

「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(アブストラクトのことで、公開を考えています)

本研究プロジェクトは、光の周波数および振幅のみならず、位相を制御して情報を載せることにより、より自由度の高い情報処理通信の可能性を提案するものである。たとえば、超高速通信への応用が期待されているフェムト秒光パルスは、数十フェムトの高い時間分解能をもつのと同時に、数十THzに及ぶ幅広いスペクトル帯域を持つ特徴がある。光パルスは多数のレーザー共振器モードの光を重ね合わせて形成した波束と考えることができる。この時、各モード間の位相関係を精密に制御する技術が進み、その結果、可視光領域で150THzに及ぶ周波数帯域での分散を完全に補償し、最短4.5fsのパルスを発生するに至っている。

このような光波束によって、物質中の複数の量子状態をコヒーレントに励起し、その重ね合わせとしての電子波束を形成することができる。我々は、コヒーレントな光パルスを照射する物質系を設計して、光の位相情報を物質内の電子波束として書き込み、さらに別の光パルスによって読み出す技術を提唱した。それは、フェムト秒パルスが持つ各周波数成分の位相を制御して情報の書き込みと読み出しを行うものである。この方法により、周波数多重伝送(FDM)と時間多重伝送(TDM)の両方の利点を組み合わせ、さらに自由度の高い伝送方法を実現することができる。本研究プロジェクトでは、フェムト秒時間領域でのダイナミックな超高速位相制御の原理実証実験を行うことを目的とする。

この、光・電子波束の相互制御は、分子系を用いた化学反応制御の実験ですでに可能性が示されているものである。我々は、シアニン色素3'-*i*-ethylthiatricarbocyanine iodide (DTTCl) をフェムト秒チャープパルスで励起すると、励起状態分布数に比例する長寿命成分の信号量がパルスのチャープ量に大きく依存する現象が観測した。特にパルスチャープの向きが負の場合には励起状態分布数は励起直後に大きく減少し、正の場合には大きな分布数が残る。この結果は、パルスの前半部分で励起状態に誘起された波束がパルスの後半で誘導放出により基底状態に戻される pump-dump 過程で解釈できる。本年度は、単一モードの振動状態と結合した2準位系に対して量子力学的計算を行い、実験結果を半定量的に再現することに成功した。さら

に、この電子波束制御の対象を量子構造半導体に拡張する目的で、量子ドット系における緩和速度等についての情報について考察した。特に、量子ドット系における励起キャリアの緩和・拡散が、レーザー特性に及ぼす影響、特にスペクトルのおよび空間的なホールバーニング（HB）を通じて発振スペクトルに及ぼす影響を解析した。

今後の方針として、本研究プロジェクトでは、サブレベル構造を自由に設計できる量子井戸や量子ドットなどのナノ構造半導体を対象物質に選ぶ。ナノ構造半導体の作成技術は、電子波束制御に適した半導体構造を実現することが可能であると考えられる。研究体制は、1)光通信にも応用できる1.1 μm から1.5 μm 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グループから構成する。

2. 研究実施内容

2 - 1) はじめに

光位相デバイスは、21世紀の情報・通信産業界でも最も期待され、いくつかの試みがなされているが、実用化には多くの課題を残していると思われる。本研究プロジェクトでは、光波束（フェムト秒パルス）の位相情報を電子波束の位相情報として書き込み、また電子波束の位相情報を光波束で読み出すというような、電子波束と光波束の相互制御を用いた光位相デバイスに新たな可能性を見いだしている。

フェムト秒パルスの波形・位相制御技術は、近年飛躍的な進歩がある。10fsを切る超短パルスが実現したことには、パルスのバンド幅内のすべての波長成分を一定の位相関係に保つ位相制御技術の進歩が大きな要因となっている。このような各波長成分間の位相が制御された超短パルスレーザーを電子波束の励起に用いることにより、波束を構成する各状態の波動関数が持つ位相関係も任意に制御できることになる。このことから、近年、フェムト秒パルスにより凝縮系物質中に電子波束を生成し、レーザーパルスの位相特性を物質中の励起状態の位相制御に適用する研究が急速に進展してきた。フェムト秒パルスの持つ広帯域性を最大限活用し、その各波長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波長多重伝送技術の開発にも通じるものと期待される。

そこで、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 μm から1.5 μm 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。

本年度は、分子波束を用いた予備実験および、量子ドットデバイス中での緩和の

問題を取り扱った。

2 - 2) 光・電子波束制御エンジニアリング

フェムト秒パルス光は、以下のように、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。

$$E(t) = \sum_k |E(k)| \exp[i(\omega_k t - \phi_k)] \exp[ikr] \exp[-i\gamma_k t]$$

ここで、 $E(k)$ と $F(k)$ は、各モード k のフーリエ振幅と位相である。パルス制御とは、これらのフーリエ成分の振幅と位相を任意に調整し、所望のパルス時間波形を得るものである。

これに対して、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。電子波束は、固有状態の波動関数を用いて以下のように表される。

$$\psi(r,t) = \sum_k |b_k| \exp[i(\omega_k t - \phi_k)] \psi_k(r) \exp[-i\gamma_k t]$$

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。一般的に、分子では、ポテンシャル面が複雑な形状をしていることを反映して、その固有状態の波動関数を正確に決定することは困難である。そこで、波束制御を行うためのパルス制御には多くのパラメータを操作しなければならない。

これに対して、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。

2 - 3) 色素分子中の分子振動波束のチャープ制御

電子波束制御の予備実験として、チャープパルスを用いたシアニン色素3-3'-diethylthiatricarbo-cyanine iodide (DTTCI) の励起状態分布数制御の結果を示す。試料は、DTTCI の 2×10^{-4} M エタノール溶液を1mm厚セル内に循環させた。レーザーは DTTCI の $S_1 \rightarrow S_0$ 遷移の低エネルギー側に共鳴している。

図1は励起光子密度 4.5×10^{16} photons/cm² における透過率変化の時間依存性をプローブ波長800nm (光子エネルギー 1.55eV) で測定したものである。時間波形には、電子励起状態の寿命を反映する緩やかな減衰成分に振動構造が重畳している。この振動構造は 160 ± 10 cm⁻¹ の振動モードが Franck-Condon 遷移により励起されたものである。

本実験で注目すべき結果は、励起状態分布数に比例する長寿命成分の信号量が

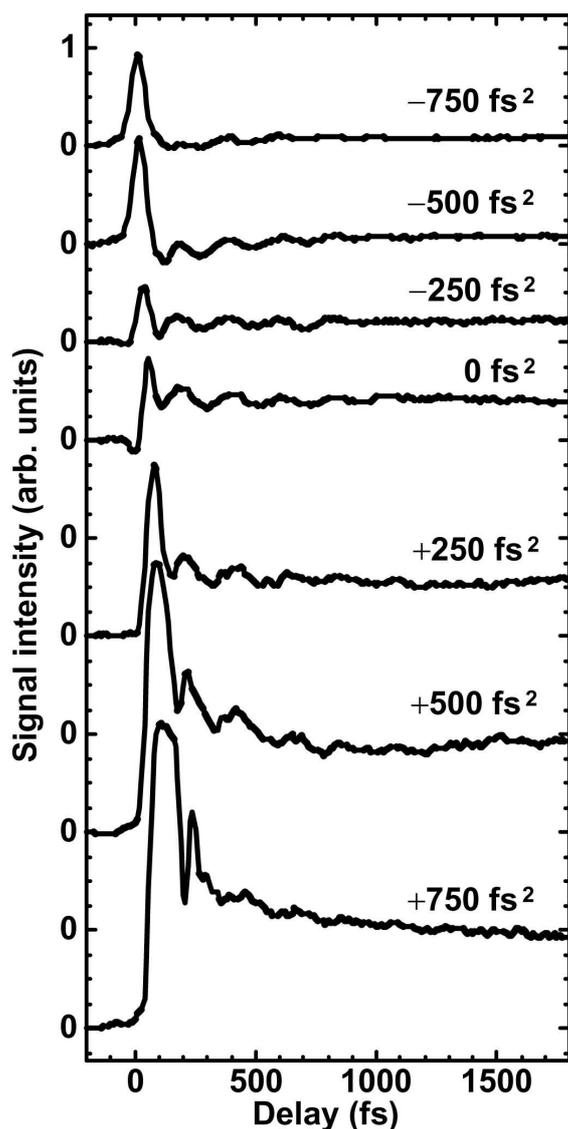


図1 透過率変化の時間依存性

計算にあたっては、外部電場を非摂動として扱い、ポテンシャル面およびパルス波形・位相も任意の形で計算できる方法を採用した。

全系の波動関数 $|\psi\rangle = |\psi_1(t)\rangle |1\rangle + |\psi_2(t)\rangle |2\rangle$ をシュレディンガー方程式に代入して整理すると、核座標波動関数について次のような連立偏微分方程式が得られる。

$$i\hbar \frac{\partial |\psi_1\rangle}{\partial t} = H_{\text{vib}}^{(1)} |\psi_1\rangle - \mu E(t) |\psi_2\rangle$$

$$i\hbar \frac{\partial |\psi_2\rangle}{\partial t} = (H_{\text{vib}}^{(2)} + \hbar \omega_0) |\psi_2\rangle - \mu E(t) |\psi_1\rangle$$

パルスのチャープ量に大きく依存することである。特に -750fs^2 と $+750\text{fs}^2$ とでは、パルスのスペクトル波形、パルス幅、パルスエネルギーが同じで、パルスチャープの向き（正では長波長が先に試料に到達し、短波長が後になる。負ではその逆）が異なるだけである。しかし、 -750fs^2 では長寿命成分はほとんどキャンセルされ、 $+750\text{fs}^2$ では大きく増強されている。すなわち、パルスチャープの向きが負の場合には励起状態分布数は励起直後に大きく減少し、正の場合には大きな分布数が残る。この結果は、パルスの前半部分で励起状態に誘起された波束がパルスの後半で誘導放出により基底状態に戻される pump-dump 過程で解釈できる。

2 - 4)チャープパルス励起による電子波束の時間発展

上で述べた実験結果を説明するために、振動状態と結合した2準位系に対して量子力学的計算をおこなった。

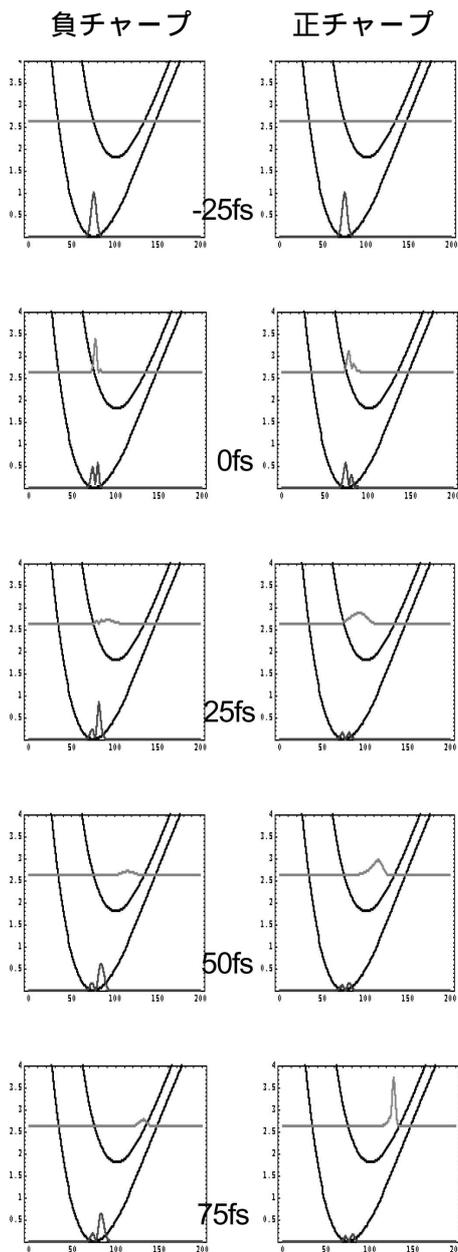


図2 チャープパルスで励起した直後の励起状態と基底状態の波束 $| \psi_1(t) \rangle$ と $| \psi_2(t) \rangle$ の様子

連立偏微分方程式は、微小時間 t について時間発展演算子で書ける。

$$\begin{bmatrix} \psi_1(t+\Delta t) \\ \psi_2(t+\Delta t) \end{bmatrix} = \exp \left[-\frac{i\hat{H}\Delta t}{\hbar} \right] \begin{bmatrix} \psi_1(t) \\ \psi_2(t) \end{bmatrix}$$

この時間発展演算子の計算には、ハミルトニアンを運動エネルギー項、ポテンシャルエネルギー項、そして相互作用項に分離して、スプリットオペレータ法に従って分解して行う。この計算では、位相緩和とエネルギー緩和のどちらも無視した近似で進めている。これは、今観測している現象が20 fs 程度のパルス幅の範囲で完了するので、緩和の効果は大きくないと考えているからである。

入射パルスは、周波数チャープを持ったガウス波形を仮定した。実際のパルス位相制御では、フェムト秒パルスをプリズムあるいは回折格子でスペクトル成分に分離し、各スペクトル成分に対して位相差を与えている。そこで、計算上でも、最初にスペクトルを与えるところから始める。

電場の時間波形 $E(t)$ は、スペクトル波形 $E(\omega)$ をフーリエ変換することによって、チャープパラメータ C を用いて以下のように求められる。

$$E(t) = \text{Re} \left[E_0 \sqrt{\frac{1}{2(1-iC)t_0^2}} \exp \left[-\frac{(1+iC)t^2}{(1+C)t_0^2} \right] \exp[-i\omega t] \right]$$

図2はチャープパルス（左列：負チャープ $C = -2$ 、右列：正チャープ $C = 2$ ）で励起した直後の励起状態と基底状態の波束 $| \psi_1(t) \rangle$ と $| \psi_2(t) \rangle$ の様子を上か

ら-25fs、0fs、25fs、50fs、75fsの順に示したものである。この時、チャープの向きだけ異なり、パルス幅、パルスエネルギー、スペクトルは全て等しい条件になっている。

負チャープの場合は、パルスの前半部分の吸収によって生成された励起状態波束と、基底状態に残された波束の空間的重なりが保たれ、パルスの後半部分において誘導放出が効率的に起こる。それに対して、正チャープでは、0fsでの波束のひろがりが大きく、パルスの後半部分でも吸収が支配的になるために、パルス通過後の励起状態分布数が大きく残っている。

2 - 5) 量子ドット系におけるキャリア緩和とレーザー特性

量子ドット系の実用デバイスへの応用の一つである量子ドットレーザーは、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、キャリアのゼロ次元領域への閉じこめは、同時に電子/L Oフォノン相互作用によるキャリア緩和を抑制する可能性が指摘されており、また、ドット内キャリアの空間拡散も強く制限される。このような、キャリア緩和の様相は、レーザー特性に敏感に現れる可能性があり、デバイス特性の評価から、逆に、緩和速度等についての情報が得られる。そこで、量子ドット系における励起キャリアの緩和・拡散が、レーザー特性に及ぼす影響、特にスペクトルのおよび空間的なホールバーニング (H B) を通じて発振スペクトルに及ぼす影響を解析した。

(1) スペクトル的な H B

レーザーにおけるスペクトル的な H B は、レーザー利得の不均一幅が均一幅に比べて大きい場合に、単色性の高いレーザー光が利得スペクトルを周波数軸上で部分的に飽和する現象で、レーザー発振を多モード化させる。最近の量子ドット系では、ドットサイズのばらつきに起因する遷移周波数の不均一広がり、20meV程度まで低減されたが均一広がり幅に比べて大きい。このため、もし量子ドット間でキャリアの交換が無ければ激しい H B の出現が予想される。現実には、量子ドットは連続層 (ぬれ層) に接しており、連続層の準位と個々の量子ドット内の束縛準位との間でキャリアの相互緩和がある。そこで、連続層準位を介したドット間キャリア緩和を考慮したレート方程式を用いて、スペクトル的なホールバーニングの解析を行った。ドットあたり 1 個の束縛準位を仮定し、また、連続層準位をその最下端に位置する縮退を持つ 1 個の準位で置き換える近似を採用した。連続層準位から束縛準位への下向き緩和とともに、その逆方向の緩和も考慮した。その結果、最近報告されているように1psないしそれ以下の高速なエネルギー緩和を想定すれば、スペクトル的な H B は無視できるほど小さく、従って、現状で量子ドットレーザーに見られている多モード発振の主要な原因とは考えにくいことがわかった。

(2) 空間的なHB

共振器内でレーザー光は定在波構造をとる。このため、共振器軸方向では、光強度の大きな発振モードの腹付近での利得の飽和は強く、逆に節付近では小さい。従って、発振モード光強度の定在波構造は、いわば母型となって、キャリア密度(従って利得)の空間分布に転写される。これが空間的なHBである。発振している軸モードは、自ら形成した不均一な利得分布の極小付近で主として増幅されるため、モード利得は、利得の空間平均値よりも小さくなる。これに対して、これ以外の軸モードでは、波長が異なるために、利得の空間平均値がモード利得に一致する。すなわち、発振モード以外のモードは、空間的なHBの進行にともなって、発振モードより有利なモード利得を得る。このため空間的なHBも発振を多モード化させる。発光領域でキャリアの空間拡散があれば、この空間的な不均一性の発生は抑制される。量子ドット系では、励起キャリアが個々のドットに捕捉されており、ドット間で直接の空間拡散は生じないため、激しい空間的なHBが起こりうる。しかし、前項で考察した量子ドットの束縛準位と連続層準位との間の相互緩和に加えて、連続層キャリアの面内空間拡散を考慮すると、これを經由してドット間で実効的なキャリア拡散が生じることが期待できる。この連続層を介したドット間キャリア拡散の大きさは実効的な拡散長 l_d^* として表現することができる。

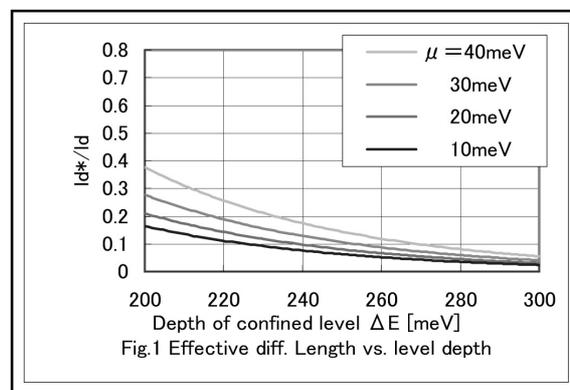


図3 l_d^* (実効的拡散長)/ l_d (連続層における真の拡散長)のドット順位深さ依存性

図3は、連続層での空間拡散を取り入れて拡張したレート方程式を用いて計算した実効的な拡散長 l_d^* を、連続層における真の拡散長 l_d に対する比として示したものである。横軸は、ドット準位の深さ E 、すなわち、連続層準位(の最下端)からドット内束縛準位までの間隔である。またパラメータ μ は、束縛準位から計ったフェルミレベルの高さである。この結果は、 E が小さく μ が大きい

いほど、すなわち空間拡散を担う連続層キャリアの密度がより大きいほど、実効的な拡散長が大きいことを示している。報告されている量子ドットレーザーでの E の典型値は200meV以上で、また、レーザー発振時の m は束縛準位の10 ~ 30meV程度に位置すると推定されるので、この図から、実効的な拡散長は連続層面内拡散長の0.1倍程度であることが読みとれる。InGaAsP量子井戸層における拡散長の実験値として報告されている0.78 μm や0.85 μm などを用いて推定すると、ドット間の実効的な拡散長は0.08 μm 程度になる。これは、発振波長1.1 ~ 1.3 μm の量子ドットレーザーの管内波長に比べて一桁小さく、著しい空間的HBの発生が予想される。すなわち、量子ドットレーザーにしばしば見られる多重軸モード発振は、主として空間的なHBによってもたらされていると考えられる。

2 - 6) 今後の展望

今後は、量子構造半導体を対象に、いくつかのモデル構造について、波束の時間発展について設計を行う。それと同時に、実際に位相制御パルスによる波束生成・検出実験を行い、我々の提案した「電子波束制御エンジニアリング」の原理検証を試みる。

3 . 主な研究成果の発表 (論文発表)

無し