# 半導体微小共振器ポラリトンからのTHz帯電磁波放射

## (研究課題番号 11650046)

## 平成11年度~平成12年度

科学研究費補助金(基盤研究(C)(2))研究成果報告書

平成13年3月

## 研究代表者 角屋 豊

(広島大学工学部教授)

#### 文部省科学研究費助成金 成果報告書

- I. 研究種目 基盤研究(C)(2)(一般研究)
- II. 課題番号 11650046
- III. 研究課題名 半導体微小共振器ポラリトンからの THz 帯電磁波放射
- IV. 研究組織

研究代表者	角屋豊	広島大学工学部・助教授
研究分担者	山西正道	広島大学工学部・教授

V. 研究期間および助成配分額

平成 11 年度	2,200千円
平成 12 年度	1,500千円
青十	3,700千円

- VI. 研究発表
- (1)学会誌等
  - Y. Hokomoto, Y. Kadoya, and M. Yamanishi, "THz electromagnetic wave radiation from coherent oscillation of exciton population in high-Q semiconductor microcavities", Applied Physics Letters, Vol. 74, No. 25, pp.3839-3841 (1999).
  - M. Kusuda, S. Tokai, Y. Hokomoto, Y. Kadoya, and M. Yamanishi, "THz electromagnetic wave radiation from semiconductormicrocavities in nonperturbative regime", Physica B, vol.272, pp.467-471 (1999) (Proccedings of the 11th International Conference on Nonequilibrium Carrier Dynamics in Semiconductors (HCIS-11), Kyoto, Japan)
- (2)口頭発表

(国際会議)

- Y. Kadoya, Y. Hokomoto, and M. Yamanishi, "Radiation of THz electromagnetic waves from oscillating exciton population in semiconductomicrocavities", Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS '99), Baltimore, USA (May 1999), Program No. JThC1 (1999.5)
- 2. (招待講演) M. Kusuda, S. Tokai, Y. Hokomoto, Y. Kadoya, and M. Yamanishi, "THz electromagnetic wave radiation from semiconductormicrocavities in nonperturbative regime", 11th International Conference on Nonequilibrium Carrier Dynamics in Semiconductors (HCIS-11), Kyoto, Japan (July 1999), Program No. ThA1.
- 3. (招待講演) M. Yamanishi and Y. Kadoya, "THz-electromagnetic wave radiation from

high-Q microcavities: heart of polariton concept", 6th International Workshop on Femtosecond Technology (FST '99), Chiba, Japan (July 1999).

- Y. Kadoya, T. Hokomoto, M. Yamanishi, M. Kusuda, and S. Tokai, "THz electromagnetic wave radiation from DC-biased high-Q semiconductormicrocavities", The Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics '99, Seoul, Korea (August 1999), Program No. FA2.
- 5. M. Kusuda, Y. Kadoya, Y. Hokomoto, S. Tokai, T. Sakurada, and M. Yamanishi, "Radiation of THz electromagnetic waves from thenutation of exciton population associated with cavity-polariton mode oscillation", IEEE 7th International Conference onTerahertz Electronics (THz'99), Nara, Japan (November 1999), Program No. ThC3.
- 6. Y. Kadoya, T. Sakurada, M. Kusuda, M. Yamanishi, "Microcavity-induced enhancement of THz-wave radiation from semiconductor surfaces excited by short laser pulses", International Terahertz Workshop (ITW2000), Sandbjerg Estate, Denmark (September 2000), Abstract p.63.
- 7. (招待講演) M. Yamanishi and Y. Kadoya, "THz-Electromagnetic Wave Radiation from Semiconductor Microcavities in Strong- and Weak-Coupling Regime", 13th Annual Meeting, IEEE Lasers and Electro-Optics Society (LEOS 2000), Rio Grande, Puerto Rico (November 2000), Program No. TuM1.
- (国内学会)
  - 1.楠田将之,渡海滋,桜田俊也,角屋豊,山西正道「共振器ポラリトンからの THz 帯 電磁波放射(II)-放射電磁波とポラリトン分散の関係」日本物理学会秋の分科会, 1999年9月,24a-YB-8
  - 2.桜田俊也,楠田将之,角屋豊,山西正道「半導体微小共振器から放射される THz 帯 電磁波強度の共振器構造依存性」第47回応用物理学関連連合講演会,2000年3月, 30a-ZD-10
  - 3.桜田俊也,角屋豊,山西正道「バルク半導体微小共振器から放射される THz 帯電磁 波の直流電圧・励起光強度依存性」第61回応用物理学会学術講演会,2000年9月, 4a-L-1
  - 4.角屋豊,楠田将之,渡海滋,桜田俊也,山西正道「量子エレクトロニクスとテラへ ルツ波工学」第 61 回応用物理学会学術講演会、レーザ・テラヘルツ波工学の学際 展開シンポジウム 2000 年 9 月,4p-L-7
  - 5.角屋豊,山西正道「半導体微小共振器からの THz 帯電磁波発生」2000 年電子情報通 信学会ソザイエティ大会,量子微細構造デバイスの現状と展望シンポジウム,2000 年 10 月,T-3

...

VII. 研究成果の詳細

次頁以降に示す.

# 目 次

1	はじ	めに こう ひょう ひょう ひょう ひょう ひょう ひょう ひょう ひょう ひょう ひょ	1	
	1.1	共振器ポラリトン	1	
	1.2	THz 帯電磁波	2	
<b>2</b>	共振	<b>義器ポラリトン</b>	4	
	2.1	共振器ポラリトン	4	
	2.2	ポラリトンモード分裂の制御	6	
		2.2.1 量子閉じ込めシュタルク効果 (QCSE)	6	
		2.2.2 共振波長の入射角度依存性	8	
		2.2.3 QCSE を用いたポラリトンモード分裂の制御	9	
	2.3	共振器ポラリトンからの THz 帯電磁波放射	12	
3	$\mathbf{TH}$	z带電磁波測定系	14	
	3.1	THz 帯電磁波検出系	14	
	3.2	バルク半導体表面からの THz 帯電磁波放射	16	
4	微小	共振器素子	18	
	4.1	素子構造	18	
	4.2	ポラリトンモード分裂	19	
	4.3	励起子線幅の量子井戸電場強度依存性	21	
5	5 共振器ポラリトンからの THz 帯電磁波放射			
	5.1	代表的な電磁波信号	24	
	5.2	励起波長依存性	26	
	5.3	モード分裂量と電磁波振動周期の関係	27	
	5.4	量子井戸電場強度依存性	33	
	5.5	励起光強度依存性	36	
	5.6	共振器 Q 值依存性	38	
6	まと	めと今後の課題	40	

#### 1 はじめに

#### 1.1 共振器ポラリトン

波長オーダーの微小光共振器によって輻射場のモードを制限すると、物質系の光学応答が自由 空間の場合と大きく異なる。特に、2準位原子と1つの輻射場が強く結合した系にみられる自然 放出の増強と抑制といった現象は輻射場の量子性が本質であり、1980年代以降主に原子系を中心 に共振器量子電気力学として基礎的な側面から研究が進められてきた。90年代になって、半導体 の量子構造と微小共振器を組み合わせた微小光共振器構造が作られるようになり、凝縮系におい て微小共振器の効果に興味がもたれるようになってきた。これまでの研究で自然放出レートや放 射パターンの変化等、少なくとも摂動論の範囲内では凝縮系に対する共振器効果に関してはほぼ 明らかとなっている[1]。

一方, 1992年にWeisbuch らは、AlGaAs 系の高反射率1波長 DBR 共振器の低温 (~5K)にお ける反射スペクトルにおいて、共振器モードと励起子モードが一致した時2つのディップが現れる ことを見出した。そしてこの2つのディップが電子系と光子系の結合の結果生じたポラリトンモー ド分裂であることを指摘した [2]。この報告を機に国内外の多くの研究グループで共振器ポラリト ンに関する研究が始められた。共振器ポラリトン状態は単純な量子井戸励起子とは異なり、例え ば光子系との結合の結果、フォノンや励起子同士の相互作用が変化する [3, 4, 5]、ポラリトンモー ドの線幅が励起子と共振器モード線幅の単純な算術平均にならない [6] 等の興味深い光学応答を示 す。後者に関しては 2.1 で触れる。また前者と関連して励起子レーザが実現できるとの予測もある [7, 8]。モード分裂は低温だけでなく室温でも観測される。GaAs 系微小共振器に限定してもQ値 を高くするとともに量子井戸数を増やす [9]、native AlAs-oxide/GaAs DBR を用いる [10, 11] 等 の方法により室温でも10 meV 近い分裂が観測されている。これらの結果は今後の共振器ポラリ トンの応用を考える上で重要である。

共振器中の励起子ポラリトンは、古くから多くの研究が行われている3次元物質中の励起子ポ ラリトンとも種々の違いがある。2次元励起子ポラリトンでは共振器および量子井戸によって励 起が面内に閉じ込められているため、結晶の奥行き方向への伝搬がなく、例えばサンプルへの励 起光の入射角度を変えた共振器ポラリトンからの発光を観測することでポラリトンの分散曲線も 直接的に同定することができる[12]。さらに3次元励起子ポラリトンの性質は材料定数でほぼ決 まってしまうが、2次元励起子ポラリトンは人工的にその性質を変え得るという特徴がある。特 に、直流電界を量子井戸に印加することでモード分裂量も変化させ得る[13, 14]。この手法は本研 究においても重要であるので2.2で詳しく説明する。

時間領域におけるポラリトンの光学応答に関しても、早い段階から研究が行われている。時間領

域の応答は、その起源に応じてコヒーレントな現象とインコヒーレントな現象に大別される。共振 器ポラリトンに特有のインコヒーレントな現象の例としては、発光再結合寿命や発光強度がポラ リトン分散曲線の状態や励起エネルギーに依存することが上げられる [15, 16, 17]。これらは主と してポラリトン状態における緩和が裸の励起子と異なることに起因し [18, 19]、上述の励起子レー ザと関連するため精力的な研究が進められている [20]。一方、コヒーレントな時間領域での現象 の例は規準モード振動 (Normal Mode Oscillation; NMO)[21] と呼ばれる、励起子数や光子数の周 期的な変化である。モード振動はいわば励起子と光子が周期的にエネルギー交換をするというポ ラリトン概念の直感的なイメージに対応するものであり、主として共鳴発光の観測 [22, 23] や四光 波混合に代表される非線形光学的手法 [24, 25] により、研究が進められて来た。しかしながら非線 形信号はQ 値の高い共振器中で様々な干渉効果の影響を受けるため [26]、その解釈はあまり単純 でない。

この様な状況の中で、本研究の代表者らは共振器ポラリトンからの THz 帯電磁波放射の可能性 を指摘した [14, 27]。電磁波は直流電界下の励起子数の時間変化から放射されるものであり、また 電磁波は共振器による閉じ込め効果を受けないため、高次の干渉効果の影響をほとんど受けない。 この意味で、電磁波の観測はモード振動に起因して励起子数が脈動することの直接的な証拠とな り得るものである。本研究の目的は、共振器ポラリトンが形成されている半導体微小共振器から の THz 帯電磁波放射を実証することである。さらに、電磁波信号の解析から共振器ポラリトン状 態のダイナミクスを解明することも本研究の目的の1つである。

#### 1.2 THz 帯電磁波

THz 帯電磁波はサブミリ波(波長 1 mm ~0.1 mm、周波数 300 GHz ~3 THz) 域を少し拡大 解釈した 数 100 GHz ~ 数 10 THz の電磁波を総称したものである。THz 領域は、半導体電子デ バイス技術と光デバイス(レーザ)技術の狭間にあって、これまで電磁波の発生、検出等の技術開 発があまり進んでなかった。しかし近年、パルス幅数 100 フェムト秒以下のパルスレーザ光発生 技術が進歩し、これを用いた THz 領域の電磁波発生、検出に関する研究が急速に進展している。

一方、応用に関しては、1~10 THz の周波数領域に水 (H<sub>2</sub>O) などの分子振動吸収があることを 利用して、大気成分や燃焼状態の解析 [28, 29, 30]、生体中の水分分布やプラスティック中のボイ ドの透過観察 [31] なども検討されている。特に透過像観察に関しては THz 領域の電磁波は X 線と 比較して安全性が高いと予想され、また X 線とは異なる透過性を有するという点が重要である。 また数 10 フェムト秒の分解能で時間を制御できることを利用して、電磁波を時間領域で観測する ことも可能であり、物体のリモートセンシング (レーダー) などへの応用も検討されている [32]。 いずれにしても、これまでとは異なる周波数領域の電磁波を用いることが可能になるため、今後

種々の応用が期待される。

フェムト秒レーザを用いた自由空間への THz 帯電磁波の放射と検出は 1988 年の Smith らの報 告に始まる [33]。彼らは半導体上の微小ギャップを持つ微小ダイボールアンテナ (一種の光導電ス イッチ) にフェムト秒の光パルスを照射して電磁波を発生し、同じ構造の微小ダイポールアンテナ で電磁波を検出した。この電磁波発生、検出の方法は現在でも1つの基本形となっている。また Zhang らは 1990 年に、バルクの半導体表面を 100 フェムト秒程度の超短パルス光で励起すると THz 帯の電磁波が放射されることを報告した [34]。この電磁波発生原理は、半導体の種類(バン ドギャップの大きさ)や励起光密度によって異なるが、パルス光で励起された電子と正孔が半導体 表面の空乏層電界によってドリフトすることによるサージ電流および光整流が主要な機構である ことがわかっている [35, 36]。半導体表面を用いた電磁波発生は、簡便な方法であって、かつ電磁 波強度も比較的強いことから、応用上も重要な方法の1つである。本研究でも測定系の構築およ び評価の際に用いた。なお、これまでの報告では InAs 基板を用い、さらに磁場を印加した場合に 高強度の電磁波が得られることが知られている [37]。なお、応用を念頭においた THz 帯電磁波発 生としては、光ゲート式アンテナにおける差周波発生 [38]、パラメトリック発振 [39]、非線形結晶 における光整流 [40] など幅広く研究が進められている。

一方、THz 帯電磁波の検出方法としては、現在のところ上述の光ゲート式微小ダイポール型ア ンテナ、電気光学結晶 (E/O サンプリング)[48]、および Si あるいは InSb のボロメータを用いる方 法がある。前二者は基本的に電磁波発生に用いたフェムト秒レーザからの分岐光を用いたサンプ リング測定であり、電磁波の時間波形を得ることができる。いずれも室温での測定が可能で、電 磁波の検出感度は高く、また帯域も数 10THz まで広がっているが [49, 50]、検出される信号は測 定系の詳細に敏感であり、電磁波電力の絶対値測定にはあまり適さない。特にアンテナを用いる 方法での検出信号と電磁波振幅に関する定量的な議論は困難である。これに対し、ボロメータは 電磁波の電力を測定することが可能であるが、その較正によっては、精度に問題が発生する。ま た、通常液体 He が必要である。ボロメータを用いた場合にも、電磁波同士の自己相関波形を得る ことは可能である。本研究では検出感度が高い点に注目し、ダイポールアンテナを採用した。

THz 帯の電磁波は様々な物理過程から放射され、逆に放射電磁波を観測することにより、関連 する物理過程に関する情報を得ることができる。これまでに、量子井戸構造における電子波束の運 動 [41] や重い正孔と軽い正孔間の量子ビート [42]、超格子中のブロッホ振動 [43]、2 次元電子プラ ズモン [44]、3 次元プラズマ振動 [45]、超伝導体 [46]、コヒーレントフォノン [47] などからの THz 帯電磁波放射の報告がなされている。この流れに沿って言えば、本研究は電磁波を観測すること で共振器ポラリトン状態のコヒーレンスを調べようとするものである。



図 1: 強結合領域におけるポラリトン状態の直感的描像

## 2 共振器ポラリトン

2.1 共振器ポラリトン

半導体微小共振器中での電子・光相互作用は、共振器モードの減衰 $\gamma_c$ および励起子コヒーレンスの減衰 $\gamma_{ex}$ とラビ周波数 $\Omega$ の大小関係に応じて、電子系のエネルギーが自然放出によって単調に減衰する領域(弱結合状態:  $\Omega \ll \gamma_{ex}, \gamma_c$ )と、電子系(励起子)と光子系が強く結合して新たな固有状態(共振器ポラリトン)をつくる領域(強結合領域:  $\Omega \gg \gamma_{ex}, \gamma_c$ )に分類される。本研究は後者の領域を対象としている。

強結合領域における相互作用の直感的な描像は次の通りである。一般に、共振器内のQ値が高 くなると、電子系から放出された光子が共振器から脱出する前に、再びその光子は電子と相互作 用する。半導体微小共振器を図1の様に模式的に考えると、量子井戸 (QW) での吸収 (QW の吸 収係数  $\alpha$ 、厚み  $L_z$  と QW 枚数 N の積、 $N_{\alpha}L_z$ )が共振器の反射率1-Rと同程度かあるいはそれ 以上になると、すなわち  $N_{\alpha}L_z \ge 1 - R$ になると、電子と光子の強い相互作用が生じるとみてよ い。この場合、光子が共振器から脱出する前に、光子の放出と吸収が次々とコヒーレントに起こ り、その結果、両者が結合した新たな2 つの固有モードが生じる。正確には励起子が作る分極が 問題であるので、分極の減衰 (位相緩和)が十分に小さいことも必要である。この現象は共振器内 に原子を置いた系で見出された真空場揺らぎによって生じる真空ラビ分裂と呼ばれている現象と よく類似しているが、固体の光物性論における重要な概念である励起子ポラリトン状態が共振器 中で形成されたことによるモード分裂と理解する方がより正確である。

以下では分極波(励起子)と電磁場(光子)の連成波としてのポラリトンモード分散を古典的に導く。分極 P、および光の電場 E はそれぞれ

$$\frac{\partial^2 P}{\partial t^2} + 2\gamma_{ex}\frac{\partial P}{\partial t} + \omega_{ex}^2 P = \beta E \tag{1}$$

$$\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + 2\gamma_c \frac{\partial E}{\partial t} + \omega_c^2 E = -\left(\frac{c_0}{n_c}\right)^2 \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \tag{2}$$

を満たす。ここで $\omega_{ex}$ および $\gamma_{ex}$ はそれぞれ励起子の遷移角周波数および位相緩和定数、 $\omega_c$ および $\gamma_c$ は共振器の共振角周波数および減衰定数、 $c_0$ は真空中の光速、 $n_c$ は励起子の寄与を除く共振器媒質の屈折率、 $\mu_0$ は真空の透磁率である。また $\beta$ は励起子遷移の強さを表わし、励起子振動子強度 $f_{osc}$ に比例する。平面共振器の場合には波数kを共振器軸方向(z)と面内方向(||)に分け、

$$\omega_c^2 = \left(\frac{c_0}{n_c}\right)^2 (k_{\parallel}^2 + k_z^2) = \left(\frac{c_0}{n_c}\right)^2 k_{\parallel}^2 + \omega_{c0}^2 \tag{3}$$

と置くことができる。ここで  $\omega_{c0}$  は共振器軸方向 (共振器面の法線方向) における共振角周波数である。 $E, P \sim \exp(-i\omega t)$  を仮定すると、(1)、(2) 式は

$$(-\omega^2 + \omega_{ex}^2 - 2i\omega\gamma_{ex})P = \beta E \tag{4}$$

$$(-\omega^2 + \omega_c^2 - 2i\omega\gamma_c)E = \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 n_c^2}P$$
(5)

となり、次式を得る。

$$(\omega^2 - \omega_{ex}^2 + 2i\omega\gamma_{ex})(\omega^2 - \omega_c^2 + 2i\omega\gamma_c) = \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 n_c^2}\beta$$
(6)

ここで $\omega \sim \omega_{ex} \sim \omega_c$ の近似を行うと

$$(\omega - \omega_{ex} + i\gamma_{ex})(\omega - \omega_c + i\gamma_c) = \frac{\beta}{4\varepsilon_0 n_c^2}$$
(7)

と書けるから、これを解いてポラリトンモードの分散関係

$$\omega_{\pm} = \frac{\omega_{ex} + \omega_c}{2} - i\frac{\gamma_{ex} + \gamma_c}{2} \pm \frac{1}{2} \left[ \left\{ (\omega_{ex} - \omega_c) - i(\gamma_{ex} - \gamma_c) \right\}^2 + \Omega_0^2 \right]^{1/2}$$
(8)

を得る。ここで  $\Omega_0^2 \equiv \beta/\epsilon_0 n_c^2$  とおいた。従って、励起子と共振器モードが同調 (共鳴) している場合の角周波数差は

$$\Omega \equiv \Delta \omega|_{resonance} = \omega_{+} - \omega_{-} = \left[ -(\gamma_{ex} - \gamma_{c})^{2} + \Omega_{0}^{2} \right]^{1/2}$$
(9)

で与えられ、励起子分極と共振器モードの減衰が十分に小さい場合には励起子振動子強度の平方 根に比例することになる。本報告書ではこの共鳴状態での角周波数差Ω(またはそのエネルギー値) を「モード分裂量」と呼び、励起子と共振器モードが離調している場合のポラリトンモード間の 角周波数差(またはそのエネルギー値)とは区別する。

これらの表式は極めて単純化した微小共振器モデルに基づくものであり、実際の素子における ポラリトンモードは伝達行列法等により求める必要がある。Savona らは基礎的な線形光学応答で ある反射、透過、吸収、発光スペクトルで観測されるモード分裂量は真のモード分裂量とは異な るという非常に興味深い理論結果を示している [51]。これらについては 5.3 で詳しく触れることに する。なお、(9) 式は励起子分極と共振器モードの減衰が十分に小さくない場合でも両者が等しけ れば、分裂量には減衰は影響しないことを示している。実際 Pratt らは、温度変化によって生じ る励起子の線幅増大に伴って、 $\gamma_{ex} = \gamma_c$ となる温度でモード分裂量が最大となることを実験的に 示している [52]。

ここで励起強度とモード分裂量の関係、およびボラリトンモード線幅に関するこれまでの報告 について簡単に述べる。弱励起状態ではモード分裂量は励起強度に依存しない[23]。しかしある程 度以上の励起密度においては、励起子密度が上がるにつれて、位相空間充填効果とスクリーニン グの影響により励起子振動子強度が低下する。また、励起子ー励起子散乱も強くなるため、ボラ リトンモードの減衰、あるいは線幅が広くなる。これらの結果、高い励起密度においてはモード 分裂量は減少し、最終的には強結合状態から弱結合状態に遷移する。この現象は実験的に示され ている [53, 54]。特に [54] では、強励起状態におけるモード分裂の時間的な振る舞いをフェムト秒 の反射型ポンププローブ分光法により調べている。励起光強度が上がるに伴い反射スペクトル上 のモード分裂量が、一瞬減少してその後少しずつ増加していくという結果が報告されている。な お、励起子振動子強度の低下と散乱の影響は、それぞれ異なる励起光強度において比較的急速に 変化する。その際、励起子の不均一幅も影響するためモード分裂量の変化の様子には素子依存性 が強い [55]。これと関連して、励起子の不均一性とポラリトンモードの関係についても多くの議 論が展開され [56, 57, 58, 59, 60]、ポラリトン状態での励起子線幅の Motional Narrowing との関 連も盛んに議論されているが [6, 61, 62, 63, 64, 65, 67]、不均一性は個々の素子の構造や作製条件 に強く依存することもあり、必ずしも統一的な見解は得られていない様に見受けられる。

2.2 ポラリトンモード分裂の制御

#### 2.2.1 量子閉じ込めシュタルク効果 (QCSE)

量子井戸に電場が加えられていない場合、伝導帯の電子および価電子帯の重い正孔の各量子準 位における波動関数は、井戸層の中心に対して対称性を持っているが、図2に示すように井戸層 面に垂直に電場が印加されると、電子と正孔の波動関数は逆方向にシフトする。本研究では、最 低量子準位の電子 (1e) および、重い正孔 (1hh) のみを考える。これらのシフトの結果、電子と正 孔の波動関数の重なり積分に比例する振動子強度は、無電場時は大きく、また強電場時になるほ ど小さくなる。また、これと同時に電場印加により伝導帯電子のエネルギー  $E_{1e}$  と価電子帯の重 い正孔のエネルギー  $E_{1hh}$  の差は減少し、励起子遷移角周波数 ( $\omega_{ex} = (E_{1e} - E_{1hh})/\hbar$ ) は低エネル ギー側へシフトする。このように井戸層に垂直に電場を印加することによる振動子強度、および 励起子エネルギーの変化を量子閉じ込めシュタルク効果 (QCSE) と呼ぶ。





図 2: 量子閉じ込めシュタルク効果の説明



図 3: 厚さ 12nm の AlAs/GaAs 量子井戸における励起子遷移波長と振動子強度の理論値



図 4: 斜め入射時の光の伝搬

図3に井戸幅12 nmのAlAs/GaAs量子井戸における、電場に対する励起子遷移波長および規 格化振動子強度変化の計算結果を示した。電場を印加するにつれて励起子波長は長波長側にシフ トし、またそれと同時に振動子強度が減少している様子がわかる。

#### 2.2.2 共振波長の入射角度依存性

バルク媒質の場合の光の伝搬は屈折率 n、媒質中の波数 k を用いると $\omega = c_0 k/n$  と表される。 自由空間では光の進行方向である波数 k は 3 次元の自由度を持つが、共振器中では z 方向成分  $k_z$  が共振器長によって制限されている。共振器を構成するミラーの反射係数が実数である場合には  $k_z$  は

$$k_{z,c} = \frac{m\pi}{L_c} \tag{10}$$

で与えられる。ここで $n_c$ は共振器スペーサ層の屈折率、 $L_c$ は厚さである。mは正の整数であり、 最低次 (m = 1)のモードは 1/2 波長に対応する。なお、本研究で用いる様な分布ブラッグ反射器 (DBR)においては、共振器中に量子井戸が無く、DBRを構成する各層の厚さ L が完全に 1/4 波 長 (従って  $L = \pi/2k_{z,c}$ )となっている場合にのみこの関係が成り立つ。このとき共振器モードの 角周波数は (3)式で与えられる。実際の素子においては、DBRの反射係数かならずしも実数とな らないことや量子井戸の存在を考慮し、実効的な屈折率  $n_{eff}$ を用いて、共振器モードの光子エネ ルギーは

$$E(k_{\parallel}) = \frac{\hbar c_0}{n_{\text{eff}}} \sqrt{k_{z,c}^2 + k_{\parallel}^2} = \hbar \omega_{c,0} \sqrt{1 + \left(\frac{k_{\parallel}}{k_{z,c}}\right)^2}$$
(11)

と表すことができる。図4に示すように、光が共振器に対して垂直に入射した場合 k<sub>l</sub> はゼロであ るが、斜め入射の場合は k<sub>l</sub> がゼロでない値を持ち、それだけ共振モードのエネルギーは大きくな る。つまり、励起光を共振器に対して角度をつけて入射すればするほど共振器エネルギーは高エ ネルギー側にシフトする。共振器外部 (空気) での波長で表すと、

$$\lambda = hc/E(k_{\parallel}) \tag{12}$$

となり共振波長は短波長側にシフトする。垂直入射における共振器外部 (空気) での共振波長を  $\lambda_{c,0}$  とすると、

$$\lambda_{\rm c,0} = \frac{2\pi n_{\rm eff}}{k_{z,\rm c}} \tag{13}$$

である。

また  $k_{\parallel}$  は入射角度の関数であるので垂直入射での共振波長をもとに内部入射角  $\theta_{int}$ 、外部入射角  $\theta_{ext}$  を次の様に求めることができる。

$$\theta_{int} = \cos^{-1}\left(\frac{k_{z,c}}{k}\right) = \cos^{-1}\left(\frac{\lambda}{\lambda_{c,0}}\right) \tag{14}$$

$$\theta_{ext} = \sin^{-1}(n_{\text{eff}}\sin\theta_{int}) \tag{15}$$

#### 2.2.3 QCSE を用いたポラリトンモード分裂の制御

2つのポラリトンモードの角周波数差Δωは(8)式より、

$$\Delta\omega = \left[ \left\{ (\omega_{ex} - \omega_c) - i(\gamma_{ex} - \gamma_c) \right\}^2 + \Omega_0^2 \right]^{1/2}$$
(16)

と表される。従って、励起子および共振器モードの減衰を無視すると、角周波数差は裸の励起子 モードと共振器モードの離調、および同調時のモード分裂量 Ω<sub>0</sub> で決まることになる。また Ω<sub>0</sub><sup>2</sup> は 半導体微小共振器の場合、概ね励起子振動子強度 f<sub>osc</sub> と量子井戸数 N に比例する。但し、量子井 戸位置が共振器モードの定在波の腹からずれる場合は、上式における N に対する依存性は弱くな る。前述の様に QCSE を用いて励起子遷移角周波数 ω<sub>ex</sub> と振動子強度 f<sub>osc</sub> を変化させ得ると同時 に、共振器モードの角周波数 ω<sub>c</sub> を入射光の角度でもって選択できる。QCSE と共振波長の入射角 度依存性を用いたモード分裂制御の原理は以下の通りである。

図5は量子井戸内部の静電場と励起子および共振器モードの関係を模式的に表した図で、励起 子エネルギーは電場が強くなればなるほど低エネルギー側にシフトする。一方、共振モードエネ ルギーは電場強度に依存せず、上述のようにサンプルへの励起光の入射角度 $\theta_{ext}$ で決まる。また 振動子強度は強電場になるほど小さな値となる。例えば、励起光の入射角度 $\theta = \theta_1$ の場合、励起 子と共振器が同調する電場強度  $E_1$ (振動子強度  $f_1$ )で励起子-光子強結合の結果エネルギーに反



図 5: QCSE を用いたポラリトンモード分裂の制御の原理

交差が生じ、モード分裂  $\Omega_1$  が形成される。この状態で励起子エネルギー (すなわち量子井戸電場 強度) を変化させることにより、励起子と共振器モードの同調・離調を自由に連続的に変化させる ことができる (共鳴状態から励起光の入射角度を変化させても同じことが可能である)。また、励 起光の入射角度を変えると ( $\theta = \theta_2$ )、電場強度  $E_2$ (振動子強度  $f_2$ ) で励起子と共振器モードの同調 が実現でき、モード分裂  $\Omega_2$  が生じる。即ち、量子井戸電場と入射角度を選ぶこことで励起子と共 振器モードの同調を、異なる内部電場強度の状態で実現できる。またその際、QCSE によって励 起子の振動子強度が変化しているので (この例では  $f_1 > f_2$ )、モード分裂量が異なる (この例では  $\Omega_2 > \Omega_1$ )。即ち、励起光の入射角度変化および QCSE を用いればモード分裂量を単一の素子で連 続的に変化させることが可能となる。例えば、微小共振器において様々な入射角度に対する反射 スペクトルを測定することにより、ポラリトンモード分裂量の振動子強度依存性を調べることが できる。我々はこの手法を用いて系統的なモード分裂量の変化を観測した [14]。この実験は本研究 とも密接に関わるので、以下にその骨子を示す。

実験に用いた1次元微小共振器は、Al<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>As/AlAs DBR により構成される1/2 波長共振器 の中央に井戸幅12nmのGaAs 量子井戸1層を配置した構造である。DBR 層数は本研究で用い る素子よりもやや少なく、基板側、空気側それぞれ40層(計算上の反射率0.991)および17層(同 0.908)で、p-i-n構造により量子井戸に垂直に電場を印加できる仕組みとなっている。いくつかの サンプルに対し、測定で得た同調時のモード分裂量をその時の量子井戸電場強度の関数として図 6 に示した。モード分裂量がサンプルに依存せず、電場強度に対して一定の依存性を示すことがわ かる。ここで重要なことは、入射角度自体のモード分裂量に対する影響は無視し得ることである。 これは、例えばサンプルBとサンプルCCを比較すれば明らかである。



図 6: 励起子-共振器共鳴時のモード分裂の量子井戸電場強度依存性

図中の破線は井戸幅 12 nm とした場合の励起子の振動子強度の相対的な変化を、 $f_{
m osc} \sim (M/a_{
m h}^*)^2$ により理論的に見積もり、その平方根をプロットしたものである。ここで *M* =< φ<sub>1e</sub> | φ<sub>1hh</sub> > は 電子と重い正孔の波動関数の重なり積分であり、電場印加に伴う励起子ボーア半径 apg の変化が fosc に及ぼす影響も考慮してある。この図を見ると、電場強度が 50 kV/cm よりも小さい範囲では モード分裂量の変化は fosc の変化と良く対応しており、この範囲ではモード分裂量の変化は主と して QCSE による振動子強度の変化に起因するものであると結論できる。これに対し、電場強度 が50 kV/cm 程度よりも大きくなるとモード分裂量は急速に減少して理論曲線との差が開き、100 kV/cm付近でモード分裂が消滅している。強電場下で観測されるモード分裂量の変化が振動子強 度の変化と対応しなくなる原因は、電場印加に伴う励起子線幅の増大の影響である。実際、空気 側 DBR 層を除去した試料の反射スペクトルから、電場強度を増すとともに励起子線幅が増大し、 100 kV/cm 付近では、無電場時のモード分裂量以上になることを確認している。また、図中の実 線は伝達行列法を用いて励起子線幅増大の影響を考慮に入れて計算した反射スペクトルにおける モード分裂量である。弱電場領域はもちろん、強電場領域においても実験結果をよく説明してい る。以上まとめると、反射スペクトルにおけるモード分裂量の電場に対する変化は、励起子の振 動子強度、励起子線幅の電場に対する変化が支配的で、弱電場においては主に励起子の振動子強 度に依存し、強電場においては励起子線幅の影響が強くなる。

以上のように、励起光の入射角度および量子井戸の内部電場強度を選ぶことにより、同調時の 励起子の振動子強度を変化させ、これを用いて共振器ポラリトンのモード分裂量を連続的に制御 し得ることが実験的に示されている。本研究においてもこの方法を用いてポラリトンのモード分 裂を制御し、共振器ポラリトンからの THz 帯電磁波の放射に関する系統的な実験を行った。

#### 2.3 共振器ポラリトンからの THz 帯電磁波放射

ここでは、共振器ポラリトンからの THz 帯電磁波放射の原理について述べる [14, 69]。電磁波 放射原理の概念図を図 7 に示す。半導体微小共振器において共振器ポラリトンが形成されている 場合、前述の様に (8) 式で与えられる 2 つのモードが固有振動となる。この 2 つのポラリトンモー ド ( $\omega_+$  および $\omega_-$ )をフェムト秒レーザパルスで同時に励起すると、 $\omega_+$  および $\omega_-$  で振動する励起 子分極  $P_+$  および  $P_-$  が励起される。励起子数 (密度) は、励起が強くない範囲では光学的な分極 の 2 乗に比例すると考えられるから、

$$N_{ex}(t) \sim |P_{opt}|^2 = |P_+(\omega_+) + P_-(\omega_-)|^2$$
(17)

となる。従って励起子数は2つのポラリトンモードの差周波数  $\Delta \omega = \omega_+ - \omega_-$  で振動することに なる。この振動が規準モード振動 (Normal Mode Oscillation:NMO)、あるいはポラリトンモード 振動と呼ばれるもので、2つのポラリトンモード間のビートの結果であると理解できる。一方光子 数 (光強度) は

$$N_{ph}(t) \sim |E_{opt}|^2 = |E_+(\omega_+) + E_-(\omega_-)|^2$$
(18)

であるから光子数も  $\Delta \omega$  で振動するが、 $P_+(\omega_+) \ge E_+(\omega_+)$  を同符号にとる  $\ge P_-(\omega_-) \ge E_-(\omega_-)$ は逆符号となるための両者の振動は相補的な関係にある。従って、NMO はポラリトン状態の直感 的描像である電子系と光子系の間のエネルギー交換に対応する現象と考えることができる。本研 究で用いる様な一般的な GaAs 系微小共振器の場合、この角周波数差  $\Delta \omega$  は約4 meV となるため、 モード振動の周波数は約1 THz となる。従って、上述の様にこれらを単一の光パルスでコヒーレ ントに励起するためには、パルス幅として 100fs 程度のものが必要となる。

一方、量子井戸に直流電場が印加されている場合には、量子井戸面と垂直な方向(z方向とする) における励起子の反転対称性が破れており、1e-1hh 励起子は

$$\mu_{ex} \sim \langle \varphi_{1hh} | ez | \varphi_{1hh} \rangle - \langle \varphi_{1e} | ez | \varphi_{1e} \rangle = e(z_{1hh} - z_{1e}) \tag{19}$$

なる静的な z 方向の双極子モーメントを持つ。ここで  $z_{1hh}$  および  $z_{1e}$  は正孔 (1hh) および電子 (1e) の z 方向位置の期待値である。したがって、励起子数の振動は周波数  $\Delta \omega$  で振動する静的な分極  $P(t) \sim N_{ex}(t) \cdot \mu_{ex}$  を作り出す。電磁気学の教えるところでは、この様な時間変化する分極 P(t)からは電磁波が放射されるはずである。前述のように  $\Delta \omega \sim$ 数 meV であり、放射される電磁波の 周波数は THz 領域となる。また 2.2 で述べたように QCSE を用いてモード分裂量を変化させるこ とで、放射される電磁波の周波数を制御することが可能である。なお、位相の関係からこの電磁 波は入射レーザ光に対する反射光とほぼ同じ方向に放射されるが [41]、電磁波放射の起源は共振 器面に垂直な方向に分極した双極子であるから、共振器面と垂直な方向には電磁波は放射されな



図 7: THz 帯電磁波放射原理

い。つまり、THz 帯電磁波放射にはレーザ光の斜め入射が必要であり、QCSE によるモード分裂 量の制御で用いた斜め入射の条件は、電磁波発生においても本質的に必要な条件となっている。



図 8: THz 帯電磁波検出系

#### 3 THz 帯電磁波測定系

#### 3.1 THz 帯電磁波検出系

本研究で用いた電磁波測定系を図8に示す。光源に用いたアルゴンレーザ励起のモードロックチ タンサファイアレーザ (Coherent 社製 MIRA 900) はパルス幅約170 fs、繰り返し周波数76 MHz であり、発振波長は800 nm 付近で可変である。図8に示すように、光源から出射されたレーザパ ルスはビームスプリッタによって2つに分けられ、一方は励起(ポンプ)パルスとしてスポット径 800 µ m 程度に集光して半導体微小共振器素子に、もう一方はプローブパルスとして時間遅延可 能なパルスステージを介し電磁波検出用のアンテナに照射される。素子はクライオスタットで約 15K まで冷却してある。またサンプルから放射された電磁波は1対の軸はずし放物面鏡および高 純度の超半球 Si レンズによりアンテナに集光される。なおアンテナは電流アンプ (NF 回路ブロッ ク製 LI-76、ゲイン 10<sup>6</sup> V/A で使用)を通してロックインアンプ (NF 回路ブロック製 LI-575) に接 続されており、ポンプパルス側に設置した光チョッパーからの参照信号をもとに電磁波信号をロッ クイン検出するようになっている。検出用アンテナについては後述する。

励起パルスは 1/2 波長板により量子井戸に平行な電場成分(S 波、TE 偏波)のみを持たせてい る。これは量子井戸の偏光方向に対する吸収の違いを考慮したもので、無偏光(P 波、TM 偏波) に対しては 1e-1hh 励起子が応答しないためである。本研究は、1e-1hh 励起子と共振器モードが結 合したポラリトンモードを主な対象としており、この偏光は本質的に必要となる。またサンプル には電場が量子井戸に対して垂直に印加されているため、励起子による静的な分極は面内方向に



図 9: 微小ダイポールアンテナ

図 10: アンテナサイズ

対して垂直に形成される。したがって、電磁波はサンプルに対して垂直方向には放射せず、励起 パルスの垂直入射では電磁波を検出することは難しい。そこで本研究では入射角度40°~50°の範 囲で実験を行った。なお、入射角度を変える際に励起スポットが移動すると、電磁波の放射パス がずれ、例えば電磁波振幅の比較などにおける実験の精度が下がる。このため、クライオスタッ トに回転機構を設け、励起スポットが常に回転軸上にあるように設置した。この結果、後述の様 に回転に伴う電磁波検出感度の変化は10%程度となっている。また、サンプルから放射された電 磁波と、ポンプ光のサンプル表面での反射光がほぼ同じパスを通ってアンテナに向かう。この反 射光はSiレンズで遮られるため、直接アンテナに到達することはないが、散乱光として雑音の原 因となるため、電磁波のパス中に黒紙を置いて反射光のみをカットしてある。なお、次節で詳し く述べるが、THz帯電磁波の伝搬は空気中の水分の影響を強く受けるため、電磁波が伝搬するパ ス、即ち電磁波放射点から電磁波受信点のすべては窒素ボックスで覆われており、測定中は窒素 ガスを常に流して窒素雰囲気中で行っている。

THz 電磁波検出には図9に示す様な中央に約5 µm のギャップを持つ微小ダイポールアンテナ を用いた。この微小アンテナは低温での分子線エピタキシ成長法によって作製した GaAs 基板上 に、通常のフォトリソグラフィーによって作製したものである。この様なアンテナを作製する基 板に求められる特性は高いキャリア移動度と短いキャリア寿命である。キャリア移動度が高い方 がアンテナにより大きな電流が流れ、検出感度が向上する.一方、キャリア寿命が短いほうが電 磁波の変化をより短い時間スケールで見ることができ、検出の帯域が広くなる。また暗電流を低 減する上でもキャリア寿命が短いことが望ましい。低温成長 GaAs は砒素が結晶中に凝縮してそ れがキャリアをトラップすることによりキャリアの寿命を短くし (~数 100fs)、またある程度結晶 性も保たれているので、キャリア移動度も比較的大きい (~150 cm<sup>2</sup>/Vs)。しかしながら、分子線 エピタキシ成長における低温での温度制御、特に絶対値測定は極めて困難である。そこで本研究 では幾つかの温度 (260°, 265°, 270°, 275°, 280°)で成長した基板を用意した。なお、これらの



図 11: InP 表面から放射される電磁波の検 出結果 (大気中)

図 12: 図 11 のフーリエ変換スペクトル

温度は絶対的なものではなく、単に成長時の基板番号程度の意味しかもたない。ポンプ&プロー ブ法で測定したキャリア寿命はそれぞれ 326,527,463,607,482 fs であった。また、実際にこ れらの基板上にアンテナを作製しその性能を評価したところ、ポンプ&プローブ法の結果と対応 して、260 ℃の基板上に作製したアンテナにおいて最も応答速度の速い信号が得られたため、実験 においては基本的にこのアンテナを使用した。図 10 に測定に用いたアンテナの寸法を示す。基板 のキャリア寿命を 300 fs と仮定し、本研究で用いたレーザ光のパルス幅 (約 170 fs)の半分の時間 でキャリア密度が立ち上がるとすると、全体としての時定数は約 500 fs となり、検出系の帯域は 約 2 THz と予想される。

#### 3.2 バルク半導体表面からの THz 帯電磁波放射

1.2 で述べたように、1~10 THz の周波数領域に水 (H<sub>2</sub>O) などの分子振動吸収があり、サンプ ルから放射された電磁波は大気中の水分子によって吸収、分散の影響を受ける。図11 に電磁波発 生に半絶縁性 InP 基板を用い大気中で測定を行った場合の測定結果を示す。また図12 にこの信号 のフーリエ変換スペクトルを示す。1.2 で述べたように、半導体表面からの電磁波放射は、パルス 光で励起された電子と正孔が半導体表面の空乏層電界によってドリフトすることによるサージ電 流が主な原因であるから、発生する電磁波の帯域はほぼ励起レーザのパルス幅で決まる値となる。 しかしながら観測される電磁波波形は測定系の帯域の影響を受けている。本研究で用いた測定系 の場合、前述のように検出アンテナの帯域は 2THz 程度と考えられ、観測されている電磁波の帯 域は、ほぼ予想通りとなっている。

図11を見ればわかるように、最初の1周期の強い信号の後に周期的な信号が現れている。また、 これに対応して図11では約1.2, 1.4, 1.7 THz 付近にディップが見られる。これらは大気中の水分



図 13: InP 表面から放射される電磁波の検 出結果 (窒素雰囲気中)

図 14: 図 13 のフーリエ変換スペクトル

子による THz 帯電磁波の吸収および分散の結果である。このままでは、共振器ポラリトンから放 射されるであろう振動信号を議論することができない。そこで電磁波パスをボックスで囲みその 中を窒素ガスで置換した。図13と14に窒素ガス置換後の信号とそのフーリエ変換スペクトルを 示す。時間軸上では最初の1周期の後の振動信号が消え、周波数軸上ではディップが消えているこ とがわかる。なお、窒素ガス置換後も0.3 THz 付近にディップが残っている。また、時間軸上は最 初の1周期の後に少し振動構造が残っている。これらの原因は明らかではないが、電磁波の集光 に伴う収差、およびアンテナの特性等に起因すると推測される。



図 15: 微小共振器の構造模式図

#### 4 微小共振器素子

#### 4.1 素子構造

実験に用いた半導体微小共振器は、図 15 に模式的に示した構造を持つ 1/2 波長の AlGaAs 系 微小共振器である。基板側 58 層、空気側 33 層の Al<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>As/AlAs 分布ブラッグ反射器 (DBR) によって形成される共振器中の定在波の腹の位置近傍に厚さ 12 nm の GaAs 量子井戸が2 層配置 されている。量子井戸に対するバリア層も兼ねる共振器スペーサ層は AlAs からなる。量子井戸層 の厚さが同一であること、および量子井戸間のバリア (AlAs) が比較的厚い (15 nm) ことから、静 電場印加下での量子井戸間の電子や正孔の空間的移動は無視できる。

微小共振器中で形成される共振器ポラリトンから電磁波が放射されるためには、微小共振器中 の量子井戸層に直流電場を印加することが必要で、これによりモード分裂量も制御可能となるこ とは2.2 で述べた。しかし直流電場を印加するため不純物ドーピングを施すと、共振器内の量子 井戸から放射される電磁波が、空気側 DBR のドープ層の中で自由キャリア吸収を受ける。この吸 収係数が GaAs では波長の3 乗に比例することから、サブミリの波長をもつ THz 帯電磁波に対し ては強い吸収となる。自由キャリア吸収を最小限にするためにドープ層をできるだけ薄くする必 要がある。このため、空気側 DBR 層のドーピングは1 層の AlGaAs 中の 12 nm の領域のみとし、 図 15 に示した様なメサ構造を選択エッチングにより作製した。

図 16 に垂直入射に対する 13K での反射スペクトルを示す。光源としてハロゲンランプを用いた。垂直入射および低温にすることにより、励起子遷移波長 (~800 nm) を共振波長よりも十分に



図 16: 反射スペクトル (空の共振器)

短波長にし、空の共振器の線幅を観測することができる。この測定の場合波長差は 17 nm (~ 33 meV) 程度ある。図中の破線は伝達行列法による反射スペクトルの計算結果である。DBR の平均 反射率および空の共振器のQ値は計算上それぞれ 0.9976 および約 3700 であるが、反射スペクト ルにおける共振器の半値全幅 (約 0.3 nm) から見積もるとQ値は約 2700 である。また共振器モードの減衰係数は  $\gamma_c$  ~0.3 meV となる。

#### 4.2 ポラリトンモード分裂

図17に13K、43°入射における反射スペクトルを示す。この条件では共振波長と励起子遷移波 長が近い値になるため、共振器ポラリトンモードが形成される。図には幾つかの印加電圧に対する スペクトルを示した。逆バイアスを強くするのに伴い、励起子波長が長波長側にシフトし、共振 器モードと明瞭な反交差を示していることがわかる。本研究における一連の実験においては、こ の様にモード間の波長差が最も小さい状態で、2つのディップの深さが等しくなったことから、こ の状態を励起子-共振器の共鳴状態と定義する。なお、この定義に関しては疑問もあるが、本研 究における実験結果の解釈においては、定義の仕方は本質的な影響を与えない。

図18 に本研究で用いた素子における、励起子-共振器共鳴時の量子井戸電場強度とモード分裂 量の関係の典型的な2つの例を示す。測定にはパルスレーザ光を用い、THz 帯電磁波測定におけ る代表的な励起強度である10 mW で行った。図中の実線は井戸幅12 nm の量子井戸の電場に対す る励起子の振動子強度の変化の平方根を計算した結果である。電場強度が60 kV/cm 程度までの 範囲では図に示すように、素子によらずモード分裂の変化は振動子強度の変化によく対応するの に対し、強電場 (~80 kV/cm) になるとモード分裂量は振動子強度の減少から予想される以上に、 急速に減少し 90 kV/cm 程度で反射スペクトル上での分裂が消滅する。次節で示すように、強電 場におけるモード分裂量の急速な減少は、以前の研究でも観測された強電場下での励起子線幅の



図 18: モード分裂量の量子井戸電場強度依存性 (2つの典型的な例)

増大に起因するが、以前の研究では図6に示した様に、電場強度が40kV/cm程度から徐々に振 動子強度の変化とモード分裂量の変化にずれが生じていた。本研究に用いた素子と以前の研究結 果との違いは励起子線幅の影響がない場合の分裂量の違いに起因する。即ちここで示す実験に用 いた素子は前述の様に量子井戸数を2層としているため、元の分裂量が大きく、比較的励起子線 幅増大の影響を受けにくい。また、多くの素子においては左図の様にモード分裂量の変化と振動 子強度の変化における対応関係は80kV/cmまで維持されているが、幾つかの素子においては右 図の様にやや低めの電場強度(~70kV/cm)以上で、モード分裂量が急速に低下した。この点につ いても次節で議論する。



図 19: DBR 層数<58-7>の素子における反射スペクトル

#### 4.3 励起子線幅の量子井戸電場強度依存性

前述の様に強電場下においては励起子線幅が増大する。ボラリトンモード分裂に対する励起子 線幅増大影響を知るためには、電場強度に対する励起子線幅の依存性を知る必要がある。そこで 以前の研究と同様に電磁波発生に用いたものと同一のウェハから切り出した素子に対し、選択エッ チングによって空気側 DBR 層数を7層にまでエッチングした素子を作製し、反射スペクトルを測 定した。本来ならば共振器の影響を極力少なくするために空気側 DBR 層数を1層にまでエッチン グするのが望ましいが、本研究で用いている素子は前節でも述べたように空気側 DBR のドーピ ング層が極めて薄いため、空気側 DBR を7層以下にエッチングすると量子井戸電場が制御できな くなる可能性がある。空気側 DBR 層数が7層の場合でも、反射スペクトルを用いた励起子線幅の 評価において共振器の影響が無視できることを伝達行列を用いた数値計算によって確認した。測 定には、光源として強度を十分弱くした (~1 mW) 励起レーザ光を用い、0°入射での反射スペク トルを求めた。この結果を図 19 に示す。

電場強度を増加するにつれて、1e-1hh 励起子の波長が QCSE によって長波長側にシフトすると 同時に、徐々に線幅は増大し、ディップが浅くなっていく様子が確認できる。図 20 に反射スペク トル上の励起子吸収の半値全幅を電場強度の関数としてプロットした。電場強度を強くするに伴っ





図 20: 励起子線幅の電場強度依存性

図 21: 励起子吸収ディップ深さの電場強度依存性

て、励起子線幅が徐々に広くなり、特に電場強度 90 kV/cm 付近で励起子線幅が急激に増加して いることがわかる。また図 21 に電場強度に対する励起子吸収ディップの深さをプロットした。励 起子線幅の変化と対応して、電場強度 80 kV/cm 付近から急激な減少が見られる。現在のところ、 電場強度 90 kV/cm 以上での急速な励起子線幅の増大の原因は定かでないが、この様な急激な変 化が起こる場合、変化が起こる電界強度は素子間でばらつくことが推測される。前節で示したモー ド分裂と量子井戸電場強度の関係において、モード分裂量が急速に減少する電場強度が素子に依 存した理由は、励起子線幅の急激な増大が起こる電場強度が素子に依存したためと考えられる。

以上の測定結果をポラリトンモード分裂の理論予測に組み込むため、まず図19における  $E_{QW} = 0$  での反射スペクトルを用いて、伝達行列法によって計算した反射スペクトルとの比較を行い、励起 子に関連するパラメータを決定した。その際のフィテッィングが図22で、パラメータとしては励 起子線幅 (HWHM)  $\gamma_{ex}=0.90$  meV, 遷移強度=28000 (任意単位) である。励起子ディップの短波長 側で計算と実験のずれが見られるが、これは計算で考慮していない軽い正孔励起子の影響である。

図18 に示したモード分裂量の量子井戸電場依存性の実験結果 (左側の例) に励起子線幅を考慮し て計算した結果を合わせてプロットしたものが図23 である。強電場領域での理論とのずれはなく なり、理論予測が実験結果を良く説明していることがわかる。このことからモード分裂量の電場 強度に対する変化は、弱電場領域においては主に励起子振動子強度の変化に対応し、強電場領域 においては励起子の線幅の影響が強くなることが分かる。



図 22: DBR 層数<58-7>の素子におけるフィッティング (*E*<sub>QW</sub> = 0)



図 23: 励起子線幅の影響を考慮した理論との比較



図 24: 代表的な電磁波信号

#### 5 共振器ポラリトンからの THz 帯電磁波放射

#### 5.1 代表的な電磁波信号

図24 は微小共振器を用いた一連の実験において得られた電磁波波形の代表的な例である。横軸 は時間(検出用アンテナに入射するプローブ光の遅延時間)、縦軸は検出された電流値を表してい る。この電流値は電磁波の電界に比例すると見なすことができる。なお、この測定においては励 起レーザ入射角45°、量子井戸電場55 kV/cm、励起光パワー5 mW、励起スポットサイズ(直径) 約800 µm である。この励起光密度における励起子密度は、励起光に対する反射が4 mW である こと、およびチョッパーを使用していることを考慮し、また共振器内では100% 吸収と考えると、 量子井戸1層あたり1×10<sup>10</sup> cm<sup>-2</sup> と見積もられる。図24を見るとわかるように、6 周期以上振 動する電磁波が得られている。この様に持続する振動は3.2 で示したバルク半導体(InP)から発生 した電磁波では見られなかったもので、量子井戸励起子と共振器光子が強結合して作られた新た な固有状態である共振器ポラリトンモードを共鳴励起したことによる励起子数の振動を直接的に 示している。以下に示す実験結果はすべてこの解釈を裏づけるものである。

また図 25 は上の測定における反射レーザパルスのスペクトルである。スペクトルの中心付近に ポラリトンモードに対応する 2 つのディップが見られ、ディップの深さはほぼ等しく、またほぼ同 じ励起効率で励起されていることがわかる。図 26 は量子井戸電場を変化させた時の反射励起光ス ペクトル上の 2 つのポラリトンモードのディップの位置をプロットしたものである。0 kV/cm の とき 805 nm 付近にあるモードが共振器、801 nm 付近にあるモードが励起子である。量子井戸電



図 27: 図 24 のフーリエ変換スペクトル

場を増すにつれて励起子のモードが QCSE によって長波長側にシフトし、共振器モードと明瞭な 反交差を示す。2つのモード間の波長差は上記の条件 (55 kV/cm) において最も小さい (この時の 反射スペクトルが図 25 である)。なお前述の様に、本研究における一連の実験においては、この 様にモード間の波長差が最も小さい状態で、2つのディップの深さが等しくなったことから、この 状態を励起子-共振器の共鳴状態とした。共鳴状態での2つのディップの間のエネルギー間隔は、 共振器ポラリトンのモード分裂量  $\Omega$  に対応するが、後述のように反射スペクトル上の分裂量  $\Omega_R$ とは一致しない。この実験の場合では  $\Omega_R$ =4.5 meV となっている。モード分裂量  $\Omega$  は図 24 に示 した電磁波信号の振動周期に対応するものである。モード分裂量と電磁波の振動周期の量的な関 係については 5.3 で詳しく議論する。また、図 27 は図 24 のフーリエ変換スペクトルある。図 14 で示した InP からのものとは明らかに異なっているのがわかる。中心が約 1.2 THz となっており、 またスペクトル幅も InP の場合と比べて細く、単色性が良いことがわかる。



図 28: 反射光のスペクトル



+5 nm

+3 nm

+0 nm

-3 nm

-5 nm

100.5

#### 5.2 励起波長依存性

図24 に示した電磁波が共振器ポラリトンから放射されていることを証明するために、ポラリト ンモードの波長を固定した状態で励起レーザ光の中心波長を変えた場合の電磁波振幅の変化を調 べた。この実験における反射光のスペクトルを図28 に示す。なお、ポラリトンモードの波長を固 定した状態で励起光の波長を変えると、量子井戸中に生成される励起子密度が変わり、量子井戸 内部電場が若干変化する。この影響を排除するため、本実験においては、印加電圧を調整するこ とで励起子と共振器の共鳴が常に維持されるように注意している。測定における励起光の入射角 度は47.5°、励起光パワーは5 mW、スポットサイズ 800 µm である。

得られた電磁波信号を図 29 に示す。励起光の波長をポラリトンモードから長波長側、短波長側 のどちらに離調しても電磁波が弱くなっていることがわかる。それぞれの電磁波信号の最大の振 幅を離調 (2 つのポラリトンモードの中心を基準とした励起光の中心波長)の関数としてプロット したものが図 30 である。ミスマッチング 0 を中心として単調に電磁波振幅が減少していく様子が わかる。ここで重要なことは、ミスマッチングが-5~-4 nm の領域において、励起光のスペクトル 内に軽い正孔 (1e-11h) 励起子の遷移波長が存在することである。1.2 で述べたように、1e-1hh 励 起子と 1e-11h 励起子の共鳴励起による 2 準位間のビートによる THz 帯電磁波放射も報告されて いる [42]。もしこの領域で電磁波信号形状が変わる、電磁波振幅が強くなる等の変化があれば、検 出している電磁波は必ずしも共振器ポラリトンから放射されているとは言い切れない。しかしな がら、明らかに電磁波振幅は単調に減少しており、ここで検出している電磁波は確かに、1e-1hh 励起子と共振器の強結合によって形成された共振器ポラリトンから放射されていると断定するこ とができる。



図 31: 反射光のスペクトル

#### 5.3 モード分裂量と電磁波振動周期の関係

前節で示した結果は、観測されている電磁波が共振器ポラリトンから放射されたのものである ことを示している。しかし、モード振動に起因した電磁波放射であると断定するには不十分で、も う一つ決定的な証拠が必要である。それは、2つの共振器ポラリトンモード間のエネルギー差に応 じて、電磁波の振動周期が変化することを示すことである。2.2 で述べたように、2 つのポラリト ンモードのエネルギー差は減衰項を無視した場合、励起子と共振器モードの離調および励起子振 動子強度できまる共鳴時の分裂量で決まる。従って、モード間のエネルギー差を変化させる方法 としても、両者が考えられる。以下それぞれの方法によって行った実験の結果を示した後、これ らをまとめるとともに、理論との比較を行う。

励起子-共振器共鳴(励起子振動子強度変化)



図 33: フーリエ変換スペクトル

図 32: 異なるモード分裂量における電磁波信号 (励起子と共振器は共鳴)

QCSE による励起子遷移波長変化と共振波長の入射角度依存性を用いて励起子と共振器の同 調を幾つかの量子井戸電場  $E_{QW}$  において実現し、励起子振動子強度の電場依存性を用いてモー ド分裂量を変化させて電磁波測定を行った。図 31 にその際の反射光のスペクトルを示す。上か ら ( $\theta$  = 46°,  $E_{QW}$ =53 kV/cm,  $\Omega_R$ =4.70 meV)、( $\theta$  = 42°,  $E_{QW}$ =70 kV/cm,  $\Omega_R$ =4.21 meV)、 ( $\theta$  = 40°,  $E_{QW}$ =80 kV/cm,  $\Omega_R$ =3.92 meV) である。ここで $\Omega_R$  はこれらのスペクトル上で読み とったモード分裂量である。入射角度が小さくなるにつれて、ポラリトンモードの位置は長波長 側にシフトし、また量子井戸電場が大きくなるにつれて励起子の振動子強度が低下してモード分 裂量が小さくなっていることがわかる。また、図に示されているように、励起光の中心波長は常に 2 つのポラリトンモード間の中心に合わせている。励起光パワーは 10 mW、スポットサイズ 800  $\mu$ m である。

それぞれの条件での電磁波信号を図 32 に示す。明らかにモード分裂量が小さくなるにしたがっ て電磁波の振動周期が長くなっていることが確認できる。また、量子井戸電場の増加に伴って電 磁波が強くなると同時に、電磁波の減衰が速くなっていることがわかる。電磁波強度および減衰 については 5.4 で詳しく述べる。図 33 にそれぞれの電磁波信号のフーリエ変換スペクトルを示す。 電磁波信号で見られた振動周期の変化はフーリエスペクトルのシフトしても明瞭に現れている。

#### 励起子-共振器非共鳴(離調変化)

励起光の入射角度を一定にした状態で量子井戸への印加電圧を変えて、励起子と共振器の離調 を変化させた場合の結果を示す。この方法においては、電圧印加の変化に伴う励起子振動子強度の



図 34: 離調におけるポラリトンモード

図 35: 異なる離調において観測された電磁波

変化もモード間のエネルギー差に影響するが、離調による直接的な効果と比べて小さい。実験においては 1e-1hh 励起子よりも高エネルギー側にある準位 (励起子、連続準位)の影響を避けるため、 同調時よりも量子井戸電場が弱くなる (1e-1hh 励起子遷移波長が共振波長よりも短波長)様に、電 圧を変化させた。励起光のパワーは5 mW、スポットサイズ 800 µm、入射角度 45° である。図 34 はこの実験における、反射レーザ光のスペクトルにみられるディップ位置の量子井戸内部電界依存 性である。図中に示す2 つの離調 (4.4 meV の場合はほぼ共鳴) における電磁波を図 35 に示す。信 号は最初の正負のピーク間の振幅で規格化してある。この実験においてはやや電磁波の減衰が大 きいが、それでもモード間のエネルギー差が大きい場合に電磁波の振動周期が短くなる様子が明 瞭に観測されている。

#### モード間エネルギー差と電磁波周波数の関係

ここでは共振器ボラリトンのモード分裂量と検出された電磁波の振動周期の関係について詳しく 述べる。上記の2つの方法において種々の実験条件および数個の素子で電磁波の観測を行った。こ れらの結果をまとめてプロットしたものが図 36 である。横軸に反射光のスペクトル上で読みとっ た2つのボラリトンモードのエネルギー差  $\Delta E_R$ 、縦軸に検出した電磁波の周波数に対応する量と して振動周期の逆数をとっている。なお、振動周期として電磁波の第2および第3の極小点の時間 差を用いた。これは後で示すように、スペクトル上のモード分裂が観測されない場合でも、電磁 波信号には第2の極大点までは存在するためである。図 36 には励起子 – 共振器の共鳴状態 (図中 の〇) および非共鳴状態 (□) の両方の場合を含まれているが、 $\Delta E_R \leq 4.50$  meV の領域はすべて 共鳴状態、 $\Delta E_R \geq 4.80$  meV の領域は非共鳴状態における結果であり、4.5 meV <  $\Delta E_R < 4.80$ meV の領域には両方の場合がある。共鳴状態における  $\Delta E_R = \Omega_R$  は量子井戸電場強度ゼロの状



図 36: ポラリトンモード間のエネルギー差と電磁波振動周期の関係

態で最大値 5.8 meV であるが、5.4 で述べるように明瞭な電磁波を観測するためには 40 kV/cm 程 度以上の量子井戸の直流電場強度が必要である。このため共鳴状態で周期を正しく読みとれる最 大の  $\Delta E_R$  は 4.8 meV 程度であり、これよりも大きな  $\Delta E_R$  は非共鳴とせざるを得ない。図中に含 まれる非共鳴の場合には、内部電場を明瞭な振動が観測される 45 kV/cm 程度にし、励起子遷移 波長が共振波長よりも短くなる様に、即ち入射角度を小さくして得られた結果のみが示されてい る。これは、1e1hh 励起子以外の準位の影響を避けるためである。但し、素子間の共振波長の違 いもあり、必ずしも ΔER が大きいほど入射角度が小さいという関係にはなっていない。一方、量 子井戸電場強度は  $\Delta E_R \leq 4.80 \text{ meV}$  の範囲では概ね  $\Delta E_R$  が低いほど電場強度が高く、最大で 80 kV/cm 程度となっている。なお、5.4 で示すように電場強度が高い場合、モード分裂が急速に小 さくなる領域が現れる。この領域では電磁波の減衰が強く周期が正しく読みとれないため、これ らの場合の結果も図には含まれていない。図より明らかなように、電磁波の振動周波数とポラリ トンモード間のエネルギー差の間には明瞭な対応関係が存在する。図中の実線は $f = \Delta E_B/h$ で 求まる理論予測であり、測定点とよく対応していることがわかる。これらの結果によって検出さ れた電磁波の周波数が基本的にはポラリトンモードのエネルギー差で決まっており、ポラリトン モード振動に伴う励起子数の周期的振動から放射されていると結論することができる。しかしな がら、図をよく見ると ΔER が低い領域では、測定点が常に理論曲線よりも高周波数側にずれてい ることがわかる。この現象は次に述べるように Savona らの理論 [51] を適用することで定性的に説

#### Savona らの理論との対比

上で得られた実験結果を Savona らが報告した理論予測と対比する。彼らは QW 励起子と光の 相互作用を非局所的感受率 (nonlocal sucseptibility) によって表現した半古典論に基づき、伝達行 列法と組み合わせ、非常に興味深い理論結果を得ている。それは基礎的な光学応答スペクトルで ある反射、透過、吸収、発光で観測されるモード分裂量は、一般には等しくなく、またいずれも 真のモード分裂とは異なり得るという予測である。これは光学応答スペクトルでは、モード分裂 量を間接的に観測しているため、励起子や共振器の線幅の影響を受けて真のモード分裂量とは異 なる値が観測されるのである。彼らが得たポラリトン固有モード分裂量、透過スペクトルにおけ るピーク間隔、反射および吸収スペクトルにおけるディップ間隔、およびフォトルミネセンススペ クトルにおけるピーク間隔に対する解析解は以下の通りである。

$$\Omega = 2\sqrt{|V|^2 - \frac{1}{4}(\gamma_{ex} - \gamma_c)^2}$$
(20)

$$\Omega_T = 2\sqrt{\sqrt{V^4 + 2V^2\gamma_{ex}(\gamma_{ex} + \gamma_c)} - \gamma_{ex}^2}$$
(21)

$$\Omega_R = 2\sqrt{\sqrt{V^4(1+\frac{2\gamma_{ex}}{\gamma_c})^2 + 2V^2\gamma_{ex}^2(1+\frac{\gamma_{ex}}{\gamma_c})} - 2V^2\frac{\gamma_{ex}}{\gamma_c} - \gamma_{ex}^2}$$
(22)

$$\Omega_A = 2\sqrt{V^2 - \frac{1}{2}(\gamma_{ex}^2 + \gamma_c^2)}$$
(23)

$$\Omega_{PL} = \sqrt{2\Omega}\sqrt{\Omega^2 + 4\Gamma^2} - \Omega^2 - 4\Gamma^2 \tag{24}$$

$$\Gamma = \frac{\gamma_{ex} + \gamma_c}{2} \tag{25}$$

なお、上記の解析式は励起子と共振器が共鳴状態にある場合にのみ適用できる。また、Vは振動子強度の平方根に比例するパラメータであり、 $\gamma_c$ は Empty Cavity の共振器線形状曲線の半値 半幅に相当する。

$$V = \sqrt{\frac{1 + \sqrt{R}}{\sqrt{R}}} \frac{c\Gamma_0}{n_{cav}L_{eff}} , \qquad \gamma_c = \frac{1 - \sqrt{R}}{\sqrt{R}} \frac{c}{n_{cav}L_{eff}}$$
(26)



図 37: Savona らの理論に基づく本研究で用いた 素子おけるモード分裂



図 38: Savona らの理論との比較

これらの表式に本研究で使用した共振器素子パラメータ (V<sup>2</sup>=7.52 meV, γ<sub>c</sub>=0.3 meV) を代入 した結果を図 37 に示す。本研究で用いた素子においても、真のモード分裂量と反射などの光学応 答スペクトルで観測されるモード分裂量は異なることがわかる。特に反射スペクトル上の分裂量 が、常に真のモード分裂量よりも小さい値を示す。この結果、例えば反射スペクトルでモード分裂 が観測されなくなっても、真の分裂量はまだ約4 meV 程度の値をもっていることが予想される。 但し、減衰が振動よりも早くなるため、時間領域での振動は観測されないと予想される。

前述の様に図 36 において、励起子と共振器が共鳴の場合には  $\Delta E_R$  が大きいほど内部電場強度 が強い。内部電場強度が強いほど励起子の振動子強度が低く、かつ 5.4 で示すように励起子線幅 が広がる傾向がある。従って上記の Savona らの理論を適用すると、反射スペクトルで観測される モード分裂量は真の分裂量よりも小さくなり、両者の差は内部電場が高いほど大きくなると予想 される。そこで (20) 式および (22) 式において、 $V^2 \ge \gamma_{ex}$  の量子井戸電場強度依存性を考慮して、  $\Omega$  および  $\Omega_R$  を求め、 $\Omega_R$  の関数として  $\Omega/2\pi$  をプロットしたものが、図 38 の破線である。図中、 実験結果および  $f = \Delta E_R/h$  の値も再度プロットしてある。反射スペクトルにおいて観測される モード分裂量が常に真のモード分裂量より小さいことに対応して、周波数が  $f = \Delta E_R/h$  から求 まる理論曲線よりも高周波数側にずれることがわかる。この結果は我々の得た結果と定性的に一 致している。なお、Savona らが導いた解析式は励起子と共振器が共鳴している場合にのみ適用さ れるため、非共鳴の場合を比較することはできないが、図 38 の非共鳴の領域では、量子井戸電場 が比較的低く、かつ励起子と共振器の離調に起因してポラリトンモード間のエネルギー差が大き くなるため、励起子線幅の影響を受けにくいと予想される。非共鳴状態、特に  $f = \Delta E$  が大きい 領域での実験結果が  $f = \Delta E_R/h$  でほぼ説明できるのはこのためと考えられる。



図 39: 電磁波ピークの定義

#### 5.4 量子井戸電場強度依存性

本節では電磁波放射の重要なパラメータである電磁波振幅および振動の減衰と量子井戸電場強 度との関係について述べる。実験においては励起子と共振器が同調するように励起光の入射角度と 印加電圧を調節した。これは前節で励起子振動子強度の変化に伴う同調時のモード分裂と電磁波周 波数の関係を調べた方法と全く同じである。励起光パワーは10 mW、スポットサイズは800 µm である。以下の議論において電磁波の振幅は、図39 に示すように電磁波信号のプラスピークとマ イナスピークの間の振幅をそれぞれ左から1st Peak, 2nd Peak, 3rd Peak, 4th Peak, 5th Peak と 定義し、とくに断らない場合は1st Peak をもって振幅とする。また測定においては電磁波検出感 度の角度依存性を考慮するため、InP 基板を用いて電磁波振幅の角度依存性を実験的に求め、この 結果をもとに補正した。ただし、角度による検出効率の変化は本実験の範囲(40°~50°)では高々 10% 程度であった。

#### 電磁波振幅

図40に量子井戸電場強度を変えて得られた電磁波信号を示す。測定に用いた素子は図18のう ち左側に示したもので、モード分裂が急速に消滅する量子井戸電場が比較的高い素子である。量 子井戸電界が大きくなるにつれて電磁波信号が強くなることがわかる。また、この図ではあまり 明瞭では無いが、詳細に調べると振動の減衰が強電場になるにつれて速くなっていることが分か る。この点については後述する。図40における電磁波信号の1st Peak を量子井戸電場強度の関 数としてプロットしたものが図41である。電場強度が増えるにつれて1st Peak は単調に増加し ており、電磁波放射において量子井戸電場の存在は本質的に重要であることがわかる。また実線 は直流電場を印加することによって変化する量子井戸内の電子(1e)の波動関数と正孔(1hh)の波 動関数の相対的な距離(期待値)を井戸幅12 nm の量子井戸に対して計算した結果である。電場を 印加することによって波動関数はそれぞれ逆方向にシフトし、電子と正孔の相対的な距離は増加 する。実験結果と理論計算の結果には明確な対応が見られており、電磁波振幅は静電場による電



図 40: 電磁波信号の量子井戸電界強度依存性

子と正孔の静的な分極に比例することが明らかになった。

#### 電磁波の減衰

図42 に異なる条件 (入射角度、量子井戸電界) で励起子と共振器が共鳴した場合の反射光のスペクトルを示す。測定に用いた素子は図18のうち右側に示したもので、やや低めの電場強度でモード分裂が急速に消滅する素子である。量子井戸電場を強く、従って入射角度を小さくするのに伴って、ポラリトンモードの位置が長波長側にシフトする。図18 にも示した様に、この素子においても電場強度 70 kV/cm 程度までの範囲では、モード分裂量の変化は励起子振動子強度の変化で十分に説明される。しかしながら、図42 に見られるように、電場強度が強くなると、ポラリトンモードの線幅は明らかに広くなる。特に、電場強度 77 kV/cm ではポラリトンモードの線幅が急速に広くなるとともに分裂量が減少し、電場強度 85 kV/cm では完全に分裂が消滅している。図43 にそれぞれの条件において観測された電磁波信号を1st Peak で規格化した結果を示す。ポラリトンモードの線幅の増大と対応する形で、量子井戸電場強度の増大と共に、電磁波の減衰が強くなる様子が明瞭に示されている。モード分裂が消滅する電場強度 85 kV/cm の場合には、最初の1 周期半の振動のみが観測されている。前節で述べた様に、この様な状態でも真のポラリトンモード分裂は有限の値を持つ可能性はあるが、減衰が大きいため予想通り、振動波形としては観測はされない。特に興味深いのは *Eqw*=77 kV/cm の場合には反射光のスペクトルにおいてわずかに2つのディップが見られることに対応して、電磁波波形も最初の1 周期の後に弱い脈動が観測されて



図 42: 反射光のスペクトル

図 43: 電磁波信号の量子井戸電場強度依存性

いる。その周期は必ずしも長くはなっておらず、スペクトル上で観測される分裂幅と対応しない。 これは前述した、反射スペクトル上での分裂が真のモード分裂と等しくないことの1つのデモン ストレーションになっている。量子井戸電場強度の増大に伴うポラリトンモードの線幅の拡大は、 励起子自体の遷移線幅が広くなることに起因している。現時点ではその物理機構は明らかでない が、均一幅か不均一幅かを問わず、線幅の拡大は励起子位相緩和の増大を意味する。従って、観 測された電磁波の減衰の増大は強電場によって励起子線幅が増加し励起子の位相緩和が早くなっ たためと考えられる。

図 44 に 4th Peak までの電磁波振幅を量子井戸電場強度の関数としてプロットした結果を示し



図 44: 電磁波振幅の量子井戸電場強度 依存性 (4th peak まで)



図 45: 電磁波減衰時間の量子井戸電場 強度依存性



図 46: 電磁波信号の励起光強度依存性

図 47: 電磁波振幅の励起光強度依存性 (1st peak)

た。電磁波信号を見てもわかったが、3rd Peak と 4th Peak は強電界で明らかに減衰しているこ とがわかる。また、後ろのピークになるに従って低い電界強度から減衰していく様子も確認でき る。また、電磁波振幅が指数関数的に減衰すると仮定して電場強度に対する電磁波の減衰時間 Tをプロットしたものを図 45 に示す。T は複数のピーク間の振幅の減少をこのピーク間の時間で割 ることにより評価した。 $T_{23}$ は 2nd Peak から 3rd Peak への減衰時間、 $T_{24}$ は 2nd Peak から 4th Peak への減衰時間をそれぞれ表わしている。多少のバラツキはあるが、電場強度を増やすにした がって減衰時間が短くなっている様子がわかる。

#### 5.5 励起光強度依存性

ここでは、励起光強度を変えた場合の電磁波振幅と減衰について述べる。なお、励起光強度を 変えると励起子による電界のスクリーニングも変化し、励起子と共振器の同調が崩れる。このた め実験では常に同調を維持するよう若干の内部電場の調整を行った。なお、電磁波振幅に関する 定義は前節と同様である。

#### 電磁波振幅

図 46 に種々の励起光強度において得られた電磁波信号を示す。図より明らかな様に、励起光強 度上昇に伴って明確な電磁波振幅の増加が見られる。それぞれの励起光強度に対して電磁波振幅 の 1st Peak をプロットしたのが図 47 である。実線は傾き1の直線であり、これより電磁波振幅 は励起光強度に比例していること、すなわち励起子密度に比例していることがわかる。

#### 電磁波の減衰





図 49: 規格化した電磁波信号の励起光強度 依存性



図 50: 電磁波振幅の励起光強度依存性 (5th peak まで)

図 51: 電磁波減衰時間の励起光強度依存性

図 46 で見られるように、励起光強度の増加に伴って、振動の減衰が早くなる傾向がある。電磁 波の減衰はポラリトンモードの線幅の変化に対応するはずである。この点を確認するため、それ ぞれの励起光強度の時の反射スペクトルを図 48 に示す。また、得られた電磁波信号をそれぞれの 1st Peak で規格化したものを図 49 に示す。

励起光強度が低いほど、電磁波の振動が明確に確認できるのがわかる。この点を確認するため、 それぞれの電磁波信号の振幅を5th Peak までプロットしたのを図50に示す。3rd Peak までは励 起光強度にほぼ比例していることがわかるが、4th Peak と5th Peak は強励起領域での電磁波振 幅の飽和が見られる。さらに励起光強度を増加すると、後ろの方のピークから電磁波振幅が減少 していくと考えられる。電磁波の減衰時間*T*25 を図51に示す。減衰時間の定義は5.4 と同じであ



図 52: 反射光のスペクトル

図 53: 規格化した電磁波信号のQ値依存性

る。バラツキはあるが、強励起領域 (レーザパワーが 10 mW 以上、励起子密度が  $2 \times 10^{10}$  cm<sup>-2</sup> 以上) で減衰時間が速くなっていることが確認できる。

#### 5.6 共振器Q值依存性

ここまで示した結果は全てDBR 層数が基板側 58 層、空気側 33 層、Q 値が約 2700 の素子を用 いて得られたものである。共振器ポラリトンモードの形成には、共振器の光子寿命が長い、従っ てQ 値が高いことが必要である。光子寿命、従って電磁場モードの減衰はモード振動の減衰をも たらすと考えられる。ここでは素子の空気側 DBR をエッチングにすることによってその層数を減 らし、Q 値を下げた素子を用いた測定結果について述べる。素子としては空気側 DBR 層数が 23 層のものと 13 層のものを作製した。これらの素子におけるの反射光のスペクトルを図 52 に示す。

空気側 DBR 層数が 33 層の場合および 23 層の場合は明瞭なモード分裂を観測することができる が、13 層の素子では明瞭なモード分裂は観測されない。励起光のパワーは 10 mW、スポットサイ ズ 800 µm、入射角度 44° ~ 46° であり、図より分かるように励起子と共振器は共鳴、かつ、量子 井戸電場強度がほぼ同じ (50~55 kV/cm) となるようにバイアスを印加している。それぞれの素子 において図に示した励起の状態で観測した電磁波信号を図 53 に示す。信号は 1st Peak で規格化し てある。また、励起子線幅の評価に用いた空気側 DBR 層数が 7 層の場合の結果も合わせてプロッ トしてある。Q 値の低下に伴って電磁波振動の減衰が大きくなっていることが確認できる。ここ で興味深いことは、量子井戸電界強度が強い場合と同様に、スペクトル上の分裂がほとんど見ら



図 54: 電磁波振幅の共振器Q値依存性

れない、空気側 DBR が13 層の素子において、最初の1 周期のあとにわずかな脈動がみられ、か つその場合の周期が、Q 値が高い場合と大きくは変わっていない点である。これは5.4 で述べた、 真のモード分裂と反射スペクトル上のモード分裂の差異に対応していると考えられる。また、空 気側 DBR 層数が7 層の場合には共振器の影響は極めて小さくなっており、従って、当然モード分 裂は起こっていない。この場合にはほぼ1 周期の電磁波信号が得られている。この信号はレーザ パルス光による励起子の生成時に伴って生じる静的な分極の発生に起因するものであり、このこ とから逆に Q 値の高い素子において観測されている数周期の信号がポラリトンモード振動に起因 するものであることが、改めて確認される。

空気側 DBR 層数と得られた電磁波の最大振幅の関係を図 54 に示す。13 層までは Q 値の低下に 伴って電磁波の振幅が増加し、7 層の場合には若干減少する。図には実験および計算によって求め た励起光の吸収割合を合わせてプロットしてある。電磁波振幅の変化と対応しており、電磁波振 幅の変化が励起光の吸収割合の変化で説明できることがわかる。即ち、共振器ポラリトンが形成 される様な高 Q 値共振器では、ポラリトンモードの線幅も狭く、励起パルス光のスペクトル幅の 内ごく一部分のみが素子内で吸収される。これに対し Q 値が低い場合はポラリトン (またはほと んど裸の励起子) モードの線幅が広く、励起光スペクトルが有効に利用される。なお DBR 層数の 変化に対して吸収割合が最大値をとる理由は、空気側 DBR と基板側 DBR の反射率のアンバラン スに起因している。

### 6 まとめと今後の課題

本研究の成果は以下のようにまとめることができる。

 1. 共振器ポラリトンから放射される電磁波が、共振器ポラリトンモードを共鳴励起することに よって生じるモード振動に伴う励起子数の振動から放射されていることを確固たるものにした。 放射される電磁波振幅は当初の予想通り次のように表すことができることが明らかになった。

$$E_{THz} \sim \frac{\partial^2}{\partial t^2} [N_{ex}(t) \times \{ < 1hh|z|1hh > - < 1e|z|1e > \}]$$

$$\tag{27}$$

これらは以下のような実験によって証明された。

- (a) ポラリトンモードに励起レーザの中心波長を合わせた時の電磁波振幅が最も大きい。本研 究では 1e-1hh 励起子と共振器モードの結合によって形成されるポラリトンモードに注目し ており、この結果は同時に電磁波放射に 1e-1lh 励起子が関与していないことを示している。
- (b) ポラリトンモード間のエネルギー差(励起子と共振器の共鳴および非共鳴状態を含む)と電磁波の周期(周波数)が極めてよく対応する。また電磁波の振動周期の変化はフーリエ変換スペクトルとしても観測された。
- (c) 量子井戸に直流電場が印加されていることが電磁波放射には極めて重要であり、また数値 計算との比較から、電磁波の振幅は電子 (1e) と正孔 (1hh) の相対的な距離に比例すること がわかった。
- (d) 電磁波振幅は励起光強度に比例し、したがって励起子密度に比例する。
- 電磁波周波数(周期の逆数)と反射スペクトル上で観測されるポラリトンモード間のエネルギー 差から予想される周波数はわずかに異なり、放射電磁波周波数は若干高いことが見いだされ た。この結果が、反射スペクトル上で観測されるモード分裂量と(固有周波数としての)真の分 裂量が異なるとする Savona らの理論と定性的に一致するものであることを実験的に示した。
- 3. 量子井戸電場が強い領域での電磁波振幅の減衰を観測した。これは強電場領域で励起子線幅 が増大すること、従って励起子の位相緩和が主たる原因であることを、励起子線幅の測定結 果に基づいて示した。
- 4. 強励起領域での電磁波振幅の減衰を観測した。実験的に確かめてはいないが、強励起によって励起子の散乱が増加したためであると考えられる。
- 5. 空気側 DBR 層数をエッチングにより減少させて作製した Q 値の異なる素子を用い、Q 値を

下げることによって、電磁波振動の減衰が速くなること、特に、十分に低いQ値の素子においてはほぼ単周期のみの電磁波が放射されることが確認された。この結果はQ値の高い素子で観測される数周期に渡る電磁波は、ポラリトンモード振動に起因することの、別な証拠となるものである。また、共振器のQ値を下げることによって励起光が有効利用され、最初の1周期に限って言えば電磁波振幅が大きくなることが見いだされた。

6. 上の観測を通じて、共振器を用いて励起光を有効的に利用し、高効率な THz 帯電磁波発生の アイデアを得た。本報告書では詳細は述べなかったが、実際に素子を作製し、実用上意味の ある励起光強度の領域 (~ 100 mW) において、従来バルク半導体表面からの電磁波放射とし ては最も高強度であるとされていた InAs を用いた場合と比較して1 桁以上の高強度化を実証 した。

一方、残された課題は次の通りである。いずれも本報告書では述べなかったが、今後の重要な 研究課題である。

- 励起子と共振器の非共鳴状態での量子井戸電場依存性を調べた結果、共鳴状態の時の電磁波振幅が最も大きく、また励起子と共振器の離調によって電磁波の減衰時間が速くなっていく様子も確認された。しかしながら非共鳴状態におけるポラリトンのコヒーレントダイナミクスの詳細な議論を進めるには更なる研究が必要である。
- 2. 強励起下の反射光スペクトルにおいてポラリトンの doublet 状態から triplet 状態へ移行する現象が観測された。この現象の起源は明らかでないが、類似の結果も報告されており [70, 71, 72]、 今後の研究が必要である。

#### 謝辞

本研究は広島大学工学部電子物性工学講座光エレクトロニクス研究室の大学院生、楠田将之、桜田俊也、渡海滋の諸氏の協力を得て遂行されました。ここに深く感謝の意を表します。

...

## 参考文献

- 半導体微小共振器における自然放出制御に関しては、多くの論文、解説記事、および書籍がある。例えばY. Yamamoto, S. machida, K. Igeta, and G. Björk, Coherence, Amplification, and Quantum Effects in Semiconductor Lasers, edited by Y. Yamamoto, Chapter 13 (John Wiley and Sons, New York, 1991、Y. Kadoya, Optical Properties of Low-Dimensional Materials 2, edited by T. Ogawa and Y. Kanemitsu, Chapter 7, (World Scientific Publishing Co. 1998).
- [2] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa, Phys. Rev. Lett. 69, 3314 (1992).
- [3] A. fainstein, B. Jusserand, and V. Thierry-Mieg, Phys. Rev. Lett. 78, 1576 (1997).
- [4] W. R. Tribe, D. Baxter, M. S. Skolnick, D. J. Mowbray, T. A. Fisher, and J. S. Roberts, Phys. Rev. B, 56, 12429 (1997).
- [5] G. Cassabois, A. L. C. Triques, F. Bogani, C. Delalande, Ph. Roussignol, and C. Piermarocchi, Phys. Rev. B, 61, 1696 (2000).
- [6] P. Kinsler and D. M. Whittaker, Phys. Rev. B, 54, 4988 (1996).
- [7] S. Pau, G. Björk, J. Jacobson, H. Cao, and Y. Yamamoto, Phys. Rev. B, bf 51, 7090 (1995).
- [8] A. Omamoğlu, R. J. Ram, S. Pau, and Y. Yamamoto, Phys, Rev. A, 53, 4250 (1996).
- [9] R. Houdré, R. P. Stanley, U. Oesterle, M. Ilegems, and C. Weisbuch, Phys. Rev. B 49, 16761 (1994).
- [10] T. R. Nelson, Jr., J. P. Prineas, G. Khitrova, H. M. Gibbs, J. D. Berger, E. K. Lindmark, J.-H. Shin, H.-E. Shin, Y.-H. Lee, P. Tayebati and L. Javniskis, Appl. Phys. Lett. 69, 3031 (1996).
- [11] A. R. Pratt, T. Takamori, and T. Kamijoh, Appl. Phys. Lett. 74, 1869 (1999).
- [12] R. Houdré, C. Weisbuch, R.P. Stanley, U. Oesterle, P. Pellandini, and M. Ilegems, Phys. Rev. Lett. 73, 2043 (1994).
- [13] T. A. Fisher, A. M. Afshar, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, J. S. Roberts, G. Hill, and M. A. Pate, Phys. Rev. B 51, 2600 (1995).
- [14] Y. Kadoya, K. Kameda, M. Yamanishi, T. Nishikawa, T. Kannari, T. Ishihara, and I. Ogura, Appl. Phys. Lett. 68, 281 (1996).
- [15] B. Sermage, S. Long, I. Abram, J. Y. Marzin, J. Bloch, R. Planel, and V. Thierry-Mieg, Phys. Rev. B, 53, 16516 (1996).
- [16] R. P. Stanley, S. Pau, U. Oesterle, R. Houdré, and M. Ilegems, Phys. Rev. B, 55, R4867 (1997).
- [17] J. Wainstain, C. Delalande, D. Gendt, M. Voos, J. Bloch, V. Thierry-Mieg, and R. Planel, Phys. Rev. B, 58, 7269 (1998).]
- [18] F. Tassone, C. Piermarcchi, V. Savona, A. Quattropani, and P. Schwendimann, Phys. Rev. B, 53, R7642 (1997).

- [19] F. Tassone, C. Piermarcchi, V. Savona, A. Quattropani, and P. Schwendimann, Phys. Rev. B, 56, 7554 (1997).
- [20] R. Huang, F. Tassone, Y. Yamamoto, Phys. Rev. B, 61, R7854 (2000).
- [21] T. B. Norris, J.-K. Rhee, C.-Y. Sung, Y. Arakawa, M. Nishioka, and C. Weisbuch, Phys. Rev. B 50, 14663 (1994).
- [22] J. Jacobson, S. Pau, H. Cao, G. Björk, and Y. Yamamoto, Phys. Rev. A 51, 2542 (1995).
- [23] H. Cao, J. Jacobson, G. Björk, S. Pau, and Y. Yamamoto, Appl. Phys. Lett. 66, 1107 (1995).
- [24] H. Wang, J. Shah, T. C. Damen, W. Y. Jan, J. E. Cunningham, M. Hong, and J. P. Mannaerts, Phys. Rev. B 51, 14713 (1995).
- [25] M. Koch, J. Shah, and T. Meier, Phys. Rev. B 57, R2049 (1997).
- [26] H. Wang, H. Q. Hou, and B. E. Hammons, Phys. Rev. Lett. 81, 3255 (1998).
- [27] Y. Kadoya, and M. Yamanishi, レーザ研究, 23, 1008 (1995).
- [28] Grischkowski らは半導体、水蒸気、メチルハライド、燃焼気などの分光を初期の段階から精力 的に進めている。例えば D. Grischkowski, "Nonlinear generation of sub-psec pulses of THz electromagnetic radiation by optoelectronics - applications to time-domain spectroscopy, *Frontiers in Nonlinear Optics* edited by H. Walther, N. Koroteev, M. O. Scully, IOP Publishing Ltd. 1993.
- [29] M. van Exter, Ch. Fattinger, and D. Grischkowski, Opt. Lett. 14, 1128 (1989).
- [30] R. A. Cheville and D. Grischkowski, Opt. Lett. 20, 1646 (1995).
- [31] D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 2, 679 (1996).
- [32] R. A. Cheville and D. Grischkowski, Appl. Phys. Lett. 67, 1960 (1995).
- [33] P. R. Smith, D. H. Auston, and M. C. Nuss IEEE Journal of Quantum Electronics 24, 255 (1988).
- [34] X.-C. Zhang, B. B. Hu, J. T. Darrow, and D. H. Auston, Appl. Phys. Lett. 56, 1011 (1990).
- [35] X.-C. Zhang, J. T. Darrow, B. B. Hu, D. H. Auston, M. T. Schmidt, P. Tham, and E. S. Yang, Appl. Phys. Lett. 56, 2228 (1990).
- [36] X.-C. Zhang, and D. H. Auston, J. Appl. Phys. 71, 326 (1992).
- [37] N. Sarukura, H. Ohtake, S. Izumida, and Z. Liu, Journal of Appl. Phys. 84, 654 (1998).
- [38] E. R. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis, Appl. Phys. Lett. 66 285 (1995).
- [39] K. Kawase, M. Sato, T. Taniuchi, and H. Ito, Appl. Phys. Lett. 68, 2483 (1996).
- [40] P. Y. Han, and X.-C. Zhang, Appl. Phys. Lett. 73 3049 (1998).

- [41] H. G. Roskos, M. C. Nuss, J. Shah, K. Leo, D. A. B. Miller, A. M. Fox, S. Schmitt-Rink, and K. Köhler, Phys. Rev. Lett. 68, 2216 (1992).
- [42] P. C. M. Planken, M. C. Nuss, I. Breher, K. W. Goossen, M. S. C. Luo, S. L. Chuang, and L. Pfeiffer, Phys. Rev. Lett. 69, 3800 (1992).
- [43] C. Waschke, H. G. Roskos, R. Schwedler, K. Leo, H. Kurz, and K. Köhler, Phys. Phys. Lett. 70, 3319 (1993).
- [44] M. Vossebuürger et at., J. Opt. Soc. Am. B 13, 1045 (1996).
- [45] R. Kersting, K. Unterrainer, G. Strasser, H. F. Kauffmann and E. Gornik, Phys. Phys. Lett. 79, 3038 (1997).
- [46] M. Hangyo, S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, and S. Nakashima, Appl. Phys. Lett. 69, 2122 (1996).
- [47] T. Dekorsy, H. Auer, C. Qaschke, H. J. Bakker, H. G. Roskos, and H. Kurz, Phys. Rev. Lett. 74, 7738 (1995).
- [48] Q. Wu and X.-C. Zhang, Appl. Phys. Lett. 68, 1604 (1996).
- [49] Q, Wu and X.-C. Zhang, Appl. Phys. Lett. 71, 1285 (1997).
- [50] M. Tani, S. Kono, and K. Sakai, 13th Annual Meeting, IEEE Lasers and Electro-Optics Society, TuE4, Rio Grande, Puerto Rico (2000).
- [51] V. Savona, L. C. Andreani, P. Schwendimann, and A. Quattropani, Solid State Communications 93, 733 (1995).
- [52] A. R. Pratt, T. Takamori, and T. Kamijoh, Phys. Phys. B 58, 9656 (1998).
- [53] R. Houdre, J. L. Gibernon, P. Pellandini, R. P. Stanley, U. Oesterle, C. Weisbuch, J. O'Gorman, B. Roycroft, and M. Ilegems, Phys. Rev. B 52, 7810 (1995).
- [54] J.-K. Rhee, D. S. Citrin, T. B. Norris, Y. Arakawa, and M. Nishioka, Solid State Communications 97, 941 (1996).
- [55] F. Jahnke, M. Kira, S. W. Koch, G. Khitrova, E. K. Lindmark, T. R. Nelson, Jr., D. V. wick, J. D. Berger, O. Lyngnes, H. M. Gibbs, and K. Tai, Phys. Rev. Lett. 77 5257 (1996).
- [56] H. Cao, S. Pau, Y. Yamamoto, and G. Björk, Phys. Rev. B, 54, 8083 (1996).
- [57] R. Houdré, R. P. Stanley, and M. Ilegems, Phys. Rev. A, 53, 2711 (1996).
- [58] S. Pau, G. Björk, H. Cao, E. Hanamura, and Y. Yamamoto, Solid State Comm. 98, 781 (1996).
- [59] G. Bongiovanni, A. Mura, F. Quochi, S. Gurtler, J. L. Staehli, F. Tassone, R. P. Stanley, U. Oesterle, and R. Houdré, Phys. Rev. B 55, 7084 (1997).
- [60] L. C. Andreani, G. Panzarini, A. V. Kavokin, M. R. Vladimirova, Phys. Rev. B, 57, 4670 (1998).
- [61] D. M. Whittaker, P. Kinsler, T. A. Fisher, M. S. Skolnick, A. Armitage, A. M. Afshar, M. D. Sturge, and J. S. Roberts, Phys. Rev. Lett. 77, 4792 (1996).

- [62] V. Savona, C. Piermarocchi, A. Quattropani, F. Tassone, and P. Schwendimann, Phys. Rev. Lett. 78, 4470 (1997).
- [63] A. V. Kavokin, Phys. Rev. B, 57 3757 (1998).
- [64] D. M. Whittaker, Phys. Rev. Lett. 80 4791 (1998).
- [65] C. Ell, J. Prineas, T. R. Nelson, Jr., S. Park, H. M. Gibbs, G. Khitrova, S. W. Koch, and R. Houdre, Phys. Rev. Lett. 80, 4795 (1998).
- [66] D. Karaiskaj, T. Maxisch, C. Ellmers, H.-J. Kolbe, G. Weiser, R. Rettig, S. Leu, W. Stolz, M. Hofmann, F. Jahnke, S. W. Koch, and W. W. Ruhle, Phys. Rev. B 59, 13525 (1999).
- [67] D. M. Whittaker, Phys. Rev. B 61 R2433 (2000).
- [68] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, J. R. Jensen, and J. M. Hvam, Phys. Rev. B 63 035307 (2000).
- [69] D. S. Citrin, M. Yamanishi, and Y. Kadoya, IEEE Journal of Selected Topic in Quantum Electronics 2, 720 (1996).
- [70] F. Quochi, G. Bongiovanni, A. Mura, J. L. Staehli, B. Deveaud, R. P. Stanley, U. Oesterle, and R. Houdré, Phys. Rev. Lett. 80, 4733 (1998).
- [71] S. Jiang, S. Machida, Y. Takiguchi, Y. Yamamoto, and H. Cao, Appl. Phys. Lett. 73, 3031 (1998).
- [72] F. Quochi, M. Saba, C. Ciuti, R. P. Stanley, R. Houdré U. Oesterle, J. L. Staehli, B. Deveaud, G. Bongiovanni, and A. Mura, Phys. Rev. B 61, R5113 (2000).

. .