

THz 量子カスケードレーザ

枝村忠孝*、藤田和上*、秋草直大**、山西正道*
浜松ホトニクス（株）中央研究所*、開発本部**

1. はじめに

量子カスケードレーザ (Quantum Cascade Laser; QCL) は半導体量子井戸中に形成される量子準位 (サブバンド) 間の光学遷移を利用した中赤外から THz 領域の広い波長範囲をカバーする半導体レーザである。サブバンド間で光増幅が可能であることは GaAs/AlGaAs ダブルヘテロ構造で室温連続発振が達成¹⁾された翌年の 1971 年に R.Kazarinov と R.Suris によって示された²⁾。しかしながら超高速で起こる非発光遷移過程との競合が不可避であり、レーザ発振に必要な反転分布を形成することが極めて困難であることから、長らく実現は不可能と考えられていた。ところが 1994 年、J.Faist、F.Capasso らは InGaAs/InAlAs を用いて波長 $4.2\mu\text{m}$ で初めてレーザ発振に成功し³⁾、これを量子カスケードレーザと名付けた。彼らは共鳴トンネル効果を用いて効率的に発光上位準位に電子を注入し、且つ極性縦光学 (LO) フォノン散乱を利用して超高速に発光下位準位から電子を引き抜くことにより実効的な反転分布を実現し、レーザ発振に成功した。当初は液体窒素温度の低温動作に限られていたが、2002 年に J.Faist らにより室温 CW 発振が達成された⁴⁾。一方、発振波長が LO フォノンのエネルギー以下となるような THz 領域の量子カスケードレーザは 2002 年に波長 4.4THz ($\sim 68\mu\text{m}$) で初めてレーザ発振に成功した⁵⁾。現在では $2.6\mu\text{m}$ ⁶⁾ から 1.2THz ⁷⁾ という中赤外から THz 領域まで非常に広い波長範囲でレーザ発振が達成されている。特に波長 $4\sim 10\mu\text{m}$ の中赤外領域では既に研究開発のフェーズを脱し、図 1 に示すように実用的汎用半導体レーザとして浜松ホトニクスを含む複数のメーカーから販売されており、各種分析装置への実装⁸⁾も行われている。

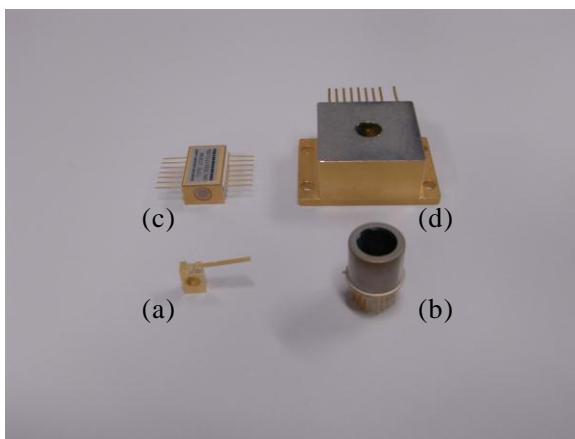


図 1 QCL 製品

- (a) Open heat-sink package
- (b) CAN-package
- (c) Butterfly package
- (d) High-Heat-Load (HHL) package for CW-QCL

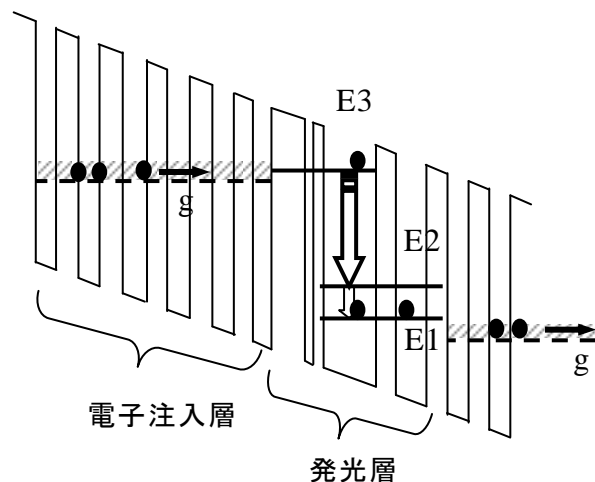


図 2 活性領域のバンド構造模式図

- 発光上位準位: E3
- 発光下位準位: E2

2. 量子カスケードレーザの特徴

図2に典型的な三つのサブバンドからなる量子カスケードレーザの活性領域の伝導帯におけるバンド図を示す。発振波長は E3-E2 で決定され、E2-E1 は電子を高速緩和させるために多くの場合、LO フォノンのエネルギーに共鳴(35~40meV)するように設計される。このような構造が多段に直列に結合(カスケード結合)して活性層が構成される。通常の pn 接合を利用したレーザダイオードでは電子正孔対の発光再結合によりキャリアは消滅するが、量子カスケードレーザではサブバンド間の電子の発光遷移であるため、理想的には注入電子1個当たりカスケード結合の段数分だけ光子を放出するという特徴がある。量子カスケードレーザではサブバンド間の光学遷移を利用することで以下に示すような利点が上げられる。

- 1) 発振波長は材料のバンドギャップに制限されない、同一材料系で中赤外から THz 領域まで設計可能。
- 2) GaAs や InGaAs といったこれまで実績のある材料で実現でき、既存の結晶成長技術およびプロセス、組立技術をそのまま利用できる。
- 3) カスケード結合を利用することで注入電子1個当たり複数の光子を放出することが可能であり、高出力動作が期待できる。
- 4) 活性層を構成する材料のバンドギャップよりも遥かに小さいエネルギーの光子を放出するので高出力動作時においても原理的に COD 劣化が無い。
- 5) 非常に高速な非発光遷移過程に起因して本質的にスペクトル線幅が狭い^{9,10)}。

このように量子カスケードレーザは従来の LD が本質的に持つ限界を突破する可能性が示唆されている。

一般に量子カスケードレーザの閾値電流密度は以下のように表すことができる¹¹⁾。

$$J_{th} = \frac{1}{\tau_3 \left(1 - \frac{\tau_2}{\tau_{32}}\right)} \left[\frac{\epsilon_0 n_{eff} L_p \lambda (2\gamma_{32})}{4\pi e z_{32}^2} \left(\frac{\alpha_w + \alpha_m}{\Gamma} \right) + e n_2^{therm} \right] \quad (1)$$

$1/\tau_3 = 1/\tau_{31} + 1/\tau_{32}$ ϵ_0 : 誘電率 n_{eff} : 実効屈折率 L_p : 活性層1周期当たりの厚さ

λ : 波長 γ_{32} : 発光(EL)半値幅 e : 素電荷 z_{32} : ダイポールモーメント

α_w : 導波路損失 α_m : ミラー損失 Γ : 閉じ込め係数

n_2^{therm} : E2 に熱分布しているキャリア、 $n_2^{therm} = n_g \exp(-\Delta/kT)$

n_g : 電子注入層の基底準位のキャリア密度 k : ボルツマン定数 T : 絶対温度

Δ : E2 と電子注入層の基底準位とのエネルギー差

図2に示されるような構造では中赤外領域の場合、E3 から E2 への緩和時間 τ_{32} は数ピコ秒であるのに対し、E2 の寿命 $\tau_2 (= \tau_{21})$ は E2-E1 を LO フォノンに共鳴するように設計されているのでサブピコ秒であり、 $\tau_{32} \gg \tau_2$ となり E3 と E2 の間で反転分布が形成される。(1)式より低閾値動作には τ_{32} が τ_2 より十分大きく、反転分布が効率的に形成でき、2乗で効く項として、大きなダイポールモーメントが必要であることが分かる。また、室温以上

の高温動作時には電子注入層から下位準位 E2 にキャリアが熱再分布 (n_2^{therm}) し、これが反転分布の阻害要因となり閾値が上昇する。キャリアの熱再分布の影響を少なくするにはキャリアのリザーバーとなる電子注入層へのドーピングを安定動作できる必要最小限に抑え、 Δ をある程度大きくする設計が重要である。

3. 現状の THz 量子カスケードレーザの問題点

波長 4~10 μm の中赤外領域では室温以上で CW 発振が達成されており、製品化に至っている。これに対して THz 領域では最初のレーザ発振から 9 年余りが経過する現在でも最高動作温度はパルス駆動で 186K@3.9THz¹²⁾ に留まっている。THz 量子カスケードレーザでは LO フォノンのエネルギー、さらには室温の熱エネルギー以下のサブバンド間で反転分布を形成する必要がある、そもそもレーザ発振が非常に困難な状況であることは想像に難くない。サブバンド間のエネルギー間隔が 100meV 以下の長波長領域になると同一の量子井戸内で遷移させる垂直遷移型では上位準位寿命が極端に短くなり、1ps 以下となる。このような状況下では反転分布を形成すること自体が非常に難しい。また、サブバンド間のエネルギー間隔が小さいということは、キャリアの上位準位への選択的注入が困難という問題も生じる。図 3 に MIT グループから報告されている¹³⁾ 典型的な THz 量子カスケードレーザの電流-電圧および電流-光出力特性を示す。

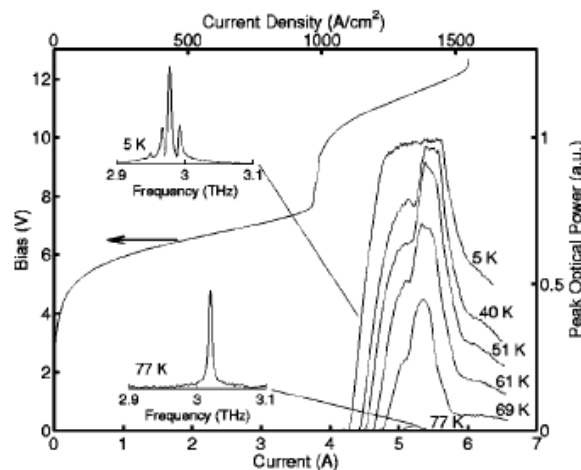


図 3 THz-QCL の電流-電圧特性および電流-光出力特性¹³⁾

バイアスが印加され 4V 付近で準位が共鳴して電流が流れはじめる (turn-ON) が 4A の手前で一旦、共鳴パスが切れて電流が流れなくなり、バイアス 10V 付近で 2 度目の turn-ON が起こりレーザ発振に至り光出力が増大する。その後、6A 付近で再び共鳴パスが切れて発光が停止する。これはまず始めに下位準位にキャリアが注入され、その後、下位準位とのパスが切れてから目的とする上位準位にキャリアが注入されることを示している。下位準位に注入されるキャリアはレーザ動作には寄与しない無効なキャリアであり、閾値を押し上げる要因となっている。すなわち上位準位への選択的なキャリアの注入が難しいことが特性を制限していると言える。発光層への実効的なトンネル電流密度は次式^{14,15)}のように表すことができる。

$$J = eN_s \frac{2\Omega^2 \tau_{deph}}{1 + \Delta^2 \tau_{deph}^2 + 4\Omega^2 \tau_3 \tau_{deph}} \quad (2)$$

e : 素電荷 Ω : Rabi 振動周波数 $2\hbar\Omega$: アンチクロッシングギャップ
 N_s : シートキャリア密度 Δ : E1' と E3 の差 (共鳴している状態では 0)
 τ_{deph} : 位相緩和時間 (~ 100 fs) τ_3 : 上位準位寿命

中赤外の場合、上位準位 E3 と下位準位 E2 のエネルギー間隔は 100~300meV あり、LO フォノンのエネルギーや室温の熱エネルギーよりもはるかに大きく、注入障壁 (Tunnel-barrier) を薄くして前段の電子注入層の基底準位 1' と発光層の上位準位 E3 のカップリングを強くしても (アンチクロッシングギャップ ~ 10 meV) 上位準位への選択的注入が可能であり、十分な電流密度を確保できる。これに対して THz 領域では E3 と E2 のエネルギー間隔は 10~15meV 程度であり、E3 への選択的注入のためには注入障壁をある程度厚くする必要 (アンチクロッシングギャップ ~ 1 meV) があり、十分な電流密度が稼げないという本質的な問題が存在する。その他には電子温度の上昇、自由キャリア吸収による巨大な導波路損失、出射ビームの広がり角が巨大であるなど動作温度が低く低出力であるという以外にも実用レベルの素子となるまでにはまだ数多くの難題を克服しなければならない。

4. 間接注入励起 (Indirect-pump scheme : IDP) 構造

長波長帯 QCL (< 100 meV) の高性能化に関する我々の取り組みを紹介する。先に述べたように THz-QCL を含む長波長帯 QCL では上位準位寿命が短い、電流密度が稼げないという問題がある。そこで我々は上位準位寿命を稼ぐために発光遷移が複数の量子井戸にまたがる対角遷移型 (diagonal transition) とし、キャリアの効率的な注入を実現する構造として上位準位 E3 より上方に 1-LO フォノン分だけ離れたところに注入用の準位 E4 を新たに設け、そこから LO フォノン散乱を利用して E3 に高速にキャリアを注入するという間接注入励起 (Indirect-pump scheme : IDP) 構造^{16,17)}を考案した。図 4 に IDP 構造の模式図、図 5 に発振波長 15 μ m (~ 20 THz) の場合¹⁸⁾の具体的な活性層構造を示す。

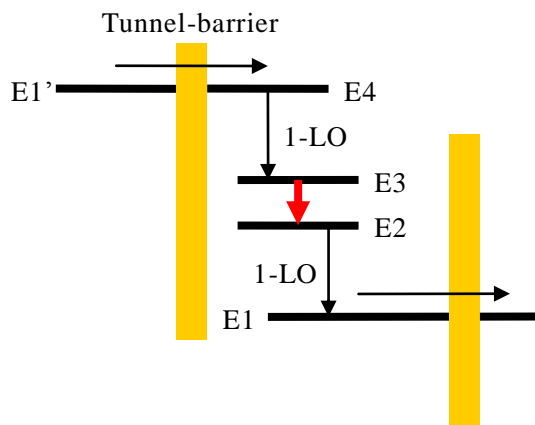


図 4 IDP 構造模式図

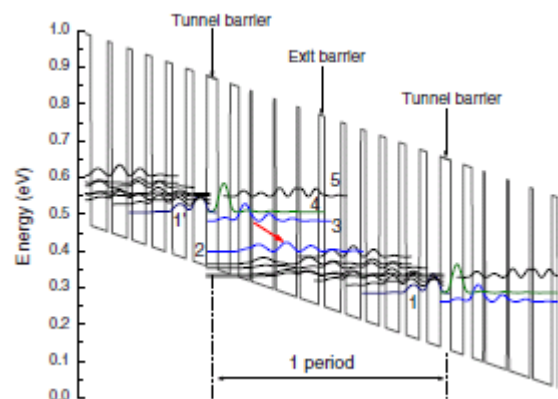


図 5 15 μ m 帯 IDP-QCL のバンド構造¹⁸⁾

ドーピングにより予め電子注入層に配置されたキャリアは従来構造と同様に共鳴トンネル効果により準位 E4 に注入される。E4 に注入されたキャリアは直ちに LO フォノン散乱を介して高速に準位 E3 に注入される。E4 でキャリアが滞留することなく E3 へ注入されれば、前段の E1' から次々と E4 へキャリアが注入されることになり、電子注入層に配置されたキャリアを有効に利用することができる。図 5 に示す構造では、 $\tau_{43} \sim 0.45\text{ps}$ 、対角遷移型とすることで E4-E3 $\sim 80\text{meV}$ ($\lambda = 15.5\ \mu\text{m}$) でも上位準位寿命は $\tau_3 \sim \tau_{32} \sim 1.7\text{ps}$ を確保できている。また、アンチクロッシングギャップ (E1'-E4) を約 7meV と十分大きくしても、注入効率は $\eta_{\text{pump}} \sim 0.9$ で準位 E3 への十分な選択的注入が実現されている。15 μm 帯 IDP-QCL の電流-電圧および電流-光出力特性を図 6 に示す。活性層の段数は 55、共振器長 4mm、後端面側を HR コーティングし、epi-side up でマウントして評価した。

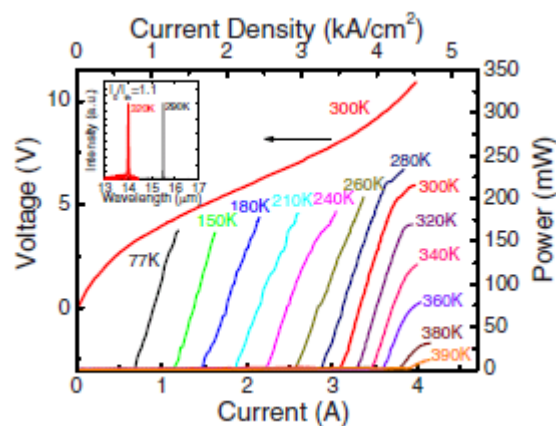


図 6 15 μm 帯 IDP-QCL の電流-電圧および電流-光出力特性¹⁸⁾

発振波長 15.5 μm 、パルス駆動における最高動作温度は 390K 以上、300K におけるピーク光出力 200mW 以上、閾値の温度依存性を示す T_0 は 450K を記録し非常に優れた素子特性が得られた (詳細は参考文献 18 を参照されたい)。長波長帯では遷移のダイポールモーメント (z_{32}) を犠牲にしても対角遷移を利用して上位準位寿命を稼いだ方が素子特性は向上することが分かる。また、高い T_0 (高温になるほど閾値の上昇が小さくなる傾向を示している) は IDP 構造による注入効率の向上に伴う吸収損失の低減効果である。このような効果は波長が長くなるほど顕著に現れると予想され、IDP 構造は夢の室温動作 THz-QCL¹⁹⁾ に向けて非常に有望な構造であると考えられる。

5. むすび

新たな活性層構造である IDP 構造を提案し、長波長帯 QCL において非常に有効であることを実証した。しかしながらこれまで述べてきたように THz 量子カスケードレーザは未だ研究の域を出ておらず、製品化・実用化までには数多くの困難を克服しなければならない。さらに THz 領域の検出器に関してもけっして簡単ではなく、THz でなければならないという応用分野の開拓も十分ではない。THz 技術の産業化には様々な分野の叡智を結集して新たなブレイクスルーが生まれることが必要である。

References

- 1) I.Hayashi, M.B.Panish, P.W.Foy and S.Sumsky, *Appl.Phys.Lett.* 17, 109(1970).
- 2) R.Kazarinov and R.Suris, *Sov.Phys.Semicond.* 5, 707(1971).
- 3) J.Faist, F.Capasso, D.L.Sivco, C.Sirtori, A.Hutchinson and A.Y.Cho, *Science* 264, 553(1994).
- 4) M.Beck, D.Hofstetter, T.Aellen, J.Faist, U.Oesterle, M.Ilegems, E.Gini and H.Melchior, *Science* 295, 301(2002).
- 5) R.Kohler, A.Tredicucci, F.Beltram, H.E.Beere, E.H.Linfield, A.G.Davies, D.A.Ritchie, R.C.Iotti and F.Rossi, *Nature* 417, 156(2002).
- 6) O.Cathabard, R.Teissier, J.Devenson, J.C.Moreno and A.N.Baranov, *Appl.Phys.Lett.* 96, 141110 (2010).
- 7) C.Walther, M.Fischer, G.Scalari, R.Terazzi, N.Hoyler and J.Faist, *Appl.Phys.Lett.* 91, 131122 (2007).
- 8) 例えば www.daylightsolutions.com, www.cascade-technologies.com
- 9) M.Yamanishi, T.Edamura, K.Fujita, N.Akikusa and H.Kan, *J.Quant.Electron.* 44, 12(2008).
- 10) N.Kumazaki, Y.Takagi, M.Ishihara, K.Kasahara, A.Sugiyama, N.Akikusa and T.Edamura, *Appl.Phys.Lett.* 92, 121104(2008).
- 11) J.Faist, F.Capasso, C.Sirtori, D.L.Sivco, J.N.Baillargeon, A.L.Hutchinson, S-N G.Chu and A.Y.Cho, *Appl.Phys.Lett.* 68, 3680(1996).
- 12) S.Kumar, Q.Hu and J.L.Reno, *Appl.Phys.Lett.* 94, 131105(2009).
- 13) B.S.Wiiliams, S.Kumar, H.Callebaut and Q.Hu, *Appl.Phys.Lett.* 83, 2124(2003).
- 14) C.Sirtori, F.Capasso, J.Faist, A.L.Hutchinson, D.L.Sivco and A.Y.Cho, *J.Quant.Electron.* 34, 1722(1998).
- 15) H.Callebaut and Q.Hu, *J.Appl.Phys.* 98, 104505(2005).
- 16) M.Yamanishi, T.Edamura, N.Akikusa, K.Fujita, US-PATENT No.7843981.
- 17) M.Yamanishi, K.Fujita, T.Edamura and H.Kan, *Opt.Express* 16, 20748(2008).
- 18) K.Fujita, M.Yamanishi, T.Edamura, A.Sugiyama and S.Furuta, *Appl.Phys.Lett.* 97, 201109 (2010).
- 19) M.Yamanishi, K.Fujita, N.Yu, T.Edamura, K.Tanaka and F.Capasso, CLEO/QELS, CMF1 (Baltimore, 2011).