目次

第 1 章　序論
第 1 節　はじめに　1
第 2 節　サブバンド間遷移　2
第 3 節　量子カスケードレーザ　3
第 4 節　本研究の目的　5
第 5 節　本論文の構成　5

第 2 章　量子カスケードレーザ
第 1 節　発展の歴史　7
第 2 節　分類　9
第 1 項　材料による分類　9
第 2 項　発光層構造による分類　11
第 4 節　高性能化に向けた新規デバイス　15
第 1 項　量子ドットとの融合　15
第 2 項　周期構造の導入　17

第 3 章　GaAs 系 10μm 帯量子カスケードレーザの作製とその基礎特性評価
第 1 節　サンプル構造　20
第 2 節　結晶成長　22
第 3 節　プロセス　26
第 4 節　電流・電圧・光出力特性評価　29
第 1 項　基礎特性　29
第 2 項　閾値電流密度の温度依存性　30
第 3 項　内部損失の測定　31
第 5 節　スペクトル特性評価　32
第 6 節まとめ　33

第 4 章　閾値電流密度を中心とするレーザ特性の理論的解析
第 1 節　はじめに　34
第 2 節　量子準位と包絡関数　36
第 3 節　緩和時間　42
第 4 節　振動子強度、量子効率　45
第 5 節　利得スペクトル　46
第 6 節　閾値電流密度　47

第 1 項　温度依存性　～実験との比較～ 47
第 2 節　膜厚誤差依存性 52
第 7 節　自己無頓着法による解析 54
第 8 節　まとめ 58

第 5 章　フォトニック結晶を有する量子カスケード発光素子の設計とその試作
第 1 節　背景と目的 59
第 2 節　スラブ型導波路の設計 60
第 1 項　3 層対称スラブ導波路の解析 62
第 2 項　多層スラブ導波路の解析 75
第 3 節　分布反射器の設計 80
第 1 項　格子間隔 82
第 2 項　三角孔の大きさ 84
第 3 項　三角孔の角度 85
第 4 項　基板のフォトニックバンド構造への影響 86
第 5 項　三角孔深さ 88
第 4 節　共振器の設計 89
第 5 節　フォトニック結晶微小共振器の試作 91
第 6 節　まとめ 96

第 6 章　結論 97
第 7 節　今後の方針 98

Appendix1　AlGaAs 層直後の成長中断のデバイス特性に及ぼす影響について 99
Appendix2　TE、TM-like 基底モードの規格化周波数の大小関係について 100

参考文献 104
本研究に関する発表 109
謝辞 110

第 1 章

序論

第 1 節　はじめに

近年、光と電波の狭間にありに未開拓周波数帯として残されてきた中赤外から THz 領域が注目を浴びている。その波長領域は物性、分子分光、生命科学、化学、薬品科学などの基礎分野から環境モニタリング、生体・医療、超高速大容量無線通信、イメージングシステなどの広範囲な応用分野への展開が期待されているためである。

一般に半導体光デバイスは、その動作に価電子帯 - 伝導帯遷移を用いるため、赤外領域の光デバイスを作製するためには、そのバンドギャップが赤外光の光子エネルギー程度（典型的には数十～数百 meV）の半導体を準備する必要がある。しかし、長波長領域におけるレーザを実現するために、InAs や InSb などの狭バンドギャップバルク半導体を活性層として用いると、Fig.1-1 に示すように、長波長化になるに従い動作温度が急激に低下してしまう [1]。これはエネルギーギャップが減少するに従い、電子が価電子帯に遷移するとき、同時に伝導帯中の電子を伝導帯のよりエネルギーの高い状態へたたき上げる、非発光過程のオージェ再結合確率が増加するためである。その確率はバンドギャップエネルーE_g が小さくなると $\exp(-E_g / k_B T)$ に比例して増大する。また波長の 2 乗に比例して自由キャリアによる光の吸収損失が大きくなることも関係している。

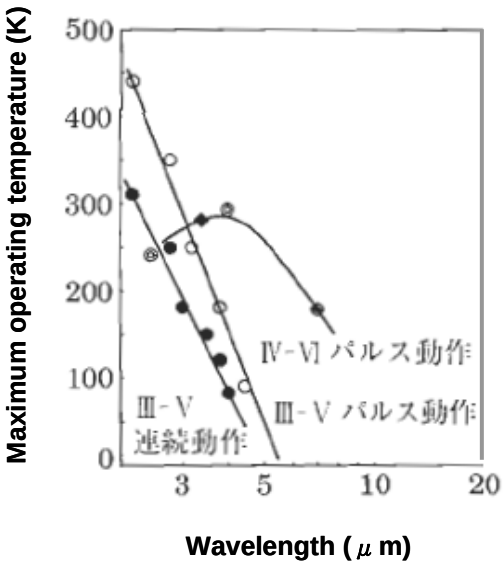


Fig.1-1. Wavelength dependence of T_{max} on interband semiconductor lasers. [Reprinted from reference1]

この問題を解決する方法として、サブバンド間遷移に伴う発光を用いたデバイスが近年、注目されている。

ポテンシャル障壁により電子・正孔をド・ブロイ波長程度の寸法に閉じ込めた量子井戸、量子細線、量子ドット中には、量子閉じ込めに起因する量子準位がポテンシャル井戸内に形成される。これらの量子準位間のエネルギー差は、典型的には数～数百 meV 程度であり、それらの間の遷移（サブバンド間遷移）を用いることにより GaAs や Si など、バンドギャップが 1eV 以上ある半導体をベースとする構造を用いて、長波長光デバイスが実現されつつある。

第 2 節　サブバンド間発光

サブバンド遷移を利用したデバイスにおいては長波長デバイスが実現できる以外にもバンド間遷移を利用したデバイスにはない様々な利点がある。それを以下に述べる。

先ず 1 つ目に発光、及び吸収波長を広範囲で制御可能なことが挙げられる。従来のバンド間遷移を利用した半導体レーザ、及び光検出器において、遷移エネルギーは材料によってほぼ決まるため、望む波長に見合ったバンドギャップをもつ材料を探さなければいけない。しかし高い障壁で挟まれた幅 L_{w} の量子構造をもつ半導体中においてはおおよそ

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m^*}\left(\frac{n\pi}{L_{\mathrm{w}}}\right)^2 \qquad (1\text{-}2\text{-}1)$$

で表されるエネルギー位置に量子準位が形成され、これらの準位間のエネルギー差は数 meV～数百 meV 程度であり、サブバンド間遷移を用いたデバイスにおいては幅 L_{w} を変化させるだけで、同じ材料であっても中赤外から THz 領域までの様々な光を発振させることが原理的には可能である。

2 つ目にはサブバンド間遷移においては発光スペクトル幅が非常にシャープな点が挙げられる [2,3]。Fig.1-2 にバンド及びサブバンドの *E-k* 関係を示す。一般にバンド間遷移の場合には電子、正孔の分散が逆方向の放物線を描くため、異なる波数をもったキャリアは異なるエネルギーで遷移する。したがって遷移のスペクトル幅はキャリア数とともに広がる。それに対し、サブバンドの分散関係はバンドの非放物線性が無視できるときには平行な分散となり、そのエネルギー間隔は電子の波数には依存しない。したがって理想的には遷移スペクトルはキャリア数に依存せず、デルタ関数的なシャープなものになる。また、結合状態密度が離散的なことに起因して、利得が非常に大きいことも特徴として挙げられる。

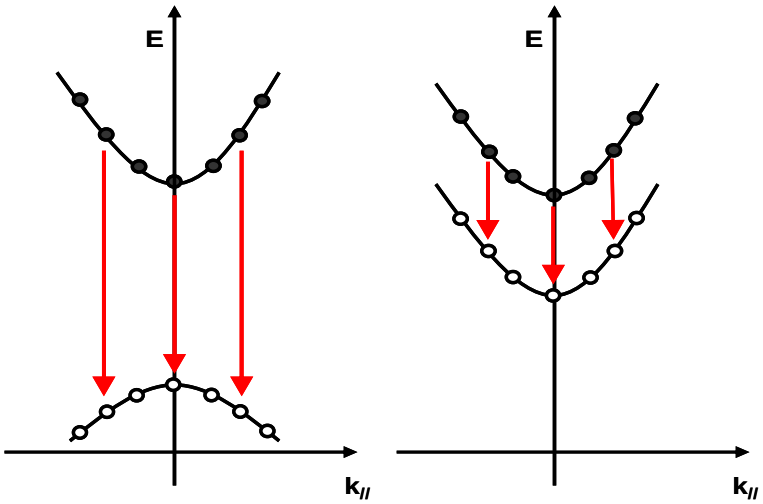


Fig.1-2. Schematics of interband and intersubband transition. While the former has different energy for every wave number *k*, the later has the same energy. This is the reason why line-width is narrow.

3 つ目にキャリアの再利用が可能であることが挙げられる。バンド間遷移による発光においては、電子は正孔と再結合するときに発光するため、1 つの電子は 1 度しか発光できない。それに対し、サブバンド間遷移による発光において、電子は発光後も量子準位に存在する。よって量子井戸を何層も積層したような構造を作製すれば一つの電子が何度でも発光に寄与することができる。これはキャリアリサイクリングと呼ばれており、高出力のレーザ光を得ることが可能である。

第 3 節　量子カスケードレーザ

このようなサブバンド間の遷移をレーザに応用するというアイディアは 1971 年、Kazarinov らによって提案された[4,5]。しかし量子準位間で反転分布を形成することは困難を極めた。無限大障壁に挟まれた量子井戸中の基底準位と第 1 励起準位間のダイポール遷移による発光寿命 τ_r は、

$$\frac{1}{\tau_r} = \frac{8\pi e^2 \hbar^2}{3c^3 \varepsilon_0 m_0} \cdot \frac{n_r^{\,3}}{\kappa} \cdot \frac{1}{\left(\dfrac{m^*}{m_0}\right)^3} \cdot \frac{1}{L_w^{\,4}} \cdot \frac{n^2 m^2}{\left(n^2 - m^2\right)} \qquad (1\text{-}3\text{-}1)$$

m_0 ：電子の質量

L_w ：量子井戸幅

κ ：結晶の比誘電率

n_r ：結晶の屈折率（＝$\sqrt{\kappa}$）

n, m ：サブバンドの指数を表す自然数

で与えられ、量子井戸幅 L_w の 4 乗に比例して長くなる。量子準位が式(1-2-1)で与えられることを考慮すると、2 つの準位間のエネルギーに対応する発光波長は量子井戸幅 L_w の 2 乗に比例することが容易に分かる。よっては発光波長の 2 乗にしたがって長くなる。たとえば材料系として GaAs を仮定し、λ ＝100 μ m の場合を考えると、τ_r は約 10 μ s 程度となる。一般に光学フォノンによる散乱時間 τ_{LO} はサブピコ秒のオーダーであるから、効率的に反転分布を実現するのは困難であった。

この困難さを解決したのが、当時ベル研の Faist らにより提案、実現された量子カスケードレーザ[6]である。Faist らは発光した後の下の準位での電子の寿命を小さくし、また τ_{LO} を大きくすることにより反転分布を実現することに成功した。Fig.1-3 に初めて実現された量子カスケードレーザの伝導帯のバンド構造、及び 3 つの準位の分散関係示す。この構造においては電界が印加した状態でバンドがほぼフラットになるようなチャープした短周期超格子電子注入領域（インジェクタ）から、励起準位（準位 3）に電子が注入され、サブバンド間遷移により準位 2 に遷移し発光する。準位 2 の電子寿命を短くし反転分布を実現するために､準位 1 と 2 のエネルギー差をほぼ光学フォノンエネルギーに等しくなるようにし、その準位間を光学フォノン散乱により高速に遷移させ、それを共鳴トンネル伝導により引き抜く仕組みになっている。また隣り合う異なる量子井戸に形成された量子準位間での遷移を利用することにより、障壁をトンネルするときに合金散乱をうけ、遷移時間を長くした。光学フォノン散乱の波数依存性により、準位 3-2 間の散乱時間（4.3ps）は準位 2-1 間の散乱時間（0.6ps）よりも長くなり、反転分布が実現された。

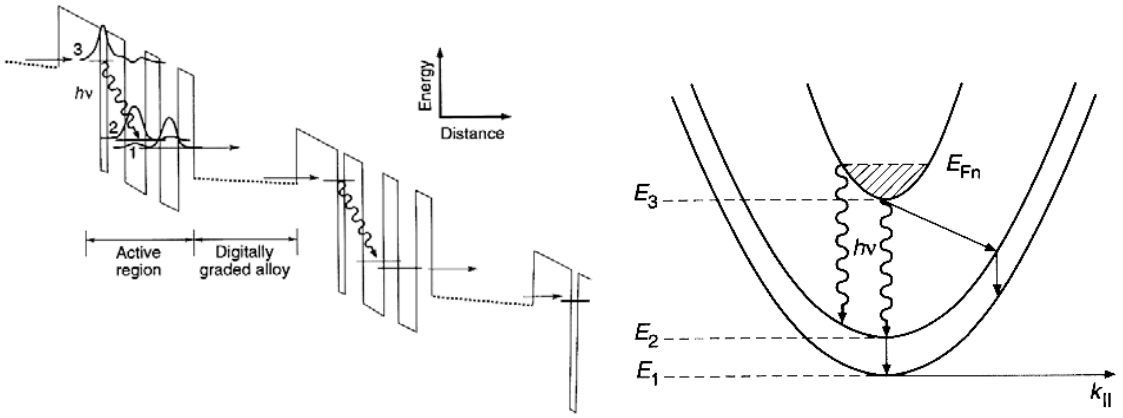


Fig.1-3. (a)Conduction band diagram of the first demonstrated quantum cascade laser. (b)Schematic representation of the dispersion of the n=1, 2, and 3 states parallel to the layers. The wavy arrows represent the radiative transitions and the straight ones do the intersubband optical-phonon scattering processes.

第 4 節　本研究の目的

前節で述べたように量子カスケードレーザの進歩は目覚しく、近年非常に注目されているが、問題点としては量子効率が小さく、閾値電流密度が大きいことや、サブバンド間での遷移に伴う発光は TM モードに偏光しており [7]、面に垂直方向から光は放出されないことなど挙げられる。量子効率の低さはサブバンド間発光デバイスの宿命ではあるが、サブバンド間での遷移においては光学遷移時間に比べて、非発光遷移過程である縦型光学フォノンの放出に伴う遷移過程の方が圧倒的に短く、非発光緩和過程が支配的であるためである。

筆者の所属する研究室では指導教員である荒川泰彦教授と榊裕之教授によって 1982 年提案された電子を 3 次元的に閉じ込める、後に「量子ドット」と名づけられる構造 [8] が半導体レーザの性能を飛躍的に向上させることや、次世代のコンピュータ、光通信方式と位置づけられている量子コンピュータ [9,10,11]、量子暗号通信 [12]、量子テレポーテーション [13,14] の基盤技術にとって、非常に重要な構造であることを証明してきた。またフォトニック結晶と呼ばれる光の波長程度の周期構造をもつ構造 [15] を利用することによって、発光効率を向上や、ナノメートルオーダーの微小構造中で起こる様々な光学現象の観測に成功している。

そこで筆者はこの近年注目されている量子カスケードレーザの飛躍的な性能向上、高機能化を目的に、「量子カスケードレーザと量子ドット、及びフォトニック結晶との融合」を長期的な目標と掲げることとした。

しかし、量子カスケードレーザの高性能化といえども、量子カスケード構造は一般的に数百層、多ければ千層にも及ぶ非常に高水準に制御された積層構造を有するため、高度な薄膜成長技術が必要であり、少なくとも国内においては発振に成功した報告例はそれほど多くはない。そこで筆者は室温パルス発振など高性能な特性を示すレーザとして評価されている、GaAs/AlGaAs10μm 帯量子カスケードレーザを作製し、作製技術の蓄積、及び基礎物性の評価、解析を行なうこととした。提案、実現されている幾つかの材料系の中で GaAs 系を選択したのは GaAs 基板上に形成される InAs 量子ドットとの融合を見据えてのことである。また、作製した量子カスケード構造とフォトニック結晶との融合による高性能、高機能デバイスの実現に向け、サブバンド間発光に適したフォトニック結晶微小共振器の設計を行なうこととした。

第 5 節　本論文の構成

本論文は全 7 章から構成されている。第 2 章では、先ず量子カスケードレーザに関してブレークスルーとなった重要な論文を紹介することで、発展の歴史を振り返ることとする。また、材料や構造による分類、高性能化、特に量子ドット、フォトニック結晶との融合に

関する取り組みを紹介する。第 3 章では GaAs 系 10μm 帯量子カスケードレーザの作製、基礎特性の測定、評価について述べる。第 4 章では実験から得られた特異な閾値電流密度の温度依存性の理論的解析を中心とした、量子カスケードレーザのデバイス物理全般について議論する。量子カスケードレーザとフォトニック結晶との融合による高機能化に向け、第 5 章では量子カスケードレーザに適したフォトニック結晶構造、及びその結晶への欠陥導入による微小共振器型発光素子の基礎設計について述べる。またそこでは、実際に設計した構造の試作についても述べる。第 6 章でそれらをまとめ、最後に第 7 章で今後の方針について述べる。

第 2 章

量子カスケードレーザ

第 1 節　発展の歴史

ここでは量子カスケードレーザに関する重要な論文を紹介することにより、現在までの発展の歴史を振り返ることとする。主要な論文を時系列にしたがってまとめたものを、Table.2-1 に示す。

Table.2-1. Timeline of significant QC-Laser developments.

Year	Topics	Author	Source
1971	First prediction of light amplification in intersubband transition	Kazarinov	Sov.Phys.Semicond
1994	First observation of intersubband Electroluminescence	J.Faist	Appl.Phys.Lett.
	First demonstration of QC lasers	J.Faist	Science
1995	CW operation at low temperature	J.Faist	Appl.Phys.Lett.
1996	Pulsed operation above R.T	J.Faist	Appl.Phys.Lett.
1997	DFB-QCLs	J.Faist	Appl.Phys.Lett.
	Superlattice QCLs (Hight Power lasers)	G.Scamarcio	Science
1998	First demonstration of trace-gas sensing using QC-DFB lasers	K.Namjou	Opt.Lett.
	QC micro-crlinder laser	C.Gmachl	Science
	GaAs/AlGaAs QCLs	C.Sirtori	Appl.Phys.Lett.
1999	Mode-Locking of QCLs	R.Paiella	Science
2002	CW operation above R.T	M.Beck	Science
	THz QCLs	R.Kohler	Nature
2003	QC sufface-emitting photonic crystal lasers	R.Colombelli	Science

1971 年 Kazarinov と Suris によって半導体量子井戸構造中に形成される同一のバンド内準位間での遷移において、光の増幅が可能であることが初めて提唱された [4,5]。これは 1970 年に Esaki、Tsu によって超格子構造が提案 [16] されてから 1 年後のことである。ここではいくつもの発光層をカスケード接続することや、反転分布に関して議論はされてはいるものの、そこで提案された構造は、空間電荷の影響により、均一な電界を印加するのが難しく、安定した電流を流すことが難しいものであった。

その後、当時ベル研究所の Sirtori、Faist、Capasso らによってサブバンド間での LO フォノン放出に伴う緩和時間についての基礎研究が精力的に行なわれ [17-29]、ついに 1994 年、Fiast らによってサブバンド間でのレーザ発振に成功した [6]。彼らはこの新規な半導体レーザを”Quantum Cascade Laser (量子カスケードレーザ)”と名づけた。

その後の発展は目覚しく、翌年には液体窒素温度での連続発振[30]、その翌年には室温でのパルス発振[31]が実現された。このような目覚しい発展は、電子の流れを高度に制御し、反転分布の大きさを増大させたり、利得定数を増大させたりするような、構造の最適化によって支えられたものである。

高性能なレーザ特性を示す活性層構造が設計されだすと、徐々に導波路構造の最適化にも研究範囲が拡大してきた。1997 年、量子カスケード分布帰還型レーザが実現され、単一モード発振が実現された[32]。それと平行して、高出力化や長波長化に向けた研究も進められ、超格子構造を利用した新たな発光層構造が提案、実現された[33]。この構造は、それまでの離散準位間での遷移に伴う発光を利用したものではなく、超格子構造中に形成される連続準位間での遷移を利用したものであり、反転分布を得るために要する構造設計の労力が低減さる。また、それまでの構造における、反転分布を得ることができる最小のエネルギー差よりも小さなエネルギー差の準位間においても、比較的容易に反転分布を得ることができたり、それまでの構造に比べて大きな電流を流すことができたりする。前者は長波長化に、後者は高出力化に大きく貢献することとなった。

1998 年にはマイクロディスク型[34]、マイクロシリンダー型[35]の微小共振器を有するレーザも開発された。また同年、量子カスケード DFB レーーザを用い、はじめての環境汚染物質の同定に関する応用研究がなされ[36]、この時期から量子カスケードレーザの実用化に向けた応用研究もスタートする。

それまでのレーザは全て InP 基板上に成長された、InGaAs/AlInAs 系であるのに対して、Sirtori らは GaAs 基板上に成長した GaAs/AlGaAs 系量子カスケードレーザを作製し、発振に成功した[37]。この成果は、それまでの量子カスケードレーザの発展を支えてきた構造設計の最適化というバインドエンジニアリングと呼ばれる分野に、新たに、材料から高性能化へのアプローチという新たな境地を切り開いた。この後、様々な材料系の量子カスケードレーザが提案、実現されていくこととなる。詳細は次節に譲ることとする。

翌年の 1999 年には、Paiella によってモード同期による量子カスケードレーザの高速動作が実証され、中赤外以上の長波長領域における超短パルスレーザの実現に道が開かれることになった。

量子カスケードレーザの誕生以来、最も重要な研究テーマの 1 つが高温動作化であり、多くの研究者が室温での連続発振の実現を目指した。そんな中、2002 年ついに Beck らによって初めて室温連続発振が実現された[38]。彼らが室温連続発振を実現できたのはバンド構造の最適化と埋め込み導波路構造の採用にある。発光後の電子が高速に緩和する準位 1 の更に下にもう 1 つ LO フォノンのエネルギー分だけ低い準位を形成させることによって、発光後の電子を従来型よりも高速に緩和させる構造を設計した。また、熱伝導率の大きい InP で活性層を埋め込むことによって、活性層で発生する熱を上手く周りに逃がすことができる構造を採用した。

同年に発表されたもう一つの大きな成果として、THz 領域での初めてのレーザ発振が挙

げられる。長波長化も高温動作と並ぶ主要なテーマであったが、長波長になるにつれ自由キャリア吸収による損失が大きくなるうえに[39]、選択的に所望の準位にキャリアを注入することが困難になるため、素子設計は困難なものであった。Kohler らはモンテカルロシュミレーションによる電子輸送計算を行ない、それまでの LO フォノン散乱のみではなく、電子電子散乱まで考慮すれば、THz 領域においても反転分布が形成されることを見出した[40]。観測された発振波長は 8K で 67μm であり、パルス最高動作温度は 50K であった。この後の長波長化、高温動作化の進展は著しく、現在の最長波長[41]、パルス最高動作温度[42]、連続最高動作温度[42]はそれぞれ、188μm、164K、117K である。

2003 年、Colombelli らは 2 次元フォトニック結晶構造を利用することにより、面発光型の量子カスケードレーザを実現した[43]。サブバンド間発光は TM モードに偏光しているため一般には面方向のみにしか光は放出されないが、周期構造を導入し高次の回折光を利用することで面発光型レーザを実現した。この成果は量子カスケードレーザからの観点のみではなく、フォトニック結晶からの観点においても電流注入型である点において非常に注目を集めた。

第 2 節　分類

第 1 項　材料系による分類

量子カスケードレーザの特徴として、波長が材料ではなく構造に依存していることが挙げられる。しかし、ある材料系で全ての波長範囲をカバーできるわけではない。例えば、発振波長の短波長化を目指すにあたっては、バンドオフセットが大きな材料系の方が有利である。また高温での発振を目指すにあたって重要になってくる、熱の伝導率なども材料系によって善し悪しがある。そのため、初めて量子カスケードレーザが実現された、InP 基板上に積層された InGaAs/AlInAs 系だけではなく、更なる高性能化、高機能化を目指し、様々な材料系が検討されている。

現在までに、実現または検討されている材料系を Table.2-2 にまとめる。

Table.2-2. Family of material systems studied for QC lasers

	EL	Lasing	Characteristics
InGaAs/AlInAs（InP）	○ (1994)	○ (1994)	First Lasing Report Best Performance
GaAs/AlGaAs（GaAs）	○ (1996)	○ (1998)	Lattice Constant Matched Syster THz QCLs
InAs/AlGaSb（InAs）	○ (1999)	○ (2002)	Light Effective Mass Short Wavelength
InAs/GaInSb（GaSb）	○ (1996)	○ (1997)	Type-Ⅱ Inteband transition No Fast-Phonon-Scattering Loss
Si/SiGe（Si）	○ (2000)	×	Integration on Si Chip Low Loss at THz region
CdF2/CaF2（Si）	○ (2006)	×	Integration on Si Chip Low Loss at THz region
GaN/AlN（Sapphire,SiC）	×	×	Short Wavelength Intersubband Absorption
EuTe/PbTe（BaF2,KCl）	×	×	TE-mode Polarization

InGaAs/AlInAs 系ははじめてのレーザ発振が実現された系であり、また現在においても、出力パワー、閾値電流密度、最高動作温度、全てにおいて量子カスケードレーザの中で最高の性能を示すものである。それぞれの最高値はいずれも Razeghi らのグループによって達成されたもので、それぞれピーク出力パワー3.5W（室温パルス動作）[44]、平均出力パワー690mW（室温パルス動作）[45]、480mW（室温連続動作）[46]、1.4kA/cm^2（室温連続動作）[46]、363K（連続動作）[46] である。またこの材料系での発振波長は 3～24μm である。バンドオフセットの大きさの関係上、これ以上の短波長化は難しいとされてきたが、近年、従来のΓ点におけるバンドギャップの大きさからの構造設計だけではなく、X 点や L 点でのバンドギャップの大きさをも考慮に入れた、複雑な構造設計により、更なる短波長化が期待されてきている。現在までの X,L 点を考慮に入れた設計における最短波長は 3.3μm である [47]。

GaAs/AlGaAs 系は第 1 節でも述べたが、1998 年 Sirtori らによって実現された [37]。この系は InP に比べて安価な、GaAs 基板上に成長でき、また GaAs と AlGaAs との格子定数に差がほとんどないため、比較的成長が容易であるという利点をもつ。そのような理由により、バンドオフセットの影響があまりない、長波長領域(THz 領域)では GaAs 系が用いられている。

InAs/AlGaSb 系は東北大学の大野研究室によって、2002 年、世界で始めて実現された系である [48-52]。InAs は GaAs や InGaAs などと比較して有効質量が小さい故に、双極子モーメントが大きい。また大きなバンドオフセットをもつため短波長化が期待されている。この材料系での最短波長は 3.5μm である。この材料系の欠点としては、InAs の格子定数が GaSb の格子定数との間に 0.8%、AlSb との間に 1.3%の差があるため、結晶成長が難しい点が挙げられる。また基板に InAs を用いなければならないが、それは GaAs 基板に比べると約 3 倍と高価なものである。

GaSb 基板上に積層した InAs/GaInSb 系は、今までのとは少し異なるタイプの量子カスケードレーザである[53,54]。その系は TypeⅡ型の量子構造であり、今までのようにバンド内ではなく、バンド間での再結合に伴い発光する。一度発光に寄与した電子は、価電子帯から伝導帯にトンネル効果により遷移し、再び発光に寄与する。このようなバンド間遷移型量子カスケードレーザの利点としては、サブバンド間での遷移を利用する場合、非常に大きな影響を及ぼす高速な LO フォノン散乱による損失を無視できるため、高効率である点が挙げられる。欠点としては、バンド間遷移を利用したものであるため、波長は材料のバンドギャップでほとんど決まっており、構造設計による波長の自由度がないことが挙げられる。

現在はまだ発振の報告はないが、研究が進められている材料系として Si/SiGe 系[55,56]、CdF_2/CaF_2 系[57]などがある。Si/SiGe 系、CdF_2/CaF_2 系は Si 基板上に成長ができるため、電子回路への集積化が可能であり、実現すればその影響は非常に大きい。またこの材料系はホールのサブバンド間遷移を利用したものであるため、損失が比較的少ないという利点ももつ。前者の系は 2000 年に初めて EL が観測されてから、近年に至るまで、非常に盛んに研究されている。後者は東京工業大学の渡辺研究室において提案された構造である。そこでは理論的な解析から、基礎的な実験まで行なわれており、2006 年、室温でサブバンド間遷移に伴う EL が観測された。

系は大きなバンドオフセットをもつため、短波長領域での発振を目指し研究が行なわれている。GaN/AlN 構造は 1.55μm 付近のサブバンド間吸収[58]を利用した光スイッチングデバイスに向けて盛んに研究されている材料系である。結晶成長の困難さから、現在では電流励起での発光の観測には成功しておらず、近年光励起による発光の観測に成功した[59]のみではあるが、1.55μm での発振に向けてその実現が期待される。光通信帯での量子カスケードレーザが実現されたならば、従来のレーザに比べて高出力という利点をもつことになる。

EuTe/PbTe 系は静岡大学の石田研究室によって基礎研究がなされている材料系である。PuTe は有効質量に大きな異方性があるため、TE モード光の吸収、放出によるサブバンド間遷移が起こり得る。そのため面に垂直な方向からの入射光に対して感度をもつ赤外線イメージセンサーや、面発光型量子カスケードレーザへの応用が提案されている。

第 2 項　発光層構造による分類

発光層の構造は大きく分けると 3 種類に分類することができる。1 つ目は離散化した準位から離散化した準位への遷移に伴い発光する Bound-to-Bound Transition 型、2 つ目は超格子構造において伝導帯中に形成されるミニバンド（連続準位）からミニバンドへの遷移を利用した Continuum-Continuum Transition 型[33,60-62]、そして 3 つ目がそれぞれを組み合わせたような離散準位からミニバンドへの遷移を利用する Bound-Continuum Transition 型[63,64]である。1 つ目の Bound-to-Bound Transition 型は発光遷移が異なる井戸間で起こるものか、同一の井

戸内で起こるものかによって Diagonal Transition 型[6]（Photon-assisted tunneling transition 型）と Vertical Transition 型[30]に分類することができる。それぞれの特徴、及び利点、欠点を以下に述べる。

Bound-to-Bound Transition 型

離散準位から離散準位への遷移を利用するこの構造は、発光終状態（準位 2）のエネルギーから LO フォノンのエネルギーとほぼ等しいエネルギーだけ低いところに、サブバンド（準位 1）を形成させることで、発光した電子が共鳴的にフォノン散乱を起こし、高速に遷移することにより反転分布を実現している。準位 1 に遷移した電子はその直後に形成されたミニバンド内を高速に伝導し、再び次の発光層の準位 3 まで持ち上げられ、発光に寄与することとなる。注入層と発光層の境の障壁層は共鳴トンネル効果により引き抜かれる構造となっている。以下 Bound-to-Bound Transition 型の 2 種類について解説する。

-Diagonal Transition 型

発光遷移を異なる井戸間で起こさせる Fig.2-1 に示すような構造をこのように呼んでいる。また電子が光を放出しながら障壁層をトンネリングするため Photon-assisted tunneling transition 型と呼ばれることもある。

この構造は初めて実現された量子カスケードレーザが採用している構造である。反転分布を大きくするには準位 3 の寿命をなるべく長くし、準位 2 の寿命をなるべく短くすることである。この対角遷移型の構造は準位 3 の寿命を長くするために考え出された構造である。すなわち、フェルミの黄金率より遷移確率は波動関数の重なり積分の 2 乗に比例するので、ある準位とある準位の波動関数の大きな部分を空間的に離してやれば、その準位間の遷移確率は小さくなるわけである。このように非発光緩和時間を長くすることができ、反転分布を得やすいという利点があるものの、同時に発光確率も減ってしまうということでもある。また発光する際に障壁層を通るため、合金散乱を受けることにより、スペクトルが広がってしますという欠点もある。

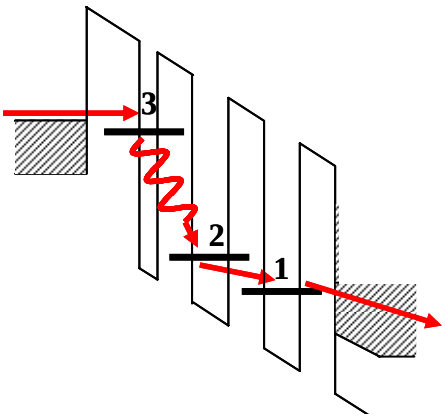


Fig.2-1. Schematic conduction band diagram of diagonal transition type quantum cascade lasers.

-Vertical Transition 型

Diagonal Transition 型の欠点を解消するために設計された、Fig.2-2 に示すような、発光過程が同一の井戸内で起こさせる構造がこのように呼ばれている。この構造では波動関数の重なりが大きいので Diagonal Transition 型に比べて発光効率が向上する。また合金散乱の影響もない。しかし、それは同時に Diagonal Transition 型のもつ利点が欠点になることでもある。すなわち欠点として反転分布が得にくく、それを実現するための設計に課される制約は大きくなるということである。また、遷移確率が高いということは逆に、準位 1 や注入層の電子が準位 2 に戻ることで、反転分布を小さくする確率も大きいということであり、Diagonal Transition 型に比べて熱によるキャリアの再分布の影響も受けやすい。

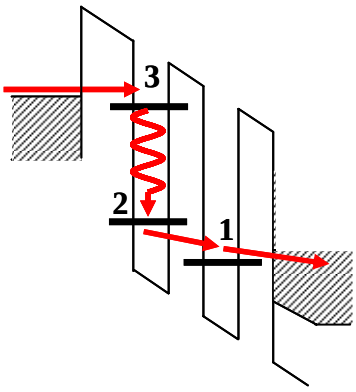


Fig.2-2. Schematic conduction band diagram of vertical transition type quantum cascade lasers.

Continuum-Continuum Transition 型

上述の離散準位から離散準位への遷移ではなく、ミニバンドからミニバンドへの遷移を利用する発光層構造が後に設計、実現された。そのバンド構造を Fig2-3 に示す。ミニバンド間遷移は多準位から多準位への遷移であるため、離散準位間でのものに比べ、全体での発光レートを大きくすることができる。また、注入層から発光層の励起準位へ、発光層の基底準位から注入層への伝導がミニバンド伝導であるため、電子が効率よく流れ、電流密度を大きくすることができる。それらの結果として高出力なレーザが実現できる。

ミニバンド間の遷移を利用した量子カスケードレーザは 1997 年 Scamarcio らによって初めて実現された [33]。また翌年には Tredicucci らによって室温発振が実現された [65]。出力は室温においても 0.5W であり、それまでに報告されていた離散準位間のものと比べ、数倍程度の高出力が得られた。その後 2003 年には Slivken らによって室温連続動作が実現された [44]。

近年その発展が著しい THz 量子カスケードレーザはいずれもこのミニバンド間遷移を利用したものである。THz 領域とは遷移エネルギーが LO フォノンのそれよりも小さい領域であるため、発光後の電子を離散準位間の遷移によって引き抜く構造では、遷移時間が長すぎ、大きな反転分布が得られない。そこでミニバンド発光後の電子をミニバンド内での遷

移によって高速に引きに抜く必要があるわけである。

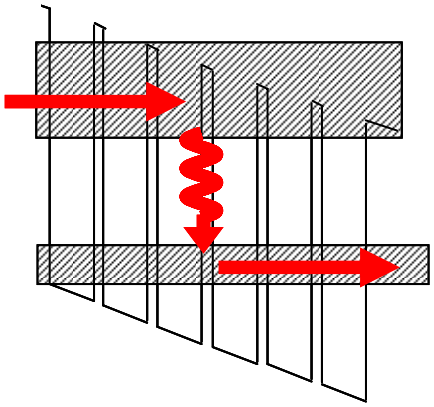


Fig.2-3. Schematic conduction band diagram of superlattice type quantum cascade lasers.

Bound-to-Continuum Transition 型

離散準位からミニバンドへの遷移を利用した構造は、上述の 2 つのタイプの利点を組み合わせたタイプの発光層構造である。そのバンド構造を Fig.2-4 に示す。レーザの重要の特性の 1 つである閾値電流は励起状態への注入効率が高ければ高いほど、基底状態から電子の引き抜きが速ければ速いほど、低くなる。離散準位から離散準位への遷移を利用した構造は、超格子型と比較して励起状態への注入効率は高いが、基底状態からの電子の引き抜きにかかる時間は長い。そこでそれぞれの利点を生かすために、考え出された、電子を離散準位である励起準位に、共鳴トンネルにより効率よく注入し、発光した電子は高速なミニバンド伝導により引き抜く構造がこのタイプである。この構造は現在において、最も高温で動作する発光層構造である。

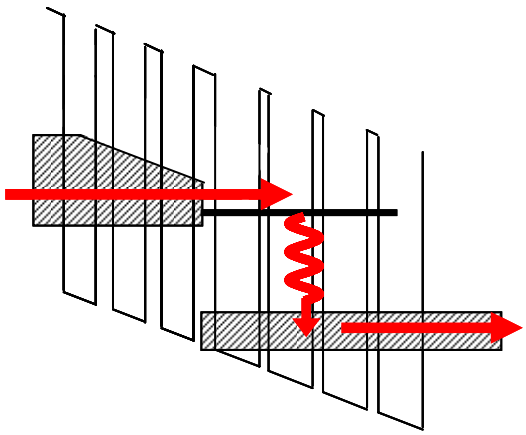


Fig.2-4. Schematic conduction band diagram of bound-to-continuum type quantum cascade lasers.

第 3 節　高性能化に向けた研究開発

量子カスケードレーザの高性能化に対するアプローチは幾つかあるが、その 1 つが第 2 節で説明したような、材料からのアプローチであり、また発光層の構造設計からのアプローチである。量子カスケードレーザの歴史から見ると、その発展はバンドエンジニアリングと呼ばれるような、伝導帯のバンド構造設計によって支えられてきたものではあるが、ここでは量子カスケードレーザと他の技術を融合することで、飛躍的な高性能化、高機能化を目指す動きもある。ここではその一例として、第 1 項では量子ドットとの融合を、第 2 節では周期構造の導入を取り上げる。

第 1 項　量子ドットとの融合

量子カスケードレーザの特性を決めている、最も大きな要素は LO フォノン散乱時間である。サブバンド間での高速な LO フォノン散乱のため、サブバンド間発光で反転分布の形成は困難とされていた中、量子カスケードレーザが実現できたのは、LO フォノン散乱を上手く用いたことである。しかし、これは LO フォノン散乱の影響を少なくしたのではなく、より高速な LO フォノン散乱を利用してのことである。そのため、多くの電子が LO フォノン散乱によって非発光で遷移していることには変わりはない。LO フォノン散乱レートを下げることで、高効率なレーザを実現しようとする試みが量子ドットとの融合である。

量子ドットとは 1982 年、筆者の指導教官である荒川教授と榊教授によって提案された、電子が 3 次元的に閉じ込められた量子構造である [8]。電子が 3 次元的に閉じ込められることで、その状態密度は離散的なものとなる。量子ドットを活性層に用いた量子ドットレーザは、その離散的な状態密度に起因して、従来の半導体レーザと比較し閾値電流密度が低い、特性温度 T_0 が大きい、線幅が狭いなど、様々な優れた特性を持ち合わせており、今後益々の発展が期待されている。

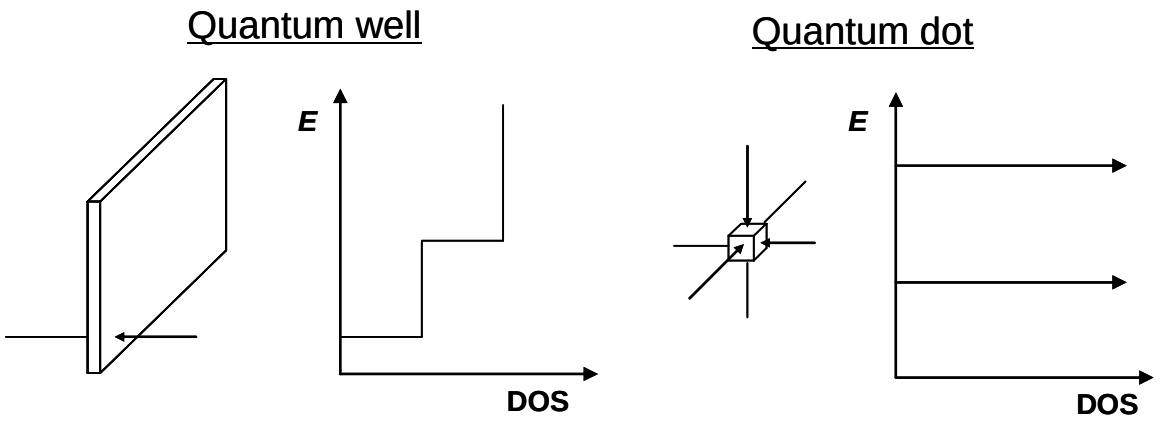


Fig.2-5. Comparison quantum well with quantum dot. Density of states of electrons in a quantum dot is discrete, while that in a quantum well is stair-like shape.

量子カスケードレーザの量子井戸を量子ドットに置き換えることができれば、大幅な非発光過程の抑制が期待される。それは状態密度が離散的であり、損失分のエネルギーだけ低いところに準位が存在しなければ、遷移できないためである。非発光過程が抑制されれば、効率よく反転分布が形成され、結果として閾値電流密度の低減が図れるものと期待できる。それだけではなく量子ドットを利用すれば、究極的には電子 1 個 1 個の制御が可能であり、2 次元系では得られない興味深い機能を得られる可能性もある。

量子カスケードレーザの発光層部分を量子ドットに置き換えるというアイディアは 1997 年、Ned S. Wingreen らによって提案された [66]。提案された量子ドットカスケードレーザの模式図を図 4-2 に示す。(a)が 1 周期分の模式図であり、(b)がそれを何周期か積層し、clad で挟んだ実際のレーザ構造の模式図である。GaAs の井戸で結合量子ドットアレイが幾つか挟まれた構造をしている。量子ドットを利用することにより閾値電流密度が低下し、また利得スペクトル強度が増加、スペクトル幅が減少することが理論的に示された。サブバンドの基底準位と第一励起準位のエネルギー差が LO フォノンのエネルギーよりも大きく、ゲイン係数が損失よりも大きくなるような条件から量子ドットカスケードレーザ実現に求められるドットサイズ、密度、サイズのバラつきが計算され、それぞれ 20nm 以下、$1.25X10^{14}/cm^3$ 以上、5%以下とされた。また、そのときの閾値電流密度は $4.9mA/cm^2$ と算出され、従来の活性層に量子井戸を用いた構造に比べて 6 桁低下することが予測された。この提案の後、擬似的な 0 次元系である、強磁場下における量子カスケードレーザの様々な特性が調べられている。

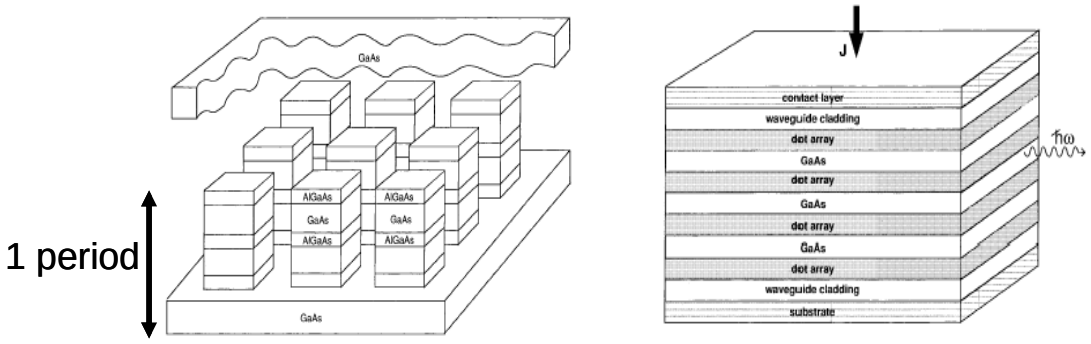


Fig.2-6. Left figure is schematic representation of coupled-dot array. One period is composed of a pair of dots, three AlGaAs barriers, and a GaAs injection layer. Right figure shows stacked layers of coupled-dot arrays. [Reprinted from reference]

第 2 項　周期構造の導入

周期構造の導入による高機能化の例として、最も有名なのが分布帰還型(DFB)レーザであろう。量子カスケードレーザにおいても分布帰還構造を組み込むことで単一モードレーザが実現されている。ここでは一般的な DFB レーザの発展型とも言えるブラッグの高次の回折を利用した面発光型単一モードレーザと、2 次元に周期構造をもつフォトニック結晶を利用した量子カスケードレーザを紹介する。

1 次元面発光型 DFB レーザ

サブバンド間発光は TM モードに偏光しているため、一般的な VECSEL のような面に垂直方向の共振器構造だけでは面発光は得られない。そこで、面発光を得るために幾つかの方法が検討されているが、その 1 つが 2 次の回折をもつ DFB レーザ [67-70] である。以下は初めて実現された面発光型量子カスケードレーザ [67] の I-L 特性と、遠視野角に対する光強度を表した図である。右の図から回折格子に沿った方向では非常に狭い遠視野角が得られていることが見て取れる。この図からは分からないが、近年では面発光型 DFB レーザの特徴である回折格子の中心付近で進行方向が逆の光が打ち消しあい、光強度が抑制されている非常に興味深いモードパターンの観測も報告されている [68]。また、近年発展が著しい THz 領域においてもダブルメタル導波路構造を有する、高性能面発光型量子カスケードレーザ [70] などが実現されるまでに至っている。

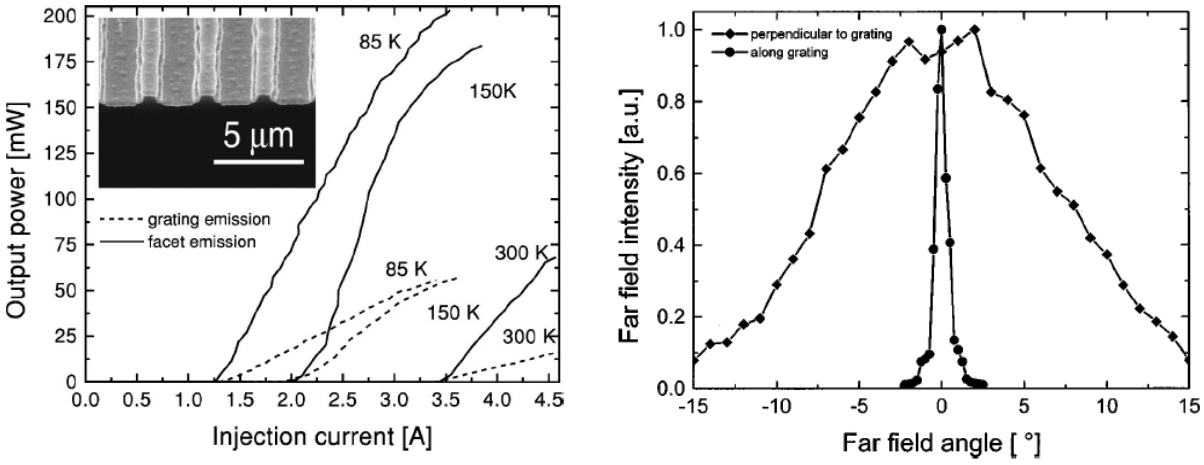


Fig.2-7. (Left image) I-L curves of surface emitting quantum cascade second order DFB lasers.Inset shows its SEM image. (Right image) Far-field distribution of the surface emission in two orthogonal direction (along and perpendicular to the waveguide).

フォトニック結晶高反射率 **DBR** を有する量子カスケードレーザ

フォトニック結晶のフォトニックバンドギャップを利用した、高反射率 DBR を有する高性能量子カスケードレーザの研究も進められている。その概略図と作製された SEM 写真を以下に示す [71]。ここでは、TM モードに対するフォトニックバンドギャップをもつピラー型のフォトニック結晶が用いられる。このようなフォトニック結晶を利用することでの高性能化が提案された初期段階では、作製の困難さのため、必ずしも従来型よりも性能は向上していなかったが、近年では、閾値電流密度の低下や、高温動作化に成功した報告もされている [72]。

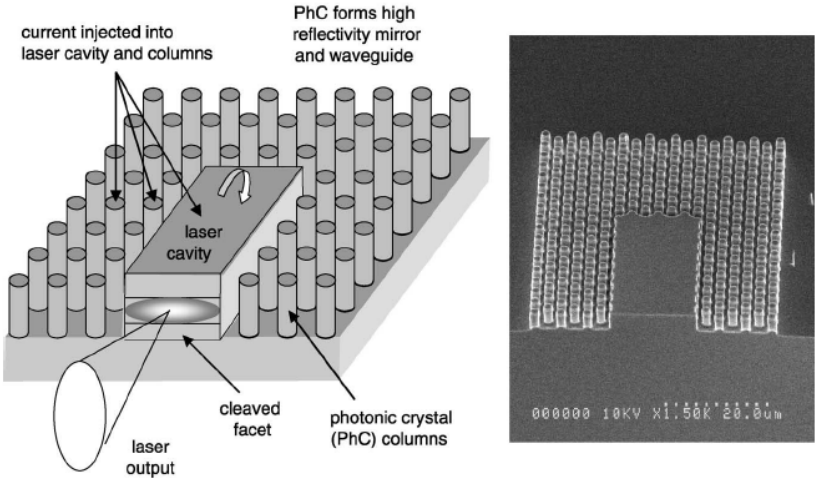


Fig.2-8. Left image shows the schematic image of QC lasers using photonic crystal as high reflactive mirror and right image shows the SEM image of fabricatied QC photonic crystal lasers.

2 次元フォトニック結晶面発光型 **DFB** レーザ

先ほど紹介した 2 次の回折を利用した DFB レーザを 2 次元に拡張したフォトニック結晶 DFB レーザが、2003 年 Collombelli らによって実現された [43,73-76]。そのフォトニックバンド構造、作製されたフォトニック結晶の表面 SEM 写真、発振スペクトル、及びモードパターンを以下に示す。左上の図の中で光の状態密度が高いフォトニックバンド端である A,B,C 点で光の増幅が確認され、その中で最も状態密度が高い点 A において発振している。フォトニック結晶を利用すれば、左下の図に示すように、格子定数や、三角孔半径の大きさを変えることで、発振スペクトルを高精度に制御することが可能となる。また、右下に示した図は x,y それぞれの方向に電界強度をもつモードの近視野像であるが、ここで示すように非常に興味深い様々なモードパターンを形成させることも可能となる。

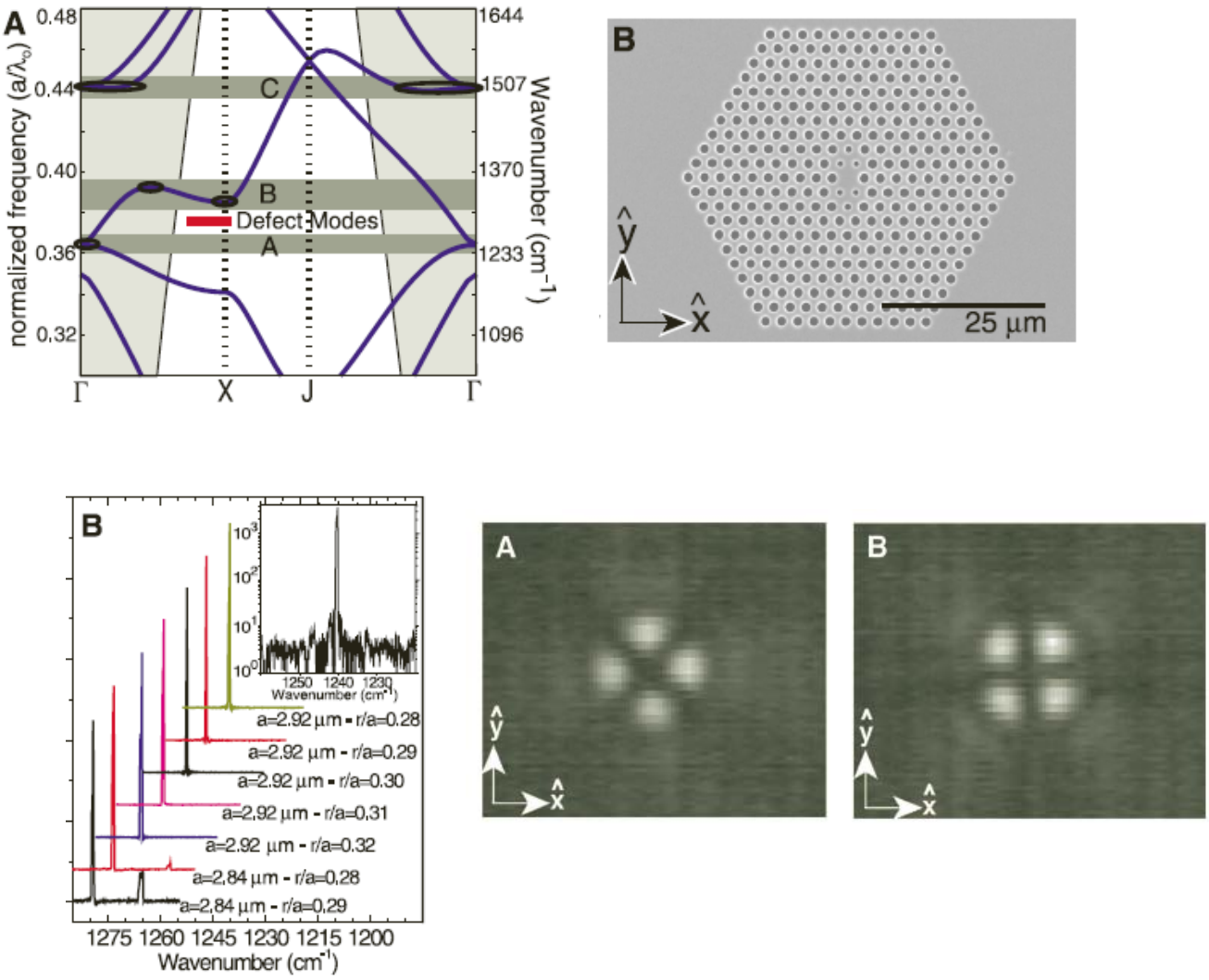


Fig.2-9. (Upper left) Calculated 2D photonic band structure.(Upper right) Top view SEM image of fabricated PC structure. (Lower left) Tuning of the laser emission wavelength as a function of a and r/a. (Lower right) Polarized near-field emission pattern.

第 3 章

GaAs 系 10μm 帯量子カスケードレーザの作製とその基礎特性評価

第 1 節　サンプル構造

本研究では 2001 年 Page らによって Appl.Phys.Lett.誌に発表された文献[77]を基に量子カスケードレーザの作製、評価を行なった。この構造の特徴としては主に

- 発光層構造は対角遷移型
- クラッド層に Al を含まず、高濃度の Si ドーピングにより低屈折率を実現
- GaAs 系量子カスケードレーザにおいて初めての室温パルス発振

が挙げられる。今日においてはこの構造が GaAs 系において必ずしも最も特性が良いというわけではない。しかしはじめて実現された量子カスケードレーザの構造がそうであるが、発光層構造が量子カスケードレーザを理解する上で最も基本的かつ重要な、LO フォノンアシスト型をしている点から、この構造を作製することとした。このレーザ構造は GaAs 系量子カスケードレーザに関する基礎物性の探索、デバイス物理の理解、及び高性能化への応用に向けたテスト構造として、今なお多くの研究が進められている。今回作製した層構造、伝導帯のバンド構造、TM モードに対する光強度、及びそれぞれの領域における屈折率を Fig.3-1,3-2,3-3 に示す。

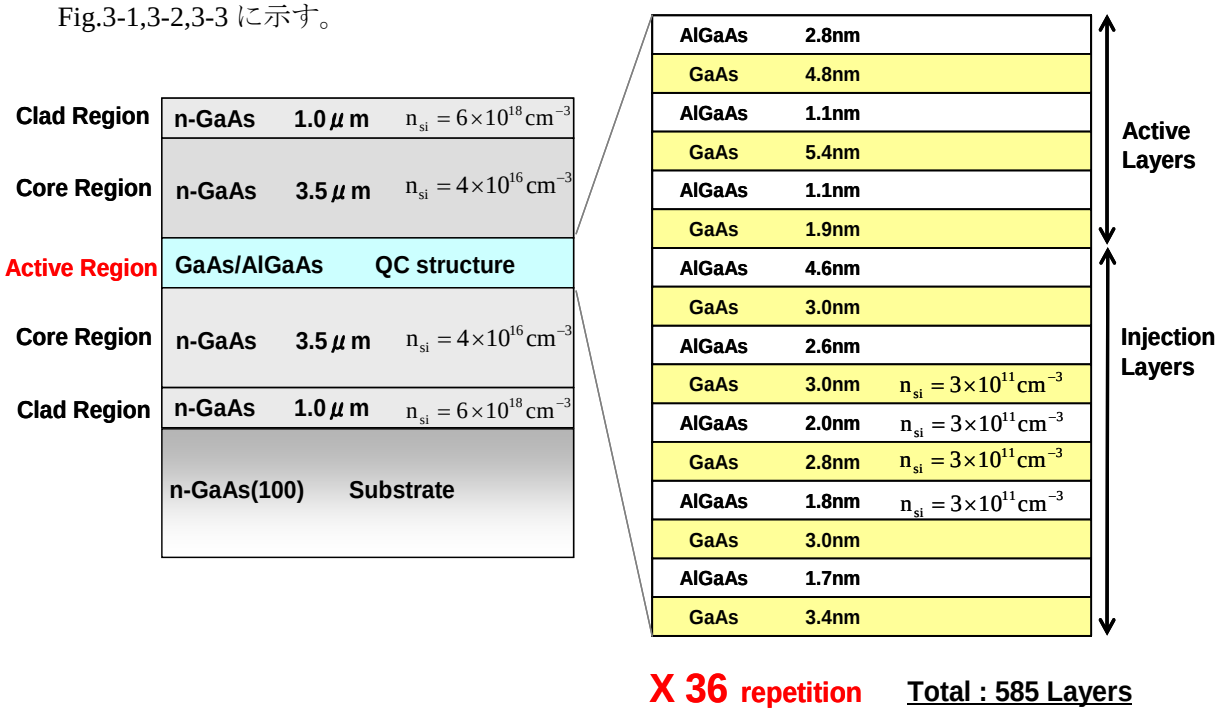


Fig. 3-1. Layer structure and doping profile of grown quantum cascade structure, which were designed by H.Page *et al*.

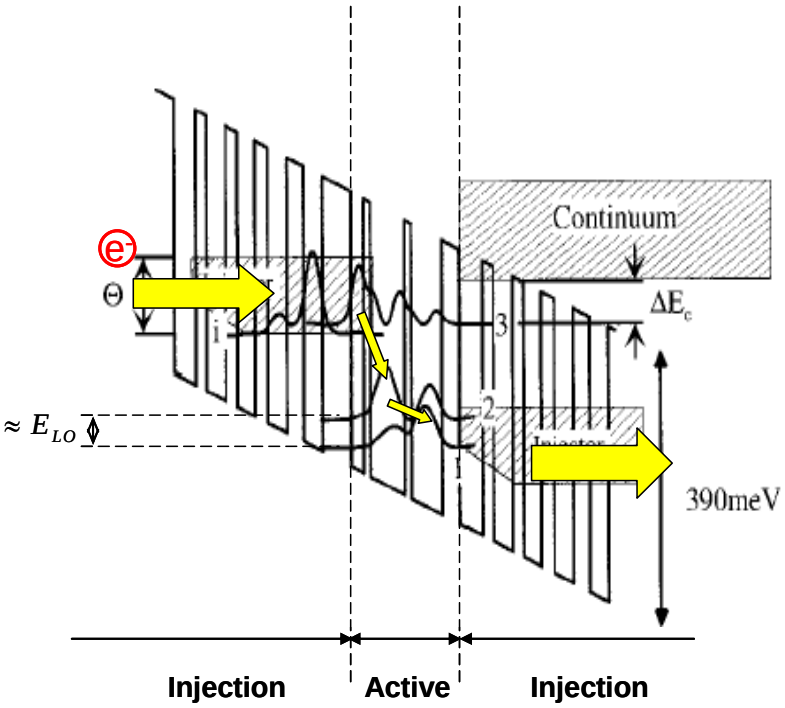


Fig. 3-2. Conduction band diagram and appropriate envelope functions for grown quantum cascade structure under an electric field of 48kV/cm^2. The author added yellow arrows to help with understanding electronic flow easily.

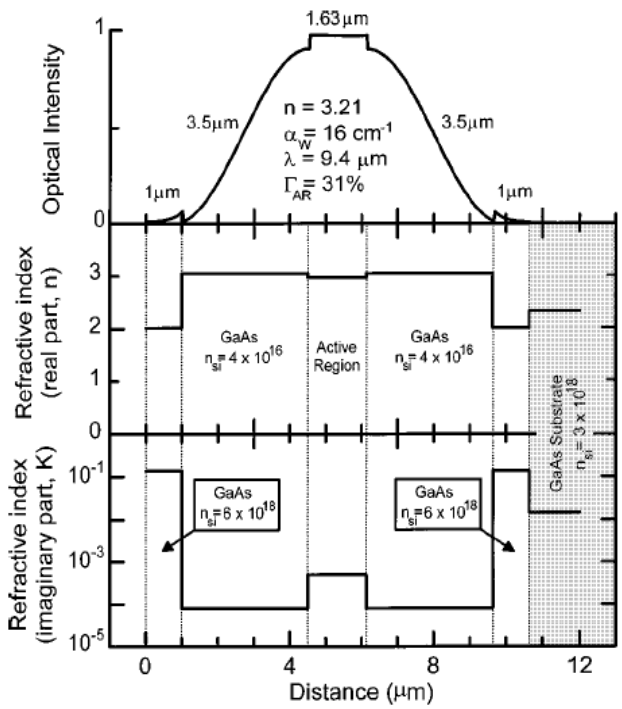


Fig. 3-3. (Upper part) Optical intensity distribution of the fundamental TM mode of the waveguide. (Middle part) Real part of the refractive index profile in the direction perpendicular to the layers. (Lower part) Imaginary part of the refractive index profile, thus, which is related to the absorption coefficient of the layers

第 2 節　結晶成長

量子カスケードレーザを作成するにあたって最も重要なことは、正確な膜厚と組成比のコントロールと良質な薄膜の作製にあるといっても良い。そのために現在までに報告されている量子カスケードレーザの多くは分子線エピタキシャル法（Molecular Beam Epitaxial method）により作製されたものである。我々も Fig.3-4 に示すような VG 社製 MBE 装置(VG V80H)により結晶を成長した。

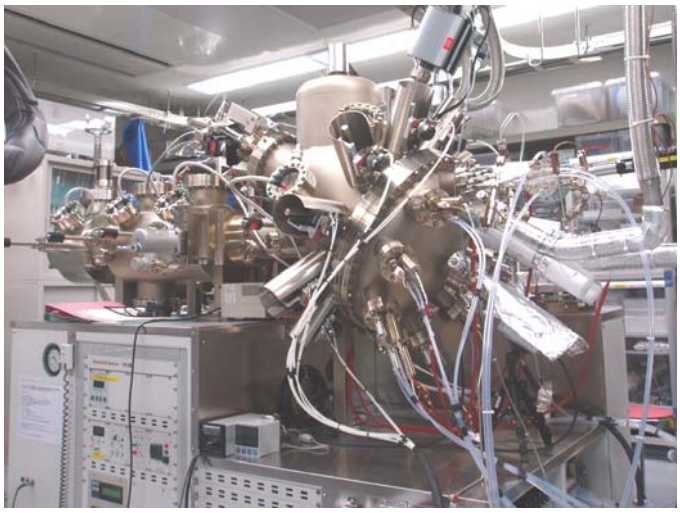


Fig. 3-4. MBE equipment (VG V80H).

成長条件を Fig.3-5 に示す。横軸は時間で縦軸がパイロメータで測定した基板表面の温度である。基板は n-GaAs(001)3 インチを用いる。熱処理、及び成長中の As 圧はフラックスゲージで測定した値で 2.3×10^{5} Torr のもとで行なう。熱処理は基板表面の酸化膜が除去され始める 540℃まで 1℃/sec で温度上昇し、しばらく待機した後、0.5℃/sec で熱酸化膜が完全に除去される 620℃まで温度を上げる。熱処理は 540℃から温度を上げ始めてから 10 分間行なう。成長中は表面温度を 600℃で行なうこととする。Ga、及びドーピング用 Si の供給が始まると表面温度が 20℃ほど上昇することを考慮し、熱処理が終了したら 580℃まで 0.5℃/sec で温度を下げる。成長レートはクラッド層、コア層は 0.8μm/hour とし、活性層の GaAs 層は 0.4μm/hour とした。活性層成長時に Ga セルを 2 本使い、AlGaAs 成長時には温度が低いものを使うことによって GaAs、AlGaAs ともに同じレートで成長する方法もあるが、シャッター開閉時間のわずかな誤差によって AlAs 層が混入してしまう恐れもあることから、Ga セルは 1 本だけ用い活性層も成長することにした。そのため AlGaAs 層は Al 組成比が 0.45 であることから 0.73 μm/hour で成長することとする。成長時間は全て合わせると約 16 時間である。

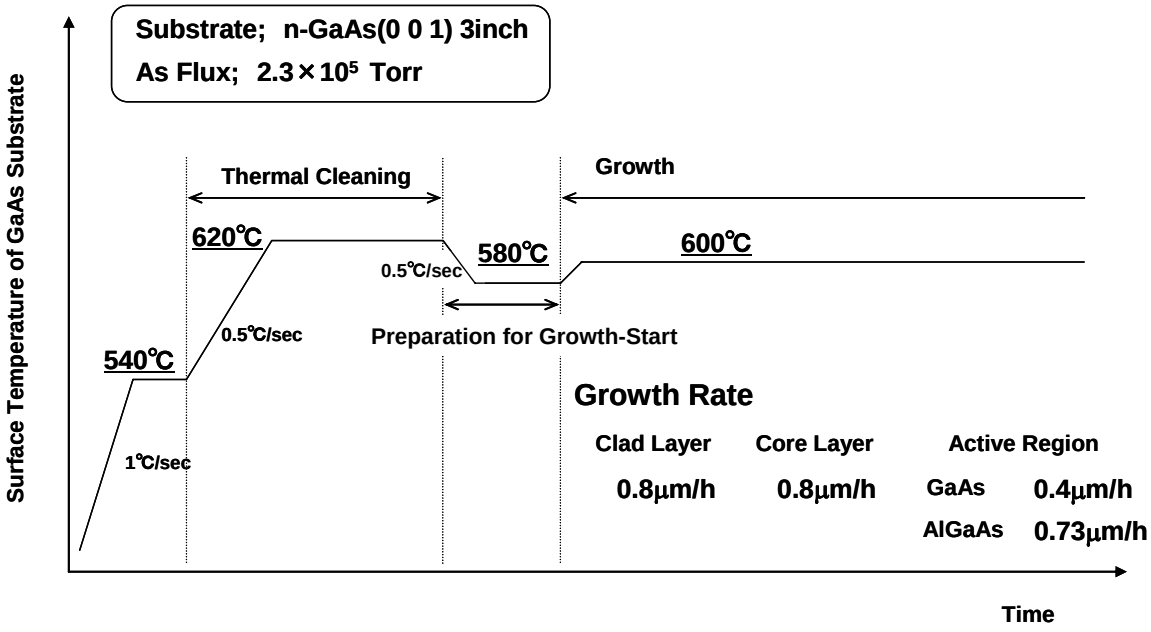


Fig.3-5. Surface temperature sequence on thermal cleaning and growth of GaAs QC structure.

今までに何度も述べたが、量子カスケードレーザの作製において最も重要なことは正確な膜厚と組成比である。そのため所望の成長レートを得るためにそれぞれの原料セルの温度校正は非常に重要である。我々は以下の様な方法で正確に温度校正を行なった。ドーピング用 Si セル温度は 3 つの異なる温度で成長したサンプルを用意し、ホール測定からドーピング濃度を測定し、3 点の近似曲線から所望の温度を計算する。Ga,Al セル温度については、まず温度校正用の GaAs/AlGaAs 超格子を成長し、高分解能X線回折(HR-XRD)装置、及び走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて GaAs、及び AlGaAs の膜厚を求め、成長時間から成長レートを見積もる。高エネルギー反射電子回折(RHEED)測定からあらかじめ求めておいた成長レートとセル温度の関係の傾きと成長した超格子の測定からみ積もられたセル温度と成長レートの関係から所望の成長レートとなるセル温度を計算する。次にそれを用い今回作製する量子カスケード構造と同じ構造を 9 周期成長し、同様の測定をすることにより、より正確な補正を加える。そうして得られた Ga,Al セル温度を用いて本番用の量子カスケード構造を成長する。

このようにして成長したサンプルの高分解能 X 線回折測定の測定結果を Fig.3-6 に示す。青色の実線が実測値であり、赤色の実線が設計された構造のシミュレーション結果である。中央の大きいピークは GaAs 基板を反映したもので、その左右に見える等間隔に並ぶピークは量子カスケード構造における 1 周期の厚さを反映したピークである。挿絵は中央のピークを拡大したものであり、左側のピークは Al の組成を反映したものである。

実測データのフリンジ間隔からブラッグの式 $2d\sin\theta = n\lambda$ に従い 1 周期あたりの平均膜

厚を、その膜厚を固定し実測データにフィッティングを行なうことによって Al 組成比を求めた。それぞれの値は 45.0nm、0.45 であり設計値と完全に一致した。1 周期の平均膜厚を反映しているピークの半値幅は界面の平坦性を示すが、今回の X 線測定結果を見ると非常にシャープであるため界面の平坦性も良好であると思われる。1 周期の平均膜厚の面内分布を測定した結果を Fig.3-7 に示す。中心から離れるに従い、原料の供給量が落ちるため若干膜厚が薄くはなるものの、設計値に対し-1.8%とは良好な結果といえる

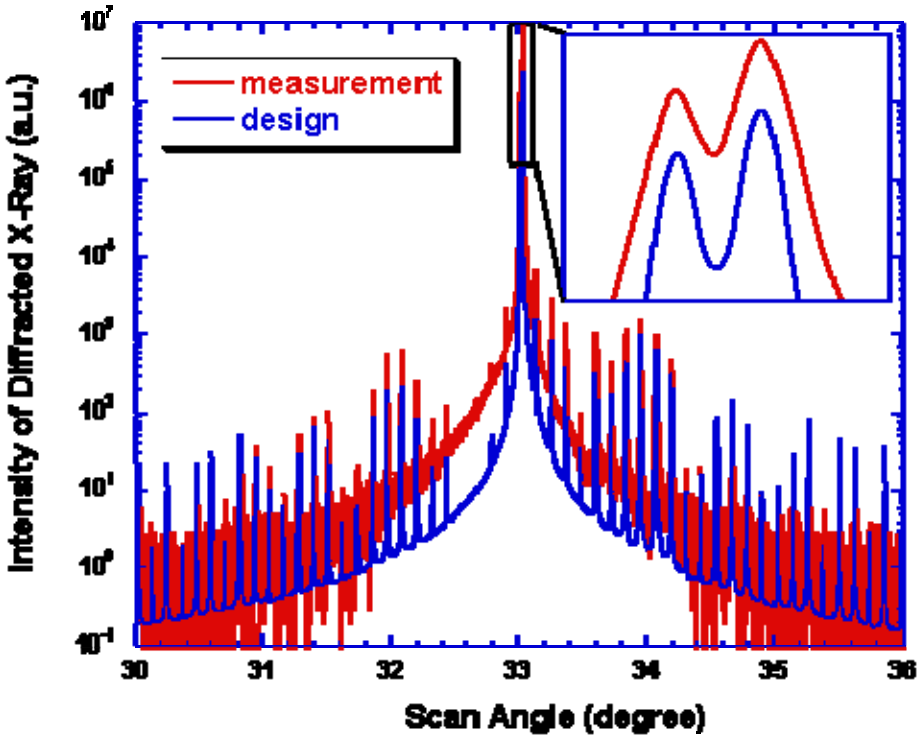


Fig.3-6. High-resolution X-ray diffraction rocking-curve.Blue line is the simulated result of design structure and Red one is the measured result. Inset is the enlarged picture for center. The distance between the two peaks reflects the Al composition.

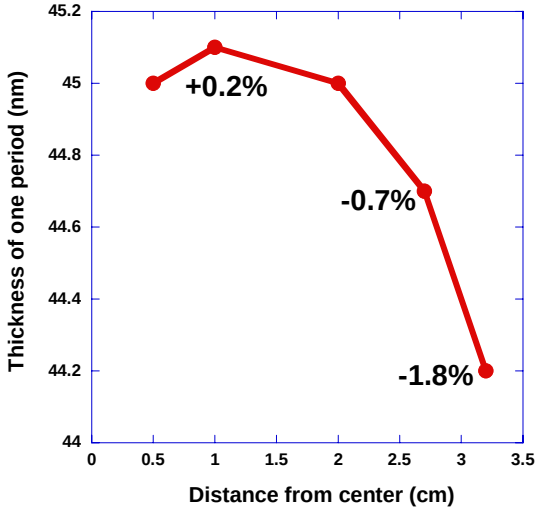


Fig.3-7. In-plain distribution of a periodical thickness

成長後の表面偏光顕微鏡像、及びサンプルをアンモニア過水で約 2 秒ステインエッチングした後に観察した活性層の断面 SEM 像を Fig.3-8 に示す。右図の表面写真では典型的なオーバルディフェクトが数多く見られる。これは非常に長時間な成長（約 16 時間）であるため成長中に Ga の酸化物などが多く付着したことなどが考えられる。今回のサンプル成長は MBE 装置の原料チャージ後、まもなくの成長であることも欠陥が多いことに大きく関係しているものと思われる。左上の断面 SEM 像において Clad 層、Core 層、活性層の境がはっきりと確認できる。右下の写真は活性層内部を拡大したものであるが 1 周期分に対応する周期構造が確認できる。

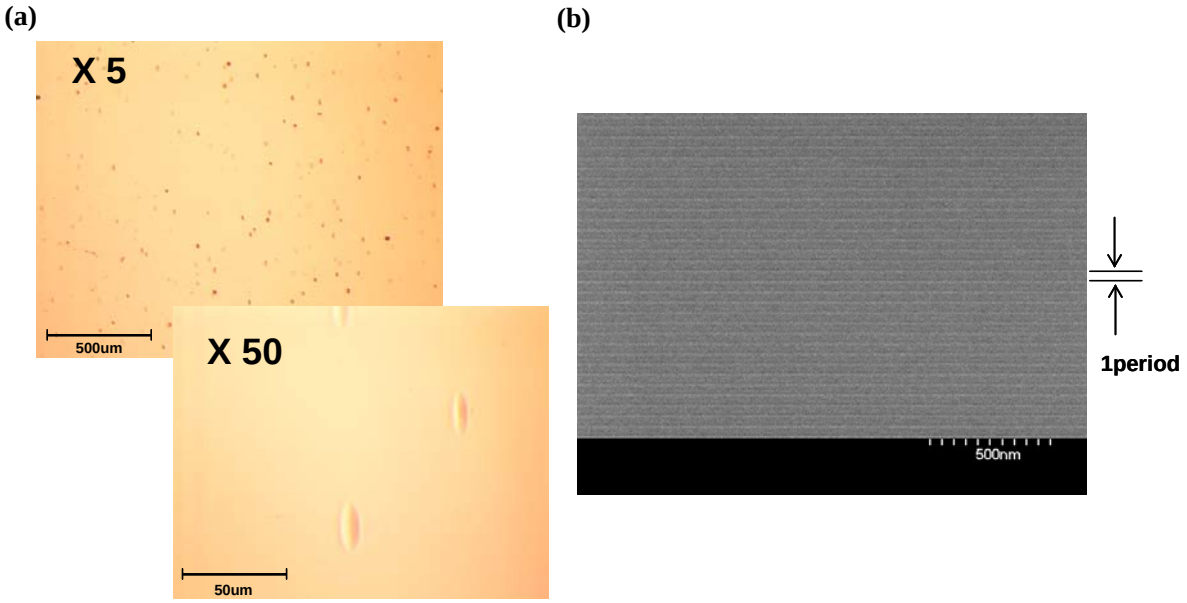


Fig.3-8. (a) Surface images observed with optical microscope. Magnification power of upper left image is 5 and lower right one is 50. There are many typical oval defects. (b) Cross-sectional images observed with SEM. Upper left image represents clad layer, core layer, and active region. Lower right one does enlarged image of active region.

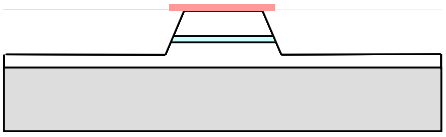
第 3 節　プロセス

結晶成長したウエハからメサストライプ型のレーザを作製した。プロセス工程とその条件を Fig3-9 に示す。

1.Photolithography

Resist; AZ1500(20cp)
Spin-coating; 500rpm 5sec
3000rpm 40sec
Baking; 90℃ 10min
Lithography; 2.5sec
Development; NMD-3
1min

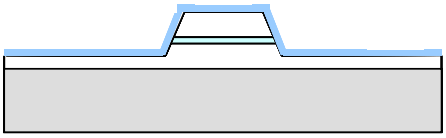
2.GaAs Wet-Etching



Depth 7.5μm

H2SO4:H2O2:H2O=1:8:1 at 23℃
Rate; 10μm/min
40sec

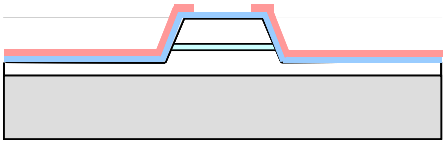
3.SiO_2 Sputtering



SiO_2 350-450nm

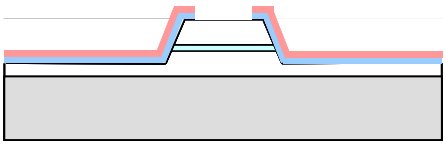
RF Power 300W
(Rate 120-150nm/min)
25-33min

4.Photolithography



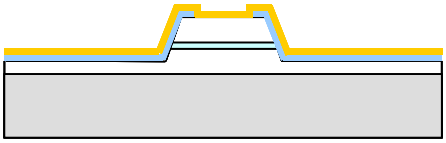
Spin-coating (HMDS); 500rpm 5sec
5000rpm 1min
Baking; 200℃ 1min
Spin-coating(AZ1500); 500rpm 5sec
2000rpm 40sec
Baking; 90℃ 10min
Lithography; 5sec
Development; NMD-3
40-50sec
Post Baking; 120℃ 2min

5.SiO_2 Etching



BHF at R.T.
Rate; 100nm/30sec
2min10sec-30sec

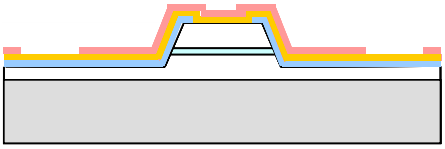
6.Top Contact Evaporation



Ti 20nm/Au 350nm

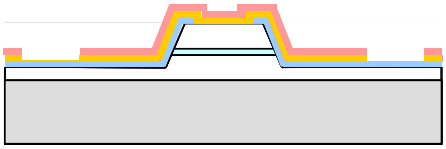
Ti (18nm/2nm/2nm)
0.5nm/sec
Au (200nm/100nm/100nm)
0.5Å/sec -10nm
1.5Å/sec 10nm-

7.Photolithograpy



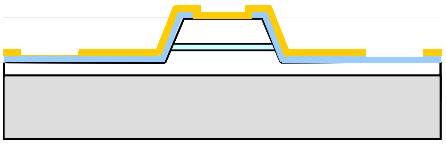
Resist; AZ1500(20cp)
Spin-coating; 500rpm 5sec
3000rpm 40sec
Baking; 90℃ 10min
Lithography; 5sec
Development; NMD-3
1min15-20sec

8.Metal Etching



Au Etching
KI
Rate; 65nm/min
6min

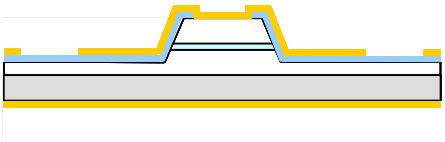
9.Lapping



<u>GaAs 100μm</u>

Alumina particle

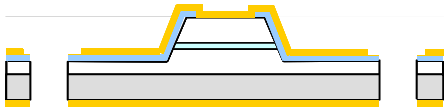
10.Back Contact Evaporation



<u>AuGeNi (70nm)/Au (350nm)</u>

AuGeNi
0.5Å/sec -10nm
1Å/sec 10nm-
Au
0.5Å/sec -10nm
1Å/sec 10nm-
Annealing; 370℃ (200℃/min)

11.Creaving



12.Wire bonding

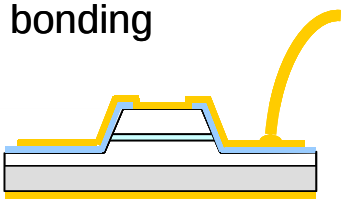


Fig.3-9. Process flow of the mesa structure. One of the characteristics of the mesa structure for QC-Lasers is deep-etched structure becouse of week influence of surface recombination.

作製したメサの断面の SEM 像を Fig.3-10 に、ボンディング後の写真を Fig.3-11 に示す。SiO_2 絶縁膜、金電極ともに側面で切断されることなく、スパッタ、蒸着されている様子が確認できる。それぞれの長さは以下のようである。

メサ高さ；7.4μm

メサ幅　トップ；35μm

ボトム；49.5μm

活性層付近；40μm、

電極窓幅；25μm

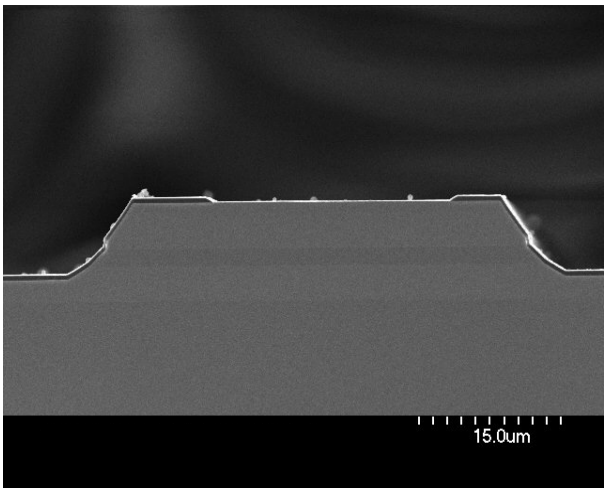


Fig.3-10. Cross-sectional SEM image of processed sample.

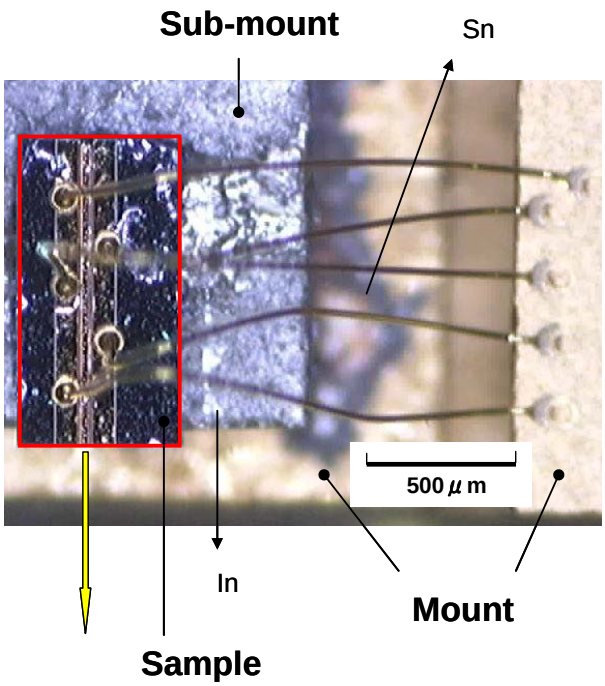


Fig.3-11. Optical microscope image of QC Laser mounted on heat sink.

第 4 節　電流・電圧・光出力特性評価

第 1 項　基礎特性

測定系を Fig.3-12 に示す。大電流を流すことができる(10A まで)パルス信号発生器からサンプルに電圧を印加し、サンプルの両端にかかる電圧、及びサンプルに流れる電流をオシロスコープで計測する。高周波印加時、サンプルからパルス信号発生器への反射を低減するために、インピーダンス補償用 50Ω抵抗がサンプルと直列に接続されている。電流の測定は電流プローブを用いる。レーザからの光は金コーティングされた放物面鏡でコリメートした後、放物面鏡で MCT(HeCdHg)ディテクターに集光させる。サンプルの位置、放物面鏡、ディテクターのアライメントには HeCd レーザを用いる。MCT ディテクターで感知した電気信号はアンプで増幅された後*、パルス信号発生器と同期されたロックインアンプで検出する。ロックインアンプで検出した信号をデジタル信号に変換するため、一度デジタルマルチメータに入力した後、PC にデータを出力する。パルス信号発生器への電圧値の入力、オシロスコープ、デジタルマルチメータからの電圧、電流、光強度の読み取りは全て LabView で設計された自動測定システムにより行なう。

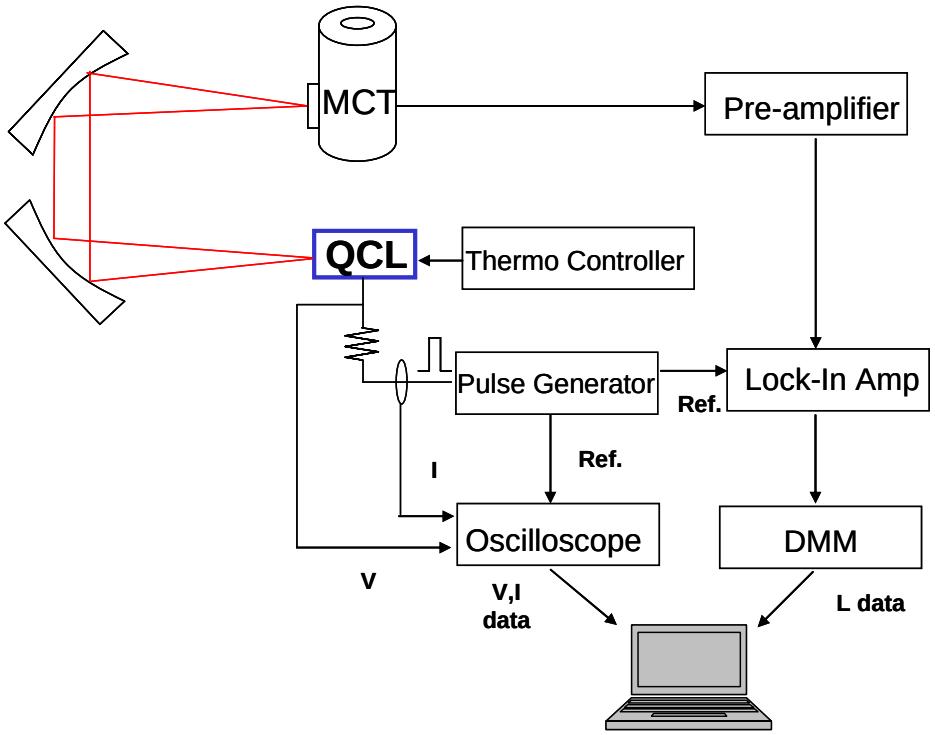


Fig.3-12. Schematics of the I-V-L measurement system.

---

* ロックインアンプで光を検出しようとする場合、プレアンプの必要性は本質的には無い。しかし、今回の系で使用しているのは、そのプリアンプが MCT ディテクターの電源も兼ねているためである。

測定した I-V-L 特性結果を Fig.3-13 に示す。測定したサンプルはメサ幅 45μm、共振器長 1.59ｍｍ、測定条件は繰り返し周波数 2kHz、パルス幅 200ns（デューティー比 0.04%）、温度 21Ｋである。4.4kA/cm2 ほどで急激に光強度が増大しており、レーザ発振していることが確認できる。

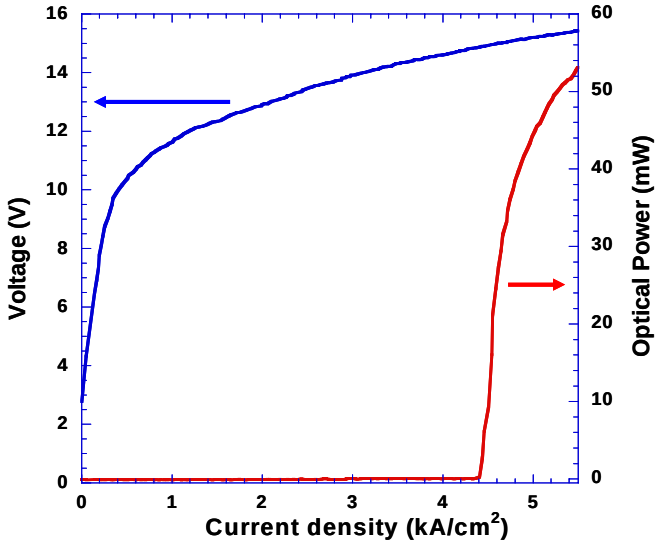


Fig.3-13. Light-current (L-I) and Voltage-current (V-I) characteristics for a 1.59mm×45μm device.Operating condition is below.-Pepetition frequency;2kHz, pulse width;200nm, temperature 21K.

第 2 項　閾値電流密度の温度依存性

閾値電流密度の温度依存性を Fig.3-14 に示す。我々が作製したサンプルにおいての最高動作温度は 210K であった。参考にした H.Page らのグループのデータでは 308Ｋまで発振したと報告している。我々が成長した結晶の膜質が彼らのものよりも悪く、欠陥付近が局所的に温度上昇しているなど何らかの悪影響が出ており室温発振しなかったこともちろん考えられるが、プロセスの問題もまだ残されていると考える。プロセス条件を改良し発生する熱をなるべく抑制えたり、熱伝導が更によいサンプルマウントを採用するなどすれば、今回成長した結晶でも、室温発振する可能性はまだ残されていると考えている。それらは今後の課題である。

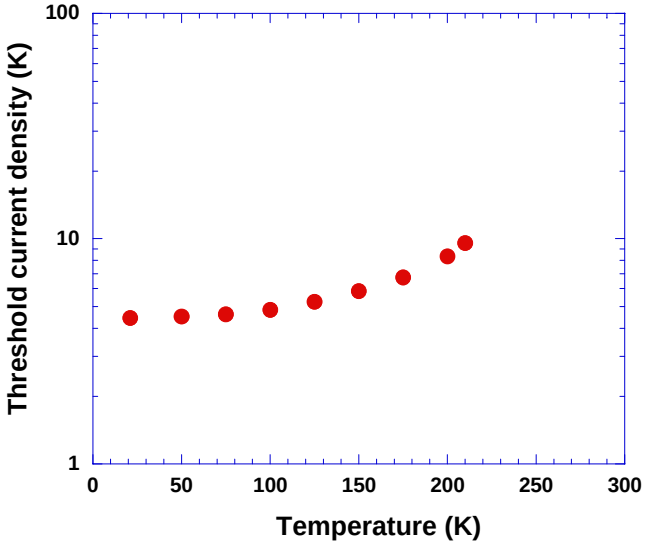


Fig.3-14. Temperature dependence of the threshold current density.

第 3 項　内部損失の見積もり

内部損失は以下の式から算出されるため、共振器長を変えたサンプルを幾つか用意し、それぞれの閾値電流密度を測定した。

$$J_{\mathrm{th}} = \frac{\alpha_{\mathrm{w}} + \alpha_{\mathrm{m}}}{g_0 \Gamma} = \frac{\alpha_{\mathrm{m}}}{g_0 \Gamma} - \frac{\ln(R)}{g_0 \Gamma} \frac{1}{L} \qquad (3\text{-}4\text{-}1)$$

ここで、$\alpha_{\mathrm{w}}, \alpha_{\mathrm{m}}, g_0 \Gamma, R$ はそれぞれ、内部損失、鏡面損失、利得、反射率(=0.27)である。

結果を Fig.3-15 に示す。傾きから求められた内部損失は 32 cm^{-1} であった。

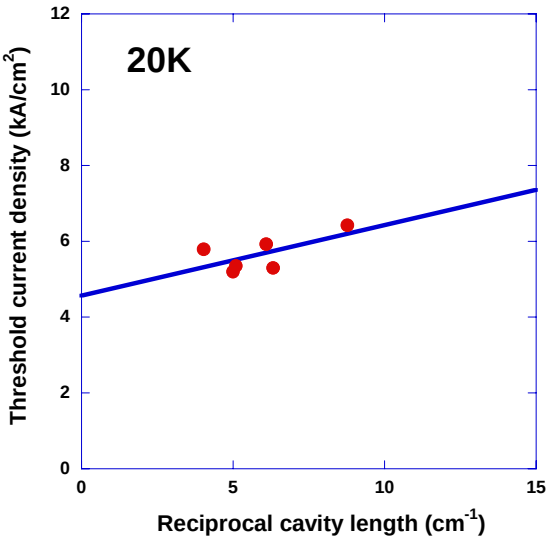


Fig.3-15. Measured threshold current density vs reciprocal cavity length at 20K.

第 5 節　スペクトル特性評価

Fig.3-16 にスペクトルの測定系を示す。発振波長は高精度な赤外分光法として知られるフーリエ変換赤外分光法の Step-Scan mode により測定した。電流値がそれぞれ 5.8Ａ、6.2Ａ、6.6Ａ、7.0Ａのとき得られたスペクトル波形を Fig.3-17 に示す。波長 9.5μm 付近で多モード発振していることが確認できる。測定に用いたレーザの共振器長(2.48ｍｍ)、等価屈折率(3.21)、中心波長(9.525μm)からモード間隔を計算した値(5.69nm)は Fig3-17 の測定結果(5.65nm)と非常に良い一致を見せた。

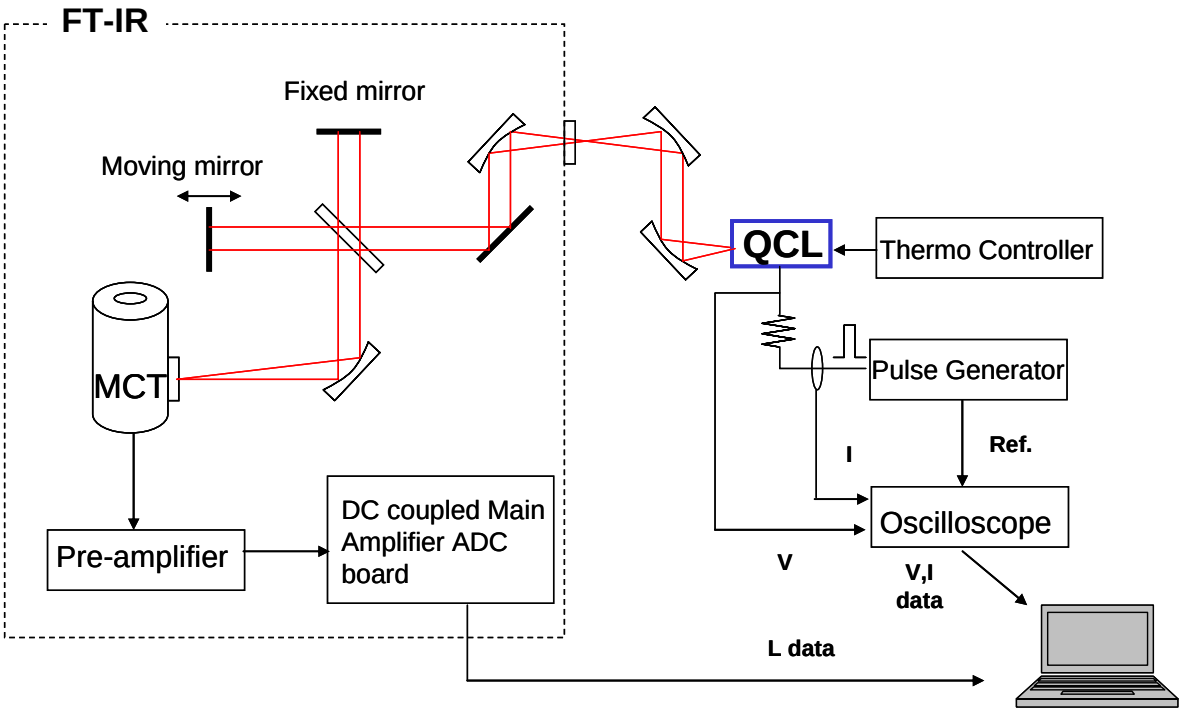


Fig.3-16. Schematics of the spectra measurement system.

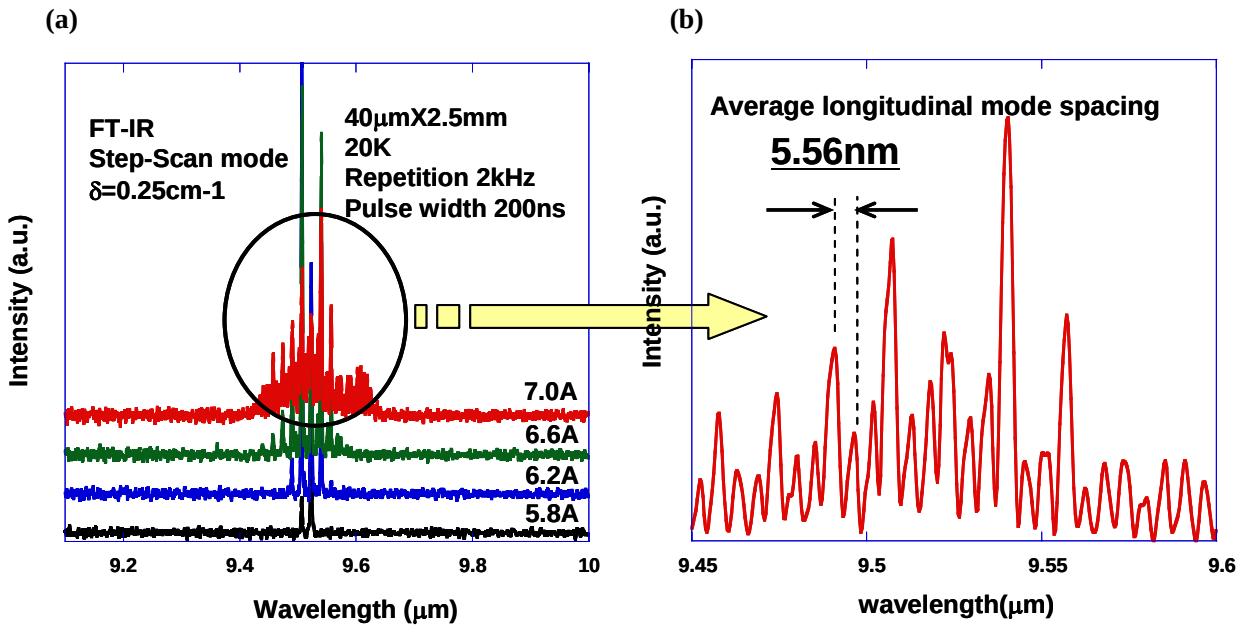


Fig.3-17. Mesured lasing spectra at several current value. Average longitudinal mode spacing is 5.56nm which is almost the same value estimated by refractive index, cavity length, and center wavelength.

第 6 節　まとめ

GaAs/AlGaAs 系量子カスケードレーザの作製とその特性評価を行った。膜厚、Al 組成とも設計通りである 1 周期 45.0nm、組成 0.45 のサンプルの結晶成長に成功した。メサ幅 40μm のファブリペロー型レーザを作製し特性を評価すると 220K まで発振し 24K のときの閾値電流密度は 4.5kA/cm^2 であった。発振波長は 20K において 9.5μm であり理論値と一致した。

第 4 章

閾値電流密度を中心とするレーザ特性の理論的解析

第 1 節　はじめに

半導体レーザの研究開発における主要テーマの 1 つに、閾値電流密度(閾値電流)の低下、またそれに大いに関係することであるが、高温での連続動作の実現が挙げられる。それらを実現するための一歩として、第 4 章では実験から得られた閾値電流密度の温度依存性を定量的に説明することを最終的な目標とする。閾値電流密度を決める要素としては、利得・損失の大きさ、キャリアの緩和時間、電流の注入効率など様々なものがあり、実験結果を上手く説明するには、それらの量の正確な見積もりが必要である。また、それらの見積もりにあたっては、ナノ構造中での電子の運動を正確に描写する近似モデルの構築が不可欠である。このような理由により、閾値電流密度を計算することは、ナノ構造中で起こっている現象を理解し、デバイス特性の向上につなげるために強力な手段であると言える。

閾値電流密度の温度依存性はどのような手順により計算することができるであろうか。ここでは発光層を描写する簡単な 3 準位モデルとレート方程式から、閾値電流密度を計算するために必要となるものを考える。Fig.4-1 に発光層における伝導帯の模式図を示す。

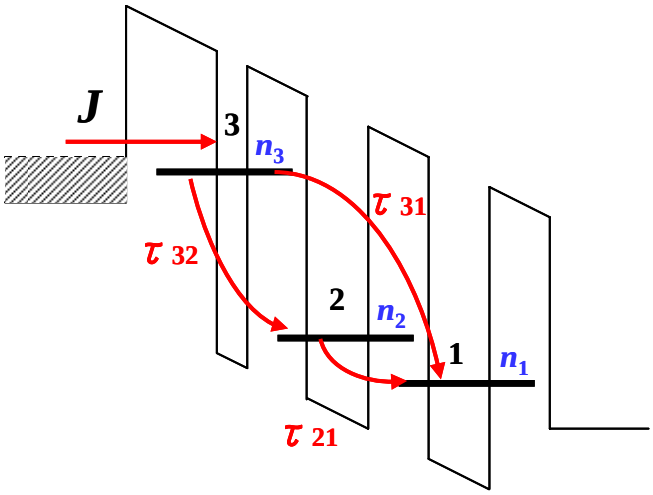


Fig.4-1. Schematic diagram of quantum cascade lasers with the various tunneling and relaxation process indicated by arrows. “n” expresses carrier sheet density in level 1-3 and “τ” relaxation time between two levels

発光始状態を準位 3、終状態を準位 2、そこから LO フォノンエネルギーとほぼ同じ大きさだけ低い準位を 1 とし、それぞれの準位でのキャリア密度を n_3,n_2,n_1 とする。準位 3 から 2

（1）への緩和時間をτ_{32} (τ_{31})、準位 2 から 1 への緩和時間をτ_{21}とする。準位 3 に存在するキャリアは全て準位 2 または 1 に遷移し、準位 2 に存在するキャリアは全て準位 1 に遷移するものとし、準位 3 からの全ての準位への緩和時間τ_3はτ_{32}とτ_{31}を用いて表せ、準位 2 からの全ての準位への緩和時間τ_2はτ_{21}を用いて表せるもととする。準位 3 には電流 J が流れるものとする。

このような状態は以下のレート方程式で表すことができる。

$$\begin{cases} \dfrac{dn_3}{dt} = \dfrac{J}{e} - \dfrac{n_3}{\tau_3} - Sg_0\Gamma(n_3 - n_2) & \text{(4-1-1a)} \\ \dfrac{dn_2}{dt} = \dfrac{n_3}{\tau_{32}} + Sg_0\Gamma(n_3 - n_2) - \dfrac{n_2}{\tau_2} & \text{(4-1-1b)} \\ \dfrac{dS}{dt} = \left(\dfrac{c}{n}\right)\left[\left\{g_0\Gamma(n_3 - n_2) - \alpha\right\}S + \beta\dfrac{n_3}{\tau_{\mathrm{sp}}}\right] & \text{(4-1-1c)} \end{cases}$$

ここで S 単位長さあたりの光子密度、g_0 利得定数、Γ光閉じ込め定数、c 光速、n 屈折率、α内部損失+鏡面損失、β自然放出光係数、τ_{sp} キャリア時間寿命時間である。閾値電流付近では S=0 とみなすことができるので、閾値電流密度 J_{th} は以下の式で表される。

$$J_{th} = \frac{e}{g_0\Gamma}\frac{\alpha}{\tau_3(1-\tau_2/\tau_{32})} \qquad \text{(4-1-2)}$$

利得定数 g_0、光閉じ込め係数Γ、共振器中での全損失α、ある準位からある準位への緩和時間τを計算する必要があることが分かる。光閉じ込め係数と全損失の値は過去に見積もられている値を用いるものとし*、以下では緩和時間と利得定数を計算することに注力する。

詳しくは第 3 節、第 4 節で説明するが、サブバンド間での緩和時間は、フェルミの黄金律から導かれるように、それぞれの状態を規定するハミルトニアンを、遷移始状態と終状態の包絡関数で挟み込むことによって計算できる。また利得定数には振動子強度に比例する項が含まれている。そのため、それら 2 つの値を計算するためには、量子カスケード構造中での包絡関数を計算することが先ず第 1 に必要である。また、包絡関数によって以下の全ての値が決まってくるため、その計算には高い精度が要求される。

以下、第 2 節では量子カスケード構造中に形成される量子準位のエネルギー、及びそれぞれの準位における包絡関数を計算する。第 3 節ではサブバンド間での緩和時間、第 4 節では振動子強度、量子効率、第 5 節では利得定数、更に発展させ、利得スペクトルの計算を行なう。そして第 6 節では閾値電流密度の温度依存性を説明するより詳細なモデルに基づき、第 3～5 節で得られた値を用い、閾値電流密度を計算する。補足として膜厚の設計値からの誤差が、閾値電流密度にどれほどの影響を及ぼすかについての検討を加える。そして第 7 節では、第 6 節までで無視してきた影響が、本当に小さかを確認し、それまでの計

*閾値電流密度の議論とは別の必要性から、第 5 章において、筆者もそれぞれの値を計算した。詳しくは第 5 章第 2 節第 1 項を参照のこと。

算の妥当性を証明するために、自己無頓着的な計算を行なった。そこでは量子カスケード構造中でのキャリアの分布、より正確な量子準位と包絡関数を計算した。

第 2 節　量子準位と包絡関数

任意の形状の量子井戸構造中での包絡関数を計算する方法として伝達行列法がある。以下にその計算方法を述べる。

積層方向を x とする量子井戸構造中において、量子数 n の波動関数は良く知られるように、以下のように表される [78]。

$$\Psi_n(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k},n}(\mathbf{r}) u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \tag{4-2-1}$$

$$f_{\mathbf{k},n}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{A}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \varphi_n(x) \tag{4-2-2}$$

ここで、$u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ は n、$\mathbf{k}$ の値ごとに定められる周期関数であり、A は yz 平面の面積である。

式(4-2-1)をシュレーディンガー方程式に代入すると以下の式が得られる。

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m^*(x)}\nabla^2 + V(x)\right)\Psi_n(\mathbf{r}) = E_{\mathbf{r},n}\Psi_n(\mathbf{r}) \tag{4-2-3}$$

周期関数 $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ が x,y,z のいずれか 1 つだけの変数を含む関数の積で表されるとし、式(4-2-3)が恒等的に成り立つには、以下の式が満足されなければいけない。

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m^*(x)}\frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x)\right)\varphi_n(x) = E_n\varphi_n(x) \tag{4-2-4}$$

ここで関数 $\varphi_n(x)$ は包絡関数と呼ばれる関数である。式(4-2-4)を良く見ると、1 次元の井戸型ポテンシャル中の粒子を記述する方程式に帰着されたことが分かる。以下ではこの包絡関数 $\varphi_n(x)$ を求めるための解析的な方法について述べる。

ここで 1 つ注意が必要なのは、一般的な 1 次元の井戸型ポテンシャルの問題と異なり、今回扱う量子井戸構造は GaAs/AlGaAs 界面という、有効質量が異なる境界面が存在することである。すなわち有効質量が $m^*(x)$のように x の関数で表される点である。このような有効質量が異なる境界においては、一般的な境界条件として課す以下の式は満たされない。

$$\begin{cases} \varphi_A(x_0) = \varphi_B(x_0) & \text{(4-2-5-a)} \\ \dfrac{\partial}{\partial x}\varphi_A(x_0) = \dfrac{\partial}{\partial x}\varphi_B(x_0) & \text{(4-2-5-b)} \end{cases}$$

(4-2-5-a)は界面での波動関数が連続に、(4-2-5-b)は滑らかに接続するための条件である。

2 つ以上の異なる有効質量をもつ材料からなる系における、解析的な計算手法として、幾つかの方向が提案されている [79-81]。波動関数が滑らかに接続する条件である(4-2-5-b)を

$$\frac{1}{m_A^*(x_0)}\frac{\partial}{\partial x}\varphi_A(x_0)=\frac{1}{m_B^*(x_0)}\frac{\partial}{\partial x}\varphi_B(x_0) \qquad (4\text{-}2\text{-}6)$$

のように有効質量を含む形に変形させれば、有効質量が異なる界面が存在する系であろうとも、電流保存則を満たす。この条件に基づき、Basterd は新たに以下のようなハミルトニアンを規定した。

$$H=-\frac{\hbar^2}{4}\left(\frac{1}{m^*(x)}\frac{\partial^2}{\partial x^2}+\frac{\partial^2}{\partial x^2}\frac{1}{m^*(x)}\right)+V(x) \qquad (4\text{-}2\text{-}7)$$

また、BenDaniel らは以下のように規定した。

$$H=-\frac{\hbar^2}{2}\frac{\partial}{\partial x}\left(\frac{1}{m^*(x)}\frac{\partial}{\partial x}+V(x)\right) \qquad (4\text{-}2\text{-}8)$$

筆者は BenDaniel らのハミルトニアンを用いて、以下の計算をすることとした。

以下に、シュレーディンガー方程式の離散化による、包絡関数の計算手法について述べる。シュレーディンガー方程式は次のような式で表される。

$$\left\{-\frac{\hbar^2}{2}\frac{\partial}{\partial x}\left(\frac{1}{m^*(x)}\frac{\partial}{\partial x}+V(x)\right)\right\}\varphi_n(x)=E_n\varphi_n(x) \qquad (4\text{-}2\text{-}9)$$

Fig.4-2 に示すように、包絡関数が直線と見なせるほど、十分小さな区間εで x を分割し、それぞれの点を x_i (i=1,⋯,n) とし、その点における包絡関数、有効質量の値を φ_i , m^*_i とする。また有効質量も包絡関数と同様に、定義された点の間は、線形で変化するものとする。

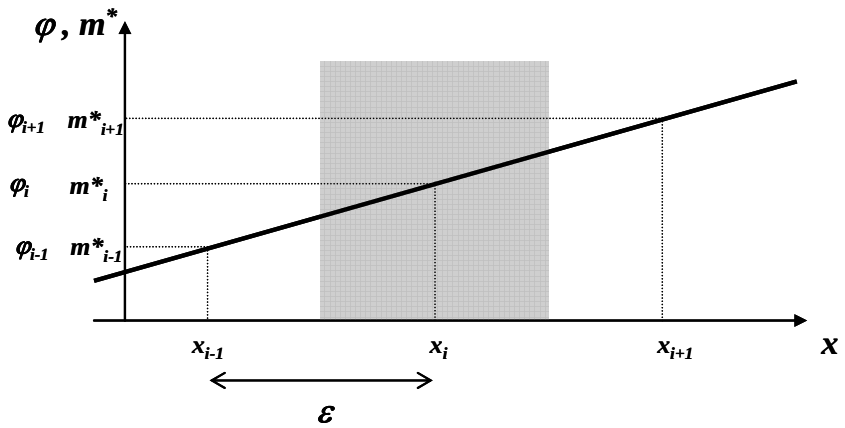


Fig.4-2. A value of envelop function and effective mass at x_i. Linear increase is assumed for minute interval.

Fig.4-2 の灰色で示した領域でシュレーディンガー方程式を積分すると左辺は以下のようになる。

$$\int_{\frac{x_i+x_{i-1}}{2}}^{\frac{x_{i+1}+x_i}{2}} \left\{ -\frac{\hbar^2}{2}\frac{\partial}{\partial x}\left(\frac{1}{m^*(x)}\frac{\partial}{\partial x} + V(x) \right) \right\} \varphi(x)dx$$

$$= \left[-\frac{\hbar^2}{2m^*(x)}\frac{\partial \varphi(x)}{\partial x} + V_i \varphi_i x \right]_{\frac{x_i+x_{i-1}}{2}}^{\frac{x_{i+1}+x_i}{2}}$$

$$= -\frac{\hbar^2}{m^*_{i+1}+m^*_i}\frac{\varphi_{i+1}-\varphi_i}{x_{i+1}-x_i} + \frac{\hbar^2}{m^*_i+m^*_{i-1}}\frac{\varphi_i-\varphi_{i-1}}{x_i-x_{i-1}} + V_i\varphi_i\frac{x_{i+1}-x_{i-1}}{2}$$

$$= -\frac{\hbar^2}{\varepsilon}\frac{1}{m^*_{i+1}+m^*_i}\varphi_{i+1} + \left\{ \frac{\hbar^2}{\varepsilon}\left(\frac{1}{m^*_{i+1}+m^*_i} + \frac{1}{m^*_i+m^*_{i-1}} \right) + V_i\varepsilon \right\}\varphi_i - \frac{\hbar^2}{\varepsilon}\frac{1}{m^*_i+m^*_{i-1}}\varphi_{i-1}$$

(4-2-10)

また、右辺は次のようになる。

$$\int_{\frac{x_i+x_{i-1}}{2}}^{\frac{x_{i+1}+x_i}{2}} E\varphi(x)dx$$

$$= E\varphi_i\frac{x_{i+1}-x_{i-1}}{2}$$

$$= E\varphi_i\varepsilon \qquad (4\text{-}2\text{-}11)$$

式(4-2-10)と(4-2-11)から、行列 **A** を次のように定義すると、シュレーディンガー方程式は以下のような固有値問題に帰着させることができる。

$$A_{i,i-1} = -\frac{\hbar^2}{\varepsilon^2}\frac{1}{m^*_i+m^*_{i-1}} \qquad (4\text{-}2\text{-}12)$$

$$A_{i,i} = \frac{\hbar^2}{\varepsilon^2}\left(\frac{1}{m^*_{i+1}+m^*_i} + \frac{1}{m^*_i+m^*_{i-1}} \right) + V_i \qquad (4\text{-}2\text{-}13)$$

$$A_{i,i+1} = -\frac{\hbar^2}{\varepsilon^2}\frac{1}{m^*_{i+1}+m^*_i} \qquad (4\text{-}2\text{-}14)$$

$$
\begin{pmatrix}
A_{1,1} & A_{1,2} & 0 & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\
A_{2,1} & A_{2,2} & A_{2,3} & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
0 & A_{3,2} & A_{3,3} & A_{3,4} & 0 & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & A_{i,i-1} & A_{i,i} & A_{i,i+1} & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & A_{n-1,n-2} & A_{n-1,n-1} & A_{n-1,n} \\
0 & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & 0 & A_{n,n-1} & A_{n,n}
\end{pmatrix}
\begin{pmatrix}
\varphi_1 \\ \varphi_2 \\ \varphi_3 \\ \vdots \\ \varphi_i \\ \vdots \\ \varphi_{n-1} \\ \varphi_n
\end{pmatrix}
= E
\begin{pmatrix}
\varphi_1 \\ \varphi_2 \\ \varphi_3 \\ \vdots \\ \varphi_i \\ \vdots \\ \varphi_{n-1} \\ \varphi_n
\end{pmatrix}
\qquad (4\text{-}2\text{-}15)
$$

ここで、左辺を右辺に移項することによって、新たに行列 **A'**を定義すると、

$$
\begin{pmatrix}
E-A_{1,1} & -A_{1,2} & 0 & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\
-A_{2,1} & E-A_{2,2} & -A_{2,3} & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
0 & -A_{3,2} & E-A_{3,3} & -A_{3,4} & 0 & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & -A_{i,i-1} & E-A_{i,i} & -A_{i,i+1} & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & -A_{n-1,n-2} & E-A_{n-1,n-1} & -A_{n-1,n} \\
0 & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & 0 & -A_{n,n-1} & E-A_{n,n}
\end{pmatrix}
\begin{pmatrix}
\varphi_1 \\ \varphi_2 \\ \varphi_3 \\ \vdots \\ \varphi_i \\ \vdots \\ \varphi_{n-1} \\ \varphi_n
\end{pmatrix}
= \mathbf{0}
\qquad (4\text{-}2\text{-}16)
$$

$$
\mathbf{A}' = \begin{pmatrix}
E-A_{1,1} & -A_{1,2} & 0 & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\
-A_{2,1} & E-A_{2,2} & -A_{2,3} & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
0 & -A_{3,2} & E-A_{3,3} & -A_{3,4} & 0 & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & -A_{i,i-1} & E-A_{i,i} & -A_{i,i+1} & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\
\vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & -A_{n-1,n-2} & E-A_{n-1,n-1} & -A_{n-1,n} \\
0 & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & 0 & -A_{n,n-1} & E-A_{n,n}
\end{pmatrix}
$$

固有値を求めるには、$\det \mathbf{A}' = 0$ となる E を求めればよいことが分かる。
固有値 E が求まれば、初期値 φ_1 を十分小さな適当な値とし、式(4-2-10)と(4-2-11)から全ての φ を計算することができる。

行列式 $\det \mathbf{A}'$ を求める方法には、LU 分解や、QR 分解、修正コレスキー分解など幾つかあるが、ここでの行列式は 3 重対角行列の形をしているため*、以下のように比較的容易に求めることができる。2 から n までの自然数 k に対し、行列式 $\mathrm{p}_k(E)$ を以下のように定義する。

---

* ハウスホルダー変換という相似変換を行なうと、全ての行列はこの形に変形させることができる。

$$\mathrm{p}_k(E)=\begin{vmatrix} E-A_{1,1} & -A_{1,2} & 0 & \cdots & 0 \\ -A_{2,1} & E-A_{2,2} & -A_{2,3} & \ddots & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & E-A_{k-1,k-1} & -A_{k-1,k} \\ 0 & \cdots & \cdots & -A_{k,k-1} & E-A_{k,k} \end{vmatrix} \qquad k \geq 2 \qquad (4\text{-}2\text{-}17)$$

また k=0,1 に対しては以下のように定義する。

$$\mathrm{p}_0(E)=1 \qquad (4\text{-}2\text{-}18)$$

$$\mathrm{p}_1(E)=E-A_{1,1} \qquad (4\text{-}2\text{-}19)$$

ここで、$\mathrm{p}_k(E)$ は次の漸化式を満たす。

$$\mathrm{p}_k(E)=\left(E-A_{k,k}\right)\mathrm{p}_{k-1}(E)-A_{k,k-1}{}^2\mathrm{p}_{k-2}(E) \qquad (4\text{-}2\text{-}20)$$

以上より、$\det \mathbf{A}'$ を求めるためには、式(4-2-17)-(4-2-20)から $\mathrm{p}_n(E)$ を求めればよい。

$\mathrm{p}_n(E)=0$ となる E を求めればよいのであるが、数値計算の観点からは、0 となる値を計算しようとすることはあまり好ましくはない。なぜならば、適当な値 E を左辺に代入したとき、どれほど 0 に近ければそれを 0 と見なすかを考えたときに、その値が大きいときは実際には解ではないものまで、解として扱ってしまう可能性がある。またその値を小さくすれば小さくするほど、計算の精度は向上するものの、計算時間が長くなってしまう。そこで、筆者は $\mathrm{p}_n(E)$ の逆数を計算し、その値が極値となるものを解とした。

ここまでの説明では特に言及しなかったが、実は有効質量 m^*は位置の関数であるだけではなく、エネルギーの関数でもある。具体的には電子のエネルギーが大きくなるほど、有効質量は大きくなる。波数 k とエネルギーE の関係は $E=\dfrac{\hbar^2k^2}{2m^*}$ のように表され、放物線の形をしていることから、この効果はバンドの非放物線性(nonparabolicity)と呼ばれている [82,83]。伝導帯での非常に小さなエネルギー差の準位を議論する、サブバンド間遷移型レーザにおいては、この非放物線性の影響を考慮するのと、しないのとでは結果が大きく異なってしまう。この非放物線性に関しては、量子カスケードレーザ実現以前に、地道に行なわれていた、Sortori らによる理論計算、基礎実験の成果の貢献が非常に大きい [29]。

z 軸方向に成長した量子井戸構造において、伝導帯での非放物線は、有効質量のエネルギー依存性を以下のように表すことで考慮に入れることができる。

$$m^*(E,z)=m_0^*\frac{E-E_v(z)}{E_p} \qquad (4\text{-}2\text{-}21)$$

$$E_v(z)=\frac{2E_{lh}+E_{so}}{3} \qquad (4\text{-}2\text{-}22)$$

ここで、m_0^* は伝導帯の底における電子の有効質量、$E_v(z)$ は伝導帯の底から等価的な価電子帯の頂点までのエネルギー、E_p は Kane Energy である。$E_v(z)$ は伝導帯の底から、軽い正孔に対するバンド、スプリットオフバンドの頂点のまでのエネルギーである E_{lh} , E_{so} を用いて式(4-2-22)のように与えられる。

以上のようにして、我々が実際に作製、測定した量子カスケード構造の、伝導帯における包絡関数を計算した。計算結果を Fig.4-3 に示す。

Table 4-1. Engen value and energy spacing between radiation initial state E9 and final state E6, and between final state E6 and ground state E4 in emittion layers

E_1	E_2	E_3	E_4	E_5	E_6	E_7
282.83	311.15	333.69	339.58	366.09	380.34	408.71
E_8	E_9	E_{10}	E_{11}	E_{12}	E_{13}	E_{14}
498.81	516.21	527.11	549.74	582.15	583.95	624.75

E_9-E_6	135.87
E_6-E_4	40.76

[meV]

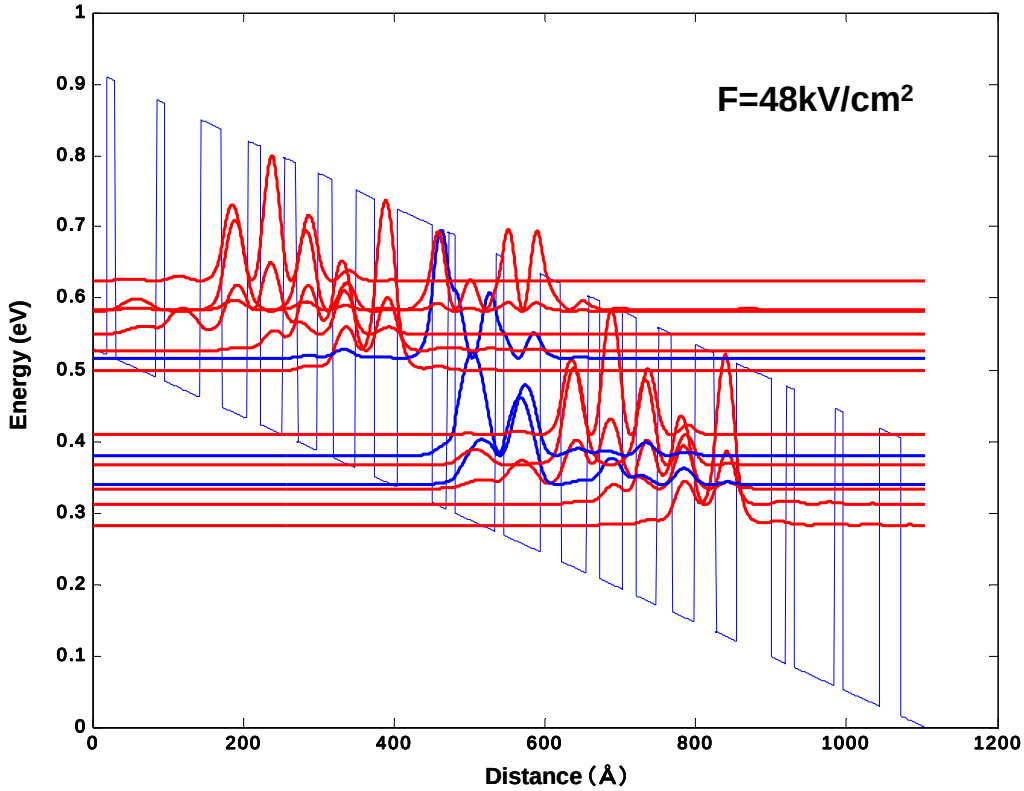


Fig.4-3. Caluculated envelop function at electric field 48kV/cm^2. Red line is the envelop function for the electron which is in injection layers and blue one is for emittion layers.

第 3 節　緩和時間

サブバンド間での緩和メカニズムとしては、LO、LA フォノン散乱、界面ラフネス散乱、不純物散乱、合金散乱などが挙げられる [84-88]。Leuliet らによって計算された、ある量子カスケード構造における、それらの値を Table.4-2 に示す [89]。

Table.4-2. Comparison between the different scattering processes for an electron on the *n*=3 subband. Lifetimes are presented for 3→2 transition (τ_{32}) and for the total scattering time (τ_3). [Reprinted from the reference 89]

Scattering mechanism	τ_{32}(ps)	τ_3(ps)
LO phonons	2.9	1.3
Interface roughness	5.26	2.5
LA phonons	100	60.6
Impurities	2.8×10^5	1.9×10^5
Alloy scattering	9.6	5.6

その結果から、LO フォノン散乱による緩和時間が最も短く、LA フォノン散乱、不純物散乱による緩和時間は十分長く、その影響は無視できるほどであることが分かる。LO フォノン散乱レートは遷移する準位差に大きく依存しており、準位 2 と 1 間におけるその影響は他のメカニズムによる影響よりも大きいことが予想される。そのような観点から、ここでは LO フォノン散乱による緩和時間のみを計算することとする。

サブバンド間の LO フォノン散乱時間 τ_{if} はフェルミの黄金律から導かれた以下の式から求めることができる [90,91]。

$$\frac{1}{\tau_{if}} = \frac{m^* e^2 \omega_{\mathrm{LO}}}{4\pi\hbar^2\varepsilon_0}\left(\frac{1}{\varepsilon_\infty} - \frac{1}{\varepsilon_s}\right)\int_0^\pi d\theta \frac{I^{if}(Q)}{Q} \qquad (4\text{-}3\text{-}1)$$

$$Q = (k_i^{\,2} + k_f^{\,2} - 2k_i k_f \cos\theta)^{1/2} \qquad (4\text{-}3\text{-}2)$$

$$k_f^{\,2} = k_i^{\,2} + \frac{2m^*}{\hbar^2}(E_i - E_f - \hbar\omega_{\mathrm{LO}}) \qquad (4\text{-}3\text{-}3)$$

$$I^{if}(Q) = \int dz \int dz' \varphi_i(z)\varphi_f(z) e^{-Q|z-z'|} \varphi_i(z')\varphi_f(z') \qquad (4\text{-}3\text{-}4)$$

ここで $\varepsilon_\infty, \varepsilon_s$ はそれぞれ高周波極限での誘電率と静的誘電率である。

ここでは説明とその計算を省略するが、サブバンド内での LO フォノン散乱時間はサブバ

ンド間に比べて十分速い。また量子カスケード構造中のいわゆる準位 3,2 のキャリア密度は非常に低いため、始状態の波数 k_i は 0 とみなすことができる。式(4-3-1)-(4-3-4)に $k_i = 0$ を代入すると、以下の式が得られる [92]。

$$\frac{1}{\tau_{if}} = \frac{m^* e^2 \omega_{\mathrm{LO}}}{4\hbar^2 \varepsilon_0}\left(\frac{1}{\varepsilon_\infty} - \frac{1}{\varepsilon_s}\right)\frac{1}{q_{if}} \int dz \int dz' \varphi_i(z)\varphi_f(z) e^{-q_{if}|z-z'|} \varphi_i(z')\varphi_f(z') \quad (4\text{-}3\text{-}5)$$

$$q_{if_\mathrm{e}} = \sqrt{\frac{2m^*(E_{if} - \hbar\omega_{\mathrm{LO}})}{\hbar^2}} \quad (4\text{-}3\text{-}6)$$

有限温度下での LO フォノンの吸収による遷移時間は式(4-3-6)を以下の式で置き換えることにより、同様の式(4-3-5)から計算することができる。

$$q_{if_\mathrm{a}} = \sqrt{\frac{2m^*(E_{if} + \hbar\omega_{\mathrm{LO}})}{\hbar^2}} \quad (4\text{-}3\text{-}7)$$

この章の最終的な目標は閾値電流密度を計算することであるが、第 1 節で述べたように、それには発光始状態の緩和時間 τ_3、発光始状態から発光終状態への緩和時間 τ_{32}、発光終状態の緩和時間 τ_2 を計算すればよい。発光層から注入層のミニバンドへの緩和時間を計算するに当たって、説明の都合上、それぞれの準位に番号をつけることとする。先ほどの Fig.4-3 でつけた番号をそのまま使うこととする。ここではいわゆる準位 3（発光始状態）は 9、準位 2（発光終状態）は 6、準位 1（準位 2 から高速に遷移する準位）は 4 である。

準位 9 及び、6 からの遷移はその発光層内とそれを挟む両側の注入層へだけ起こるとすると[*]、そのとき、準位 9、6 からの緩和時間は以下のようにかける。

$$\frac{1}{\tau_i} = \sum_f \frac{1}{\tau_{i\to f}} \quad (4\text{-}3\text{-}8)$$

ここで i は 9、または 6 であり、f は i を除く 1 から 14 までの整数である。

ここで注意が必要なのは式(4-3-5)から任意の準位間の緩和時間が計算できるわけではないことである。それを Fig.4-4 に示す。

[*] Fig.　を見ると分かるように、準位 9,6 の包絡関数（の 2 乗）は両側の注入層の更に外側の発光層では、完全に 0 であることが分かる。よって、ある発光層から別の発光層への緩和は無視できる。

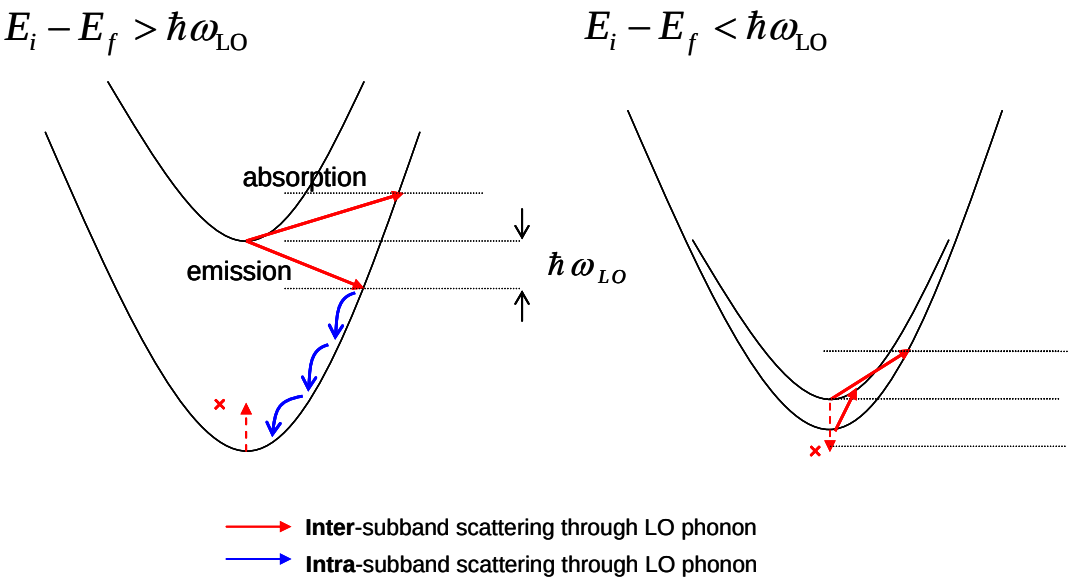


Fig.4-4. Possibility of LO phonon emission and sbsorption which depends on trandision energy.

左が準位間のエネルギーが LO フォノンエネルギーよりも大きい時の *k-E* 関係の模式図であり、右が小さい場合のそれである。LO フォノンエネルギーよりも大きい場合、高いエネルギー準位から低い準位へは放出、吸収ともに起こり、低い準位から高い準位へはともに起こらない。それは式(4-3-6),(4-3-7)の値が虚数になるため適切な値は計算されないということである。そのような式(4-3-6),(4-3-7)が虚数となるような状態のとき、その緩和時間は無限大と見なすこととする。準位差が LO フォノンエネルギーよりも小さい場合は高い準位から低い準位への遷移過程は、吸収は起こりえるが、放出は起こらない。低い準位から高い準位へは、今度は吸収なら起こりえる。

今回の準位 9 に関しては、10 以上の準位がいずれも LO フォノンエネルギー以上大きい、また準位 6 に関しも、7 以上の準位がいずれも LO フォノンエネルギー以上大きいため、それぞれの準位より低い準位への緩和時間を計算した。それを Table.4-2 に示す。黄色で影をつけた部分が、いわゆる τ_{31}、τ_{32}、τ_{21} である。

Table 4-2. Calculated carrier transition time from subband level 9 and 6 to lower energy state than that each levels by LO phonon emission and absorption.

from \ to	1	2	3	4	5	6	7	8
9	32002.085	2447.739	16.163	4.202	16.647	2.580	83.234	Inf
	38462.946	2934.236	20.130	5.289	22.102	3.530	127.691	5.174
6	72.328	10.856	1.494	0.345	Inf			
	99.069	16.884	2.942	0.920	1.891			

[ps]

Upper : Emission
Lower : Absorption

第 4 節　振動子強度、量子効率

ここでは利得定数を計算するに当たり必要となる、双極子遷移の行列要素を計算する。またそれを用い、振動子強度、発振閾値以下における量子効率を計算する。

状態 i から f への双極子遷移の行列要素は、位置のハミルトニアン z をそれぞれの状態を規定する波動関数 φ_i, φ_f で挟み込むことによって以下のように計算できる。

$$Z_{if} = \left\langle \varphi_i \middle| z \middle| \varphi_f \right\rangle \tag{4-4-1}$$

しかし、これは伝導帯と価電子帯の直交する波動関数での計算に用いられるものであり、1 次元のシュレディンガー方程式を解くことによって得た包絡関数を、そこに当てはめることはいくらか問題がある。それを解決するには 2 バンドモデルまで立ち返ることであり、結果として、以下のように価電子帯の部分を含む行列要素の計算式が導かれる [92]。

$$Z_{if} = \frac{\hbar}{2(E_i - E_f)} \left\langle \varphi_i \middle| p_z \frac{1}{m^*(E_i, z)} + \frac{1}{m^*(E_f, z)} p_z \middle| \varphi_f \right\rangle \tag{4-4-2}$$

ここで p_z は運動量の演算子であり、 $p_z = -i\hbar \frac{\partial}{\partial z}$ である。ここで、包絡関数 φ_i, φ_f は価電子帯を考慮するために、以下のように規格化されたものである。

$$1 = \left\langle \varphi_i \middle| 1 + \frac{E - V(z)}{E - V(z) + E_G(z)} \middle| \varphi_i \right\rangle \tag{4-4-3}$$

第 2 節で計算した包絡関数と式(4-4-2)から、発光始状態（この準位を準位 3 とする）から、終状態（準位 2 とする）への遷移行列要素 Z_{32} を計算すると、

$$\boldsymbol{Z_{32}=1.94\mathrm{nm}} \tag{4-4-4}$$

であった。量子井戸内での包絡関数は互いに直行しているため、双極子遷移の行列要素は z 成分しかもたない。これが量子井戸におけるサブバンド間発光は TM モードに偏光しており、TE モード成分をもたない所以である。

振動子強度 f は Z_{if} を用いて、

$$f = \frac{2m_0}{\hbar^2}(E_i - E_f)\left|Z_{if}\right| \tag{4-4-5}$$

と表される。第 2 節で得た準位 3-2 間のエネルギー差と、先ほどの遷移行列要素から振動子強度を計算すると、

$$\boldsymbol{f=0.899} \tag{4-4-6}$$

であった。

次に閾値以下での量子効率を見積もることを考える。発光寿命は以下の式から計算できる。

$$\left(\tau_{\mathrm{spon}}\right)^{-1}=\frac{e^2 n}{6\pi c^3 \varepsilon_0 \hbar^4} E_{if}{}^3 \left|Z_{if}\right|^2 \qquad (4\text{-}4\text{-}7)$$

ここで e 素電荷、n 屈折率、c 光速、ε_0真空の誘電率、E_{if} 遷移エネルギーである。この式から発光寿命は

$$\boldsymbol{\tau_{\mathrm{spon}}=173.8\mathrm{ns}} \qquad (4\text{-}4\text{-}8)$$

であることが見積もられた。

第3項で述べたように、非発光緩和過程のほとんどは LO フォノン散乱によるものであるので、その散乱時間を τ_{LO} とすると、量子効率 η_{rad} は以下のようにして計算できる。

$$\eta_{\mathrm{rad}}=\frac{\left(\tau_{\mathrm{spon}}\right)^{-1}}{\left(\tau_{\mathrm{spon}}\right)^{-1}+\left(\tau_{\mathrm{LO}}\right)^{-1}} \qquad (4\text{-}7\text{-}9)$$

発光緩和時間が数百 ns であるのに対し、LO フォノン散乱時間は ps オーダーであることから、量子効率は

$$\boldsymbol{\eta_{\mathrm{rad}}\approx 10^{-5}} \qquad (4\text{-}7\text{-}10)$$

と見積もられた。

第 5 節　利得スペクトル

フェルミの黄金率から量子井戸におけるゲインスペクトルは、ローレンツェアン型で近似すると、以下の式で表される [93]。

$$g_{2D}\left(\hbar\omega\right)=\frac{eE_{32}\left|z_{32}\right|^2}{2\hbar c n_{eff} L_p}\frac{\gamma_{32}}{(E_3-E_2-\hbar\omega)^2+\gamma_{32}{}^2/4}\left(N_3-N_2\right) \qquad (4\text{-}5\text{-}1)$$

ここで、N_3-N_2 は電流値によって変化する大きさである。この値はレート方程式を解くことによって得ることができる。利得定数 g_0 と呼ばれるものは、式(4-5-1)の $\left(N_3-N_2\right)$ 以外の部分の最大値であるので、それは以下の式から計算することができる。

$$g_{\max} = \frac{2eE_{32}\left|z_{32}\right|^2}{\hbar c n_{eff} L_p \gamma_{32}} \qquad (4\text{-}5\text{-}2)$$

第 6 節　閾値電流密度

第 1 項　温度依存性

ここではこの章の本題である閾値電流密度の温度依存性を計算し、第 3 章で得られた実験結果と比較する。閾値電流密度を計算するに当たっては、第 1 項で用いたモデルを拡張させ、それらの影響を検討する。

先ず、温度上昇に伴う閾値電流密度の増加などの悪影響のもととなっているメカニズムを整理する。量子カスケードレーザの温度特性の改善や高性能化は、これらのメカニズムを理解し、その影響をなるべく小さく押さえる努力によるものであるといってもよい。それらを Fig.4-4 にまとめる。

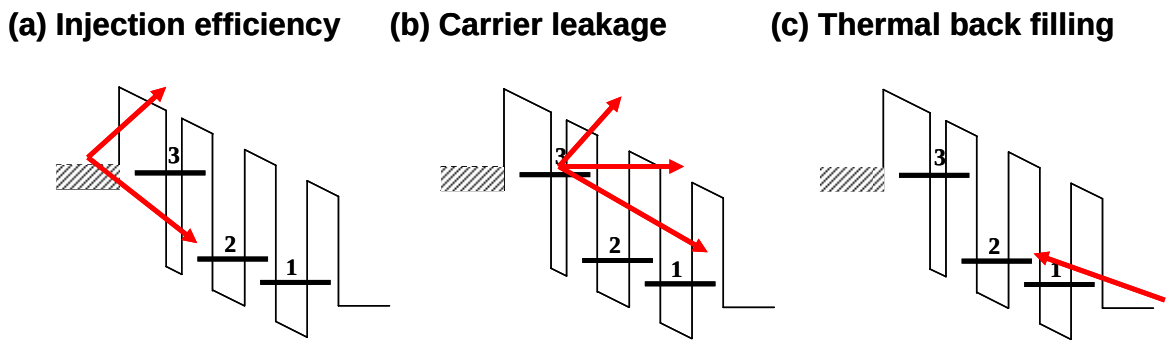


Fig.4-5. Three bad factors which lead to increase in the threshold current density and disturb high temperature operation.　The way to realization of the high temperature operation is to design the structures which suppress these influences.

1 つ目は注入層から準位 3 への注入効率の低下である。特性改善には温度上昇に伴う準位 3 以外の準位へのリークをなるべく抑えることである。また低温領域においても準位 3 への注入効率をできるだけ大きくすることが性能向上につながる。これには注入層のドーピング濃度を最適化するなどの工夫が考えられる。

2 つ目の要素は準位 3 から準位 2 以外へのリークである。温度上昇に伴い、準位 3 から障壁層のバンド端より上のエネルギー領域に形成されるミニバンドへのリークが考えられる。また、そのようなミニバンドへのリークや、準位 3 から注入層へのトンネル効果によるリーク、フォ

ノン散乱による遷移をなるべく小さく抑えることが高性能化につながる。現在までに準位 3 からのリークを小さくするために、ミニバンドから準位 3 までのエネルギーをなるべく大きくし、また注入層の準位 3 のエネルギー付近に対する透過率をできるだけ小さくするようなさまざまな構造が設計されている。

3 つ目の要素は注入層から準位 2 へのキャリアの熱再分布である。温度上昇に伴い、熱エネルギーを得たキャリアが準位 2 まで再分布し、反転分布を小さくするような悪影響をもたらす。これには注入層の一番底のエネルギー準位から準位 2 までのエネルギー差をなるべく大きくすることが有効である。

以下でこれら 3 つの要素の影響を定量的に分析することとする。

1.準位 3 への注入効率

注入効率は以下の式から見積もることができる。

$$\frac{dP}{dI}=\frac{1}{2}\frac{\hbar\omega}{e}N_{\mathrm{p}}\frac{\alpha_{\mathrm{m}}}{\alpha_{\mathrm{m}}+\alpha_{\mathrm{w}}}\eta_{\mathrm{in}}\frac{\tau_{32}-\tau_2}{\tau_{32}-\tau_2+\dfrac{\tau_{32}\tau_2}{\tau_3}} \qquad (4\text{-}6\text{-}1)$$

ここで $\dfrac{\alpha_{\mathrm{m}}}{\alpha_{\mathrm{m}}+\alpha_{\mathrm{w}}}\eta_{\mathrm{in}}\dfrac{\tau_{32}-\tau_2}{\tau_{32}-\tau_2+\dfrac{\tau_{32}\tau_2}{\tau_3}}$ が 1 周期当たりの外部量子効率 η_d であり、

$\eta_{\mathrm{in}}\dfrac{\tau_{32}-\tau_2}{\tau_{32}-\tau_2+\dfrac{\tau_{32}\tau_2}{\tau_3}}$ が 1 周期当たりの内部量子効率 η_i である。

注入効率を見積もるために、温度に対する微分効率をプロットしたものが Fig.4-6 である。

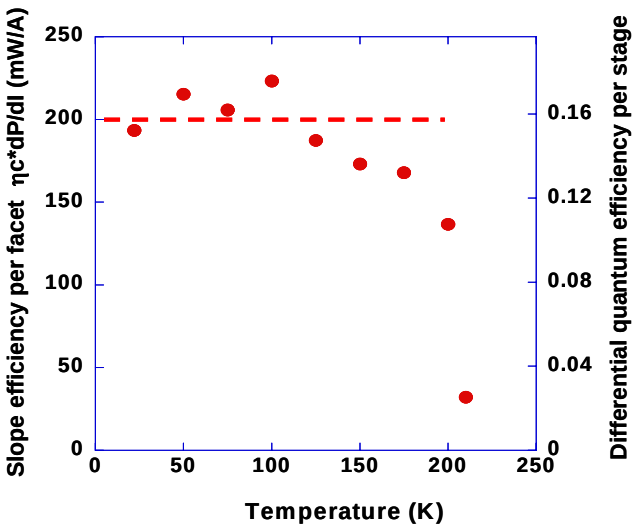


Fig.4-6. Slop efficiency per facet and diffractional quantum efficiency per stage vs heat sink temperature.

この図から 150K 付近まで、外部量子効率η_dはほぼ一定と見なすことができる。η_d=0.16のときの内部量子効率η_iと注入効率η_{in}を式(4-6-1)からそれぞれ計算すると、0.57、0.70 であった。ここでは内部量子効率は 1 周期当たりのものであるので、全体での内部量子効率は 1 を越えることとなる。これが量子カスケードレーザの大きな特徴であり、魅力である。

2.準位 3 からのリーク

準位 3 からのキャリアのリークを調べるために、注入層における透過率を計算した[94]。その結果を Fig.4-6 に示す。これを見ると準位 3 から透過率が大きいミニバンドまでのエネルギーは熱エネルギー$k_{\mathrm{B}}T$よりも十分大きいことが分かる。また準位 3 のエネルギー付近の透過率が非常に小さくなるように、注入層のミニギャップの位置が設計されていることが分かる。このことから、今回作製した構造においては、準位 3 から高エネルギー側のミニバンドや同レベルの準位へのトンネル電流は無視できるくらい小さいものとみなすこととする。またこの透過率から、準位 1 のエネルギー付近の透過率を上げることによって、発光層から共鳴トンネルにより高速に注入層に流れ込むような設計が為されていることが分かる。

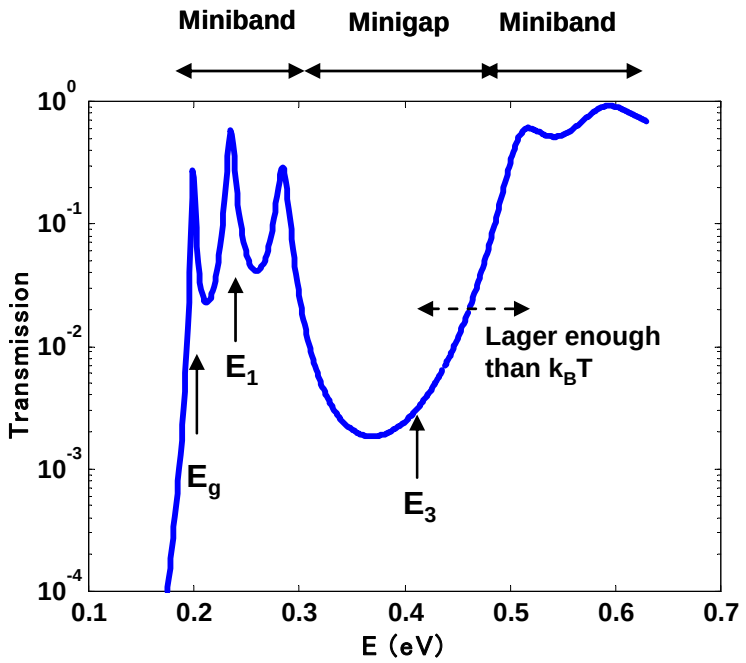


Fig.4-7. Calculated transmission spectrum for injection layers.

それでは、低エネルギー側へのキャリアのリークの影響はどうであろうか。準位 3 から低エネルギー側のミニバンドへの LO フォノン散乱の影響を調べるために、準位 3 から、注入層への緩和時間を計算した。その結果を Table. に示す。左側の Basic と記したものは、注

入層の影響を考慮せず、τ_3, τ_2 それぞれを $\frac{1}{\tau_3} = \frac{1}{\tau_{31}} + \frac{1}{\tau_{32}}$、$\frac{1}{\tau_2} = \frac{1}{\tau_{21}}$ という近似から求めた緩和時間である。それに対し、右側の Advanced と記したものは、準位 3,2 から注入層に形成された全ての準位への緩和を考慮して求めた値である。それに関しては、LO フォノンの放出と吸収、それぞれに対して計算をした。

Table 4-3. Comparison of LO phonon scattering time calculated without or with taking carrier leakage from subband level 3 to injection layers into account.

	Basic	Advanced	
	emission	emission	absorption
τ_{32}	2.58	2.58	3.53
τ_3	1.599	1.316	1.301
τ_2	0.345	0.272	0.494

[ps]

この結果から、LO フォノンの放出による緩和時間は、注入層へのキャリアのリークの影響を考慮しない場合に対し､その影響まで考慮すると 1 割から 2 割ほど短くなると言える。

3.キャリアの熱再分布

キャリアの熱再分布の大きさは注入層のキャリア密度 n_g、注入層の一番低いエネルギー準位の擬フェルミ準位から準位 2 までのエネルギー差 Δ、フェルミ粒子の統計分布関数を用いて $n_g \exp(-\frac{\Delta}{k_B T})$ と表すことができる [98]。今回作製した構造における Δ は 88meV であった。キャリアの熱再分布の閾値電流密度への影響はレート方程式において準位 2 のキャリア密度 n_2 を $n_2 - n_g \exp(-\frac{\Delta}{k_B T})$ と置き換えることによって計算できる。

今までに述べてきたことはいずれも構造設計に大きく依存しているものであり、設計次第ではいずれも改善の余地があるものである[*]。しかし温度変化に対してどうしても避けられない効果もある。それは LO フォノン散乱レートの上昇である。

[*] とは言うものの、特性改善に向け、ここで挙げた構造設計指針のもとでの最適化は量子カスケードレーザの誕生以来盛んに行なわれていることであり、ここで挙げた点の最適化はかなりの精度で既に為されていると考えるのが普通である。そのためそれらの指針だけでの急激な特性改善は考えにくい。

LO フォノン散乱レートの温度依存性は、ボソン粒子の温度に対する統計的分布を表す関数を用いて、以下のようにして表現できる。

$$\frac{1}{\tau_e(T)} = \frac{1}{\tau_e}\left(1 + \frac{1}{\exp(\frac{\hbar\omega_{\mathrm{LO}}}{k_{\mathrm{B}}T}) - 1}\right) \tag{4-6-2}$$

$$\frac{1}{\tau_a(T)} = \frac{1}{\tau_a}\frac{1}{\exp(\frac{\hbar\omega_{\mathrm{LO}}}{k_{\mathrm{B}}T}) - 1} \tag{4-6-3}$$

ここで、0K での LO フォノン放出と吸収による緩和時間は τ_a, τ_e はほぼ等しいと見なし、

$$\frac{1}{\tau(T)} = \frac{1}{\tau}\left(1 + \frac{2}{\exp(\frac{\hbar\omega_{\mathrm{LO}}}{k_{\mathrm{B}}T}) - 1}\right) \tag{4-6-4}$$

と表されることもある。

また LO フォノン散乱レートの上昇による、スペクトル幅の広がりの影響は以下のように表現することができる[96]。

$$\gamma = \gamma_i + \gamma_c\left[\exp(\frac{\hbar\omega_{\mathrm{LO}}}{k_{\mathrm{B}}T}) - 1\right]^{-1} \tag{4-6-5}$$

ここで γ_i は温度に依存しない項であり、主に界面ラフネス散乱や合金散乱によるスペクトルの広がりである。γ_c は温度に依存する項であり、LO フォノン散乱によるものである。

以下の計算においては、液体窒素温度、室温において測定された半値幅の値[97]から計算した γ_i =5.93、γ_c =15.34 の値を用いることとした。計算からもその文献で得られている半値幅と非常に近い値が見積もられている[88]。

以上のことを考慮すると、第 1 節で立てた簡略的なモデルから導かれた閾値電流密度の式(4-1-2)は以下の式のように書き換えることができる。

$$J_{\mathrm{th}} = \left(\frac{(\alpha_{\mathrm{w}} + \alpha_{\mathrm{m}})}{\Gamma}\frac{\hbar c\varepsilon_0 n_{\mathrm{eff}} L_{\mathrm{p}}\gamma_{if}}{2e^2 E_{if}\left|Z_{if}\right|^2 N_{\mathrm{p}}} + n_{\mathrm{g}}\exp(-\frac{\Delta}{k_{\mathrm{B}}T})\right)\frac{e}{\eta_{\mathrm{in}}\left(\sum_{k<i}\frac{1}{\tau_{ik}}\right)^{-1}\left(1 - \left(\sum_{k'<f}\frac{1}{\tau_{fk'}}\right)^{-1}\Big/\tau_{if}\right)} \tag{4-6-6}$$

計算結果と実験から得られた値を Fig.4-8 に示す。赤色で示した(e)が上で議論した全てを考慮したものであり、(a)～(d)はそれぞれ補足的なものである。それぞれは

(a) 最も基本的な 3 準位モデルから 0K での閾値電流密度を求め、その温度依存性を近似的な LO フォノン散乱時間の温度依存性の式(4-6-4)と半値幅の温度による広がりの式

(4-6-5)を用いて計算したもの

(b) (a)にキャリアの熱再分布の影響を考慮したもの

(c) (b)においては 1 と仮定した注入効率 η_{in} を、実験から得られた値である 0.67 としたもの

(d) (c)に準位 3 から注入層の下位ミニバンドへの LO フォノン散乱の影響を考慮したもの

(e) (d)まででは LO フォノンの放出による緩和時間と等しいと近似していた、LO フォノン吸収の効果を考慮したもの

である。

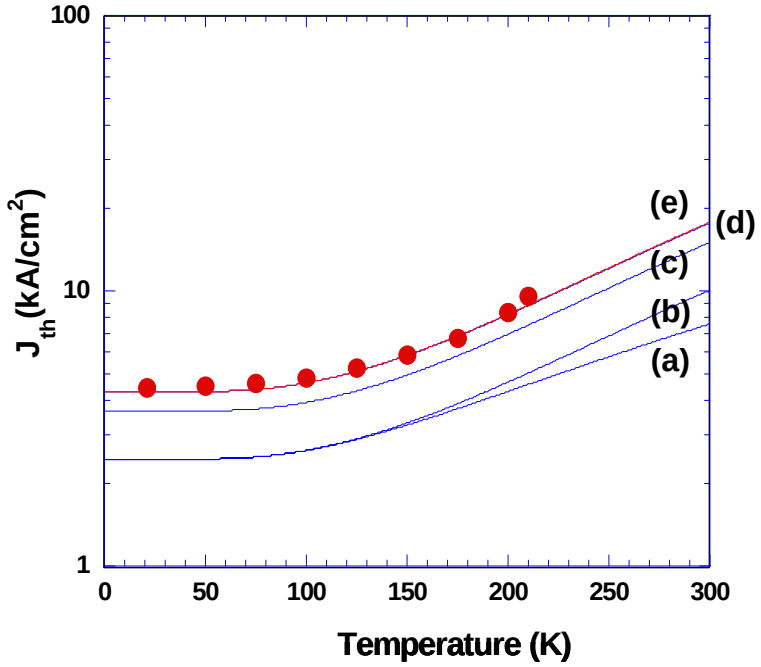


Fig.4-8. Comparison among experimental result and simulated curves.

この結果から、準位 3 への注入効率が最も閾値電流密度に関係しており、注入効率の改善で特性向上が期待できること、注入層へのキャリアのリークはそれほど多くはなく、単純な 3 準位モデルでもある程度の説明は可能であること、100K 付近からキャリアの熱再分布の影響がではじめることが分かった。

第 2 項　膜厚誤差依存性

第 1 項で閾値電流密度を計算することができるようになった。ある量子カスケード構造を成長し、その膜厚を測定したとしたとき、どれほどの精度で設計値に近ければそのウエハはその後のプロセス、測定評価をするに値するといえるのかという疑問*は、非常に興味

* もちろん、量子カスケード構造を成長したウェハの良し悪しは膜厚だけで決まるわけでは

があるところである。そこで膜厚の設計値との誤差と閾値電流密度との関係を調べることとする。

計算時間の都合、発光層の 3 層だけで計算する。準位 3,2,1 の包絡関数を計算し、τ_{31}、τ_{32}、τ_{21} を計算する。τ_3、τ_2 は第 1 節で用いたモデルのように、前者の逆数はτ_{31}、τ_{32} それぞれの逆数の和であり、後者はτ_{21} と等しいとする。このように発光層部分だけでの計算でも何らかの信頼ある情報を得ることができると考える理由は、第 1 項で得た発光層から注入層へのキャリアの遷移はそれほど大きくはないという事実と、ある膜厚での閾値電流密度の値そのものは信頼できるものではなくても、異なる膜厚との相対的な関係はそれほど変わることはないはずであるという確信からである。また、発光層部分だけの構造において形成される量子準位を計算すると、準位 3-2 間、2-1 間のエネルギー差は、ともに広い範囲で計算した場合とそれほど変わらないものであった。

膜厚誤差と 0K における閾値電流密度の関係の計算結果を Fig.4-9 に示す。

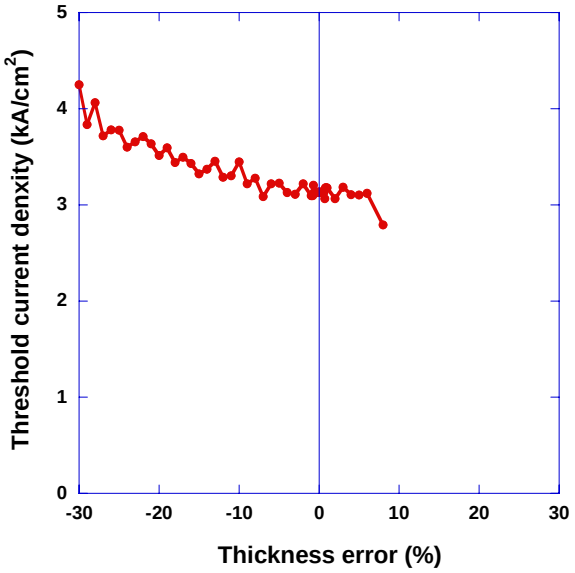


Fig.4-9. Thickness error dependence of threshold current densiy.

誤差+8%以上の計算ができない理由は、準位 2 と準位 1 のエネルギー差が LO フォノンエネルギーよりも小さくなることによる。この結果から言えることは、膜厚が設計値からずれても、それほど大きく閾値電流密度が変化するわけではないということである。閾値電流密度を決める最も重要な要素は準位 2 から 1 への緩和時間であり、それはその準位間のエネルギーに関係している。すなわち、Fig4-9 のような結果が得られたのは、膜厚の上記の範囲内での変化において、準位 3-2 間のエネルギーはそれほど変化しないことによるもので

なく、結晶の質、界面の平坦性、組成比、欠陥密度などさまざまなものがある。ここでは膜厚以外はまったく問題ないとしたときの話である。

あると言える。

絶対値に関してであるが、注入層の影響を無視しての簡易的な計算であるため、実際の値よりも 2 割ほど小さい値となっている。膜厚誤差が 0 のときが最も閾値電流密度が小さいわけではないが、LO フォノンのエネルギーをいくらとし計算するかによって、閾値電流密度が最も小さくなる膜厚は大きく変わってくると考えられる。そのためここでは閾値電流密度が最小になる膜厚はいくらであるという結論を出すことは適切ではないと考える。ただ数%の誤差では閾値電流密度はほとんど変わらないといえるだけである。

第 7 節　自己無頓着法による解析 [97-101]

第 6 節までは量子カスケード構造に一様な電界がかかっているとした状態の下で、様々な計算をしてきた。しかし、それぞれの準位での緩和時間が異なるなめ、位置によってキャリア密度に斑があることが予想される。キャリア密度が高い領域においてはスクリーニング効果によってバンド形状の変形が考えられる。そのため、この節ではそのような影響も考慮した自己無頓着的な解析を扱う。また自己無頓着的な解析方法を用いると、そうではない方法では計算できないような、キャリア分布や I-V 特性などが計算できる。近年、研究開発が盛んな THz 領域に発振波長をもつ量子カスケードレーザにおいては、遷移エネルギーが非常に小さいため、スクリーニングの効果が全く無視できないとされ、自己無頓着的な解析は必要不可欠なものとなっている。

自己無頓着法のアルゴリズムを Fig.4-10 に示す。

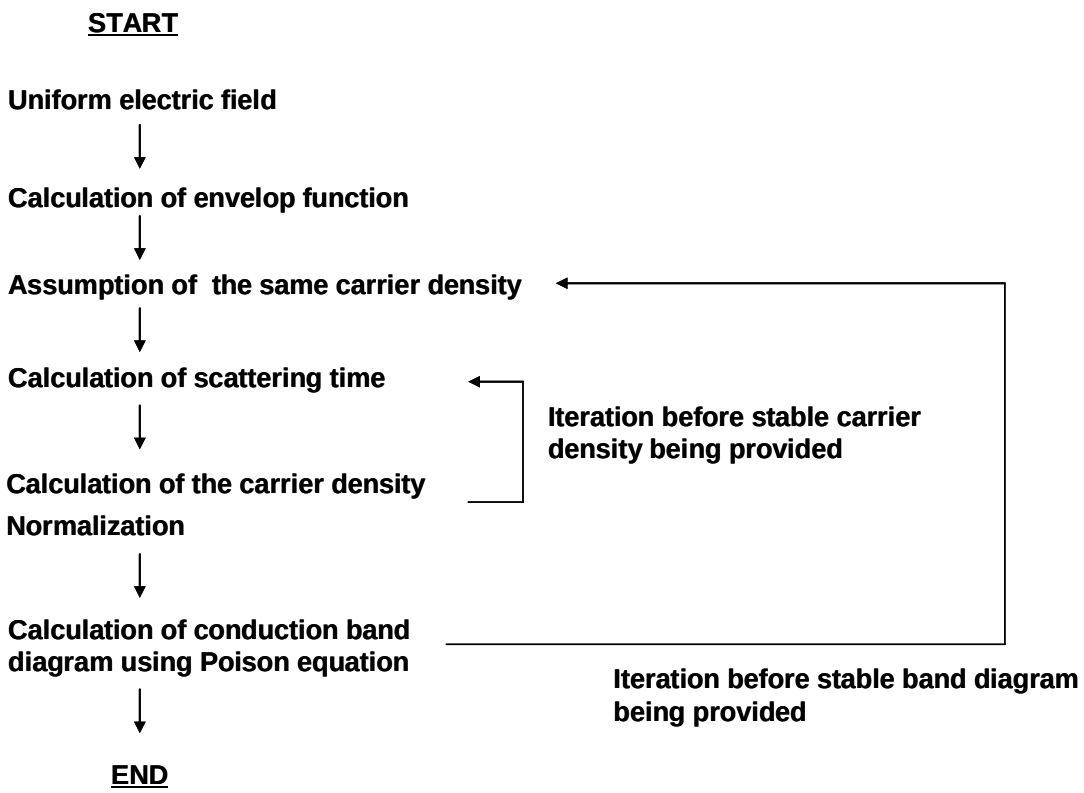


Fig.4-10. Algorithm of the self-consistent caululation.

先ずは第 6 章までのように、一様な電界を仮定し、包絡関数を計算する（第 2 節の Fig.4-3 参照）。ここで、便宜上それぞれのサブバンドにエネルギーが小さい方から番号を振り、発光層に形成される準位を 4,6,9,13、右側の注入層に形成される準位を 1,2,3,5,7、左側の注入層に形成される準位を 8,10,11,12,14 とする。次に 1～14 までの全ての準位のキャリア密度が等しく、また 1 周期の当たりのキャリア密度の和が注入層のドーピング濃度と等しいとする。ある準位のキャリア密度が決まれば、式(4-3-1)-(4-3-4)を使ってその準位からその他 13 個の準位への緩和時間を計算することができる。このようにして、14×14 の緩和時間を計算したら、式（4-6-1）で示されるような定常状態でのレート方程式から全ての準位のキャリア密度を計算し直す。

$$n_i = \left(\sum_{j \neq i} \frac{n_j}{\tau_{ji}} \right) \Bigg/ \left(\sum_{j \neq i} \frac{1}{\tau_{ij}} \right) \qquad (4\text{-}6\text{-}1)$$

ここで先ほどと同じように、1 周期当たりのキャリア密度の和がドーピング濃度と等しくなるように規格化を行なう。このようにキャリア密度を計算し、緩和時間を計算し、再びキャリア密度を計算するということを、安定したキャリア密度の値が得られるまで繰り返した結果を Fig.4-11 に示す。

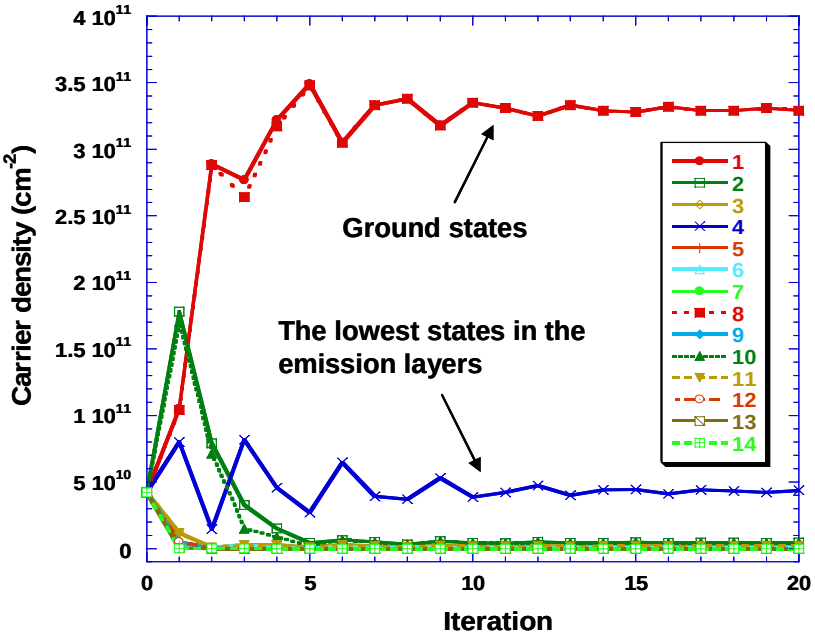


Fig.4-11.Subband population vs the numberof iterations of the seif-consistent calculation.Convergence is achieved after 20 iterations, when the gradient of the curve tends to zoro. At equilibrium, the corresponding injector levels contain the same number of carriers.

20 回ほど繰り返せばそれぞれのキャリア密度が一定になっていることが分かる。この図の一番上の赤い線が注入層で一番エネルギーが低く、発光始状態にキャリアが注入される準位を表している。その下の青い線は発光層で一番エネルギーが低い準位である。

それぞれの準位のキャリア密度を求めることができたら、以下の式(4-6-1)のように確率密度とキャリア密度を掛け合わせることで、位置によるキャリアの分布を計算することができる。

$$\rho(z) = \rho_{doping}(z) + e\sum_i N_i \left|\varphi_i(z)\right|^2 \qquad (4\text{-}6\text{-}1)$$

その結果を Fig.4-12 に示す。

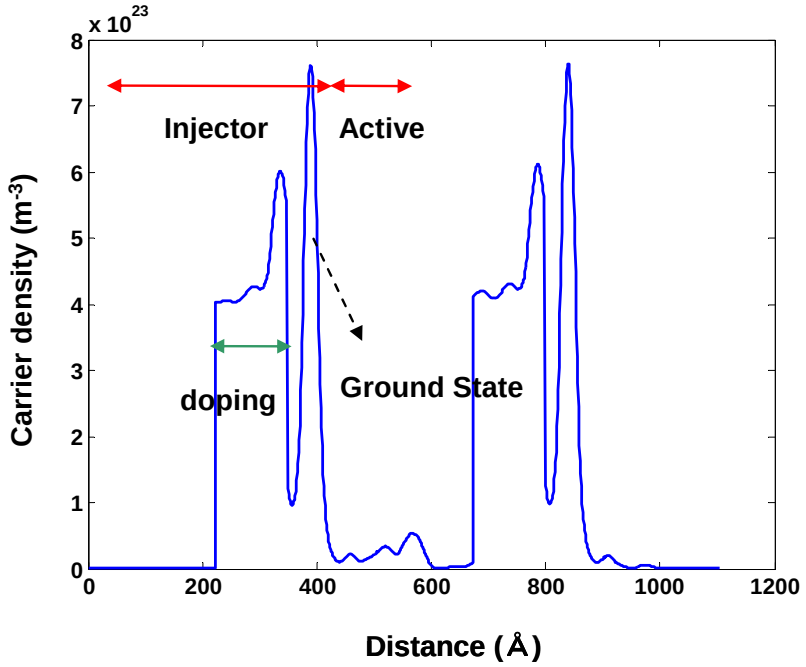


Fig.4-12. Carrier distribution in the quantum cascade structures. The great majority of the carriers exist in the injection layers.

この図から量子カスケード構造中において多くのキャリアは注入層、特に一番エネルギーが低い、発光層にキャリアを注入する準位に存在しており、発光層にはあまり存在していないことが見て取れる。これは注入層から発光層への LO フォノン散乱による拡散が少ないことに起因している。今回の計算においては LO フォノン散乱のみを考慮したが、注入層の基底状態から、発光始状態へは共鳴トンネル効果により、実際はもっと高速に注入されている可能性も考えられる。その場合、発光層に存在するキャリアの割合がこれよりも高くなることが予想される。しかし、一般的に量子カスケード構造においては発光層の前付近にキャリアが多く溜まっているものと認識されているため、それほど大きく変化するものではないと思われる。

キャリアの分布を計算することができたら、ポテンシャルは式(4-6-3)のようなポアソン方程式と境界条件から計算することができる。

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2}V(z) = -\frac{\rho(z)}{\varepsilon_r \varepsilon_0} \qquad (4\text{-}6\text{-}3)$$

しかし、原理的にはポアソン方程式をただ積分すれば、ポテンシャルが計算できるといえども、その積分は困難であり、キャリア分布が簡単な場合以外は解析的には解くことができない。そこで、外部電界を 48kV/cm^2 とし、またある位置の空間電荷による電界強度をその位置を中心に 2nm の範囲でキャリア分布を積分することで求め、以下の式のように電界分布と初期状態からポテンシャルを求めることとする。

$$V(z_i) = -\sum_{k<i} E(z_k)dz + V(z_0) \qquad (4\text{-}6\text{-}4)$$

このようにして求めたポテンシャル構造、及びそのときの包絡関数を計算した結果を Fig.4-13 に示す。

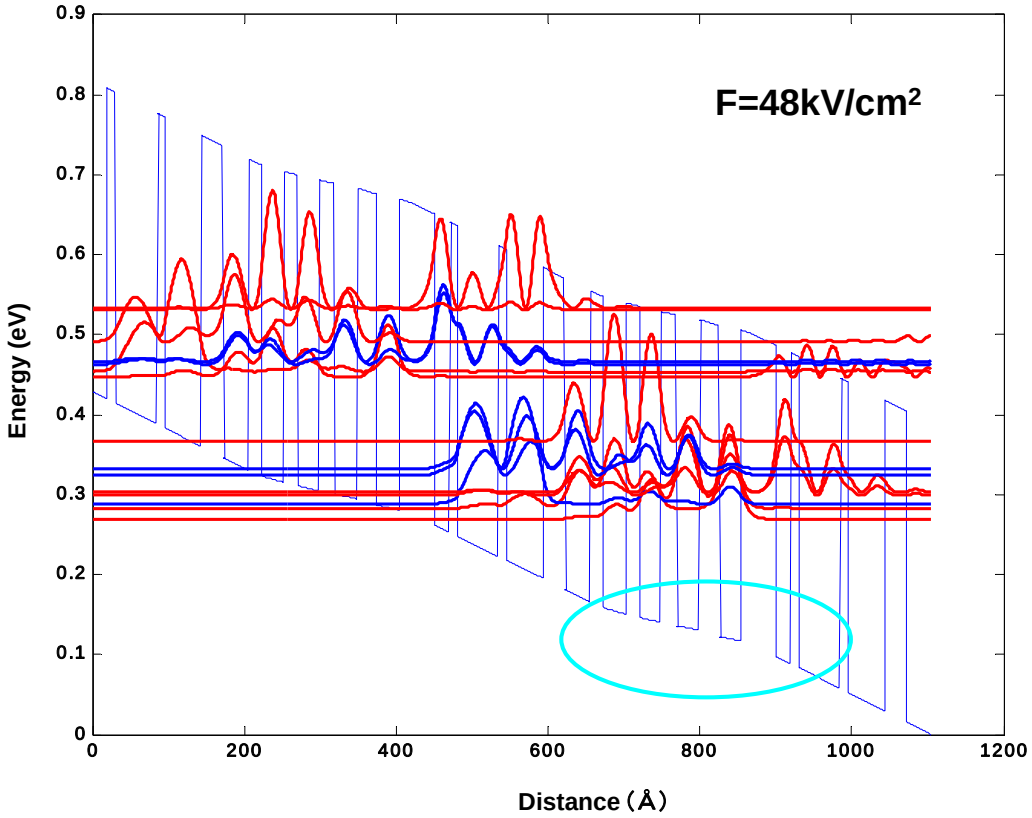


Fig.4-13. Conduction band diagram and the subband structures calculated by self-consistent solution of Schrodinger's equation with Poisson's equation.

このときの発光始状態から終状態までのエネルギー差、及び終状態から発光層の基底状態までのエネルギー差はそれぞれ約 135meV、40meV であり、キャリアの分散によるポテンシャルの変形の影響はほとんどないことが分かった。本来はこのような計算過程をポテンシャルの形が定常状態になるまで繰り返す必要があるが、今回は計算時間の都合上 1 回しか行なっていない。しかし、一様電界のときとそれほど大きな変化がないことを考えると、数回繰り返してもそれほど大きな変化はないものと思われる。

第 8 節　まとめ

閾値電流の温度依存性の温度依存性にを説明するために、理論的な解析を行なった。注入効率、準位 3 からのリーク、準位 2 へのキャリアの熱再分布の影響を考慮したモデルを

立て、必要なパラメータを全て実験、及び計算（文献から引用を含む）から求めた。注入効率まで考慮することによって、LO フォノン散乱の影響のみで上手く実験データを説明できることを示した。補足的な計算として、膜厚の誤差が与える閾値電流密度の影響、及び自己無頓着的な解法を使って、量子カスケード構造中におけるキャリア分布、量子準位、包絡関数を計算した。そこから、せいぜい数%の誤差ではそれほど閾値電流密度が上昇するわけではないこと、及びクリーニングによる影響はほとんど無視できることが分かった。後者の結果は上記の閾値電流密度に関する計算結果の信頼性を保証するものであると考えられる。

第 5 章

フォトニック結晶を有する量子カスケード発光素子の設計とその試作

第 1 節　背景と目的

量子カスケードレーザがもつ問題点の 1 つとして閾値電流が高いことが上げられる。これはサブバンド間での発光緩和時間が LO フォノン散乱による非発光緩和時間に比べて 5 桁ほど長く、サブバンド間での電子の遷移は非発光緩和過程が支配的であることによるものである。この問題を解決する方法としては第 2 章でも指摘したように非発光緩和時間を長くする（量子ドットの活用）、活性層の体積を小さくする（共振器の微小化）などが上げられる。ここでは後者に焦点を当てる。

共振器を小さくするといっても半導体レーザとして最も一般的なファブリペロー型レーザにおいて共振器長をどこまでも短くできるわけではない。それは共振器長が短くなるとミラー損失が増大するため閾値電流密度は増大する。電流値を大きくしていくと熱の影響が出てくるため発振しなくなってしまう。このため共振器を小さくしようとしたときはファブリペロー型よりも光の閉じ込め効率が高い共振器構造を採用する必要がある。微小共振器構造の代表的なものとしてはマイクロディスク型、マイクロピラー型、フォトニック結晶 [102] などが挙げられる。

フォトニック結晶レーザは体積が小さいことにより閾値電流を小さくできるのみではなく、周期的構造の効果によりある周波数の光の群速度を極端に遅くすることで、共振器中に形成される光のモードとキャリアの相互作用を大きくし、発光緩和過程を高速にし、発光効率を向上させることができる [103]。

またサブバンド間での遷移による発光は TM モードに偏光しており面に垂直方向には光は取り出せないのに対して、フォトニック結晶では高次の回折光の利用により、光を垂直方向に取り出すことができる。中赤外、THz 領域での面発光型高効率発光素子の実現は近年注目されている生体医療、薬物検出などと言ったイメージングデバイス応用への大きな扉を開くことになるであろう。

フォトニック結晶レーザは大きく分けてバンドエッジにおいて発振するフォトニック結晶分布帰還型レーザ [104]（フォトニックバンドエッジレーザ）と結晶中に意図的に形成した欠陥に起因するモードにおいて発振するフォトニック結晶微小共振器レーザ [105,106]（フォトニックバンドギャップレーザ）に分けられる。それぞれの一般的な構造と特徴を Fig.5-1 に

まとめる。

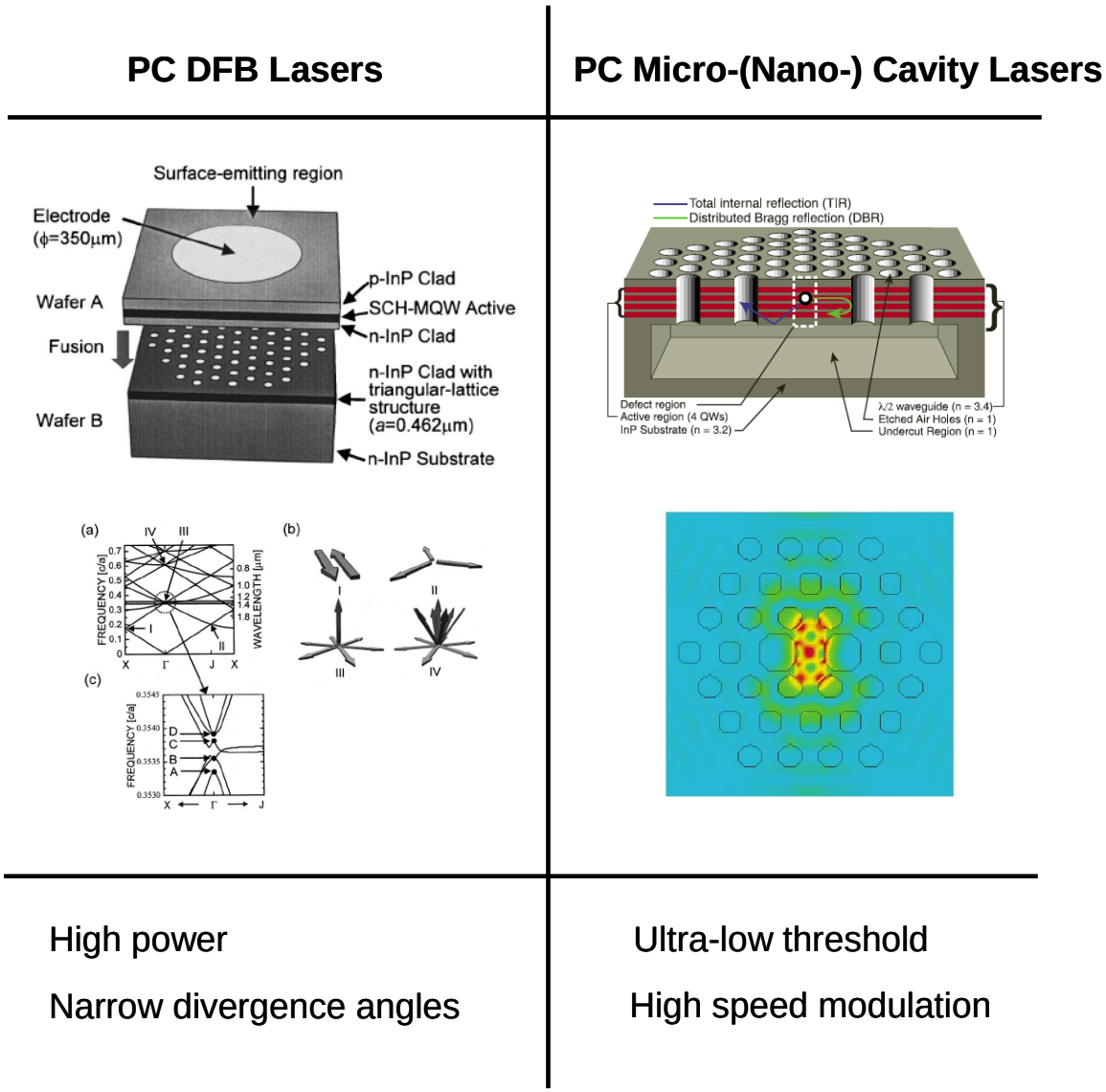


Fig.5-1. Schematic images of the 2D photonic crystal distributed feedback lasers and 2D photonic crystal micro-(nano-) cavitiy lasers.The former operates in the region of the energy momentum space with a high photonic density of states (point A in the figure(c)), the later operates at the defect mode frequency inside the bandgap.

前者と量子カスケードレーザとの融合は 2003 年に初めて成功しその成果は Science 誌に掲載された [43]。しかし後者との融合の報告は現在までない。その理由としてはフォトニック結晶で最も一般的な円孔からなる三角格子では K 点において TM モードの 1 次モードと 2 次モードが縮退し、TM モードにおけるフォトニックバンドギャップが少なくとも面に垂直方向への損失が少ない 1 次と 2 次モード間で得られないことが上げられる。高次モードにおいてバンドギャップが形成される可能性はあるものの、電流注入によるデバイス駆動を考えた場合クラッドを半導体とする必要があり、活性層との屈折率差が小さく高次モード

のバンドギャップはライトコーンの外になってしまう。このような理由により現在のところフォトニック結晶における欠陥モード発振は実現されていない。しかし近年、空気孔を C3v 対称性構造とすることで TM モードにおいても 1 次と 2 次モード間でバンドギャップをもつと理論的に示されていたことが、実験的にも確認された [107]。そのため我々は C3v 対称性構造の中で最も基本的な三角孔構造を採用することで量子カスケードフォトニック結晶微小共振器レーザの実現を目指すことにした。

量子カスケードレーザと（より正確に言えば 10μm というような長波長領域において発振波長をもつモノポーラ型半導体レーザと）フォトニック結晶微小共振器レーザの融合を実現することは、量子カスケードレーザの特性向上や高性能化が予想されることだけにはとどまらず、フォトニック結晶から見た観点からも様々な利点がある。一つにはバイポーラデバイスにおいてはエッチングによりできた空気と活性層界面がキャリアの非発光再結合サイトとなるため電流注入による駆動が非常に難しいが、モノポーラデバイスにおいてはその心配がなく電流注入が比較的容易である。そのため近い将来、通信波長帯に置いて発振波長をもつ量子カスケードレーザが実現されたならば、通信波長帯において発振波長をもつ電流注入型フォトニック結晶微小共振器レーザが容易に実現されるようになるかもしれない。もう 1 つの利点としてフォトニック結晶の格子間隔は発振波長と比例関係があるため、波長が長ければ格子間隔も長くなり、フォトニック結晶に要求する加工精度は光領域でのそれに比べて大幅に低減される。したがって、光領域で近年注目されている固体共振器量子電磁気学 [108] の基礎物性解明のためのテストベッドとして利用できることが期待できる。

第 2 節　スラブ型導波路の設計

第 3 章でも示したように、我々が作製した量子カスケードレーザの導波路構造は屈折率が活性層とほぼ等しい厚さ 3.5μm のコア層で活性層を挟み、それを高濃度にドーピングした 1μm クラッド層で挟んだ構造になっている。活性層である GaAs/AlGaAs 多層膜の屈折率を一様であるとみなすと、クラッド層の片側が無限に広がる空気層、片側が無限に広がる基板とし、7 層スラブ導波路構造として解析が可能である。以下では一般化した多層かつ非対称なスラブ導波路構造の解析に入る前に、最も解析が容易である 3 層対称スラブ導波路構造をモデルとした、面に垂直方向に対する電界強度分布、モードの分散関係、内部損失と閉じ込め係数などについて考察を行なった後に多層非対称スラブ導波路の解析に移ることとする。

第 1 項　3 層対称スラブ導波路の解析 [109]

以下の計算では光の進行方向（z 方向とする）ともう 1 方向（y 方向とする）に対し、屈折率の変化が全くないスラブ型導波路を想定する。導波路構造は Fig.5-2 に示すように、$-d < x < d$ の領域で屈折率 n_2 それ以外の領域で n_1 とする。

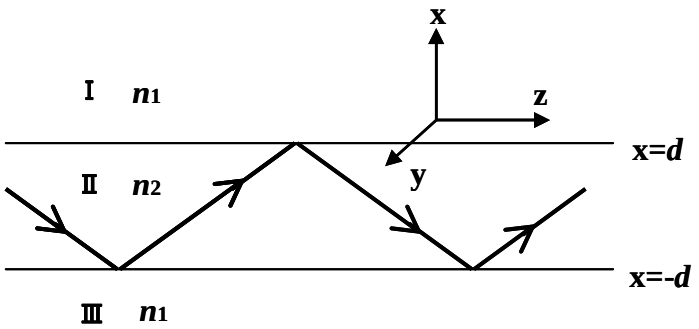


Fig.5-2. Slab waveguide structure comprising three layers which has symmetry refractive index for x axis and equal ones infinitely for y and z axis.

コア部、クラッド部ともに一様な屈折率をもつとしているので、時間に対する依存性を $\exp(i\omega t)$ とすると一様媒質中でのマクスウェルの方程式より

$$\nabla \times \mathbf{E} = -i\omega\mu\mathbf{H} \tag{5.1}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = +i\omega\varepsilon\mathbf{H} \tag{5.2}$$

が成り立つ。ただし、μ, ε はそれぞれ媒質の透磁率、誘電率である。いま、y 方向には無限の平板を考えているので、$\partial/\partial y = 0$ とおける。次に、z 方向に伝播するモードは、$\exp(-i\beta z)$ の形の z 依存性をもつと仮定する。こととき $\partial/\partial z$ は $-i\beta$ で置き換えられる。すると電界あるいは磁界のどちらかが y 方向に平行な成分のみで表される Fg.5-3 のようなモードに分離できる。1 つは電界が横方向に限られているので、TE(Transverse Electric field)モード、もう片方は磁界が横方向に限られているので、TM(Transverse Magnetic field)モードと呼ばれる。

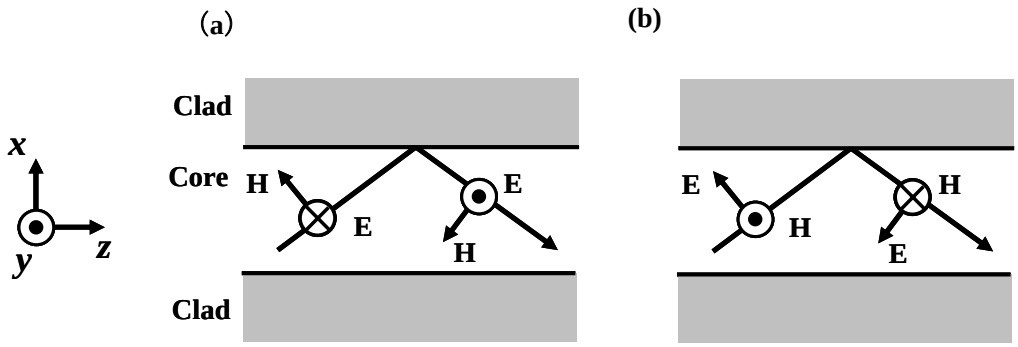


Fig.5-3. Light line of (a)TE-like mode and (b)TM-like mode

すなわち

$$\text{TE モード：}\ \mathbf{E}(0,E_y,0),\mathbf{H}(H_x,0,H_z)$$

$$\text{TM モード：}\ \mathbf{E}(E_x,0,E_z),\mathbf{H}(0,H_y,0)$$

と表される。

TE モードに対して式(5-1)より

$$E_y = -\frac{\omega\mu}{\beta}H_x \tag{5-3}$$

$$\frac{\partial E_y}{\partial x} = -i\omega\mu H_z \tag{5-4}$$

式(5-2)より

$$-i\beta H_x - \frac{\partial H_z}{\partial x} = i\omega\varepsilon E_y \tag{5-5}$$

の関係が成り立つ。

また TM モードに対しては式(5-1)より

$$-i\beta E_x - \frac{\partial E_z}{\partial x} = -i\omega\mu H_y \tag{5-6}$$

式(5-2)より

$$H_y = \frac{\omega\varepsilon}{\beta}E_x \tag{5-7}$$

$$E_z = -\frac{i}{\omega\varepsilon}\frac{\partial H_y}{\partial x} \tag{5-8}$$

の関係が成り立つ。

TE 及び TM モードの解は基本的には似ているので、ここでは TE モードについてのみ考える。式(5-5)に式(5-3),(5-4)を代入すると、

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + (k_0{}^2 n^2 - \beta^2)E_y = 0 \tag{5-9}$$

を得る。ここで $\varepsilon = \varepsilon_0 n^2$、$\mu = \mu_r\mu_0$、$\mu_r = 1$ として

$$k_0{}^2 = \omega^2\mu_0\varepsilon_0$$

と置いた。

コア内、クラッド内で上記の方程式が成り立つことから、それぞれの領域における電界成分 E_y は以下の方程式で表される。

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + (k_0{}^2 n_2{}^2 - \beta^2) E_y = 0 \ (n=n_2\text{；コア}) \tag{5-10}$$

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + (k_0{}^2 n_1{}^2 - \beta^2) E_y = 0 \ (n=n_1\text{；クラッド}) \tag{5-11}$$

ある関数 $f(x)$が以下の微分方程式を満たすとき、

$$\frac{\partial^2 f(x)}{\partial x^2} = \alpha f(x) \quad (A\text{;定数}) \tag{5-12}$$

αが正ならば関数 $f(x)$は指数関数であり、負ならば正弦関数であるため、コア部近傍に電界が閉じ込められているモードのみを議論するならば、コア内の電界成分 E_y は正弦関数で表され、クラッド部の電界成分指数関数で表される。

また、モードの解は導波路が x=0 の面に関して対称であるため、x に関して偶関数か奇関数とならねばならない。すなわち偶モードのときは、

$$E_y(x,z,t) = E_y(-x,z,t)$$

奇モードのときは、

$$E_y(x,z,t) = -E_y(-x,z,t)$$

が成り立つ。よって偶モードのときの解は、次のような形をとる。

$$E_y = A\cos(hx)\exp(-i\beta z) \qquad |x| \le d \tag{5-13}$$

$$E_y = B\exp[-p(|x|-d) - i\beta z] \quad |x| \ge d \tag{5-14}$$

ここで p,h は正の実数とする。

式(5-10)と(5-13)、及び式(5-11)と(5-14)から以下の 2 式が導かれる。

$$\beta^2 = k_0{}^2 n_2{}^2 - h^2 \tag{5-15}$$

$$\beta^2 = k_0{}^2 n_1{}^2 + p^2 \tag{5-16}$$

これらの関係をベクトルで表すと Fig.5-4 のようになる。

(a) Low Refractive Index Region **(b) High Refractive Index Region**

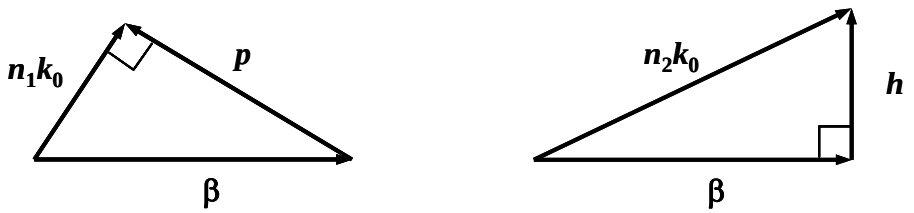


Fig.5-4. Relationship among vector nk_0,β,p,h. (a) image shows relationship in the low index region and (b) in high index region.

このような関係を考えることは後の説明で非常に有用である。式(5-2-16),(5-2-17)を組み合わせると、次式が得られる。

$$(pd)^2 + (hd)^2 = (n_2{}^2 - n_1{}^2)k_0{}^2 d^2 \qquad (5\text{-}17)$$

次に、界面において E_y 及び H_z の接線成分が連続となることを考えに入れなければならない。式(5-4)から H_z は以下のように表される。

$$H_z = -\frac{ihA}{\omega\mu}\sin(hx)\exp(-i\beta z) \qquad |x| \le d \qquad (5\text{-}18)$$

$$H_z = \mp\frac{ipB}{\omega\mu}\exp[-p(|x| - d) - i\beta z] \quad |x| \ge d \qquad (5\text{-}19)$$

(符号は、$x \ge d$ のとき(－)、$x \le d$ のとき(＋)をとる。)

$x = \pm d$ における E_y の連続性は式(5-13)と(5-14)を用いると、

$$B = A\cos(hd) \qquad (5\text{-}20)$$

となる。一方 H_z の連続性より式(5-18),(5-19)から

$$pB = hA\sin(hd) \qquad (5\text{-}21)$$

が得られる。

式(5-20),(5-21)より次式が得られる。

$$pd = hd\tan(hd) \qquad (5\text{-}22)$$

ある 1 つのモードに対し、伝播定数 p、h は同時に式(5-17),(5-22)を満たす必要がある。これを図形的に直接解く方法を Fig.5-5 に示す。これは *pd-hd* 平面において円 $(pd)^2 + (hd)^2 = (n_2{}^2 - n_1{}^2)k_0{}^2 d^2$ と曲線 $pd = hd\tan(hd)$ の交点を見つければよい。$p > 0$ の領域での交点が、導波モードを表している。p と h が分かると,式(5-15)、または(5-16)から

伝搬定数βが得られる。

伝播定数βが

$$\beta = n_{eff}k_0 \qquad (5\text{-}23)$$

と表されるとき、n_{eff} を等価屈折率と呼ぶ。

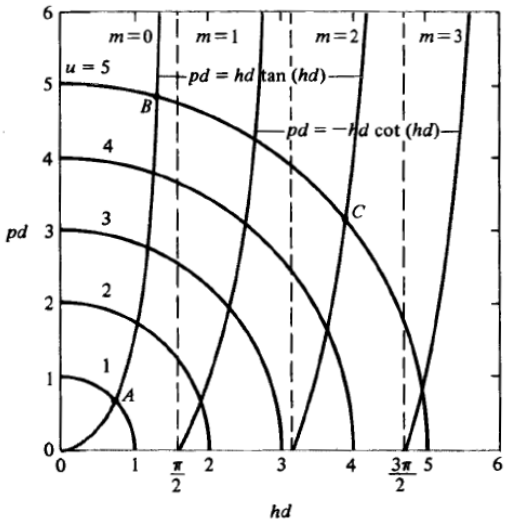


Fig.5-5. Equation *pd*=*hd*tan(*hd*) for TE even mode , *pd*= - *hd*cot(*hd)* for TE odd mode, leaded from the continuation requirement of E_y, H_z at core-clad boundary, and equation $(pd)^2+(hd)^2=(n_2^2-n_1^2)k_0^2d$, leaded from wave equation.

解の性質を理解するために、ある導波路(n_1, n_2, d を固定)に対して,周波数を 0 からしだいに増していくとどうなるか考えてみる。$k_0=\omega/c$ なので,周波数を増加することは,円 $(pd)^2+(hd)^2=(n_2^2-n_1^2)k_0^2d^2$ の半径を増加させることを意味する。まず

$$0<\sqrt{n_2^2-n_1^2}k_0d<\pi \qquad (5\text{-}24)$$

を満たす低い周波数では,円と曲線 $pd=hd\tan(hd)$ の $p>0$ の範囲には交点が一つだけ存在する(点 A)。この点は TE_0 モードを意味しており,横方向のパラメータ h は

$$0<h_0d<\frac{\pi}{2} \qquad (5\text{-}25)$$

の範囲内に入る。したがって、$|x|<d$ の導波路内で E_y=0 となる点はない。

ノラメータ $u\equiv\sqrt{n_2^2-n_1^2}k_0d$ が

$$\pi<\sqrt{n_2^2-n_1^2}k_0d<2\pi \qquad (5\text{-}26)$$

の範囲内にあると、$p>0$ の範囲に交点が 2 つ生じる。一方(点 B)は、$hd<\frac{\pi}{2}$ を満たし,これは最低次の TE_0 モードである。他方(点 C)は

$$\pi<h_2d<\frac{3\pi}{2} \qquad (5\text{-}27)$$

を満たすので、$|x| < d$ の領域で E_y=0 となる点が 2 つ生じる.これは TE_2 モードとよばれる(Fig.5-5 の m=2 に対応)。この 2 つのモードは同一の周波数に対応しているので、同じ入力光のもとで同時に存在し得る。ただし、ここで注目しておく点は、TE_0 モードの方が p が大きい(p_0>p_2)ことで、これよりこのモードの方がより強く導波路内に閉じ込められていることが分かる。また、式(5-15),(5-16)より β_0>β_2 となるので、TE_0 の位相速度 $v_0 = \omega / \beta_0$ は、TE_2 のそれよりも小さい。

式(5-25),(5-27)より、$\pi / 2 < hd < \pi$ の範囲にはモードが存在しないことになる。これは,これまで式(5-13)のように x に関して対称なモードのみを考えていたからである。もう一方のモード群、すなわち奇モードも存在し、次のように表される。

$$E_y = A\sin(hx)\exp(-i\beta z) \quad |x| \le d \tag{5-29}$$

$$E_y = B\exp[-p(|x| - d) - i\beta z] \quad |x| \ge d \tag{5-30}$$

$|x| = d$ での連続条件からは次式が導かれる。

$$pd = -hd\cot(hd) \tag{5-31}$$

式(5-31)と円(5-17)の交点が、モードの解に対応している。Fig.5-5 を参照すると、この h の値が、TE 偶モードにより“避けられていた”空白をちょうど埋めることが分かる。
TE 波の最低次の奇モードは TE_1(m=1)で、パラメータ h は

$$\frac{\pi}{2} < h_1 d < \pi \tag{5-32}$$

を満たすので、(TE_0 モードの)h_0 と h_2 の間の値をとる。以上を一般化して表現すると以下のようになる。第 m 次モード(TE または TM モード)は

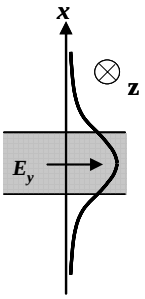
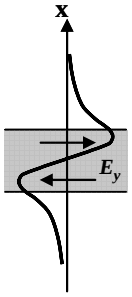
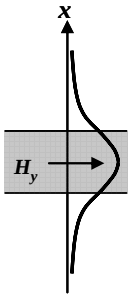
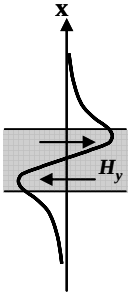
$$m\frac{\pi}{2} < h_m d < (m+1)\frac{\pi}{2} \tag{5-33}$$

を満足し、$|x| < d$ の領域で m 回 E_y=0.となる。モード 0,2,4,…は電界分布が偶対称となり、モード 1,3,5,…は奇対称となる。基本モード(m=0)を除く全てのモードは、”カットオフ(cutoff)”周波数以上でのみ存在できる(すなわち導波できる)。モード次数 m 大きいほど、カットオフ周波数も高くなる。基本モードは Fig.5-5 からも明らかなように、任意の周波数で存在できる。

以上は TE モードに関してのみ議論してきた。TM モードに関しても同様にマクスウェルの方程式から導かれる円(5-17)と境界における E_y、H_z の連続条件から導かれる固有方程式の交点から固有値を求めることができる。TE,TM モードに対するモード関数、及び固有方程

式を Table 5-1 にまとめる。

Table 5-1. Mode function in slab waveguide.

Mode	Mode Function	Eigenvalue Equation
	Upper Section $\lvert x\rvert \le d$ **Lower Section** $\lvert x\rvert \ge d$	$(pd)^2 + (hd)^2 = (n_2^2 - n_1^2)k_0^2 d^2$
	$E_y = A_{\mathrm{TE,even}} \cos(hx)\exp(-i\beta z)$ $E_y = A_{\mathrm{TE,even}} \cos(hd)\exp[-p(\lvert x\rvert - d) - i\beta z]$	$pd = hd\tan(hd)$
	$E_y = A_{\mathrm{TE,odd}} \sin(hx)\exp(-i\beta z)$ $E_y = \frac{x}{\lvert x\rvert} A_{\mathrm{TE,odd}} \sin(hd)\exp[-p(\lvert x\rvert - d) - i\beta z]$	$pd = -hd\cot(hd)$
	$H_y = A_{\mathrm{TM,even}} \cos(hx)\exp(-i\beta z)$ $H_y = A_{\mathrm{TM,even}} \cos(hd)\exp[-p(\lvert x\rvert - d) - i\beta z]$	$pd = \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 hd\tan(hd)$
	$H_y = A_{\mathrm{TM,odd}} \sin(hx)\exp(-i\beta z)$ $H_y = \frac{x}{\lvert x\rvert} A_{\mathrm{TM,odd}} \sin(hd)\exp[-p(\lvert x\rvert - d) - i\beta z]$	$pd = -\left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 hd\cot(hd)$

TM モードの一般的な特徴は TE モードに類似している。異なる点は、対応する p が TE モードより若干小さい点である。これは閉じ込めがやや弱いことを意味する。つまり、TM モードは伝搬する全エネルギーのうち導波層の外部の媒質を伝搬する割合が同じモード次数の TE モードよりも大きいということである。これは等価屈折率が若干小さいことを意味する。

面に垂直方向の磁界分布

サブバンド間発光は TM モードに偏光しているため、先ずは Fig.5-6 に示すような屈折率分布をもつ平面導波路における、面に垂直方向の磁界分布を計算した。その結果を Fig.5-7 に示す。(a)から順番に 0 次、1 次、…、モードである。波長 9.5μm の光に対しては 4 次のモードまでが平面導波路内に存在することが分かった。その図を見ると、上で議論をしたように、確かに高次のモードになるほど、クラッド層への磁界の染み出しが大きいことが見て取れる。また 0 次モードに関しては、筆者が作製した量子カスケード構造のようにクラッド層が 1μm ほどあれば、光がほぼ全て閉じ込められることが分かる。

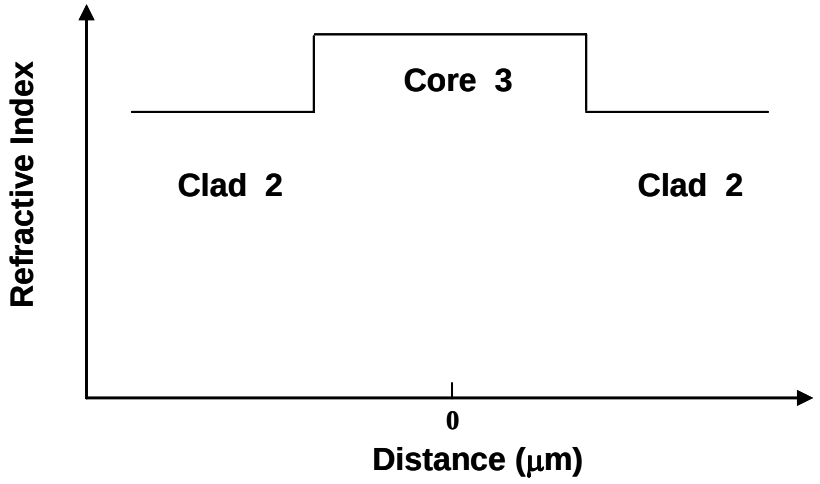


Fig.5-6. Reflactive index profile of three layer symmetric slab waveguide.

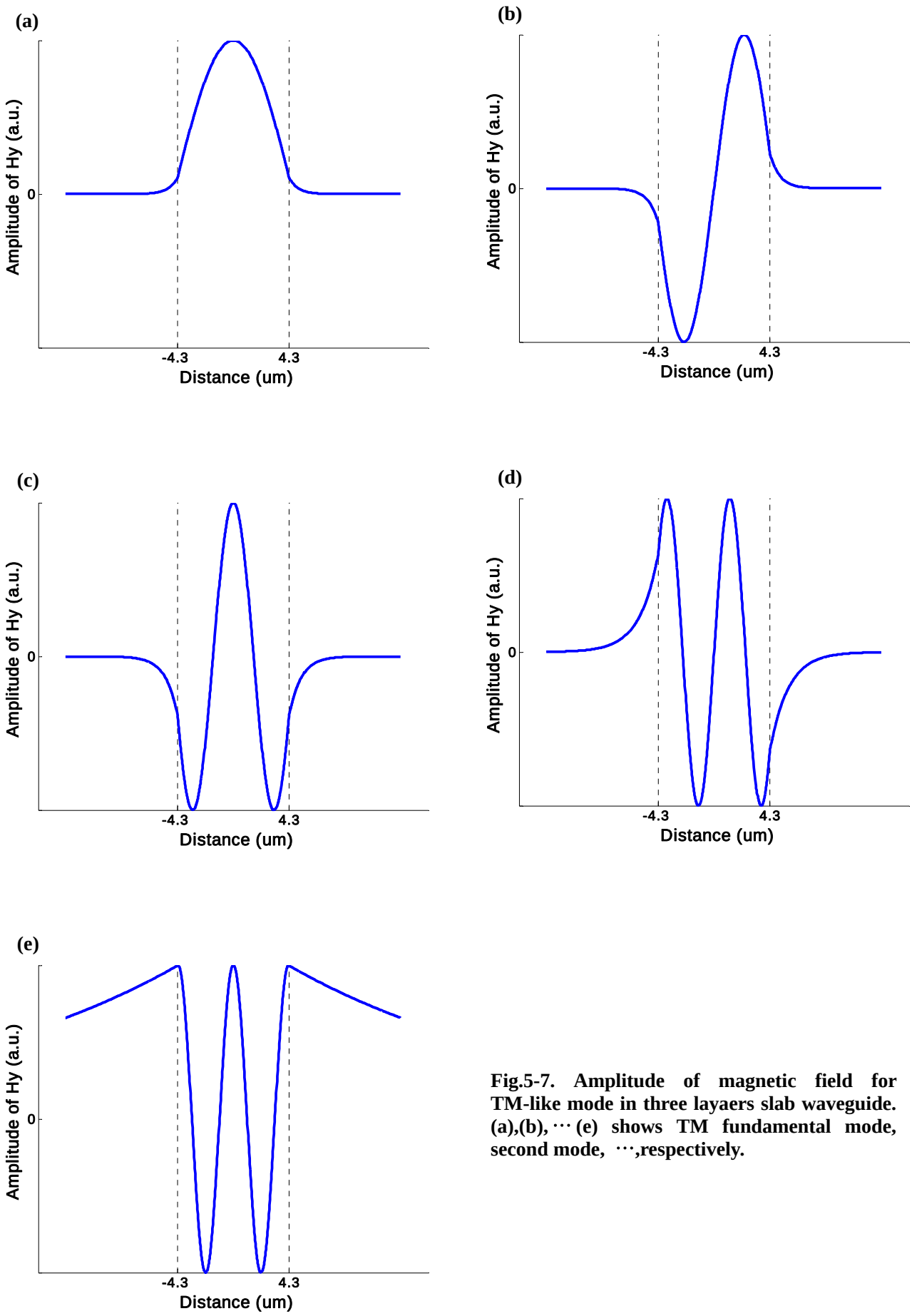


Fig.5-7. Amplitude of magnetic field for TM-like mode in three layaers slab waveguide. (a),(b), ⋯ (e) shows TM fundamental mode, second mode, ⋯,respectively.

次に、先ほど計算したモードのうち、0 次モードに関して、電界強度分布を計算したものを Fig.5-8 に示す。ここでは比較のために、TE_0 次モードの電界強度分布も計算した。この図から、うえで議論したように、同じ次数のモードでは TM モードの方がクラッド層への染み出しが大きいことが、確かに確認できる。TM モードは屈折率が異なる境界において電界強度分布が非連続になっている。これは TM モードにおいては、その強度は屈折率の逆数に比例するためである。そのため屈折率が低い、クラッド層において、電界強度が大きくなる。

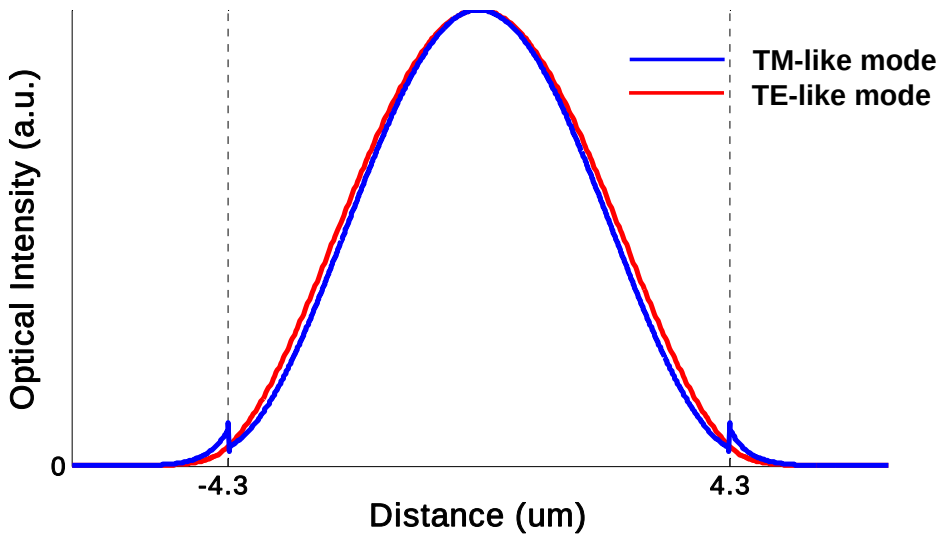


Fig.5-8. Inteisity of electric field for TM-like fundamental mode (blue line) and TE-like fundamental mode.

<u>導波路膜厚に対するモードの分散関係</u>

波長 9.5μm の光に関して、コア層が 8.6μm の場合 5 つのモードが存在することが分かった。ではコア層の厚さを変えたとき、そのモード数はどのように変化するだろうか。それを調べたのが、Fig.5-9 である。横軸が規格化したコア層の厚さ $k_0 d\sqrt{n_2^2 - n_1^2}$ である、縦軸が等価屈折率である。先ほどの電界強度分布の計算における規格化膜厚は 2.024π であるので、そのときは確かに 5 つのモードが存在していることが分かる。波長 9.5μm に対して、単一モード条件を満たすためには、コア層の半分の長さが 4.3μm の約 1/4 であるので、コア層の膜厚が 2.15μm 以下のときであることが分かる。しかし、このとき 0 次のモードの等価屈折率は低く、クラッド層に多くの光が広がってしまっている。よって、最適な膜厚はモード数と、光の閉じ込めがなるの強さとの兼ね合いから決めることとなる。

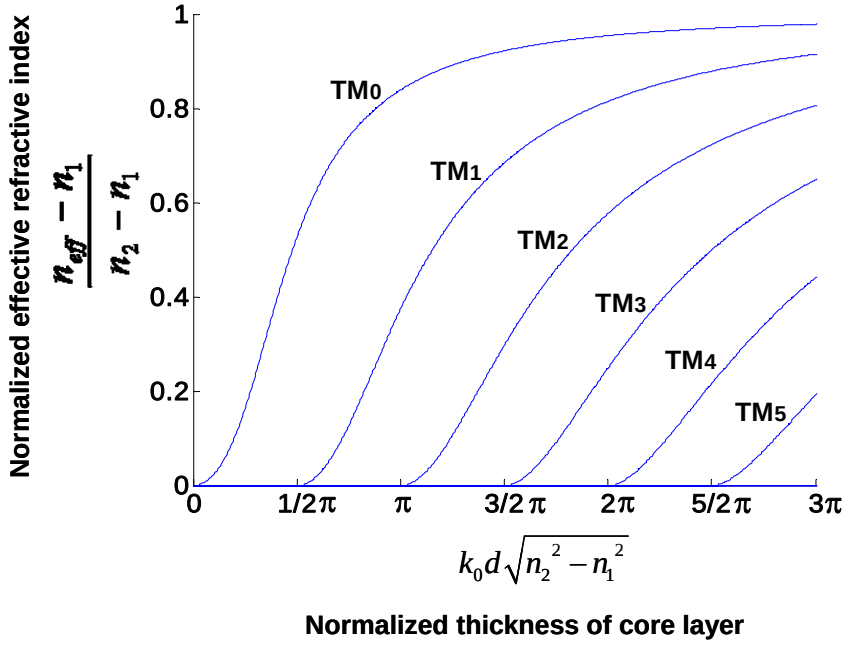


Fig.5-9. Dispersion curve fot TM-like mode in the slab waveguide.

<u>コア層膜厚と内部損失、閉じ込め係数の関係</u>

次に、膜厚を変化させたときの活性層への光閉じ込め係数、及び導波路損失を計算する。光閉じ込め係数は

$$\Gamma = \frac{\int_{\text{active}} |E_y|^2}{\int_{\text{total}} |E_y|^2} \tag{5-34}$$

の式で与えられる。

また導波路損失は以下の計算式から計算した。

$$\alpha_{\text{w}} = \alpha_{\text{clad}} \frac{\int_{\text{clad}} |E_y|^2}{\int_{\text{total}} |E_y|^2} + \alpha_{\text{core}} \frac{\int_{\text{core}} |E_y|^2}{\int_{\text{total}} |E_y|^2} \tag{5-35}$$

ここで、α_{clad} =1730cm^{-1}、α_{core} =2 cm^{-1} とした。

結果を Fig.5-10(a)に示す。コア層に厚くすれば、導波路損失は減少するが、それに伴い、光閉じ込め係数も減少してしまう。膜厚がいくらのときが最適値であるかは、この 2 つの関係をどのように評価するかで変わってくることである。その 1 例として $\frac{\alpha_{\text{w}}}{\Gamma}$ の

膜厚依存性を Fig.5-10(b)に示す。閾値電流密度は反射損失α_{w}を用いて、$\dfrac{\alpha_{\mathrm{w}}+\alpha_{\mathrm{w}}}{\Gamma}$に比例するため、この値で膜厚を評価することが最適であるのかもしれない。しかし、反射損失もどれほどの長さの共振器を想定するかで大きく変わってくるものであるため、今回は$\dfrac{\alpha_{\mathrm{w}}}{\Gamma}$の値で評価することとした。ここから、コア層の中心からの長さ d を、もし 1μm ほど薄くするならば、そのとき$\dfrac{\alpha_{\mathrm{w}}}{\Gamma}$の値は約倍になることが分かった。

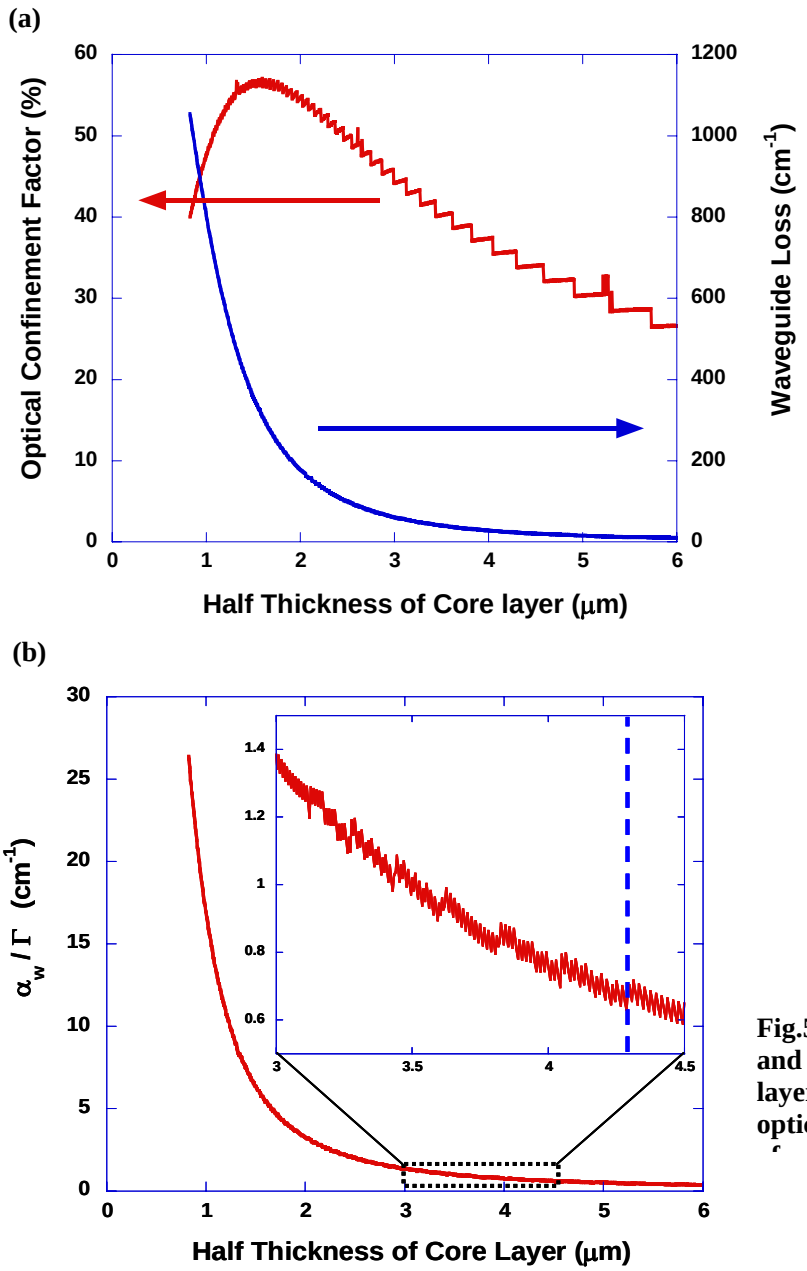


Fig.5-10. (a) Optical confinement factor and waveguide loss vs thickness of core layer. (b) Ratio of waveguide loss to optical confinement factor for thickness

波長に対するモードの分散関係

先ほどまでは、波長一定の基で、コア厚さを変化させたときのある量の変化の様子を調べてきた。ここではコアの厚さを一定とし、波長を変化させたときの様子を調べる。Fig.5-11は横軸を面内方向の伝播定数とし、縦軸は波長 9.5μm で規格化したときの周波数である。水色で影をつけた部分が、コア層面内で全反射されずに、クラッド層に広がるモードである。

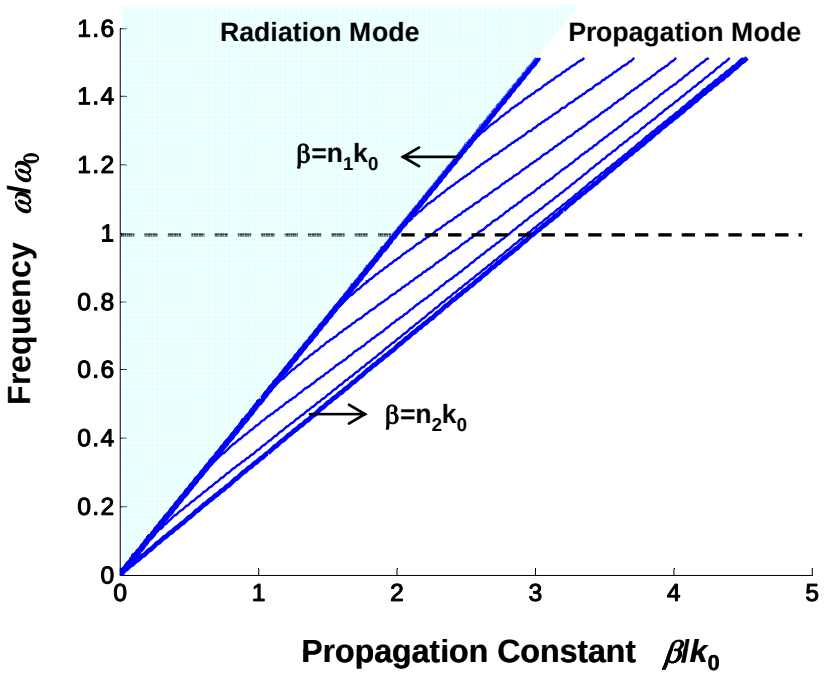


Fig.5-11. Frequency normalized by λ=9.5μm vs propagation constant.

第 2 項　多層スラブ導波路の解析

Fig.5-12(a)に示すような一般化した多層スラブ導波路の固有解の求め方を解説した後、本題である 7 層非対称スラブ導波路の解析に移る。解析する導波路は *z,y* 方向に無限の広がりをもつ均質等方性媒質が *x* 方向に重ねられたもので、*z,y* 方向に屈折率の変化はない。*x* 方向の屈折率分布は Fig.5-12(b)に示したようになっている。導波路は全部で *N* 個の領域からなっていると仮定し、両端の 1、及び *N* 領域は半無限の広がりをもっている。各領域の屈折率を n_i とし、各領域の境界の座標をそれぞれ $x_2, x_3 \ldots x_{N-1}, x_N$ とする。また *i* 番目の領域の幅 d_i は

$$d_i = x_{i+1} - x_i, \quad i=2,3,\ldots,N\text{-}1 \qquad (5\text{-}2\text{-}1)$$

のように定義する。

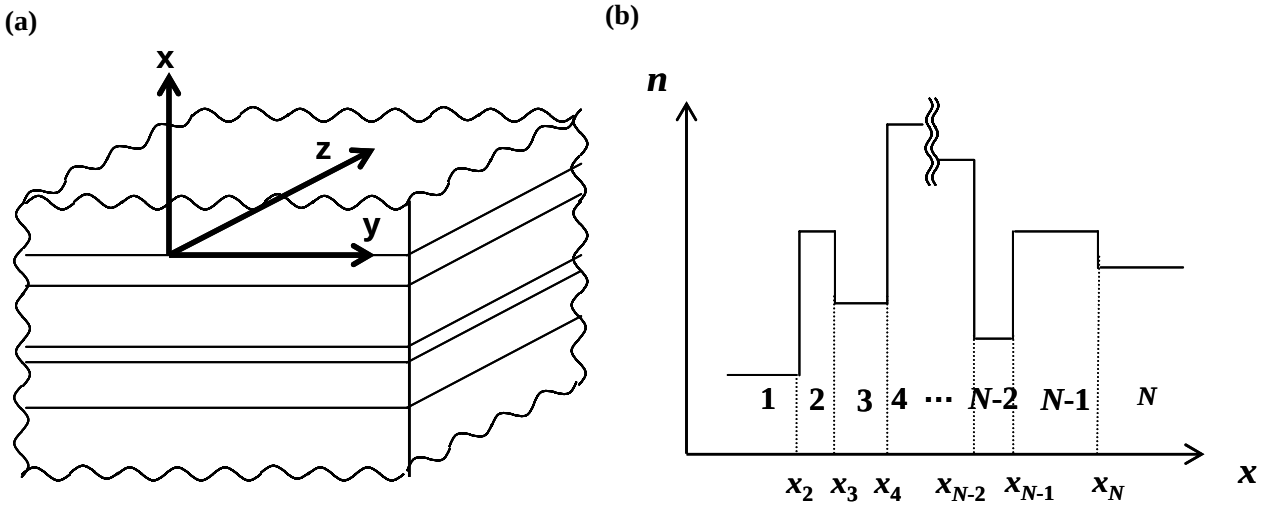


Fig.5-12. (a) Schematics of *n* layers slab waveguide. (b) Refractive index profile in *n* layers.

解析にあたり、TE と TM を同時に扱うために、それぞれの電磁界成分を次のように置き換えておく。

$$\Phi_y = \begin{Bmatrix} E_y \\ \eta H_y \end{Bmatrix} \Phi, \quad \Phi_z = \begin{Bmatrix} j\eta H_z \\ -jE_z \end{Bmatrix}, \quad \Phi_x = \begin{Bmatrix} -\eta H_x \\ E_x \end{Bmatrix} \tag{5-3-2}$$

(5-36)式で TE モードは上段、TM モードは下段をとるものとする。またηは自由空間の波動インピーダンスで、

$$\eta = \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon_0}} \tag{5-3-3}$$

と表され、ε_0, μ_0はそれぞれ真空中の誘電率、透磁率である。

波は z 方向に伝播し、z 方向の伝播定数をβとすると、接線成分Φ_yは次の波動方程式の解として得られる。

$$\frac{\partial^2 \Phi_y}{\partial x^2} + \left(k_i^2 - \beta^2\right)\Phi_y = 0 \tag{5-3-4}$$

ここで、$k_i = n_i k_0$でありk_0は自由空間の伝播定数で、$k_0 = \omega\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}$と表されるものである。

他の成分、Φ_z, Φ_xは接線成分Φ_yを用いてそれぞれ次式から求められる。

$$\Phi_z = -\frac{1}{\varsigma_i k_0}\frac{\partial \Phi_y}{\partial x} \tag{5-3-5}$$

$$\Phi_x = \frac{\beta}{\varsigma_i k_0}\Phi_y \tag{5-3-6}$$

式(5-39),(5-40)でς_iは次のように定義される。

$$\varsigma_i = \begin{Bmatrix} 1 \ \text{ for TE} \\ n_i^2 \ \text{ for TM} \end{Bmatrix} \tag{5-3-7}$$

式(5-3-4)から 2 以上 N 未満の i 番目の領域の解Φ_y, Φ_zは次のように仮定できる。(詳しくは第 2 節参照)

$$\Phi_y(x) = A_i \cos\gamma_i(x - x_0) + B_i \sin\gamma_i(x - x_0) \tag{5-3-8}$$

$$\Phi_z(x) = \frac{\gamma_i}{\varsigma_i k_0}\left[A_i \sin\gamma_i(x - x_0) - B_i \cos\gamma_i(x - x_0)\right] \tag{5-3-9}$$

ただし、γ_iは i 番目領域における x 方向の伝播定数であり、次式で表される。

$$\gamma_i = \sqrt{k_i - \beta^2} \tag{5-3-10}$$

また式(5-3-8),(5-3-9)は次式で与えられる範囲で成立する。

$$x_i < x < x_{i+1} \tag{5-3-11}$$

$$x_i < x_0 < x_{i+1} \tag{5-3-12}$$

x に x_0 を代入することにより、係数 A_i, B_i は

$$A_i = \Phi_y(x_0) \tag{5-3-13}$$

$$B_i = -\frac{\gamma_i}{\varsigma_i k_0}\Phi_z(x_0) \tag{5-3-14}$$

のように書けるため、式(5-3-8),(5-3-9)は次のように書ける。

$$\Phi_y(x) = \Phi_y(x_0)\cos\gamma_i(x - x_0) - \frac{\gamma_i}{\varsigma_i k_0}\Phi_z(x_0)\sin\gamma_i(x - x_0) \tag{5-3-15}$$

$$\Phi_z(x) = \frac{\gamma_i}{\varsigma_i k_0}\Phi_y(x_0)\sin\gamma_i(x - x_0) + \frac{\gamma_i}{\varsigma_i k_0}\Phi_z(x_0)\cos\gamma_i(x - x_0) \tag{5-3-16}$$

これを行列表示すると次式のようになる。

$$\begin{bmatrix} \Phi_y(x) \\ \Phi_z(x) \end{bmatrix} = F_i(x - x_0)\begin{bmatrix} \Phi_y(x_0) \\ \Phi_z(x_0) \end{bmatrix} \tag{5-3-17}$$

$$F_i(x)=\begin{bmatrix} \cos\gamma_i x & -\dfrac{\gamma_i}{\varsigma_i k_0}\sin\gamma_i x \\ \dfrac{\gamma_i}{\varsigma_i k_0}\sin\gamma_i x & \dfrac{\gamma_i}{\varsigma_i k_0}\cos\gamma_i x \end{bmatrix} \qquad (5\text{-}3\text{-}18)$$

x_0 を各領域の境界にとって各領域の解を次々と接続すると、結局、領域 2 と N は次のような境界条件で接続される。

$$\begin{bmatrix} \Phi_y(x_N) \\ \Phi_z(x_N) \end{bmatrix} = F_{N-1}(d_{N-1})\cdot F_{N-2}(d_{N-2})\cdot\cdots\cdot F_2(d_2)\begin{bmatrix} \Phi_y(x_2) \\ \Phi_z(x_2) \end{bmatrix} \qquad (5\text{-}3\text{-}19)$$

ここで

$$F_{N-1}(d_{N-1})\cdot F_{N-2}(d_{N-2})\cdot\cdots\cdot F_2(d_2)=\begin{bmatrix} A_t & B_t \\ C_t & D_t \end{bmatrix} \qquad (5\text{-}3\text{-}20)$$

とする。

領域 1 と N での波の形は、境界から遠ざかるにつれ指数関数的に減衰するモードとして表される場合のみが固有解である。すなわち、領域 1,N の解 Φ_y は次式のように表される。

$$\Phi_y(x)=A_1^{'}e^{\gamma_1^{'}x} \qquad \text{for } 1 \qquad (5\text{-}3\text{-}20)$$

$$\Phi_y(x)=A_N^{'}e^{-\gamma_N^{'}x} \qquad \text{for } N \qquad (5\text{-}3\text{-}21)$$

ただし、$\gamma_1^{'},\gamma_N^{'}$ は 1,及び N 番目領域における x 方向の伝播定数であり、次式で表される。

$$\gamma_j^{'}=\sqrt{\beta^2-k_j} \qquad \text{j=1,N} \qquad (5\text{-}3\text{-}22)$$

これらと式(5-3-5)より次の関係式が得られる。

$$\frac{\Phi_y(x_2)}{\Phi_z(x_2)}=-\frac{\zeta_1 k_0}{\gamma_1^{'}} \qquad (5\text{-}3\text{-}23)$$

$$\frac{\Phi_y(x_N)}{\Phi_z(x_N)}=\frac{\zeta_N k_0}{\gamma_N^{'}} \qquad (5\text{-}3\text{-}24)$$

よって固有解を求めるときは、式(5-3-19rwyltssC),(5-3-20),(5-3-23),(5-3-24)から

$$\frac{\zeta_1 k_0}{\gamma_1^{'}}A_t-B_t-\frac{\zeta_1\zeta_N k_0^{\ 2}}{\gamma_1^{'}\gamma_N^{'}}C_t+\frac{\zeta_N k_0}{\gamma_N^{'}}D_t=0$$

(5-3-25)

を満たす z 方向の伝播定数βを求めればよい。

z 方向の伝播定数β を求めることができたら、3 層スラブにおける解析と同様に $\beta = n_{eff} k_0$ の関係から等価屈折 n_{eff} を求めることができる。

<u>面に垂直方向の電界強度分布</u>

面に垂直方向に対し、Fig.5-13 に示すような屈折率分布をもつ 7 層スラブ構造における TM-like モードの電界強度分布を計算した。結果を Fig.5-14 に示す。

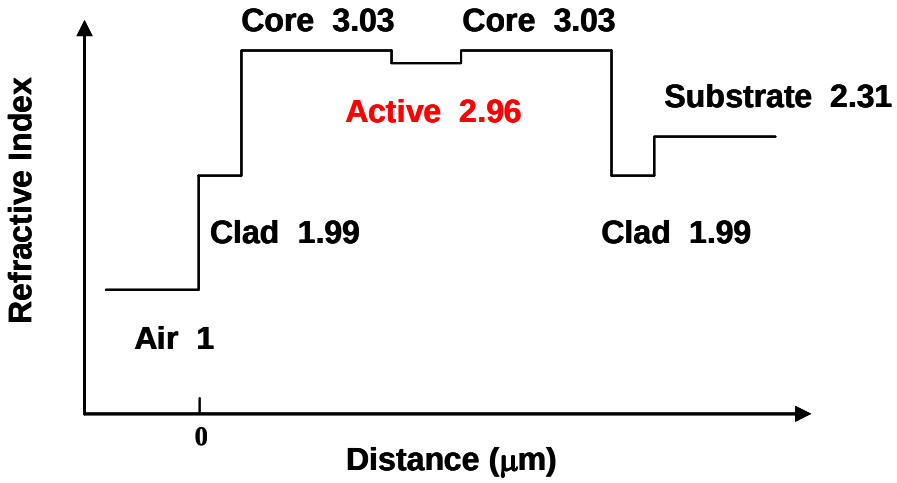


Fig.5-13. Reflactive index profile of seven layer asymmetric slab waveguide.

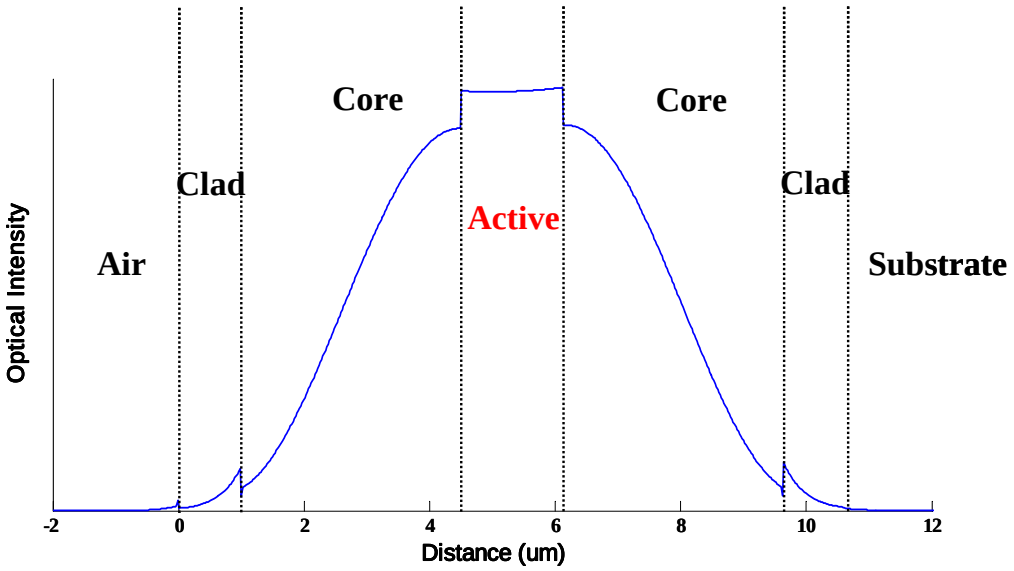


Fig.5-14. Inteisity of electric field for TM-like fundamental mode in seven layers slab waveguide.

基板の影響を考慮した非対称屈折率の下でも、ほぼ全ての光がコア層内に閉じ込められており、3 層対称スラブ構造の下で解析した結果にそれほど狂いはないものと考えられる。

<u>等価屈折率</u>

同様の構造において､それぞれのモードに対する等価屈折率を計算した結果を Table. に示す。ここで計算した等価屈折率は、後で述べるフォトニック結晶に導入する欠陥の設計で用いることとなる。

Table 5-2. Calculated effective index for six TM-like modes.

	Effective Index
TM_0	2.9633
TM_1	2.8458
TM_2	2.5985
TM_3	2.3095
TM_4	2.2773
TM_5	1.8283
TM_6	1.2829

第 3 節　分布反射器の設計

フォトニック結晶微小共振器の設計において何より重要なのがフォトニックバンドギャップをもつ分布反射器の設計である。またそのバンドギャップは設計と作製における誤差やそもそも計算結果のもつ誤差を考慮すると、広ければ広いほどよい。

量子井戸におけるサブバンド間遷移に伴う発光はフェルミの黄金律で説明されるように TM モードに偏光している。最も盛んに研究されている円孔が三角格子配列をしたフォトニック結晶は低次モードにおいては TE モードに対応したフォトニックバンドギャップしかもたないため、単に格子間隔を変えるだけで中赤外領域に対応するフォトニックバンドギャップをもつフォトニック結晶を設計することはできない。TM モードでのフォトニックバンドギャップを得るアイディアとしては以下の 2 通りが考えられる。

1) 円孔形状フォトニック結晶の高次のモードの利用

2) C_{3v} 対称性を有しているフォトニック結晶の利用

1) 「円孔形状フォトニック結晶の高次のモードの利用」について

第 2 節の第 2 項で計算した 7 層スラブ導波路における等価屈折率を使い、2 次元平面波展開法 [110] によって計算した円孔半径 r と格子間隔 a との比 r/a に対するフォトニックバンドギャップマップ、及び r/a=0.45 におけるフォトニックバンド構造を Fig5-15 に示す。

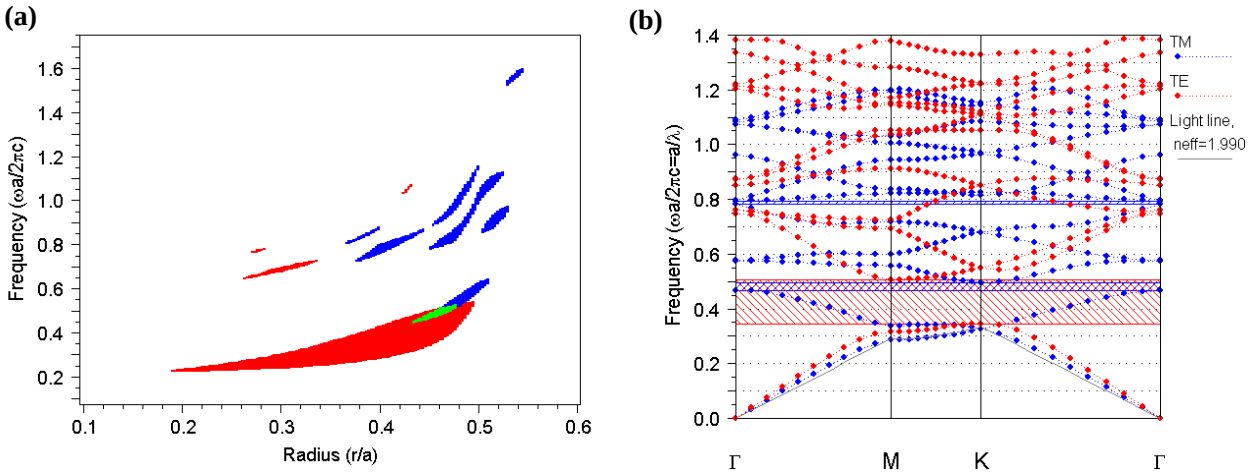


Fig.5-15. (a) Photonic band gap map of 2D PC slab with triangular lattice of circle air holes, calculated by means of 2D-PWE .(b)Photonic band diagram of 2D PC which radius over period (r/a) is 0.45. Red and blue points show TE-like and TM-like polarization respectively. Shaded frequency region is PBG.

Fig.5-15 (a)から r/a が 0.36 以上では TM モードに対するフォトニックバンドギャップが存在することは分かる。しかし(b)を見れば分かるように規格化周波数が 0.3 以上のモードはライトコーンの外であることが分かる。よって(a)をもう一度見れば TM モードに対するバンドギャップの規格化周波数はいずれも 0.3 以上であり、ライトコーン内でフォトニックバンドギャップをもつことはないことが分かる。今回の計算ではクラッド層の屈折率を 1.99 としたところにライトコーンが小さくなってしまっている原因がある。そのためクラッド層を空気層にしたり、金属にしたりすることなどで円孔形状フォトニック結晶の高次の TM モードに対するフォトニックバンドギャップを使うことは可能ではあるが、その場合デバイスの作製は困難となる。そのため今回は C_{3v} 対称性を有しているフォトニック結晶を利用することとする。

2) 「C_{3v} 対称性を有しているフォトニック結晶の利用」について

今回は Fig.5-16 に示すように C3v 対称性の中でも最も基本的な三角孔形状のフォトニック結晶について考える。最適化すべきパラメータは Fig.5-16 に示すように活性層厚さ T、格子間隔 a、三角孔の重心から頂点までの長さ r、三角孔の回転角θがある。しかし今回は活性層、コア層、クラッド層全て、第3章で作製したものと同じ厚さのものを使用することとするため、その条件下での最適化を行なうこととする。

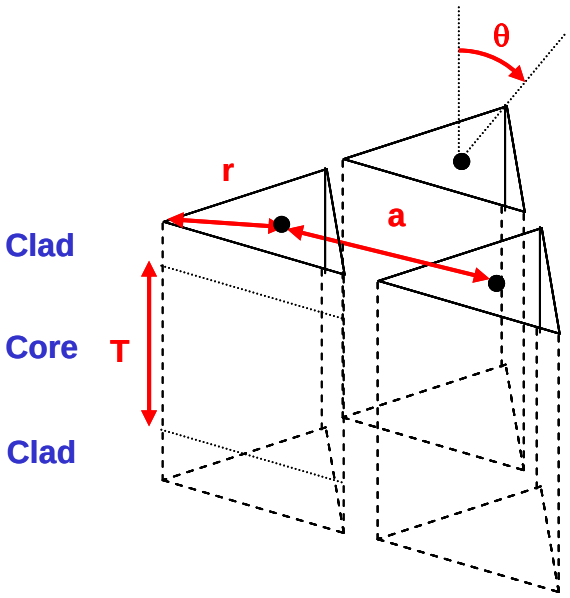


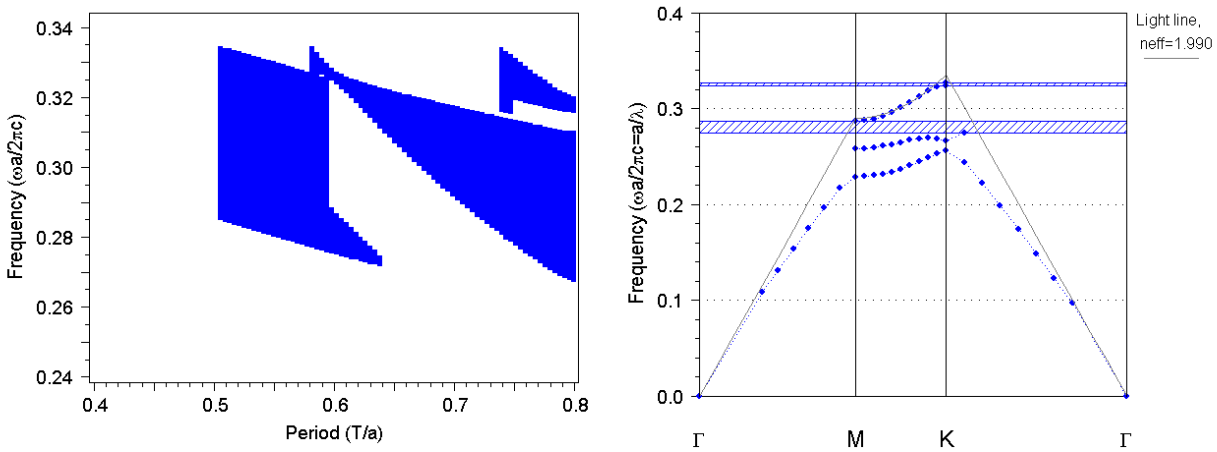
Fig.5-16. Schematic images of 2D-PC slab structure. a, r, T, and θ are lattice constant, length between center and vertex of triangular air holes, thickness of core and active layers, and rotation angle of air holes.

以下の計算は 3 次元平面波展開法によって行なう。

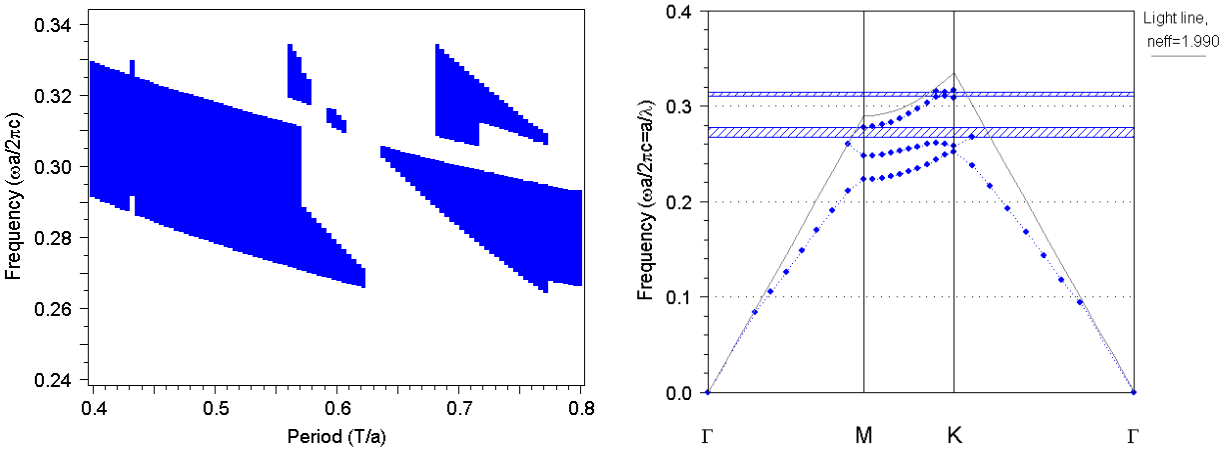
第 1 項　格子間隔の設計

格子間隔 a の変化に伴うフォトニックバンドギャップの広さ、規格化周波数の変化を調べるため、先ずはθ、及び r/a 一定のもとで a を変化させる。周波数は a によって規格化されてはいるが、3 次元での計算においては r/a が一定であっても a の大きさが変わればバンドの形は変化するため a を変化させたときのバンド計算が必要である。θ=0、r/a=0.4、0.45、0.50、及び 0.55 のもとでの a に対するフォトニックバンドギャップマップ、及び T/a=0.6 におけるフォトニックバンド図を Fig.5-17 に示す。

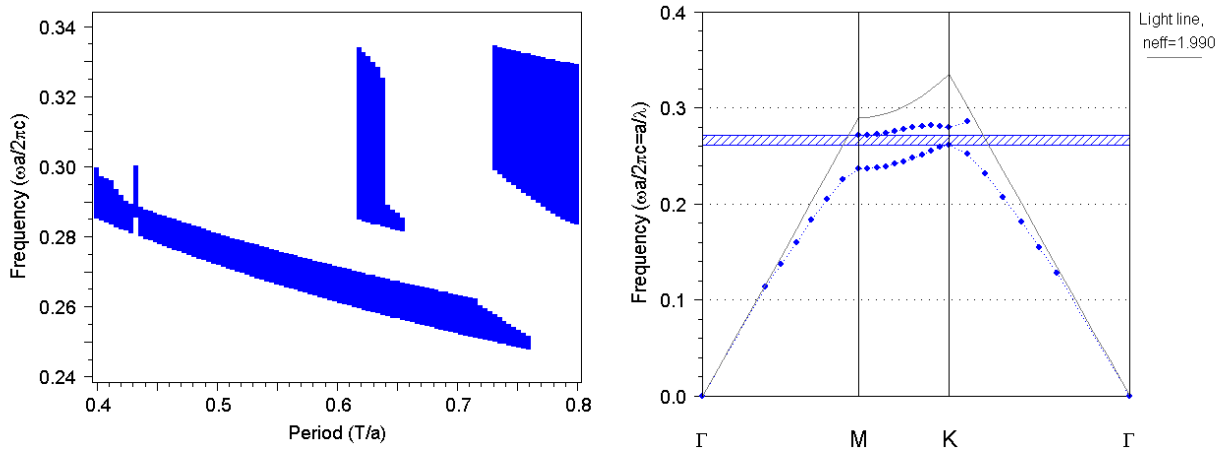
(a) r/a=0.4



(b) r/a=0.45



(c) r/a=0.5



(d) r/a=0.55

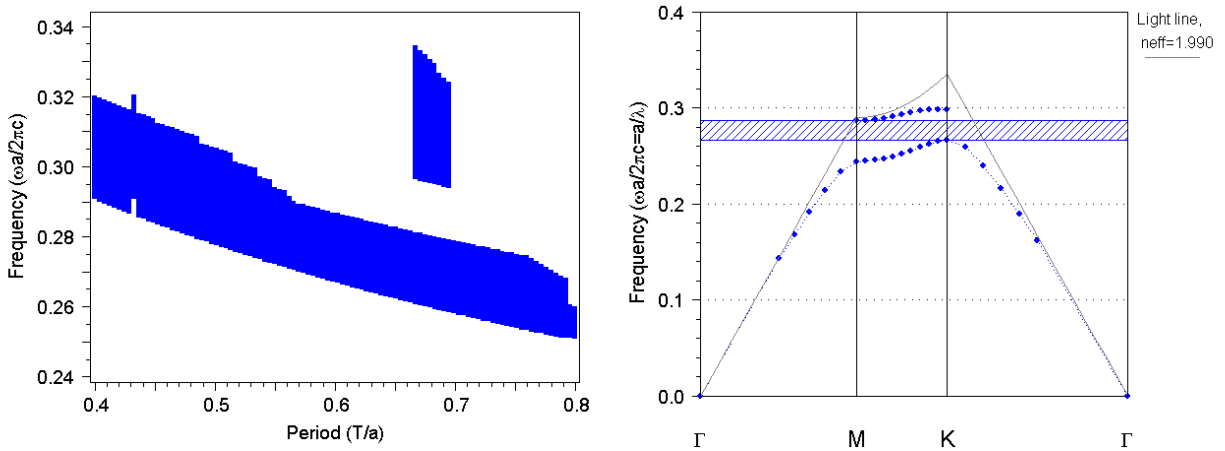


Fig.5-17. Left images are relationship between photonic bandgap and T/a for r/a=0.4, 0.45, 0.5, 0.55. Right images are photonic band structure at T/a=0.6.

ここで、ライトラインはクラッド層の屈折率 1.99 によるものである。計算上の都合上横軸を T/a としたが、今回は活性層厚さ T を一定と考えているため、横軸は格子間隔 a の変化であると考えてよい。r/a が 0.4、0.45、0.50、0.55 全てにおいてフォトニックバンドギャップは存在しているように一見見えるが、バンド図を見れば分かるように、0.4、0.45 のときの全て、及び 0.50、0.55 での一番下の細いバンドギャップ以外は、今回のモード計算ではライトコーンの内側しか行っていないいため、本来はライトコーンの外側でモードが存在する領域でもバンドギャップと見なされてしまっているだけに過ぎないことが分かる。また r/a が大きいほどバンドギャップが広くなりそうであるという予想が立つ。しかし r が大きくなると三角孔同士の間隔が狭くなりすぎて、作製の過程において不具合が出てくると思われるため、ここでは r/a=0.50 におけるフォトニックバンドギャップマップから最適な a の値を計算することとすると a の最適値は、量子カスケード構造の利得が最大となる波長である 9.5μm がバンドギャップのちょうど中心に来るような値である。先ほどの Fig.5-17(c)に T/a に対する波長 9.5μm で規格化した周波数をプロットした図を Fig.5-18 に示す。これより最適値 T/a=0.65 が求まる。

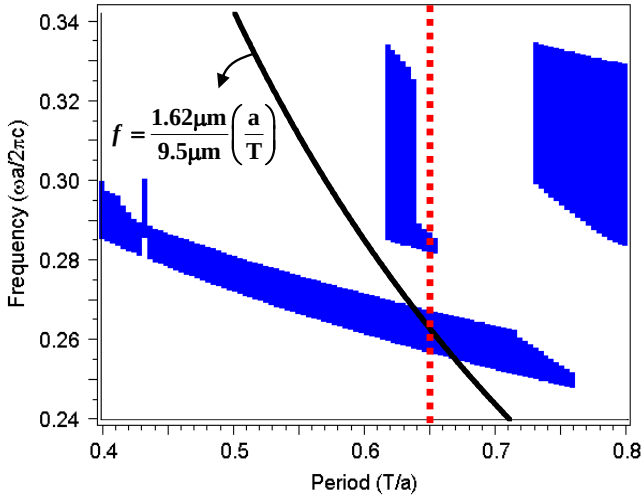


Fig.5-18. Determination of proper lattice constant *a* in which condition emission wavelength overlaps with photonic bandgap.

第 2 項　三角孔の大きさ

T/a を第 1 項で求めた 0.65 としたときの r/a に対するフォトニックバンドギャップマップ、及び r/a=0.5 におけるフォトニックバンド構造を Fig.5-19 に示す。
0.5 より大きければバンドギャップが広くはなるが、先ほど述べた理由を考慮し、r/a=0.5 とする。

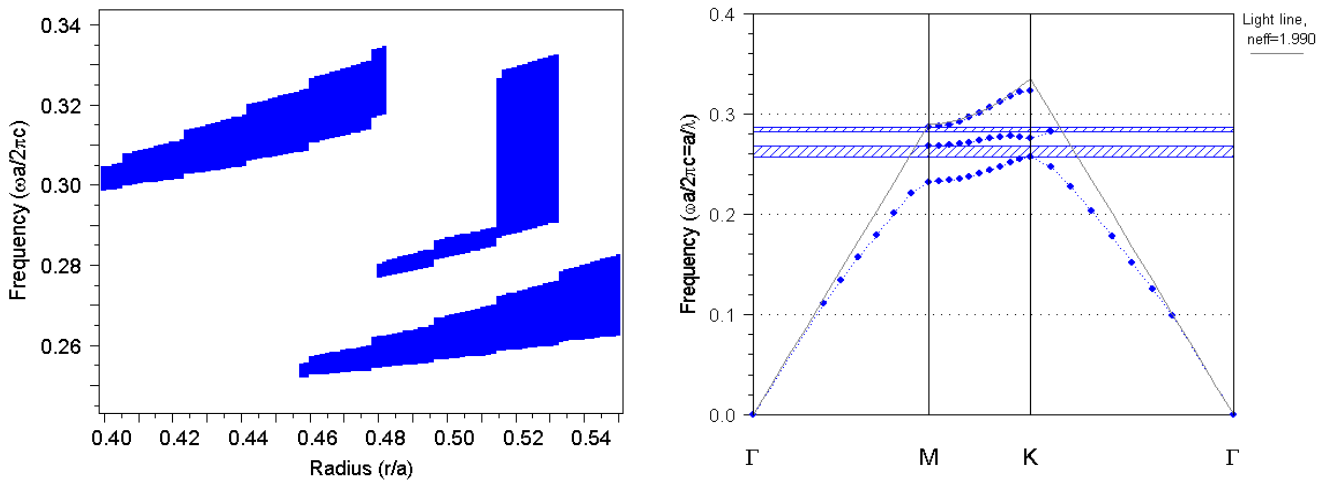


Fig.5-19. (Left image) Photonic bandgap map for r/a when T/a is 0.65. (Right image) Photonic band structure on r/a=0.5.

第 3 項　三角孔の角度

r/a をなるべく大きくした方がバンドギャップは広がるが、大きくしすぎると孔子同士の間隔が狭くなってしまうという問題点がある。そこで、同じ r/a でも孔子同士の間隔を広げる方法として三角孔を回転するというアイディアが浮かぶ。a=0.65、r/a=0.5 における、回転角度に対するフォトニックバンドギャップマップを Fig.5-20 に示す。

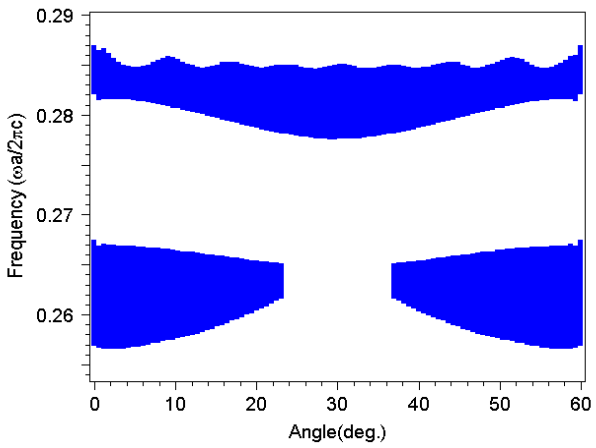


Fig.5-20.　Photonic bandgap map for rotation angle θ.

図より三角孔を回転するとフォトニックバンドギャップが狭くなってしまうことが分かる。よって回転はさせないこととする。

第 4 項　基板のフォトニックバンド構造に及ぼす影響

今までの設計においては計算の都合上、対称構造とするために基板の屈折率を 1 としたものであった。以下においては基板のフォトニックバンド構造に及ぼす影響を考察し、構造設計にフィードバックをかける。

基板の屈折率を 2.31 とし、3 次元平面波展開法によって計算したクラッド層ライトライン以下の規格化周波数でのフォトニックバンドギャップを計算した結果を Fig.5-21 に示す。

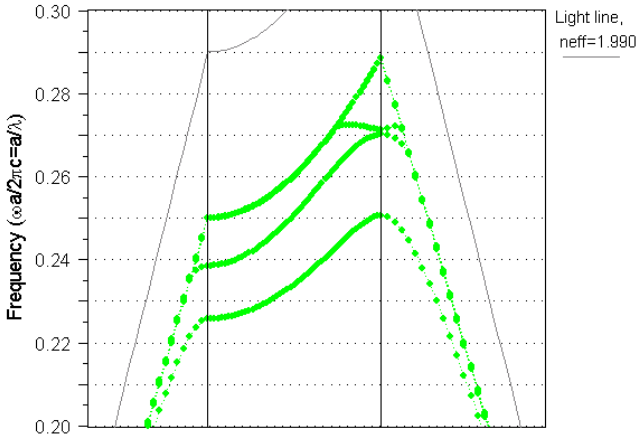


Fig.5-21. Photonic band structure of photonic crystal with asymmetry index slab waveguide.

クラッド層よりも大きな屈折率をもつ基板の影響により、それぞれの面方向の伝播定数に対し、ある規格化周波数以上でモードが強く縮退している。縮退しているあるモードの電界強度分布を Fig.5-22 に示す。

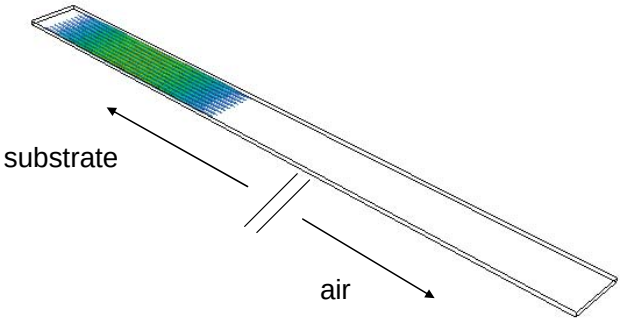


Fig.5-22. Mode profile of degenerated mode.

縮退しているモードは基板中において減衰せずに広がっているモードであることが分かる。活性層付近にのみ閉じ込められているモードのみについて議論するために基板屈折率ライトライン以下でのフォトニックバンド構造を Fig.5-23 に、またその図中に記した A 点、B 点、C 点におけるモードプロファイルを Fig.5-24 に示す。

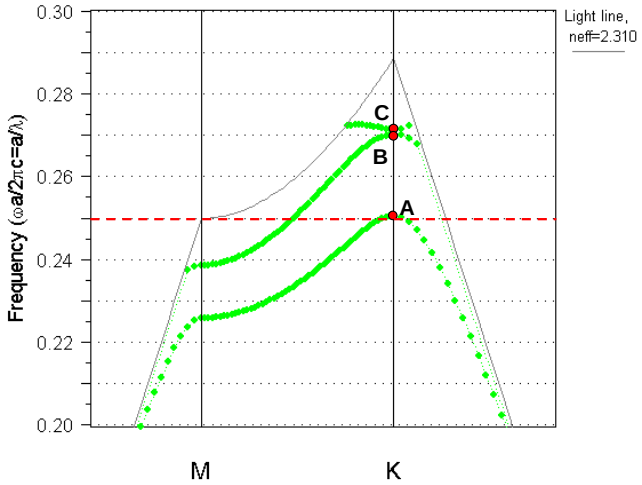


Fig.5-23. Photonic band structure calculated under substrate light line.

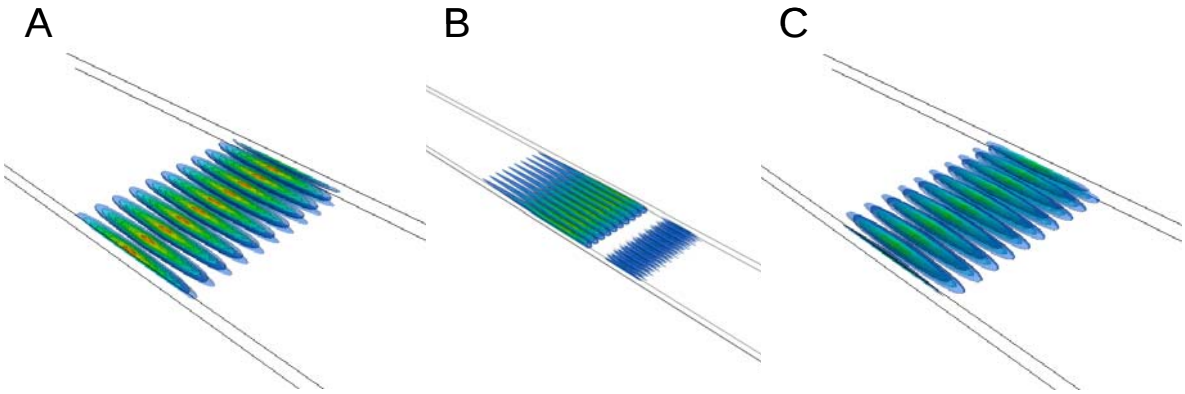


Fig.5-24. Mode profile of point A, B, and C. The lowest and highest frequency mode are TM-like mode, and the middle is TE-like mode.

モードプロファイルから Fig.5-24 におけるそれぞれのモードは、下から TM_0,TE_0,TM_1 モードであると言える。それぞれのモードが分かったところでもう一度、Fig.5-23 に目をやると、基板

を無視したときは存在したフォトニックバンドギャップが、基板のライトラインが下がったためなくなってしまっていることが分かる。そこで、基板を考慮した状態においてもう一度設計を修正する必要がある。

対称構造の基で計算した r/a=0.5 のときのフォトニックバンドギャップの広さは約 0.1 であり（Fig.5-18 参照）、基板ライトラインの M 点での規格化周波数は 0.25 であることから、量子カスケード構造の利得が最大となる波長に対応する規格化周波数が 0.245(=0.25-0.1/2)となるように格子間隔 a の値を決めなおす必要がある。(基板を考慮した非対称構造においても三角孔重心から頂点までの距離 r と格子間隔 a の比 r/a、及び三角孔回転角θの変化に対するフォトニックバンドギャップの変化の傾向は、対称構造の基での計算と変わらないことが予想される。すなわち r/a が 0.5 以下においては r/a が 0.5 のとき、またθは 0°のときが最もフォトニックバンドギャップ広いと思われるため、基板を考慮した場合においても r/a=0.5、θ=0 とする。）
T/a=0.7、r/a=0.5、θ=0 においてフォトニックバンド構造を計算した結果を Fig.5-25 に示す。

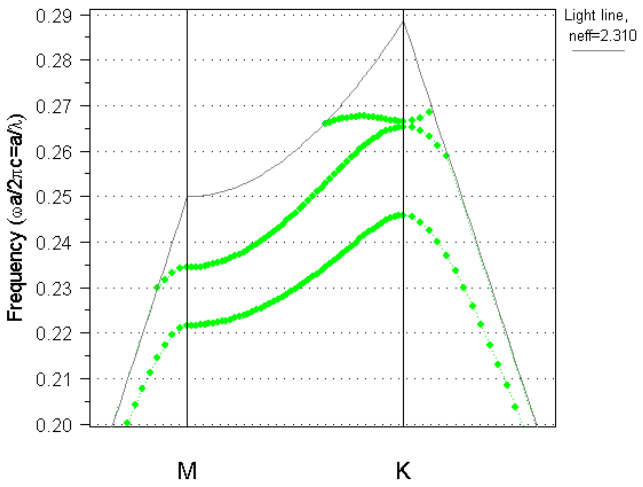


Fig.5-25. Photonic band structure re-calculated after changing T/a into 0.7 from 0.65.

TM_0 モードの規格化周波数が全体的に下がることで、ライトラインの M 点から TM_0 モードの K 点までの間にフォトニックバンドギャップが存在していることが見て取れる。しかし、TM_1 モードの M 点は依然としてライトラインの外にあるため、バンドギャップは狭くなってしまっている。基板の影響を考慮するとバンドギャップが狭くなってしまうということは、下部クラッド層の厚さを更に長くすることによって、基板の影響を弱めれば、バンドギャップが広くなるということでもある。

第 5 項　三角孔深さ

第 4 項までの計算において、三角孔の深さが基板まで達している状態の下で計算をしてきた。基板までが薄いならば問題はないが、量子カスケードレーザにおいてはクラッド層が厚く、基板まで掘ることは困難なことも予想される。そこで三角孔の深さとバンドギャップの関係を計算した。結果を Fig.5-26 に示す。基板までの厚さは 10.62μm であるが、8μm 以上深ければフォトニックバンドギャップが存在することが分かる。

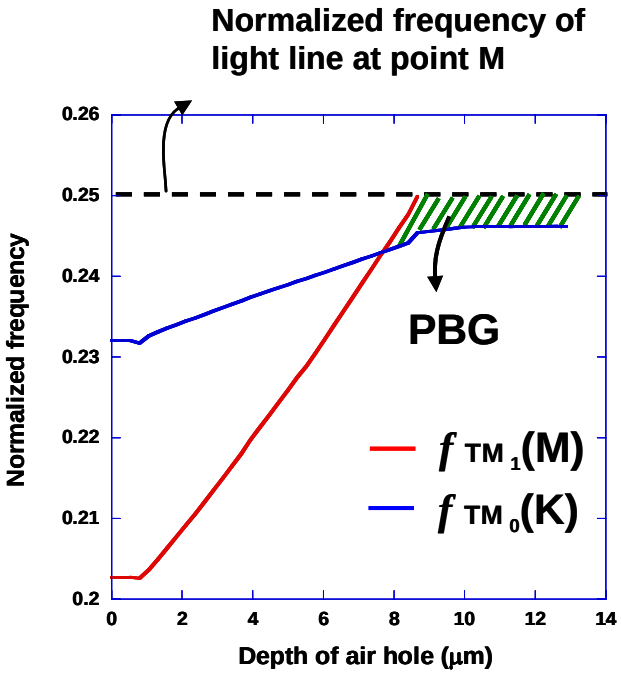


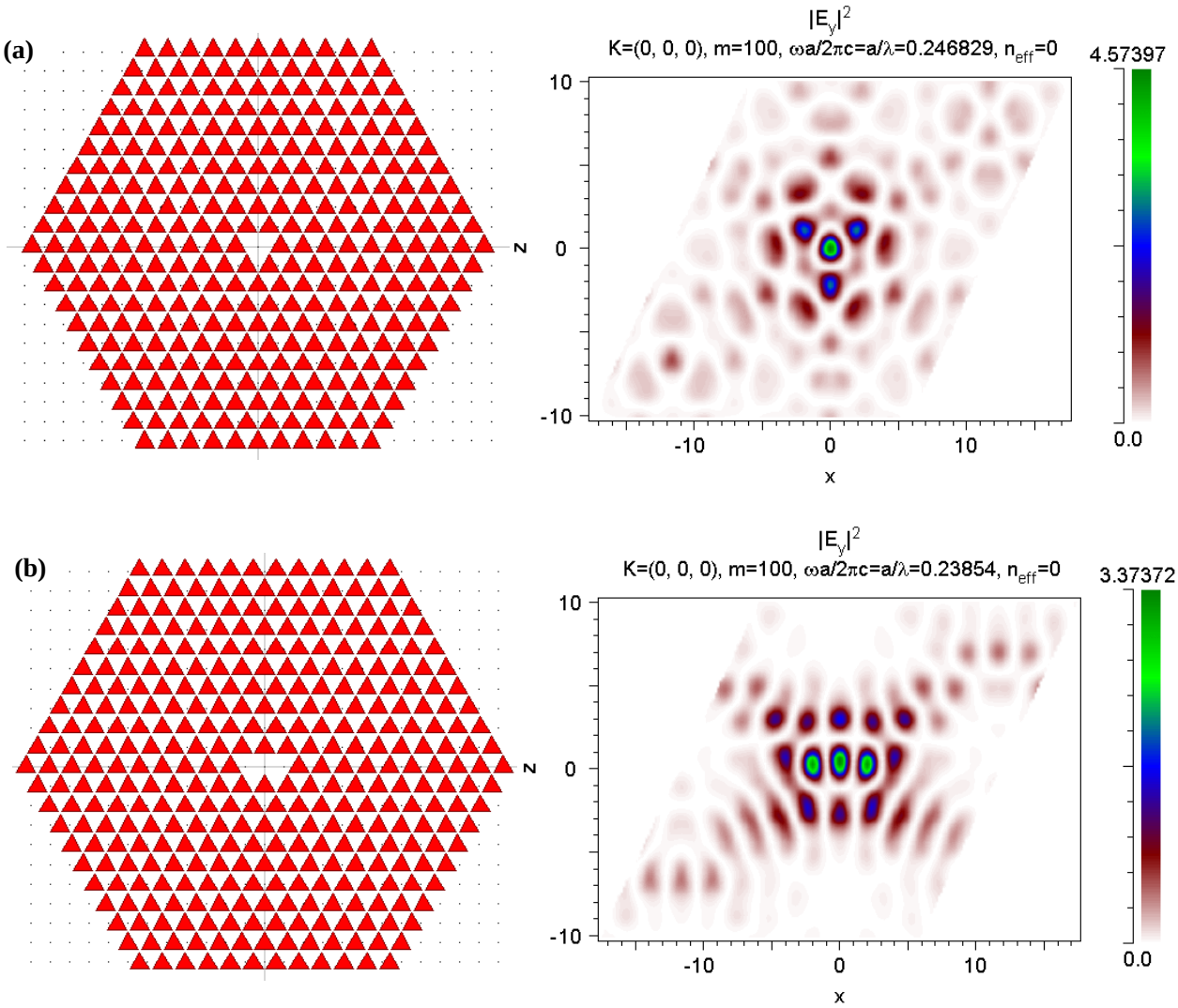
Fig.5-26. Normalized frequency of TM-like fundamental (second) mode at symmetry K (M) pont vs depth of air holes. When depth is over 8μm, designed photonic crystal has photonic bandgap.

第 4 節　共振器の設計

第 3 節までで TM モードに対するフォトニックバンドギャップが存在する構造の設計ができた。それは、その結晶に欠陥を導入することで、微小共振器レーザが実現できる可能性があるということである。そこで、この節では先ほど設計したフォトニック結晶に欠陥を導入し、欠陥付近の光強度を調べる。

欠陥の種類としては、基本的な H1 型、L2 型、L3 型の 3 種類を比較することする。いずれの欠陥も、本来三角孔である部分を誘電体とするのみで、周りの三角孔の位置を移動させたりはしない。計算方法は、第 2 節で求めた等価屈折率を用いた、2 次元平面波展開法である。いずれのタイプも欠陥から 5 周期の大きさの領域を規約ブリュアンゾーンとして計算する。結果を

Fig.5-27 に示す。いずれの欠陥においても、光が欠陥付近に閉じ込められているのが分かる。また欠陥の大きさが大きいほど、欠陥への光の閉じ込めが強いことが見て取れる。欠陥の導入によって、光を閉じ込められることは示せたが、光の閉じ込めはあまり強くはなく、欠陥の改良の余地は残されていると考える。



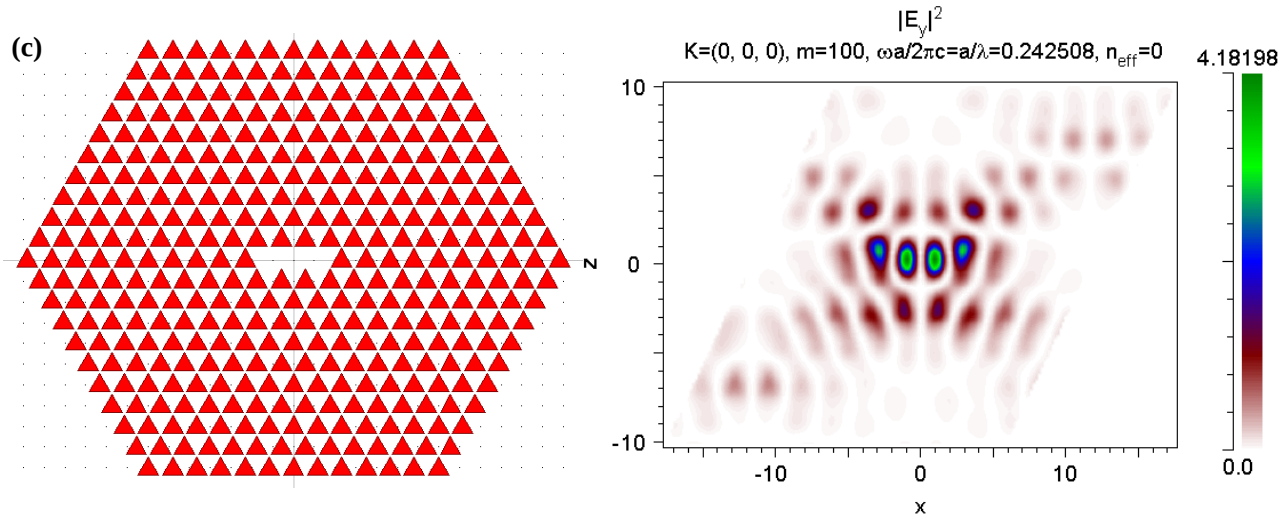


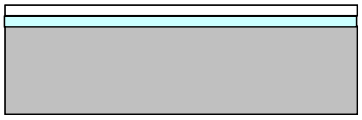
Fig.5-27. Designed three type cavity –(a)H1, (b)L2, and (c)L3 type. Right images are mode profile of defect mode. Intesity of electric field is large only near defect, whch means that defect works as micro cavity.

第 5 節　フォトニック結晶微小共振器の試作

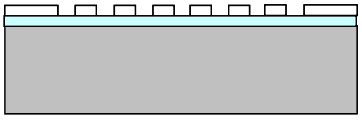
今回設計した構造の作製のために独自に考えた作製プロセス工程を Fig.5-28,29 に示す。プロセスフローは大きくフォトニック結晶作製工程と、電極パット、メサ構造形成工程に分けられる。一般的にフォトニック結晶微小共振器レーザは光励起型であるのに対して、筆者が設計したデバイスは電流励起型であるために、後者のプロセス工程が含まれ、工程がやや複雑となっている。フォトニック結晶形成の工程と電極パット形成のプロセスの順番により工程は大きく異なるが筆者はフォトニック結晶形成過程を先に行なうこととした。その理由は以下の通りである。メサ構造を作製した後では、フォトニック結晶を作製したい部分以外を完全に SiO_2 マスクで覆うことができない。またドライエッチングに対し耐性のあるレジストならば完全に覆うことは可能かもしれないが、それでは、深堀は難しい。

メサ形成過程において、技術的に克服しなければいけない点が幾つか残されているため、フォトニック結晶形成過程とメサ構造形成過程に対し独立に技術を蓄積し、最後にそれらを融合させるという方針を採ることとした。

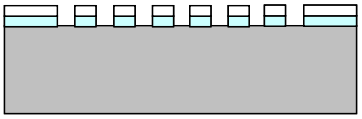
1.SiO_2 sputtering& Resist spin-coating & EB-lithography



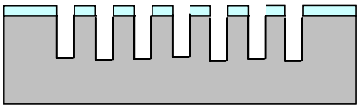
2.Development



3.SiO_2 Dry-etching (Freon)



4.GaAs Dry-etching (Cl_2)



5.SiO_2 Wet-etching

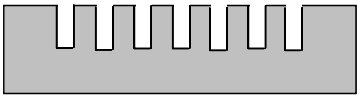
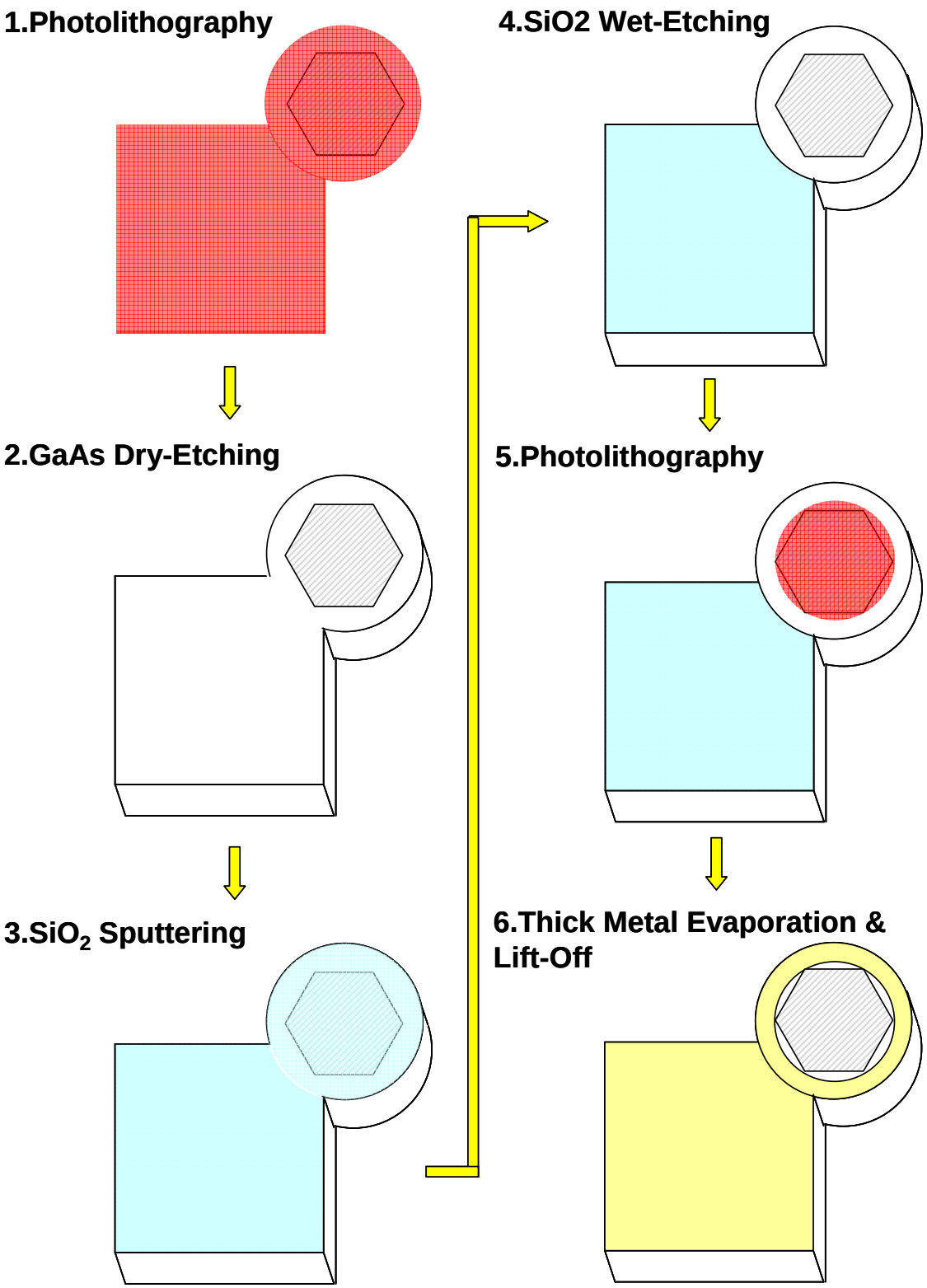


Fig.5-28. Process flow to fabricate photonic crystal.


1.Photolithography
2.GaAs Dry-Etching
3.SiO2 Sputtering
4.SiO2 Wet-Etching
5.Photolithography
6.Thick Metal Evaporation & Lift-Off

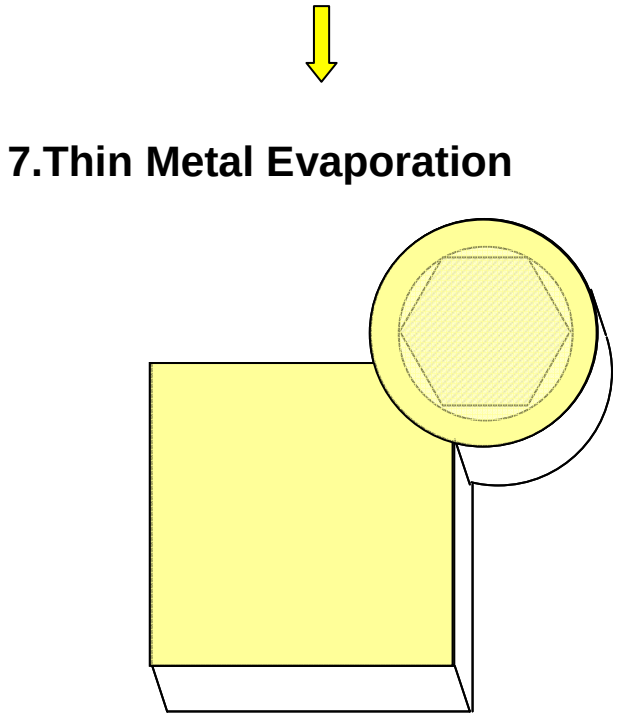


Fig.5-29. Process flow to fabricate electrode pad and mesa structure.

フォトニック結晶の作製

上で示したプロセス工程で作製したフォトニック結晶構造の表面、断面 SEM 写真を Fig.5-30 に示す。

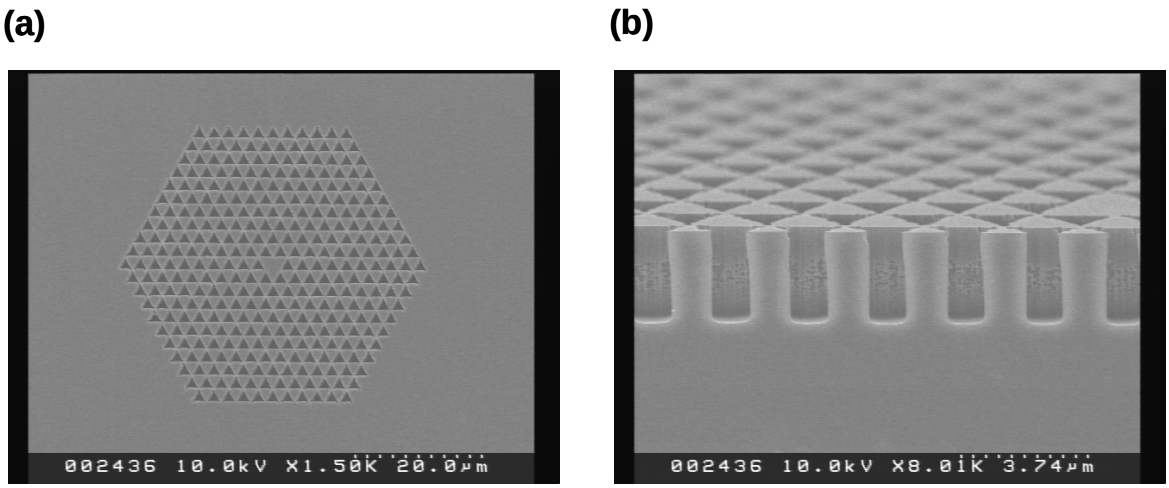


Fig.5-30. Sureface SEM image (a) and cross-sectional image (b).

垂直性はあまり問題ないが、深さ方向の目標である 10μm には到底及んでいない。これは SiO_2 の膜質の問題により、これ以上長時間のエッチングに耐えられないためである。これを解決する方法としては、スパッタ以外の方法による、密度が高く質の高い SiO_2 マスクの成膜などが考えられる。

メサ構造の形成

メサ構造の形成に関する問題の 1 つとして、ドライエッチングのために SiO_2 マスクが使えないことがある。それは SiO_2 では深さが 10μm もあるフォトニック結晶部分を完全に覆いつくすことができないためである。そこで次に、レジストマスクを使うことを考えるが、それにも大きな問題がある。それはフォトリソ用ポジレジストとして一般的な AZ 系レジストでは、ドライエッチングのときに立てるプラズマの影響により、GaAs 表面に吸着してしまうためである。そこで筆者らが考えた方法が GaAs 表面に他のレジストをスピンコーティングし、その上に AZ レジストをスピンコーティングする 2 層レジスト法である。AZ レジストの下にスピンコートするレジストが満たすべき条件は、

- AZ レジストの現像液に溶けない
- プラズマの影響で GaAs 表面に吸着しない
- 塩素系ドライエッチングに対し、できるだけ耐性が弱い

ことである。これらを満足するレジストとして筆者は EB 用レジストである PMMA を利用することとした。

以下の条件のようにプロセスをしてできた電極パットの SEM 写真を Fig.5-31 に示す。

PMMA スピンコート　500rpm 5sec
　　3000rpm 40sec
　ベーク　　180℃ 10min
→　膜厚 100nm

AZ1500 スピンコート　500rpm 5sec
　　3000rpm 40sec
　ベーク　　90℃ 10min
→　膜厚 2μm

GaAs ドライエッチング
　　ICP 250W
　　Bias 100W
　　Time 7min

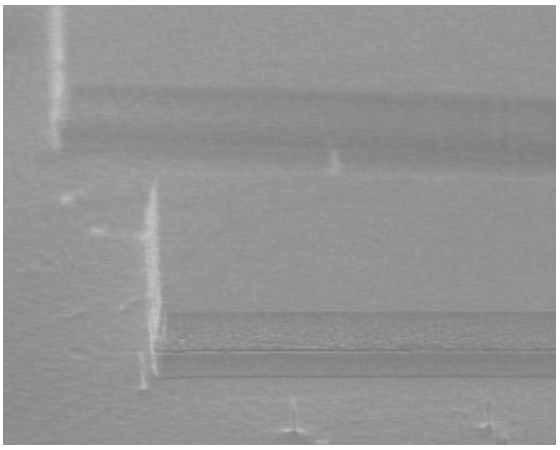


Fig.5-31. SEM image of electrode pad fabricated by two resist layers method.

ドライエッチング後にアセトンでレジストを溶かすと、きれいに表面から除去することができた。AZ レジストの膜厚にやや問題があり、電極パットの側面の急峻性はあまりよくはないがこれらは容易に改善可能であると思われる。

第 6 節　まとめ

第 5 章では高性能面発光型量子カスケードレーザの実現に向けて、その基礎設計を行なった。TM モードに対するフォトニックバンドギャップをもつ結晶の作製が可能であることを示した。その構造とは筆者が検討している屈折率分布、活性層の厚さの下においては、格子間隔 a=2.33μm、三角孔の中心から頂点までの長さ r=1.16μm の三角格子状に配列した三角孔からなるフォトニック結晶である。

また、設計した構造作製のための要素技術の開発を行なった。メサ形成において必要不可欠なレジストをマスクとしたドライエッチング技術を確立した。

第 6 章

結論

本研究では以下のことを行なった。

- 中赤外領域 GaAs/AlGaAs 系量子カスケードレーザの作製とその基礎特性の測定
- 閾値電流密度の温度依存性に関する理論的解析
- サブバンド間発光に適した、フォトニック結晶微小共振器の設計とその試作

そして、それぞれに関して以下の様な結果が得られた。

- 正確に膜厚、組成比を制御した量子カスケード構造の MBE 成長技術を確立し、レーザ発振に成功した。最高動作温度は 210K であり、20Kでの閾値電流密度は約 4kA/cm^2 であった。発振波長は 20K において 9.5μm であった。
- 閾値電流密度の温度依存性の特徴が 100K 付近を境に変化する原因は、キャリアの熱再分布の影響であることが分かった。その影響と、実験から得られた準位 3 への注入効率を考慮すると、実験で得られた閾値電流密度の温度依存性を上手く説明することができた。
- 電流注入が可能であり、また TM モードに対するフォトニックバンドギャップをもつフォトニック結晶の設計をした。そのフォトニック結晶に欠陥を導入することにより、微小共振器型発光素子、更に微小共振器レーザが実現可能であること示した。実際に設計した構造の試作を行い、プロセスに関するいくつかの知見を得た。

第 7 章

今後の方針

今後は、第 5 章で設計した基礎構造や、そこで得た設計指針に基づき、量子カスケードフォトニック結晶微小共振器型発光素子の早期な実現を目指す。フォトニック結晶作製にあたり、幾つか解決しなければならない困難なプロセス工程が存在することが現在まで分かっている。それらの解決に先ずは取り組む。具体的には、フォトニック結晶形成時のドライエッチングマスクである $Si0_2$ の質の向上を図るため、熱 CVD 法による Si02 成膜を検討している。熱 CVD 法で成膜した Si02 マスクでも問題が解決されない場合は、上部コア層、クラッド層の薄化を検討する。表面プラズモン効果を利用した金属導波路を採用することにより、薄くした場合でも非常に強い閉じ込め効果が期待できる。

サブバンド間発光の共振器モードに結合した光の検出に成功したら、設計、プロセスにフィードバックをかけ、より高効率な発光素子を作製し、レーザ発振を目指す。また、フォトニック結晶の周期間隔 a、周期間隔に対する三角孔の大きさ r/a を変化させ、共振器モードに起因した発光ピークの変化を調べる。

量子カスケードフォトニック結晶微小共振器レーザに関する研究の進捗状況を見ながら、量子カスケードレーザと量子ドットとの融合への道も模索することも考えている。具体的にはポンププローブ法などを用い、量子ドットのサブバンド間遷移に関するメカニズムを詳細に調べる。また、カスケード接続を可能にする積層構造の成長技術の確立なども検討している。

これらの研究を通し、量子カスケードレーザの高性能、高機能化に貢献することを目指す。

Appendix 1　AlGaAs 層直後の成長中断のデバイス特性に及ぼす影響について

第 1 章で成長した量子カスケード構造は GaAs 層の成長の後すぐに、Al セルを開くことで AlGaAs 層を成長したものであるが、GaAs 層の成長後に一定の時間 As 雰囲気下におくことで GaAs 層が平坦化され、結晶の質が向上するという報告がある [111]。そこで成長中断を入れて量子カスケード構造を成長し、界面の平坦性に対する効果を、ひいてはデバイス特性に及ぼす影響を調べることとした。

MBE 成長は非常に高精度に制御された成長方法であり、結晶の質は成長温度、時間などの基本的な成長条件のみではなく、装置の種類はもちろん、ベーキングからの日数、原料の残量など様々な条件影響を及ぼす。そこで 1 枚目のウエハ成長から日数が経っていたこともあり、リファレンスとして、成長中断なしのサンプルも成長した。Fig.2-a に成長した量子カスケード構造の XRD 測定結果を示す。サンプル番号の B289 が第 1 章で用いたサンプルであり、B429,432 が成長中断なし、B439 が成長中断を入れたサンプルである。B429 は B289 とほぼ同条件で成長したものであるが、界面の平坦性が余りよくなかったため、成長時の基板温度を 20℃ほど上げるなど、成長条件を改良し成長したものが B432 である。B439 も成長中断の有無以外は B436 と同条件で成長したものである。

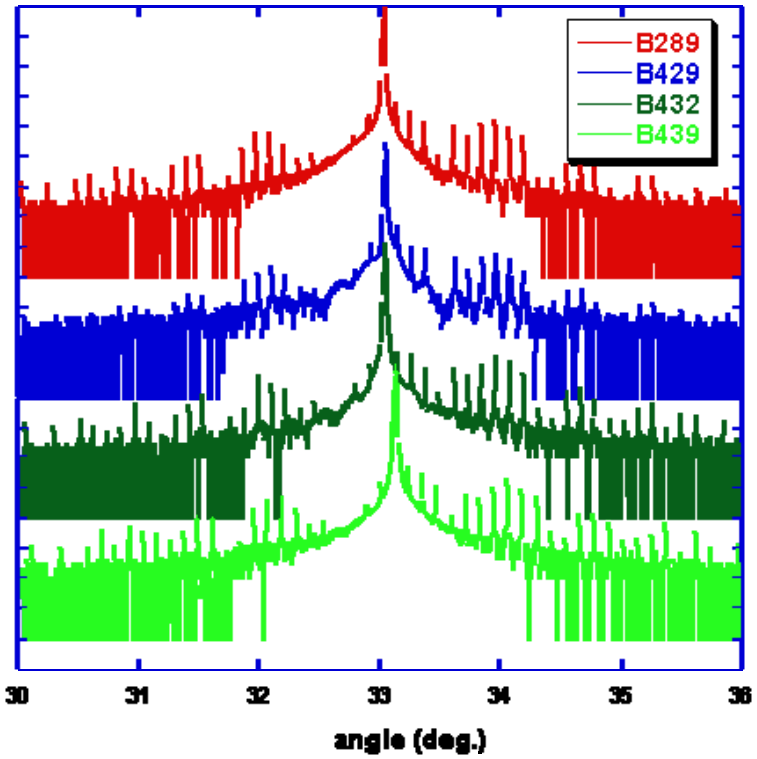
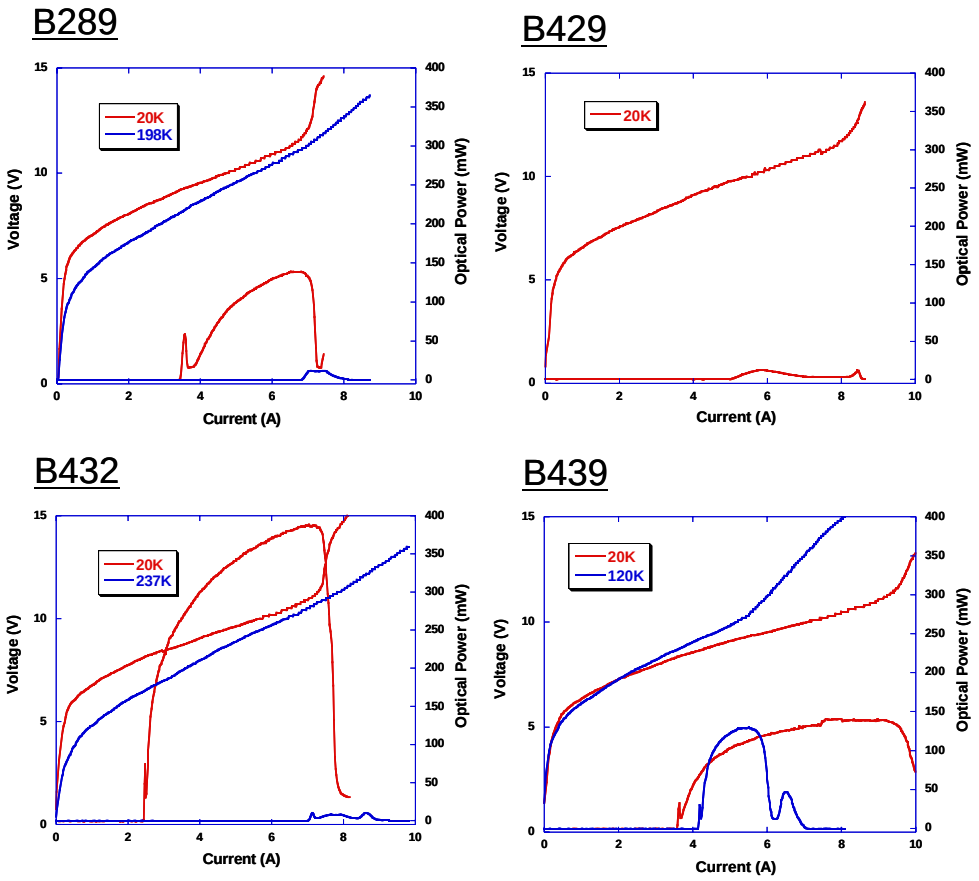


Fig.1-a. Comparison among XRD measurement results of the four samples grown under different growth condition

B439 と B432 を比較すると、低角度側において若干の平坦性の改善が見られる感もあるが、それほど大きな変化ではない。B289 と B432,439 の高角度側を比較すると、こちらも若干の改善が見受けられる。B289 と B429 を比較すると、基板温度がほぼ同じであるにもかかわらず、成長した時期が異なり、MBE 装置の状態が異なるとこれほどの差が出しまうことが分かる。

これら 4 つのサンプルのデバイス特性を比較した結果を以下に示す。プロセスの良し悪しによって特性が若干変わることも予想されるため、B289 も他のサンプルと同時にプロセスを行なったものの測定結果である。



	Cavity Length	Threshold Current Density	Maximum Operation Temperature
B289	1.41mm	5.94kA/cm^2	197K
B429	1.40mm	8.69kA/cm^2	70K
B432	1.32mm	4.5kA/cm^2	237K
B439	1.44mm	6.05kA/cm^2	(120K)

Fig.1-b. Comparison among I-V and I-L characteristics of four devices (B289,429,432,439). Lower table shows cavity length ,threshold current density at 20K, and maximum operation temperature of these devices.

結果は成長中断を行なっていないものが一番よい特性を示し、XRD 測定結果から予想できたように B429 が最も悪い特性であった。第 1 章で示した B289 の共振器長 1.59mm のデバイスの閾値電流密度が 4.5kA/cm^2 であったことを考えると、今回プロセスを行なった B289 のサンプルでも、幾つかのデバイスを測定し平均すると、もう少し低い値となるかもしれない。B439 のサンプルの最高動作温度に関してであるが、I-L 特性を見れば分かるように、120K でもまだ測定に足りる十分な強度をもっているが、何らかの影響により 120K 付近でレーザが壊れてしまい、それ以上の高温領域での測定ができなかった。20K での閾値電流密度の大きさから考慮すると 200K 近くまで発振するのではないかと思われる。

以上の結果から量子カスケードレーザのデバイス特性に及ぼす成長中断の効果はそれほど大きなものでもなく、その必要性は必ずしもないことが分かった。また、界面の平坦性のみではなく内部の結晶の質にも大きく影響する成長中の基板温度は非常に重要であることも分かった。

Appendix 2　TE、TM-like 基底モードの規格化周波数の大小関係について

三角格子配列空気孔フォトニック結晶において 1 次の TE、TM-like モードの規格化周波数の関係は TE-like モードのほうが大きいのが一般的である。しかし第 5 章、第 3 節の Fig.5-23 を見ると分かるように、今回設計した構造においてはその関係が逆転している。その理由を以下で考察する。

1 次のモードの大小関係は等価屈折率という概念を糸口に理解することができる。すなわちある 1 次のモードがもう片方の 1 次のモードよりも規格化周波数が大きいということは、Γ–M 方向での傾きが大きい、すなわち等価屈折率が小さいということである。今回設計した三角格子配列三角孔フォトニック結晶に対して、TE、TM-like モードに対する等価屈折率を等しい（ともに 3 とする。等価屈折率がそれぞれのモードに対して等しいということは面垂直方向に無限に広がっている結晶を意味している。）として 2 次元平面波展開法により計算したフォトニックバンド構造を Fig.2-a に示す。

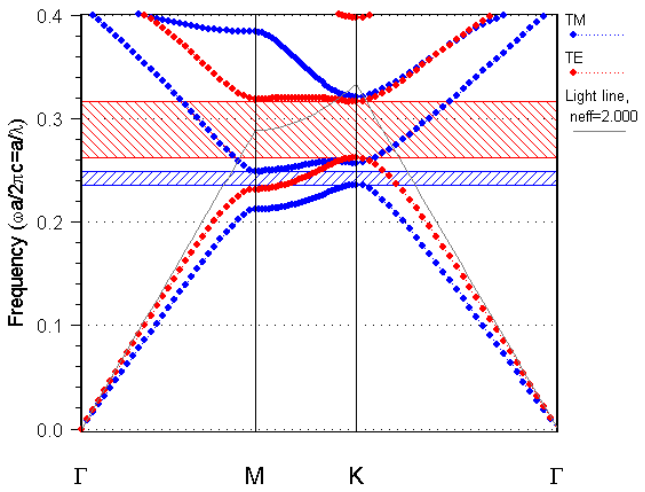


Fig.2-a. Photonic band structure of imaginary photonic crystal with infinite thichness.

等価屈折率差がない結晶においては TE-like モードの規格化周波数の方が大きいことが分かる。TM-like モードの規格化周波数の方が TE-like モードのそれよりも大きくなるということは、TM-like モードの等価屈折率が TE-like モードのそれよりも十分小さいということである。それではなぜ一般的な結晶においては TM-like モードの等価屈折率が TE-like モードのそれに対して低いのか？それはそれぞれのモードの分散関係の違いにある。TE、TM-like モードのコア層の厚さに対する等価屈折率の変化の概略図を Fig.2-b に示す。

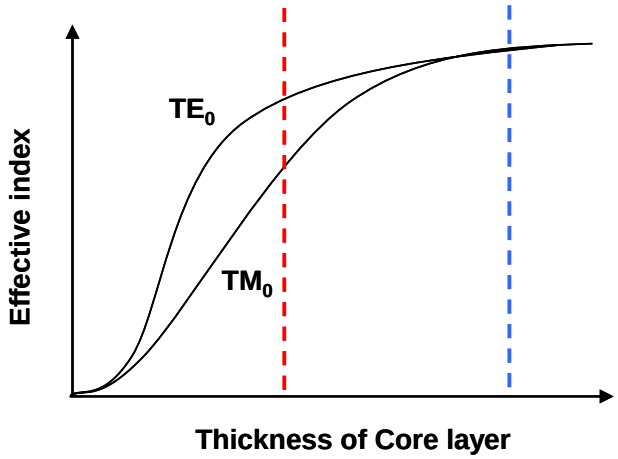


Fig.2-b. Schematics of difference between dispersion cureves for TM-like and TE-like mode.

コア層が薄い場合はそれぞれの等価屈折率差が大きいのに対して、厚くなるに従いその差がほとんどなくなる。すなわち一般的なフォトニック結晶においては TE、TM-like モードそれぞれの等価屈折率の間に有意の差が生まれるようなコア層の厚さでの設計となっているため*、TM-like モードの方が TE-like モードよりも規格化周波数が大きいと言える。それに対し、今回行なった設計においては波長の違いを考慮したとしてもコア層が一般的なものよりも厚く、TM-like モードが TE-like モードよりも規格化周波数が大きくなるくらいの等価屈折率の差がないために*、成長方向に無限に広がる結晶のように TM-like モードの方が小さいと結論付けることができる。

今回の設計の目的とは異なるが、完全フォトニックバンドギャップに関する研究においてはこの考察が生きてくると考えられる。

---

*例として、参考文献　においては TE-like モードに対する等価屈折率 2.92、TM-like モードに対する等価屈折率 2.51 である。

* コア層の屈折率を 3、クラッド層の屈折率を 2 とした 3 層スラブ構造の下での計算では、TE-like モードに対する等価屈折率 2.962、TM-like モードに対する等価屈折率 2.955 である。

参考文献

1, 榊裕之、横山直樹, ナノエレクトロニクス, 167 (2004)

2, BS Williams, B Xu, Q Hu, MR Melloch, Appl. Phys. Lett., 75, 2927-2929 (1999)

3, RM Williams, JF Kelly, JS Hartman, SW Sharpe, MS Taubman, JL Hall, F Capasso, C Gmachl, DL Sivco, JN Baillargeon, AY Cho, Opt. Lett., 24, 1844-1846 (1999)

4, KAZARINO.RF, SURIS, RA, Sov.Phys.Semicond. 5, 707 (1971)

5, KAZARINO.RF, SURIS, RA, Sov.Phys.Semicond. 6, 120 (1972)

6, J FAIST, F CAPASSO, DL SIVCO, C SIRTORI, AL HUTCHINSON, AY CHO, Science, 264, 553-556 (1994)

7, C SIRTORI, F CAPASSO, J FAIST, DL SIVCO, AL HUTCHINSON, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 66, 4-6 (1995)

8, Y ARAKAWA, H SAKAKI, Appl. Phys. Lett., 40, 939-941 (1982)

9, PW Shor, SIAM J. Comput., 26, 1484-1509 (1997)

10, A Steane, Rep. Prog. Phys., 61, 117-173 (1998)

11, E Knill, R Laflamme, GJ Milburn, Nature, 409, 46-52 (2001)

12, CH Bennett, DP DiVincenzo, JA Smolin, WK Wootters, Phys. Rev. A, 54, 3824-3851 (1996)

13, D Bouwmeester, JW Pan, K Mattle, M Eibl, H Weinfurter, A Zeilinger, Nature, 390, 575-579 (1997)

14, A Furusawa, JL Sorensen, SL Braunstein, CA Fuchs, HJ Kimble, ES Polzik, Science, 282, 706-709 (1998)

15, E YABLONOVITCH, Phys. Rev. Lett., 58, 2059-2062 (1987)

16, L ESAKI, R TSU, IBM J. Res. Dev. 14, 61 (1970)

17, F CAPASSO, C SIRTORI, J FAIST, DL SIVCO, SNG CHU, AY CHO, Nature, 358, 565-567 (1992)

18, C SIRTORI, F CAPASSO, J FAIST, DL SIVCO, SNG CHU, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 61, 898-900 (1992)

19, C SIRTORI, J FAIST, F CAPASSO, DL SIVCO, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 62, 1931-1933 (1993)

20, J FAIST, F CAPASSO, C SIRTORI, DL SIVCO, AL HUTCHINSON, SNG CHU, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 63, 1354-1356 (1993)

21, C SIRTORI, J FAIST, F CAPASSO, DL SIVCO, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 63, 2670-2672 (1993)

22, J FAIST, F CAPASSO, C SIRTORI, DL SIVCO, AL HUTCHINSON, SNG CHU, AY CHO, Electron. Lett., 29, 2230-2231 (1993)

23, J FAIST, C SIRTORI, F CAPASSO, L PFEIFFER, KW WEST, Appl. Phys. Lett., 64, 872-874 (1994)
24, J FAIST, F CAPASSO, C SIRTORI, D SIVCO, AL HUTCHINSON, SNG CHU, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 64, 1144-1146 (1994)
25, J FAIST, F CAPASSO, C SIRTORI, DL SIVCO, AL HUTCHINSON, SNG CHU, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 65, 94-96 (1994)
26, C SIRTORI, F CAPASSO, J FAIST, LN PFEIFFER, KW WEST, Appl. Phys. Lett., 65, 445-447 (1994)
27, J FAIST, F CAPASSO, C SIRTORI, DL SIVCO, AY CHO, L PFEIFFER, K WEST, Solid State Electron., 37, 1273-1276 (1994)
28, C SIRTORI, J FAIST, F CAPASSO, DL SIVCO, AY CHO, Solid State Electron. 37, 1191-1194 (1994)
29, C SIRTORI, F CAPASSO, J FAIST, S SCANDOLO, Phys. Rev. B, 50, 8663-8674 (1994)
30, J FAIST, F CAPASSO, C SIRTORI, DL SIVCO, AL HUTCHINSON, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 66, 538-540 (1995)
31, J FAIST, F CAPASSO, C SIRTORI, DL SIVCO, AL HUTCHINSON, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 67, 3057-3059 (1995)
32, J Faist, C Gmachl, F Capasso, C Sirtori, DL Sivco, JN Baillargeon, AY Cho, Appl. Phys. Lett., 70, 2670-2672 (1997)
33, G Scamarcio, F Capasso, C Sirtori, J Faist, AL Hutchinson, DL Sivco, AY Cho, Science, 276, 773-776 (1997)
34, J Faist, C Gmachl, M Striccoli, C Sirtori, F Capasso, DL Sivco, AY Cho, Appl. Phys. Lett., 69, 2456-2458 (1996)
35, C Gmachl, F Capasso, EE Narimanov, JU Nockel, AD Stone, J Faist, DL Sivco, AY Cho, Science, 280, 1556-1564 (1998)
36, K Namjou, S Cai, EA Whittaker, J Faist, C Gmachl, F Capasso, DL Sivco, AY Cho, Opt. Lett., 23, 219-221 (1998)
37, C Sirtori, P Kruck, S Barbieri, P Collot, J Nagle, M Beck, J Faist, U Oesterle, Appl. Phys. Lett., 73, 3486-3488 (1998)
38, M Beck, D Hofstetter, T Aellen, J Faist, U Oesterle, M Ilegems, E Gini, H Melchior, Science, 295, 301-305 (2002)
39, M Rochat, M Beck, J Faist, U Oesterle, Appl. Phys. Lett., 78, 1967-1969 (2001)
40, R Kohler, A Tredicucci, F Beltram, HE Beere, EH Linfield, AG Davies, DA Ritchie, RC Iotti, F Rossi, Nature, 417, 156-159 (2002)
41, C Walther, G Scalari, J Faist, H Beere, D Ritchie, Appl. Phys. Lett., 89 231121 (2006)
42, BS Williams, S Kumar, Q Hu, JL Reno, Opt. Express, 13, 3331-3339 (2005)

43, R Colombelli, K Srinivasan, M Troccoli, O Painter, CF Gmachl, DM Tennant, AM Sergent, DL Sivco, AY Cho, F Capasso, Science, 302, 1374-1377 (2003)
44, S Slivken, Z Huang, A Evans, M Razeghi, Appl. Phys. Lett., 80, 4091-4093 (2002)
45, JS Yu, S Slivken, A Evans, J David, M Razeghi, Appl. Phys. Lett., 82, 3397-3399 (2003)
46, A Evans, J Nguyen, S Slivken, JS Yu, SR Darvish, M Razeghi, Appl. Phys. Lett. 88, 051105 051105 (2006)
47, MP Semtsiv, M Wienold, S Dressler, WT Masselink, Appl. Phys. Lett., 89 211124 (2006)
48, K Ohtani, H Ohno, Jpn. J. Appl. Phys. Part 2 Lett., 41, L1279-L1280 (2002)
49, K Ohtani, H Ohno, Appl. Phys. Lett., 82, 1003-1005 (2003)
50, K Ohtani, K Fujita, H Ohno, Jpn. J. Appl. Phys. Part 2 Lett. Express Lett., 43, L879-L881 (2004)
51, K Ohtani, K Fujita, H Ohno, Jpn. J. Appl. Phys. Part 1 Regul. Pap. Short Notes Rev. Pap., 44, 2572-2574 (2005)
52, K Ohtani, K Fujita, H Ohno, Appl. Phys. Lett., 87 211113 (2005)
53, RQ Yang, CH Lin, PC Chang, SJ Murry, D Zhang, SS Pei, SR Kurtz, AN Chu, F Ren, Electron. Lett., 32, 1621-1622 (1996)
54, CH Lin, RQ Yang, D Zhang, SJ Murry, SS Pei, AA Allerman, SR Kutz, Electron. Lett., 33, 598-599 (1997)
55, RA Sorel, J. Vac. Sci. Technol. A Vac. Surf. Films, 14, 913-918 (1996)
56, G Dehlinger, L Diehl, U Gennser, H Sigg, J Faist, K Ensslin, D Grutzmacher, E Muller, Science, 290, 2277 (2000)
57, K Jinen, T Kikuchi, M Watanabe, M Asada, Jpn. J. Appl. Phys. Part 1 Regul. Pap. Brief Commun. Rev. Pap., 45, 3656-3658 (2006)
58, C Gmachl, HM Ng, SNG Chu, AY Cho, Appl. Phys. Lett., 77, 3722-3724 (2000)
59, L Nevou, FH Julien, R Colombelli, E Guillot, E Monroy, Electron. Lett., 42, 1308-1309 (2006)
60, G Strasser, S Gianordoli, L Hvozdara, W Schrenk, K Unterrainer, E Gornik, Appl. Phys. Lett., 75, 1345-1347 (1999)
61, S Gianordoli, W Schrenk, L Hvozdara, N Finger, K Unterrainer, G Strasser, E Gornik, IEEE Photonics Technol. Lett., 12, 1144-1146 (2000)
62, S Anders, W Schrenk, E Gornik, G Strasser, Appl. Phys. Lett., 80, 1864-1866 (2002)
63, J Faist, M Beck, T Aellen, E Gini, Appl. Phys. Lett., 78, 147-149 (2001)
64, C Pflugl, W Schrenk, S Anders, G Strasser, C Becker, C Sirtori, Y Bonetti, A Muller, Appl. Phys. Lett., 83, 4698-4700 (2003)
65, A Tredicucci, F Capasso, C Gmachl, DL Sivco, AL Hutchinson, AY Cho, J Faist, G Scamarcio, Appl. Phys. Lett., 72, 2388-2390 (1998)

66, NS Wingreen, CA Stafford, IEEE J. Quantum Electron., 33, 1170-1173 (1997)
67, D Hofstetter, J Faist, M Beck, U Oesterle, Appl. Phys. Lett., 75, 3769-3771 (1999)
68, W Schrenk, N Finger, S Gianordoli, L Hvozdara, G Strasser, E Gornik, Appl. Phys. Lett., 77, 2086-2088 (2000)
69, C Pflugl, M Austerer, W Schrenk, S Golka, G Strasser, RP Green, LR Wilson, JW Cockburn, AB Krysa, JS Roberts, Appl. Phys. Lett., 86 211102 (2005)
70, JA Fan, MA Belkin, F Capasso, S Khanna, M Lachab, AG Davies, EH Linfield, Opt. Express, 14, 11672-11680 (2006)
71, CL Walker, CD Farmer, CR Stanley, CN Ironside, IEE Proc. Optoelectron., 151, 502-507 (2004)
72, S Hofling, J Heinrich, H Hofmann, M Kamp, JP Reithmaier, A Forchel, J Seufert, Appl. Phys. Lett., , 89 191113 (2006)
73, K Srinivasan, O Painter, R Colombelli, C Gmachl, DM Tennant, AM Sergent, DL Sivco, AY Cho, M Troccoli, F Capasso, Appl. Phys. Lett., 84, 4164-4166 (2004)
74, R Colombelli, K Srinivasan, M Troccoli, O Painter, C Gmachl, DM Tennant, AM Sergent, DL Sivco, AY Cho, F Capasso, Nanotechnology, 15, 675-681 (2004)
75, DM Tennant, R Colombelli, K Srinivasan, M Troccoli, O Painter, C Gmachi, F Capasso, AM Sergent, DL Sivco, AY Cho, J. Vac. Sci. Technol. B, 21, 2907-2911 (2003)
76, R Colombelli, Laser Focus World, 39, 11-11 (2003)
77, H Page, C Becker, A Robertson, G Glastre, V Ortiz, C Sirtori, Appl. Phys. Lett., 78, 3529-3531 (2001)
78, JC SLATER, 76:1592-1601, 76, 1592-1601 (1949)
79, BENDANIE.DJ, DUKE, CB, 152:683-&, 152, 683-& (1966)
80, G BASTARD, Phys. Rev. B, 24, 5693-5697 (1981)
81, C JUANG, KJ KUHN, RB DARLING, Phys. Rev. B, 41, 12047-12053 (1990)
82, DF NELSON, RC MILLER, DA KLEINMAN, Phys. Rev. B, 35, 7770-7773 (1987)
83, BW KIM, EM CHARLSON, J. Appl. Phys., 76, 1334-1336 (1994)
84, T ANDO, J. Phys. Soc. Jpn., 54, 2671-2675 (1985)
85, H SAKAKI, T NODA, K HIRAKAWA, M TANAKA, T MATSUSUE, Appl. Phys. Lett., 51, 1934-1936 (1987)
86, KL Campman, H Schmidt, A Imamoglu, AC Gossard, Appl. Phys. Lett., 69, 2554-2556 (1996)
87, U Penner, H Rucker, IN Yassievich, Semicond. Sci. Technol., 13, 709-713 (1998)
88, T Unuma, M Yoshita, T Noda, H Sakaki, H Akiyama, J. Appl. Phys., 93, 1586-1597 (2003)
89, A Leuliet, A Vasanelli, A Wade, G Fedorov, D Smirnov, G Bastard, C Sirtori, Phys. Rev. B, , 73 085311 (2006)
90, R FERREIRA, G BASTARD, Phys. Rev. B, 40, 1074-1086 (1989)

91, PJ PRICE, Ann. Phys., 133, 217-239 (1981)
92, J Faist, F Cappaso, C Sirtori, D L Sivco, A Y Cho, Academic Press, SEMICONDUCTORS AND SEMIMETALS, 66,CHAPTER1 (2000)
93, T Herrle, S Haneder, W Wegscheider, Phys. Rev. B, 73 205328 (2006)
94, 小長井誠, 半導体超格子入門, 3-2-6,78 (1987)
95, J FAIST, F CAPASSO, DL SIVCO, L HUTCHINSON, C SIRTORI, SNG CHU, AY CHO, Appl. Phys. Lett., 65, 2901-2903 (1994)
96, QK Yang, AZ Li, J. Phys. Condes. Matter, 12, 1907-1914 (2000)
97, D Indjin, P Harrison, RW Kelsall, Z Ikonic, Appl. Phys. Lett., 81, 400-402 (2002)
98, K Donovan, P Harrison, RW Kelsall, J. Appl. Phys., 89, 3084-3090 (2001)
99, A Mircetic, D Indjin, Z Ikonic, P Harrison, V Milanovic, RW Kelsall, J. Appl. Phys., , 97 084506 (2005)
100, VD Jovanovic, S Hofling, D Indjin, N Vukmirovic, Z Ikonic, P Harrison, JP Reithmaier, A Forchel, J. Appl. Phys., , 99 103106 (2006)
101, L Schrottke, M Giehler, R Hey, HT Grahn, J. Appl. Phys., , 100 053102 (2006)
102, KJ Vahala, Nature, 424, 839-846 (2003)
103, EM PURCELL, 69:681-681, 69, 681-681 (1946)
104, M Imada, A Chutinan, S Noda, M Mochizuki, Phys. Rev. B, 65 195306 (2002)
105, O Painter, RK Lee, A Scherer, A Yariv, JD O'Brien, PD Dapkus, I Kim, Science, 284, 1819-1821 (1999)
106, HG Park, SH Kim, SH Kwon, YG Ju, JK Yang, JH Baek, SB Kim, YH Lee, Science, 305, 1444-1447 (2004)
107, S Takayama, H Kitagawa, Y Tanaka, T Asano, S Noda, Appl. Phys. Lett., , 87 061107 (2005)
108, 山本喜久、渡部仁貴共著, 量子光学の基礎, 5,, , 145 (1994)
109, Yariv Amnon, 光エレクトロニクス 展開編 原書5版, 13,, , 619 (2000)
110, M PLIHAL, AA MARADUDIN, Phys. Rev. B, 44, 8565-8571 (1991)
111, M TANAKA, H SAKAKI, J YOSHINO, Jpn. J. Appl. Phys. Part 2 Lett., 25, L155-L158 (1986)

本研究に関する発表

[国内学会]

1. 若山雄貴、鹿熊秀雄、熊谷直人、岩本敏、荒川泰彦　“GaAs/AlGaAs 量子カスケードレーザの作製とその特性評価”　第 67 回応用物理学会学術講演会　滋賀　（2006）
2. 若山雄貴、Tandaechanurat Aniwat、熊谷直人、石田悟己、岩本敏、荒川泰彦　“フォトニック結晶を有する量子カスケード発光素子～素子構造の設計と作製～”　第 54 回応用物理学関係連合講演会　神奈川　（2007）　[発表予定]

謝辞

本研究を進めるにあたり、指導教官である荒川泰彦教授には多くのご指導、ご鞭撻を賜りました。先生のご指導なくしては本論文の完成はありえませんでした。ここに深く感謝申し上げます。

岩本敏講師には研究に関するご指導はもちろん、研究生活全般に対し貴重なご指導ご助言をいただきました。

北村特任助教授にはプロセス、測定などの実験から、輪講、修士論文作成まで修士課程生活全般にわたり、中岡特任講師には研究の進め方などについて多くのご助言をいただきました。

西岡政雄助手には研究生活の進め方から X 線解析装置に使い方まで、石田悟巳助手にはフォトニック結晶に関するプロセスに関して、斎藤敏夫助手には理論計算に関して多くにご指導をいただいました。

関根徳彦元平川研究室助手（現情報通信研究機構）には、量子カスケードレーザに関するプロセス、測定、理論など様々なことをご教授いただきました。鹿熊氏にはプロセスや装置の使用方法に関し、熱心にご指導いただきました。

熊谷直人特任助手、渡邊克之特任助手には結晶成長から、生活全般に関し、有田宗貴氏には装置の使い方やプロセス方法をご指導いただきました。

荒川研究室の青木画奈特任助手、永原靖治特任助手、野村政宏特任助手、加古敏博士、Denis Guimard 博士、David Redfern 博士、羅鍾浩博士、行武哲太郎氏、Christian Kindel 氏、LimPeng Huei 氏、Aniwat Tandaechanurat 氏、川野武志氏、Mohan Rajesh 氏、太田泰友氏、都木広之氏、元荒川研究室の楊涛博士、Chiang Ooh Tang 氏、佐藤智彦氏、李寧女史、その他事務補佐員の方々、ナノエレクトロニクス連携研究センター、ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構の企業研究員の方々には大変お世話になりました。

そして最後に、同期として共に切磋琢磨しながら研究に励んだ、李大一氏、李ヘリン女史、平川研究室の酒瀬川洋平氏、永渕誠之氏、榊研究室の山附太香史氏、高橋研究室の瀧原昌輝氏、平本研究室の清水健氏、高山聖宗氏に感謝します。特に李大一氏の当時、世界最高性能の有機トランジスタ作製という輝かしい成果は筆者に大いに刺激を与えてくれました。氏らに感謝するとともに、今後の益々の活躍に期待します。

2007 年 2 月 2 日

東京大学大学院工学系研究科電子工学専攻
荒川研究室

若山雄貴