



Title	電子ビーム励起による半導体レーザーに関する研究
Author(s)	岩井, 荘八
Citation	大阪大学, 1977, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/1603
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

電子ビーム励起による半導体
レーザーに関する研究

岩井 莊八

1977年

理化学研究所

半導体工学研究室

電子ビーム励起による半導体 レーザに関する研究

内 容 梗 概

本論文では、電子ビーム励起によるCdSとZnOレーザの発振機構を明らかにすることを目的として、高密度励起下での発光特性、および発振しきい値、レーザ波長などの発振特性について研究を行なった。本論文は8章からなり、以下に本論文の内容について概説する。

第1章 序 論

本章では、半導体レーザを励起するために用いられる電子ビーム励起法の特徴を、光励起、およびP-N接合による注入励起の方法と比較して述べる。電子ビーム励起法が半導体レーザの研究の中で占める役割を示し、本研究の目的を明確にする。

第2章 電子ビーム励起装置

本章では、電子ビーム励起によって半導体をレーザ発振させるために用いる電子ビームのパルス発生装置、およびレーザ光を観測するために用いる測定装置について述べる。

第3章 電子線による電子-正孔対の生成割合

本章では、半導体中に入射した高速電子によって生成される電子-正孔対の割合と分布について述べる。電子ビーム励起の場合の発光効率の中心に含まれる要素を説明し、CdSレーザの効率について述べる。

第4章 高密度励起による発光とV-ザ発振

CdS と ZnO からの発光を、10 K から 300 K の温度範囲で測定し、高密度励起の状態では、励起子-励起子間の衝突を伴う自由励起子からの発光 (P 発光) が強く存在することを示す。V-ザ発振は、主に P 発光の波長領域で起ることを示し、特に、80 K 以上の温度での V-ザ発振は P 発光のピークよりも長波長領域で起り、温度上昇に伴って長波長側へ大きく変化することから、高い温度での V-ザ発振は自己吸収の影響を強く受けることを明らかにする。

第5章 CdS V-ザにおける利得および損失

発振しきい値での、利得と損失との関係を明らかにするために、80 K 以上の一定温度において、共振器の長さや反射率の変化に伴う V-ザ波長の变化を測定する。この場合、P 発光に基づく利得曲線と自己吸収による損失曲線を用いて、発振しきい値における V-ザ波長の計算を行う。計算結果と測定値とがよく一致することを示し、V-ザ発振に及ぼす自己吸収の効果を明らかにする。更に、利得曲線と損失曲線の温度変化を考慮して V-ザ波長の温度係数の計算を行い、計算結果は V-ザ波長の温度依存性がバンドギャップの温度変化に比べて大きいことの測定結果と一致することを示す。

第6章 発振しきい値電流の温度依存性

CdSレーザの発振しきい値電流を80K以上の一定温度において測定し、共振器の長さを短くするに伴って、しきい値電流が増加することを示す。この場合、第5章で得られた計算結果を用い、利得と損失係数の波長依存性を考慮に入れて計算したしきい値電流の変化量は測定値と一致することを示し、利得と損失係数の変化と、しきい値電流の変化との関係を明らかにする。

一方、しきい値電流の測定値は温度にほぼ比例して増加する。利得および損失係数にレーザ波長の温度依存性を考慮に入れて計算されるしきい値電流の温度依存性は、測定結果とよく一致することを示す。

第7章 励起電流パルスによる熱的効果

電子ビームによって励起された半導体表面の急速な温度変化を、励起表面からの発光波長の変化から測定する方法を述べる。この方法を用いて励起パルス内の温度上昇、および、ダブルパルスの電子ビームによって励起パルス後の温度の減衰を測定する。この結果を用いて、励起パルス内のレーザ波長の急速な時間変化は、励起表面の温度上昇によることを明らかにする。

第8章 結論

本論文の第4章から第7章までに述べられた結果をまとめて述べる。

論文リスト

- (1) GaAs Laser under Electron Beam Excitation
S. Namba and S. Iwai
Scientific Papers Inst. Phys. Chem. Res. : 62 (1968) 44.
- (2) GaAs Laser under Electron Beam Excitation
S. Iwai and S. Namba
Scientific Papers Inst. Phys. Chem. Res. : 63 (1969) 61.
- (3) ZnO Laser by Electron Beam Excitation
S. Iwai and S. Namba
Appl. Phys. Letters : 16 (1970) 354.
- (4) Emission Spectra of ZnO and CdS under High Excitation
by Electron Beam
S. Iwai and S. Namba
Scientific Papers Inst. Phys. Chem. Res. : 65 (1971) 1.
- (5) ZnO Laser durch Elektronenstrahlanregung
S. Iwai und S. Namba
LASER und Angewandte Strahlentechnik : 2 (1971) 47.
- (6) Emission Spectra in CdS under High Excitation by Electron
Beam
S. Iwai and S. Namba
Appl. Phys. Letters : 19 (1971) 41.
- (7) Thermal Shift of Laser Wavelength in CdS during Excitation
Pulse of Electron Beam
S. Iwai and S. Namba
Japan J. appl. Phys. : 12 (1973) 1382.
- (8) Dependences of Laser Wavelength and Pumping Power at Threshold
on Cavity Length in Electron-Beam-Pumped CdS Laser
S. Iwai and S. Namba
Japan J. appl. Phys. : 14 (1975) 1005.

目 次

第 1 章	序 論	----- 1
第 2 章	電子ビーム励起装置	----- 7
第 3 章	電子線による電子-正孔対の生成割合	-----11
3-1	半導体での励起過程	
3-2	電子線励起レーザーの発光効率	
第 4 章	高密度励起による発光とレーザー発振	--- 19
4-1	序 言	
4-2	実験方法	
4-3	CdS レーザ	
4-4	ZnO レーザ	
4-5	ま と め	
第 5 章	CdS レーザにおける利得および損失	--- 35
5-1	序 言	
5-2	共振器長に対するレーザー波長の変化	
5-3	レーザー発振の利得曲線	
5-4	発振しきい値におけるレーザー波長の計算	
5-5	共振器の反射率によるレーザー波長の変化	
5-6	レーザー波長の温度依存性	
5-7	ま と め	

第 6 章 発振しきい値電流の温度依存性 57

6-1 序 言

6-2 励起電流に対する発光強度

6-3 共振器長に対するしきい値の変化

6-4 しきい値電流の温度依存性

6-5 まとめ

第 7 章 励起電流パルスによる熱的效果 71

7-1 序 言

7-2 励起表面の温度上昇

7-3 励起表面の温度減衰

7-4 励起パルス内でのレーザー波長の変化

7-5 まとめ

第 8 章 結 論 82

謝 辞

第1章 序 論

半導体レーザは小型で効率の高い光源として注目され、種々の材料を用いて研究が行われてきた。半導体レーザの発振波長は、数十ミクロンの赤外領域から0.33ミクロンの近紫外領域にまで拡がっており、混晶を用いることにより、発振波長を任意に変えることが可能である。また、温度、応力、磁場などの変化によっても発振波長を変えることができる。

半導体レーザは電子-正孔対の再結合に伴う発光を利用するものである。この発光を誘導放出に至らせるためには、電子-正孔対を高密度にする必要がある。その方法として、(i) 注入励起、(ii) 光励起、(iii) 電子線励起等の方法がある。これらの励起方法の中で、一般に用いられるのはP-N接合を通して電子あるいは正孔を注入する方法である。最初の半導体レーザは注入励起によるGaAsにおいて実現された。(1) それ以来、GaAsを中心として注入型レーザの研究が進められ、室温での連続発振が実現された。(2)

しかしながら、P-N接合を形成するのが困難な半導体が多く存在する。これらの半導体の中には発光効率が高く、レーザ素子として注目される材料もある。これらの半導体に電子-正孔対を高密度に生成させるには、光励起あるいは電子線励起の方法が有効である。この場合には、光あるいは電子線を半導体表面に照射することによって、電子-正孔対を発生させる。本論文は電子線励起の方法を用いたCdS、およびZnOレーザに関するものである。

電子線励起による半導体レーザの可能性は、(3)
1961年、Basovらによって提案されていく。
それ以後、種々の半導体を用いて試みられたが、
レーザ発振の報告は1964年に入ってからであり、
注入型レーザよりも2年遅れている。先ず、
BasovらによるCdSからの誘導放出が報告され、(4)
次いでBenoitによって、InAsとInSbからのレーザ
発振が報告された。(5) その後、II-V族およびII-VI
族化合物半導体など、多くの材料からのレーザ発
振が報告されており、発振波長はPbSeの $8.5\mu\text{m}$ (6)
から、ZnSの $0.33\mu\text{m}$ (7) まで拡がっている。特
に、II-VI化合物を用いて可視から近紫外領域のレ
ーザが得られている。

電子ビーム励起の方法を、注入励起、あるいは
光励起の方法と比較した場合、次のような特徴を
持つ。

(一)

P-N接合の形成が困難な材料、あるいは高抵抗
の材料についても電子-正孔対を高密度に励起す
ることかできる。光励起の場合、励起光はその材
料のバンドギャップよりも大きなエネルギー($h\nu$)
を持つことが一般に必要である。これに対して、
電子ビーム励起の場合は入射電子のエネルギーが
大きいため、バンドギャップに関係なく用いる
ことかできる。

(二)

P-N接合近傍の活性領域では不純物濃度が高く
また、濃度勾配が生じる場合が多い。電子ビーム
励起の場合には、不純物濃度を任意にでき、また
均一な材料を用いることかできる。これによって
不純物濃度に対する発振波長、しきい値、効率、
等の変化が測定されている。(8)

(三)

光励起の場合には、励起光の吸収係数が大きい
ために、励起される領域は表面近傍に限られるが、
電子ビームの場合には加速電圧によって深い部分
まで励起することか可能である。このために活性
領域を大きくとることかでき、高電圧、大電流の
ビームによって 10 MW の出力が得られている。(7)

(四)

固体、あるいは気体レーザからの光パルスに比
較して、電子ビームの場合には、ビームの強度は
安定しており、強度の変も容易である。また、
電子ビームは偏向が容易であるため、発振部分を
高速度に変化させることかできる。

以上のような利点かあるか、高圧電源、および
排気系などの装置か必要なために、実用的な面か
ら注目は注目の装置か必要ない。注目されている。
しかし、電子ビーム励起の場合には P-N 接合を作
るための装置と高度な技術か必要であるために、
結晶の取扱いが簡単になり、発振特性を上げる
ための研究手段としては優れている。

電子ビーム励起の方法は上に述べたように全て
の半導体に適用できるものであるが、特に、II-VI
族化合物半導体に対して有利である。II-VI 族化合物
の中には可視から紫外の波長領域に発光スペクト
ルを持ち、また発光効率の高い材料も多い。しか
しなから、これらの材料に対して良好な P-N 接合
を作ることは現在では困難である。分子線エピタ
キシー等の方法によって良好な接合を得る試みか
されておき、将来、結晶成長法の改良に伴って
II-VI 族化合物を用いた可視域での半導体レーザか期
待される。

このようなII-VI族化合物の注入型レーザの可能性を考へ、レーザ発振の諸特性を検討することは必要である。II-VI族化合物からのレーザ発振は、電子線励起、および光励起の方法を用いて報告されてきたが、発振特性に関する詳細な研究はあまり行なわれていない。本論文では、II-VI族化合物の中で特にCdSとZnOを取り上げ、電子線励起の方法を用いて発振機構などの特性をしらべた結果を述べる。

第2章では電子ビーム励起の装置について述べ、第3章では電子ビームによって半導体中に生成される電子-正孔対の励起過程、および効率など、電子ビーム励起に伴う一般的な事柄を述べる。第4章以下において本研究で行なわれた実験結果について述べる。

第4章では高密度励起におけるCdSおよびZnOからの発光とレーザ発振の測定から、レーザ発振は励起子-励起子間の衝突を伴う励起子からの発光(P線)によることを示す。80K以上の高温度ではP線による発光の長波長の領域においてレーザ発振を観測されること、およびレーザ波長の温度依存性がバンドギャップに比べて非常に大きいことを観測し、レーザ発振に及ぼす自己吸収の影響が大きいことを示す。

第5章では、P線の発光による利得曲線、および自己吸収による損失曲線を主体としたモデルを用い、発振しきい値におけるレーザ波長の計算を行なう。この計算結果は、80Kと300Kでの共振器長および反射率に対するレーザ波長の変化の測定値とよく一致することを示す。このモデルから計算されるレーザ波長の温度依存性は、測定値とよく一致する。これらから、レーザ発振に及ぼす自己吸収の効果を、より明らかにする。

第 1 章 文 献

- 1) R. N. Hall et al. : Phys. Rev. Letters 2 (1962) 366.
M. I. Nathan et al. : Appl. Phys. Letters 1 (1962) 62.
T. M. Quist et al. : Appl. Phys. Letters 1 (1962) 92.
- 2) I. Hayashi et al. : Appl. Phys. Letters 17 (1970) 109.
- 3) N. G. Basov et al. : Advances in Quantum Electronics
(ed. J. R. Singer. Columbia Univ. Press 1961) p. 496.
- 4) N. G. Basov et al. : Soviet Physics-Doklady 2 (1964) 288.
- 5) C. Benoit a la Guillaume and J. M. Debever : Solid-State
Communication 2 (1964) 145.
- 6) C. E. Hurwitz, A. R. Calawa and R. H. Rediker : IEEE
J. Quantum Electronics QE-1 (1965) 102.
- 7) C. E. Hurwitz : Appl. Phys. Letters 2 (1966) 116.
- 8) D. A. Cusano : Appl. Phys. Letters 7 (1965) 151.
- 9) J. L. Brewster : 10th Symposium on Electron, Ion and Laser
Beam Technology (Washington 1969) p. 209.

第2章 電子ビーム励起装置

半導体を電子ビームによってレーザー発振させるためには、試料の共振器長(0.1~1 mm)にわたって高い電流密度が必要である。また、表面再結合による発光効率の低下を避けるために、高い加速電圧が好ましい。本研究では従来から用いられてきた陰極線励起発光の装置を改良して用いた。

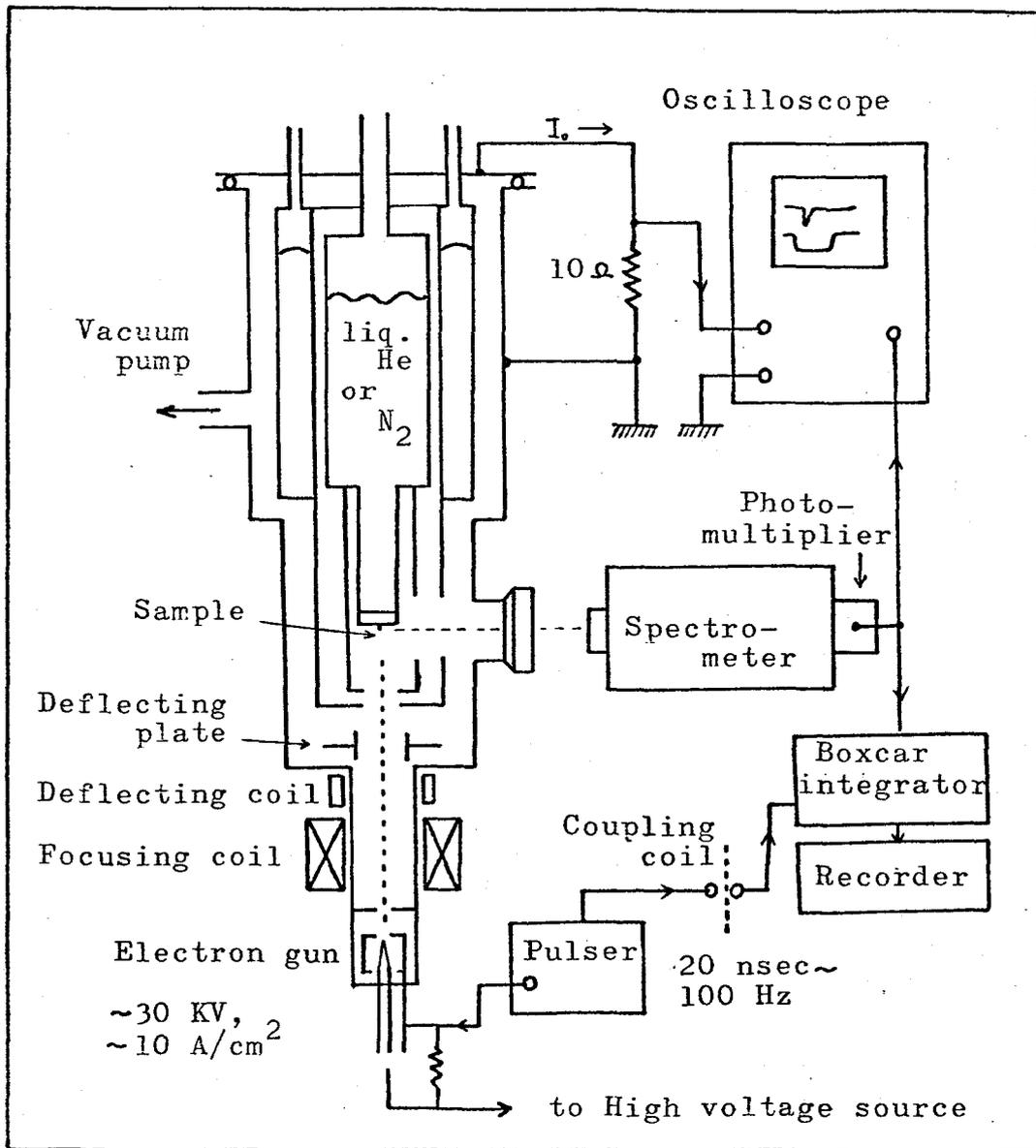


図2-1 電子ビーム装置と測定系

図 2-1 は電子ビーム励起装置と測定系の概略図を示す。この装置は電子銃と試料を冷却するための液体ヘリウム用クライオスタットから構成され、共通の排気系に接続されている。電子ビームの加速電圧は最高30 kVであり、アノード側が接地されている。カソードは直径0.3 mm ϕ のタングステン線を用いたヘアピン型のフィラメントである。これによって電子ビームの全電流は最大30 mAが得られた。

電子ビームの中心から半径方向の電流分布は、一般にガウス型で近似され、試料面上における電流密度 $I(r)$ は半径 r に対して次のように表わされる。

$$I(r) = (I_0/\pi a^2) \cdot \exp(-r^2/a^2) \quad (2-1)$$

ここで、 I_0 は全電流、 a は電流分布の拡がり程度を示す。 $(I_0/\pi a^2)$ はビームの中心における電流密度を示す。用いられた電子ビームの場合、 a の値は約0.3 mmと測定された。従って、中心での電流密度は、最大10 A/cm²が得られる。また、試料の共振器長は通常0.2 mmのものを用いられ、この場合には試料面上における電流密度の不均一は10%以下に抑えられる。

レーザー発振に必要な電流密度は約1 A/cm²であるために、試料の急激な温度上昇がある。この温度上昇を避けるためには電子ビームをパルス的に照射するか、ビームを高速度で掃引する方法がある。ここではパルス動作を行なうために、ウエネルト電極をカソードに対して負の電位にしてカットオフ状態に保ち、短かい正のパルスを加えてビームを取り出す。パルス幅は20 nsecから0.5 μ sec

まで連続可変である。パルスの繰返周波数は通常
 100 Hz であり、ダブルパルスも可能である。
 パルス発生器はサイラトロンを使用しており、
 パルス波形の歪みを防ぐために電子銃の近傍に取
 付けられている。カソード側に負の高電圧が掛け
 られているのでパルス発生器は高電位に保たれ、
 絶縁棒によって制御される。パルス発生器から測
 定系への同期信号は結合コイルを通して伝達され
 る。

電子ビームの偏向は2組の偏向ユイルによって
 行なわれ、試料の最適な部分が照射されるように
 微動可能である。一方、励起パルス内での急速な
 偏向は、一對の偏向枚によって行なわれる。

図2-2は試料の取付け方法を示す。試料は銅の
 ヒートシンクに張り付けられクライオスタットの
 下端に取付けられる。(1)はレーザ発振を観測する
 場合であり、励起面と直角な一對の平行面を反射
 鏡としてレーザ発振させる。(2)は自然放出光を観
 測する場合であり、励起面から垂直方向に放出さ
 れる光を検出する。これは励起面に添って伝播す
 る間の増幅あるいは吸収の影響を避けるためであ
 る。ヒートシンクの近傍に付けられたスリットは

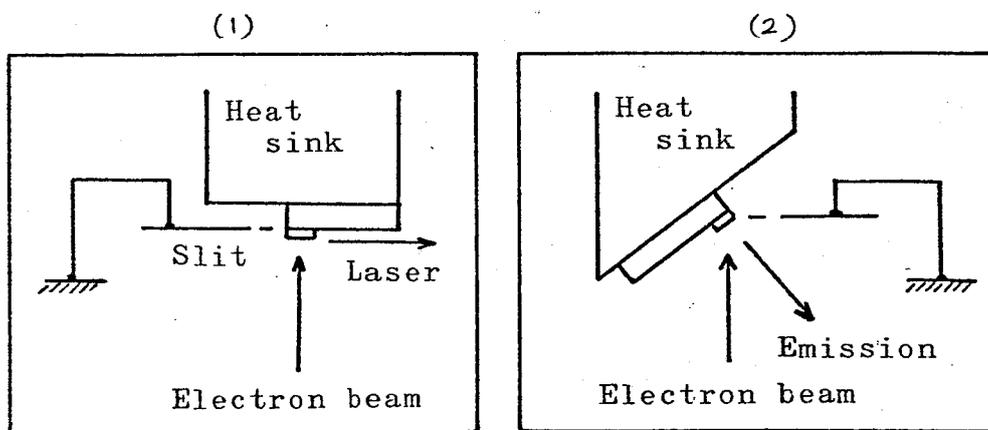


図 2-2 (1) レーザ光

(2) 自然放出光

第3章 電子線による電子-正孔対の生成割合

§ 3-1 半導体内での励起過程

固体中に高速電子線が入射した場合、結晶格子との相互作用によって種々の効果が生起される。これらの効果は入射電子のエネルギーに依存して変化する。本実験で用いられた数十keVの電子が入射した場合、入射電子は原子とのカスケード衝突を繰返しながら電子-正孔対を次々に発生させる。本章では、レーザ発振に必要な電子-正孔対の生成割合について述べる。

半導体表面に電子が入射した場合、表面近傍での原子との弾性あるいは非弾性衝突を行なうことにより入射電子の一部は反射される。反射される割合は原子の質量と共に増加することから示されている。(1) 例えば、CdSやGaAsでは入射電子の約30%が反射される。

半導体中に侵入した高速電子は格子との衝突を繰返しながらエネルギーを失ない、原子をイオン化するに必要なエネルギーより小さくなる位置まで入る。固体の密度を ρ とすれば、入射電子の侵入する深さ d は電子の加速電圧 V に対して一般に次のような関係がある。

$$d \propto V^m / \rho \quad (3.1)$$

ここで、 m は($m > 1$)なる数である。CdSの場合に実験的に求められた d の値は次のように表わされている。(2)

$$d = 1.4 \times 10^2 \times V^{1.75} \quad (3.2)$$

ここで、 d は μm 、 V は KV の単位である。
 入射電子の励起によって作られた電子は、それ自身も高エネルギーを持ったために更に電子-正孔対を発生させる。このようにして次々に生成された電子と正孔は、それぞれ、伝導体および価電子帯を満たし、 10^{-13} 秒程度の短時間で準平衡状態に達する。このような状態における電子と正孔は、各々の擬フェルミ準位、 F_e と F_h を用いた分布函数で表わされる。電子と正孔の密度が増加すると共に擬フェルミ準位のエネルギー差は増大し

$$(F_e - F_h) > h\nu \quad (3.3)$$

の場合にいわゆる分布反転が形成される。ここで $h\nu$ は放出光のエネルギーを示す。

電子ビーム励起によって一組の電子-正孔対を作るには、バンドギャップのエネルギー E_g よりも大きなエネルギーが必要である。即ち、電子と正孔の運動エネルギーの平均値を $\langle E_e \rangle$ および $\langle E_h \rangle$ で表わし、格子振動の励起を通して失われる熱損失を E_T で表わすと、生成エネルギー ϵ は

$$\epsilon = E_g + \langle E_e \rangle + \langle E_h \rangle + E_T \quad (3.4)$$

で表わされる。(3)

伝導帯および価電子帯をエネルギー E に関して放物線型と仮定し、各々のバンドは準位 E_i まで電子と正孔で満されているとする。ここで E_i は衝突イオン化エネルギーとみなされる。バンドの

状態密度を $D(E)$ で表わすと、 $\langle E_e \rangle$ は次のように与えられる。

$$\langle E_e \rangle = \frac{\int_0^{E_i} E \cdot D(E) dE}{\int_0^{E_i} D(E) \cdot dE} \quad (3.5)$$

放物線型とすれば $D(E) \propto E^{1/2}$ で表わされ、 $\langle E_e \rangle = 0.6 E_i$ が得られる。同様に、 $\langle E_h \rangle = 0.6 E_i$ が得られる。従って、生成エネルギー ϵ は

$$\epsilon = E_g + 1.2 E_i + E_T \quad (3.6)$$

で与えられる。

一方、 ϵ の値が各種の半導体で測定されており GaAs では、 $\epsilon = 4.6 \text{ eV}$ ⁽⁵⁾、CdS では $\epsilon = 7.5 \text{ eV}$ ⁽⁶⁾ が得られている。これらの生成エネルギー ϵ をバンドギャップ E_g に対してプロットすると次のような実験式が得られている。 ⁽⁴⁾

$$\epsilon = 2.8 E_g + E_T, \quad (0.5 < E_T < 1.0 \text{ eV}) \quad (3.7)$$

(3.6) と (3.7) 式から、衝突イオン化エネルギー E_i は $E_i = 1.5 E_g$ と求められる。(3.7) 式からわかるように、一組の電子-正孔対が生成されるときには、 E_g の約3倍のエネルギーが消費される。

入射電子はエネルギーを失ないながら表面から侵入していく。深さ方向に対するエネルギー損失の割合を $(-dE/dZ)$ で表わすと電子-正孔対の生成割合は深さ方向 Z に対して次のように表わされる。

$$N(z) = \frac{J}{q \cdot e} \left(- \frac{dE}{dz} \right) \quad (3.8)$$

ここで、 J は電流密度、 q は電荷を表わす。

電子ビームのエネルギー損失の割合を、簡単に深さ方向に対して一定と仮定し、電子ビームの侵入する深さの平均値を d 、加速電圧を V とすれば

$$\left(- \frac{dE}{dz} \right) = \frac{qV}{d} \quad (3.9)$$

で置き換えられる。 V を kV 、 d を μm 、 e を eV 、 J を A/cm^2 の単位で用いれば(3.8)式は

$$N = 6.25 \times 10^{25} \left(\frac{V \cdot J}{e \cdot d} \right) \quad (cm^{-3} \cdot sec^{-1}) \quad (3.10)$$

で表わされる。

(dS)の場合、 $e = 7.5 eV$ 、加速電圧 $V = 25 kV$ に対する d は約 $2 \mu m$ であるから、 $J = 1 A/cm^2$ 当りの電子-正孔対の生成割合は約 $N = 10^{26} cm^{-3} sec^{-1}$ と計算される。レーザ発振に必要な電流密度は、後で述べるように、 $1 A/cm^2$ のオーダーである。電子-正孔対の再結合による寿命は約 10^{-9} 秒であるから、発振のしきり値電流では $10^{17} cm^{-3}$ 程度の電子および正孔が存在する。

§ 3-2 電子線励起レーザーの発光効率

電子ビーム励起によって生成された電子-正孔対は、直接に再結合したり、あるいは不純物準位や励起子準位を介して再結合する。これに伴ってバンドギャップ E_g に対応する光 ($h\nu \approx E_g$) が放出されるので、レーザー発振における全効率は次のように表わされる。

$$\text{全効率} = (1 - S) \times \frac{E_g}{e} \times \eta_{ex} \quad (3.11)$$

ここで、 S は入射電子が表面で反射する割合を示す。 η_{ex} は一つの電子-正孔対からレーザー光として外部に放出される割合を示し、次式のように与えられている。(7)

$$\eta_{ex} = \eta_{in} \times G \times F \quad (3.12)$$

ここで、 η_{in} は一つの電子-正孔対から光が放出される確率を示す内部量子効率である。 G は全発光に対する誘導放出光の割合を示す。 F は誘導放出光の中でレーザー光として共振器の端面から放出される割合を示す。これらの項を以下で説明する。

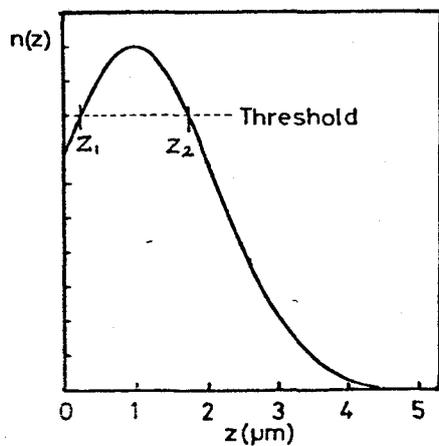


図 3-1

深さ方向 (z) に対する電子-正孔対の生成割合の相対値 $n(z)$ の一例。加速電圧 20 kV。

G の値は電子ビームによって励起された電子-正孔対の濃度分布を考慮して次のように考察されている。(7) 図3-1に示したのは深さ方向 z に対する電子対の生成割合 $n(z)$ である。この場合 $n(z)$ は次のように規格化されている。

$$\int_0^{\infty} n(z) dz = 1 \quad (3.13)$$

この $n(z)$ を用いて G の値は次のように表わされる。

$$G = \int_{z_1}^{z_2} n(z) dz - \left(\frac{P_{th}}{P_{in}} \right) n(z_0) (z_2 - z_1) \quad (3.14)$$

ここで、 P_{in} は励起入力、 P_{th} は誘導放出を起すためのしきい値入力を示す。 z_0 は生成割合の最大値を持つ深さを示し、 z_1 と z_2 は誘導放出を起こす領域を表わす(図3-1)。 $n(z)$ の形をガウス分布型で近似して計算した G の値を図3-2に示す。 G の値は励起入力の増加と共に増大して1に近づく。

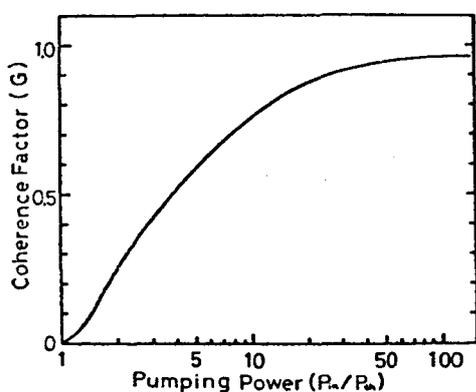


図3-2

励起強度に対する誘導放出光の割合 (G) の変化。
(P_{in}/P_{th}) は、しきい値に対する入力の割合。

F は誘導放出光の中でレーザ出力として共振器の端面から放出される光の割合を表わす。試料内における吸収損失と共振器の端面から透過する出力の割合を考慮すると、F は次のように表わされる。

$$F = \frac{\ln(1/R)}{\alpha L + \ln(1/R)} \quad (3.15)$$

ここで、 α はレーザ波長における損失および回折による損失の係数を表わす。L と R は、それぞれ共振器の長さおよび反射率を示す。このように、L の増加と共に F の値は減少する。

CdS の試料 ($L = 200 \mu\text{m}$) を 80 K の温度において 30 kV の電子ビームで励起した場合、発振のしきい値電流は 0.8 A/cm^2 であった。図 3-2 からビーム電流が 10 A/cm^2 のときの G の値は 0.8 である。また、損失係数 $\alpha = 50 \text{ cm}^{-1}$ 、反射率 $R = 0.22$ を (3.15) 式に代入すると $F = 0.6$ が得られる。(3.11) 式に $E_g = 2.5 \text{ eV}$ 、 $E = 7.5 \text{ eV}$ 、 $S = 0.3$ および $\eta_{in} = 1$ の値を代入すると全効率は 11% と計算される。

効率を測定する場合、 $200 \mu\text{m}$ の共振器長を持つ試料を幅 $20 \mu\text{m}$ の細長いスリットを通して励起を行なった。加速電圧 30 kV、ビーム電流 10 A/cm^2 で励起した場合の試料への入力電力は 6 W である。この場合、共振器の両端からの出力は約 0.5 W と測定された。従って 8% の効率を得られ、計算値の 11% とよく一致する。

第 3 章 文 献

- 1) D. B. Brown and R. F. Ogilve : J. Appl. Phys. 35 (1964) 2793.
- 2) H. Aritome, M. Kawabe, K. Masuda and S. Namba : sci. Papers I.P.C.R. 63 (1969) 66.
- 3) C. A. Klein : Proc. Int. Conf. Semiconductors Physics, Kyoto (1966) 307.
- 4) C. A. Klein : J. Appl. Phys. 39 (1968) 2029.
- 5) D. B. Wittry and D. F. Kyser : J. Appl. Phys. 36 (1965) 1387.
- 6) N. F. Malyuk et al. : Soviet Phys. Solid State 8 (1967) 2513.
- 7) C. A. Klein : IEEE J. Quantum Electronics QE-4 (1968) 186.

第4章 高密度励起による発光とレーザ発振

§ 4-1 序 言

電子ビーム励起の方法を用いて、多くのII-VI族化合物半導体からレーザ発振が観測されてきた。その中でCdSからの誘導放出が1964年にBasovらによって最初に報告された。⁽¹⁾ ZnOレーザは1966年、Nicollによって報告された。⁽²⁾ CdSは良好な単結晶が容易に得られるために、比較的よく研究されている。一方、ZnOレーザに関してはまだ行なわれていない。

CdSおよびZnOからの発光は、従来、光励起の方法によって観測され、励起子に起因する種々の発光線が報告されている。これらの発光線は自由励起子および束縛励起子、それらの励起子とフォノンとの相互作用を伴う発光機構などによって説明されている。レーザ発振に寄与する発光機構もこのような弱励起による発光線に対応させて説明されてきた。それによると、 Γ 点では L フォノンの放出を伴う自由励起子からの発光(E_x-L)によると言われ、⁽³⁾ A_2 点では束縛励起子からの発光によると報告されている。⁽⁴⁾

最近、高密度励起下における半導体からの発光が注目され、電子線あるいはレーザ光励起によるCdS⁽⁵⁾、ZnO⁽⁶⁾等において新しい発光線が観測されている。

この章では、電子線励起による高密度励起下でのCdSおよびZnOからの発光を10Kから300Kの温度範囲で測定した結果を述べ、この発光とレーザ発振との関係を明らかにする。

§ 4-2 実験方法

CdS および ZnO の単結晶は昇華法によって作られたもので、厚さ数ミクロンの板状結晶が用いられた。図 4-1 は試料および励起方法を示す。電子線によって励起される面は結晶の成長面 (10T0) である。Fabry-Perot 型の光共振器は、この成長面に直角で c 軸に平行な一組の劈開面 (1 $\bar{2}$ 10) によって作られている。一般に用いられた試料の長さは約 1 mm、共振器の長さは 200 μm であった。試料は平滑な銅板に真空グリース、または銀ペーストで張り付けられ、液体ヘリウムクライオスタットに取り付けられた。結晶からのレーザー光は励起面に平行な方向から観測される。一方、自然放出光は励起面に垂直な方向から観測される。

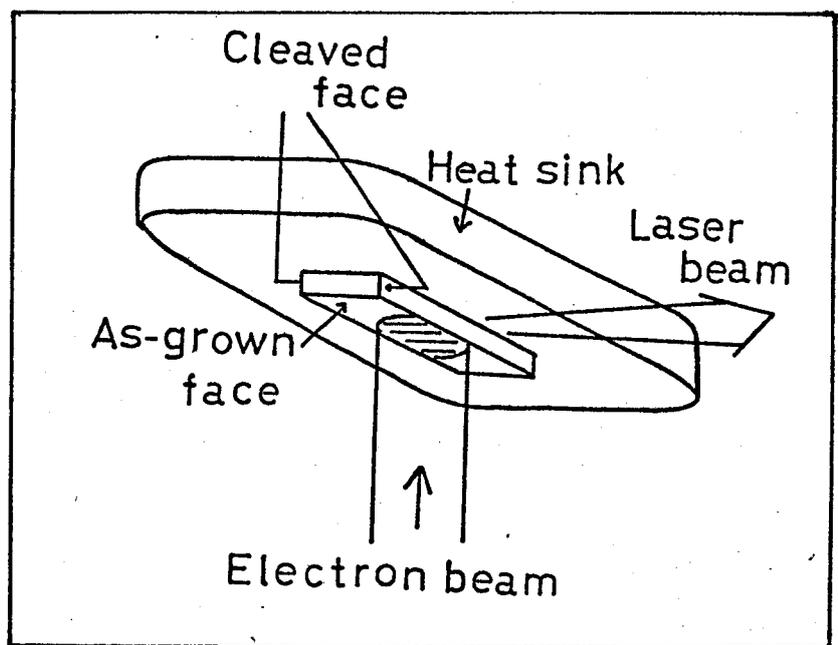


図 4-1 電子ビーム励起による半導体レーザーの実験方法。

§ 4-3 CdS レーザ

レーザ発振に寄与する発光をしろるために、高密度励起におけるCdSからの発光を測定した。結晶内での吸収あるいは増幅の効果を避けるために、20KVの電子線による励起表面から垂直に放出される光を観測した。

図4-2は10Kの温度における発光スペクトルの励起強度に対する変化を示す。励起強度の弱い場合には4870ÅのI₂で示した発光が強い。この発光は中性ドナーに捕えられた束縛励起子からの発光である。(7) (E_x-LO)と(E_x-2LO)は、1つおよび2つのLOフォノンの放出を伴う自由励起子からの発光であり、発光エネルギー(hν)は、各々、次のように与えられる。

$$h\nu_1 = E_0 - \hbar\omega \quad (4.1)$$

$$h\nu_2 = E_0 - 2\hbar\omega$$

ここで、E₀は励起子の基底準位、 $\hbar\omega$ はLOフォノンのエネルギーを示す。CdSの場合、E₀ = 2.554 eV, $\hbar\omega$ = 0.037 eVを代入すると、 $h\nu_1 = 2.517$ eV, $h\nu_2 = 2.480$ eV が得られる。これらの値は実測値 ($h\nu_1 = 2.517$ eV, $h\nu_2 = 2.477$ eV) とよく一致する。

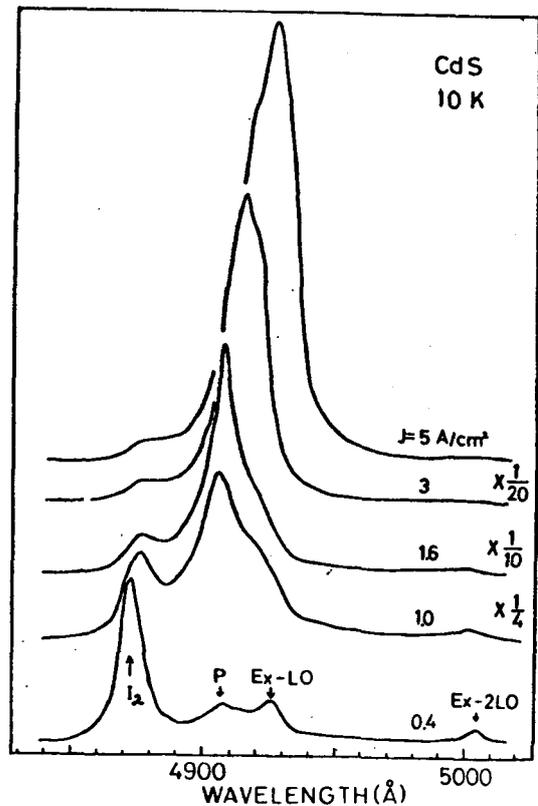


図4-2 励起強度に対する発光スペクトルの変化。

励起強度の増加に伴って I_2 線の長波長側に発光が現われ、 I_2 線と重なって観測される。この発光は励起子分子からのものと言われ、最近多くの研究が行なわれている。(9)、(10)

励起強度が更に増加すると $(E_x - LO)$ の短波長側に P で示した発光が増大する。この発光は励起子間の衝突を伴うもので、励起子が再結合して発光する際に、他方の励起子が電子-正孔対に解離すると考えられる。この場合、発光のエネルギー $(h\nu)$ は励起子準位 (E_0) から励起子の解離エネルギー、即ち、励起子の結合エネルギー (E_b) だけ低エネルギー側に表われる。従って、発光波長は、

$$h\nu = E_0 - E_b \quad (4.2)$$

で与えられる。CdS の場合、 $E_0 = 2.554 \text{ eV}$ 、 $E_b = 0.027 \text{ eV}$ を (4.2) 式に代入すると $h\nu = 2.527 \text{ eV}$ が得られる。この値は P 線の測定値 ($h\nu = 2.527 \text{ eV}$) とよく一致する。

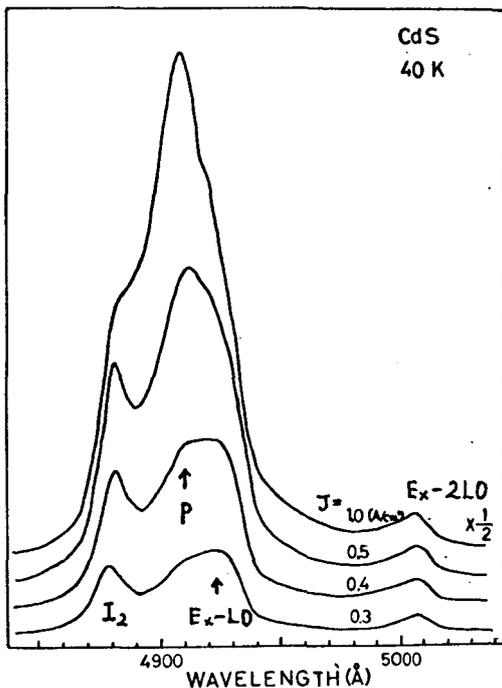


図 4-3

40 K における励起電流に対する発光スペクトルの変化。

図4-3は40 Kにおける発光スペクトルを示す。温度上昇に伴って束縛励起子が解離するためI₂の発光が弱くなり、それに対し自由励起子による(E_x-L0)の発光強度が強くなる。励起強度の増加とともに、(E_x-L0)発光の短波長側の発光強度が増大する。この発光は(E_x-L0)とは明らかに異なるものであり、10 Kでの発光と比較することによってP線によることがわかる。

図4-4は80 Kにおける発光スペクトルの変化を示す。励起強度の低い場合には、Eと(E_x-L0)で示した2つのピークが観測される。Eで示した発光はI₂線の長波長側に現われる。80 Kの温度では束縛励起子、および励起子分子は解離しているために、E線の発光はこれとは異なる発光と考えられる。この発光は励起子と電子との衝突を伴う発光と言われている。^{(5), (10)}

励起強度の増加とともに、先ず、E線が強くなり、次いで、E線の長波長側の発光が増大する。この発光は(E_x-L0)発光よりは短波長側であることから、40 Kでの発光スペクトルから類推して、P線による発光と考えられる。また、発光強度が励起強度の約2乗に比例することから励起子-励起子衝突に伴う発光と考えられる。

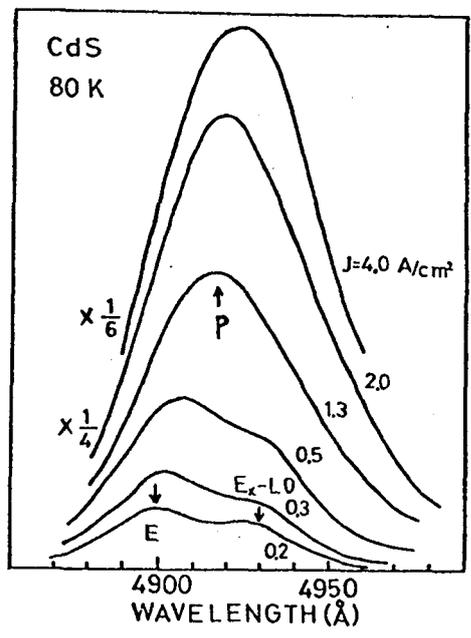


図4-4

励起強度に対する発光スペクトルの変化(80 K)。

このように高密度励起下では、P線の発光が増大する。一方、V-ザ発振は、10 Kと40 Kにおいて、このP線で観測される。この発光過程では、図4-5に示したように、2つの励起子が衝突して、その一つが消滅して発光する。同時に、他の励起子は電子-正孔に解離するか、あるいは、励起準位 ($n \geq 2$) へ散乱される。この場合の発光エネルギー ($h\nu$) は次のように与えられる。

$$h\nu = E_0 - E_b + \frac{E_b}{n^2} + (E_{k_1} + E_{k_2} - E_{k'}) \quad (4.3)$$

ここで、 E_0 は励起子の基底準位、 E_b は励起子の結合エネルギー、 n は整数 ($n \geq 2$)、 E_{k_1} と E_{k_2} は、衝突前の励起子の運動エネルギー、 $E_{k'}$ は衝突後の電子と正孔の運動エネルギー、あるいは励起子の運動エネルギーを示す。また、バンドギャップを E_g とすれば、 $E_0 = E_g - E_b$ の関係がある。10 Kの低温では、 E_k は E_b に比べて小さい。また、励起子が衝突によって解離する場合を考えると(4.3)式は前でも示した(4.2)式のように簡単化される。

$$h\nu = E_0 - E_b \quad (4.2)$$

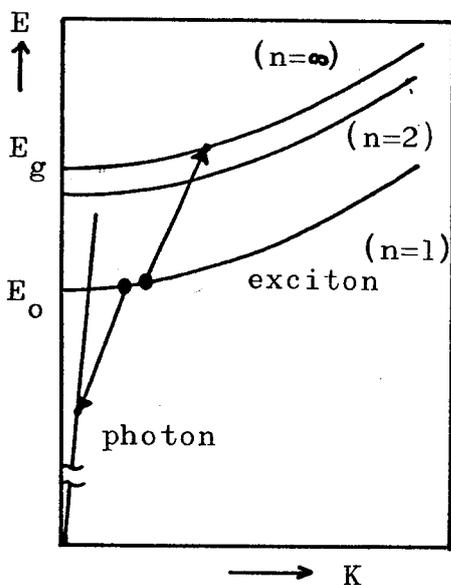


図4-5

励起子-励起子間の衝突を伴う発光過程。

励起強度が強い場合、P線のピークは長波長側へ移動する。この波長の変化は励起子間の衝突によって生じる電子が増加することによって説明される。伝導帯を放物線型と仮定すると伝導電子の濃度、 N_e と伝導帯の底からのフェルミ準位、 E_F との間には、次式のような関係が低温では成立つ。

$$E_F = \frac{h^2}{2m_e} \left(\frac{3}{8\pi} \right)^{2/3} N_e^{2/3} \quad (4.5)$$

ここで、 m_e は電子の実効質量、 h はプランクの定数を示す。刺激強度の増加によって電子密度 N_e が増大し、それに伴って E_F が増加するため、励起子が解離するためには励起子の結合エネルギーよりも E_F がけ余分のエネルギーが必要になる。従って、発光エネルギー $h\nu$ は (4.2) 式より E_F がけ小さくなり、ピークは長波長側へずれると考えられる。

このP線による発光スペクトルは温度上昇に伴って長波長側へ拡がる。このことは次のように説明される。衝突前の2つの励起子の波動ベクトルを K とすれば、衝突後の波動ベクトル K' はほぼ $2K$ となるから、衝突後の運動エネルギー $E_{K'}$ は、

$$E_{K'} = \frac{(hK')^2}{2M} = 4 \cdot \frac{(hK)^2}{2M} = 4 E_K \quad (4.6)$$

である。 M は励起子の質量、 $h = (h/2\pi)$ を示す。励起子はボルツマン分布をしており、温度 T でのエネルギー拡がり kT 程度と考えるれる。(k はボルツマン定数)。従って、(4.3) 式の中における運動エネルギーの変化は次のようになる。

$$(E_{K_1} + E_{K_2} - E_{K'}) = 2 \times kT - 4kT = -2kT \quad (4.7)$$

エネルギー変化が負であることは P 線が長波長側に広がっている事を意味し、その広がり は $2kT$ 程度であることが予想される。

図 4-6 は 80 K から 300 K の温度範囲における発光スペクトルの変化を示す。スペクトル幅は予想されたように長波長側に広がり、その半値幅は $2.2kT$ である。図の中の点線はレーザ波長を示す。このように高温度におけるレーザ発振は、発光スペクトルの長波長領域で起こる。レーザ発振に対応する波長では新しい発光のピークが観測されないことから、 80 K 以上の温度範囲においてもレーザ発振は P 線の発光によると考えられる。

一方、自然放出光を励起面と平行な方向から観測した場合、発光のピークは図 4-6 の実線で示したピークからずれて、点線の近傍に現われる。このピーク波長のずれは自己吸収の効果によるものであり、レーザ発振が P 線の発光に因る自然放出光のピークからずれて点線の位置で起きるのも、自己吸収が原因であることがわかった。

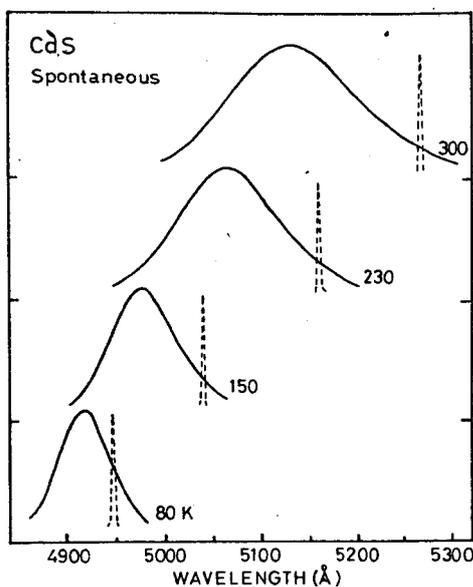


図 4-6

自然放出光 (実線) と
レーザ発振 (破線) の
温度変化。

図4-7はレーザー波長(○印)と自然放出光のピーク(実線)の温度依存性を示す。破線は励起子準位の温度変化を示し、バンドギャップの温度変化に追従している。曲線(1)は励起強度の弱い場合における発光を示す。この発光は図4-4の80Kでのスペクトルの中のEで示された発光、即ち、励起子-電子間の衝突を伴う発光に対応している。(11)

曲線(2)は励起強度の強い場合における発光を示す。この発光は10Kの低温で測定されたP線の発光に対応している。更に励起強度の強い場合には($E_x - L0$)発光も強くなり、P線に重なって観測される場合がある。

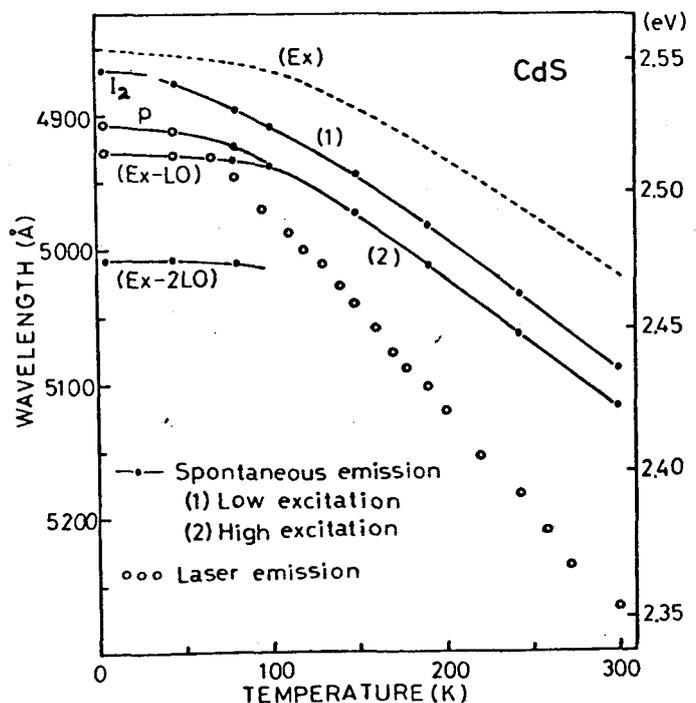
レーザー発振は、10Kの低温においてP線で観測される。励起強度の強い場合には、P線の長波長側への移動に伴ってレーザー発振も変化する。

レーザー発振は、最初はP線で起きるが、励起強度が強いつきに($E_x - L0$)で起きる場合がある。

80K以上の温度範囲におけるレーザー発振は、P線による発光(曲線(2))の長波長領域で観測される。レーザー波長の温度係数は $-7.5 \times 10^{-4} \text{ eV/deg.}$ で、バンドギャップの温度係数($-5 \times 10^{-4} \text{ eV/deg.}$)に比べて大きい。

図4-7

レーザー波長(○印)と自然放出光(実線)の温度依存性。
 E_x は励起子準位の温度変化。



§ 4-4 ZnO V-サ"

図4-8は10KにおけるZnOからの発光スペクトルの励起強度に対する変化を示した。励起強度の弱い場合には、3692 ÅのIで示した発光が強い。これは中性ドナーに捕えられた束縛励起子からの発光である。(4) また、LOフォノンの放出を伴なう束縛励起子からの発光(I-LO)、(I-2LO)も見られる。これらの発光の間隔は、0.072 eVに対応しており、赤外線吸収から測定されたLOフォノンの大きさ(0.073 eV)とよく一致する。

励起強度とともに、3733 ÅのPで示した発光が増大する。P線は励起子準位(3.378 eV)から0.058 eVだけ低エネルギー側にある。(12) このエネルギー差は励起子の結合エネルギー(0.06 eV)にほぼ等しい。CdSの場合と同様に考えて、このP線は励起子-励起子間の衝突を伴なう発光と考えられる。また、発光強度は励起子間の衝突から予想されるように励起強度の約2乗に比例すること観測される。

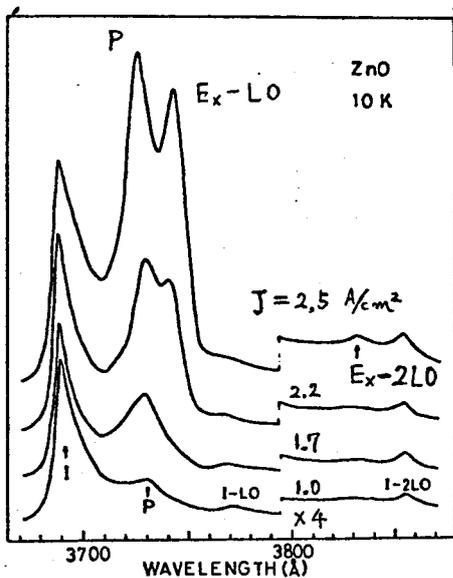


図4-8

ZnOにおける発光スペクトルの励起強度に対する変化(10K)。

励起強度が更に増加した場合、P線の長波長側の3746 Åに発光が現われる。この発光は励起子準位から、ほぼLOフォノンのエネルギーだけ長波長側にあることから、LOフォノンの放出を伴う自由励起子からの発光($E_x - LO$)と考えられる。 $(E_x - LO)$ 発光が強くなると同時に、3833 Åに $(E_x - 2LO)$ 発光が見られる。

図4-9は1.0 Kから70 Kの温度範囲における励起強度の強い場合のスペクトルの変化を示す。低温の場合には、Pと $(E_x - LO)$ とは分離しており、レーザ発振はP線で観測される。また、 $(E_x - LO)$ 発光が増大しない程度の励起強度の場合にも、P線でレーザ発振が観測されることから、P線によるレーザ発振が容易であると考えるれる。温度上昇と共にPと $(E_x - LO)$ の発光は重なり一つのピークとして観測される。

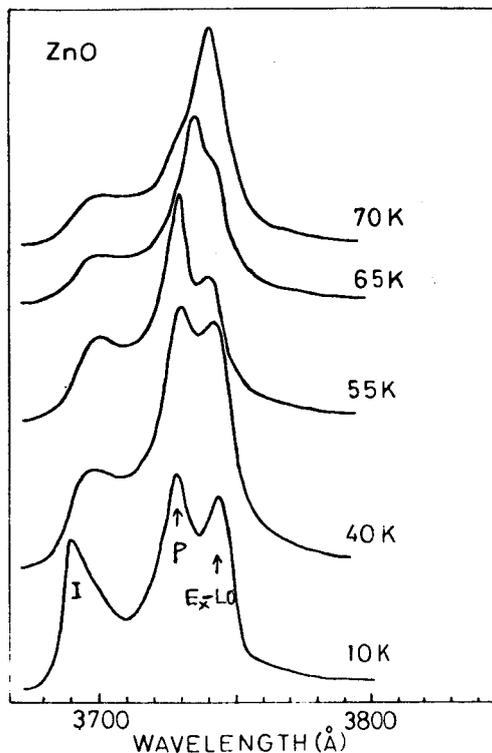


図 4-9

ZnO からの発光スペクトルの温度変化。

図4-10は80 Kから300 Kの温度範囲におけるレーザー波長および自然放光のスペクトルを示す。80 Kにおいては3つのピークが観測される。3695 Åのは束縛励起子による発光であり、温度上昇と共に減少していく。3740 ÅのピークはPと $(E_x - L0)$ の重なった発光で、励起強度と共に長波長側に抜かる。3835 Åの弱い発光は $(E_x - 2L0)$ であると考えられる。

80 Kでのレーザー発振は3745 Åで観測される。この発振はPと $(E_x - L0)$ との重なった発光で起きているか、低温での測定から、レーザー発振はP線によると考えられる。

温度上昇と共に束縛励起子が解離するため、3695 Åの発光は消える。3740 ÅのPあるいは $(E_x - L0)$ の発光は長波長側へ抜かるため $(E_x - 2L0)$ と重なるようになり幅の広いスペクトルが得られる。

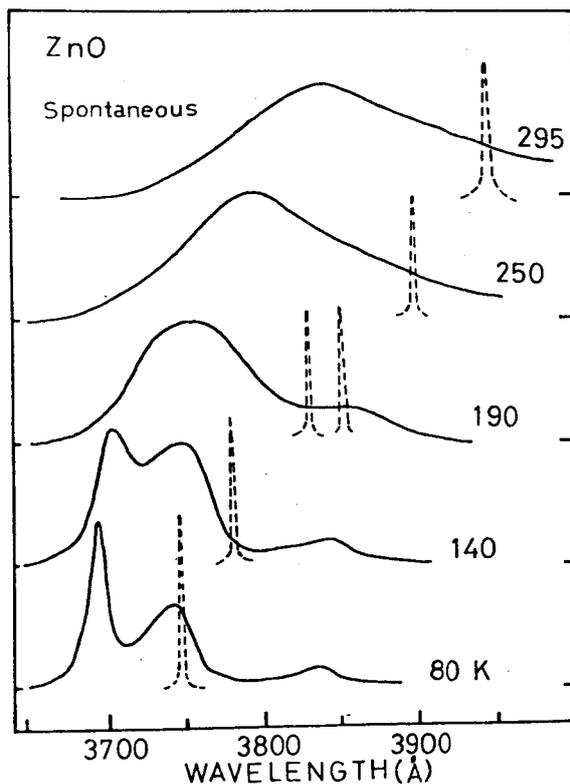


図4-10

自然放光(実線)とレーザー光(破線)の温度変化。

80 K以上の高い温度領域でのレーザー発振は、この幅広いスペクトルの長波長側で観測される。また、190 K付近の温度では、更に長波長側の $(E_x - 2LO)$ の近傍でもレーザー発振が観測される場合がある。⁽¹³⁾ 同様な結果が他にも報告されている。⁽¹⁴⁾

図4-11は自然放出光のピーク(実線)およびレーザー波長(○印)の温度依存性を示す。Iおよび(I-LO)で示したのは束縛励起子による発光であり、高温では解離するために消滅する。 $(E_x - LO)$ 、 $(E_x - 2LO)$ 、 $(E_x - 3LO)$ はLOフォノンの放出を伴う自由励起子による発光である。80 Kではこれらの発光が等間隔で観測される。Pの発光は80 K以上の温度領域では $(E_x - LO)$ と重なり、1つのピークとして観測される。これを曲線(2)で示した。

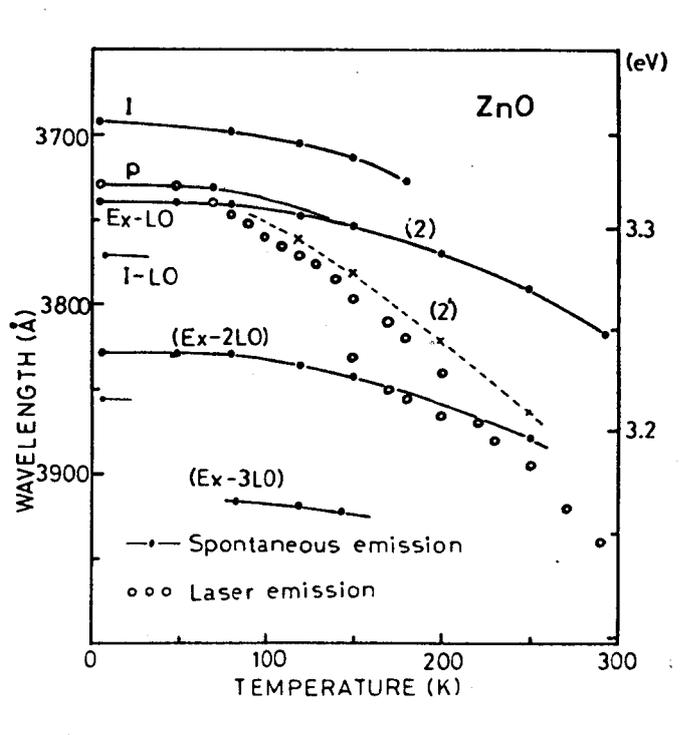


図4-11 ZnOからのレーザー光(○印)および自然放出光(実線)の温度依存性。

曲線(2')は励起面に平行な方向、即ち、レーザー発振を起す方向から観測した場合の自然放出光のピークを示す。この場合には自己吸収の効果によって、短波長側の発光が強くなり再吸収されるためにスペクトルのピークは曲線(2)より長波長側の(2')で観測される。

低温でのレーザー発振はP線で観測されるが80KではPと($E_x - L0$)の重なる発光から起さる。100K以上の高温ではPと($E_x - L0$)との重なる曲線(2)よりも長波長側に現われ、温度上昇と共にその差は大きい。レーザー波長の温度係数は、高温において、 $-9 \times 10^{-4} \text{ eV/deg}$ であり、バンドギャップの温度係数($-4 \times 10^{-4} \text{ eV/deg}$)に比べて大きいことを示している。

高温におけるレーザー発振はPと($E_x - L0$)の重なる発光で起しているか、低温においてP線で観測されることから、高温でもP線からの発光によるものと考えられる。また、レーザー発振が(2')の近傍に現われることから、レーザー発振は自己吸収の影響を大きく受けている。吸収端における吸収係数は Urbach 則で近似され、温度上昇とともに吸収曲線は長波長側へ移動する。このために、レーザー波長の温度依存性は吸収曲線の温度変化を考慮に入れることによって説明される。

§ 4-5 ま と め

CdS と ZnO からの発光を、10 K から 300 K の温度範囲で測定した結果、高密度励起の状態では励起子-励起子間の衝突を伴う自由励起子からの発光 (P 発光) が強くなる。10 K の低温でのレーザ発振は、主に、この P 発光において観測された。発光スペクトルの温度変化の測定から、80 K 以上の温度でも高密度励起の状態では、P 発光が強くなることかわかり、レーザ発振が P 発光の波長領域で起きることを示した。しかしながら、80 K 以上の温度でのレーザ発振は P 発光のピークよりも長波長側で起り、温度上昇に伴って長波長側へ大きく変化する。このために、レーザ波長の温度依存性はバンドギャップの温度変化に比べて大きいことが測定された。このレーザ波長の測定結果から、温度の高い場合には、レーザ発振が自己吸収に強く影響されることわかった。

第 4 章 文 献

- 1) N. G. Basov et al. : Soviet Physics-Doklady 9 (1964) 288.
- 2) F. H. Nicoll : Appl. Phys. Letters 9 (1966) 13.
- 3) J. R. Packard, D. A. Campbell and W. C. Tait : J. Appl. Phys. 38 (1967) 5255.
- 4) D. C. Reynolds : Trans. Met. Soc. AIME 239 (1967) 300.
- 5) C. Benoit a la Guillaume, J. M. Debever and F. Salvan : Phys. Rev. 177 (1969) 567.
- 6) D. Magde and H. Mahr : Phys Rev. B2 (1970) 4098.
- 7) D. G. Thomas and J. J. Hopfield : Phys. Rev. 128 (1962) 2135.
- 8) C. E. Bleil : J. Phys. Chem. Solids 27 (1966) 1631.
- 9) S. Shionoya, H. Saito, E. Hanamura and O. Akimoto : Solid State Communication 12 (1973) 223.
- 10) H. Liebing, P. Mengel and W. Ruppel : Phys. Stat. Sol. (b) 72 (1975) 431.
- 11) H. Saito and S. Shionoya : J. Phys. Soc. Japan 37 (1974) 423.
- 12) D. G. Thomas : J. Phys. Chem. Solids 15 (1960) 86.
- 13) S. Iwai and S. Namba : Appl. Phys. Letters. 16 (1970) 354.
- 14) W. D. Johnston, JR : J. Appl. Phys. 42 (1971) 2731.
- 15) F. Urbach : Phys. Rev. 92 (1953) 1324.

第5章 CdS V-ザにおける利得および損失

§ 5-1 序 言

CdS および ZnO V-ザにおいて、V-ザ波長はバンドギャップと比較して非常に大きな温度依存性を示すことを前の章で述べた。これは、V-ザ発振に対する自己吸収の効果のためであり、V-ザ波長の温度変化は吸収端での吸収係数の温度変化に強く影響を受けることが示されている。(1)(2)

この章ではV-ザ発振に及ぼす自己吸収の効果をしるるために、P線の発光に基づく利得曲線と自己吸収による損失曲線からV-ザ波長を計算する。この計算を用いて共振器長に対するV-ザ波長の変化、およびV-ザ波長の温度依存性を求め、実験値との比較を行っている。この結果から、V-ザ発振に対する自己吸収の効果を明らかにする。(3)

§ 5-2 共振器長に対するV-ザ波長の変化

利得曲線の近似的な形を得るために、高密度励起における自然放出光を測定した。この場合には光の再吸収、または増幅の作用を避けるために、励起面から直接に放出される光を観測した。図5-1(a)の挿入図で示したように、結晶の周りを銀ペーストで被い結晶の角から出る光を妨いだ。この角からの光は励起面を伝播してくるために、高励起下では増幅作用を受けて自然放出とは異なったスペクトルになるからである。

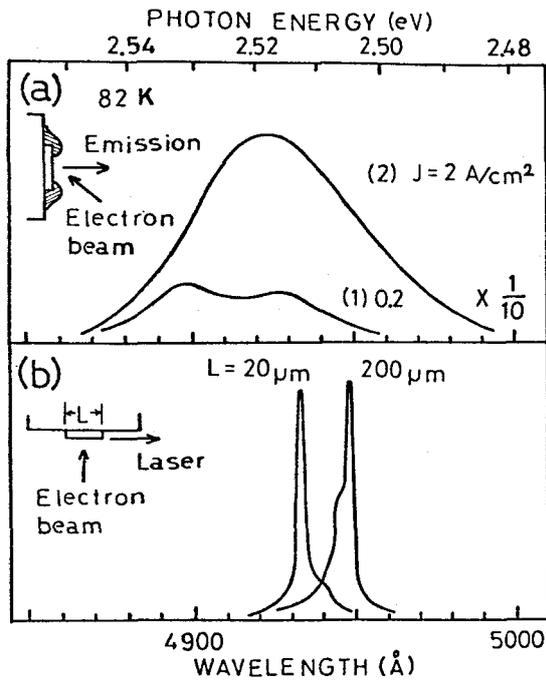


図 5-1

80 K での発光スペクトルの変化。

(a) 自然放出光

(1) 弱励起, (2) 強励起

(b) 2つの共振器長に対するしきい値でのレーザー発振。

図 5-1 (a) は 80 K における自然放出光のスペクトルを示す。励起強度の弱い場合のスペクトルは曲線 (1) で示したように 2 つのピークが見られる。4895 Å の発光は自由励起子 (4873 Å) からの発光に比べて長波長であるが、80 K では、束縛励起子が解離しているために束縛励起子からの発光ではないと考えられる。第 4 章で述べたように、この発光は励起子-電子間の衝突を伴う発光と言われている。(4) (5) 一方、4925 Å のピークは LO フォノンの放出を伴う自由励起子からの発光である。この発光のピークでのエネルギー ($h\nu$) は次のように表わされる。(6)

$$h\nu = E_0 - \hbar\omega + \frac{3}{2} kT \quad (5.1)$$

ここで、 E_0 は励起子準位、 $\hbar\omega$ は LO フォノンのエネルギー (37 meV) である。(3/2)kT の項は励起子の運動エネルギーから生じる。80 K での値 $E_0 = 2.544 \text{ eV}$, $kT = 0.007 \text{ eV}$ を代入すると

$h\nu = 2.517 \text{ eV} (4925 \text{ \AA})$ が得られ、測定値とよく一致する。

励起強度の増加と共に、 4910 \AA から 4920 \AA の発光が増大し、図5-1(a)の曲線(2)で示したように幅の広いスペクトルが得られる。特に、この発光は長波長側に裾を持ち、 $(E_x - L_0)$ とは逆の傾向がある。また、この発光強度は $(E_x - L_0)$ とは異なり、励起強度のほぼ2乗に比例して増加する。第4章で示した 10 K のスペクトルから類推して、励起強度の強い場合の発光は励起子-励起子間の衝突を伴う発光 (P線) と考えられる。曲線(2)は電子ビームの電流密度が 2 A/cm^2 の場合のスペクトルであり、この電流密度は適当な共振器を有する試料において、レーザ発振させるのに十分に高い電流密度である。

図5-1(b)は、共振器長が $20 \mu\text{m}$ と $200 \mu\text{m}$ の試料に対するレーザ発振のしきい値におけるスペクトルを示す。 $20 \mu\text{m}$ の場合のレーザ波長は 4932 \AA であり、 $200 \mu\text{m}$ の場合のレーザ波長は 4948 \AA であった。また、しきい値電流は $20 \mu\text{m}$ では 3 A/cm^2 、 $200 \mu\text{m}$ では 0.8 A/cm^2 であった。

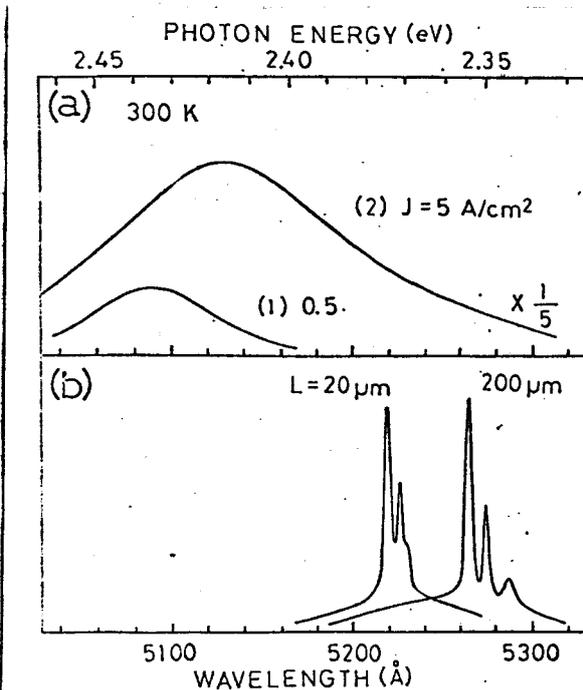


図 5-2

300 K での発光スペクトル。

(a) 自然放出光

(1) 弱励起 (2) 強励起

(b) 2つの共振器長に対するレーザ発振。

図5-2 (a) は 300 K における自然放出光のスペクトルを示す。励起強度の弱い場合の発光は、曲線(1)で示したように 5090 \AA にピークが観測される。励起強度が強い場合には、曲線(2)で示したように 5130 \AA にピークを持つ発光である。このピーク波長の変化は励起強度の増加による試料の温度上昇が原因ではなく、励起強度と共に発光機構が変化するためである。励起強度の強い場合には長波長側に裾を持つ幅広いスペクトルが得られる。

図5-2 (b) は 300 K でのレーザ発振を示す。共振器長が $20 \mu\text{m}$ の場合のレーザ波長は 5220 \AA であり、 $200 \mu\text{m}$ の場合には 5275 \AA であった。このように、温度が高い場合のレーザ発振は自然放出光スペクトルの長波長領域に現われること、そして、共振器長が長い程、より長波長側に現われることを示されている。

共振器長の変化に伴うレーザ波長の変化は、 GaAs の注入型レーザにおいても観測されてきた。⁽⁷⁾ その場合、レーザ波長の変化は Band Filling 効果によって説明されている。⁽⁸⁾ 即ち、共振器長の減少に伴って発振しきい値電流は増加し、それによって伝導帯の中で電子が高い準位まで占有するため発光波長は短波長側へ移動する。

CdS の場合にも発振しきい値電流は共振器長の減少によって増大する。しかしながら、励起電流に対する自然放出光の変化を測定すると、励起電流の増加に伴ってスペクトルのピークは長波長側へ移動する。このように、 CdS の場合の波長変化は GaAs の場合とは逆の傾向を示す。従って、 CdS の場合には Band Filling 効果などの発光スペクトルの変化だけからレーザ波長の変化を説明することはできない。

CdSからの発光は吸収端の近くで起きるために自己吸収の影響を受ける。図5-3は吸収端における吸収曲線を80Kと300Kの場合について表わした。この場合には結晶のC軸と垂直に偏光した光の吸収係数を示した。これはレーザー光がC軸と垂直に偏光しているからである。図5-3の吸収係数はUrbach則で近似されるように指数関数の形で表される。図5-1(a)と図5-2(a)で示した発光スペクトルのピークでの吸収係数は80Kで 10^2 cm^{-1} 、300Kで 10^3 cm^{-1} のオーダーであり、波長によって大きく変化する。従って、共振器長に対するレーザー波長の変化は、このような吸収損失の波長依存性に大きく関係していることが予想される。§5-4において、吸収損失の波長依存性を考慮に入れてレーザー波長の計算を行なう。レーザー波長を計算するための利得曲線を次の§5-3で考察する。

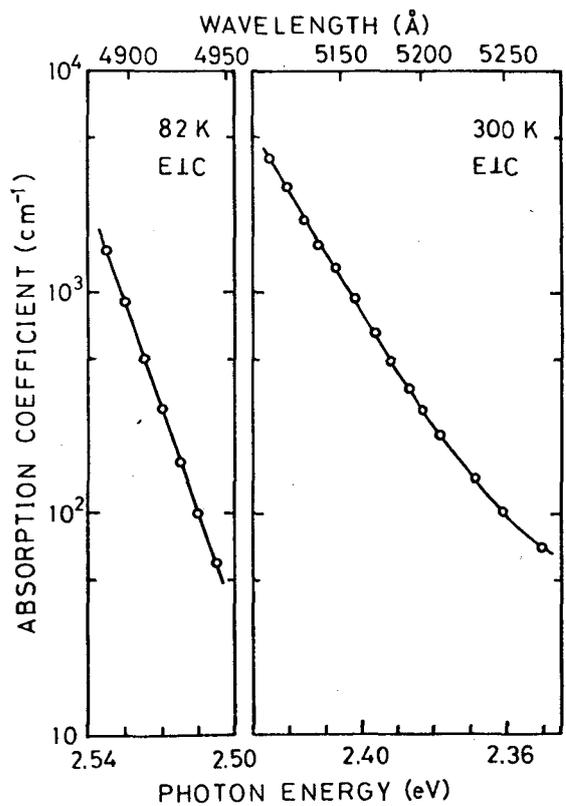


図5-3

80Kと300KでのCdSにおける、吸収端近傍での吸収曲線。

§ 5-3 V-ザ発振の利得曲線

CdS における V-ザ発振のしきい値電流は 1 A/cm^2 のオーダーである。第4章で述べた高密度励起における発光の測定から、この程度の電流において、励起子-励起子間の衝突を伴う発光 (P線) が増大することを示した。低温におけるレーザ発振は P線 で観測されるが、80 K 以上の高い温度でのレーザ発振は、P線のピークよりも長波長側で観測された。ここでは、高温におけるレーザ波長を計算するための利得曲線を P線の発光スペクトルの形状から求める。

P線の発光過程では、1つの励起子が消滅して発光すると同時に他方の励起子は電子-正孔対に解離する。この場合における発光の確率は次のように表わされる。⁽⁵⁾

$$P_E \propto \{1 + N(h\nu)\} n_{k_1} n_{k_2} (1 - n_e) (1 - n_h) \quad (5.2)$$

ここで、 $N(h\nu)$ 、 n_{k_1} 、 n_e 、 n_h は、それぞれ、光子、励起子、電子、および正孔の占有確率を示す。(5.2)式の中で、誘導放出の確率、 P_{st} 、および自然放出の確率、 P_{sp} 、は次のように表わされる。

$$P_{st} \propto N(h\nu) n_{k_1} n_{k_2} (1 - n_e) (1 - n_h) \quad (5.3)$$

および

$$P_{sp} \propto n_{k_1} n_{k_2} (1 - n_e) (1 - n_h) \\ \approx n_{k_1} n_{k_2} \quad (n_e, n_h \ll 1) \quad (5.4)$$

一方、この逆過程において光が吸収される確率は次のように表わされる。

$$P_{ab} \propto N(h\nu) (1 + n_{k_1})(1 + n_{k_2}) n_e n_h \quad (5.5)$$

ν -ザ登振の利得は、誘導放出と吸収との差であり、(5.3)式と(5.5)式から求めることができる。更に、($n_{k_1}, n_{k_2} \ll 1$)の条件を仮定すると利得は次のように表わされる。

$$\begin{aligned} P_G &\propto N(h\nu) (n_{k_1} n_{k_2} - n_e n_h) \\ &= N(h\nu) n_{k_1} n_{k_2} \left(1 - \frac{n_e n_h}{n_{k_1} n_{k_2}}\right) \\ &= N(h\nu) P_{sp} \left(1 - \frac{n_e n_h}{n_{k_1} n_{k_2}}\right) \end{aligned} \quad (5.6)$$

(5.6)式の中で、 $n_{k_1}, n_{k_2}, n_e, n_h$ の形をボルツマン分布と仮定して代入すると、利得曲線 $g(E)$ は次のように表わされる ($h\nu = E$)⁽¹⁰⁾。

$$\begin{aligned} g(E) &= \frac{P_G}{N(h\nu)} \\ &= I_{sp}(E) \cdot \left\{ 1 - \eta \cdot \exp\left(\frac{E - \Delta E}{kT}\right) \right\} \end{aligned} \quad (5.7)$$

ここで、 $I_{sp}(E)$ は自然放出光のスペクトルを示す。 $\Delta E = (E_0 - E_b)$ であり、 E_0 は励起子準位、 E_b は励起子の結合エネルギーを示す。 η は次式で表わされるパラメータである。

$$\eta = \left(\frac{M^2}{m_e m_h} \right)^{3/2} \left(\frac{N_e N_h}{N_{ex}^2} \right) \quad (5.8)$$

ここで、 M 、 m_e 、 m_h は、それぞれ、励起子、電子、正孔の実効質量を示し、 N_{ex} 、 N_e 、 N_h は各々粒子密度を示す。 η の値はそれぞれの密度に依存するか、ここでは、V-ギャップ振を起すのに十分な励起電流 (3 A/cm^2) における η の値を概算する。

電子ビーム励起によって生じる電子-正孔対の生成割合は第3章で述べられている。CdSの場合、生成された電子-正孔対の大部分は励起子を形成すると考えられる。励起子の寿命を τ_{ex} で表わすと、励起子の密度は第3章の (3.10) 式を用いて次のように表わされる。

$$N_{ex} = 6.25 \times 10^{25} \times \left(\frac{J \cdot V \cdot \tau_{ex}}{\epsilon d} \right) \quad (\text{cm}^{-3}) \quad (5.9)$$

ここで、 J は電流密度 (A/cm^2)、 V は加速電圧 (KV)、 ϵ は生成エネルギー (eV)、 d は電子線の侵入する深さ (μm) を示す。

(5.9) 式において、 $V = 25 \text{ KV}$ 、 $d = 2 \mu\text{m}$ 、 $\epsilon = 7.5 \text{ eV}$ 、 $\tau_{ex} = 10^{-9} \text{ sec}$ を代入すれば、利激電流が 3 A/cm^2 の場合における励起子の密度は

$$N_{ex} = 3 \times 10^{17} \quad \text{cm}^{-3}$$

が得られる。80 K から 300 K の温度範囲について考えると、束縛励起子の束縛エネルギーは数 eV であるために、大部分は自由励起子に存在している。

また、励起子の結合エネルギーは、 $E_b = 0.027 \text{ eV}$ であるから、 300 K 以下の温度領域では、励起子の電子-正孔対への解離は少ないと考えるれる。一方、励起子-励起子間の衝突によって生じる自由電子の密度は第4章の(4.5)式で表わされているように、フェルミ準位の変化を通してP線のピーク波長の移動と関係づけられている。(4.5)式から電子密度 N_e は次のように表わされる。

$$N_e = 4 \times 10^{20} \{ \Delta(h\nu) \}^{3/2} \quad (\text{cm}^{-3}) \quad (5.10)$$

ここで、 $\Delta(h\nu)$ はP線のピークの変化量 (eV) である。第4章の図4-2において、電流密度が 3 A/cm^2 の場合でのP線の波長変化は 4 \AA であった。従って、 $\Delta(h\nu) = 0.002 \text{ eV}$ に相当し、(5.10)式から、

$$N_e = 3.7 \times 10^{16} \quad \text{cm}^{-3}$$

が得られる。また、正孔の密度も $N_h = N_e$ と仮定する。

(5.8)式の中で、 $m_e = 0.2 m_0$ 、 $m_h = 1.4 m_0$ 、 $M = 1.6 m_0$ (m_0 は自由電子の質量) とおき、 N_e 、 N_h 、 N_{ex} に上で求めた値を代入すると η はおよそ

$$\eta \approx 0.4$$

が得られる。

$I_{sp}(E)$ の形については、図5.1(a) および図5.2(a) の自然放出光のスペクトルで示されているように、励起強度の強い場合にはガウス型でよく近似され次のように表わされる。

$$I_{sp}(E) = I_0 \cdot \exp \left\{ - (E - E_m)^2 / w^2 \right\} \quad (5.11)$$

ここで、 E_m は自然放出光のピークを示し、 I_0 はそのピークでの強度を示す。 w は強度が $1/e$ になるスペクトルの半値幅を示す (e は自然対数)。 E_m は P 線による発光スペクトルのピーク的位置 ($\Delta E = E_0 - E_b$) にほぼ等しいから、(5.7) 式の利得曲線は次のように書き表わされる。

$$g(E) = I_0 \cdot \exp \left\{ - \frac{(E - E_m)^2}{w^2} \right\} \left\{ 1 - \eta \cdot \exp \left(\frac{E - E_m}{kT} \right) \right\} \quad (5.12)$$

80 K 以上の温度領域では、スペクトル幅 w は温度に比例し

$$w \approx 2.2 kT \quad (5.13)$$

で表わされる。(5.12) 式の中で $(E_m - E)/kT = x$ と置き換えると、利得曲線は温度に依存しない形で書き換えられる。

$$g(x) = I_0 \cdot \exp \left\{ - x^2 / (2.2)^2 \right\} \left\{ 1 - \eta \cdot \exp(-x) \right\} \quad (5.14)$$

図5-4の中に、 $\eta = 0.4$ 、および $\eta = 1$ に対する利得曲線を、(2)および(3)で示した。一方、曲線(1)は自然放出光の形を示している。第4章で述べたレーザ波長の温度依存性から、レーザ発振は図5-4の中では

$$(E_m - E) / kT = 2 \sim 3$$

の近傍で観測される。この波長領域では、図5-4の曲線(2)からわかるように、利得曲線は自然放出光の形でよく近似できる。このような利得曲線を用い、自己吸収の効果を考慮に入れてレーザ波長の計算を次の節で行なう。

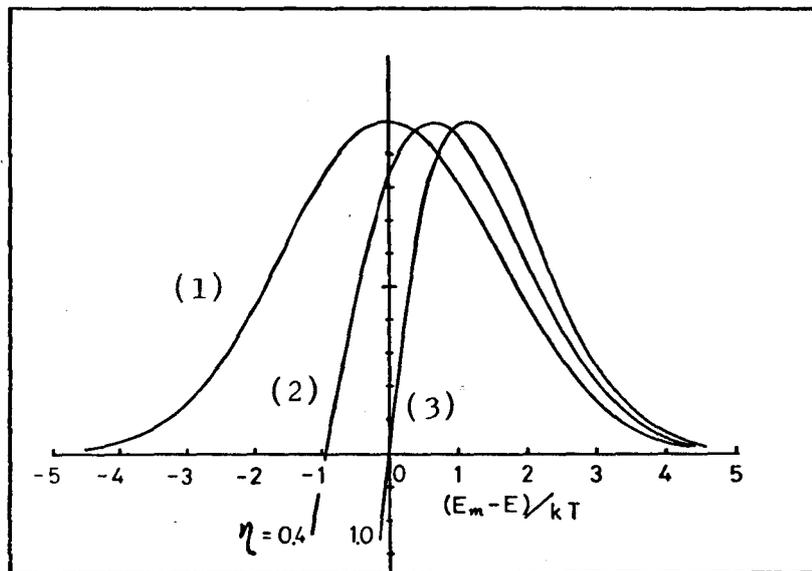


図5-4 (1)は自然放出光、
(2)および(3)は利得曲線の計算値。

§ 5-4 発振しきい値におけるレーザ波長の計算

利得曲線を $g(E)$ 、損失曲線を $\alpha(E)$ で表わすと、レーザ発振を起すための正味の利得 $G(E)$ は次のように表わされる。

$$G(E) = g(E) - \alpha(E) \quad (5.15)$$

上式において、利得 $G(E)$ に及ぼす損失 $\alpha(E)$ の影響を考慮することによって、レーザ波長を計算する。しきい値におけるレーザ発振は $G(E)$ 曲線の極大点で起きる。即ち、次式で表わされる。

$$\frac{d}{dE} (g(E) - \alpha(E)) = 0 \quad (5.16)$$

また、しきい値における $G(E)$ の値は共振器の端面からの透過損失に等しいと置くことができる。

$$g(E) - \alpha(E) = \frac{1}{L} \ln \frac{1}{R} \quad (5.17)$$

ここで、 L は共振器長、 R は端面での反射率を示す。この場合、回折損失に関しては次のように考えられる。ここで用いた結晶の厚さは数ミクロンであるため、電子ビームの透過によって薄い結晶の大部分が活性領域になる。また、このような薄い結晶の中で放出された光は、結晶の上下の面で反射を繰り返し、ガイドされることが観測される。従って、回折損失は結晶内での吸収損失、および共振器の端面からの透過損失に比べて小さいと考えられる。

以上のことから、損失係数 $\alpha(E)$ の中では吸収損失が主な要因であると考えられる。吸収曲線は、図 5-3 で示されているように、吸収端付近では、指数関数で近似され $\alpha(E)$ は次式によって表わされる。

$$\alpha(E) = \alpha_0 \cdot \exp \left\{ -\alpha (E_m - E) / kT \right\} \quad (5.18)$$

ここで、 α_0 は自然放出光のピーク、 E_m 、における吸収係数を示す。 α は吸収曲線の傾きを表わす定数である。

一方、利得曲線は (5.12) 式で与えられている。

$$g(E) = I_0 \cdot \exp \left\{ -\frac{(E_m - E)^2}{W^2} \right\} \left\{ 1 - \eta \cdot \exp \left(-\frac{E_m - E}{kT} \right) \right\} \quad (5.12)$$

この (5.12) と (5.18) 式を、(5.16) と (5.17) 式に代入して I_0 を消去する。図 5-4 の利得曲線で示されたように、レーザ波長の観測される波長領域では、 $(E_m - E) / kT > 1$ であり、また、 $\eta = 0.4$ の場合を考えると

$$\eta \cdot \exp \left(-\frac{E_m - E}{kT} \right) \lesssim 0.1 \quad (5.19)$$

の条件が満足される。この条件を用いて (5.16) と (5.17) 式から計算した結果、レーザ波長、 E_l 、に関して次の関係式が得られる。

$$\left\{ \frac{\alpha W^2}{2kT (E_m - E_l)} - 1 \right\} \frac{\alpha_0 L}{\ln(1/R)} = \exp \left\{ \frac{\alpha (E_m - E_l)}{kT} \right\} \quad (5.20)$$

表 5-1 自然放出光のスペクトル、利得曲線、および吸収曲線のパラメータの値。

	80 K	200 K	300 K
E_m (eV)	2.519	2.467	2.416
w (eV)	0.020	0.040	0.055
α_0 (cm^{-1})	3×10^2	10^3	2.5×10^3
E'_m (eV)	2.514	2.455	2.400
w' (eV)	0.016	0.035	0.050
α'_0 (cm^{-1})	2×10^2	5×10^2	8×10^2
σ	0.8	1.2	1.5

(5.20) 式からレーザ波長を計算するために用いられた値を表 5-1 に示した。 E_m と w は、自然放出光のピーク波長と半値幅を示す。 α_0 は E_m での吸収係数を表わす。 E'_m と w' は、 $\eta = 0.4$ の場合における利得曲線のピーク波長と半値幅の長波長側の部分を表わす。 E'_m と E_m は、図 5-4 に示されたように次の関係がある。

$$E'_m = E_m - 0.7 k T \quad (5.21)$$

また、 α'_0 は E'_m における吸収係数を表わす。共振器長 (L) に対するレーザ波長を計算する場合に、近似をよくするために、(5.20) 式の中の E_m と w に、それぞれ E'_m と w' の値を代入した。反射率 R には、 $R = 0.22$ の値を用いた。この値は、 $R = (n-1)^2 / (n+1)$ の関係式に、屈折率 $n = 2.8$ を代入して得られる値である。

図5-5は、共振器長に対する発振しきい値でのレーザ波長の変化を示す。実線の曲線は(5.20)式から計算された結果を示す。 E_m は高密度励起下における自然放光のピーク波長を示す。一方、利得曲線のピーク波長は、曲線の $L=0$ における値であるから、80 Kでは4930 Å、300 Kでは5165 Åである。

レーザ波長の測定を、共振器長が20 μmから300 μmの範囲で行った結果、80 Kでの波長は4932 Åから4951 Åまで変化し、300 Kでの波長は5220 Åから5275 Åまで変化した。レーザ波長の変化は温度が高い程大きく、特に、共振器が短い場合に大きいことがわかる。通常用いる試料の共振器長は200 μm以上であり、この場合の波長変化は小さい。

300 Kの場合の計算値は測定値より小さいことは、実際の利得曲線が計算に用いたものよりも長波長側へずれているためである。このように、共振器長の変化に対するレーザ波長の変化が自己吸収の効果によって説明されることがわかり、レーザ発振に対する自己吸収の影響が明らかになった。

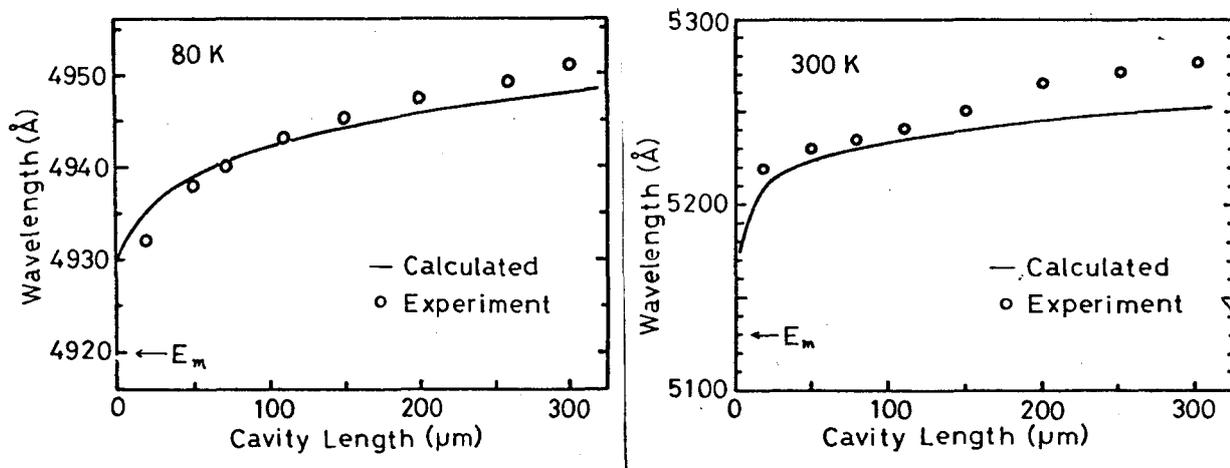


図5-5 共振器長に対するレーザ波長の変化。実線は計算値を示す。

§ 5-5 共振器の反射率によるレーザー波長の変化

(5.20) 式から予想されるように、共振器長 (L) の変化と同様に、共振器の反射率 (R) の変化によってもレーザー波長が変化する。図 5-6 に示したように、共振器の片側の端面に Al を蒸着して反射率を変化させた。こうして反射率を増加させた場合、レーザー波長は長波長側へずれる。

共振器長が $200 \mu\text{m}$ の場合、 80 K でのレーザー波長は 4948 \AA であったが、Al を蒸着した場合には 4953 \AA に変化した。また、 300 K では、 5265 \AA から 5280 \AA に変化するこゝが測定された。

(5.20) 式を用いて、レーザー波長を計算した結果、Al を蒸着する前 ($R=0.22$) でのレーザー波長は、 80 K の場合、 4944 \AA 、 300 K の場合には 5253 \AA である。一方、Al を蒸着した後でのレーザー波長を、反射率の変化を考慮して計算する。

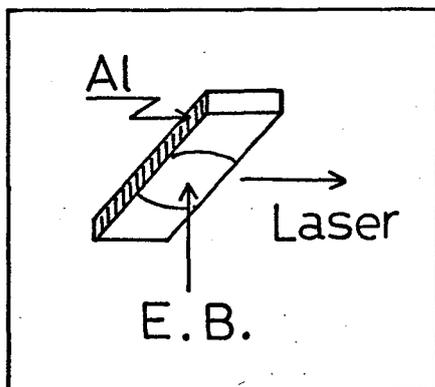


図 5-6

反射率の変化 (Al 蒸着) によるレーザー波長の変化の実験方法。

(5.20) 式において、共振器の片側の端面を Al で被った場合の反射率 R は、 $R = \sqrt{R_1 \cdot R_2}$ で置き換えられる。劈開面の反射率を $R_1 = 0.22$ とおき、Al で被った面での反射率を $R_2 = 1.0$ として代入すれば、 $R = 0.47$ が得られる。この反射率を用いてレーザ波長を計算した結果を表 5-2 の中に示した。

表 5-2 の実験値で示したように、反射率の増加によってレーザ波長は、80 K の場合、 4948 \AA から 4953 \AA に変化し、波長の変化は 5 \AA であった。一方、計算されたレーザ波長の変化量は、 4 \AA であり、実験で得られた変化量とよく一致している。また、300 K の場合、 5265 \AA から 5280 \AA に変化し、波長の変化量は 15 \AA であった。一方、計算されたレーザ波長の変化量は、 12 \AA であり、実験値とよく一致する。

このように、反射率の増加に伴うレーザ波長の変化は、共振器長の変化によるレーザ波長の変化と同様に説明されることから、レーザ共振に及ぼす自己吸収の効果を確認することができた。

Temp.		Al なし	→	Al coating	$\Delta \lambda$
80 K	Experiment	4948 \AA		4953 \AA	5 \AA
	Calculated	4944 \AA		4948 \AA	4 \AA
300 K	Experiment	5265 \AA		5280 \AA	15 \AA
	Calculated	5253 \AA		5265 \AA	12 \AA

表 5-2 反射率の変化によるレーザ波長の変化の実験値と計算値との比較。

§ 5-6 V-ザ波長の温度依存性

図5-7は高密度励起における自然放出光のスペクトル(実線)とV-ザ波長(○印)を示した。温度上昇に伴ってスペクトル幅は広くなり、V-ザ波長はスペクトルのピークよりも長波長側へ移動する。スペクトル幅の温度変化を図5-7の(2)で示した。スペクトル幅 W は、 $W = 2.2 kT$ で表わされるように温度に比例して増加する。このようなスペクトル幅の拡がりに追従して、V-ザ発振の利得曲線が長波長側に拡がることか図5-4で示された自然放出光スペクトルと利得曲線との比較から予測される。

一方、発光スペクトルの波長領域での吸収曲線は図5-3で示したような指数関数で近似され、温度上昇と共に長波長側へ拡がる。従って、V-ザ波長の温度変化は利得および吸収曲線の温度変化を考慮することによって説明される。ここでは、§5-4で得られた計算結果を用いて、しきい値におけるV-ザ波長の温度係数を求め、測定値との比較を行なう。

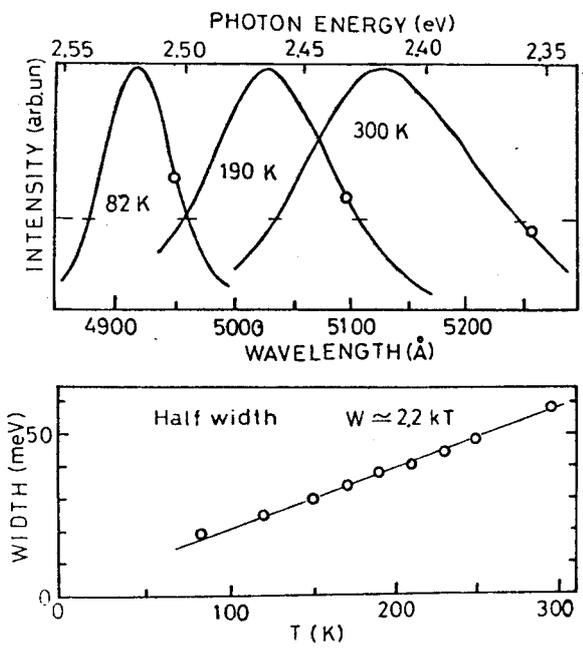


図 5-7

- (1) 高励起における自然放出光(実線)とV-ザ波長
- (2) 自然放出光のスペクトル幅の温度変化。

V-ガ波長の温度係数は(5.20)式から計算される。(5.20)式の中で

$$(E_m - E_L) = \beta kT, \quad w = \delta kT \quad (5.22)$$

と置いて代入すると次式に書き換えられる。

$$\left(\frac{\delta^2 \alpha}{2\beta} - 1 \right) \frac{\alpha_0 L}{\ln(1/R)} = \exp(\alpha\beta) \quad (5.23)$$

(5.23)式から、300K近傍でのV-ガ波長 E_L の温度係数 β が計算される。(5.22)式の E_m と w に対して利得曲線に対する E'_m と w' を用いる。表5-1に示された $\eta = 0.4$ の場合の利得曲線に対する E'_m と $w' \approx 2kT$ および α'_0 の値を用いると

$$E_L = E'_m - 1.4 kT \quad (5.24)$$

が得られる。 $\eta = 0.4$ の場合、 $E'_m = E_m - 0.7 kT$ であるので(図5-4)、次式が得られる。

$$\begin{aligned} E_L &= E_m - 2.1 kT \\ &= E_m - 1.8 \times 10^{-4} T \end{aligned} \quad (5.25)$$

自然放出光のピーク E_m の温度係数はバンドギャップの温度係数より少し大きく、 $-5.5 \times 10^{-4} \text{ eV/deg.}$ と測定される。従って、(5.25)式から、V-ガ波長の温度係数は $-7.3 \times 10^{-4} \text{ eV/deg.}$ が得られる。この値は、第4章で示した測定値 ($-7.5 \times 10^{-4} \text{ eV/deg.}$) とよく一致する。

80 K、200 K および 300 K の温度におけるレーザー波長を $L = 200 \mu\text{m}$ の場合に (5.20) 式および表 5-1 の値を用いて計算した結果を図 5-8 中の X 印で示し、破線で結んだ。一方、レーザー波長の測定値を O 印で示した。この図の中で E_m は、図 5-7 に示された自然放出光のピークを示す。 E'_m は利得曲線 (計算値) のピーク的位置を示す。図 5-8 からわかるように、レーザー波長の温度依存性については、実験値と計算値はよく一致する。

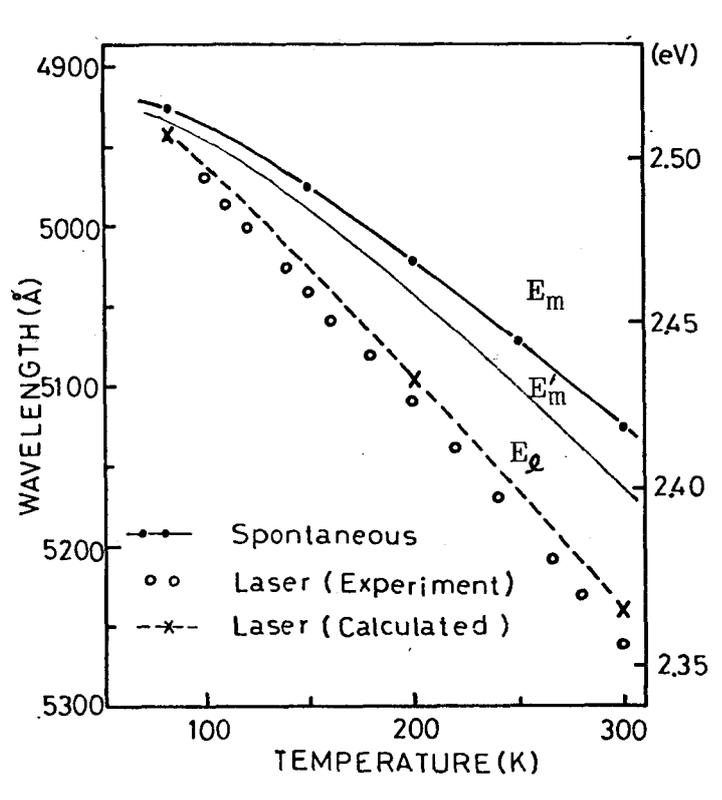


図 5-8

自然放出光 (E_m) とレーザー波長 (O 印) の温度依存性。 E'_m は利得曲線 (計算値) のピーク、 E_l の破線はレーザー波長の計算値を示す。

§ 5-7 ま と め

80 K以上の温度においてレーザー波長を測定した結果、共振器の長さを長くしたり、反射率を大きくするのに伴って、レーザー波長は長波長側へずれる。このレーザー波長の変化量は、共振器長か短い場合に大きく、温度が高い程大きい。また、レーザー波長の温度依存性はバンドギャップの温度変化に比較して大きい。

この測定結果を考察するために、P線の発光に基く利得曲線と自己吸収による損失曲線を用いて共振しきい値におけるレーザー波長を計算した。この計算から得られたレーザー波長の変化量は、測定の値とよく一致する。このレーザー波長の利得に及ぼす自己吸収の効果が明確に存った。更に、利得曲線と損失曲線の温度変化を考慮に入れて計算したレーザー波長の温度係数は、測定値とよく一致する。この結果から温度の高い場合でのレーザー共振は自己吸収の影響を受け、長波長領域で観測されることかわかった。また、吸収曲線の温度変化の影響のため、レーザー波長の温度依存性はバンドギャップの温度変化より大きくなることかわかった。

第 5 章 文 献

- 1) R. F. Leheny, K. L. Shaklee, E. P. Ippen, R. E. Nahory and J. L. Shay : Appl. Phys. Letters 17 (1970) 494.
- 2) J. M. Hvam : Phys. Rev. B4 (1971) 4459.
- 3) S. Iwai and S. Namba : Japan J. appl. Phys. 14 (1975) 1005.
- 4) H. Saito and S. Shionoya : J. Phys. Soc. Japan 37 (1974) 423.
- 5) C. Benoit a la Guillaume, J. M. Debever and F. Salvan : Phys. Rev. 177 (1969) 567.
- 6) E. Gross, S. Permogorov and B. Rapzbilin : J. Phys. Chem. Solids 27 (1966) 1647.
- 7) M. Pilkuhn, H. Rupprechet and S. Blum : Solid State Electronics 7 (1964) 905.
- 8) G. C. Dousmanis and D. J. Steabler : J. Appl. Phys. 37 (1966) 2278.
- 9) F. Urbach : Phys. Rev. 92 (1953) 1324.
- 10) T. Kushida and T. Moriya : Proc. Int. Conf. Luminescence Tokyo (1975)

第6章 発振しきい値電流の温度依存性

§ 6-1 序 言

第5章では、発振しきい値におけるレーザ波長の变化を、共振器長および温度の変化に対して測定した結果を述べた。この場合にレーザ波長の变化に伴って、しきい値電流の変化が観測される。しきい値電流の変化は多くの原因によると考えられるが、その中で発光機構に起因する利得および損失からの影響が大きい。

CdSレーザのしきい値電流が $(E_x - L_0)$ 発光に基づいて計算されている。⁽¹⁾ その計算結果によると、70K以上の温度におけるしきい値電流は、温度Tに対して、 $\exp(-h\nu/kT)$ に比例するとされ、室温近傍では温度の三乗に比例することか報告されている。

しかし、実際に観測されるしきい値電流の温度依存性は上に述べた計算結果に比べて小さくて、⁽²⁾ しきい値電流はほぼ温度に比例して増加する。しきい値電流の温度依存性が小さいのは、発光機構が $(E_x - L_0)$ 発光とは異なり、しきい値電流の低いP発光によるものと考えられる。

この章では、発振しきい値電流の変化を、共振器長および温度の変化に対して測定した結果に基づいて述べる。この場合に、第5章で与えられたようなP発光による利得曲線と自己吸収による損失曲線を用いて共振器長に対するしきい値電流の变化を計算する。更に、しきい値電流の利得係数と損失係数、および、しきい値電流に含まれる要素の温度変化を考慮に入れて、しきい値電流の温度依存性の計算を行ない、測定値との一致を示す。

§ 6-2 励起電流に対する発光強度の変化

発振のしきい値電流は、電子ビームの電流に対する発光強度の関係から求められる。図 6-1 は、80 K において 20 KeV の電子ビームで励起した場合の励起電流に対する発光強度の変化を示す。図の中で (E⊥C) および (E∥C) は、それぞれ、結晶の C 軸に対して垂直および平行な偏光成分を示す。

励起電流の低い自然放出光の場合でも (E⊥C) の発光が強い。励起電流の増加とともに (E⊥C) の発光が急激に増大する。この発光強度の急上する電流値をしきい値電流とする。発光強度の増大と同時にスペクトル幅の狭まり、同時に、構造が観測される。CdS および ZnO ヴェーザの場合には、発光は常に (E⊥C) に偏光している。これはバンド構造によって説明されている。バンド端での光学遷移の選択則から (E⊥C) の偏光が強く、誘導放出によって (E⊥C) の発光が増幅される。

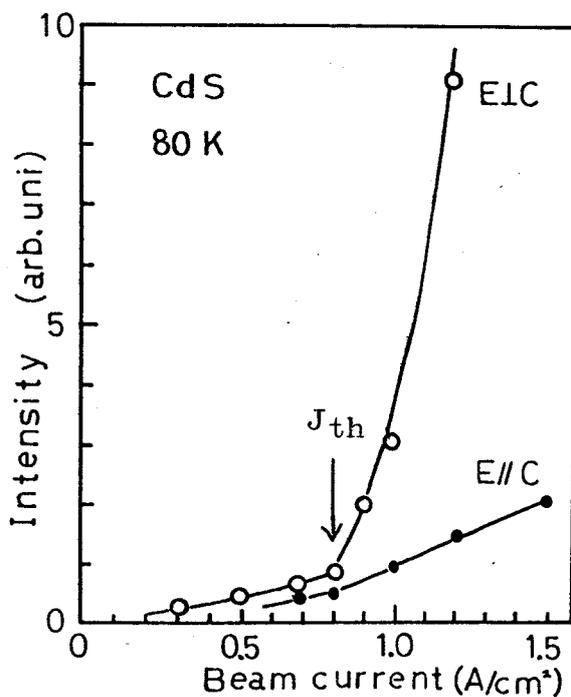


図 6-1

励起電流に対する発光強度の変化。(E⊥C) および (E∥C) は、結晶の C 軸に対して垂直および平行な偏光成分を示す。

励起電流の変化に伴って、共振器の端面における発光 (near field パターン) の変化が観測される。励起電流の低い自然放出光の場合には、電子ビームで照射された面に添って一様に発光している。しきい値電流の近傍では、照射面の中心における発光が強くなり、電流増加と共にスポット状に輝く。更に電流を増加させた場合、照射面に添って幾つかの輝点が見られる。この事は、レーザー発振がフラメント状に起きていることを示している。電子ビームを試料の劈開面と平行な方向に移動させていくのに伴って、レーザー発振の輝点が次々と移動していくのが観測された。

図6-2は、レーザー発振の場合の発光の角度分布を示す。(A)は照射面と平行な面内の発光パターンを示し、(B)は照射面と垂直な面内の発光パターンを示す。(A)図において、拡がり角度 θ と発光面の直径、 D との間に次の関係式が成立つ。

$$\theta \approx 1.2 \frac{\lambda}{D} \quad (\text{ラジアン}) \quad (6.1)$$

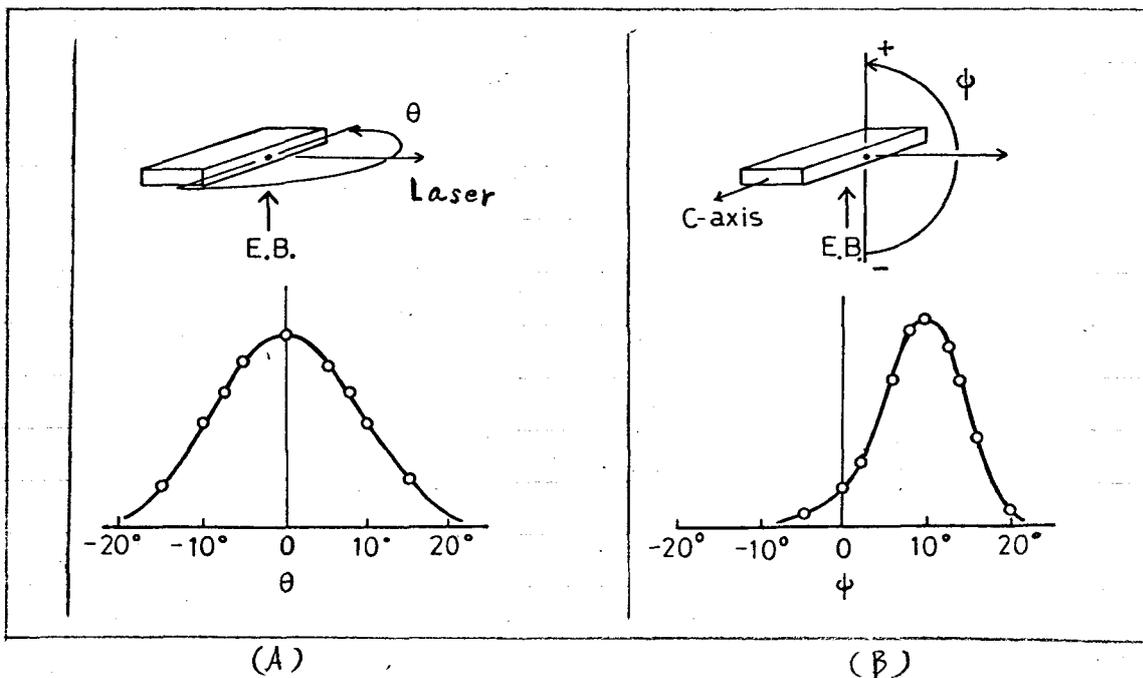


図6-2 レーザ光の角度分布 (far field パターン)。
(A) 水平方向。(B) 垂直方向。

(A) 図から発光の拡がり角度は約 15 度 ($\theta = 0.26$) が得られ、CdS V-ザの波長 $\lambda = 0.5 \mu\text{m}$ を用いると、V-ザ発振の輝点の直径は約 $2 \mu\text{m}$ と計算される。

(B) 図に示されているように、照射面と垂直な面内における発光パターンは、照射面と反対方向に偏った形が得られる。このように、共振器の軸に対して非対称な形は、電子ビームによって試料の片側の表面から励起するためには生じる。発光強度や屈折率の深さ方向に対する不均一による。これは電子-正孔対の分布にも関係している。

電子ビームによって生成される電子-正孔対の割合は、第3章で示したように、深さ z に対して次のように表わされる。

$$N(z) = \frac{J}{q \cdot E} \left(-\frac{dE}{dz} \right) \quad (\text{cm}^{-3} \cdot \text{sec}^{-1}) \quad (6.2)$$

ここで、 J は電子ビームの電流密度、 q は電荷、 E は電子-正孔対の生成エネルギー、 $(-dE/dz)$ は結晶中における電子ビームのエネルギー損失の単位長さ当たりの割合を示す。このエネルギー損失の割合が深さ z に対して変化するため、(6.2) の $N(z)$ は深さに対して第3章の図3-1に示したような分布を持つ。

ここで簡単のために、加速電圧 V 、電子ビームの侵入する深さの平均値を d として

$$\left(-\frac{dE}{dz} \right) = \frac{qV}{d} \quad (\text{eV} \cdot \text{cm}^{-1}) \quad (6.3)$$

のように深さ方向 z に対して一定と仮定する。

このように励起強度が一様であると考えると、
V-ザ発振のしきい値電流密度は、注入型V-ザ
の場合と同様に、次式のように表わされる。(3)

$$J_{th} = 6.3 \times 10^{-3} \frac{n^2 \cdot E_m^2 \cdot \Delta E \cdot \gamma}{\eta_i} \left(\alpha + \frac{1}{L} \ln \frac{1}{R} \right) \frac{\epsilon d}{V} \quad (\text{A/cm}^2) \quad (6.4)$$

ここで、 n は屈折率、 E_m と ΔE は自然放出光のスペクトルにおけるピーク値、および、その半値幅 (eV)、 η_i は内部量子効率、 α はV-ザ波長に対する吸収係数 (cm^{-1})、 L は共振器長 (cm)、 R は反射率、 ϵ は生成エネルギー (eV)、 d は侵入の深さ (μm)、 V は加速電圧 (kV) を示す。 γ は後で述べるように、自然放出光のピーク E_m とV-ザ光 E_l との差に関係する量であり、次の § 6.3 の中で、(6.10) 式で与えられている。

80 K において $L = 200 \mu\text{m}$ に対するしきい値電流を計算するために次の値を(6.4)式に代入する。
 $E_m = 2.517 \text{ eV}$ 、 $\Delta E = 0.02 \text{ eV}$ 、 $\alpha = 50 \text{ cm}^{-1}$ なる測定値。また、 $\eta_i = 1$ 、 $n = 2.8$ 、 $R = 0.22$ 、 $\epsilon = 7.5 \text{ eV}^{(4)}$ 、 $V = 20 \text{ kV}$ 、 $d = 2 \mu\text{m}$ 、 $L = 0.02 \text{ cm}$ を用いる。これからしきい値電流

$$J_{th} = 0.5 \gamma \quad (\text{A/cm}^2)$$

が得られる。 γ の値については次の § 6-3 において求められている。

§ 6-3 共振器長に対するしきい値の変化

第5章において共振器長に対するレーザ波長の变化について述べたが、レーザ波長の变化に伴って発振しきい値の変化が観測される。⁽⁶⁾ ここでは第5章で用いた利得と損失に対するモデルを用いて、しきい値電流を計算する。

レーザ発振の観測される波長領域での利得曲線は自然放出光のスペクトルの形で近似される。80K以上の温度での高密度励起におけるスペクトルの形はガウス型でよく近似できるから、レーザ波長における利得 $g(E_l)$ は次式で表わされる。

$$g(E_l) = I_0' \cdot \exp \left\{ - (E_l - E_m)^2 / W^2 \right\} \quad (6.5)$$

一方、自然放出光のスペクトル内の全発光量は、励起されたキャリア密度に比例する。更に、キャリア密度は励起電流に比例すると考えられるので、励起電流密度は次のように表わされる。

$$\begin{aligned} J &\propto \int_0^{\infty} I_{sp}(E) dE \\ &= \int_0^{\infty} I_0' \cdot \exp \left\{ - (E - E_m)^2 / W^2 \right\} dE = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot I_0' \cdot W \end{aligned} \quad (6.6)$$

(6.5)式で、 $I_0' = b I_0$ ($0 < b < 1$) と置いて I_0 を求め (6.6)式に代入すると電流密度は

$$J = C \cdot g(E_l) \cdot W \cdot \exp \left\{ (E_l - E_m)^2 / W^2 \right\} \quad (6.7)$$

と表わされる。ここで、 C は定数である。

ν -ザ波長における利得 $g(E_e)$ と損失 $\alpha(E_e)$ は
発振しきい値において

$$g(E_e) = \alpha(E_e) + \frac{1}{L} \ln\left(\frac{1}{R}\right) \quad (6.8)$$

で関係づけられる。これを (6.7) 式に代入することによって、しきい値電流は次式で表わされる。

$$J_{th} = C \cdot W \cdot \exp\left\{(E_m - E_e)^2 / W^2\right\} \times \left\{\alpha(E_e) + \frac{1}{L} \ln\left(\frac{1}{R}\right)\right\} \quad (6.9)$$

§ 6-2 の (6.4) 式の中に導入された γ は、(6.9) から

$$\gamma = \exp\left\{(E_m - E_e)^2 / W^2\right\} \quad (6.10)$$

であることがわかる。

80 K の場合の測定値、 $E_e = 2.505$ eV、 $E_m = 2.519$ eV、および $W = 0.02$ eV を (6.10) 式に代入すると $\gamma = 1.4$ が得られる。§ 6-2 の中で (6.4) 式から計算された $L = 200$ μ m に対するしきい値電流は $J_{th} = 0.58$ であった。これに γ の値を代入すれば、 $J_{th} = 0.7$ A/cm² が得られる。この値は、測定値の $J_{th} = 0.8$ A/cm² とよく一致する。しきい値電流は、一般に、利得係数を β 、損失係数を α と置いて次のように表わされる。

$$J_{th} = \frac{1}{\beta} \left\{ \alpha + \frac{1}{L} \ln\left(\frac{1}{R}\right) \right\} \quad (6.11)$$

(6.9) 式と (6.11) 式を比較することによって、 β は次式のように表わされる。

$$\beta = \frac{1}{c \cdot W} \exp \left\{ - (E_m - E_e)^2 / W^2 \right\} \quad (6.12)$$

このように利得係数はレーザ波長 (E_e) によって変わることをわかる。また、損失係数 α も (6.9) 式からわかるように波長に依存する量である。

(6.11) 式を用いて共振器長 L に対するしきい値電流の変化を計算する。この場合、先ず、5-4 の (5.20) 式を用いて共振器長に対するレーザ波長を計算する。次いで、この E_e に対する利得係数を (6.12) 式から求め、損失係数を (5.18) 式から求める。この β と α の値を (6.11) 式に代入することによって、共振器長 L に対する、しきい値電流の相対値が計算される。

図 6-3 の実線は計算値を示し、 $300 \mu\text{m}$ での測定値で規格化されている。この図は 20 kV の加速電圧で励起した場合である。しきい値電流は 80 K で $3 \sim 0.7 \text{ A/cm}^2$ まで変わり、 300 K では、 $8 \sim 2.6 \text{ A/cm}^2$ まで変わっている。この図から、しきい値電流の変化に対する計算値と測定値はよく一致していることがわかる。

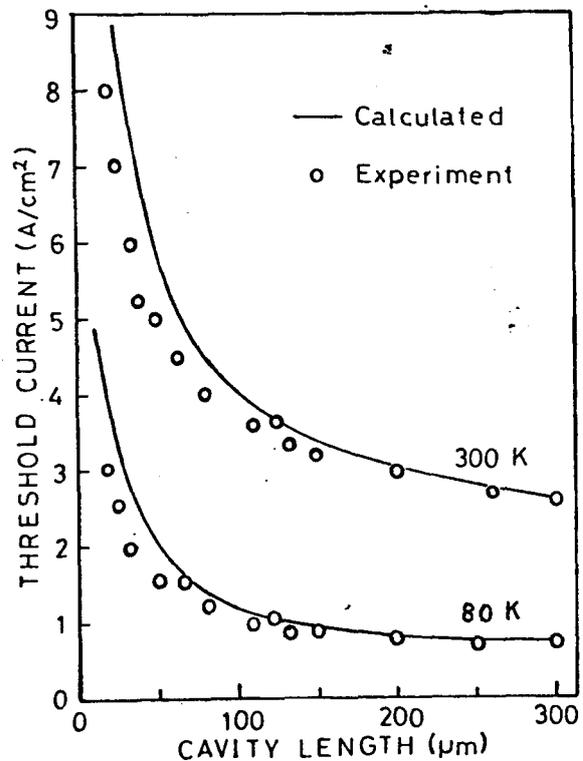


図 6-3 共振器長に対する、しきい値電流の変化 (20 kV)。

§ 6-4 しきい値電流の温度依存性

§ 6-3 において、CdS V-ゲのしきい値電流の変化が、利得および損失係数の波長依存性によることを示した。ここでは、しきい値電流の温度変化の測定を行ない、§ 6-3 で得られた式を用いてその温度依存性の説明を行なう。

しきい値電流は (6.11) 式と (6.12) 式において

$$J_{th} = \frac{1}{\beta} \left\{ \alpha + \frac{1}{L} \ln \left(\frac{1}{R} \right) \right\} \quad (6.11)$$

および

$$\beta = \frac{1}{c \cdot W} \exp \left\{ - (E_m - E_g)^2 / W^2 \right\} \quad (6.12)$$

のように表わされている。ここで、定数 C は (6.4) 式から得られるように次式で表わされる。

$$C \propto \left(\frac{n^2 E_m^2}{\eta_i} \right) \left(\frac{\epsilon d}{V} \right) \quad (6.13)$$

まず、(6.13) 式の中に含まれる値の温度変化について考察する。

内部量子効率 η_i の温度変化は、自然放出光の全発光量の変化から推測された。図 6-4 は全発光量の温度変化の測定結果を示す。この図から 80 K から 300 K の温度範囲における発光効率の減少は約 20% であることがわかる。

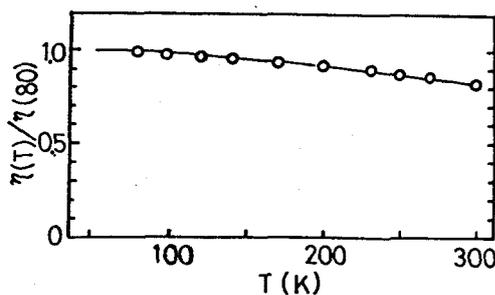


図 6-4

発光効率の相対的变化。

E_m の値は、80 K で 2.519 eV、300 K では 2.416 eV であるから、 E_m^2 の 80 K から 300 K までの間の変化は次のようになる。

$$\left\{ E_m(300\text{K}) / E_m(80\text{K}) \right\}^2 = 0.92$$

屈折率 n の変化は次のようになる。

$$\left\{ n(300\text{K}) / n(80\text{K}) \right\}^2 = 0.97$$

V-ザ登振の活性領域の深さ d は電子ビームの侵入する深さに、キャリアの拡散による拡がりの大きさが含まれる。両極性拡散定数を D_a 、キャリアの寿命を τ_e で表わせば、拡散距離は $L = \sqrt{D_a \cdot \tau_e}$ で与えられる。

80 K での CdS の中で電子-正孔対の拡散を考慮する場合、正孔の拡散定数を D_h とすれば、 $D_a \approx 2D_h = 0.042 \text{ cm}^2/\text{sec}$ (4) で与えられる。また $\tau_e = 10^{-9} \text{ sec}$ であるから、拡散距離は $0.07 \mu\text{m}$ となる。300 K では、 $D_a = 0.072 \text{ cm}^2/\text{sec}$ を用いて $L = 0.3 \mu\text{m}$ になる。20 K の電子線の侵入する深さは約 $2 \mu\text{m}$ であるので、80 K から 300 K の間に拡散の効果による活性領域の増加は 15% 程度である。

また、電子-正孔対の生成エネルギー ϵ はバンドギャップにほぼ比例するから、 ϵ は 80 K から 300 K の間に 5% 程度減少する。

以上の考察の結果、80 K から 300 K の温度範囲における定数 C の増加は 20% 程度であることがわかる。

次に、損失係数 $\alpha(E_e)$ の温度変化について考察する。ここでは、測定値との比較のために、 $120 \mu\text{m}$ の共振器長に対して行なう。

120 μm の共振器長におけるレーザ波長は、80 K において 4945 \AA であるので、レーザ波長における吸収係数は 50 cm^{-1} であった。300 K におけるレーザ波長は 5245 \AA であるので、その波長での吸収係数は 60 cm^{-1} であった。 $L = 120\ \mu\text{m}$ 、 $R = 0.22$ の場合、 $(1/L) \ln(1/R) = 125\text{ cm}^{-1}$ であるから、80 K から 300 K の間での

$$\left\{ \alpha(E_L) + (1/L) \ln(1/R) \right\}$$

の温度変化は 10% 以下である。このように、吸収係数の温度変化が小さいのは、レーザ波長が温度と共に長波長側へ大きく変化するためである。

次に、 γ の値について考察する。図 6-5 は、自然放射光のピーク E_m とレーザ波長 E_L との差を示す。 $L = 120\ \mu\text{m}$ の場合、温度 T に対して

$$(E_m - E_L) \approx 2.2 kT$$

なる関係が得られる。

図 6-6 はスペクトル幅 W の温度変化を示す。温度の高い場合には

$$W \approx 2.2 kT$$

なる関係が得られる。従って

$$\gamma = \exp\left\{ (E_m - E_L)^2 / W^2 \right\}$$

の温度変化は小さいことがわかる。このことは、

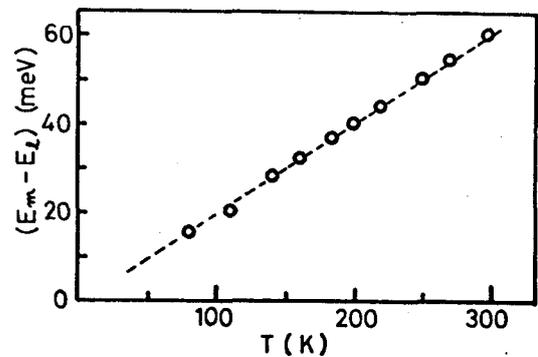


図 6-5 $(E_m - E_L)$ の温度変化

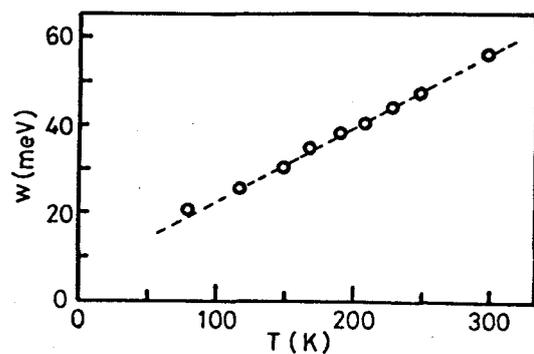


図 6-6 スペクトル幅の温度変化。

利得曲線の幅が狭くなるために、レーザー発振の波長における利得の減少が少ないことを意味している。

以上の考察から、しきい値電流は、主に、スペクトル幅 W に比例する結果が得られる。 W が

$$W = 2.2 \text{ 光丁}$$

で表わされるように、温度にほぼ比例することから、(6.11) 式のしきい値電流は温度にほぼ比例することから示される。

図 6-7 は、CdS レーザのしきい値電流の測定結果を示した。この図から、しきい値は温度にほぼ比例していることがわかり、計算結果と測定値との一致が得られた。

ZnO レーザの場合も、図 6-8 に示したように、しきい値電流の増加は温度にほぼ比例している。図の中の破線で示したのは、 $(E_x - L_0)$ による発光に基づいて計算されたもので、実験結果とは大きく異なる⁽¹⁾。

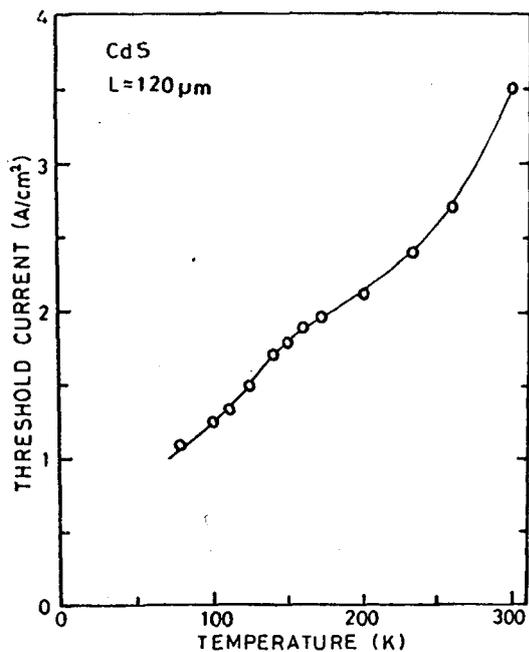


図 6-7

CdS レーザにおける、しきい値電流の温度変化。

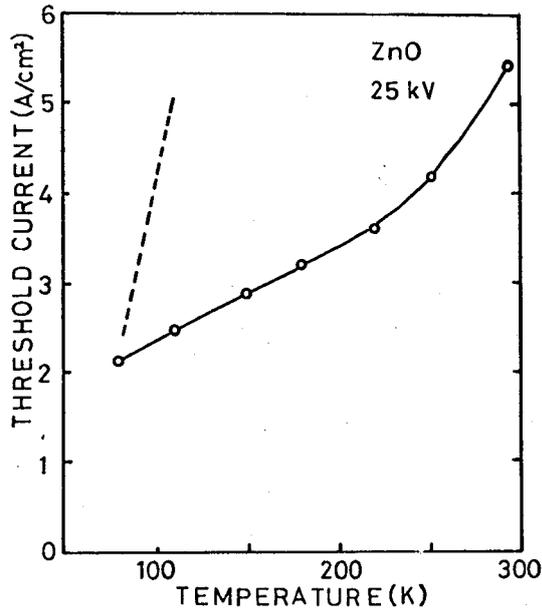


図 6-8

ZnO レーザにおける発振しきい値電流の温度変化。破線は $(E_x - L_0)$ 発光から計算された変化を示す。

§ 6-5 まとめ

80 K 以上の温度において発振しきい値電流を測定した結果、共振器を短くするとしきい値電流は増加する。一方、しきい値電流は温度にほぼ比例して増加する。

この場合、利得および損失係数の波長依存性を考慮に入れて、共振器長に対するしきい値電流の変化を計算した。更に、利得および損失係数にレーザ波長の温度依存性を考慮に入れてしきい値電流の温度依存性を計算した。

計算によって得られたしきい値電流の変化が、測定値と一致することから、しきい値における利得と損失との関係が明らかになった。温度上昇に伴ってレーザ波長が長波長側へ変化するために、吸収損失の増加は少ない。また、温度に伴って利得曲線が広がるために、利得の減少は少ない。しきい値電流の温度変化は、主に、スペクトル幅の温度変化によることを示した。

第 6 章 文 献

- 1) H. Haug : J. Appl. Phys. 39 (1968) 4687.
- 2) S. Iwai and S. Namba : Appl. Phys. Letters 16 (1970) 354.
- 3) C. A. Klein : Appl. Phys. Letters 7 (1965) 200.
- 4) N. F. Molyuk et al. : Soviet Phys. Solid State 8 (1967) 2513.
- 5) H. Aritome, M. Kawabe, K. Masuda and S. Namba : Sci. Papers I.P.C.R. 63 (1969) 66.
- 6) S. Iwai and S. Namba : Japan J. appl. Phys. 14 (1975) 1005.
- 7) Physics and Chemistry of II-VI Compounds (North-Holland, Amsterdam, 1967) p. 521.

第7章 励起電流パルスによる熱的効果

§ 7-1 序 言

電子ビーム励起の方法は、半導体を高密度に励起することから容易であるために、半導体レーザーの励起方法として有効である。この方法では、入射電子と結晶との相互作用が強いために、入射エネルギーの多くが熱として消費される。即ち、高速電子が格子振動を励起したり、生成された電子、正孔の緩和過程を通して熱を生じさせる。第3章で述べたように、一組の電子-正孔対を生成するためには、平均としてバンドギャップの約3倍のエネルギーが必要であるから、入力パワーの少くとも $2/3$ が熱として失われる。(1)

半導体レーザーの励起のためには大きな励起入力が必要であるために、結晶の温度上昇は避けることができな。この温度上昇が発振特性に大きな影響を与え、例え、発振のハルス幅が励起表面の温度上昇のためには制限される。(2)従って、小さい値電流を小さくすることが必要である。

この章では、電子ビームで励起されたCdSの表面温度の瞬時的な変化を励起表面からの発光波長の变化から測定する方法を示す。この方法を用いて、励起パルス内の温度上昇を測定して温度上昇の割合を求め、また、励起後の温度の減衰を測定して、熱拡散方程式から計算される結果と比較する。次に、励起パルス内のレーザー波長の時間変化を測定して、励起表面における温度上昇との関係をしらべる。

§ 7-2 励起表面の温度上昇

電子ビームで励起された表面の励起パルス内での温度変化を測定した。この温度の時間変化は、自然放出光の波長の変化から測定するこゝからできる。励起パルス内での発光スペクトルの変化を、パルスの立ち上がりからの遅れ時間に対して測定して、スペクトルのピーク波長の時間変化から温度変化を求めた。ピーク波長 $\lambda(t)$ と温度変化 $\Delta T(t)$ との関係は次式によって表わされる。

$$\Delta T(t) = B \cdot \{ \lambda(t) - \lambda(0) \} \quad (7.1)$$

こゝで、 B は 1 \AA の波長変化に対する温度上昇の割合を示し、波長の温度依存性から求められる。80 K近傍での自然放出光のピーク波長の温度変化の割合は 0.6 \AA/deg. であるから、 B の値は逆に 1.6 deg./\AA と求められる。 $\lambda(0)$ は、励起電流が弱く、励起パルスの立ち上がり近くで測定した場合のピーク波長である。

図7-1は、80 Kの温度で、20 K \times 、 1.5 A/cm^2 の電子ビームで励起された表面の温度変化を示す。発光スペクトルの測定に用いられたボックスカー積分器のゲート幅は最少10 nsec、であるから、10 nsecの時間内での温度測定が可能である。

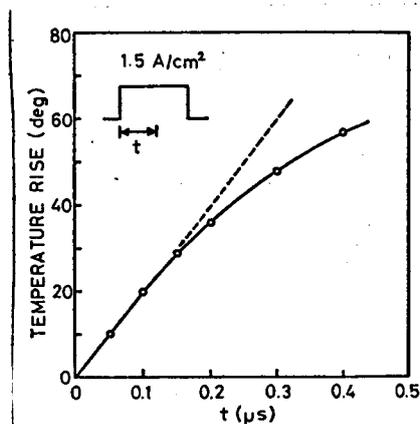


図 7-1

励起表面の温度上昇の時間変化 (80 K)。破線は熱拡散の無い場合の温度上昇を示す。

図7-1において、遅延時間の短い場合は、温度は時間に対してほぼ比例して上昇する。この場合の温度上昇の割合は 0.2 deg./msec であるから、ビーム電流 1 A/cm^2 当りの温度上昇の割合は、 0.13 deg./msec である。温度上昇は時間と共に直線か3つ折れて温度上昇はゆるやかになる。これは結晶内部がよむヒートシンクへの熱拡散の影響による。この場合に、励起表面の温度上昇を正確に計算することかできなりので、励起表面の温度の緩和時間の平均値 τ_T を用いて近似的に次式のように表わす。

$$\Delta T(t) = \frac{V \cdot J \cdot \tau_T}{C \cdot \rho \cdot d} (1 - e^{-t/\tau_T}) \quad (7.2)$$

ここで、 V は加速電圧、 J は電流密度、 ρ は密度、 C は比熱、 d は電子ビームの侵入する深さを表わす。

緩和時間 τ_T よりも短い時間に対する温度上昇は時間に比例する形で表わされる。

$$\Delta T(t) = \frac{V \cdot J \cdot t}{C \cdot \rho \cdot d} \quad (7.3)$$

80 K における CdS の場合、 $\rho = 4.8 \text{ g/cm}^3$ 、 $C = 0.21 \text{ joule/g.deg.}$ および、20 kV の電子線に対して $d = 2 \mu\text{m}$ の値を (7.3) 式に代入すれば、温度上昇の割合は 0.1 deg./msec と計算される。この計算値は、図7-1 から求められた温度上昇の測定結果 (0.13 deg./msec.) とよく一致する。

遅延時間の大きい場合の温度上昇は、図7-1で示したように、直線からずれてくる。(7.2)式において、測定結果の直線部分から得られる値 $(V \cdot J) / (C \cdot \rho \cdot d) = 0.13 \text{ deg/msec}$ を用い、 $\tau_T = 0.5 \mu\text{sec}$ と置くと、(7.2)式で表わされる曲線は図7-1の測定値を表わす実線とよく一致する。また、 $0.1 \mu\text{sec}$ の短い時間での温度上昇は温度に比例すると看做すことができる。

§ 7-3 励起表面の温度減衰

電子ビームによって励起された表面における、励起パルス後の温度変化を測定した。図7-2は測定結果を実線で示した。測定では、図の中に示したようにダブルパルスを用いた。最初のパルス P_1 は表面温度を上昇させるもので、次のパルス P_2 は温度測定のためのプローブとして用いる。 P_2 パルスによる発光スペクトルを、 P_1 パルスの立ち下りからの時間に対して測定し、スペクトルのピーク波長 $\lambda(t)$ の変化から次式を用いて温度変化を求めた。

$$\Delta T(t) = B \cdot \{ \lambda(t) - \lambda(\infty) \} \quad (7.4)$$

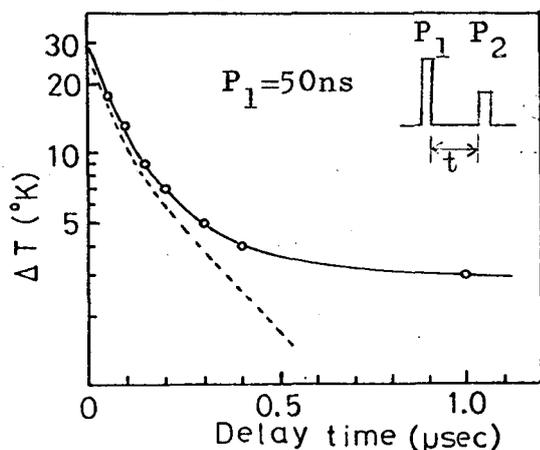


図 7-2

励起表面の温度の減衰。
測定値(実線)および
計算値(破線)。

ここで、 B は 1 \AA の波長変化に対する温度変化の割合を示す。入(4)は遅延時間が充分大きい場合の P_2 パルスによる発光波長であり、実際には、 P_1 パルスの無い場合の P_2 パルスによって測定される。

図7-2の実線は温度減衰の測定結果を示す。この場合、 P_1 パルス内における熱拡散の影響を少なくするために、 P_1 のパルス幅を短かく (20 msec) して行なった。また、 P_2 のパルス内での温度上昇を抑えるために、 P_2 パルスの強度は小さくして、 P_2 パルスの立上がり部分の発光をボックスカーを用いて測定した。

電子ビームによって励起された表面の温度は、励起パルス後は結晶内部への熱拡散によって減衰していく。この温度の減衰を熱拡散方程式を用いて計算する。結晶の厚さか表面積と比較して非常に薄い場合には、深さ方向 (z) に対する温度分布は一次元の拡散方程式を用いて計算される。

$$\frac{\partial \Delta T(z, t)}{\partial t} = K \frac{\partial^2 \Delta T(z, t)}{\partial z^2} \quad (7.5)$$

ここで、 K は熱拡散率を示し、熱伝導率 k との間には $K = k / \rho \cdot C$ という関係がある。ここで、 ρ は密度、 C は比熱を表わす。

結晶は銅のヒートシンクに張り付けられており、ヒートシンクに接した面を $z = 0$ とする。他方、電子ビームで励起される面を $z = L$ とする。今の場合、電子ビームの侵入によって表面 L から、深さ d まで一様な温度上昇 $\Delta T(0)$ が時間 $t = 0$ において生じていると仮定する。従って初期条件は、

$$\Delta T(z, 0) = \Delta T(0), \quad L - d \leq z < L \quad (7.6)$$

のようになる。

また、ヒートシンクに接した面の温度は常に一定に保たれていると仮定すると境界条件は

$$\Delta T(0, t) = 0 \quad 0 \leq t < \infty \quad (7.7)$$

となる。(7.6) および (7.7) 式の条件を入れて (7.5) 式を解くと、温度上昇の分布 $\Delta T(z, t)$ は、次のように計算される。

$$\frac{\Delta T(z, t)}{\Delta T(0)} = \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{4}{n\pi} \right) \sin\left(\frac{n\pi}{2}\right) \sin\left(\frac{n\pi d}{2L}\right) \sin\left(\frac{n\pi z}{2L}\right) \times \exp\left\{-k\left(\frac{n\pi}{2L}\right)^2 t\right\} \quad (7.8)$$

(7.8)式から電子ビームによって照射される面 $z=L$ での温度の時間変化は次のように表わされる。

$$\frac{\Delta T(L, t)}{\Delta T(0)} = \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{4}{n\pi} \right) \sin\left(\frac{n\pi d}{2L}\right) \exp\left\{-k\left(\frac{n\pi}{2L}\right)^2 t\right\} \quad (7.9)$$

この場合、 n は奇数のみを表わす。

80 K では、 $k = 1 \text{ W/cm}\cdot\text{deg}$ 、 $\rho = 4.8 \text{ g/cm}^3$ 、 $C = 0.21 \text{ Joul/g}\cdot\text{deg}$ を用いると、熱拡散率 k は、 $k = K/C\rho = 1.0 \text{ cm}^2/\text{sec}$ が計算される。結晶の厚さ $L = 8 \mu\text{m}$ 、20 kV の電子線に対して $d = 2 \mu\text{m}$ を (7.9) 式に代入すると温度の減衰曲線が計算される。計算結果を図 7-2 の破線で示した。遅延時間 t が小さい場合には、(7.9) 式の中で $n \geq 3$ の項からの寄与があるために急速な減衰曲線になる。一方、 t が大きい場合には、 $\exp\left\{-k\left(\frac{n\pi}{2L}\right)^2 t\right\}$ のために $n \geq 3$ の項は消滅して $n = 1$ のみになる。

この場合、減衰の時定数は $(4L^2/\pi^2k)$ で与えられる。 $L = 8 \mu\text{m}$ に対するこの時定数の値は、 $0.25 \mu\text{s}$ と計算される。

図7-2の破線で示したように、短い時間においては計算された減衰曲線は測定結果とよく一致する。この場合に測定された時定数は約 $0.3 \mu\text{s}$ であった。この値は、§7-2の温度上昇の測定から得られた時定数の値、 $0.5 \mu\text{s}$ と近い値である。

測定された減衰曲線は、時間とともに計算値からずれ、温度の減衰はゆるやかになる。このように測定値が計算値からずれてくるのは、ヒートシンクに接した結晶面 $Z=0$ での温度上昇が生じ、(7.7)式で与えられた $Z=0$ での温度が常に一定という $\Delta T(0, t) = 0$ の条件が満たされなくなるためである。この原因は $Z=L$ の励起面からの熱拡散によって $Z=0$ の面に到達した場合、結晶とヒートシンクとの間の熱抵抗のために $Z=0$ の面での温度が上昇するからである。

結晶中を長さ L だけ熱拡散によって伝播する時間は近似的に (L^2/k) で与えられる。今、 P_1 ハルスによる励起後の時間、あるいは、 P_1 のハルス幅が (L^2/k) に比べて充分長い場合には、上に述べた熱抵抗のために、結晶内の温度分布はほぼ一様になると考えられる。図7-3は、 P_1 のハルス幅が $0.5 \mu\text{s}$ で、時間の長い場合の減衰曲線を示す。このような場合の表面温度の減衰は、結晶とヒートシンクとの間の熱抵抗によって決められる。図7-3の曲線から求められる時定数は $15 \mu\text{s}$ である。

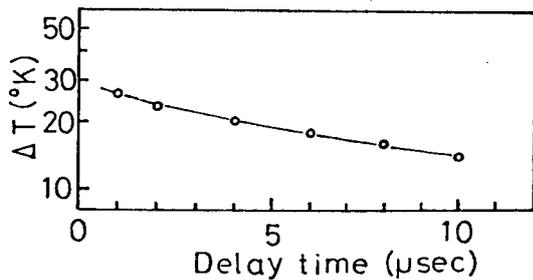


図7-3

遅延時間の長い場合の減衰曲線 ($P_1 = 0.5 \mu\text{s}$)。

§ 7-4 励起パルス内でのレーザ波長の変化

励起パルス内においてレーザ波長は時間とともに長波長側へ変化する。図7-4は80Aでのレーザ発振スペクトルを励起パルスの立上がりからの時間遅れに対して測定したものである。しきい値電流よりも充分大きな励起電流の場合には、図の中に見られるようなモード構造が現われる。

各々のピークの波長が時間に対してほぼ一定であることから、このモード構造は発光機構によるものではなくて、試料の形状に寄因していると考えられる。200 μm の共振器長に対応する軸モードの波長間隔は約0.4 \AA と計算され、⁽⁵⁾測定される波長間隔、1.0 \AA とは異なる。観測された波長間隔は、むしろ結晶の厚み、8 μm に対応している。このモード構造は薄い試料でよく観測されることから、薄い面の間を光が伝播するときに起る干渉の効果か原因であると考えられる。

励起パルスの立上がりからの遅れ時間とともに、発振スペクトルの中で短波長側のピークの発光が弱くなる。同時に、長波長側に新しいピークが現われ、スペクトルは全体として長波長側へ移動する。

図7-4は、電子ビームの電流密度が3 A/cm²の場合のレーザ発振スペクトルの時間変化を示す。このスペクトルの中心波長の時間変化の割合は

0.65 $\text{\AA}/\text{nsec}$ であるから

1 A/cm² 当りのレーザ波長の時間変化の割合は

0.22 $\text{\AA}/\text{nsec}$ である。

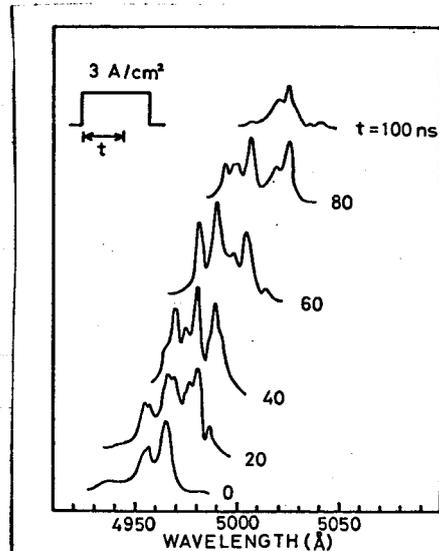


図7-4. レーザ発振スペクトルの時間変化。

図7-5は、励起電流に対するレーザ波長の時間変化の割合を示す。励起電流が 5 A/cm^2 程度までの波長変化の割合は、 1 A/cm^2 当り 0.2 \AA/nsec である。励起電流の増加に伴って割合は減少し、 8 A/cm^2 の励起電流では 0.13 \AA/nsec になる。

この試料でのしきい値電流は 1 A/cm^2 であるが、しきい値以下の自然放出光の波長変化の割合は 0.17 \AA/nsec であり、励起表面から放出される自然放出光の波長の時間変化に比べて2倍ほど大きい。共振器の端面からの自然放出光は自己吸収の影響を受けるために波長の温度依存性が大きく、従って、温度上昇に伴う波長の時間変化が大きい。

この場合、電子線による励起表面の温度上昇の割合は、 80 K の場合、励起電流 1 A/cm^2 当り、 0.13 deg/nsec であることを§7-2で示した。またレーザ波長の温度依存性の測定から、 80 K でのレーザ波長の温度変化の割合は 1.3 \AA/deg であった。従って、温度上昇から予測されるレーザ波長の時間変化の割合は、 1 A/cm^2 当り 0.17 \AA/nsec である。図7-5の中の破線はこの温度上昇による割合を示す。図の中の測定値と破線との比較から測定されたレーザ波長の時間

変化は、主に、温度上昇によることかわかる。励起電流が大きい場合の変化割合の減少は、第3章の§3-2において示し

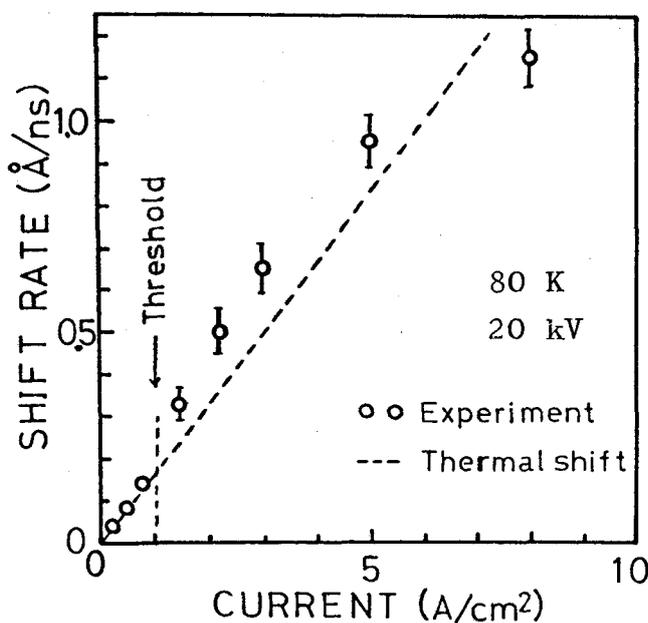


図7-5

励起電流に対するレーザ波長の時間変化の割合 (80 K)。

たように、誘導放出の割合が増加するため、発熱の割合が減少することによると考えられる。しかしながら、Shewchenらによって報告されているような、電流密度が大きき場合にV-ザ波長の時間変化の割合が一定に在るという結果は⁽⁵⁾ここでは観測されなかった。

以上で述べたように、電子ビーム励起の場合には励起表面の急速な温度上昇があるために、V-ザ波長が変化するのに伴って発振しきり値も上昇する。電子ビーム励起の場合には、構造上から、励起表面を直接に冷却することか困難なために、活性領域の温度上昇を抑えることはできない。このために連続発振を行なうことは困難であると考えられる。連続出力を得る方法としては、電子ビームの掃引によって局所的な温度上昇を抑える方法が用いられている。⁽⁶⁾

§ 7-5 まとめ

電子ビームで励起された表面での温度変化を、その表面からの発光波長の変化から、 10^{-8} 秒程度の時間変化まで測定する方法を示した。励起表面の温度上昇の割合は、80 Kで20 K Vの場合、電流 1 A/cm^2 当り、 0.13 deg./msec であった。

励起パルス後の表面温度の減衰をダブルパルスの電子ビームを用いて測定した結果、励起表面での温度の減衰曲線から、約 $0.3 \mu\text{s}$ の時定数が得られた。

励起パルス内でのV-ザ波長の時間変化の割合は、 1 A/cm^2 当り、約 0.2 \AA/msec であった。このV-ザ波長の急速な時間変化は、励起表面の温度上昇によることを、V-ザ波長の温度依存性を用いて説明した。

第 7 章 文 献

- 1) C. A. Klein : J. Appl. Phys. 39 (1968) 2029.
- 2) H. Aritome, K. Masuda and S. Namba : IEEE J. Quantum Electronics QE-7 (1971) 118.
- 3) S. Iwai and S. Namba : Japan J. appl Phys. 12 (1973) 1382.
- 4) C. E. Hurwitz : Appl. Phys. Letters 8 (1966) 121.
- 5) J. Schwechen, B. S. Kawasaki and B. K. Garside : IEEE J. Quantum Electronics QE-6 (1970) 133.

第 8 章 結 論

第 4 章 から第 7 章 までに、電子ビーム励起による CdS と ZnO レーザ について行った実験とその考察 について述べてきた。この第 8 章 では、得られた結果をまとめて述べる。

CdS および ZnO からの発光を 10 K から 300 K の温度範囲で測定した結果、高密度励起の状態では励起子-励起子間の衝突を伴う自由励起からの発光 (P 発光) が強くなり、広い温度範囲にあたって P 発光の波長領域でレーザ発振することか明らかになった。

低温でのレーザ発振は P 発光のピークで観測されるが、80 K 以上の高い温度でのレーザ発振は P 発光のピークよりも長波長側に現われ、温度上昇に伴って長波長側へ大きく変化する。そのためにレーザ波長の温度依存性はバンドギャップの温度変化に比べて大きいことを示した。この事実から、レーザ発振に及ぼす自己吸収の影響が、温度の高い場合には強いことが明らかになった。

自己吸収の効果を明らかにする目的で、共振器の長さや反射率の変化に伴うレーザ波長の変化の測定を行った。その結果、共振器を長くしたり反射率を大きくすることによってレーザ波長は長波長側へずれることがわかった。この場合に、P 発光に基づく利得曲線と自己吸収による損失曲線を用いて発振しきい値でのレーザ波長を計算した。この計算結果と測定値とが良く一致することからレーザ発振の利得曲線に及ぼす自己吸収の影響が明らかになった。

謝 辞

本研究を進めるにあたり、御指導と御鞭撻を賜わりました大阪大学基礎工学部、難波進教授に深く感謝します。

また、本実験を行う過程、なるかに本論文をまとめるに際して、有益なる助言をいただきました理化学研究所、半導体工学研究室、および大阪大学基礎工学部、難波研究室の皆様にご礼申し上げます。