

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月31日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2011

課題番号：21246005

研究課題名（和文）窒化物半導体を用いた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 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（和文）：

GaN/AlGaN 系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/AlGaN 系量子カスケード構造の作製を行い、世界で始めて窒化物半導体からの THz 周波数のバンド内遷移自然放出发光を実現すると共に、発光の偏波依存性などから発光の起源を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Terahertz quantum-cascade lasers (THz-QCLs) are small-size, narrow line-width, cw and high-power THz laser light sources and are attractive for a lot of applications. We have developed GaN/InAlGaN THz-QCLs by employing a longitudinal-optical (LO) phonon depopulation scheme, for the purpose of achieving undeveloped frequencies, i.e., 5-12 THz. We achieved first observation of spontaneous emission from nitride-based GaN/AlGaN semiconductor superlattices (SLs) intersubband levels by current injection. We confirmed the origin of the THz spontaneous emission by using polarization dependence of emission from the QCL structures.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	18,900,000	5,670,000	24,570,000
2010年度	13,600,000	4,080,000	17,680,000
2011年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
総計	35,900,000	10,770,000	46,670,000

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、自然放出发光、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非常に大きく、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、現在の未踏波長である5-12THz帯を含めた広い波長域での量子カスケードレーザの開発が大変重要である。

## 2. 研究の目的

研究背景で述べたように、GaAs系など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5-12 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5-12 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5-12 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克服しテラヘルツ量子カスケードレーザを実現する。

窒化物半導体はイオン性結晶に近いので、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難しい。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。InAlGaN窒化物4元混晶を用いGaNと格子マッチングさせることにより超格子にかかるピエゾ電界は最小になる。本研究では、InAlGaN/GaN超格子を採用し、内部自発分極を極小に抑え、高効率サブバンド間発光が可能な量子構造を実現する。

また、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、高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、バンド間遷移を利用した青色LEDなどでも問題になっているように、バンド無い遷移発光も貫通転位密度の影響を強く受けると考えられる。これまで、窒化物超格子発光に対する転位の影響などの報告例は無く、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5-12 THz帯レーザ発振を試みる。

## 4. 研究成果

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。図1に作製したGaN系THz-QCLの構造模式図を示す。構造はサファイア基板上的GaNバッファ層、n+GaNプラズモン導波路層、GaN/InAlGaN無歪超格子活性層、銀プラズモン導波路金属層から構成される。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。内部電界を考慮した設計がGaN系QCLでは必要である。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。本研究では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い、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を初めて検証した。設計したGaN/AlGaN超格子構造を、窒化物半導体専用のRF-MBE結晶成長装置を用いて作製した。断面透過電子顕微鏡(TEM)像から、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の形成が確認された。本研究ではGaN系QCLからの発光強度が貫通転位密度に大きく依存することを明らかにし、基板/バッファ層の高品質化による発光強度の増強を検討した。はじめ下地層

として、サファイア基板上的の GaN バッファ層を用いたが貫通転移密度が高いために発光が弱く FT-IR での発光測定が難しかった。GaN 基板あるいはサファイア上の高品質 AlN バッファ層を用いることで、発光強度は著しく増加し、QCL 構造からの THz 発光観測が可能になった。成長サンプルは、ドライエッチングプロセスなどを経てデバイス加工し、電極形成後ワイヤーボンディングを行った。

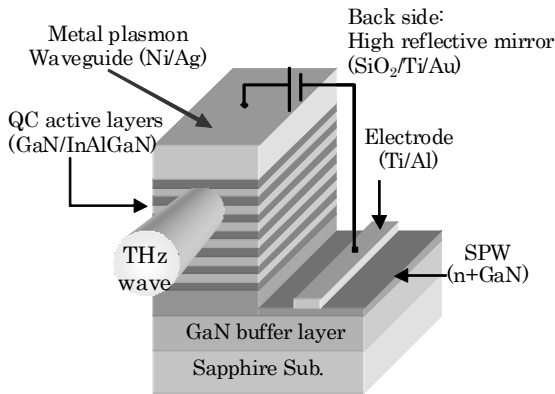


図 1. GaN 系 THz-QCL の構造図

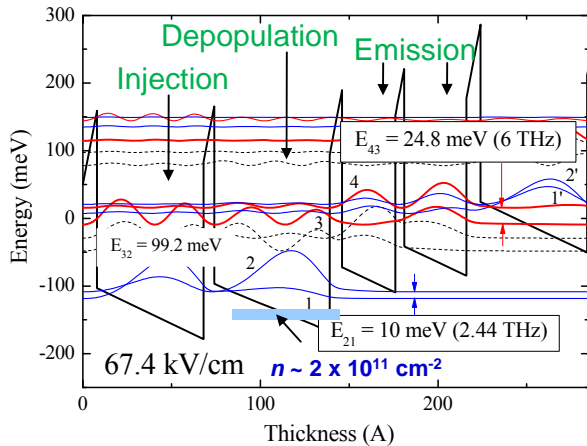


図 2. GaN/AlGaIn THz-QCL のバンドプロファイルの解析結果

図 3 に作製した GaN/AlGaIn 系 QCL の写真を示す。ストライプ幅は 100~150 $\mu\text{m}$  程度、共振器長は 1~3mm とした。測定を効率よく行うため、同じバー上の 8 サンプルを同時にクライオスタットに導入し測定を行った。作製した GaN 系 QCL に電流注入を行い THz 発光の観測を試みた。観測結果を図 4 に示す。サンプルを約 20K に冷やし、パルス電流注入を行い、FT-IR を用いてスペクトルの観測を行った。THz 光の観測は 4K に冷やした Si ボロメーターを用いた。図 4 に示すように、電流注入により THz 帯の自然放射発光を観測し

た。本研究では以下の方法を用いて、この発光が量子構造からの自然放射発光であることを確認した。まず、QCL への準方向電圧印加の時のみ発光が確認され、逆方向の場合には観測されなかった。また、出てきた光の偏波依存性から (図 4) 量子構造からの発光であることを確認した。また、自然放射発光の発光波長の印加電圧依存性が理論計算と良く一致したことから、量子構造からの発光であることが示された (図 5)。本サンプルはシングル金属プラズモン導波路を用いているため導波路ロスが大きく、レーザ発振が得られない原因となっていると考えられる。今後、ダブル金属プラズモン導波路(DMW)の構築プロセスを構築し、低損失導波路構造を導入することで GaN 系 QCL の THz 帯レーザ発振の可能性が高まると考えられる。

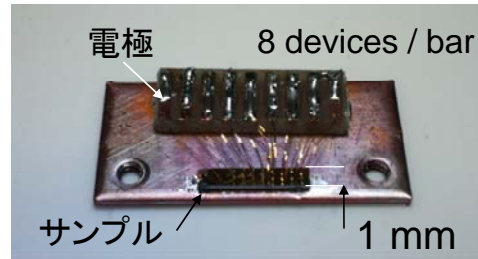
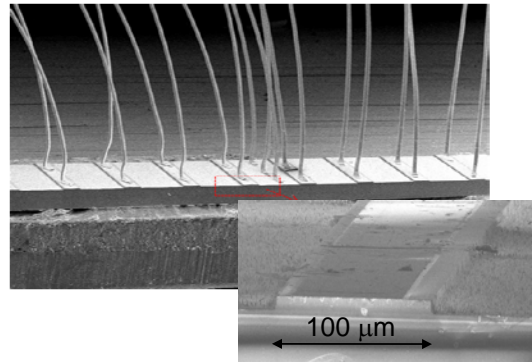


図 3. GaN/AlGaIn THz-QCL の外観

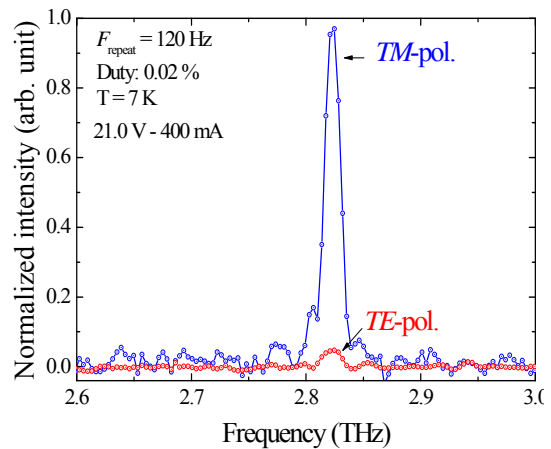


図 4. GaN 系 QCL からの電流注入 THz 発光の観測結果 (偏波依存性)

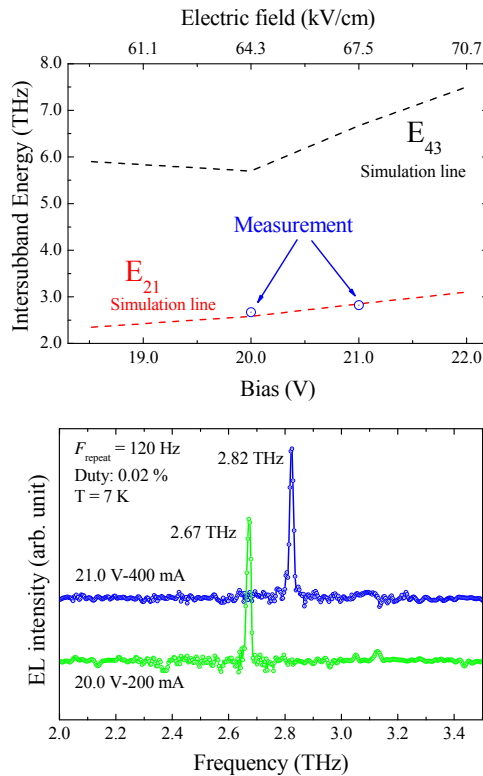


図5、QCL 発光波長の印加電圧依存性（上：計算値、下：測定スペクトル）

## 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6件）

1. T. T. Lin, L. Ying and H. Hirayama: “Threshold current density reduction by utilizing high-Al-composition barriers in 3.7 THz GaAs/AlGaAs quantum cascade lasers”, Appl. Phys. Express, Vol. 5, 012101, 2011. 査読有り
2. W. Terashima and H. Hirayama: “Development of terahertz quantum cascade laser based on III-nitride semiconductors”, The Review of Laser Engineering, Vol. 39, No. 10, 769-774, 2011. 査読有り
3. W. Terashima and H. Hirayama: “Molecular beam epitaxy growth of GaN/AlGa<sub>N</sub> quantum cascade structure using droplets elimination by thermal annealing technique”, Phys. Status Solidi A, Vol. 1, 1-4, 2011. 査読有り
4. W. Terashima and H. Hirayama: “Spontaneous emission from GaN/AlGa<sub>N</sub>

terahertz quantum cascade laser grown on GaN substrate”, Phys. Status Solidi C, Vol. 8, 2302-2304, 2011. 査読有り

5. W. Terashima and H. Hirayama: “The Utility of Droplet Elimination by Thermal Annealing Technique for Fabrication of GaN/AlGa<sub>N</sub> Terahertz Quantum Cascade Structure by Radio Frequency Molecular Beam Epitaxy”, Appl. Phys. Express, Vol. 3, 12550-1-13, 2010. 査読有り

6. W. Terashima and H. Hirayama: “Design and fabrication of terahertz quantum cascade structure based on III-Nitride semiconductors”, Phys. Status Solidi C, Vol. 6, S614-S617, 209. 査読有り

〔学会発表〕（計18件）

1. H. Hirayama: “Recent progress of THz quantum cascade lasers (invited)”, The 4th Japan-Korea Joint Workshop on Terahertz Technology, Nagoya, Japan, 2011/12/19-20.
2. W. Terashima and H. Hirayama: “Terahertz intersubband electroluminescence from GaN/AlGa<sub>N</sub> quantum cascade laser structure on AlGa<sub>N</sub> template”, IRMMW-THz 2011, Houston, U.S.A., 2011/10/2-7.
3. T. T. Lin, L. Y. Ying and H. Hirayama: “Significant reduction of threshold current density of GaAs/AlGaAs terahertz quantum cascade lasers by using high-Al-content AlGaAs barrier”, IRMMW-THz 2011, Houston, U.S.A., 2011/10/2-7.
4. S. Matsumoto, W. Terashima, T. Yasuda and H. Hirayama: “Au/Al-Metal Bonding Conditions for Double Metal Waveguide on GaN based Terahertz Quantum Cascade Laser Structure”, IRMMW-THz 2011, Houston, U.S.A., 2011/10/2-7.
5. T. T. Lin and H. Hirayama: “Temperature dependence of threshold current density of GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>(1-x)</sub>As terahertz quantum cascade lasers with different Al composition”, ITQW2011, Badesi, Italy, 2011/09/11-16.
6. W. Terashima and H. Hirayama: “Terahertz electroluminescence from intersubband levels in quantum cascade laser based on III-Nitride semiconductors”, ITQW2011, Badesi, Italy, 2011/09/11-16.
7. W. Terashima and H. Hirayama: “2.67-2.82 THz intersubband emission from GaN/AlGa<sub>N</sub> quantum cascade structure”, ICNS-9, Glasgow, UK., 2011/07/10-15.

8. W. Terashima and H. Hirayama: “First Observation of Spontaneous Emission on Injection Current from GaN/AlGa<sub>N</sub> Terahertz-Quantum Cascade Laser”, IWN2010, Florida, U.S.A., 2010/09/19-24.

9. 寺嶋亘、平山秀樹: “GaN/AlGa<sub>N</sub> THz-QCLからの電流注入による自然放出光の観察”、2010年秋季第71回応用物理学会学術講演会、長崎大学、2010/09/14-17.

10. W. Terashima and H. Hirayama: “Spontaneous Emission from GaN/AlGa<sub>N</sub> based Terahertz Quantum Cascade Laser Structure grown on GaN Substrate”, IRMMW-THz 2010, Rome, Italy, 2010/09/5-10.

11. W. Terashima, S. Matsumoto and H. Hirayama: “RF-MBE Growth of Terahertz Quantum Cascade Structure on GaN Substrate using Droplets Elimination by Thermal Annealing Technique”, ISGN3, Montpellier, France, 2010/07/4-8.

12. 寺嶋亘、平山秀樹: “GaN系THz-QCLからの電流注入による自然放出光の観測(招待講演)”、ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第162委員会 第69回研究会、キャンパスイノベーションセンター東京、2010/05/07.

13. 寺嶋亘、平山秀樹: “窒化物半導体を用いた未踏周波数領域テラヘルツ帯量子カスケードレーザの開発研究(招待講演)”、財団法人光科学技術振興財団平成19年度研究助成成果報告講演会、浜松、2010/03/04.

14. W. Terashima, L. Ying and H. Hirayama: “Fabrication of device structure for GaN/AlGa<sub>N</sub> terahertz quantum cascade laser”, 8<sup>th</sup> International Conference on Nitride Semiconductors, Jeju, Korea, 2009/10/22.

15. 寺嶋亘、應磊瑩、平山秀樹: “GaN/AlGa<sub>N</sub>系THz帯量子カスケードレーザ構造の作成と評価(招待講演)、H21年度共同プロジェクト研究会「量子カスケードレーザの高性能化と応用に関する研究」、東北大学、2009/11/04.

16. L. Ying, N. Ikeda and H. Hirayama: “Ag-metal bonding conditions for low-loss double-metal waveguide for terahertz quantum cascade laser”, The 34<sup>th</sup> International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves 2009, Busan, Korea, 2009/09/24.

17. 應磊瑩、堀内典明、寺嶋亘、平山秀樹: “Agを用いた両面金属導波路を有するTHz量子カスケードレーザの作製”、エクストリームフォトニクスシンポジウム、和光本所、2009/05/20.

18. 寺嶋亘、應磊瑩、平山秀樹: “窒化物半導体を用いたTHzカスケードレーザの構造設計と素子作製”、エクストリームフォトニクスシンポジウム、和光本所、2009/05/20.

[その他]

<http://www.riken.jp/lab/THz-device/index.html>

## 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・基幹研究所研究員  
研究者番号: 30450406

池田 典明 (IKEDA NORIAKI)  
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

### (3) 連携研究者

なし