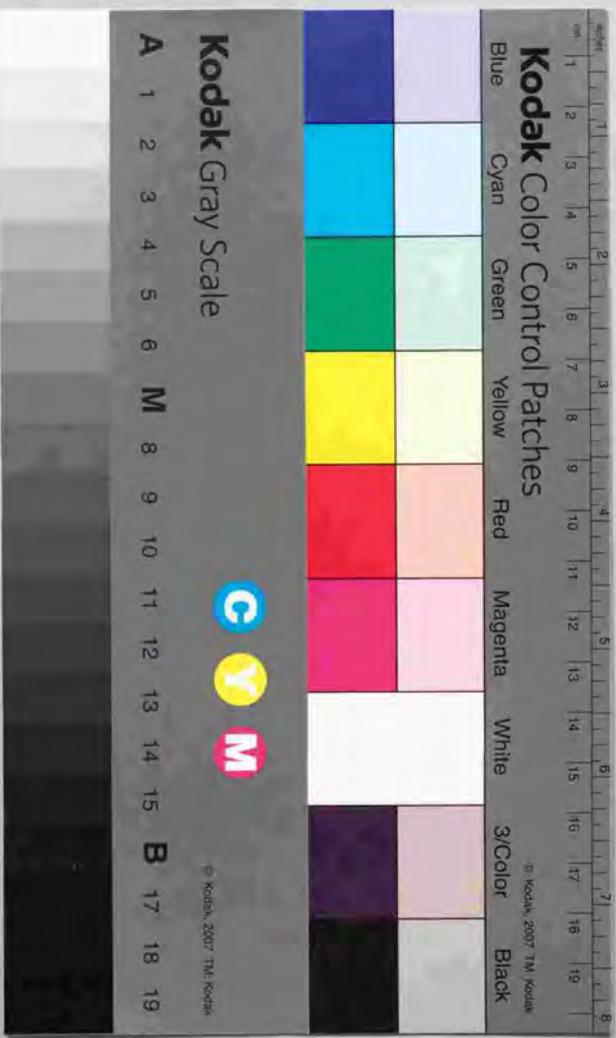


量子井戸半導体レーザーにおける
キャリア間相互作用の研究

富田 幸久



①

量子井戸半導体レーザにおける
キャリア間相互作用の研究

富田 章久

目次.....	i
論文概要.....	iii
1. 序論.....	1
1.1. 本研究の背景.....	1
1.2. 本論文の目的と意義.....	3
1.3. 本論文の構成.....	5
2. 量子井戸の電子状態.....	8
2.1. はじめに.....	8
2.2. 一様な二次元系キャリアに対するハートリー・フォック近似.....	9
2.3. 密度汎関数理論.....	12
2.4. 計算結果.....	19
2.5. 考察.....	24
2.6. まとめ.....	26
文献.....	28
3. 量子井戸におけるキャリアと光の相互作用.....	30
3.1. はじめに.....	30
3.2. 射影演算子法による密度行列理論.....	32
3.3. レーザ利得.....	39
密度行列方程式の単一モード光に対する定常解.....	39
レート方程式の導出.....	42
量子井戸における利得の表式.....	45
クローン エンハンスメント.....	47
レーザ利得に対するキャリア緩和の影響.....	48
3.4. 自由キャリアによる屈折率の変化.....	53
擬2次元キャリアの誘電率.....	53
実験との比較.....	63
線幅増大係数.....	67
3.5. まとめ.....	68
3.6. 本論文の半導体レーザ理論の構成と特徴.....	69
理論の対象.....	69
擬平衡状態でのキャリアの波動関数とエネルギー.....	72
光とキャリアの相互作用.....	75
理論の課題.....	79
おわりに.....	81
文献.....	82

4. 量子井戸レーザーの線形利得.....	84
4.1. はじめに.....	84
4.2. レーザの利得に対するキャリアの空間分布の効果.....	85
4.3. レーザの発振波長.....	87
キャリアの空間分布が無視できる場合.....	87
キャリアの空間分布が重要になる場合.....	90
4.4. 可飽和吸収体の設計.....	93
4.5. 利得の温度による変化.....	99
4.6. まとめ.....	105
文献.....	106
5. 量子井戸レーザーの非線形利得と高速変調.....	107
5.1. はじめに.....	107
5.2. レート方程式による半導体レーザーの応答の解析.....	108
5.3. スペクトラルホールバーニングによる非線形利得.....	109
非線形利得の表式と変調応答.....	109
光が強いときの利得飽和の解析的表式.....	116
5.4. キャリア密度の変化と温度の変化.....	118
5.5. 変調実験との比較.....	123
5.6. まとめ.....	128
文献.....	129
6. 量子井戸におけるキャリア緩和の観測.....	131
6.1. はじめに.....	131
6.2. 非縮退4光波混合.....	132
密度行列理論.....	132
共振型非縮退4光波混合.....	138
6.3. ϵ_6 領域での正孔の非熱的分布の観測.....	144
実験.....	144
実験結果の解析と考察.....	147
6.4. まとめ.....	151
文献.....	152
7. 結言.....	154
7.1. 本論文で明確にした点.....	154
7.2. 従来の研究との比較・今後の課題と展望.....	156
著者発表論文.....	159

論文概要

背景

半導体レーザーは光通信、光情報処理用光源として広く用いられている。特に、最近の量子井戸(歪量子井戸)の活性層への導入により、レーザー単体の研究としてはほぼ成熟しつつある。一方、超高速通信光源としてのモードロック半導体レーザー、半導体レーザーアンプを非線形媒質として用いる波長変換器や光 PLL、情報処理分野でも低雑音のセルフパルスセッション等のようにレーザーに機能を持たせることが盛んに検討されている。このような半導体レーザーの新たな応用に対してはレーザーの量子井戸活性層についてより詳細な知識が必要となる。たとえば、モードロックレーザーやセルフパルスセッションレーザーのようにレーザー媒質の一部を可飽和吸収体に用いる場合には利得スペクトルのキャリア密度依存性を知らなければならない。また、レーザーを非線形媒質として使うときには利得の非線形性とそれに関連したキャリアの緩和が重要になる。これらの特性は、キャリア間の相互作用によって大きな影響を受けるが従来の理論では緩和時間近似に代表されるような現象論的な解析が主であった。また、キャリア緩和の実験的な検討も十分ではない。

本論文は量子井戸半導体レーザーにおいてキャリア間の相互作用が利得スペクトルや非線形利得を通してレーザーの特性に与える影響を検討していく。

目的:

本論文の目的は

1. キャリア間相互作用(空間電荷効果と多体効果)による量子井戸の電子構造の変化を調べる手法を提供し、半導体レーザーの活性層となる量子井戸層の設計をより正確に行うこと。
2. キャリアと光との相互作用を密度行列方程式を用いて解析する。その際、キャリア間相互作用によるバンド内緩和を相互作用のハミルトニアンを用いて密度行列方程式に取り入れる。また、量子井戸のようにキャリアの運動が空間的に制限されている系における自由キャリアの屈折率を求め、量子井戸によって自由キャリアの屈折率が制御できるかを検討すること。
3. 量子井戸の電子状態や光との相互作用の理論を応用して利得や非線形利得を求め、キャリア間相互作用の影響を調べること。
4. キャリア間相互作用の一つであるキャリアのバンド内緩和を実験的に調べること。の4点である。

構成と主な結果:

本論文は前節で述べた目的をもって行われた量子井戸半導体レーザーにおけるキャリア間相互作用の影響に関する研究をまとめたものである。

第2章では量子井戸の電子状態を求める。

- 行列型のラッティンジャー・コーンハミルトニアンを用いた局所密度汎関数法を用いて価電子帯のミキシング、空間電荷効果、交換相関相互作用をセルフコンシステントに

考慮した電子構造を求めた。さらに、キャリアの自己エネルギー補正を行い、電子正孔間のクーロン引力(励起子効果)も考慮した。

- 可視光レーザー材料である GaInP/AlGaInP 量子井戸の電子構造を計算し、正確な電子構造を得るには価電子帯のミキシング、空間電荷効果と交換相関相互作用の 3 つをセルフコンシステントに解く必要があることを示した。

第 3 章では量子井戸のキャリアと光との相互作用を検討する。

- バンド内緩和があるときの感受率の表式を微視的なキャリア間相互作用のハミルトニアンから導く。本論文では TCL(Time Convolution-Less)形式の射影演算子法を用いて波数 k の電子正孔対の密度行列方程式を得る。利得スペクトルの形を決める線形状関数を相互作用ハミルトニアン自己相関関数で表わした。
- 非マルコフ性を示すバンド内緩和の最も単純なモデルとして確率過程モデルを導入する。
- 単一モードの光電場に対しては方程式は厳密に解くことができ、任意の光強度に対する光学利得の表式を求めた。
- 量子井戸構造におけるフリーキャリアによる屈折率を計算した。擬 2 次元系の波動関数を用いて線形応答理論によって誘電応答を求める。長波長近似を用いたとき、フリーキャリアの屈折率の偏光依存性がなくなること示した。量子井戸構造によるフリーキャリア屈折率の制御は閾値キャリア密度の変化を通じた間接的なものである。

第 4 章では前 2 章の結果を利用して量子井戸の線形利得を計算し、実際のレーザーに適用する。

- 量子井戸レーザーの発振波長(利得ピーク)をキャリアの空間的な分布が無視できる場合とできない場合について調べた。バンドギャップシュリンケージとバンドファイリングで発振波長が決まるが、キャリアの空間分布が無視できない場合は井戸のポテンシャルが変形する効果も無視できない。
- キャリア密度に依存した利得スペクトルを計算して、量子井戸を可飽和吸収体として用いたときのセルフパルセーション発現のためのバンドギャップ条件を導いた。
- GaInP/AlGaInP 量子井戸について数種の量子井戸構造の利得を計算し、温度特性を比較して可視光レーザーの温度特性の要因を検討した。量子準位に近接した連続準位へのキャリア分布(この場合は X 点)が大きな影響を与える。

第 5 章では非線形利得について検討する。

- 半導体レーザーの高速変調特性を検討するために、レート方程式を用いて半導体レーザーの応答特性を求め、重要なパラメータとして非線形利得係数と K ファクタと呼ばれる量を定義した。
- レーザ媒質の非線形利得の起源として、スペクトラルホールバーニングとキャリアヒーテイングについて検討し、しきい値利得(キャリア密度)の関数としての非線形利得の振る舞いが非線形利得の機構によって異なることを示した。

- 光変調法によって半導体レーザーの寄生容量やインダクタンスの影響を除いた変調特性を測定し、量子井戸の種類(歪量)や閉じ込め係数に対する依存性を調べた結果、スペクトラルホールバーニングが非線形利得の機構として無視できないことを示した。

- レート方程式で非線形利得を取り入れる際の利得の光子密度依存性を求めた。

第 6 章では量子井戸のキャリア緩和を観測する試みの例として非縮退 4 光波混合と n-変調ドープ量子井戸において非熱的に分布した正孔のフェムト秒領域でのダイナミクスについて述べる。

- スペクトラルホールバーニングによる 4 光波混合の密度行列理論を展開した。また、共振器によって増強される 4 光波混合を理論的、実験的に解析した。THz 以上の離調でも 4 光波混合が観測でき、また非線形感受率の値はレーザーの変調実験から求めたものと一致した。
- 実験条件を制御することによって従来観測にかからなかった正孔の超高速ダイナミクスを観測した。
- 発光スペクトルの形が指数型の裾を引くことは正孔の分布が熱的なボルツマン分布である証拠にはならない。

実験とモンテカルロシミュレーションの結果から正孔は励起後 800 fs にわたって非熱的分布をとり、この間での緩和は電子-正孔相互作用で支配されることを示した。

1.序論

1.1. 本研究の背景

半導体レーザーは現在光通信、光ディスク等の光源として広く用いられている。さらに、高出力化したものは固体レーザーの励起光源として、高コヒーレンスなものは計測用光源へと用途が拡大している。このように半導体レーザーは最も産業的に成功したレーザーとあって良い。この原因は半導体レーザーが小型、高信頼、高効率といった優れた性質を持っているからである。もちろん、半導体レーザーは誕生当初から優れた特性を示したわけではなく様々なブレイクスルーの結果として現在の地位を得たものである。

半導体レーザーの技術の流れを表1によって概観する。上段は実際のデバイスの進展を、下段はデバイスの基礎となる構造や理論を記した。半導体レーザー理論の発展における特色は理論の進展のおのおのにはその契機となる応用上の要求や製造技術の進歩があったことである。この意味で半導体レーザーは量子エレクトロニクスと半導体物理、それに産業上の応用課題の三つが絡み合った極めて興味深い対象である。

半導体レーザーの発展は、1962年に発振が報告された¹ことに始まる。当時のレーザーは低温でパルス発振するのみで、出力光も乱雑に変動する多モード光であった。これに続く1970年代にはいくつかの大きなブレイクスルーがあった。まず特筆されるのはダブルヘテロ構造の導入²である。これによってキャリア注入・閉じ込めと光閉じ込めが効率よく行われるようになり、室温での連続発振が可能になった。引き続き、屈折率導波構造³により横方向への光閉じ込めを意識して行うことによって横モードが安定化し⁴、電流光特性の直線性が改善された。特にInP系半導体レーザーでは横モード制御に埋め込みヘテロ構造^{5,6}というキャリア閉じ込めにも有効な構造が用いられるようになった。

さらに1980年代には光通信の高速化に伴って動的単一軸モード発振の重要性が指摘され⁷、半導体レーザー共振器に回折格子を作り付けた分布帰還構造⁸(DFB/DBR)が用いられるようになった。レーザー材料の進歩としては、活性層への量子井戸⁹の導入が特筆される。量子井戸では状態密度がバルク半導体よりもバンドの底に集中するよ

うになるため小さいキャリア密度で利得が生じ、微分利得も向上した。微分利得の向上は応答の高速化、 α パラメータの減少に伴う線幅の低下などをもたらし、量子井戸レーザは速やかにバルク活性層のレーザにとってかわった。さらに、基板と格子定数が異なる材料で量子井戸を成長して2軸性の歪を加えることにより正孔の状態密度をある程度制御することが可能となった¹⁴⁾。これにより、半導体レーザのしきい値電流の低減、高温度動作、高速変調等の諸特性がさらに改善された。

このような半導体レーザの改善とあわせて、半導体レーザの動作を理論的に解明し、特性の向上への指針を得ようとする動きもおこった。半導体レーザでは誘導放出はバンド間の光遷移によって起きるが、半導体の伝導帯と価電子帯をそれぞれ1つの準位と見立てて2準位系として取扱うことが早くから行われている。これは、伝導帯と価電子帯のバンド内緩和がバンド間の遷移に比べて非常に速いため、バンド間遷移がおきている間伝導帯と価電子帯のそれぞれの中ではキャリアがフェルミ分布しているということによっている。バンド内の緩和が非常に速いということは分極の緩和も速いことを意味し、半導体レーザはキャリア密度と光子密度の2つの変数で良く表わすことができる。これが半導体レーザのレート方程式である¹⁵⁾。半導体レーザの変調特性等の様々な振る舞いがこの方程式の解析によって明らかにされた¹⁶⁾。

レート方程式においてキャリア密度の変化と光子密度の変化を結ぶものがキャリア密度の関数としての光学利得(以下、紛らわしくないところでは単に利得と書く)である。半導体の利得の計算は早くから行われ¹⁷⁾、利得におけるキャリア間もクーロン相互作用の影響も論じられた¹⁸⁾。初期の利得の理論はバンド内緩和が速いことから光遷移における波数保存則が完全に破れていることを仮定することが多かった。しかし、結晶成長技術の進歩によって活性層での不純物を介した光遷移の影響は無視できるようになり、理論と実験とを詳細に突き合わせるできるようになった。これにより、レーザ理論の精密化が進んだ。例えば、気体レーザの理論を模して密度行列理論が作られ¹⁹⁾、縦モード間の競合が解析された。この理論ではバンド内緩和時間も有限のものとして現象論的に取り込まれた。密度行列理論は利得の非線形性をも記述できるため、レーザの高速変調限界の検討にも用いられた²⁰⁾。一方、量子井戸活性層の導入に伴い2次元系の電子状態や利得についても検討が進んだ²¹⁾。

以上のような半導体レーザ技術の進歩により1990年代には半導体レーザそのものはほぼ成熟してきている。現在は緑青色レーザに代表される波長域の拡大を目指した新材料系の研究と、超高速光通信光源としてのモードロックレーザ、WDMに用いられるレーザアンプの非線形性を利用した波長変換器などの半導体レーザを基本とした新しい機能素子への応用の研究が行われている。

萌芽期 (60年代)	成長期 (70年)	発展期 (80年代)	成熟期 (90年代)
半導体レーザ発振 (Hall, et al. 1962)	<ul style="list-style-type: none"> ・室温連続発振 (DH) (Hayashi, et al. 1970) ・屈折率導波 (Lee, et al. 1975) ・BH構造 (Tsukada 1974) ・QWレーザ (van der Ziel, et al. 1975) 	<ul style="list-style-type: none"> ・長波(InP系)レーザ ・DFB/DBR ・QWレーザ実用化 	<ul style="list-style-type: none"> ・緑青色レーザ ・モードロックレーザ ・レーザアンプ ・波長変換器(XGM, XPM, FWM) ・量子箱レーザ ・マイクロキャビティレーザ
<ul style="list-style-type: none"> ・気体レーザの密度行列理論 (Haken, Lamb...) ・DH構造提案 (Kreomer 1963) ・半導体の発光理論 (Stern,...) ・レート方程式 	<ul style="list-style-type: none"> ・超格子提案(Esaki 1970) ・横モード制御 	<ul style="list-style-type: none"> ・密度行列理論 (末松ら、小笠原,...) ・線幅理論 (Henry 1982) ・QWレーザの理論 (浅田、荒川、杉村、山西,...) ・歪QWレーザ提案 (Adams, Yablonovitch-Kane 1987) ・量子細線・量子箱レーザ (楯、荒川,...) 	

表 1 半導体レーザ技術の流れ

1.2. 本論文の目的と意義

前節で半導体レーザの発展を概観した。現在、半導体レーザは技術として成熟しつつある。このような状況で新たな発展としてはレーザ媒質の機能素子としての応用が考えられる。半導体レーザを機能素子として用いていくためには後述するようにレーザ媒質である量子井戸の精密な設計が求められる。特に、光と半導体のキャリアの運動を結び付ける利得については材料系や応用の進展に伴って多くの変更や追加が必要になる。例えば、これまで行われてきた量子井戸の光過程の研究²²⁾は理想的な2次元系を対象としてきたため、キャリアの空間的な分布が重要になる実際の半導体レーザに用いられる量子井戸での電子状態や利得についての検討は不十分であった。また、

長波長帯のレーザでは α パラメータに対する自由キャリアのプラズマ効果の寄与が大きいことが指摘されている²⁾。量子井戸における自由キャリアのプラズマ効果は古典的な Drude モデルによる解析が行われてきたのみで、量子井戸レーザにおける制限（量子化）されたキャリア運動が与える影響はほとんど無視されてきた。

本論文は量子井戸半導体レーザにおいてキャリア間相互作用が利得スペクトルや非線形利得を通してレーザ特性に与える影響を検討する。キャリア間相互作用は現実の量子井戸半導体レーザでも重要であることが明らかになる。本論文の目的は、

1. キャリア間相互作用（空間電荷効果と多体効果）による量子井戸の電子構造の変化を調べる手法を提供し、半導体レーザの活性層となる量子井戸層の設計をより正確に行うこと。
 2. キャリアと光との相互作用を密度行列方程式を用いて解析する。その際、キャリア間相互作用によるバンド内緩和を相互作用のハミルトニアンを用いて密度行列方程式に取り入れる。また、量子井戸のようにキャリアの運動が空間的に制限されている系における自由キャリアの屈折率を求め、量子井戸によって自由キャリアの屈折率が制御できるかを検討すること。
 3. 量子井戸の電子状態や光との相互作用の理論を応用して利得や非線形利得を求め、キャリア間相互作用の影響を調べること。
 4. キャリア間相互作用の一つであるキャリアのバンド内緩和を実験的に調べること。
- の4点である。

本論文で述べる解析はキャリア間相互作用という半導体物性の基本的問題に関わるもので、一見学術的興味から生まれたようにみえる。しかし、このような問題であっても半導体レーザの応用上の具体的な問題から生じたものである。詳しくは第4章と第5章で述べるが、以下に量子井戸におけるキャリア間の相互作用の検討がどのような応用課題から必要になるかを述べ、本論文の意義を明らかにする。

まず、キャリア間の多体効果はレーザの発振波長を長波長側にシフトさせる。レーザの発振波長を閾値キャリア密度の関数として求めることは量子井戸を導波路に用いるときの吸収損失の大きさをきめる。また、量子井戸を可飽和吸収体として使い、セルフパルセーションレーザや受動モードロックレーザを実現するときにも発振波長と可飽和吸収体の吸収端を正確に合わせる必要がある。セルフパルセーションレーザは戻り光雑音の低減のために用いられ、第2世代のDVD (Digital Versatile Disk) のキーデバイスとして期待されている。また、モードロックレーザは100 Gb/s級の超高速光通信光源として重要である。

キャリアのバンド内緩和は線形状関数を通じて量子井戸の利得に影響を与える。線形利得では利得スペクトルをなまらせ、利得ピークを小さくする。緩和の影響は非線形利得により大きな影響をあたえる。直接変調時のレーザの応答やレーザアン

プの動特性を決めている。また、波長多重や超高速の光信号処理を用いるような高度な光システムに波長変換や光 AND ゲートに半導体レーザアンプの4光波混合を用いることが検討されている。4光波混合は波長の異なる二つの入射光（振動数 ω_1, ω_2 ）から第3の光（振動数 $\omega_3=2\omega_1-\omega_2$ または $\omega_3=2\omega_2-\omega_1$ ）が媒質の非線形性によって生じる現象だが、半導体レーザアンプの場合非線形利得によって起きる。特に離調 $|\omega_1-\omega_2|$ が大きいとき、スペクトルホールバーニングが重要になる。半導体レーザ媒質の非線形性は半導体レーザ（アンプ）を光機能素子として用いるときの性能を決めるものであり、バンド内緩和が非線形利得に与える影響を求めることが必要である。

以上のように量子井戸レーザの高度な応用を考えていく時に量子井戸の電子構造や利得、非線形利得、屈折率を正確に把握する必要があり、本論文の意義はこれらがキャリア間相互作用によってどのような影響を受けるかを調べるための実際的な手法を与え、またキャリアの相互作用がどのように現れるかを示したことにある。本論文で展開される手法はミクロな量子井戸の物性と実際のデバイス特性を結び付けるものであり、できるだけ理論的に根拠のある方法を用いてミクロな過程をモデル化して取り入れている。そのため、形式的にもまた、数値計算の上からも過度に複雑になることなく実際のデバイス設計に応用できる形になっている。

1.3. 本論文の構成

本論文は前節で述べた目的をもって行われた量子井戸半導体レーザにおけるキャリア間相互作用の影響に関する研究をまとめたものである。

第2章では価電子帯のミキシング、空間電荷効果、交換相関相互作用をセルフコンシステントに考慮した電子構造を求める方法として、行列型のラッティンジャー・コーンハミトニアンを用いた局所密度汎関数法を展開する。さらに、キャリアの自己エネルギー補正を行い、電子正孔間のクーロン引力(励起子効果)も考慮する。可視光レーザ材料である GaInP/AlGaInP 量子井戸の電子構造を計算し、正確な電子構造を得るには価電子帯のミキシング、空間電荷効果と交換相関相互作用の3つをセルフコンシステントに解くことが必要であることを示す。

第3章では量子井戸のキャリアと光との相互作用を検討する。バンド内緩和があるときの感受率の表式を微視的なキャリア間相互作用のハミルトニアンから導く。本論文ではTCL(Time Convolution-Less)形式の射影演算子法を用いて波数 k の電子正孔対の密度行列方程式を得る。非マルコフ性を示すバンド内緩和の最も単純なモデルとして確率過程モデルを導入する。単一モードの光電場に対しては方程式は厳密に解くことができ、任意の光強度に対する光学利得の表式を求める。また、量子井戸構造におけるフリーキャリアによる屈折率を計算する。擬2次元系の波動関数を用いて線形

応答理論によって誘電応答を求める。長波長近似を用いたとき、フリーキャリアの屈折率の偏光依存性を調べ、量子井戸構造によるフリーキャリア屈折率の制御の可能性を検討する。第2章と第3章は本研究の中核をなす部分で量子井戸半導体レーザの解析の手法を提供するものである。第3章の最後の節(3.6節)は本論文で展開した半導体レーザの理論の構成を明確にし、そこでなされた近似について述べる。更に、他の理論との比較から本論文の理論の位置づけを明らかにする。

以下の第4章と第5章は前2章の結果を実際のレーザに適用する。まず、第4章では量子井戸の線形利得を計算する。この結果を用いて、量子井戸レーザの発振波長をキャリアの空間的な分布が無視できる場合とできない場合について調べる。また、量子井戸を可飽和吸収体として用いたときのセルフパルス発現のためのバンドギャップの条件を導くため、キャリア密度に依存した利得スペクトルを計算する。さらに、GaInP/AlGaInP量子井戸について数種の量子井戸構造の利得を計算し、それらの温度特性を比較して可視光レーザの温度特性の要因を検討する。

第5章では非線形利得について検討する。この章では理論解析と実験から半導体レーザの非線形利得のメカニズムを調べる。レーザ媒質の非線形利得の起源として、主にスペクトラルホールバーニングに注目し、キャリアヒーティングについても検討を行なう。しきい値利得(キャリア密度)の関数としての非線形利得の振る舞いが非線形利得のメカニズムによって異なることを示す。光変調法によって半導体レーザの寄生容量やインダクタンスの影響を除いた変調特性を測定し、量子井戸の種類(歪量)や閉じ込め係数に対する依存性を調べ、非線形利得のメカニズムを検討する。さらに、レート方程式で非線形利得を取り入れる際の利得の光子密度依存性を求める。

第6章では量子井戸のキャリア緩和を観測する試みを述べる。まず、スペクトラルホールバーニングによる4光波混合の密度行列理論を展開する。また、共振器によって増強される4光波混合を理論的、実験的に解析する。ここでは4光波混合におけるキャリアの非マルコフ的な緩和の影響や、強いポンプ光による非線形感受率の飽和を論じる。次に、 n -変調ドープ量子井戸において非熱的に分布した正孔のフェムト秒領域のダイナミクスについて述べる。従来、フェムト秒でのキャリアダイナミクスの研究はほとんどが電子を対象としてきた。筆者らは実験条件を制御することによって初めて正孔の超高速ダイナミクスを観測した。実験とモンテカルロシミュレーションの結果から正孔は励起後800 fsにわたって非熱的分布をとり、この間での緩和は電子-正孔相互作用で支配されることを示す。

第7章は結言であり、著者の量子井戸構造半導体レーザにおけるキャリア間相互作用の研究を通じての成果をまとめるとともに、今後の課題、展開方向に関して展望することとする。

文献

- ¹ R.N. Hall, G.E. Fenner, J.D. Kingsley, T.J. Soltys, and R.O. Carlson; Phys. Rev. Lett. **9** (1962) 366.
- ² I. Hayashi, M.B. Panish, P.W. Foy, and S. Sumski; Appl. Phys. Lett. **17** (1970) 109.
- ³ T.P. Lee, C.A. Burrus, B.I. Miller, and R.A. Logan; IEEE J. Quantum Electron. **QE-11** (1975) 432.
- ⁴ R. Lang; Jpn. J. Appl. Phys. **16** (1977) 205.
- ⁵ T. Tsukada; J. Appl. Phys. **45** (1974) 4899.
- ⁶ I. Mitō, M. Kitamura, K. Kobayashi, S. Murata, M. Seki, Y. Odagiri, H. Nishimoto, M. Yamaguchi, and K. Kobayashi; IEEE J. Lightwave Technol. **LT-1** (1983) 195.
- ⁷ T.E. Bell; IEEE Spectrum **20** (1983) 381.
- ⁸ H. Kawanishi, Y. Suematsu, Y. Itaya, and S. Arai; Jpn. J. Appl. Phys. **17** (1978) 1439.
- ⁹ 量子井戸レーザについては review として Y. Arakawa, and A. Yariv; IEEE J. Quantum Electron. **QE-22** (1986) 1887.
- ¹⁰ A.R. Adams; Electron. Lett. **22** (1986) 249.
- ¹¹ E. Yablonoitch and E.O. Kane; IEEE J. Lightwave Technol. **LT-4** (1986) 504.
- ¹² H. Stotz and G.A. de Mars; in *Quantum Electronics*, ed. by C.H. Towns (Columbia Univ. Press, New York, 1960).
- ¹³ 初期の review として T. Ikegami and Y. Suematsu; Proc. IEEE **55** (1967) 122.
- ¹⁴ G. Lasher and F. Stern; Phys. Rev. **133** (1964) A553.
- ¹⁵ W.D. Johnston, Jr.; Phys. Rev. **B6** (1972) 1455.
- ¹⁶ W.F. Brinkman and P.A. Lee; Phys. Rev. Lett. **31** (1973) 237.
- ¹⁷ M. Yamada and Y. Suematsu; IEEE J. Quantum Electron. **QE-15** (1979) 743, J. Appl. Phys. **52** (1981) 2653.
- ¹⁸ 第3章の引用文献を参照のこと。
- ¹⁹ H. Haug and S.W. Koch; Phys. Rev. **A39** (1989) 1887.
- ²⁰ M. Asada; Trans. IECE Jpn. **E68** (85) 518.

2. 量子井戸の電子状態

2.1. はじめに

本章では量子井戸レーザの解析を進めていく上での基礎となる量子井戸の電子状態を調べていく。量子井戸の研究においてサブバンド構造や光学スペクトルの計算は主要な課題の一つである。従来、量子井戸の電子状態の計算には箱型ポテンシャル中に粒子があるというモデルがよく用いられ、特に吸収スペクトルは実験とも良く一致する結果が得られている。このモデルでは多くの場合キャリアは放物線形の分散関係を持つものと仮定されてきた。このように仮定すると電子、軽い正孔、重い正孔の量子準位は独立に計算でき解析が簡単になる。一般に軽い正孔と重い正孔のバンドは波数が 0 でないところでは混ざり合うが、量子井戸面内の有効質量を適当に仮定することで放物線形の分散関係によって実際のバンドの状態密度をかなり良く近似することができ、レーザの研究開発の初期の段階で利得を見積もるにはほぼ十分であった。

しかし、このような単純なモデルはレーザの利得スペクトルをより精密に知りたいときには十分ではない。利得スペクトルの詳細な知識が必要になる例として第 4 章で述べるレーザの発振波長や可飽和吸収体への応用があげられる。こういったレーザの利得スペクトルを考える場合、波数が 0 以外の状態へのキャリア分布も重要になることと、キャリア密度が大きいことによる多体効果の影響に注意しなければならない。特に、歪量子井戸の導入によって重い正孔と軽い正孔のバンドが分裂すると、バンドの混合の仕方が変化して利得も大きな影響を受ける。このような状況を統一的に記述するには放物線バンドでは不十分でバンドのミキシングをきちんと計算する必要がある。価電子帯のミキシングそれ自体はこれまでもタイトバインディング法や $k \cdot p$ 摂動法によって調べられている²。一方、高密度電子正孔系における多体効果は純粋な 2 次元系について詳しく調べられ、バンドギャップシュリンケージや励起子効果による振動強度の増大(クーロン エンハンスメント)が論じられてきた^{3,4}。価電子帯のミキシングがある系に多体効果を取り入れた計算も報告されている⁵。ところが、長波長帯や可視光域の材料として重要な InGaAsP 系や GaInP 系では電子の井戸の深さが浅く相当数の電子がバリア層にも熱的に分布するようになる。これに対し、正孔は井戸が深

く状態密度も大きいので、井戸に閉じ込められる。電子と正孔の空間的分布が異なるために空間電荷が生じ、キャリアが感じるポテンシャル形状が変化して量子準位も影響を受ける。極端な場合には空間電荷による静電ポテンシャルによって量子井戸がタイプ II からタイプ I に変化することも起こりうる。さらに、キャリア間の交換相関相互作用も空間的に変化するのでキャリアの分布や量子準位に影響する。このため、量子井戸のキャリアの状態を知るには空間電荷効果と交換相関相互作用を同時に考慮しなければならない。

これまでも、価電子帯のミキシングと電子と正孔で波動関数の広がりから生じる空間電荷の効果を考慮した計算が行われ⁶、正孔の分布がこの空間電荷のためバリア層に広がることが報告されている⁷。また、交換-相関相互作用は n 変調ドーブ構造では無視できないことが安藤によって指摘されている⁸。このため、キャリアの空間的分布の影響を取り入れるために密度汎関数法を用い、キャリア間の相互作用を局所密度近似によって有効ポテンシャルを導入して扱う^{10,11,12,13,14}ことが行われている。これまでの報告では価電子帯のミキシングをも考慮した計算はドーブされた量子井戸に限られ¹⁰、電子と正孔の分布をともにセルフコンシステントになるように解いたものでは放物線バンドを仮定している¹¹⁻¹³。価電子帯のミキシング、空間電荷、交換相関相互作用の全てを取り入れた解析は行われていなかった。

以下ではまず 2 次元系のキャリアの基底状態をハートリー・フォック近似で計算する。次に局所密度汎関数法により空間的に不均一な系でのキャリア間の相互作用をセルフコンシステントに計算する。価電子帯のミキシングも $k \cdot p$ 摂動法により取り入れることができた。キャリアの空間的分布をセルフコンシステントに取り入れた計算を行い、さらに自己エネルギーを計算して得られた結果を改良する方法を述べる。また、ここで取り入れた効果の一部を無視した計算の結果との比較から価電子帯のミキシング、空間電荷、交換相関相互作用の全てをセルフコンシステントに解くことの重要性を示す。

2.2. 一様な二次元系キャリアに対するハートリー・フォック近似¹³

2 次元系における多体効果を最も簡単に調べるために、一様なキャリアにハートリー・フォック近似を適用する。電気的中性を保つために一様なバックグラウンド電荷を考えると、よく知られているようにキャリア間の静電相互作用はバックグラウンド電荷との静電相互作用と正確に打ち消しあう。多体効果として残るのはキャリア間の交換相互作用だけである。基底状態のエネルギーは平均運動エネルギーと平均交換エネルギーの和となる。ここで、平均は波数空間で半径がフェルミ波数の円につい

で行う。計算は3次元のもの¹⁸と同様に行えるが、次元の違いのためクーロン相互作用は e^2/k でなく e^2/k で表わされる。基底状態のエネルギー E_0 は励起子の結合エネルギー R_s^* を単位として

$$E_0 = E_{kin} + E_{ex} = \frac{1}{r_s^2} - \frac{1.20}{r_s} \quad (2.2-1)$$

と書ける。ただし、 r_s は励起子のボア半径 a_0^* で規格化したキャリア間の平均距離で、キャリア面密度 n を用いて

$$\pi(a_0^* r_s)^2 = \frac{1}{n} \quad (2.2-2)$$

で表わせる。基底状態のエネルギー(2.2-1)は3次元の表式 $E_0 = 2.21/r_s^2 - 0.916/r_s$ と同じ形だがキャリア密度に対する依存性が異なっている。つまり、3次元では $1/r_s$ はキャリア密度の $1/3$ 乗に比例するが、2次元ではキャリア密度の $1/2$ 乗に比例する。交換相互作用による基底状態のエネルギーの低下は絶対0度では化学ポテンシャル μ とフェルミエネルギー E_F を使って

$$\Delta E_g = \mu - E_F \quad (2.2-3)$$

と書ける。ただし、化学ポテンシャルとフェルミエネルギーは次のように定義される：

$$\mu = \frac{\partial(nE_0)}{\partial n} \quad (2.2-4)$$

$$E_F = \frac{2}{r_s}$$

式(2.2-1)、(2.2-3)、(2.2-4)を用いると基底状態のエネルギーの低下は

$$\Delta E_g = -1.50 E_{ex} \quad (2.2-5)$$

である。キャリア注入による半導体のバンドギャップの減少(バンドギャップシュリンクエージ)はキャリア間の相互作用で電子と正孔の基底状態のエネルギーが低下するためである。例として、GaAsの物性定数を使うとバンドギャップシュリンクエージはエネルギーの単位をeV、キャリア密度の単位を cm^{-2} として

$$\Delta E_g = -1.8 \times 10^{-8} (n^{1/2} + p^{1/2}) \quad (2.2-6)$$

で与えられる。交換エネルギーの温度依存性を無視すると、式(2.2-6)は有限温度でも用いることができる。2次元キャリアによるバンドギャップシュリンクエージは交換相互作用だけを考えたとき、キャリア密度の $1/2$ 乗に比例する。3次元キャリアではよく知られているようにバンドギャップシュリンクエージはキャリア密度の $1/3$ 乗に比例する。

樽茶らの実験¹⁹によると(図2.2-1)、GaAs/AlGaAs量子井戸レーザにおけるバンドギャップの低下はキャリア密度が 10^{12} cm^{-2} より小さいときほぼキャリア密度の $1/2$ 乗に比例する。これは、2次元的な取扱いがよいことを示唆している。キャリア密度が大きくなるとキャリア密度に対する依存性は $1/3$ 乗に近づく。樽茶らは、彼らの系を異方性の強い3次元系として解析し、 $1/2.6$ 乗に比例すると結論している。しかし、これはむしろキャリアの高次サブレベルや連続準位への分布が重要になり、キャリアが純粋な2次元系からずれていることが影響しているためだと解釈すべきである。バンドギャップシュリンクエージについては第4章で詳しく検討する。

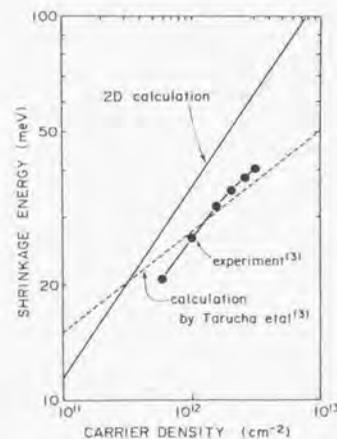


図 2.2-1 量子井戸レーザにおけるキャリア注入によるバンドギャップシュリンクエージ。実線は2次元キャリアに対して交換相互作用だけを考えたとき、破線は異方性の強い3次元キャリアに対する計算結果、黒丸は実験結果を示す。

2.3. 密度汎関数理論

半導体が光学利得を持つ程度に励起されている場合、室温では高次サブバンドや連続準位へキャリアが分布する。このとき、量子井戸中のキャリアは一様な 2 次元系とみなすことはできず、空間的分布が重要となる。電子と正孔の空間的分布の違いから生じる空間電荷ポテンシャルとキャリア間の交換相関相互作用を統一的に取扱うために本節では局所密度汎関数理論(LDA)¹⁸を量子井戸の電子正孔系に適用する。

ここでは、バンドギャップが比較的大きな材料($E_g \geq 1$ eV)を考えているから、電子と正孔の運動は分離できるものとする。このため、電子に対するシュレディンガー方程式は

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e^{(i)}} \frac{d^2}{dz^2} + U^{(i)} + V_e(z) \right] \varphi_n^{(i)}(z) = \varepsilon_n \varphi_n^{(i)}(z) \quad i=1, \dots, N \quad (2.3-1)$$

のようになる。ここで、 $m_e^{(i)}$ は i 番目の層における電子の有効質量、 $U^{(i)}$ は伝導帯の Γ 点のエネルギー、 $V_e(z)$ は電子にたいするポテンシャルである。このシュレディンガー方程式を各層の境界 $z=z_i$ で

$$\begin{aligned} \varphi_n^{(i)}(z_i) &= \varphi_n^{(i+1)}(z_i) \\ \frac{1}{m_e^{(i)}} \frac{d}{dz} \varphi_n^{(i)}(z_i) &= \frac{1}{m_e^{(i+1)}} \frac{d}{dz} \varphi_n^{(i+1)}(z_i) \\ \varphi_n^{(i)}(z_0) &= \varphi_n^{(N)}(z_N) = 0 \end{aligned} \quad (2.3-2)$$

なる条件を満たすように解く。

一方、正孔に対するシュレディンガー方程式はライトホール、ヘビーホール、スピン-オービットスプリッティングバンドの 6 つの波動関数を基底としたベクトルに対する方程式で、

$$\left[H_{LK}^{(i)}(\mathbf{k}, -i\hbar(d/dz)) + V_v(z) I \right] \mathbf{f}_{n,\mathbf{k}}^{(i)}(z) = \varepsilon_{n,\mathbf{k}} \mathbf{f}_{n,\mathbf{k}}^{(i)}(z) \quad (2.3-3)$$

となる¹⁹。ここで、 $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ 、また I は単位行列である。境界条件はハミルトニアン H_{LK} を

$$H_{LK} = -A \frac{d^2}{dz^2} - iB \frac{d}{dz} + C \quad (2.3-4)$$

の形で書いたとき

$$\begin{aligned} \mathbf{f}_{n,\mathbf{k}}^{(i)}(z_i) &= \mathbf{f}_{n,\mathbf{k}}^{(i+1)}(z_i) \\ \left[A^{(i)} \frac{d}{dz} + iB^{(i)} \right] \mathbf{f}_{n,\mathbf{k}}^{(i)}(z_i) &= \left[A^{(i+1)} \frac{d}{dz} + iB^{(i+1)} \right] \mathbf{f}_{n,\mathbf{k}}^{(i+1)}(z_i) \\ \mathbf{f}_{n,\mathbf{k}}^{(i)}(z_0) &= \mathbf{f}_{n,\mathbf{k}}^{(N)}(z_N) = 0 \end{aligned} \quad (2.3-5)$$

で与えられる¹⁹。Luttinger-Kohn ハミルトニアン²⁰ H_{LK} は 6×6 の行列でその具体的な形は付録に示す。このハミルトニアンには歪みによるレベルの変化やカップリングを容易に取り入れることができる²¹。従来の解析ではハミルトニアンにスピン-オービットスプリッティングバンドとのカップリングを無視した 4×4 行列を用いることが多かったが、赤色光レーザの材料である GaInP/AlGaInP 量子井戸ではスピン-オービットスプリッティングが数十 meV と小さいため、これを無視できない。

キャリア間の相互作用は局所密度近似の範囲ではポテンシャル $V_e(z)$ を

$$V_e(z) = V_{e,sp}(z) + V_{e,h}(z) + V_{e,ex}(z) \quad \alpha = e, h \quad (2.3-6)$$

で置き換えて方程式を Kohn-Sham 方程式¹⁸と見なすことで取り入れることができる。ただし、 $V_{ex}(z)$ は外部ポテンシャル、 $V_h(z)$ は空間電荷ポテンシャル、 $V_w(z)$ は交換相関相互作用ポテンシャルである。 $V_h(z) + V_w(z)$ がキャリアに働く付加的な有効ポテンシャルとなる。空間電荷ポテンシャルは局所的なキャリア密度 $n(z)$ によって

$$\begin{aligned} V_{e,h}(z) &= -\frac{4\pi e^2}{\varepsilon_0} \int_{z_0}^z dz' \int_{z_0}^{z'} dz'' (n_e(z'') - n_h(z'')) \\ V_{h,h}(z) &= -V_{e,h}(z) \end{aligned} \quad (2.3-7)$$

と表される。ここでは、界面における誘電率の不連続は無視する。なぜなら、ここで考えている InGaAs/InGaAsP や GaInP/AlGaInP の量子井戸では誘電率の不連続は 10% かそれ以下で鏡像電荷によるポテンシャルは直接のクーロンポテンシャルに比べて小さいからである。交換相関相互作用ポテンシャルは交換相関エネルギー汎関数 $E_{ex}[n_e, n_h]$ によって

$$V_{e,xc}(z) = \frac{\delta E_{xc}[n_e, n_h]}{\delta n_e(z)} \quad (2.3-8)$$

で表わされる。一般に、 $E_{xc}[n_e, n_h]$ はキャリア密度の未知の汎関数である。交換相関エネルギーは1成分系ではLDAによって均一系のものに置き換えられる²¹。LDAを2成分に拡張するときも交換相関エネルギーを均一系のもので書き表せれば都合が良い。しかし、2成分系では $E_{xc}[n_e, n_h]$ は $n_e=n_h=n$ (中性電子正孔プラズマ)と $n_{e(h)} \rightarrow 0$ (正孔(電子)ガス中の1電子(正孔))という2つの極限でのみ1粒子あたりのエネルギーで書けることが知られている²²。2成分系の交換相関エネルギーは中性電子正孔プラズマの極限では

$$E_{xc} = \int dz n(z) \varepsilon_{xc}(n(z)) \quad (2.3-9)$$

(正孔(電子)ガス中の1電子(正孔))の極限では

$$E_{xc} = \int dz n_{e(h)}(z) \varepsilon_{xc}(n_{e(h)}(z)) \quad (2.3-10)$$

で表わされる。一般の場合の形は知られていないがこの2つの極限の間であると考えよう。BoronskiとNieminen²³はこの考えに基づいた $E_{xc}[n_e, n_h]$ の内挿式を提案している。ここでは、簡単のため単位面積当たりの交換相関エネルギーを一様で中性な電子正孔プラズマの1電子-正孔あたりの交換相関エネルギー ε_{xc} を用いて次のように表わす²⁴。

$$E_{xc}[n_e, n_h] = \frac{1}{2} \int dz [n_e(z) \varepsilon_{xc}(n_e(z)) + n_h(z) \varepsilon_{xc}(n_h(z))] \quad (2.3-11)$$

この近似は電子と正孔の密度がほぼ等しいとき(局所的電荷中性)正しい。ここで考えているような系では局所的電荷中性が必ずしも満たされないが、それでも式(2.3-11)は良い近似となる。このことは以下のように正当化される。タイプ1の量子井戸では電子と正孔はともに井戸に閉じ込められるから井戸の部分のキャリア密度は大きく、電子密度と正孔密度の差は小さい(等しくはない)。キャリア密度が大きい電子正孔系では電子-正孔の相関エネルギーは小さく、電子と正孔のそれぞれに対する交換相関エネルギーはほぼ等しく波数に依存しないことが知られている²⁵。そこで、交換相関エネルギーに対する電子と正孔の寄与は互いに独立であるとして、電子

と正孔の密度の違いは重要でない。一方、バリア層ではキャリア密度そのものが小さいので交換相関相互作用は重要でない。そのためどのような近似をつかっても結果には大きな影響はない。厳密に言えばバリア層では正孔の密度が電子の密度に比べて小さいのでこの近似は正孔の交換相関エネルギーを過小評価する。このことはタイプII量子井戸やドーピングされた構造では重要となり、このようなときにはより正確な内挿式を用いるべきである。我々は前にも述べたようにタイプI量子井戸を考えているから、式(2.3-11)で ε_{xc} にelectron-hole liquidについてパラメタライズされた表式²⁶

$$\varepsilon_{xc}(r_s) = \frac{a + br_s}{c + dr_s + r_s^2} Ry \quad (2.3-12)$$

を用いることにする。ただし、 $a=4.8316$, $b=5.0879$, $c=0.0152$, $d=3.0426$ 。また、 Ry はエキシトンの結合エネルギー $m^*e^4/2\epsilon_0^2\hbar^2$ である。ここで r_s は電子と正孔の各々について

$$\frac{4}{3} \pi r_s^3 = n_e(z)^{-1} \quad \alpha = e, h \quad (2.3-13)$$

で定義される。ただし、エキシトンの還元質量を量子井戸層を構成する半導体のバルクにおける有効質量を用いて $(m^*)^{-1} = (m_e^*)^{-1} + (m_h^*)^{-1}$ とする。以上の近似については後で内挿式と数値的に比較する。

さて、交換相関エネルギーは電子と正孔の有効質量の比やバンドの数に対してuniversalな性質をもつ²⁵から全ての電子が同等に交換相関エネルギーに寄与する。そこで、電子密度として井戸に閉じ込められているものだけでなく連続準位にある電子やX点に分布する電子も含めた全電子密度をとる。

$$n_e(z) = \sum_{n,k} |\varphi_n(z)|^2 f(\varepsilon_{n,k}) + \int \rho_V(\varepsilon) f(\varepsilon + U^{(V)} + V_e(z)) d\varepsilon + \int \rho_X(\varepsilon) f(\varepsilon + U_X^{(V)} + V_e(z)) d\varepsilon \quad (2.3-14)$$

ここで、第1項は井戸に束縛された電子の密度、第2項はΓ点付近の連続準位に分布する電子の密度で積分の下限は $V_e = U^{(V)} + V_e(z_0)$ で定義されている。また、第3項はX点付近の連続準位に分布する電子の密度である。ただし、 $f(\varepsilon)$ はフェルミ分布関数で、 ε_e を擬フェルミ準位として

$$f(\varepsilon) = \frac{1}{1 + \exp[(\varepsilon - \varepsilon_F)/k_B T]} \quad (2.3-15)$$

で定義される。また、 ρ_Γ と ρ_X はそれぞれ、 Γ 点とX点における3次元電子の状態密度で、Density-of-states massを m^* として $\rho(\varepsilon) = (2\pi)^{-3} (2m^*/\hbar^2)^{3/2} \varepsilon^{1/2}$ で与えられる。井戸に束縛された電子のエネルギーは、電子の有効質量に波動関数の広がり考慮した平均値を用いて計算する。

$$\begin{aligned} \varepsilon_{n,k} &= \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n^*} \\ (m_n^*)^{-1} &= \int dz (m_n^*)^{-1} |\varphi_n(z)|^2 \end{aligned} \quad (2.3-16)$$

正孔についてもライトホール、ヘビーホール、スピナーオービットスプリッティングバンドを区別せず全正孔密度を用いる。

$$n_h(z) = \sum_{n,k} f_{n,k}(z) f(\varepsilon_{n,k}) \quad (2.3-17)$$

ただし、正孔の有効質量は大きく、連続準位への正孔の分布は無視できる。擬フェルミ準位は量子井戸全体では電荷中性条件が成り立つことから積層方向について積分した全電子密度と全正孔密度が注入されたキャリアの面密度 n_n に等しくなるように決める。

$$\int n_n(z) dz = \int n_h(z) dz = n_n \quad (2.3-18)$$

ところで、Kohn-Sham 方程式はもともと温度0度するとき全エネルギーが極小となるように導かれたものである。有限温度では全エネルギーではなく自由エネルギーを極小にするべきである。しかし、ここでは簡単のためエントロピーの項を無視して、有限温度でも式(2.3-1)と(2.3-3)を用いる。エントロピー項を落とすことの正当性は明らかではないが、これまで報告されたLDAの結果^{12,26,27}(これらもエントロピー項を無視している)から見るとエントロピー項は重要ではないようである。また、交換相関エネルギーは温度に陽に依存せず、温度によるキャリアの各準位の占有確率の変化に伴うキャリアの空間分布の変化だけを考慮すればよいことが示されている^{27,28}。そこで、

ここでも交換相関エネルギー ε_{xc} として式(2.3-12)を用い、絶対0度で計算されたパラメータを使って計算することとする。ただし、式(2.3-13)に用いるキャリア密度を式(2.3-14)-(2.3-18)によって有限温度で求めた。

以上の方程式をセルフコンシステントに解く。実際には式(2.3-6)-(2.3-13)で求められたポテンシャルを使ってSchrodinger方程式(2.3-1), (2.3-3)を解き、得られた波動関数からポテンシャルを計算し、もとのポテンシャルに一致したところでループをぬける。

さて、前にも述べたように多体効果を取り入れるのに、universalな局所密度ポテンシャルを使って局所的な電荷中性の破れ、バンド構造や温度の影響を無視した。この近似は前節に示したように悪い近似ではないが、これらの影響を取り込むことが望ましいのも確かである。LDAで求めたセルフコンシステントな波動関数は真の波動関数の良い近似となっているからこれを使ってグリーン関数を作り、多体効果による自己エネルギーを計算する。この手法はGW近似^{29,30,31,32}と呼ばれ、LDAの解に対する改良を与えることが期待できる。自己エネルギー $\Sigma(\mathbf{k}, E)$ はグリーン関数 $G(\mathbf{k}; z, z'; E)$ と遮蔽されたクーロンポテンシャル $W(\mathbf{q}; z, z'; E)$ によって次のように表わされる。

$$\Sigma(\mathbf{k}; z, z'; E) = \frac{i}{4\pi} \sum_{\mathbf{k}'} \int_{-\infty}^{\infty} dE' \exp[-i\delta E'] W(\mathbf{k} - \mathbf{k}'; z, z'; E') G(\mathbf{k}'; z, z'; E - E') \quad (2.3-19)$$

電子と正孔のグリーン関数をLDAのセルフコンシステントな波動関数 $\varphi_n(z)$, $f_{n,k}(z)$ によって次のように近似する。

$$\begin{aligned} G_e(\mathbf{k}; z, z'; E) &= \sum_n \varphi_n^*(z') \varphi_n(z) \left[\frac{1 - f_{n,k}}{E - \varepsilon_{n,k} + i\delta} + \frac{f_{n,k}}{E - \varepsilon_{n,k} - i\delta} \right] \\ G_h(\mathbf{k}; z, z'; E) &= \sum_n (f_{n,k}^*(z') \cdot f_{n,k}(z)) \left[\frac{1 - f_{n,k}}{E - \varepsilon_{n,k} + i\delta} + \frac{f_{n,k}}{E - \varepsilon_{n,k} - i\delta} \right] \end{aligned} \quad (2.3-20)$$

ただし、フェルミ分布関数 $f(\varepsilon_{n,k})$ を $f_{n,k}$ と略記した。また、遮蔽されたクーロンポテンシャルは擬2次元系では

$$W(\mathbf{q}; z, z'; E) = \frac{2\pi e^2}{\varepsilon_{ij} q} \frac{1}{e(\mathbf{q}, E)} \exp[-q|z - z'|] \quad (2.3-21)$$

となる。ここでは誘電関数にsingle plasmon pole近似³³

$$\varepsilon^{-1}(q, E) = \varepsilon_0^{-1} \left[1 + \frac{\hbar^2 \omega_p^2}{(E - i\delta)^2 - \hbar^2 \omega_q^2} \right] \quad (2.3-22)$$

を用いる。ただし、

$$\begin{aligned} \omega_p^2 &= \frac{2\pi e^2 q}{\varepsilon_0} \sum_{n, \mathbf{k}} \frac{f_{n, \mathbf{k}}}{m_n^*} \\ \omega_q^2 &= \omega_p^2 \left(1 + \frac{q}{\kappa} \right) + \frac{q^4}{16} \sum_n \frac{1}{m_n^*} \\ \kappa &= \frac{2\pi e^2}{\varepsilon_0} \sum_n \frac{m_n^*}{\pi \hbar^2} f_{n, \mathbf{k}_0} \end{aligned} \quad (2.3-23)$$

有効質量 m_n^* は各バンドの底 $\mathbf{k}=\mathbf{k}_0$ での値である。さらに、Static な極限 $E \rightarrow 0$ をとると、自己エネルギーは Coulomb Hole part と Screened Exchange part の2つの部分に別れる(COHSEX)^{30,31}

$$\begin{aligned} \Sigma &= \Sigma_{\text{COH}} + \Sigma_{\text{SEX}} \\ \Sigma_{\text{SEX}} &= - \sum_{n, \mathbf{k}'} \Phi_{n, \mathbf{k}'}(z, z') f_{n, \mathbf{k}} W(\mathbf{k} - \mathbf{k}'; z, z'; E=0) \\ \Sigma_{\text{COH}} &= \frac{1}{2} \delta(z - z') \sum_{\mathbf{k}'} \left[W(\mathbf{k} - \mathbf{k}'; z, z'; E=0) - \frac{2\pi e^2}{\varepsilon_0 q} \exp[-q|z - z'|] \right] \end{aligned} \quad (2.3-24)$$

ここで、

$$\Phi_{n, \mathbf{k}}(z, z') = \begin{pmatrix} \varphi_{n, \mathbf{k}}^*(z') \varphi_{n, \mathbf{k}}(z) \\ \mathbf{f}_{n, \mathbf{k}}^*(z') \cdot \mathbf{f}_{n, \mathbf{k}}(z) \end{pmatrix} \quad (2.3-25)$$

である。自己エネルギーの補正を1次の摂動で求める。

$$\begin{aligned} \Delta \varepsilon_{n, \mathbf{k}} &= \langle n, \mathbf{k} | \Sigma - V_n | n, \mathbf{k} \rangle \\ &= \sum_n V_n(q) \left[(\varepsilon^{-1}(q, 0) - \varepsilon_0^{-1}) - \varepsilon^{-1}(q, 0) f_{n, \mathbf{k}-\mathbf{q}} \right] - \int V_n(z) \Phi_{n, \mathbf{k}}(z, z) dz \end{aligned} \quad (2.3-26)$$

ただし、擬2次元系のクーロン相互作用は

$$V_n(q) = \frac{2\pi e^2}{\varepsilon_0 q} \iint \exp[-q|z - z'|] |\Phi_{n, \mathbf{k}}(z, z')|^2 dz dz' \quad (2.3-27)$$

である。自己エネルギーを補正した後のエネルギーは $\varepsilon_{n, \mathbf{k}} + \Delta \varepsilon_{n, \mathbf{k}}$ で与えられる。

2.4. 計算結果

ここでは、量子井戸の電子状態を具体的に計算する。そして、ハートリー近似を用いたときの結果と比較して密度汎関数理論の有効性を示す。計算の方法は前節に述べた通りだが具体的に図 2.4-1 に示したフローチャートで説明する。

計算への入力には層構造と各層の半導体の材料パラメータである。必要な物質定数は、電子の有効質量、価電子帯の Luttinger パラメータ、伝導帯、価電子帯、スピンオービットスプリットオフ帯の Γ 点のエネルギーである。基板と格子定数が異なる場合には歪の大きさと弾性定数や deformation potential も必要となる。これらを使ってキャリアがないときのハミルトニアンを求めておく。

量子井戸の電子状態を計算するに当たってまず波動関数の初期推定を行うために Γ 点での有効質量を使って波動関数とサブバンドエネルギーをシュレディンガー方程式を解いて求める。これには各区間における波動関数を2つの指数関数の線形結合で表し、転送行列を使って両端での境界条件を満たすようにエネルギーを決める。

次に波数が有限のときの解を求める。この時はシュレディンガー方程式を直接解かず、ハミルトニアン期待値が最小になるように波動関数を最適化する。各区間の波動関数を10個の直交多項式(Legendre polynomial)で展開して、各サブバンドの波動関数が境界条件(2.3-2)、(2.3-5)と直交規格化条件を満たしてエネルギーを最小とするように展開係数を定めた。展開に用いる直交多項式の数を増やすと正確になるが計算量も増大する。ここではこの兼ね合いで10個の直交多項式を用いた。境界条件の第3式に示されている通り波動関数はバリア層の端で0になるとした。境界条件(2.3-2)と(2.3-5)も展開係数のベクトルとある定数ベクトルとの内積が0になるという形にかけられるので、波動関数の直交規格化条件といっしょに Gram-Schmidt 法で直交化できる。波動関数の最適化には共役勾配法を使った。この方法はより大規模な第一原理計算でよく用いられている³²。キャリアの波数は第1 Brillouin zone の20%までを40点に分割して各点でのエネルギーと波動関数を計算した。波数の分割には Gauss-Legendre 積分での区分点を用いた。分割数をこれより増やしても積分の値は1%程度しか変化しない。波数の方向は初め(100)方向と(110)方向について行ったが分散関係に大きな差は見

られないので(100)方向の結果だけを使うことにした。このことにより演算時間がかなり短縮できる。

このようにして得られた波動関数とサブバンドエネルギーから式(2.4-1)と式(2.4-2)によりキャリアの空間分布を計算し、式(2.4-3)で静電ポテンシャルを式(2.4-4)-(2.4-5)で交換相関ポテンシャルを求める。これらのポテンシャルを用いて再び波動関数とサブバンドエネルギーを計算する。ここから得られたポテンシャルと1つ前のポテンシャルとの差が十分小さくなったところでループを抜ける。

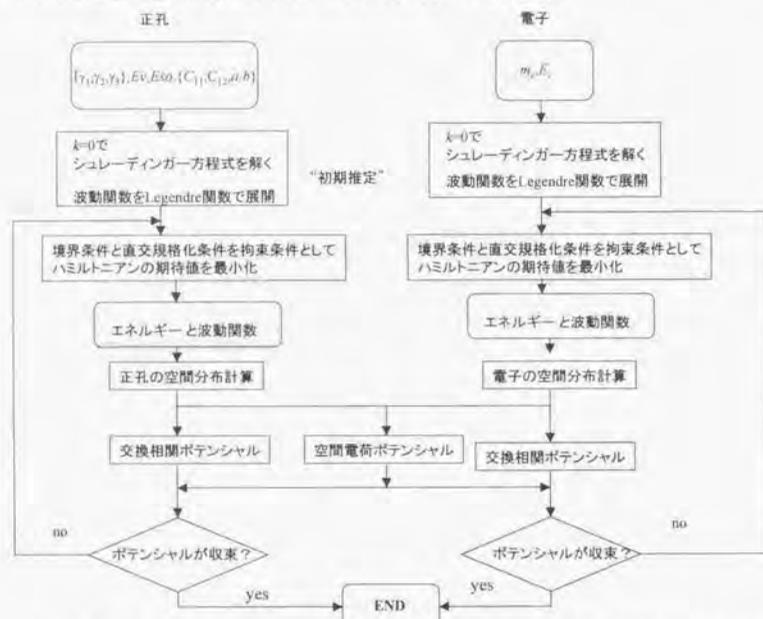


図 2.4-1 セルフコンシステントなエネルギーと波動関数計算のフローチャート

例として GaAs 基板上の $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}/(\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6})_0.5\text{In}_{0.5}\text{P}$ 量子井戸について計算する。この材料系は可視光レーザーの活性層に用いられているものである。用いた物質定数を 4.2 節の表 1 に示す⁹⁾。また、計算は井戸層の厚さ 5 nm の単一量子井戸について行った。バリア層の厚さは 15 nm とした。この系では価電子帯不連続が 150 meV あるのに対して伝導帯不連続は 100 meV と小さく、また伝導帯の X 点と Γ 点のエネルギー差も 200-300 meV しかない。このため、井戸に束縛されていない連続状態の電子が空間電荷ポテンシャルに大きな影響を与える。図 2.4-2 は温度 300 K、キャリア密度 $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ のとき、セルフコンシステントに求めた電子と正孔にたいするポテンシャルである。実

際に働くポテンシャルは材料のバンド不連続に起因するポテンシャルにこれを加えたものである。付加されるポテンシャルは前に述べたように電子と正孔の空間的な分布の差から生じる空間電荷効果による空間電荷ポテンシャルと多体効果による交換相互作用ポテンシャルからなる。図 2.4-2 で三角の点は静電ポテンシャルだけを考慮して求めたセルフコンシステントなポテンシャル (ハートリー近似) であり、四角の点は両方の寄与を考慮して求めたセルフコンシステントなポテンシャルである。有効質量の大きい正孔のほうが井戸により強く局在するため井戸付近では電子にたいする引力、正孔にたいする斥力の静電ポテンシャルが働く。一方、交換相関相互作用はキャリア密度が大きいところで強くなるから電子と正孔の両方に対して井戸のところで大きな引力となる。このため、電子にたいしては井戸のところで 2 つのポテンシャルが強め合って大きな引力を与えるが、正孔にたいしてはポテンシャルが打ち消しあうため付加されるポテンシャルは小さい。電子に対して付加されるポテンシャルの深さは 45 meV にも達する。このため、図 2.4-3 に示すように電子は付加的なポテンシャルを考えないときに比べて井戸に局在するようになる。局在の程度はハートリー近似のときよりもすべての相互作用を入れたときのほうが著しい。一方、正孔の分布はハートリー近似では斥力の静電ポテンシャルのため井戸に局在するキャリア密度が小さくなるが、すべての相互作用を入れると静電ポテンシャルが交換相関ポテンシャルである程度打ち消されるため逆に井戸に局在するようになる。いずれにせよ、この例では正孔にたいするバンド不連続ポテンシャルが大きいいため、正孔の分布は大きく変化しない。正孔にたいするバンド不連続ポテンシャルが小さい系ではこの差は大きい。ここでは正孔の連続状態への分布を無視したがこの事による正孔の分布の誤差は高々 2% である。

図 2.4-4 は正孔のサブバンド構造である。サブバンドは Γ 点 ($k=0$) で支配的なブロッホ関数により、(hh1, hh2, lh1, lh2, SO1, ...) とラベル付けした。スピンオービットスプリッティングバンドが 4 番目のサブバンドに現れている。正孔の分散関係はハミルトニアン非対角項のため波数が大きくなるにつれて放物線からずれていく。非対角項は格子整合系では $k=0$ で消える。歪量子井戸のときは軽い正孔バンドとスピンオービットスプリッティングバンドとの間のハミルトニアン非対角要素が $k=0$ でも 0 にならないから放物線バンドとのずれが大きくなる。分散関係は $k=0$ でも放物線バンドとエネルギーの値が一致していないが、これは自己エネルギー補正の違いによるものである。バンドの形が異なれば自己エネルギー補正も異なる。自己エネルギー補正の大きさを図 2.4-5 に示す。補正の大きさは数 meV で電子のほうが大きい。正孔の第 4 サブバンド (SO1) を除きエネルギーを下げる方向であり、波数が大きくなるにつれて補正エネルギーが正の向きに動く。正孔の第 4 サブバンドは図 2.4-4 のように $k=0$ に極小点があることが自己エネルギー補正の波数依存性の違いをもたらしているものと思われる。自己エネルギー補正はキャリア密度にも依存し、キャリア密度が大きいほど補正が負から正に向かう。

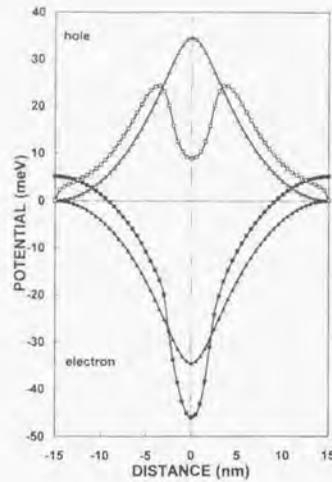


図 2.4.2 電子と正孔に働くセルフコンシステントに求めた付加ポテンシャル。塗りつぶしは電子に、白抜きは正孔に対するポテンシャルを示す。三角はハートリー近似、四角は交換相関相互作用まで含めて計算したもの。

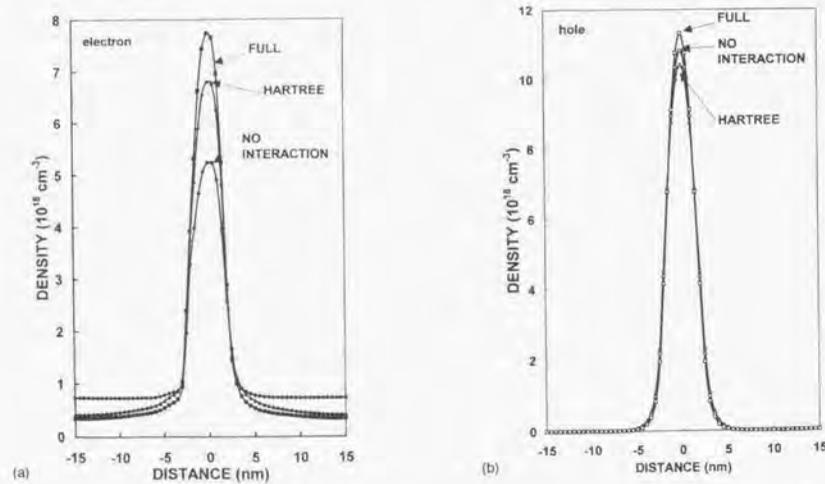


図 2.4.3 セルフコンシステントに計算した電子(a)と正孔(b)の空間分布。丸は相互作用がないとき、三角はハートリー近似、四角は交換相関相互作用まで含めて計算したもの。

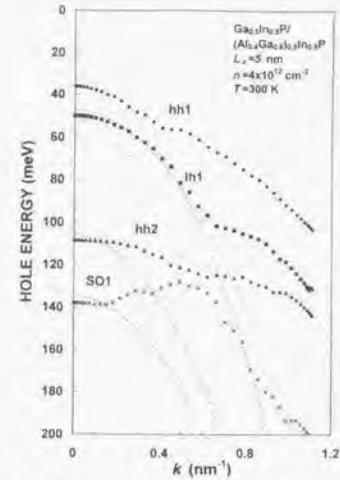


図 2.4.4 井戸幅 5 nm $\text{Ga}_{0.3}\text{In}_{0.5}\text{P}/(\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6})_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}$ 量子井戸のサブバンド構造。温度 300 K、キャリア密度 $4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ のときについて計算している。サブバンドは Γ 点 ($k=0$) で支配的なブロッホ関数によりラベル付けした。hh1: 重い正孔の第1サブバンド, lh1: 軽い正孔の第1サブバンド, hh2: 重い正孔の第2サブバンド, SO1: スピンオービットスプリッティング正孔の第1サブバンド。

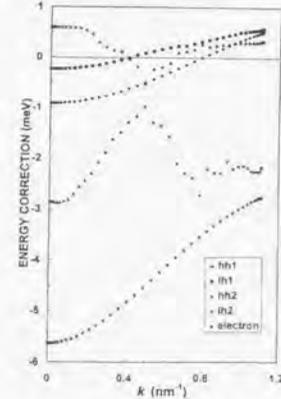


図 2.4.5 波数の関数として表わした自己エネルギー補正の大きさ。図中、ひし形: 重い正孔の第1サブバンド、四角: 軽い正孔の第1サブバンド、三角: 重い正孔の第2サブバンド、クロス: スピンオービットスプリッティング正孔の第1サブバンド、星: 電子のサブバンド。

2.5. 考察

まず、交換相関ポテンシャルについて行った近似の正当性を検討しよう。図 2.5-1 は今回の計算で用いた Vashishta and Kalia²⁵ の交換相関ポテンシャル $V_{XC}^{(VK)}$ と Boronski and Nieminen²³ による内挿式から求めた交換相関ポテンシャル $V_{XC}^{(BK)}$ との相対誤差を示している。誤差はキャリア密度 $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ のときについて計算した。電子と正孔に対するポテンシャルの誤差は量子井戸の部分でともに 20% 以下であった。また、量子井戸の領域では電子-正孔間の相関相互作用は電子-電子間や正孔-正孔間の相関相互作用よりかなり小さいことを数値的に確かめることができた。この領域における誤差は 1 成分プラズマに対する交換相関ポテンシャルの計算方法の違いからきている。バリア層の部分では相対誤差は大きい。交換相関ポテンシャル自体が小さいため、誤差の絶対値は小さい；電子にたいしては最大で 1.7 meV、正孔に対しては最大で 6.7 meV である。これらの値はバンド不連続(電子に対し 100 meV、正孔に対し 150 meV) に比べて十分小さい。井戸に束縛されたキャリアの波動関数の振幅はバリア層では小さいので、交換相関ポテンシャルの誤差による補正は無視できる。このように交換相関ポテンシャルは空間電荷ポテンシャルとは違い、局所的な電荷中性の破れの影響を大きく受けない。これは、交換相関ポテンシャルが局所的なキャリア密度で決り、電子と正孔の局所的な密度の差で決る空間電荷ポテンシャルとは異なるからである。

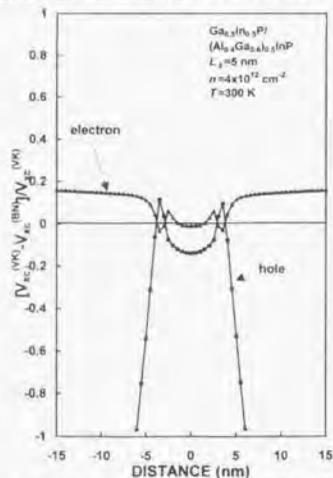


図 2.5-1 今回用いた交換相関ポテンシャル($V_{XC}^{(VK)}$)²⁵ の内挿式($V_{XC}^{(BK)}$)²³ に対する誤差。三角：電子に対するポテンシャル、四角：正孔に対するポテンシャル。

次に空間電荷だけを考えたハートリー近似について検討する。空間電荷ポテンシャルは前にも述べたように電子と正孔の空間分布の違いから生じる。もし、電子と正孔の有効質量とバンド不連続が等しければ、電子と正孔の空間分布は等しくなり空間電荷ポテンシャルは生じない。ここで考えている系では電子の有効質量は正孔より小さく、閉じ込められる井戸も浅い。そのため、電子の空間的な広がり正孔より大きく空間電荷ポテンシャルができる。空間電荷ポテンシャルはより強く束縛されているキャリア(この場合正孔)に対しては反発(井戸から離れさせる方向)の、弱く束縛されているキャリア(電子)にたいしては引力(井戸に集める方向)のポテンシャルとなる。これに対し、交換相関ポテンシャルは負で局所的なキャリア密度が大きいほど絶対値が大きくなる。このため、井戸の部分で電子のポテンシャルはさらに深くなり、正孔のポテンシャルも交換相関ポテンシャルが空間電荷ポテンシャルを一部打ち消して深くなる。このため、交換相関ポテンシャルが入ることによって、空間電荷ポテンシャルだけのとき(ハートリー近似)に比べてよりキャリアが井戸の中央に分布する。正しいキャリア分布を求めるためには空間電荷ポテンシャルだけでなく交換相関ポテンシャルも考慮してセルフコンシステントに決めなければならない。これまで行われてきたハートリー近似による計算の結果²⁶は再検討する必要がある。

付加されるポテンシャルである空間電荷ポテンシャルと交換相関ポテンシャルは式(2.3-3)に示すとおり対角的で全ての対角要素が等しい。このため、正孔のサブバンドの曲率は付加ポテンシャルの影響を受けず、エネルギーの値だけが変化する。ただし、付加ポテンシャルによって実効的に井戸の深さが変わるためサブバンドの曲率もわずかに変化する。今回の例のように価電子帯のバンド不連続が大きいときは影響が小さい。また、自己エネルギーの補正によってサブバンドの曲率は若干変化する。

ここまで述べてきたように、正しい電子構造や利得を計算するためには空間電荷効果と多体効果による付加的な有効ポテンシャルをきちんと扱うことが必要である。以下では、多体効果を取り入れるためにこれまで行われてきた方法を検討する。最も簡単なものは多体効果や空間電荷ポテンシャルを考慮せずを得たサブバンドエネルギーに 2 次元系の交換相関相互作用から求めたバンドギャップシュリシゲージを加えるというものである。この方法は空間電荷がまったく考慮されないため不十分である。あるいは、多体効果や空間電荷ポテンシャルを無視して求めた波動関数を使って自己エネルギーを計算してエネルギーを補正することも考えられる。このとき、サブバンドエネルギーを求めるには空間電荷ポテンシャルを含める必要がある。こうして求められたエネルギーの補正は付加的な有効ポテンシャルを摂動として求めたことにあたる。これまでみてきたように空間電荷の影響が大きい GaInP 系の量子井戸で得られた付加的ポテンシャルは 30 meV 以上あり、量子準位と同程度の大きさがあり摂動的な取り扱いは正当化されない。ハートリー近似で求めた波動関数を出発点として交換相関相互作用を摂動ポテンシャルとすることもできるが、交換相関相互作用も小さ

くはなく、空間電荷ポテンシャルを一部打ち消してキャリア（特に正孔）の分布の変化を小さくすることが明らかになった。空間電荷ポテンシャルだけを考慮する近似では電子、正孔の波動関数を正しく求めることができない。結局、こうした摂動的な取扱いはキャリアの井戸への束縛が強く空間電荷の影響が小さい GaAs 系量子井戸などに適用されるべきものである。電子が連続準位にも多く分布するような系では本論文で述べたような空間電荷効果と多体効果の両方をセルフコンシステントに解くことが必要である。

2.6. まとめ

本章では価電子帯のバンドミキシング、空間電荷効果、キャリア間の交換相関相互作用の全てを取り入れて量子井戸の電子状態を密度汎関数法によって計算する手法を示した。この方法を用いて、量子井戸の空間的なキャリア分布やサブバンド構造に対するキャリア多体効果の影響を検討した。これらは量子井戸レーザの特性を求める際の基礎になるものである。本研究により、特にキャリアの井戸からのしみだしが大きい InP 系や GaInP 系の量子井戸では空間電荷による静電ポテンシャルと交換相関ポテンシャルを同時にセルフコンシステントに解かなければ正しい結果が得られないことが示された。キャリアの閉じ込めの強い量子井戸である GaAs/AlGaAs 系では影響は小さい。InP 系や GaInP 系の量子井戸について従来の静電ポテンシャルや交換相関ポテンシャルの一方のみを考慮した計算は訂正する必要がある。このほかタイプ II の量子井戸や幅が広く電気的 2 重層ができる量子井戸では本研究で示した手法は有効であると考えられる。

(付録) Luttinger-Kohn ハミルトニアン

以下では Luttinger-Kohn ハミルトニアンの行列要素を与える。基底となるのは 4 重に縮退した $j=3/2$ 状態と 2 重に縮退した $j=1/2$ のスピンオービットスプリッティングバンドである。他の状態の影響は摂動としてハミルトニアンに取り込まれる。ここでは k -linear 項は無視する。 Γ 点における 6 つの基底は次のように書ける。

$$\begin{aligned} u_1 &= \sqrt{1/6} \left((x+iy)\downarrow - \sqrt{2/3} z\uparrow \right) \\ u_2 &= \sqrt{1/3} \left((x+iy)\downarrow + \sqrt{1/3} z\uparrow \right) \\ u_3 &= \sqrt{1/2} \left((x+iy)\uparrow \right) \\ u_4 &= -\sqrt{1/6} \left((x-iy)\uparrow - \sqrt{2/3} z\downarrow \right) \\ u_5 &= -\sqrt{1/3} \left((x-iy)\uparrow + \sqrt{1/3} z\downarrow \right) \\ u_6 &= \sqrt{1/2} \left((x-iy)\downarrow \right) \end{aligned}$$

この基底では Luttinger-Kohn ハミルトニアンは

$$H_{LK} = \begin{bmatrix} E_{LH} & G_1 & \sqrt{2}G_2 & 0 & -\sqrt{3}G_2 & G_2 \\ & E_{SH} & -G_1 & \sqrt{3}G_2 & 0 & \sqrt{2}G_2 \\ & & E_{MH} & -G_2 & -\sqrt{2}G_2 & 0 \\ & & & E_{LH} & G_1 & -\sqrt{2}G_2 \\ & & & & E_{SH} & -G_1 \\ & & & & & E_{MH} \end{bmatrix}$$

となる。行列の下半分は上半分のエルミート共役となる。対角要素は Luttinger パラメータを用いて

$$\begin{aligned} E_{LH} &= E_{LH}^r + \frac{\hbar^2}{2m} \left[(\gamma_1 - \gamma_2) (k_x^2 + k_y^2) + (\gamma_1 + 2\gamma_2) k_z^2 \right] \\ E_{SH} &= E_{SH}^r + \frac{\hbar^2}{2m} \gamma_1 (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) \\ E_{MH} &= E_{MH}^r + \frac{\hbar^2}{2m} \left[(\gamma_1 + \gamma_2) (k_x^2 + k_y^2) + (\gamma_1 - 2\gamma_2) k_z^2 \right] \end{aligned}$$

と書ける。ここで、 $k_z = -i\partial/\partial z$ と置き換える。 Γ 点における正孔のエネルギーは価電子帯のエネルギー E_v とスピンオービットスプリッティング Δ で

$$\begin{aligned} E_{LH}^r &= -E_v - \Delta/3 \\ E_{SH}^r &= -E_v + 2\Delta/3 \\ E_{MH}^r &= -E_v - \Delta/3 \end{aligned}$$

のように表される。また、非対角要素は

$$\begin{aligned} G_1 &= \frac{\hbar^2}{2m} \sqrt{2}\gamma_2 \left[(k_x^2 + k_y^2) - 2k_z^2 \right] \\ G_2 &= \frac{\hbar^2}{2m} \sqrt{3} \left[\gamma_2 (k_x^2 - k_y^2) - 2i\gamma_1 k_x k_y \right] \\ G_3 &= -\frac{\hbar^2}{2m} \sqrt{6}\gamma_1 k_z (k_x \pm k_y) \end{aligned}$$

である。

文献

- ¹ G. Bastard, *wave mechanics applied to semiconductor heterostructures* (les edition de physique, Les Ulis Cedex, 1988).
- ² D. L. Smith and C. Mailhot, *Rev. Mod. Phys.* **62** (1990) 173, and references here in.
- ³ D. A. Kleinmann and R. C. Miller, *Phys. Rev.* **B32** (1985) 2266.
- ⁴ G. Trankle, H. Leier, A. Forchel, H. Haug, and G. Weimann, *Phys. Rev. Lett.* **58** (1987) 419.
- ⁵ H. Haug and S. W. Koch, *Phys. Rev.* **A39** (1989) 1887.
- ⁶ D. Ahn and S. L. Chuang, *IEEE J. Quantum Electron.* **30** (1994) 350.
- ⁷ D. Ahn and S. L. Chuang, *J. Appl. Phys.* **64** (1988) 6143.
- ⁸ S. Seki and K. Yokoyama, *J. Appl. Phys.* **77** (1995) 5180.
- ⁹ T. Ando, *Phys. Rev.* **B13** (1976) 3468.
- ¹⁰ W.O.G. Schmitt, *Phys. Rev.* **B50** (1994) 15221.
- ¹¹ T. Ando and S. Mori, *J. Phys. Soc. Jpn.* **47** (1979) 1518.
- ¹² G.E.W. Bauer and T. Ando, *Phys. Rev.* **B34** (1986) 1300.
- ¹³ A. Tomita and A. Suzuki, *J. Quantum Electron.* **QE23** (1987) 1155.
- ¹⁴ P. Hawrylak, *Phys. Rev.* **B39** (1989) 6264.
- ¹⁵ C. Kittel, *Quantum Theory of Solids*, (Wiley, NY, 1963) chap. 5.
- ¹⁶ S. Tarucha, H. Kobayashi, T. Horikoshi, and H. Okamoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **23** (1984) 874.
- ¹⁷ A. Tomita, *Phys. Rev.* **B54** (1996) 5609.
- ¹⁸ W. Kohn and L. J. Sham, *Phys. Rev.* **140** (1965) A1133.
- ¹⁹ R. Eppenga, M.F.H. Schuurmans, and S. Colak, *Phys. Rev.* **B36** (1987) 1554.
- ²⁰ J. M. Luttinger and W. Kohn, *Phys. Rev.* **97** (1955) 869.
- ²¹ F.H. Pollack, in *Semiconductors and Semimetals*, edited by T. P. Pearsall (Academic Press, San Diego, CA, 1990), vol. 32.
- ²² A. R. Williams and U. von Barth, in *Theory of the inhomogeneous electron gas*, edited by S. Lundqvist and N.H. March (Plenum, NY, 1983).
- ²³ E. Boronski and R.M. Nieminen, *Phys. Rev.* **B34** (1986) 3820.
- ²⁴ T. M. Rice, in *Solid State Physics*, edited by H. Ehrenreich, F. Seitz and D. Turnbull (Academic Press, NY, 1977), vol. 32, p. 1.
- ²⁵ P. Vashishta and R.K. Kalia, *Phys. Rev.* **B25** (1982) 6492.
- ²⁶ J. C. Ryan and T. L. Reinecke, *Phys. Rev.* **B47** (1993) 9615.
- ²⁷ S. Das Sarma and B. Vinter, *Phys. Rev.* **B26** (1982) 960.
- ²⁸ F. Stern and S. Das Sarma, *Phys. Rev.* **B30** (1984) 840.
- ²⁹ L. Hedin and S. Lundqvist, in *Solid State Physics*, ed. by H. Ehrenreich, F. Seitz, and D. Turnbull (Academic, NY, 1969), vol. 23, p1.
- ³⁰ H. Hedin, *Phys. Rev.* **139** (1965) A796.
- ³¹ M.S. Hybertsen and S.G. Louie, *Phys. Rev.* **B34** (1986) 5390.
- ³² R.W. Godby, M. Schluter, and L.J. Sham, *Phys. Rev.* **B37** (1988) 10159.
- ³³ H. Haug and S. Schmitt-Rink, *J. Opt. Soc. Am.* **B2** (1985) 1135.
- ³⁴ See for review: M.C. Payne, M.P. Teter, D.C. Allan, T.A. Arias, and J.D. Joannopoulos, *Rev. Mod. Phys.* **64** (1992) 1045.
- ³⁵ in *Landolt-Bornstein Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology New Series III 17a*, ed. by O. Madelung (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, NY, 1982) and III 22a

3.量子井戸におけるキャリアと光の相互作用

3.1. はじめに

この章ではキャリアと光の相互作用を考える。第2章では擬平衡状態での量子井戸の電子状態を求めたが本章では擬平衡状態が誘導放出によって変化し、擬平衡状態へ緩和していく様子とキャリア間相互作用の影響を調べる。これによって量子井戸の利得と屈折率の表式が求められる。

半導体の利得スペクトルについてはキャリアのバンド内緩和が重要になるが、それは以下のような事情による。半導体にキャリア緩和がないとき、波数保存則が成り立つ。半導体の利得は同じ波数を持つ電子と正孔が組みになった双極子の寄与の和として表わされ、光のエネルギーと等しい遷移エネルギーを持つ電子-正孔対だけが光とカップルする。つまり、結合状態密度 $\rho(E)$ で分布する2準位原子の集まりとみなすことができる。ところがキャリア間に相互作用があるとエネルギーが異なる電子-正孔対も光と結合できるようになり、利得スペクトルの形が変わる。利得スペクトルの形状は遷移に関わる電子-正孔対のエネルギーの幅を記述する線形状関数によって決められる。この線形状関数を微視的に求めることが本章の目標の一つである。

半導体レーザにおけるキャリアの微視的な運動は従来から密度行列によって表わされ、利得のサイドモードの抑圧などの解析に用いられてきた²³。従来の方程式ではキャリアの緩和は現象論的な緩和時間によって表わされ、線形状関数はローレンツ型になる。このような緩和時間近似はキャリアの散乱がマルコフ的であることを仮定している。即ち、引き続き散乱の間の相関が完全にきれているものとしている。この近似は位相緩和時間より長い時間間隔で考えるときには成立する。しかし、問題とする時間間隔が数十 fs の領域ではこのような近似は成り立たなくなる(散乱の非マルコフ性)。また、離調が大きい場合、フーリエ変換すると明らかのように短時間領域が重要になるから散乱の非マルコフ性が現れる。つまり、線形状関数は離調が大きい裾のところでローレンツ型からずれていく。同様に、光が強くなってラビ周波数が相関時

間程度になると熱浴の運動が光と双極子とのコヒーレントな吸収放出に追従できなくなって非マルコフ性が現れる。山西と李²⁴、および浅田²⁵は微視的なハミルトニアンを使って散乱を計算すると線形状関数がローレンツ型からずれることを指摘した。このような非ローレンツ型の線形状関数を用いると、ローレンツ型の線形状関数を与える低エネルギー側で利得がいったん負になってから高エネルギー側で正になるという非物理的な利得スペクトルの困難が解消される。しかし、彼らは線形状関数から利得を求めたのみで、密度行列方程式のようなキャリアの運動を表わす方程式を導いていない。このため、キャリアの分布の緩和は扱えず、利得の非線形性についての検討もなされていない。本章ではキャリア緩和を表わすハミルトニアンを用いて微視的な密度行列方程式を導く。光のモードが一つであるとき、この方程式は解けて、任意の光強度に対して成り立つ利得の式が得られる。非線形利得はキャリアの分布の緩和と誘導放出でキャリアの分布に穴があく過程(スペクトラルホールバーニング)の競合に支配され、線形状関数はスペクトラルホールバーニングの形と深さを決める。このため、線形状関数は利得飽和において線形の利得のときよりも直接的に観測されるはずである。非線形利得は半導体レーザの高速応答に特に影響することが知られている²⁶が、詳しくは第5章で検討する。

本章の後半では量子井戸の屈折率について考える。レーザの発振波長付近ではバンド間遷移の影響が大きい。長波長帯では自由キャリアによる屈折率もバンド間遷移と同程度になる。本論文では擬2次元自由キャリアの誘電率を計算し導波モードに対する実効的な誘電率(屈折率)の表式を与える。このような自由キャリアの屈折率は波長可変レーザ^{10,11}やキャリア注入型の光スイッチ¹²にとって重要であるばかりでなく、レーザの線幅¹³や高速変調時のチャーピング¹⁴に大きな影響を与える。バンド間遷移に起因する屈折率変化はこれまでも半古典的^{15,16,17}、量子力学的^{18,19}に検討がなされてきている。それに対し、自由キャリアのプラズマ効果は古典的な Drude モデルによる解析^{20,21}が行われてきたのみで、量子井戸レーザにおける制限(量子化)されたキャリア運動が与える影響はほとんど無視されてきた。また、これまで量子井戸レーザの解析ではたがいに独立な量子井戸の擬2次元のキャリアを考えてきたが、ここではSCH層も含めた大きな量子井戸を考える。そうすることにより、井戸層に束縛されたキャリアとバリア層やSCH層にあるキャリアを同じように扱える(バリア層やSCH層にあるキャリアは高次のサブレベルにあることになる)。このような取扱いは例えば波長可変レーザのチューニング層のようにSCH層にあるキャリアの寄与も重要となる場合に有効である。

最後に第2章と第3章の理論の構造をまとめ、本論文で展開された理論の位置づけを明らかにする。

3.2. 射影演算子法による密度行列理論²¹

以下では射影演算子を用いて波数 k 、エネルギー $\hbar\omega$ の電子正孔対の運動を考え、密度行列方程式を微視的なハミルトニアンから導出する。得られた方程式は末松ら²¹が用いたものを拡張した形になる。緩和項は熱浴との相互作用ハミルトニアン²¹の自己相関関数で表わされ、これから、キャリアの分布の緩和の速さ、線形状関数を得ることができる。ここでは、初めにキャリアは擬平衡状態²¹にあつてフェルミ分布をしているとする。このときのキャリアの状態は例えば第 2 章で求められたものになる。これに光とキャリアとの相互作用が加わることにより、キャリアの分布が擬平衡状態からずれる。これを擬平衡状態に戻すようにキャリア間やキャリアと格子の間に散乱²¹が起きる。以下では光があまり強くなく、キャリアの分布のフェルミ分布からのずれは小さいものと仮定する。また、注目している電子正孔対以外のキャリアの分布はフェルミ分布で近似できるものとする。

まず、レーザ媒質のハミルトニアンを与える。簡単のため電子と正孔の 2 バンドモデルを用いる。また、半古典近似を用い、光は古典的な電場として扱う。ハミルトニアン H は物質系のハミルトニアン H_M と光と物質の相互作用ハミルトニアン H_{MR} を用いて、

$$H = H_M + H_{MR} \quad (3.2-1)$$

と書ける。ここで、物質系のハミルトニアン H_M は無摂動ハミルトニアン H_0 と、電子正孔対と熱浴との間の相互作用ハミルトニアン H_m で表わせる：

$$\begin{aligned} H_M &= H_0 + H_m \\ H_0 &= H_c + H_v \end{aligned} \quad (3.2-2)$$

ここで、 H_c は電子正孔系のハミルトニアン、 H_0 は熱浴（格子）のハミルトニアンである。バンド内緩和を与える相互作用ハミルトニアン H_m はキャリア間の相互作用（電子-電子、電子-正孔、正孔-正孔）とキャリアとフォノンの相互作用を含む。ここでは、散乱によるバンド間の緩和は無視する。第 2 章で求めた波動関数系を使うことにより H_c はキャリアの分布が擬平衡状態にある時のキャリア間の相互作用を 1 体近似した平均場も含んで対角化されている。

電子正孔対と光との相互作用は電気双極子遷移のみを考える。光電場を $E(t)\exp[i\omega t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}] + c.c.$ とおくと、光と物質の相互作用ハミルトニアン H_{MR} は

$$H_{MR} = \sum_{\mathbf{k}} \left(\mu_{\mathbf{k}} E(t) a_{\mathbf{k},c}^\dagger a_{\mathbf{k},v} + h.c. \right) \quad (3.2-3)$$

と書ける。ただし、 $\mu_{\mathbf{k}}$ は波数 \mathbf{k} の電子のバンド間遷移の双極子能率、 $a_{\mathbf{k},c}$ と $a_{\mathbf{k},v}$ はそれぞれ伝導帯の電子の生成演算子と価電子帯の電子の消滅演算子である。

電子と正孔は初期状態で各々のバンドの中で擬熱平衡にあるものとする²¹。即ち、

$$\begin{aligned} \langle\langle kc | \rho_0 | k'c \rangle\rangle_{\beta} &= \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} f_c(\epsilon_{\mathbf{k}}) \\ \langle\langle kv | \rho_0 | k'v \rangle\rangle_{\beta} &= \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} f_v(\epsilon_{\mathbf{k}}) \\ \langle\langle kc | \rho_0 | k'v \rangle\rangle_{\beta} &= \langle\langle kv | \rho_0 | k'c \rangle\rangle_{\beta} = 0 \end{aligned} \quad (3.2-4)$$

ここで、 $\langle\langle \dots \rangle\rangle_{\beta}$ は熱浴変数についての平均を表わす。また、 f_c と f_v はそれぞれ伝導帯と価電子帯の電子のフェルミ分布関数である。フェルミレベルはキャリア密度 N から以下の関係を用いて求められる。ただし、活性層は意図的なドーピングはしていないものとする。電荷中性条件から電子の密度と正孔の密度は等しい。

$$N = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} f_c = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} (1 - f_v) \quad (3.2-5)$$

我々が興味があるのは波数 \mathbf{k} の電子と正孔の組の運動だからその他の変数を次のような射影演算子によって消去する。

$$\langle\langle ki | P \rho | k'j \rangle\rangle = \delta_{i,j} \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \langle\langle ki | \rho | k'j \rangle\rangle_{\beta} + (1 - \delta_{i,j}) \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \langle\langle ki | \rho | k'j \rangle\rangle_{\beta} \quad (3.2-6)$$

ここで、 i, j は c または v をとる。（超）演算子 P は $P^2 = P$ を満たすから射影演算子である。射影された密度行列の運動方程式を TCL (Time-convolutionless) 形式^{24,25}で展開して書き下す。ここで、摂動ハミルトニアン H_m について意味のある最低次の項（2 次）までとることとする。光と物質の相互作用ハミルトニアン H_{MR} はこの射影演算子で形を変えないことに注意する。

$$P H_{MR} = H_{MR} \quad (3.2-7)$$

ここで、量子力学的リウビル（超）演算子

$$L_i(t)\phi = \frac{1}{\hbar} [\hat{H}_i(t), \phi] \quad (3.2-8)$$

を導入しよう。ただし、 \hbar はディラック定数である。また演算子は相互作用表示

$$\begin{aligned}\bar{\rho}(t) &= \exp[iH_0 t/\hbar] \rho \exp[-iH_0 t/\hbar] \\ \bar{H}_1(t) &= \exp[iH_0 t/\hbar] H_1 \exp[-iH_0 t/\hbar]\end{aligned}$$

(3.2-9)

を用いている。さらに、相互作用ハミルトニアン H_1 の1次の項を0とおく：

$$P(L_{in}(t)) = 0$$

(3.2-10)

これは、1次の項の期待値があらかじめ電子と正孔の1粒子エネルギーと双極子能率に繰り込まれていることにあたる。平衡状態では1次の項は第2章で述べたような密度汎関数法で求められた1粒子キャリアエネルギーである。これからはここで用いる1粒子エネルギーが(擬)平衡状態で求められた値であるとする。この1粒子エネルギーはキャリア密度と温度に依存することを注意しておく。キャリア-キャリア散乱による緩和は1体近似のハミルトニアンと多体のハミルトニアンとの差によって引き起こされる。このような仮定は平衡状態からのずれが小さいときには許される。非平衡状態でも定常状態からのずれが小さいときには定常状態における密度行列を用いて期待値を計算すると同じことがいえる。厳密にはキャリアが平衡状態にないときスクリーニングは平衡状態と同じではない。静的なスクリーニングはバンドの底 $k=0$ のキャリア数で決まるがこれには成り立たない。非平衡の任意のキャリア分布に対する多体効果を考えた1粒子エネルギーの表式を求めるのは今後の課題である(3.6節を参照)。

このようにして得られた、射影された密度行列の運動方程式は

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}(P\bar{\rho}) &= -iL_{MH}(t)P\bar{\rho}(t) - \int_0^t dt' [P(L_{in}(t)L_{in}(t'))]P\bar{\rho}(t) \\ &\quad + i \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' [P(L_{in}(t)L_{in}(t''))L_{MH}(t') - P(L_{in}(t)L_{MH}(t')L_{in}(t''))]P\bar{\rho}(t)\end{aligned}$$

(3.2-11)

と書ける。上の式(3.2-11)の導出では無擾動状態の密度行列が射影演算子の固有状態であること $P\rho = \rho$ を使った。ここで、第1項は光とのコヒーレントな相互作用、第2項は散乱による分布と分極の緩和を表わしている。従来の緩和時間近似(キャリア散乱がマルコフ的)と比較するとバンド内緩和が時間に依存していることがわかる。第2項はキャリア散乱のリウビル(超)演算子 L_{in} の自己相関関数となっている。この相関が速やかに0となるとキャリア散乱はマルコフ的となり、第2項の積分限界を無限大にすることができる。このとき、第2項は時間によらない緩和を与え、従来の密度行列方程式がえられる。第3項はキャリアの散乱を伴う光とのコヒーレント

相互作用を表わし、ラマン散乱などをもたらす。以下の解析ではこの項はとりあえず無視する。

式(3.2-11)の第2項の $|k\rangle, |k'\rangle$ についての行列要素を求める。まず、バンドインデックスについて対角な要素 $\langle kc | \dots | kc \rangle$ と $\langle kv | \dots | kv \rangle$ を計算する。このとき、射影演算子は熱浴の密度行列を用いて

$$PA = \delta_{kk} \langle k | \text{Tr} \rho_B(n) A | k \rangle$$

(3.2-12)

と表わせる。ただし、 A は任意の演算子である。トレースは n で代表させた熱浴の変数についてとる。すると、対角要素として

$$\begin{aligned}\langle k | PL_{in}(t) L_{in}(t') P \bar{\rho} | k \rangle &= \frac{1}{\hbar^2} \sum_k \left[\sum_n \text{Tr} \rho_B(n) \langle k | \bar{H}_{in}(t) | k' n' \rangle \langle k' n' | \bar{H}_{in}(t') | k \rangle + c.c. \right] \bar{\rho}_{kk} \\ &\quad - \sum_n \text{Tr} \rho_B(n') \left[\langle k | \bar{H}_{in}(t) | k' n' \rangle \langle k' n' | \bar{H}_{in}(t') | k n \rangle + c.c. \right] \bar{\rho}_{kk}\end{aligned}$$

(3.2-13)

を得る。ただし、射影された密度行列を

$$\bar{\rho}_{kk} = \langle k | P \bar{\rho} | k \rangle$$

(3.2-14)

と定義する。熱浴が熱平衡にあるグランドカノニカルアンサンブルで表わせるとすると、熱浴の密度行列は

$$\rho_B = \exp \left[-\Psi + \left(\sum_i v_i N_i^B \right) / k_B T \right]$$

(3.2-15)

で表わせる。ここで、 $\exp(\Psi) = \text{Tr} \exp \left[\left(\sum_i v_i N_i^B - E^B \right) / k_B T \right]$ であり、 v_i と N_i^B はそれぞれ、 i 番粒子の化学ポテンシャルと熱浴におけるキャリア数、 E^B と T は熱浴の全エネルギーと温度である。また、 k_B はボルツマン定数である。

問題としている電子正孔系と熱浴を合わせた全体の系の粒子数とエネルギーは系が (k, n) 状態から (k', n') 状態へ遷移する間保存される：

$$\begin{aligned}E + E^B &= E' + E'^B \\ N_i + N_i^B &= N_i' + N_i'^B\end{aligned}$$

(3.2-16)

ここで、添え字 B のついていない変数は問題の電子正孔系のものであることを示す。式(3.2-15)と(3.2-16)をあわせて用いると緩和項の対角要素の熱浴平均(3.2-13)が以下のよう計算できる²⁶。

$$\begin{aligned} & \langle \mathbf{k} | \mathbf{P} [L_m(t) L_m(t')] \mathbf{P} | \mathbf{k} \rangle \\ &= \sum_{\mathbf{k}'} \text{Re}(W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(t, t')) \left\{ \bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - \exp \left[\frac{\sum_i \mu_i (N_i^{t'} - N_i^t) - (E^{t'} - E^t)}{k_B T} \right] \bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \right\} \\ &= \sum_{\mathbf{k}'} \text{Re}(W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(t, t')) \left\{ \bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - \exp \left[\frac{\sum_i \mu_i (N_i^t - N_i^{t'}) - (E^t - E^{t'})}{k_B T} \right] \bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \right\} \\ &= \sum_{\mathbf{k}'} \text{Re}(W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(t, t')) \left\{ \bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - \exp \left[\frac{\sum_i m_i (\varepsilon_i - \mu) - \sum_i m_i' (\varepsilon_i - \mu)}{k_B T} \right] \bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \right\} \\ &= \sum_{\mathbf{k}'} \text{Re}(W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(t, t')) (\bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) / f(\varepsilon_{\mathbf{k}'})) \bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \end{aligned} \quad (3.2-17)$$

ただし、

$$W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(t, t') = \frac{1}{\hbar^2} \sum_n \text{Tr} \rho_n(n) \langle \mathbf{k}, n | \bar{H}_m(t) | \mathbf{k}', n' \rangle \langle \mathbf{k}', n' | \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}, n \rangle \quad (3.2-18)$$

また、 m_i と ε_i は L 番目の粒子の準位の占有数とエネルギーである。式(3.2-17)の変形には粒子がフェルミ統計に従うことを用いた。式(3.2-17)の形は平衡状態への緩和を保証している。つまり、式(3.2-17)の右辺は1粒子密度行列の対角要素 $\bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}}$ がフェルミ分布関数 $f(\varepsilon_{\mathbf{k}})$ に等しくなる消える。キャリアのバンド内緩和は非常に速いから、注目している $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ 以外の行列要素は平衡状態のもので近似する。つまり $\bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}} \approx f(\varepsilon_{\mathbf{k}})$ 。

結局、緩和項の対角要素は

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{k} | \mathbf{P} [L_m(t) L_m(t')] \mathbf{P} | \mathbf{k} \rangle &= \sum_{\mathbf{k}'} \text{Re}(W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(t, t')) (\bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}} - f(\varepsilon_{\mathbf{k}})) \\ &= \left(\left\langle \left\langle \mathbf{k} | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k} \right\rangle \right\rangle_{\mathbf{n}} / \hbar^2 \right) (\bar{\rho}_{\mathbf{k}\mathbf{k}} - f(\varepsilon_{\mathbf{k}})) \end{aligned} \quad (3.2-19)$$

と書くことができる。

次に緩和項の非対角要素を計算する。相互作用ハミルトニアン H_I の電子についての行列要素と正孔についての行列要素の積の項 $\left\langle \left\langle \mathbf{k}_c | \bar{H}_m(t) | \mathbf{k}_v \right\rangle \left\langle \mathbf{k}_v' | \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_c \right\rangle \right\rangle_{\mathbf{n}}$ はエネルギー保存則と運動量保存則を同時に満たさないから長い時間積分するとその影響は小さい。そこで電子についての行列要素と正孔についての行列要素の相関を無視して、これらの積の期待値は0とする。このとき以下の結果が得られる。

$$\begin{aligned} & \langle \mathbf{k}_c | \mathbf{P} [L_m(t) L_m(t')] | \mathbf{k}_v \rangle \\ &= \left\langle \left\langle \left\langle \mathbf{k}_c | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_c \right\rangle \right\rangle_{\mathbf{n}} + \left\langle \left\langle \mathbf{k}_v | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_v \right\rangle \right\rangle_{\mathbf{n}} \right\rangle / \hbar^2 \langle \mathbf{k}_c | \bar{\rho} | \mathbf{k}_v \rangle \end{aligned} \quad (3.2-20)$$

式(3.2-19)と式(3.2-20)より緩和項は相互作用ハミルトニアン H_I の自己相関関数の時間積分で表わされることがわかる。

式(3.2-19)と式(3.2-20)を使って密度行列の運動方程式を書き下ろす。ここで、

注目する波数 \mathbf{k} について行列要素を $\rho_{ij} = \langle \mathbf{k}_i | \mathbf{P} \rho | \mathbf{k}_j \rangle$ ($i, j = c, v$) のように略記する。この密度行列はシュレディンガー表示である。現象論的にポンピングパラメータ λ_c, λ_v とキャリアの再結合レート γ を導入すると密度行列の運動方程式は次のようかける。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{cc}}{\partial t} &= \lambda_c - \gamma \rho_{cc} + \frac{i}{\hbar} (\mu_c E \rho_{vc} - \mu_c^* E \rho_{cv}) \\ &\quad - \int dt' \text{Re} \left(\left\langle \left\langle \mathbf{k}_c | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_c \right\rangle \right\rangle_{\mathbf{n}} / \hbar^2 \right) (\rho_{cc} - f_{cc}) \\ \frac{\partial \rho_{vv}}{\partial t} &= \lambda_v - \gamma (1 - \rho_{vv}) - \frac{i}{\hbar} (\mu_v E \rho_{vc} - \mu_v^* E \rho_{cv}) \\ &\quad - \int dt' \text{Re} \left(\left\langle \left\langle \mathbf{k}_v | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_v \right\rangle \right\rangle_{\mathbf{n}} / \hbar^2 \right) (\rho_{vv} - f_{vv}) \\ \frac{\partial \rho_{vc}}{\partial t} &= i \omega_c \rho_{vc} - \gamma \rho_{vc} + \frac{i}{\hbar} \mu_c^* E (\rho_{cc} - \rho_{vv}) \\ &\quad - \int dt' \left(\left\langle \left\langle \left(\left\langle \mathbf{k}_c | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_c \right\rangle \right\rangle_{\mathbf{n}} + \left\langle \left\langle \mathbf{k}_v | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_v \right\rangle \right\rangle_{\mathbf{n}} \right) / \hbar^2 \right) \rho_{vc} \end{aligned} \quad (3.2-21)$$

ここで、密度行列の各成分は時刻 t における値である。密度行列が緩和していく先であるフェルミ分布関数は、温度が与えられているときキャリア密度

$$N = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \rho_{cc}(t) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} (1 - \rho_{vv}(t)) \quad (3.2-22)$$

から擬フェルミ準位を求めて決められる。得られた運動方程式(3.2-21)は従来の密度行列の運動方程式¹⁴と良く似た形をしているが、緩和項が時間積分を含んで時間に依存する点が異なる。この時間依存性が緩和過程における非マルコフ性(memory effect)

を表わしている。バンド内緩和での記憶が速やかに消えるとき、自己相関関数 $\langle\langle k | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | k \rangle\rangle_n$ は δ 関数に置き換えられる²¹⁾。これをマルコフ極限と呼ぶ。この極限では緩和項の時間積分は実行できて定数(緩和レート)を与える。一般には緩和過程は非マルコフ的で、式(3.2-21)の緩和項の時間依存性を考慮する必要がある。式(3.2-21)はその形から従来の密度行列の運動方程式の自然な拡張と考えることができる。従来の運動方程式で発展してきた概念や手法を適用できるため、式の操作や解釈がやりやすくなっている。ここに現れる自己相関関数は相互作用のハミルトニアンを決めると標準的な手法²²⁾で求めることができる。相互作用を決めるいくつかの物性パラメータ(LOフォノンのエネルギー、誘電率、キャリアの有効質量など)を用いて密度行列の運動方程式(3.2-21)によりキャリア緩和のダイナミクスを調べることができる。

本節の最後にこれまで用いた仮定や近似を吟味する。第一に本論文では光との相互作用を摂動としている。このため光が非常に強いときには半導体系のふるまいを十分に記述できない恐れがある。光との相互作用が強いときには光との相互作用を対角化した新しい状態(dressed atom state)を無摂動状態とすべきである。花村による非線形コヒーレント効果の理論²³⁾によると光が強いときにはスペクトルの先鋭化がおきて緩和の効果が小さく見える。半導体レーザの場合、これは、スペクトラルホールバーニングが顕著になることにあたる。しかし、この理論は $\chi \gg \epsilon_c$ となりたつものであり、 $\chi \sim \epsilon_c$ という中間的な場合に拡張するのは難しい。代表的な半導体レーザの構造では $\chi \sim \epsilon_c$ となるのは光出力が 100 mW を越えるあたりであり、出力が 10 mW 程度では本論文の取扱いで問題はない。高出力時での利得飽和は発熱やもれ電流も影響して実験の解析が難しいが今後検討していくべき課題である。

第二に注目している波数 k 以外のキャリアは全て擬熱平衡状態にあるとした。これも光があまり強くなくキャリアの分布の擬熱平衡分布からのずれが小さい時に成り立つ。より正確には波数が異なるキャリアについても密度行列を用い、緩和項に式(3.2-19)でなく式(3.2-17)の最後の式を使ってセルフコンシステントな解を求めればよい。これはかなり計算量も多く、通常の条件ではここで用いた近似で十分だと考えている。

第三に熱浴が常に擬熱平衡だと仮定しているがこれはキャリア密度や温度の変化が十分ゆっくりしているときにしか成り立たない。これは新しいキャリア密度や温度に対応した擬熱平衡分布に緩和するには有限の時間(バンド内緩和時間)が必要なのである。

以上をまとめるとここで述べた理論は光出力が数十 mW 以下でバンド内緩和時間(100 fs 程度)より十分遅いキャリア密度や温度の変動があるときの半導体レーザ

の利得とスペクトラルホールバーニングによる利得の飽和を十分正確に記述することができる。通常の半導体レーザの動作を考えている時にはこれで十分であろう。

3.3. レーザ利得

密度行列方程式の単一モード光に対する定常解

ここでは3.2節で求められた密度行列の運動方程式を単一モードの光電場の場合について解く。光電場は振動数 ω_0 の平面波だと仮定し、 z 軸方向に波数 k_0 で進行するものとする:

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t - k_0 z) \quad (3.3-1)$$

回転波近似を用いると式(3.2-21)は次のようにかける。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\rho}_{cc}}{\partial t} &= \lambda_c - \gamma \hat{\rho}_{cc} + \frac{i}{\hbar} (\chi \hat{\rho}_{cv} - \chi^* \hat{\rho}_{vc}) \\ &\quad - \int dt' \text{Re} \left(\langle\langle k_c | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | k_c \rangle\rangle_n / \hbar^2 \right) (\rho_{cc} - f_{ck}) \\ \frac{\partial \hat{\rho}_{vc}}{\partial t} &= \lambda_v - \gamma(1 - \rho_{vc}) - \frac{i}{\hbar} (\chi \hat{\rho}_{vc} - \chi^* \hat{\rho}_{cv}) \\ &\quad - \int dt' \text{Re} \left(\langle\langle k_c | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | k_c \rangle\rangle_n / \hbar^2 \right) (\rho_{vc} - f_{ck}) \\ \frac{\partial \hat{\rho}_{cv}}{\partial t} &= i \Delta_k \hat{\rho}_{cv} - \gamma \hat{\rho}_{cv} + \frac{i}{\hbar} (\rho_{cc} - \rho_{vv}) \\ &\quad - \int dt' \left[\langle\langle k_c | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | k_c \rangle\rangle_n + \langle\langle k_v | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | k_v \rangle\rangle_n \right] / \hbar^2 \hat{\rho}_{cv} \end{aligned} \quad (3.3-2)$$

ここで、ラビ振動数 $\chi = \mu_0 E_0 / \hbar$ を導入した。また、

$$\hat{\rho}_{vc} = \exp[i(\omega_0 t - k_0 z)] \rho_{vc} \quad (3.3-3)$$

であり、これは波数 k の電子正孔対の遷移振動数と光電場の振動数の差 $\Delta_k = \omega_k - \omega_0$ で振動する。この微積分方程式(3.3-2)はラプラス変換によって代数方程式にして解くことができる。初期条件を $\rho_{cc} = f_c$, $\rho_{vc} = f_v$, $\hat{\rho}_{vc} = 0$ とするとラプラス変換した密度行列の成分

$\sigma_{cc}, \sigma_{vc}, \sigma_{cc}$ を用いて方程式(3.3-2)は

$$\begin{aligned}\sigma_{cc}(p) &= f_c/p + (\lambda_c - \gamma_c) T_{cc}(p)/p + \frac{1}{2} T_{cc}(p) [\chi \sigma_{vc}(p) - \chi' \sigma_{cc}(p)] \\ \sigma_{vc}(p) &= f_v/p + (\lambda_v + (1 - \gamma_c)) T_{vc}(p)/p - \frac{1}{2} T_{vc}(p) [\chi \sigma_{vc}(p) - \chi' \sigma_{cc}(p)] \\ \sigma_{cc}(p) &= (i\chi'/2) T_{vc}(p, \Delta_k) [\sigma_{cc}(p) - \sigma_{vc}(p)]\end{aligned}\quad (3.3-4)$$

のように変換される。ここで、 p の関数 T_{cc}, T_{vc}, T_{vc} は

$$\begin{aligned}T_{cc}(p) &= \int dt \exp[-(p + \gamma)t - \hbar^{-2} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \operatorname{Re} \langle \langle k_c | \bar{H}_{im}(t_1) \bar{H}_{im}(t_2) | k_c \rangle \rangle_n] \\ T_{vc}(p) &= \int dt \exp[-(p + \gamma)t - \hbar^{-2} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \operatorname{Re} \langle \langle k_c | \bar{H}_{im}(t_1) \bar{H}_{im}(t_2) | k_v \rangle \rangle_n] \\ T_{vc}(p, \Delta_k) &= \int dt \exp[-(p + \gamma - i\Delta_k)t - \hbar^{-2} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \langle \langle k_c | \bar{H}_{im}(t_1) \bar{H}_{im}(t_2) | k_c \rangle \rangle_n \\ &\quad + \langle \langle k_v | \bar{H}_{im}(t_1) \bar{H}_{im}(t_2) | k_v \rangle \rangle_n]\end{aligned}\quad (3.3-5)$$

と書き表され、おのおの時間の次元を持つ。このため、これらは p に依存する伝導帯の電子分布、価電子帯の電子分布、分極の緩和時間と見做すことができる。実際、マルコフ極限では $T_{cc}(p), T_{vc}(p), T_{vc}(p, \Delta_k)$ はそれぞれバンド内緩和時間 T_c, T_v と分極の緩和時間 T_2 によって、 $(p + \gamma + T_c^{-1})^{-1}, (p + \gamma + T_v^{-1})^{-1}, (p + \gamma + T_2^{-1} - i\Delta_k)^{-1}$ のように表わされる。再結合の速さ γ はバンド内緩和に比べてゆっくりしている ($\gamma \ll T_c^{-1}, T_v^{-1}$) から、 $p=0$ では

$$\begin{aligned}T_{cc}(0) &\approx T_c \\ T_{vc}(0) &\approx T_v \\ T_{vc}(0, \Delta_k)^{-1} &\approx T_2^{-1} - i\Delta_k\end{aligned}\quad (3.3-6)$$

となる。ラプラス変換された密度行列の方程式(3.3-4)は代数的に解けて

$$\begin{aligned}\sigma_{cc} &= \frac{(1 + Q_1)F_c(p)/p + Q_2 F_v(p)/p}{1 + Q_1 + Q_2} \\ \sigma_{vc} &= \frac{Q_1 F_c(p)/p + (1 + Q_2)F_v(p)/p}{1 + Q_1 + Q_2} \\ \sigma_{cc} &= \frac{i\chi'}{2} T_{vc}(p, \Delta_k) \frac{[F_c(p) - F_v(p)]/p}{1 + Q_1 + Q_2}\end{aligned}\quad (3.3-7)$$

のように解が表わされる。ただし、

$$\begin{aligned}Q_1 &= |\chi|^2 T_{vc}(p) \operatorname{Re}(T_{cc}(p, \Delta_k))/2 \\ Q_2 &= |\chi|^2 T_{cc}(p) \operatorname{Re}(T_{vc}(p, \Delta_k))/2 \\ F_c &= f_c + (\lambda_c - \gamma_c) T_{cc}(p) \\ F_v &= f_v + (\lambda_v + \gamma(1 - f_c)) T_{vc}(p)\end{aligned}\quad (3.3-8)$$

ラプラス変換を戻した密度行列の非対角要素の定常解 $\hat{\rho}_{vc}(\infty)$ は、

$$\begin{aligned}\hat{\rho}_{vc}(\infty) &= \lim_{p \rightarrow 0} p \sigma_{vc}(p) \\ &= \frac{i\chi'}{2} T_{vc}(0, \Delta_k) \frac{F_c(0) - F_v(0)}{1 + |\chi|^2 (T_{cc}(0) + T_{vc}(0)) \operatorname{Re}(T_{vc}(0, \Delta_k))/2}\end{aligned}\quad (3.3-9)$$

で与えられる。これから定常状態での分極密度 P と複素感受率 $\eta = \eta' - i\eta''$ は

$$\begin{aligned}P &= \frac{1}{V} \sum_k \mu_k \hat{\rho}_{vc}(\infty) \\ \eta' &= -\frac{1}{V} \sum_k \frac{|\mu_k|^2}{2\epsilon\hbar} \operatorname{Im}(T_{vc}(0, \Delta_k)) \\ &\quad \frac{F_c(0) - F_v(0)}{1 + |\chi|^2 (T_{cc}(0) + T_{vc}(0)) \operatorname{Re}(T_{vc}(0, \Delta_k))/2} \\ \eta'' &= -\frac{1}{V} \sum_k \frac{|\mu_k|^2}{2\epsilon\hbar} \operatorname{Re}(T_{vc}(0, \Delta_k)) \\ &\quad \frac{F_c(0) - F_v(0)}{1 + |\chi|^2 (T_{cc}(0) + T_{vc}(0)) \operatorname{Re}(T_{vc}(0, \Delta_k))/2}\end{aligned}\quad (3.3-10)$$

となる。ただし、 ϵ はレーザ活性層の誘電率である。複素感受率の表式(3.3-10)は様々な波数(エネルギー)を持つ双極子の反転分布 $F_c(0) \sim F_v(0)$ を線形状関数 $\text{Re}\{T_{cv}(0, \Delta_k)\}$ の重みをかけて足し上げた形になる。複素感受率(3.3-10)から求められる光学利得は線形状関数が Lorentzian のとき従来得られている利得の式と一致する。式(3.3-10)の分母はスペクトラルホールバーニングによる飽和を表わす。ここにも線形状関数が現われるが、これはスペクトラルホールの形を表わしている。分母の線形状関数には $T_{cv}(0) + T_{vc}(0)$ という因子がかかっているが、これはスペクトラルホールバーニングが伝導帯電子と正孔の両者の分布について起きているという事情から来ている。一般に伝導帯の電子の方が正孔より緩和が遅い⁴⁾のでスペクトラルホールバーニングの緩和は電子の緩和時間である $T_{cv}(0)$ に支配される。これと反対に線形状関数は緩和時間の短い正孔のキャリアダイナミクスで主に決められる。

ポンププローブ法の実験のように強い光(振動数 ω_0)と異なる振動数($\omega_1 \neq \omega_0$)を持つ光に対する感受率を求めるには式(3.3-10)で重み付けの線形状関数を $T_{cv}(0, \Delta_k)$ を $T_{cv}(0, \omega_1 - \omega_0)$ とすれば良い。ただし、飽和は振動数 ω_0 の光によっておきるから、分母に現われる線形状関数は $T_{cv}(0, \Delta_k)$ のままになる。この事は $\hat{\rho}_{cv} = \exp[i(\omega_1 t - k_1 z)]$ とおいで回転波近似をすると証明できる。

光電場が無限小($|\chi|^2 \rightarrow 0$)のときには感受率の表式は従来の密度行列理論で得られるのとよく似たものになる。ただし、線形状関数はこれまでの理論とは違い Lorentzian とは限らない。山西らが求めた関数 $L(\omega)$ はここで求めたハミルトニアン⁵⁾の自己相関関数を時間 t_1, t_2 について積分したものに他ならないから彼らの得た線形状関数をここで感受率の式にそのまま用いることができる。言い換えると、山西らが仮定した利得の表式を密度行列を用いて証明できたことになる。ここで得た表式は任意の光強度について成り立ち、非線形利得も論じることができるから、さらに一般的なものである。

レート方程式の導出

ここでは、密度行列の方程式(3.3-4)からキャリア密度のレート方程式を導く。密度行列の方程式の第1式から第2式を辺々引いて波数 k について和をとると

$$\frac{dN}{dt} = \Lambda - \gamma N + \frac{i}{2V} \sum_k (\chi \hat{\rho}_{cv} - \chi^* \hat{\rho}_{vc}) \quad (3.3-11)$$

が得られる。ここで、 Λ はキャリアの注入レートで

¹ Ref. 5の式(4)。

$$\Lambda = \frac{1}{2V} \sum_k (\lambda_c - \lambda_v) \quad (3.3-12)$$

で与えられる。また、キャリア密度 N は式(3.2-22)から

$$N = \frac{1}{2V} \sum_k [\rho_{cv} + (1 - \rho_{vc})] \quad (3.3-13)$$

である。式を導く際バンド内緩和の行列要素 $\langle\langle k_1 | \hat{H}_{int}(t_1) \hat{H}_{int}(t_2) | k_2 \rangle\rangle_0$ の波数依存性を無視した。これは、緩和時間近似したことにあたり、非マルコフ性を無視したことになる。この近似では波数について和をとると式(3.2-5)と式(3.2-22)によりバンド内緩和の項が消える。さて、キャリア密度の時間変化は分極の時間変化に比べ十分遅いから密度行列の非対角要素には定常解を使ってよい。このような断熱近似を用いると良く知られたレート方程式

$$\frac{dN}{dt} = \Lambda - \gamma N - g(N, \omega, S) S \quad (3.3-14)$$

を得る。光学利得は複素感受率の式(3.3-10)から

$$g(N, \omega_0, S) = \frac{\omega_0}{\partial V} \sum_k |\mu_k|^2 \frac{\text{Re}\{T_{cv}(0, \Delta_k)\}}{f_c - f_v} \frac{1}{1 + \left(|\mu_k|^2 \omega_0 S / \partial h \right) (T_{cv}(0) + T_{vc}(0)) \text{Re}\{T_{cv}(0, \Delta_k)\}} \quad (3.3-15)$$

で与えられる。式(3.3-8)から、 F_c, F_v の第2項はキャリアの注入レートから再結合で失われるキャリアのレートを引いたもの(つまり、誘導放出のレート)にキャリアのバンド内緩和時間を掛けたものになっている。これは、光の強度が極端に大きくならない限り無視できるほど小さい。よって、 $F_c - F_v = f_c - f_v$ とした。また、 S は光子密度で

$$S = \frac{1}{2} \frac{\epsilon |E|^2}{\hbar \omega_0} \quad (3.3-16)$$

である。光学利得は感受率の虚部と

$$g(N, \omega_0, S) = -2\omega_0 \eta'' \quad (3.3-17)$$

という関係がある。レート方程式(3.3-14)による解析ではバンド緩和の非マルコフ性の効果は光学利得にだけ取り入れられている。

光電場の方程式は半古典論ではマックスウェル方程式を用い、Slowly Varying Envelope Approximation (SVEA)の範囲で

$$\frac{d\bar{E}}{dt} + [\kappa + i(\omega_0 - \Omega)]\bar{E} = -\frac{i\omega}{2}\bar{P} \quad (3.3-18)$$

とかける。ここで、 κ は共振器損失、 Ω は共振器の共振振動数である。また、電場は

$$E(r, t) = \bar{E}(t)U(r)\exp[i(\omega_0 t - kz)] \quad (3.3-19)$$

の様にかけるものとした。モード体積 V_0 は

$$V_0 = \int |U(r)|^2 d^3r \quad (3.3-20)$$

で定義される。このモードの電場と結合する分極は

$$\bar{P}(t) = \frac{1}{V_0} \int U^*(r) P(r, t) d^3r \quad (3.3-21)$$

となる。上の式で定義される分極がモードとの重なりを閉じ込め係数 Γ で表わして

$\bar{P} = \Gamma \int P(r, t) d^3r$ と書けるものとし、また分極密度 $P(r, t)$ が活性層内でのみ有限で一

様な値をとるものとする、下のような光子密度に対する方程式が導かれる：

$$\frac{dS}{dt} = -2\kappa S + \Gamma g(\omega_0, N, S) S \quad (3.3-22)$$

よく知られているようにレート方程式(3.3-14), (3.3-15), (3.3-22)は半導体レーザーの動作をかなりの程度まで説明することができる。

ここで、半導体レーザーの動特性に大きな影響を与える利得の微分を求めておく。ひとつはキャリア密度に対する微分(微分利得) dg/dN 、もうひとつは光子密度 S に対する微分 dg/dS である。これらはそれぞれ、

$$\begin{aligned} \frac{\partial g}{\partial N} &= \frac{1}{V} \sum_k \frac{\omega |\mu_k|^2}{\hbar} \operatorname{Re}[T_w(0, \Delta_k)] \frac{(1 - \gamma T_w(0)) (\partial_w / \partial N) - (1 - \gamma T_w(0)) (\partial_w / \partial N)}{1 + |\chi|^2 (T_w(0) + T_w(0)) \operatorname{Re}[T_w(0, \Delta_k)] / 2} \\ \frac{\partial g}{\partial S} &= \frac{1}{V} \sum_k \left[\frac{\omega |\mu_k|^2}{\hbar} \operatorname{Re}[T_w(0, \Delta_k)] \right]^2 \frac{(T_w(0) + T_w(0)) (F_c(0) - F_s(0))}{[1 + |\chi|^2 (T_w(0) + T_w(0)) \operatorname{Re}[T_w(0, \Delta_k)] / 2]^2} \end{aligned} \quad (3.3-23)$$

となるが、後で見るとこれらは半導体レーザーの高速変調特性を決める。

量子井戸における利得の表式

これまではバルク半導体での密度行列の方程式から利得や利得の飽和を議論してきた。本論文では量子井戸レーザーへの応用を考えているから、量子井戸における利得の表式を求めることにする。密度行列の方程式(3.3-2)は同じ形である。ただし、3次元の波数についての和が、サブバンドのインデックス n, m と2次元の波数についての和に変わる：

$$\frac{1}{V} \sum_k \rightarrow \frac{1}{A} \sum_{(n, m), k} \quad (3.3-24)$$

光学利得の表式は光電場の方程式から求められる。分極の光モード成分を与える式(3.3-21)で分極が量子井戸の部分 $-d/2 < z < d/2$ でのみ0でないとする。また、分極密度は一樣であるとする。式(3.3-21)は

$$\begin{aligned} \bar{P}(t) &= \frac{d}{L_0} U_z^*(0) P \\ &= \frac{1}{L_0} |U_z(0)|^2 \eta \bar{E} \end{aligned} \quad (3.3-25)$$

と表わせる。分極(体積)密度 P は分極の面密度 ηE を量子井戸の厚さ d で割って得られる。ただし、 L_0 は z 方向のモードの広がりである。このとき、 $|U_z(0)|^2 = 1$ となる。光子密度のレート方程式は

$$\frac{dS}{dt} = -2\kappa S + g_m(\omega_0, N, S)S$$

$$g_m = -\left(\frac{1}{L_0}\right)2\omega_0\eta''$$

(3.3-26)

である。ただし、 g_m はモード利得であって、閉じ込め係数 Γ を $\Gamma=d/L_0$ で定義すると光学利得は

$$g(N, \omega_0, S) = \frac{\omega_0}{\varepsilon\hbar Ad} \sum_{(n,m),k} |\mu_k^{(n,m)}|^2 \text{Re}(T_{vc}(0, \Delta_{n,k}))$$

$$\frac{f_c - f_v}{1 + \left(|\mu_k^{(n,m)}|^2 \omega_0 S / \varepsilon\hbar \right) (T_{cv}(0) + T_{vc}(0)) \text{Re}(T_{vc}(0, \Delta_{n,k}))}$$

(3.3-27)

で与えられる。キャリア密度の方程式は式(3.3-14)と同一である。ただし、キャリア密度に面密度を用いると誘導放出の項は gS でなくモード利得 g_m と光子の面密度 S_m を用いて $g_m S_m$ と表わされる。体積密度と面密度のどちらを使っても一貫して用いられなければならない。また、井戸の厚さが異なる量子井戸を比較するときには注意が必要である。モード利得の式(3.3-26)からわかるようにモード利得は井戸幅によらない(利得は井戸の厚さに反比例するが閉じ込め係数は井戸の厚さに比例する)。キャリアのバリア層への分布を無視すれば、あるモード利得を与える擬フェルミ準位はどの厚さの井戸でも同じになる。つまり、しきい値キャリア(面)密度は井戸の厚さによらない。体積密度を用いると同じ擬フェルミ準位を与えるキャリア密度は井戸幅によって異なってくる。この意味で面密度を使った方が紛れが少ない。しかし、一般には体積密度を使う場合が多く、本論文でもバルクで求めた式がそのまま使えることから体積密度を使うことにする。このとき、波数に対する和は

$$\frac{1}{V} \sum_k \rightarrow \frac{1}{Ad} \sum_{(n,m),k}$$

(3.3-28)

と置き換えると求める量が体積密度で表わされるので都合がよい。

第2章で詳しく調べたように、価電子帯のミキシングが無視できない場合、双極子能率 $\mu_k^{(n,m)}$ は電子と正孔の波動関数 $\varphi_n(z)$ と $f_m(z)$ を用いて次のようにかける：偏光ベクトル e の光に対して

$$\mu_k^{(n,m)} = \sum_j \langle c | e \cdot r | v_j \rangle \int \varphi_n^*(z) (f_{m,k}(z))_j dz$$

(3.3-29)

ただし、 n, m はそれぞれ電子と正孔のサブバンドを表わす。また、 $|c\rangle, |v_j\rangle$ はそれぞれ伝導帯と価電子帯の Bloch 関数である。

クーロン エンハンスメント

以上で光学利得の表式が得られたが、厳密には電子と正孔のあいだのクーロン引力によって電子と正孔が同じ場所に存在する確率が增大する。この効果をクーロンエンハンスメントと呼ぶ。クーロンエンハンスメントはキャリア密度がほとんど0のとき特に大きく(エキシトン効果)キャリア密度が大きくなるとクーロン引力がキャリアに遮蔽されるため小さくなる。クーロンエンハンスメントによって利得の式に次のような因子がかかる^{28,29}。

$$Q_{n,m}(\mathbf{k}) = \left| 1 - \frac{\Lambda_2(\mathbf{k})}{1 + \Lambda_1(\mathbf{k})} \right|^2$$

(3.3-30)

$$\Lambda_1(\mathbf{k}) = -\sum_p V_s(k, p) h(p, k) \frac{f_{np}^{(v)} + f_{mp}^{(h)} - 1}{E(k) - E(p) + i\delta}$$

$$\Lambda_2(\mathbf{k}) = -\sum_p V_s(k, k) h(p, k) \frac{f_{np}^{(v)} + f_{mp}^{(h)} - 1}{E(k) - E(p) + i\delta}$$

(3.3-31)

ただし、ここではフェルミ分布関数を $f_m^{(j)}$ のように表わした。また、 V_s は角度について平均をとったクーロンポテンシャルで

$$V_s(k, k') = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\theta \iint dz dz' W(\mathbf{k} - \mathbf{k}'; z, z'; 0) |\varphi_n(z)|^2 |f_{m,k'}(z')|^2$$

(3.3-32)

そして、 $h(p, k)$ は次のような方程式で定められる。

$$h(p, k) = \frac{V_i(p, k)}{V_i(k, k)} - \sum_{p'} \left[V_i(p, p') - \frac{V_i(p, k)V_i(k, p')}{V_i(k, k)} \right] \frac{f_{ng}^{(p')} + f_{ng}^{(k)} - 1}{E(k) - E(p)} h(p', k) \quad (3.3-33)$$

クーロンエンハンスメントは常温でのレーザしきい値付近では1に近くあまり重要ではない。このため通常はこの因子を無視しても問題は起きない。

レーザ利得に対するキャリア緩和の影響

キャリア散乱の非マルコフ性が利得や非線形利得に対して及ぼす影響を検討するため、キャリア散乱を簡単な確率過程でモデル化して表わすことにする^{30,31,32}。このモデルでは相互作用ハミルトニアン \hat{H}_m の自己相関関数を次のような2つのパラメータで表わす：

$$\hbar^{-2} \langle \langle \mathbf{k}_i | \hat{H}_m(t) \hat{H}_m(t') | \mathbf{k}_i \rangle \rangle_{\eta} = \delta_i^2 \exp[-|t-t'|/\tau_c] \quad (3.3-34)$$

ここで、 δ_i^2 は散乱の強さ（散乱によるエネルギーのぼけ）を、 τ_c は散乱の相関時間を表わす。相関時間は粒子が散乱の間にもとの状態の記憶を失うまでの時間で $\tau_c=0$ はマルコフ極限にあたる。

$$\delta_i^2 = \langle \langle \mathbf{k}_i | \hat{H}_m^2 | \mathbf{k}_i \rangle \rangle_{\eta} / \hbar^2 \quad (3.3-35)$$

$$\tau_c = \frac{1}{\delta_i^2} \int_0^{\infty} dt \left[\langle \langle \mathbf{k}_i | \hat{H}_m(0) \hat{H}_m(t) | \mathbf{k}_i \rangle \rangle_{\eta} / \hbar^2 \right] \quad (3.3-36)$$

不確定性原理より、相関時間は散乱に伴うエネルギー移動の逆数程度の大きさになる。典型的なエネルギー移動の大きさはフォノンによる散乱ではフォノンのエネルギー、キャリア-キャリア散乱ではフェルミエネルギーである。これらの値は数十 meV だから、相関時間は10 fsのオーダーになる。確率過程モデルを用いると式(3.3-5)は

$$\begin{aligned} T_{cc}(p) &= \tau_c I_0((p+\gamma)\tau_c, \alpha_{cc}^2) \\ T_{cv}(p) &= \tau_c I_0((p+\gamma)\tau_c, \alpha_{cv}^2) \\ T_{vc}(p) &= \tau_c I_0((p+\gamma-i\Delta_k)\tau_c, \alpha_{vc}^2) \end{aligned} \quad (3.3-37)$$

と書ける。ただし、

$$\begin{aligned} \alpha_{cc} &= \sqrt{2} \delta_c \tau_c \\ \alpha_{cv} &= \sqrt{2} \delta_c \tau_c \\ \alpha_{vc} &= \sqrt{\delta_c^2 + \delta_k^2} \tau_c \end{aligned} \quad (3.3-38)$$

また、関数 $I_0(A, a)$ は

$$I_0(A, a) = \int_0^{\infty} dt \exp[-At - a(t + e^{-t})] \quad (3.3-39)$$

で定義されるが、これは

$$I_0(A, a) = \frac{1}{A + \frac{a}{A + 1 + \frac{2a}{A + 2 + \frac{3a}{\dots}}}} \quad (3.3-40)$$

のように連分数によって展開される³³。この連分数を用いて関数 $I_0(A, a)$ を計算機によって精度良く求めることができる(付録参照)。

線形状関数 $T_{vc}(0, \Delta_k)$ の形はパラメータ α_{vc} の値で決まる^{30,31}。 α_{vc} が十分大きいとき($\alpha_{vc} \gg 1$)、線形状関数は Gaussian になる：

$$\text{Re}[T_{vc}(0, \Delta_k)] = \sqrt{\frac{\pi}{2(\delta_c^2 + \delta_k^2)}} \exp\left[-\frac{\Delta_k^2}{2(\delta_c^2 + \delta_k^2)}\right] \quad (3.3-41)$$

反対に、 α_{vc} が小さい極限($\alpha_{vc} \ll 1$)では線形状関数は Lorentzian である：

$$\text{Re}[T_{sc}(0, \Delta_k)] = \frac{\gamma + \gamma'}{(\gamma + \gamma')^2 + \Delta_k^2} \quad (3.3-42)$$

ただし、

$$\gamma' = \alpha_m^2 / \tau_c = (\delta_s^2 + \delta_i^2) \tau_c \quad (3.3-43)$$

で与えられる γ は従来の密度行列方程式に現われる位相緩和レートに等しい。いずれの極限でも線形状関数の幅は $\delta_s^2 + \delta_i^2$ で決まる。これは分極の緩和が伝導帯と価電子帯の両方で起きることによる。様々なパラメータ α_m の値に対する線形状関数の形は図 3.3-1に示す通りである。ここでは $\gamma = \alpha_m^2 / \tau_c = 10$ THzを満たしながら α_m と τ_c を同時に変化させた。この γ の値は半導体レーザーの利得スペクトルの解析から求められたものである²³。ただし、この解析では線形状関数が Lorentzian だと仮定している。確率過程モデルで求められた線形状関数の形は相関時間 $\tau_c = 10$ fsで既に Lorentzian からずれていることがわかる。線形状関数は離調 $\Delta_k = 0$ のピーク付近ではほぼ Lorentzian で表わされるが離調が大きくなると Gaussian に近づく。このような振る舞いは散乱過程を微視的に計算して得られた線形状関数²⁴のものと一致する。確率過程モデルによる線形状関数は $\Delta_k = 0$ について対称だが微視的計算では非対称の線形状関数が得られている。この違いは確率過程モデルが無視している系の熱浴への反作用によるものである。言い換えれば熱浴を大きな古典系と見做していることにあたる。例えば、電子格子散乱では線形状関数の非対称性はフォノンの吸収と放出における行列要素の違いに起因する。格子系が古典的(フォノンの数が大きい)ならこのような違いは生じない。この意味で確率過程モデルは高温近似である。これらの点を除けば確率過程モデルは線形状関数の特徴を良く再現し、非マルコフ的なキャリアのバンド内散乱過程の簡単な有効なモデルである。

バンドの緩和の非マルコフ性が利得に与える影響を調べるため相関時間を $\tau_c = 0, 20, 50$ fsと変えて利得スペクトルを求めた。ここでも $\gamma = \alpha_m^2 / \tau_c$ を10 THz一定とした。まえに述べた不確定性原理に基づく議論に従えば、GaAs や InP などの典型的なIII-V 族半導体のLOフォノンエネルギーが30-40 meV、室温での平均キャリアエネルギーが26 meVであるから、 $\tau_c = 20$ fs(これはエネルギーにすると35 meVに相当する)が半導体レーザー材料には最も適当だと考えられる。また、簡単のため電子と正孔の散乱過程は同じパラメータの値で記述できるものとした。材料としてバンドギャップエネルギーが800meVのInGaAsP(InPに格子整合している)を例に取る。ここで以下の物性定数を用いた: キャリア再結合レート $\gamma = 0.5 \text{ ns}^{-1}$ 、双極子能率 $\mu = 0.55 \text{ e.nm}$ 、誘電率 $\epsilon = 12.5$ 、

共振器寿命 $\tau_m = 3 \text{ ps}$ 、共振器体積 $V = 0.15 \times 3 \times 300 \mu\text{m}^3$ 。図 3.3-2は光出力が0のときのInGaAsP レーザ活性層の利得スペクトルの計算結果である。しきい値利得を 1.5 ps^{-1} とし、ピーク利得がこの値になるようにキャリア密度を調節した。しきい値キャリア密度は相関時間が $\tau_c = 0, 20, 50 \text{ fs}$ のときそれぞれ $1.75 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、 $1.49 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、 $1.44 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ となった。相関時間が大きくなるほど線形状関数の広がり小さくなるため利得が大きくなり、しきい値キャリア密度が小さくなる。キャリア緩和の非マルコフ性はここでは利得を増大させる働きをする。相関時間が20 fsと50 fsのとき、利得スペクトルの低エネルギー側の裾は正のまま0に近づくが、 $\tau_c = 0 \text{ fs}$ のときには一旦負の値をとる。利得スペクトルの低エネルギー側の裾の振る舞いの違いは線形状関数の裾の広がりかたの違いによる。Lorentzian は裾が Gaussian に比べてゆっくりと落ちるため高エネルギー側の吸収の影響を過大評価して負の利得域が現われる。観測される利得スペクトルにはこのような非物理的な負の利得を持つ裾は現われない。この事からもキャリア緩和の非マルコフ性を考慮することの必要性がわかる。図 3.3-3は光出力を0 mW から20 mW としたときの利得スペクトルの変化を示している。キャリア密度は光出力0 mWのときのしきい値キャリア密度に固定した。レーザー光のエネルギーは利得ピークにおいた。利得スペクトルのへこみは線形状関数の形を反映している(スペクトラルホールバーニング)。これより、線形状関数の形はポンププローブ法で直接観測できることがわかる。利得飽和も線形状関数の影響を受ける。利得飽和(非線形利得)とその高速変調特性については第5章で検討する。

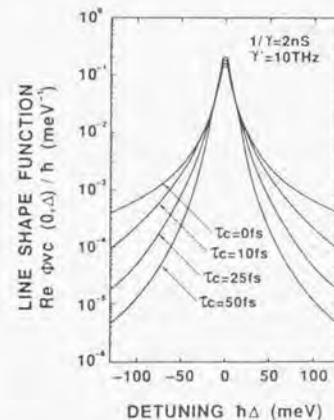


図 3.3-1 各種の相関時間における線形状関数。キャリアの再結合レートを $\gamma = 0.5 \text{ ns}^{-1}$ とし、 $\gamma = \alpha_m^2 / \tau_c$ を10 THz一定とした。 $\tau_c = 0$ はマルコフ極限でこのとき線形状関数は Lorentzian になる。

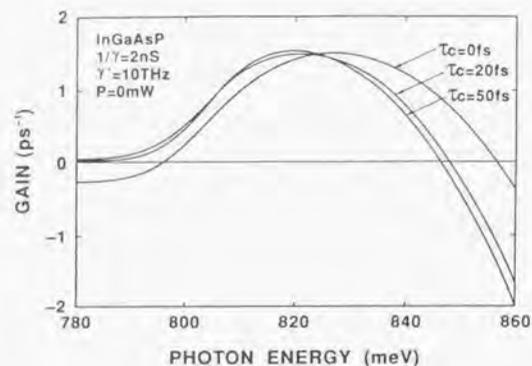


図 3.3-2 光出力が 0 のときの InGaAsP レーザ活性層の利得スペクトル。キャリア密度はピークでの利得が 1.5 ps^{-1} となるように調整した。相関時間が $\tau_c = 0, 20, 50 \text{ fs}$ のとき「しきい値」キャリア密度はそれぞれ $1.75 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, $1.49 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, $1.44 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ となった。

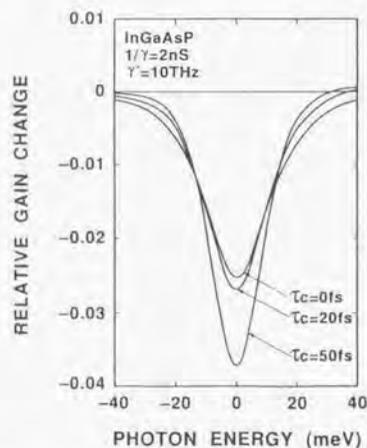


図 3.3-3 光飽和 (非線形利得) による利得スペクトルの変化

3.4. 自由キャリアによる屈折率の変化³⁴

擬 2 次元キャリアの誘電率

ここまでは量子井戸のキャリアと光の相互作用としてバンド間遷移を考えてきた。しかし、半導体レーザーではキャリアが高密度に励起されるため、波長が $1 \mu\text{m}$ より長くなると自由キャリアによる屈折率も無視できなくなる。本節では、擬 2 次元キャリアの誘電率を RPA (random phase approximation) の範囲で計算する。本節の手法では従来の Drude モデル^{20,21}と異なりキャリアの空間的な分布も考慮することができる。

以下では、電場に対する線形応答を求めることにより、誘電率を計算する。誘電率には有効質量の小さい電子が主に寄与するのでキャリアとしては電子を考え正孔は電荷中性条件を保つように一様に分布しているものとする。ただし、これから導く表式は電荷の符号によらないので (電荷の 2 乗が現れる) 正孔に対しても適用できる。ここではバンド間遷移による誘電率は考慮しない。擬 2 次元系における自由キャリアの屈折率は Dahl と Sham³⁵によって Si-SiO₂ 界面の電子について定式化されている。ただし、彼らはキャリアが全て最低サブレベルにあると仮定したがここではもっと一般的に有限温度で高次のサブレベルにもキャリアが分布している場合も扱う。電場のスカラーポテンシャルを $j(x)$ 、ベクトルポテンシャルを $A(x)$ としてキャリアと電場の相互作用を含むハミルトニアンは

$$H = \frac{1}{2m} \int dx \psi^\dagger(x) (-i\hbar \nabla - eA)^2 \psi(x) + \int dx \psi^\dagger(x) e\phi \psi(x) \quad (3.4-1)$$

である。ただし、 $\psi^\dagger(x)$, $\psi(x)$ は第 2 量子化された電子の生成消滅演算子である。current density operator $j(x)$, charge density operator $\rho(x)$ は

$$J(x) = j(x) - \frac{e^2}{mc} \psi^\dagger(x) \psi(x) A(x, t) \quad (3.4-2)$$

$$j(x) = \frac{e\hbar}{2mi} [\psi^\dagger(x) \nabla \psi(x) - \nabla \psi^\dagger(x) \psi(x)] \quad (3.4-3)$$

$$\rho(x) = e \psi^\dagger(x) \psi(x) \quad (3.4-4)$$

で定義される。これらの量を使うとハミルトニアンは電場の量の1次の範囲で

$$H_{int} = -\frac{1}{c} \int dx \mathbf{j}(x) \cdot \mathbf{A}(x, t) + \int dx \rho(x) \varphi(x, t) \quad (3.4-5)$$

と表わされる。電場がないとき電子系は熱平衡にある。つまり、 $\langle \mathbf{j} \rangle = 0$ 。電場に対する線形応答は

$$\langle \mathbf{j} \rangle = \langle \mathbf{j} \rangle = -\frac{e^2}{mc} \langle \psi^\dagger(x) \psi(x) \rangle \mathbf{A}(x, t) + \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \theta(t-t') \langle [\mathbf{j}, H_{int}(x, t')] \rangle \quad (3.4-6)$$

で与えられる。ただし、 $\theta(t-t')$ は階段関数である。上の式はゲージ変換に対して不変だから $\varphi=0$ のゲージをとることにする。マクスウェルの方程式から

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \quad (3.4-7)$$

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P} \quad (3.4-8)$$

という関係式がえられる。分極電流(3.4-6)は t' にのみ依存するから時間についてフーリエ変換して

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}, \omega) = \frac{i\omega}{c} \mathbf{A}(\mathbf{x}, \omega) \quad (3.4-9)$$

$$\mathbf{D}(\mathbf{x}, \omega) = \epsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{x}, \omega) - \frac{4\pi}{i\omega} \langle \mathbf{j}(\mathbf{x}, \omega) \rangle \quad (3.4-10)$$

を得る。ここで $\mathbf{j} = \partial \mathbf{P} / \partial t$ を使った。誘電率を

$$D_\alpha(\mathbf{x}, \omega) = \int dx' \epsilon_{\alpha\beta}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) E_\beta(\mathbf{x}', \omega) \quad (3.4-11)$$

で定義する。ただし、 $\alpha, \beta = x, y, z$ 。誘電率は以下の式で定義される電気伝導率 σ

$$j_\beta(\mathbf{x}, \omega) = \int dx' \sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) E_\alpha(\mathbf{x}', \omega) \quad (3.4-12)$$

を使つて

$$\epsilon_{\alpha\beta}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) = \epsilon_0 \delta_{\alpha\beta} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') - \frac{4\pi}{i\omega} \sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) \quad (3.4-13)$$

と表わせる。分極電流(3.4-6)は

$$j_\alpha(\mathbf{x}, \omega) = -\frac{e^2}{mc} \langle n(\mathbf{x}) \rangle A_\alpha(\mathbf{x}, \omega) - \frac{1}{i\hbar c} \int dx' \int dt e^{i\omega t} \langle [j_\alpha(\mathbf{x}, t), j_\beta(\mathbf{x}', 0)] \rangle A_\beta(\mathbf{x}', \omega) \quad (3.4-14)$$

とかけるから、(3.4-9)と(3.4-12)より、

$$\sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) = -\frac{e^2}{im\omega} \langle n(\mathbf{x}) \rangle \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \delta_{\alpha\beta} + \frac{1}{\hbar\omega} \int dt e^{i\omega t} \langle [j_\alpha(\mathbf{x}, t), j_\beta(\mathbf{x}', 0)] \rangle \quad (3.4-15)$$

ここで、 $n(\mathbf{x}) = \psi^\dagger(\mathbf{x})\psi(\mathbf{x})$ であり、これの期待値は空間的に一様な電子系では0になるが擬2次元系では波動関数を $\zeta_\nu(z)$ として

$$\langle n(\mathbf{x}) \rangle = \sum_\nu N_\nu |\zeta_\nu(z)|^2 \quad (3.4-16)$$

となる。ただし、 N_ν は ν 番サブバンドにあるキャリアの面密度でフェルミ分布関数 $f(E)$ を用いて

$$N_\nu = \frac{2}{L^2} \sum_{\mathbf{k}} f(E_{\nu\mathbf{k}}) \quad (3.4-17)$$

とかける。更に計算を進めるには current density operator の交換子を求めなければならない。そのために j の行列要素を計算する。

$$\langle \mathbf{v}\mathbf{k} | j_\alpha(\mathbf{x}, t) | \mathbf{v}'\mathbf{k}' \rangle = -\frac{\hbar e}{m} \exp[i(E_{\nu\mathbf{k}} - E_{\nu'\mathbf{k}'})t / \hbar - i(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{r}] \zeta_{\nu'}^*(z) \zeta_\nu(z) (k_\alpha + k'_\alpha) \quad (\alpha = x, y)$$

$$\langle \mathbf{v}\mathbf{k} | j_\alpha(\mathbf{x}, t) | \mathbf{v}'\mathbf{k}' \rangle = -\frac{i\hbar e}{m} \exp[i(E_{\nu\mathbf{k}} - E_{\nu'\mathbf{k}'})t / \hbar - i(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{r}] (\zeta_{\nu'}^* \frac{\partial \zeta_\nu}{\partial z} - \frac{\partial \zeta_{\nu'}^*}{\partial z} \zeta_\nu) \quad (\alpha = z)$$

(3.4-18)

ただし、 \mathbf{k} は(x,y)面内の波数ベクトル、電子の座標は $\mathbf{x}=(\mathbf{r},z)$ で表わされる。以上の結果より誘電率は面内方向にフーリエ変換した形で

$$\epsilon_{\alpha\beta}(\mathbf{q},\omega,z,z') = \epsilon_{\alpha}\delta_{\alpha\beta}\delta(z-z') - \delta_{\alpha\beta}\delta(z-z')\frac{4\pi e^2}{m\omega^2}\sum_{\nu}N_{\nu}\zeta_{\nu}^*(z)\zeta_{\nu}(z) - \frac{4\pi e^2}{\omega^2}\sum_{\nu\nu'}F_{\nu\nu}^{\alpha}(z)F_{\nu\nu'}^{\beta}(z')\mathcal{G}(\mathbf{q},\omega,\nu,\nu') \quad (3.4-19)$$

となる。ここで、

$$F_{\nu}^{\alpha}(z) = \begin{cases} \zeta_{\nu}^*(z)\zeta_{\nu}(z) & (\alpha=x,y) \\ \frac{1}{2i}\left(\zeta_{\nu}^*(z)\frac{\partial\zeta_{\nu}}{\partial z} - \frac{\partial\zeta_{\nu}^*}{\partial z}\zeta_{\nu}(z)\right) & (\alpha=z) \end{cases} \quad (3.4-20)$$

$$\mathcal{G}_{\alpha\beta}(\mathbf{q},\omega,\nu,\nu') = \begin{cases} \frac{2}{L^2}\sum_{\mathbf{k}}\left(\frac{\hbar c}{m}\right)^2 k_{\alpha}k_{\beta}\left[\frac{f(E_{\nu k_{+}})}{E_{\nu k_{+}}-E_{\nu k_{-}}-\hbar\omega} - \frac{f(E_{\nu k_{-}})}{E_{\nu k_{-}}-E_{\nu k_{+}}-\hbar\omega}\right] & (\alpha,\beta=x,y) \\ \frac{2}{L^2}\sum_{\mathbf{k}}\left(\frac{\hbar c}{m}\right)^2\left[\frac{f(E_{\nu k_{+}})}{E_{\nu k_{+}}-E_{\nu k_{-}}-\hbar\omega} - \frac{f(E_{\nu k_{-}})}{E_{\nu k_{-}}-E_{\nu k_{+}}-\hbar\omega}\right] & (\alpha,\beta=z) \end{cases}$$

$$k_{+} = k + q/2, \quad k_{-} = k - q/2$$

(3.4-21)

ここで、長波長近似($q \rightarrow 0$)をとる。式(3.4-21)に現れる $\left\{ \right\}$ のなかは $(2/\hbar)\left[\Delta_{\nu\nu'}/(\omega^2 - \Delta_{\nu\nu'}^2)\right]f(E_{\nu k})$ になる。ただし、 $\Delta_{\nu\nu'} = (E_{\nu} - E_{\nu'})/\hbar$ 、波数 \mathbf{k} についての和をとると $\alpha \neq \beta$ のとき0になるからこの近似の範囲では誘電率テンソルは対角のである。波動関数が完備であることを使うと¹⁸

$$\epsilon_{x,y}(\omega,z,z') = \epsilon_{\alpha}\delta(z-z') - \frac{4\pi e^2}{m\omega^2}\sum_{\nu}N_{\nu}\sum_{\nu'}\left[1 + \frac{\Delta_{\nu\nu'}\langle E_{km} \rangle/\hbar}{\omega^2 - \Delta_{\nu\nu'}^2}\right]\rho_{\nu\nu'}(z)\rho_{\nu'}(z')$$

$$\epsilon_z(\omega,z,z') = \epsilon_{\alpha}\delta(z-z') - \frac{4\pi e^2}{m}\sum_{\nu}N_{\nu}\sum_{\nu'}\frac{2\hbar/m}{\Delta_{\nu\nu'}(\omega^2 - \Delta_{\nu\nu'}^2)}F_{\nu\nu}^z(z)F_{\nu\nu'}^z(z') \quad (3.4-22)$$

が得られる。ただし、 ρ はキャリアの密度分布関数で $\rho_{\nu\nu'}(z) = \zeta_{\nu'}^*(z)\zeta_{\nu}(z)$ 、また1キャリアあたりの平均運動エネルギーは $\langle E_{km} \rangle = \frac{1}{L^2}\sum_{\mathbf{k}}\frac{\hbar^2}{2m}k^2 f(E_{\nu k})/N_{\nu}$ で定義される。

ここで、 $\rho_{\nu\nu'} = \rho_{\nu\nu'}^*$ 、 $F_{\nu\nu'}^z = F_{\nu\nu}^{z*}$ に注意。このように、誘電率は非局所的な形になる。

式(3.4-22)は誘電率に対する自由キャリアの寄与が z だけの関数と z' のみの関数との積の和の形で書ける(いわゆる分離形)ことを示している。このため、モード展開したとき自由キャリアの感受率を簡単な形で表わすことができる。

ここでは上の結果を使ってレーザモードに対する誘電率を求める。自由キャリアの屈折率に対する寄与は小さく、自由キャリアによってモードの電場分布は影響を受けないものとする。簡単のため、シングルモードを仮定すると電場と分極は次のようにかける。

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{x},t) &= \tilde{\mathbf{E}}(t)U(\mathbf{r})\exp(i\omega t) + c.c. \\ \mathbf{P}(\mathbf{x},t) &= \tilde{\mathbf{P}}(t)U(\mathbf{r})\exp(i\omega t) + c.c. \end{aligned} \quad (3.4-23)$$

モードの空間的な分布を表わす関数は $\int d\mathbf{r}|U(\mathbf{r})|^2 = 1$ のように規格化されているとする。レーザキャビティの共鳴振動数を Ω とするとこのモードの電場に対するMaxwell-Bloch方程式は

$$\frac{d\tilde{\mathbf{E}}}{dt} + [\kappa + i(\omega - \Omega)]\tilde{\mathbf{E}} = -2\pi i\omega\tilde{\mathbf{P}} \quad (3.4-24)$$

で表わせる。ここで、 κ はレーザキャビティの損失を表わす。分極は電気伝導率 σ を使って

$$P_{\alpha}(z) = \frac{1}{i\omega}\int dz'\sigma_{\alpha}(0,\omega,z,z')E_{\alpha}(z') \quad (3.4-25)$$

と書ける。モードに対する実効的な感受率 χ を $\tilde{\mathbf{P}} = \chi\tilde{\mathbf{E}}$ で定義すると、

$$\chi_{\alpha} = \frac{1}{i\omega}\int dz\phi^*(z)\int dz'\sigma_{\alpha}(0,\omega,z,z')\phi(z') \quad (3.4-26)$$

となる。前に述べたように電気伝導率 σ が分離形 $\sigma = \sum_{v,v'} C_{v,v'} g_{v,v'}(z) g_{v,v'}^*(z)$ で書けることから、感受率は $\chi \propto \sum_{v,v'} C_{v,v'} \left| \int dz g_{v,v'}(z) \phi(z) \right|^2$ という形になる。式(3.4-26)を使って感受率を具体的に書くと

$$\begin{aligned} \chi_{11} &= -\frac{e^2}{m\omega^2} \sum_v N_v \sum_{v'} \left[1 + \frac{\Delta_{v,v'} \langle E_{km} \rangle / \hbar}{\omega^2 - \Delta_{v,v'}^2} \right] \left| \int dz \rho_{v,v'}(z) \phi(z) \right|^2 \\ \chi_{22} &= -\frac{e^2}{m} \sum_v N_v \sum_{v'} \frac{2\hbar/m}{\Delta_{v,v'}(\omega^2 - \Delta_{v,v'}^2)} \left| \int dz F_{v,v'}^*(z) \phi(z) \right|^2 \end{aligned} \quad (3.4-27)$$

となる。特に電場分布がなだらかで考えている量子井戸の間で定数と考えられるとき、 ϕ を積分の外に出すことができる。このとき x, y 方向 (TE mode) については $v=v'$ 以外では積分が 0 になる。逆に z 方向 (TM mode) については $v=v'$ のとき積分が 0 になる。つまり TE 光に対する自由キャリアの誘電率はサブバンド内の層面に平行な運動に起因するのに対し、TM 光に対する誘電率はサブバンド間の遷移による。ここでいうサブバンド間遷移としては井戸層に局在したレベルと SCH 層に分布する高次サブレベル (ふつうは連続な 3 次元キャリアと見なされている) との間の遷移の寄与が大きい。

ここでは、自由キャリアによるモードの変化がないと仮定し、単一モードで考えたが、電場と分極を多モードで展開して、Maxwell-Bloch 方程式(3.4-24)に入れると χ を係数に持つ連立 1 次方程式ができる。これを解くことによって自由キャリアによる電場分布の変化も含めて論じることができる。

電場の空間的な変化が十分ゆっくりしているときの TE 光に対する自由キャリアの感受率は

$$\chi = -\frac{e^2}{\omega^2 m} N / L \quad (3.4-28)$$

となる。ただし N はキャリアの面密度、 L はモードの広がりを表わす。規格化された電界分布を用いると ε_0 を量子井戸の z 座標として $L = |\phi(\varepsilon_0)|^2$ である。これからわかるように感受率-屈折率はキャリアの数で決まり、キャリアがどこにいるかには依らない。キャリア密度を 3 次元で表わす伝統的なやり方では次のようにかける。

$$\chi = -\frac{e^2}{\omega^2 m} (n_{SCH} \Gamma_{SCH} + n_w \Gamma_w) \quad (3.4-29)$$

ここで n は 3 次元のなキャリア密度で $n_w = N_w / d_w$ と定義する。ただし d_w は閉じ込め係数の定義とコンシステントであればどんな数でもよい。なぜなら本来の 3 次元キャリア密度は波動関数から $\rho_{v,v}(z)$ で与えられるものであり、ここでの n_w はいわば便宜的なものだからである。 Γ は光の閉じ込め係数で井戸の厚さ d_w または SCH 層の厚さを d_{SCH} として $\Gamma = d_l / L$ で定義する。これは普通に行われているのと同じ表式である。細かいことを言うと、SCH 層の厚さに井戸層の厚さを含めるのは正しくない。なぜなら、波動関数の直交性のため、量子準位が井戸より高いキャリアが井戸の中に存在する確率が小さいからである。表式(3.4-28)、(3.4-29)は電界分布が一様であるときのものであり、電界の変化が大きい場合には式(3.4-27)に戻るべきである。もともと、量子準位が井戸よりも高いキャリアは SCH 層に一様に分布したバルクのなものとしてもそう悪い近似ではない。もちろんこれはキャリアの分布すなわちポテンシャルの形と電界分布により違うので一概には言えないが普通使われている構造では問題ないものと思う。

以上の計算ではキャリアの有効質量が一様であるとした。SCH 層と井戸層で有効質量が異なるときには各サブバンドごとにキャリアの分布で平均した有効質量を使えばよい。量子準位が井戸よりも高いキャリアについては SCH 層の有効質量を使っても大きな誤差はないだろう。井戸に局在した最低準位のキャリアについては注意が必要である。つまり、波動関数のしみだしのため薄い井戸では有効質量が SCH 層 (バリア層) のものに近くなる。このような有効質量の変化は InGaAs/InGaAsP 系では井戸幅が 5 nm 程度でも見られ、フェルミレベルの計算にも影響がでる。

次に TM 光に対する感受率を計算する。このときも電場の空間的な変化が十分ゆっくりしているとす。このとき(3.4-27)式の積分は z 方向へのサブバンド間遷移の双極子能率 (の絶対値の 2 乗) になる。このことからサブバンド間遷移を多準位原子の光遷移のように考えて密度行列の運動方程式を摂動で解いて感受率を求めることもできる。この方法によればサブバンドでの位相緩和の影響を取り込める。簡単のためキャリアが全て最低サブバンドにあるとしよう。TM モードに対する実効的な感受率は

$$\chi_{22} = -\frac{2N}{\hbar L} \sum_v \frac{\Delta_{1v} |\mu_{1v}|^2}{\omega^2 - \Delta_{1v}^2} \quad (3.4-30)$$

ただし、 μ_{1v} はサブバンド間遷移のダイポールモーメントであって $\mu_{1v} = e\langle 1|z|v\rangle$ で定義される。ここで、光のエネルギーがサブバンド間遷移のエネルギーよりも十分大きく、(3.4-30)の分母が一定と見なせる場合振動子強度についての総和則¹⁶⁾

$$\sum_v \Delta_{1v} |\mu_{1v}|^2 = \frac{e^2 \hbar}{2m} \quad (3.4-31)$$

が成り立って、結局TEモードに対する式(3.4-28)と同じものが得られる。以上のことから、サブバンド間遷移のためTMモードの光に対しても自由キャリアからの寄与が生じることがわかった。半導体レーザーでは光のエネルギーがサブバンド間遷移のエネルギーよりも十分大きいから、自由キャリアの屈折率に対する寄与はTMモードとTEモードで差がないことになる。

式(3.4-30)の分母のため、光のエネルギーがサブバンド間遷移のエネルギーに等しいとき感受率は共鳴的に増大する。(位相緩和のため無限大にはならない) また、光のエネルギーがサブバンド間遷移のエネルギーよりも小さい場合には感受率は0に近づく。量子井戸の厚さが0になる2次元の極限では $\Delta \rightarrow \infty$ だから $\chi = 0$ となり、自由キャリアからの寄与がなくなる(図 3.4-1)。

TMモードに対する自由キャリアの誘電率をサブバンド間遷移を多準位間の光遷移で表わした密度行列の方程式から求め、サブレベルでの位相緩和の影響を調べる。長波長近似して光との相互作用として双極子遷移を考えると多準位の密度行列方程式は次のようになる。

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{vv}(\mathbf{k}_-, t) &= -i(\rho_{vv} \chi_{vv}^* - \rho_{vv} \chi_{vv}) \exp(i\alpha t) - (\rho_{vv} - f_v(\mathbf{k}_-)) / T_1 \\ \dot{\rho}_{v'v}(\mathbf{k}_-, t) &= -i(\rho_{v'v} - \rho_{vv}) \chi_{v'v}^* \exp(i\alpha t) + i\Delta_{vv} \rho_{v'v} - \rho_{v'v} / T_2 \end{aligned} \quad (3.4-32)$$

ここで、 $\chi_{vv} = \langle v|ez|\bar{v}\rangle / \hbar$, $E(t) = \bar{E} \exp(i\omega t - ikx)$, また f_v は熱平衡分布で $f_v = 1 / [\exp(\epsilon_{\mathbf{k}v} - \epsilon_F) + 1]$ 。今、熱平衡分布からの摂動を考え電場の1次までとると

$$\rho_{v'v}(\mathbf{k}_-, t) = \frac{(f_{v'}(\mathbf{k}_-) - f_v(\mathbf{k}_-)) \chi_{v'v}^*}{\Delta_{vv} - \omega + i/T_2} \exp(i\alpha t) \quad (3.4-33)$$

が得られる。分極は双極子能率 $\mu_{vv} = \langle v|ez|v\rangle$ の期待値 $\text{Tr}(\rho\mu)$ であるからサブバンド間遷移による分極は

$$\bar{P} = \sum_{v,v'} \frac{(N_{v'} - N_v) |\mu_{v'v}|^2 / \hbar}{\Delta_{vv'} - \omega + i/T_2} \bar{E} \quad (3.4-34)$$

簡単のため最低サブバンドにのみキャリアがある($N_v = 0$, for $v \neq 1$)とする。このとき感受率は

$$\chi = -\frac{2N}{\hbar L} \sum_v \frac{\Delta_{1v} |\mu_{1v}|^2}{\Delta_{1v}^2 - (\omega - i/T_2)^2} \quad (3.4-35)$$

となる。位相緩和がないとき($1/T_2 = 0$)これはもちろん式(3.4-30)に一致する。図 3.4-1は位相緩和時間を50 fsとしたときのTMモードとTEモードの感受率の比を厚さ25 nmの無限バリア量子井戸で計算したものである。サブバンド間遷移に対応したエネルギーでTMモードの感受率が共鳴的に増えていることがわかる。光のエネルギーが高くなると感受率の比はほとんど1になる。サブバンド間遷移のエネルギーより光のエネルギーが小さいときにはTMモードの感受率は0に近づく。井戸が対称なため、最低レベルの間では偶数次の準位だけが双極子能率が0でない。図 3.4-2は位相緩和の影響を示している。図 3.4-1のときと同じ量子井戸で光のエネルギーを800 meVに固定し位相緩和 Γ を増やした($1/T_2 = \Gamma/\hbar$)。位相緩和でTMモードの感受率を減少させるには100 meVのオーダーが必要になることがわかる。これは位相緩和時間になると数 fs以下ということになる。

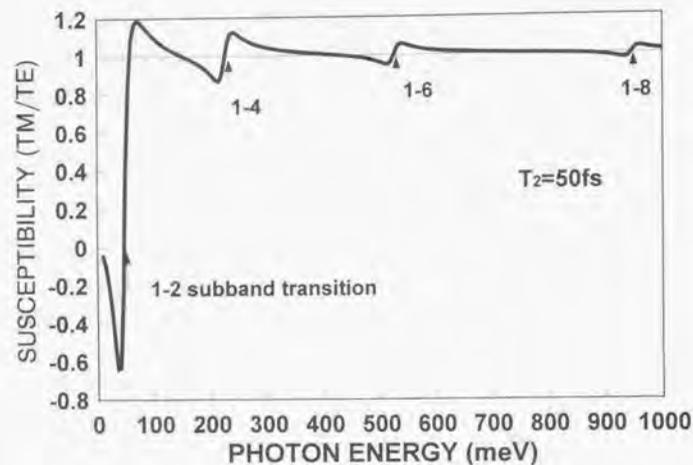


図 3.4-1 位相緩和時間を 50 fs としたときの TM モードと TE モードの感受率の比。
(厚さ 25 nm の無限バリア量子井戸)

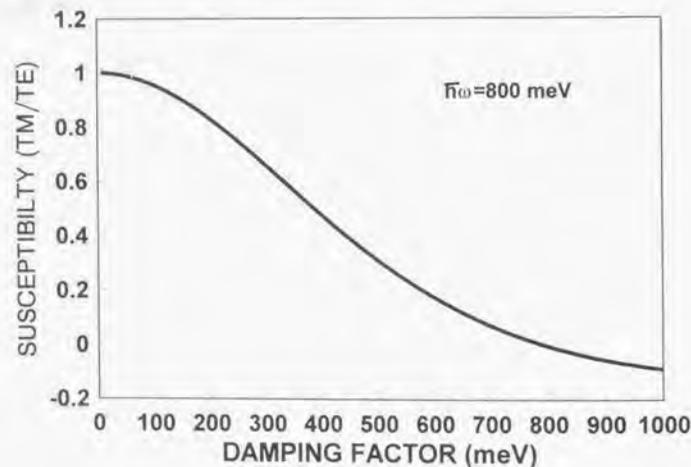


図 3.4-2 TM 光と TE 光の感受率の比に対する位相緩和の影響

実験との比較

上の結果を実験と比較しよう。量子井戸にキャリアが注入されている状態での自由キャリアプラズマ効果による屈折率変化を偏光依存性まで含めて測定した例は少ない。筆者の知る限り、Tsang and White による GaAs 系導波路の測定²⁷⁾がただ一つの報告例である。MQW レーザの α パラメータの測定は数多くなされているがバンド端より十分低エネルギーでのデータはなく、バンド間遷移から来る効果を分離できないので理論との比較は難しい。ここでは我々のおこなった 1.3 μm MQW レーザと GaAs 系 MQW レーザの測定²⁸⁾を示す。

以下に測定の方法と結果を簡単に述べる。レーザへの注入電流が ΔI だけ増加したときレーザの発振波長 λ_1 での全屈折率変化 Δn_t に対する自由キャリアの屈折率変化 Δn_f の比を R_k と定義する。全屈折率変化 Δn_t の値は Fabry-Perot (FP) レーザの自然放光スペクトルに現れる FP フリンジのずれ $\Delta \lambda_1$ から求めることができる：

$$\Delta n_f = n_1 \frac{\Delta \lambda_1}{\lambda_1} \quad (3.4-36)$$

ここで、 n_1 は波長 λ_1 における屈折率である。バンド間遷移による異常分散の効果が無視できる程度にバンド端から長波長側にずれた波長 λ_2 で同様な測定を行うことにより自由キャリアの屈折率変化 Δn_f の値を求めることができる。ただし、このときは FP フリンジを得るために外部から波長 λ_2 の光を入射してその透過スペクトルを見なければならぬ。また、 Δn_f は λ_1 で定義されているから、導波路の閉じ込め係数が波長 λ_1 と λ_2 で異なる値 Γ_1 , Γ_2 をとること、自由キャリアの屈折率変化の波長依存性を考慮しなければならない。式(3.4-28)からわかるように自由キャリアによる屈折率変化は波長の 2 乗に比例するから、で観測された FP フリンジのずれ $\Delta \lambda_2$ から Δn_f は次のように求められる：

$$\Delta n_f = \left(\frac{n_2^2}{n_1} \right) \left(\frac{\lambda_1^2}{\lambda_2^2} \right) \left(\frac{\Gamma_1}{\Gamma_2} \right) \Delta \lambda_2 \quad (3.4-37)$$

ここで、 n_2 は波長 λ_2 における屈折率である。

自由キャリアによる屈折率変化の偏光依存性も波長 λ_2 の光の偏光を TE または TM として FP フリンジのずれ $\Delta \lambda_{TE}$ と $\Delta \lambda_{TM}$ を測定して知ることができる。TM モードの屈折率変化の TE モードの屈折率変化に対する比 $R_{TM/TE}$ は TM モードと TE モードの閉じ込め係数をそれぞれ Γ_{TM} , Γ_{TE} とすると、

$$R_{TM/TE} = \frac{\Gamma_{TE} \Delta\lambda_2(TM)}{\Gamma_{TM} \Delta\lambda_2(TE)}$$

(3.4-38)

と書くことができる。

実験は波長 1.3 μm の MQW レーザと波長 0.8 μm の MQW レーザ、および比較のための波長 1.3 μm バルク活性層レーザの 3 種類についておこなった。波長 1.3 μm の MQW レーザは 5 層の InGaAsP-MQW (井戸層のバンドギャップ波長 1.4 μm , 5 nm 厚, バリア層のバンドギャップ波長 1.15 μm , 10 nm 厚) とバンドギャップ波長 1.15 μm , 60 nm 厚の InGaAsP からなる Separate confinement heterostructure (SCH) 層を活性領域とする。また、波長 1.3 μm のバルクレーザの活性層は厚さ 0.1 μm の InGaAsP からなっている。波長 1.3 μm の MQW およびバルク活性層のレーザはともに DC-PBH 構造により電流狭さくをおこなっている。波長 0.8 μm の MQW 活性層のレーザはリッジ型の導波路構造を持ち、活性層は 3 層の厚さ 9 nm の GaAs 量子井戸と厚さ 8.2 nm のバリア (平均 Al 組成 0.2) と AlAs/GaAs 超格子 Graded index (GRIN) SCH 層からなる。GRIN SCH 層の平均 Al 組成は 0.2 から 0.52 まで変化している。3 種類のレーザはいずれも TE モードで発振する。

以下の結果はすべて室温 (25°C) CW の条件で得た。図 3.4-3 に波長 1.3 μm の MQW レーザの発振波長における屈折率変化 Δn_e , Δn_p , 比 R_p を注入電流の関数として示す。屈折率変化は注入電流が 4 mA の時の屈折率からのずれを示した。全屈折率変化に対する自由キャリア起源の屈折率変化の比は注入電流がしきい値の 0.9 倍のとき $R_p = 0.6$ でこれは注入電流にほとんど依存しなかった。図 3.4-4 に同じレーザにおける TM モードと TE モードの FP フリンジのずれ ($\Delta\lambda_2(TE)$ と $\Delta\lambda_2(TM)$) と屈折率変化の比 $R_{TM/TE}$ を注入電流の関数として示す。 $R_{TM/TE}$ は注入電流がしきい値の 0.9 倍のとき $R_{TM/TE} = 0.8$ で測定した注入電流の範囲でほぼ一定の値を示した。他の波長 1.3 μm の MQW およびバルク活性層レーザの結果は表 3-1 に示した。バルク活性層のレーザでは自由キャリア起源の屈折率変化の比は MQW よりも小さく 0.4 であった。また、TM モードと TE モードの屈折率変化の比は 0.8 で MQW レーザと同程度であった。バルク活性層のレーザではこの値は 1 になるはずであり、なんらかの系統的な測定誤差があったものと思われる。注入光の波長が 1.55 μm と 1.64 μm としたときで測定結果に差はほとんどなく、バンド間遷移の影響が残っていることは考えにくい。波長 0.8 μm の MQW レーザにたいしては 1.3 μm の DFB レーザを注入光源として用いた。この時、 $R_p = 0.1$, $R_{TM/TE} = 0.3$ を得た (いずれも注入電流はしきい値の 0.9 倍)。

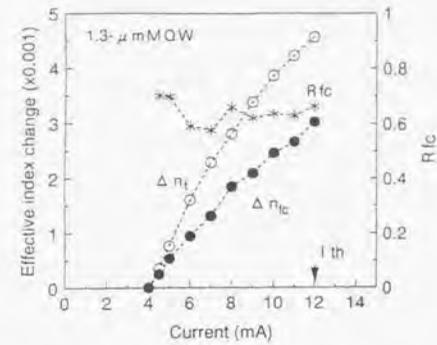


図 3.4-3 波長 1.3 μm の MQW レーザの発振波長における全屈折率変化 Δn_e , 自由キャリアの屈折率変化 Δn_p , および Δn_e に対する Δn_p の比 R_p を注入電流の関数として示す。

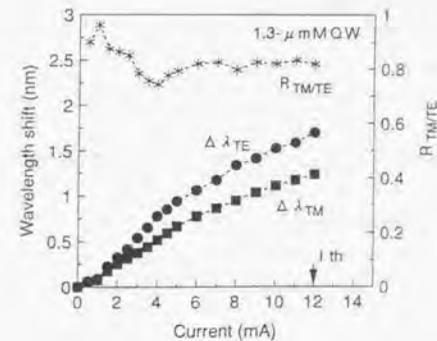


図 3.4-4 波長 1.3 μm の MQW レーザの TM モードと TE モードの FP フリンジのずれ ($\Delta\lambda_2(TE)$ と $\Delta\lambda_2(TM)$) と屈折率変化の比 $R_{TM/TE}$ を注入電流の関数として示す。

サンプル	共振器長 (μm)	しきい値電流 (mA @25 °C)	R_c (@0.9 I_m)	$R_{TM/TE}$ (@0.9 I_m)
(a) 1.3 μm MQW	280	12	0.6	0.8
(b) 1.3 μm MQW	280	15	0.6	0.9
(c) 1.3 μm bulk	260	20	0.4	0.8
(d) 1.3 μm bulk	260	23	0.4	0.8
(e) 0.8 μm MQW	360	16	0.1	0.3
(f) 0.8 μm MQW	360	14	-	0.3

表 3-1 各レーザの測定結果

これらの測定結果を理論と比較しよう。まず、1.3 μm MQW レーザについて考える。このとき実験によれば自由キャリアの屈折率に対する寄与は TM モードと TE モードで差がなく、TM モードと TE モードの比は注入したキャリア密度に依存しない。この結果は理論と良く一致する。以前はこれをバリア層にオーバーフローしたキャリアのためと解釈していたが、この解釈では TM モードと TE モードの比がキャリア密度に依存しないことを説明できない。ここで述べた理論によれば TM モードと TE モードで差がないのはサブバンド間遷移によるものでキャリア密度には関係しない。長波長側で光誘起キャリアによる屈折率変化は TE と TM で一致することは Ehrlich ら²⁹ も報告している。

これに対して、GaAs 系 MQW 導波路での測定²⁹では TM モードの屈折率変化が TE モードの 1/3 から 1/4 になっている。これは理論とは合わない。実験に使われた GaAs 系 MQW 導波路は閉じ込め係数が小さいため実効的な屈折率変化が小さく、実験誤差が大きい可能性がある。実験の精度については十分な検討はなされていないがそれでも、TM モードの屈折率変化が TE モードよりも小さいことも考えられる。理論に含まれていないが TM モードの屈折率変化を小さくする効果を考えてみよう。

まず、位相緩和の影響が考えられるが、位相緩和による線幅が光のエネルギーと同程度にならなければならない。つまり、位相緩和時間として fs 程度でなければならない(図 3.4-2)。現実的でない。通常の緩和項で記述できない緩和が効いている可能性もあるがあまりありそうなことはいえない。

次に、ここで述べた理論ではサブバンド間遷移に伴う空間的な電荷分布の変化を完全には考慮していない。実際の半導体では電子と正孔のクーロン力が平衡状態で釣り合うように分布しており、波動関数の広がり異なる準位への遷移によって電荷分布が変わるとポテンシャルが変化し、サブレベル自体が変化する。また、高次のサブバンドへ励起されたキャリアの電荷とバックグラウンドの電荷が作る双極子も誘電率に寄与する(図 3.4-5)。これらの効果は高次なため、線形応答を考えた理論には入っていない。ただ、光のエネルギーがサブバンド間遷移のエネルギーより大きいときには

前にも述べたように総和則があるためサブレベルの変化は誘電率には影響しない。実験では入射光強度に対する屈折率変化の依存性は調べていないので、高次の効果が実際どの程度あるかは不明である。このように理論が GaAs 系 MQW 導波路で実験と合わない理由については今のところ良くわかっていない。

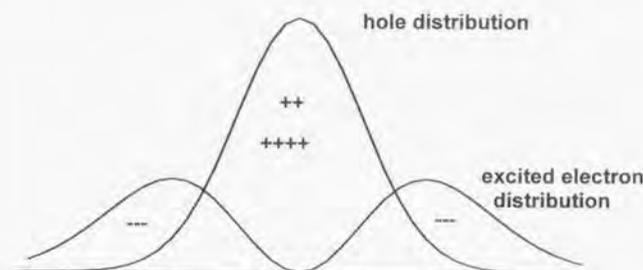


図 3.4-5 高次サブバンドへ実励起されたキャリアが作る電気双極子。このような機構による誘電率への寄与は理論で考慮されていない。

線幅増大係数

本節の最後に線幅増大係数 (α パラメータ) の量子井戸構造による制御の可能性について検討する。 α パラメータはキャリア密度が変化したときの屈折率の変化と利得の変化との比であって、感受率の実部と虚部の微分係数を用いて $\alpha = -(\partial\eta'/\partial N)/(\partial\eta''/\partial N)$ で定義される。屈折率の変化を含んでいることから分かるようにレーザの線幅や、位相同期、戻り光雑音などレーザ光の位相が関係するレーザダイナミクスを決めるパラメータである。レーザの線幅を狭くするためには α パラメータを小さくすることが必要で、そのためには微分屈折率を小さくするか微分利得を大きくしなければならない。量子井戸では微分利得が大きいため α パラメータが小さくなり¹⁷ 狭線幅のレーザが実現されている。

筆者等は自由キャリアの屈折率変化に注目し、TM 光を発振するレーザでは電場ベクトルの方向のキャリアの運動が制限されるため、自由キャリアは屈折率変化に寄与せず微分屈折率が小さくなるのではないかと考えた²⁰。最近、Tiemeijer ら²¹ は InGaAs/InP 引張り歪量子井戸レーザにおいて α パラメータが小さいことを報告して

いる。この引っぱり歪レーザーが電場ベクトルが量子井戸積層面に垂直な TM モードで発振する。彼らは α パラメータが小さい原因として、我々と同様、キャリアの運動が量子化されて自由キャリアプラズマの寄与がなくなるためだとしている。しかし、本論文でなされた詳細な検討によると TM 光に対しても量子井戸の自由キャリアの屈折率はバルクと同様に振る舞う。つまり、TM 光を発振するレーザーであっても自由キャリア起源の α パラメータ抑制は期待できない。歪量子井戸レーザーでの α パラメータの違いにはバンド間遷移の影響（異常分散、微分利得）の方が支配的となる。Tiemeijer ら⁴¹の結果はバンド間遷移の寄与（微分利得の向上）と量子井戸組成の変化による電子の有効質量の増大によるものと理解される。実際、引っぱり歪レーザーの微分利得が大きいことは計算と実験から確かめられている⁴²。

3.5. まとめ

本章では量子井戸のキャリアと光との相互作用とそれに対するキャリア間の相互作用の影響を検討した。本章の前半ではキャリアのバンド内緩和があるときの利得の表式を微視的なハミルトニアンから射影演算子法によって求めた。キャリアのバンド内緩和は光遷移におけるエネルギー保存則をゆるめ、利得に現われる δ 関数が有限の幅を持つ線形状関数で置き換えられる。本研究によって線形状関数がキャリア間の相互作用のハミルトニアン⁴³の自己相関関数で表わされることが明らかになった。特に、キャリア緩和の非マルコフ性を簡単に取り入れる方法として確率過程モデルを導入した。これによるとパラメータが 2 つになるが非マルコフ性の特徴を再現する線形状関数が連分数法で簡単に求められる。

本章の後半では自由キャリアによる屈折率を量子井戸のキャリアの空間分布を考慮して計算した。これによると TE 光に対してはキャリア密度と閉じ込め係数の定義をコンシステントに与えれば従来の Drude モデルによる計算が正しい答えを与えることが分かった。ただし、TTG レーザの量子井戸チューニング層などのようにキャリアと光の分布がより複雑な構造ではこれは自明でなく本研究で得られた厳密な表式を用いるべきである。また、TM 光に対してもサブバンド間遷移を考えると TE 光と変わらなくなる。引っぱり歪レーザーで α パラメータが小さくなるのは歪による微分利得の増大によるものと考えられる。

3.6. 本論文の半導体レーザー理論の構成と特徴

第 2 章と第 3 章で半導体レーザーの特性を記述するための基礎となる理論を開示した。次章以降で実際のレーザー特性を計算し実験とも比較していくがその前にこれまでのべた理論をまとめて、その構成や位置づけを明確にする。

半導体レーザーの動作を正確に記述し、予言するためにはレーザーを構成するすべての粒子についてのハミルトニアンを書き下ろしてシュレーディンガー方程式を解けば良いはずである。これは原理的にはそのとおりだが実際には不可能である。そのため、レーザーの動作を記述するのに必要な情報をできるだけ簡単に取り出す方法を見出すことがレーザー理論の本当の目的であるといっても良いだろう。問題を手におえるようにするためにはいくつかの近似が必要になる。用いられる近似にはさまざまな程度と種類があってそれぞれ特徴がある。以下では、我々がこれまで作り上げてきた理論を中心にしていかなる近似が用いられ、そこで失われたものは何かを考える。

理論の対象

理論の構造を図 3.6-1 に示す。まず理論の対象を限定する。半導体レーザーには電子と正孔だけでなく光子や格子(フォノン)も関係している。ここでは量子井戸のような量子閉じ込め構造を持つ半導体レーザーを考えるが、その空間的なスケールは量子閉じ込め構造による数-数十 nm オーダーからデバイスのサイズである数 100 μm まであり、時間的スケールも 100 fs 以下のキャリアの散乱時間から ns オーダーのキャリア寿命、熱伝導も考えると ms まで広がる。こうした問題を扱うための常套手段として時間的、空間的スケールによって系を分割する。分割した後、重要な部分だけを詳しく扱い、その他はマクロな変数(温度やキャリア密度など)に対する方程式で記述する。

半導体レーザーの核心となるのは活性層のキャリアである。そこで、量子閉じ込め構造の周りだけを量子力学で扱うことにする。その外の領域でのキャリアの動きは拡散方程式で表わす。量子力学で扱う領域と拡散方程式で扱う領域の境界でのキャリアの流れがそれぞれの方程式に対する境界条件となる。キャリアを量子力学で扱わなければならないのは量子閉じ込め構造から平均自由行程程度の範囲である。これより距離が大きくなるとキャリアのコヒーレンスが失われるため、拡散方程式での記述で十分になる⁴⁴。次に、時間スケールでの分離を行なう。半導体においてはキャリア系と格子系のようにいくつかの部分が弱く結合している場合が多い。このような時には注目する系(半導体レーザーではキャリア系)以外を切り離してそれとの相互作用を摂動で取り入れる。ここで、格子は熱平衡にあるとし、温度は熱伝導方程式から求められるとする。この近似で格子は温度 T_L という 1 つのパラメータで記述される。より正確には格子系を音響フォノンと光学フォノンに分け光学フォノンの分布が熱平衡にないといったモデルを考えることもできるがフォノンについてはこれ以上深入りしない。

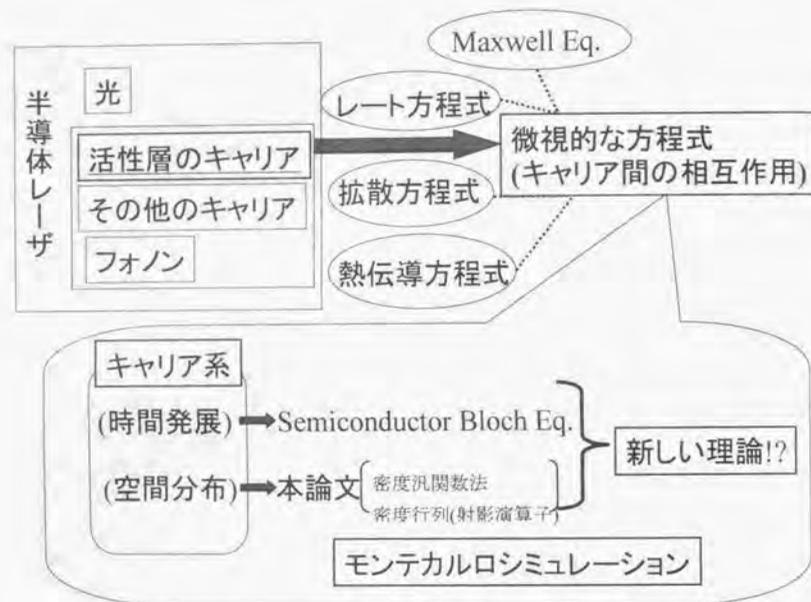


図 3.6-1 半導体レーザーの理論の構成を示す。半導体レーザーの主要な部分である活性層（量子構造）のキャリアを取り出し、微視的な方程式で解析する。その他の部分はマクロな変数に対する方程式で記述する。それぞれの方程式の解は互いに境界条件を与える。微視的な取り扱い方として 2 つあげたがこれらは力点の置き方が異なっている。本論文の理論はレーザーの定常状態をより良く記述しようとしている。

半導体レーザーでは光も重要だが、ここでは光を古典的に扱う。しきい値近傍での動作や雑音を正しく扱うには光も量子力学で記述する必要があるがここでは行わない。光の周波数程度よりゆっくりした変化だけを考えるとレーザー共振器の n 番モードにあたる光の電界に対するマックスウェルの方程式は良く知られているように

$$\frac{dE_n}{dt} + [\kappa_n + i(\omega_n - \Omega_n)]E_n = -\frac{i\omega_n}{2} P_n \quad (3.6-1)$$

と書ける。ただし、 κ_n と Ω_n は共振器の n 番モードの損失と共振周波数、 ω_n は光の周波数である。半導体中のキャリアの影響は分極 P_n にすべて入っている。つまり分極または感受率 $P = \eta E$ を求めることが目標になる。すなわち、量子閉じ込め構造の周りのキャリアのダイナミクスを計算し、感受率 $\eta_n(N, U, E)$ を求めることである。感受率の虚部は

$$g_n = -2\omega_n \text{Im} \eta_n \quad (3.6-2)$$

によってモード n の光に対する利得を与える。計算にあたっては、格子の温度、光電界が外から与えられるパラメータとなる。キャリアのエネルギー密度 U とキャリア密度 N は以下のような連続の式で外の領域と関連付けられる：

$$\begin{aligned} \frac{\partial U}{\partial t} &= J_{in}^{(U)} - J_{spont}^{(U)} - J_{stim}^{(U)} - J_{nr}^{(U)} - J_L^{(U)} \\ \frac{\partial N}{\partial t} &= J_{in}^{(N)} - J_{spont}^{(N)} - J_{stim}^{(N)} - J_{nr}^{(N)} \end{aligned} \quad (3.6-3)$$

ここで、 $J_{in}^{(U)}$, $J_{spont}^{(U)}$, $J_{stim}^{(U)}$, $J_{nr}^{(U)}$, $J_L^{(U)}$ はそれぞれ、単位時間あたりキャリア注入で流入するエネルギー、自然放出で失われるエネルギー、誘導放出で失われるエネルギー、非輻射再結合で失われるエネルギー、格子との相互作用で失われるエネルギーである。また、 $J_{in}^{(N)}$, $J_{spont}^{(N)}$, $J_{stim}^{(N)}$, $J_{nr}^{(N)}$ はそれぞれ単位時間あたりに注入されるキャリア、自然放出で失われるキャリア、誘導放出で失われるキャリア、非輻射再結合で失われるキャリアである。特にキャリア寿命 τ_n と利得 g 、光子密度 S を用いて $J_{spont}^{(U)} = N/\tau_n$, $J_{stim}^{(U)} = gS$ と書くと (3.6-3) の第 2 式は通常のレート方程式になる。また、 N と S はキャリア系が緩和すべき擬平衡状態（フェルミ分布）を

$$V^{-1} \sum_k f_k = N$$

$$V^{-1} \sum_k \epsilon_k f_k = U$$

(3.6-4)

のように定める。

これらのことはこれまでの半導体レーザーの理論でも前提となっていたことだが必ずしも明確に述べられていなかった。どのような仮定によってミクロなキャリアのダイナミクスがマクロなレーザー特性と結び付けられるのかを確かめておくことは今後レーザー理論を精密化したり、極限的な状況を解析する場合に役立つであろう。

ここまではかなり一般的な近似である。更に近似を進めるにはどのような状況を主に扱うかを決める必要がある。ここでは、量子井戸レーザーの定常状態での動作とそこからの応答を考えることにする。現在広く用いられている量子井戸材料のInGaAs/InGaAsP(光通信用)やGaInP/AlGaInP(情報処理用)では電子を閉じ込めるためのポテンシャルが小さいので電子と正孔の空間的な分布が異なる。レーザーの設計ではこのようなキャリアの空間分布も考慮する必要がある。また、キャリアの散乱によって光遷移のスペクトルが変化し、利得も影響を受ける。キャリアの多体効果や散乱のダイナミクスを取り入れながらも実用的な設計を行なう立場から、キャリア間の相互作用は少数のパラメータで表わされるモデルを用いることにする。ただし、このモデルは現象論的なものでなく微視的なハミルトニアンから導き出せるようにしておく。このようにモデルを微視的な過程と結び付けておくことで簡単に精密な計算が可能になる。また、必要に応じてより精密な計算をする方法も明確になる。

解析は2段階に分けられる。まず、光との相互作用がない場合にはキャリアは擬平衡状態にある。この時のキャリアの波動関数とエネルギーを求める。次に、光との相互作用を取り入れた方程式を前に求めた波動関数を基底として書き下ろしてキャリアの応答-感受率を計算する。

擬平衡状態でのキャリアの波動関数とエネルギー

平均場近似

第1段階での解くべき方程式を有効質量近似の範囲で求める。キャリアの多体効果は平均場近似により1体のポテンシャルで取り入れる。方程式を電子と正孔について解き、キャリアの分布がセルフコンシステントになるようにするとキャリアの波動関数とエネルギーが得られる。キャリア間の相互作用によるポテンシャルは他のキャリアの分布によって決まる。これは原子や分子の計算で行われていることと考え方は同じである。最も簡単なものはハートリー近似で、空間電荷ポテンシャルだけを考

える。キャリア間の交換相互作用まで考えると良く知られたハートリー・フォック近似となるが、軌道 ϕ に対する方程式は

$$-\frac{d^2}{dz^2} \phi_i(\mathbf{r}_1) + \left[\int \sum_j \phi_j^*(\mathbf{r}_2) \phi_j(\mathbf{r}_2) \frac{2}{r_{12}} dz_2 \right] \phi_i(\mathbf{r}_1) - \left[\int \sum_j \delta_{m_i, m_j} \phi_j^*(\mathbf{r}_2) \phi_j(\mathbf{r}_2) \frac{2}{r_{12}} dz_2 \right] \phi_i(\mathbf{r}_1) = \epsilon_i \phi_i(\mathbf{r}_1)$$

(3.6-5)

のような形になる。左辺の第3項が交換相互作用を表わすが、軌道 ϕ の座標が \mathbf{r}_2 になっているためポテンシャルが非局所的で、ハートリー・フォック近似による計算は複雑になる。また、ハートリー・フォック近似では反平行のスピンを持つキャリア間の相互作用(相関相互作用)は取り入れられていない。

密度汎関数法

このような問題点を解消するものとして密度汎関数法がある。HohenbergとKohn⁴⁴は外部ポテンシャルの中を運動する電子ガスの基底状態のエネルギーが電荷密度の汎関数で一義的に決まることを示した。さらにKohnとSham⁴⁵は基底状態のエネルギーを電荷密度で変分することで1電子についての方程式を得た(Kohn-Sham方程式)：

$$[H_{kin} + U(z) + V(z)]\phi_n(z) = \epsilon_n \phi_n(z)$$

(3.6-6)

ただし、 H_{kin} はハミルトニアン⁴⁶の運動エネルギーの部分で電子については

$-(\hbar^2/2m)(d^2/dz^2)$ になる。価電子帯のミキシングがあるときにはこの部分が価電子

帯のプロット関数を基底とするLuttinger-Kohnハミルトニアン⁴⁶で表わされ、波動関数はベクトルになる。また、 $U(z)$ は量子井戸のポテンシャル、 $V(z)$ はキャリア間の相互作用によるポテンシャルで空間電荷ポテンシャルと交換相関ポテンシャルからなる。交換相関ポテンシャルは交換相関エネルギー汎関数 $E_{xc}[n_e, n_h]$ によって

$$V_{xc}(z) = \frac{\delta E_{xc}[n_e, n_h]}{\delta n_i(z)}$$

(3.6-7)

で表わされる。一般に、 $E_{xc}[n_e, n_h]$ はキャリア密度の未知の汎関数である。ここで、交換相関ポテンシャルが局所的なキャリア密度の関数で表わされるものとし(局所密度近似)、単位面積当たりの交換相関エネルギーを一様で中性なelectron-hole liquidの1

電子-正孔対あたりの交換相関エネルギー ϵ_{xc} を用いて次のように表わす⁴⁷。

$$E_{xc}[n_e, n_h] = \frac{1}{2} \int dz [n_e(z) \epsilon_{xc}(n_e(z)) + n_h(z) \epsilon_{xc}(n_h(z))] \quad (3.6-8)$$

この近似は電子と正孔の密度がほぼ等しいとき(局所的電荷中性)正しい。ここで考えているような系では局所的電荷中性が必ずしも満たされないが、それでも式(3.6-8)は良い近似となる。交換相関エネルギーは電子と正孔の有効質量の比やバンドの数に対して universal な性質をもつ⁴⁸から全ての電子と正孔が同等に交換相関エネルギーに寄与する。

Kohn-Sham 方程式はもともと温度 0 度のとき全エネルギーが極小となるように導かれたものである。有限温度では全エネルギーではなく自由エネルギーを極小とするべきである。しかし、ここでは簡単のためエントロピーの項を無視する。エントロピー項を落とすことの正当性は明らかではないが、これまで報告された結果^{49,50}(これらもエントロピー項を無視している)から見るとエントロピー項は重要ではないようである。また、交換相関エネルギーは温度に陽に依存せず、温度によるキャリアの各準位の占有確率の変化に伴うキャリアの空間分布の変化だけを考慮すればよいことが示されている^{50,51}。そこで、我々も交換相関エネルギー ϵ_{xc} として絶対 0 度で求められた関数を使い、キャリア密度は有限温度での擬フェルミ分布から求めたものを用いる。一様で中性な electron-hole liquid の交換相関エネルギーは変分法などを用いた進んだ計算が行なわれており、通常用いられる RPA (Random Phase Approximation) に比べ広いキャリア密度の範囲でより良い交換相関エネルギーの値が得られている。このように、密度汎関数法を用いることによってキャリア間の多体効果(交換相関エネルギー)を直接計算せずに取り入れることができる。密度汎関数法を半導体ヘテロ構造に適用することは安藤らによって行なわれた^{47,52,53}。半導体レーザーでは電子と正孔を同時にセルフコンシステントに解かなくてはならない⁵⁴。

計算方法

密度汎関数法による電子状態の計算の方法は次のようなものである。まず、与えられたポテンシャルからエネルギー準位と波動関数を求めて電子と正孔の空間的な分布を決める。キャリア密度から空間電荷ポテンシャルと交換相関ポテンシャルを求め、新たに得られたポテンシャルでエネルギー準位と波動関数を計算し、それらが収束するまでこの過程を繰り返す。

この方法で GaAs 基板上的 $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}/(\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6})_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}$ 量子井戸(5 nm 厚)の電子状態を計算したところ、キャリア密度が $4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ のとき電子に対して付加されるポテンシャルの深さは 45 meV にも達することがわかった⁵⁵。閉じ込めポテンシャルが大きく、有効質量の大きい正孔のほうがより強く局在するため井戸付近では電子にたい

する引力、正孔にたいする斥力の空間電荷ポテンシャルが働く。一方、交換相関相互作用はキャリア密度が大きいところで強くなるから電子と正孔の両方に対して井戸のところで大きな引力となる。電子にたいしては井戸のところで2つのポテンシャルが強め合って大きな引力を与えるが、正孔にたいしてはポテンシャルが打ち消しあうため付加されるポテンシャルは小さい。このため、交換相関相互作用を取り入れることによりキャリアが井戸の近くにより多く分布するようになる。この例のように電子の閉じ込めポテンシャルが比較的小さく、井戸の外へのキャリアの分布が大きいときには空間電荷と交換相関相互作用の両方を考慮する必要がある。空間電荷だけを考える近似(ハートリー近似)^{56,57}は一般に正しい結果を与えない。また、これらのポテンシャルは元の閉じ込めポテンシャルと比べても小さくないため、キャリアの空間分布に与える影響は大きい。このため、キャリアの多体効果を無視して求めた波動関数を用いてキャリアの自己エネルギーを計算してバンドギャップの減少を論ずるのはキャリア密度が小さいときを除いて正しくない。ただし、GaAs/AlGaAs 量子井戸のように閉じ込めポテンシャルが大きいときにはそれほど悪い近似ではなくなる。空間電荷は電子と正孔の空間的分布の違いから生じるから井戸の厚さによってその重要性は変わってくることを注意しておく。

本研究の意義

従来、レーザ活性層となる量子井戸の電子状態の計算では空間電荷ポテンシャルと交換相関相互作用の両方を取り入れたものはなかった。密度汎関数法による計算はヘテロ構造に対するもので電子と正孔のポテンシャルを同時にセルフコンシステントに解くものはなかった。本研究は、電子と正孔の電子状態をセルフコンシステントに解き、更に正孔のバンドの混合をも取り入れた、現時点では最も詳しいものである。

光とキャリアの相互作用

光とキャリアの相互作用を調べるときには同時にキャリアの位相緩和を考える必要がある。これによって光遷移のスペクトルに幅が生じる。このため、利得の表式には δ 関数ではなく、有限の幅を持った線形状関数が現れる。

仮定

以下の仮定をする。

1. 基底として光がないときのキャリアの擬平衡状態での波動関数を用いる。これは、光があまり強くないときにはキャリアの分布は擬平衡状態のフェルミ分布からのずれが小さいとしてもよいから自然な選択である。キャリア分布の変化は擬平衡状態(フェルミ分布)からのずれとして計算の中に入る。
2. 相互作用としてはバンド間の双極子遷移だけを考える。キャリアのプラズマ振動も屈折率には重要だが、キャリア密度の変化がないので別に分けて考える。
3. 長波長近似を使う。この時、同じ波数を持つ電子と正孔の対が光との相互作用に

奇与する。光の波長がキャリアのコヒーレント長より十分長いときにはこの近似は正しい。フォトリック結晶やマイクロキャビティレーザのように光が狭い範囲に閉じ込められているときは成立しなくなるので注意が必要である。

射影演算子法

ここでは長波長近似を使うことにして、ある波数 k の電子正孔対に注目する。この電子正孔対の運動を取り出すために射影演算子 P

$$\langle \mathbf{k}i | P \rho | \mathbf{k}'j \rangle = \delta_{c,v} \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \langle \langle \mathbf{k}i | \rho | \mathbf{k}'j \rangle \rangle_B + (1 - \delta_{c,v}) \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \langle \langle \mathbf{k}i | \rho | \mathbf{k}'j \rangle \rangle_B \quad (3.6-9)$$

を用いる。ここで、 ij は c または v をとる。射影された密度行列の運動方程式を TCL (Time-convolutionless) 形式^{24,25}で展開する。キャリアのバンド内での散乱を表す相互作用ハミルトニアンを H_m とし、意味のある最低次までとった密度行列の運動方程式は次のようになる²²。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{cv}}{\partial t} &= \lambda_v - \gamma \rho_{cv} + \frac{i}{\hbar} (\mu_k E \rho_{cv} - \mu_k^* E \rho_{cv}) \\ &\quad - \int_0^t dt' \text{Re} \langle \langle \mathbf{k}_c | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_c \rangle \rangle_B / \hbar^2 (\rho_{cv} - f_{cv}) \\ \frac{\partial \rho_{vc}}{\partial t} &= \lambda_v - \gamma (1 - \rho_{vc}) - \frac{i}{\hbar} (\mu_k E \rho_{vc} - \mu_k^* E \rho_{vc}) \\ &\quad - \int_0^t dt' \text{Re} \langle \langle \mathbf{k}_v | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_v \rangle \rangle_B / \hbar^2 (\rho_{vc} - f_{vc}) \\ \frac{\partial \rho_{cc}}{\partial t} &= i \omega_c \rho_{cc} - \gamma \rho_{cc} + \frac{i}{\hbar} \mu_k^* E (\rho_{cc} - \rho_{vv}) \\ &\quad - \int_0^t dt' \langle \langle \langle \mathbf{k}_c | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_c \rangle \rangle_B + \langle \langle \mathbf{k}_v | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k}_v \rangle \rangle_B \rangle / \hbar^2 \rho_{cc} \end{aligned} \quad (3.6-10)$$

ここで、注目する波数 k について行列要素を $\rho_{ij} = \langle \mathbf{k}_i | P \rho | \mathbf{k}_j \rangle$, ($ij=c,v$) のように略記した。

この密度行列はシュレディンガー表示である。現象論的にポンピングパラメータ λ_v とキャリアの再結合レート γ を導入した。ここではキャリア分布の擬平衡分布からのずれが小さいとして注目する波数以外のキャリアはフェルミ分布に従っているものとした。

この方程式は従来から良く知られている密度行列方程式²と良く似た形をしていることがわかる。違いはキャリアの緩和を表わす項が従来は緩和時間で表わされていたのに対し相互作用ハミルトニアンの自己相関関数の時間積分を含んで時間に依存する点異なる。この時間依存性が緩和過程における非マルコフ性(memory effect)を表わ

している。バンド内緩和での記憶が速やかに消えるとき、自己相関関数

$\langle \langle \mathbf{k} | \bar{H}_m(t) \bar{H}_m(t') | \mathbf{k} \rangle \rangle_B$ は δ 関数に置き換えられる²⁷。これをマルコフ極限と呼ぶ。この

極限では緩和項の時間積分は実行できて定数(緩和レート)になり、従来の密度行列方程式を与える。このようにここで求めた方程式(3.6-10)は従来の密度行列方程式の自然な拡張になっているといえる。従来の運動方程式で発展してきた概念や手法を適用できるため、式の操作や解釈がやりやすくなっている。また、方程式(3.6-10)に現れる自己相関関数は相互作用のハミルトニアンを決めると標準的な手法で求めることができる。相互作用を決めるいくつかの物性パラメータ(LOフォノンのエネルギー、誘電率、キャリアの有効質量など)を用いて密度行列の運動方程式からキャリアのダイナミクスが求められる。

シングルモード光に対する厳密解と利得の表式

さらに、光がシングルモードのとき密度行列の方程式はラプラス変換を用いて厳密に解くことができる。定常状態での分極密度 P と複素感受率 $\eta = \eta' - i\eta''$ は

$$\begin{aligned} P &= \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \mu_k \hat{\rho}_{cv}(\omega) \\ \eta' &= -\frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \frac{|\mu_k|^2}{2\epsilon\hbar} \text{Im}(T_{cc}(0, \Delta_k)) \\ &\quad \frac{F_c(0) - F_v(0)}{1 + |\chi|^2 (T_{cc}(0) + T_{vv}(0)) \text{Re}(T_{cc}(0, \Delta_k)) / 2} \\ \eta'' &= -\frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \frac{|\mu_k|^2}{2\epsilon\hbar} \text{Re}(T_{cc}(0, \Delta_k)) \\ &\quad \frac{F_c(0) - F_v(0)}{1 + |\chi|^2 (T_{cc}(0) + T_{vv}(0)) \text{Re}(T_{cc}(0, \Delta_k)) / 2} \end{aligned} \quad (3.6-11)$$

となる。ただし、 T_{cc}, T_{cv}, T_{vv} は

$$\begin{aligned} T_{cc}(p) &= \int_0^\infty dt \exp[-(p+\gamma)t - \hbar^{-2} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \text{Re} \langle \langle \mathbf{k}_c | \bar{H}_m(t_1) \bar{H}_m(t_2) | \mathbf{k}_c \rangle \rangle_B] \\ T_{cv}(p) &= \int_0^\infty dt \exp[-(p+\gamma)t - \hbar^{-2} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \text{Re} \langle \langle \mathbf{k}_v | \bar{H}_m(t_1) \bar{H}_m(t_2) | \mathbf{k}_v \rangle \rangle_B] \\ T_{vv}(p, \Delta_k) &= \int_0^\infty dt \exp[-(p+\gamma-i\Delta_k)t - \hbar^{-2} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \langle \langle \langle \mathbf{k}_c | \bar{H}_m(t_1) \bar{H}_m(t_2) | \mathbf{k}_c \rangle \rangle_B \\ &\quad + \langle \langle \mathbf{k}_v | \bar{H}_m(t_1) \bar{H}_m(t_2) | \mathbf{k}_v \rangle \rangle_B \rangle] \end{aligned} \quad (3.6-12)$$

と書き表され、おのおの時間の次元を持つ。ここで、 $\chi = \mu_0 E_0 / \hbar$ はラビ振動数、 d はレーザ活性層の誘電率である。複素感受率の表式は様々な波数（エネルギー）を持つ双極子の反転分布 $F_i(0) - F_i(\infty)$ を線形状関数 $\text{Re}[T_{ii}(0, \Delta_i)]$ の重みをかけて足し上げた形になる。光学利得は線形状関数が Lorentzian のとき従来得られている利得の式と一致する。式の名前はスペクトラルホールバーニングによる飽和を表わす。利得スペクトルの形に対するキャリア緩和の非マルコフ性の影響は山西らによって指摘され⁵、ここで求めた式(3.6-10)と同様な線形状関数が既に得られている。我々は密度行列方程式の厳密解から利得を得たので、線形状関数の導出の理論的な基礎を確かなものにした。また、密度行列方程式は利得の導出だけでなく動的な現象や非線形光学効果も論じることができるため、理論の適用範囲が広がっている。

確率過程モデルによる線形状関数

非マルコフ性が利得や非線形利得に対して及ぼす影響はキャリア散乱を簡単な確率過程でモデル化して調べることができる^{30,31,32}。このモデルでは相互作用ハミルトニアン H_{int} の自己相関関数を次のような2つのパラメータで表わす：

$$\hbar^{-2} \langle \langle \mathbf{k}_i | \tilde{H}_{int}(t) \tilde{H}_{int}(t') | \mathbf{k}_i \rangle \rangle_0 = \delta_i^2 \exp[-|t-t'|/\tau_c] \quad (3.6-13)$$

ここで、 δ_i^2 は散乱の強さを、 τ_c は散乱の相関時間を表わす。相関時間は粒子が散乱の間にもとの状態の記憶を失うまでの時間で $\tau_c=0$ はマルコフ極限にあたる。

$$\begin{aligned} \delta_i^2 &= \langle \langle \mathbf{k}_i | H_{int}^2 | \mathbf{k}_i \rangle \rangle_0 / \hbar^2 \\ \tau_c &= \frac{1}{\delta_i^2} \int_0^\infty dt \langle \langle \mathbf{k}_i | \tilde{H}_{int}(0) \tilde{H}_{int}(t) | \mathbf{k}_i \rangle \rangle_0 / \hbar^2 \end{aligned} \quad (3.6-14)$$

不確定性原理により、相関時間は散乱に伴うエネルギー移動の逆数程度の大きさになる。典型的なエネルギー移動の大きさはフォノンによる散乱ではフォノンのエネルギー、キャリア-キャリア散乱ではフェルミエネルギーである。これらの値は数十 meV だから、相関時間は 10 fs のオーダーになる。線形状関数 $T_{ii}(0, \Delta_i)$ の形はパラメータ $\alpha_i = (d_i^2 + \delta_i^2)^{-1/2} \tau_c$ の値で決まる。 α_i が十分大きいとき ($\alpha_i \gg 1$)、線形状関数は Gaussian になり、反対に α_i が小さい極限 ($\alpha_i \ll 1$) では Lorentzian になる。いずれの極限でも線形状関数の幅は $\delta_i^2 + \delta_i^2$ で決まる。これは分極の緩和が伝導帯と価電子帯の両方で起こることによる。このモデルは、2つのパラメータでキャリアの緩和が非マルコフ的であることの効果を表わすことができる。利得や非線形利得がキャリア緩和の非マルコフ性によって増大することが示された³³。

本研究の意義

本研究では射影演算子法を用いてレーザ利得の表式を求めた。非マルコフ的なキャリア緩和を取り込んだ密度行列方程式を導出し、従来の密度行列理論を拡張した。また、線形状関数を与え、山西らの理論の基礎を確かなものにした。

理論の課題

密度汎関数法の正確さ

ここでは擬平衡状態でのキャリアの電子状態を局所近似による密度汎関数法を用いて求めた。密度汎関数法がどの程度正確かということが問題として残る。別の方法として RPA などによってキャリアの自己エネルギーを計算して、エネルギー期待値を最小化するようにセルフコンシステントな波動関数を決めることも考えられる。この方法では自己エネルギーの計算がやや大変であり、また自己エネルギーの計算値の正しさも問題になる。密度汎関数法との優劣は計算量と正確さ（実験との一致）から判断すべきことである。

時間的に変化する1粒子キャリアエネルギー

また、方程式(3.6-10)を導く際、相互作用ハミルトニアン H_{int} の1次の項はないものとした。これは、1次の項の期待値があらかじめ電子と正孔の1粒子エネルギーと双極子能率に繰り込まれていることにあたる。擬平衡状態では1次の項は前に述べた密度汎関数法で求められた1粒子キャリアエネルギーである。この1粒子エネルギーはキャリア密度と温度に依存する。キャリア-キャリア散乱による緩和は1体近似のハミルトニアンと多体のハミルトニアンとの差によって引き起こされる。このような1次の項を無視する仮定は平衡状態からのずれが小さいときには許される。非平衡状態でもキャリア分布の変化がキャリア密度の変化に比べて十分早いとき、定常状態における密度行列を用いて期待値を計算すると同じことがいえる。ただし、厳密にはキャリアが平衡状態にないときキャリアによるスクリーニングは平衡状態と同じではない。例えば、静的なスクリーニングは平衡状態ではバンドの底 $k=0$ のキャリア数で決まるがこれは一般には成り立たない。非平衡の任意のキャリア分布に対する多体効果を考えた1粒子エネルギーの表式を求めるのは今後の課題である。

キャリアの非平衡分布

ここで述べた理論ではキャリアの緩和が光やキャリア密度の変化に対して十分速く、キャリア分布が擬平衡状態になっていることを仮定している。しかし、たとえ定常状態を考えているときでも光が強くなったときにはキャリア分布はフェルミ分布からずれている可能性がある。キャリアの緩和が遅いときにはたとえバンドの底にあるキャリアが熱的な分布をしてもバンド全体では非平衡分布をしている状況も考えられる。実際、キャリア-キャリア散乱が抑制された低温での n 変調ドープ量子井戸の時間分解発光の解析からこのことが示された³⁴。通常のレーザでもレーザ発振に関わる

バンド端付近のキャリアと注入されるキャリアが直ちに擬平衡状態になるとは考えにくい。特に、光が強いときやレーザアンプの短パルスに対する応答。モードロックレーザの動作ではこのようなキャリア分布の変化は重要になる¹⁴。我々が考えている半導体量子構造ではキャリアの波数分布が変わると空間的な分布も同時に変わるので問題は複雑である。特に、量子ドットではキャリアの緩和が遅くなると考えられ^{15,16}、またキャリアの多体効果¹⁷や空間電荷効果¹⁸も大きいと予想されているから詳しい検討が必要になる。

我々の理論を拡張していく時、最も単純な方法は量子井戸の束縛状態と非束縛状態のキャリア分布がそれぞれ別の擬フェルミ準位を持つフェルミ分布に緩和すると仮定することである。このとき、キャリア分布のフェルミ分布からのずれは小さいものとする。束縛状態と非束縛状態の擬フェルミ準位はキャリアの捕獲・放出確率で結び付けられる。このような取扱いはレート方程式の範囲内では既に行われている。しかし、この方法は本来のキャリア分布をいくつかの擬フェルミ分布で近似しているので、擬フェルミ分布への切り分けかたに任意性がある、どのように分けるのが正しいかを検討する必要がある。例えば束縛状態が2つ以上ある時、どの状態までが1つの擬フェルミ分布で近似できるかは自明ではない。ただ、この方法ではキャリアによるクーロン相互作用の遮蔽に平衡状態のものを使えることなどからキャリアダイナミクスの計算が容易になるという利点がある。

Semiconductor Bloch 方程式

Koch ら¹⁹による Semiconductor Bloch 方程式は fs 領域の半導体の光応答を良く表わすものとして成功している。この方程式では多体効果によるキャリアのエネルギーを時間的に変化する形で取り込んでいる。しかし、多体効果はハートリー・フォック近似の範囲にとどまっている。また、キャリアの空間分布を考えておらず、空間的に一様でない分布をするキャリアの状態を空間電荷と交換相関相互作用をセルフコンシステントに解く形にはなっていない。こうした意味で Semiconductor Bloch 方程式はキャリアの空間的分布の変化を気にする必要のない GaAs 系材料などの超短パルス応答を記述するのに適したものである。これはここで述べた我々の理論が InP 系などの材料でキャリアの空間分布を考慮して定常状態でのレーザ動作を記述しようというのでは相補的であるといえる。

アンサンブルモンテカルロ法

キャリア分布の時間変化を最も詳しく記述できるのはアンサンブルモンテカルロ法であろう²⁰。超短パルス光で励起された半導体のキャリアダイナミクスについてさ

¹⁴ 光が強いときにはたとえ定常状態でも擬平衡状態からのずれが大きいためキャリア分布の変化が重要になる。逆に、擬平衡状態からのずれが小さければ速い現象でも我々の理論で扱える。超短パルスでは光の強度が大きいためキャリア分布がフェルミ分布から大きくずれるようになって、新しい取扱いが必要になる。

¹⁵ モードロックレーザの場合、多モードに展開すればここで述べた理論で対応できるものと思われる。

まざまな計算がなされている。しかし、この方法でもキャリアの空間分布の影響や相互作用を正しく入れようとすると計算量が増大する。例えば、キャリアによるスクリーニングは動的スクリーニングではなく各時間ステップごとに計算した静的スクリーニングを用いている。また、光の時間発展と結合した取り扱いはまだないようである。この方法は強力だが、統一的な結論を見通し良く得るのには向いていない。むしろ様々な近似法の正確さを判定するための基準として用いることができる。

おわりに

半導体レーザの動作をできるだけ正確にかつ簡単に記述するために、キャリアに対する微視的な方程式を導き、キャリア間の相互作用をモデル化して取り入れた。本研究はキャリアの空間分布を考慮して定常状態でのレーザ動作を記述しようとするものである。前節に述べたようにこの理論を更に精密化するには時間に依存した多体問題をキャリアの空間分布も含めて解いていくが必要になる。このような試みはまだ成功していないが、原子核理論などで発展している時間依存ハートリー・フォック方程式や時間依存密度汎関数方程式についての成果を取り込んでいくことでより満足のいく理論ができるものと期待される。このような理論はレート方程式のような単純化された方法の妥当性を検証していくためにも重要である。

文献

- ¹ M. Asada and Y. Suematsu, IEEE J. Quantum Electron., **QE-21** (1985) 434.
- ² M. Yamada and Y. Suematsu, J. Appl. Phys., **52** (1981) 2653.
- ³ N. Ogasawara and R. Ito, Jpn. J. Appl. Phys., **27** (1988) 607.
- ⁴ N. Ogasawara and R. Ito, Jpn. J. Appl. Phys., **27** (1988) 615.
- ⁵ M. Yamanishi and Y. Lee, IEEE J. Quantum Electron., **QE-23**, (1987) 367.
- ⁶ M. Asada, IEEE J. Quantum Electron., **25** (1989) 2019.
- ⁷ D.J. Charin, J. Appl. Phys., **50** (1979) 3858.
- ⁸ R.S. Tucker, J. Lightwave Technol., **LT-3** (1985) 1180.
- ⁹ R. Olshansky, P. Hill, V. Lanaisera, IEEE J. Quantum Electron., **QE-23** (1987) 1410.
- ¹⁰ S. Murata, I. Mito, K. Kobayashi, Electron. Lett. **23** (1987) 403.
- ¹¹ S. Illek, W. Thulke, C. Schanen, H. Lang, and M.-C. Amann, Electron. Lett. **26** (1990) 46.
- ¹² K. Ishida, H. Nakamura, H. Matsumura, T. Kadoi, and H. Inoue, Appl. Phys. Lett. **50** (1987) 141.
- ¹³ C.H. Henry, IEEE J. Quantum Electron. **QE-15** (1982) 259.
- ¹⁴ T.L. Koch and J.F. Bowers, Electron. Lett. **20** (1984) 1038.
- ¹⁵ M. Yamada and H. Ishiguro, Jpn. J. Appl. Phys. **20** (1981) 1279.
- ¹⁶ K. Vahala, L.C. Chiu, S. Margalit, and A. Yariv, Appl. Phys. Lett. **42** (1983) 631.
- ¹⁷ Y. Arakawa and A. Yariv, IEEE J. Quantum Electron. **QE-22** (1986) 1887.
- ¹⁸ C. Ell, R. Blank, S. Benner, and H. Haug, J. Opt. Soc. Am. **B6** (1989) 2006.
- ¹⁹ W.W. Chew, S.W. Koch, M. Sargent, III, and C. Ell, Appl. Phys. Lett. **58** (1991) 328.
- ²⁰ C.H. Henry, R.A. Logan, and K.A. Bertness, J. Appl. Phys. **52** (1981) 4457.
- ²¹ M. Asada, Trans. IECE Japan **E68** (1985) 518.
- ²² A. Tomita and A. Suzuki, IEEE J. Quantum Electron. **27** (1991) 1630.
- ²³ C. Kittel, *Quantum Theory of Solid*. (Wiley, NY., 1963).
- ²⁴ F. Shibata, Y. Takahashi, and N. Hashitume, J. Stat. Phys. **17** (1977).
- ²⁵ F. Shibata and T. Arimitsu, J. Phys. Soc. Jpn., **49** (1980) 891.
- ²⁶ D. ter Haar, *Elements of Statistical Mechanics*, (Rinehart, NY, 1956).
- ²⁷ M. Sargent III, M.O. Scully, and W.E. Lamb Jr., *Laser Physics*, (Addison-Wesley, Reading, MA, 1974).
- ²⁸ G.D. Mahan, Phys. Rev. **153** (1967) 882.
- ²⁹ S. Schmitt-Rink, C. Ell and H. Haug, Phys. Rev. **B33** (1986) 1183.
- ³⁰ R.Kubo, "A stochastic theory of line shape," in *Stochastic Processes in Chemical Physics, Adv. Chem. Phys.* vol. XV, Ed. by K.E. Shuler, (Wiley, NY, 1969).
- ³¹ T. Takagahara, E. Hanamura, and R. Kubo, J. Phys. Soc. Jpn., **43** (1977) 811.
- ³² E. Hanamura, J. Phys. Soc. Jpn., **52**, (1983) 2258.
- ³³ M. Yamada, H. Ishiguro, and H. Nagato, Jpn. J. Appl. Phys. **19** (1980) 135.

- ³⁴ A. Tomita, IEEE J. Quantum Electron. **30** (1994) 2798.
- ³⁵ D.A. Dahl and L.J. Sham, Phys. Rev. **B16** (1977) 651.
- ³⁶ J.M. Ziman, *Principles of the Theory of Solids*, 2nd Ed. (Cambridge University Press, London, UK, 1972) ch.5, p.162.
- ³⁷ H.K. Tsang and I.H. White, Opt. Commun. **74** (1990) 365.
- ³⁸ S. Murata, A. Tomita, and A. Suzuki, IEEE Photon. Technol. Lett. **5** (1993) 16.
- ³⁹ J.E. Ehrlich, D.T. Neilson, and A.C. Walker, IEEE J. Quantum Electron. **29** (1993).
- ⁴⁰ 富田章久、特許広報 特願平 2-160109
- ⁴¹ L.F. Tiemeijer, P.J.A.Thijs, J.J.M. Bisma, and T. v. Dongen, Appl. Phys. Lett. **60**, (1992) 2266.
- ⁴² A. Kimura, Photon. Technol. Lett. **5** (1993) 983.
- ⁴³ A. Tomita, Phys. Lett. **A233** (1997) 115.
- ⁴⁴ P. Hohenberg and W. Kohn, Phys. Rev. **136** (1964) B864.
- ⁴⁵ W. Kohn and L. J. Sham, Phys. Rev. **140** (1965) A1133.
- ⁴⁶ J. M. Luttinger and W. Kohn, Phys. Rev. **97** (1955) 869.
- ⁴⁷ G.E.W. Bauer and T. Ando, Phys. Rev. **B34** (1986) 1300.
- ⁴⁸ P. Vashishta and R.K. Kalia, Phys. Rev. **B25** (1982) 6492.
- ⁴⁹ J. C. Ryan and T. L. Reinecke, Phys. Rev. **B47** (1993) 9615.
- ⁵⁰ S. Das Sarma and B. Vinter, Phys. Rev. **B26** (1982) 960.
- ⁵¹ F. Stern and S. Das Sarma, Phys. Rev. **B30** (1984) 840.
- ⁵² T. Ando, Phys. Rev. **B13** (1976) 3468.
- ⁵³ T. Ando and S. Mori, J. Phys. Soc. Jpn. **47** (1979) 1518.
- ⁵⁴ A. Tomita and A. Suzuki, J. Quantum Electron. **QE23** (1987) 1155.
- ⁵⁵ A. Tomita, Phys. Rev. **B54** (1996) 5609.
- ⁵⁶ D. Ahn and S.L. Chuang, J. Appl. Phys. **64** (1988) 6143.
- ⁵⁷ S. Seki and K. Yokoyama, J. Appl. Phys. **77** (1995) 5180.
- ⁵⁸ A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang, Phys. Rev. **B48** (1993).
- ⁵⁹ H. Benisty, C.M. Sotomayor Torres, and C. Weisbuch, Phys. Rev. **B44** (1991) 10945.
- ⁶⁰ Y. Arakawa, M. Nishioka, H. Nakayama, and M. Kitamura, IEICE Trans. Electr. **E79C** (1996) 1487.
- ⁶¹ S. Schmitt-Rink, D.A.B. Miller, and D.S. Chemla, Phys. Rev. **B35** (1987) 8113.
- ⁶² L.E. Brus, J. Chem. Phys. **80** (1984) 4403.
- ⁶³ M. Linberg and S.W. Koch, Phys. Rev. **B38** (1988) 3342.
- ⁶⁴ S.M. Goodnick and P. Lugli; *Hot carriers in semiconductor nanostructures*, ed. by J. Shah (Academic, NY, 1992) Chap. III.1, p.191.

4.量子井戸レーザーの線形利得

4.1. はじめに

本章は前2章で調べた量子井戸の電子状態と光との相互作用を量子井戸レーザーの特性に応用する。ここではキャリアのサブバンド構造から量子井戸の光学利得を計算し、量子井戸のキャリア間相互作用が線形利得に与える影響を検討する。キャリア間相互作用が重要になる応用例として、量子井戸半導体レーザーの発振波長のキャリア密度依存性と量子井戸を可飽和吸収体として用いるときのレーザーの発振波長と可飽和吸収体のバンドギャップの関係について論じる。キャリアの緩和は線形利得の表式における線形関数として利得に影響を与える。キャリア緩和の影響は非線形利得に顕著に現われるがこれについては第5章で検討する。

さて、キャリア間相互作用が線形利得に与える効果は具体的には次のようなものである。第2章で見たように量子井戸においてはキャリア間の相互作用である空間電荷ポテンシャルと交換相関ポテンシャルによってキャリアのエネルギーや波動関数に変化する。これに伴って光学利得も単純な箱型ポテンシャルのものとは異なってくる。空間電荷ポテンシャルは、電子より正孔の閉じ込めが強いときには正孔に対して井戸への閉じ込めを弱くするように働く。ところが、交換相関相互作用はキャリア密度が大きいく所より大きくエネルギーを低下させるので閉じ込めを強める。このように、交換相関相互作用によって閉じ込めの強いキャリアに対する空間電荷効果は一部打ち消される。また、交換相関相互作用は電子正孔系のエネルギーを低下させるため、キャリア密度によってバンドギャップが変化するようになる(バンドギャップシュリンケージ)。この効果は半導体をキャリア注入によって可飽和吸収体として用いるとき重要となる。可飽和吸収体は利得媒質と集積化されてセルフパルセーションレーザーやモードロックレーザーとして動作させられるが、その場合利得スペクトルと吸収端をうまくあわせることが必要になる。そのためにはバンドギャップ(および利得ピーク)エネルギーのキャリア密度依存性を正確に知らなければならない。本論文では可視光レーザーにおけるセルフパルセーション発生のために必要な可飽和吸収層のバンドギャップの条件を求めた。また、レーザーの温度特性の向上は大きな課題の一つであるが、

可視光の半導体レーザーも長波長帯のInP系レーザーと同様、高温でのしきい値電流の増加が著しい。可視光の半導体レーザー材料ではオージェ効果や価電子帯間吸収の影響は小さいものと考えられるから、利得そのものの温度特性やキャリアのもれが重要になる。これらは量子井戸のキャリア閉じ込めポテンシャルで決められるから、キャリア間相互作用によるポテンシャルの変化は半導体レーザーの温度特性を考えるとときに重要になる。ここでは特に条件の悪い(量子井戸の障壁が低い)635 nm帯半導体レーザーの活性層の材料である(AI)GaInP/AlGaInP量子井戸について歪を変えて利得の温度による変化を調べた。その結果、歪による価電子帯のサブバンド構造の変化よりもX谷に分布するキャリアの影響が大きいことが明らかになった。

4.2. レーザの利得に対するキャリアの空間分布の効果

利得に対する空間電荷ポテンシャルと交換相関ポテンシャルの影響について考えよう。光の強度が0のとき、量子井戸の利得は第3章の式(3.3-28)より、

$$g(N, \omega_0, S) = \frac{\omega_0}{\epsilon \hbar A d} \sum_{(n,m),k} Q_{nm}(\mathbf{k}) |\mu_k^{(n,m)}|^2 \operatorname{Re}(\Gamma_{vc}(0, \Delta_{n,k})) (f_c - f_v) \\ \mu_k^{(n,m)} = \sum_j \langle c | e \cdot \mathbf{r} | v_j \rangle \int \varphi_n^*(z) (f_{m,k}(z)) dz \quad (4.2-1)$$

と書ける。量子井戸の電子状態は第2章で行なったように、キャリアの空間分布を考慮して、空間電荷効果と交換相関ポテンシャルがセルフコンシステントになるように波動関数を求める。量子井戸の波動関数は双極子能率を決め、エネルギーは擬フェルミ準位を通じて分布関数 f_c, f_v の値を決める。この計算にはクーロンエンハンスメント $Q_{nm}(\mathbf{k})$ も含まれている。今回の計算では温度が高く(300 K)、キャリア密度も大きいため、クーロンエンハンスメントは1.5倍から2倍程度で影響は小さいが、低温でキャリア密度が小さいときには無視できない大きさとなる。図4.2-1は量子井戸の光学利得で、多体効果をセルフコンシステントに取り入れた放物線バンド、価電子帯のミキシングを含むハートリー近似、両方を取り入れた計算の3つを示した。これによると放物線バンドの計算では利得を過大評価する。一方、ハートリー近似は利得を過小評価し、利得ピークも高エネルギー側にずれる。ハートリー近似での利得ピークのずれはバンドギャップシュリンケージが入っていないためである。ハートリー近似で利得を過小評価するのは以下の理由による。多体効果によってポテンシャル井戸が深く

なり、電子の量子単位と連続状態のエネルギー差が大きくなって、井戸に束縛された状態により電子が入るようになる。ハートリー近似はこのポテンシャルの増加を一部しか取り入れていないので量子準位から見た擬フェルミレベルが上がらず利得が小さくなる。特にここで調べた系では X 谷が T 点のエネルギーに近い連続状態の状態密度は X 谷の寄与を含んで大きくなり、擬フェルミレベル利得に強く影響する。今回の計算では正孔の連続状態は考慮していないので正孔の擬フェルミレベルはハートリー近似とあまり変わらない(交換相関ポテンシャルを考慮してもサブバンドの位置が平行移動するだけ。)もし、正孔にたいするバンド不連続が小さく井戸への閉じ込めが弱い系では正孔の連続準位も考える必要があり、電子とときと同様な議論からハートリー近似では擬フェルミレベルが小さくなり、利得は更に過小評価される。

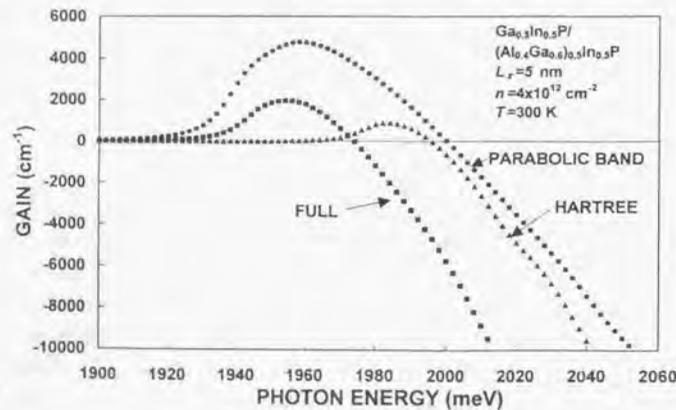


図 4.2-1 量子井戸の光学利得。丸：空間電荷ポテンシャルと交換相関ポテンシャルをセルフコンシステントに考慮するが正孔のサブバンドが放物線のとき、三角：価電子帯のミキシングを考慮したハートリー近似、四角：空間電荷ポテンシャルと交換相関ポテンシャルをセルフコンシステントに考慮し、価電子帯のミキシングも取り入れた計算。

4.3. レーザの発振波長

キャリアの空間分布が無視できる場合

GaAs/AlGaAs 量子井戸では電子に対するポテンシャル障壁が高いため、電子と正孔は井戸によく閉じ込められている。このため、連続準位へのキャリアの分布はほぼ無視することができ、空間電荷の効果も重要でない。そこで、量子井戸に束縛されたキャリアのみを考えて密度汎関数法によって量子準位と波動関数を計算する。井戸幅 11 nm の GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As SQW (Single Quantum Well) について計算したセルフコンシステントなポテンシャルと量子準位の低下をそれぞれ図 4.3-1 と図 4.3-2 に示す。この時、キャリア密度は井戸幅で平均した値で 10^{18} cm^{-3} (面密度 $1.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) とした。また、バンドギャップシュリンケージのキャリア密度依存性は 1/2 乗と 1/3 乗の間だが、キャリア密度が大きくなるにつれて 1/3 乗に近づく。これは樽茶らの実験¹と一致する。

量子井戸レーザの発振波長は共振器に回折格子のような波長選択性のものを用いない限り、利得のピーク波長になる。利得スペクトルはバンド内のキャリア緩和がない場合には結合状態密度を反映した形になるはずである。これは、バンド間遷移においては光の運動量は無視できるから波数の等しい電子と正孔の組が光遷移し、光のエネルギーが決ると光遷移する電子と正孔のエネルギーも一意に決るからである。ところが、半導体ではバンド内緩和が速く、第 3 章で述べたようにエネルギー的に近い電子と正孔も光遷移に寄与できるため利得スペクトルもそれによって変化する。ここでは、利得ピークについての議論を簡単にするために 2 つの極限的な場合—波数保存が完全に成り立つときと完全に破れているとき—について考える。

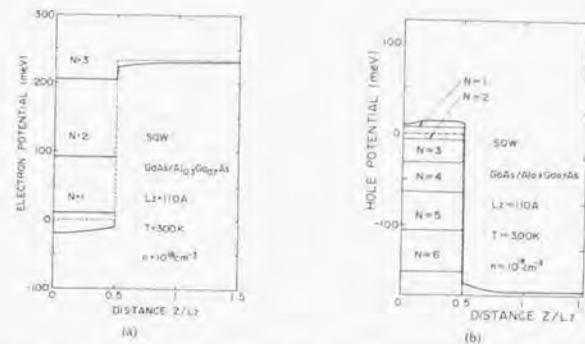


図 4.3-1 井戸幅 11 nm の GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As SQW (Single Quantum Well) について計算したセルフコンシステントなポテンシャル (キャリア面密度 $1.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$)

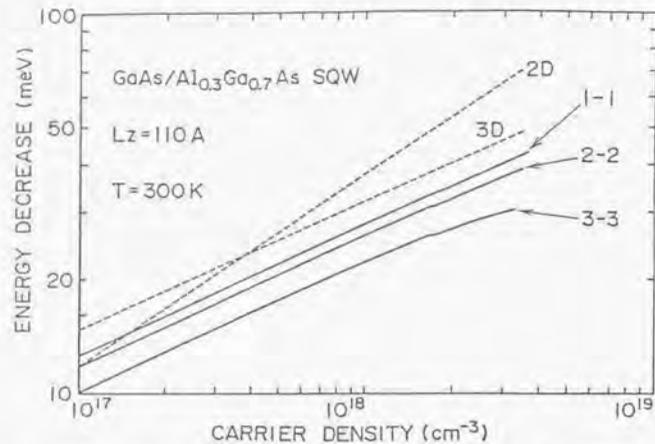


図 4.3-2 井戸幅 11 nm の GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As SQW について計算した量子準位の低下

波数保存が成り立つとき、前にも述べたように利得は結合状態密度と電子と正孔の分布関数の積となる。放物線バンドの近似では、量子井戸の一つのサブバンドの状態密度はエネルギーによらないから、状態密度は $m^2/\pi\hbar^2$ の高さの階段状となる。それゆえ、利得のピークは各サブバンドの底になる。電子と正孔が高次のサブバンドに十分分布するようになると利得のピークは最低次から高次サブバンドの底の間のエネルギーに順次不連続的に移る。バンドギャップシュリンケージまで考慮すると、レーザの発振エネルギー（利得ピーク）はしきい値キャリア密度の増加につれて、低エネルギー側にシフトする。さらにしきい値キャリア密度が増加すると、高エネルギー側の第 2 サブバンド間の遷移にあたるエネルギーに跳ぶ。ただし、バンドギャップシュリンケージのため、本来の第 2 サブバンド間の遷移エネルギーより小さな値となる。

これに対し、波数保存が破れているときにはエネルギー保存則を満たす全ての電子と正孔の組からの寄与を積分して利得が求められる。このため、利得スペクトルの形はブロードになる。さらに、バンドギャップシュリンケージによりキャリア密度の増加に伴ってバンド端は低エネルギー側に動いているにもかかわらず、バンドファイリングのために利得ピークは高エネルギー側にシフトする。利得のピークは高エネ

ギー側にシフトしている。キャリア密度が大きくなるにつれてバンドファイリングの影響が顕著になることは 2 次元系では簡単な議論で示すことができる。バンドギャップシュリンケージはキャリア密度の $1/3$ - $1/2$ 乗に比例する。これに対し、利得ピークのエネルギーはバンドギャップエネルギーを E_g 、電子と正孔のフェルミエネルギーを E_{F_e} 、 E_{F_h} として $E_g + (E_{F_e} + E_{F_h})/2$ のように表わせる。電子と正孔のフェルミエネルギーの平均値 $(E_{F_e} + E_{F_h})/2$ がバンドファイリングを表わしている。シートキャリア密度を n とすると 2 次元系のフェルミエネルギーは

$$E_F = k_B T \ln \left[1 + \exp \left(\frac{\pi m^* k_B T}{h^2} \right) \right] \quad (4.3-1)$$

と書け、キャリア密度が大きいきキャリア密度に比例する。このようなバンドギャップシュリンケージとバンドファイリングのキャリア密度に対する依存性の違いによって、キャリア密度が大きくなるにつれてバンドギャップシュリンケージよりもバンドファイリングが支配的になっていく。このように半導体レーザの発振波長は波数保存が破れているとき、しきい値キャリア密度に依存する。

共振器長の異なる量子井戸レーザの発振波長の測定から、波数保存が成り立っているかを調べることができる。これは、共振器長を変えることでミラー損失の寄与が変えられるからである。短共振器のレーザほどしきい値利得、即ちしきい値キャリア密度が大きくなる。実験で得られたレーザの発振波長と波数保存が完全に破れていると仮定した時の理論値との比較を図 4.3-3 に示す。キャリア密度が大きくなるにつれて第 2 準位間の遷移による利得が現れ、ついには最低準位間の遷移による利得を上回るようになる。ここで、キャリアが存在しないときの遷移エネルギーはそれぞれ、最低準位間が $E_{11}^{(0)} = 852$ nm、第 2 準位間が $E_{22}^{(0)} = 800$ nm であることに注意しよう。最低準位間の遷移による利得ピークはキャリア密度が小さいときは $E_{11}^{(0)}$ より低エネルギー側にあり、キャリア密度の増加に伴ってバンドファイリングのため高エネルギー側にシフトして、 $E_{11}^{(0)}$ より高エネルギーとなる。第 2 準位間の遷移による利得ピークはキャリア密度が大きいくもかわらず $E_{22}^{(0)}$ より低エネルギー側にある。理論と実験の良い一致は波数保存が破れていることが示唆される。短共振器のレーザの発振波長のブルーシフトは湯浅ら³⁾も報告している。利得ピークの測定結果⁴⁾も同じ傾向を示している。以上の結果より、波数保存が破れているとする近似は簡単な割にかなり良いものであるといえる。もちろん、3.3 節で与えたように線形状関数を用いたより正確な計算の方が望ましく、次にそのような計算の例を示す。

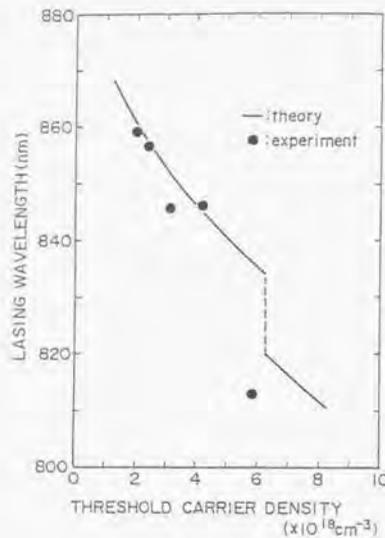


図 4.3-3 波数保存則が完全に破れていると仮定した時の GaAs/AlGaAs 量子井戸レーザーの発振波長と実験値(丸)との比較。

キャリアの空間分布が重要になる場合

ここでは、キャリアの空間分布が重要になる量子井戸の例として InAsP/InGaAsP 系を調べる。この系のバンドラインアップを図 4.3-4 に示す。歪のため軽い正孔に対してタイプ II のバンドラインアップをとる。このため、正孔よりも電子の方が強く閉じ込められる。第 2 章で述べた手法により計算した電子と正孔の第 1 サブバンドエネルギーのキャリア密度にたいする依存性を図 4.3-5 に示す。キャリア密度が大きくなるにつれて遷移エネルギー（電子と正孔のサブバンドエネルギーの和）が小さくなるが、電子と正孔の各々のサブバンドエネルギーの変化は単純ではない。これは今回の計算がキャリアの多体効果による空間的なポテンシャルの変化をセルフコンシステントに扱っているため、従来の 2 次元系の計算では取り入れられていない空間電荷やキャリア分布に依存した交換相関ポテンシャルによるポテンシャル井戸の深さや幅の変化を含んでいるためである。キャリア密度の変化によるポテンシャルの変化を図 4.3-6 に示す。キャリア密度が増加するにしたがって電子のポテンシャルは低下するが正孔のポテンシャルははじめ深くなったあと再び高くなる。これは正孔が非束縛準位に分布す

るようになるからである。一方、レーザーの発振波長は図 4.3-7 に示すようにキャリア密度が大きくなるにつれて高エネルギー側にずれる。これは前に述べたように、キャリア密度が大ききときにはバンドギャップシュリンケージによるエネルギーの低下よりもバンドファイリングが大きいためである。ここでの計算は線形状関数に確率過程モデルを用いて第 2 章と第 3 章に従って計算した。以上のように、キャリアの多体効果を含まないで計算した結果に 2 次元系のバンドギャップシュリンケージを加えただけでは遷移エネルギーの正しいキャリア密度依存性は得られないことを示している。

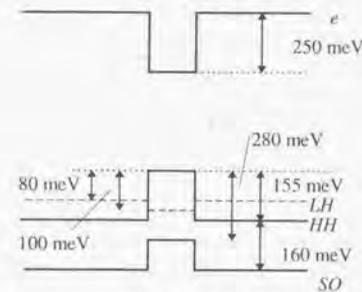


図 4.3-4 InAs_{0.45}P_{0.55}/InGaAsP (1.1%歪量子井戸・1.15 μm組成バリア) のバンド構造

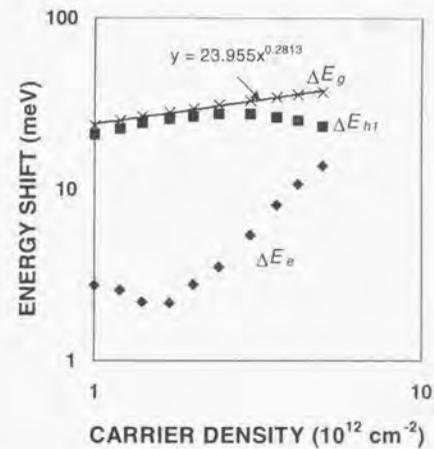


図4.3-5 電子と正孔の第 1 サブバンドエネルギーのキャリア密度による変化。

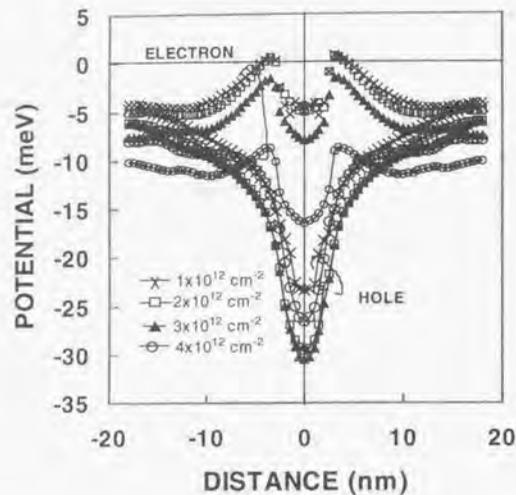


図 4.3-6 キャリア密度によるポテンシャルの変化

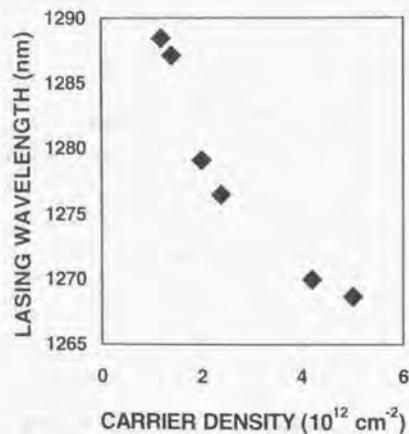


図 4.3-7 InAsP/InGaAsP レーザの発振波長

4.4. 可飽和吸収体の設計

ここでは、共振器内に可飽和吸収体をもつ半導体レーザを考える。このとき活性領域の半導体だけでなく可飽和吸収体の半導体にも相当数のキャリアが励起されていることが多い。応用としてはセルフパルセーションレーザや双安定レーザ、モード同期レーザなどがある。このうちセルフパルセーションレーザは戻り光雑音の小さい光ディスク用光源として期待されている。セルフパルセーションレーザの実現に必要な可飽和吸収体の設計指針を求めよう。設計に必要な物性パラメータとしては、吸収係数、微分利得、キャリア寿命がある。セルフパルセーションの発現には⁸⁾

(1)可飽和吸収体の微分利得が利得領域より大きいことと(2)可飽和吸収体のキャリア寿命が利得領域よりも小さいことが必要である(可飽和吸収体によるモード損失が他の原因によるモード損失と同程度でなければならないがこれはデバイス構造の設計で対応できる。)以下では、活性層と可飽和吸収層が積層されている構造のセルフパルセーションレーザ⁹⁾について考える。この構造では、活性層と可飽和吸収層の組成や層厚を独立に変えることができる。このため、可飽和吸収層を最適化する自由度が他の構造のセルフパルセーションレーザに比べて大きい。ここでは、量子井戸の利得(吸収)の計算から可飽和吸収層のバンドギャップの制御の重要性を指摘し、層構造設計の指針を示したい。

設計に必要な物性パラメータのうち吸収係数や微分利得は発振波長での値が必要なので、波長依存性を知らなければならない。これまでに述べてきたようにキャリアが注入されている半導体のバンドギャップはキャリア密度に依存する。レーザ発振波長における可飽和吸収体の吸収でレーザの特性が決るから、活性層のバンドギャップに対する可飽和吸収体のバンドギャップの位置を正しく決めなければならない。このため、多体効果の影響は通常のレーザに比べて重要である。また、可飽和吸収体のキャリア寿命を短くするためp型にドーピングすることも行われているから⁸⁾、ドーピングのため、電子と正孔の密度が異なる系での利得(吸収)スペクトルを求める必要がある。

通常のレーザは利得スペクトルのピークで発振するが、セルフパルセーションレーザでは利得から可飽和吸収体による吸収の寄与を差し引いた正味のモード利得のピークで発振する。そのためセルフパルセーションレーザのしきい値特性などを正確に知るには発振波長を厳密に求めなければならない。このためには活性層と可飽和吸収層のキャリア密度を知ってバンドギャップシュリンケージやバンドフィリングを計算しなければならない。ここでは、簡単のため利得スペクトルのピークで発振するものとするが、現実のデバイス設計には上のような事情を考慮してキャリア分布、光のフィールド分布と利得・吸収をセルフコンシステントに扱わなければならない。

計算はこれまで述べたような価電子帯のミキシング、空間電荷、多体効果をとりにれたプログラムをもちいた。さらに、ドーピングした構造を扱えるように不純物原子による固定された空間電荷を含めてセルフコンシステントになるように量子準位を計算した。また発光スペクトルも計算できるようにした。計算例として、635 nm 帯で発振する 0.5% 引っぱり歪量子井戸 (井戸幅 8 nm) をとりあげる。もちろん、無歪や圧縮歪など他の構造の量子井戸も同じように計算できる。30 nm の領域にわたって一様に p ドーピングしてあるとし、正孔のシートキャリア密度は $p=1.8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ とした。

利得はキャリア密度を 10^{11} cm^{-2} , $2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, 10^{12} cm^{-2} , $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ として計算した。利得領域のスペクトルを求めるため、可飽和吸収体と同じ構造のアンダーの量子井戸についても計算した。また、微分利得は近似式

$$\frac{dg}{dn} = \frac{g(n+h) - g(n-h)}{2h} \quad (4.4-1)$$

を用いて計算した。ただし、 $h=10^{11} \text{ cm}^{-2}$ とした。

ただし、発光スペクトル $I_s(E, n, p)$ は

$$I_s(E, n, p) = \frac{n_s E^3}{\pi \epsilon_0 \hbar^4 c^3 L_z} \sum_{i,j,k} |\mu_{i,j,k}^{(n,p)}|^2 f_{i,k}^{(n)} (1 - f_{j,k}^{(p)}) \text{Re}[T_{ij}^{(n,p)}(0, (E(\mathbf{k}) - E)/\hbar)] \quad (4.4-2)$$

である。ここで、クーロンエンハンスメントの効果は小さいので無視した。これは計算時間の節約になる。

図 4.4-1 に計算で得られた利得スペクトルを示す。キャリア密度が増加するにつれて吸収が減少する。注意すべきなのは、吸収の裾はバンドギャップシュリンケージのために低エネルギー側にずれ、裾の部分での吸収はキャリア密度が増えるとむしろ増加することである。このため、キャリア密度の増加による吸収の飽和は吸収スペクトルの肩 (バンドギャップエネルギー付近) でもっとも顕著になる。これよりもエネルギーが高くなると高いエネルギー準位へのキャリアの分布が小さくなるため吸収の飽和は小さくなる。

キャリアの注入が小さいとき ($n=10^{11} \text{ cm}^{-2}$) の発光スペクトルを図 4.4-2 に示す。この発光ピークはほぼバンドギャップのエネルギーに対応する。バンドギャップシュリンケージのため p ドープした量子井戸の発光ピークはアンダーの量子井戸のものより 20 meV 低エネルギー側にシフトしている。また、 p ドープした量子井戸の発光強度がアンダーの発光強度の 20 倍程度大きいのは発光再結合確率は Bn, p と書け、電子密度と正孔密度の積に比例するからである (ここではドーピングによる非発光再結合確率の増加に伴う発光強度の低下は考慮されていない)。

微分利得スペクトルを図 4.4-3 に示す。上で述べたように、吸収の裾の部分ではバンドギャップシュリンケージにより吸収が増加するため、これに対応して微分利得が負になるエネルギー領域がある。また、高エネルギー側では高次準位間の遷移のため複雑に振動している。このため、可飽和吸収体の微分利得が、太い実線で示された利得領域のものより大きくなる光子エネルギーの範囲は吸収の肩の付近 (バンドギャップから 20 meV 程度) となる。このことは可飽和吸収体のバンドギャップを 10 meV オーダーの精度で制御しなければならないことを示している。なお、第 2 準位間のエネルギーが大きい量子井戸ではこの範囲は高エネルギー側に伸びる。もう一つ重要なことはキャリア密度が小さいときこの範囲が小さくなることである。つまり、セルフパルセーションにはある程度少数キャリアがあることが望ましい。少数キャリア密度が大きくなると吸収自体が小さくなるだけでなく微分利得の値も小さくなって利得領域の値に近づくためこれも望ましくない。図 4.4-3 で 2 本の矢印は利得スペクトルのピークを表わす。高エネルギー側のものがキャリア密度 $5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ のとき、低エネルギー側のものがキャリア密度 $4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ のときである。同じ構造の量子井戸では利得ピークは可飽和吸収体の微分利得から見た最適なエネルギーより小さくなることがわかる。この計算例では利得ピークは可飽和吸収体の微分利得から見た最適エネルギーより約 20 meV エネルギーが小さい。

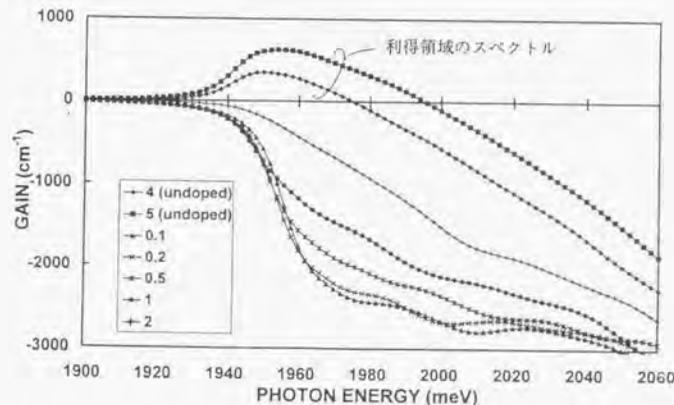


図 4.4-1 計算で得られた利得スペクトル

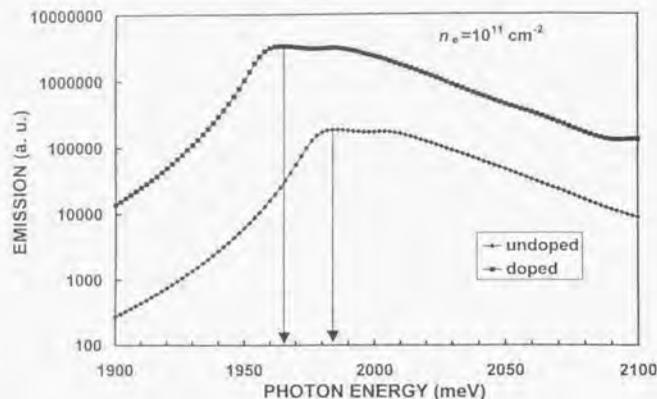


図 4.4-2 キャリアの注入が小さいとき ($n=10^{11} \text{ cm}^{-2}$) の発光スペクトル。この発光ピークはほぼバンドギャップのエネルギーに対応する。

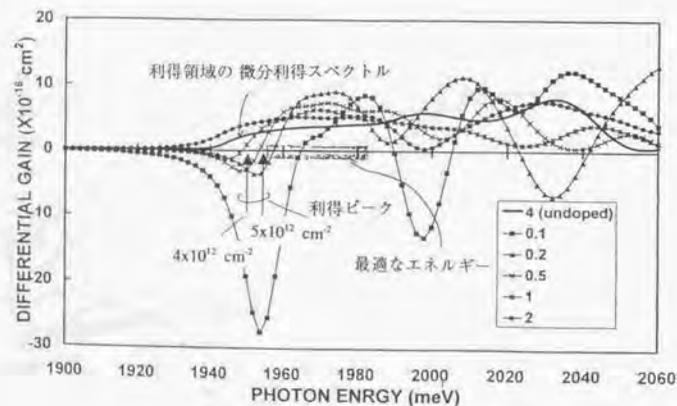


図 4.4-3 微分利得スペクトル

セルフパルセーションに最適な可飽和吸収体のバンドギャップを求めるためにいくつかの数字を整理しておこう。利得領域では利得ピーク $E_{\text{gain peak}}$ は発光ピーク $E_{\text{spont}}^{(G)}$ より 30 meV エネルギーが下がる。

$$E_{\text{spont}}^{(G)} - E_{\text{gain peak}} = 30 \quad (4.4-3)$$

可飽和吸収体では p ドープによりバンドギャップがアンドープの量子井戸より 20 meV 低エネルギー側にシフトしている。すなわち、

$$E_{\text{spont}}^{(A, \text{undoped})} - E_{\text{spont}}^{(A, \text{doped})} = 20 \quad (4.4-4)$$

可飽和吸収体の微分利得から見た最適エネルギーの幅は約 20 meV だからその中央の値はバンドギャップ+10 meV になる：

$$E_{\text{opt}}^{(A)} = E_{\text{spont}}^{(A, \text{doped})} + 10 \quad (4.4-5)$$

これらより、可飽和吸収体の微分利得から見た最適エネルギーが利得ピークと一致するための条件は

$$\begin{aligned} E_{\text{opt}}^{(A)} &= E_{\text{gain peak}} \\ E_{\text{spont}}^{(A, \text{doped})} &= E_{\text{gain peak}} - 10 \\ E_{\text{spont}}^{(A, \text{undoped})} &= E_{\text{gain peak}} + 10 \\ &= E_{\text{spont}}^{(G)} - 20 \end{aligned} \quad (4.4-6)$$

となる。設計指針として可飽和吸収体の遷移エネルギーの設計値（アンドープ）を利得ピーク（発振エネルギー）より 10 meV 高エネルギー側にする、または（同じことだが）利得領域の遷移エネルギーより 20 meV 低エネルギー側にするのである。しかし、この設計指針は特定の量子井戸、ドーピングについて得られたものであり、結果の一般性を検討しておかなければならない。

●まず、可飽和吸収体の吸収スペクトルの肩の部分がレーザーの光子エネルギーと一致させなければならないことは一般的に正しいはずである。はじめに述べたように利得ピークとレーザー発振の光子エネルギーは一致するとは限らないが、可飽和吸収体の吸収スペクトルの肩の部分（量子井戸ではプラトーになる）に光子エネルギー

ギーを設定することから、可飽和吸収体の吸収のエネルギー依存性は考えなくともよいだろう。つまり、発振エネルギーはセルフパルゼーションレーザの設計がうまく行ったなら通常のレーザと同じく利得スペクトルのピークで決まる(共振器損失の光子エネルギー依存性が無視できるとして)。

- 利得ピークはキャリア密度が大きくなると(しきい値利得が高くなったとき)、高エネルギー側にシフトする。これは、4.3節で見たように擬2次元系においてバンドギャップシュリンクエッジがキャリア密度の1/2から1/3に比例するのに対してバンドファイリングはキャリア密度に比例するため、キャリア密度が大きいときバンドファイリングの効果が支配的になるからである。共振器損失が大きいときには利得ピークのシフトのため、可飽和吸収体の遷移エネルギーの設計値(アンドープ)は利得領域の遷移エネルギーに近づけなければならない。
- 可飽和吸収体のバンドギャップシュリンクエッジはドーピングの量で決まるからドーピング量を決めれば多体効果によるバンドギャップシュリンクエッジの大きさは量子井戸にはあまり依存しないだろう。一方、空間電荷ポテンシャルは量子井戸層の厚さやドーピングプロファイルによって変化する。 p ドーピングしたとき正孔は井戸層に閉じ込められるから、ドーピングが井戸層のみの変調ドーブ、一様ドーブ、バリア層への変調ドーブの順に空間電荷の影響が大きくなる。ただ、空間電荷ポテンシャルは電子にも同じだけ働くから、遷移エネルギーとしては大部分が打ち消しあう。エネルギーの変化は空間電荷ポテンシャルが摂動として扱える範囲では、電子と正孔の波動関数をそれぞれ φ_e と φ_h として

$$\begin{aligned} \Delta E &= \Delta E_e + \Delta E_h \\ &= \langle \varphi_e | V_{e,h} | \varphi_e \rangle + \langle \varphi_h | V_{h,h} | \varphi_h \rangle \\ &= \int (\varphi_e^* \varphi_e - \varphi_h^* \varphi_h) N_{e,h} dz \end{aligned} \tag{4.4-7}$$

となるから電子と正孔の空間分布の差が因子としてかかることになる。

- 可飽和吸収体の吸収スペクトルは図4.4-1で見たように少数キャリア密度に依存する。利得領域からのキャリアのもれによって可飽和吸収体の少数キャリア密度がきまり、可視光レーザの材料系ではキャリアのもれは無視できない。

以上の考察をまとめると、ここで求めた指針は少なくとも半定量的には成り立つ。しかし、必要なエネルギーの精度が10-20 meVと小さいため、個々の場合にはカットアンドトライが必要になる。すべてを計算で求めるためにはキャリアのもれを含めたキャリア分布をセルフコンシステントに求める必要が出てくる。そのとき必要とされるシミュレータは光の分布とキャリア分布を求め、ここで行ったようなキャリア密度に依存した利得スペクトルからモード利得を得、発振条件を満たすように注入電

流と光子エネルギーを決めるものである。これは相当複雑なものとなり、実用的には本論文で求めた指針をもとに実験的に最適化すべきである。

4.5. 利得の温度による変化

この節では温度によってキャリアの分布が変化することで生じる利得の変化を調べる。量子井戸の閉じ込めポテンシャルが小さいとき温度が高くなると高次準位や非束縛状態へのキャリア分布が大きくなる。このような状況を正確に論じるには第2章で述べた、電子の連続準位への分布を取り入れて空間電荷ポテンシャルと交換相関ポテンシャルをセルフコンシステントに解く計算が必要になる。量子井戸の特性を向上させるため量子井戸に歪を加えることが良く行われるが、歪による価電子帯の分散の変化と伝導帯のバンド構造の変化がどのように利得に影響を与えるかを検討し、最適な歪を求める。量子井戸のサブバンド構造と利得の計算方法はこれまで述べてきた通りで、量子井戸に与える歪は0, 0.5, 1% (引っ張り), 0.5% (圧縮)の4種類とした。引っ張り歪の量子井戸に対してはバリア層に井戸層と反対の歪を与えている(歪補償)。表1に計算に用いた量子井戸の物性パラメータをまとめて示す。パラメータは2元化合物に対する実験値を線形補間して求めている。ただし、バンドギャップについてはボーイングパラメータを入れて、

$$E_g = x(yE_g^{AlP} + (1-y)E_g^{GaP}) + (1-x)E_g^{InP} - bx(1-x) \tag{4.5-1}$$

とした。ボーイングパラメータ b はGaInPのものを使い、GaAs基板に格子整合したときのバンドギャップの実験値を再現するように決めた。価電子帯の頂上(Γ 点)と伝導帯の Γ 点との直接ギャップについて $b=0.7$ 、X点との間の間接ギャップについて $b=0.46$ とした。ここで、価電子帯の不連続の計算にはハリソンのモデル⁷を使い、権田⁸に従ってAl原子の結合距離をGaP/AlP界面の実験値と合うように補正した。また、静水圧の変形ポテンシャルの値は実験的にはバンドギャップに対するものが得られ、価電子帯のそれは間接的にしか得られない。これまで報告されている計算としてはモデルソリッド理論⁹によるものと擬ポテンシャルを用いたもの¹⁰がある。前者は伝導帯の Γ 点の電子の変形ポテンシャルの値として-5 eV程度の値を与え、伝導帯と価電子帯の変形ポテンシャルは異符号となる。一方、後者は伝導帯の Γ 点の電子の変形ポテンシャルの値が-15 eVで、伝導帯の電子と価電子帯の正孔について同符号となる。両者に共通することは価電子帯の変形ポテンシャルが小さいということである。GaInP/AlGaInP量子井戸に強い引っ張り歪を与えると前者の場合、伝導帯の電子のエネルギーがAlGaInPバリア層で井戸層より低い、タイプII量子井戸となる。逆に後

者の場合には重い正孔バンドのエネルギーがバリア層で井戸層より高いタイプIIになる(電子と軽い正孔はタイプI)。電気伝導やサイクロトロン共鳴の結果によると電子の変形ポテンシャルは10 eV程度以上あり、擬ポテンシャル法で計算した後の方が近い。このため、ここでは擬ポテンシャル法による値を使うことにする。このとき、1% 引っ張り歪を与えた量子井戸では重い正孔バンドがタイプIIになっている。

図 4.5-1に求められた正孔のサブバンド構造を示す。空間的に変化する有効ポテンシャルを付加してもサブバンドの形はほとんど変わらないがエネルギーの値は変化する。1% 引っ張り歪を与えた量子井戸では重い正孔の閉じ込めポテンシャルはバリア層を井戸にするが、正孔の空間分布を計算するとほとんどが井戸層に局在している。これは最低エネルギーの正孔は軽い正孔であり、この状態密度が大きいため重い正孔準位に分布する正孔がほとんどないためである。

	well	barrier	well	barrier	well	barrier	well	barrier
歪 (%)	1	0.6	0.5	-0.37	0	0	-0.5	0
Al組成	0	0.75	0	0.5	0	0.4	0.15	0.5
有効質量(Γ)	0.14	0.19	0.13	0.17	0.12	0.17	0.13	0.18
有効質量(X)	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8
$E_c - E_v$ (meV)	120	180	230	210	320	160	360	120
Δ_{90} (meV)	90	80	90	85	95	85	95	85
E_v (無歪, eV)	-7.27	-7.43	-7.25	-7.38	-7.23	-7.37	-7.25	-7.41
E_c (eV)	2.11	2.21	2.00	2.12	1.90	2.15	1.89	2.22
γ_1	4.44	4.46	4.51	4.49	4.58	4.45	4.62	4.42
γ_2	0.65	0.59	0.68	0.62	0.71	0.61	0.71	0.59
γ_3	1.38	1.42	1.40	1.42	1.43	1.41	1.45	1.40
C_{11} (10^{11} dyn cm $^{-2}$)	12.7	11.6	12.4	11.8	12.1	12.0	11.8	12.0
C_{12} (10^{11} dyn cm $^{-2}$)	5.99	5.91	5.96	5.91	5.92	5.94	5.88	5.95
a_c (eV)	-15.3	-14.0	-15.1	-14.3	-14.9	-14.5	-14.6	-14.4
a_v (eV)	-4.55	-3.73	-4.46	-3.93	-4.37	-4.07	-4.18	-3.95
b (eV)	-1.54	-1.76	-1.57	-1.71	-1.59	-1.67	-1.65	-1.70
E_c (eV)	-5.29	-5.12	-5.29	-5.17	-5.29	-5.19	-5.25	-5.55
E_v (eV)	-5.06	-5.00	-5.01	-5.00	-4.97	-5.03	-4.94	-5.05
E_c (eV)	-7.37	-7.33	-7.28	-7.30	-7.19	-7.35	-7.16	-7.38
E_v (eV)	-7.25	-7.42	-7.11	-7.35	-7.19	-7.35	-7.22	-7.38
ΔE_c (eV)	0	0.18	0	0.12	0	0.1	0	0.09
ΔE_v (eV)	0.24	0.29	0.28	0.30	0.32	0.26	0.31	0.21
ΔE_x (eV)	0	-0.04	0	0.02	0	0.15	0	0.23
ΔE_y (eV)	0	0.17	0	0.13	0	0.15	0	0.16
誘電率	11.6	11.5	11.7	11.6	11.8	11.5	11.8	11.5
幅 (nm)	16	10	8	11	5	12.5	5	12.5

表1 計算に用いた物性パラメータ

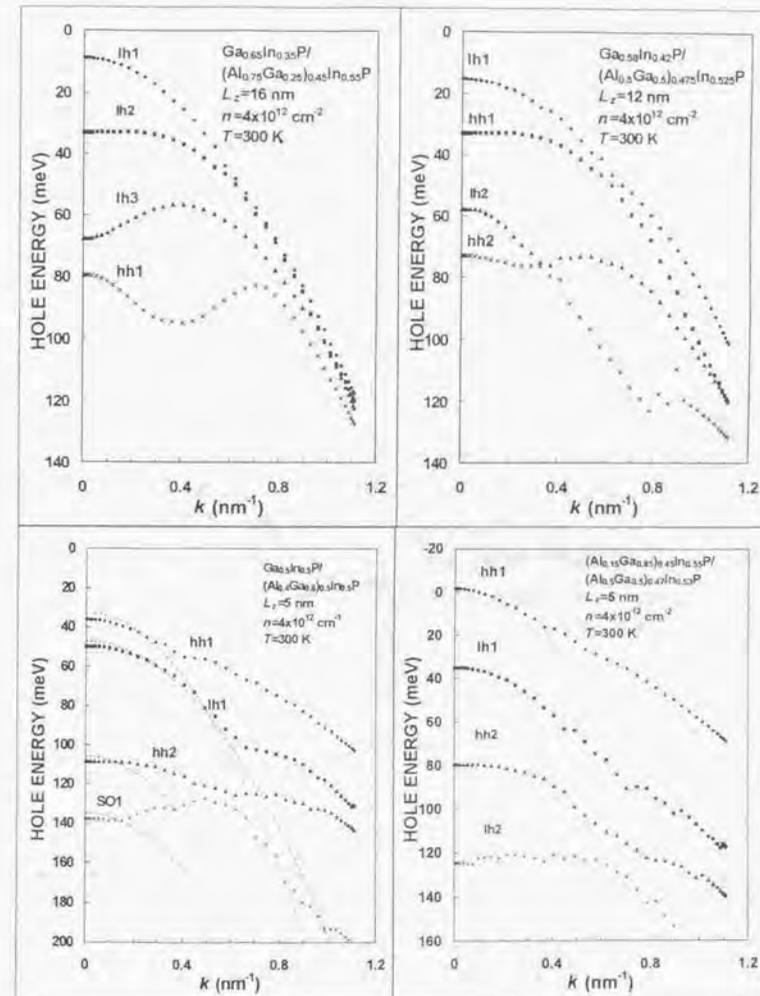


図 4.5-1 量子井戸の正孔のサブバンド構造

次に利得を計算した。温度に対する依存性を検討するため 300 K と 350 K の 2 つの温度について計算した。利得のピーク値はキャリア密度 n の関数として

$$g_{\max} = g_0 \ln(n/n_0) \quad (4.5-2)$$

でよく近似できる。ただし、 n_0 は透明になるときのキャリア密度、 g_0 は係数で、 g_0/n_0 はキャリア密度が n_0 のときの微分利得となる。表 2 に各々の量子井戸について得られた利得のパラメータを示す。各種の歪量子井戸のレーザ活性層としての特性を議論するためにモード利得を用いる。モード利得がレーザの損失と等しくなったときレーザ発振が始まる。モード利得は量子井戸を活性層としてレーザを作ったとき、閉じ込め係数を Γ として $g_{\text{mode}} = \Gamma g_{\max}$ で与えられる。以下、簡単のため量子井戸の屈折率や偏光方向による閉じ込め係数の違いを無視して、閉じ込め係数が単純に井戸の幅に比例するものとした：

$$g_{\text{mode}} = \Gamma_0 L_z g_{\max} \quad (4.5-3)$$

もちろん、式(4.5-3)は得られるモード利得の目安を与えるだけで、正確なレーザの設計のためには閉じ込め係数を実際の導波路についてのおおの計算する必要がある。図 4.5-2 に式(4.5-4) を用いて計算した量子井戸のモード利得をキャリア密度の関数として示す。ここでは井戸数を 1 としている。しきい値キャリア密度は図 4.5-2 の曲線とレーザの損失を表わす直線

$$\alpha = \Gamma_m + \Gamma_{\text{ind}} + an \quad (4.5-4)$$

との交点から求められる。ただし、 Γ_m はミラーロス、 Γ_{ind} はクラッド層での自由キャリア吸収であり、第 3 項の an は活性層での自由キャリア吸収である。キャリア密度 n を面密度で表わしておくとき a は閉じ込め係数に依らなくなる (第 3 章を参照)。自由キャリア吸収はキャリアの有効質量によって変わるから活性層を構成する量子井戸の組成によって a は異なった値を取る。

	1% 引張り歪		0.5% 引張り歪		無歪		0.5% 圧縮歪	
	300 K	350 K	300 K	350 K	300 K	350 K	300 K	350 K
温度	300 K	350 K	300 K	350 K	300 K	350 K	300 K	350 K
n_0 (10^{12} cm $^{-2}$)	3.8	5.0	3.0	4.0	3.0	3.93	3.0	3.9
g_0 (cm $^{-1}$)	4400	2800	5000	4900	6900	6600	7100	6200

表2 計算で得られた利得のパラメータ

図 4.5-2 からわかるように室温(300 K)では圧縮歪レーザは小さなキャリア密度で透明となるのでしきい値利得が小さいとき低いキャリア密度を与える。しかし、しきい

値利得が大きくなると圧縮歪量子井戸の利得は早く飽和し、引張り歪量子井戸の方がしきい値利得が小さくなる。これは、最低正孔サブバンドの状態密度が圧縮歪量子井戸で小さく引張り歪量子井戸で大きいためである。ところが、温度が 350 K に上がると圧縮歪量子井戸の利得の低下が著しく、しきい値利得が小さいときでも無歪や引張り歪量子井戸の方がしきい値キャリア密度が小さくなる。最低正孔サブバンドの状態密度の議論からすると温度特性は圧縮歪量子井戸が優れているはずで、実際長波長帯(1.55 μm 帯)のレーザに用いる InP 系材料での計算では圧縮歪量子井戸で良好な利得の温度特性が得られている。この事は、可視光の量子井戸では最低正孔サブバンドの状態密度以外の要因で利得の温度特性が決まっていることを示している。そこで、この要因を調べるため、最低サブバンド端のキャリア密度 n_{ind} を電子と正孔について見積もった。このキャリア密度は近似的に (キャリア散乱を無視したとき) 利得に関与するキャリアの密度となる。これらはバンド端での状態密度 ρ と擬フェルミ準位 ϵ_f から次の式で求められる。

$$n_{\text{ind}} = \rho \frac{1}{1 + \exp[(\epsilon_0 - \epsilon_f)/k_b T]} \quad (4.5-5)$$

ただし、 ϵ_0 はバンド端のエネルギーである。は温度が 300 K から 350 K に上がったときのサブバンド端でのキャリア密度の変化を示している。正孔のサブバンドのキャリア密度は状態密度が小さい圧縮歪量子井戸で最も温度依存性が小さく、これは長波長帯材料での計算結果と一致する。これに対して電子のバンド端でのキャリア密度の変化は無歪や弱い引張り歪で小さくなる。また、結合状態密度から求めた電子-正孔対の密度も電子と同じ傾向をもつ。つまり電子の分布が利得の温度特性に影響を与えている。そこで、電子が束縛準位と連続準位間でのように振り分けられるかを調べる。図 4.5-3 によると X 谷に分布する電子の密度は温度によって大きく変化し、この分布の変化が利得の温度特性を決めている。温度の上昇によって最低サブバンドに分布する電子が減少した分のほとんどは X 谷がとり、他のサブバンドに分布する電子の数は温度によってあまり変化しない。これは、ここで検討した GaInP/AlGaInP 系材料では X 点のエネルギーが Γ 点に近いので、状態密度の大きい X 谷に高エネルギーの電子が多く分布するためである。表 1 の物性パラメータを使って量子井戸の Γ 点のエネルギーと井戸またはバリアの X 点のエネルギー (よりエネルギーが低い方) の差を比べると、差が小さい方から圧縮歪-引張り歪(1%)、無歪-引張り歪(0.5%)の順になる。これは利得の温度特性が良くなる順と同じで、 Γ 点と X 点のエネルギー差が電子の分布(図 4.5-3)を通じて利得の温度特性を決めていると結論できる。つまり、 Γ 点と X 点のエネルギー差が大きいほど利得の温度による変化が小さい。

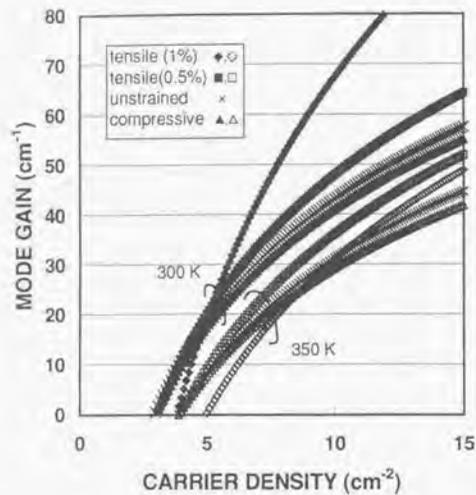


図 4.5-2 1種の量子井戸のモード利得

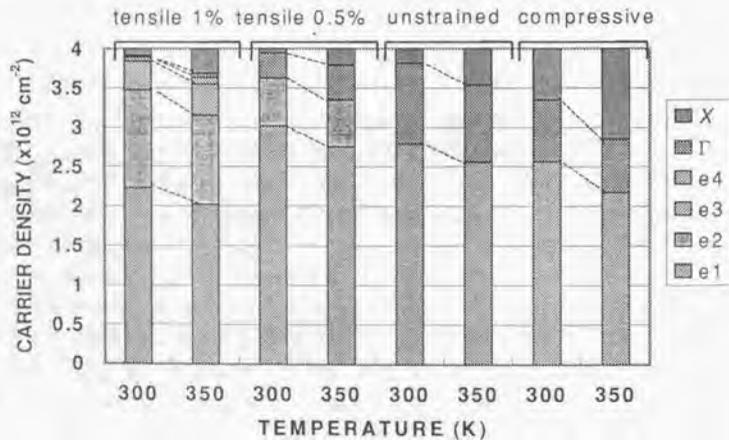


図 4.5-3 電子の分布の温度に対する変化

以上より、引張り歪量子井戸では、井戸での Γ 点と X 点のエネルギー差が小さくなる
ことが問題になる。設計上、強歪による利得改善と X 谷への電子の分布による利得低
下とのトレードオフになる。今回の結果によれば635 nm 帯レーザーでは歪量0.5%程度
が最良と思われる。圧縮歪量子井戸では歪のために井戸の Γ 点とバリアの X 点のエネ
ルギー差が小さくなる。井戸のバンドギャップが小さくなるため井戸にAlをいれた
り、井戸幅を狭くして電子のエネルギーをあげているためこの差はさらに小さくなる。
この事から、635 nm 帯レーザーでは圧縮歪による特性改善は期待できそうにない。この
節で明らかになったように、キャリアの連続準位の状態密度が大きく量子井戸の閉じ
込めポテンシャルが小さい場合には連続準位（特に X 谷）へのキャリアの分布が利得
の温度特性を支配する。歪の導入は、温度特性に関する限り、正孔のサブバンド構造
の変化よりも、組成の変化と変形ポテンシャルの符号の違いによる伝導帯のバンド構
造の変化（ Γ 点と X 点のエネルギー差）の影響が大きい。

4.6. まとめ

量子井戸の光学利得スペクトルを計算した。この応用として量子井戸レーザーの
発振波長を検討した。発振波長はキャリアの空間分布が無視できるGaAs系の量子井
戸レーザーでは多体効果によるバンドギャップシュリンケージとバンドフィリングによ
って決まる。しきい値キャリア密度が大きい時にはバンドフィリングが支配的になり、
発振波長はしきい値キャリア密度の増大につれて短波長化する。閉じ込めが弱く、キ
ャリアの空間的な広がりが無視できないGaInP系やInP系の量子井戸ではこれに加え
てキャリア密度の増大によるポテンシャルの深さや形の変化が量子準位に影響するた
めより複雑な変化を示す。キャリア密度の変化による利得(吸収)スペクトルの変化は
レーザー媒質を可飽和吸収体として用いるとき重要である。本論文では可視光セルフパ
ルゼーションLDを得るのに必要な可飽和吸収体のバンドギャップ設計を行った。

また、本章の最後では可視光量子井戸レーザーの利得の温度による変化を検討
し、井戸に束縛されない連続準位の電子の影響が強いことを示した。連続準位へのキ
ャリアの分布は閉じ込めポテンシャルによって大きく変わるから、キャリア間の静電
ポテンシャルや交換相関ポテンシャルをセルフコンシステントに解く本論文の手法は
極めて有効である。歪が大きい可視光量子井戸レーザーで温度特性が良くないことは実
験的にも知られている。従来これは結晶品質の劣化だと思われていたが本研究により
バンド構造に起因するものであることが明らかになった。可視光レーザーにおける歪の
限界を示したことにより強歪量子井戸の成長に関する研究が不要になり可視光レーザー
研究の加速化に貢献することができた。

文献

- ¹ S. Tarucha, Y. Horikoshi, and H. Okamoto, Jpn. J. Appl. Phys. **23** (1984) 874.
² 杉本満則, 私信。
³ T. Yuasa, T. Yamada, K. Asakawa, S. Sugata, M. Ishii, and M. Uchida, Appl. Phys. Lett. **49** (1986) 1007.
⁴ P.T. Landberg, M.S. Abrahams, and M. Osinski, IEEE J. Quantum Electron. **QE-21** (1985) 24.
⁵ M. Ueno and R. Lang, J. Appl. Phys. **58** (1985) 1682.
⁶ H. Adachi, S. Kamiyama, I. Kidoguchi, and T. Uenoyama, IEEE Photon. Technol. Lett. **7** (1995) 1406.
⁷ W.A. Harrison, *Electronic Structure and the Properties of Solids* (Freeman, San Francisco, 1980); J. Vac. Sci. Technol., **14** (1977) 1016.
⁸ 権田俊一, 応用物理 **55** (1986) 570. ただし, この方法は根拠のあるものではない。
⁹ C.G. Van de Walle, Phys. Rev. **B39** (1989) 1871.
¹⁰ A. Blacha, H. Presting, and M. Cardona, Phys. Stat. Sol. **b126** (1984) 11.

5. 量子井戸レーザーの非線形利得と高速変調

5.1. はじめに

本章では量子井戸レーザーの非線形利得とそれに関連が深い高速変調について検討する。現在高速光源としては外部変調器や変調器集積レーザーの利用が一般的になり、直接変調の重要性は以前より小さくなったが、2.5Gb/s以下では直接変調が用いられる。より高速の直接変調が低チャープで実現できればコストの低いインパクトがおおきい。また、非線形利得は半導体レーザー(アンプ)を非線形媒質とした機能素子(波長変換など)の動作メカニズムとしても重要である。

非線形利得は光の強度が大きくなると半導体の利得が飽和する現象である。これにはいくつかのメカニズムが考えられるが、キャリアのバンド内緩和の速さによって重要となるものが異なってくる。緩和が速ければキャリア分布は全体として擬熱平衡状態をとる。しかし、キャリアの温度や密度が光がない状態から変化して利得が小さくなって非線形利得が現れる(ホットキャリア効果)。緩和が弱いときには誘導放出で増幅される光の近くの波長の利得が遷移に関わるキャリアの枯渇のために飽和する(スペクトラルホールバーニング)。このようにキャリアの緩和は利得や利得の飽和に大きな影響を与える。

本章は非線形利得のメカニズムについて理論と実験から検討する。まず、非線形利得が半導体レーザーの高速応答に与える影響をレート方程式を用いて示す。次にスペクトラルホールバーニングによる非線形利得を第3章で展開した新しい密度行列理論を用いて検討する。キャリアヒーティングについても簡単に調べ、変調実験と理論を比較して非線形利得のメカニズムを考える。

5.2. レート方程式による半導体レーザーの応答の解析

第3章ではキャリア緩和の非マルコフ性が線形関数の変化として現われるのを見た。線形関数は利得だけでなく、スペクトルホールバーニングの大きさや形を決める。このため、キャリア緩和の非マルコフ性により光による利得の飽和（非線形利得）が変わりレーザーの高速応答に大きな影響を与える。ここでは、まずレート方程式によって半導体レーザーの高速応答を決めているパラメータを求める。

レート方程式は第3章より

$$\begin{aligned} \frac{dN}{dt} &= \Lambda - \gamma N - g(N, \omega, S)S \\ \frac{dS}{dt} &= -2\kappa S + \Gamma g(\omega_0, N, S)S \end{aligned} \quad (5.2-1)$$

で与えられる。ここではレーザー光に自然放出光が結合することを無視している。小信号に対する応答を調べるためレート方程式を定常解の周りで線形化する。レーザーの周波数応答は¹²⁾

$$\left| \frac{R(\omega)}{R(0)} \right|^2 = \frac{\omega_0^4}{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + (\gamma_d \omega)^2} \quad (5.2-2)$$

で与えられる。ただし、 ω_0 は緩和振動角周波数、 γ_d はダンピングファクターでそれぞれ次のようにかける：

$$\begin{aligned} \omega_0^2 &= \frac{1}{\tau_p} \left(\frac{\partial g}{\partial N} \right) S \\ \gamma_d &= K \left(\frac{\omega_r}{2\pi} \right)^2 \\ K &= (2\pi)^2 \tau_p \left[1 - \Gamma \left(\frac{\partial g / \partial S}{\partial g / \partial N} \right) \right] \end{aligned} \quad (5.2-3)$$

ただし、 τ_p は光子寿命で $\tau_p = 1/(2\kappa)$ である。K は K ファクタとよばれ、式(5.2-2)から応答が DC のときの 1/2 となる周波数である最大変調周波数 f_{\max} は

$$f_{\max} = 2^{1/2} \pi K^{-1} \quad (5.2-4)$$

で表わされる。K ファクタが小さいほど高速応答が得られる。式(5.2-3)より、K ファクタの第1項は光子寿命であり、第2項が非線形利得の効果を表わしている。現在のデバイスでは第1項よりも第2項が支配的である。第2項を特に非線形 K ファクタとよぶことにしよう。非線形利得係数 ϵ を

$$\epsilon = -\Gamma \tau_p \left. \frac{\partial g}{\partial S} \right|_{S=0} = -\frac{1}{g_N} \left. \frac{\partial g}{\partial S} \right|_{S=0} \quad (5.2-5)$$

と定義すると非線形 K ファクタは

$$K_{NL} = \frac{4\pi^2 \epsilon}{\partial g / \partial N} \quad (5.2-6)$$

と表わせる。非線形利得係数に現われる微分係数 $(\partial g / \partial S)$ は全ての利得飽和の効果を含めたものである。利得飽和メカニズムとしてはスペクトラルホールバーニングの他、キャリアの温度上昇(キャリアヒーティング)が考えられる。半導体レーザーにおいてスペクトラルホールバーニングが起きることは Frankenberg らの実験で確かめられている¹⁴⁾。また、キャリアヒーティングは半導体レーザーアンプのパルス光に対する応答の時定数から示唆され、最近仁道らの時分解 EL スペクトル測定によって確かめられた⁵⁾。

5.3. スペクトラルホールバーニングによる非線形利得

非線形利得の表式と変調応答

スペクトラルホールバーニングがあるときの利得は

$$g(N, \omega_0, S) = \frac{\omega_0}{\epsilon \hbar V} \sum_k |\mu_k|^2 \operatorname{Re}(T_{\omega}(0, \Delta_k)) \frac{f_s - f_v}{1 + (|\mu_k|^2 \omega_0 S / \epsilon \hbar) (T_{\omega}(0) + T_{\nu}(0)) \operatorname{Re}(T_{\nu}(0, \Delta_k))} \quad (5.3-1)$$

で与えられている。レーザが定常状態にあるときにはピークでの利得の値はしきい値利得に固定される。このため、レーザの周波数応答を考えると利得一定の条件での微分利得の変化が問題になる。ただし、ここでは発振波長が変化しないDFBレーザなどを考えている。しきい値キャリア密度の変化に伴う屈折率の変化による発振波長の変化は利得スペクトルの幅に比べて小さいので無視する(注入同期レーザなど位相が重要な役割をする場合には注意が必要である)。光出力の増加に対する微分利得の減少を図5.3-1に示す。ここでは、発振波長を利得ピークにとっている。利得と同様に非マルコフ的なキャリア緩和は非線形性を増大させている。微分利得の大きさは緩和振動周波数や変調特性を決めている。図5.3-1によると緩和の相関時間が長いと光出力が小さいときの緩和振動周波数は高いが光出力が大きくなると急激に下がり、相関時間が短いときよりも緩和振動周波数が小さくなることわかる。微分利得の低下はスペクトルホールバーニングによる直接の飽和(式(5.3-1)の分母)の他に利得の飽和によるしきい値キャリア密度の増加によっても起きる。これは、レーザが利得一定の条件で動作しているからである。この点で量子井戸レーザは特に微分利得の飽和が大きい。これは、微分利得のキャリア密度に対する飽和が著しいからである。

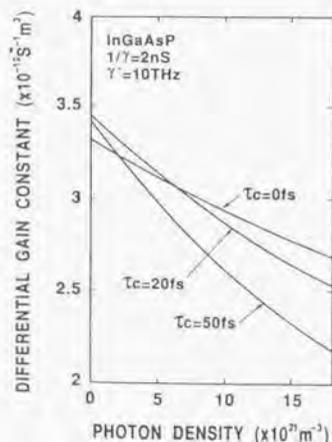


図 5.3-1 光飽和(非線形利得)による微分利得の変化

非線形利得係数は利得の光子密度についての微分係数と閾値利得の比で表わされる。光子密度についての利得の微分係数は

$$\frac{\partial g}{\partial S} = \frac{1}{V} \sum_k \left[\frac{\omega \mu_k^2}{\epsilon \hbar} \text{Re}[T_w(0, \Delta_k)] \right]^2 \frac{(T_{tr}(0) + T_{tr}(0))(F_s(0) - F_s(0))}{[1 + |\chi|^2 (T_{tr}(0) + T_{tr}(0)) \text{Re}[T_w(0, \Delta_k)]/2]} \quad (5.3-2)$$

であるから、利得の式(5.3-1)と比べると $(\omega \mu^2 / \epsilon_0 \hbar) (T_{tr}(0) + T_{tr}(0)) \text{Re}(T_w(0, \Delta_k))$ という因子がかかっていることだけが違っている ($S \rightarrow 0$ のとき)。和の中で最も寄与の大きい $\Delta_k = 0$ だけをとると、非線形利得係数は式(5.3-2)と式(5.3-1)を約分して

$$g = \frac{\omega \mu^2}{\epsilon_0 \hbar} (T_{tr}(0) + T_{tr}(0)) \text{Re}(T_w(0)) \quad (5.3-3)$$

となる。この近似の範囲では非線形利得係数の性質について以下のことがいえる:

- (i) 非線形利得係数はしきい値利得に対する依存性が小さい。
- (ii) また、状態密度に対する依存性も小さい。
- (iii) 用いる光の波長が同じなら非線形利得係数は双極子能率に比例する。
- (iv) 非線形利得係数はバンド内緩和が速いほど小さくなる。特に緩和時間近似では、非線形利得係数は電子の緩和時間 τ_c と正孔の緩和時間 τ_v の積に比例する。

これらはこれまで得られている実験結果と矛盾しない。(i)、(ii)はこの近似で非線形利得係数(5.3-3)がフェルミ分布関数を含まないことからきている。これは、利得と利得の光子密度に対する微分係数が同じ形でフェルミ分布関数に依存しているため分子と分母の寄与が打ち消し合うためである。微分利得 $\partial g / \partial N$ はしきい値利得が大きくなると小さくなっていくから、(i)から非線形Kファクタはしきい値利得が低いほど小さく、レーザが高速応答できることになる。(ii)は価電子帯の状態密度が異なる歪量子井戸においても非線形利得係数は緩和時間の変化による間接的な効果を除いて変わらないことを示している。これと(i)の結果から非線形利得係数は材料による差が小さいことがわかる。これらのことから、半導体レーザのKファクタを小さくして高速応答を可能にするためには微分利得を大きくするのが有効であると結論される。微分利得を大きくする手法として歪量子井戸⁹⁾の利用や、活性層のpドープ¹⁰⁾、発振波長の短波長側へのデチューニング¹¹⁾等が考えられる。

また、(iii)より緩和時間を制御することで非線形利得を抑える可能性があることがわかる。緩和時間を短くすれば非線形利得は小さくなるがそれでは線形状態関数の幅が広がって利得が小さくなるため好ましくない。簡単のため緩和時間近似で考えると、線形状態関数の幅 γ は $\gamma = \tau_c^{-1} + \tau_v^{-1}$ で与えられる。このうち最も大きいのは τ_c^{-1} であり、

線形状関数の幅は正孔の緩和時間 τ_h でほぼ決定される。一方、非線形利得係数は電子の緩和時間 τ_e と正孔の緩和時間 τ_h の積に比例するから何らかの方法で電子の緩和時間を短くできれば利得にはあまり影響を与えずに非線形利得を小さくできることになる。

非線形利得係数がしきい値利得に依存しないという性質はしきい値利得が大ききときにはほぼ正しい。しかし、しきい値利得が小さいときは和をきちんと評価する必要がある¹²。これは以下のような事情のためである。式(5.3-2)で $(\partial g/\partial S)$ の表式には線形状関数の2乗がかかっている。これは利得の飽和が起きるとき、反転分布に開く穴を表わすために線形状関数が1回かかると、利得を求めるために利得に寄与する電子正孔対の和を計算するときにもう1回かかるためである。線形状関数の2乗は線形状関数そのものよりも鋭いピークをもち、裾の広がりも小さい。このため、 $(\partial g/\partial S)$ には利得に対するよりも線形状関数のピーク付近のエネルギーをもつ電子正孔対の寄与が大きくなり、高いエネルギーの電子正孔対の寄与は逆に小さくなる。レーザ媒質として用いるとき半導体の低エネルギー側の電子正孔対は誘導放出を起こし($f_e f_h > 0$)、高エネルギー側の電子正孔対は光を吸収する($f_e f_h < 0$)。このため、低エネルギーの光に対しては誘導放出の寄与が大きく利得をもち、高エネルギーの光に対しては損失となる。2つの寄与がつりあうエネルギーの光への利得は0になる(nonlinear transparent region)。ところが上の議論から $(\partial g/\partial S)$ には線形状関数のピーク付近のエネルギーをもつ電子正孔対の寄与が大きいため、このエネルギーでも $(\partial g/\partial S)$ は0でなく負の値をとる。このため、nonlinear transparent regionでもポンププローブ法によって透過率の変化が観測される¹³。利得の光子密度についての微分係数 $(\partial g/\partial S)_{S=0}$ の利得に対する依存性は(この微分係数はもちろんキャリア密度の関数だがここではキャリア密度の増加関数である $S=0$ における利得 g_m を独立変数として扱っている)比例 $(\partial g/\partial S)_{S=0} = -\epsilon' g_m$ ではなく小さな負の切片 $-\delta$ ($\delta > 0$)を持った関数

$$\left. \frac{\partial g}{\partial S} \right|_{S=0} = -\delta - \epsilon' g_m \quad (5.3-4)$$

とすべきである。このことは、数値計算からも確かめられる(図5.3-2)。非線形利得係数はしきい値利得が小さいとき急激に大きくなることが結論される。また、しきい値利得が大ききときには非線形利得係数はしきい値利得に対して緩やかに減少する。

非線形 K ファクタは $(\partial g/\partial S)_{S=0}$ と微分利得 $(\partial g/\partial N)_{S=0}$ の比で表わされる。微分利得もしきい値利得の増加にしたがって減少する。しきい値利得が小さいとき $(\partial g/\partial S)_{S=0}$ の利得 g_m に対する傾きは $(\partial g/\partial N)_{S=0}$ の傾きより大きい。しきい値利得が大ききときには $(\partial g/\partial N)_{S=0}$ の傾きの方が大きくなる。このことから非線形 K ファクタは小さいしきい値利得で最小値をとるものと考えられる。利得の近似式として $g_m = g_0 \ln(N/N_0)$ を用いると非線形 K ファクタは利得の関数として

$$K_{nl}(g_m) = \frac{N_0}{g_0} \left(\epsilon' + \frac{\delta}{g_m} \right) \exp \left[\frac{g_m}{g_0} \right] \quad (5.3-5)$$

で与えられる。これから非線形 K ファクタを最小にするしきい値利得の値は

$$(g_m^{opt})^{-1} = \frac{1}{2g_0} \left[1 + \sqrt{1 + \frac{4\epsilon' g_0}{\delta}} \right] \quad (5.3-6)$$

となる。

微分利得 $(\partial g/\partial N)_{S=0}$ 、微分係数 $(\partial g/\partial S)_{S=0}$ 、非線形利得係数 ϵ 、非線形 K ファクタをしきい値利得 g_m の関数として InGaAs/InGaAsP 量子井戸について計算した例を示す。井戸の厚さは7 nm、バンドギャップ波長1.15 μm の InGaAsP バリア層の厚さを10 nmとした。キャリア緩和に確率過程モデルを用い、 $T_{1e} = 300$ fs、 $T_{1h} = 70$ fs、 $\tau = 20$ fs、 $\gamma = \alpha_e^2/\tau = 10$ THzとした。簡単のため電子と正孔のサブバンドはパラボリックであるとし、電子の有効質量を0.041 m_0 、重い正孔の有効質量を0.43 m_0 とした。バンド間遷移の双極子能率:0.58 e.nm、誘電率:12.5で計算した。図5.3-2は利得の関数として計算した微分係数 $(\partial g/\partial S)_{S=0}$ を示す。光のエネルギーは利得ピーク付近(840 meV)とした。求められた微分係数 $(\partial g/\partial S)_{S=0}$ は利得に対しほぼ直線となり、前に述べた理由で式(5.3-4)に示すように負の切片をもつ。ここで用いたパラメータでは $\delta = 4.9 \times 10^{-11}$ m³/s、 $\epsilon' = 6 \times 10^{21}$ m³という値が得られた。非線形利得係数は利得に対し、図5.3-3に示すように双曲線関数となる。非線形利得係数は利得が大きい領域ではほぼ一定値となるが、利得が0に近づくとき発散する。これに対応して非線形 K ファクタは小さい利得のところで最小となる。今回の計算では利得が4.3 ps⁻¹のとき非線形 K ファクタの最小値として0.2 nsが得られる。典型的な共振器損失から得られる光子寿命は2 ps程度である。これより、K ファクタの最小値は閉じ込め係数 Γ が0.12のとき $K = 0.28$ nsが得られる。これは3dB変調帯域にして32 GHzにあたる。

非線形利得係数の性質(ii)で状態密度に対する依存性が小さいことを述べたが、これについても線形状関数が微分係数で2回かかることから利得が小さい時には注意が必要である。簡単のため、電子と正孔のサブバンドがおのおの1つだけでバンドが放物線状であるときを考える。このとき、結合状態密度はエネルギーによらないので積分の外に出せ、利得の微分係数(分子)と利得(分母)とで打ち消される。このため、フェルミ分布に関する積分で微分係数のほうがバンド端付近をより強く見ること状態密度に対する依存性の違いが現れる。この違いを定量的に調べるために数値的な検討を行った。電子の有効質量を0.04 m_0 と一定にして正孔の有効質量を変えて利得ピークにおける非線形利得係数を計算した。線形状関数は確率過程モデルを用いたが

Lorentzian でも結論は変わらない。計算の結果を図 5.3-4に示す。利得の小さい時には正孔の有効質量が小さいほうが非線形利得係数が大きくなるが、利得が大きいたまには差がなくなることがわかる。ここではサブバンドは一つとしたが複数のサブバンドがある時有効質量が実効的に大きくなったと見ればここでの結論は適用できるだろう。以上の議論で明らかになったようにしきい値利得が小さいときは単純な近似が成り立たなくなるので前に述べた非線形利得の性質を適用できない。なお、利得が小さくなると非線形利得係数が増大することは高橋と荒川によっても示されている¹⁴。

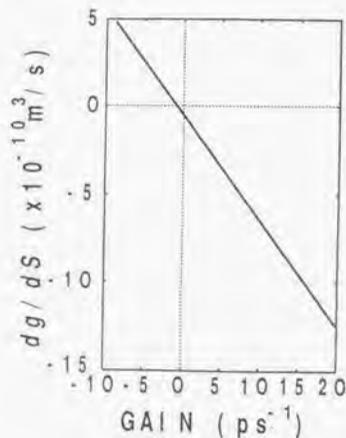


図 5.3-2 利得の関数として計算した光子密度に関する利得の微分係数(dg/dS)₈₄₀。光のエネルギーは利得ピーク付近(840 meV)である。

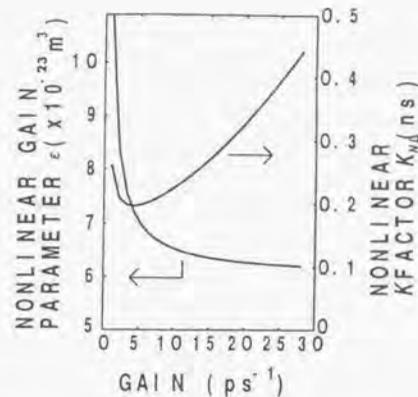


図 5.3-3 利得の関数として計算した非線形利得係数と非線形 K ファクタ。

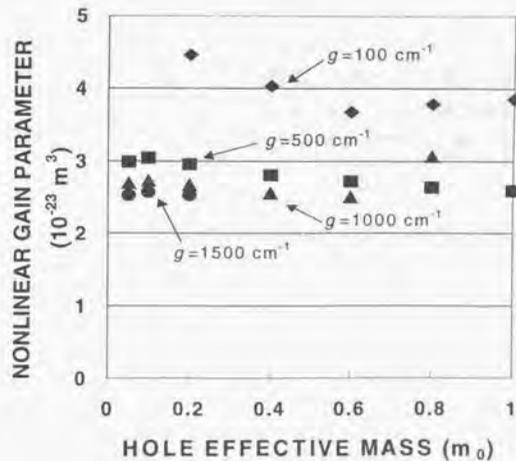


図 5.3-4 非線形利得係数の正孔有効質量に対する依存性。電子の有効質量は $0.04 m_0$ と一定にした。電子と正孔のサブバンドは 1 つのみ、放物線型の分散関係を仮定した。

光が強いときの利得飽和の解析的表式

半導体レーザーの動作を解析する際レート方程式が用いられるが、利得飽和を簡単な形で表わせれば式の取扱いが容易になり、物理的にも見やすいものになる。従来用いられている形は3つあり、それぞれ $g \propto 1 - \epsilon S$ 、 $g \propto (1 + \epsilon S)^{-1}$ 、 $g \propto (1 + \epsilon S)^{-1/2}$ と表わされる。第一の式¹⁾は摂動的な取扱いから得られるもので3次の非線形感受率に直接に関係づけられる。第二の式²⁾は半導体レーザーを2準位系とみなしたもので、2準位系の飽和³⁾と同じ形である。第三の式⁴⁾はスペクトルホールバーニングによる利得飽和を厳密に解いた式(5.3-1)に類似した式から導かれているがそのとき $\rho(E)(f_c - f_v)$ がゆっくり変化するものとして積分の外に出すという近似を行っている ($\rho(E)$ は状態密度)。単一モードでの厳密解とこれらの解析的な表式を比較する。レーザー発振をしているとき利得はしきい値利得に固定されるから比較は微分利得の光強度に対する依存性で行う。また、利得飽和係数 ϵ は $S=0$ のときの傾きから求めた。結果は図 5.3-5 に示す通りで $g \propto (1 + \epsilon S)^{-1}$ が広い範囲で良く一致することがわかる。摂動的な式 $g \propto 1 - \epsilon S$ は当然ながら光強度が大きくなると厳密解からずれる。ずれが目立ち始める光強度は $5 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ と小さく、非線形利得の問題には摂動的な取扱いは適していない。厳密解を近似して得られたはずの式 $g \propto (1 + \epsilon S)^{-1/2}$ も厳密解との一致は悪い。これは、近似が不適当で高エネルギーの電子による吸収の影響を正しく取り入れられないためである。ここでの厳密解は線形状関数として確率過程モデル($\tau_c=50 \text{ fs}$)で求めた線形状関数を用いたがローレンツ型の線形状関数でも同様の結果が得られる。光強度が大きいときに $g \propto (1 + \epsilon S)^{-1}$ と厳密解との一致は悪くなっていくが、これは非線形利得のためにしきい値キャリア密度が大きくなるためである。微分利得が小さくなるため厳密解は $g \propto (1 + \epsilon S)^{-1}$ よりも強く飽和する。この効果はキャリア密度の増加に対する利得の飽和が強い量子井戸レーザーでは大きくなる。

非線形利得の解析的な表式: $g \propto (1 + \epsilon S)^{-1}$ は実験からも導くことができる。

Olshansky ら²⁾はダンピングファクタが緩和振動周波数の2乗に比例すること、つまり式(5.2-3)で定義される K ファクタが定数であることを見出した。利得がキャリア密度に依存する部分と光子密度に依存する部分の積 $g(N, S) = f(N)h(S)$ で表わされると仮定する。 K ファクタは $f(N)$ と $h(S)$ で次のようにかける。

$$K = (2\pi)^2 \left[\tau_p - \frac{1}{f'(N)} \frac{h'(S)}{\{h(S)\}^2} \right] \quad (5.3-7)$$

ただし、しきい値利得の条件 $f(N)h(S) = 1/(\tau_p \Gamma)$ を用いた。 K が定数であるから、微分方程式(5.3-7)を解いて $h(S)$ を求めると

$$h(S) = \left[1 + f'(N) \left\{ K / (2\pi)^2 - \tau_p \right\} S \right]^{-1} \quad (5.3-8)$$

を得る。これは $g \propto (1 + \epsilon S)^{-1}$ の形をしている。ここで得られる非線形利得係数は式(5.2-3)、(5.2-5)で与えられるものと一致する。

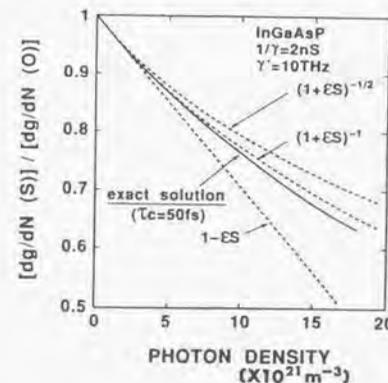


図 5.3-5 解析的な利得飽和の表式と厳密解との比較。規格化した微分利得の光強度依存性を示した。利得飽和係数 ϵ は $S=0$ のときの傾きから求めた。

5.4. キャリア密度の変化と温度の変化

キャリア密度や温度が変化したときの取扱いを考えよう。スペクトラルホールパーニングの緩和はこれより十分速いとしてよいから、キャリア密度や温度が変化してもキャリア分布はこれに追従できて常に擬平衡状態にあると考えてよい（これはキャリア分布がフェルミ分布で表わせるということであって、格子系と熱平衡にあることを意味しない）。第3章で問題にしたスペクトラルホールパーニングの緩和は、キャリア密度や温度の変化に対応して時間的に変化する擬平衡状態に向かってキャリアのバンド内の分布が変化していく過程だと考える¹⁸。キャリアの分布がキャリア密度と温度で指定されるフェルミ分布であることから、キャリア密度と温度の時間的な変化を表わす方程式は簡単な形で表わすことができる。キャリア密度の変化はレート方程式で表わされ、そこに現われる利得はキャリア密度や温度に依存する。

一般に電子と正孔では出入りするエネルギーが異なるから各々の温度は異なってもよい。しかし、誘導放出があまり強くないときにはキャリアの発光寿命内には電子正孔散乱のためお互いが平衡に達しているとしてよい。これは、電子と正孔の有効質量の差が大きくお互いの中でエネルギーの受け渡しが大きいためである。これは単純な運動学的な議論から得られる。波数が k の電子と波数が K の正孔が衝突して $\hbar q$ なる運動量を交換したとする。このとき、電子のエネルギーの変化は

$$\Delta E_e = \frac{\hbar^2}{2m_e} (q^2 - 2k \cdot q) \quad (5.4-1)$$

$$\Delta E_h = \frac{\hbar^2}{2m_h} (q^2 + 2K \cdot q) \quad (5.4-2)$$

$\Delta E_e = -\Delta E_h$ が成り立つ。このため、

$$q = \frac{2m_h}{m_e + m_h} k + \frac{2m_e}{m_e + m_h} K \quad (5.4-3)$$

となる。衝突によって電子から正孔に移動するエネルギーの平均値は

$$\begin{aligned} \langle \Delta E \rangle &= \frac{2\hbar^2}{(m_e + m_h)^2} [m_h \langle k^2 \rangle - m_e \langle K^2 \rangle] \\ &= \frac{4m_e m_h}{(m_e + m_h)^2} (E_F^e - E_F^h) \end{aligned}$$

(5.4-4)

である。ただし、平均操作で内積 $k \cdot K$ の項が消えることと、 $\langle k^2 \rangle = k_F^2 = (2m/\hbar^2) E_F$ 等を用いた。式(5.4-4)からわかるように電子と正孔の擬フェルミ準位の差が大きいほどエネルギーの移動は大きい。例えば、2次元キャリア系を考え、電子と正孔の有効質量をそれぞれ、 $0.04m_0$ と $0.4m_0$ とする。キャリア密度が 10^{12} cm^{-2} のとき、室温でのエネルギー移動の平均値は衝突あたり 24 meV になる。衝突が 100 fs のオーダーの頻度で起きることを考えると以下でみるように単位時間に系を出入りするエネルギーよりもエネルギー移動は速くおきる。

キャリア温度の変化を調べるため、キャリア系に単位時間に入り出るエネルギーを勘定しよう。キャリア系から出るエネルギーは

(a) 誘導放出

(b) 電子格子相互作用 (キャリアが格子よりも温度が高いとき)

また、キャリア系に入るエネルギーは

(c) キャリア注入

(d) 自由キャリア吸収

(e) 2光子吸収

が考えられる。

誘導放出でキャリア系から単位時間に失われるエネルギー U_{out} は利得を g 、光子密度を S 、放出される光のエネルギーを $\hbar\omega$ 、バンドギャップを E_g として

$$U_{\text{out}} = -(\hbar\omega - E_g) g S \quad (5.4-5)$$

である。

電子格子相互作用でキャリア系から格子系に単位時間に流れるエネルギーはサブバンド内の LO フォノン散乱を考えると、LO フォノンのエネルギー E_{LO} と分布関数 $n(T) = [\exp(E_{LO}/k_B T) - 1]^{-1}$ を用いて

$$U_{LO} = -E_{LO} [n(T) - n(T_{LO})] (R_{LO}^e + R_{LO}^h) \quad (5.4-6)$$

で与えられる。ただし、 R_{LO}^e , R_{LO}^h はそれぞれ電子と正孔の LO フォノン散乱レートである。この LO フォノン散乱レートはキャリアエネルギーに対する依存性は比較的小さいが、キャリア密度に対する依存性は大きい。これは LO フォノンとキャリアとの相互作用がキャリアによって遮蔽されるからである。また、キャリア密度が一定のとき LO フォノン散乱レートはキャリアの有効質量にほぼ比例する。図 5.4-1 は Goodnick 等¹⁹による式を使って計算した電子-LO フォノン散乱時間の電子エネルギーと電子密

度に対する依存性を示している。電子密度が大きくなるに従って散乱時間は長くなるがおよそ0.1 ps から 1 ps の間になる。正孔の散乱時間はこの数分の1になる。

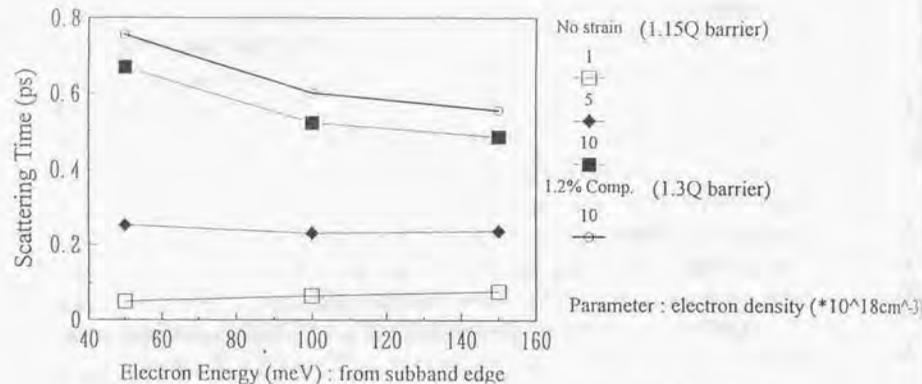


図 5.4-1 電子-LO フォノン散乱時間の電子エネルギー・密度依存性(仁道²⁰による)

次に、キャリアが受け取るエネルギーを考える。誘導放出によって失われたキャリアはバリア層から補充される。半導体レーザーの定常状態では利得が一定でなければならないから1次近似(利得の飽和を考えない)では単位時間に井戸層に入るキャリアはしきい値利得を g_{th} として $g_{th}S$ になる。バリア層のバンドギャップと誘導放出される光子のエネルギーの差を ΔE_g とするとキャリア注入によって増加するエネルギーは単位時間当たり

$$U_{inj} = \begin{cases} (\Delta E_g - E_{LO})g_{th}S \\ \Delta E_g g_{th}S \end{cases} \quad (5.4-7)$$

である。ただし、上の式と下の式はそれぞれ、LO フォノン散乱とキャリア-キャリア散乱によってバリア層のキャリアが井戸層にトラップされる場合を示している。一般にバリア層から井戸層へのキャリア-キャリア散乱は大きな運動量の変化を伴うため確率は LO フォノン散乱より小さいがキャリア密度が大きくなると無視できなくなる

とされている。レーザーとレーザーアンプでは注入されるキャリアのレートが異なることに注意すべきである。レーザーでは利得がしきい値利得に固定されるから平均の光子密度が上がると注入されるキャリアのレートも増大する。一方、レーザーアンプでは注入されるキャリアのレートは光子密度が変わっても一定で、ネットの注入電流である。このため、光が強くなると誘導放出のため井戸層のキャリア密度は減少する。このときにはキャリア系の熱容量が小さくなるためキャリアの温度の上昇が大きい。

自由キャリア吸収の大きさはキャリア密度と光子密度に比例するものと考えられる。金属で良く用いられる Drude の式が半導体でも成立するかは定かではない。このため、あるキャリア密度 N_0 での自由キャリアによる吸収係数 α_{F0} を使って、キャリア系が受け取るエネルギーのレートを

$$U_{FCA} = \hbar\omega(c/\eta)\alpha_{F0}(N/N_0)S \quad (5.4-8)$$

と表わす。また、2光子吸収でキャリア系が単位時間に得るエネルギーは2光子吸収係数 α_{TPA} を用いて次のように書ける：

$$U_{TPA} = 2\hbar\omega(c/\eta)\alpha_{TPA}S^2 \quad (5.4-9)$$

以上をまとめると、キャリア系のエネルギーの単位時間での変化は $U_{inj} + U_{LO} + U_{spont} + U_{FCA} + U_{TPA}$ となり定常状態ではこれが0となることからキャリア系の温度が定められる。そこで光子密度が ΔS だけ増加したときの温度の変化 ΔT を考える。キャリアの加熱のメカニズムによる温度変化のキャリア密度やしきい値利得に対する依存性は異なっているからこれによって実験からどの過程が重要かを定められる可能性がある。誘導放出によって失われるエネルギーとキャリア注入によって増加するエネルギーはともにしきい値利得に比例する。2つをあわせて書くと

$$\Delta U_{spont} + \Delta U_{inj} = (E_g + E_{g,R} - 2\hbar\omega - E_{LO})g_{th}\Delta S \quad (5.4-10)$$

ただし、ここでは LO フォノン散乱によってキャリアがバリア層から井戸層へ注入されるとした。一方、自由キャリア吸収によるエネルギーの増加はしきい値キャリア密度に比例して

$$\Delta U_{FCA} = \hbar\omega(c/\eta)\alpha_{F0}(N_{th}/N_0)\Delta S \quad (5.4-11)$$

となる。また、2光子吸収はしきい値利得やしきい値キャリア密度にはよらない：

$$\Delta U_{TPA} = 2(2\hbar\omega - E_g)(c/\eta)\alpha_{TPA}S\Delta S$$

(5.4-12)

これらのエネルギー変化に対して温度が上昇すると LO フォノン散乱によるエネルギー散逸が速くなる。

$$\begin{aligned} \Delta U_{LO} &= -\frac{E_{LO}^2}{k_B T^2} \frac{\{n(T)\}^2}{n(T)+1} (R_{LO}^c + R_{LO}^s) \Delta T \\ &= -\kappa_{LO} \Delta T \end{aligned}$$

(5.4-13)

さらに、非線形利得係数は

$$\epsilon = \frac{1}{g_m} \frac{\partial g}{\partial S} = \frac{1}{g_m} \frac{\partial g}{\partial T} \frac{\Delta T}{\Delta S}$$

(5.4-14)

で与えられる。最も簡単な量子井戸の場合、つまり電子と正孔のサブバンドが1つずつでバンドの分散が放物線、線形状関数がδ関数のとき、利得は

$$g \propto 1 - \exp\left[-\frac{\pi \hbar^2 N}{m_e^* k_B T}\right] - \exp\left[-\frac{\pi \hbar^2 N}{m_h^* k_B T}\right]$$

(5.4-15)

となる。これより、利得の温度係数は

$$\frac{\partial g}{\partial T} = \frac{\partial g}{\partial N} \frac{\partial N}{\partial T} = -\frac{N}{T} \frac{\partial g}{\partial N}$$

(5.4-16)

であり、非線形 K ファクタは

$$K_{NL} = \frac{4\pi^2 N_m}{g_m T} \frac{\partial T}{\partial S}$$

(5.4-17)

と表わせる。式(5.4-10)-(5.4-12)を使うとキャリアの加熱のメカニズムによるしきい値利得が小さくなったときの振る舞いがわかる。つまり、 $g_m \rightarrow 0$ のとき、誘導吸収とキャリア注入では $\Delta T \propto g_m$ だから非線形 K ファクタは N_m に比例して小さくなる。これに対し、自由キャリア吸収では $\Delta T \propto N_m$ 、2光子吸収の場合は ΔT は g_m や n_m に依らないから $g_m \rightarrow 0$ のとき非線形 K ファクタは無限度となる。これらをまとめるとキャリアヒーティングによる非線形利得係数は微分利得としきい値キャリア密度に比例する。また、非線形 K ファクタは

・誘導吸収とキャリア注入ではしきい値キャリア密度に比例。

・自由キャリア吸収、2光子吸収の場合はしきい値利得が大きいところを除いてしきい値利得に対してほぼ単調減少

する。5.3節で述べたように、スペクトラルホールバーニングでは非線形 K ファクタのしきい値利得に対する依存性は小さいがしきい値利得が0に近づくとき発散する。次の節ではこれらの結果を実験と比較して量子井戸半導体レーザにおける非線形利得の原因を論じる。

5.5. 変調実験との比較

半導体レーザの非線形利得は変調応答から知ることができる。式(5.2-3)の第1式よりレーザの共振周波数から微分利得が求められ、これとダンピングファクターから第2式で求められる K ファクタを使って式(5.2-6)から非線形利得係数が計算できる。実際に半導体レーザを直接変調するとレーザの寄生抵抗や寄生容量のために変調の周波数特性が影響を受けるから、レーザの固有の非線形性を知るにはこれらの寄生定数の影響を排除する必要がある。ここでは、こうした実験方法として光変調法²⁾を用いた。この方法による実験構成を図 5.5-1 に示す。注入用のレーザを高周波で直接変調し、得られた光信号を測定するレーザに入射する。全体の応答特性を注入用レーザの応答特性で割ることで測定するレーザの応答を寄生容量・寄生抵抗の影響無しに知ることができる。実験に用いたのは 1.55 μm で発振するレーザである。これに対して注入用のレーザには 1.3 μm 帯のものをを用いた。このため、注入光に対する被測定レーザ共振器のファブリペロ共振の影響を抑えることができる²⁾。

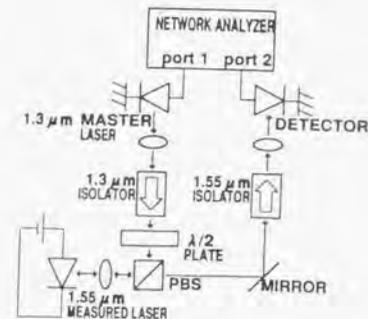


図 5.5-1 光変調法の実験構成

測定は、井戸の数が4,7,10,15層の無歪 $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 量子井戸(井戸幅 7nm)、5層の $\text{In}_{0.62}\text{Ga}_{0.38}\text{As}$ 歪量子井戸(井戸幅 4nm, 0.6%圧縮歪)、井戸数が7層または10層の $\text{In}_{0.71}\text{Ga}_{0.29}\text{As}$ 歪量子井戸(井戸幅 3nm, 1.2%圧縮歪)、および比較のためバルク活性層のレーザを用いた。各量子井戸のバリア層は1.3 μm 組成の無歪 InGaAsP であり、レーザの共振器長は300-450 μm である。測定したレーザの主な違いは井戸の幅と層数、即ち閉じ込め係数である。閉じ込め係数が大きくなると量子井戸あたりのしきい値利得が小さくなるからしきい値利得の高速応答への影響を調べることができる。図 5.5-2は測定で得られた閉じ込め係数と K ファクタの関係である。無歪のレーザでは閉じ込め係数が0.05から0.17に増加すると K ファクタが0.9 nsから0.25 nsまで減少する。閉じ込め係数が0.1より大きいとバルクレーザの K ファクタよりも小さくなる。同様に歪量子井戸レーザでも閉じ込め係数が0.03から0.05に増えると K ファクタが0.7 nsから0.4 nsになる。閉じ込め係数が0.05のときを比べると歪量子井戸レーザの K ファクタは無歪の量子井戸レーザの約半分になる。一方、微分利得は図 5.5-3に示すように閉じ込め係数が大きくなると増加する。閉じ込め係数が0.05のとき歪量子井戸レーザの微分利得は無歪量子井戸レーザの約2倍になる。測定した閉じ込め係数の範囲では無歪、歪の量子井戸レーザの微分利得はバルク活性層のレーザのものより大きい。K ファクタと微分利得から非線形利得係数が得られる。図 5.5-4のように非線形利得係数は閉じ込め係数に対する依存性は小さい。また、量子井戸レーザの非線形利得係数はバルクよりも大きいことがわかる。以上の結果より、閉じ込め係数の増加による K ファクタの減少(最大変調周波数の増大)は微分利得の増加によるものだと結論できる。

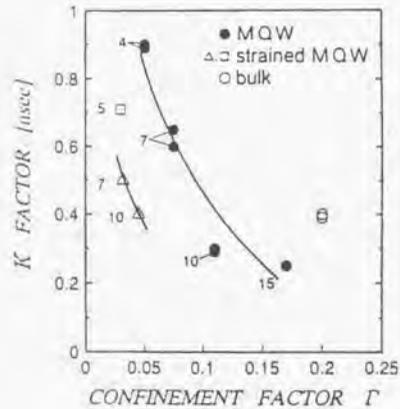


図 5.5-2 閉じ込め係数と K ファクタの関係。図中の数字は量子井戸の層数を示す。黒丸は無歪の $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ 量子井戸、四角は $\text{In}_{0.62}\text{Ga}_{0.38}\text{As}$ 歪量子井戸、三角は $\text{In}_{0.71}\text{Ga}_{0.29}\text{As}$ 歪量子井戸、白丸はバルク活性層のレーザを表わす。

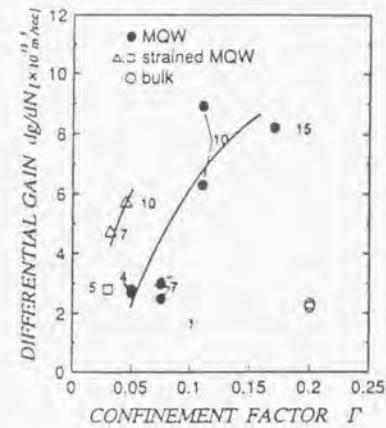


図 5.5-3 微分利得の閉じ込め係数に対する依存性。記号の意味は図 5.5-2と同様。

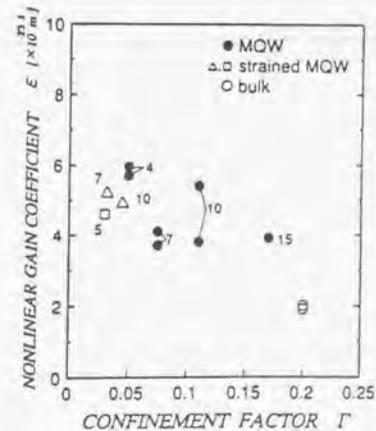


図 5.5-4 非線形利得係数の閉じ込め係数に対する依存性。記号の意味は図 5.5-2と同様。

次に、歪量の微分利得と非線形利得への影響を系統的に調べるために歪の量を-1.6%, -0.9% (引っ張り歪), 0% (無歪), 0.5%, 1.2%, 1.5% (圧縮歪)とした量子井戸レーザについて同様の測定を行った²⁾。各々のレーザの閉じ込め係数はほぼ10%となるように量子井戸の層数を調節した。微分利得は図5.5-5からわかるように引っ張り、圧縮ともに歪量が大きくなるほど大きくなる。図中で線で示したのはバンド構造を単純化したモデル計算の結果である。実験と計算の一致はかなり良い。図5.5-6は非線形利得係数の歪量依存性である。非線形利得係数は-0.9%歪のとき最小で歪が大きくなると増大するが歪量に対する依存性は微分利得に比べて小さい。この結果として図5.5-7に示すように圧縮歪が大きいほどKファクタは小さくなる。前の結果とあわせると高速応答を得るには大きな圧縮歪の量子井戸を用いて閉じ込め係数を大きくすればよいことがわかる。実際、1.5%歪量子井戸20層の活性層を持つレーザでKファクタとして0.24 ns、3 dBの変調帯域として光出力15 mWのとき29 GHzを得ている²⁾。

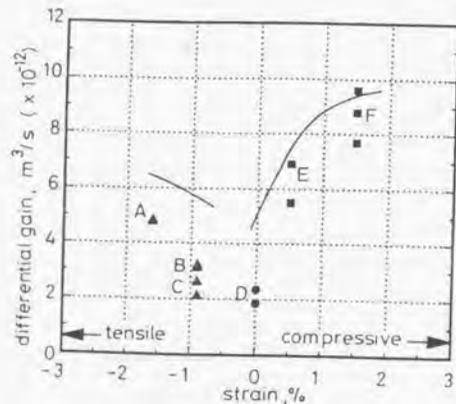


図 5.5-5 微分利得の歪量依存性。三角は引っ張り歪、丸は無歪、四角は圧縮歪のレーザを表す。実線は計算値を示す。

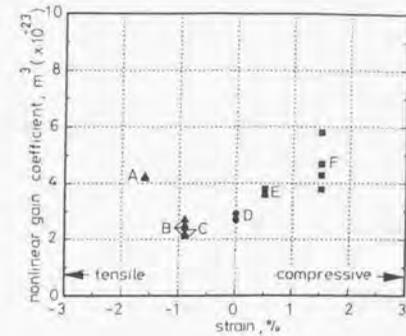


図 5.5-6 非線形利得係数の歪量依存性。

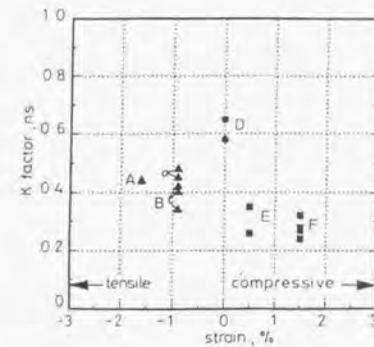


図 5.5-7 Kファクタの歪量依存性。

以上のような結果から非線形利得のメカニズムを考える。スペクトラルホールバーニングの非線形利得係数は5.3節で述べたように

- (i) 非線形利得係数はしきい値利得に依存しない。
- (ii) また、状態密度にも依存しない。
- (iii) 用いる光の波長が同じなら非線形利得係数は双極子能率に比例する。
- (iv) 非線形利得係数はバンド内緩和が速いほど小さくなる。特に緩和時間近似では、非線形利得係数は電子の緩和時間 τ_e と正孔の緩和時間 τ_h の積に比例する。

という性質がある。実験では非線形利得係数の閉じ込め係数や歪に対する依存性は小さく、上の(i), (ii)に一致する。一方、キャリアヒーティングでは5.4節で調べたように非線形利得係数は微分利得と閾値キャリア密度に比例する。実験で得られた依存性はスペクトラルホールバーニングを示唆するが、キャリアヒーティングの可能性も否定できない。メカニズムがスペクトラルホールバーニングだとすると、実験で見られた歪に対する依存性は双極子能率(強い引ひ張り歪量子井戸では大きい)や緩和の速さの違いによるものである。

一方、半導体レーザーアンプでのポンププローブ法の実験ではキャリアヒーティングの寄与が大きいとされている^{13,25,26,27}。これは、半導体レーザーでは利得一定の条件でキャリアの温度変化を考えるのに対しレーザーアンプのキャリア温度変化は注入電流一定の条件で考えるからレーザーとレーザーアンプでの温度変化、非線形利得が異なるためだと考えられる。レーザーアンプではキャリア密度が光によって減少するから熱容量が小さくなり、温度変化が大きくなる。また、レーザーの実験は定常状態であるのに対し、ポンププローブ法はパルス光を用いるからキャリアのダイナミクスを詳細に調べる必要がある。例えば、電子と正孔のエネルギー移動が完了するまでは電子の温度は非常に高くなっている。スペクトラルホールバーニングとキャリアヒーティングの大きな違いは利得スペクトルの変化にある。つまり、スペクトラルホールバーニングでは強い光のエネルギーと同じエネルギーの利得が減少するのにに対しキャリアヒーティングでは電子のフェルミ準位の近傍で分散型の変化を示す(正孔のフェルミ準位は室温では一般にバンドギャップの中にあり温度上昇による分布の変化は小さい)。半導体レーザーでも発振状態での利得スペクトルを調べることでよりキャリアヒーティングの影響を調べることができるはずである。いずれにせよ、非線形利得のメカニズムとしてはスペクトラルホールバーニングとキャリアヒーティングの両者が関与しているはずであり、少なくとも半導体レーザーにおいてはスペクトラルホールバーニングの寄与は無視できない。

5.6. まとめ

本章では量子井戸レーザーの動特性を支配する非線形利得について検討した。非線形利得のメカニズムとしては主にスペクトラルホールバーニングを考え、キャリアヒ

ーティングについても簡単に述べた。量子井戸レーザーの変調実験の結果と理論を比較したところ、スペクトラルホールバーニングの寄与が無視できないことが示された。また、レーザーアンプの実験との違いについても検討した。

文献

- ¹ R.S. Tucker, J. Lightwave Technol., **LT-3** (1985) 1180.
- ² R. Olshansky, P. Hill, V. Lanaisera, IEEE J. Quantum Electron, **QE-23** (1987) 1410.
- ³ R. Frankenberger and R. Schimpe, Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 2520.
- ⁴ R. Frankenberger and R. Schimpe, Appl. Phys. Lett. **60** (1992) 2720.
- ⁵ M. Nido, and A. Suzuki, Appl. Phys. Lett. **64** (1994) 681.
- ⁶ Y. Arakawa and T. Takahashi, Electron. Lett. **25** (1989) 169.
- ⁷ Y. Arakawa and A. Yariv, IEEE J. Quantum Electron, **QE-22** (1986) 1887.
- ⁸ K. Uomi, T. Tsuchiya, M. Aoki, and N. Chinone, Appl. Phys. Lett. **58** (1991) 675.
- ⁹ E. Yablonovitch and E.O. Kane, J. Lightwave Technol. **LT-4** (1986) 504.
- ¹⁰ C.B. Su and V. Lanzisera, Appl. Phys. Lett. **45** (1984) 1302.
- ¹¹ K. Vahala, L.C. Chiu, S. Margalit, and A. Yariv, Appl. Phys. Lett. **42** (1983) 631.
- ¹² A. Tomita, IEEE Photon. Technol. Lett. **4** (1992) 342.
- ¹³ K.L. Hall, Y. Lai, E.P. Ippen, G. Eisenstein, and U. Koren, Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 2888.
- ¹⁴ T. Takahashi and A. Arakawa, J. Quantum Electron. **QE27** (1991) 1824.
- ¹⁵ D.J. Chanin, J. Appl. Phys., **50**, (1979) 3858.
- ¹⁶ M. Sargent III, M.O. Scully, and W.E. Lamb Jr., *Laser Physics*, (Addison-Wesley, Reading, MA, 1974).
- ¹⁷ G.P. Agrawal, J. Appl. Phys. **63** (1988) 1232.
- ¹⁸ より詳しい展開は Y. Nambu and A. Tomita, IEEE J. Quantum Electron. **30** (1994) 1981.
- ¹⁹ S.M. Goodnick and P. Lugli, Phys. Rev. **B37** (1988) 2578. Eqs. (2.2)-(2.9).
- ²⁰ 仁道 正明; 私信。
- ²¹ C. Lange, J. Eom, and C. Su, Electron. Lett. **24** (1988) 1131.

- ²² J. Shimizu, H. Yamada, S. Murata, A. Tomita, and K. Kitamura, IEEE Photonics Technol. Lett. **3** (1991) 773.
- ²³ J.-I. Shimizu, A. Kimura, K. Naniwae, M. Nido, S. Murata, A. Tomita, and A. Suzuki, Electron. Lett. **29** (1993) 579.
- ²⁴ S. Murata, K. Naniwae, J. Shimizu, M. Nido, A. Tomita, and A. Suzuki, Electron. Lett. **28** (1992) 1456.
- ²⁵ M.P. Kesler and E.P. Ippen, Appl. Phys. Lett. **51** (1987) 1765.
- ²⁶ K.L. Hall, J. Mark, E.P. Ippen, and G. Eisenstein, Appl. Phys. Lett. **56** (1990) 1740.
- ²⁷ K.L. Hall, E.P. Ippen, and G. Eisenstein, Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 129.

6. 量子井戸におけるキャリア緩和 の観測^{1,2}

6.1. はじめに

第3章や第5章で見たようにキャリアのバンド内緩和は量子井戸の利得や非線形利得に大きな影響を与え、量子井戸レーザの様々な特性を決める要因の一つとなる。キャリア緩和の様子を実際に観測する事は量子井戸レーザの設計パラメータを与えるため重要である。本章ではキャリアのバンド内緩和を観測した試みを述べる。キャリアの緩和時間は100 fs程度と非常に短いため実験方法にも工夫が必要である。

まず一つの方法として周波数領域におけるキャリア緩和の影響を見る非縮退4光波混合について述べる。半導体レーザの非縮退4光波混合は半導体レーザ(アンプ)に比較的強い光(ポンプ光)と比較的弱い光(プローブ光)を入射したときポンプ光(周波数 ω_1)からみてプローブ光(周波数 ω_2)の反対側に周波数 $2\omega_1 \pm \omega_2$ の信号光が観測される現象である。最近では波長変換や光PLL等への応用も検討されている。一方、離調 $\omega_1 - \omega_2$ に対する信号光の強度を調べる事によって非線形性のメカニズム、更に、キャリア緩和についての情報を得ることができる。従来、半導体レーザアンプの4光波混合の解析ではキャリアの緩和は緩和時間近似(マルコフ近似)で扱われていた。本章ではまず第3章で述べた密度行列理論を用いて4光波混合を理論的に解析し、キャリア緩和の非マルコフ性が離調に対する依存性にどのように影響するかを検討する。また、単一モードの厳密解を基礎にすると任意のポンプ光強度での4光波混合を与える非線形感受率が求められるのでポンプ光強度に対する飽和も議論することができる。次に、共振器によって増強された非縮退4光波混合を半導体レーザにおいて数THzの離調にわたって観測し、非線形利得のメカニズムについて得られた知見を述べる。

次に、時間領域において、変調nドープした量子井戸を用いて低温での正孔の過渡的な非熱的分布を初めて観測した実験について述べる。最近のレーザ技術の進歩により100 fs程度の光パルスを実験室で容易に得られるようになってきている。これを用いて光で励起された半導体中のキャリアの緩和が調べられている^{3,4,5,6,7,8}。しかし、これらの測定の対象になっているのは電子の緩和が主で正孔についてはバルクGaAsの室

温での若干の実験⁹を例外としてほとんど研究がなされていない。変調ドープ量子井戸での透過率変化の実験⁹でも得られているのは電子の緩和に関する情報である。我々は正孔の緩和によって応答が支配されるような実験を考え、正孔の緩和とキャリアキャリア散乱についての知見を得ることができた。

6.2. 非縮退4光波混合

密度行列理論

既に単一モードの光に対しては任意の強度について厳密な利得が得られている。ここではこの単一モードに対する厳密解をもとに強い光（ポンプ光）と弱い光（プローブ光）が入射しているときの非線形感受率を求める。電場を

$$E(t) = E_1 \cos(\omega_1 t - k_1 z) + E_2 \cos(\omega_2 t - k_2 z) \quad (6.2-1)$$

の形におく。ここで、添え字 1 はポンプ光、添え字 2 はプローブ光を表わす。4 光波混合光の周波数 ω_3 は $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$ で与えられる。密度行列をプローブ光について摂動展開して 1 次の項までとると次のような周波数成分を持つ：

$$\begin{aligned} \rho_{ii} &= \hat{\rho}_i^{(0)} + \hat{\rho}_i^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) e^{i(\omega_1 - \omega_2)t} + \hat{\rho}_i^{(2)}(\omega_2 - \omega_1) e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} \quad (i = c, v) \\ \rho_{vc} &= \hat{\rho}_{vc}^{(1)}(\omega_1) e^{i\omega_1 t} + \hat{\rho}_{vc}^{(1)}(\omega_2) e^{i\omega_2 t} + \hat{\rho}_{vc}^{(3)}(\omega_2) e^{i\omega_3 t} + \hat{\rho}_{vc}^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2) e^{i(2\omega_1 - \omega_2)t} \end{aligned} \quad (6.2-2)$$

密度行列の非対角成分のうち $\hat{\rho}_{vc}^{(1)}(\omega_1)$, $\hat{\rho}_{vc}^{(1)}(\omega_2)$ は既に与えられている通り：

$$\hat{\rho}_{vc}^{(1)}(\omega_i) = \frac{i\chi_i^*}{2} T_w(0, \Delta_i) \hat{W}(0) \quad (6.2-3)$$

ただし、 $\Delta_i = \omega_i - \omega_0$ である。また、 $\hat{W}(\omega)$ は反転分布 $\hat{\rho}_{cc}(\omega) - \hat{\rho}_{vv}(\omega)$ で、特に $\omega=0$ のとき、

$$\begin{aligned} \hat{W}(0) &= \hat{\rho}_{cc}^{(0)} - \hat{\rho}_{vv}^{(0)} \\ &= \frac{F_c(0) - F_v(0)}{1 + |\chi_c|^2 (T_{cc}(0) + T_w(0)) \text{Re}(T_w(0, \Delta_1)) / 2} \end{aligned} \quad (6.2-4)$$

と書ける。以下では $T_w(0, \Delta)$ を $T_w(\Delta)$ と略記する。密度行列のフーリエ成分のうちプローブ光の 1 次の範囲で (ω_2 を 1 回だけ含む) 回転波近似で効くものは

$$\begin{aligned} 2\omega_1 - \omega_2 &= \omega_1 + \omega_1 - \omega_2 \\ -\omega_2 &= -\omega_2 + 0, -\omega_2 - \omega_1 + \omega_1 \\ \omega_1 - \omega_2 &= \omega_1 - \omega_2, -\omega_1 + 2\omega_1 - \omega_2 \end{aligned} \quad (6.2-5)$$

の組み合わせであり、閉じた形の方程式が得られる¹⁰。例えば、 $2\omega_1 - \omega_2$ なる周波数成分は $-\omega_1 + 3\omega_1 - \omega_2$ という組み合わせでも得られるが $3\omega_1 - \omega_2 - 2\omega_1$ のような周波数が高い成分は回転波近似をすると落ちる。式(6.2-2)と(6.2-5)からポンプ光とプローブ光が結合して 4 光波混合を起こす過程は以下の方程式で記述できる。

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_{vc}(2\omega_1 - \omega_2) &= \frac{i\chi_1^*}{2} T_w(\Delta_1) \hat{W}(\omega_1 - \omega_2) \\ \hat{\rho}_{vc}(-\omega_2) &= -\frac{i\chi_2^*}{2} T_w(\Delta_2) \hat{W}(0) + \frac{i\chi_1^*}{2} T_w(\Delta_2) \hat{W}(\omega_1 - \omega_2) \\ \hat{W}(\omega_1 - \omega_2) &= \hat{F}(\omega_1 - \omega_2) \\ &\quad + i \frac{T_{cc}(i(\omega_1 - \omega_2)) + T_{vv}(i(\omega_1 - \omega_2))}{4} [\chi_c \hat{\rho}_{vc}(2\omega_1 - \omega_2) + \chi_2 \hat{\rho}_{vc}(\omega_1) - \chi_1 \hat{\rho}_{vc}(\omega_2)] \\ \hat{F}(\omega_1 - \omega_2) &= \hat{f}_c(\omega_1 - \omega_2) - \hat{f}_v(\omega_1 - \omega_2) \\ &\quad - [\gamma + i(\omega_1 - \omega_2)] \left[T_{cc}(i(\omega_1 - \omega_2)) \hat{f}_c(\omega_1 - \omega_2) - T_{vv}(i(\omega_1 - \omega_2)) \hat{f}_v(\omega_1 - \omega_2) \right] \end{aligned} \quad (6.2-6)$$

式(6.2-6)で反転分布 $\hat{W}(\omega_1 - \omega_2)$ の式(第 3 式)の第 1 項 $\hat{F}(\omega_1 - \omega_2)$ は擬熱平衡状態で のキャリア分布の振動であり、キャリア密度やキャリア温度が周波数 $\omega_1 - \omega_2$ で振動する効果を表わしている。また、第 2 項はスペクトラルホールバーニングに関係している。式(6.2-6)を解くと密度行列の非対角要素の周波数 $2\omega_1 - \omega_2$ で振動する成分として

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_{vc}(2\omega_1 - \omega_2) &= i \frac{\chi_1^*}{2} T_w(\Delta_1) \frac{\hat{F}(\omega_1 - \omega_2)}{D} \\ &\quad - i \frac{(\chi_1^*)^2 \chi_2^* T_w(\Delta_1) T(\omega_1 - \omega_2) [T_{cc}(\Delta_1) + T_{vv}(\Delta_2)] \hat{W}(0)}{8 D} \end{aligned} \quad (6.2-7)$$

を得る。ただし、

$$D = 1 + \frac{|\chi_1|^2}{4} T(\omega_1 - \omega_2) [T_{cv}(\Delta_2) + T_{vc}(\Delta_3)]$$

$$T(\omega) = \frac{T_{vc}(i\omega) + T_{cv}(i\omega)}{2}$$
(6.2-8)

また、周波数 ω_2 で振動する成分は

$$\hat{\rho}_{cv}(-\omega_2) = -i \frac{\chi_1}{2} T_{cv}(\Delta_2) \frac{\tilde{F}(\omega_1 - \omega_2)}{D}$$

$$- i \frac{\chi_2}{2} \frac{T_{cv}(\Delta_2) \left[1 + \left(|\chi_1|^2 / 4 \right) T(\omega_1 - \omega_2) [T_{vc}(\Delta_3) - T_{vc}(\Delta_1)] \right] \tilde{W}(0)}{D}$$
(6.2-9)

で与えられる。4 光波混合を与える周波数 $2\omega_1, \omega_2$ で振動する分極密度は

$P(2\omega_1 - \omega_2) = V^{-1} \sum \mu_k \hat{\rho}_{cv}(2\omega_1 - \omega_2)$ である。非線形感受率 $\chi(-2\omega_1, \omega_2, \omega_1, -\omega_2, \omega_1)$ は

$$P(2\omega_1 - \omega_2) = \chi(-2\omega_1, \omega_2, \omega_1, -\omega_2, \omega_1) E(\omega_1) E(\omega_1) E(\omega_2)$$

で定義される。 $\tilde{F}(\omega_1 - \omega_2)$ は $\phi(\omega_1, -\omega_2) \chi_1 \chi_2 / 4$ と書くことができるから、非線形感受率 $\chi(-2\omega_1, \omega_2, \omega_1, -\omega_2, \omega_1)$ は

$$\chi(-2\omega_1, \omega_2, \omega_1, -\omega_2, \omega_1)$$

$$= \frac{1}{V} \sum_k \frac{i \mu_k^4 T_{cv}(\Delta_2)}{8 \hbar^3 D} \left[\phi(\omega_1, -\omega_2) - T(\omega_1 - \omega_2) (T_{vc}(\Delta_1) + T_{vc}(\Delta_3)) \tilde{W}(0) \right]$$
(6.2-10)

と書ける。同様に非線形感受率 $\chi(-\omega_2, \omega_1, \omega_2, -\omega_1)$ は

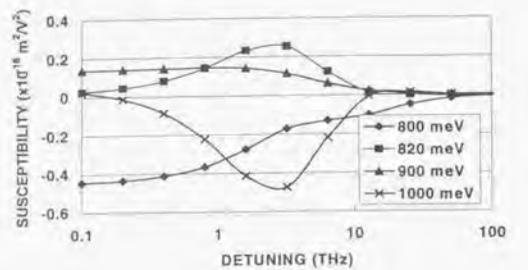
$$\chi(-\omega_2, \omega_1, \omega_2, -\omega_1)$$

$$= \frac{1}{V} \sum_k \frac{i \mu_k^4 T_{cv}(\Delta_2)}{8 \hbar^3 D} \left[\phi^*(\omega_1, -\omega_2) + \left[1 + \left(|\chi_1|^2 / 4 \right) T^*(\omega_1 - \omega_2) (T_{vc}(\Delta_3) - T_{vc}(\Delta_1)) \right] \tilde{W}(0) \right]$$
(6.2-11)

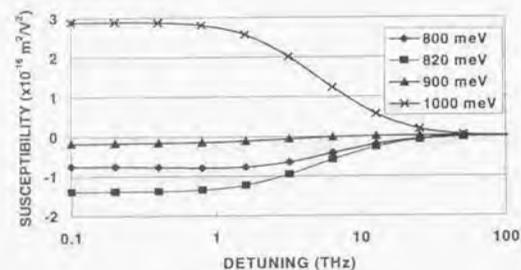
となる。これらの式からわかるように非線形感受率にはキャリア分布の振動（密度の変化と温度の変化）の寄与とスペクトラルホールバーニングの寄与がある。前者の時定数はキャリア寿命やキャリアクレーリングの時間で決まり、後者はバンド内のキャリア緩和時間で決まる。このため、離調 $\omega_1 - \omega_2$ が THz を超えるとスペクトラルホールバーニングの寄与が優勢となる。これよりも離調が小さいときにはキャリア分布の振動（密度の変化と温度の変化）の寄与とスペクトラルホールバーニングの寄与が干渉して

非線形感受率スペクトルは離調に対して非対称的になる¹⁴。以下の計算ではスペクトラルホールバーニングだけを考え、キャリア密度やキャリア温度の振動に起因する過程を含めない。ここでは、キャリア緩和の影響に注目するため電子と正孔のサブバンドはそれぞれ最低サブバンドだけを考える。緩和に対して確率過程モデルを用いて、 $T_{cv}(0) = 300$ fs, $T_{vc}(0) = 70$ fs になるようにパラメータを選んだ。計算した 4 光波混合の非線形感受率の離調依存性は図 6.2-1 に示す通りである。基底準位間のエネルギーを 800 meV とした。利得ピーク付近(820 meV)と吸収領域(1000 meV)では非線形感受率の実部の符号が逆転している。また、非線形感受率は虚部が大きく、特に吸収領域で大きくなることが分かる。利得が 0 になるエネルギーの近くでは非線形感受率が小さく、離調を大きくするとプローブ光の利得が符号を変えるので離調依存性が他のエネルギーと異なる。散乱の相関時間 τ_c をパラメータにした非線形感受率の離調依存性を図 6.2-2 に示す。非マルコフ性の影響が大き(τ_c が大きい)とき利得の時と同様に非線形感受率が大きくなる。離調が大きい時の非線形感受率の落ちかたは線形関数の裾が急になることから τ_c が大きい方が急激に低下する。この解析からキャリア散乱の相関時間が求められるが実験の精度やキャリアヒーティングやキャリア密度の変動による信号の影響もあり、線形関数の形を 4 光波混合の実験から求めるのは難しいだろう。

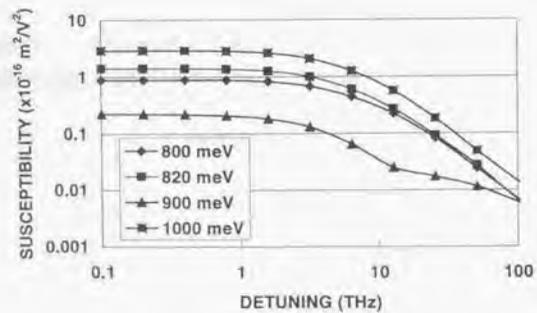
また、ポンプ光が強くなると分母にある D が大きくなり、同時に分子の $\tilde{W}(0)$ が小さくなるから非線形感受率は小さくなる。このため、ポンプ光の強度を増しても 4 光波混合光の強度は飽和していく。半導体レーザーアンプを非線形媒質に用いると誘導放出と ASE のためにキャリアが消費されて 4 光波混合光の強度が飽和するが、それらを抑えても非線形感受率自体の低下が 4 光波混合光の強度の限界を決める。ポンプ光強度に対する非線形感受率の変化を図 6.2-3 に示す。これから分かるように相関時間が短く緩和がマルコフ的なほどポンプ光による非線形感受率の飽和が大きい。また、離調が大きくなると飽和は小さくなる。これは D の表式(6.2-8)にある $T_{vc}(\Delta_2) + T_{vc}(\Delta_1)$ の因子のためである。線形関数が Lorentzian に近いほど裾が広がり、2 つの線形関数の重なりが大きくなって飽和しやすくなる。離調が大きくなると線形関数の重なりが小さくなるため飽和は小さくなる。



(a) REAL PART



(b) IMAGINARY PART



(c) ABSOLUTE VALUE

図 6.2-1 非線形感受率のポンプ光のエネルギーをパラメータとした離調依存性

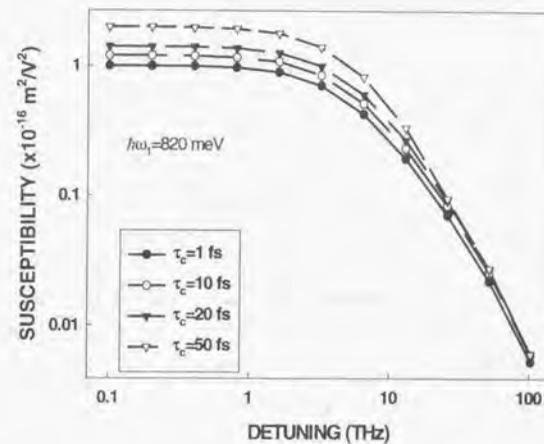


図 6.2-2 非線形感受率の、散乱の相関時間をパラメータとした離調依存性

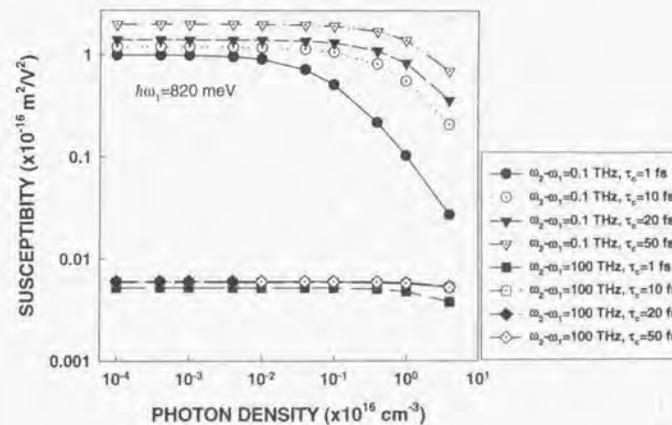


図 6.2-3 非線形感受率のポンプ光強度依存性

共振型非縮退 4 光波混合^{12,13}

離調が大きくなると 4 光波混合光の強度は小さくなる。共振器による共鳴¹⁴を用いることで数 THz の離調に対しても強い信号を得ることができる。共振型非縮退 4 光波混合の実験から非線形感受率を求めるため以下のような解析を行った。

レーザ内の電場を次のような z 方向に進む平面波と仮定する。

$$E^{(m)}(z, t) = \frac{1}{2} \{ E_i \exp[i(\omega_i t - k_i z)] + c.c. \} \quad (6.2-12)$$

ここで、 ω_i と k_i はそれぞれ光の振動数と波数である。ただし、添え字 $i=1,2,3$ はそれぞれ、信号光、プローブ光、ポンプ光を表わす。4 光波混合に関する非線形分極 P_{NL} は非線形感受率 $\chi^{(3)}$ を用いて

$$P_{NL}^{(3)}(z, t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_3^2(z) E_2^*(z) \exp[i(2\omega_3 - \omega_2)t - i(2k_3 - k_2)z] \quad (6.2-13)$$

で表わせる。ここで、 ε_0 は真空の誘電率である。以下ではこれらと異なり、実験で得られる量との対応が良い SI 単位系を用いる。ポンプ光がプローブ光や信号光より十分強く、4 光波混合によるポンプ光の強度の変化が無視できるとき信号光とプローブ光の波動方程式は SVEA (Slowly Varying Envelope Approximation) の範囲で

$$\begin{aligned} \frac{dE_1}{dz} &= -\frac{\sigma_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_1}} E_1 - i \frac{\omega_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_1}} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_3^2 E_2^* \exp[i(2k_3 - k_2 - k_1)z] \\ \frac{dE_2^*}{dz} &= -\frac{\sigma_2}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_2}} E_2^* + i \frac{\omega_2}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_2}} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_3^2 E_1 \exp[-i(2k_3 - k_2 - k_1)z] \end{aligned} \quad (6.2-14)$$

と表わされる。ここで、 σ_i は導電率、 ε_i は誘電率である。場の変数として $A_i = (n/\omega_i) E_i$ ($i=1,2$) を用いると、式(6.2-14)は

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dz} &= \frac{\alpha_1}{2} A_1 - i \frac{g_1}{2} A_2^* \exp[-i\Delta k z] \\ \frac{dA_2^*}{dz} &= \frac{\alpha_2}{2} A_2^* + i \frac{g_2}{2} A_1 \exp[i\Delta k z] \end{aligned} \quad (6.2-15)$$

と書ける。ただし、

$$\begin{aligned} g_1 &= \sqrt{\frac{\mu_0 \omega_1 \omega_2}{\varepsilon_0 n_1 n_2}} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_3^2 = \frac{2\pi}{n\lambda} E_3^2 = g_2 \\ \Delta k &= 2k_3 - k_2 - k_1 \\ \alpha_i &= \sigma_i \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_i}} \end{aligned} \quad (6.2-16)$$

で、 α_i は正味の利得係数、 n ($=n_1=n_2$) は屈折率、 g_i は 4 光波混合の利得を表わす。上の式(6.2-15)はパラメトリックアンプを記述する方程式と同じ形になる。ポンプ光の強度が共振器内で一定であると仮定すると (これは共振型のアンプでは良い近似である。進行波型では光の強度を z 座標の関数として扱わなければならない。) 式(6.2-15)を積分してまとめると

$$\begin{pmatrix} A_1(z) \\ A_2^*(z) \end{pmatrix} = S \begin{pmatrix} A_1(0) \\ A_2^*(0) \end{pmatrix} \quad (6.2-17)$$

を得る。ただし、

$$S = e^{\alpha z/2} \begin{pmatrix} e^{-i(k_1 + \Delta k/2)z} \left[\cosh\left(\frac{bz}{2}\right) - \frac{c}{b} \sinh\left(\frac{bz}{2}\right) \right] & ie^{-i(k_1 + \Delta k/2)z} \frac{g_1}{b} \sinh\left(\frac{bz}{2}\right) \\ -ie^{-i(k_1 + \Delta k/2)z} \frac{g_2}{b} \sinh\left(\frac{bz}{2}\right) & e^{i(k_1 + \Delta k/2)z} \left[\cosh\left(\frac{bz}{2}\right) - \frac{c}{b} \sinh\left(\frac{bz}{2}\right) \right] \end{pmatrix} \quad (6.2-18)$$

$$\begin{aligned} \alpha &= \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{2} \\ b &= \sqrt{g_1 g_2^* + \left[(\alpha_1 - \alpha_2)/2 + i\Delta k \right]^2} \\ c &= (\alpha_1 - \alpha_2)/2 + i\Delta k \end{aligned} \quad (6.2-19)$$

である。ファブリペロ共振器の入射波 A_{in} 、反射波 A_r 、透過波 A_t を $A_r = \mathcal{R}A_{in}$ 、 $A_t = \mathcal{T}A_{in}$ と表わす。長さ L の共振器の入射側と反射側の端面振幅反射率 r_1, r_2 と振幅透過率 t_1, t_2 から

$$\begin{aligned} \mathcal{R} &= r_1 I + t_1^2 r_2 \left[I - r_1 r_2 S(L)^2 \right]^{-1} S(L)^2 \\ \mathcal{T} &= t_1 t_2 \left[I - r_1 r_2 S(L)^2 \right]^{-1} S(L) \end{aligned} \quad (6.2-20)$$

と書ける。 I は 2×2 の単位行列である。今、ポンプ光の波長が共振器の共振ピークに一致しているとする ($\exp[2ik_1L]=1$)。また、非線形性が弱く $bL \ll 1$ が成り立つものとする。このとき、信号光とプローブ光の透過率はそれぞれ、

$$T_1 = \frac{(1-r_1^2)(1-r_2^2) \left(\frac{gL}{2}\right)^2 e^{i\alpha} \left[(1+r_1r_2e^{i\alpha})^2 - 4r_1r_2e^{i\alpha} \sin^2\left(\frac{(k_1-k_2)L}{2}\right) \right]}{\left[(1-r_1r_2e^{i\alpha})^2 + 4r_1r_2e^{i\alpha} \sin^2\left(\frac{(k_1-k_2)L}{2}\right) \right]^2}$$

$$T_2 = \frac{(1-r_1^2)(1-r_2^2)e^{i\alpha}}{(1-r_1r_2e^{i\alpha})^2 + 4r_1r_2e^{i\alpha} \sin^2\left(\frac{(k_1-k_2)L}{2}\right)}$$

(6.2-21)

となる。この透過率の比は信号光とプローブ光の出力の比に等しい。特に、信号光とプローブ光がともに共振ピークにあるとき出力の比は

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{\left(\frac{gL}{2}\right)^2 (1+r_1r_2e^{i\alpha})^2}{(1-r_1r_2e^{i\alpha})^2}$$

(6.2-22)

となる。この結果を利用して 4 光波混合の実験から非線形光学定数を求めることができる。

図 6.2-4 に実験系を示す。ここでは、両端をへき開した DFB レーザを非線形光学媒質として用いる。このとき、DFB レーザの発振光がポンプ光となる。DFB レーザは無歪 InGaAs/InGaAsP(1.3 μ m 組成)の 1.55 μ m 帯の MQW レーザである。レーザのファブリペロ共振ピークにあわせたプローブ光を端面から注入した。4 光波混合による信号光はポンプ光の波長に対してプローブ光と対称な位置に発生する。注入光と反対側の端面から出射するポンプ光、プローブ光、信号光を光スペクトルアナライザで測定した。光スペクトルアナライザ上のポンプ光強度の絶対値は別の測定によって校正し、プローブ光と信号光の強度はポンプ光の強度との相対値から求めた。プローブ光の光源には波長可変 DBR レーザを用いた。図中のレーザは全て $\pm 0.01^\circ\text{C}$ 以下に温度安定化した。測定は DC で行った。また、通常のファブリペロレーザにマスターレーザの光を注入して注入同期させて発振光をポンプ光とする実験も行なった。この実験には FWM レーザとして 1.55 μ m 帯の MQW レーザ、圧縮歪 MQW レーザ、バルクレーザを用いた。横モードはいずれも BH 構造により制御されている。

DFB-MQW レーザのスペクトルを図 6.2-5 に示す。(a)はプローブ光をポンプ光から長波長側に 7 番目の共振ピークに入射したときの、(b)はフリーランニングの出力

光スペクトルである。1.1 THz の離調で 4 光波混合が観測されている。ポンプ光出力は 4.3 dBm、プローブ光出力は -11 dBm で、このとき 4 光波混合の信号光の出力は -40 dBm であった。信号光の大きさはレーザ媒質の増幅率で変わる。注入同期したレーザのほうが出力は大きくポンプ光出力が数 mW、プローブ光出力が数百 μ W のとき信号光の出力として数 μ W が得られた。信号光の強度はプローブ光の強度にほぼ比例した。プローブ光の強度をあげるとレーザの利得が飽和するためポンプ光出力が低下した。信号光の離調周波数依存性を図 6.2-6 に示す。離調特性は非対称だがプローブ光を長波側に入射したとき (マイナスデチューニング) 1 THz 以上にわたってフラットである。また、注入同期したレーザでは MQW レーザ、歪 MQW レーザ、バルクレーザのいずれの場合も 1 THz 以上の離調まで信号光出力の低下は見られなかった。4 光波混合は離調が 2 THz を越えても発生することは確認できたがレーザの波長分散の影響のため条件をそろえて測定することは難しい。それでも、非縮退 4 光波混合は数百 fs 以下の応答時間を持つ現象を起源としていることは結論できる。ここでは、ポンプ光とプローブ光の出力を一定にして信号光が最大となるようにプローブ光の波長を共振ピークの付近で微調したため、プローブ光の入力強度は一定ではない。また、ポンプ光とプローブ光の出力が大きく離調が比較的小さいとき (200 GHz 程度) のとき複数の信号光がカスケードに発生した。このようなカスケード 4 光波混合は離調が数 GHz の近縮退 4 光波混合では報告がある¹⁵が数百 GHz の離調での観測はこれがはじめてである。

実験結果から 4 光波混合に関する 3 次の非線形感受率を求める。非線形感受率を見積もる手順は次の通りである：

- (1) 注入同期状態での信号光とプローブ光の波長の共振ピークにおける内部利得 α_1, α_2 を ASE のリップルから求め (Hakki-Paoli 法)、平均内部利得を $\alpha = (\alpha_1 + \alpha_2)/2$ とする。
- (2) 実験で得た共振ピークでの信号光/プローブ光出力比から、式(6.2-22)を用いて $|g|$ を求める。
- (3) 式(6.2-16)の第 1 式により非線形感受率を求める。このとき下のように書き換えた次の式を用いる。

$$g = \frac{4\pi^2 \alpha_m P_3 |\chi^{(3)}|}{\epsilon_0 n^3 \lambda v_g S_m L}$$

(6.2-23)

ここで、 v_g は群速度、 α_m はミラー損失、 S_m はモード断面積、 Γ は光閉じ込め係数、 P_3 はポンプ光出力(両端面の和)である。ここでは $n=3.3$ 、 $\lambda=1550$ nm、 $S_m=1.5 \mu\text{m}^2$ を用いる。

得られた非線形感受率の値は MQW レーザにおいて 0.5×10^{15} (m^2/V^2)、歪 MQW レーザ、バルクレーザで 0.6×10^{15} (m^2/V^2) であった。実験誤差から考えてこれらの値はすべて等しい。また、これから得られる非線形利得係数は 4×10^{23} m^3 で 5.5 節で小信号応答特性

6.3. fs 領域での正孔の非熱的分布の観測

この実験は n-変調ドープ量子井戸で低温・低励起・低光子エネルギー（バンド端付近を励起）での光応答を観測するものである。これらの条件は光励起が良く定義された電子のフェルミ分布を乱すことなく、発光の過程が正孔の緩和によって支配される様にするために必要である。室温¹⁸⁾では電子の縮退が弱いため発光過程はここで考えているものと異なり電子の緩和の影響が大きくなる。また、励起する光のエネルギーが大きいと（文献9では光子エネルギーとバンドギャップの差が 600 meV もある）たとえ励起強度が小さくとも電子系に大きなエネルギーが与えられるため電子のエネルギー分布を乱す。

実験

実験系の構成を図 6.3-1 に示す。パルス光で励起した試料からの発光をカセグレン鏡で集光し、これと遅延させた励起パルスの一部（ゲート光）を非線形光学結晶に入射する。2 つの光が同時に入射した時にのみ生じる和周波混合光をダブルモノクロメータで分光してから検出するものである。この方法の時間分解能は非線形光学結晶に 5 mm の BBO を用いた場合、パルス光の時間幅が 100 fs 以上の時にはパルス光の時間幅になる。フェムト秒の時間分解能で発光スペクトルが得られるため、キャリアの緩和を観測するのに便利である。しかし、この方法は感度が低く、検出には -30℃ に冷却した光電子増倍管による単一光子計数法を用いた。実験に用いた試料は井戸幅 5 nm の GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As n-変調ドープ量子井戸を 60 層積層したものである。井戸層あたりの電子密度は $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ で実験に使用した温度である 5K におけるフェルミ準位は約 18 meV である。

励起にはモードロックチタンサファイアレーザからの光子エネルギー 1.78 eV、パルス幅 200 fs 以下の光を用いた。前に述べたように励起する光のエネルギーは電子のエネルギー分布に影響しないようにできるだけ小さくするのが望ましいが、この実験では励起光とゲート光に同じレーザの光を使っているためにゲート光の SHG が発光に重なってしまう。試料からの発光とゲート光を分離するためには発光の光子エネルギーとゲート光の光子エネルギーを 100-200 meV 以上離す必要がある。励起される電子の運動エネルギーは重い正孔バンドからの遷移では 140 meV、軽い正孔バンドからの遷移では 123 meV である。このとき作られる重い正孔の運動エネルギーは 21 meV、軽い正孔のそれは 17 meV である。以上の見積もりには 4x4 の Luttinger-Kohn のハミルトニアンを axial 近似によって解いて得た正孔のサブバンド構造を用いた²¹⁾。

¹⁸⁾ 室温ではこれに加え、フォノンの吸収も起きるため実験結果の解析がむずかしくなる。

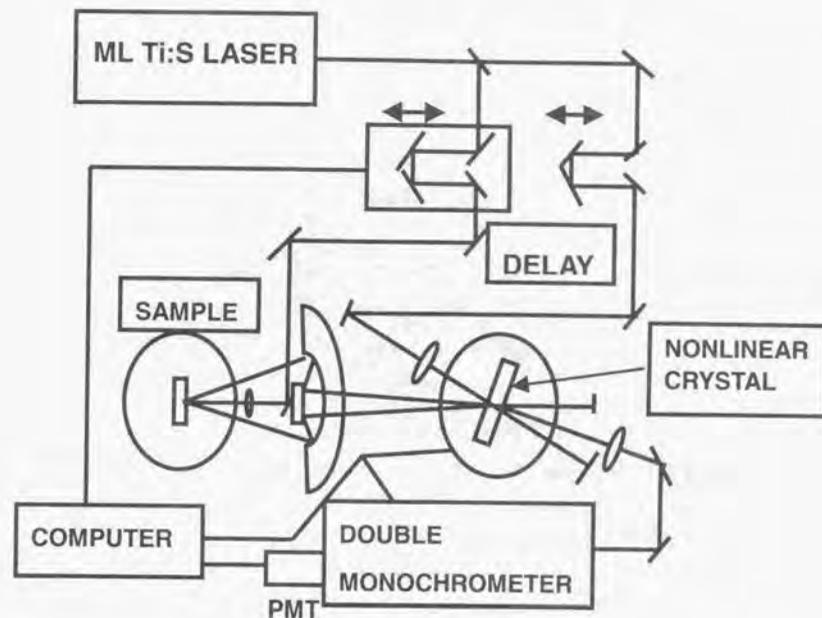


図 6.3-1 実験系の構成図

励起強度は信号が観測できる範囲でできるだけ小さくする必要がある。この実験では励起されたキャリア密度は約 $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ である。これは励起光の強度とスポットサイズから見積もった。励起されるキャリア密度を小さくし、しかも発光強度を落さないために励起光をレンズで集光して試料に当てる時意識して試料の位置を焦点からずらしてスポットのサイズを大きくした。簡単な見積もりによると励起光によってバンド端付近の電子の分布は 10%程度と小さい。発光の時間変化は正孔の緩和で決まるとしてもよい。この実験では、励起された重い正孔がフェルミ分布した「冷たい」電子やその他の正孔、音響フォノンと相互作用するダイナミクスを観測できる。励起される重い正孔の運動エネルギーが 23 meV と光学フォノンのエネルギーより小さいため光学フォノンの放出はなく、低温での実験のためフォノン吸収も無視できるため正孔と光学フォノンとの相互作用は考える必要はない。

我々は励起光とゲート光の遅延時間を変えて発光スペクトルを測定した。また、バンド端の発光 (1.62eV) にモノクロメータを合わせて時間発展も観測した。図 6.3-2 は 100 fs から 7 ps の間の 5 つの時刻における発光スペクトルである。また、図 6.3-3 には 2 つの異なる時間スケールにおけるバンド端の発光の時間発展を示した。

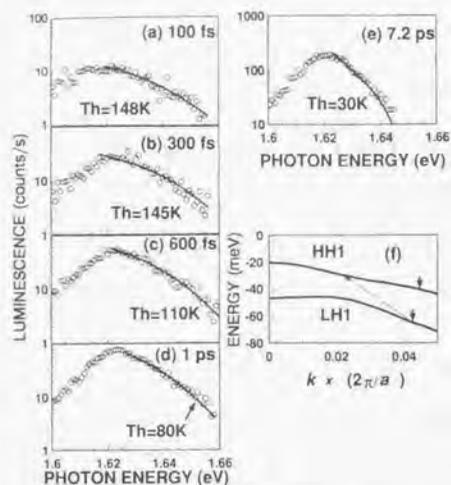


図 6.3-2 発光スペクトル。時刻 (遅延時間) は(a)100 fs, (b)300 fs, (c)600 fs, (d)1 ps, (e)7.2 ps の 5 つ。図中の曲線は正孔の熱分布を仮定した時の発光スペクトルのフィッティング結果。パラメータは正孔温度 (図中) と電子温度。電子温度は (a)98 K, (b)87 K, (c)82 K, (d)80 K, (e)30 K となった。また, (f)は正孔のサブバンド構造。

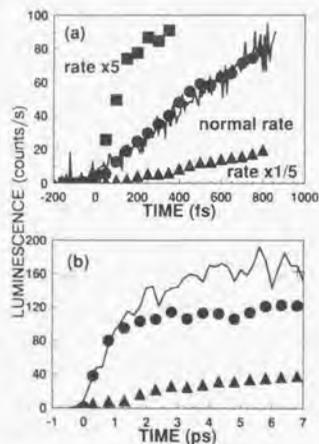


図 6.3-3 フェムト秒 (a)、ピコ秒 (b) の時間スケールでのバンド端発光の時間発展。実線は実験結果、丸は通常のキャリア-キャリア散乱率を使ったモンテカルロシミュレーション、四角は散乱率を 5 倍にした時、三角は散乱率を 5 分の 1 にした時の結果。(b) で十字は 7 ps での温度を 30 K とした時の強度の計算値、丸はシミュレーション、三角は電子-正孔散乱を消したシミュレーション結果。

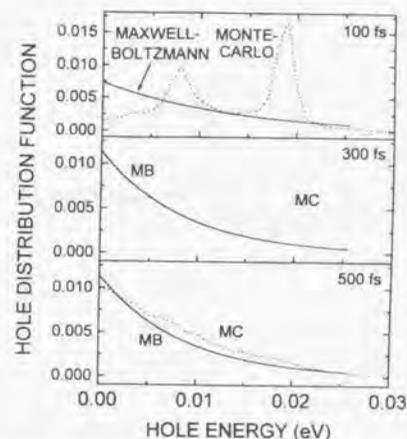


図 6.3-4 正孔のエネルギーに対する分布関数。点線は EMC モンテカルロシミュレーション、実線は同じ平均エネルギーを持つマクスウェル・ボルツマン分布を示す。

実験結果の解析と考察

実験の結果が熱的に分布したキャリア (フェルミ分布している電子とマクスウェル・ボルツマン分布した正孔) からの発光として解釈出来るかを検討する。正孔の励起密度は小さいのでマクスウェル・ボルツマン分布は良い近似である。電子の温度を T_e 、正孔の温度を T_h とすると光子エネルギー $\hbar\omega$ における発光強度は

$$I(\hbar\omega) = \frac{A}{k_B T} \exp\left[-(1-c)(\hbar\omega - E_g)/k_B T\right] \frac{1}{1 + \exp\left[\frac{c(\hbar\omega - E_g) - E_F}{k_B T}\right]} \quad (6.3-1)$$

ただし, c は電子と重い正孔の有効質量の比に関係したパラメータで、

$$c = \left(1 + \frac{m_e}{m_h}\right)^{-1} \quad (6.3-2)$$

である。ここで、電子の分散を放物線と仮定して有効質量を $m_e=0.067 m_0$ とした。重い正孔のバンドを放物線と仮定して求めた有効質量は $m_h=0.49 m_0$ 、軽い正孔の有効質量は $m_l=0.45 m_0$ となった。このときのフィッティングした放物線と k, p 摂動法で計算したバンド²³とのエネルギーの誤差は関心のある全区間で 3 meV 以下である。発光スペクトルの式(6.3-1)によるフィッティングでは正孔の有効質量には敏感でないのでバンドの非放物線性の影響は小さいものと考えられる。式(6.3-1)に現われるもう一つのパラメータ A は次の式で与えられる:

$$A = \eta \frac{N_h}{\rho_h} \quad (6.3-3)$$

ここで、 N_h は正孔の密度、 ρ_h は正孔の状態密度、 η は発光と検出の量子効率に関係したパラメータである。図 6.3-2の曲線はキャリアの熱的分布を仮定して式(6.3-1)によってフィッティングしたものである。電子と正孔の温度をフィッティングパラメータとしたが、バンド端付近 ($\hbar\omega - E_g < 20$ meV)を合わせるには正孔の温度が重要であることが分かった。電子の温度は高エネルギー側の裾に影響する。フィッティングの結果によると正孔の温度は始めの 100 fs で 148 K まで上がり、1 ps の間に 80 K まで下がっている。このモデルは図 6.3-2に示すように実験結果を良く再現している。しかし、この結果から全ての正孔が熱的に分布しているとは結論できないことに注意しなければならない。というのは、この実験で用いた量子井戸のバンド構造から、発光スペクトルの範囲 35 meV は重い正孔バンドの頂上の 5 meV にしか相当しない。そのため、発光スペクトルの形だけではバンド全てにわたる正孔の分布についての情報は得られない。実際、以下に示すように発光の時間発展は熱的に分布した正孔が冷えていくというモデルでは説明できない。

正孔が熱的に分布しているならば、正孔の再結合が無視できる時間領域では式(6.3-1)におけるパラメータ A は定数になる。そして、バンド端における発光強度は正孔の温度の逆数に比例するはずである。図 6.3-3に示したバンド端付近の発光強度の変化は、重い正孔バンドの頂上付近 1 meV 以内の正孔の分布を反映している。実験によると発光強度は 100 fs から 1 ps の間に 7 倍になっている。しかし、この時間内には正孔の温度は 148 K から 80 K と因子 2 以下しか変化しない。そのため、発光強度の時間発展は全てのキャリアが熱的に分布したモデルでは説明できない。この結論は発光スペクトルの低エネルギー側の裾が時間が経つと狭まる事を考えに入れても変わらない。発光強度の増大は始め高いエネルギーの状態に非熱的に分布したキャリアが熱的に分布していき、冷えていくことによって起きると考えるべきである。どの程度の正孔が熱的に分布しているかはパラメータ A の時間変化を調べることで推定できる。1 ps たった時には全ての正孔が熱的に分布しているものと仮定すると、100 fs、300 fs、800 fs の各時点で 33%、67%、80% の正孔しか熱的に分布していないことが分かった。800 fs た

っても 20% ほどの正孔が非熱的に分布していることになる。前に述べたように発光スペクトルには正孔分布の一部しか反映されないから、ここで述べたような非熱的な正孔分布を考えることには矛盾はない。

図 6.3-3(b)は発光強度は 1 ps 経過すると最大値の 1/2 に達し、その後ゆっくりと増加し 7 ps 付近で最大になる事を示している(これ以上時間が経過するとキャリアの再結合のためキャリア密度が小さくなって発光強度が低下する)。重い正孔の散乱には光学フォノンが重要でないから、始めの 1 ps の間での発光強度の増大は電子-正孔散乱による正孔の熱分布への緩和とエネルギー損失のためであり、約 1 ps で電子と正孔が擬熱平衡になるものと考えられる。それ以降は熱的に分布した電子正孔プラズマがフォノンとの相互作用で冷えていくことによって発光が増大すると考えてよい。

以上の議論をより定量的にするために、アンサンブルモンテカルロシミュレーション(EMC)²²を行った。シミュレーションは電子、重い正孔、軽い正孔の最低サブバンドだけを考慮する 3 バンドモデルでキャリアのダイナミクスを計算した。ここで、各バンドは放物線と近似し、有効質量は先に述べたように正しいバンド構造に最も近くなるように選んだ。また、光励起の際の重い正孔と軽い正孔の関与する過程の吸収係数の比を 2:1 と仮定した。このシミュレーションでは光学フォノンはバルクのフォノンモードで表わせるものとした。ここではホットフォノン効果は無視したがキャリアの縮退の効果は考慮した。キャリア-キャリア散乱レートは各時刻のキャリア分布から計算される静的なスクリーニング(時刻毎に更新される)を用いた²²。熱的に分布した電子-正孔系と電子の散乱では動的なスクリーニングを考えなければならない事が知られている²⁴。しかし、今回の実験のように正孔のダイナミクスを考える場合には正孔の有効質量が大きく正孔の平均運動エネルギーが電子よりも直ちに (>150 fs) 小さくなってしまいますので、高い振動数まで考える必要はなく、静的なスクリーニングの良い近似になっていると考えられる。キャリアが非熱的に分布している時の動的スクリーニングの影響はまだ良く知られていないので、これは将来研究すべき課題である。

図 6.3-4の点線に計算された励起パルスのピークから 100 fs、300 fs、500 fs 後の各時点における重い正孔の分布を示す。実線は同じ平均運動エネルギーを持つマックスウェル・ボルツマン分布の分布関数である。計算された重い正孔の分布は 100 fs 後では 2 つのピークを持つ明らかに非熱的な分布をしている。2 つのピークのうち高エネルギー側のピークは重い正孔バンドへの直接の光励起によるもので、低エネルギー側のピークは軽い正孔バンドからの光学フォノンレプリカである(図 6.3-2(f))。300 fs 後には分布関数はかなり広がっているがまだ非熱的に分布している。500 fs 後には分布関数はマックスウェル・ボルツマン分布に近くなっている。バンド端付近で熱的に分布している正孔の割合は、バンド端での正孔の占有率をマックスウェル・ボルツマン分布と比較する事で得られるが、実験と良い一致を示した。

EMC シミュレーションで得られたバンド端発光の時間発展は図 6.3-3(a)に示すように実験と良く一致する。図 6.3-3(a)にはキャリア-キャリア散乱のレートを人工

的に5倍にしたもの(四角)と1/5にしたもの(三角)を同時に示した。発光の時間発展はキャリア-キャリア散乱のレートによって敏感に変わる。このことは発光強度の変化は正孔が冷たい電子系と相互作用してエネルギーを失って熱的分布に緩和することで決められている事を示している。さらに、電子-正孔散乱を人工的に消した場合には図6.3-3(b)の三角に示すように極めて遅い発光強度の増加しか得られない。それに対し、正孔-正孔散乱を消してもほとんど発光強度の変化に影響はなかった。この結果からも電子-正孔散乱が発光強度の時間発展に主要な役割を果たしている事が確かめられた。正孔-正孔散乱が重要でないことは励起された正孔の密度が小さいことから予想される。実験とシミュレーションとの一致は時間に依存した静的スクリーニングされたキャリア間のクーロン相互作用が今回の実験の状況ではキャリア-キャリア散乱の表現として適当である事を示している。EMCシミュレーション結果は正孔の密度を $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ から $4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ の間で変化させても影響を受けなかった。これは正孔-正孔散乱が重要でないという結論と符合する。同時に、励起強度の見積りも精度が必要ない事も分かる。正孔の有効質量を変化させても結果はほとんど変わらなかった。これは、有効質量を増すと散乱確率は大きくなるが、散乱角が小さくなってより多くの散乱が弾性的になってエネルギーのやり取りを伴わなくなるため散乱確率の増大を打ち消すからである。有効質量が正孔のエネルギー損失レートや緩和にあまり影響しないという事実はEMCシミュレーションで正孔のバンドを放物線で近似した事を正当化する。また、光学フォノン散乱は励起パルスピークから100 fs以内で起きる軽い正孔バンドから重い正孔バンドへの散乱を除くと電子-正孔散乱に比べて重要でないことが結論された。これはバルクのGaAsについての結果⁹とは異なるが、それにはいくつかの理由が考えられる。まず、文献9の実験では励起される電子の運動エネルギーが大きく電子の分布が変化するため電子のダイナミクスの影響を完全に取り除くのが難しい。また、重い正孔、軽い正孔、スプリットオフバンドの正孔のいずれにも大きなエネルギーの正孔が励起されるため光学フォノンとの相互作用がエネルギー的に可能になる。最後に、文献9のような室温での実験では光学フォノンの吸収が起き、正孔のダイナミクスを全く違うものにしてしまう。

ピコ秒領域の時間発展も図6.3-3(b)に示すようにEMCシミュレーションは1 ps以降での発光強度の増大が遅くなる事を再現している。しかし、長時間経過後での発光強度は実験よりも小さくなっている。この違いはキャリアの温度が7 ps後では実験では30 Kであるのに対し計算では40 Kであるためだと思われる。実際、7 ps後のキャリア温度を30 Kとした計算結果を図6.3-3(b)の十字で示すが実験と良く一致している。EMCシミュレーションでは音響フォノンとの相互作用によるエネルギーの散逸を加えても7 psにおけるキャリア温度は変化しなかった。そのため、実験とシミュレーションとの不一致を解消するためには別のより効率的なキャリアの冷却過程、例えばプラズモン-フォノン散乱²⁵などを考える必要がある。

以上の結果を全体としてみると実験とEMCシミュレーションの両方とも重い正孔の熱的分布への緩和が比較的遅いことを示している。シミュレーションによれば、電子系が縮退している事により電子-正孔散乱の確率が小さくなって正孔の冷却が抑制されるためである。このことより、温度が高い場合や高エネルギーの電子が励起されて電子がフェルミ分布からずれると正孔の緩和過程が今回の実験とは大きく異なって正孔の速い緩和がおきる。今回の実験は条件を注意深く制御する事によって正孔の熱的分布への緩和を100 fs程度の時間分解能しかない系で観測する事に成功したということもできる。

6.4. まとめ

本章ではキャリアの緩和を観測する2つの方法について述べた。まず、周波数領域の方法として、非縮退4光波混合について述べた。本研究では非縮退4光波混合の密度行列理論を展開し、任意の強度のポンプ光に対する4光波混合の式を得た。離調に対する4光波混合強度の依存性からキャリアの緩和についての情報が得られるが、いくつかのメカニズムが共存する場合には解釈が難しくなる。また、離調が大きい時には利得媒質のスペクトルや分散の影響が現われる。しかし、本章で示したように、共振器で増強した非縮退4光波混合を数THzの離調で観測することができ、ある程度の情報を得ることができる。実験で得られた4光波混合強度の離調依存性から数100 fs以下の速い緩和が起きていることが結論できる。また、実験で得られた非線形利得の大きさは変調実験で得られたものと同程度で両者に同じ非線形利得のメカニズムが働いていることを示唆している。

また、GaAs量子井戸の正孔の初期緩和について初めて明確な研究を行った。試料と実験条件を注意深く設計することにより正孔の緩和が系の応答に支配的な状況での実験結果を得ることができた。本章の結果によれば低温でバンド端付近を低励起した場合、励起後800 fs近くまで正孔の分布はマックスウェル-ボルツマン分布からずれた非熱的分布をとることが明らかになった。この事はモンテカルロシミュレーションの結果とも一致した。実験結果とシミュレーションの比較から電子-正孔散乱が正孔の緩和過程として支配的で正孔-正孔散乱はあまり重要でないことが分かった。正孔の緩和は電子が縮退しているため電子-正孔散乱のレートが抑制されて正孔の緩和が遅くなっていることが明らかになった。また、時間に依存した静的スクリーニングされたキャリア間のクーロン相互作用が今回の実験の状況ではキャリア-キャリア散乱の表現として適当であることも示された。本章の結果は発光などの限られたエネルギー領域におけるスペクトルのフィッティングからキャリアの全体的な分布についての結論を引き出すことの危険性を示している。

文献

- ¹ A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang; *Phys. Rev.* **B48** (1993) 5708.
- ² A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang; *Semicond. Sci. Technol.* **9** (1994) 449.
- ³ W.H. Knox, et al.; *Phys. Rev. Lett.* **61** (1988) 1290.
- ⁴ T.C. Damen and J. Shah; *Appl. Phys. Lett.* **52** (1988) 1291.
- ⁵ R. Kersting et al.; *Superlattice and Microstruct.* **7** (1990) 345.
- ⁶ J. Shah, et al.; *Phys. Rev. Lett.* **59** (1987) 2222.
- ⁷ X.Q. Zhou, et al.; *Solid State Electron.* **32** (1989) 1591.
- ⁸ T. Elsässer, J. Shah, L. Rota, and P. Lugli; *Phys. Rev. Lett.* **66** (1991) 1757.
- ⁹ X.Q. Zhou, K. Leo, and H. Kurz; *Phys. Rev.* **B45** (1992) 3886.
- ¹⁰ D.J. Harter and R.W. Boyd, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-16** (1980) 1126.
- ¹¹ K. Kikuchi, and M. Amano, C.E. Zah and T.P. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **64** (1994) 548.
- ¹² G.P. Agrawal, *Appl. Phys. Lett.* **51** (1987) 302.
- ¹³ S. Murata, A. Tomita, J. Shimizu, M. Kitamura, and A. Suzuki, *Appl. Phys. Lett.* **58** (1991) 1458.
- ¹⁴ J.G. Provost and R. Frey, *Appl. Phys. Lett.* **55** (1989) 519.
- ¹⁵ R. Nietzke, P. Fenz, W. Elsässer, and E.O. Göbel, *Appl. Phys. Lett.* **51** (1987) 1298.
- ¹⁶ J. Zhou, N. Park, J.W. Dawson, K. Vahala, M.A. Newkirk and B.I. Miller, *Appl. Phys. Lett.*, **63** (1993) 1179.
- ¹⁷ A. D'Ottavì, E. Iannone, A. Mecozzi, S. Scotti, P. Spano, J. Landreau, A. Ougazzaden, and J.C. Bouley, *Appl. Phys. Lett.*, **64** (1994) 2492.
- ¹⁸ A. Uskov, J. Mørk, J. Mark, M.C. Tatham, and G. Sherlock, *Appl. Phys. Lett.*, **65** (1994) 944.
- ¹⁹ A. D'Ottavì, E. Iannone, A. Mecozzi, S. Scotti, P. Spano, R. Dall'Ara, G. Gueko, and J. Eckner, *Appl. Phys. Lett.*, **65** (1994) 2633.
- ²⁰ F. Girardin, J. Eckner, G. Gueko, R. Dall'Ara, A. Mecozzi, A. D'Ottavì, F. Martelli, S. Scotti, and P. Spano, *IEEE Photon. Technol. Lett.*, **9** (1997) 746.
- ²¹ S.L. Chuang; *Phys. Rev.* **B45** (1991) 9649.
- ²² モンテカルロシミュレーションについての詳細は次の文献を参照: S.M. Goodnick and P. Lugli; *Hot carriers in semiconductor nanostructures*, ed. by J. Shah (Academic, NY, 1992) Chap. III.1, p.191.
- ²³ R. Jalabert and S. Das Sarma; *Phys. Rev.* **B41** (1991) 3651.
- ²⁴ J.F. Young, P.J. Kelly and N.L. Henry; *Semicond. Sci. Technol.* **B7** (1992) 148.
- ²⁵ S. Das Sarma, J.K. Jain, and R. Jalabert; *Phys. Rev.* **B41** (1990) 3561.

7. 結言

本章ではこれまで述べた「量子井戸半導体レーザにおけるキャリア間相互作用の研究」について本研究で明確にしたこと、今後の課題・展望を述べて結言とする。

7.1. 本論文で明確にした点

ここでは、本論文で明確にし、解決した点を簡単にまとめることとする。

第1章においてはこれまでの半導体レーザ研究の歴史を概観し、本論文で問題とする課題の位置づけを行った。

第2章においては、電子と正孔の空間的な分布の違いからくる空間電荷ポテンシャルと交換相関相互作用、それに価電子帯のミキシングの影響をセルフコンシステントに取り入れて量子井戸の電子状態を計算した。計算手法として局所密度汎関数法とLuttinger-Kohnハミルトニアンとを総合したものを開発し、電子・正孔の2成分系に対して初めて適用した。このような計算は長波長帯や可視域で用いられるInPを含む材料系の量子井戸のように井戸の閉じ込めポテンシャルあまり大きくない場合に必要となることを示した。従来の空間電荷のみを取り入れたものや多体効果を後から計算したものは正しい結果を与えない。

第3章においては、キャリアと光の相互作用を検討した。光遷移によって擬平衡状態からずれたキャリア分布が新しい擬平衡状態に向かって緩和する過程(バンド内緩和)と擬平衡状態のキャリアの誘電応答の二つを検討した。バンド内緩和があるときの利得や非線形利得の表式を微視的なキャリア間相互作用のハミルトニアンから導いた。ここでは、線形関数がキャリア間相互作用のハミルトニアンの自己相関関数で表わされることを示した。単一モードの光電場に対して任意の光強度に対する光学利得の表式をバンド内緩和の非マルコフ性の影響を含めて求めることができた。キャリアの緩和を射影演算子法で扱うことで従来の密度行列法と山西らの線形関数の理論を統一し、これらに微視的な基礎付けを与えた。また、量子井戸構造による自由キャリア屈折率の制御の可能性を検討するため、擬2次元系の波動関数を用いて線形応答理論によって誘電応答を求めた。長波長近似を用いたとき、この計算の範囲ではフリーキャリアによる屈折率は光の偏光によらず、また量子井戸構造によるフリーキャリア屈折率の制御はできないことが示された。

第4章においては、第2章と第3章の結果を使って量子井戸レーザの線形利得を計算した。線形利得の影響はレーザのしきい値特性に現われるが、特に空間電荷効果や交換相関相互作用が重要になる例として、量子井戸レーザの発振波長を論じた。レーザの発振波長(利得スペクトルのピークの位置)は交換相関相互作用によるバンドギャップシュリンケージとバンドフィリングとの兼ね合いで決まり、しきい値キャリア密度が大きくなるにつれてバンドフィリングによる短波長化が支配的になることを示した。ただし、井戸の閉じ込めポテンシャルが小さくキャリアの空間分布がキャリア間相互作用のポテンシャルに影響される場合には発振波長の変化はより複雑になる。発振波長の変化に関連して量子井戸を可飽和吸収体として用いたときのセルフパルセーション発現のためのバンドギャップの条件を、キャリア密度に依存した利得スペクトルから導いた。また利得スペクトルを異なる温度で計算して、可視光の半導体レーザの温度特性の検討を行った。種々の量子井戸構造を比較した結果、温度特性には伝導帯のX点の影響が大きいことを明らかにした。

第5章では半導体レーザの高速変調特性を支配する非線形利得についても検討した。非線形利得の起源として、スペクトラルホールバーニングとキャリアヒーティングについて検討し、しきい値利得(キャリア密度)の関数としての非線形利得の振る舞いが非線形利得の機構によって異なることを示した。光変調法によって半導体レーザの寄生容量やインダクタンスの影響を除いた変調特性を測定した。実験の結果からスペクトラルホールバーニングによる非線形利得が無視できないことが示された。半導体レーザアンプではキャリアヒーティングが非線形利得の主要因とされているが、半導体レーザ(発振器)とレーザアンプの動作条件の違いから観測される非線形利得のメカニズムが異なる可能性を論じた。また、レート方程式で非線形利得を取り入れる際の利得の光子密度依存性を求めた。

第6章ではキャリア緩和を実験的に調べた。スペクトラルホールバーニングによる4光波混合の密度行列理論を展開し、非線形感受率の離調依存性に対する緩和の非マルコフ性の影響や強いポンプ光による飽和を検討した。共振器によって増強される4光波混合を理論的、実験的に解析した。実験から導かれる非線形利得係数が半導体レーザの変調特性を支配するものと一致することを示した。また、n-変調ドープ量子井戸の正孔の緩和を時間分解発光によって調べた。これは量子井戸のキャリア間相互作用を実験的に直接観測した例として数少ない例の一つだと思われる。ここでは実験条件を制御することによって電子の分布の変化やキャリアとLOフォノンとの相互作用を抑制して光によって励起された正孔とフェルミ分布した電子系との相互作用だけを取り出したものである。光励起された正孔は励起の800 fsまで非熱的に分布することが示された。このような長い緩和時間は、低温では電子系が縮退するため正孔の散乱確率が小さくなるためだと考えられる。実験とアンサンブルモンテカルロシミュレーションとの一致は良く、この解釈が妥当であることが示された。

以上のように本研究において量子井戸レーザにおけるキャリア間相互作用の重要性が示された。キャリア間相互作用による量子井戸の利得スペクトルや屈折率の変化は、今後半導体レーザを機能素子として利用していくときには特に重要となる。本論文において論じた、量子井戸を可飽和吸収体として用いたセルフパルセーションや、レーザ媒質の非線型性を利用した 4 光波混合などはその現われである。本論文で求めた利得や非線型利得の表式や屈折率などを光電場の方程式やレート方程式と組み合わせることでこのようなデバイスの動作をよりよく記述することが可能となる。

7.2. 従来の研究との比較・今後の課題と展望

本研究によって量子井戸レーザの特性に対するキャリア間の相互作用の様々な働きが理解されたが、本論文で述べたことで量子井戸レーザの全てが分かったわけではなく、さらに検討を進めていくことが必要である。今後の研究の方向を考えるために量子井戸レーザの物理の見取り図(図 7.2-1)を示した。このうち、下線を引いたものは本論文で論じたものである。本論文はレーザの動作で最も重要な働きをする量子井戸の電子構造や利得について検討したが、本論文では十分に論じられなかった事柄にも今後の应用到に重要なものがある。以下では量子井戸レーザ(アンプ)の新たな応用を探る際に必要となることをまとめて今後の課題と展望とする。理論の課題については第 3.6 節でも論じたが、ここでは本論文全体のまとめとしてあえて重複を厭わずに述べることにする。

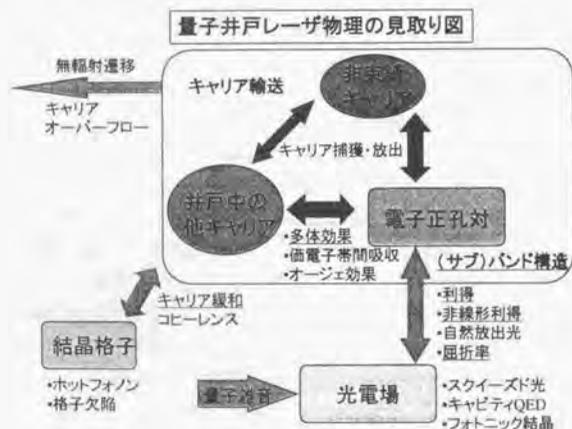


図 7.2-1 量子井戸レーザ物理の見取り図。本論文で取扱った内容は下線で示した。

第 1 に本論文では活性層となる量子井戸に注目し、それも定常状態について議論した。キャリアのバンド内緩和が速いことから定常状態でもかなりの事が分かるが、速い現象を扱うにはキャリアのダイナミクスを考えることが必要になる。本論文ではキャリアの擬平衡分布の計算(第 2 章)と擬平衡分布への緩和(第 3 章)別々に扱った。擬平衡分布へのキャリアの緩和は密度や温度の変化に比べて十分短い時間でおきるからこのような断熱的な取り扱いで十分な場合が多い。しかし、短い時間での変化を考えるとこれらを統一して扱う必要が出てくる。Koch¹⁾による Semiconductor Bloch 方程式はそのような取り扱いを試みたものとして重要である。彼らは多体効果によるキャリアのエネルギーを時間的に変化する形で取り込んでいる。しかし、多体効果はハートリー・フォック近似の範囲にとどまっている。また、キャリアの空間分布を考えておらず、第 2 章の主題であった空間的に一様でない分布をするキャリアの状態を空間電荷と交換相関相互作用をセルフコンシステントに解く形にはなっていない。第 2 章と第 3 章を一つの方程式系で真に統一して表すには Semiconductor Bloch 方程式では十分ではない。このためには Kohn-Sham 方程式を時間に依存した形にしなければならないが、キャリア分布がフェルミ分布(擬平衡分布)でないときの交換相関ポテンシャルの形や静電ポテンシャルの遮蔽の表し方などを解決しなければならない。

また、電流注入デバイスである半導体レーザではキャリアの輸送が重要となりバリア層や光閉じ込め(SCH)層でのキャリアの振る舞いや井戸層へのキャリアの捕獲と井戸層からの放出を考慮しなければならない。実際、本論文でも、キャリアヒーティングの取扱いにはキャリアの注入に関係したキャリアダイナミクスを考えなければならなかった。キャリアのダイナミクスとしてレーザの温度特性に重要であると考えられている価電子帯間吸収やオージェ効果についてもまだ理論的な検討は十分ではない。特に、オージェ効果はキャリアの多体効果の影響が強く、また波数の大きいキャリアも寄与するため取扱いが難しい。

第 2 に本論文では光を古典的な電磁波として扱う半古典論でレーザを論じた。通常のレーザではこの取扱いで十分だが、レーザの線幅や、注入同期におけるノイズ、レーザアンプでの 4 光波混合過程におけるスクイーミングなど高度な応用にはレーザを光も含めて量子論で考える必要がある。

第 3 に本論文では半導体材料の物性定数は所与のものとしたが更に特性改善を目指すとき材料そのものを新たに設計していくことも必要になるものと考えられる。この意味で半導体混晶の構造や電子状態を計算する実用的な手法が望まれる。

最後に、本論文ではキャリア間の相互作用を主に実効的な形で取り入れた。例えば、第 2 章では相関交換ポテンシャルを導入し、第 3 章ではキャリア緩和をハミルトニアン自己相関関数を用いて表わし確率過程モデルを利用した。本論文はあくまでも量子井戸レーザの应用到に現われるキャリア間相互作用の影響を明らかにするた

¹⁾ M. Linberg and S.W. Koch, Phys. Rev. B38 (1988) 3342.

め、レート方程式を拡張、補足することを考えてキャリア間の多体問題の本質には立ち入らなかった。今後更に精密な議論には第 1 原理からキャリア間の相互作用を計算することも必要になるものと思われる。そのような計算結果はそのままではレーザーの動作を記述するには煩雑すぎるであろう。本論文で述べた形式は第一原理計算の結果を実際のレーザーと結び付けるものであり、キャリアの相互作用を取り入れた精密なレーザー設計には必須のものであると考える。

謝辞

本論文をまとめるにあたって懇切丁寧なご指導を賜りました東京大学生産技術研究所 荒川泰彦教授に謹んで感謝の意を表わします。

また、有益な御討論、ご助言を頂いた東京大学生産技術研究所 榊裕之教授、東京大学工学系研究科電子工学専攻 神谷武志教授、中野義昭助教授、東京大学先端科学技術研究センター 菊池和朗教授、東京大学工学系研究科物理工学専攻 伊藤良一教授に深謝致します。

本論文で述べた結果はNECにおける著者の半導体レーザー研究の中から生まれてきたものであり、研究を行う機会を与えて下さったフェムトテクノロジー研究機構 斎藤富士郎所長、NEC I 阪口光人EVP、NEC小林功郎基礎研究所長、小川正毅光・超高周波デバイス研究所長に感謝いたします。

本研究を行なうにあたりご指導ご助言を頂いたNEC光・超高周波デバイス研究所水戸郁夫所長代理、笠原健一光基礎研究部長、フェムトテクノロジー研究機構 鈴木明グループリーダー(当時光デバイス研究部)に感謝いたします。

本研究の一部を共同で行ない、有益なご討論を頂いたNEC光・超高周波デバイス研究所光デバイス研究部小林健一部長、仁道正明課長、堀田等課長、山崎裕幸主任、難波江宏一主任、宮坂文人主任、沢野博之氏、木村正隆氏、光基礎研究部南部芳弘主任、関西エレクトロニクス研究所寺門知二課長、ULSIデバイス開発研究所井元康雅課長に深く感謝致します。特に、第 3 章、第 5 章、第 6 章で述べた実験を実際に遂行し貴重な結果を提供していただいた誘導光電事業部村田茂課長、化合物デバイス事業部清水淳一主任(共に元光デバイス研究部)に心より感謝いたします。

本研究を行なうにあたり様々な討論、助言、助力を頂いたNEC光・超高周波デバイス研究所光基礎研究部と光デバイス研究部の諸氏に感謝いたします。

第 6 章で述べた研究を行なうにあたり、Lucent Technology, Bell Laboratories (当時 AT&T)で共同して実験を行ない、討論、助言を頂いた Dr. Jagdeep Shah, Mr. T.C. Damen, Dr. DaiSik Kim に深く感謝し、Dr. D.A.B Miller を初めとするスタッフの hospitality に感謝いたします。

著者発表論文

1. 本論文に直接関係するフルベーパー・レター (2 項以下と重複する)

第 2 章

Akihisa Tomita, and Akira Suzuki: "Carrier induced wavelength shift for quantum well laser diodes," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE23** (1987) pp. 1155-1159.

A. Tomita: "Many body effects, space charge potential, and valence band mixing on the optical gain in quantum well structures," *Phys. Rev.* **B54** (1996) pp. 5609-5619.

第 3 章

Akihisa Tomita and Akira Suzuki: "A New Density Matrix Theory on Semiconductor Lasers, Including Non-Markoffian Intraband Relaxation and Its Application to Nonlinear Gain," *IEEE J. Quantum Electron.*, **27** (1991) pp. 1630-1641.

A. Tomita: "Free carrier effect on the refractive index change in quantum well structures," *IEEE J. Quantum Electron.*, **30** (1994) pp. 2798-2802.

S. Murata, A. Tomita, and A. Suzuki: "Influence of free carrier plasma effect on carrier-induced refractive index change for quantum well lasers," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **5** (1993) pp. 16-19.

第 4 章

Akihisa Tomita, and Akira Suzuki: "Carrier induced wavelength shift for quantum well laser diodes," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE23** (1987) pp. 1155-1159.

A. Tomita: "Many body effects, space charge potential, and valence band mixing on the optical gain in quantum well structures," *Phys. Rev.* **B54** (1996) pp. 5609-5619.

第 5 章

Akihisa Tomita and Akira Suzuki: "A New Density Matrix Theory on Semiconductor Lasers, Including Non-Markoffian Intraband Relaxation and Its Application to Nonlinear Gain," *IEEE J. Quantum Electron.*, **27** (1991) pp. 1630-1641.

A. Tomita: "Dependence of nonlinear gain effect on threshold gain in semiconductor lasers-an optimization for high-speed modulation," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **4** (1992) pp. 342-345.

J.-I. Shimizu, A. Kimura, K. Naniwae, M. Nido, S. Murata, A. Tomita, and A. Suzuki: "Strain effect on K factor, differential gain and nonlinear gain coefficient for InGaAs/InGaAsP strained multi-quantum well lasers," *Electron. Lett.*, **29** (1993) pp. 579-580.

第6章

A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang: "Femtosecond dynamics of non-thermal holes in n-type modulation-doped quantum wells," *Semicond. Sci. Technol.* **9** (1994) pp. 449-452.

A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang: "Femtosecond hole relaxation in n-type modulation-doped quantum wells," *Phys. Rev.* **B48** (1993) pp. 5708-5711.

Sigeru Murata, Akihisa Tomita, Junichi Shimizu, Mitsuhiro Kitamura, and Akira Suzuki: "Observation of highly nondegenerate four-wave mixing (>1 THz) in an InGaAsP multiple quantum well laser," *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991) pp. 1458-1460.

2. 論文 (筆頭著者のもの)

- (1) Akihisa Tomita, Tomoji Terakado, and Akira Suzuki: "Turn-off characteristics of bistable laser diodes," *J. Appl. Phys.*, **59** (1986) pp. 1839-1842.
- (2) Akihisa Tomita, and Akira Suzuki: "Carrier induced wavelength shift for quantum well laser diodes," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE23** (1987) pp. 1155-1159.
- (3) Akihisa Tomita, and Akira Suzuki: "Optical feedback effect on bistable laser diodes," *Optical and Quantum Electron.*, **19** (1987) pp. S75-S82.
- (4) Akihisa Tomita, Shunsuke Ohkouchi, and Akira Suzuki: "170 ps Fast response and 2Gbps optical memory operation of bistable laser diodes with electrically controlled saturable absorber," in "Photonic Switching" T.K. Gustafson and P.W. Smith eds. (Springer-Verlag, Berlin, 1988) pp. 88-91.
- (5) Akihisa Tomita and Akira Suzuki: "A New Density Matrix Theory on Semiconductor Lasers, Including Non-Markoffian Intraband Relaxation and Its Application to Nonlinear Gain," *IEEE J. Quantum Electron.*, **27** (1991) pp. 1630-1641.
- (6) A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang: "Femtosecond dynamics of non-thermal holes in n-type modulation-doped quantum wells," *Semicond. Sci. Technol.* **9** (1994) pp. 449-452.
- (7) A. Tomita: "Free carrier effect on the refractive index change in quantum well structures," *IEEE J. Quantum Electron.*, **30** (1994) pp. 2798-2802.
- (8) A. Tomita: "A proposal of step barrier structures to reduce hole localization in multiple quantum well structures," *J. Appl. Phys.*, **77** (1995) pp. 2029-2031.
- (9) A. Tomita, J. Shah, and R.S. Knox: "Efficient exciton energy transfer between widely separated quantum well structures," *Phys. Rev.* **B53** (1996) pp. 10793-10803.
- (10) A. Tomita: "Many body effects, space charge potential, and valence band mixing on the optical gain in quantum well structures," *Phys. Rev.* **B54** (1996) pp. 5609-5619.

3. 論文(共著)

- (1) Nambu and A. Tomita: "Spectral hole burning and carrier-heating effect on the transient optical nonlinearity of highly carrier-injected semiconductors," *IEEE J. Quantum Electron.*, **30** (1994) pp. 1981-1994.

4. Letter (筆頭著者のもの)

- (1) Akihisa Tomita, Akira Suzuki and Keiro Komatsu: "Dispersive-type optical bistability in a self-electrooptic-effect etalon," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **28** (1989) pp. 1523-1524.

- (2) Akihisa Tomita, Yuji Kohga, and Akira Suzuki, Tomoji Terakado, and Akira Ajisawa: "5:1 on-off contrast InGaAs/InP multiple quantum well Fabry-Perot etalon modulator," *Appl. Phys. Lett.*, **55** (1989) pp. 1817-1819.
- (3) A. Tomita: "Dependence of nonlinear gain effect on threshold gain in semiconductor lasers-an optimization for high-speed modulation," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **4** (1992) pp. 342-345.
- (4) A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang: "Femtosecond hole relaxation in n-type modulation-doped quantum wells," *Phys. Rev.* **B48** (1993) pp. 5708-5711.
- (5) A. Tomita: "Quantum-classical crossover in carrier transport," *Phys. Lett. A.* **233** (1997) pp. 115-120.
5. Letter (共著)
- (1) Sigeru Murata, Akihisa Tomita, Junichi Shimizu, Mituhiro Kitamura, and Akira Suzuki: "Observation of highly nondegenerate four-wave mixing (>1THz) in an InGaAsP multiple quantum well laser," *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991) pp. 1458-1460.
- (2) J. Shimizu, H. Yamada, S. Murata, A. Tomita, and K. Kitamura: "Optical confinement factor dependence of K-factor, differential gain, and nonlinear gain coefficient in 1.55 μm InGaAs/InGaAsP MQW and strained MQW lasers," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **3** (1991) pp. 773-776.
- (3) S. Murata, A. Tomita, J. Shimizu, and A. Suzuki: "THz optical frequency conversion of 1Gb/s signals using highly nondegenerate four wave mixing in semiconductor lasers," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **3** (1991) 1021.
- (4) Sigeru Murata, K. Naniwae, J. Shimizu, M. Nido, A. Tomita, and A. Suzuki: "High-frequency modulation characteristics in 1.5 μm compressively strained multi-quantum well lasers with large number of wells," *Electron. Lett.*, **28** (1992) pp. 1456-1457.
- (5) S. Murata, A. Tomita, and A. Suzuki: "Influence of free carrier plasma effect on carrier-induced refractive index change for quantum well lasers," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **5** (1993) pp. 16-19.
- (6) J.-I. Shimizu, A. Kimura, K. Naniwae, M. Nido, S. Murata, A. Tomita, and A. Suzuki: "Strain effect on K factor, differential gain and nonlinear gain coefficient for InGaAs/InGaAsP strained multi-quantum well lasers," *Electron. Lett.*, **29** (1993) pp. 579-580.

- (7) H. Yamazaki, A. Tomita, M. Yamaguchi, and Y. Sasaki: "Evidence of non-uniform carrier distribution in multiple quantum well lasers," *Appl. Phys. Lett.* **71** (1997) pp. 767-769.
6. 国際学会 (筆頭著者のもの)
- (1) Akihisa Tomita, Shunsuke Ohkouchi, and Akira Suzuki: "170 ps Fast response in Bistable laser diodes with electrically controlled saturable absorber," Topical Meeting on Photonic Switching, Lake Tahoe (NV), March 18-20 (1987).
- (2) Akihisa Tomita, Yuji Kohga, and Akira Suzuki, Tomoji Terakado, and Akira Ajisawa: "5:1 on-off contrast InGaAs/InP multiple quantum well Fabry-Perot etalon modulator," the 21st Conference on Solid State Devices and Materials, Tokyo, (1989) D-7-LN6 (extended abstract pp. 549-550).
- (3) Akihisa Tomita and Akira Suzuki: "A New Density Matrix Theory on Semiconductor Lasers Considering Non-Markoffian Intraband Relaxation," The 12th IEEE International Semiconductor Laser Conference, Davos (Switzerland) Sept. 9-14 (1990) L. 24.
- (4) A. Tomita, J. Shah, D.S. Kim, T.C. Damen, J.M. Cuo, S. Schmitt-Rink, P. Thomas, and R.S. Knox: "Dipole-dipole transfer between quantum wells?" in International Conference on Quantum Electronics Technical Digest Series, Vol. 9, (1992) 102.
- (5) A. Tomita, J. Shah, D.S. Kim, T.C. Damen, J.M. Cuo, S. Schmitt-Rink, P. Thomas, and R.S. Knox: "Energy transfer between quantum wells by dipole-dipole interaction?" Quantum Electronics and Laser Science Conference Technical Digest Series, Vol. 12, (1992) 116.
- (6) A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang: "Hole relaxation in n-Modulation doped quantum wells," March Meeting, American Physical Society, Seattle, WA, 22-26 March, 1993.
- (7) A. Tomita, J. Shah, J.E. Cunningham, S.M. Goodnick, P. Lugli, and S.L. Chuang: "Femtosecond dynamics of non-thermal holes in n-type modulation-doped quantum wells," 8th International conference on hot carriers in semiconductors, Oxford, UK, 16-20 August, (1993).
7. 国際学会 (共著)
- (1) J. Shimizu, H. Yamada, S. Murata, A. Tomita, and K. Kitamura: "Optical confinement factor dependence of K-factor, differential gain, and nonlinear gain coefficient in 1.55 μm MQW and strained MQW lasers," *IEEE Device Research Conference*, III A-2, June 17 (1991).
- (2) S. Murata, A. Tomita, J. Shimizu, and A. Suzuki: "THz optical frequency conversion of

1Gb/s signals using highly nondegenerate four wave mixing in semiconductor lasers," European Conference on Optical Communications, November 9 (1991).

- (3) Y. Nambu and A. Tomita: "Efficient Four-wave Mixing using a Quantum-dot Laser Amplifier," International Topical Workshop on Contemporary Photonic Technologies (CPT '98), January 13 (1998).
8. 国内学会 (筆頭著者のもの)
- (1) 富田、鈴木、小林: "双安定レーザの立ち下がり応答特性" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1985) 31a-ZB-8
- (2) 富田、鈴木、小林: "タンデム電極 InGaAsP 半導体レーザにおけるセルフパルセーション" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1985) 31a-ZB-9
- (3) 富田、寺門、井元、鈴木、小林: "双安定レーザによる超高速光メモリ実験" 電子通信学会総合全国大会 (1985) 924
- (4) 富田、鈴木: "タンデム電極 InGaAsP 半導体レーザの双安定とセルフパルセーション" 応用物理学会学術講演会 (1985) 3p-N-9
- (5) 富田、鈴木: "双安定レーザの緩和振動周波数の注入電流依存性" 応用物理学会学術講演会 (1985) 3p-N-10
- (6) 富田、鈴木: "量子井戸における吸収端のキャリア密度依存性" 電子通信学会 半導体・材料部門全国大会 (1985) 293
- (7) 富田、鈴木: "双安定レーザとその応用" [光コンピュータに関する基礎的総合研究 (文部省総合研究A)] 研究会 (1986 2月)
- (8) 富田、鈴木: "量子井戸構造半導体レーザの発振波長" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1986) 2a-K-4
- (9) 富田、鈴木: "タンデム電極量子井戸構造半導体レーザにおけるセルフパルセーション" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1986) 2p-K-3
- (10) 富田、鈴木: "双安定レーザに対する戻り光の影響" 応用物理学会学術講演会 (1986) 28p-T-19
- (11) 富田、鈴木: "空間的に分離された電子正孔系の双極子能率に対する電界効果" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1987) 28p-V-13
- (12) 富田、大河内、鈴木: "双安定レーザの 170 ps 超高速立ち下がり応答" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1987) 29-ZH-8
- (13) 富田、大河内、鈴木: "双安定レーザによる 2 Gb/s 超高速光メモリ" 電子情報通信学会 総合全国大会 (1987) 849
- (14) 富田、鈴木、小林: "電子正孔分離型量子井戸における電界効果" 応用物理学会学術講演会 (1987) 18p-ZD-2
- (15) 富田、鈴木、甲賀、鈴木: "エタロンを用いた MQW 面型光変調素子" 応用物理学会学術講演会 (1988) 5p-S-4

- (16) 富田、鈴木: "スタガードポテンシャル構造量子井戸における光変調" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1989) 3p-S-3
- (17) 富田、鈴木: "バンド内緩和の非マルコフ性を考慮した半導体レーザの密度行列理論" 応用物理学会学術講演会 (1990) 27a-PA-15
- (18) 富田、鈴木: "半導体レーザレート方程式における非線形利得" 応用物理学会学術講演会 (1990) 27a-PA-16
- (19) 富田、鈴木: "バンド内緩和の非マルコフ性を考慮した半導体レーザの密度行列理論 (II)" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1991) 30a-D-3.
- (20) 富田: "量子井戸構造におけるフリーキャリアによる誘電率の解析" 応用物理学会学術講演会 (1993) 30a-ZW-4.
- (21) 富田: "MQW レーザの正孔輸送効率を改善するステップバリア構造の提案" 応用物理学会春季応用物理学関係連合講演会 (1994) 30a-K-9.
- (22) 富田: "量子井戸の光学利得における多体効果" 日本物理学会 秋の分科会 (1995) 28p-YA-10.
- (23) 富田、J. Shah, R.S. Knox: "Efficient exciton energy transfer between widely separated quantum wells at low temperatures" 日本物理学会 秋の分科会 (1995) 28p-YA-14.
- (24) 富田: "緩和があるときの量子井戸間のキャリア輸送" 応用物理学会 応用物理学関係連合講演会 (1996) 26a-W-1.
- (25) 富田: "InAsP/InGaAsP 歪量子井戸における利得の温度依存性" 応用物理学会 応用物理学関係連合講演会 (1997) 30p-NG-1.
- (26) 富田: "InP 中間層による InAsP/InGaAlAs 量子井戸の正孔分布の制御" 応用物理学会学術講演会 (1997) 2p-ZC-5.
- (27) 富田: "4 次干渉による光周波数差測定" 電子情報通信学会総合大会 C-4-45 (1998).

