

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 3月 31日現在

機関番号：33903

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23710158

研究課題名（和文）サブバンド準位を用いた高効率量子ドットレーザの開発

研究課題名（英文）High Efficiency Quantum Dots Laser using Subband Carrier Dynamics

研究代表者

五島 敬史郎 (KEISHIRO GOSHIMA)

愛知工業大学・工学部・講師

研究者番号：00550146

研究成果の概要（和文）：

高効率量子ドットレーザの開発に向けて量子ドットの多重積層構造に着目し、トンネル効果を利用したサブバンド準位を作り出す構造を提案した。ドット間結合効果の理論計算を行いドット間結合効果は、10nm以下の領域で起こることを予想した。検証実験でもドット間距離が10nm以下では結合効果が起きていることを明らかにした。サブバンド準位が存在する積層量子ドット間距離3.5nmのサンプルにおいて光増幅率が最も大きくなることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

The purpose of this work is to develop a high efficiency quantum dots(QDs) laser, utilizing a subband formation with tunnel effect between the multi stacked QDs structures. In this work, we have calculated the coupling of wave-function various barrier widths in QDs and the wave function have been coupled under 10nm barrier width. Through the calculation and experiments, it was shown that the Optical amplification factor was highest level in the multi stacked QD with as 3.5nm barrier width.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：半導体レーザ、量子ドット、サブバンド準位

1. 研究開始当初の背景

量子ドットレーザは、既存の半導体レーザの特性を全てにおいて凌駕する画期的なレーザとして提案された。理想的なレーザは

- (1). 高い量子効率による超低消費電力駆動
- (2). 温度依存が小さい特性
- (3). 高速変調動作 である。

それ以降、量子ドットレーザは盛んに研究されている。

しかしながら、未だ既存の半導体レーザを大きく凌ぐ性能は報告されていない。その理由は、

- (1). トータルでの光増幅特性が足りない。
- (2). 量子ドット特有のフォノンボトルネック現象によって変調速度が制限されてしまう。

特に、量子ドットレーザにおいて光増幅率を引き上げる技術確立がブレイクスルー技

術になる。

2. 研究の目的

量子ドットレーザの光増幅率は、量子ドットの総数とドットの結晶品質に比例する。そのため、主に量子ドット作製技術の向上に主眼が置かれている。量子ドットの結晶欠陥を減らす作製方法や、高層ビルのような構造（多重積層構造）の技術方法などである。しかしながら成長技術も飽和傾向にあり、別のアプローチが必要である。

申請者は、太陽電池量子ドットの研究から、積層構造での量子ドットの寿命が短くなる結果や、発電効率の変化する結果を得た。そこで、量子ドットレーザ開発においてドットの作製技術の向上ではなく量子ドットの多重積層構造に着目し、量子力学のトンネル効果を利用したサブバンド準位を作り出す構造を提案する。 この構造により光増幅率の大幅に向上と、フォノンボトルネック現象の低減が可能であると考える。ここでフォノンボトルネック現象を説明する。量子ドットのバンド図は、図 1a に示すようにエネルギー準位が明確に離散化している。

その結果ドット内に入ったキャリアは基底準位まで緩和するのに長い時間を要す現象である。物理的にキャリア緩和時間より短い時間での変調スピードは不可能になる。

量子ドット間結合のサブバンド準位について説明する。隣り合う量子ドットの間隔が広い場合は、個々の独立した離散準位が形成される（図 1b 左）。一方隣り合う量子ドットの間隔が狭い場合、トンネル効果が起きて隣り合う準位が結合し、一つの準位としてふるまうようになる（図 1b 右）。これがドット間結合によるサブバンド準位である。

サブバンド準位形成によるレーザ発振における優位性は、

(1). キャリアはドット内に留まることなくサブバンド準位内を自由に移動できるため、キャリアの総数はドットの個数に関係なく大幅に増加させる事が出来る。光増幅率は2倍以上になることが報告されていることから、消費電力を1/2以下に抑える事が出来る。

(2). キャリアはサブバンド準位内を自由に移動できるため、高次準位から基底準位へのキャリアの緩和はフォノンを介して短時間に行われる。フォノンボトルネック効果も同時に低減できる可能性がある。緩和に要する時間は、1/3以下になる事が報告されていることから、変調速度は3倍以上に向上させる事が出来る。

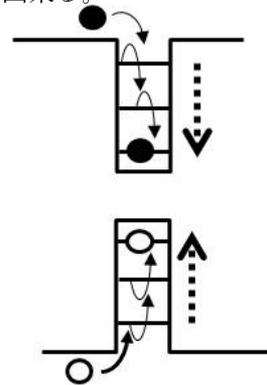


図 1a. フォノンボトルネック現象の模式図
キャリアは離散準位に留まりながら緩和する為、長い時間を要する。

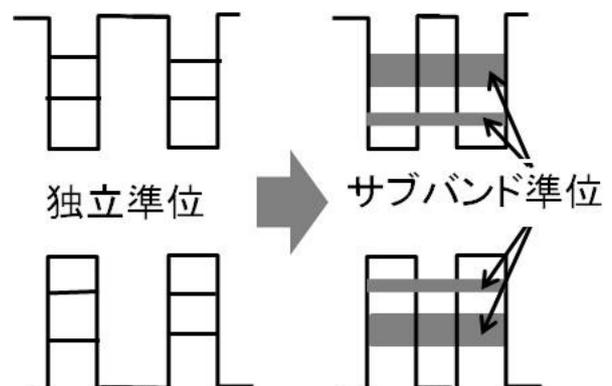


図 1b. 量子ドットにおけるサブバンド準位図
左：ドット間隔が広い場合、個々に独立準位を形成する。右：ドット間隔が狭い場合、互いに結合したサブバンド準位を形成する。

3. 研究の方法

(1) ドット間結合効果によるサブバンド準位の理論計算。

積層量子ドット内の電子状態をシュレーディンガー方程式と3次元有限要素法を用いた理論計算で調べる。バリア層厚の薄い量子ドットは、波動関数の結合によってトンネル現象が起きる。多重積層ドットの場合は、波動関数結合が重なってサブバンド準位を形成すると考えられる。このサブバンド準位を形成するための必要なバリア層厚を計算により厳密に見積もる。具体的には、バリア厚5nm~15nmの間で最適解を見つけ出す。

(2) 積層量子ドットの作成、及び検証。レーザデバイスへ

計算結果を元に産総研にて積層量子ドット製作を依頼、サブバンド準位の検証を行う。検証方法は、顕微分光発光法・透過スペクトル法及び四光波混合による量子ドットキャリアの寿命測定を行い、サブバンド構造の可否を判断する。特に顕微分光法・キャリア寿命は実験系を構築する。最適化したバリア層を用いて多層積層量子ドット(10~20層)の量子ドットデバイスを作成し、光利得の増加を実験により実証する。増加を確認出来たらプロセスを行い実際の量子ドットレーザを製作する。

4. 研究成果

(1) サブバンド準位の理論計算

まず初めに上下に積層された量子ドット間距離とサブバンド準位との相互作用を検証する為に理論計算を行った。理論計算をするに当たり、量子力学のシュレーディンガー方程式を用いた。今回仮定としているモデルは、半導体GaAs中に埋め込まれた形をしているInGaAs量子ドットである。そのため、

式1に示す有効質量近似を用いたシュレーディンガー方程式を解析的に解いた。

$$-\frac{\hbar^2}{8\pi^2} \left(\nabla \left(\frac{1}{m_e} \Delta \psi(r) \right) \right) + V(r) \psi(r) = E \psi(r) \quad (I)$$

上式は1次元のみの記述式であるが、実際の形状に近づけるため3次元に拡張し、有限要素法に3次元に拡張したシュレーディンガー方程式を取り込み、コンピュータシミュレーションを用いて解析した。ここで量子ドットの形状は、断面TEM写真より、ピラミッド形状とし底辺の長さは20nm、量子ドットの高さは5nmと仮定した。

図2(a)は、実際に計算された量子ドット間距離3nmのシミュレーション結果を示している。上下の量子ドット間の波動関数は量子力学的な相互作用を起こし、結合状態の波動関数と反結合状態の波動関数が存在している事が分かる。理論計算の結果、上下の量子ドット間隔が15nmを超えるような広い場合には、上下の量子ドット間に量子力学的な効果は働かなくなり、サブバンド準位が形成されないことが分かった。

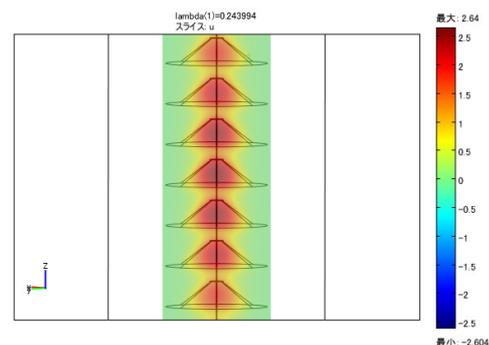


図2a. 結合状態での理論結果

(2) 積層量子ドットの作成

先の理論計算の結果より、3種類の上下のドット間距離の違う積層量子ドットサンプルを検証することにした。図3にその断面SEM画像を示す。

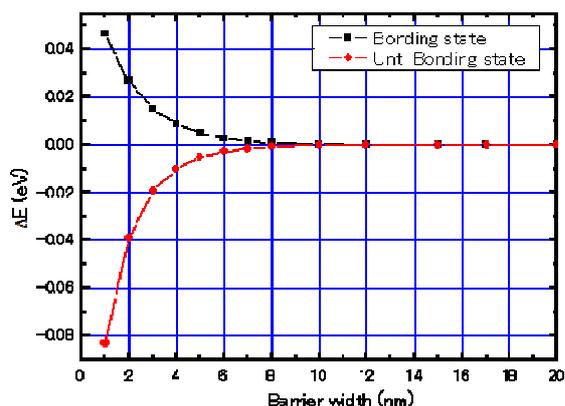


図 2b. ドット間距離に対する波動関数結合結果

1つ目は、上下の量子ドット間隔が 15nm、量子ドットの高さは 5nm である。2つ目は上下の量子ドット間隔 6.5nm、量子ドットの高さは 3.5nm。3つ目は、量子ドット間隔 3.5nm、量子ドットの高さは 3.5nm である。それぞれ積総数は 30 層である。

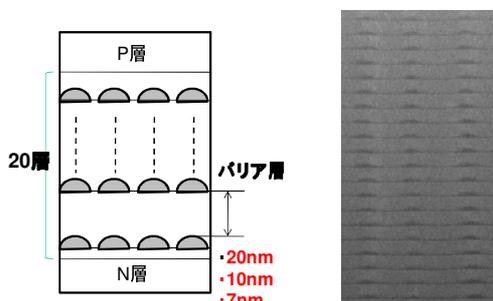


図 3. 積層量子ドットの断面 TEM

(3) サブバンド準位の検証実験

図 4 は、量子ドット間隔 15nm と 3.5nm において、フォトルミネッセンスエクサイテーション (PLE) 測定を行った結果である。縦軸は発光強度、横軸 ΔE は基準する発光エネルギーからのエネルギー差を示している。量子ドット間隔 15nm の PLE スペクトルでは、 ΔE 約 55meV 付近において、明瞭な発光ピークが認められた。他方、量子ドット間隔 3.5nm の場合には、PLE スペクトルは、単調

に増加する傾向を見せたものの、明瞭なピークは観測されなかった。

この理由について、量子ドット間隔 15nm の場合サブバンド準位が形成されていないとすると、上下に積層した量子ドットは結合していない為、各量子ドット内で基底準位が存在している。量子ドットは閉じ込め効果が大きいので、量子化された明瞭な励起準位をもつ、今回観測された励起準位は約 55meV でありこれは他の研究でも報告されている電子の第一励起準位である可能性が高い。しかし、量子ドット間隔 3.5nm の場合には、上下に隣り合う量子ドットの波動関数がトンネル効果によって結合し、個々の量子ドットの励起準位が分裂してサブバンド準位として形成されていると考えられる。サブバンド準位はエネルギーの幅を持っているため、PLE ではその幅が観測できず結果としてピークが観測できていないと考えられる。この結果からも量子ドット間隔 3.5nm ではサブバンド準位が形成されている傾向を観測することができた。

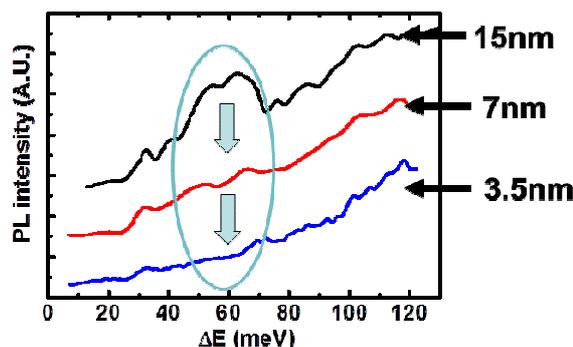


図 4. PLE 測定結果

(4) 発光寿命測定

図 5 は、量子ドット間隔 15nm と 3.5nm において、発光寿命測定を行った結果である。縦軸は発光強度、横軸は時間(nsec)を示している。励起パルスを照射した時刻を基準時

間0sと定義している。量子ドット間隔15nmと3.5nm両方において0s~4nsの速い緩和機構と4ns~の遅い緩和機構の大きく2種類の緩和過程が存在することが明らかとなった。この早い緩和機構は、2つのサンプルとも400fsであった。ほとんど同じ値であり、ドット間距離に起因する緩和過程ではないことが分かる。他方、4ns~の遅い緩和機構については差が生じている。量子ドット間隔15nmの場合の遅い緩和の発光寿命は、8.95nsと見積もられた。量子ドット間隔3.5nmの場合での発光寿命は、6.7nsと若干早い傾向を示した。他の研究機関による報告では、全く逆の傾向も報告されているので、発光寿命とサブバンド準位との関連を示せるように、実験結果のより詳細な検討を重ねる。

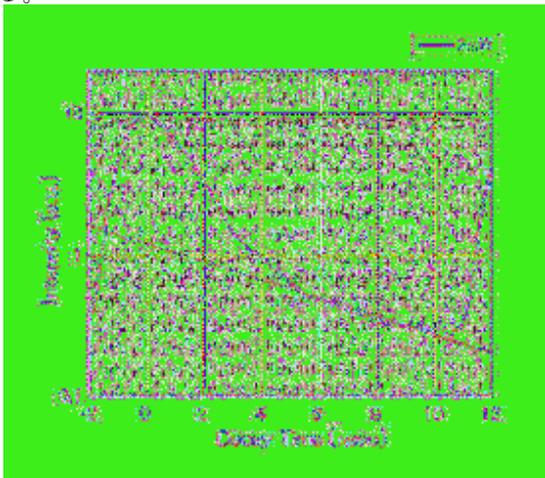


図5. 発光寿命の測定結果(15nm上、3nm下)

(5) 光増幅率測定

理論と検証実験より、上下の量子ドット間隔が10nm以下の領域では、波動関数が結合し、サブバンド準位が形成されている様子が明らかになった。この結果を基に、量子ドットレーザとして応用させるために最も重要な要素となる半導体量子ドット材料の光増幅率測定を行う。本来ならば、レーザデバイスにして電流注入での光増幅率を測定するのが一般的であるが、本実験では、光励起に

よる光増幅率算出を試みた。

励起強度に対する半導体材料からの蛍光光強度から光強度(I)は次式の様に算出することが出来る。

$$I \propto \frac{1}{g(\exp(g\alpha) - 1)} \quad (II)$$

ここで、gが求める光増幅率である。

図6の実験結果(励起強度 vs ドットからの光強度)から光強度の傾きを出すことで光増幅率を算出できる。

実験結果は、

- (1) ドット間隔15nm、光増幅率=0.033cm⁻¹
 - (2) ドット間隔7.5nm、光増幅率=0.011cm⁻¹
 - (3) ドット間隔3nm、光増幅率=0.045cm⁻¹
- であった。サブバンド準位が形成されているドット間隔3nmでは光増幅率0.045cm⁻¹となり増加する事が明らかとなった。

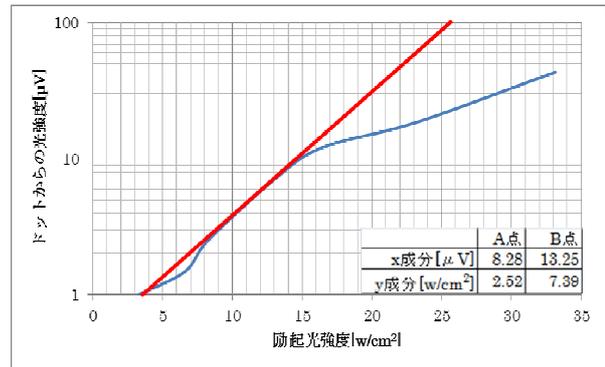


図6 励起強度依存性

(6) 量子ドット型DFBレーザの結合係数理論

上記のサブバンド準位型量子ドットレーザの開発と並行して、量子ドットDFBレーザの結合係数理論計算も行った。

量子ドットDFBレーザにおいては、半導体材料の特異性から従来の作成法によるDFBレーザが難しく、新しい形状のグレーティング加工が必要になる。本研究グループでは、図7に示すHALF ETCH ID MESA (HEM) 構造を

提案している。

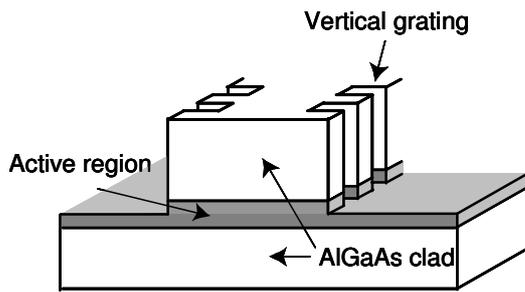


図7. HEM構造 DBEレーザ

しかしこの構造における結合係数を算出されていなかった。今回、方形導波路理論と2次元有限要素法を用いて詳細な光電場を解析的に解き、それを基に結合計算を行った。図8が理論計算による結合係数である。実際の作成した量子ドットDFBレーザの理論計算と比べて、幅 $2.5\mu\text{m}$ において、理論計算値が 36cm^{-1} に対して実測値が 25cm^{-1} であったので、理論計算は高い精度であることが分かった。

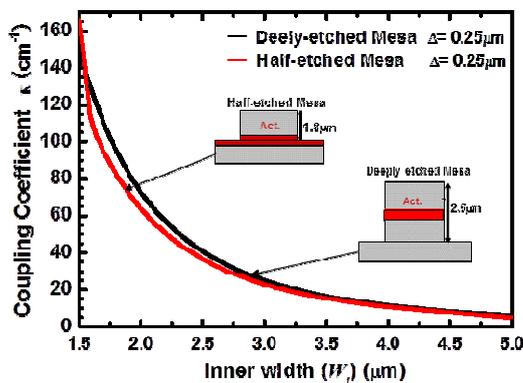


図8. HEM構造の結合係数計算結果

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

- (1) K.Goshima, N.Tsuda, J.Yamada et.al.
 “1.3- μm Quantum-Dot Distributed Feed Back Laser with Half-Etching Mesa Vertical Grating using Cl2 Dry Etching process” Japanese Journal of Applied Physics, 2013年2月 査読あり 掲載決定

[学会発表] (計4件)

- (1) K.Goshima, N.Tsuda, J.Yamada et.al.
 “Subband formation in multi stacked InGaAs quantum dots with different interdot spacing for high efficient solar cells” International conference on Nanotek & Expo, J nanomed Nanotechol Vol3 pp91 (2012) 12月5日

- (2) K.Goshima, N.Tsuda, J.Yamada et.al.
 “1.3- μm Quantum Dot DFB Laser with Half-Etching Mesa Structure” International Micro-processes and Nanotechnology Conference 31B-2-1 (2012) 10月31日

- (3) 五島敬史郎, 津田紀生, 山田諄 他
 “ハーフメサ構造を用いた1.3 μm 量子ドットDFBレーザの発振と結合係数計算” 2012年電気学会関係東海支部連合会 3N-7 9月24日

- (4) 五島敬史郎, 津田紀生, 山田諄 他
 “多重積層InGaAs半導体量子ドットの発行特性評価” 2011年秋季第72回応用物理学会学術講演会 2a-K-3 9月2日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

五島 敬史郎 (GOSHIMA KEISHIRO)
 愛知工業大学・工学部・講師
 研究者番号：00550146

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：