

論文の内容の要旨

論文題目 反転分布状態の半導体量子井戸のバンド端における

位相緩和抑制効果

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

氏名 中前 秀一

多数の 2 準位系に作られた分極が、相互作用する電場の波長に比べて小さい領域に充分高密度に閉じ込められているとき、コヒーレントに位相がそろった分極は、加速された緩和レートで光を放出する。この現象は Dicke の超放射 (Superradiance, SR) と呼ばれる。超放射は分極集団のコヒーレントな運動であるため、分極のコヒーレンスが失われる時間よりも長い時間では起こりえない。この時間を位相緩和時間 T_2 という。そのため超放射のパルス幅は位相緩和時間よりも短い必要がある。超放射はこれまで原子気体、分子気体、量子ドットなどの、比較的位相緩和時間が長い系で報告されてきたが、近年、半導体電子正孔系からの異常な短パルス光発生が相次いで報告され、固体からの超放射であると主張された。しかしそのような固体での位相緩和時間は、超放射が起きるような反転分布領域の励起密度依存性についてほとんど調べられておらず、超放射の時間スケールとの比較もなされていない。本研究では、半導体量子井戸の反転分布領域での位相緩和時間の励起密度依存性を測定することを目的とする。環境温度 5 K で、プレパルスによって励起された自由キャリアがバンド端でフェルミ縮退し、反転分布が作られた状態で k_1 、 k_2 の 2 パルス四光波混合による位相緩和時間の測定を行った。

本論文は全 5 章の構成である。第 1 章では研究背景と本研究の目的を説明する。

第 2 章では実験方法を説明する。本研究に用いる幅 7 nm と 10.5 nm の 30 周期 GaAs 量子井戸の構造とプロセス方法、フォトルミネッセンススペクトルと吸収スペクトルの測定結果について説明する。本研究ではバンドの高エネルギー側にキャリアを光励起するこ

とで吸収飽和を避け、エネルギー緩和し準熱平衡状態となった高密度の光励起キャリアがバンド端でフェルミ縮退し反転分布状態となるときにバンド端での四光波混合測定を行うことで、反転分布領域の位相緩和時間の励起密度依存性が得られると考えた。そこで本研究では2パルス四光波混合、バンド端プレパルス+2パルス四光波混合、バ

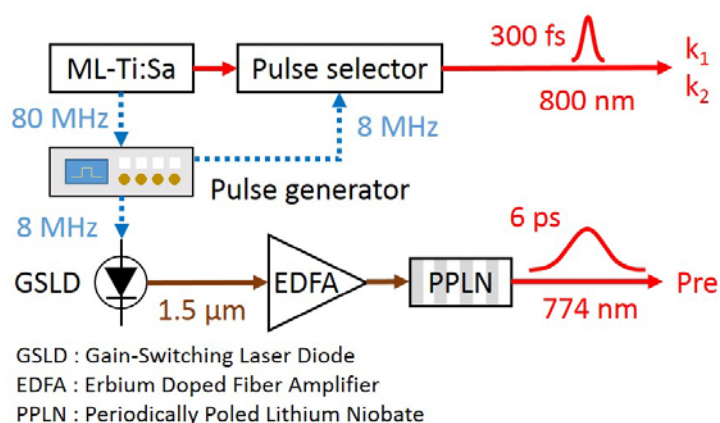


図1 モードロックチタンサファイアレーザー(ML-Ti:Sa)と利得スイッチングレーザー(GSLD)の同期光源

ンド間プレパルス+2パルス四光波混合の三つの測定手法を用いて、それぞれ励起キャリア分布が非平衡状態の低密度から中密度領域、準熱平衡状態の中密度領域、準熱平衡状態の中密度から反転分布領域を測定し、励起密度依存性の定性的な比較を行った。実験には繰り返し76 MHzと8 MHzの2種類の測定系を用いた。76 MHzの測定系では、サンプルの重い正孔励起子吸収ピークに共鳴させたチタンサファイアレーザー出力を2つのビームスプリッターでバンド端プレパルス、 k_1 、 k_2 パルスに分けた。8 MHzの測定系では、チタンサファイアレーザーと半導体利得スイッチングレーザーを同期させ(図1)、それぞれバンド間プレパルス、ビームスプリッターで分けた k_1 、 k_2 パルスとして用いた。モードロックチタンサファイアレーザーの出力の一部をビームサンプラーで取り出し、フォトダイオードで電気信号に変換した後パルスジェネレータの外部クロック端子に入力し内部発振器と同期させた。次に、パルスジェネレータのデータパターン出力機能を用いて信号の繰り返しを間引き、内部発振器と同期した2系統のパルスジェネレータ出力をそれぞれ半導体利得スイッチングレーザーの駆動とチタンサファイアレーザーのパルスセレクターのトリガーに用いた。利得スイッチングレーザーの波長1.5 μm の光パルスは二段のエルビウム添加ファイバーアンプ(EDFA)で増幅し、分極反転ニオブ酸リチウム結晶(PPLN)で第二高調波発生させ得られた波長774 nm、パルス幅6 psの光パルスをバンド間プレパルスとして用いた。この方法により簡易に繰り返しを変えて二つのレーザー光源の同期が出来、半導体量子井戸サンプルの過渡吸収信号の測定により同期のタイミングジッターを7.6 psと評価した。この光源を用いてチタンサファイアレーザーに比べ1.5倍の励起密度範囲を、サンプルが加熱されず最大の測定の明るさが得られる繰り返し周波数8 MHzで四光波混合測定を行った。

第3章では位相緩和時間の測定結果を説明する。10.5 nm量子井戸サンプルの四光波混合信号には重い正孔準位と軽い正孔準位の量子ビートが見られ、量子ビートの理論式で四光波混合信号をフィッティングすることにより位相緩和時間を抽出した。図2は抽出され

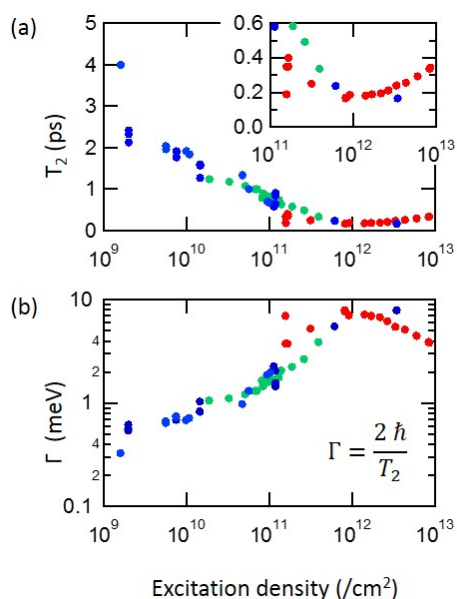


図 2 (a)位相緩和時間 T_2 、(b)均一幅 Γ の励起密度依存性。(青)非平衡、低密度から中密度領域(緑)準熱平衡、中密度領域(赤)準熱平衡、中密度から反転分布領域。(a)枠内図は励起密度 $10^{10}/\text{cm}^2$ から $10^{13}/\text{cm}^2$ の拡大図

た(a)位相緩和時間とその逆数である(b)均一幅の励起密度依存性である。2パルス四光波混合で調べた励起キャリアが非平衡状態、低密度から中密度領域の位相緩和時間(図2a青)は、励起密度 $1.5 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ でサンプルごとに 2.5 ps から 4.0 ps となり、励起密度 $3 \times 10^{12}/\text{cm}^2$ で測定の分解能 0.17 ps となるまで単調減少した。バンド端プレパルス+2パルス四光波混合で調べた励起キャリアが準熱平衡状態の中密度領域の位相緩和時間(図2a緑)は、プレパルス強度が弱い極限では k_1 、 k_2 パルス強度で決まる2パルス四光波混合の実験結果となった。プレパルス強度を強くしていったときに得られた位相緩和時間は、励起密度 $2 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ の 1.3 ps から励起密度 $4 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ の 0.34 ps まで単調減少した。繰り返し周波数 76 MHz で実験したことにより、励起密度 $4 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ 以上では格子温度の上昇によって信号雑音比が悪化し測定が出来なくなった。ここまでの測定結果は先行研究と同様の励起密度に対し位相緩和時間が減少する結果となった。

バンド間プレパルス+2パルス四光波混合で調べた準熱平衡、中密度から反転分布領域の位相緩和時間(図2a赤)は、同様にプレパルス強度が弱い極限では k_1 、 k_2 パルス強度で決まる2パルス四光波混合の実験結果となった。 k_1 、 k_2 パルス強度が弱い状況で、プレパルス強度を強くしていったときに得られた位相緩和時間は、励起密度 $1.6 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ の 0.35 ps から励起密度 $8 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ の測定の分解能である 0.15 ps まで単調減少し、それ以上の励起密度ではフォトルミネッセンスの増加によって信号雑音比が悪化し測定できなく

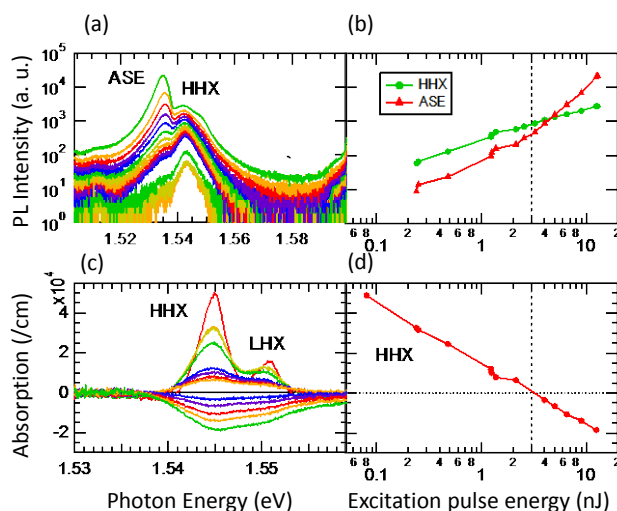


図 3 PL スペクトル(a)、過渡吸収スペクトル(c)。プレパルスのパルスエネルギーについて色分けし、プレパルスのパルスエネルギーとスペクトルのピーク強度の対応を(b)(d)に示した。HHX、LHX、ASE はそれぞれ重い正孔励起子、軽い正孔励起子、自然放射増幅光ピーク

なった。 k_1 、 k_2 パルス強度が強い状況で、プレパルス強度を強くしていったときに得られた位相緩和時間は、励起密度 $8 \times 10^{11} / \text{cm}^2$ での測定の分解能 0.17 ps から励起密度 $8 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ の測定の分解能である 0.34 ps まで単調増加した。時間積算フォトルミネッセンススペクトル (図 3a) と過渡吸収スペクトルの測定結果 (図 3c) では、バンド間プレパルスの励起パルスエネルギー 3 nJ (励起密度 $1.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$) 以上で自然放射増幅光 (ASE) ピークの出現と励起子吸収ピークの消失が見られ、位相緩和時間が励起密度に対して増加するのは励起子 Mott 転移密度以上である反転分布領域であると考察した。反転分布領域で位相緩和時間が励起密度に対し長くなる依存性はこれまで知られておらず、本研究によって初めて明らかとなった。励起キャリアの非平衡、準熱平衡の比較により、バンド間プレパルスによって高密度の準熱平衡状態キャリアがバンド端でフェルミ縮退し、反転分布領域の位相緩和時間が測定できたと考えた。先行研究との相違点を励起密度や手法の違いから考察し、時間分解能の範囲で先行研究と整合すると考えた。

第 4 章、モデル計算では、反転分布領域で位相緩和時間が励起密度に対して伸びるという結果を定性的に理解するために、半導体 Bloch 方程式理論を二次摂動レベルへ発展させた第二 Born 近似での自由キャリア散乱の計算を行った。図 4 は計算したバンド端での (a) 位相緩和時間と (b) 反転分布の大きさの励起密度依存性である。位相緩和時間が反転分布領域で励起密度に対し減少から増加へと転じ、実験結果を定性的に再現する計算結果を初めて示した。この結果は、位相空間充填効果によってバンド端での散乱が抑制されるため、又は励起密度の増加に伴いクーロンスクリーニングの増強が起きるためであると解釈した。この計算モデルのエネルギー依存性は、先行研究のフェルミ端での散乱抑制を部分的に再現した。バンド端でのキャリア温度依存性の計算では、キャリア温度が高いほど散乱抑制効果が現れる密度が高くなり、また位相緩和時間の最小値も短くなることを示した。

第 5 章、結論と展望では、本研究のまとめを行い、本研究の結果が高密度励起されフェルミ縮退した半導体量子井戸のバンド端では、 400 fs 程度の時間スケールで超放射のようなコヒーレント過渡現象が起こりうることを明確に示したと結論した。

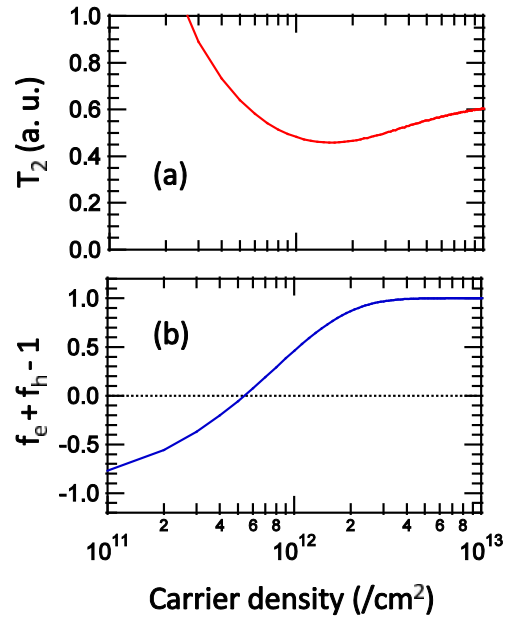


図 4 量子井戸のバンド端での(a)位相緩和時間 T_2 、(b)反転分布の大きさ $f_e + f_h - 1$ の密度依存性の計算結果