

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：16101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656051

研究課題名(和文)半導体多層膜結合共振器構造による二波長レーザー発振とテラヘルツ波発生の研究

研究課題名(英文) Investigation of two-color lasing in a semiconductor multilayer coupled cavity and terahertz wave generation

研究代表者

井須 俊郎 (ISU, TOSHIRO)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・特任教授

研究者番号：00379546

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：テラヘルツ波発光半導体素子の実現に向けて、半導体多層膜結合共振器構造による二波長レーザー発振のための要素技術の確立を図った。GaAs(001)基板上において1.3 $\mu$ m近傍で発光する高品質な量子井戸中InAs量子ドットを活性層材料として得ることができ、二次非線光学効果のあるGaAs(113)B基板とのウエハ貼り合せを用いて多層膜結合共振器構造を作製した。共振器構造と二波長発光特性との関係を定量的に明らかにするとともに、光励起により二波長レーザー発振を確認し、また電流注入による二波長レーザー発振のための課題を明らかにし、その要素技術を確認した。

研究成果の概要(英文)：In order to realize a terahertz light emitting semiconductor device, we investigated a two-color surface-emitting-laser-diode with a semiconductor-multilayer coupled-cavity. We obtained high quality InAs quantum-dots in an InGaAs quantum well on a GaAs(001) substrate which have a broad gain spectrum covering two color emission around 1.3 $\mu$ m. We also fabricated coupled-cavity structures by wafer bonding with a GaAs(113)B substrate which has the second order nonlinear effects. Properties of emission from the coupled cavity structure were characterized, and two-color lasing by optical pumping was demonstrated. We also developed the device structure and process technologies for two-color lasing by current injection.

研究分野：光エレクトロニクス

科研費の分科・細目：応用物理学/工学基礎・応用光学/量子光工学

キーワード：半導体レーザー 面発光 化合物半導体多層膜 MBE,エピタキシャル成長 量子ドット 二波長発光 結合共振器構造 ウエハ接合

## 1. 研究開始当初の背景

光と電磁波の境界領域の周波数帯にあるテラヘルツ波は、電磁波の新しい周波数資源として、幅広い産業分野への応用が期待されている。そのため簡便なテラヘルツ波発生装置が要望されており、近年、半導体デバイス技術を生かしたテラヘルツ波発生素子として、共鳴トンネルダイオードや量子カスケードレーザの研究開発が盛んである。しかし、共鳴トンネルダイオードの高周波化には限界があり、量子カスケードレーザでは室温動作が困難である。半導体や光学結晶の光非線形効果を用いた発生手法は古くから行われているが、二つの波長の高強度レーザ光源が必要であり、簡便な光源となっていない。

本研究代表者のグループでは、半導体多層膜結合光共振器構造に基づく面型テラヘルツ波発生素子を提案している。半導体多層膜結合共振器構造は二つの共振器モードを持ち、それらの光電場は共振器層内で大きく増大し、その周波数差はテラヘルツ領域にあることから、差周波発生に基づくテラヘルツ波発生を生じさせることができる。共振器モードの光をこの半導体多層膜結合共振器構造自体で電流注入により発光するとともに、構成する半導体自体の二次非線形性を利用すれば、簡便に取り扱える電流注入型テラヘルツ波発生素子が実現できると期待される。これまで実際に GaAs/AlAs 多層膜結合共振器構造を、二次非線形性のある GaAs(113)B 基板上に作製し、二つの共振器モードを同時に励起できるスペクトル幅の広いフェムト秒パルスレーザ光を照射することにより、強い和周波発生を観測し、さらに、テラヘルツ時間領域分光法を用いることにより、差周波に相当する 2.2THz のテラヘルツ波を観測した。これらの実験結果は結合共振器構造の有効性を検証したもので、基本波となる二波長の光を半導体多層膜結合共振器構造の内部において電流注入により生成すれば、室温動作の簡便なテラヘルツ波発生素子が実現できると期待できる。

しかしながら、差周波がテラヘルツ領域となる二波長を同時に発振する半導体レーザはこれまでになく、その実現のための技術を開発する必要があり、またテラヘルツ波発生に適した二波長レーザ構造を明らかにすることが必要であった。

## 2. 研究の目的

本研究は、簡便なテラヘルツ波発生を行う半導体素子の実現を目指し、半導体多層膜結合共振器構造による二波長面発光レーザの開発を行うものである。このため本研究において、電流注入による二波長発光に適した活性層構造と差周波発生に適した結合共振器構造を探索し、面発光レーザとして安定した二波長の同時発振を実現するための要素技術を確立する。特に、テラヘルツ領域の差周

波を持つ二波長の発光のためには幅広い利得スペクトルを持つ活性層が必要であり、GaAs 基板上の InAs 量子ドットはその材料として有力な候補であるが、その光学特性を明らかにし、活性層材料としての評価をおこなうことが必要である。また、テラヘルツ波の効率的な発生のためには結合共振器構造内の二次非線形分極の空間分布の制御することが必要であり、その方法として、ウエハ接合によって結合共振器構造を作製することが有効であると考えられる。このようなウエハ接合によって作製した結合共振器構造の光学的特性を実験的に明らかにし、テラヘルツ波発生に適した二波長発光のための結合共振器構造及び素子構造を見出すことが必要である。さらに、電流注入による動作のために、PN 接合、ドーピング濃度、電極構造などについて定量的に適正化を図るとともに、それらの作製技術を確立することが必要である。

本研究では、これらの課題を明らかにするとともに、その要素技術を確立することを目的としている。

## 3. 研究の方法

簡便なテラヘルツ波発生を行う半導体素子の実現を目指して、半導体多層膜結合共振器構造による二波長面発光レーザの開発を行う上で、広帯域の利得スペクトル幅をもつレーザ活性層、非線形分極の制御が行える結合共振器構造、および電流注入による二波長発光の制御の三つの要素技術に関して研究を実施した。

(1) 広帯域の利得スペクトル幅を持つレーザ活性層として、GaAs 基板上 InAs 量子ドットに着目し、GaAs(001)基板上において InGaAs 量子井戸中の InAs 量子ドットを分子線エピタキシー(MBE)法によって作製した。原子間力顕微鏡(AFM)によって量子ドットの形状観測を行い、成長条件の適正化を図った。さらにこの量子ドットを結合共振器構造に埋め込み、結合共振器構造における量子ドットの発光特性を光励起により調べた。

(2) 非線形分極の制御については、二つの共振器層の二次非線形分極が互いに相殺しないようにするため、二次非線形性を有する GaAs(113)B 基板上に作製した多層膜構造と、GaAs(001)基板上に作製した二次非線形性を有しない多層膜共振器構造を、貼り合わせるにより結合共振器構造を作製することを試みた。GaAs(001)基板上の共振器構造には利得媒質となる量子井戸中 InAs 量子ドットを含む構造を作製し、GaAs(113)B 基板上に作製した多層膜構造とを、ウエハ接合法により貼り合せを行い、結合共振器構造の作製を行った。作製した結合共振器構造は、断面 SEM 観測とともに、光励起による発光特性をしらべた。

結合共振器構造の作製においては、一方の

共振器層には活性媒質として量子ドットを挿入しており、また異なる基板上に作製するために、二つの共振器層の実効光路長を精密に一致させることはかなり困難であると予想される。高効率にテラヘルツ波を発生するうえで、結合共振器構造を構成する元の二つの共振器構造の光学的等価性は重要であり、実際上可能な制御精度の定量的な検討が必要と考えられる。このため、GaAs(001)基板上にMBE成長によって、意図的に共振器層の膜厚を変化させて結合共振器構造を作製し、共振器の非等価性と二波長の発光特性について定量的な評価を行った。

(3) 電流注入による二波長発光の制御に向けては、まずp型およびn型のドーピング層作製のためのMBE成長条件の確立と、素子構造作製プロセス技術の確立を図った。そのためInAs量子ドットを活性層としたストライプ型レーザを試作し、その結果からPN接合作製と電極形成のプロセス技術の確認をおこなった。次に、電流注入のための二波長面発光レーザ構造として、量子ドット層を挿入した結合共振器構造を、GaAs(001)基板上に分子線結晶成長で作製した。その構造としては、上部共振器にInAs量子ドットを挿入して上部DBR層をp型、中間DBR層をn型としてpn接合を設けており、下部共振器部分はノンドープとしたものである。上部共振器層をメサ型にエッチング加工を行い、p型、n型それぞれの電極を設けることによりデバイス構造を作製した。試作デバイスの電気的特性・発光特性を調べ、デバイス構造及びプロセス技術の評価をおこなった。

#### 4. 研究成果

(1) GaAs(001)基板上において高品質な量子ドットの作製条件を探索し、量子井戸中に埋め込んだ量子ドットからの1300nm領域の発光スペクトルを観測し、その適正な形成条件を見出した。その量子ドットを共振器層中に埋め込んだ結合共振器構造をMBE成長により作製した。図1にその構造と量子ドットのAFM像を示した。3層のInAs量子ドット(2.1ML)を表面側のGaAs $2\lambda$ -共振器層にのみ挿入

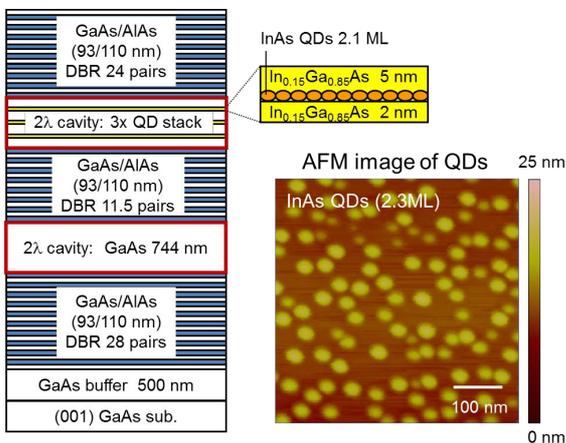


図1. 量子ドットを含む結合共振器構造と量子ドットの原子間力顕微鏡像

した。各々の量子ドット層は厚さ7 nmのIn<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>Asに埋め込まれている。2つの共振器層は11.5周期のGaAs/AlAs(93/110 nm) DBR多層膜で結合し、表面側、基板側に各々24, 28周期のDBR膜を形成している。

作製した試料の表面反射率スペクトルと端面から観測したフォトルミネッセンススペクトルを図2に示した。反射率スペクトルは共振器構造によるストップバンドが明瞭に観測されており、共振器モードははっきりとは観測されていない。これは、その幅がきわめて狭いためである。端面から観測した発光スペクトルは量子ドットからの発光スペクトルを示しており、共振器のストップバンド中に幅広いスペクトルを持っていることが確認できた。試料の発光スペクトルを図3に示す。励起光源としてマルチモード半導体レーザ(cw, 波長~920 nm)を用いて測定した。励起光のスポット径は試料表面上で約250 μmで、測定は室温にて行った。波長1232.1 nmと1248.6 nmに2つの共振器モードによる鋭い発光ピークがみられる。各々のピークの発光半値幅はともに0.5 nm以下であった。モード周波数差は3.2 THzで設計値の2.3 THzよりやや大きく、また二つのモードの発光強度は大きく異なっている。発光スペクトルの励起光強度依存性を測定したところ、二つのモードともにほぼ12 mWのしきい値励起光強度を持つ特性を示した。このことから光励起によってレーザ発振動作

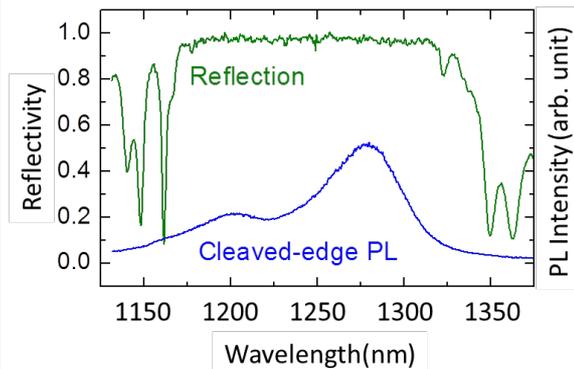


図2. 結合共振器構造の反射スペクトルと量子ドットからの発光スペクトル

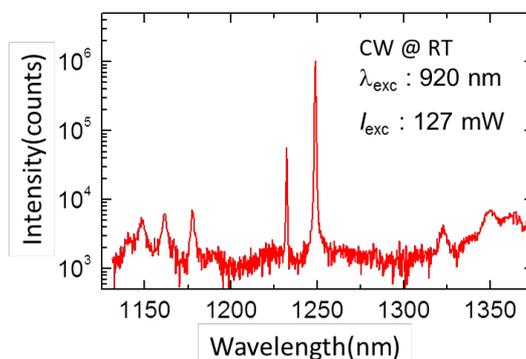


図3. 光励起による発光スペクトル

しているものと考えられる。

(2) 高効率なテラヘルツ帯の差周波発生のためには二つの共振器層の二次非線形分極が互いに相殺しないように非線形分極の空間分布を制御した結合共振器構造が必要である。その一つの方法として二次非線形性を有する GaAs(113)B 基板と二次非線形性を有しない GaAs(001) 基板を組み合わせることが考えられる。今回、レーザ活性層となる InAs 量子ドットを含む GaAs(001) 基板上の共振器構造と GaAs(113)B 基板上の共振器構造とをウエハ接合することにより多層膜結合共振器構造を作製した。試料は、GaAs(001) 基板には 24 周期の GaAs/AlAs (93/110 nm) DBR、3 層の InAs 量子ドット (2.1ML) を挿入した GaAs 2-共振器、5.75 周期の DBR、

### Cross-sectional SEM

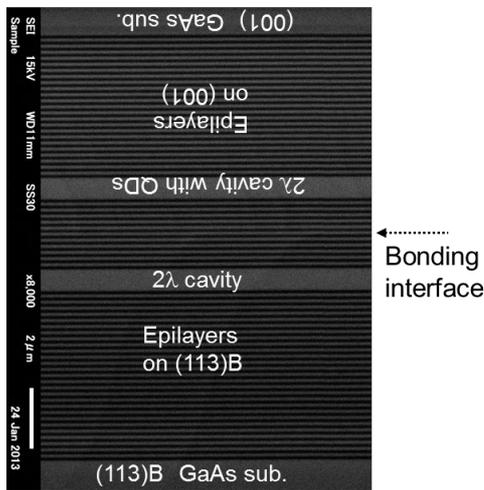


図 4. ウエハ接合により作製した結合共振器構造の断面 SEM 像

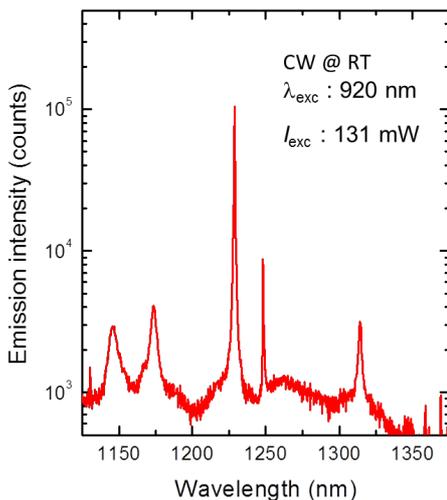


図 5. ウエハ接合により作製した結合共振器構造からの InAs 量子ドットの発光スペクトル

(113)B GaAs 基板には 28 周期の DBR、GaAs 2-共振器、5.75 周期の DBR をそれぞれ MBE 成長した。これら 2 つの共振器構造を常温表面活性化法によりウエハ接合した。作製後の断面の走査型電子顕微鏡像を図 4 に示したが、ウエハ接合により良好な多層膜結合共振器が作製できていることがわかった。

基板表面からのフォトルミネッセンス測定を励起光源に波長約 920nm の半導体レーザ (cw) を用いて行った。(113)B GaAs 基板側から励起し、室温での発光スペクトルを観測した。MBE 成長のみによって作製したものと同様に、図 5 に示すような二つの共振器モードの鋭い発光ピークが観測された。観測された二つのモードの周波数間隔は 3.8THz で設計値よりもやや大きく、また二つの発光モードの強度も約一桁異なるものであった。これらの結果は次に述べるように、作製試料の結合前の共振器構造の非等価性によるものであると考えられる。また、この試料に対しては発光強度に励起強度の閾値特性が見られなかった。測定分解能を高くして共振器モードの発光スペクトル幅を観測し、その半値幅は 0.6nm と成長のみで作製した試料の 0.3nm に比べてやや広いことが分かった。この結果は、ウエハ接合により作製した結合共振器構造は MBE 成長のみで作製したものに比べて共振器特性が劣っていたことを示すものと思われる。しかしながら、これらはウエハ接合の界面や接合プロセスに由来するものではなくそれぞれの共振器構造を精密に制御して作製し、それらの等価性を向上することにより改善が期待できるものと考えられる。

ウエハ接合によって、二つの明瞭な共振器モードを示す構造を作製することができており、このことからウエハ接合による作製手法は十分適用可能であることが確認できたといえる。

二つのモード間周波数差や、発光強度の大きな違いは、MBE による多層膜形成時の成長速度のわずかな変化に起因した層間での膜厚不均一など上下二つの共振器構造の光学特性の非等価性によるものと推察される。共振器層の膜厚のみを変えて非等価な共振器構造を結合した場合のシミュレーションを行ったところ、共振器層膜厚の差異によりモード周波数差の増大と二つの共振器モードの内部電場強度分布の大きな変化が生じることが分かった。このことを実験的に明らかにするため、基板側の共振器層の一部の MBE 成長時に基板回転を止めてウエハ内に膜厚分布が生じるようにして試料作製を行った。Ga の分子線源に近い側で基板側 GaAs 共振器層が厚くなり、遠い側で薄くなる。図 6 はその試料の異なる 3 点における発光スペクトルを示したものである。二つの共振器層の膜厚が異なる点 (図 6 の A と C) では共振器モード間隔が大きくなり、また発光強度が大きく異なっている。共振器層厚がほぼ等しいと考えられる点 (図 6 の B 点) においては

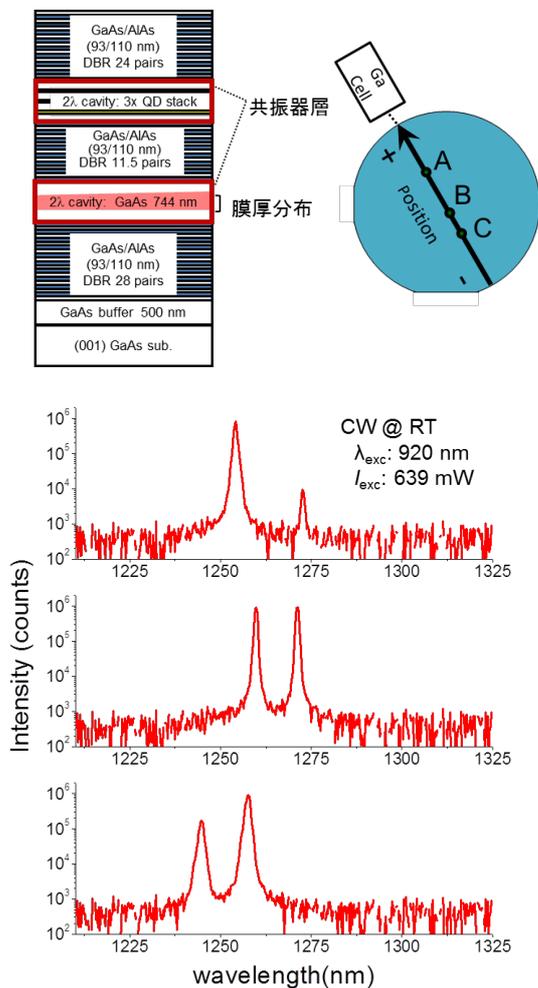


図6 . 共振器層に膜厚分布をつけた結合共振器構造における二波長の発光スペクトル

等しい発光強度が得られ、そのモード周波数差は2.1 THzと設計値の2.3 THzとほぼ同等の値が実現できた。発光強度の大きく異なる測定点での発光強度は、量子ドットを含む共振器層が薄い場合(A点)には短波長側のモードが強く、薄い場合(B点)では長波側の発光強度が強い。二つのモードの内部電場強度のシミュレーション結果は、元の二つの共振器の等価性が崩れると短波側・長波側の二つのモードの内部電場はそれぞれ薄い共振器層・厚い共振器層に局在化していく傾向があることを示し、二つのモードの発光強度比は量子ドットを含む共振器層における電場強度比と対応していることがわかった。高効率なテラヘルツ波発生のためには二つのモードが同一箇所で増大する必要があるため、二つのモードの発光強度がほぼ等しい結合共振器構造が望ましいことが確認できた。

(3) 電流注入による二波長発光のデバイスの作製においては、まず、MBE成長におけるドーピング条件を明らかにし、前述の

GaAs(001)基板上的 InGaAs 量子井戸中 InAs 量子ドットを活性層とし、その上下を p 型、n 型 GaAs クラッド層で挟んだストライプ型レーザを試作した。電流注入によりレーザ発振を確認し、利得媒質としての量子ドットの有効性を確認するとともに、pn 接合作製、電極形成プロセスの基本的技術を確認した。次に図1に示したような結合共振器構造で、上部共振器に pn 接合を設け、下部共振器部分はノンドープとした構造を MBE 成長により GaAs(100)基板上に作製した。表面にリング型の p 型電極をリフトオフ法により設けたのち、上部共振器を直径 200 ~ 500 μm のメサ型にエッチング加工し、底面部に n 型電極を設けた。さらにメサ周辺をポリイミドによってパッシベーションを行った。試作したデバイスの電流・電圧特性、電流・発光特性を測定した。電流電圧特性は明瞭な PN ダイオード特性を示し、図7に示すような二つの共振器モードを示す発光スペクトルが得られた。二つの共振器モードのピークとともに量子ドットからの幅広いスペクトルの発光が観測されているが、これはメサ周辺部から漏れ出した光を観測しているためである。また、共振器モード光の発光ピークの半値幅が広いのは、メサの領域からの発光を観測するため NA の大きな顕微鏡接眼レンズを使って観測したため、表面に垂直でない出射光も観測しているためと思われる。この試作素子は素子抵抗が高くて十分な電流注入ができず、レーザ発振には至らなかった。高抵抗の要因を調べたところ、p 型、n 型の電極の接触抵抗はいずれも十分に低く、DBR 層の抵抗によるものと判明した。特に上部の p 型 DBR 層において GaAs/AlAs 界面におけるバンド不連続に基づくバリアが大きな要因であると考えられる。そのため、DBR 層の各界面に薄い中間組成の AlGaAs 層を設け、バンド不連続性の低減を図った。その結果、DBR 膜の抵抗値は大きく低減できた。また、メサ加工のエッチングにおいて、GaAs 層と AlAs

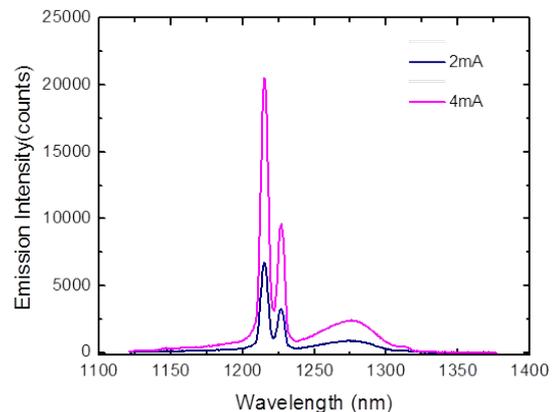


図7 . 電流注入による結合共振器構造からの発光スペクトル

層のエッチレートの違いから均一なエッチングが困難であったが、AlAs 層を Al<sub>0.9</sub>Ga<sub>0.1</sub>As 層に置き換えるとともに、エッチング液を適正化することにより、制御性の優れたエッチングプロセスに改善した。これらのプロセス技術、および素子構造の開発により、二波長面発光の素子構造作製を充分に行うことができると考えられる。なお、ウエハ接合によって作製した結合共振器構造の場合には、デバイス作製プロセスの前に一方の基板を除去する必要があるが、そのための基板除去技術として基板研磨および選択エッチングによる手法は別途開発しており、エピタキシャル成長のみで作製したものと同様に素子作製プロセスを行うことができる。

本研究により開発した要素技術によって、二波長面発光レーザの電流注入による発振の見通しを明確にすることができたと考えられる。

#### 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 2 件)

1. Chiho Harayama, Sho Katoh, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, Takahiro Kitada, and Toshiro Isu, “Wafer-bonded coupled multilayer cavity with InAs quantum dots for two-color emission”, Japanese Journal of Applied Physics, 53, 04EG11-1 ~ 4 (2014), DOI 10.7567/JJAP.53.04EG11. 査読有

2. Takahiro Kitada, Chiho Harayama, Ken Morita, and Toshiro Isu, “Two-color lasing in a coupled multilayer cavity with InAs quantum dots by optical pumping”, physica status solidi (c), 10, 1434-1437 (2013), DOI 10.1002/pssc.201300205. 査読有

[学会発表](計 6 件)

1. Chiho Harayama, Sho Katoh, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, Takahiro Kitada, Toshiro Isu, “Effect of non-equivalent cavities on two-color lasing in a GaAs/AlAs coupled multilayer cavity with InAs quantum dots”, The 41th International Symposium on Compound Semiconductors, 2014年5月11日~15日, Le Corum Montpellier (France).

2. 原山千穂, 加藤翔, 中河義典, 北田貴弘, 井須俊郎, “InAs 量子ドットを利得媒質とする GaAs/AlAs 結合共振器による等強度の二波長発振”, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014年03月17日~20日, 青山学院大学相模原キャンパス(神奈川県).

3. Chiho Harayama, Sho Katoh, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, Takahiro Kitada and Toshiro Isu, “GaAs/AlAs Coupled Multilayer

Cavity by Wafer-Bonding for Two-Color Emission Devices”, 2013 International Conference on Solid State Devices and Materials, 2013年09月24日~27日, Hilton Fukuoka Sea Hawk Fukuoka(福岡県).

4. 原山千穂, 加藤翔, 中河義典, 森田健, 北田貴弘, 井須俊郎, “InAs 量子ドットを利得媒質とする GaAs/AlAs 結合共振器のウエハ直接結合による作製と光学特性評価”, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 2013年09月16日~20日, 同志社大学京田辺キャンパス(京都府).

5. Chiho Harayama, Sho Katoh, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, Takahiro Kitada, and Toshiro Isu, “Two-color lasing from wafer-bonded GaAs/AlAs coupled multilayer cavity by optical pumping”, 第 32 回電子材料シンポジウム, 2013年07月10日~12日, ラフォーレ琵琶湖(滋賀県).

6. 北田貴弘, 原山千穂, 森田健, 井須俊郎, “InAs 量子ドットを有する GaAs/AlAs 結合共振器による二波長面発光レーザの室温光励起発振”, 2013年第60回応用物理学会春季学術講演会, 28a-G20-8, 2013年3月27~30日, 神奈川工科大学(厚木市).

[図書](計 0 件)

[産業財産権]  
出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

[その他]

ホームページ等  
<http://www.frc.tokushima-u.ac.jp/frc-na-no/>

#### 6. 研究組織

(1)研究代表者

井須 俊郎 (ISU TOSHIRO)

徳島大学・大学院シオクサイエンス研究部・特任教授

研究者番号：00379546

(2)研究分担者

北田 貴弘 (KITADA TAKAHIRO)

徳島大学・大学院シオクサイエンス研究部・特任准教授

研究者番号：90283738

森田 健 (MORITA KEN)

千葉大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：30448344

(3)連携研究者

なし