

6-2 ミリ波からテラヘルツ領域における各種 p 型ゲルマニウムレーザー

6-2 Research and developments on p-type Germanium lasers in the frequency range from 0.1 terahertz to few terahertz

寶迫 巖 廣本 宣久

Iwao HOSAKO and Norihisa HIROMOTO

要旨

開発段階が実用光源として利用できる直前にある p 型ゲルマニウム半導体を用いた、ミリ波からテラヘルツ領域におけるチューナブル固体コヒーレント光源技術について解説する。

The recent developments on the p-type Germanium hot-hole laser oscillating in the frequency range from 0.1 terahertz to few terahertz are described in this report. The present stage of development is very close to the practical use as a tunable solid-state coherent sources in millimeter waves and terahertz waves.

【キーワード】

p 型ゲルマニウム, 価電子帯, ミリ波, テラヘルツ

p-type Germanium, Valence band, Millimeter-waves, Terahertz

1 まえがき

p 型ゲルマニウム半導体 (p-Ge) を用いたミリ波からテラヘルツ領域の各種誘導放出 (p-Ge レーザー) には、価電子帯中の軽い正孔の重い正孔帯に対する反転分布を利用した価電子帯間遷移型レーザー (価電子帯間遷移型: Inter Valence Band (IVB 型)、1.2THz ~ 4.2THz)、軽い正孔のランダウ準位間遷移によるサイクロトン共鳴型 (Light Hole Cyclotron Resonance: LHCR 型、0.9THz ~ 2.7THz)、重い正孔帯等エネルギー面の $\langle 100 \rangle$ 結晶方向の凹みを利用した重い正孔のサイクロトン共鳴型 (Heavy Hole Cyclotron Resonance: HHCR 型、0.1THz ~ 0.3THz) がある [1] [2]。これらはテラヘルツ領域という小型で安定したコヒーレント光源が手軽に入手し難い周波数範囲で発振する (図 1)。さらに、発振周波数を連続的に掃引できるという特徴がある。テラヘルツ領域で発振するチューナブル光源には、既に自由電子レーザー (Free Electron Laser: FEL) が実用

化され物性測定などに用いられている。FEL はパルス発振であり、キロワット級の出力を得られるが、装置規模は FEL の収容を目的とする専用の建物が必要となる程の大きさである。これに比べ、p-Ge レーザーは、出力こそパルス発振時の最大ピークパワーで 10 ワット程度と小さいが、装置規模は直径 18cm × 高さ 35cm と光学定盤上に置ける大きさである。このため、テラヘルツ領域の小型チューナブル光源として応用面から多くの期待が寄せられている。

2 p-Ge レーザーの発振原理

Ge の価電子帯は重い正孔帯、軽い正孔帯、スピン-軌道相互作用により分離した正孔帯によって構成されている。スピン-軌道相互作用により分離した正孔帯は Γ 点で 290meV ほど他の二つの正孔帯と隔たっているため、p 型の場合でも電子で満たされていて伝導には寄与していない。p-Ge レーザーの舞台となるのは、伝導に寄与す

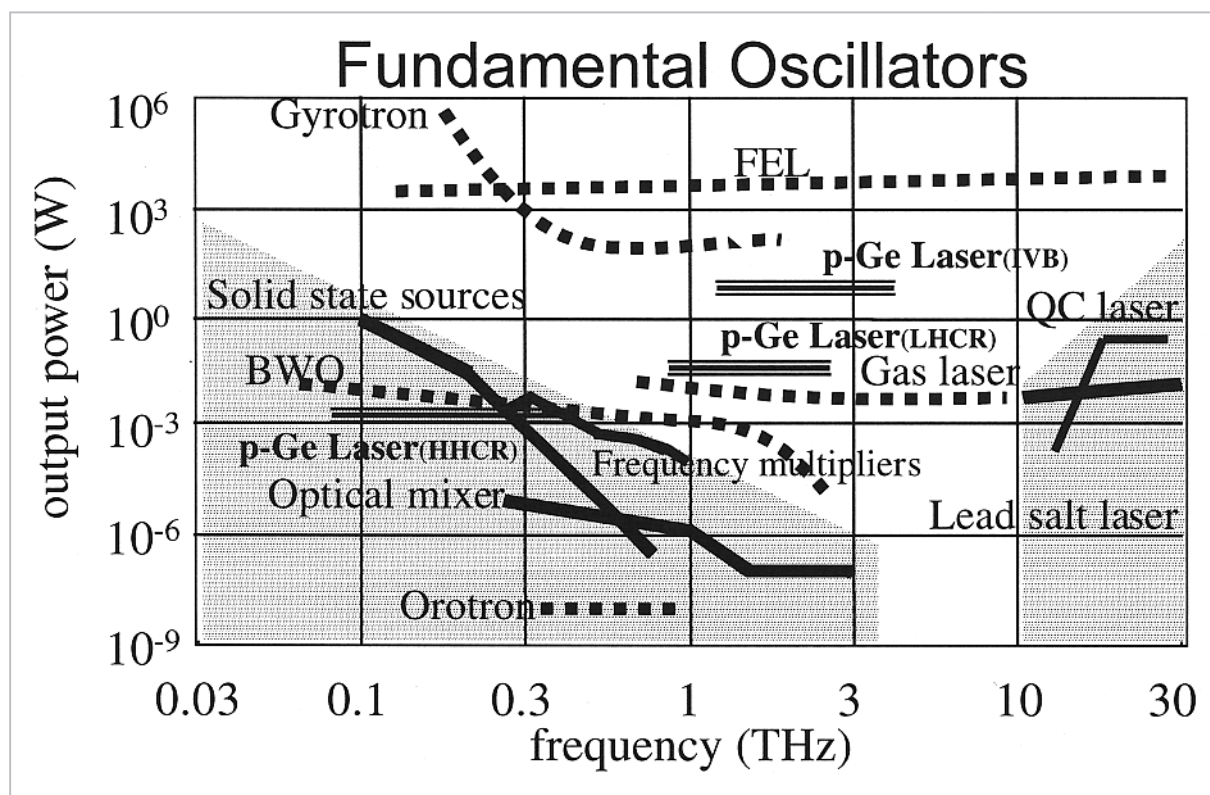


図1 ミリ波からテラヘルツ領域の発振器

る重い正孔帯と軽い正孔帯である。p-Ge レーザーは Γ 点近傍における価電子帯の様々な構造と光学フォノンとの相互作用による正孔系の特異な分布状態を巧みに利用して上下準位間に反転分布状態を形成して、テラヘルツ電磁波の増幅・発振を行っている。普通の半導体レーザーと比較すると、半導体レーザーは電流注入により反転分布を形成した半導体の直接バンドギャップにおける電子と正孔の再結合による双極素子(バイポーラデバイス)である。一方、p-Ge レーザーは単極素子(ユニポーラデバイス)である。さらに、p-Ge レーザーはサブバンド間光学遷移を利用しているものである、この点ではむしろQuantum Cascade Laserと似ている。サブバンドをどのように形成するか、形成されたサブバンド間に反転分布をどのようにして生じさせるかで、発振機構に違いが生じている[3]。

2.1 IVB型・LHCR型の発振原理

ドナーやアクセプター濃度が低い半導体を極低温(液体ヘリウム温度程度 $\sim 4.2\text{K}$)に冷却すると担体はすべて不純物準位に捕らえられてしまうため絶縁体となる。不純物準位が浅い半導体

(Geでは $\sim 10\text{meV}$)では、数 V/cm 以上の電場を印加すると不純物準位の雪崩的イオン化が生じ、ほとんどすべての不純物がイオン化されるため、不純物濃度と等しい濃度を持つ担体系が生成される。半導体単結晶中にある担体系の主な散乱機構には、イオン化不純物散乱、音響フォノン散乱、光学フォノン散乱の三つが挙げられるが、先に述べた担体系では、不純物濃度が低くかつ低温であるため、イオン化不純物散乱やフォノン散乱の影響は小さい。アクセプター濃度が低いp-Geの 4.2K での重い正孔の散乱確率を図2に示す。

散乱確率は正孔のエネルギー ε が光学フォノンのエネルギー $\hbar\omega_{\text{op}}(=37\text{meV})$ より大きい小さいかで大きく異なり、 $\varepsilon > \hbar\omega_{\text{op}}$ では光学フォノン放出が起こるために正孔の散乱時間は非常に短い、 $\varepsilon < \hbar\omega_{\text{op}}$ では正孔は比較的自由に動くことができる。このような正孔系が外場(電場や磁場)中に置かれた場合、外場による加速で、エネルギーが $\varepsilon > \hbar\omega_{\text{op}}$ となるとほとんど直ちに光学フォノンを放出して $\varepsilon \sim 0$ の状態へと散乱される。p-Geのように有効質量が異なる二つの担体(重い正孔と軽い正孔)が存在する系に、互いに直交す

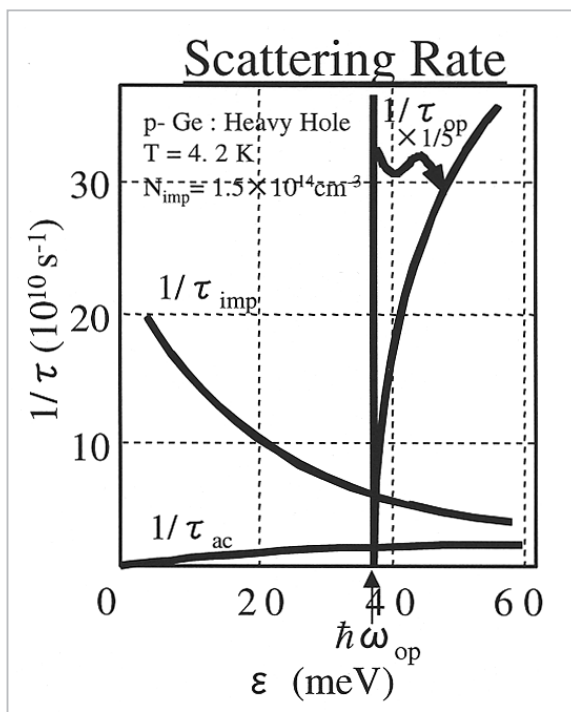


図2 重い正孔の散乱確率

る適当な大きさの電場 E と磁場 B を印加した場合の速度空間中での両正孔の運動の様子を図3

(a) に示す。

図中点線で示されている円は正孔の運動エネルギーが光学フォノンのエネルギーと等しくなる速度 $v_{op}^{lh} = (2\hbar\omega_{op}/m_{lh}^*)^{1/2}$ を示している。光学フォノン散乱がなければ、担体は速度空間中の点 $C(0, -E/B)$ を中心として円運動(サイクロトロン運動)を行う。磁場の強さを $\zeta = v_{op}/(E/B)$ で表すと、担体の運動は ζ の大きさにより三つに分類できる。 $\zeta < 1$ では、点 C は円 $v = |v_{op}|$ の外側にあり、担体は原点を出発し、点 C を中心とした円弧上を繰り返し運動して光学フォノンを $T_{op} (=v_{op}/(eE/m^*))$ 間隔で頻繁に放出するいわゆるストリーミング運動(streaming motion)を行っている。 $\zeta > 2$ では、原点を出発した担体は、点 C を中心とした円軌道領域 K 内で $\varepsilon = \hbar\omega_{op}$ に達することなくサイクロトロン運動を続ける。 $1 < \zeta < 2$ では、上記二つの中間で、ストリーミング運動と円軌道領域 K が両方存在する。p-Ge では重い正孔と軽い正孔の有効質量はそれぞれ $m_h^* \sim 0.35m_0$, $m_l^* = 0.043m_0$ であり、 v_{op} 比 ($v_{op}^h/v_{op}^l = (m_h^*/m_l^*)^{1/2}$) は約 2.85 である。したがって、適当

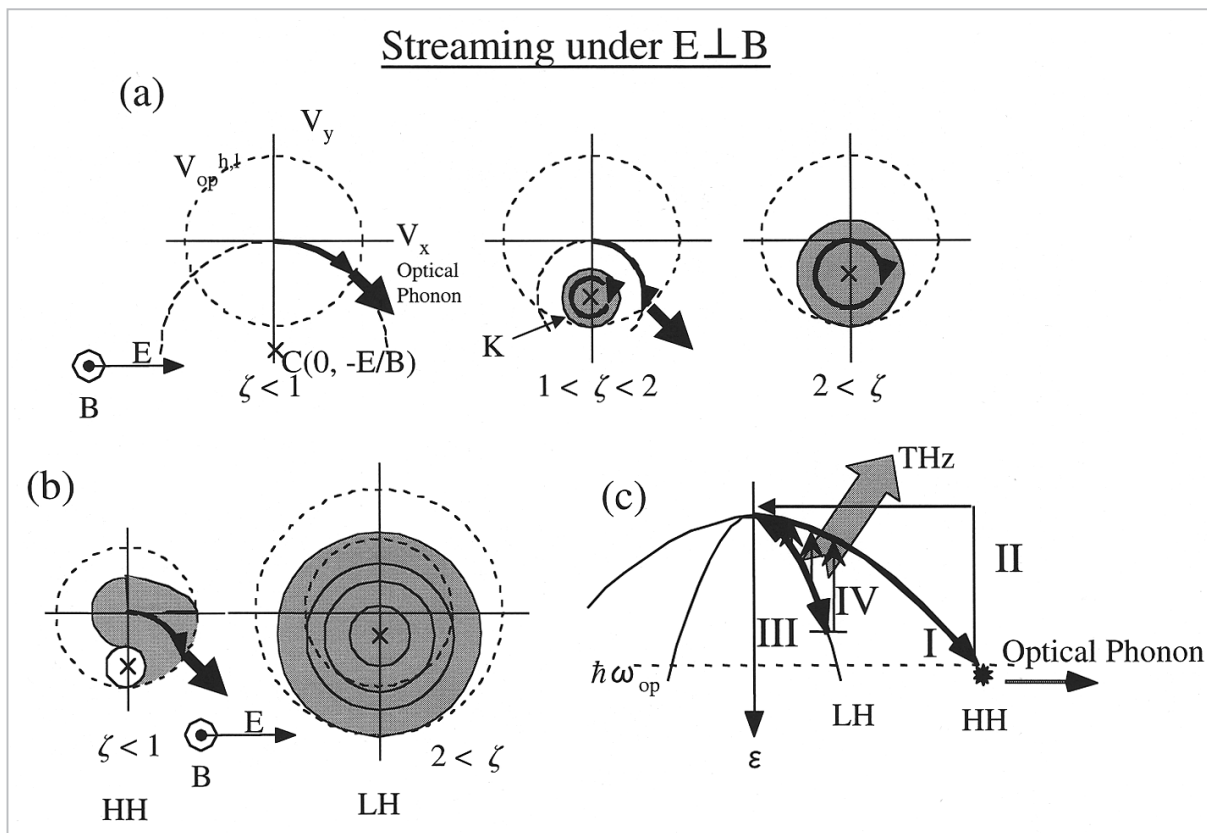


図3 (a) 直交する電場・磁場下での速度空間における正孔の運動
(b) 重い正孔： $\zeta < 1$ 、軽い正孔： $\zeta > 2$
(c) IVB型レーザーのポンピング機構

な電場及び磁場の大きさを選ぶと、重い正孔に対しては $\zeta < 1$ 、軽い正孔に対しては $\zeta > 2$ とすることができる(図3(b))。この時、重い正孔は短い時間間隔 T_{op}^h で光学フォノン放出を繰り返すストリーミング運動をしている。一方、軽い正孔は音響フォノン散乱とイオン化不純物散乱で決まる時間 τ ($\tau^{-1} = \tau_{ac}^{-1} + \tau_{imp}^{-1}$)でサイクロトロン運動を行いながら領域K内に比較的長い時間留まっている。散乱が起こるごとに正孔は状態密度の重み $m_{hl}^{3/2} / (m_h^{3/2} + m_l^{3/2})$ に比例した確率で重い正孔帯、軽い正孔帯に再配分される。このため、 τ が長い程、そして T_{op}^h が短い程、相対的に軽い正孔の分布が増していく。アクセプター濃度が低い結晶($N_a = 0.4 \times 10^{14} \sim 2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$)を電場($E = 0.3 \sim 3.5 \text{ kV/cm}$)・磁場($B = 0.5 \sim 3 \text{ T}$)中に置くと、このようにして蓄積された軽い正孔は重い正孔に対して反転分布状態となる。反転分布となったある準位の軽い正孔が双極子相互作用により重い正孔帯に直接光学遷移を行いテラヘルツ光($h\nu < \hbar\omega_{op}$)の発生と増幅が起る。これが価電子帯間遷移型(IVB)レーザーの機構である。IVB型レーザーのポンピング機構を簡単に図示したのが図3(c)である。過程Iで重い正孔は $\hbar\omega_{op}$ まで電場・磁場により加速され、過程IIで光学フォノンを放出して軽い正孔帯に散乱される。過程IIIで領域K内に軽い正孔が蓄積されるとともに再度加速されエネルギーの高い状態に達する。その後、過程IVにて重い正孔帯に光学遷移する。

この同じ状況下で軽い正孔のランダウ準位(Landau level)間に反転分布を生じ、軽い正孔のサイクロトロン共鳴型(LHCR)のレーザー発振が起こる。量子力学的考察によると直交した電場・磁場下では重い正孔帯と軽い正孔帯とは互いに混ざり合って、新たな二つの正孔帯を作っている。混合の度合いは低エネルギー状態程強まる傾向にあり、そのため、軽い正孔のランダウ準位系列にあって、重い正孔成分の大きな準位は光学フォノンによる散乱確率が大きく、分布が減少して上準位との間に反転分布を生じるとというのがLHCR型の発振機構である。

IVB型の電場・磁場バイアス平面での発振領域は、図4に示すように様に定まる。

電場は、速度空間における正孔分布が棒状の

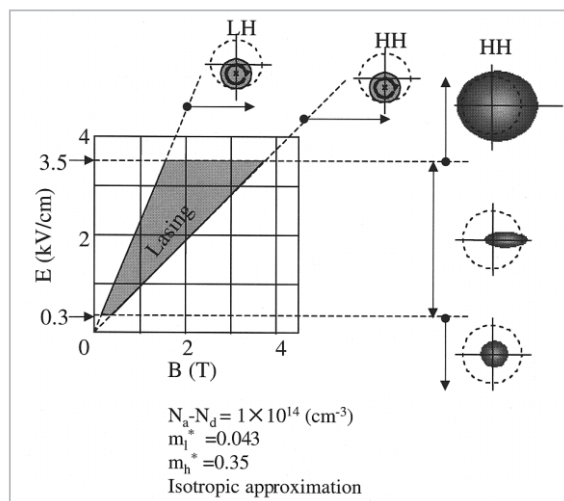


図4 IVB型レーザーのE-B平面での発振領域

異方性の強い分布を取る必要性から決まる。電場が弱い時には、光学フォノンのエネルギーに達する前に、音響フォノンやイオン化不純物により散乱されて棒状の分布とはならない。逆に電場が強く過ぎる時には、 $\hbar\omega_{op}$ より大きなエネルギー領域に入り込んでから光学フォノンに散乱される正孔が増えるために、棒状の分布が広がってしまうため発振が止まる。磁場は、与えられた電場において、軽い正孔が $\zeta > 2$ となる磁場から重い正孔が $\zeta > 2$ となる磁場の範囲内にある。LHCR型では軽い正孔が $\zeta > 2$ だけが制限となるため、IVB型より高磁場でも発振する。IVB型、LHCR型及び、次に述べるHHCR型の実際の発振領域を図5(a)に示す。また、各種発振の発振波数を磁場の関数として図5(b)に示す。

IVB型の反転分布は連続した広いエネルギー範囲で生じるため、このエネルギー範囲の上下端は磁場に従って変化するが、幅を持っているためにIVB型レーザー発振周波数は共振器構造などの条件で決まる。例えば、簡易型ラメラ格子を共振器に組み込み、ラメラ格子の深さ d を変えると、同一の電場磁場バイアスにおいて、波長 $\lambda = 83 \text{ mm} \sim 115 \text{ mm}$ 、周波数にして $3.6 \text{ THz} \sim 2.6 \text{ THz}$ と約 1 THz の範囲でチューニングできる(図6)[4]。一方、LHCR型とHHCR型はサイクロトロン共鳴発振であるため、発振周波数は磁場に比例する(図5(b))。

2.2 HHCR型発振の原理

Geの重い正孔の異方性を積極的に利用して重

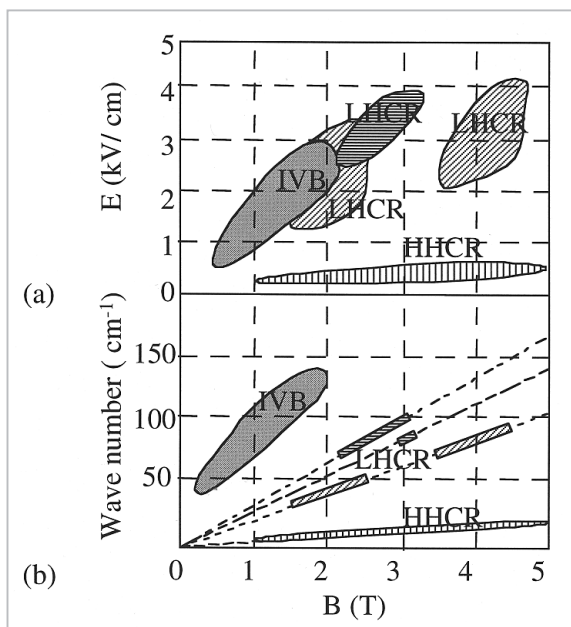


図5 (a) 各種p-GeレーザーのE-B平面での発振領域
(b) 各種p-Geレーザーの発振波数と磁場の関係

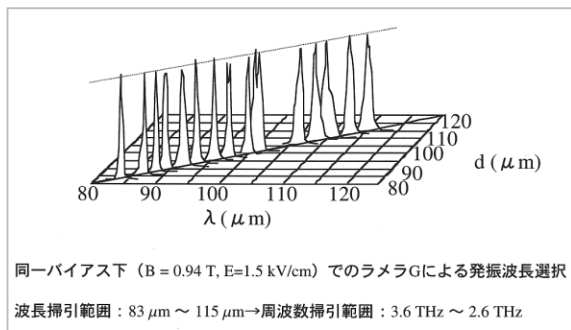


図6 IVB型レーザーのラメラ格子による発振波長選択

い正孔のランダウレベル間に反転分布を作り出し、 $70 \sim 375 \text{ GHz}$ 程度の周波数 (波長 $\lambda = 4.3 \text{ mm} \sim 0.8 \text{ mm}$) で、ピークパワー数mW出力のパルス発振を得ることができる[3][5][6]。

図7(a)に示すように重い正孔の等エネルギー面は歪んだ球面であり、 $\langle 100 \rangle$ と等価な計6方向に窪みがある。そこで、 $\langle 100 \rangle$ 方向に電場を印加した場合を考える。以下、電場を印加した $\langle 100 \rangle$ 方向をz軸方向とする。この場合、十分な電場を与えると、 $\langle 100 \rangle$ 軸方向に沿ったストリーミング運動が生じる。z軸方向の正孔の波数 k_z が一定である波数平面上では、ストリーミング運動により生じた正孔分布は反転分布と見なせる。すなわち、図7(c)に示すように $k_{\perp} = 0$ で正

孔の分布は最大値となる一方で、エネルギー ε は k_z が一定であるとき、 $k_{\perp} = 0$ が増えるに従って減っていくからである。したがって、 $k_{\perp} = 0$ に平行な振動電場を持つ電磁波は増幅される。このような状況は図7(b)で正孔の「縦有効質量」が負($d\varepsilon/dk_{\perp} < 0$)となる領域で実現されるが、実際には縦有効質量が正の正孔による吸収が優り、増幅が期待できないことが、モンテカルロ法による計算で明らかにされている[7]。縦有効質量が正の正孔による吸収と負の正孔による増幅とをうまく分離するためのトリックが印加電場に平行な磁場印加 ($\sim 6 \text{ T}$) である[8]。この磁場により正孔はz軸を中心としたサイクロトロン運動を行うが、その回転方向は正孔の縦有効質量の正負で異なり、負のものは正のものとは反対方向に電子と同じ方向に回転する。したがって、負の有効質量を持つ正孔の回転方向と同じ方向の回転電場を持つ円偏光を与えればその増幅が吸収を上回り発振が可能となる。

3 IVB型レーザーの連続波発振化(CW化)を目指した開発

レーザーに用いる結晶は $N_a = 0.4 \times 10^{14} \sim 2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ のアクセプターを含む、長さ $40 \sim 60 \text{ mm}$ 、断面 $5 \times 5 \text{ mm}^2$ 程度の大きさの直方体p-Ge単結晶が、最初の実現以来しばらくの間使われていた。これは、例えば周波数 3 THz のテラヘルツの光に対する増幅係数 a が 0.02 cm^{-1} 程度であるために、比較的長い結晶がレーザー発振に必要なだと考えられたためである。結晶の相対する二つの側面にはオーム性電極が形成されており、これを通して $0.15 \sim 2 \text{ kV}$ で幅 $0.3 \sim 3 \mu\text{s}$ の電圧パルスが印加される。結晶は液体ヘリウムに直接浸し冷却する。電場と直交する方向に $0.5 \sim 3 \text{ T}$ 程度の磁場が印加される。電圧印加時の電流は $150 \sim 400 \text{ A}$ に達するため、入力電力は数百kWにもなる。出力は 10 W 程度なので、エネルギー変換効率は $10^{-4} \sim 10^{-5}$ 程度となる。入力電力によるジュール発熱により、結晶は暖められ、数 μs 後には結晶温度が 20 K を超える。そのために増大した音響フォノン散乱の影響で領域K(図2)内の軽い正孔分布は減少し、発振は消失する。これが現在までCW発振が達成されていない理由である。

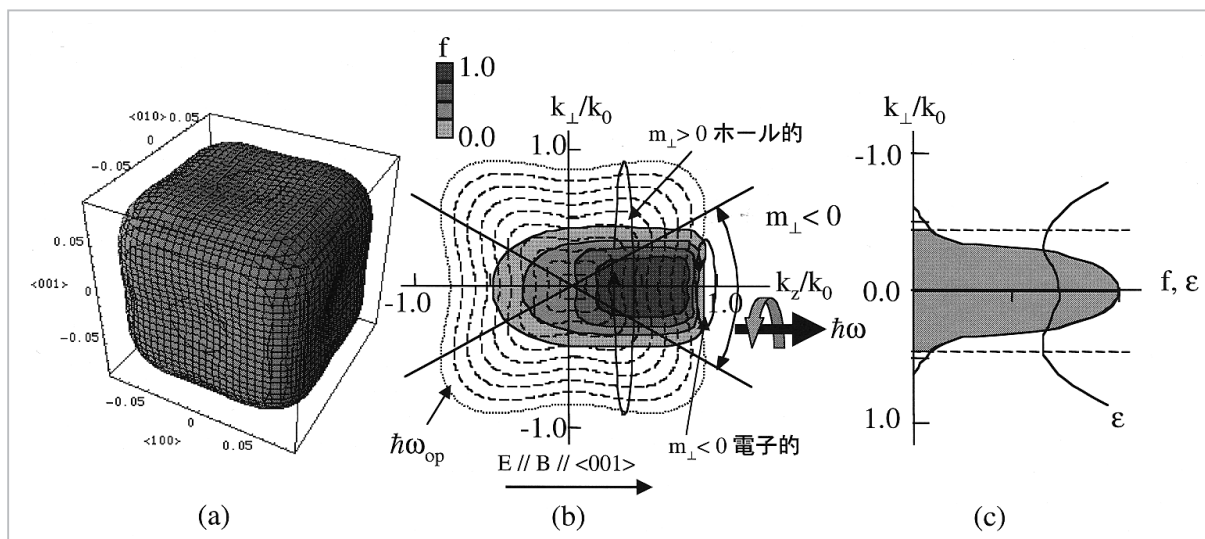


図7 (a)歪んだ重い正孔の等エネルギー面 ($\epsilon = \hbar\omega_{op}$ (37meV))
 (b)歪んだ重い正孔の等エネルギー面 (断面)と重い正孔のサイクロトロン運動の回転方向を波数空間中で示す。2本の斜線に挟まれたコーン内では「縦有効質量(サイクロトロン有効質量)」が負となり重い正孔は電子的回転運動を行う。灰色の色分けは $\langle 001 \rangle$ 方向ヘストリーミング運動をしている重い正孔の分布を示す。
 (c) $\langle 100 \rangle$ 方向に電場を印加した時の重い正孔の分布関数とエネルギー。重い正孔はエネルギーが高くなる k_z 軸周りに棒状に分布して、灰色の範囲内で反転分布を生じる。

多くの応用にとり出力は事実上もっと小さくても良く、その代わりにCW発振が実現されている方が使い勝手が良いと思われる。そのためには結晶温度上昇をいかに抑制するか、そしてエネルギー変換効率をいかに上げるかが重要となる。現状の機械式冷凍機的能力を考慮すると、エネルギー変換効率を1桁上げることができて 10^3 程度になれば、入力数Wで出力数mWのスイッチ一つで稼動するテラヘルツ光CW光源が実現できる可能性がある。CW化が実現された際には、パルス発振ではほぼ発振パルス幅フーリエ変換で決まっていた発振線幅(パルス幅 $2.5\mu s$ 時に900KHz以下)は更に狭くなり、発振線幅結晶の熱膨張や誘電率変化に起因してパルス発振時に25MHz程度発振周波数が低周波側にずれるチャージングの問題^[9]も解決するはずである。

以下、CW化に有効であると考えられている小型化、一軸応力、アクセプター不純物の変更、フォークト配置の適用について具体例を上げて検討する。

3.1 小型化

従来p-Geレーザーには $60 \times 5 \times 5mm^3$ 程度の結晶が用いられてきたが、これよりも小さな結晶を用いれば、それだけ発熱量が減少するのみ

ならず、表面積/体積の比が大きくなって冷却効率が上がるので、結晶温度の上昇が抑制され、音響フォノン散乱の増大が押さえられる。したがって、これだけでもCW発振を達成できる可能性がある。結晶の電極面にヒートシンクとしても作用する無酸素銅製のブロックを取り付けることも、結晶の冷却効率を上げるには重要である。

Gaをアクセプターとして $N_a = 1.0 \times 10^{14}cm^{-3}$ 含むp-Ge結晶を用いた場合を考える。発振が生じる最小電場は $E = 500V/cm$ ($B \sim 0.18T$)である。この時の電流密度は $J = 100A/cm^2$ である。したがって、入力電力密度は $P = E \times J = 5 \times 10^4 W/cm^3$ となる。結晶両側面のオーム性電極にヒートシンク兼外部電極として無酸素銅ブロックを取り付けてあるとし、この部分は液体ヘリウム温度4.2Kであるとする。ただし、電極面以外の結晶側面での冷却は小さいとして無視する。また、低温におけるGeの熱伝導率は $K = 0.5 W/cmK$ とした。結晶中心が20Kを超えないようにするために必要となる結晶の電極間距離 d を1次元熱伝導方程式を解いて求めると $d = 0.36mm$ 以下であれば良いことが分かる。表1に小型化によるデューティーサイクルの向上の例を示す。試料2、3では後述する一軸応力を印加している。

試料1、2を比較するとヒートシンクによる冷却効率向上と一軸応力による発振効率向上により、デューティサイクルが約1桁大きくなっている。試料2、3を比較すると小型化の効果で同じくデューティサイクルが約1桁大きくなっていることが分かる[10]。しかし、試料3より更に小さな $5 \times 1 \times 0.5 \text{ mm}^3$ の大きさ(電極間隔 $d=0.5 \text{ mm}$)の試料では発振に成功していない。結晶断面が小さくなると回折損が急激に増え発振が生じないものと思われる。

3.2 一軸応力

小型化は軽い正孔の音響フォノン散乱確率 τ_{ac}^{-1} の上昇を押さえることにより、軽い正孔の分布を減らさないようにする手段であった。軽い正孔の分布を減らさないようにするもう一つの手段は、イオン化不純物散乱確率 τ_{imp}^{-1} を抑制することである。これを実現するもっとも単純な方法は、アクセプター濃度を減少させることであ

るが、これは同時に正孔濃度を減少させ、結局、発振効率を下げてしまう点が問題である。

イオン化不純物による帯間散乱は散乱に伴う運動量変化が小さいほど大きな散乱確率を持つので、散乱は主に Γ 点近傍で起こっている。一軸の圧縮応力は Γ 点での価電子帯の縮退を解き(図8)、帯間散乱を著しく減少させる。その結果、正孔濃度の減少をもたらすことなく、イオン化不純物散乱確率 τ_{imp}^{-1} を抑制することが可能となる。一方で、一軸応力印加はIVB型発振に不利に働く面もある。一軸応力が大きくなり、これに伴って価電子帯の分離が大きくなってくると、重い正孔が光学フォノン散乱により軽い正孔に転換される割合合いが減少する。実際には重い正孔はストリーミング運動により $\varepsilon = \hbar\omega_{op}$ となり直ちに光学フォノンを放出するのではなく、 $\varepsilon > \hbar\omega_{op}$ なる領域に少々入り込んでから光学フォノンを放出する。そのため、幾分かのエネルギーを持って重い正孔帯または軽い正孔帯へと散乱

表1 小型化によるデューティサイクルの向上

試料	Size(mm ³)	Heat sink	Stress (kgf/cm ²)	E (kV/cm)	B (T)	V (V)	I (A)	P (kW)	Duty cycle
1	18 × 3.3 × 3.3	no	0	0.64	0.39	214	69	15	3×10^{-3}
2	20 × 3.5 × 3.5	yes	1000	0.46	0.26	165	65	11	1×10^{-4}
3	5 × 1 × 1	yes	1300	0.62	0.39	57.5	5.6	0.3	2×10^{-3}

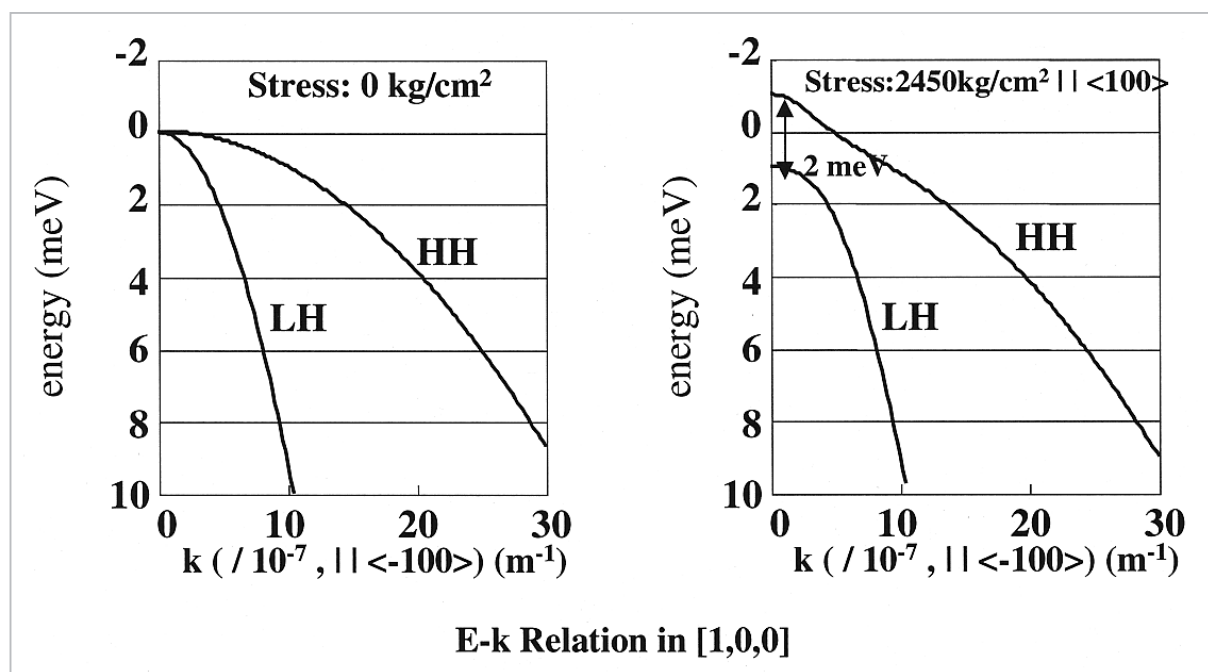


図8 一軸応力により Γ 点での縮退が解ける様子

される。価電子帯の分離が大きくなってくると散乱後に価電子帯の分離に相当するエネルギーを持っていないと軽い正孔帯へ入り込むことができなくなるためである。このように一軸応力の効果にはIVB型発振に対し有利に働く面と不利に働く面があるので、応力には最適値が存在すると予想される。図9に表1の試料3 ($5 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$) による発振光強度が一軸応力の大きさで変化する様子を示す[10]。検出器には1.5～3.75THzで感度を持つ圧縮型Ge:Ga検出器を用いた。ゼロ応力時には発振は生じなかった。応力をゼロから増していくに従って発振光強度は増え、4100 kgf/cm²でピークとなり、その後減少していることが分かる。また、発振が生じる最小電場は応力を増すに伴い大きくなっている。これは、軽い正孔への転換に際して必要なエネルギーを得るために、 $\varepsilon > \hbar\omega_{op}$ なる領域に深く入り込む必要があり、そのため大きな加速が必要となっていることの現れである。この実験結果は理論計算ともほぼ一致し、これらより、アクセプターとしてGaを $N_a = 1.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ 含む場合の一軸応力最適値は3500～4100 kgf/cm²であることが分かる。

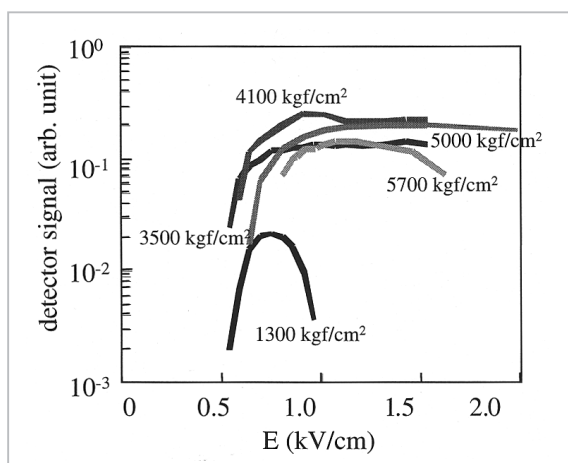


図9 表1の試料3での発振光強度の電場依存性を一軸応力の大きさをパラメータとして示す

3.3 アクセプター不純物の変更

小型化や一軸応力は領域K内の軽い正孔の非発光遷移を抑制することによる改善であった。これらと異なり、深い不純物を用いる改善方法は、軽い正孔の重い正孔帯への光学遷移により

生じたテラヘルツ光を有効に使うことに着目したものである。

Al、Ga、In等(主にGa)のイオン化エネルギーが10meV程度と浅い不純物がp-Geレーザー結晶に添加するアクセプターとして従来用いられて来た。それは、これらの浅いアクセプター不純物は2V/cm程度以上の電場によりほぼ完全に電離し、アクセプター濃度と等しい濃度を持つ自由正孔を作り出すことができるためである。アクセプターとしてGaを用いた場合、IVB型の発振周波数領域は1.0～1.8THzと2.1～4.2THzとの二つに別れており、その間に発振が生じない領域1.8～2.1THzがある。これは、アクセプターの基底準位と励起準位間の遷移に伴う吸収によると考えられている。前述の一軸応力を印加すればこの領域でも発振が生じる。これは一軸応力により増幅が吸収を上回ったためである。これらの浅いアクセプター不純物は6～12meVに吸収を持つため発振周波数領域全域においても、大きく発振効率を下げているのも考えられる[11]。

Be、Zn、Cuなどの2重アクセプターはイオン化エネルギーがそれぞれ25meV、33meV、40meVと大きく、これらの基底準位と励起準位間の遷移に伴う吸収はIVB型p-Geレーザーの発振エネルギー領域より大きなエネルギーにある。したがって、これらの不純物を用いた場合、いったん生じたテラヘルツ光が吸収されることがなく、発振効率が改善される。これらのアクセプターではイオン化エネルギーが大きいため、発振に十分な自由正孔濃度を得るためには、浅いアクセプターの場合より大きな濃度が必要となる。しかし、アクセプター濃度が大きすぎると、イオン化不純物散乱の影響が大きくなり発振が生じなくなるので、多ければ良いというわけではない。結果から言うと、Be添加のものが一番良い結果[12][13]を出しており、これまでに得られた最大のデューティーサイクルは 2.5×10^{-2} で、この場合不純物濃度は $N_a = 0.2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ である。一般には、不純物濃度は $N_a = 1.4 \sim 4.2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ 程度で効率が最大となり、電極間隔が3mm、長さが3mm程度の立方体に近い結晶を用いてデューティーサイクル $0.01 \sim 2 \times 10^{-2}$ が達成されている。さらに、このp-Ge(Be)レーザーでは、発振が生じない領域はなく、1～4THzの範

間で連続的に周波数可変である。

上記のBe、Zn、Cuなどの2重アクセプターを用いたp-Geレーザーは主に、カリフォルニアのローレンス・バークレー国立研究所のHallerらのグループにおいて、Bruendermannらを中心に研究されたものである[12][13][14]。

3.4 フォークト配置

フォークト配置を適用する発振効率の改善は、軽い正孔の重い正孔帯への光学遷移確率や重い正孔のストリーミングによる光学フォノン放出頻度 $1/T_{\text{op}}$ に着目したものである。

フォークト配置 (Voigt configuration) とは、媒質中を光が進む時、その進行方向と媒質に外部から印加されている磁場方向が直交する配置である。これに対し、光の進行方向と磁場方向が平行な配置をファラデー配置という。従来のp-Geレーザーでは、超伝導ソレノイドと比較的長い結晶(40～60mm)を用いるという技術上の理由から主にファラデー配置を採用していた。

両配置でのp-Geレーザー発振特性の最も大きな違いは、その偏光状態である。軽い正孔が領域Kに蓄積している状態での結晶母体と正孔系を合わせた誘電率テンソルには非対角成分が正孔系からの寄与として存在する。この場合、ファラデー配置での固有偏光は楕円偏光であり、フォークト配置での固有偏光は、光電場の振動面が外部磁場に垂直または平行のどちらかの直線偏光である。実際に発振がこのような偏光で生じることが確かめられている[15][16]。

光電場の振動面はファラデー配置では常に外部磁場に垂直である。光電場の振動面と外部磁場の関係によって、軽い正孔の重い正孔帯への光学遷移の選択則と確率が異なってくる。フォークト配置での光電場の振動面が外部磁場に平行な直線偏光の場合、軽い正孔の重い正孔帯への光学遷移はスピン・フリップを伴う[17][18]。この光学遷移確率は通常の場合(光電場の振動面が外部磁場に垂直)に比べ大きくなる[17]。実際に、フォークト配置でのスピン・フリップを伴った LHCCR 型発振 (Light Hole Combined Cyclotron Resonance) では、IVB 型発振と同程度の発振光強度を示す。この発振はファラデー配置での LHCR 型より低電場低磁場で発振するため実用上

興味深い。IVB 型発振の発振強度を両配置で比較するのは、配置以外の条件が変化してしまうため難しいが、いろいろな結晶方位を持つp-Ge結晶の両配置での結果[14]～[20]を総合するとやはりフォークト配置での発振強度が大きいと思われる。

さて、前にも述べたようにIVB型発振の場合、軽い正孔の散乱時間 τ が長い程、そして重い正孔の光学フォノン散乱時間 T_{op}^{h} が短い程相対的に軽い正孔の分布が増して、反転分布強度が増していく。重い正孔の光学フォノン散乱時間は $T_{\text{op}}^{\text{h}} = (2m_{\text{h}}^* \hbar \omega_{\text{op}})^{1/2} / eE$ である。重い正孔の有効質量には異方性があるため、電極面をどの結晶面に形成するかにより、電場を印加する結晶方位をうまく選んで T_{op}^{h} を小さくすることができるはずである。磁場がなければ、(100)面に電極を形成し、 $\langle 100 \rangle$ 方向に電場をすれば、この方向の重い正孔の有効質量は $m_{\text{h}}^* = 0.28m_0$ 程度[21]と最小値を示すために、 T_{op}^{h} を最小にすることができるが、実際には磁場により正孔軌道は曲げられるので、曲った軌道上での T_{op}^{h} 間の平均的な有効質量を最小にする必要がある。ここで問題となるのは、ホール電場である。ホール電場の影響で、結晶内での有効的な電場方向は外部印加電場方向と一致していない。ホール電場は、外部電場・磁場、磁場に垂直な面の試料断面形状で変化する。断面が正方形の直方体状結晶を用いた場合、ファラデー配置では印加電場とほぼ同程度の大きさのホール電場が生じる。フォークト配置では、ホール電場の影響はファラデー配置に比べ少ないので、重い正孔の異方性効果を調べるのに適している。

同じウェハ ($\text{Na} = 1.0 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$) から切り出した $18 \times 3 \times 3 \text{mm}^3$ 程度の大きさで、面方位の異なる結晶の比較では、ファラデー配置では、 $\langle 011 \rangle // B \times \langle 0-11 \rangle // E \times \langle 100 \rangle$ 、または $\langle 001 \rangle // B \times \langle 100 \rangle // E \times \langle 010 \rangle$ が、フォークト配置では $\langle 111 \rangle \times \langle 0-11 \rangle // E \times \langle -211 \rangle // B$ 、 $\langle 011 \rangle \times \langle 0-11 \rangle // E \times \langle 100 \rangle // B$ が良いようにみえる。ただし、計算で求めた結果との一致は必ずしも良くない。

発振効率の改善ではないが、フォークト配置では、一組のレアアース系永久磁石(残留磁束密度 $\sim 1.2\text{T}$)をp-Geレーザーロッド側面に貼付けて

～0.5T程度の磁場を印加することが容易にできる。この場合、図10、図11に示すようにレーザー装置の著しい小型化が可能となる[22][23]。また、マジックリングと呼ばれる磁気回路を用いると、リング内に～1.0T程度の磁場を作ることができる。磁場の大きさは、磁石材料と、リングの外径及び内径で決まる。このようなマジックリングで磁場の大きさが異なるものを3種類程度用意しておけば、IVB型p-Geレーザーの発振領域全体をカバーできる。

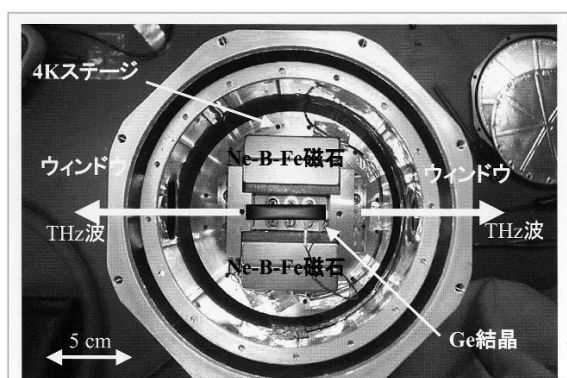


図10 小型レーザーシステムのクライオスタット内部

4 フォークト配置 HHCR 型発振

HHCR 型発振では円偏光を増幅するという点から電磁波の共振器中での進行方向は磁場方向と平行となる配置すなわちファラデー配置が従来採用されていた。このため、共振器内で発生した電磁波を外部に取り出すには電場印加に必要な電極を通して行わなければならない、電極兼共振器の鏡となる部分の製作にあたっては様々な制限があった。また、十分な増幅を得るために共振器長を伸ばそうとすると、これは電極間隔をも同時に広げることとなるため、同じ電場強度を得るために必要となる電圧が増し、発生するジュール熱が増えるなど不都合な点が多かった。フォークト配置にすると、電極と共振器鏡は分離でき、さらに、共振器長を伸ばしても電極間隔が増えることはないなど様々な点で好都合である。フォークト配置では、直線偏光が固有偏光であるために、縦有効質量が正負の正孔による吸収と増幅を分離できないのではないかと考えられていたが、実際には磁場を印加した

時点でこの問題は解決されており、直線偏光でも発振が可能である。事実、 $3.3 \times 3.3 \times 18\text{mm}^3$ の大きさ(電極間隔3.3mm)で、Gaを 10^{14}cm^{-3} 含んだ結晶を用いてフォークト配置での発振に成功している[24]。デューティー比 10^3 以上がこの結晶で達成されており、IVB型の場合と同様な考察から電極間隔0.6mm以下にすればCW発振が可能であると考えられる。また、図12に示す様に、フォークト配置ではHHCR型発振とIVB型発振とを簡単に切り替えることができ応用上の利点がある。

5 p-Ge レーザーを用いたパルス状テラヘルツ電磁波(THz パルス波)増幅の可能性

IVB 型 p-Ge レーザーの利得帯域は1.2THz～4.2THzの範囲にあり、前述したように同一の電場・磁場バイアスにおいて帯域幅は約1THzである[4]。そのため、フェムト秒(fs)レーザーにより励起された広帯域周波数成分を含むTHzパルス波の増幅器として適当である。CRL 関西支所THzグループ(谷正彦主任研究員ら)と共同でp-Geレーザーを用いてTHzパルス波を増幅することを試みた[25]。THz増幅器として、内部に大きさ $3.3\text{mm} \times 3.3\text{mm} \times 45\text{mm}$ の直方体状p-Ge単結晶がコールドステージ上に、光学軸(結晶の長手方向)が外部印加電界と磁界に直交するようにマウントしてある図10の小型卓上THz光源を用いた。

実験の配置を図13に示す。ZnTe結晶にfsレーザーパルス照射して発生させたTHzパルス波をp-Ge結晶に入射して、透過したTHzパルス波をもう一つのZnTe結晶上に集光した。THzパルス波の電場は、電気光学効果による参照fsレーザーパルスの偏光の変化をフォトダイオードを用いて検出した。THzパルス波の波形は、励起パルスと参照パルスとの時間遅延を変化させて計測した。THzパルス波とp-Ge結晶に印加する電界が同期している場合と同期していない場合とで、THzパルス波の波形とスペクトルに大きな変化が生じた。特に、2THz付近の周波数成分が大きく増幅されていること(図14)、さらに位相スペクトルシフトに大きな構造があること(図

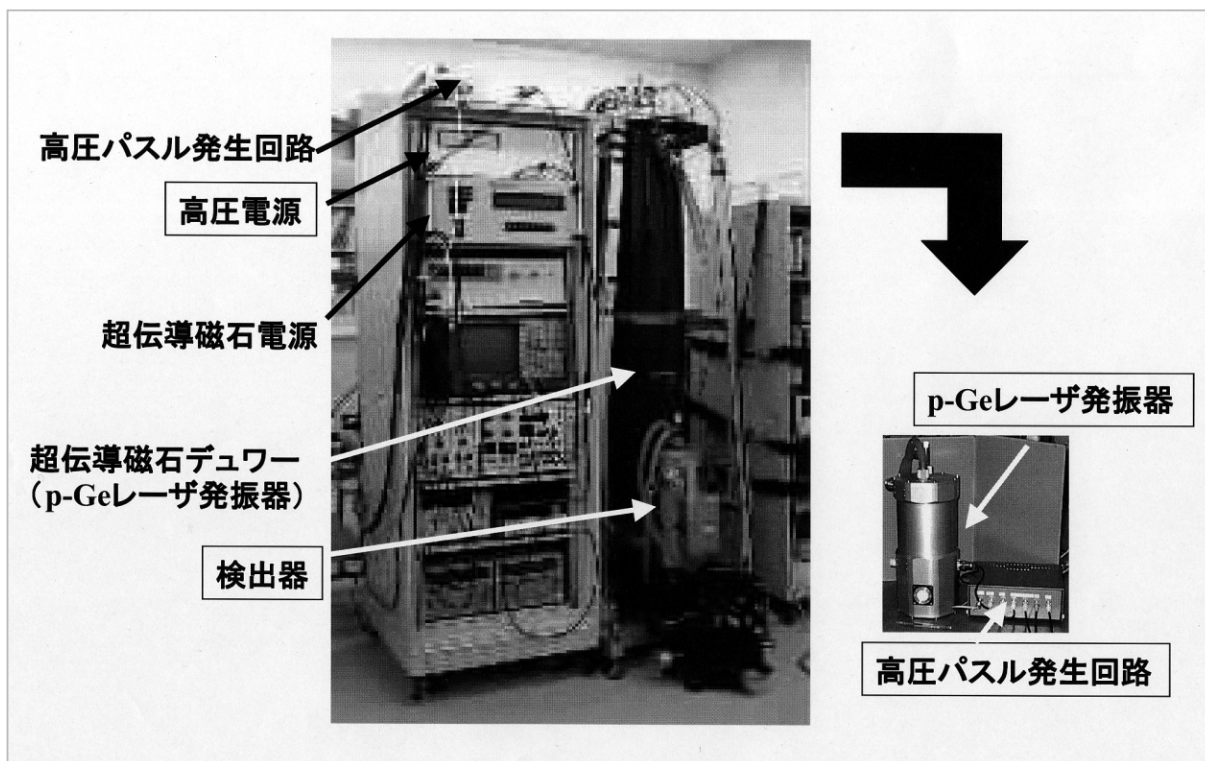


図 11 システムの小型化

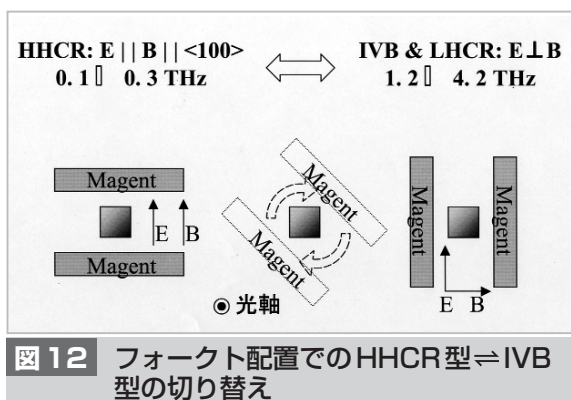


図 12 フォークト配置でのHHCR型⇔IVB型の切り替え

15)が見い出された。これら結果はTHzパルス波の増幅を強く示唆するものである。

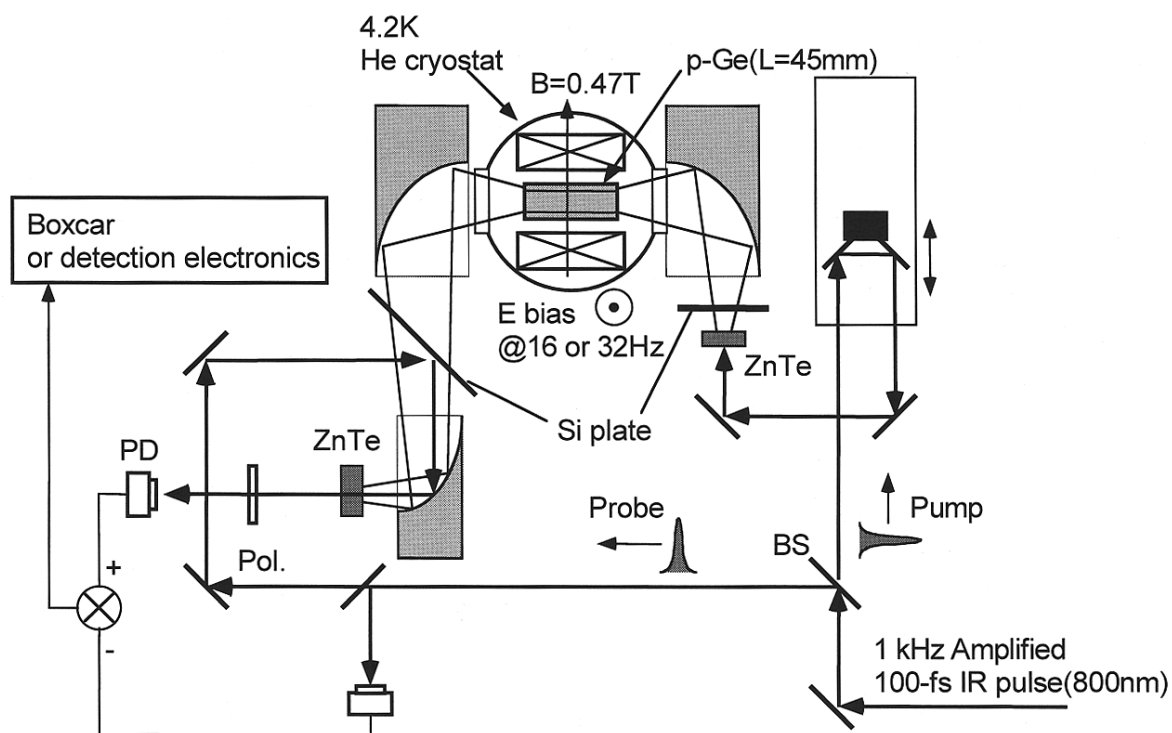
6 まとめ及び将来の展望

これまでに見てきたように、p-Geを用いた各種レーザーを用いると、70～375GHz (HHCR)、1.0～4.0THz (IVB、LHCR)と375～1000GHzの範囲を除く0.1～10THzの領域のかなりの部分を賄え、この範囲ではほぼ連続的に周波数可変である。さらに、各種発振のCW発振化も近い内に

達成されるであろう。CW発振時の出力は数十mW～数mWで、発振線幅は数KHz～数十KHzと思われる。このような特性から実際にCW発振が達成されれば、小型安定チューナブルテラヘルツ光源としての地位が約束されている。

本稿で取り上げた三つの機構のレーザー発振はGeのみならず、同じ4族元素であるシリコン (Si) の単結晶においても可能であると考えられている。Siでは浅いアクセプターの不純物準位がGeより深いため (例えばBeで45meV)、不純物準位の完全イオン化が難しく十分な自由正孔濃度得られずGeより難しいと考えられていた。IVB型レーザーの効率改善の項で触れたように、Geにおいて、数十meVのイオン化エネルギーを持つ不純物 (例えばCuでは40meV) によるレーザーが可能となってきたことから、Siを用いた場合でも十分に実現可能であると思われる。Siを用いた場合の利点としては、動作温度の高温化 (77K)、IVB型LHCR型レーザーの高周波数化 (～10THz)、HHCR型レーザーの高周波数化 (～1.5THz) 等があると考えられる。

パルス状THz電磁波増幅実験



[竇迫巖、谷正彦ほか：第62回応用物理学学会学術講演会 (2001)]

図 13 実験構成の概略図

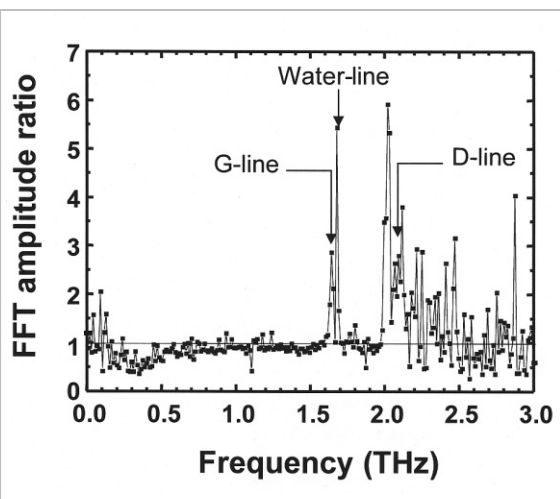


図 14 透過スペクトル

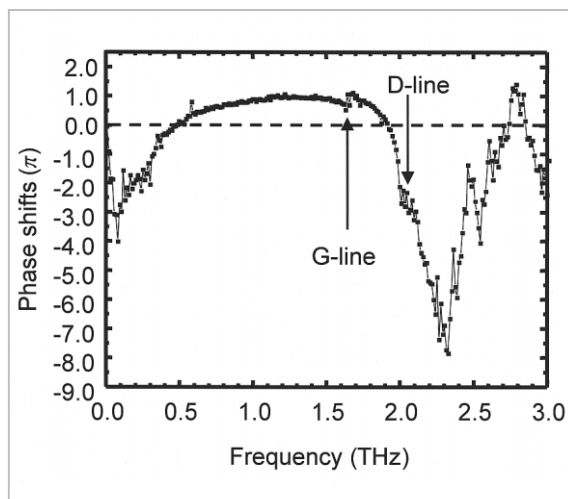


図 15 位相シフトスペクトル

むすび／謝辞 (Conclusion/Acknowledgment)

小宮山進教授（東京大学大学院総合文化研究科）には様々なアドバイスを長年にわたりいただいた。この場をお借りして感謝申し上げたい。

参考文献

- 1 A. A. Andronov, I. V. Zverev, V. A. Kozlov, Yu. N. Nozdrin, S. A. Palor and V. N. Shastin: Sov. Phys.-JETP Lett. 25, 804, (1984)
- 2 S. Komiyama, N. Iizuka and Y. Akasaka: Evidence for induced far-infrared emission from p-Ge in crossed electric and magnetic fields, Appl. Phys. Lett. 47, 958, (1985)
- 3 A. A. Andronov: Hot electrons in semiconductors and submillimeter waves (review), Sov. Phys. Semicond. 21, 701, (1987) Fiz. Tekh. Poluprovada. 21, 1153, (1987)
- 4 S. Komiyama, H. Morita, and I. Hosako: Jpn. J. Appl. Phys. 62, 3552, (1993)
- 5 E. Gornik and A. A. Andronov: Optical and Quantum Electronics, Special Issue on Far-infrared Semiconductor Lasers, Volume 23 Number 2, CHAPMAN AND HALL, (1991)
- 6 A. A. Andronov, A. M. Belyantsev, V. I. Gavrilenko, E. P. Dodin, E. F. Krasil'nik, V. V. Nikonov, S. A. Pavlov, and M. M. Shvarts: Germanium hot-hole cyclotron-resonance maser with negative effective hole masses, Sov. Phys. JETP 63, 211, (1986) Zh. Eksp. Teor. Fiz. 90, 367, (1986)
- 7 T. Korosawa and H. Maeda: Monte Carlo calculation of hot electron phenomena. I. Streaming in the absence of a magnetic field, J. Phys. Soc. Jpn. 31, 668, (1971)
- 8 A. A. Andronov, E. P. Dodin, and Z. F. Krasil'nik: , Sov. Phys. Semicond. 16, 133, (1982)
- 9 E. Bruendermann, H. P. Roeser, A. V. Muravjov, S. G. Pavlov, V. N. Shastin: Mode fine structure of the p-Ge intervalenceband laser measured by heterodyne mixing spectroscopy with an optically pumped ring gas laser, Infrared Phys. Technol. 36, 59, (1995)
- 10 N. Hiromoto, I. Hosako and M. Fujiwara: Far-infrared laser oscillation from a very small p-Ge crystal under uniaxial stress, Appl. Phys. Lett. 74, 3432, (1999)
- 11 V. N. Shastin, E. E. Orlova, A. V. Muravjov, S. G. Pavlov, and R. H. Zhukavin: Influence of shallow acceptor states on the operation of the FIR hot hole p-Ge laser, Int. J. Infrared and Millimeter Waves 17, 359, (1996)
- 12 E. Bruendermann, A. M. Linhart, L. Reichertz, H. P. Roeser, O. D. Dubon, W. L. Hansen, G. Sirmain, and E. E. Haller: Double acceptor doped Ge: A new medium for inter-valence-band lasers, Appl. Phys. Lett. 68, 3075, (1996)
- 13 E. Bruendermann, D. R. Chamberlin, and E. E. Haller: Thermal effects in widely tunable germanium terahertz lasers, Appl. Phys. Lett. 73, 2757, (1998)
- 14 E. Bruendermann, D. R. Chamberlin, and E. E. Haller: Novel design concepts of widely tunable germanium terahertz lasers, Infrared Phys. Technol. 40, 141, (1999)
- 15 S. Komiyama, S. Kuroda, and T. Yamamoto: Polarization of the far-infrared laser oscillation in p-Ge in Faraday configuration, J. Appl. Phys. 62, 3552, (1987)
- 16 I. Hosako and S. Komiyama: p-type Ge far-infrared laser oscillation in Voigt configuration, Semicond. Sci. Technol. 7, B645, (1992)
- 17 I. Hosako, S. Kuroda, S. Komiyama: Cyclotronresonance laser in p-Ge in the Voigt configuration, Proc. 20th Int. Conf. IR&MMW, 325, (1995)
- 18 L. A. Reichertz, O. D. Dubon, G. Sirmain, E. Bruendermann, W. L. Hansen, D. R. Chamberlin, A. M. Linhart, H. P. Roeser, and E. E. Haller: Stimulated far-infrared emission from combined cyclotron resonance in germanium, Phys. Rev. B 56, 12069, (1997)
- 19 L. E. Vorobjev, S. N. Danilov, V. I. Stafeev: Distribution function, population inversion and FIR gain of hot holes in germanium in crossed electric and magnetic fields, Optical and Quantum Electronics, 23, S195, (1991)
- 20 L. E. Vorobjev, S. N. Danilov, V. I. Stafeev: Generation of far-infrared radiation by hot holes in germanium and silicon in $E^{\wedge}H$ fields, Optical and Quantum Electronics, 23, S195, (1991)

- 21 G. Dresselhaus, A. F. Kip and C. Kittel: Cyclotron resonance of electrons and holes in silicon and germanium crystals, Phys. Rev. 98, 368, (1955)
- 22 K. Park, R. E. Peale, H. Weidner, and J. J. Kim: Submillimeter p-Ge laser using a Voigt-configured permanent magnet, IEEE J. Quantum Electron. 32, 1203, (1996)
- 23 E. Bruendermann, H. P. Roeser: First operation of a far-infrared p-germanium laser in a standard closed-cycle machine at 15 K, Infrared Phys. Technol. 38, 201, (1997)
- 24 I. Hosako and N. Hiromoto: p-Type germanium sub-terahertz maser oscillation in the Voigt configuration, Proc. IEEE 7th Int. Conf on Terahertz Electronics, 193, (1999)
- 25 寶迫巖, 谷正彦ら: p-Ge レーザーを用いた THz パルスの増幅、第 62 回応用物理学会学術講演会予稿集第 3 分冊, pp834, 13p-ZL-12, (2001)



宝迫 巖

基礎先端部門光エレクトロニクスグループ主任研究員 博士(理学)
固体物性、光エレクトロニクス、遠赤外分光



廣本 宣久

基礎先端部門 関西先端研究センター長 理学博士
光エレクトロニクス、遠赤外分光