

機関番号：34315

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20560040

研究課題名（和文） 電子散乱制御による量子カスケードレーザの高性能化と遠赤外・テラヘルツ化

研究課題名（英文） Realization of High-Performance and Farinfrared/Terahertz Quantum Cascade Lasers through Electron-Scattering Control

研究代表者

笠原 健一（KASAHARA KENICHI）

立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：70367994

研究成果の概要（和文）：

環境負荷ガスのモニターや生命科学への応用が期待されている量子カスケードレーザ（QCL）では電子散乱制御が高性能化や遠赤外・テラヘルツ化に向けての鍵を握っている。電子散乱の情報は QCL の線幅増大係数  $\alpha$  や相対雑音強度 RIN を調べることで得られる。研究では  $\alpha$  の測定を通じて伝導帯サブバンドの非放物線性やブロッホ利得に関する知見を得ることができた。RIN 測定では光出力の依存性や測定温度域を変えることで電子の非発光緩和時間に関する情報が得られた。また遠赤外・テラヘルツ化では対角遷移型ミニバンド構造について解析を進めた。電子-電子散乱は波動関数の重なり<sup>4</sup>乗、光学遷移は<sup>2</sup>乗に比例するので対角型遷移を上手に使うことで電子-電子散乱は急激に落ちることが解析の結果、確認できた。

研究成果の概要（英文）：

Control of electron scattering is a key to achieve high-performance and farinfrared/terahertz quantum cascade lasers (QCLs) which are expected as light sources applicable to environmental gas monitoring and life science. Information on the electron scattering can be obtained by investigating the line enhancement factor  $\alpha$  and relative intensity noise (RIN) of QCLs. Measurement of  $\alpha$  provided us the knowledge of the nonparabolicity of subbands in the conduction band and the Bloch gain. We could gain information on nonradiative relaxation time through the measurement of RIN dependence on optical output power and temperatures. We also analyzed a diagonal transition miniband structure for realizing farinfrared/terahertz QCLs. Since electron-electron scattering is proportional to the fourth power and optical transition the square of the overlap of wave functions, it is possible to reduce electron-electron scattering by using the diagonal transition.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2009 年度	500,000	150,000	650,000
2010 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：光半導体デバイス

科研費の分科・細目：応用物理学 / 応用光学・量子光工学

キーワード：量子カスケード、光デバイス、テラヘルツ、環境、生命科学

### 1. 研究開始当初の背景

環境負荷ガスのモニターや生命科学への応用に期待されている QCL の研究開発は欧米の研究機関で活発に行われているが国内では少なかった。提案者の知る限りでは東北大、情報通信機構/東大生産技術研究所、浜松ホトニクス等しかなかった。提案者は 2006 年から浜松ホトニクスと中赤外 ( $3\mu\text{m} \sim 30\mu\text{m}$ ) での量子カスケード・レーザ (QCL) での共同研究を開始し、素子内部での電子の緩和過程の解析やそれに基づいた最適構造設計、実素子での評価を進めていた。評価では電子の緩和過程の直接的観測は困難であり、代わってスペクトル幅や、それを広げる因子である線幅増大係数 (パラメータ) 相対雑音強度 (RIN) の測定を行ってきた。これらは電子の緩和過程に密接に絡み、また QCL を特徴づける重要な性能項目である。その結果、QCL で零に近くなっていることを可視的に観測することに初めて成功した。また RIN 測定では通常の LD が光出力  $P$  に対して  $P^{-3}$  の依存性を示すのに対し、QCL の RIN はそれとは異なることが測定を通じて分かっていた。我々の解析によれば低光出力域でも電子の非発光緩和による雑音が通常自然放出による雑音を上回るはずで、これは実験事実と一致している。この間に共同研究先の浜松ホトニクスからは LO フォノンで下位準位の電子を引き抜く新構造 (フォノン共鳴 - ミニバンド構造) によって、閾値電流が  $\sim 300\text{mA}$  @ 室温連続動作という世界最高レベルの性能が達せられた。これらの結果から、電子の緩和過程や反転分布の形成はパラメータや RIN を構造パラメータや温度を変えて体系的に分析することで把握でき、これがレーザの更なる高性能化に有効であることが分かってきた。

一方、海外では QCL を遠赤外、テラヘルツ領域 ( $30\mu\text{m} \sim 300\mu\text{m}$ ) までに伸ばす試みが活発化していた。2005 年には  $100\mu\text{m}$  (3THz) で最高 164K までのパルス発振が実現されている。しかしながら室温動作にはまだ距離がある。中赤外域での反転分布形成には電子の LO フォノン散乱が効く。それに対して遠赤外、テラヘルツ領域では電子 - 電子散乱が影響し、波長が長くなるほどその影響は大きくなる。提案者は電子の各種散乱過程を定量的に解析していく中でこれを人為的に制御、低減できる可能性があるのではないかと考えるに至った。いくつかの腹案があるが例えば対角遷移型ミニバンド構造がその一つである。

電子 - 電子散乱は波動関数の重なり  $\times 4$  乗、光学遷移は 2 乗に比例するので対角型遷移を上手に使えば邪魔者の電子 - 電子散乱は急激に落ちるはずである。材料としては特に Sb を含むようなタイプ 型の材料を使う必要はなく、通常の InGaAs/InAlAs 系等で十分なはずであると予想した。

### 2. 研究の目的

QCL は伝導帯内に形成したサブバンド間遷移を使っているために電子の散乱、緩和過程が利得の大きさに大きく影響を及ぼしている。したがって QCL 内の電子の緩和メカニズムを深く理解することは非常に重要である。一方、遠赤外、テラヘルツ領域では QCL の上位準位と下位準位との電子の緩和速度が同程度となり、反転分布の形成は容易でない。電流密度も高く、動作温度も液体窒素温度にとどまっている。これを克服していくためにも電子の緩和メカニズムを把握し、また人工的に制御するといった新しいアイデアが必要となる。QCL の高性能化は電子の散乱、緩和を巧妙に制御、活用する電子散乱エンジニアリング (ESE: Electron Scattering Engineering) が鍵を握る。以上を鑑み、本提案では以下の目的で研究を行った。

- (1) 中赤外 QCL の線幅増大係数、スペクトル幅や雑音等をファブリ・ペロー (FP) 型や DFB 構造で体系的に調べ、電子の緩和過程や反転分布形成に関わるメカニズムを実験的、理論的に解明。中赤外 QCL の更なる高性能化の設計指針を導く。
- (2) 上記の知見を基に遠赤外、テラヘルツ域 QCL の動作温度の改善を目指す。そのためにこの領域で反転分布を阻害する要因となる電子 - 電子散乱を人工的に抑制し、遠赤外、テラヘルツ QCL の低電流化、温度特性の向上を図る。

### 3. 研究の方法

中赤外でこのレーザが真に実用化されるためには更に一層の電流低減や温度特性の改善が必要である。本レーザの性能向上は電子の各種散乱による緩和過程を巧みに制する事にかかっている。線幅増大係数やスペクトル幅、雑音という切り口からこれを詳細に解明しようとするアプローチはこれまで成されておらず、学術的にも産業的にも意義がある。また遠赤外、テラヘルツ域の QCL では欧米の研究機関が性能向上を競い合ってお

り、新たなアイデアでこれに挑戦していくことはこの分野での日本のポテンシャルを上げる意味でも重要である。提案者がいくつかの会社にヒヤリングした結果でも高性能 QCL への期待は大きい。中赤外では燃料電池の長寿命化に関係した CO 計測や排ガス分析等、また遠赤外・テラヘルツ域では生命科学における細胞内信号伝達物質の振る舞いを調べられる等で、高性能 QCL 実現の意義は極めて大きい。

#### 4. 研究成果

期間中ではまず室温連続動作が実現され QCL の線幅増大係数 の評価を行った。室温近傍で がどのようになるかといったデータはこれまで殆どなく、室温で動作する 6.1  $\mu\text{m}$  DFB-QCL の を測定し、またその電流依存性を求めた(図 1)。

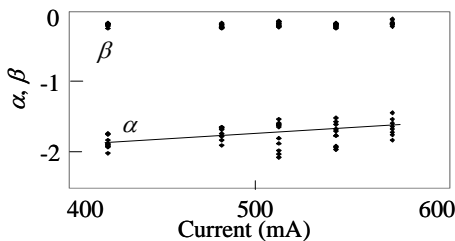


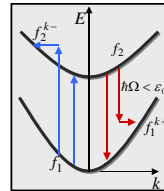
図 1 室温動作 QCL の線幅増大係数  $\alpha$  の電流依存性

は  $\sim -1.8$  であったが、値がゼロでない原因としては、DFB 波長が利得ピークにあっていないことによるものと想像している。は QCL の利得形状に関する情報を間接的に与えてくれる。QCL では曲率の等しいサブバンド間遷移を利用していると扱われ、利得スペクトルはピーク波長に対して左右対称であるとされていた。しかし、ミニバンドを使わない QCL での EL は文献等を見ると長波長側にテールを引いた形状となっている。そこで、サブバンドの非放物線性を電子の有効質量の違いによって近似し、利得を計算した(図 2)。計算ではさらに、フォノン散乱を伴った 2 次の電子遷移(いわゆるプロッホ利得)も考慮した。上下のサブバンドの有効質量が等しく、電子密度が等しい時(反転分布が形成される直前)には、通常の 1 次の遷移からは利得は生じない。しかし、2 次の遷移からは遷移波長よりも長波長側で利得が、また短波長側では吸収が現れる。電子密度の比が大きくなると通常の 1 次の遷移の影響が強くなると、このような利得/吸収の非対称性は消失する。一方、非放物線性の影響を考慮すると、電子密度が等しい時には 2 次の遷移だけでな

く 1 次の遷移からも分散的な波形が現れる。

- 電子は上側準位にのみ注入
- 各準位でのキャリア分布はボルツマン分布

$$g(\Omega) = \frac{4e^2 |z_{12}|^2 m_2 \Omega}{\hbar^3 a c \sqrt{\kappa_\omega}} \int_0^\infty \frac{\gamma(\epsilon)(f_2 - f_1)}{[\Omega - \Omega_c]^2 + \gamma(\epsilon)^2} \frac{1}{\gamma(\epsilon)(f_2 - f_1) + (f_2^* - f_1)} d\epsilon$$



$$f_i(\epsilon_i) = \frac{m_i^2 n_i}{m_i k_B T} \exp(-\epsilon_i / k_B T)$$

$k_B$ : ボルツマン定数  
 $z_{12}$ : ダイポールモーメント  
 $\kappa_\omega$ : 比誘電率  
 $\gamma$ : 緩和速度  
 $a$ : 量子井戸幅  
 $m_i$ : サブバンド  $i$  での有効質量  
 $n_i$ : サブバンド  $i$  での電子密度

図 2 (a) 利得プロファイルの計算

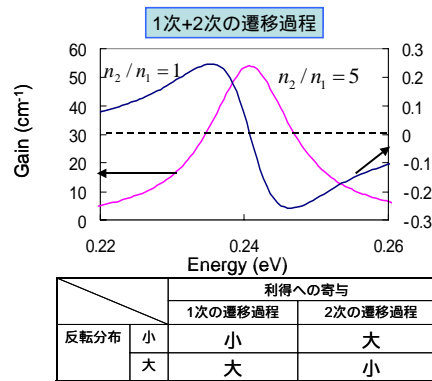


図 2 (b) 1 次と 2 次の遷移過程による利得プロファイル (上側と下側のサブバンドの有効質量が等しい場合、 $m_1 = m_2$ )

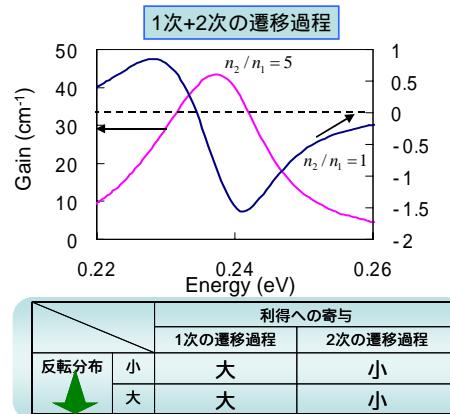


図 2 (c) 1 次と 2 次の遷移過程による利得プロファイル (サブバンドの非放物線性がある場合、 $1.47m_1 = m_2$ )

電子密度の差を大きくすると 1 次の遷移過程がやはりメインとなる。いずれにしても閾値以上の領域では利得の非対称性はサブバンドの非放物線性から現れているというのが計算結果である。利得が得られるとクラマ

ース・クローニツヒ変換より屈折率が分かり、の波長依存性が求められる。6.1 μm 室温DFB-QCL の値は~-1.6であったが、計算によれば利得が1/2になる位置ではこの程度の値になっておかしくない。

室温動作QCLの雑音特性を把握することは微量なガス検出等への応用から重要であり、固有の雑音や戻り光雑音についても調べ、前進があった。室温動作QCLにおけるRIN測定はこれまで報告されておらず、応用的な観点から意味がある。室温CW動作するDFB型QCLにはSPC(Single Phonon-Continuum depopulation structures)構造を有したInGaAs/InAlAs-DFB-QCLを用いた。相対雑音強は  $RIN \propto P^{-\gamma}$  (P: 平均光出力) といった形で表すことができる。規格化電流を  $a = I/I_{th-1}$  ( $I_{th}$ : 閾値電流) で定義すると、RINは  $a = 0.01$  で -116 ~ -120 dB/Hz,  $a = 0.1$  で -138 ~ -140 dB/Hz の範囲にあった。また  $\gamma = 2.0$  ( $0.01 < a < 0.1$ ) であった。DFB-LDは  $\gamma = 3.0$  ( $0.03 < a < 0.7$ ) であり、傾きは明らかに異なり、77 KにおけるQCLのRINの測定結果と傾向は同じであった。RINの低電流域での振る舞いを理解するために4準位系のレート方程式にランジュバン項を入れ、雑音の電流依存性について計算を行った。計算結果は測定値の振る舞いを良く説明でき、 $0.01 < a < 0.1$  では電子

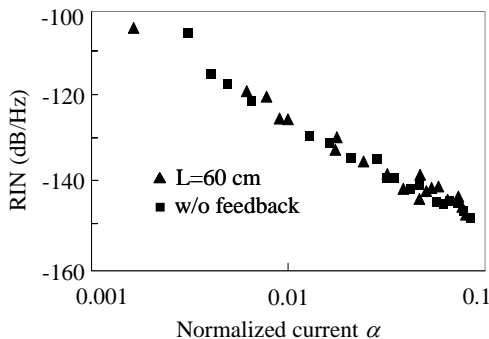


図3 室温動作QCLの戻り光耐性

### コヒーレント・コラプス

レーザ光を戻した時の光電界

$$\frac{dE}{dt} = (-i\omega_0 + \frac{\Delta G}{2}(1-i\alpha))E(t) + \kappa E(t - \tau_c)$$

$$\kappa = \frac{1}{\tau_c} \frac{1-R_s}{\sqrt{R_s}} \sqrt{R_e}$$

$E(t) = E_0 \exp(-i\omega t)$  と仮定して代入

$$-i\omega = -i\omega_0 + \frac{\Delta G}{2}(1-i\alpha) + \kappa \exp(i\omega\tau_c)$$

実部、虚部に分けて計算

**戻り光による利得・周波数変化**

$$\Delta G = -2\kappa \cos(\omega\tau_c)$$

$$\Delta\omega \equiv \omega - \omega_0 = -\kappa(\sin(\omega\tau_c) + \alpha \cos(\omega\tau_c))$$

**戻り光による線幅の増幅率**

$$\delta f = \frac{\delta f_0}{\sqrt{1 + \alpha^2 \kappa^2 \tau_c^2 \cos^2(\omega\tau_c + \tan^{-1} \alpha)}}$$

$\omega_0$ : 可変周波数

$\Delta G$ : 利得変化

$\alpha$ : 線幅増大係数

$\tau_c$ : 外部境での往復時間

$\kappa$ : 戻り光の強さ

$\tau_c$ : 共振器内の往復時間

$R_s$ : 内部境の反射率

$R_e$ : 外部境の反射率

$\delta f$ : 戻り光がある時の線幅

$\delta f_0$ : 戻り光がない時の線幅

図4 戻り光による利得・周波数の変化と線幅の増幅率

のバンド内非発光緩和による反転分布の揺らぎを決めていることが分かった。また計算結果より77Kと室温でのRINの変化は小さいことも分かった。

戻り光雑音ではQCLが原理的に戻り光耐性があることを初めて示すことができた(図3)。レーザは一般的に戻り光による影響を受けやすく、出力に対する相対的な戻り光量が  $10^{-6}$  dB程度とごくわずかでもRINは増大する。QCLでは波長に合うアイソレータが無いため、戻り光耐性が重要となるが、測定の結果、QCLではDFB-LDに比べて戻り光の影響が小さいことを初めて見いだした。1.55 μm DFB-LDの場合、規格化電流が0.01~0.3程ではRINは~25dB/Hz、増大した。これはスペクトルのコヒーレント・コラプスが起きたためである(図4)。QCLでの戻り光雑音の測定にはSPC InGaAs/InAlAs DFB-QCLを用いた。測定系は1.55 μm DFB-LDとほぼ同様のものを用いたが、QCLでは戻り光によるRINの上昇は見られなかった。その理由を分析した結果、QCLの低 $\alpha$ が一因となって雑音が抑制されていることが分かった。QCLはスペクトル幅が狭く、コヒーレンシーが高いので戻り光耐性が低いと思われていたがそうではなく、これを見出した意義は大きい。

QCLでは発光層がカスケード状につながっているので定電圧源の場合は特に電子相関が強くなってRINが増加する可能性がある。そこで定電圧源と定電流源との違いによるRINへの影響を調べたが、これについては測定器の限界で差は見られなかった。

対角遷移型ミニバンド構造を使った電子-電子散乱の抑制ではサブバンド内、サブバンド間での電子の散乱時間を解析した(図5~7)。そのために波動関数をスペクトラム・コロケーション法(スペクトル配列法)を用いて求めた。スペクトラム・コロケーション法は、微分方程式を解くための計算方法であり、行列計算に帰着させて解く方法である。いくつかの構造について電子-電子散乱時間を求めたが、光学遷移の強度は波動関数の重なり2乗に比例して減少するのに対して電子-電子散乱は4乗ともっと急激に減ることが定量的に確かめられ、QCLの遠赤外・テラヘルツ化に向けて本構造が有用であることが確認できた。今後は実際の試作に向けて

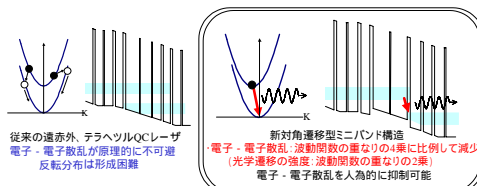
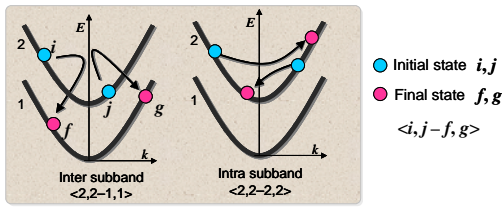


図5 対角遷移型ミニバンド構造による電子-電子散乱の抑制

検討を進めていく予定である。



$$\frac{1}{\tau_i} = \frac{e^4}{2\pi\hbar(4\pi\epsilon)^2} \iint \frac{|A_{if}(q_{xy})|^2}{q_{xy}^2} f_j^{FD}(\mathbf{k}_j) [1 - f_j^{FD}(\mathbf{k}_j)] [1 - f_g^{FD}(\mathbf{k}_g)] \times \delta(\mathbf{k}_j + \mathbf{k}_g - \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j) \delta(E_j' + E_g' - E_i' - E_j') dk_g d\mathbf{k}_j dk_j$$

図6 サブバンド内、サブバンド間での電子-電子散乱

LOフォノン散乱

States <i-f>	Scattering rate [s <sup>-1</sup> ] Emission / Absorption
4-4	3.3×10 <sup>12</sup> / 1.5×10 <sup>10</sup>
4-3	1.5×10 <sup>11</sup> / 4.8×10 <sup>8</sup>
4-2	2.4×10 <sup>11</sup> / 8.5×10 <sup>8</sup>
4-1	8.4×10 <sup>10</sup> / 3.1×10 <sup>8</sup>
3-3	2.6×10 <sup>12</sup> / 1.2×10 <sup>10</sup>
2-1	2.7×10 <sup>12</sup> / 2.9×10 <sup>9</sup>
1-1	3.3×10 <sup>12</sup> / 1.5×10 <sup>10</sup>

電子-電子散乱

States <i,j-f,g>	Scattering rate [s <sup>-1</sup> ]
44-44	2.6×10 <sup>13</sup>
43-43	2.3×10 <sup>13</sup>
33-33	2.6×10 <sup>13</sup>
32-32	2.2×10 <sup>13</sup>
44-41	2.2×10 <sup>10</sup>
44-33	8.7×10 <sup>8</sup>
43-33	6.4×10 <sup>8</sup>

図7 電子-電子散乱とLOフォノン散乱時間(77K、計算結果)

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 6件)

著者名: M. Ishihara, T. Morimoto, S. Furuta, K. Kasahara, N. Akikusa, K. Fujita and T. Edamura、論文標題: Linewidth Enhancement Factor of Quantum Cascade Lasers with a Single Phonon Resonance-Continuum Depopulation Structure on a Peltier Cooler、雑誌名: Electron. Lett.、査読: 有、巻: 45、発行年: 2009、ページ: 1168-1169

著者名: 片岡 誉, 笠原健一, 秋草直大, 枝村忠孝、論文標題: 量子カスケードレーザーの相対雑音強度、雑誌名: 信学技報、査読: 無、巻: 109、発行年: 2009、ページ: 41-44

著者名: N. Kumazaki, Y. Takagi, M. Ishihara, K. Kasahara, N. Akikusa and T. Edamura、論文標題: First Direct Observation of the Small Linewidth Enhancement Factor of a Fabry-Perot Quantum Cascade Laser、雑誌名: Jpn. J.

Appl. Phys.、査読: 有、巻: 47、発行年: 2008、ページ: 1606-1608

著者名: N. Kumazaki, Y. Takagi, M. Ishihara, K. Kasahara, A. Sugiyama, N. Akikusa and T. Edamura、論文標題: Detuning Characteristics of the Linewidth Enhancement Factor of a Mid-infrared Quantum Cascade Laser、雑誌名: Appl. Phys. Lett.、査読: 有、巻: 92、発行年: 2008、ページ: 21104-1-3

著者名: Y. Takagi, N. Kumazaki, M. Ishihara, K. Kasahara, A. Sugiyama, N. Akikusa and T. Edamura、論文標題: Relative Intensity Noise Properties between a 5.2 μm Quantum Cascade Laser and a 1.55 μm Interband Semiconductor laser、雑誌名: Electron. Lett.、査読: 有、巻: 44、発行年: 2008、ページ: 860-861  
著者名: 笠原健一、論文標題: 量子カスケード・レーザーの現状と展望、雑誌名: 京都府中小企業技術センター技報、査読: 無、巻: 36、発行年: 2008、ページ: 45-48

[学会発表](計 10件)

発表者名: 井上智晴, 片岡 誉, 笠原健一, 藤田和上, 秋草直大, 枝村忠孝、発表標題: ペルチェ動作量子カスケード・レーザーの戻り光耐性評価、学会名: 平成23年度秋季第応用物理学関係連合講演会、発表年月日: 2011年3月26日、発表場所: 神奈川工科大学(神奈川県)

発表者名: T. Kataoka, K. Kasahara, N. Akikusa, K. Fujita and T. Edamura、発表標題: Photon noise of peltier-cooled 6.1-μm quantum cascade lasers with a single phonon resonance-continuum depopulation structure、学会名: Photon 10、発表年月日: 2010年8月25日、発表場所: Southampton(UK)

発表者名: 井上智晴, 片岡 誉, 笠原健一, 藤田和上, 秋草直大, 枝村忠孝、発表標題: ペルチェ動作量子カスケード・レーザーの相対強度雑音の検討( )、学会名: 平成22年度秋季第応用物理学関係連合講演会、発表年月日: 2010年9月17日、発表場所: 長崎大学(長崎県)

発表者名: 片岡 誉, 森本恭弘, 古田 俊, 笠原健一, 藤田和上, 秋草直大, 枝村忠孝、発表標題: ペルチェ動作量子カスケード・レーザーの低電流域での相対強度雑音、学会名: 平成22年度春季第応用物理学関係連合講演会、発表年月日: 2010年

立命館大学・理工学部・教授  
研究者番号：70367994

3月19日、発表場所：東海大学(神奈川県)

発表者名：M. Ishihara、T. Morimoto、S. Furuta、K. Kasahara、N. Akikusa、K. Fujita、and T. Edamura、発表標題：Linewidth Enhancement Factor of 6.1- $\mu\text{m}$  Quantum Cascade Laser at Near Room-Temperature、学会名：CLEO Pacific Rim 2009、発表年月日：2009年9月1日、発表場所：上海(中国)

発表者名：片岡 誉、森本恭弘、古田 俊、笠原健一、藤田和上、秋草直大、枝村忠孝、発表標題：ペルチェ動作 6.1  $\mu\text{m}$  量子カスケードレーザの相対強度雑音、学会名：平成 21 年度秋季第応用物理学関係連合講演会、発表年月日：2009 年 9 月 11 日、発表場所：富山大学(富山)

発表者名：森本恭弘、古田峻、石原幹斗、片岡誉、笠原健一、秋草直大、枝村忠孝、発表標題：サブバンド非放物線性と散乱を考慮した量子カスケード・レーザの線幅増大係数、学会名：平成 21 年度春季第応用物理学関係連合講演会、発表年月日：2009 年 4 月 2 日、発表場所：筑波大学(茨城県)

発表者名：石原幹斗、古田峻、森本恭弘、笠原健一、秋草直大、藤田和上、枝村忠孝、発表標題：室温動作 DFB 型量子カスケード・レーザの線幅増大係数の測定、学会名：平成 21 年度春季第応用物理学関係連合講演会、発表年月日：2009 年 4 月 2 日、発表場所：筑波大学(茨城県)

発表者名：N. Kumazaki、Y. Takagi、M. Ishihara、K. Kasahara、A. Sugiyama、N. Akikusa、and T. Edamura、発表標題：Detuning Characteristics of the Linewidth Enhancement Factor of a Mid-infrared Quantum Cascade Laser、学会名：Conf. on Laser and Electrooptics、発表年月日：2008 年 5 月 8 日、発表場所：San Jose (USA)

発表者名：森本恭弘、古田峻、石原幹斗、笠原健一、秋草直大、枝村忠孝、発表標題：量子カスケード・レーザにおける利得スペクトルの考察、学会名：平成 20 年度秋季第応用物理学関係連合講演会、発表年月日：2008 年 9 月 2 日、発表場所：中部大学(愛知県)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

笠原 健一 (KASAHARA KENICHI)