



Title	赤外域スピン・フリップラマンレーザーに関する研究
Author(s)	安田, 和人
Citation	大阪大学, 1982, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/1635">https://hdl.handle.net/11094/1635</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

赤外域スピン・フリップ ラマン  
レーザーに関する研究

1981

安 田 和 人

# 目 次

第 1 章 序 論 .....	1
参 考 文 献 .....	4
第 2 章 $n\text{-InSb}$ スピン・フリップ ラマン (SFR) レーザー	
§ 2.1 緒 言 .....	6
§ 2.2 SFR レーザーの原理 .....	6
§ 2.3 実験装置及び実験方法 .....	15
§ 2.4 SFR レーザー出力の励起光強度依存性 .....	15
§ 2.5 SFR レーザー出力の磁場依存性	
2.5.1 同調特性 .....	16
2.5.2 出力光の磁場依存性 .....	18
2.5.3 出力の磁場依存性の解析 .....	20
§ 2.6 結 言 .....	23
参 考 文 献 .....	24
第 3 章 $n\text{-Pb}_{0.88}\text{Sn}_{0.12}\text{Te}$ SFR レーザー	
§ 3.1 緒 言 .....	26
§ 3.2 共鳴 SFR 散乱の原理 .....	26
§ 3.3 実験装置及び実験方法	
3.3.1 SFR 共振器 .....	27
3.3.2 実験条件 .....	27
§ 3.4 SFR レーザー出力の励起光強度依存性 .....	28
§ 3.5 SFR レーザー出力の磁場依存性	
3.5.1 同調特性 .....	29
3.5.2 出力の磁場依存性 .....	30
3.5.3 出力の磁場依存性の解析 .....	35

§ 3.6	今後の問題点	38
§ 3.7	結 言	38
	参 考 文 献	40
第 4 章	n-InSb SFRレーザー出力及び励起光透過波形の時間的变化	
§ 4.1	結 言	42
§ 4.2	SFRレーザー出力及び励起光透過特性の時間的变化	
4.2.1	実験装置及び実験方法	43
4.2.2	実験結果と検討	44
§ 4.3	CO <sub>2</sub> レーザー光による光電導特性	
4.3.1	実験装置及び実験方法	46
4.3.2	実験結果と検討	47
§ 4.4	結 言	50
	参 考 文 献	52
第 5 章	SFRレーザーのガス分析への応用	
§ 5.1	結 言	53
§ 5.2	実験方法	53
§ 5.3	実験結果と検討	54
§ 5.4	結 言	57
	参 考 文 献	58
第 6 章	結 論	60
謝	辞	62
研 究 業 績		63

# 第 1 章 序 論

1950年代末に発明されたレーザーは、単色、高輝度、高指向性という従来の光源にないすぐれた特性をもつため、以後の物理学・工学の発展に大きな寄与をしたばかりでなく、新しい研究分野も開拓してきた。非線形光学はその一つであるが、最初は水晶を媒質とするルビーレーザー光の第2高調波の発生から発展し始めた。初期には電氣的な絶縁体が媒質として用いられていたが第2高調波の発生には媒質中の価電子が重要な寄与をする事が明らかにされた。その後間もなく、固体中の伝導電子も非線形光学効果を生じる可能性があることが指摘され、半導体結晶がこの効果を観測する媒質として注目され始めた。その理由は、半導体結晶は禁制帯幅以下のフォトンエネルギーをもつ光に対して透明であり、また、伝導電子密度を $10^{14} \sim 10^{16} \text{cm}^{-3}$  という非線形光学効果を観測するのに最適な値に整えることが可能なためである。半導体結晶を媒質として用いて、伝導電子によるラマン散乱<sup>(1)</sup>、多光子混合<sup>(2)</sup>、遠赤外光の発生<sup>(3)</sup>、自己収束効果<sup>(4)</sup>の研究が行なわれている。<sup>(5)</sup>

一方、この非線形光学効果を利用して、電界あるいは磁界に対して同調可能な散乱光を得ようとする研究も行なわれ始めた。その一つに強磁場を印加した半導体中の伝導電子によるラマン散乱がある。この場合には磁場によって散乱光周波数を連続的に変化できるという特徴がある。以下磁場中の伝導電子によるラマン散乱の研究の歴史を振り返ってみる。

磁場中での伝導電子によるラマン散乱は1966年MITのWolffにより最初に予言された<sup>(6)</sup>彼は伝導体の nonparabolicity に基づく非調和効果が存在すると、ランダウ準位間での伝導電子のラマン散乱が可能になることを示した。また、彼は InSb のような禁制帯幅の小さい半導体では伝導電子の有効質量が小さく、伝導電子の nonparabolicity が大きいいため、ラマン散乱断面積が大きくなることも指摘した。

その後、Bell 研究所の Yafet はゼーマン副準位間でのスピン反転を伴うラマン散乱 (Spin Flip Raman 散乱 : SFR 散乱) の可能性を指摘した。<sup>(7)</sup> これらの過程の実験的な確認は、1967年にBell研究所のSlusherらによって最初に行なわれ、n-InSbを媒質としCO<sub>2</sub>レーザー光を励起光源とするゼーマン準位間のSFR散乱光及びランダウ準位間のラマン散乱光が観測された<sup>(8)</sup>1969年、Heriot-Watt大学のWherrettらはSFR散乱の散乱断面積は、散乱に寄与する電子の初期状態と終状態の分布差に依存することを指摘し、散乱に寄与する伝導電子がすべて初期状態に分布するようになる時、散乱強度が最も強くなることを理論的に指摘した。<sup>(9)</sup> この散乱強度が最大となる条件のもとで、1970年にBell研究所のPatelとShawはQスイッチCO<sub>2</sub>レーザーを励起光源とするn-InSb SFRレーザーの発振に成功し、同時にSFRレーザーの発振線幅が非常に狭く、励起光からSFRレーザー光への変換効率も1%程度と高い事を明らかにした。

その後、1971年にMITのAggarwalらはTEA CO<sub>2</sub>レーザーを励起光源とする、最大出力1kW以上の大出力SFRレーザーを発振させた。<sup>(10)</sup> 彼らは共振器の光励起領域を大きくする

ことによって大出力を得ることに成功した。

以上述べてきた SFR レーザーは、いずれもパルス発振であったが、1971年には MIT の Mooradian らが最初の SFR レーザーの連続発振に成功した。<sup>(12)</sup> 彼らは励起光源として CO レーザーを用い、励起光のフォトンエネルギーをラマン媒質の禁制帯幅に近づけたときにラマン利得が共鳴的に増加する効果（共鳴ラマン効果）を活用した。

このような、SFR レーザー開発の流れの中で近年波長 10 $\mu\text{m}$  領域で動作する SFR レーザーの開発が活発に行なわれている。このレーザーの実現のためには波長 10 $\mu\text{m}$  領域のすぐれた光源である CO<sub>2</sub> レーザー光に対して共鳴ラマン効果を期待できる材料をラマン媒質として使用する事が不可欠である。この要求を満たし得る材料には Hg<sub>1-x</sub>Cd<sub>x</sub>Te や Pb<sub>1-x</sub>Sn<sub>x</sub>Te 等の三元混晶半導体がある。現在すでに Sattler らによって HgCdTe を共振器とした SFR レーザーで連続発振が実現されており、<sup>(13)</sup> PbSnTe にも連続発振に必要な共鳴効果が存在することが Yasuda らによって確認されている。<sup>(14)</sup> これらの材料は単に CO<sub>2</sub> レーザー光に対して共鳴効果があるだけでなく、SFR 共振器として用いた場合には伝導電子の有効 g 値が InSb に比して大きいため、単位磁場当りの散乱光の波長変化の大きさが InSb より大きくなるという利点もある。また、これらの材料は組成比を変える事により禁制帯幅を変化できるため CO<sub>2</sub> レーザー光よりも長波長の励起光に対しても共鳴効果を活用し、SFR レーザーを構成できると考えられ、今後さらに発展が期待される。

SFR レーザーの可変波長範囲は n-InSb と CO レーザーの組合せでは 5.2~6.2  $\mu\text{m}$  の範囲で<sup>(15)</sup> また、n-InSb と CO<sub>2</sub> レーザーの組合せでは 9  $\mu\text{m}$ ~14.6  $\mu\text{m}$ <sup>(11)</sup> 程度となっている。但し、後者には散乱光が再び励起光として作用することにより励起光からゼーマン準位間隔の 2 倍のエネルギーシフトをうけて散乱される出力光も含んでいる。SFR レーザーの可変波長範囲を拡大するため励起光源として他のレーザーを使用する試みも行なわれている。この例としては CO<sub>2</sub> レーザー光によって励起した NH<sub>3</sub> ガスレーザーを励起光源として使用した例があり、<sup>(16)</sup> 可変波長範囲は 14~16.8  $\mu\text{m}$  と報告されている。今後、励起に用いる光源の開発と発展に伴い、SFR レーザーの波長可変範囲はさらに拡大されると予想できる。

一方、InSb SFR レーザーの発振線幅は CO<sub>2</sub> レーザーのパルス励起の場合、単一縦モード発振では、0.05  $\text{cm}^{-1}$  以下と報告されている。<sup>(10)</sup> しかし、発振しきい値を十分超える励起光強度のもとでは 2 本ないしは 3 本の縦モードが同時に発振するため実効的に発振線幅が広がって観測される。これは共振器の電子密度が 10<sup>16</sup>  $\text{cm}^{-3}$  程度と高いため、電子が伝導帯の nonparabolicity を反映してラマン遷移を行う結果、ラマン利得のスペクトル幅が広がることによる。しかし、CO レーザー励起の場合には、共鳴効果を利用することによって、ラマン利得の増大をはかれるため、共振器中の電子密度を減少することが可能となり発振線幅を大きく低減できる。実際 1 $\times$ 10<sup>15</sup>  $\text{cm}^{-3}$  の電子密度の共振器を用いた場合、発振線幅は 1 kHz 以下と報告されている。<sup>(17)</sup> また、連続発振の SFR レーザーでは共振器に印加する磁場を精密に制御し、出力の周波数ゆらぎを 30 kHz 以下にする試みも行なわれている。<sup>(18)</sup> SFR レーザーを一定波長で発振させる時には、このような安定性が実現できるが

発振波長を掃引する場合には共振器の縦モードとラマン利得幅の相互作用によって発振波長に非連続な跳び (mode jump) が生じる。<sup>(19)</sup> しかし、表面に無反射コーティングを施した  $n\text{-InSb}$  結晶をラマン利得領域とし、サーボ制御系によって結晶外部に設置した反射鏡間隔を可変とした SFR レーザーではモードの跳びを完全に防止できたという報告がある。<sup>(20)</sup>

励起光から SFR レーザー出力 (ストークス光) へのパワー変換効率は  $\text{CO}_2$  レーザー励起の場合最大で 5% 程度、または最大出力は 1 kW 程度である。<sup>(11)</sup> しかし、共鳴効果を活用した連続発振では変換効率は約 80% にも達し、出力も 2~3 W 程度と報告されている。<sup>(21)</sup> 最近  $\text{CO}_2$  レーザー励起の  $n\text{-InSb}$  SFR レーザーで非線形な光吸収が発生することが指摘されている。SFR レーザーの発振出力は励起光強度が発振しきい値を超えると急激に増加しピークに達するが、その後は励起強度の増加と共に出力はかえって減少するようになる。また、出力の時間的な変化は励起光パルスと似たような変化を示さず励起光強度がピークとなる時にはかえって減少することが見出されている。<sup>(22)(23)</sup> この現象が生じる原因は励起光によって価電子帯から伝導体に電子が励起され、その結果生じた正孔によって励起光が吸収されるためであることが明らかになった。<sup>(23)</sup>

SFR レーザーは以上に述べた特性をもった光源であるが、このレーザーの波長可変範囲には従来強力な光源がなかったため、このレーザーの分光学的な応用や光化学反応用光源としての応用に興味もたれている。これまでに行なわれた SFR レーザーによる分光実験には水蒸気のラムクほみ幅の測定<sup>(24)</sup> や大気中の  $\text{NO}_x$  や  $\text{O}_2$  等公害ガス濃度の長時間測定<sup>(25)</sup> 等の例がある。また、光化学反応への応用としては  $\text{NH}_3$  レーザーを励起光源とする SFR レーザーを  $\text{UF}_6$  の同位体分離に用いる事が提案されている。<sup>(26)</sup> その他、SFR レーザーの出力光と励起光を光混合し、これら二つの差周波光として遠赤外光を取り出す試みも行なわれている。<sup>(27)</sup> この場合、励起光として  $\text{CO}_2$  レーザーを用いると遠赤外光の可変波長範囲は  $85\mu\text{m}\sim 105\mu\text{m}$  程度となることが報告されている。<sup>(28)</sup>

以上述べたような SFR レーザーの研究経過の中で、筆者は主として  $\text{CO}_2$  レーザーを励起光源とし  $n\text{-InSb}$  及び  $n\text{-PbSnTe}$  を共振器とする SFR レーザーの基礎発振特性を明らかにし、さらにその特性をもとに SFR レーザーを高分解能スペクトロスコープに應用することを目的として研究を行ってきた。本論文第 2 章では、 $n\text{-InSb}$  SFR レーザーの基礎発振特性について述べる。このレーザー出力の磁場による変化は従来厳密に解析されていなかったが、実験結果が SFR 利得と共振器内部の光損失を考慮した解析とよく一致する事を示す。第 3 章では、波長  $10\mu\text{m}$  領域で連続発振が期待できる  $n\text{-PbSnTe}$  SFR レーザーをはじめて開発して得た基礎発振特性について述べる。このレーザーには連続発振を実現するため必要な共鳴効果が存在することを実験的に明らかにし、計算値と対比する。第 4 章では、 $n\text{-InSb}$  SFR レーザーの出力及び透過光波形の時間的な変化について述べ、これらを決定する要素として励起光によって生成される正孔の寄与を論じる。第 5 章では、 $n\text{-InSb}$  SFR レーザーの応用として  $\text{NH}_3$  ガス吸収スペクトルを測定した結果について述べる。第 6 章では、2 章から 5 章までの結論を述べ本論文を終結する。

## 参 考 文 献

- 1) A.Mooradian and G.B.Wright; Phys. Rev. Letters 16 (1966) 999.
- 2) C.K.N.Patel, R.E.Slusher and P.A.Fleury; Phys. Rev. Letters 17 (1966) 1011.
- 3) V.T.Nguyen and T.J.Brides; Phys. Rev. Letters 29 (1972) 359.
- 4) N.Tzoar and J.I.Gersten; Phys. Rev. Letters 26 (1971) 1634.
- 5) 矢島達夫; 量子エレクトロニクス (上), 物理学選書13巻, 裳華房 (1972)
- 6) P.A.Wolff; Phys. Rev. Letters 16 (1966) 225.
- 7) Y.Yafet; Phys. Rev. 152 (1966) 858.
- 8) R.E.Slusher, C.K.N.Patel and P.A.Fleury; Phys. Rev. Letters 16 (1967) 77.
- 9) B.S.Wherrett and P.G.Harper; Phys. Rev. 15 (1969) 692.
- 10) C.K.N.Patel and E.D.Shaw; Phys. Rev. Letters 24 (1970) 451.
- 11) R.L.Aggarwal, B.Lax, C.E.Chase, C.R.Pidgeon and D.Limbert; Appl. Phys. Letters 18 (1971) 383.
- 12) A.Mooradian, S.R.J.Brueck and F.A.Blum; Appl. Phys. Letters 17 (1970) 481.
- 13) J.P.Sattler, B.A.Weber and J.Nemarich; Appl. Phys. Letters 25 (1974) 491, 27 (1975) 93.
- 14) K.Yasuda and J.Shirafuji; Appl. Phys. Letters 34 (1979) 661.
- 15) C.K.N.Patel, E.D.Shaw and R.J.Kerl; Phys. Rev. Letters 25 (1970) 8.

- 16) C.K.N.Patel, T.Y.Chang and V.T.Nguyen; Appl. Phys. Letters 28 (1976) 603.
- 17) C.K.N.Patel; Phys. Rev. Letters 28 (1972) 649.
- 18) S.R.J.Brueck and A.Mooradian; IEEE J. Quantum. Electron QE-10 (1974) 634.
- 19) S.R.J.Brueck and A.Mooradian; Appl. Phys. Letters 18 (1971) 229.
- 20) T.Scragg, C.N.Ironside, R.B.Dennis and S.D.Smith; Opt. Commun. 18 (1976) 456.
- 21) C.S.DeSilets and C.K.N.Patel; Appl. Phys. Letters 22 (1973) 543.
- 22) J.F.Figueira, C.D.Cantrell, J.P.Rink and P.R.Forman; Appl. Phys. Letters 28 (1976) 398, 442.
- 23) K.Yasuda and J.Shirafuji; Jpn. J. Appl. Phys. (submitted)
- 24) C.K.N.Patel; Appl. Phys. Letters 25 (1974) 112.
- 25) C.K.N.Patel; Opt. and Quantum Electron 8 (1976) 145.
- 26) K.Boyer; "Laser Isotope Separation", 'Laser Photochemistry, Tunable Laser and Other Topics' (ed S.F.Jacobs et al., Addison-Wesley, London, 1976) p. 1.
- 27) T.J.Bridges and V.T.Nguyen; Appl. Phys. Letters 23 (1973) 107.
- 28) N.Brignall, R.A.Wood, C.R.Pidgeon and B.S.Wherrett; Opt. Commun. 12 (1974) 17.

## 第2章 n-InSb スピン・フリップ ラマン (SFR) レーザー

### § 2.1 緒 言

波長  $10\mu\text{m}$  領域で動作する  $\text{CO}_2$  レーザー励起 n-InSb SFR レーザーは、Patel らによって最初に実現された。<sup>(1)</sup> この SFR レーザーの可変波長領域には、従来強力な出力をもつ光源が数少なかった反面、公害のもととなる各種のガスをはじめ、多くのガス分子の特徴的な吸収スペクトル帯 (Finger Print 帯) が存在することから、このレーザーをこれからガス分子の吸収スペクトル測定等のスペクトロスコープ用の光源として利用することが注目されてきた。また、このレーザーの出力はパルス発振となるが、そのピーク出力は共振器中の励起体積を大きくする事により容易に増大することが可能で、 $1\text{kW}$  以上に達する大出力も得られている。<sup>(2)(3)</sup> このように大出力化が可能ことから、最近では光化学反応用光源としての応用も注目されはじめ、レーザー同位体分離用の光源の有力候補の1つとされている。<sup>(4)</sup> SFR レーザーの発振開始磁場及び出力は共振器中に含まれる伝導電子密度によって影響されるが、近年、結晶成長技術の進歩により、n-InSb の電子密度の制御が可能となり SFR レーザー共振器として最適な結晶が得やすくなったことから、このレーザーの実用性は急速に高まっている。

本章では横励起 (TE)  $\text{CO}_2$  レーザーで励起した n-InSb SFR レーザーの基礎発振特性について述べる。2.2 節では SFR レーザーの原理として、特にその利得機構に影響を及ぼす諸要素を考察する。2.3 節では SFR レーザーの実験条件について述べ、2.4、2.5 節では基礎発振特性の測定から得られた発振出力の励起光強度依存性、出力の可変波長範囲、発振出力の磁場による変化について述べる。

以上、本実験で得られた SFR レーザーの発振出力がどのような要素により影響をうけるかを考察し、 $\text{CO}_2$  レーザー励起 SFR レーザーの基礎発振特性を明らかにする。

### § 2.2 SFR レーザーの原理

n 形半導体に磁場を印加すると伝導電子は磁場に垂直な面内でサイクロトロン運動を行なう。この時、磁場に垂直な方向の運動に対する運動エネルギーは磁場が存在しない時のような準連続値とは異なり、サイクロトロンエネルギー  $\hbar\omega_c$  ごとの飛び飛びの値となる。また、磁場の存在は伝導電子がもつスピンに関する 2 重の縮退を解き、分裂した 2 つのエネルギー状態 (ゼーマン副準位) を出現させる。このため、各々のサイクロトロンエネルギー  $\hbar\omega_c$  で量子化されたエネルギー準位はそれぞれ 2 つづつの副準位 (以下ではスピン準位とよぶ) に分裂することになる。磁場中での伝導電子のエネルギーは磁場方向を Z 軸にえらぶと

$$E = E_g + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m^*} + \left(\ell + \frac{1}{2}\right) \hbar\omega_c + \frac{1}{2} |g^*| \cdot \mu_B \cdot B$$

( 2.2.1 )

と表わされる。<sup>(5)</sup> ここで、 $E_g$  は磁場が存在しない時の禁制帯幅、 $m^*$  は伝導電子の有効質量、 $k_z$  は電子波数の磁場方向成分、 $\ell$  はランダウ準位の量子数で0を含む正整数、 $g^*$  は伝導電子の有効g値、 $\mu_B$  はボーア磁子、 $B$  は磁場を表わす。また、一符号は磁場に平行なスピンの単位（↑スピン単位）に、十符号は反平行なスピンの単位（↓スピン単位）にそれぞれ対応する。また、この式から磁場中で電子がもつエネルギーは磁場方向の波数 $k_z$  とランダウ準位量子数 $\ell$  及びスピンの向きによって指定されることがわかる。

SFRレーザーは通常 $\ell = 0$ のランダウ準位に付属するゼーマン準位間、すなわち↑スピン準位と↓スピン準位の間での電子のラマン遷移に伴って放出される散乱光を利用する。ラマン遷移をストークス光を例として説明すると、図-2.2.1に示すように初期状態 $|i\rangle$  で表わされる↑スピン準位に存在する電子は励起光光子エネルギー $\hbar\omega_0$ を吸収することにより、中間状態 $|t\rangle$  に遷移し、この中間状態から終状態 $|f\rangle$  で表わされる↓スピン準位に遷移する時散乱光として光子エネルギー $\hbar\omega_s$ をもつストークス光を放出する。この初期状態と終状態のエネルギー差を $\hbar\omega_R$ とすると

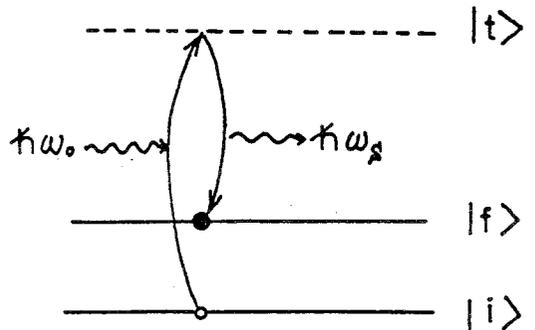


図-2.2.1 ストークスラマン散乱の機構

$$\hbar\omega_R = |g^*| \mu_B \cdot B \quad (2.2.2)$$

であり、励起光光子エネルギー $\hbar\omega_0$ と散乱光光子エネルギー $\hbar\omega_s$ との間には

$$\hbar\omega_0 - \hbar\omega_s = \hbar\omega \quad (2.2.3)$$

で表わされる関係が成立する。(2.2.2)式で表わされる周波数 $\omega_R$ は磁場によって変化できるため、散乱光の周波数は磁場により連続的に制御可能となる。InSbでは禁制帯幅が小さく、スピンの軌道相互作用が非常に大きいことにより、伝導電子のもつ有効g値は大きい。このため散乱光の単位磁場当りの周波数シフトも大きくなる。SFRレーザーではストークス光の他に励起光より $\omega_R$ だけ周波数の高い散乱光も観測される。この散乱光は反ストークス光とよばれ光子エネルギーを $\hbar\omega_{AS}$ で表わすと

$$\hbar\omega_0 - \hbar\omega_{AS} = -\hbar\omega_R \quad (2.2.4)$$

の関係が成立する。反ストークス光はストークス光発生に伴って電子が遷移した $|f\rangle$ 状態からストークス光発生と逆の過程で電子が $|i\rangle$ 状態に遷移する時に放出される散乱光である。

ラマン散乱は3次の非線形光学効果であるが、ストークス光の利得 $g_s$ は以下のように非線形分極を含む非線形マクスウェル方程式を解く事により得られる。励起光とストークス光の電界ベクトルを $E_0, E_s$ で表わすと、ストークス光周波数 $\omega_s$ をもつ非線形分極 $P_s^{NL}$ は3次の非線形感受率 $\chi_R$ により

$$P_s^{NL} = \chi_R \cdot |E_0|^2 \cdot E_s \quad (2.2.5)$$

と表わされる。ストークス光の電界はこの非線形分極を駆動項としてもつ非線形マクスウェル方程式

$$\nabla \times \nabla \times E_s + \frac{\epsilon_s}{c^2} \frac{\partial^2 E_s}{\partial t^2} = -\frac{4\pi}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 P_s^{NL}}{\partial t^2} \quad (2.2.6)$$

により表わされる。この(2.2.6)式の一次元解として

$$E_s(t, Z) = E_s \cdot \exp\{i(K_s \cdot Z - \omega_s t)\} \quad (2.2.7)$$

を仮定する。ここで $K_s$ はストークス光波動ベクトルである。(2.2.6)と(2.2.7)式から $K_s$ は

$$K_s^2 = \frac{\omega_s^2}{c^2} \cdot \epsilon_s \left[ 1 + \frac{4\pi}{\epsilon_s} \chi_R |E_0|^2 \right] \quad (2.2.8)$$

と表わされる。この式はストークス光の分散関係を表わす。また、 $\chi_R$ は複素数となり

$$\chi_R = \chi_R' - i\chi_R''$$

と表わされるが、SFR散乱では負の虚数値となる。<sup>(7)</sup> (2.2.8)式の第2項は一般に小さいことにより $K_s$ は

$$K_s = \frac{\omega_s}{c} n_s - i \frac{2\pi\omega_s}{cn_s} |E_0|^2 \chi_R'' \quad (2.2.9)$$

と表わせる。これを(2.2.7)式に代入することにより、ストークス光の電界は

$$E_s(t, Z) = E_s \exp\left\{ \frac{2\pi\chi_R'' \omega_s |E_0|^2}{cn_s} \cdot Z \right\} \\ \times \exp\left\{ i \left( \frac{\omega_s}{c} n_s \cdot Z - \omega_s t \right) \right\} \quad (2.2.10)$$

と表わされる。(2.2.10)式の指数第1項は正数であり、ストークス光電界は伝搬するにつれて増幅されることを示している。

ストークス光の単位長当りの利得 $g_s$ は(2.2.10)式から

$$g_s = \frac{4\pi\chi_R'' \omega_s}{n_s c} |E_0|^2 \\ = \frac{8\pi^2 \cdot \omega_s \chi_R''}{c^2 \cdot n_s n_0} I_0 \quad (2.2.11)$$

と表わされる。ここで $I_0$ は励起光強度、 $n_0$ は励起光周波数での媒質の屈折率を表わす。SFR散乱では励起光と散乱光に対する媒質の屈折率の変化が小さいため、 $n_s \approx n_0$ と表わす。

ストークス光の利得  $g_s$  は感受率  $\chi_R''$  を用いて表わすよりも媒質中の散乱体をもつ微分散乱断面積  $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t$  を用いて表わすほうが実用上便利である。Dennis らは媒質単位体積内に含まれた伝導電子に対する単位立体角あたりの散乱断面積  $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t$  は感受率の虚数項  $\chi_R''$  により

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t = \chi_R'' \left(\frac{\omega_s}{c}\right)^4 \frac{\hbar\Gamma}{2} \frac{n_s}{n_0} \quad (2.2.12)$$

と表わされる事を示している。<sup>(8)</sup> 但し、(2.2.12)式では感受率  $\chi_R''$  がローレンツ形の周波数依存性をもつと仮定し、そのピーク値を  $\chi_R'' \Gamma$  をその半値幅とした。(2.2.12)により SFR利得  $g_s$  は

$$g_s = \frac{16\pi^2 C^2}{\hbar\omega_s^3 \cdot n_s^2} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t \frac{I_0}{\Gamma} \quad (2.2.13)$$

と表わされる。 $\Gamma$  は自発ラマン散乱の線幅として観測され、ラマン利得の広がりを表わす。SFR散乱では  $\Gamma$  は媒質のキャリア密度、散乱方向と磁場の配置及び磁場強度により大きく変化する。<sup>(9)(10)(11)</sup>

InSb に対する波長  $10\mu\text{m}$  領域でのストークス光利得  $g_s$  は  $1.7 \times 10^{-5} \text{cm}^{-1}/\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$  程度と報告されている。この値は可視光領域での  $\text{CS}_2$  のもつラマン利得より  $10^3$  程度大きな値である。InSb と  $\text{CS}_2$  の自発ラマン散乱の線幅  $\Gamma$  は同程度であり、散乱断面積  $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t$  は  $\text{CS}_2$  の方が大きいから、InSb の利得が大きい理由は利得  $g_s$  が散乱光周波数  $\omega_s$  の3乗に逆比例するため赤外域の SFR散乱では可視域の散乱の場合よりも利得が増加するためである。<sup>(9)(12)</sup> SFR利得は後に述べる共鳴効果による散乱断面積の増加を利用して、さらに増大させることが可能で、共鳴条件下でのラマン利得は、 $9 \times 10^{-4} \text{cm}^{-1}/\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$  程度にも達することが報告されている。<sup>(13)</sup>

次に、SFR散乱の散乱断面積について述べる。SFR散乱の散乱断面積は、散乱に寄与する伝導電子の分布状態及び電子の SFR遷移行列要素によって影響をうけるが、ストークス散乱に対して

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t = \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \cdot \left(\frac{\omega_s}{\omega_0}\right) \cdot m^2 \cdot \sum_{\ell, k_2} |R|^2 \cdot (1 - f_{\ell\downarrow}(k_2)) \cdot f_{\ell\uparrow}(k_2) \quad (2.2.14)$$

と表わされる。<sup>(14)</sup> ここで、 $f_{\ell\downarrow}(k_2)$ 、 $f_{\ell\uparrow}(k_2)$  は量子数  $\ell$  のランダウ準位に付属した  $\downarrow$  スピン準位、 $\uparrow$  スピン準位の電子の占有確率を表わす。また、 $R$  は SFR散乱の遷移行列要素、 $m$  は電子の質量、 $e$  はその電荷を表わす。SFR散乱の遷移行列要素  $R$  は

$$R = \sum_t \left\{ \frac{\langle f | \epsilon_s^* \cdot V | t \rangle \langle t | \epsilon_0 \cdot V | i \rangle}{\hbar\omega_0 - (E_t - E_i)} - \frac{\langle f | \epsilon_0 \cdot V | i \rangle \langle t | \epsilon_s^* \cdot V | i \rangle}{\hbar\omega_s + (E_t - E_i)} \right\} \quad (2.2.15)$$

と表わされる。ここで  $|t\rangle$  はラマン遷移の中間状態を表わし、 $|i\rangle$ 、 $|f\rangle$  はラマン遷移の初期状態と終状態を表わす。また、 $\epsilon_s, \epsilon_0$  はストークス光と励起光の偏光ベクトル、 $V$  は速度演算子である。初期状態と終状態はランダウ単位量子数と磁場方向の波数  $k_z$  及びスピンの向きによって指定される。ストークス光の発生過程では電子は伝導帯の  $|\ell, k_z, \uparrow\rangle$  単位から中間状態である価電子帯の状態  $|v\rangle$  に遷移し、次に  $|v\rangle$  から伝導帯の  $|\ell, k_z, \downarrow\rangle$  単位に遷移すると考えられる。しかし、この過程では価電子帯の状態  $|v\rangle$  は空状態でなければならない。 $n$ -形半導体は低温ではこのような条件が満たされなため、むしろ正孔が初期状態  $|\ell, k_z, \downarrow\rangle$  から中間状態  $|v\rangle$  に励起され、さらに  $|v\rangle$  から終状態  $|\ell, k_z, \uparrow\rangle$  に遷移すると考えた方が都合がよい。したがって、SFR遷移の生じる確率は価電子帯に電子が存在する確率  $f_v(k_z)$  と  $|\ell, k_z, \uparrow\rangle$  状態に電子が存在する確率  $f_{\ell\uparrow}(k_z)$  とさらに  $|\ell, k_z, \downarrow\rangle$  状態が空である確率  $(1-f_{\ell\downarrow}(k_z))$  との積に比例することになる。しかし、価電子帯には常に電子が存在するため  $f_v(k_z)=1$  と表わすことができるため (2.2.14) 式では、このことが考慮されている。磁場中では  $k_z=0$  で電子の状態密度が最大となるため大部分の遷移が  $k_z=0$  付近で生じると考えられる。従って、遷移行列要素の  $k_z$  による変化を無視できる。このことは遷移行列要素に対するエネルギー帯の nonparabolicity による変化を無視することに対応する。この時、遷移行列要素を (2.2.14) 式の  $\sum$  の外に取出して散乱断面積を

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t = \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \cdot \left(\frac{\omega_1}{\omega_0}\right) \cdot m^2 \cdot |R|^2 \cdot \sum_{\ell, k_z} (1-f_{\ell\downarrow}(k_z)) f_{\ell\uparrow}(k_z) \quad (2.2.16)$$

と表わすことができる。また、この仮定のもとでは (2.2.16) 式の  $\sum$  の前の項を  $k_z=0$  で1つの電子がもつ散乱断面積  $|F(0)|^2$  を用いて表わすことが可能となり

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t = |F(0)|^2 \sum_{\ell, k_z} (1-f_{\ell\downarrow}(k_z)) f_{\ell\uparrow}(k_z) \quad (2.2.17)$$

と表わすことができる。<sup>(15)</sup>

ストークス光の利得  $g_s$  は散乱断面積  $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_t$  の磁場依存性を通じて磁場と共に変化する。散乱断面積の磁場依存性を決定する要素は電子の占有確率と遷移行列要素であるが、共鳴効果による遷移行列要素の増大を考慮する必要のない場合には前者の磁場依存性が支配的である。以下では、はじめに電子占有確率の磁場依存性を考察し、次に遷移行列要素を考察する。

電子の占有確率の磁場による変化は (2.2.17) 式の右辺第2項を通じて考察できる。以後、簡単化のために温度  $T=0$  K を仮定し、電子の占有確率 (フェルミ分布関数)  $f_{\ell\uparrow, \downarrow}(k_z)$  が0または1と表わされる状態を考える。(2.2.17) 式の右辺第2項は伝導帯のすべての  $\uparrow$  スピン単位

に存在する電子数  $N_{\downarrow}$  とすべての  $\downarrow$  スピン準位に存在する電子数  $N_{\downarrow}$  の差 ( $N_{\uparrow} - N_{\downarrow}$ ) を表わす。磁場を増加すると各スピン準位の電子縮退度が増加するため、電子はエネルギーの低い  $\uparrow$  スピン準位に多く収容されるようになる。このため、 $\uparrow$  スピン準位と  $\downarrow$  スピン準位の電子数の差は磁場と共に増加し、すべての電子が  $\uparrow$  スピン準位に収容される時、電子の分布差は最大となり、その後は磁場が増加しても分布差は一定となる。この電子の分布差の磁場による変化は、全電子数が一定という条件からフェルミ準位の磁場による変化を考慮することによって推定できる。以下ではフェルミ準位の磁場依存性について、まず磁場が強くすべての電子が  $\ell=0$  の  $\uparrow$  スピン準位に存在する場合について述べ、その後、磁場の弱い場合を考える。

磁場が強く、すべての伝導電子がランダウ準位量子数  $\ell=0$  の  $\uparrow$  スピン準位 (以下  $(0, \uparrow)$  と表わすことにする) に存在するとき、すなわちフェルミ準位  $E_F$  が  $(0, \uparrow)$  準位と  $(0, \downarrow)$  準位の間に存在するとき、電子の分布差 ( $N_{\uparrow} - N_{\downarrow}$ ) は最大となり、SFR 散乱に寄与する電子数は最も多くなる。この状態を図 - 2.2.2 (a) に示す。

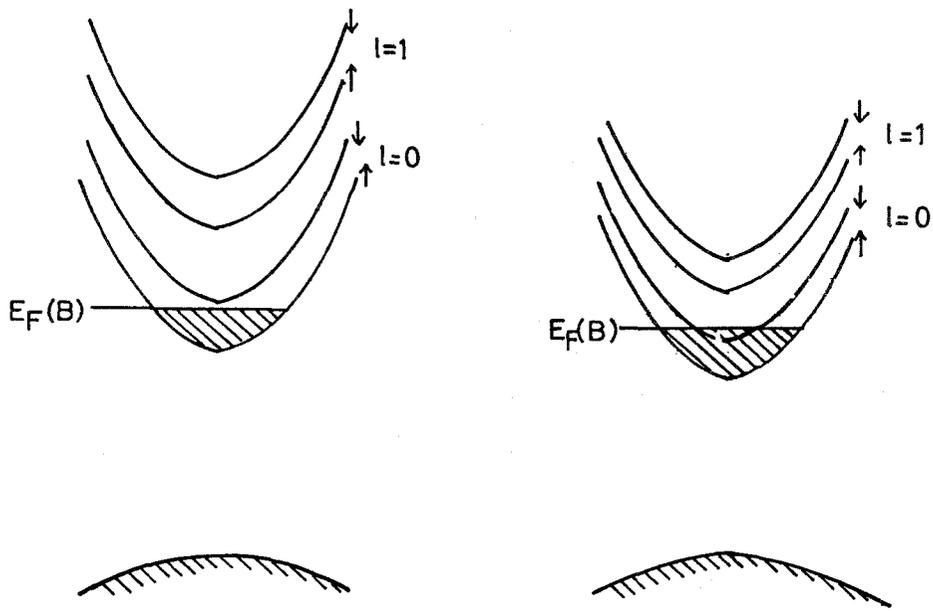


図 - 2.2.2 フェルミ準位とランダウ準位の変化

このような状態では、フェルミ準位は磁場の関数として

$$E_F(B) = \frac{1-\nu}{2} \hbar\omega_c + \frac{16}{9} \frac{E_F(0)^3}{(\hbar\omega_c)^2} \quad (2.2.18)$$

と表わされる。ここで、 $\omega_c = (eB/m^*c)$  はサイクロトロン周波数、 $\nu$  は  $\nu = \left( \frac{|g^*|}{2} m^*/m \right)$

であり、 $E_F(0) = (\hbar^2/2m^*) \cdot (3\pi^2 \cdot N_0)^{2/3}$  は磁場が存在しないときのフェルミ準位を表わす。このような状態では、電子の分布差は磁場によって変化しないため、利得 $g_s$ の磁場依存性は遷移行列要素の磁場依存性によって決定される。

次に、このような状態から磁場を弱くしてゆき、フェルミ準位 $E_F$ がランダウ準位量子数 $\ell=1$ の $\uparrow$ スピン準位と $\ell=0$ の $\downarrow$ スピン準位の間が存在するようになると $(0, \uparrow) < E_F(B) < (1, \downarrow)$  電子の分布差 $(N_{\uparrow} - N_{\downarrow})$ は減少し、SFR散乱に寄与する電子数も減少する。この状態を図-2.2.2(b)に示す。この時、フェルミ準位は磁場の関数として

$$E_F(B) = \frac{1}{2} \hbar \omega_c + \frac{4}{9} \frac{(E_F(0))^3}{(\hbar \omega_c)^2} + \frac{9}{64} \nu^2 \frac{(\hbar \omega_c)^4}{(E_F(0))^3} \quad (2.2.19)$$

と表わされる。また、 $\downarrow$ スピン準位に存在する電子数は

$$N_{\downarrow} = \left( \frac{2eB\sqrt{2m^*}}{\hbar^2 C} \right) \cdot \sqrt{E_F - \frac{1+\nu}{2} \hbar \omega_c} \quad (2.2.20)$$

と表わされ、分布差は全電子数を $N$ とすると

$$N_{\uparrow} - N_{\downarrow} = N - 2N_{\downarrow}$$

と表わされる。この状態ではフェルミ準位は磁場の減少と共に、 $(1, \uparrow)$ 準位に接近し、電子分布差はほぼ磁場の3乗に比例して減少する。このため、ストークス光に対する利得 $g_s$ も磁場の3乗に比例して減少するようになる。

また、さらに磁場が減少するとフェルミ準位は順次ランダウ準位量子数の大きい $\downarrow$ スピン $\uparrow$ スピン準位と交差してゆくが、そのたびに分布差は複雑に変化しながら減少するため、利得 $g_s$ も磁場の減少と共に減少する。<sup>(16)</sup>

次に、散乱断面積(2.2.16)式の中の遷移行列要素について考察する。この行列要素を磁場印加のもとでの状態関数を用いて取扱うことは非常に複雑であるので、<sup>(8)</sup> 磁場が存在しないときの状態関数を用いて近似することにする。しかし、得られる結果はSFR散乱の特性をよく表わす。遷移行列要素(2.2.15)式の中の $|i\rangle$ ,  $|f\rangle$ は伝導帯のプロッホ関数とし、 $|\gamma 0\rangle$ と表わす。ここで $0$ は電子波数 $k=0$ を表わすものとする。また、中間状態 $|t\rangle$ は、価電子帯にとり $|\partial 0\rangle$ と表わし、エネルギーの高い伝導帯は含めない。この中間状態として作用し得る状態は、 $|\gamma 0\rangle$ とのスピン関数の直交性によって軽い正孔帯とスピン軌道分裂したエネルギー帯の二つだけである。

速度演算子 $V$ としてスピンを考慮した

$$V = \frac{P}{m} + \frac{\hbar}{4m^2c^2} (\sigma \times \text{grad } V)$$

を用い、また、 $\omega_0 \approx \omega_s$ と近似すると遷移行列要素(2.2.15)式は

$$\begin{aligned}
R &= \sum_{\delta}^{\prime} \left[ \left\{ \frac{\varepsilon_0^* \langle \gamma 0 | V | \delta 0 \rangle \langle \delta 0 | V | \gamma 0 \rangle \varepsilon_s + \varepsilon_s^* \langle \gamma 0 | V | \delta 0 \rangle \langle \delta 0 | V | \gamma 0 \rangle \varepsilon_0}{(\varepsilon_{\gamma 0} - \varepsilon_{\delta 0})^2 - (\hbar \omega_0)^2} \right\} \right. \\
&\quad \times (\varepsilon_{\gamma 0} - \varepsilon_{\delta 0}) \\
&\quad \left. + \left\{ \frac{\varepsilon_0^* \langle \gamma 0 | V | \delta 0 \rangle \times \delta 0 \langle \delta 0 | V | \gamma 0 \rangle \varepsilon_s - \varepsilon_s^* \langle \gamma 0 | V | \delta 0 \rangle \langle \delta 0 | V | \gamma 0 \rangle \varepsilon_0}{(\varepsilon_{\gamma 0} - \varepsilon_{\delta 0})^2 - (\hbar \omega_0)^2} \right\} \right. \\
&\quad \left. \times \hbar \omega_0 \right] \\
&\simeq \left[ \left( \frac{E_g^2}{E_g^2 - (\hbar \omega_0)^2} \right) \cdot \left( \frac{1}{m^*} - \frac{1}{m} \right) \cdot (\varepsilon_0^* \varepsilon_s) + \frac{i}{m} \left( \frac{E_g \cdot \hbar \omega_0}{E_g - (\hbar \omega_0)^2} \right) \right. \\
&\quad \left. \times \left( \frac{|\mathbf{g}^*|}{2} - 1 \right) (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\varepsilon_0^* \times \varepsilon_s)) \right] \quad (2.2.21)
\end{aligned}$$

と表わされる。但し、電子有効質量は

$$\left( \frac{m}{m^*} \right)_{\mu\nu} = \delta_{\mu\nu} + \frac{2}{m} \sum_{\delta}^{\prime} \frac{\langle \gamma 0 | \pi_{\mu} | \delta 0 \rangle \langle \delta 0 | \pi_{\nu} | \gamma 0 \rangle}{\varepsilon_{\gamma 0} - \varepsilon_{\delta 0}} \quad (\mu, \nu = x, y, z \text{ 座標}) \quad (2.2.22)$$

有効g値は

$$\mathbf{g}_z^* = 2 \left[ 1 + \frac{2}{im} g_m \left( \sum_{\delta}^{\prime} \frac{\langle \gamma 0 | \pi_x | \delta 0 \rangle \langle \delta 0 | \pi_y | \gamma 0 \rangle}{\varepsilon_{\gamma 0} - \varepsilon_{\delta 0}} \right) \right] \quad (2.2.23)$$

また、

$$\boldsymbol{\pi} = \mathbf{P} + \frac{1}{4mc^2} (\boldsymbol{\sigma} \times \text{grad} V) = m \mathbf{V}$$

と表わされることを用いた。<sup>(5)</sup> 遷移行列要素 (2.2.21) 式でスピンの反転に寄与する項は第2項である。この項からSFR散乱の遷移行列要素は、 $|\alpha\rangle, |\alpha'\rangle$  を2つのスピン関数として、

$$|R^2| = \frac{1}{m^2} \left( \frac{E_g \cdot \hbar \omega_0}{E_g^2 - (\hbar \omega_0)^2} \right)^2 \left( \frac{|\mathbf{g}^*|}{2} - 1 \right)^2 (\langle \alpha | \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_0 \times \boldsymbol{\varepsilon}_s | \alpha' \rangle)^2 \quad (2.2.24)$$

と表わされる。<sup>(7)</sup> この遷移行列要素は励起光光子エネルギー  $\hbar \omega_0$  が禁制帯幅  $E_g$  に近づくと共鳴的に増大する項を含む。このため  $\hbar \omega_0 \simeq E_g$  では散乱断面積の増加によってSFR利得  $\mathbf{g}_s$  は増加する。

(共鳴効果)。n-InSb ではこの条件は励起光としてCOレーザー (発振波長 $\sim 5\ \mu\text{m}$ ) を用いた場合に実現され、この条件下でのSFR散乱を共鳴SFR散乱とよぶ。<sup>(4)</sup> また(2.2.24)式第2項

$$W \equiv \left\{ \frac{\hbar\omega_0 \cdot E_g}{E_g^2 - (\hbar\omega_0)^2} \right\}^2 \quad (2.2.25)$$

を特に共鳴係数とよび、共鳴効果の大きさを見積る目安として用いる。

(2.2.24)式からSFR散乱の遷移行列要素は伝導電子の有効g値と共に増加することがわかる。InSbの伝導帯端はS軌道類似であり、価電子帯はP軌道類似で価電子帯端に存在する $P_{\frac{3}{2}}$ の単位とスピン軌道相互作用によって価電子帯端から $\Delta \approx 0.9\ \text{eV}$ 分裂した $P_{\frac{1}{2}}$ の単位から成立しているため、(2.2.23)式で表わされる伝導電子有効g値は

$$g^* \approx 2 - \frac{m}{m^*} \left( \frac{2\Delta}{3E_g + 2\Delta} \right) \quad (2.2.26)$$

となり、その値も $-50$ 程度となる。このように大きなg値は、禁制帯幅が小さいことと、スピン軌道相互作用による $P_{\frac{1}{2}}$ 単位の分裂大きいことにより生じている。<sup>(6)</sup> また、スピン軌道相互作用による価電子帯の分裂が存在しないときには $\Delta = 0$ であり、有効g値は2となる。この時、遷移行列要素(2.2.24)式は零となる。このことはSFR散乱がラマン媒質のスピン軌道相互作用にもとづく効果であることを示している。

ここでは磁場が存在しない場合の遷移行列要素を考察したが、この考え方を拡張して、磁場中での遷移行列要素を定性的に論じる事ができる。磁場の存在は(2.2.1)式の $\hbar\omega_c/2$ の項の寄与を通じて禁制帯幅を増加させる。その結果遷移行列要素(2.2.24)式は第2項と有効g値の減少により、磁場の増加と共に減少することになる。Dennisらはエネルギー帯のnonparabolicity及び磁場中でのランダウ単位の変化を考慮した遷移行列要素の詳細な計算を行ない、高磁場(100 kG以上)ではランダウ単位量子数 $l=1$ の単位も中間状態として作用し得る事を指摘している。<sup>(8)</sup>

### § 2.3 実験装置及び実験方法

本実験で使用した装置のブロック図を図-2.3.1(a)に示す。ラマン共振器として用いたn-InSb単結晶は電子密度 $2.3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$  (77K)で、その形状は図-2.3.1(b)に示している。SFR共振器の仕上り平行度は12秒程度共振器表面の平坦度は $\lambda/5$  ( $\lambda$ はNaD線)程度である。

この共振器は光学測定用超電導マグ

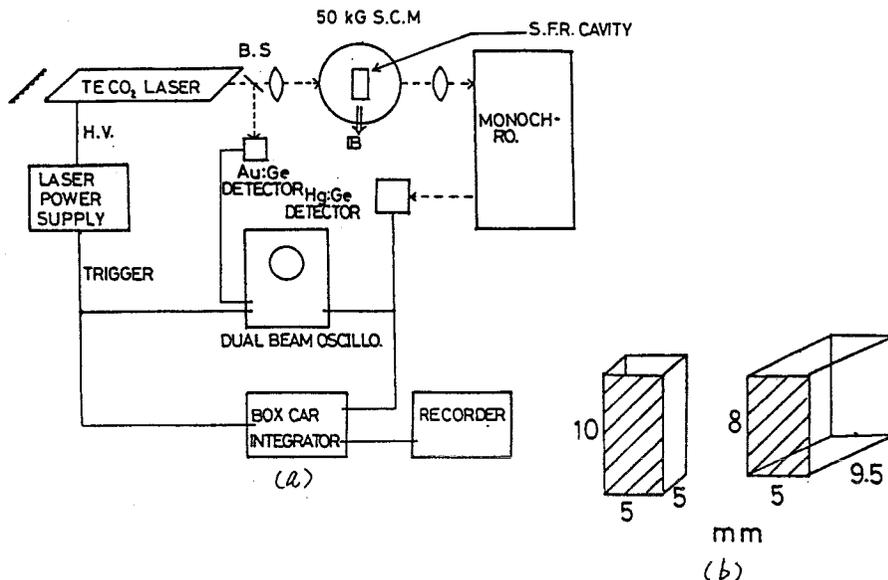


図-2.3.1 InSb SFRレーザー実験装置(a) ラマン共振器(b)

ネット (最大磁場50 kG) のコールドフィンガーに取付け、実験中は温度10 Kに冷却した。励起光源として使用したTECO<sub>2</sub>レーザーの発振波長は共振器の1端面を構成する回析格子により単一波長を選択することが可能である。このCO<sub>2</sub>レーザーのピーク出力は約400kW(10.59μm)で、パルス繰返しは約3 p.p.sである。また、NaCl製のプリュスター窓を取付けることによって、直線偏光した出力光が得られる。CO<sub>2</sub>レーザー出力はSi製ビームスプリッターによりその一部を取出し、ラマン共振器に入射する光強度をモニターした。散乱光は、励起光光軸と同一光軸上で取出した。これら二つの光軸は共に磁場に垂直である。励起光は焦点距離15 cmのKRS-5製のレンズを用いて集光し、BaF<sub>2</sub>製のマグネット窓を通してラマン共振器端面上に照射した。一方、散乱光はマグネット窓を通して取出し、焦点距離46 cmのBaF<sub>2</sub>製レンズを用いて分光器に導入し、励起光の共振器透過光を除去した後、光検出器に導入した。SFR散乱光の検出は小型冷凍機によって、温度30 Kに冷却したHgドープGeの光導電セルによって行なった。この検出器の1.059 μm光パルスに対する検出限界は10 μW/cm<sup>2</sup>程度である。光検出器を出たSFR信号は2現象シンクロスコープで励起光と同時にモニターを行ない、ボックスカー積分器で平均化した後、レコーダーに記録した。

### § 2.4 SFRレーザー出力の励起強度依存性

SFRレーザー出力は励起光強度が発振しきい値を超すと急激に増加する。図-2.4.1は励起光偏向方向を磁場と垂直 ( $E_0 \perp B$ ) としたときの磁場45 kGにおけるSFR光出力の励起光強度依存

性である。励起光波長は  $1.059 \mu\text{m}$  であり、試料上で励起光ビーム直径が約  $200 \mu\text{m}$  となるように集光を行なった。図-2.4.1 からわかるように、SFR出力は励起光入力が約  $4.2 \text{ kW}$  (励起強度約  $0.5 \text{ MW}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) 以上になると急激に増加する。また、出力増加後のSFR光の指向性は極めて鋭く、出力光の広がり角は約  $5.7$  分である。このような励起強度に対する出力の急激な増加と、鋭い指向性は出力光がレーザー発振を行なっていることを示している。レーザー発振のしきい値は後に § 2.5.2 で述べるように共振器長等の実験条件により異なるため、一概に比較することはできないが、ここで得た値は Aggalwal らが報告した値  $0.4 \text{ MW}\cdot\text{cm}^{-2}$  とほぼ一致している。<sup>(2)</sup> また、励起光強度  $2 \text{ MW}\cdot\text{cm}^{-2}$  付近で生ずる出力の飽和はこれまで励起領域中のストークス光発生に寄与する電子が欠乏するため生ずると考えられてきたが、むしろこの現象は後に4章で示すように強い励起光によって共振器内部に正孔が生成され、この正孔によって励起光及びストークス光が強く吸収されるため共振器内の損失が増加して生じると考えられる。

このように出力が飽和することから励起強度を増大させるだけではSFRレーザー出力を増大できないことがわかる。実際、この実験では励起光の集光直径を約  $4 \text{ mm}$  程度 (励起強度約  $0.8 \text{ MW}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) と大きくし、共振器の励起体積を増加した時に、最大のSFR出力約  $1.2 \text{ kW}$  が得られた。(図-2.5.3)

## § 2.5 SFRレーザー出力の磁場依存性

### 2.5.1 同調特性

SFRレーザー出力の同調特性を図-2.5.1に示す。SFRレーザーの発振周波数  $\omega_1$  は磁場により変化し、励起光周波数を  $\omega_0$  とすると

$$\omega_1 = \omega_0 \pm |g^*| \cdot \mu_B \cdot B / \hbar \quad (2.5.1)$$

である。この実験では励起光波長を  $1.059 \mu\text{m}$  とし、励起光偏光方向を磁場と平行とした時、ストークス光は磁場  $29 \text{ kG}$  から  $50 \text{ kG}$  の範囲で観測可能で、その波長は  $1.138 \mu\text{m}$  から  $1.175 \mu\text{m}$  まで変化した。一方、反ストークス光は、磁場  $30 \text{ kG}$  から  $50 \text{ kG}$  の範囲で  $9.94 \mu\text{m}$  から  $9.6 \mu\text{m}$  まで変化した。(2.5.1)式からわかるようにSFRレーザーの発振波長は単に磁場を変化させるばかりでなく励起光周波数を変化することによっても粗く変化できる。図-2.5.1には励起光として、 $1.053 \mu\text{m}$  と  $1.067 \mu\text{m}$  光を用いた場合のストークス光出力の変化を同時に示しているが、これらの

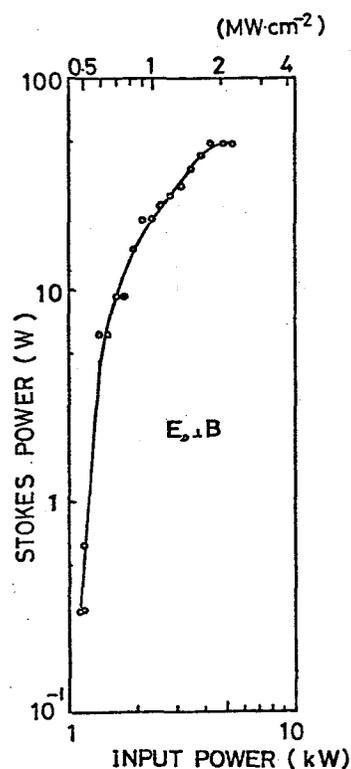


図-2.4.1 ストークス出力の励起強度依存性

励起光を用いるとストークス光の波長可変範囲は  $1.126 \mu\text{m}$  から  $1.190 \mu\text{m}$  まで拡大できることがわかる。しかしながら、励起光波長を  $1.033 \mu\text{m}$  より短波長とした場合には、励起密度を発振しきい値を十分超えると考えられる  $0.8 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  程度としてもストークス光出力を観測できなかった。短波長の励起光に対してストークス光の発振が抑制される原因についてはストークス光の利得そのものが急激に減少するとは考えられないため、共振器内部の光損失が増加することによると考えられる。このような励起光波長に依存する損失としては、後に4章で述べるように、励起光波長が短くなると共に2光子吸収が発生し、価電子帯に正孔が作られるようになるため、正孔の価電子帯間の遷移が可能となり励起光及びストークス光の正孔による吸収損失が増加することが考えられる。また、この損失機構は励起強度と共に増加するため、図-2.4.1でも示したように励起波長  $1.059 \mu\text{m}$  でも  $2 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  以上と高い励起強度ではSFR出力の飽和を引き起こす原因となると考えられる。

この実験から得られたストークス光の単位磁場当りの周波数シフトは約  $2 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{kG}^{-1}$  であるが、この値は伝導電子有効g値が磁場と共に減少するため磁場の増加と共に減少する。この実験から得られた伝導電子有効g値の磁場依存性を図-2.5.2に示す。磁場の増加と共に伝導電子の有効g値が減少する原因は、磁場の増加と共に禁制帯幅が増加するため、伝導帯と価電子帯との相互作用が弱められることによると考えられる。すなわち(2.2.23)式で表わされる有効g値の分母が磁場と共に増大することによると考えられる。

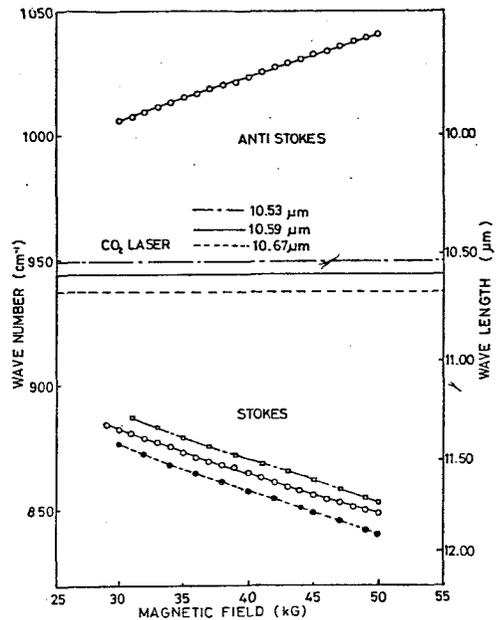
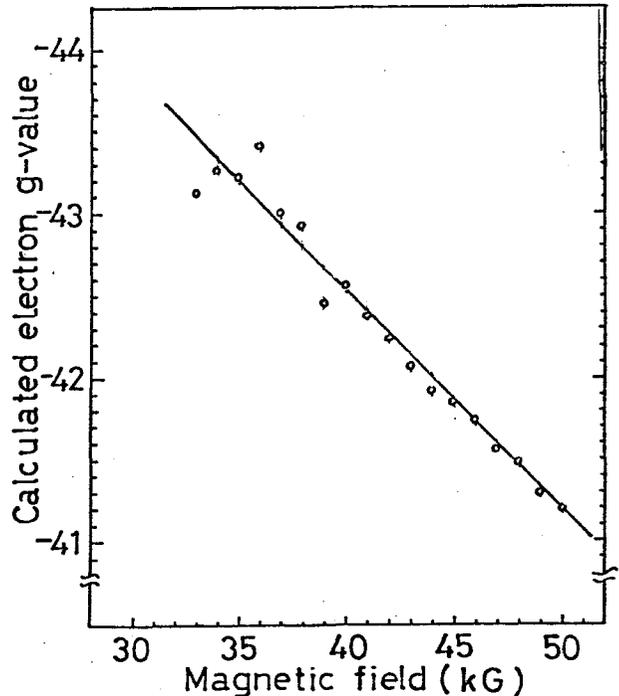


図 - 2.5.1 SFRレーザー出力の同調特性



-17- 図 - 2.5.2 伝導電子有効g値の磁場依存性

## 2.5.2 出力光の磁場依存性

励起光 ( $1059\mu\text{m}$ ) の偏光ベクトル  $E_0$  を磁場と平行 ( $E_0 // B$ ) とした時のストークス光出力の磁場による変化を図 - 2.5.3 に示す。図中に示した実線は実験値、破線は次節で述べる方法による計算値を示している。ストークス光出力は磁場約 28 kG から観測され始め、磁場の増加と共にいくつかの極小値をもちながら増大し、磁場約 45 kG で最大となった後、急激に減少する。磁場 45 kG で、励起光強度  $0.8 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  (集光直径約 4 mm) におけるストークス光出力のピーク値は約 1.2 kW に達した。この最大出力が得られる励起条件での励起光からストークス光に変換される光パワーの変換効率率は約 1.2% である。この変換効率は Patel の報告した値約 1% とほぼ一致している。<sup>(9)</sup>

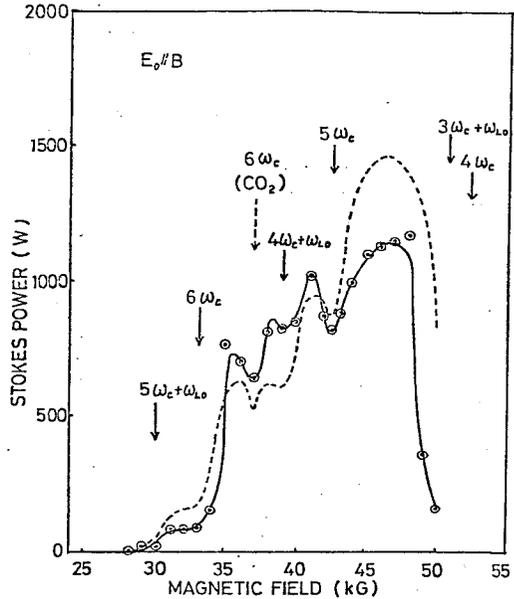


図 - 2.5.3 ストークス光出力の磁場依存性 (励起光偏光方向を磁場と平行とした時, 励起強度  $0.8 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$ )

励起光偏光ベクトル  $E_0$  を磁場と垂直 ( $E_0 \perp B$ ) とし、同様に励起密度及び集光条件で観測したストークス光強度の磁場による変化を図 - 2.5.4 に示す。図中の実線および破線はそれぞれ実験値および理論値を示している。この配置の場合、ストークス光出力は磁場 33 kG 付近から観測され始め、磁場 45 kG でピークとなり、その後減少した。

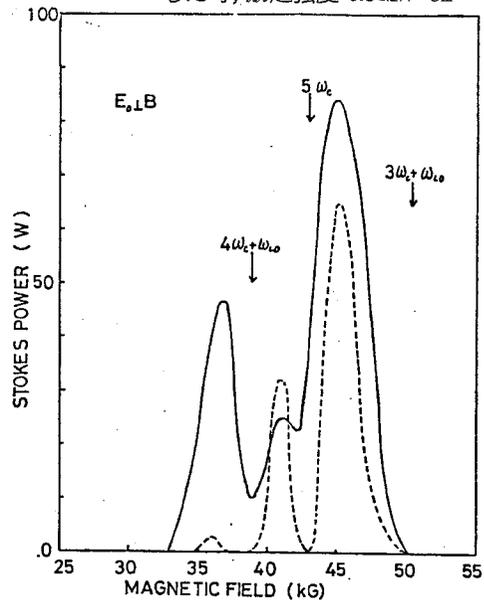


図 - 2.5.4 ストークス光の磁場依存性 (励起光偏光方向を磁場と垂直とした時)

$E_0 // B$  配置と  $E_0 \perp B$  配置で得られた結果を比較すると、後者では出力を確認できる最低磁場が 5 kG 程度高磁場側にシフトし、また、最大出力も前者の 10% 程度に減少することがわかる。このような励起光偏光方向による出力の変化は、 $E_0 \perp B$  配置に対して共振器内部の光吸収損失が特に増加するとは考えられないため、 $E_0 \perp B$  配置の場合に、 $E_0 // B$  よりもストークス光利得そのものが小さくなることが原因と考えられる。Yafet はこの実験で用いたのと同様に配置に対する遷移行列要素の大きさを計算し、 $E_0 \perp B$  配置では  $E_0 // B$  配置よりも遷移行列要素が小さくなることを示している。<sup>(9)</sup> このことは、 $E_0 \perp B$  配

置に対する出力の減少と対応している。

図 - 2.5.3 と図 - 2.5.4 に示したストークス光出力でみられるいくつかの極小は、これらが生じる磁場付近で、ストークス周波数  $\omega_s$  及び励起光周波数  $\omega_c$  が、高次のサイクロトロン周波数  $n\omega_c$  ( $n$ : 整数)<sup>(2)</sup> 及びこれに縦光学フォノン周波数が加わった周波数 ( $n\omega_c + \omega_{LO}$ ) に一致するため (図 - 2.5.5)、ストークス出力及び励起光が共振器内部で高次のサイクロトロン共鳴により共鳴吸収されて生じたと考えられる。図 - 2.5.3 と図 - 2.5.4 にはこれら周波数が一致する磁場を矢印で示し、同時にその周波数を記している。これまで、本実験と同様な周波数で高次のサイクロトロン吸収を測定した例は

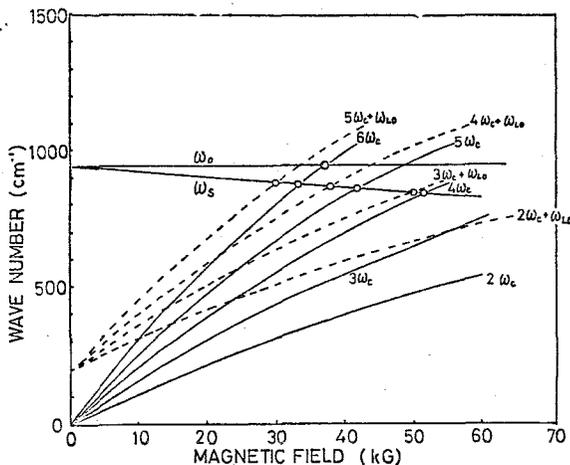


図 - 2.5.5 高次のサイクロトロン周波数 ( $n\omega_c$ ) 及びこれに縦光学フォノン周波数が加わった周波数 ( $n\omega_c + \omega_{LO}$ ) とストークス光周波数 ( $\omega_s$ ) の磁場による変化

少ないため、遠赤外光を用いた測定結果<sup>(2)(2)</sup>をもとに、ここで得た結果を検討する。その結果によると共鳴吸収は磁場と垂直な方向 ( $E \perp B$ ) の光に対して顕著となると報告されている。ここで行った実験では、出力光中に含まれた磁場と垂直な方向の偏光成分と、それ以外の偏光成分を識別して測定していないが、既に報告されている自発ラマン散乱の測定結果<sup>(2)</sup>から推定すると、ここで用いた励起条件すなわち  $E_o \parallel B$  及び  $E_o \perp B$  に対して、ラマン利得は磁場と平行及び垂直 ( $E_s \parallel B$ ,  $E_s \perp B$ ) に偏光した成分のみが特に大きく、レーザー発振を生じ得ると考えられる。従って、ストークス光出力の極小が生じる磁場では、 $E_s \perp B$  の出力光のみが吸収をうけるため、出力光中の二つの偏光成分すなわち  $E_s \parallel B$  と  $E_s \perp B$  の強度比がそれ以外の磁場と異なる可能性がある。図 - 2.5.3 で  $6\omega_c$  ( $CO_2$ ) と記した出力の極小値は励起光周波数が6倍のサイクロトロン周波数と一致するため、共鳴吸収されて生じたと考えられるが、それ以外の周波数及び励起光偏光方向で検出できなかった理由は明らかではない。

励起光及びストークス光出力がサイクロトロン共鳴吸収をうけるためには、

$$\omega_s \text{ あるいは } \omega_o \simeq n\omega_c \text{ あるいは } n\omega_c + \omega_{LO} \quad (2.5.3)$$

の条件が成立することが必要である。この条件は励起光の周波数  $\omega_o$  を固定すると、特定の磁場において満たされる。図 - 2.5.7 に示すように、 $1.053 \mu m$  光ではストークス光と高次のサイクロトロン周波数及び縦光学フォノンが加わった周波数が一致する磁場が高磁場側にシフトする。従って周波数の異なる励起光に対しては共鳴吸収の発生する磁場が変ることになる。励起光として  $1.067 \mu m$  及び  $1.053 \mu m$  光を用いた場合の出力強度の磁場による変化を図 - 2.5.6 に示す。この結果

から  $1.053 \mu\text{m}$  光では吸収の発生する磁場が高磁場側にシフトすることがわかる。

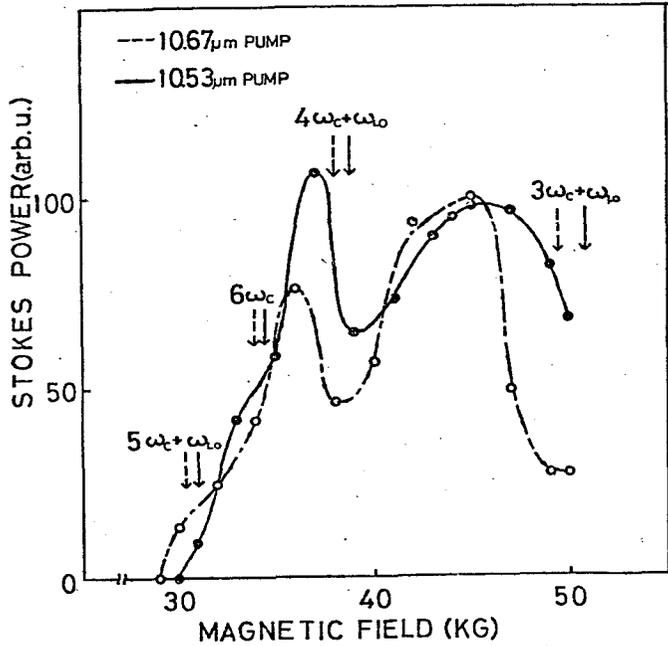


図 - 2.5.6 励起光波長  $1.067 \mu\text{m}$ ,  $1.053 \mu\text{m}$  の時のストークス光出力の磁場依存性

### 2.5.3 出力の磁場依存性の解析

前項で述べたストークス光出力の磁場による変化はラマン利得及び損失の磁場依存性を考慮することにより説明できる。ストークス光利得はすでに 2.2 節に述べた (2.2.13) 式で与えられ

$$g_s = \frac{16\pi^2 C^2}{h\omega_s^3 n_s^2} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_t \frac{I_0}{\Gamma} \quad (2.5.4)$$

と表わされる。ストークス光利得  $g_s$  は (2.2.17) 式の散乱断面積  $(d\sigma/d\Omega)_t$  の磁場依存性を通して磁場と共に変化する。散乱断面積  $(d\sigma/d\Omega)_t$  は

$$(d\sigma/d\Omega)_t = |F(0)|^2 \sum_{\ell \cdot k_z} (1 - f_{\ell \downarrow}(k_z)) \times f_{\ell \uparrow}(k_z) \quad (2.5.5)$$

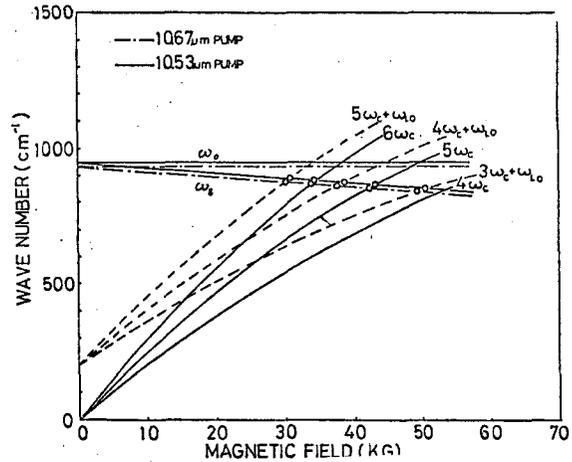


図 - 2.5.7 異なる励起光波長に対するストークス光周波数と高次サイクロトロン周波数の磁場による変化

で表わされる。ここで、量子数  $\ell$  のランダウ単位に付属する磁場と平行なスピン ( $\ell, \uparrow$ ) 状態の電子存在確率を  $f_{\ell \uparrow}$  で、反平行なスピン ( $\ell, \downarrow$ ) 状態の電子存在確率を  $f_{\ell \downarrow}$  で表わした。また、磁場方向の波数  $k_z = 0$  での 1 電子当りの散乱断面積を  $|F(0)|^2$  で表わした。(2.5.5) 式に示

したように散乱断面積は  $(\ell, \downarrow)$  状態の空状態数と  $(\ell, \uparrow)$  状態の電子数に比例する。従ってフェルミ準位の磁場依存性から散乱断面積の磁場依存性を評価できる。

本実験で用いた InSb 共振器 (電子密度  $n_e = 2.3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ ) について、フェルミ準位の磁場による変化を (2.218) 式及び (2.219) 式によって計算し、図 - 2.5.8 に示す結果を得た。但し、電子有効質量は、電子密度  $10^{16} \text{cm}^{-3}$  程度の n-InSb について報告された値  $m^* = 0.0156m_0$  (21), 電子有効 g 値は図 - 2.5.2 で示したこの実験で得た値を使用し、温度は  $T = 0 \text{K}$  を仮定したが、実験温度  $10 \text{K}$  でも電子の分布はほとんど変化がないと考えられる。図 - 2.5.8 から磁場が  $20 \text{kG}$  から  $45 \text{kG}$  の範囲ではフェルミ準位は  $(1, \uparrow)$  状態と  $(0, \downarrow)$  状態の間にあり、磁場の増大と共に  $(0, \downarrow)$  状態に接近するため  $(0, \uparrow)$  状態と  $(0, \downarrow)$  状態の電子の分布差は大きくなり散乱断面積は増大する。また、磁場が  $45 \text{kG}$  を超えるとフェルミ準位は  $(0, \downarrow)$  状態と  $(0, \uparrow)$  状態の間に入るため  $(0, \uparrow)$  状態と  $(0, \downarrow)$  状態の電子差は最大となり、変化はなくなる。この磁場以上では、散乱断面積で電子分布差に依存する項は変化しなくなるが 1 電子当りの散乱断面積  $|F(0)|^2$  が遷移行列要素の減少によって磁場と共に減少するため、散乱断面積  $(d\sigma/d\Omega)_t$  は磁場と共にゆるやかに減少する。

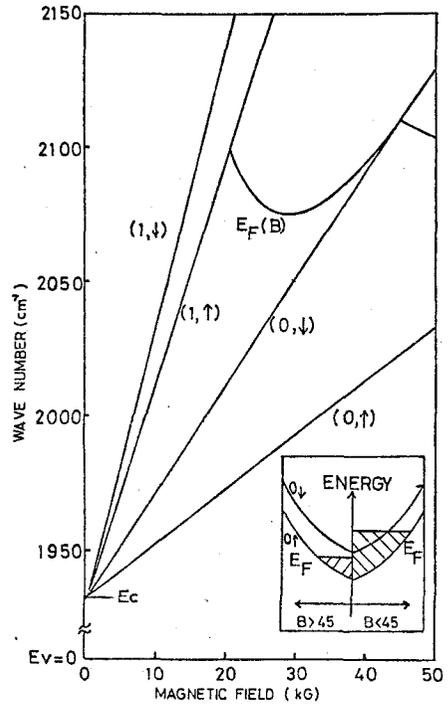


図 - 2.5.8. フェルミ準位の磁場依存性

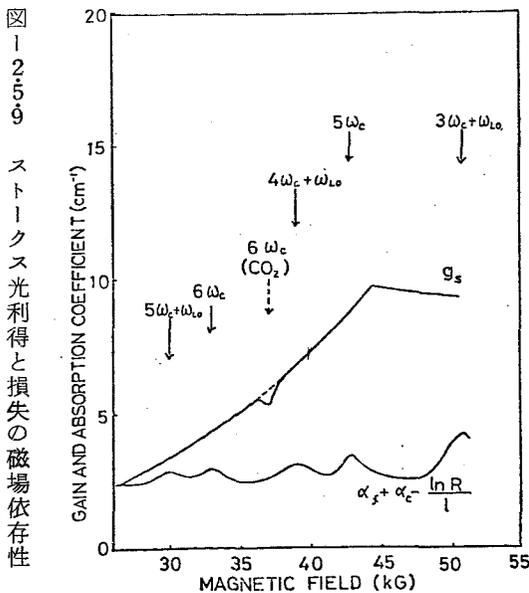


図 - 2.5.9. ストックス光利得と損失の磁場依存性

図 - 2.5.9 に (2.5.4) 式と (2.5.5) 式から計算したストックス光利得  $g_s$  の磁場による変化を示している。但し、この計算では正味の励起光密度  $I_0$  は共振器端面での反射損失を考慮し、 $510 \text{kW} \cdot \text{cm}^{-2}$  とした。また、ストックス光周波数での共振器屈折率として  $n_s \approx 3.9$ 、自発ストックス線幅  $\Gamma \approx 2 \text{cm}^{-1}$  (9) を用いた。また、散乱断面積に含まれた遷移行列要素は Dennis (8) の計算結果を使用した。なお、図 - 2.5.9 に示した利得  $g_s$  には、図 - 2.5.3 に点線で示した励起光周波数が 6 倍のサイクロトロン周波数と一致した時に生じる励起光共鳴吸収による利得

の減少を考慮している。

一方、ストークス光の損失としては、次の3種類の損失機構が考えられる。

- 1) 共振器端面での反射損失
- 2) 共振器内の伝導電子による光吸収損失、 $\alpha_f$
- 3) 高次のサイクロトロン周波数及び、これに縦光学フォノンが加わった周波数で発生する共鳴吸収損失、 $\alpha_c$

1)と2)の機構はこの実験で使用した磁場範囲では、磁場に関して大きく変化しないが、3)のサイクロトロン共鳴に関係した損失は、図-2.5.5で示した特定の磁場のみで発生する。高次のサイクロトロン共鳴吸収の吸収係数に関して、これまであまり詳細な実験及び計算は行なわれていないが、赤外サイクロトロン共鳴の実験結果<sup>(2)(3)</sup>の外挿からおよその値を推定できる。図-2.5.9には上記3種の損失機構を考慮した損失係数 $\alpha_f + \alpha_c - \ln R / \ell$ を示している。ここでRは共振器端面での反射率で $R \approx 0.36$ である。また、 $\ell$ は共振器長で、 $\ell = 0.5 \text{ cm}$ とした。

ストークス光利得 $g_s$ と損失 $\alpha_f + \alpha_c - \ln R / \ell$ からストークス光出力を計算することができる。SFRレーザーが発振するためには

$$R \exp \{ \ell (g_s - \alpha_f - \alpha_c) \} > 1 \quad (2.5.6)$$

の条件が満足されることが必要である。この条件は

$$g_s > \alpha_f + \alpha_c - \ln R / \ell \quad (2.5.7)$$

と変形できるが、左辺のストークス光利得 $g_s$ および右辺の損失係数 $\alpha_f + \alpha_c - \ln R / \ell$ の磁場による変化をそれぞれ独立に図-2.5.9に示している。ストークス光利得の損失に対する割合を

$$p = g_s / (\alpha_f + \alpha_c - \ln R / \ell) \quad (2.5.8)$$

で定義すると、パルス励起中に生じる電子のスピン準位間の緩和を無視し、励起光強度の空間分布をガウス分布で近似できる時にはストークス光出力は

$$J = n_e \hbar \omega_s \pi \gamma^2 \ell \left( \ln p + \frac{1}{p} - 1 \right) \quad (2.5.9)$$

で与えられる。<sup>(2)(3)</sup> ここで $n_e$ は共振器内の電子密度、 $\gamma$ は励起光ビーム半径で $\gamma = 0.2 \text{ cm}$ である。図-2.5.9に示したストークス光利得 $g_s$ と損失係数を用い(2.5.9)式によって計算した出力Jを図-2.5.3に示している。この図からわかるように励起光偏光ベクトルを磁場と平行( $E_0 // B$ )とした時、計算結果は実験値とよく一致する。一方、励起光偏光ベクトルと磁場が垂直な配置( $E_0 \perp B$ )に対する計算結果を図-2.5.4に破線で示している。この場合には、遷移行列要素としてYafetの<sup>(19)</sup>計算結果を用いた以外は( $E_0 // B$ )の場合と同様な計算を行なった。 $E_0 \perp B$ 配置では計算値と実験値との定量的な一致はよくないが、計算値は実験値のおおよその傾向を反映する。

ことがわかる。

## § 2.6 結 言

TECO<sub>2</sub>レーザー励起 n-InSb スピン・フリップ ラマンレーザーの製作と、基礎発振特性の測定を行ない以下の結論を得た。

- 1) SFR レーザーは、30 kGから50 kGの磁場範囲で発振する。その磁場範囲においてストークス光については1.126 μmから1.190 μmまで、また、反ストークス光については9.94 μmから9.60 μmまでの範囲で発振波長を同調することが可能である。
- 2) ストークス光がレーザー発振を生じるしきい値の励起強度は0.5 MW・cm<sup>-2</sup>である。また励起光強度が2 MW・cm<sup>-2</sup>を超えると、ストークス光出力は飽和するようになる。
- 3) ストークス光光力の最大値は磁場45 kGの時得られ1.2 kWであった。この時、励起光からストークス光への変換効率は約1.2%となった。
- 4) ストークス光出力は、磁場の増加と共にいくつかの極値を伴いながら増加し、磁場45 kGで最大に達した後、減少する。磁場の増加に伴う出力の増大は、ラマン遷移の始状態と終状態の電子分布差が大きくなることを通じて利得が増大する結果生じる。また、出力の極小値及び高磁場での減少は高次のサイクロトロン共鳴吸収が発生することにより、共振器内部の光吸収損失が増大するため生じる。
- 5) ストークス光利得と共振器内光吸収損失の磁場依存性を考慮して、ストークス光出力を計算した結果、発振磁場範囲で実験との間によい一致が得られた。

## 参 考 文 献

- 1) C.K.N.Patel and E.D.Shaw; Phys. Rev. Letters 24 (1977) 451.
- 2) R.L.Aggalwal, B.Lax, C.E.Chase, C.R.Pidgeon and D.Limbert; Appl. Phys. Letters 18 (1971) 383.
- 3) K.Yasuda, H.Kondo, J.Shirafuji and Y.Inuishi; Jpn. J. Appl. Phys. 16 (1977) 1075.
- 4) K.Boyer; 'Laser Photochemistry, Tunable Laser and Other Topics' (ed. S.F.Jacobs et al., Addison-Wesley, London, 1976) p. 1.
- 5) C.Kitell; 固体の量子論、丸善(1972) 堂山訳
- 6) E.O.Kane; J. Chem. Solids 1 (1957) 249.
- 7) R.H.Pantel and H.E.Puthoff; 'Fundamentals of Quantum Electronics' (John Wiley & sons, New York, 1969) 234.
- 8) R.B.Dennis, C.R.Pidgeon, S.D.Smith, B.S.Wherrett and R.A.Wood; Proc. R. Soc. London A331 (1972) 203.
- 9) C.K.N.Patel and E.D.Shaw; Phys. Rev. 3 (1971) 1279.
- 10) S.R.J.Brueck and F.A.Blum; Phys. Rev. Letters 28 (1972) 1458.
- 11) S.R.J.Brueck and A.Mooradian; Opt. Commun. 8 (1973) 263.
- 12) E.P.Ippen; Appl. Phys. Letters 16 (1970) 303, J.G.Skinner and W.G.Nilsen; J. Opt. Soc. Am. 58 (1968) 113.
- 13) A.Mooradian, S.R.J.Brueck and F.A.Blum; Appl. Phys. Letters 17 (1970) 481.
- 14) B.S.Wherrett and P.G.Harper; Phys. Rev. 183 (1969) 692.
- 15) S.R.J.Brueck, A.Mooradian and F.A.Blum; Phys. Rev. 7 (1973) 5253.

- 16) E.S.Wherrett, S.Wolland, C.R.Pidgeon, R.B.Dennis and S.D.Smith; Proc. 12th Intern. Conf. Phys. Semicond., Stuttgart, 1974 (ed. B.G.Teubner, Stuttgart, 1974) p. 793.
- 17) P.A.Wolff; 'Nonlinear Optics' (ed. P.G.Harper and B.S.Wherrett, Academic Press, London, 1977) p. 175.
- 18) L.M.Roth, B.Lax and S.Zwerdling; Phys. Rev. 144 (1959) 90.
- 19) Y.Yafet; Phys. Rev. 152 (1966) 858.
- 20) E.J.Jhonson and D.H.Dickey; Phys. Rev. B1 (1970) 2676.
- 21) R.C.Enck, A.S.Saleh and H.Y.Fan; Phys. Rev. 182 (1969) 790.
- 22) C.K.N.Patel and K.H.Yang; Appl. Phys. Letters 18 (1971) 491.
- 23) R.B.Dennis, W.J.Firth, A.Mcneith, C.R.Pidgeon, S.D.Smith, B.S.Wherrett and R.A.Wood; Proc. Intern. Conf. Phys. Semicond., Warsaw, 1972 ( Scientific Publishers, Warsaw, 1972) p. 364.
- 24) R.G.Mellish, R.B.Dennis and R.L.Allwood; Opt. Commun. 4 (1971) 249.
- 25) R.B.Dennis, R.A.Wood, C.R.Pidgeon, S.D.Smith and J.W.Smith; J. Phys. C5 (1972) L73.

### 第3章 n-Pb<sub>0.88</sub>Sn<sub>0.12</sub>Te SFRレーザー

#### § 3.1 緒 言

波長10 μm領域で動作するInSb SFRレーザーはパルス発振として実現されているが、この波長領域で連続発振可能なSFRレーザーを構成するためには励起CO<sub>2</sub>レーザー光に対して共鳴効果を期待できる材料を共振器として使用することが不可欠である。共鳴SFR効果は励起光光子エネルギーをラマン媒質とする半導体結晶の禁制帯幅に近づけると価電子帯上端部が伝導電子のラマン遷移の中間状態として有効に作用するようになるために生じ、この状態のもとではラマン遷移の発生する確率が増大する。また、共鳴効果が表われるようになるとラマン遷移確率の増大を通じて、ラマン利得も増大するようになる。共鳴ラマン効果を利用するとSFRレーザーの発振に必要な励起しきい値強度の低減が可能となるため、連続発振のレーザーを励起光源とした連続発振SFRレーザーを実現できる。

波長10 μm領域の有力な光源であるCO<sub>2</sub>レーザー光に対して共鳴ラマン効果を期待できる材料としてはHgCdTe及びPbSnTe混晶がある。これらの混晶はHgとCd及びPbとSnの組成比を変化することにより禁制帯幅を変化できるため、<sup>(1)</sup> 共鳴効果を活用できる波長範囲を10 μm領域からさらに広範囲に拡張できる可能性がある。また、これらの混晶は伝導電子の有効g値が大きいためSFRレーザー出力光の単位磁場当たりの周波数ソフトも大きくなる利点がある。

n-Hg<sub>1-x</sub>Cd<sub>x</sub>Te (x=0.23) 混晶を用いたSFRレーザーはSlatterら<sup>(2)</sup>により報告され、連続発振も実現されているが、n-Pb<sub>1-x</sub>Sn<sub>x</sub>Te (x=0.12) については著者らが<sup>(3)</sup> パルス動作ではあるが発振に成功し連続発振の基礎となる共鳴効果の存在を確認した。

本章では、TECO<sub>2</sub>レーザーを励起光源としたn-PbSnTe SFRレーザーの基礎発振特性について述べる。3.2節では共鳴ラマン散乱を概説し、3.3節で共振器作成法及び実験方法を述べた後3.4節以下で本実験から得られたn-PbSnTe SFRレーザーの基礎発振特性として、ストークス光出力の励起光強度依存性、励起光周波数依存性及び磁場依存性について述べる。

#### § 3.2 共鳴SFR散乱の原理

すでに2章で述べたように、SFR散乱では励起光の光子エネルギーが共振器結晶の禁制帯幅に近づくと、価電子帯上端部がラマン遷移の中間状態として有効に作用し、ラマン遷移の生じる確率が増大する。SFR散乱の遷移行列要素は(2.2.24)式で示したように

$$|R^2| = \left[ \frac{1}{m} \left( \frac{\hbar\omega_0 \cdot E_g}{E_g^2 - (\hbar\omega_0)^2} \right) \left( \frac{|g^*|}{2} - 1 \right) \right]^2 \quad (3.2.1)$$

と表わされる。励起光の光子エネルギーが禁制帯幅に近づくと発散する項をWで表わすと

$$W = \left( \frac{\hbar\omega_0 \cdot E_g}{E_g^2 - (\hbar\omega_0)^2} \right)^2 \quad (3.2.2)$$

となるが、これを共鳴係数と呼ぶことにする。この共鳴係数は励起光波長及び禁制帯幅に依存し、磁場と共に変化する。共鳴ラマン散乱ではこの共鳴係数の変化を考慮するため(2.2.16)及び(2.2.17)式で表わしたSFR散乱断面積を改めて

$$(d\sigma/d\Omega)_i = |F'(0)|^2 \cdot W \cdot \sum_{\ell, k_z} (1 - f_{\ell\downarrow}(k_z)) f_{\ell\uparrow}(k_z) \quad (3.2.3)$$

と表わすことにする。ここで $|F'(0)|^2$ は(2.2.17)で表わした $k_z=0$ での1電子散乱断面積から共鳴係数を除いた残りの因子を表わす。また、 $\sum$ の中はSFR散乱に寄与する有効電子数であり2章2節で述べたように磁場と共に大きく変化する。従って、共鳴効果が存在する状態ではSFR利得 $g_s$ (2.2.13)式は共鳴係数 $W$ の磁場及び励起光波長依存性とラマン遷移に寄与できる有効電子数の磁場依存性によって決定される。

### § 3.3 実験装置及び実験方法

#### 3.3.1 SFR共振器

SFR共振器として使用したn-Pb<sub>0.88</sub>Sn<sub>0.12</sub>Te単結晶は電子密度 $n_e=10^{17}\text{cm}^{-3}$ (77K)寸法は $5 \times 4 \times 3\text{mm}^3$ である。 $5 \times 4\text{mm}^2$ の2面を $0.3\mu\text{m}$ のアルミナ研磨材で鏡面研磨し、平行度約12分に仕上げた。PbSnTe結晶は非常に柔らかいため、平行平面に研磨するのが困難である。そこで研磨用のヤイトとして結晶と同じ厚みをもつアルミ製円板を使用し、結晶を円板中央部の穴にはめこんで研磨を行った。研磨中は数回He-Neレーザーを用いて端面の平行度を測定し、修正を加えながら平行度を高めた。研磨終了後、沸騰したアセトン中で洗浄した。洗浄後は、直ちに超伝導マグネットのゴールドフィンガーに取付け実験終了時まで真空中( $10^{-5} \sim 10^{-6}\text{mmHg}$ )で保存した。研磨終了後1年程度乾燥空気中に保存した共振器ではSFR散乱光は観測できなかった。これは共振器表面に酸化膜が形成されるか、あるいはガス吸着を生じ、これらが励起光や散乱光を吸収するためではないかと推定される。

#### 3.3.2 実験条件

Pb<sub>1-x</sub>Sn<sub>x</sub>TeはPbとSnの組成比及び温度に依存して禁制帯幅が大きく変化することが知られている。<sup>(1)</sup> この結晶の禁制帯幅は磁場が存在しないとき

$$E_g(x, T) = 0.187 + 4.85 \times 10^{-4} T - 0.543x + 0.02x^2 \quad (\text{eV}) \quad (3.3.1)$$

と表わされる。<sup>(7)</sup> ここで、 $x$ はSn組成、 $T$ は絶対温度である。この式から実験温度10Kでの禁制帯幅は122meVと計算できる。磁場は結晶の $\langle 100 \rangle$ 軸方向に印加し、

散乱光は図 - 3.3.1 に示したように励起光光軸方向と同一方向 (collinear) に取出した。散乱光および励起光の光軸は共に磁場と垂直である。この実験で使用した装置は第2章で述べた装置と大部分が同一であるので、詳細な説明を省略し異なる点のみを述べることにする。励起CO<sub>2</sub> レーザーは重水素サイクロンにより放電の制御を行ない

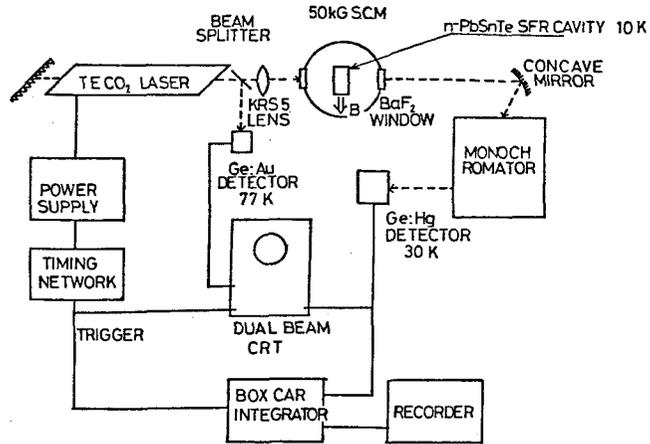


図 - 3.3.1 n-PbSnTe SFR レーザー実験装置

パルスごとの出力の変動及び雑音を減少させた。また、散乱光を分光器に導入する際、アルミ蒸着の球面反射鏡 (  $f = 55 \text{ cm}$  ) を使用し、散乱光の波長変化に伴う集光条件の変化を防止した。

### § 3.4 SFRレーザー出力の励起強度依存性

磁場  $16 \text{ kG}$  で励起光 (  $1.054 \mu\text{m}$  ) 強度を変化させた時のストークス光出力の変化を図 - 3.

4.1 に示す。ストークス光出力は励起光強度  $0.6 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  から観測され始め、励起光強度の増加と共に出力は急激に増加する。この時、出力光の広がり角は7分程度であった。このような出力の励起光強度の増加に伴う急激な変化と高い指向性は出力光がレーザーとなっている事を示している。また、共振器平行度が18分程度の場合にはストークス光出力を観測できなかったが、これは共振器Qの低下によると考えられる。ストークス光出力の最大値は磁場  $16 \text{ kG}$  で励起光強度  $7 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  の時得られ、約  $6.6 \text{ mW}$  であった。この最大出力時における入射光からストークス光へのパワー変換効率率は  $3 \times 10^{-6}\%$  である。このように変換効率が低い原因としては共振器平行度が12分程度と低いこと及び共振器内の電子密度が  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  と高いため励起光やストークス光の伝導電子による吸収損失が大きいたことが考えられる。しかしながら、InSb共振器では共振器平行度が12分程度と低い場合にはレーザー発振を観測できなかったことから推察するとn-PbSnTeのラマン利得は2章で述べたn-InSbの利得よりも共鳴効果によって大きくなっていると

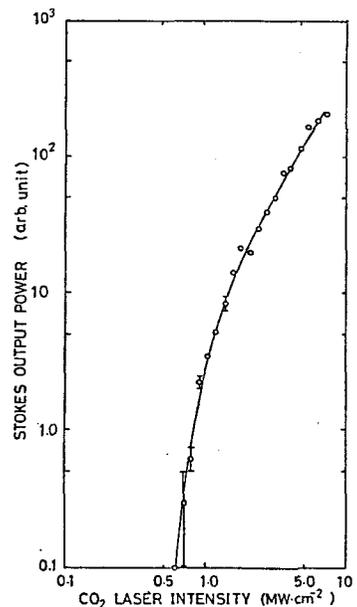


図 - 3.4.1 ストークス出力の励起光強度依存性

考えられるが、これについては 3.5 節で再び述べる。

磁場 16 kG でのストークス光出力のスペクトルを図 - 3.4.2 に示す。この図に示したスペクトル幅は測定系の分解能  $R$  ( $\sim 1\text{cm}^{-1}$ ) によって制限されており、実際のスペクトル幅はこれよりさらに狭いと考えられる。

### § 3.5 SFR レーザー出力の磁場依存性

#### 3.5.1 同調特性

ストークス波長の磁場による変化を図 - 3.5.1 に示す。図中には第 2 章で述べた  $n\text{-InSb}$  共振器に対するストークス光波長の変化を比較のために示している。ストークス光出力は磁場 8 kG から 41 kG の範囲で観測され、その波長は  $10.82\mu\text{m}$  から  $11.78\mu\text{m}$  まで変化する。

ストークス光の同調率は磁場の増加と共に徐々に減少するが、これは第 2 章で述べたように伝導電子の有効  $g$  値が磁場の増加と共に減少するため生じる。ストークス光の磁場 20 kG における同調率は  $2.65\text{cm}^{-1}\cdot\text{kG}^{-1}$  である。この値は  $n\text{-InSb}$  共振器での同調率  $2\text{cm}^{-1}\cdot\text{kG}^{-1}$  より大きい。このように同調率が大きい理由は

$n\text{-Pb}_{0.88}\text{Sn}_{0.12}\text{Te}$  の伝導電子有効  $g$  値が 60 ~ 50 と  $\text{InSb}$  より大きいことによる。励起光周波数  $\omega_0$  とストークス光周波数  $\omega_1$  から共振器として使用した  $n\text{-Pb}_{0.88}\text{Sn}_{0.12}\text{Te}$  の伝導電子有効  $g$  値を次式によって計算した結果を図 - 3.5.2 に示す。

$$|g^*| = \frac{\hbar}{\mu_B \cdot B} (\omega_0 - \omega_1) \quad (3.5.1)$$

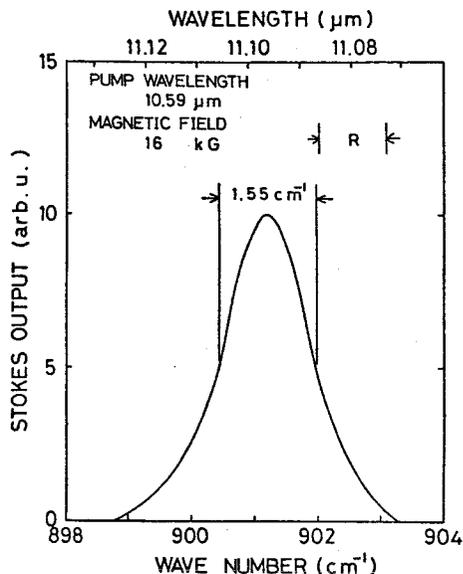


図 - 3.4.2 ストークス光スペクトル

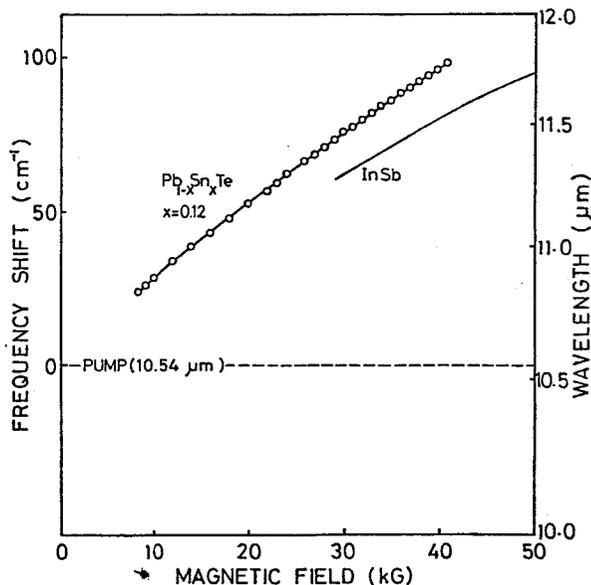


図 - 3.5.1 ストークス光の同調特性  
(励起光波長  $10.54\mu\text{m}$ )

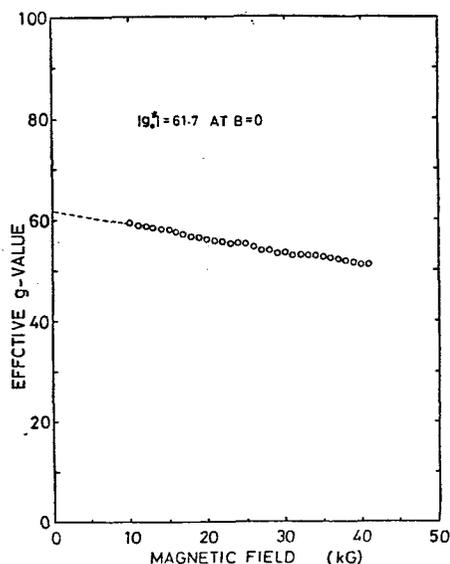


図 - 3.5.2 伝導電子有効g値の磁場依存性

ことがわかる。また、以上述べたことから、逆に $\langle 111 \rangle$ 軸と垂直方向に磁場を印加した時 ( $B \perp \langle 111 \rangle$ )、最も小さなg値が表われることがわかる。また、L点と等価な位置に4つの伝導帯谷があるため $\langle 111 \rangle$ 軸に平行あるいは垂直な方向に磁場を印加した時には2つのg値が観測される。<sup>(12)</sup>一方、本実験のように $\langle 100 \rangle$ 軸方向に磁場を印加した場合には4つの等エネルギー面上をサイクロトロン運動する電子の軌道がすべて等価となるため観測されるg値はただ1つとなる。以上述べたことから、ストークス光同調率は磁場方向を $\langle 111 \rangle$ 軸方向、( $B \parallel \langle 111 \rangle$ )とした時にはさらに増大できると考えられる。Greev<sup>(5)</sup>の報告した電子有効g値の結晶軸依存性をもとに、本実験で用いた結晶を $B \parallel \langle 111 \rangle$ として用いた時に期待できる有効g値を計算すると90程度となり、ストークス光の同調率は $4.2 \text{ cm}^{-1} \text{ kG}^{-1}$ になると考えられる。

図 - 3.5.2 に示した結果から有効g値は磁場10 kGから41 kGの範囲で59から51まで変化することがわかる。このように磁場の増加と共に有効g値が減少する原因は2章でInSbについて述べたと同じ機構によると考えられる。また、実験で得た有効g値の値を零磁場まで外挿すると61.7となる。この値はこれまで報告されている磁場中での再結合発光<sup>(4)(5)</sup>及びN.M.Rの測定<sup>(7)</sup>結果から推定した値ときわめてよく一致している。

### 3.5.2 出力の磁場依存性

共鳴SFR散乱の利得 $g_s$ は既に述べたように、共鳴係数 $W$ とSFR散乱に寄与する有効電子数の変化に支配される。以下では、この実験で用いた結晶について、利得 $g_s$ に影響を与える有効電

本実験では磁場を $\langle 100 \rangle$ 軸方向に印加したがPbSnTeの有効g値はSnの組成比及び磁場と $\langle 111 \rangle$ 軸とのなす角度によって変化することが知られている。PbSnTeの伝導帯は多谷構造で、ブリリュアン帯のL点と等価な位置に4つの極小値を持ち、等エネルギー面は $\langle 111 \rangle$ 軸と等価な方向に長軸をもつ回転随円体となっている。<sup>(9)(10)</sup>このため $\langle 111 \rangle$ 軸方向に磁場を印加した時には( $B \parallel \langle 111 \rangle$ )等エネルギー面の $\langle 111 \rangle$ 軸に垂直な面上をサイクロトロン運動をする電子が表われる。この状態にある伝導電子のサイクロトロン質量は最も小さくなり、<sup>(11)</sup>単位磁場当りのサイクロトロン周波数は最も大きくなる。従って、この状態での電子の全磁気モーメントは最大となり、(2.2.2.3)式で示した関係により伝導電子の有効g値は最大となる

子数及び共鳴係数の磁場による変化について述べる。

2章で述べたようにSFR散乱に寄与する電子数の磁場変化はフェルミ準位の磁場依存性から考察できる。実験中の共振器温度は約10Kであるが、温度0Kを仮定し各ゼーマン単位に対する電子占有確率（フェルミ分布関数）を0または1で表わしても実験条件との間に大きな相違は生じないと考えられる。図-3.5.3に温度0Kを仮定して計算したフェルミ準位の磁場による変化を示す。但し、この図ではエネルギーの原点を価電子帯上端にとった。また、計算では伝導電子サイクロトロン有効質量 $m_c^*$ を $B \ll 100$ の時の報告されている値 $m_c^* = 0.0278m$ とした。(5)(7) さらに、等エネルギー面の短軸方向の有効質量 $m_{\perp}$ はGreevらの提案した関係式(5)(14)

$$m_{\perp} = 0.146 E_g (eV) m \quad (3.5.2)$$

により計算し、 $m_{\perp} = 0.0178m$ とした。

一方、等エネルギー面の長軸方向の有効質量

$m_{\parallel}$ と $m_{\perp}$ の間には

$$m_{\parallel} / m_{\perp} \approx 11 \quad (3.5.3)$$

の関係が成立つことが報告されており(5)(13)これに従って $m_{\parallel} = 0.196m$ とした。以上 $m_{\parallel}$ と $m_{\perp}$ から状態密度有効質量 $m_d$ は $m_d = 0.0396m$ と計算できる。磁場中のフェルミ準位の計算には磁場と平行な方向に対する有効質量 $m_B$ が必要であるが $m_{\perp}$ と $m_{\parallel}$ から計算して $m_B = 0.114m$ とした。さらにフェルミ準位を計算するのに必要な電子有効g値はこの実験から値た20kGでの値56.8を用い、電子はブリリュアン帯端の等価は4つの谷に等しく分布していると仮定し、エネルギー帯のnonparabolicityは無視した。この計算から零磁場でのフェルミ準位は伝導帯底から7.89meV ( $63.6 \text{ cm}^{-1}$ )上に存在することになる。

図-3.5.3からフェルミ準位は磁場8kGと22kGでそれぞれランダウ単位量子数 $\ell = 1$ 及び0の単位に付属した $\downarrow$ スピン単位と交差することがわかる。これらの磁場では $\uparrow$ スピン単位の電子数と $\downarrow$ スピン単位の電子数の差が極大となるため、ストークス光利得は極大値となる。この図から $\uparrow$ スピン単位と $\downarrow$ スピン単位に存在する電子数の差は磁場と共に図-3.5.4に表すように変化することが計算できる。図-3.5.4に示した規格化した電子分布差Sは次式によって定義される。

$$S = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N} \quad (3.5.4)$$

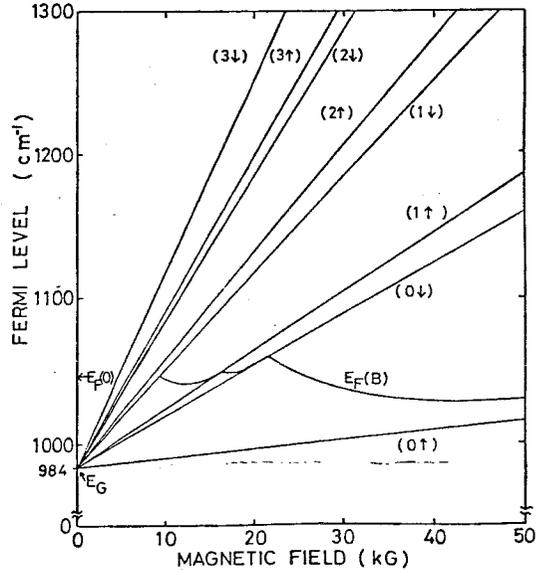


図-3.5.3 フェルミ準位の磁場依存性

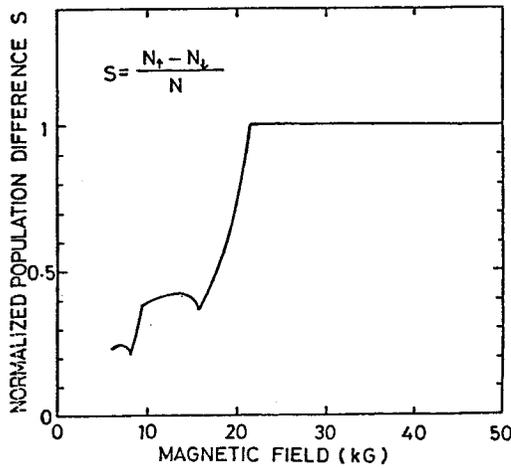


図 - 3.5.4 電子分布差の磁場依存性

スピンの間に存在する時、分布差  $S$  は磁場の変化につれて急激な変化を示すが<sup>(14)(15)(16)</sup>  $\text{Pb}_{0.88}\text{Sn}_{0.12}\text{Te}$  では、フェルミ準位がこれらの準位間に存在する磁場範囲 (9 kG~16 kG) では分布差  $S$  は比較的ゆるやかに変化する。InSb と  $\text{PbSnTe}$  でこのような相違が生じる原因は  $\text{PbSnTe}$  は InSb より大きな電子有効質量と有効  $g$  値をもつことによると考えられる。

一方、共鳴係数  $W$  は、励起光光子エネルギーが共振器禁制帯幅に近づくにつれて急激に増大する。しかし、励起光波長を固定すると共振器禁制帯幅は磁場と共に増加するため、共鳴係数は磁場の増加と共に次第に減少するようになる。この実験で用いた励起光周波数に対する共鳴係数  $W$  の磁場による変化を図 - 3.5.5 に示す。

ストークス光利得  $g_s$  は上記の2つの要素電子分布と共鳴係数を通じて磁場依存性をもつが、出力光がレーザーとなるためには

$$g_s \geq \alpha_s + \frac{1}{\ell} \ln R$$

$$(3.5.5)$$

但し、 $N_{\uparrow}$  と  $N_{\downarrow}$  はそれぞれすべての伝導帯  $\uparrow$  スピン準位と  $\downarrow$  スピン準位に存在する電子密度を表わす。また、 $N$  は全伝導電子密度を表わし  $N = N_{\uparrow} + N_{\downarrow}$  である。(3.4.5)式で定義した  $S$  はストークス光発生に寄与する電子数の全伝導電子数に対する割合を表わす。この図から 22 kG より高磁場では  $S = 1$  であり、すべての伝導電子は  $\uparrow$  スピン準位に存在することがわかる。

一方、磁場が 22 kG より小さい場合、電子分布差の示す変化はこれまで InSb (0K) について報告されている結果<sup>(14)</sup> と大きくことなるようになる。n-InSb では、フェルミ準位が (1,  $\uparrow$ ) スピン準位と (1,  $\downarrow$ )

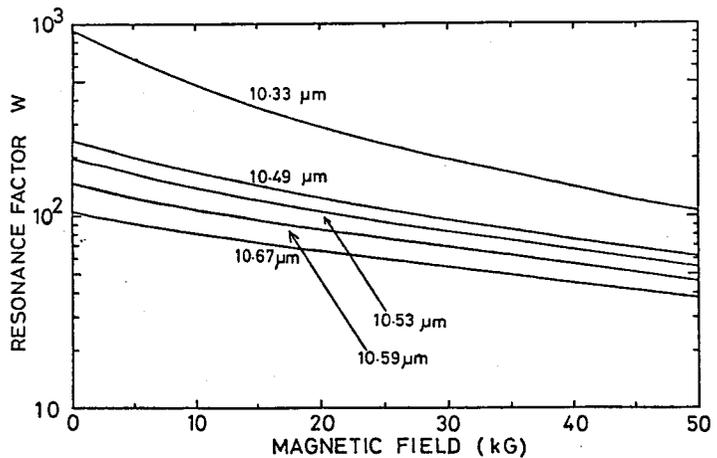


図 - 3.5.5 共鳴係数  $W$  の磁場依存性

が成立することが必要である。ここで $\alpha_s$ はストークス光の吸収損失係数を表わす。この発振条件に影響を与える要素には励起光及びストークス光に対する共振器内部での吸収損失がある。この損失としてはInSb共振器の場合と同様に自由電子による吸収、及び高次のサイクロトロン周波数及びこれに光学フォノン周波数が加わった周波数で発生する共鳴吸収損失が考えられる。励起光に対するこれら吸収損失はストークス光利得に影響を与えるが、共鳴条件を満たすために励起光光子エネルギーをバンドギャップに接近させた場合には吸収端及びUrbach-tailによる吸収が増加することも考慮しなければならない。また、この励起光の吸収損失も磁場と共に変化する。以上述べたことから共鳴条件下でのストークス光出力は、非共鳴の場合よりも励起光波長と磁場により敏感に影響されることが予測できる。

(ストークス光出力の励起光周波数依存性)

前項で述べたことから磁場を固定するとストークス光利得に影響を与える要素は共鳴係数 $W$ の励起光周波数による変化のみになることがわかる。励起光周波数を $10.67\ \mu\text{m}$ から $10.33\ \mu\text{m}$ まで変化した時のストークス出力の変化を図-3.5.

6に示す。図中には共鳴係数 $W$ の変化も同時に示している。この図から、励起光周波数が $950\ \text{cm}^{-1}$  ( $10.53\ \mu\text{m}$ )より低い領域ではストークス光出力はいずれの磁場についても同様に励起光周波数の増加につれて増大することがわかる。しかし、励起光周波数が $950\ \text{cm}^{-1}$ より高くなると出力はかえって減少するようになるが、その減少の割合は磁場の増加と共に小さくなる。しかし、共鳴係数 $W$ が図-3.5.6に示したように励起光周波数と共に増加することから励起光周波数 $950\ \text{cm}^{-1}$ 以下の

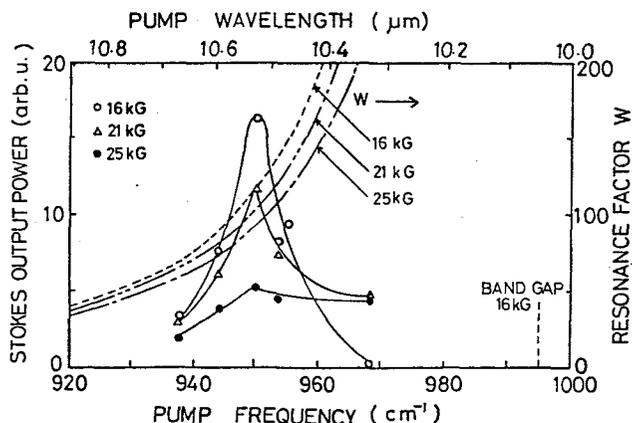


図-3.5.6 ストークス光出力(実測値)の励起光周波数依存性と共鳴係数(計算値)の励起光周波数依存性

領域で観測される励起光周波数の増加に伴ったストークス光出力の増加は共鳴効果により利得 $g_s$ が増加するために生じると考えられる。一方、励起光周波数が $950\ \text{cm}^{-1}$ を超えた場合の出力の減少は励起光周波数が吸収端に接近することにより、共振器内部での励起光吸収損失が増加するため(図-3.5.10)生じると考えられる。今のところ $950\ \text{cm}^{-1}$ 以上の励起光周波数領域で生じるストークス光出力の変化を共鳴効果と励起光吸収損失の変化のみで説明できるとは断言できないが図-3.5.7に示すように、励起光の共振器透過光が磁場と共に増加することから吸収端による励

起光の吸収損失は磁場の増加に伴って減少することがわかる。この吸収損失の減少は図-3.5.5-6に示した共鳴係数の減少よりも支配的にストークス光出力に影響を与えるため、図-3.5.6に示した $960\text{cm}^{-1}$ 以上のストークス光出力の減少が高磁場となるにつれて小さくなると考えられる。次節で励起光の吸収損失の増加を考慮した時のストークス光出力を見積るが、その結果からもその推定が定性的には正当であることが示される。なお、図-3.5.7に示す励起光の共振光の共振器透過光は磁場 $30\text{ kG}$ 以上の領域で飽和する。この飽和は励起光周波数が高次のサイクロトロン周波数と一致し共鳴吸収損失が発生するためとも考えられるがその原因は今のところ明らかでない。

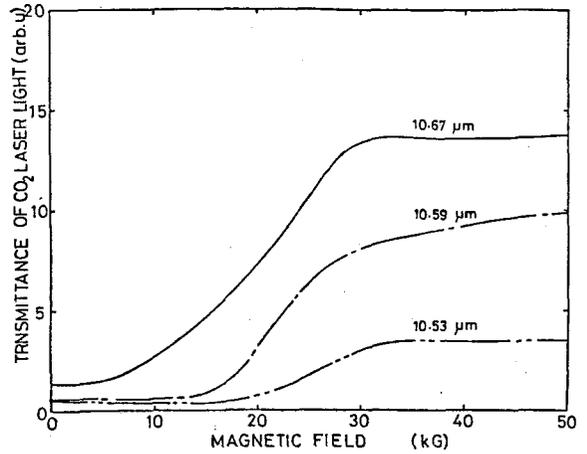


図-3.5.7 共振器透過光の磁場依存性

(出力の磁場依存性)

ストークス光出力は励起光周波数と磁場に依存する。図-3.5.8に励起光周波数を $10.53, 10.59, 10.67\mu\text{m}$ と変化した場合のストークス光出力の磁場依存性を示す。ストークス光出力は $15\text{ kG}$ から $18\text{ kG}$ 付近でピークとなるがピークでのストークス光出力は励起光周波数を増加するにつれ増大することがわかる。この出力の増大はすでに述べたように共鳴効果によって利得が増加するためと考えられる。一つの励起光波長に着目すると出力は $15\text{ kG}$ 付近でゆるやかなピークを示す。この場合ストークス光利得の磁場依存性に影響を与える要素としては電子分布差、共鳴係数及び励起光の共振器内部での吸収損失の3つが考えられる。電子分布差はストークス出力がピークとなる磁場付近ではフェルミ準位が図-3.5.3に示したように $(1, \uparrow)$ 準位と交差するため、図-3.5.4に示したように変化する。図-3.5.4に示した分布差の磁場依存性は温度 $T = 0\text{ K}$ についての計算であるが実験温度 $10\text{ K}$ ではこの仮定から少しずれて磁場と共にゆるやかに増加するようになっている可能性もある。<sup>(45)</sup> ストークス光出力のピークよりも低磁場側で磁場の増加と共に出力が増加する理由は今のところ明確ではないが、電子分布差が増大することも考慮する必要がある。

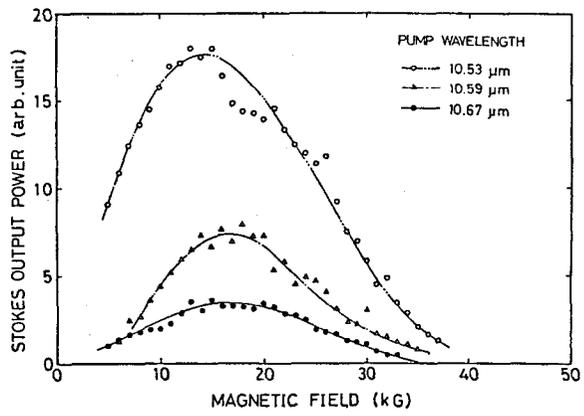


図-3.5.8 ストークス光出力の磁場依存性

他方、ストークス光出力のピークよりも高磁場側で磁場の増加と共に出力が減少する原因は図-3.5.4に示した分布差の変化からは説明できない。ストークス光出力が16 kGより高磁場で減少する原因としては図-3.5.5に示した共鳴係数が磁場と共に減少しストークス光利得を減少させること及び磁場と共にストークス光波長が増加し、ストークス光に対する共振器内部での自由キャリアによる吸収損失が増加すること<sup>(6)</sup>、さらに高磁場となるにつれストークス光及び励起光に対する高次のサイクロトン共鳴吸収損失<sup>(7)</sup>が増加すること、等が考えられるが、今のところ明らかではない。

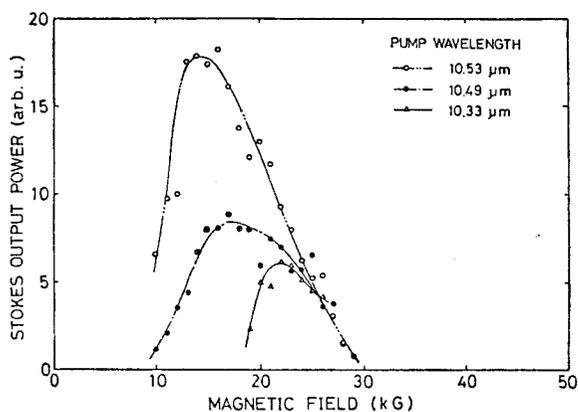


図-3.5.9 ストークス出力の磁場依存性

この時、共鳴係数も減少するが、共鳴係数の磁場依存性は吸収損失の変化よりはゆるやかであるため磁場の増加と共に、ストークス光の発振が可能になると考えられる。以上の理由により励起周波数の増加と共に発振開始磁場が高磁場側にシフトすると考えられる。

### 3.5.3 出力の磁場依存性の解析

光共振器内で励起光が基礎吸収によって吸収される時、利得も共振器内で空間的に変化する、その時、共振器内部でのストークス光強度  $I_s$  は位置の関数となり

$$\frac{dI_s(x)}{dx} = (g_s e^{-\alpha_0 x} - \alpha_s) I_s(x) \quad (3.5.6)$$

で与えられる。ここで  $x$  は共振器の励起側端面からの距離、 $g_s$  は  $x=0$  でのストークス光の利得であり(2.2.13)式で与えられる。この実験では利得は共鳴効果の大きさに依存して急激に変化する項を含むため(2.2.13)式の  $g_s$  から共鳴効果によって変化する項(共鳴係数  $W$ )を取出し  $g_s = g_0 W$

図-3.5.9に励起光波長を10.53- $\mu$ mより短波長側に变化した時のストークス光出力の磁場による変化を示す。励起光周波数を増加するにつれストークス光出力が観測される磁場が高磁場側にシフトすることがわかる。このシフトの原因は低磁場では励起光周波数の増加と共に吸収端の影響で励起光に対する吸収損失が増加し(図-3.5.10)共鳴効果による利得の増加を上回るようになり、ストークス光の発振が抑制されるためと考えられる。しかし、励起光に対する吸収損失は磁場が増加するにつれ減少するようになる。

と表わすことにする。また、 $\alpha_0$  は励起光の共振器内部での基礎吸収による吸収係数を表わし、 $\alpha_s$  はストークス光に対する吸収係数である。共振器長を  $l$  とすると共振器励起側端面から距離  $l$  進んだ後のストークス光強度  $I_s(l)$  は

$$I_s(l) = I_{s0} \exp \left[ \left\{ \frac{g_s}{\alpha_0 l} (1 - e^{-\alpha_0 l}) - \alpha_s \right\} l \right] \quad (3.5.7)$$

と表わされる。共振器端面での反射率を  $R$  とするとストークス光がレーザー発振を開始するためには、ストークス光が共振器内部で1往復した時

$$R^2 \cdot I_{s0} \exp \left[ \left\{ \frac{g_s}{\alpha_0 l} (1 - e^{-\alpha_0 l}) - \alpha_s \right\} 2l \right] \geq I_{s0} \quad (3.5.8)$$

となる。

この発振条件は

$$g_s \geq \frac{\alpha_0 l (\alpha_s - \frac{1}{l} \ln R)}{(1 - e^{-\alpha_0 l})} \quad (3.5.9)$$

と変形できるが、この式は励起光の吸収を考慮しない場合のレーザー発振条件 (2.5.7) に対応する。利得が損失を超える割合  $P$  を

$$P = \frac{g_s (1 - e^{-\alpha_0 l})}{\alpha_0 l (\alpha_s - \frac{1}{l} \ln R)} \quad (3.5.10)$$

によって定義すると、レーザー出力  $I_s$  は2章で述べたように、励起中のスピン準位間の電子の緩和を無視し、励起光強度分布をガウス分布で近似すると

$$I_s = A \left( \ln P + \frac{1}{P} - 1 \right) \quad (3.5.11)$$

で表わされる。

実験温度 1.3 K での励起光に対する共振器吸収係数を図-3.5.10に示す。但し、この値は零磁場での値である。磁場中では図-3.5.7に示したように励起光の共振器透過強度は磁場と共に増加するようになるが、励起光吸収係数そのものは磁場によってほとんど減少しない。そのため (3.5.10) の計算に零

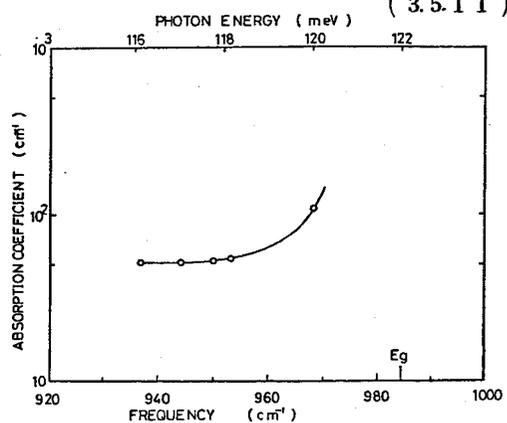


図-3.5.10 n-Pb<sub>0.88</sub>Sn<sub>0.12</sub>Te の吸収係数の変化

磁場での吸収係数を用いても大きな誤差は生じないと考えられる。また、ストークス光に対する吸収係数 $\alpha_s$ 及び共振器端面での反射率Rをストークス光の波長変化に対して一定と仮定すると、(3.5.10)は図-3.5.10より  $\exp(-\alpha_0 l) \ll 1$ 、であるから

$$P = \frac{g_0 W (1 - e^{-\alpha_0 l})}{\alpha_0 l (\alpha_s - \frac{1}{2} \ln R)} \approx \frac{g_0 W}{\alpha_0 l (\alpha_s - \frac{1}{2} \ln R)} \quad (3.5.12)$$

と表わされる。ストークス光利得が共振器内の全損失を超える割合Pは励起光周波数が共振器禁制帯幅に接近するにつれて増大する共鳴係数W(図-3.5.6)と励起光吸収係数 $\alpha_0$ (図-3.5.10)の大きさにより変化することになる。(3.5.12)で表わされるPを用いて(3.5.11)から計算したストークス光出力の励起光周波数依存性を図-3.5.11に示す。但し、この計算ではAとPをパラメータとし、ストークス光出力 $I_s$ を励起光周波数 $950\text{cm}^{-1}$ ( $10.53\mu\text{m}$ )及び $944\text{cm}^{-1}$ ( $10.59\mu\text{m}$ )の時の実験値と一致するようにした。図-3.5.11に示したように計算値と実験値との定量的な一致はあまり良くないが、定性的には励起光周波数が増加し、吸収端に接近するようになると励起光の吸収損失が増加し、共鳴効果による利得の増大を上回るようになるためストークス光出力の減少が生じることがわかる。

図-3.5.11には励起光の吸収損失が存在しない時のストークス光出力の計算値も同時に示している。励起光の吸収損失が存在しない時にはストークス光出力は実験値よりも1桁程度上昇すると考えられるが、共鳴効果による出力の急激な増加は励起光周波数が共振器禁制帯幅に接近した場合に生じることがわかる。

以上述べたことから図-3.5.11に示したストークス光出力が励起光周波数 $950\text{cm}^{-1}$ 以上で減少する原因は励起光の吸収が増加し、共鳴効果による利得の増大を上回るため生じた可能性が強い事が結論づけられる。

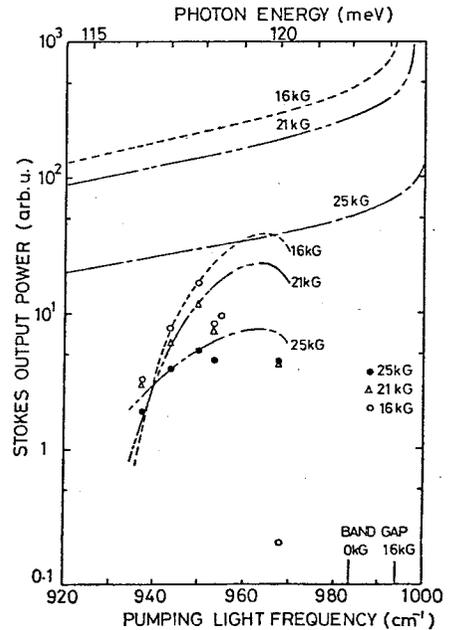


図-3.5.11 ストークス光出力の励起光周波数依存性

### § 3.6 今後の問題点

以上、本実験を通じて得られた  $n\text{-Pb}_{0.88}\text{Sn}_{0.12}\text{Te}$  SFRレーザーの基礎発振特性を述べた。このレーザーは現時点では共振器用の良質な結晶作製が困難であるため十分な実用性があるとは言いがたいが、今後、結晶成長技術が進歩するにつれ実用性が増加すると考えられる。また、共振器キャリア密度低減化や平行度改善により連続発振も実現可能と考えられる。

波長  $10\ \mu\text{m}$  領域の連続発振 SFRレーザーとしては現在  $\text{HgCdTe}$  三元混晶が用いられるがこの材料と比較して  $\text{PbSnTe}$  は以下に述べる SFR共振器としての長所を持つため将来は重要な共振器材料として活用されると考えられる。

- 1)  $\text{PbSnTe}$  混晶系の  $\text{Pb}$  の組成が多い結晶では伝導帯と価電子帯の構造は低温に於て禁制帯中央に対して対称的となり、伝導電子と正孔は共に等しい有効質量と有効  $g$  値をもつ。<sup>(4)(5)</sup> このため、本実験で得たと同様な大きいストークス光の同調率が  $\text{P}$  形材料についても期待できる。従って、共振器として  $\text{InSb}$  や  $\text{HgCdTe}$  のように  $n$  形材料のみに制限されない。
- 2)  $\text{PbSnTe}$  の有効  $g$  値は磁場と  $\langle 111 \rangle$  軸のなす角度によって変化するため、出力光の波長変化は磁場の大きさの変化だけでなく、磁場と  $\langle 111 \rangle$  軸とのなす角度を変化することによっても行うことができる。従って、 $\text{PbSnTe}$  共振器では磁場源として永久磁石を使用し、磁場と  $\langle 111 \rangle$  軸との角度を変えることによっても出力光の波長を変化できるため、SFRレーザー装置の小型化が可能になる。

### § 3.7 結 言

$\text{TECO}_2$  レーザー励起  $n\text{-Pb}_{0.88}\text{Sn}_{0.12}\text{Te}$  SFRレーザーの発振に初めて成功し、以下の基礎発振特性を得た。

- 1) ストークス光のレーザー発振励起しきい値強度は磁場  $16\ \text{kG}$  において  $0.6\ \text{MW}\cdot\text{cm}^{-2}$  である。また、最大出力は磁場  $16\ \text{kG}$  で得られ、約  $6.6\ \text{mW}$  となった。この時励起光からストークス光へのパワー変換効率率は約  $3 \times 10^{-6}\%$  であったが、そのように効率が低い原因は共振器平行度が低い事、及び共振器内の伝導電子密度が  $10^{17}\ \text{cm}^{-3}$  と高いことにより自由キャリアによる光吸収損失が大きいことが考えられる。
- 2) 励起光として  $1.054\ \mu\text{m}$  を用い、磁場を  $\langle 100 \rangle$  軸方向に印加した時、磁場  $8\ \text{kG}$  から  $41\ \text{kG}$  の範囲でストークス光が観測され、波長は  $1.082\ \mu\text{m}$  から  $1.178\ \mu\text{m}$  まで変化する。この時、単位磁場当りのストークス光同調率は  $2.65\ \text{cm}^{-1}\cdot\text{kG}^{-1}$  となり、 $n\text{-InSb}$  の約  $1.3$  倍となった。この同調率は磁場を  $\langle 111 \rangle$  軸方向に印加した場合にはさらに増加し、約  $4.2\ \text{cm}^{-1}\cdot\text{kG}^{-1}$  に達するものと見積られる。
- 3) ストークス光出力は励起光周波数を  $940\ \text{cm}^{-1}$  から  $950\ \text{cm}^{-1}$  と増加するにつれて増大する。この出力の増加は共鳴効果により利得が増大するため生じると考えられる。一方、励起光周波数を  $950\ \text{cm}^{-1}$  以上とした場合には出力の減少が生じる。この出力の減少は励起光周波数が共振器禁制帯幅に接近するため励起光の吸収損失が急激に増大し、共鳴効果による利得の増大を上回

るため生じると考えられる。

- 4) ストークス光出力は磁場の増加と共に増大し、磁場 16 k G 付近でピークとなる。この出力の増大は磁場と共にストークス光発生に寄与する電子の数が増加するためと考えられる。また、磁場 16 k G 以上で生じるストークス光出力の減少は共鳴係数の減少によりストークス光利得が減少すること及びストークス光に対する高次のサイクロトロン共鳴吸収損失の発生によって生じる可能性が強い。
- 5) ストークス光出力の励起光周波数による変化は励起光吸収係数と共鳴係数の変化を考慮することにより定性的に説明できる。

## 参 考 文 献

- 1) J.O.Dimmock, I.Melngailis and A.J.Strauss; Phys. Rev. Letters 16 (1966) 1193.
- 2) J.P.Sattlel, B.A.Weber, J.Nemarich; Appl. Phys. Letters 25 (1974) 491, 27 (1975) 93.
- 3) K.Yasuda and J.Shirafuji; Appl. Phys. Letters 34 (1979) 661.; Jpn. J. Appl. Phys. 19 (1980) 1135.
- 4) J.F.Butler; Solid State Commun. 7 (1969) 909.
- 5) D.M.Greev, I.I.Zasavitskiĭ, B.N.Matsonashvili and A.P.Shotov; Sov. Phys. Semicond. 12 (1978) 411.
- 6) A.R.Calawa, T.C.Harman, M.Finn and P.Youtz; Trans. AIME 242 (1968) 374.  
D.Long and J.L.Schmit; 'Semicond. and Semimetals' 5 Ch. 5 ( Academic Press, 1970)
- 7) C.R.Hews, M.S.Adler and S.D.Senturia; Phys. Rev. 7 (1973) 5195.
- 8) C.K.N.Patel and E.D.Shaw; Phys. Rev. 3 (1971) 1279.
- 9) J.O.Dimmock; J. Chem. Solid suppl 32 (1971) 319.
- 10) J.R.Burke, B.Houston and H.T.Savage; Phys. Rev. B2 (1970) 1977.
- 11) 川村肇：“固体物理学”共立全書 169(共立出版、1971) P170
- 12) C.K.N.Patel and R.E.Slusher; Phys. Rev. 177 (1969) 1200.
- 13) D.M.Greev, I.I.Zasavitskiĭ, B.N.Matsonashvili and A.P.Shotov; Sov. Phys. Semicond. 12 (1978) 1032.
- 14) R.B.Dennis, C.R.Pidgeon, S.D.Smith, B.S.Wherrett and R.A.Wood; Proc. R. Soc. London A331 (1972) 203.

- 15) B.S.Wherrett, S.Wolland, C.R.Pidgeon, R.E.Dennis and S.D.Smith; Proc. Intn. Conf. Phys. Semicond. Stuttgart, 1974 (ed. E.G.Teubner, Stuttgart, 1974) p. 795.
- 16) B.S.Wherrett and P.G.Harper; Phys. Rev. 183 (1969) 692.
- 17) K.J.Button, B.Lax, M.H.Weiler and M.Reine; Phys. Rev. Letters 17 (1966) 1005.
- 18) H.R.Riedl; Phys. Rev. 127 (1962) 162.

## 第4章 n-InSb SFRレーザー出力及び励起光透過波形の時間的变化

### § 4.1 緒言

n-InSb SFRレーザー出力はすでに2章(図-2.4.1)で述べたように励起光強度約 $2\text{MW cm}^{-2}$ で飽和する傾向を示す。励起強度をさらに増加すると出力はかえって減少するようになり、励起光がストークス光に変換される効率すなわちパワー変換効率は励起強度の増加と共に減少するようになる。<sup>(1)</sup> また、変換効率が低下する高励起時にはストークス光出力波形および励起光の共振器透過光波形(以下透過光と略記する)は励起光波形と相似とはならず、励起光波形のピークではかえって減少する現象を示す。<sup>(2)</sup>

このようなSFRレーザー出力及び透過光の減少が生じる原因として、これまで提案されたモデルを簡単にまとめると次のようになる。

- 1) InSbの正孔は波長 $10\ \mu\text{m}$ 付近の赤外光を吸収して価電子帯間で遷移するため伝導電子と比較して大きな光吸収断面積(215倍、77K)をもつ。<sup>(2)</sup> SFRレーザーの励起時のような強い入射光のもとでは2光子励起によって、価電子帯から伝導帯に電子が励起されるようになり、価電子帯に正孔が生成される。その結果、励起光は正孔に強く吸収されるようになり、透過光やストークス光に非線形な減少が生じる。<sup>(3)(4)</sup>
- 2) 伝導電子が励起光を多光子吸収し、伝導帯の高エネルギー状態に励起される。(ホットエレクトロンになる) この電子がエネルギー緩和過程で価電子を衝突電離する。この結果伝導電子数が過渡的に増加し、励起光を吸収する。<sup>(5)</sup>
- 3) 励起光電界で加速された伝導電子が衝突電離によって価電子を伝導帯に励起する。この時、価電子帯に生成された正孔が励起光を吸収する。<sup>(6)(7)</sup>

これら3つの機構ではいずれも励起光によって伝導電子及び正孔が生成される事を前提としている。しかし、これまでSFRレーザーの動作温度(約 $10\text{K}$ )のような低温で、波長 $1.06\ \mu\text{m}$ 帯の励起光によりキャリアが生成される事実は直接確認されておらず、さらに入射光に対するこの温度での正孔の吸収断面積も測定されていなかった。そのため先に述べた光吸収機構の実験的な裏付けはなかった。一方、SFRレーザーの高効率・高出力化といった実用上の観点からは、レーザー共振器中に生じる非線形な光吸収の発生機構を解明し、これを防止することが重要である。

このような観点から本章ではSFRレーザー出力の減少や透過光強度の減少機構の解明を目的として行なったこれら光信号の時間的变化の測定について述べ、さらに正孔の吸収断面積の測定結果及び励起光入射時の光電導度の測定結果から光吸収機構を論じる。

§ 4.2 SFRレーザー出力及び励起光透過特性の時間的变化

4.2.1 実験装置及び実験方法

本実験で使用した n-InSb SFR共振器は電子密度  $2.3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$  (77K) で寸法は  $8 \times 5 \times 9.5 \text{mm}^3$  である。 $8 \times 5 \text{cm}^2$  の2面は平行度  $1/2$  秒以内平面度  $\lambda/5$  ( $\lambda$ はNa・D線波長  $589 \text{nm}$ ) に研磨し SFR共振器は  $50 \text{kG}$  超電導マグネット内部に取付け実験中は約  $10 \text{K}$  に冷却した。

実験装置のブロック図を図 - 4.2.1 に示す。図中には後に 4.3 節で述べる光電導度測定で用いた n-InSb 結晶の形状や実験装置も同時に示している。

装置の大部分はすでに 2 章および 3 章で述べたものと同様であるため、ここでは重複を避け異なっている箇所についてのみ述べることにする。

SFR共振器に入射する

$\text{CO}_2$ レーザー光パルス波形及

びピーク強度は  $77 \text{K}$  に冷却した Au ドープ Ge 光導電素子によってモニターした。また、SFRレーザー出力及び透過光の変化は  $30 \text{K}$  に冷却した Hg ドープ Ge 光導電素子によって検出した。これら二つの検出器の出力は 2 現象オシロスコープにより同時に観測した。

Ge : Au 及び Ge : Hg 検出器の  $\text{CO}_2$ レーザーパルスに対する応答特性を図 - 4.2.2 上段及び下段に示す。図から信号検出に使用した Hg : Ge 検出器は  $\text{CO}_2$ レーザーのモードロックパルスにも追従可能であることがわかる。一方、Ge : Au 検出器は応答速度に制限されてモードロックパルス波形の飽絡線に相当する信号を示す。これらの特性の相違は後の測定に全く支障はない。

なお、次節に示す透過光波形は分光器スリットにより減衰させて測定を行ない、Ge : Hg 検出器の飽和を避けた。

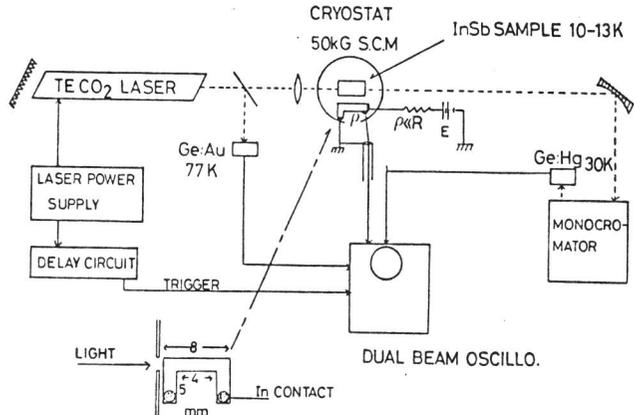


図 - 4.2.1 実験装置

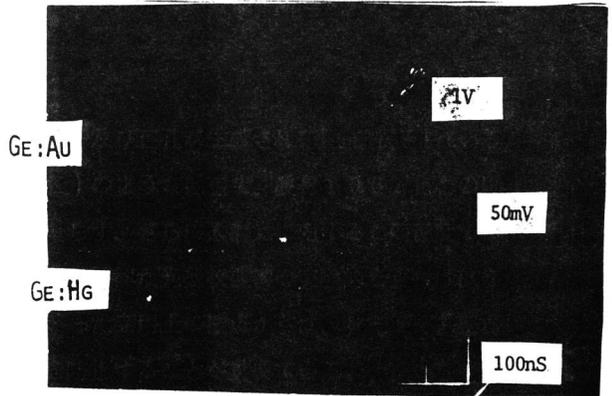


図 - 4.2.2 Ge : Au , Ge : Hg 光検出器の応答特性

#### 4.2.2 実験結果と検討

励起  $\text{CO}_2$  レーザー ( $10.59\mu\text{m}$ ) パルスの波形とストークス光出力波形をそれぞれ図 - 4.2.3 の上

段及び下段に示している。この図から励起強度が発振しきい値を超えると同時にストークス光出力が急激に増加する事がわかる。しかし、その出力は励起強度がさらに増加すると減少し始め、励起強度がピークを過ぎた後では、励起強度がまだ発振しきい値を十分超え

ているにもかかわらず、出力はほとんど観測できない程度まで減少する。また、図 - 4.2.3 に示したと同じ実験条件で観測した反スト

ークス光出力もストークス光出力と同様な変化を示す。

このようにストークス光出力と反ストークス光出力が同様な振舞を示す事は、SFR レーザ出力が励起強度ピークでかえって減少する現象がストークス光発生に伴って電子分布差が過渡的に減少するために生じるのではないという事を示している。

一方、同様な実験条件では、図 - 4.2.4 に示すように透過光も励起光強度の増加に伴って減少す

ようになる。この図からSFR レーザ出力の減少と透過光の減少とは同時に発生する事がわかる。 $\text{CO}_2$  LASER

さらに、SFR レーザ出力が生じない零磁場でも図 - 4.2.4

と同程度の入射光強度に対しては同様な非線形効果による透過光強度の減少が観測される。この事は

図 - 4.2.4 に示した透過光の減少は励起光がストークス光の発振のために消費されて生じるのではないことを示している。また、

SFR レーザのパワー変換効率からも、励起光がSFR出力に消費されたとは考えられない。

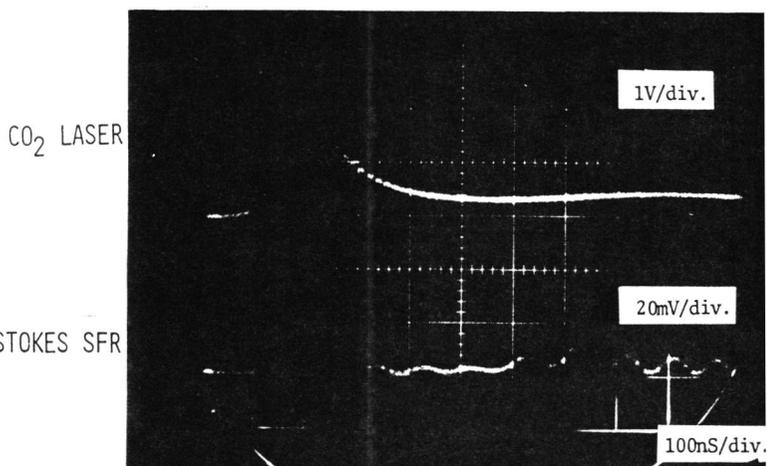


図 - 4.2.3 励起  $\text{CO}_2$  レーザー ( $10.59\mu\text{m}$ ) 波形とストークス光出力波形 (磁場  $50\text{ kG}$ )

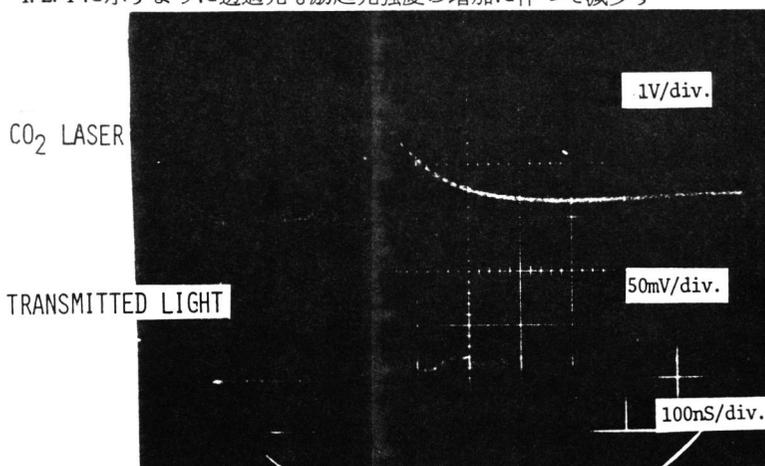


図 - 4.2.4 励起  $\text{CO}_2$  レーザー波形とその共振器透過光波形

図 - 4.5.2は入射光波長  $1.067 \mu\text{m}$  において測定したピーク 入射光強度に対する透過光強度の変化を示している。この測定で使用した  $n\text{-InSb}$  の電子密度は  $4 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$  ( $77\text{K}$ ) で結晶長は  $9.9\text{mm}$  である。また、測定温度は SFR レーザー動作温度とほぼ等しい  $13\text{K}$  である。この図から透過光強度は入射光強度が  $1.4 \text{MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  を超えると減少し始め、この入射光強度以上では結晶内部に非線形な光吸収機構が発生し、入射光を吸収するようになることがわかる。この入射光強度は図 - 4.2.3 及び図 - 4.2.4 に示した透過光やストークス光の異常が生じる入射光強度とほぼ一致している。

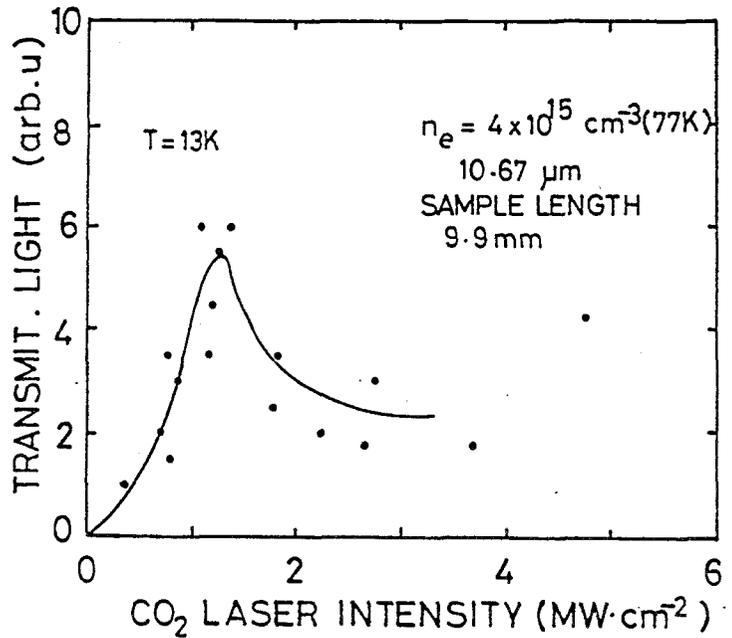


図 - 4.2.5  $n\text{-InSb}$  における 透過光強度の  
入射光強度依存性  
(入射光波長  $1.067 \mu\text{m}$ , 温度  $13\text{K}$ )

以上述べてきた非線形な光吸収の発生機構を考察するためには、緒言でも触れたように入射光によって、価電子帯に正孔が生成された時の光吸収に対する影響を正確に見積ることが必要と考えられる。なぜならば、以前から正孔は低温では重い価電子帯から軽い価電子帯に遷移することによって波長  $10 \mu\text{m}$  付近の赤外光を強く吸収するようになることが指摘されており、<sup>(2)</sup> 入射光によって生成された正孔は、その密度は小さくともその後入射光を吸収して非線形現象をもたらすことが考えられるからである。しかし、正孔の光吸収断面積は温度  $300\text{K}$  から  $77\text{K}$  の範囲で測定されているだけであり、この実験を行った温度 ( $13\text{K}$ ) での値は不明であった。

測定試料としては正孔密度  $n_p 1.2 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$  ( $13\text{K}$ ) の  $p\text{-InSb}$  単結晶を用い、波長  $1.067 \mu\text{m}$  光に対する透過強度から吸収係数  $\alpha$  を求め、 $\alpha = n_p \cdot \sigma_p$  の関係から正孔1つ当りの吸収断面積  $\sigma_p$  を算出した。但し、入射光強度は  $1 \text{kW}/\text{cm}^2$  であり、この入射光強度では透過光に非線形な吸収は観測されない事を確認した。この測定から温度  $13\text{K}$  では正孔の吸収断面積  $\sigma_p$  は伝導電子のもつ値より  $1400$  倍程度大きく、 $\sigma_p = 3.4 \times 10^{-14} \text{cm}^2$  であることが明らかになった。<sup>(2)</sup> 低温で正孔の吸収断面積が大きくなる理由は、価電子帯内での遷移に際してフォノンにより散乱される割合が減少するためと考えられる。

このように正孔の吸収断面積が大きいため SFR レーザーの動作温度では共振器中にわずかな数の正孔が発生しただけでも励起光はこの正孔によって吸収され得る事がわかる。

図-4.2.6はp-InSbに入射する10.67 $\mu\text{m}$ 光の入射光強度と透過光強度の関係を示している。p-InSbでも入射光強度が0.8~0.7  $\text{MW}\cdot\text{cm}^{-2}$ 以上となると透過光強度はかえって減少する。このことはp-InSbでもn-InSbで観測されたと同様な非線形な光吸収が存在する事を示している。

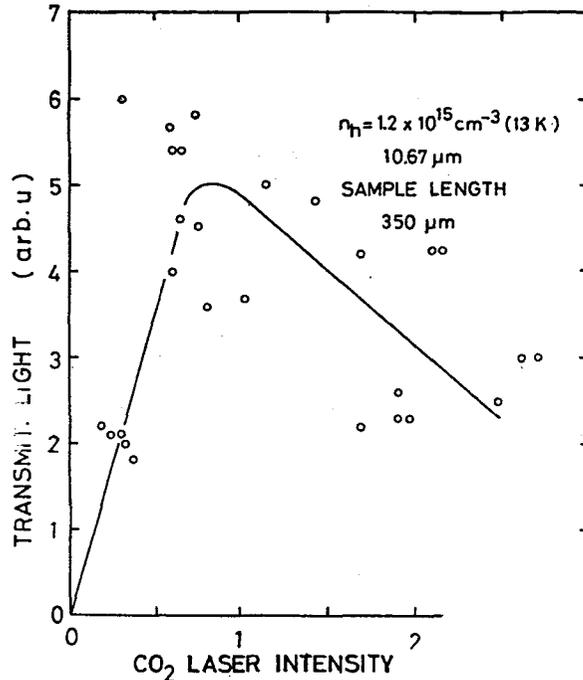


図-4.2.6 p-InSb結晶における透過光強度の入射光強度依存性 (入射光波長10.67 $\mu\text{m}$ , T=13K)

#### § 4.3 CO<sub>2</sub>レーザー光による光電導特性

前節では非線形な光吸収を示唆するSFRレーザー出力及び透過光の時間的変化について述べ、励起光によって生成された正孔が関与する可能性について論じた。しかしながら、励起光によって正孔が生成されるという直接的な確認及び正孔の生成過程についての実験的な考察は行なっていなかった。この節では、励起CO<sub>2</sub>レーザー光に対するn-InSbの光電導度の測定結果について述べ、この測定結果から正孔の生成過程についての考察を行ない、さらに非線形な光吸収機構について述べる。

##### 4.3.1 実験装置及び実験方法

CO<sub>2</sub>レーザー光による光電導度測定の試料として用いたn-InSb単結晶は電子密度 $1.8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  (77K)である。この結晶はCO<sub>2</sub>レーザー光入射端面を鏡面に研磨した後、図-4.2.1に示したようにコの字形に加工し、Inを合金してホム性電極を形成した。実験中電極部分はアルミ板でおおい、わずかに整流性が残る際に入射光によって生成された少数キャリアが電極部に注入されて光起電力を発生するのを防止した。

試料は光学測定用クライオスタットのコールドフィンガーに取付け実験中は13Kに冷却した。試料には直流電流を印加し励起光入射時に試料両端に生じる電圧変化を検出した。この光電導度信号とGe:Hg検出器で測定した励起光波形は2現象オシロスコープにより、同時に波形観測を行なった。なお、励起光として用いたCO<sub>2</sub>レーザー光波長は前節と同様10.59 $\mu\text{m}$ 及び10.67 $\mu\text{m}$ である。

#### 4.3.2 実験結果と検討

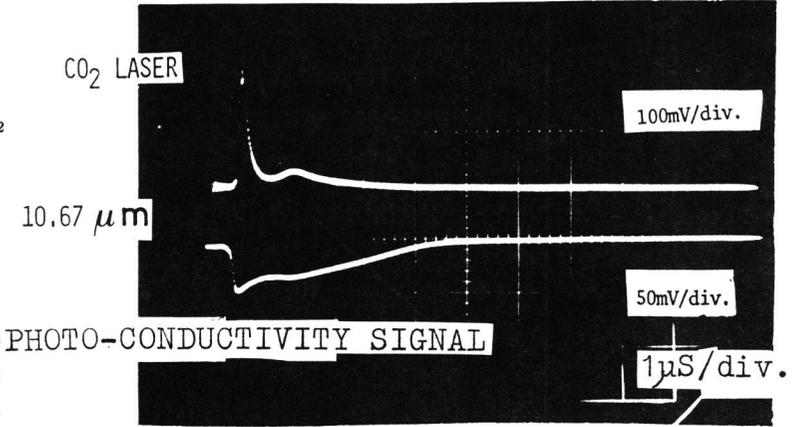
図 - 4.3.1 (a, b) に 2 種の時間スケールで観測した入射 CO<sub>2</sub> レーザー光波形 (同図 - 上段) と n-InSb が示す光電導波形 (同図 - 下段) を示している。図に示した入射光は 10.67 μm

である。この図に示した光電導度信号は入射光によって結晶中にキャリアが生成されて、電極間の抵抗が低下するため生じており、励起光によって SFR 共振器中にキャリア (電子-正孔対) が生成される事を直接裏付けている。また、結晶中には同数の電子と正孔が生成されるが、InSb では正孔の移動度は伝導電子の 5% 以下であるため、この光電導度信号は主として伝導電子によって成立つと考えられる。

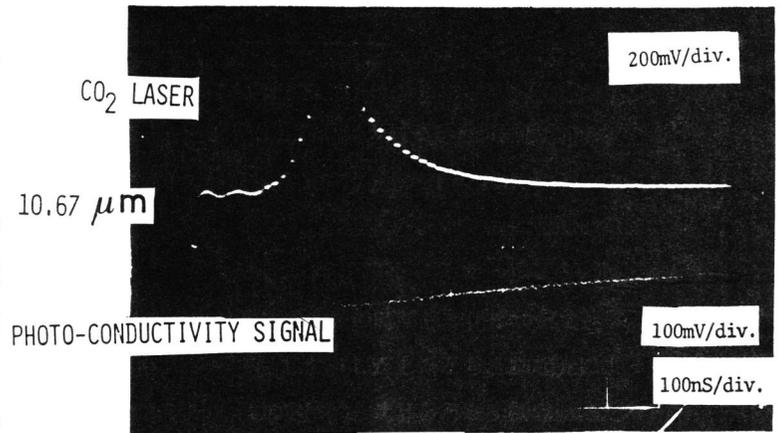
図 - 4.3.1 から光電導度は入射光強度ピークと一致して最大となり、その後はゆるやかに減衰することがわかる。この減衰

の時定数はピーク入射光強度  $6 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  以下では入射光強度の増加と共に短くなる傾向を示し、 $1.3 \mu\text{s}$  から  $0.4 \mu\text{s}$  まで変化する。この時定数は Fossun らが 77K で測定した値  $730 \text{ ns}$  とほぼ一致している。<sup>(8)</sup> 減衰時定数が入射光強度によって変化する理由は生成されたキャリアの再結合機構が 2 分子再結合であるためと考えられる。Fossun らは 2 光子励起が強く生じる波長  $9.6 \mu\text{m}$  の入射光では入射光強度を増加し生成キャリア数を増加させるとキャリアの緩和過程が 1 分子再結合過程から 2 分子再結合過程に移行する事を指摘しているが<sup>(8)</sup> 本実験からはその事を明確に確認できなかった。

光電導度の測定結果と電子移動度から入射光によって生成されるキャリア数を求める事が可能である。ホール効果から求めた電子移動度を用いて、図 - 4.3.2 に入射光波長  $10.67 \mu\text{m}$  と  $10.59 \mu\text{m}$  について測定した生成キャリア密度の入射光強度による変化を示している。図中には後に述べる計算値を同時に実線で示している。また、図中



(a)



(b)

図 - 4.3.1 n-InSb の光電導特性

縦軸に示したキャリア密度は結晶長についての平均値である。

この図から、生成キャリア密度の増加は光子エネルギーの大きい  $1.059 \mu\text{m}$ の方が  $1.067 \mu\text{m}$  光より急激である事がわかる。このような生成キャリア密度の入射光波長依存性はキャリアの生成機構が2光子励起である事を示すものと考えられる。なぜならば、他のキャリア生成機構として提案されている入射光の多光子吸収、あるいは電界加速によりホットエレクトロン

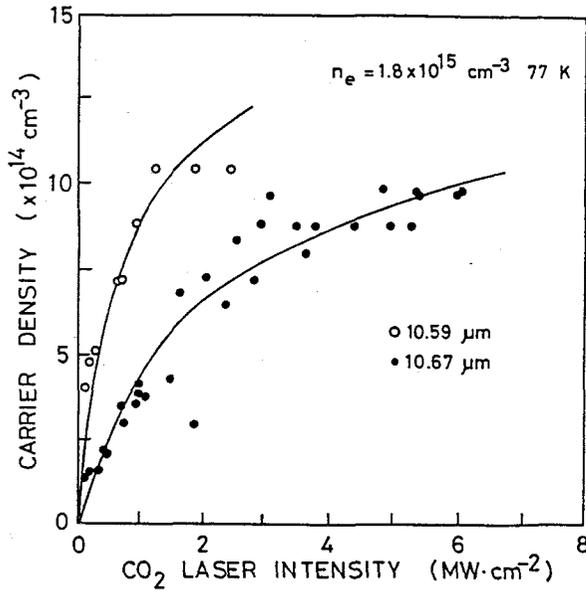


図-4.3.2 生成キャリア密度の入射光強度依存性 ( $T=13 \text{ K}$ )  
実線は計算値を示す

となった伝導電子の衝突電離過程では生成されたキ

ャリア密度はこのような顕著な入射光波長依存性を示さないと考えられるためである。

前節で述べた正孔による入射光吸収と2光子励起によるキャリアの生成を仮定すると、結晶の入射端面からの距離  $x$  の位置で生成されるキャリア密度  $\Delta n$  と入射光強度  $I$  の変化は次のレード方程式によって記述できる。

$$\frac{d(\Delta n)}{dt} = \frac{K_2 I^2}{2\hbar\omega_0} - \gamma \Delta n - \beta \Delta n^2 \quad (4.3.1)$$

$$-\frac{dI}{dx} = K_1 I + K_2 I^2 + \Delta n (\sigma_n + \sigma_p) I \quad (4.3.2)$$

ここで、 $\hbar\omega_0$  は入射光光子エネルギー、 $K_1$  と  $K_2$  はそれぞれ1光子と2光子吸収の吸収係数、 $\gamma$  と  $\beta$  はそれぞれ1分子と2分子再結合係数である。しかし、 $\Delta n$  と  $I$  は時間  $t$  及び入射端面からの距離  $x$  の関数であるため連立微分方程式を解いて  $\Delta n$  と  $I$  の解を直接求める事は困難である。そこで次の仮定を行ない近似解を求める。

図-4.3.1 に示した入射光と光電導度信号の波形から入射光パルス幅  $\Delta t$  の間のキャリアの再結合は無視できると仮定し入射光パルスを幅  $\Delta t$  の矩形波で近似する。このとき、生成キャリア密度  $\Delta n$  は (4.3.1) 式から

$$\Delta n \simeq \frac{K_2 \Gamma^2}{2 \hbar \omega_0} \Delta t$$

と表わすことができる。

また、(4.3.2)式で正孔の吸収断面積 $\sigma_p$ は電子の断面積 $\sigma_n$ よりも3桁程度大きい事から $\sigma_n$ を無視する。このようにして端面からの距離 $x$ でのキャリア密度と入射光の強度として

$$\Delta n(x) = \frac{K_2 \Delta t}{2 \hbar \omega_0} \left[ \frac{K_2 \sigma_p \Delta t}{\hbar \omega_0} x + \Gamma_0^2 \right]^{-1} \quad (4.3.3)$$

$$I(x) = \left[ \frac{K_2 \sigma_p \Delta t}{\hbar \omega_0} x + \Gamma_0^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (4.3.4)$$

を得る。但し、 $I_0$ は入射端面での光強度である。これらの式から入射光によって生成されるキャリア密度は入射光が正孔によって生成されるため端面から離れるにつれて小さくなる事及び入射光強度は $x$ に対して指数関数的な減衰を示さないことがわかる。

(4.3.3)式で得られるキャリア密度を結晶長 $\ell$ で平均する事により光電導度の測定から得たキャリア密度 $\Delta N$ と対応づけることができる。

この時、 $\Delta N$ は

$$\begin{aligned} \Delta N &= \frac{1}{\ell} \int_0^{\ell} \Delta n(x) dx \\ &= \frac{1}{2 \ell \sigma_p} \ln \left[ \frac{(K_2 \sigma_p \Delta t \ell / \hbar \omega_0) + \Gamma_0^2}{\Gamma_0^2} \right] \end{aligned} \quad (4.3.5)$$

また、透過光の強度は(4.3.5)から

$$I(\ell) = \left[ \frac{K_2 \sigma_p \Delta t}{2 \hbar \omega_0} \cdot \ell + \Gamma_0^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (4.3.6)$$

で表わされる。(4.3.5)式で表わされるキャリア密度 $\Delta N$ は入射光強度の増加に対して明白な飽和特性を示さないが、光電導度の測定から得た結果に対して $K_2$ と $\sigma_p$ の値をパラメーターとして適合させる事ができる。

10.67  $\mu\text{m}$ 光に対して $K_2$ の値を $1.1 \times 10^{-3} \text{ cm} \cdot \text{MW}^{-1}$ 、10.59  $\mu\text{m}$ 光に対して $2.3 \times 10^{-2} \text{ cm MW}^{-1}$ とし $\sigma_p$ を $4.2 \times 10^{-15} \text{ cm}^{-2}$ とした時、図-4.3.2に実線で示した最良の一致が得られた。但し、結晶長 $\ell$ は8mm、入射光パルス幅を100ns、光子エネルギー $\hbar\omega_0$ を、117meV(10.59  $\mu\text{m}$ )

116meV (10.67 μm) とした。

この計算から得られる正孔の吸収断面積  $\sigma_p$  は前節で述べた吸収係数から得た値 ( $3.4 \times 10^{-14} \text{cm}^2$ ) より 1 桁程度小さい値となる。この相違は計算上生成キャリア緩和を無視した事により入射端面付近の正孔数を実際より多く見積りすぎようになり生じたものと考えられる。しかし、この値は、Krunick が 77 K の正孔の断面積として報告した値  $5 \times 10^{-15} \text{cm}^2$ <sup>(2)</sup> と同程度であり、ここで行った近似の程度から考えて得られた値として妥当なものと考えられる。<sup>(12)</sup>

一方、 $K_2$  の値については、これまで報告されている 300 K から 77 K までの温度領域での測定値  $15 \text{cm} \cdot \text{MW}^{-1} \sim 0.02 \text{cm} \cdot \text{MW}^{-1}$  より、はるかに小さい。<sup>(9)(10)(11)</sup> これは 300 K ではバンドギャップ幅は 0.17 eV であるが、この測定を行なった温度 10 K では 0.23 eV となるため 2 光子励起の発生する確率が小さくなるためと考えられる。

この計算から得た  $K_2$  及び  $\sigma_p$  を用いて (4.3.6) 式から透過光強度の入射光強度による変化を計算できる。しかし、その結果では透過光強度は入射光強度  $2 \text{MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  以上でゆるやかな飽和を示し、図 - 4.2.5 でみられるような高入射光強度領域での透過強度の減少は説明できない。また、この結果は  $\sigma_p$  として吸収係数の測定から得た値を用いた場合も同様である。

このような実験結果と簡単なモデルに基づく計算結果の相違の原因としては次のような事柄が考えられる。

- i) 入射光強度  $2 \text{MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  以上では 2 光子励起以外の過程、例えば、衝突電離によるキャリアの生成が発生するようになり入射光の吸収損失が急激に増大する。
- ii) 2 光子励起によって生成された正孔の光吸収により結晶の温度が過渡的に上昇し、禁制帯幅の減少が生じる。この結果、2 光子励起によるキャリアの生成が高入射光領域では急激に増大する。
- i) または ii) の過程が発生する場合でも入射光によって数多くのキャリアが生成され、それらキャリアによって入射光の吸収損失が生じるのは結晶の表面付近の微小領域のみで、結晶の内部では光強度は弱い励起強度の時と比較してあまり変化せず、従って、生成されるキャリア密度もほとんど増加しないと考えられる。そのため、図 - 4.3.1 に示したように光電導度から得たキャリア密度はほとんど増加しなくなった可能性がある。i) または ii) のいずれの過程が発生しているかをここで行った実験の範囲から判別する事はできない。しかし、ii) に述べた機構は入射光としてピコ秒パルスを用い、1 パルス当りのエネルギーを減少させ、パルス入射中に生じる結晶温度の上昇を無視できる状態で透過光を測定する事により判定可能と考えられる。透過光強度は図 - 4.2.5 に示したように  $1.4 \text{MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  程度の入射光強度から減少し始める。この事は減少を引きおこす過程が明確なしきい値をもって発生する事を示している。i) で述べた過程はしきい値をもっと考えられるため、ii) で述べた過程よりは i) の過程が発生する可能性が強いと考えられる。

#### § 4.4 結 言

n - I n S b S F R レーザー出力及び励起  $\text{CO}_2$  レーザー光の共振器透過光の時間的な変化を測定

し、以下のことが明らかになった。

- 1) 励起光強度  $1.4 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  以上では、透過光波形及び S F R レーザー出力波形に非線形な減少が生じる。
- 2) 正孔の光吸収断面積は温度  $13 \text{ K}$ 、波長  $1.067 \mu\text{m}$  において  $3.4 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$  (伝導電子の  $1400$  倍程度) の吸収断面積をもつ。
- 3) 励起  $\text{CO}_2$  レーザー光により n-InSb 共振器中に過剰の正孔が生成されることを光電導度の測定から確認した。また、光電導度の励起光強度依存性は 2 光子励起によって生成された正孔による励起光吸収を考慮することにより説明できる。
- 4) 励起光の共振器透過光及び S F R 出力波形で見られる非線形な減少は 2 光子励起により生成された正孔が、励起光を吸収するために生じると考えられる。しかし、高励起領域では、2 光子励起のみならず、しきい値をもつ他の励起過程によっても正孔が生成されていると思われる。

## 参 考 文 献

- 1) J.F.Figueira, C.D.Cantrell, J.P.Rink and P.R.Forman;  
Appl. Phys. Letters 28 (1976) 398, 442.
- 2) S.W.Krunick and J.M.Powell; Phys. Rev. 116 (1959) 597.
- 3) J.Dempsey, J.Smith, G.D.Holah and A.Miller; Opt.  
Commun. 26 (1978) 265.
- 4) A.Miller, A.Johnston, J.Dempsey, J.Smith, C.R.Pidgeon  
and G.D.Holah; J. Phys. C12 (1979) 4839.
- 5) T.W.Nee, C.D.Cantrell, J.F.Scott and M.O.Scully;  
Phys. Rev. E17 (1978) 3936.
- 6) S.A.Jamison and A.V.Nurmikko; Appl. Phys. Letters 32  
(1978) 182.
- 7) S.A.Jamison and A.V.Nurmikko; Phys. Rev. E19 (1979)  
5185.
- 8) H.J.Fossum and B.Ancker-Johnson; Phys. Rev. E8 (1973)  
2850.
- 9) J.M.Doviak, A.F.Gibson, W.F.Kimmitt and A.C.Walker;  
J. Phys. C6 (1973) 593.
- 10) C.C.Lee and H.Y.Fan; Phys. Rev. B9 (1974) 3502.
- 11) H.J.Fossum and D.B.Chang; Phys. Rev. E8 (1973) 2842.
- 12) K.Yasuda and J.Shirafuji; Jpn. J. Appl. Phys. (投稿中)

## 第 5 章 SF Rレーザーのガス分析への応用

### § 5.1 緒 言

波長  $2\ \mu\text{m}$  から  $20\ \mu\text{m}$  の赤外領域には多くのガス分子に固有の振動・回転準位に対応した赤外吸収帯が存在することはよく知られており、<sup>(1)</sup> この領域の高分解スペクトロスコピーは分子構造の解明やガス分析手段としてきわめて重要である。周波数可変レーザーの開発以前にはこの波長領域の単色光源として熱輻射を分光器によって単色化する方法が広く用いられてきた。しかし、この方法で得られる単色光は輝度が低く、また、スペクトル幅が広いため、分解能を高めるため高性能の分光器や高感度の光検出器を必要としたため、容易に高分解スペクトロスコピーを行うことはできなかった。

このような状況にあって、1966年にゼーマン同調法によるHe-Neレーザーを用いてガス分子の振動スペクトルを検出する実験が行われ、<sup>(2)</sup> 周波数可変レーザーが高分解スペクトロスコピー用の光源としてすぐれた応用性をもつことが示された。しかしながらこのレーザーは周波数可変範囲が  $0.2\ \text{cm}^{-1}$  程度と小さいため適用できる範囲が狭いという欠点があった。この欠点を克服した比較的広い周波数可変範囲をもつレーザーによる分光実験が1970年になってから本格化し、ダイオードレーザー<sup>(3)</sup>及びSF Rレーザーによる分光実験<sup>(4)</sup>が相次いで実現され、現在では光混合<sup>(5)</sup>あるいは高圧ガスレーザー<sup>(6)</sup>等の周波数可変光源によって実験が行われるようになった。これらの周波数可変レーザーは指向性がよくコヒーレントで高輝度であり、非常に発振線幅が狭いという特徴があるため、これまででは不可能であった長距離光路や変調技術を用いる分光も可能となり、従来からの分光技術そのものにも変革を与え始めている。また、Saturation spectroscopy<sup>(7)</sup>のようにレーザー出現以前には不可能であった測定も可能となってきた。

この章では2章で述べたCO<sub>2</sub>レーザー励起n-InSb SF RレーザーによるNH<sub>3</sub>ガス分子の吸収スペクトル測定について述べ、このレーザーのもつ発振線幅等の実用上の諸問題を検討する。

### § 5.2 実験方法

NH<sub>3</sub>ガス吸収スペクトル測定に用いた装置のブロック図を図-5.2.1に示す。InSb共振器として用いた結晶は長さ5mm及び8mmで伝導電子密度  $2.3 \times 10^{16}\ \text{cm}^{-3}$  (77K)である。励起光源及び超電導マグネットはすでに2章で述べた装置と同じであるため説明を省略する。分光器によって励起光を除いた後のSF Rレーザー光はSiビームスプリッターによ

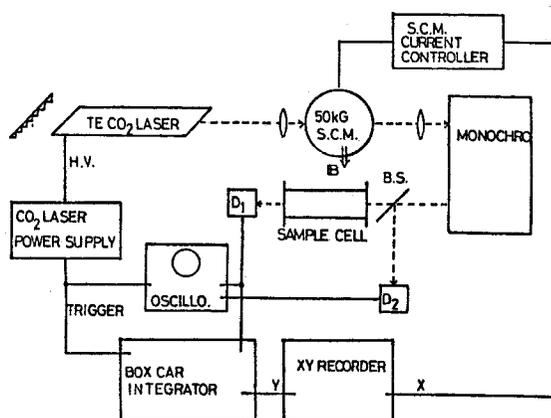


図 - 5.2.1 ガス吸収スペクトル測定装置

り参照光と透過測定光に分離し、Hg:Ge 光電導セルによってそれぞれの光を検出した。また、信号検出器D<sub>1</sub>からの信号はボックスカー積分器によって平均した後、XYコーダーのY軸に入れ、超電導マグネットの磁場掃引信号をX軸として、磁場を連続的に変化しながら記録を行なった。

吸収スペクトル測定用試料として用いたNH<sub>3</sub>ガスは市販のボンベ封入のものを用い、ガス圧力の較正はHg マノメーター及びオイルマノメーターによって行なった。

### § 5.3 実験結果と検討

赤外域の吸収スペクトルが詳細に調べられているガスの一つにNH<sub>3</sub>ガスがある。SFRレーザーのガス分析への応用として、種々の回転振動準位の吸収スペクトルを測定した結果を図-5.3.1~3に示す。図中に示した吸収線の同定は分解能0.1 cm<sup>-1</sup>回格子分光器によって測定された吸収のピーク位置を示している<sup>(8)</sup>。

図-5.3.1に示したsP(5.2)線とsP(5.0)線は約0.2 cm<sup>-1</sup>離れていることが知られているが、実験結果では各々のピークを分離して検出できないことがわかる。また、aP-4線の吸収スペクトルをガス圧力20 torrから200 torrまで変化して測定した結果を図-5.3.4に示す。但し、この図ではガスセル中を真空(10<sup>-3</sup> mmHg)とした時の透過光強度を基準として%値を算出した。この実験で

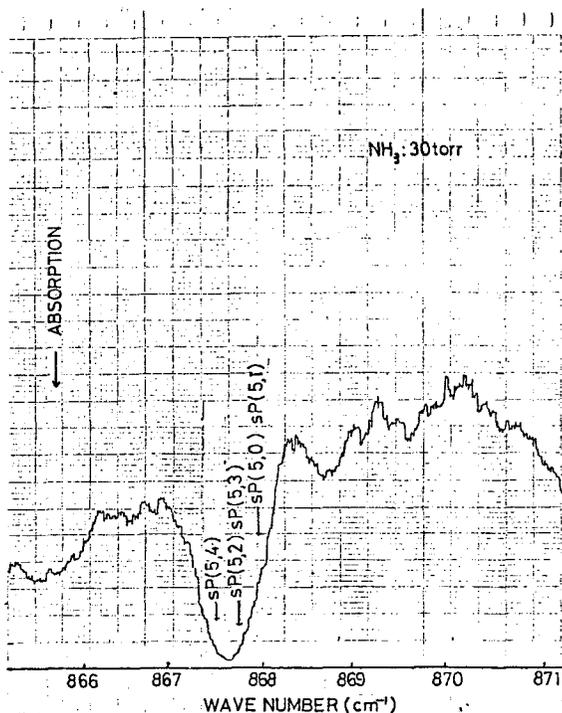


図-5.3.1 NH<sub>3</sub>ガス sP-5線吸収スペクトル

用いたガス圧力の範囲では吸収線幅はガス分子間の衝突による広がり支配的であり圧力に比例して線幅も増加することが知られている。これまで報告されているNH<sub>3</sub>ガスについての吸収線幅の測定結果<sup>(9)</sup>とAndersonの理論式<sup>(10)</sup>からaP-(4,3)線は53MHz/torrの圧力広がり率をもつことが計算できる。ガス圧力を70 torrから10 torrまで変化させてこの線幅の変化を測定した結果を図-3.5.3に示す。図中の実線は理論値を表わしている。この図から、ガス圧力を減少しても測定された吸収線幅は約0.3 cm<sup>-1</sup>で一定となり、圧力減少に伴う線幅の減少は観測できなかった。このような結果の生じた原因は、SFRレーザーの発振線幅が0.3 cm<sup>-1</sup>程度の広がりをもつことによると考えられる。

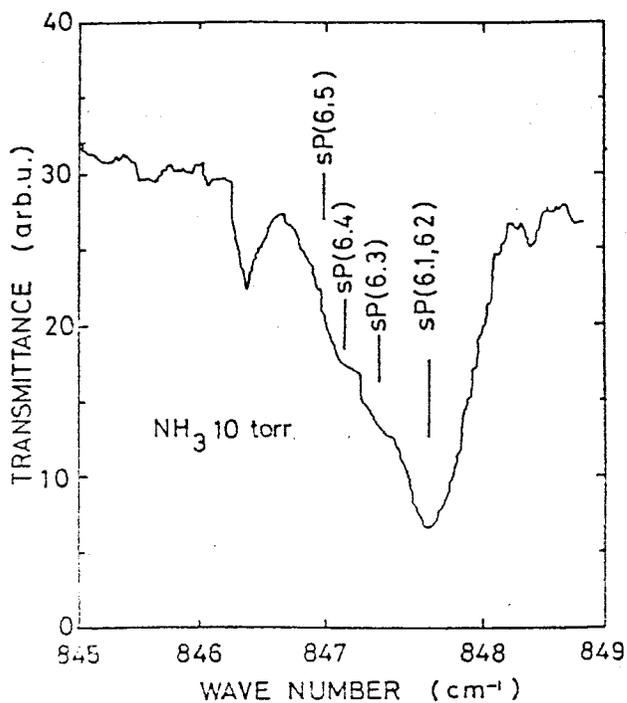


図 - 5.3.2 NH<sub>3</sub> ガス sP-6 線吸収スペクトル

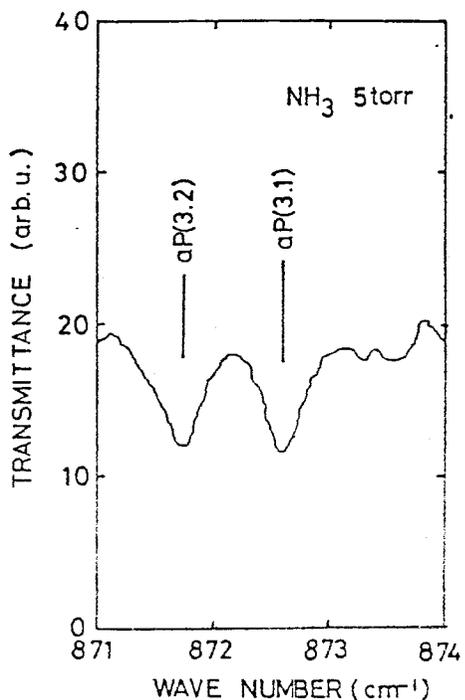


図 - 5.3.3 NH<sub>3</sub> ガス aP-3 線吸収スペクトル

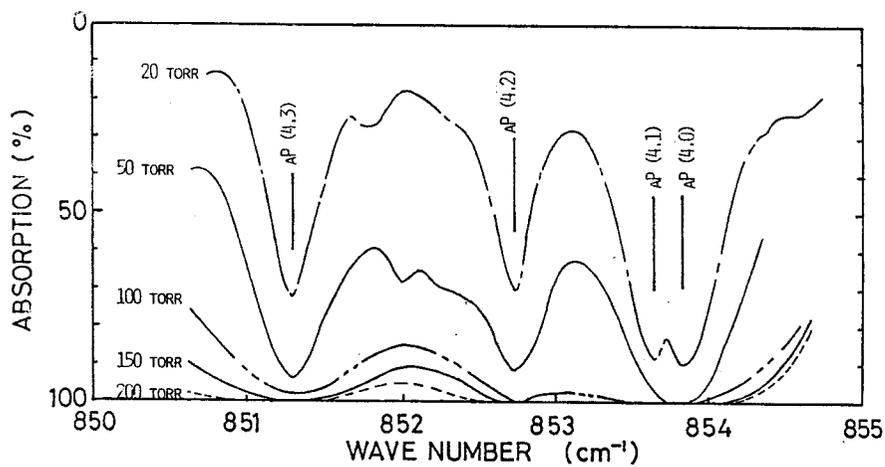


図 - 5.3.4 aP-4 線吸収スペクトルのガス圧力による変化

SFRレーザー出力光の線幅が広がる原因としては

- 1) 複数の縦モードが同時に発振する
- 2) 波長 sweep 中に縦モード間で発振周波数のとびが生じる等の原因が考えられる。

2)の現象が生じるためには共振器縦モード間隔  $\Delta \nu_c$  がラマン利得幅  $\Gamma_s$  よりも広くなくてはならない。SFR利得幅  $\Gamma_s$  は自発ラマン線幅として測定され、 $10^{16} \text{cm}^{-3}$  程度の伝導電子密度をもつ共振器では約  $2 \text{cm}^{-1}$  程度と報告されている。

(1) 本実験で、平行平面に研磨したSiウエハーの示す干渉効果を利用して測定したストークス光のスペクトルでは

共振器縦モード間隔  $0.13 \text{cm}^{-1}$  (共振器長  $8 \text{mm}$ ) に対応した二つのピークが観測される。(図-5.3.6) 一方共振器モード間隔は約  $0.25 \text{cm}^{-1}$  であるため発振線幅の広がりの原因としては2)よりはむしろ1)の原因が考えられる。

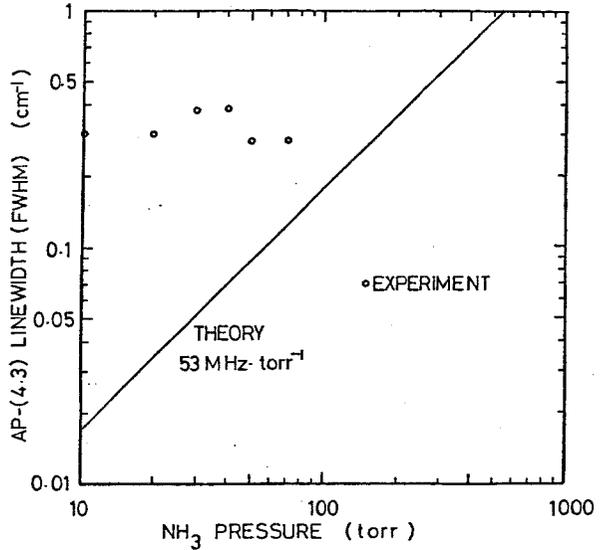


図-5.3.5 NH<sub>3</sub>ガス aP-4 線吸収スペクトル線幅のガス圧力依存性  
実線は理論値を示す

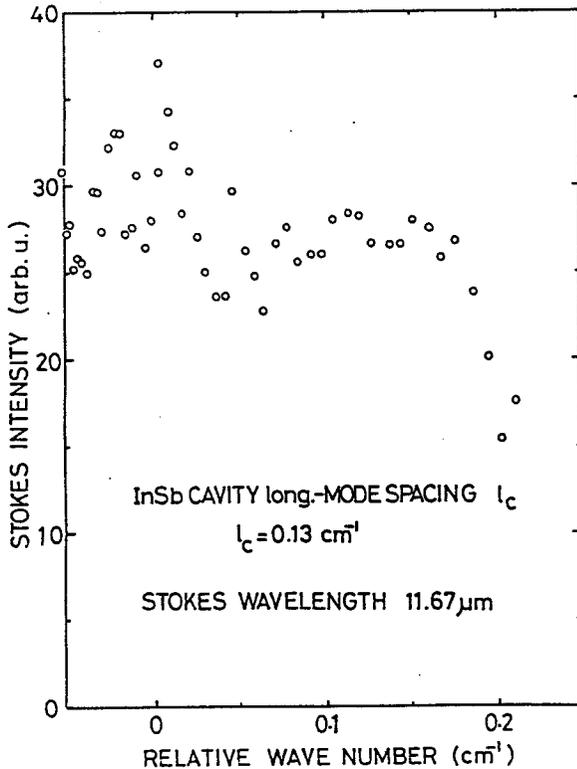


図-5.3.6  
ストークス光出力の  
スペクトル分布

以上述べたことから SFR レーザーの発振線幅を狭くするためには、ラマン利得幅  $\Gamma_s$  を減少させることが必要になるが、ラマン利得幅はこの実験で使用した磁場と光軸の配置では伝導帯の non-parabolicity によって制限され、共振器の伝導電子密度の減少と共に狭くなることが知られている。<sup>(12)</sup> 従って、ラマン利得幅を減少させるためには伝導電子密度を減少させればよいことになるが、ラマン利得は電子密度に比例するため、利得は電子密度の減少に伴って減少するようになる。実際に、伝導電子密度  $6 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$  の共振器では  $\Gamma_s$  は  $0.16 \text{cm}^{-1}$  程度になることが報告されているが、共振器長 5 mm 程度では利得が小さいため、波長  $10 \mu\text{m}$  領域でレーザー発振を実現することは困難と考えられる。<sup>(13)</sup> 従って、低電子密度の共振器を用いた時には共振器長を少なくとも 10 mm 以上と長くする必要があると考えられる。

一方、共鳴効果による利得の増大を活用できる場合には伝導電子密度を減少させることが可能である。実際、CO レーザー励起の n-InSb SFR レーザーでは  $10^{15} \text{cm}^{-3}$  の電子密度をもつ共振器で  $1 \text{kHz}$  以下の発振器線幅が実現されている。<sup>(14)</sup>

以上述べたように、この実験で用いたような伝導電子密度  $10^{16} \text{cm}^{-3}$  程度の共振器では発振線幅が広がるため、ガス分子等の超高分解能分光用光源としては適当でないと考えられる。しかし、このレーザーでは  $1 \text{kW}$  にも達する大きなピーク出力が得られるので大出力を必要とする分野への応用が期待できる。このような分野としては、レーザー同位体分離がある。その一例として、 $\text{UF}_6$  は波長  $16 \mu\text{m}$  領域に赤外光吸収帯をもつ事が知られているが、この波長領域は光励起  $\text{NH}_3$  ガスレーザーによって SFR レーザーを励起することによりカバーし得ることが示されている。<sup>(15)</sup> また、SFR レーザーの高出力と同調性とを利用して  $\text{NH}_3$  ガスの特定の準位を励起し、遠赤外光を発生する事も可能と考えられる。

#### § 5.4 結 言

- 1)  $\text{CO}_2$  レーザー励起の n-InSb SFR レーザーにより 周波数  $854 \text{cm}^{-1}$  から  $874 \text{cm}^{-1}$  の間に存在する  $\text{NH}_3$  ガスの吸収スペクトルを測定した。
- 2) SFR レーザーの発振線幅は約  $0.3 \text{cm}^{-1}$  である。この発振線幅の広がりには SFR 利得幅が広いこと、2 つ以上の共振器縦モードが同時に発振するため生じると考えられる。このレーザーの単一縦モード発振は共振器の伝導電子密度を減少することにより実現できると考えられる。しかし、ラマン利得は伝導電子密度の減少と共に小さくなるため、同時にレーザーの共振器長を長くすることが必要と考えられる。
- 3) 伝導電子密度  $10^{16} \text{cm}^{-3}$  程度の InSb で構成したパルス発振 SFR レーザーではピーク出力は  $1 \text{kW}$  にも達する。従って、このレーザーは狭い発振線幅を必要とする分野よりはむしろ大出力を必要とする分野へ応用することが適当と考えられる。

## 参 考 文 献

- 1) G.Herzberg; 'Molecular Spectra and Molecular Structure' vol. 1 and 2 ( D.Van Nostrand Co., New York, 1950 ).
- 2) H.J.Gerriten; ' Physics of Quantum Electronics ' (ed. P.L.Kelly et al., McGraw-Hill, New York, 1966 ) p. 581.
- 3) E.D.Hinkley; Appl. Phys. Letters 16 (1970) 351.
- 4) C.K.N.Patel, E.D.Shaw and R.J.Kerl; Phys. Rev. Letters 25 (1970) 8.
- 5) C.F.Dewey Jr. and L.O.Hocker; Appl. Phys. Letters 25 (1971) 58.
- 6) I.M.Beterov, V.P.Chebotayev and A.S.Provorov; Opt. Commun. 7 (1973) 410.
- 7) C.K.N.Patel; Appl. Phys. Letters 25 (1974) 112.
- 8) J.S.Garing, H.H.Nielsen and K.Narahari Rao; J. Mol. Spect. 3 (1959) 496.
- 9) E.D.Hinkley, K.W.Nill and F.A.Blum; 'Laser Spectroscopy of Atom and Molecules' (ed. H.Walther, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1976) p. 164.
- 10) C.H.Townes and A.L.Schawlow; 'Microwave Spectroscopy' ( Dover Publications Inc., New York, 1975) p. 355.
- 11) C.K.N.Patel and E.D.Shaw; Phys. Rev. 3 (1971) 1279.
- 12) S.R.J.Brueck and A.Mooradian; Opt. Commun. 8 (1973) 263.
- 13) B.Walker, G.W.Chantry, D.G.Moss and C.C.Bradley; J. Phys. D9 (1976) 1501.
- 14) C.K.N.Patel; Phys. Rev. Letters 28 (1972) 649.

- 15) C.K.N.Patel, T.Y.Chang and V.T.Nguyen; Appl. Phys.  
Letters 28 (1976) 603.

## 第6章 結 論

SFRレーザーの開発を目的とし、TECO<sub>2</sub>レーザーを励起光源とするn-InSb及びn-Pb<sub>0.88</sub>Sn<sub>0.12</sub>Te SFRレーザーの発振特性とn-InSb SFRレーザー出力の時間変化の測定を行ない、その結果について考察を行なった。また、n-InSb SFRレーザーの応用を調べるためNH<sub>3</sub>ガスの吸収スペクトルを測定し、このレーザーの性能と問題点を明らかにした。以下で第2章から第5章までの結果を総括し、本論文の結論とする。

- 1) n-InSb SFRレーザーの発振開始励起しきい値強度は約 $0.5\text{MW}\cdot\text{cm}^{-2}$ であり、ピーク出力は約 $1.2\text{kW}$ である。また、単位磁場当りの周波数同調率は約 $2\text{cm}^{-1}\cdot\text{kG}^{-1}$ である。
- 2) n-InSb SFRレーザーのストークス光出力は磁場約 $30\text{kG}$ から観測され始め、磁場の増加と共にいくつかのピークを伴いながら増大し、 $45\text{kG}$ で最大となった後減少する。ラマン遷移の始状態と終状態間の電子分布差の磁場依存性と高次サイクロトロン共鳴吸収による吸収損失の磁場依存性を考慮することによって、実験結果を説明した。
- 3) n-Pb<sub>0.88</sub>Sn<sub>0.12</sub>Te SFRレーザーを初めて実現し、その発振特性を調べた。ストークス光出力の発振開始励起しきい値は、約 $0.6\text{MW}\cdot\text{cm}^{-2}$ であり、ピーク出力は約 $6.6\text{mW}$ である。また、単位磁場当りの同調率は約 $2.65\text{cm}^{-1}\text{kG}$ であり、n-InSbの約 $1.3$ 倍である。
- 4) n-Pb<sub>0.88</sub>Sn<sub>0.12</sub>Te SFRレーザー出力の励起光周波数依存性を調べ、共鳴効果による利得の増大が存在する事を確めた。また、ストークス光出力の励起光波長依存性は励起光吸収係数と共鳴係数の変化を考慮することにより定性的に説明できる。
- 5) n-Pb<sub>0.88</sub>Sn<sub>0.12</sub>Te SFRレーザーではストークス光出力は磁場 $5\text{kG}$ から観測され、 $16\text{kG}$ でピークとなる。この出力の増大はラマン遷移の始状態と終状態間の電子分布差の増加によって生じると考えられる。また、磁場 $16\text{kG}$ 以上での出力の減少は共鳴係数の減少による利得の低下及び高次のサイクロトロン共鳴吸収の発生による光吸収損失の増加によると思われる。
- 6) n-InSb SFRレーザー出力及び励起光の共振器透過光にみられる過渡的な吸収を励起波長及び磁場の関数として調べ、正孔の吸収断面積が電子に比べ非常に大きい事実と、光電導度の測定結果を考え合わせるにより、この吸収は励起光が共振器中に生成した正孔によって自らが吸収されて生じることがわかった。
- 7) p-InSbを用いて温度 $10\text{K}$ で正孔が波長 $10\mu\text{m}$ 領域の光に対して持つ吸収断面積を初めて測定し、吸収断面積が $3.4\times 10^{-14}\text{cm}^2$ で、伝導電子の $1400$ 倍程度であることを明らかにした。

- 8)  $\text{CO}_2$ レーザー光入射時に  $n\text{-InSb}$  が示す光電導度を温度  $10\text{ K}$  で測定し、2光子励起過程によってキャリアの励起が生じることを指摘した。
- 9)  $n\text{-InSb SFR}$ レーザーを用いて  $\text{NH}_3$  ガスの吸収スペクトルを測定し、 $\text{NH}_3$  ガス吸収スペクトル線幅のガス圧力依存性の測定から、 $\text{SFR}$ レーザー線幅は  $0.3\text{ cm}^{-1}$  程度に広がっていることがわかった。この線幅の広がりには2本程度の縦モードが同時に発振することにより生じている。
- 10)  $\text{TECO}_2$ レーザー励起  $n\text{-InSb SFR}$ レーザーは狭い発振線幅を必要とする高分解能分光よりはむしろ大出力を必要とする分野へ応用することが適当と考えられる。

## 謝 辞

本論文を結ぶにあたり、本研究過程で常に暖かい御指導と御鞭撻を賜りました電気工学教室犬石嘉雄教授に深く感謝の意を表します。

本研究遂行中、常に実験、論文作成面で数々の貴重な御教示と御討論をいただいた電気工学教室白藤純嗣助教授に心より感謝いたします。

筆者が大阪大学大学院工学研究科在学中、種々の御指導を賜りました電気工学教室木下仁志教授、西村正太郎名誉教授、山中千代衛教授、故川辺和夫教授、藤井克彦教授、鈴木胖教授、横山昌弘教授、中井貞夫教授、応用物理学教室三石明善教授に深く感謝致します。

本研究で用いた光学実験装置及び低温実験装置について種々の貴重な御助言と御検討を賜りました大阪大学低温センター吹田分室山本純也助手に心から感謝致します。超電導マグネットの使用にあたっては、献身的な御協力をいただいた低温センターの職員の皆様に深く感謝致します。

本研究を行うにあたり、多大の御協力をいただいた電気工学教室吉野勝美助教授、井上正崇助手、田口常正助手、金藤敬一助手をはじめ犬石研究室の諸氏に心から感謝致します。

本論文を書上げる途上で、暖かい激励をいただいた株式会社富士通研究所半導体研究部門三杉隆彦部門長、光半導体研究部太宰浩一部長、遠山嘉一部長代理、桜井照夫第二研究室長、金田隆夫主任研究員をはじめ光半導体研究部第二研究室の皆様感謝致します。

本論文の校正と手続書類の清書を引き受けていただいた吉井千恵嬢に感謝致します。

最後に、本研究の完成には両親と兄弟の援助があったことを記して感謝する。

## 研 究 業 績

### 学会誌掲載論文

- 1) Variation of Stokes Output with Magnetic Field in InSb Spin-Flip Raman Laser  
Japanese Journal of Applied Physics  
16 (1977) 1075.
- 2) InSb スピNFLリップラマンレーザーの発振特性  
応 用 物 理  
46 (1977) 943.
- 3) Stimulated spin-flip Raman scattering in a  $\text{Pb}_{0.88}\text{Sn}_{0.12}\text{Te}$  single crystal  
Applied Physics Letters  
34 (1979) 661.
- 4) Characteristics of n- $\text{Pb}_{0.88}\text{Sn}_{0.12}\text{Te}$  Spin Flip Raman Laser Pumped by a TE  $\text{CO}_2$  Laser  
Japanese Journal of Applied Physics  
19 (1980) 1135.
- 5) Nonlinear Optical Transmission of  $\text{CO}_2$  Laser Light in InSb at Low Temperature  
Japanese Journal of Applied Physics  
( 投稿中 )

### その他の発表論文

- 1) Characteristics of InSb Spin-Flip Raman Laser Pumped by a TE  $\text{CO}_2$  Laser  
Technology Reports of Osaka University  
26 (1976) 437.

## 学 会 講 演

---

- 1) スピンフリップラマンレーザーによる高分解スペクトロスコピー(I)  
応用物理学会                      早稲田大学      昭和51年3月
  
- 2) スピンフリップラマンレーザーによる高分解スペクトロスコピー(II)  
応用物理学会                      東北大学      昭和51年10月
  
- 3) InSb スピンフリップラマンレーザーの特性とガス分析への応用  
電子通信学会                      大阪大学      昭和51年11月  
光電波部門全国大会
  
- 4) スピンフリップラマンレーザーによる高分解スペクトロスコピー(III)  
応用物理学会                      慶応大学      昭和52年3月
  
- 5) スピンフリップラマンレーザーによる高分解スペクトロスコピー(IV)  
応用物理学                      岡山大学      昭和52年10月
  
- 6) スピンフリップラマンレーザーの発振特性  
電気関係5学会関西支部      大阪市大      昭和52年11月
  
- 7) スピンフリップラマンレーザーによる高分解スペクトロスコピー(V)  
応用物理学会                      武蔵工大      昭和53年3月
  
- 8) n-InSbにおけるCO<sub>2</sub>レーザー光吸収の時間的变化  
応用物理学会                      学習院大      昭和54年3月
  
- 9) n-Pb<sub>0.88</sub>Sn<sub>0.12</sub>Te スピンフリップラマンレーザーの発振特性  
応用物理学会                      学習院大      昭和54年3月
  
- 10) n-InSbにおけるCO<sub>2</sub>レーザー光吸収の時間的变化(II)  
応用物理学会                      北海道大      昭和54年10月