

「電子・光子等の機能制御」  
平成11年度採択研究代表者

覧具 博義

(東京農工大学工学部 教授)

## 「光・電子波束制御エンジニアリング」

### 1. 研究実施の概要

次世代に向けて飛躍的に処理能力を高めるために、次のステップとして考えられるのは、光の位相を最大限利用することである。従来の通信技術開発は、周波数あるいは時間多重のどちらかに重点をおくのに過ぎなかった。周波数多重では互いにインコヒーレントな多チャンネルの波長信号の帯域幅をなるべく広くして、伝送効率を上げる。一方、時間多重では超短光パルスのパルス幅をなるべく短くして、伝送効率を上げる。

フェムト秒パルス光は、複数の共振器縦モードの重畳した光波束として考えられる。超短光パルスのパルス幅を短くするためには、フーリエ変換の関係より、その帯域幅を広くすることが必要である。すなわち、時間領域で考えることと周波数領域で考えることは等価である。しかしながら、単なる広帯域光とフェムト秒パルスとが異なる大きな点は、パルスの持つ周波数成分間の位相が完全に確定していることである。そのため、フェムト秒パルスの持つ広帯域性を最大限活用し、かつ、その各周波数成分の位相に情報をのせることによって、フェムト秒領域での時間周波数多重伝送の可能性がある。

我々の提唱する「電子波束エンジニアリング」とは、物質中の電子波動関数の重ね合わせとしての電子波束について、パルス制御と同様に各固有状態の振幅と位相を任意に調整するものである。光波束では、共振器縦モードは正弦波に限定されていたが、電子波束では、物質によって異なる空間依存性を持つ波動関数の重ね合わせとなる点が大きく異なっている。量子構造半導体では、物質設計によって、波動関数を任意に作成することも可能である。したがって、それらの固有状態の重ね合わせである電子波束について、それらを生成するためのパルス波形・位相の制御だけでなく、波動関数自体の設計によっても制御可能となり、自由度が著しく増大するものと期待される。

本プロジェクトでは、物質設計の自由度が高い量子構造半導体材料を対象に、光波束を使って電子波束を制御する研究を開始した。研究体制は、1) 光通信にも応用できる1.1 $\mu\text{m}$  から1.5 $\mu\text{m}$ 帯のフェムト秒パルスの位相制御、2) ナノ構造半導体

の設計と作成、3) ナノ構造半導体とフェムト秒パルスの相互作用に関する理論的研究の3グループから構成される。

昨年度までに、色素分子中の分子振動波束のチャープ制御および、量子ドット系におけるキャリア緩和とスペクトル的および空間的なホールバーニングについて成果を挙げた。

## 2. 研究実施内容

### 2-1. はじめに

電子波束制御を実現するための要件として、

- ①位相制御パルスの生成
- ②電子波束ダイナミクスの理論的検討
- ③電子波束検出のための分光技術
- ④結合量子構造半導体の設計と作製

の4項目が挙げられる。これらの要素技術のうち、

#### 3-2. フェムト秒位相制御光源の開発

#### 3-3. フェムト秒位相分光

#### 3-4. 量子ドットレーザーにおけるホールバーニングとキャリア緩和

#### 3-5. InAs量子ドットの形成制御

について成果を述べる。

### 2-2. フェムト秒位相制御光源の開発

図1にフェムト秒位相制御光源の構成図を示す。チタンサファイア発振器からのフーリエ限界に近いフェムト秒パルスを位相制御器に入れる。位相制御器では、パルスの持つ各スペクトル成分に独立に与えるべき位相シフトデータをパーソナルコンピュータから出力できるようにしてある。位相制御装置でのパルスエネルギーのロスを補い、非線形光学実験に必要なピーク出力を得るために、位相制御器を通した後に増幅器で増幅する。位相変調がかけられ、増幅されたパルスの一部を位相解析器にかけて、その位相情報を取り出す。得られた位相情報をパーソナルコンピュータで演算処理して、目的のパルス位相になっているか判断する。所望のパルス位相とずれがある場合は、コンピュータから位相制御器に制御信号を送出して、目的のパルス位相に近づける。この処理を繰り返すことによって、最終的に制御されたパルス位相を得る。

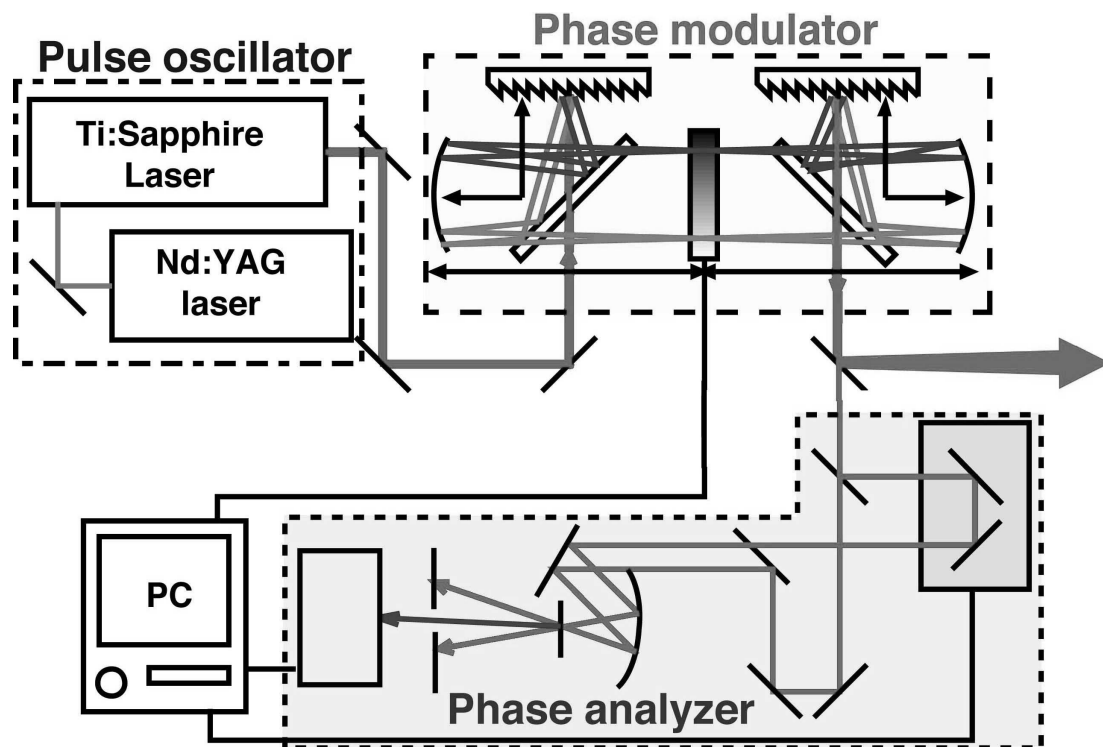


図1：位相制御フィードバックシステムの構成

位相変調器は、回折格子と凹面鏡の組み合わせが2組と液晶空間光変調器（SLM）とで構成されている。100nmにわたる広帯域なフェムト秒パルス回折格子で分散させた後、凹面鏡でフーリエ変換面に結像させる。フーリエ変換面では、回折格子から光束径全域にわたって同じ回折角で平行に出射されてきた同じスペクトル成分は1点に集光され、異なる回折角で出射されてきた異なるスペクトル成分は、凹面鏡後に互いに平行になり、異なる位置で集光される。このフーリエ変換面に液晶光変調器を設置し、各スペクトル成分に液晶の各ピクセルを対応させて通過させる。液晶光変調器では、各ピクセルに独立に外部電場を印加し、独立に屈折率を変化させる。その結果、各ピクセルに対応したスペクトル成分がそれぞれ異なった光路長を通過して位相変調を受ける。ひとつめの回折格子で分散したフェムト秒パルスは液晶光変調器を通過後、ふたつめの凹面鏡と回折格子の組み合わせですべてのスペクトル成分を同一方向に出射させる。

位相制御の一例として、位相情報をモニターしながらパルスの周波数成分毎の位相を平坦化することを試みた。発振器で生成されたパルスは位相変調器を通り、位相解析装置に入射する。SLM、遅延時間ステージは計算機で制御される。これらの計算機による制御はNational Instruments社製のLabVIEWプログラミングによって行われる。また、分光器はOcean Optics社製のS2000の使用した。この分光器は400nmを中心波長とした、分解能140nm/2048pixelをもつ。位相解

析装置にはパルス内の相対位相を取得することができる周波数分解光ゲート法(Second Harmonic Generation - Frequency Resolved Optical Gating : SHG-FROG)を使用した。液晶空間光変調器を除いた状態で、パルスがフーリエ変換限界に近い状態になるように位相変調器を調整する。

その後、位相解析装置により取得したパルスの位相状態に対して、位相が打ち消しあうように、パルスの中心周波数周り2次、3次のテーラー近似関数を独立に与えていった。まず、2次分散の寄与を減らしていき、次に3次分散の寄与を減少させ、パルス内の相対位相シフトを低減していく。図2に測定したFROGデータおよび図3に数値解析で再現された位相曲線とパルススペクトルを示す。位相変調器を通ったパルスの位相状態は2次分散の影響が大きく、そのときのパルス幅は150fsである(図3上)。この位相関係がキャンセルされるような2次分散の位相変調信号をSLMに与えると、その位相シフト量は減少し、それに伴いパルス幅も23fsとなった(図3中)。これを10倍に拡大すると、位相状態は3次分散の影響が残っていることがわかる。さらにその位相関係がキャンセルされるような3次分散の位相変調信号を与えると、位相シフト量がさらに減少している(図3下)。最終的に位相の平坦化の結果として、パルス幅はフーリエ変換限界に近い14fsとなった。拡大すると位相が波打つような関係が見え、これは高次の分散が残っていると考えられる。このように任意の位相、2次曲線、3次曲線を与えて、中心周波数からの相対位相のずれは24ラジアンから0.3ラジアン程度に減少させることができた。

## 2 - 3 . フェムト秒位相分光

### (1) フェムト秒サニャック干渉計

フェムト秒位相制御パルスで量子構造半導体中に電子波束を励起した後、読み出しパルスで試料に通過させた場合の位相変化を検出する分光法を開発する必要がある。その目的で、フェムト秒サニャック干渉計を用いて試料の複素

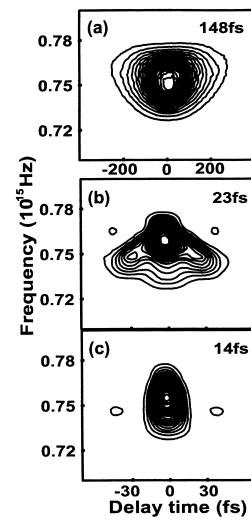


図2 : 位相変調器を通したパルスのFROG波形

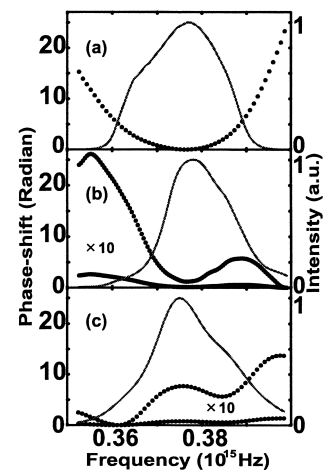


図3 : FROG波形から計算したスペクトルおよび位相曲線

屈折率変化の波長依存性並びに時間的发展を測定する装置を開発した。

図4にサニャック干渉計の構成図を示す。ビームスプリッタ(BS)で分けられた2パルス(参照パルス・プローブパルス)はリング型光路を互いに逆向きにまわる。試料到達時間はそれぞれのパルスで異なる。最初に試料に入射する参照光は励起前の試料の屈折率を感じる。その後入射する励起パルスは試料に屈折率変化  $n$  を起こす。この屈折率変化後に通過するプローブパルスに対して、各波長に依存した位相変化がおこる。参照パルスとプローブパルスでは試料到達のタイミングは異なるが、両方ともリング型光路を一周するので干渉計を出るときには時間的・空間的に重なっている。

共通光路干渉計であるため、リング型光路内では参照パルスとプローブパルス間に遅延光路を与えることは出来ないので、干渉計を構成する1枚の鏡を傾けることで光路差を反映した等傾角干渉縞を得る。位相シフト量を干渉縞のシフト量から読み出す。等傾角干渉縞を分光器の回折格子で各波長ごとに分け、波長軸と空間軸に対する位相変化<sup>2</sup>を示す3次元データ(スペクトロインターフェログラム)が得られる。また励起パルスの光路には可変遅延路を設けており、励起パルスとプローブパルスの時間差を調節できるようになっている。この時間差を与えられることにより、励起されてから試料の屈折率がどのような時間スケールで元の状態に緩和していく様子を追跡することが出来る。

試料にガラスを用いて等傾角干渉縞の一点の干渉強度を切り出し、励起パルスによりガラスの屈折率が変化する様子をこの干渉強度の変化から読み出した。ガラスの屈折率は励起パルスと時間的に重なる時のみ変化することがわかり、屈折率変化の遅延時間依存性にガウス関数フィットを施したところ、励起パルスとプローブパルスの相関幅は半値全幅で19fsとなった。

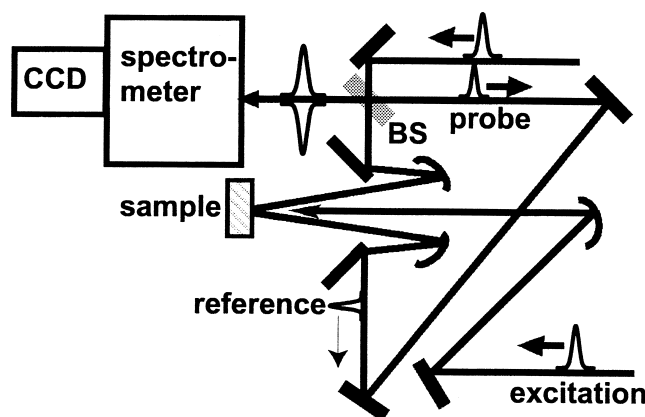


図4：フェムト秒サニャック干渉計

## (2) XFROGによる複素屈折率の測定

フェムト秒光パルスで量子井戸・量子ドットに電子波束をつくり、電子、そして光を相互に制御することが目的である。デバイス反射(透過)後の光パルスは電子波束の位相を反映した位相状態となっている。本研究では相互相関周波数分解光ゲート法(XFROG)を用いて、光パルスの位相・強度変化からデバイスの屈折率・吸収係数を測定する。

周波数分解光ゲート法(FROG)は超短光パルスの位相と振幅を測定する、広く使われている方法である。FROGではパルスを二つに分け、一方のパルスに遅延時間を与えて非線型光学結晶上で交差させる。そして遅延時間を変えながら和周波スペクトルを測定し、それを解析する。この方法は遅延時間ごとに和周波スペクトルを取るため、位相・強度変化に対して非常に感度が良い。またFROGでは二つのパルスは等価なものとなる。

これに対してXFROG(図5)ではパルスを二つに分けた後、一方のパルスのみをサンプルに当てる(テストパルス)。そしてもう一方の参照パルスはFROGによってあらかじめ解析しておく。その後FROGと同様に和周波を測定、解析する。XFROGでは、二つのパルスは等価ではなく、参照パルスはサンプルによる強度変化が起こらないため、たとえテストパルスの光強度が落ちてても和周波信号を検出しやすいという利点がある。

XFROGを用いてテストパルスの干渉フィルタによる位相・強度変化を測定した結果、屈折率・反射係数は図6のようになった。これから干渉フィルタは反射のピークと分散0を795nm付近の波長にもつことが分かる。

FROGを応用したXFROGは、屈折率と吸収係数を一種類のデータから同時に取り出すことができる。また、参照パルスとテストパルスの他に励起パルスを使い、励起パルスによりサンプルを励起することにより非線型の屈折率と反射係数を測定できると考えられる。

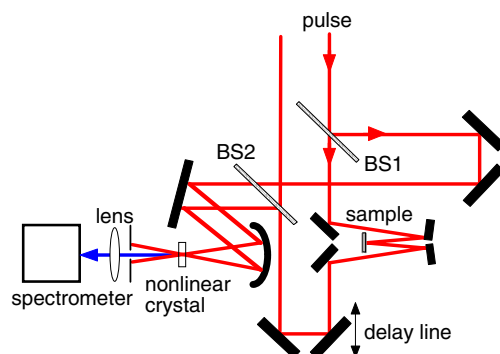


図5 : XFROG装置図

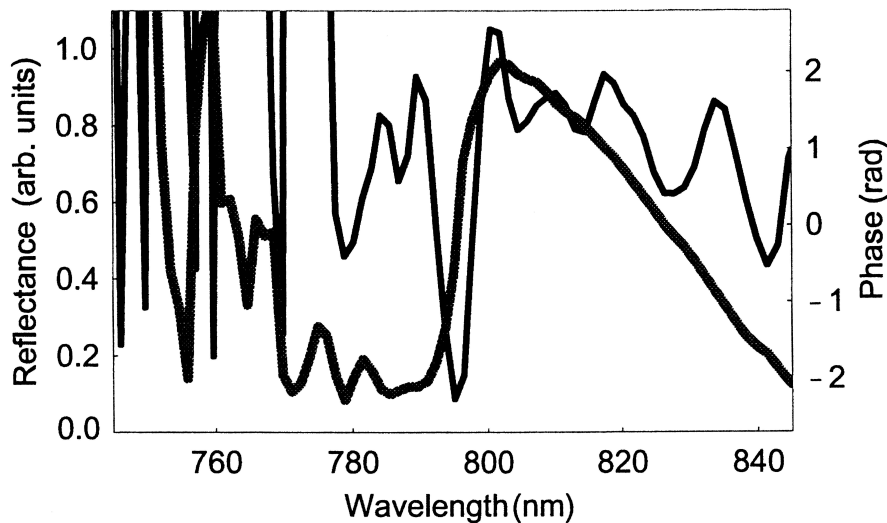


図6：XFROGから得られる干渉フィルタの屈折率・反射係数

## 2 - 4 . 量子ドットレーザーにおけるホールバーニングとキャリア緩和

半導体レーザーの発光領域として量子ドット系を用いた量子ドットレーザーでは、しきい電流値の大幅低減や温度依存性の低減などのデバイス特性改善が期待されている。しかし、現実には製作されている量子ドットレーザーは、しばしば広帯域にわたって多モード発振を示し、その原因としてスペクトル的なないし空間的なホールバーニング(HB)が疑われている。本研究ではこれらのホールバーニングで多モード化した発振スペクトルは、量子ドットにおけるキャリア緩和の大きさについての極めて鋭敏な指標となる。そこで、本研究では、量子ドット系におけるキャリアの緩和の速度を推定することと、実用上求められる単一モード発振実現の方策を探るという二つの目的のために、量子ドットレーザーにおけるHB機構を定量的に解析した。

### (1) スペクトル的なホールバーニングとその抑制

スペクトル的なHBによる多モード発振の帯域を支配する主要な要因は、利得スペクトルの不均一広がり幅  $\nu_{inhomo}$ 、均一広がり幅  $\nu_{homo}$ 、および、不均一に広がるスペクトル上での発光要素の相互拡散の速度である。量子ドットレーザーの場合、不均一広がり幅は主としてドットサイズのばらつきに起因し、自己形成法で製作されたInGaAs系量子ドットレーザーにおける報告値は最良値で20meVである。量子ドットの束縛準位に捕捉されている励起キャリアが、量子ドット系に接するいわゆる「ぬれ層」や埋め込み層などの2次元連続層の準位との間でエネルギー緩和を生じることによって、スペクトル上での相互拡散が実現される。エネルギー緩和は、その本来的な性質として、双方向的である。

すなわち、高いエネルギー準位から低いエネルギー準位への遷移（下向き緩和）とともに、逆方向への遷移（上向き緩和）が存在する。スペクトル的なHBは不均一幅が大きいほど、緩和速度が遅いほど、激しくなり、その結果として多モード発振は広帯域化する。図7中の曲線は、発振帯域幅を下向き緩和レート $\gamma_d$ の関数として示したものである。

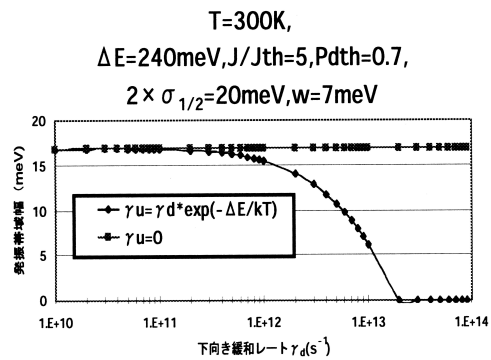


図7：スペクトルHBによる多モード発振帯域幅の下向き緩和レート $\gamma_d$ 依存性

$\gamma_d$ が $1.0 \times 10^{12} \text{sec}^{-1}$ 以上では、SBによる発振の多モード化は強く抑制されることがわかる。同じ図中の直線は、従来報告されている類似の解析のように上向き緩和を無視した( $\gamma_u = 0$ )計算例で、エネルギー緩和による抑制効果が全くあらわれない。図8は、発振帯域幅の不均一幅に対する依存性を示す。室温での実験から推定されている $1.0 \times 10^{12} \text{sec}^{-1}$ 程度のエネルギー緩和速度があれば、不均一幅が、10meV程度と予想されている均一幅の2倍以下にできれば、少なくとも室温以上ではスペクトルHBによる多モード発振は抑制できることがわかる。

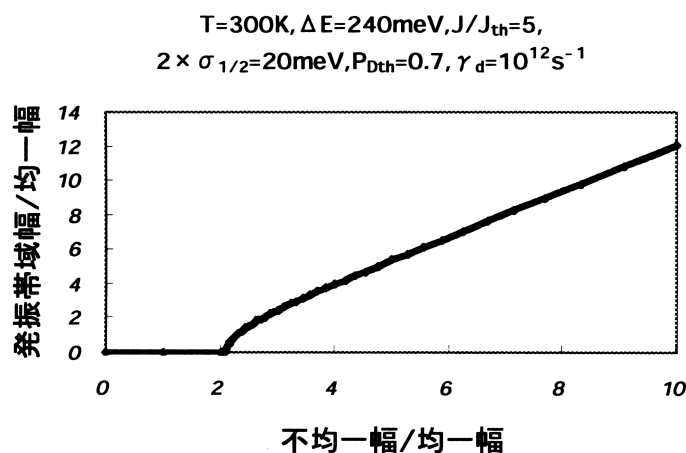


図8：スペクトルHBによる多モード発振帯域幅の不均一幅に対する依存性



(2) 空間的なホールバーニングとその抑制

量子ドットの効果は励起キャリアが個別のドットに捕捉され局在することに起因しているが、この空間的な局在はキャリアの空間拡散を抑制するため、共振器内で定在波構造をとるレーザー光による空間的なHBが顕著になる。しかし、前項で述べた、ドット内束縛準位と連続層の間のエネルギー緩和の存在は、連続準位におけるキャリアの空間拡散を経由する、ドット内キャリアの実効的な拡散を可能にする。本年度には、詳細な数値計算によって、この実効的なキャリア拡散による空間的なHBの抑制効果を検討し、連続層におけるキャリアの(真の)拡散定数、エネルギー緩和速度、さらにドットポテンシャルの深さ等に対する定量的な依存性を明らかにした。興味深い知見として、空間的(およびスペクトル的)HBの激しさは、発振しきいにおける量子ドット準位のキャリアによる占有確率 $P_D$ の値 $P_{Dth}$ にも強く依存し、これが1.0に近づくほどHBが抑制されることがわかった。ただし、空間的なHBについては、不均一幅が均一幅の2倍以下で、利得飽和はスペクトル上では均一に生じる場合について示してある。この条件が満たされれば、スペクトル的HBには室温付近では十分抑制されるのに対して、空間的なHBについては、 $P_{Dth}$ を0.9と大きく設定しても、空間的なHBによる多モード化は抑制しがたいことがわかる。

空間的なHBを抑制するためのデバイス構造として量子ドットの面密度 $\bar{W}_D$ を共振器軸方向 $x$ について $w_d(x) = W_d \{1 - \varepsilon \cos(2k_0 x)\}$ の形に変調して、発振光(波数 $k_0$ )定在波の腹部分に量子ドットを分布させたものを想定して、その効果を評価した。図9に示すように、一様分布( $\varepsilon = 0$ )の場合に、発振がしきい値直上から多モード化するのに対して、 $\varepsilon = 1$ とすれば再度モードの完全な抑制が実現できることがわかる。

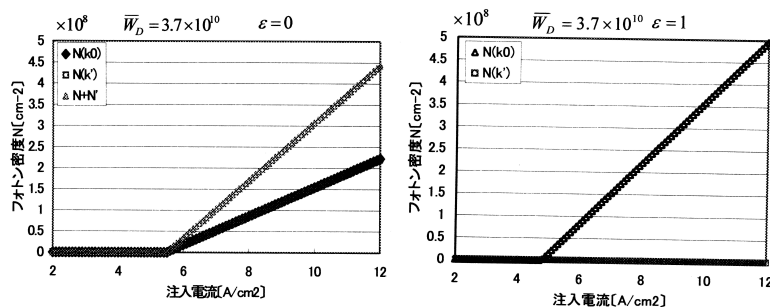


図9：空間的HBによる発振多モード化のドット密度空間変調による抑制

(3) 時分解フォトルミネッセンス測定による緩和定数の測定

量子ドット束縛準位と連続層準位間のエネルギー緩和は、量子ドットレーザーのスペクトル特性にとどまらず、量子ドットデバイスの強く支配する。そこで、この緩和定数を測定することを目的にフェムト秒時間分解フォトルミネッセンス測定系を開発した。本年度は、アップコンバージョン分光法の実験装置から高時間分解能を得ることを目指した。その結果、試料からの発光を全く妨げないように配置すると交差角度が広がり、理想的な相関幅70fsと実際に得られた相関幅に大きな差が生じることが分かった。そこで、試料からの発光を一部妨げることを前提に非線形結晶への2つの入射光の交差角度を狭くすることによって、実際に100fsの相関幅がえられた。

3 . 主な研究成果の発表 ( 論文発表 )

原著論文

K. Misawa and T. Kobayashi, "Wave-packet dynamics in a cyanine dye molecule excited with femtosecond chirped pulses", J. Chem. Phys. 113(17), 7546-7553 (2000)

A. V. Uskov, A.-P. Jauho, B. Tromborg, J. Mork, and R. Lang, "Dephasing Times in Quantum Dots due to Elastic LO Phonon-Carrier Collisions", PHYSICAL REVIEW LETTERS, 85(7), 1516-1519 (2000)

H. Kano, K. Misawa, and T. Kobayashi, "Periodic Structures in Difference Phase and Transmission Spectra Studied by a Femtosecond Sagnac Interferometer", Opt Comm. 188(1-4), 1-9 (2001)