平成 21 年 2 月 3 日

量子井戸内の光学遷移に関する選択則

周波数$\omega$で偏光ベクトル$\mathbf{e}$を持つ光が入射したときに、電子の遷移確率$W$は、Fermi 黄金則により、次の様になる。

$$W=\frac{2\pi}{h}\left|\langle f|H'|i\rangle\right|^2\cdot\Delta\left(E_f-E_i-\hbar\omega\right)\cdot f(E_i)\left(1-f(E_f)\right)\quad(1)$$

ここで、$|i\rangle$と$|f\rangle$はそれぞれ電子遷移の始状態と終状態、$f(E)$は Fermi-Dirac 分布関数、$H'$は電気二重極(electric dipole) $\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}$のように変化する関数を持つ相互作用 Hamiltonian である。ここで、吸収された光（電磁波）強度が$I(x)=I(0)\exp(-\alpha(\hbar\omega)x)$の様に減衰する場合、吸収係数$\alpha(\hbar\omega)$は次のようになる。

$$\alpha(\hbar\omega)=\frac{A}{\omega}\sum_{i,f}\left|\langle f|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|i\rangle\right|^2\cdot\Delta\left(E_f-E_i-\hbar\omega\right)\cdot\left(f(E_i)-f(E_f)\right)\quad(2)$$

$A$は定数で、始状態$|i\rangle$と終状態$|f\rangle$がわかれば吸収係数が計算できることになる。光強度が弱いときには、光吸収は価電子帯（占有された状態）から伝導帯（空の状態）への遷移が大きく寄与することになる。また、和についてはサブバンド間遷移や励起子遷移を含んでいる。なお、(2)式を導く際、分布関数に対して(1)式が$\left(f(E_i)-f(E_f)\right)$に比例する様という計算については補足(1)に示している。

さて、量子井戸内では価電子帯、伝導帯それぞれの波動関数は、

$$\langle\mathbf{r}|i\rangle=\exp\left(i\mathbf{k}_{//}\cdot\mathbf{r}_{//}\right)\cdot u_v(\mathbf{r})\cdot F_h(z)\quad(3)$$

$$\langle\mathbf{r}|f\rangle=\exp\left(i\mathbf{k}_{//}\cdot\mathbf{r}_{//}\right)\cdot u_c(\mathbf{r})\cdot F_e(z)\quad(4)$$

の様に書ける。$z$軸方向に形成された井戸に平行な$x,y$成分方向では変動の少ない平面波が原子の周期に依存する関数で変調された Bloch 関数になっている。ここで、$u_v(\mathbf{r})$、$u_c(\mathbf{r})$はそれぞれ価電子帯、伝導帯の原子軌道による格子の周期を持つ関数であり、$F_h(z)$、$F_e(z)$は正孔、電子の$z$方向の包絡関数である。これらを代入することによって光学遷移の行列要素は展開できて次のようになる。

$$\langle f|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|i\rangle=\left[\langle u_c|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|u_v\rangle\langle F_e|F_h\rangle+\langle u_c|u_v\rangle\langle F_e|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|F_v\rangle\right]\cdot\delta\left(\mathbf{k}_{//,e}-\mathbf{k}_{//,h}\right)\quad(5)$$

これが直接的に光学遷移に対する選択則を与える。面内の波数に対する運動量の保存は、バルク半導体の場合と同じように右辺最後のデルタ関数によって保証される。

価電子帯から伝導帯への遷移は原子軌道による関数$u_v(\mathbf{r})$、$u_c(\mathbf{r})$の直交性から右辺第二項はゼロとなり、行列要素は右辺第一項にある包絡関数によって決められる事になる。この事は、量子井戸中の電子遷移は同じ偶奇性を持ったサブバンド間で起こることを示している（hh1-e1、hh2-e2 など）。更に、電子遷移は、同じ偶奇性を持った異なる次数へのサブバンド間でも起こる（hh1-e3）など）が、関数の形が異なるため強度は弱い。

異なった荷電子帯からの遷移の相対強度については、バルクの光学行列要素$\langle u_c|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|u_v\rangle$から見積もる事が出来、それは偏光に強く依存する。もし偏光が量子井戸の面内にあれば（通常の測定配置になる）、重い正孔の遷移確率は、軽い正孔のそれよりも 3 倍大きくなる。詳しくは補足(2)に示す。

$$\left|\langle u_e|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|u_{hh}\rangle\right|^2=3\left|\langle u_e|\mathbf{p}\cdot\mathbf{e}|u_{lh}\rangle\right|^2$$

なお、これは偏光が$x,y$方向にあるときの結果であり、偏光が$z$軸に平行な場合には、重い正孔からのバンド遷移は禁制遷移になる（補足(2)）。

イントラバンド遷移（伝導体中のサブバンド間遷移など）については、更に違った選択則が適用される。この場合、同じバンド内遷移であるため式(5)右辺第一項はゼロとなる。しかし、第二項の原子関数に由来する行列要素は残るので、異なる偶奇性をもつサブバンド間遷移が許されるようになる（e1-e2、e1-e4 など）。但しここでは偏光の向きは面に垂直で $z$ 軸の方向にある必要がある。従って、電場が $x$ 方向または $y$ 方向に偏極し、井戸層に垂直に光を伝搬させる場合には、この吸収は起こらない。

補足(1)：　Fermi 分布関数の計算

$$f(E_i)\left(1-f(E_f)\right)-f(E_f)\left(1-f(E_i)\right)=\frac{1}{1+\exp\left(-(E_i-\xi)/kT\right)}\left\{1-\frac{1}{1+\exp\left(-(E_f-\xi)/kT\right)}\right\}-\cdots\cdots$$

$$=\frac{1}{1+\exp\left(-(E_i-\xi)/kT\right)}\frac{1}{1+\exp\left(-(E_f-\xi)/kT\right)}\left\{\exp\left(-(E_f-\xi)/kT\right)-\exp\left(-(E_i-\xi)/kT\right)\right\}=$$

$$=f(E_i)-f(E_f)$$

補足(2)：　重い正孔と軽い正孔の吸収遷移行列要素と強度

Brillion 領域の・点における、$s$ 的な伝導帯の波動関数を $|S\rangle$、荷電子帯頂上の $p_x$、$p_y$、$p_z$ の対称性を持つ状態をそれぞれ $|X\rangle$、$|Y\rangle$、$|Z\rangle$ と表すことにする。実際の荷電子帯の構造を記述するには､スピン軌道相互作用を考慮に入れる必要がある｡これは Kane モデルを用いて計算できる｡詳しくは教科書を参照するとして、重い正孔や軽い正孔の電子状態を決めることが出来る。

重い正孔は、$\left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle$ の状態で、$\left(|X\uparrow\rangle+i|Y\uparrow\rangle\right)/\sqrt{2}$ と書ける。ここで、矢印はスピンの向きを表している。今電場が $x$ 方向を向いているとすれば、$\mathbf{e}\cdot\mathbf{p}=p_x$ となり、重い正孔と伝導帯間の行列要素は、

$$\left\langle S\uparrow\left|p_x\right|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle=\sqrt{\frac{1}{2}}\left[\langle S\uparrow|p_x|X\uparrow\rangle+i\langle S\uparrow|p_x|Y\uparrow\rangle\right]$$

のように書ける。偏光が $y$ に偏っている場合も同じ事であるが、$z$ 方向を向いていると二つの項が消え、吸収が生じない。従って光の伝搬方向との関係は以下のようになる。

- 井戸層に垂直な $z$ 方向に伝搬する光（通常の場合測定が容易である）は、$x$ 方向もしくは $y$ 方向偏極しており、等しく吸収が起こる。
- 井戸層に沿った面内、例えば $x$ 方向に伝搬する光は、横方向電場モード（TE モード；transverse electric mode）で電場の向きが $y$ 方向の場合、吸収が起こる。
- しかし、井戸層に沿った面内、例えば $x$ 方向に伝搬する光でも、横方向磁場モード（TM モード；transverse magnetic mode）で電場の向きが $z$ 方向の場合、吸収は起こらない。

一方、軽い正孔は、$\left|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ の状態で、これは $\left(\frac{1}{\sqrt{6}}|X\downarrow\rangle+i\frac{1}{\sqrt{6}}|Y\downarrow\rangle-2\frac{1}{\sqrt{6}}|Z\uparrow\rangle\right)$ と書ける。この場合､全ての編曲モードで吸収が起こるが､電場が $z$ 方向を向いている場合は行列要素が二倍、即ち吸収強度が 4 倍になる。従って、軽い正孔では、TE モードよりも、TM モードの方が強くなる。

参考論文：


- J. Nelson, Electronic states and optical properties of quantum wells, in “Low dimensional semiconductor structures, eds. by K. Barnham and D. Vvedensky, Cambridge Univ. Press, 2001, p. 205
- J.H.　Davies,　樺沢宇紀訳､低次元半導体の物理（The Physics of low dimensional semiconductors, Cambridge Univ. Press, 1998）、Springer Japan (2004)、特に第 8 章(p.337)、第 10 章(p.410)
- 御子柴宣夫、半導体工学シリーズ 2、「半導体の物理」、培風館(1982)　特に第 3 章 $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ 摂動