

平成 22 年 3 月 23 日現在

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2007 年 ～ 2008 年

課題番号：19206004

研究課題名（和文）

窒化物半導体を用いた遠赤外-テラヘルツ量子カスケードレーザの研究

研究課題名（英文） Research for Far-infrared - Terahertz Quantum Cascade Lasers using Nitride-based Semiconductors

研究代表者 平山 秀樹 (Hirayama Hideki)

独立行政法人理化学研究所・テラヘルツ量子素子研究チーム・チームリーダー

研究者番号： 70270593

研究成果の概要：

窒化物半導体超格子を用いることにより、これまで未開拓周波数領域であった 5-12 THz 帯量子カスケードレーザの開発を行った。原子層レベルで平坦なヘテロ界面を有する GaN/InAlGaN 系無歪超格子量子カスケード構造の作製に成功した。また、GaN/AlGaN 系量子カスケードレーザ構造を用い、世界で始めて電流注入による窒化物半導体からのテラヘルツ周波数帯のバンド内遷移発光を実現した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	22,400,000	6,720,000	29,120,000
2008 年度	15,300,000	4,590,000	19,890,000
年度			
年度			
年度			
総計	37,700,000	11,310,000	49,010,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 応用物性・結晶工学

キーワード：テラヘルツ、量子カスケードレーザ、窒化物半導体、金属プラズモン導波路、分子線エピタキシー、サブバンド間遷移、自然放出光、電流注入

## 1. 研究開始当初の背景

電波と光波の両方の性質を兼ね備え持つ、未開拓の光、テラヘルツ(THz)光は、近年、特定試薬・化学物質・構造等を非破壊かつ安全に検出するテラヘルツ分光イメージングの光源として大変注目され、郵便物検査、覚醒剤・爆発物所持検査、医薬品検査、病理組織診断等、幅広い分野での利用が急速に進みつつある。最近、半導体サブバンド間発光を利用したテラヘルツ帯量子カスケードレーザが実現され、小型、高効率、高出力、長寿命、狭線幅テラヘルツレーザ光源として大変に期待されている。

しかし、量子カスケードレーザは半導体超格子のサブバンド間発光を利用しているため、電子-LO フォノン散乱による非発光再結合確率が大変大きく、GaAs 系等の半導体を用いた場合、その散乱エネルギーに相当する 4-10 THz 帯のレーザ発振が得られない。この波長帯の欠損はテラヘルツイメージングの応用範囲を著しく狭める。今後、4-10 THz 帯の量子カスケードレーザの開発は大変重要である。

## 2. 研究の目的

上記のように、GaAs 系等の従来半導体を

用いた場合、その散乱エネルギーに相当する 4-10 THz 帯のレーザ発振が得られず、この波長帯の欠損はテラヘルツイメージングの応用範囲を著しく狭める。窒化物半導体の電子-LO フォノン散乱波長帯は 15-22 THz 帯と高エネルギー側にあるため、もし、窒化物半導体量子カスケードレーザが実現すれば、これまで不可能であった 4-10 THz 帯のレーザ発振が可能になると考えられる。

窒化物半導体を用いた量子カスケードレーザの研究は、いくつかの技術的な困難のため、いまだ着手されていない。本研究では、窒化物半導体を用いて量子カスケードレーザを作製することにより、これまで不可能であった 4-10 THz 帯を含む遠赤外-THz レーザ発振を実現することを目的とする。

### 3. 研究の方法

窒化物半導体を用いた量子カスケードレーザの実現には、いくつかの大きな技術的ハードルが存在する。本研究ではそれらの問題点を、以下に列挙する方法で克服し、テラヘルツ量子カスケードレーザを実現する計画である。

第一の問題点は、窒化物半導体はイオン性結晶に近いため、超格子層に強力な自発分極・ピエゾ電界が発生しポテンシャルが激しく傾き、複雑な量子構造設計が困難である点である。本研究では、自発分極が極小となる窒化物混晶の組成を選ぶことにより、量子構造設計を可能とする計画である。青色-紫外発光デバイスとしてすでに用いられている、InGa<sub>N</sub> (窒化インジウムガリウム) ならびに AlGa<sub>N</sub> (窒化アルミニウムガリウム) ではピエゾ電界が大きく、また、内部歪が無い場合でも自発分極が発生する。一方、我々が長年扱ってきた InAlGa<sub>N</sub> 窒化物 4 元混晶を用いると、超格子の内部電界が大変小さく、InGa<sub>N</sub> 系量子井戸の数十分の 1 であることが観測されている。したがって、本研究では、InAlGa<sub>N</sub>/InAlGa<sub>N</sub> 4 元混晶超格子を採用することにより、内部自発分極を極小に押さえ、高効率サブバンド間発光が可能な量子構造を実現する計画である。

また第二の問題点は、窒化物半導体では電子-LO フォノン散乱確率が GaAs 系半導体などと比べ数倍大きく、量子効率の低下を招くことである。この点に関しては、電子-LO フォノン散乱の高速過程を逆に利用し、THz 発光の基底準位の電子を高速に抜き取り反転分布を起こしやすくする方法を用いる。この、電子-LO フォノン散乱による反転分布アシスト型の量子構造を採用することにより、従来と遜色無い発光効率を実現する計画である。

また、これらの原理的な問題点に加え、窒化物半導体超格子の作製技術の開拓が必要で

ある。量子カスケードレーザ実現のためには、原子層レベルで急峻なヘテロ界面を持つ多層 (2000 層程度) 超格子の作製が必要である。そのため、窒化物 MBE 成長技術を洗練させる必要がある。特に InAlGa<sub>N</sub> 4 元混晶の MBE 成長に関してこれまでその報告例はほとんど無く、高品質超格子構造の作製は新たな挑戦である。これらの技術は、これまで窒化物 MBE 成長を長年行ってきた共同研究者の経験を生かして立ち上げる。

これらの方法を用いて、初めての試みである窒化物半導体量子カスケードレーザを作製し、未踏波長である 4-10 THz 帯を含む、遠赤外-THz 帯のレーザ発振を実現させる。

### 4. 研究成果

本研究では THz 領域の未踏波長である 5-12 THz 量子カスケードレーザの実現を目指し、窒化物半導体を用いた QCL の作製を行った。作製した、窒化物半導体テラヘルツ帯量子カスケードレーザ(QCL)の概念図を図 1 に示す。

テラヘルツ帯の光利得は、窒化物 GaN/InAlGa<sub>N</sub> 半導体超格子層のサブバンド間遷移発光を用いて得る。1 周期あたりの光利得は、LO フォノン散乱による非発光再結合により小さいが、量子カスケード構造を 200 周期程度積層し、電子を階段状に遷移させることにより、トータルとして必要な光利得を得る。量子構造は、LO フォノン散乱による反転分布アシストタイプを採用した。すなわち、図 1 に示すように、カスケード構造の 1 周期において THz 発光エネルギー準位と電子-LO フォノン散乱準位を含む 3 準位系を形成し、高速の LO フォノン散乱プロセスにより THz 発光の下準位の電子を効率よく抜き取ることにより、反転分布を助長する構造を用いた。この構造を用いることにより、比較的高い LO フォノン散乱確率を持つ窒化物半導体においても、比較的大きな光利得が得られると考えられる。

レーザ導波路構造を以下のように形成した。半導体ドーピング層は THz 領域では大きな吸収損失層となるため、ドーピング層を含む誘電体閉じ込め導波路は利用できない。したがって THz 半導体レーザでは、金属プラズモン導波路が使われる。両面金属プラズモン導波路が、高い光閉じ込め (98% 以上) を得るために理想的であるが、その場合、金属層を挟んで半導体を接合するため作製プロセスが煩雑になる。本研究では、片面金属、片面は n 型ドーピング層を用いたプラズモン導波路を作製した。この構造を用いた場合、数十%の光閉じ込めと低い導波路損失が得られ、レーザ素子としても十分な特性が期待できる。

これらの原理に基づき、図1の素子構造を作製した。サファイア基板と高品質 GaN バッファからなるテンプレート、あるいは、低貫通転位密度の GaN 単結晶基板上に、プラズモン導波路の下側層となる n-GaN を成長し、その上に全層厚 $\sim 10\mu\text{m}$ の GaN/InAlGaN 超格子活性層 (約 200 周期) を成長した。サンプル結晶成長後、塩素系ドライエッチングにより共振器ストライプを形成し、その後、プラズモン導波路の上側金属層と下側電極を形成し、へき開により共振器ミラーを形成した。共振器長は 3mm 程度とした。また共振器の片端面に SiO<sub>2</sub>/Cr/Au 高反射膜を蒸着により形成した。

出来上がった素子は、TO 型マウントに貼り付け、ワイヤーボンディングにより結線し、THz-FTIR を用いて電流注入により発光スペクトル測定を行った。レーザ動作温度は低温であることが予測されるため、5.5K まで冷却可能なクライオスタットを用いて測定した。

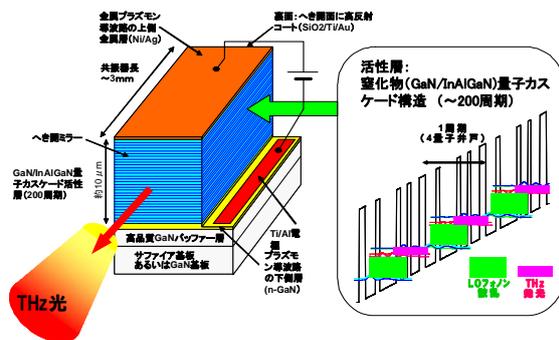


図1、作製した窒化物半導体テラヘルツ量子カスケードレーザ構造

C 軸方向に成長された窒化物半導体ではピエゾ電界による強い自発分極が生じるため、超格子の電界が大きく傾き量子構造の設計が大変難しい。本研究では内部電界をできるだけ少なくするために GaN/InAlGaN を用いた無歪超格子による QCL 活性層を初めて提案した。GaN 系 QCL は初めての試みであり、レーザ発振が可能な QCL 構造の設計はまだ行われていない。本研究ではまずシミュレーション計算によって窒化物半導体 QCL の発振が可能かどうかの検証を行った。図2に GaN 系 QCL の動作時のバンドプロファイルの解析結果を示す。各量子準位の波動関数から、各準位間の電子-電子散乱、電子-LO フォノン散乱確立を求め、THz 発振準位間で反転分布が起こるかどうかの検証をおこなった。その結果、閾値電流密度は大きくなるものの、発振動作が可能であることが GaN 系量子カスケード構造で検証された。

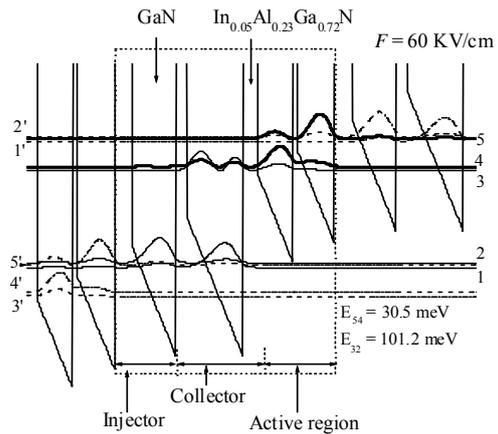


図2、GaN 系 QCL の動作時のバンドプロファイルの解析結果

設計した GaN/InAlGaN 超格子構造を作製するために、我々は窒化物半導体専用の RF-MBE 結晶成長装置を構築し、GaN および InAlGaN 混晶の高品質結晶成長を行った。成長温度を変化させることによって InAlGaN 混晶中の In 組成を制御できることを見出し、適切な成長温度を用いることで GaN に格子整合した InAlGaN 薄膜が形成できることを明らかにした。図3に RF-MBE 法によって作製した GaN/InAlGaN 超格子構造の断面透過電子顕微鏡 (TEM) 像を示す。原子 1 層の精度で制御された急峻なヘテロ界面を持つ超格子が形成された。

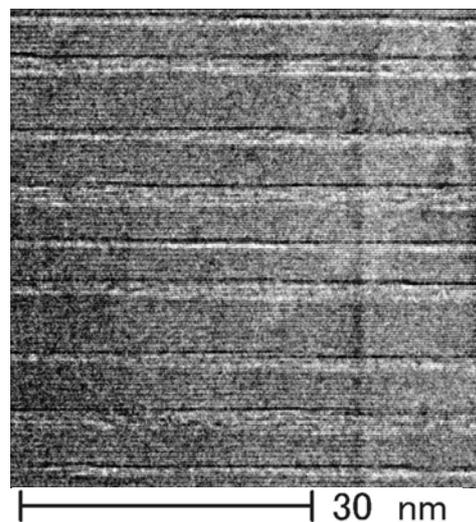


図3、作製した GaN/InAlGaN 系 QCL の断面 TEM 像

GaN/InAlGaN 系無歪超格子の MBE 成長において、In の組成制御は欠かせない。MBE

方で InAlGa<sub>N</sub> を成長した例はこれまでほとんどないため、本研究で、InAlGa<sub>N</sub> の In 組成制御を行った。図 4 に MBE で成長した InAlGa<sub>N</sub> の X 線回折測定結果の成長温度依存性を示す。成長温度を 700°C から 900°C まで変化させることにより Al 組成を変化させることなく、In の組成を 0~19% の範囲で制御することに成功した。この方法を用いて GaN/InAlGa<sub>N</sub> 無歪超格子の作製を行った。

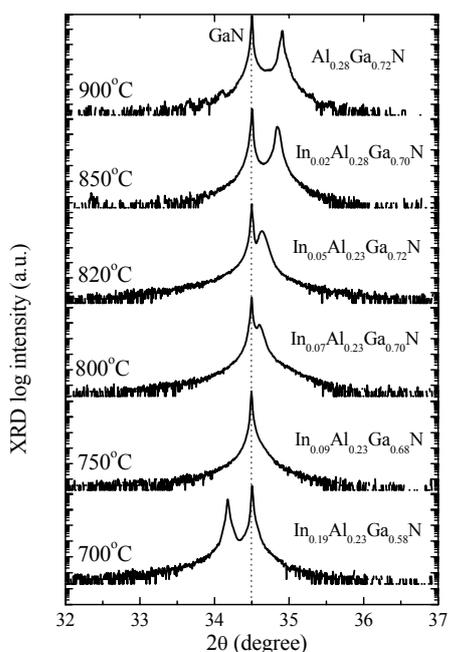


図 4、MBE で成長した InAlGa<sub>N</sub> の X 線回折測定結果の成長温度依存性

作製した GaN 系 QCL 構造に電流注入を行い THz 発光の観測を試みた。観測結果を図 5 に示す。パルス電流注入を行い、FFT アナライザーを用いパルス周波数に対応するシグナルの観測を行った。THz 光の観測は 4K に冷やした Si ボロメーターを用いた。温度 20K において、電流 8A 注入時に発光が観測され、FTIR 測定を行うことにより発光周波数は 1.4 THz であることが分かった。また、発光スペクトルの半値幅から自然放出光であると考えられる。

GaN 系超格子からの電流注入バンド内遷移発光はまだ報告例が無く、本結果は初めて窒化物半導体 QCL 実現の可能性を示す結果である。今後、結晶の高品質化、量子構造、素子構造の最適化等を順次行うことにより、高強度窒化物バンド内発光と THz 帯レーザ発振を実現していく予定である。

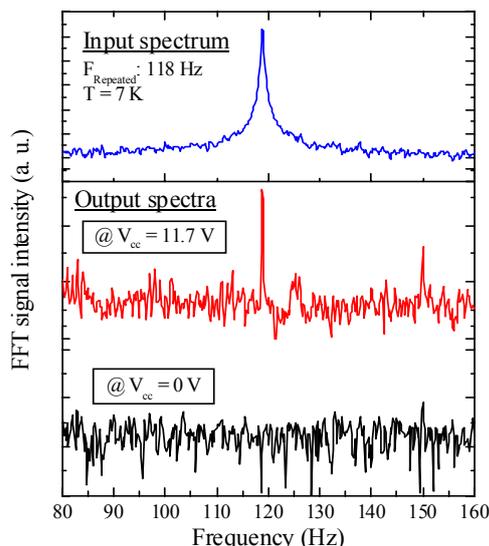


図 5、FFT アナライザーによる低温 20K における GaN/AlGa<sub>N</sub> 系 QCL 構造からの電流注入発光の確認

## 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)

W. Terashima and H. Hirayama: "Design and fabrication of terahertz quantum cascade structure based on III-Nitride semiconductors", *Physica Status Solidi (c)*, 6(S2), S615-S618 (2009).査読有

L Ying, N. Horiuchi and H. Hirayama: "Ag-metal bonding condition for low-loss double-metal waveguide of terahertz quantum cascade laser", *Jap. J. Appl. Phys.*, 47(10), 7926-7928 (2008).査読有

[学会発表] (計 15 件)

Terashima W. and Hirayama H. : "Investigation of quantum cascade lasers based on III-nitride semiconductors in the terahertz frequency range", 33<sup>rd</sup> International Conference on Infrared and Millimeter Waves, 16<sup>th</sup> International Conference on Terahertz Electronics (IRMMW-THz 2008), Pasadena California, Sept. (2008).

Hirayama H. : "Development of Deep-UV and terahertz semiconductor emitting devices and their applications (invited)", 13th International Micromachine/ Nanotech Symposium , Tokyo , July (2007).

[図書] (計 1 件)

平山秀樹: "量子カスケードレーザによる中赤外、テラヘルツ波の発生", 平成 18 年度光技術動向調査, pp.375-380 (2007).

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

〔その他〕

新聞報道（計1件）

日刊工業新聞、“独創研究集団、理研の最前線、量子カスケードレーザーへの期待”、2008年8月5日。

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

平山 秀樹 (Hirayama Hideki)

独立行政法人理化学研究所・テラヘルツ量子素子研究チーム・チームリーダー

研究者番号： 70270593

### (2) 研究分担者

寺嶋 亘 (Terashima Wataru)

独立行政法人理化学研究所・テラヘルツ量子素子研究チーム・研究員

研究者番号： 30450406

池田 典明 (IkedaNoriaki)

独立行政法人理化学研究所・テラヘルツ量子素子研究チーム・研究員

研究者番号： 90267477