

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03968

研究課題名(和文) クリーン量子構造半導体レーザーにおける超短パルス直接発生と物理機構解明

研究課題名(英文) Fundamental physics of ultra-short-pulse generation in clean quantum-structure semiconductor lasers

研究代表者

秋山 英文 (AKIYAMA, Hidefumi)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：40251491

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：高品質のGaAs多重量子井戸およびダブルヘテロ型の半導体レーザー試料を作製し、モード同期固体レーザーおよび自家製モード同期ファイバーレーザー・第2高調波などを用いて、インパルス強光励起した。出力短パルス光のダイナミクスを、2ps分解能ストリークカメラ、高速フォトダイオード、オートコリレータなどで評価計測した。強励起条件下での発生パルスの短波長成分をフィルターで切り出すとフェムト秒領域のパルス幅が得られること、ダブルヘテロ構造に対する量子井戸構造の優位性は認められずむしろ飽和利得の大きさがより重要であること、半導体2バンドレート方程式レーザー理論で定式化できることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We fabricated high-quality GaAs multi-quantum-well and double-hetero-structure semiconductor lasers, made strong impulsive optical pumping by using mode-locked Ti sapphire lasers and mode-locked fiber lasers. Pulse dynamics of their output short pulse was measured via a streak camera, photo-diodes, and an auto-correlator. We obtained fs pulses in the short wavelength part of the output pulses under extremely high pumping, found the importance of gain amplitude instead of quantum confinement, and successfully formulated them with our 2-band-semiconductor rate-equation laser theory. a

研究分野：a半導体物理学

キーワード：半導体レーザー 利得スイッチ 超放射 光物性 半導体物性 非線形性

1. 研究開始当初の背景

半導体レーザー材料には、強い非線型性が内在する。半導体内の光学非線型性の起源は、キャリアのフェルミ分布状態占有と多体クーロン相互作用効果である。均一性の高いクリーン低次元量子構造を活性層材料に用いた半導体レーザーでは、それらの効果が顕著である。強い非線型性は、半導体レーザーの直接変調動作時に、大きなチャージングを引き起こす。高速光通信ではこれを避けるため、半導体レーザーは連続波(CW)発振モードで用い、信号を載せるためには外部変調法を用いるのが、常套手段となっている。これは、非線型性の学術的理解が困難で、技術的にも制御ができないため、回避策を取らざるを得ないためである。半導体材料や半導体レーザー素子は、広い利得帯域・大きなマテリアル利得・高速バンド内緩和などの特徴を備え、極めて超高速の光学応答性を潜在的に有しているが、上述のような背景で、その超高速性が活かされていないのが現状である。

内在する非線形性を活用した利得スイッチング機構による半導体レーザーからの超短パルス直接駆動発生の研究は、1990年代までは光通信分野で盛んに行われた。しかし上述の通り複雑な半導体光学非線型性の理解と制御の壁がクリアできず実用化されなかった。最近まで、利得スイッチングパルスは1.5 μm 高速光通信用レーザーダイオード(LD)で10ps程度、それ以外で10ps以上であった。市販のパルス半導体レーザー装置製品のパルス幅は70psである。

近年になって、ライフサイエンス分野や光記録分野での小型・安定・簡便な短パルス光源へのニーズが高まり、その流れに牽引されて、様々な材料のLDの直接駆動動作により数psのパルスを発生する研究が再燃し、実際のパイオ試料に対する多光子顕微鏡応用の研究も進んでいる。

このような背景の中、我々は半導体レーザーの直接駆動による短パルス発生とその機構研究に取り組み、例えば、1.5 μm 帯InGaAsP系量子井戸LDを0.6ナノ秒電気パルスで強励起し、4.7ピコ秒光パルスを得た。さらに、GaAs、InGaAs系などのファブリペロー型半導体レーザーについても実験を重ね、併せて短パルス発生機構についてレート方程式理論を用いた解析を進めてきた。その結果、波長や材料が異なってもレーザー構造次第で5ps以下のパルスが生成可能であることが解ってきた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、これらの現象において、数ピコ秒のパルスを生成する機構が何か、短パルス化を阻害する要因は何か、そして、短パルス化の限界はどのような物理機構で決まり理論的記述がなされるのかを電子材料

としての半導体の非線形性に注目して明らかにし、短パルス半導体レーザー光源技術の基礎を確立することである。

3. 研究の方法

本研究では、非線型性が顕著に現れると期待されるクリーンGaAs系半導体レーザーを中心に作製して用い、半導体レーザーに内在する非線型性をむしろ積極的に活用し、数ピコ～フェムト秒の高速パルスを直接駆動で発生し、その物理機構および限界要因を解明する。電気的帯域による制限を排除した形で、半導体レーザーのインパルス応答を実験的に明らかにするため、研究方法の項で後述する光励起法を用いる。特に、応募者が基礎研究用に独自に開発してきた一連の物理計測手法を活用する。導波路全体を一様に光インパルス光励起することによって、フェムト秒から連続定常までのほぼ任意のパルス幅で励起ができる強みを活かし、半導体材料・ナノ構造の光素子としての非線型性や広帯域利得、高速緩和性を引き出し利用する。短パルス化のための設計指針を探り出し、それによって半導体レーザーからの短光パルス発生の可能性と限界を実験によって明らかにする。より強い非線型性を持つ多セクション型光励起量子井戸レーザー、量子細線レーザー、VCSEL、DFBレーザーなども開発し実験を試みる。

また、実験結果に基づいて、理論定式化を進め、物理機構や、短パルス限界を明らかにする。通常、利得スイッチング機構は、分極のダイナミクスを無視したレート方程式近似のもとで記述される。しかし、数ピコ～フェムト秒の高速パルス発生の場合、その近似の適用範囲を超えた領域に踏み入っている可能性が高い。そこで、通常のシングルモード2準位レート方程式理論ではなく、半導体内のバンド内キャリア分布などの方程式を加えた半導体レート方程式理論や半導体ブロッホ方程式理論による解釈を試みる。パイオ応用および専用光源の実用化に繋げる。

4. 研究成果

もっとも標準的な試料として、高品質のGaAs多重量子井戸およびダブルヘテロ構造レーザー構造試料を作製した。量子井戸数や共振器長を変えた試料を系統的に作製し、導波路全体を一様に光インパルス励起して、ストリークカメラによる時間分解スペクトル測定と自己相関測定、これらにスペクトルフィルタリングを組み合わせた測定を行い、短パルス発生の特徴や限界・制限要因を探索した。H27年10月に不測の停電事故が発生したためMBE装置のチャンバーおよび材料の汚染が生じてしまい、MBE装置内部の清浄化とセルベークを行う必要が発生し、繰り越しを行った。このため、一時的には研究に遅れが生

じたが、MBE 装置内部の清浄化とセルベークを行うと同時に、測定系の整備作業を並行して進め、かつ、MBE 装置が平常運転可能になってからは研究を加速して順調に進めた。

作製した高品質の多重量子井戸およびダブルヘテロ型の半導体レーザー試料に対して、フェムト秒モード同期チタンサファイア (Ti:S) レーザー光、Ti:S 再生増幅器出力光、自家製のフェムト秒モード同期ファイバーレーザー・第 2 高調波パルス光などを用いて、インパルス光励起した。その結果得られるピコ秒短パルス光の出力パルスのダイナミクスを、2ps の高速時間分解能を有するシンクロスキャン・ストリークカメラを用いた時間・スペクトル分解計測システム、高速フォトダイオード・高速オシロスコープを用いたパルス計測システム、オートコリレータを用いたパルス計測システムなどを用いて評価した。特に、強励起条件下での発生パルスの短波長成分のみをフィルターで切り出し、フェムト秒領域のパルス発生と、そのパルス評価を進めた。

実験の結果、1 ピコ秒を切るフェムト秒領域のパルス幅が得られること、従来の理解と異なりダブルヘテロ構造に対する量子井戸構造の優位性は認められずむしろ飽和利得の大きさがより重要であること、従来のシングルモードレーザーレート方程式では説明のつかない現象であることなどが明らかになった。

結果は、従来のシングルモードレーザーレート方程式では説明のつかない現象であったので、キャリア間の相互作用による高速熱化過程と強い利得スイッチングによる励起キャリアの高速消費とを組み合わせた 2 バンドレート方程式理論の定式化を行い、それに基づいた計算機シミュレーションを行って、実験結果を上手く再現することに成功した。

上記の試料に加え、半導体レーザー構造の導波路の一部に、過飽和吸収体領域を付加した、マルチセクション型 GaAs 系量子井戸レーザー試料を、電流注入および光励起用に試作した。可飽和吸収体領域の付加は、半導体レーザーの非線型性を強め、サブピコ秒領域の超短パルス発生が可能となると期待される。利得セクションには順方向バイアスナノ秒パルスを、過飽和吸収セクションには逆方向バイアス直流電圧を印加し、得られたパルス光のダイナミクスを評価した。

マルチセクション型量子井戸レーザー試料の可飽和吸収体領域の位置と長さを変えた試料に対して測定を行ったところ、非単調な依存性が見出された。計算機シミュレーションコードを開発し、これまでに得られた出力パルスの再現を試みた。利得セクションに順方向ナノ秒電気パルスもしくは光励起を、過飽和吸収セクションに逆方向直流電圧を印加することに対応して、利得・吸収各領域

の長さや利得領域の励起パルス幅を変えた計算を行った。多セクションレーザーの利得・吸収各領域の長さ依存性の詳細の再現には至らなかったが、非単調な短パルス発生現象が再現できた。

5 . 主な発表論文等

(雑誌論文)(計 25 件)

1. Zhen Wu, Takashi Ito, Hidefumi Akiyama, and Bin Zhang, "Effect of interaction between the internal cavity and external cavity on beam properties in a spectrally beam combined system", Journal of the Optical Society of America A 35, 772-778 (2018)
<https://doi.org/10.1364/JOSAA.35.000772> 査読有
2. Yuta Murotani, Masayuki Takayama, Fumiya Sekiguchi, Changsu Kim, H. Akiyama, Ryo Shimano, "Terahertz field-induced ionization and perturbed free induction decay of excitons in bulk GaAs", Journal of Physics D: Applied Physics 51, 114001 (2018).
<https://doi.org/10.1088/1361-6463/aa989> 査読有
3. Kengo Takamiya, Shuhei Yagi, Hiroyuki Yaguchi, Hidefumi Akiyama, Kanako Shojiki, Tomoyuki Tanikawa, Ryuji Katayama, "Biexciton Emission From Single Quantum-Confined Structures in N-Polar (000-1) InGaN/GaN Multiple Quantum Wells", Physica Status Solidi (b), published online on 2017/12/21
<https://doi.org/10.1002/pssb.201700454> 査読有
4. Masahiro Yoshita, Hidehiro Kubota, Masahiro Shimogawara, Kaneo Mori, Yoshihiro Ohmiya, and Hidefumi Akiyama, "Light-emitting-diode Lambertian light sources as low-radiant-flux standards applicable to quantitative luminescence-intensity imaging ", Review of Scientific Instruments 88, 093704 (2017);
<http://dx.doi.org/10.1063/1.5001733> 査読有
5. XiaoBo Hu, Tengfei Chen, Juanjuan Xue, Guoen Weng, Shaoqiang Chen, Hidefumi Akiyama, Ziqiang Zhu, "Absolute Electroluminescence Imaging Diagnosis of GaAs Thin-film Solar Cells", IEEE

- Photonics Journal 9, 8400409 (2017).
<http://dx.doi.org/10.1109/JPHOT.2017.2731800> 查読有
6. Shaoqiang Chen, Shengxi Diao, Pengtao Li, Takahiro Nakamura, Masahiro Yoshita, Guoen Weng, Xiaobo Hu, Yanling Shi, Yiqing Liu, Hidefumi Akiyama, "Broadband tunable integrated CMOS pulsar with 80-ps minimum pulse width for gain-switched semiconductor lasers", Scientific Reports 7, 6878 (2017).
<http://dx.doi.org/10.1038/s41598-017-07138-3> 查読有
 7. Shaoqiang Chen, Takahiro Nakamura, Takashi Ito, Hidekazu Nakamae, Xumin Bao, Guoen Weng, Xiaobo Hu, Masahiro Yoshita, Hidefumi Akiyama, Jianping Liu, Masao Ikeda, and Hui Yang, "Picosecond tunable gain-switched blue pulses from GaN laser diodes with nanosecond current injections", Optics Express 25, 13046-13054 (2017) 查読有
 8. Genki Yamashita, Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Changsu Kim, Hidefumi Akiyama, Yoshihiko Kanemitsu, and Masaaki Ashida, "Sensitive monitoring of photocarrier densities in the active layer of a photovoltaic device with time-resolved terahertz reflection spectroscopy", Appl. Phys. Lett. 110, 071108 (2017),
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4975631> 查読有
 9. Fumiya Sekiguchi, Toshimitsu Mochizuki, Changsu Kim, Hidefumi Akiyama, Loren N Pfeiffer, Ken W West, Ryo Shimano, "Anomalous Metal Phase Emergent on the Verge of an Exciton Mott Transition", Physical Review Letters 118, 067401 (2017) 查読有
 10. K. Uchida, T. Otobe, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. Tanaka, H. Hirori, "Sub-Cycle Optical Response Caused by Dressed State with Phase-Locked Wavefunctions", Phys. Rev. Lett. 117, 277402 (2016).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.277402> 查読有
 11. D. M. Tex, M. Imaizumi, H. Akiyama, Y. Kanemitsu, "Internal luminescence efficiencies in InGaP/GaAs/Ge triple-junction solar cells evaluated from photoluminescence through optical coupling between subcells", Scientific Reports 6, 38297 (2016)
<https://doi.org/10.1038/srep38297> 查読有
 12. Lin Zhu, Masahiro Yoshita, Tetsuya Nakamura, Toshimitsu Mochizuki, Changsu Kim, Mitsuru Imaizumi, Yoshihiko Kanemitsu, Hidefumi Akiyama, "Current leakage and fill factor in multi-junction solar cells linked via absolute electroluminescence characterization", Proceedings of the 43rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference (PVSC-43) ,1239-1243 (2016) .
<https://doi.org/10.1109/PVSC.2016.7749812>
 13. Masahiro Yoshita, Lin Zhu, Changsu Kim, Hidehiro Kubota, Tetsuya Nakamura, Mitsuru Imaizumi, Yoshihiko Kanemitsu, and Hidefumi Akiyama, "Accuracy Evaluations for Standardization of Multi-Junction Solar-Cell Characterizations via Absolute Electroluminescence," Proceedings of the 43rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference (PVSC-43) ,3570-3573 (2016) .
<https://doi.org/10.1109/PVSC.2016.7750337>
 14. Yoshifumi Noguchi, Miyabi Hiyama, Motoyuki Shiga, Osamu Sugino, and Hidefumi Akiyama, "Reverse Stability of Oxyluciferin Isomers in Aqueous Solutions", Journal of Physical Chemistry B, 120, 8776-8783 (2016).
<http://dx.doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b04963> 查読有
 15. Lin Zhu, Masahiro Yoshita, Shaoqiang Chen, Tetsuya Nakamura, Toshimitsu Mochizuki, Changsu Kim, Mitsuru Imaizumi, Yoshihiko Kanemitsu, Hidefumi Akiyama, "Characterizations of radiation damages in multi-junction solar cells focused on subcell internal luminescence quantum yields via absolute electroluminescence measurements", IEEE Journal of Photovoltaics 6, 777-782 (2016).
<http://dx.doi.org/10.1109/JPHOTOV.2016>. 查読有
 16. Lin Zhu, Toshimitsu Mochizuki, Masahiro Yoshita, Shaoqiang Chen, Changsu Kim, Hidefumi Akiyama and Yoshihiko Kanemitsu, "Conversion

- Efficiency Limits and Bandgap Designs for Multi-Junction Solar Cells with Internal Radiative Efficiencies below Unity", *Optics Express* 24, A740-A751 (2016)
<http://dx.doi.org/10.1364/OE.24.00A740> 査読有
17. Toshimitsu Mochizuki, Changsu Kim, Masahiro Yoshita, Jonathon Mitchell, Zhu Lin, Shaoqiang Chen, Hidetaka Takato, Yoshihiko Kanemitsu, and Hidefumi Akiyama, "Solar-cell radiance standard for absolute electroluminescence measurements and open-circuit voltage mapping of silicon solar modules", *Journal of Applied Physics* 119, 034501 (2016).
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4940159> 査読有
 18. Takashi Ito, Ondrej Slezak, Masahiro Yoshita, Hidefumi Akiyama, Yohei Kobayashi, "High-precision group-delay dispersion measurements of optical fibers via fingerprint-spectral wavelength-to-time mapping", *Photonics Research* 4, 13-16 (2016).
<http://dx.doi.org/10.1364/PRJ.4.000013> 査読有
 19. Shaoqiang Chen, Takashi Ito, Akifumi Asahara, Hidekazu Nakamae, Takahiro Nakamura, Masahiro Yoshita, Changsu Kim, Baoping Zhang, Hiroyuki Yokoyama, Tohru Suemoto, and Hidefumi Akiyama, "Transient gain analysis of gain-switched semiconductor lasers during pulse lasing", *Appl. Opt.* 54(35), 10438-10442 (2015).
<http://dx.doi.org/10.1364/AO.54.010438> 査読有
 20. K. Uchida, H. Hirori, T. Aoki, C. Wolpert, T. Tamaya, K. Tanaka, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer and K. W. West, "Time-resolved observation of coherent excitonic nonlinear response with a table-top narrowband THz pulse wave", *Appl. Phys. Lett.* 107, 221106 (2015).
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4936753> 査読有
 21. Makoto Okano, Masaru Endo, Atsushi Wakamiya, Masahiro Yoshita, Hidefumi Akiyama, and Yoshihiko Kanemitsu, "Degradation mechanism of perovskite CH₃NH₃PbI₃ diode devices studied by electroluminescence and photoluminescence imaging spectroscopy", *Appl. Phys. Express* 8, 102302 (2015).
<http://dx.doi.org/10.7567/APEX.8.102302> 査読有
 22. Weihang Zhou, Daisuke Nakamura, Yu Wang, Toshimitsu Mochizuki, Hidefumi Akiyama, Shojiro Takeyama, "Effect of very High magnetic field on the optical properties of firefly light emitter oxyluciferin", *Journal of Luminescence* 165, 15-18 (2015)
<http://dx.doi.org/10.1016/j.jlumin.2015.04.009> 査読有
 23. W. J. Liu, X. L. Hu, L. Y. Ying, S. Q. Chen, J. Y. Zhang, H. Akiyama, Z. P. Cai, B. P. Zhang, "On the importance of cavity-length and heat dissipation in GaN-based vertical-cavity surface-emitting lasers", *Scientific Reports* 5, 9600 (2015).
<http://dx.doi.org/10.1038/srep09600> 査読有
 24. Miyabi Hiyama, Yoshifumi Noguchi, Hidefumi Akiyama, Kenta Yamada, Nobuaki Koga, "Vibronic structures in absorption and fluorescence spectra of firefly oxyluciferin in aqueous solutions", *Photochem. Photobiol.* 91, 819-827, (2015)
<http://dx.doi.org/10.1111/php.12463> 査読有
 25. 秋山英文、「多接合太陽電池の診断・設計と発光絶対値・発光量子効率の評価」*応用物理* 84, No.4 (2015) 319-325. 査読有
- 〔学会発表〕(計 44 件)
- 〔図書〕(計 0 件)
- 〔産業財産権〕 (計 0 件)
- 〔その他〕
 ホームページ
<http://aki.issp.u-tokyo.ac.jp/>
- http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/organization/labs/akiyama_group.html

6 . 研究組織

(1)研究代表者

秋山 英文 (AKIYAMA HIDEFUMI)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号: 40251491

(2)研究分担者

挟間 優治 (HAZAMA YUJI)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号: 80759150