

令和 3 年度 防衛装備庁  
安全保障技術研究推進制度

# 研究成果報告書

## フォトニック結晶による高ビーム品質 中赤外量子カスケードレーザの開発

令和 4 年 5 月

国立研究開発法人 物質・材料研究機構

本報告書は、防衛装備庁の安全保障技術研究推進制度による委託業務として、国立研究開発法人 物質・材料研究機構が実施した令和3年度「フォトニック結晶による高ビーム品質中赤外量子カスケードレーザの開発」の成果を取りまとめたものです。

## 目 次

1. 委託業務の目的	1
2. 研究開始時に設定した研究目標の達成度	1
3. 委託業務における研究の方法及び成果	3
3.1 中赤外フォトニック結晶のモード設計と製造技術	3
3.1.1 フォトニック結晶のモード設計	3
3.1.1.1 分散関係と Q 値の高精度計算	3
3.1.1.2 レーザ光取出し効率の見積りと設計	5
3.1.1.3 角度分解反射スペクトルの高精度計算	6
3.1.1.4 SOI 上 PC 試料の角度分解反射スペクトル	9
3.1.1.5 面発光レーザ発振に最適な PC 構造の設計	11
3.1.1.6 (別紙 2 別冊に記載)	14
3.1.1.7 (別紙 2 別冊に記載)	14
3.1.1.8 (別紙 2 別冊に記載)	14
3.1.1.9 モード特性の温度変化の解析	15
3.1.1.10 遠方場の偏光依存性による共振モードの同定	18
3.1.2 PC 面発光 QCL の試作と評価	21
3.1.2.1 電子線リソグラフィによる PC 部製作	21
3.1.2.2 高分解能角度分解反射率測定装置の製作	23
3.1.2.3 角度分解反射スペクトル測定による PC 部作製精度の検証	24
3.1.2.4 SOI 上 2 次元 PC の製作	29
3.1.2.5 SOI 上 2 次元正方格子 PC の角度分解反射スペクトル	32
3.1.2.6 SOI 上 2 次元 3 角格子 PC の角度分解反射スペクトル	34
3.1.2.7 (別紙 2 別冊に記載)	36
3.2 QCL 素子の高温安定動作に向けた熱解析・放熱構造の作製技術	37
3.2.1 熱伝導の定量的な可視化	38
3.2.1.1 熱伝導定量化のための測定法検討	38
(1) Dynamic 法と Static 法	38
(2) Static 法測定装置 T3Ster の導入	41
(3) 温度係数の測定	41
(4) Static 法による熱抵抗測定	42
(5) 各部位の熱抵抗切り分け	43
(6) Dynamic 法による測定	44
(7) Static 法と Dynamic 法の比較	45
3.2.1.2 熱伝導の定量による構造検討 (端面発光型 QCL)	47
(1) 構造・埋め込み材質による熱抵抗	47
(2) サブマウントの検討	50
3.2.1.3 面発光型素子への測定及び構造検討の適用	51
(1) 面発光型 QCL の測定手法の検討	51
(2) Au 埋込みと InP 埋込みの熱抵抗比較	53
(3) 構造関数の測定	55
(4) Static 法と Dynamic 法の比較	55
(5) 面発光型素子での熱抵抗切り分け	56
3.2.2 熱解析モデルの構築	58
3.2.2.1 3D 熱解析シミュレーション	58
(1) 端面発光型 QCL の熱解析シミュレーションモデルの構築	58
(2) 端面発光型 QCL の解析結果	59
(3) 面発光型 QCL のモデリング	62
(4) 面発光型 QCL の計算モデル	63

(5) Au 埋込み面発光型 QCL の 3D 熱解析	64
(6) InP 埋込みの面発光型 QCL 素子の 3D 熱解析	65
3.2.2.2 非平衡グリーン関数法による高効率活性層の設計	67
(1) 非平衡グリーン関数法による計算精度の検証	67
(2) 非平衡グリーン関数法による計算方法	74
(3) 非平衡グリーン関数によるゲイン向上	76
(4) (別紙 2 別冊に記載)	82
(5) (別紙 2 別冊に記載)	82
(6) (別紙 2 別冊に記載)	82
(7) (別紙 2 別冊に記載)	82
(8) (別紙 2 別冊に記載)	82
(9) (別紙 2 別冊に記載)	82
3.2.3 解析モデルを活用した放熱性の改善	83
3.2.3.1 QCL 素子の熱解析と QCL 等価回路	83
(1) QCL 素子の熱解析	83
(2) QCL 発熱源の等価回路モデル	83
3.2.3.2 QCL 素子実装方式とサブマウントの解析 (端面発光型 QCL)	85
(1) 評価項目	85
(2) 基板厚 (リッジ埋め込み無し)	86
(3) リッジ埋め込み	87
(4) エピタキシャル層による冷却効果	87
(5) サブマウントの影響	88
3.2.3.3 量子井戸シミュレータによるゲイン向上の検証	89
(1) 発光層の障壁の膜厚とゲイン	90
(2) 素子の試作と EL 強度	92
3.2.3.4 ダイヤモンドサブマウントの効果	93
(1) QCL の構造と温度測定	93
(2) 3D シミュレーションによる熱解析	95
(3) 等価回路による解析	97
3.2.3.5 面発光 QCL の熱抵抗低減	98
(1) 3D シミュレーションモデル	98
(2) シミュレーション結果	98
(3) ダイヤモンドサブマウント素子の試作	99
(4) 構造関数の測定	100
(5) レーザ出力の向上	100
3.3 QCL 素子の高出力化と高効率化技術	103
3.3.1 QCL 設計と結晶成長	105
3.3.1.1 QCL の発光層設計	105
(1) QCL の量子井戸設計手法の検討	105
(2) ナノ構造における散乱過程の計算	106
(3) QCL の新規量子井戸構造の設計と結晶成長	107
(4) 新規量子井戸構造の検討 設計パラメータ取得	111
3.3.1.2 MBE 成膜装置による QCL 素子の試作	115
(1) RHEED による結晶成長その場観察	115
(2) 原子レベルの評価・観察と成長条件の最適化	117
(3) 量子井戸構造全体の定量評価	120
(4) (別紙 2 別冊に記載)	121
(5) (別紙 2 別冊に記載)	121
(6) (別紙 2 別冊に記載)	121
(7) (別紙 2 別冊に記載)	121

(8) (別紙 2 別冊に記載)	121
(9) (別紙 2 別冊に記載)	121
(10) (別紙 2 別冊に記載)	121
(11) (別紙 2 別冊に記載)	121
(12) (別紙 2 別冊に記載)	121
(13) (別紙 2 別冊に記載)	121
(14) (別紙 2 別冊に記載)	121
(15) (別紙 2 別冊に記載)	121
(16) (別紙 2 別冊に記載)	121
(17) (別紙 2 別冊に記載)	121
(18) (別紙 2 別冊に記載)	121
<b>3.3.2 QCL 素子作製プロセス</b>	122
3.3.2.1 QCL 素子作製プロセス開発	122
(1) InP 深堀エッチングのプロセス検討	122
(2) ハイメサリッジ上でのフォトリソ条件の策定	123
(3) InP 系材料の深堀エッチング条件の策定	124
(4) 高性能 QCL 実現のためのレーザ露光機導入	125
3.3.2.2 埋込型デバイス構造の作製手法検討	126
(1) 端面発光 QCL での埋め込み構造と放熱性比較検討	127
(2) 端面発光 QCL の評価と設計へのフィードバック	129
(3) 面発光 QCL 試作のためのウエハの作製	130
(4) PC 面発光 QCL での埋め込み材料・構造とモジュールの検討	132
(5) PC 埋め込みにおける素子性能への影響検討	135
(6) 電磁場解析シミュレータによる埋め込み構造の検証	137
3.3.2.3 QCL 素子評価	139
(1) QCL 素子評価系の構築	139
(2) 端面発光 QCL の光出力特性	141
(3) 端面発光 QCL の発振モード測定と解析	143
(4) 端面発光型 QCL 素子の評価	145
(5) 高出力評価	149
(6) 実装条件の検討および評価	151
(7) 素子の動作安定性と信頼性検討	153
3.3.2.4 QCL 素子の熱特性検討と評価	157
(1) QCL の発熱とリッジ構造の放熱性	157
(2) Au 埋め込み、Cu 埋め込み検討	158
(3) InP 埋め込み検討	159
(4) 高空間分解能なサーモピュア温度計による温度分布の評価	160
(5) 高放熱構造の評価	162
(6) 面発光 QCL 実現に向けた PC 構造の埋め込み技術	169
<b>3.3.3 PC 構造と QCL による面発光素子技術</b>	172
3.3.3.1 PC 面発光 QCL のための PC 構造設計	172
(1) 電磁場解析シミュレータによる評価用 PC 構造の設計	172
(2) PC 構造のモード結合理論による検討	175
(3) 電磁シミュレーションによる光取り出し効率見積もり	180
3.3.3.2 評価用端面発光型 QCL と PC 構造との連結構造	182
(1) 端面発光型 QCL と PC 構造との連結構造の試作	182
(2) PC 構造との連結構造評価用 PC の構造と評価結果	185
(3) PC を分離し光導波路で連結する構造素子の高出力化と評価	187
3.3.3.3 PC 面発光素子	191
(1) PC 面発光素子 作製技術検討	191

(2) PC 面発光 QCL 素子のレーザ発振評価	198
(3) 低熱抵抗膜による特性向上検討	201
(4) PC 面発光素子の高出力化と評価	203
(5) 素子面積拡大に向けた作製技術検討	208
(6) (別紙 2 別冊に記載)	209
(7) (別紙 2 別冊に記載)	209
(8) (別紙 2 別冊に記載)	209
(9) (別紙 2 別冊に記載)	209
3. 4 プロジェクトの総合的推進	210
4. 委託業務全体の成果	213
4. 1 計画時に想定していなかった成果(副次的成果)や目標を超える成果	213
(1) 高分解能角度分解反射スペクトル測定装置の開発	213
(2) 偏光測定と $k \cdot p$ 摂動計算によるレーザ発振モードの同定	213
(3) SOI 基板上 PC による偏光選択則の実証	213
(4) (別紙 2 別冊に記載)	213
(5) SOI 基板上 PC による 2 重ディラックコーン分散関係の実現	213
(6) (別紙 2 別冊に記載)	215
4. 2 研究課題の発展性(間接的成果を含む)	216
(1) マルチパスミラー方式による高感度ガス分析	216
(2) (別紙 2 別冊に記載)	216
4. 3 研究成果の発表・発信に関する活動	217
(1) 表彰	217
(2) 学会等での招待講演	217
(3) 注目論文	217
(4) 注目講演	217
(5) プレス発表	217
5. プロジェクトの総合的推進	218
5. 1 研究実施体制とマネジメント	218
5. 2 経費の効率的執行	218
6. まとめ、今後の予定	219
6. 1 まとめ	219
6.1.1 中赤外フォトニック結晶のモード設計と製造技術	219
6.1.1.1 フォトニック結晶のモード設計(一部は別紙 2 別冊に記載)	219
6.1.1.2 PC 面発光 QCL の試作と評価(一部は別紙 2 別冊に記載)	220
6.1.2 QCL 素子の高温安定動作に向けた熱解析・放熱構造の作製技術	222
6.1.2.1 熱伝導の定量的な可視化	222
6.1.2.2 熱解析モデルの構築(一部は別紙 2 別冊に記載)	223
6.1.2.3 熱解析モデルを用いた放熱性の改善	223
6.1.3 QCL 素子の高出力化と高効率化技術	225
6.1.3.1 QCL の活性層の設計と QCL 素子の結晶成長	225
6.1.3.2 QCL 素子作製プロセスの検討	225
6.1.3.3 面発光型 QCL	225
6. 2 今後の予定(別紙 2 別冊に記載)	227
7. 研究発表、知的財産権等の状況	228
(1) 研究発表等の状況	228
(2) 知的財産権等の状況	228
(3) その他特記事項	229

## 1. 委託業務の目的

本委託業務では、高出力かつ高ビーム品質なレーザー光が発振可能な量子カスケードレーザー (QCL) を実現するための技術に関する基礎的研究を実施する。量子カスケードレーザーは中赤外線波長で発振するレーザーであり、波長変換を用いずに素子単体で中赤外域の波長範囲を広くカバーできる唯一の光源である。この量子カスケードレーザーの高出力化と高ビーム品質を両立して達成するため、中赤外域のレーザー光を発する QCL 構造と面発光による光射出を担うフォトニック結晶 (PC) から構成される面発光 QCL (PC 面発光 QCL) を作製し、以下の性能の達成状況を評価する。

- 1 チップで 10W 以上の高出力を実現する。(発振波長：3-5  $\mu\text{m}$  の範囲内、動作モード：連続発振)
- 10W 出力時に単一横モードで  $M^2$  が 1.5 より小さいビーム品質を実現する。(モード測定条件：連続発振時、中赤外カメラによる横モード評価。 $M^2$  計測：ISO/DIS 11146 に基づく)

## 2. 研究開始時に設定した研究目標の達成度

中赤外域のレーザー光を発する QCL 構造と面発光による光射出を担うフォトニック結晶 (PC) から構成される面発光 QCL (PC 面発光 QCL) を作製し、本委託業務開始前には、実現されていなかった面発光 QCL の発振動作を実現した。業務開始 1 年後に、スイス工科大学が波長 8  $\mu\text{m}$  の面発光 QCL の発振を報告するまで、その動作は実現されておらず、本グループは開始 3 年目に目標としていた波長 4  $\mu\text{m}$  での面発光 QCL 発振を実現できた。この波長域での面発光 QCL 実現は世界初であり、すべての波長域においても、QCL としては世界で 2 番目に面発光 QCL を実現できた。実現した面発光 QCL の特性を以下に示す。

レーザー出力： 77K、パルス駆動 (Duty 1%) で、  
単一モード発振について 60mW、マルチモード発振について 400mW を達成  
(発振波長：4  $\mu\text{m}$ 、動作モード：パルス発振)

$M^2$  値： 単一モード、1.4 を達成 (モード測定条件：パルス発振、中赤外カメラによる横モード評価、 $M^2$  計測：ISO/DIS 11146 に準拠した解析ソフトウェアによる。)

以上の結果は光出力の目標値 10W に対して、マルチモードで 400mW と低い出力である。一方、端面発光型では、波長 4  $\mu\text{m}$  で発振する基本構造にて出力 2.3W が得られている。端面発光型と面発光型では、共振器での光の閉じ込めが、面発光型の方が大きいため、同じ活性層であっても、共振器内部での光の吸収が大きくなることがシミュレーションにより判明している。この際の発光層やその周辺のドーパントが光吸収をもたらすことがわかっている。発光層にはドーパントとして Si が  $10^{16}$ - $10^{18}\text{cm}^{-3}$  あり、発光層の外側の層にも  $10^{17}\text{cm}^{-3}$  程度の Si が存在する。このドーパントは電気伝導や発光層での注入効率に関与しており、安易にドーパントの濃度を低減することはできない。適正化は従来の LED や LD の場合、光と電気伝導を統合したシミュレータが存在するため、計算で行うことが可能である。一方 QCL は市販のシミュレータがないため、それぞれの結果を組み合わせる、もしくは実験により確認する必要がある。当グループでは、光学的なシミュレーションに加え、試作により確認を行った。その適正化の途中で、理想的なドーパント濃度を定める前に、本研究の期間が終了となったため、確認ができていない。計算によると光閉じ込めの最適化と合わせて 1 桁程度の光出力の向上が期待できる。

さらにドーパントの影響は InP 基板に存在する S による吸収も無視できない。InP 基板には S が  $3 \times 10^{18}\text{cm}^{-3}$  以上含まれており、この吸収を低減するためには、InP 基板中の S 濃度を低減する必要がある。基板の厚さは 600  $\mu\text{m}$  程度もあるため、この施策は動作電圧上昇をもたらすことより、安易には実行できない。そこで本グループは、InP 基板上に低ドーピング濃度の InP 層を成長し、その吸収を低減する策を試みている。現在のところ適正化ができていないため効果の定量的な評価できていないが、効果が期待できる。

さらにその前述の基本発光層の構造に比較して、効率 2 倍が得られる新規な構造の発光層を端面発光型 QCL で確認できている。この構造を搭載した端面発光型 QCL は換算値で量子効率 30 パーセント

ントの特性が得られている。この構造を面発光型に搭載するために試作を行ったが、結晶成長装置の故障により、面発光型向けのウエハが得られる前で研究期間が終了したため、その効果を面発光型で確認できていない。

加えて、InP基板の吸収はこの波長域においても大きく、基板の厚みを減らして基板透過時のレーザー光の吸収を抑えること、出射面でのフレネル反射の低減で、現状に比べて2~3倍の高出力が見込まれる。

以上、構成する各損失として、①光閉じ込めが高いことと活性層でのドーパントによる光吸収の相乗効果（90%以上を損失）、②InP基板におけるドーパントによる光吸収と光取り出しにおける基板表面でのフレネル反射（70%以上）、③発光層の上下に放出されたレーザー光が出射側とその反対側で電極により反射され、出射側に戻ってきた際の位相ずれ（見積未定）が想定されている。よってこれらの改善効果は、①光閉じ込めの最適化とドーパント濃度低減（1桁）、②InP基板の吸収低減、基板の薄膜化、フレネル反射の低減（2-3倍）、③活性層と反射電極との距離の最適化（数倍）さらに④新規発光層の構造の適用（2倍）が想定できる。以上の技術は、研究期間内では実施できていない。

さらに放熱性向上の施策が必要であるが、素子面積拡大による高出力はパルス駆動で使用する用途においては、現状標準の500 $\mu$ m角素子を1.5mm角とすることで9倍の出力向上をもたらす。この技術は、面積拡大に伴う電力上昇、それに伴う発熱増加を放熱性向上により、素子温度の上昇を抑える策が必要であることは自明であり、本グループでは熱抵抗の小さいダイヤモンド実装への適用などの策を得ている。現状、他の制限要因も存在していることがわかっているが、その原因が判明していない。先行する波長1 $\mu$ mのレーザーダイオード（LD）によるPCを用いた面発光型LDいわゆるPC-SELでは、3mm角の素子による大面積化により150Wを超える出力が実現でき、大面積化の効果が確認されている。QCLにおいても同様な取り組みを行うことで、高出力化が達成できるものとする。

研究開始時に設定した研究目標の達成度に対して、数値目標が未達な点があったものの技術的な課題を克服して、今後の性能向上を期待できる成果が得られた。



### 3. 委託業務における研究の方法及び成果

#### 3. 1 中赤外フォトニック結晶のモード設計と製造技術（担当：物質・材料研究機構）

##### はじめに

フォトニック結晶（PC）共振器を用いた面発光型の量子カスケードレーザ（QCL）を実現するために当たって、本委託研究の開始当初、以下のような研究課題が重要と考え、順次解決を図った。

- ①高出力時の素子の温度上昇に伴う、PC部の熱歪みによる共振周波数と出射角度の変動防止、
- ②高出力化を目指した、大面積PC-QCL作製技術の開発、
- ③レーザ光取出し効率の最適化技術の開発。

また、これらの研究課題を解決する上で、

- ④電子線リソグラフィによる高精度なPC加工と電子顕微鏡等による作製精度の検証、
  - ⑤ナノインプリントリソグラフィによる大面積PCの作製、
  - ⑥角度分解反射スペクトル測定によるモード分散評価、
- が必要であり、これらの諸課題を解決することで、

- ⑦レーザビーム品質  $M^2 \leq 1.5$  を実現し、

- ⑧面発光量子カスケードレーザ向けのPCの設計及び作製プロセスを確立する計画であった。

PC-QCLの素子作製は多数の要素プロセスを経て行われるため、すべてのプロセスの開発完了を待ってPC部の評価を始めたのでは、研究の効率が悪い。そこで、5年間の研究期間の内、当初の3年間は、SOI（silicon-on-insulator）基板上のPCをモデル系としてPCの設計、製作、評価技術を開発し、後半の2年間でPC-QCLの製作と評価に応用する方針で研究を進めた。このため、本研究項目の中間目標として、「SOI基板上に作製したPCに外部からレーザ光を入射し、面発光のビーム品質  $M^2 \leq 1.5$  の実現を確認」を掲げた。しかし、PC-QCL作製の各要素技術が想定よりも早くに完成し、研究の中心がPC-QCL素子の作製と特性向上に移ったこと、および、SOI基板上PCへの外部レーザ光の導入効率が悪く、その改善に思いがけず長期間を要したことから、本来の目標であるPC-QCL素子の作製と特性向上に努力を集中することとした。このため、上記の中間目標は未達であるが、最終目標である「単一横モードで $M^2$ が1.5より小さいビーム品質を実現」についてはレーザ出力が目標値に及ばなかったものの、後述のように目標としたビーム品質が達成できた。また、PCからの放射光の理論解析を行い、 $M^2$ 値のPCサイズ依存性やレーザ光強度の面内分布に対する依存性を算出することで、 $M^2 \leq 1.5$  の実現に必要なPCの特性を明らかにした。

角度分解反射スペクトル測定によるモード分散の評価について、当初計画では、市販の反射率測定用アタッチメントをFT-IR（フーリエ変換赤外分光光度計）に取り付けて測定する予定であった。しかし、実際に行ってみたところ、PC共振器の鋭い反射ピークを測定するには、角度分解能が全く不足していることが判明した。そこで、測定装置を自作してFT-IRの試料室に装着し、角度分解能 $0.3^\circ$  を実現した。この高分解能測定装置はPCの特性評価で威力を発揮し、PCの作製精度の検証やモード分散の測定に加えて、SOI基板上PCによるディラックコーン形成や偏光選択則の実証等、当初計画では想定していなかった成果も得られた。

##### 3.1.1 フォトニック結晶のモード設計

###### 3.1.1.1 分散関係とQ値の高精度計算

まず、最初に、フォトニック結晶（PC）共振器による面発光型の量子カスケードレーザ（QCL）の設計の要点について述べる。次頁の図3.1.1(a)は2次元正方格子PCの分散関係の一例で、図の縦軸は光速 $c$ とPCの格子定数 $a$ で無次元化した周波数、横軸は正方格子ブリルアンゾーンの波数である（図3.1.1(b)参照）。青の矢印で指し示した点では分散曲線が水平、したがって、群速度  $v_g = \partial\omega/\partial k$  がゼロであるが、これは電磁モードが定在波であって共振器として働くことを意味する。したがって、そのようなモードの周波数とQCLの発光層である多重量子井戸（MQW）の利得スペクトル（赤の棒線）が重なった場合にレーザ発振が起こり得る。そこで、 $\Gamma$ 点（ $k=0$ ）で利得スペクトルが重なるようにPCを設計することで共振器モードの面内波数がゼロになり、MQW層に垂直な方向へレーザ光の放出が実現できる。

さて、PCの分散関係の計算法として、FDTD法（時間領域差分法）、FDFD法（周波数領域差分法）、平面波展開法、球面波展開法、結合モード理論など多数の方法が知られているが、本研究では任意の3次元構造に適用でき、計算精度が高く、しかも、計算の安定性にも優れた有限要素法を採用した。具体的には市販ソフト、COMSOL Multiphysicsとその下位ソフトである波動光学モジュールを用いた。

PC共振器を実装した量子カスケードレーザ（PC-QCL）素子に関する分散関係の計算例を図3.1.1(c)に示す。図の縦軸は電磁モードの周波数（単位は $\text{cm}^{-1}$ ）、横軸はブリルアンゾーン中の波数である。PCの格子定数は約 $1.4\mu\text{m}$ である。この素子に用いたPCはInGaAs円柱の正方格子なので、そのブリルアンゾーンは図3.1.1(b)の通りであり、分散関係は $\Gamma$ 点からM点へ向かう方向、および、 $\Gamma$ 点からX点へ向かう方向について算出した。図3.1.1(c)でM/50等の記号は横軸が50倍に拡大されて、 $\Gamma$ 点近傍だけが図示されていることを示す。

正方格子PCはQCLの活性層であるMQWに隣接して、その上面に作製された擬2次元構造(PCスラブ)である。これが純粋な2次元構造の場合、電磁モードはTM (transverse magnetic) 波とTE (transverse electric) 波に厳密に区分できるが、PCスラブの場合でも比較的low周波数領域ではTMあるいはTE的な偏光特性を示すので、図3.1.1(c)では前者を青色、後者を赤色で示した。QCLの活性層であるMQWからのサブバンド間遷移はTM偏光なので、PCの電磁モードの内、TM的なモードだけが重要である。上述のように、 $\Gamma$ 点で利得スペクトルが重なるようにPCを設計することでMQW層に垂直な方向へレーザ光の放出が実現できる。

有限要素法による分散関係の計算では、PCの単位構造の表面にはブロッホ型の境界条件を課し、MQW層から上下に十分に離れた領域に完全吸収境界条件を課した。この結果、算出される電磁モードの固有周波数は一般に複素数であり、図3.1.1(c)ではその実部をプロットした。また、固有周波数の実部と虚部の比から共振のQ値が算出できるが、後述のようにQ値はレーザ発振の閾値やレーザ光の取出し効率を決める重要な因子である。

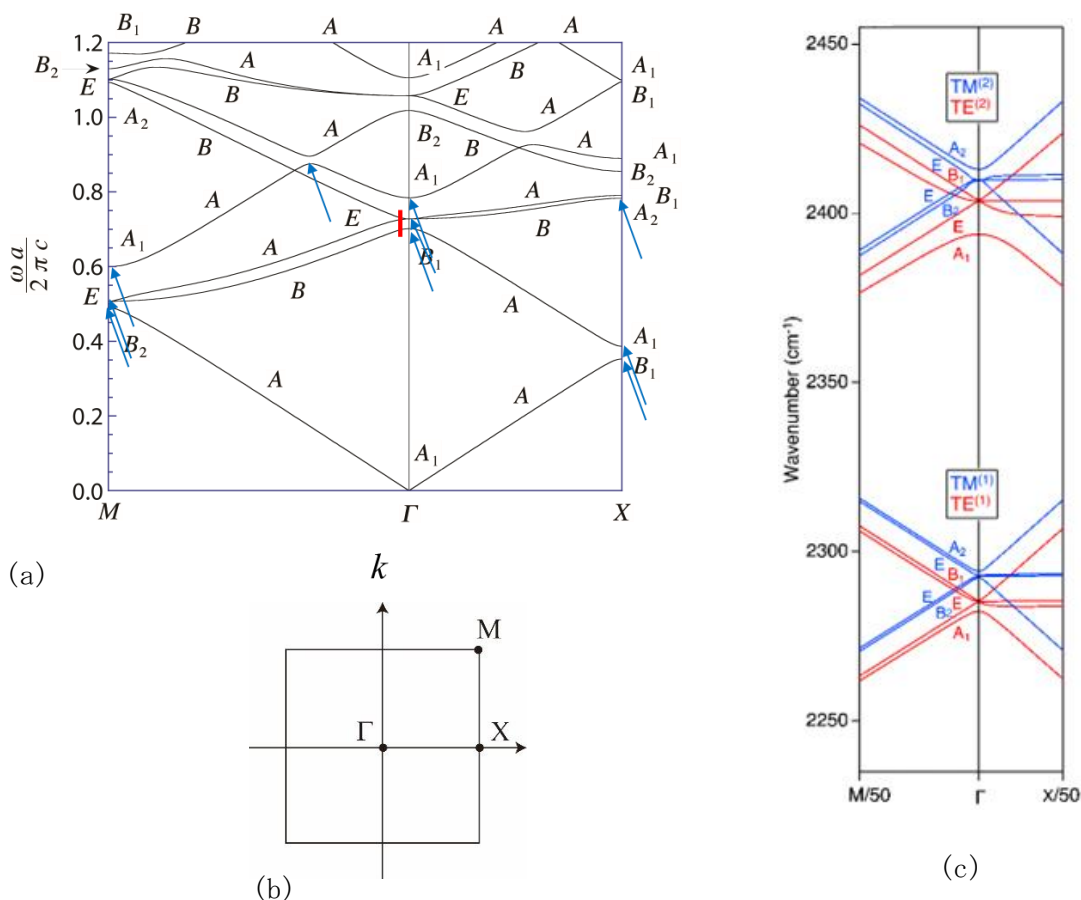


図 3.1.1 (a) 面発光 PC レーザの原理、(b) 正方格子 PC のブリルアンゾーン、(c) 面発光型 QCL のための 2 次元 PC スラブの分散関係の計算例。

### 3.1.1.2 レーザ光取出し効率の見積りと設計

図 3.1.2(a)に PC-QCL の模式図を示す。レーザ発振の定常状態では、光学利得 ( $G$ ) と全損失 ( $\gamma$ ) とが釣り合う。損失の内訳として、素子上方 ( $\gamma_t$ )、下方 ( $\gamma_b$ )、および、側面 ( $\gamma_s$ ) への散逸レート、ならびに、素子内部での再吸収レート ( $\gamma_a$ ) までを考慮する。レーザ光は基板面に垂直な方向に放射されるので、単位時間に外部に取り出される光エネルギーの割合は  $\gamma_t + \gamma_b$  である。したがって、光取出し効率を EE (extraction efficiency) と記すと

$$EE = \frac{\gamma_t + \gamma_b}{G} = \frac{\gamma_t + \gamma_b}{\gamma_t + \gamma_b + \gamma_s + \gamma_a} \quad (3.1.1)$$

である。レーザ共振器として働く電磁モードでは面内の群速度  $v_g = \partial\omega/\partial k$  がゼロであり、 $\gamma_s$  は理想的にはゼロなのでこれを無視する。また、素子の上面は電流注入用の金属電極で覆われており、これがミラーとして働くので、実質的に  $\gamma_t = 0$  である。全損失  $G$  は固有周波数の虚数部の 2 倍なので、有限要素法によるモード計算で算出できる。したがって、例えば、 $\gamma_a$  を独立に計算することができれば EE が算出できる。このために、モード計算で求めた電界分布と素子内の複素屈折率分布を用いて、ジュール損を計算することで  $\gamma_a$  を算出した。

PC のユニットセルが図 3.1.2(b)のような 5 角柱の場合について、EE を計算した結果の一例を図 3.1.2(c)に示す。この図の EE は  $\Gamma$  点上の最低次の 4 つの TM-like モードの平均値である。構造パラメータのうち、 $c_1$  と  $c_2$  を調節することで EE の設計が可能である (参考文献 3.1.1)。

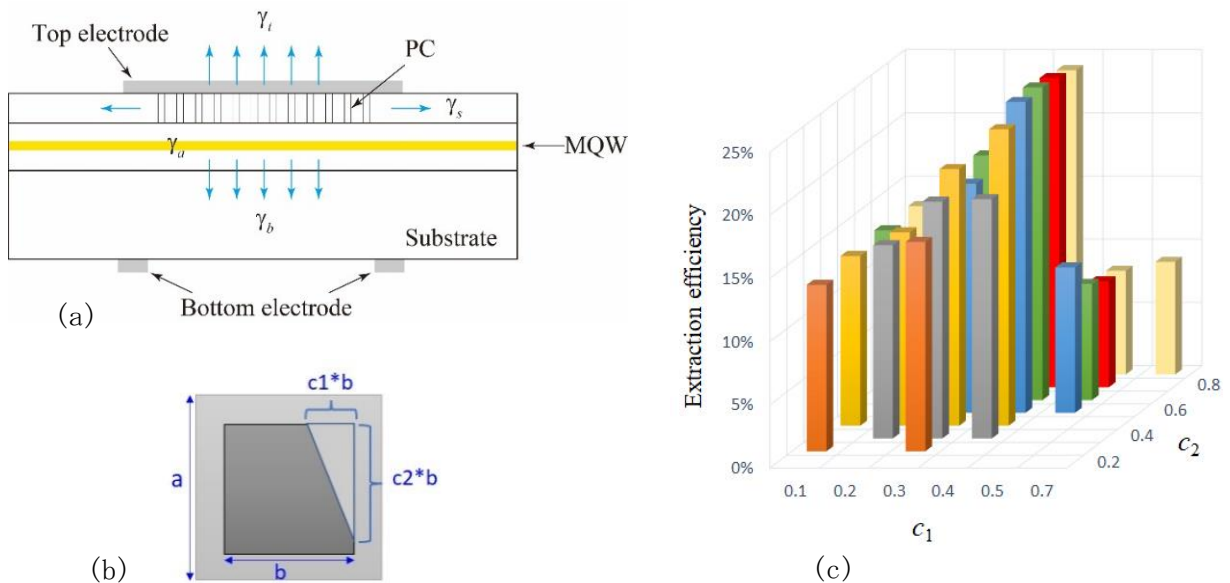


図 3.1.2 (a) PC-QCL からの光放射と再吸収。黄色はレーザ活性層、上部の周期構造は 2 次元 PC を表す。4 つの  $\gamma$  は減衰率。 $\gamma_t$ : 素子上部への光放射、 $\gamma_b$ : 素子下部への光放射、 $\gamma_s$ : 素子側面への光放射、 $\gamma_a$ : 活性層による再吸収。(b) PC ユニットセルの断面図。(c) 光取出し効率 (EE) の  $c_1$ ,  $c_2$  依存性。

### 3.1.1.3 角度分解反射スペクトルの高精度計算

PC-QCL 試料の反射スペクトルについては、2019 年度成果報告書で計算方法と垂直入射の場合の反射スペクトルを報告した。また、実測した反射スペクトルのピークと計算で求めたモード周波数が良く一致すること、したがって、反射スペクトルが試料作製精度のたいへん良い指標になることを報告した。しかし、その後の検討で、ドーピングレベルが高い半導体層の屈折率の虚部が PC モードの Q 値を低下させることや、これに伴って反射ピークのスペクトル幅がかなり広がること等が分かってきた。そこで、いっそう精密な反射スペクトルの解析が必要になったことから、実測データとの比較をさらに厳密に行うことを目的として、複素屈折率を用いた場合や垂直入射以外の場合についても反射スペクトルを計算で算出し、電磁モードの分散関係や固有モードの対称性、実測データとの比較などを行った。

まず、2019 年度にレーザ発振を報告した PC-QCL 試料について、垂直入射の反射スペクトルの計算結果を図 3.1.3 に示す。PC-QCL 試料の分散関係や反射スペクトルは当初、すべての半導体層に実数屈折率を仮定して算出した。電磁モードの固有周波数については、この取扱いで実用上十分な計算精度が得られたが、減衰率（固有周波数の虚部）、したがって、Q 値は不正確であった。そこで、各層のドーピング量から推定した複素屈折率を用いた計算も行った。

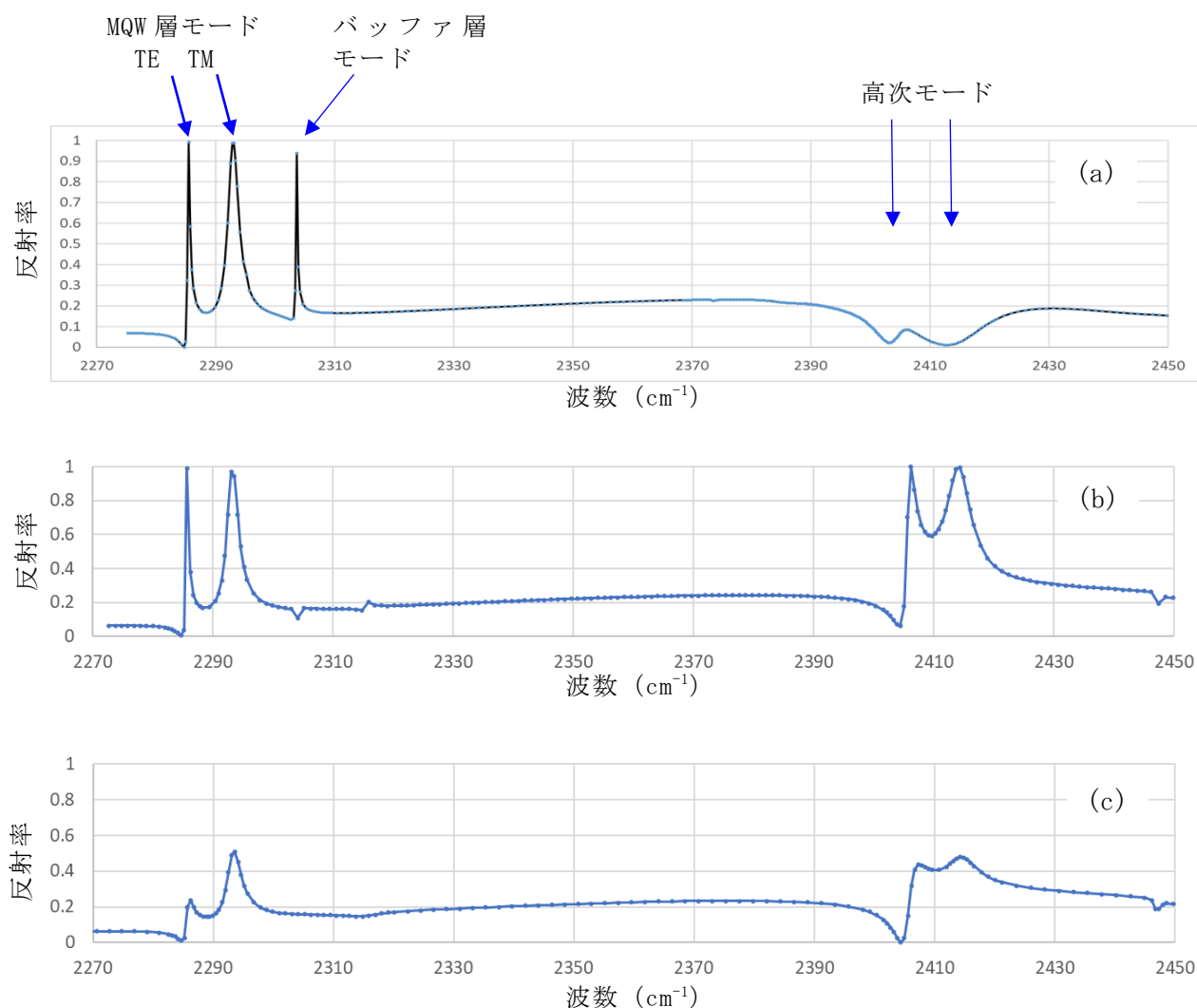


図 3.1.3 InP で PC 層を埋め戻す前の PC-QCL の反射スペクトル。(a) 実数屈折率を用いた場合、(b) 実数屈折率を用い、かつ、InP 基板の屈折率を 3% 小さく設定した場合、(c) 複素屈折率を用い、かつ、InP 基板の屈折率を 3% 小さく設定した場合。

まず、図 3.1.3(a)は実数屈折率を用いた当初の計算である。レーザ発振に寄与する MQW 層モードに加えて、InGaAs バッファ層に局在するバッファ層モード、さらに、それらの高次モードからの反射ピークが観測される。しかし、実測データではバッファ層モードのピークが観測されず、逆に MQW 層の高次モードは強く観測された。種々検討を行った結果、これらの不一致はいずれも、当初の計算で仮定した屈折率の不正確さに起因することが分かった。

まず、高次モードについてであるが、当初の計算で仮定した InP 基板の屈折率は非ドープ試料の値であった。これに対して、調達した市販の InP 基板は不純物ドープされており、これに伴って屈折率の虚部だけでなく、実部も影響を受ける。最大で 5%程度の屈折率の減少が見込まれるので、これを考慮して InP 基板の屈折率を 3%小さく仮定した計算が図 3.1.3(b)であり、(a)と比べて高次モードのピークが大きい。この原因は、高次モードの固有周波数と InP 基板の屈折率で決まるライトラインの周波数（平板型導波路の全反射条件を満たす振動数の限界値）の大小の差である。実は、PC 構造の無い様な試料では、高次モードの固有周波数がライトラインのごく近くにあるので、InP 基板の屈折率のわずかな違いによって両者の大小関係が逆になる。高次モードの固有周波数がライトライン周波数よりも大きい場合には光が導波路に閉じ込められないので、Q 値が極端に小さくなる。この状況が図 3.1.3(a)であり、かろうじてライトラインの周波数よりも小さい場合が図 3.1.3(b)である。なお、図 3.1.3(b)でバッファ層モードのピークが消失しているのは、計算時間の関係でデータ点数が少なく、バッファ層モードの鋭いピークが再現できていないためであり、実際には鋭いピークが存在する。

次に、図 3.1.3(c)に複素屈折率を用いた計算結果を示す。光吸収による Q 値の減少により、全般に反射ピークが小さくなる。特に、InGaAs バッファ層は比較的高ドープされていて、屈折率の虚部が大きいことから Q 値の低下が大きく、このためバッファ層モードの反射ピークは判別できない程度まで小さくなる。これらの特徴は実測データとよく一致した。

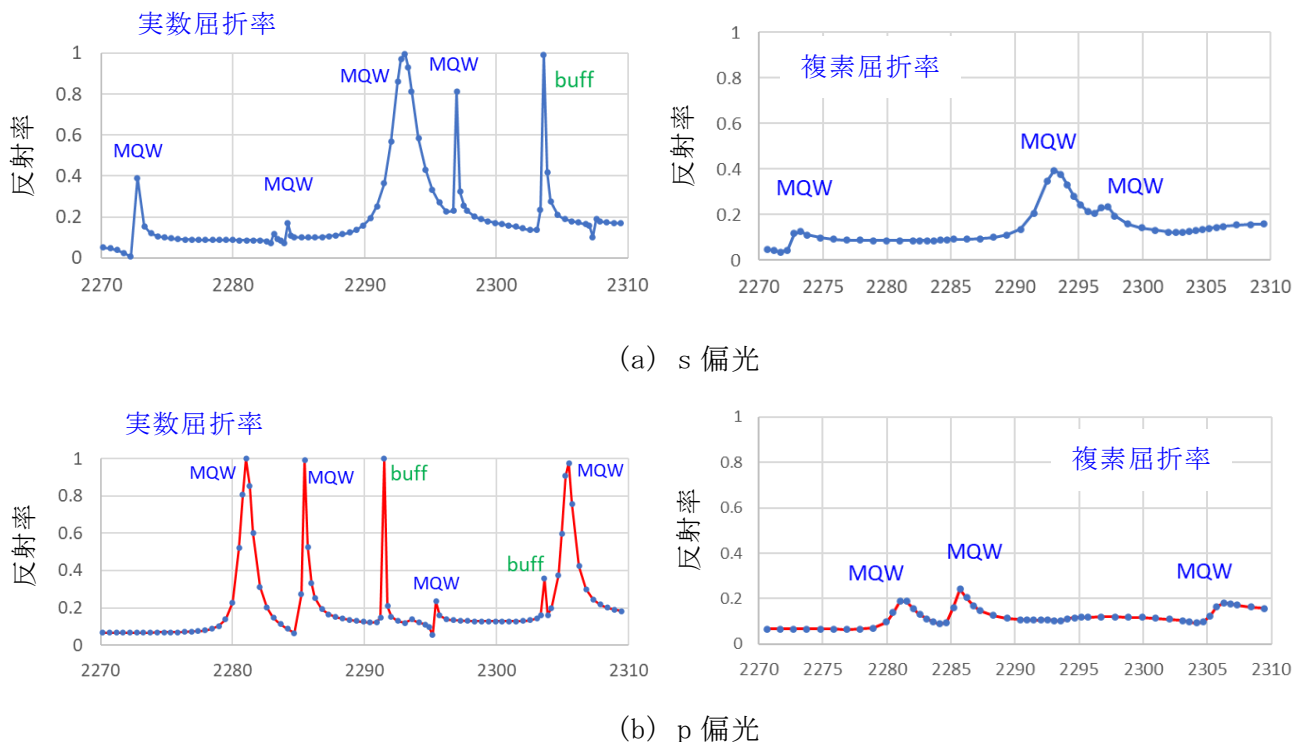


図 3.1.4 InP で PC 層を埋め戻す前の PC-QCL#6 について、入射角を  $\Gamma$ -X 方向に 1 度傾けた場合の反射スペクトル。(a) s 偏光、(b) p 偏光。それぞれの偏光について、実数屈折率を用いた計算（左）と複素屈折率を用いた計算（右）を示した。

表 3.1.1 正方格子 PC の反射ピークの偏光選択則。

モードの対称性	$\Gamma$ 点	(1, 0) 方向	(1, 1) 方向
$A_1$	非活性	s	s
$A_2$	非活性	p	p
$B_1$	非活性	s	p
$B_2$	非活性	p	s
E	活性	s, p	s, p

さらに、偏光選択則を用いてモードの対称性の同定を行うために、入射角を $\Gamma$ -X方向、すなわち、(1, 0)方向に1度傾けた場合のスペクトルを算出した。図3.1.4で(a)は入射光の電場が入射面に垂直 (s偏光) の場合、(b)は平行 (p偏光) の場合の計算結果である。それぞれについて、実数屈折率と複素屈折率を用いた計算結果を示した。計算はレーザ発振に関係する $2290\text{cm}^{-1}$ 付近について行った。まず、垂直入射の場合 (図3.1.3) と比べて、反射ピークの数が増えることが分かる。これは、垂直入射の場合はE対称なモードだけが入射光に活性であるのに対して、斜入射の場合はすべてのモードが活性であることに依る。

群論から導かれる偏光選択則 (表3.1.1) を用いると、それぞれの反射ピークに対応する固有モードの対称性が同定できる。例えば、波数が $2273\text{ cm}^{-1}$ のMQW層モードはs偏光に活性でp偏光に不活性であることから、 $A_1$ または $B_1$ 対称な電磁モードであることが分かる。さらに、(1, 1)方向に入射光を傾けた場合にも同様の判定を行えば、モードの対称性を完全に特定できる。実際の試料についてそのような測定を行い、モードの対称性を同定することができた。これと分散関係の計算結果を比較することでPC試料の作製精度が正確に検証できた。

### 3.1.1.4 SOI上PC試料の角度分解反射スペクトル

PC-QCL 試料の作製には、PC 部のみならず数百層に及ぶ半導体層の作製も必要であることから、PC 部の特性や作製精度の検討を PC-QCL 試料のみで行うことは効率的でない。そこで、本研究では当初から、SOI (silicon-on-insulator) ウェハ上に PC を作製して、加工精度や特性の検証、角度分解反射スペクトル測定装置の開発、有限要素法による解析手法の検証などを行ってきた。2020 年度には 3 角格子 PC について反射スペクトルの算出と偏光選択則を導出し、実測データと比較して良い一致を得た。本項では主に理論解析について記し、実験検証については項目 3.1.2.6 で述べる。

まず、図 3.1.5 に作製した 3 角格子 PC の光学写真と SEM 像を示す。PC の単位格子は、トップ Si 層に形成した深さ ( $d$ ) が 240 nm の円柱形の空気孔であり、その半径 ( $r$ ) は 500~620 nm まで 30 nm 間隔で 5 種類作製した。理論解析はこれら 5 種の試料について行った。図 3.1.6 は角度分解反射スペクトル測定の実験配置で、挿入図は 3 角格子 PC の第 1 ブリルアンゾーンである。垂直方向からの入射光の傾き角を  $\theta$ 、 $x$  軸から測った方位角を  $\phi$  と記す。

表 3.1.2 には群論で導いた偏光選択則を示す。垂直入射 ( $\theta = 0^\circ$ ) の場合、 $E_1$  モードだけが入射光に活性である。他のモードは斜入射の光に活性であるが、さらに s 偏光および p 偏光に関する活性を調べることで、モードの対称性を完全に同定することができる。

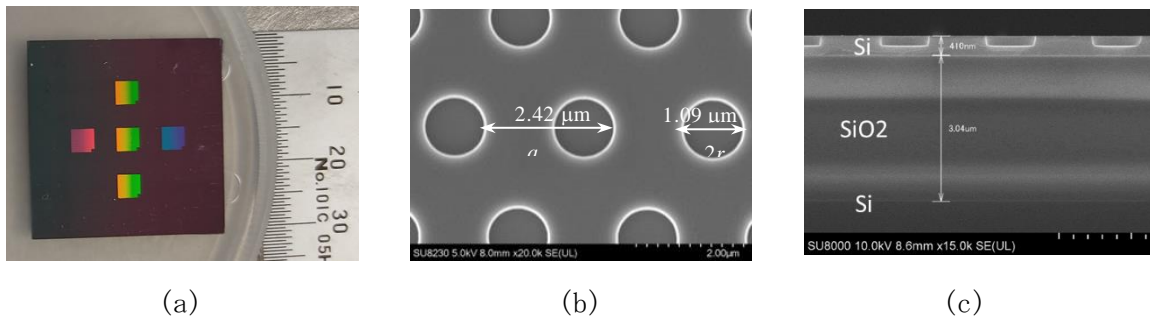


図 3.1.5 (a) SOI ウェハ上に作製した 5 つの 3 角格子 PC の写真。空孔半径 560 nm の PC の (b) 上面、および、(c) 側面 (断面) からの SEM 像。トップ Si 層と  $\text{SiO}_2$  層の厚みはそれぞれ、400 nm と 3  $\mu\text{m}$  である。

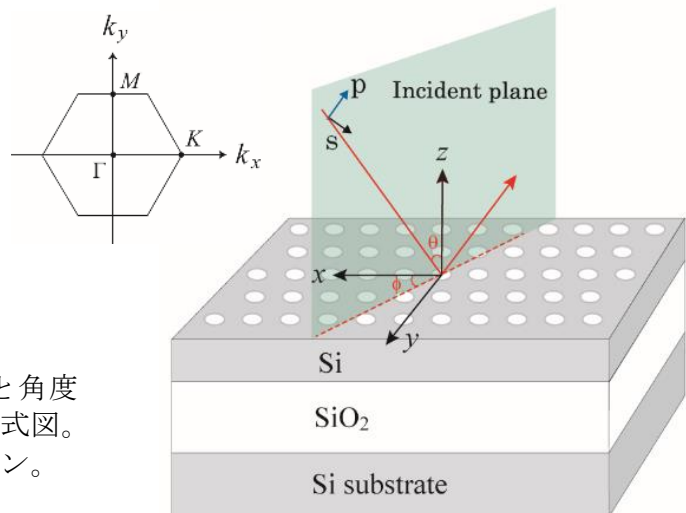


図 3.1.6 SOI ウェハ上の 3 角格子 PC と角度分解反射スペクトル測定の実験配置の模式図。挿入図は 3 角格子の第 1 ブリルアンゾーン。

表 3.1.2 三角格子 PC の反射ピークの選択則。

モードの対称性	$\Gamma$ 点 ( $\theta = 0^\circ$ )	$\Gamma$ -K 方向 ( $\phi = 0^\circ$ )	$\Gamma$ -M 方向 ( $\phi = 90^\circ$ )
$A_1$	非活性	s	s
$A_2$	非活性	p	p
$B_1$	非活性	s	p
$B_2$	非活性	p	s
$E_1$	活性	s, p	s, p
$E_2$	非活性	s, p	s, p

反射スペクトルの計算例を図3.1.7に示す。(a)～(d)は方位角 $\phi$ を $\Gamma$ -K方向と $\Gamma$ -M方向、入射光の偏光をsとpのそれぞれ2通りに変えて計算したものである。入射角 $\theta$ が0度の場合に $E_1$ モードだけが活性であるのに対して、 $\theta \neq 0$ の場合にはその他のモードも活性になり、反射ピークの分裂やシフトが観測される。これらの詳細と実験による測定データとの比較については、項目3.1.2.6で述べる。

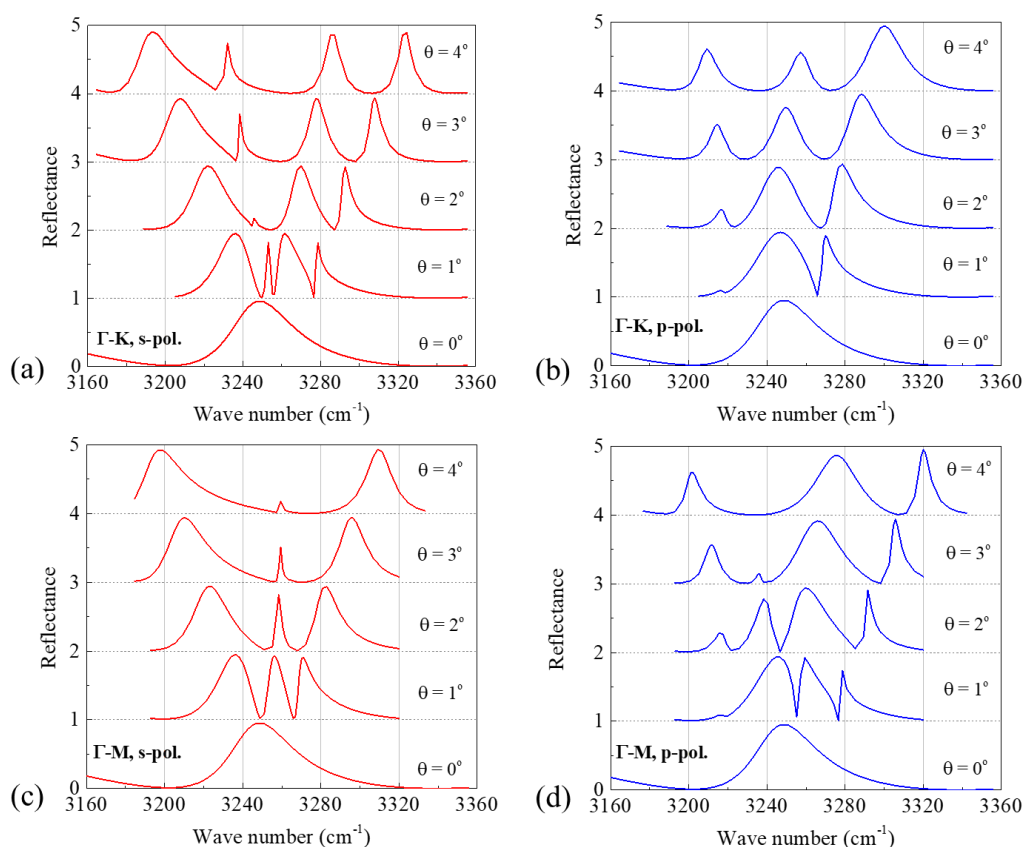


図 3.1.7 有限要素法で算出した角度分解反射スペクトル。r = 560 nm、d = 240 nm。



### 3.1.1.5 面発光レーザ発振に最適なPC構造の設計

2019年度までに、主として円柱ピラーを単位構造とするPCの設計手法を確立した。当初、円柱ピラーをPC-QCLの単位構造に採用したのは、角度分解反射スペクトルによるPCの作製精度の検証において、円柱ピラーの高い対称性のために選択則が働き、反射スペクトル測定によるモードの同定が容易であったためである。しかし、例えば円柱ピラーから成る正方格子PCの場合、レーザ発振が期待される $\Gamma$ 点の電磁モードは、E、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $B_1$ 、 $B_2$ の5つの対称性に区分されるが、対称性の整合の条件からE対称なモードだけがPC表面から垂直方向にレーザ光放射が可能である。他の4つのモードはQ値が高くレーザ発振に有利である反面、垂直方向には放射できない。2019年度成果報告書で述べたように、すでに円柱ピラーPCを用いてレーザ発振が達成できたことから、2020年度はすべてのモードが垂直方向に放射可能な対称性の低い構造を中心に検討した。その際、特に、レーザ光取出し効率の向上を目指してPC設計を行った。具体的には、3角形ピラーと5角形ピラーについて試料設計を行い、PC-QCLを製作して評価した。QCL部を構成する半導体多重量子井戸(MQW)等の詳細については、3.3章を参照していただきたい。

まず、3角形ピラーについて計算対象とした代表的な試料構造を図3.1.8示す。光吸収によるレーザ発振効率の低下を防ぐために、半導体層についてはできるだけドーピングレベルの低い構造を想定した。また、電流注入用電極についても、Ti層の膜厚をできるだけ小さくして吸収を低減するよう設計した。

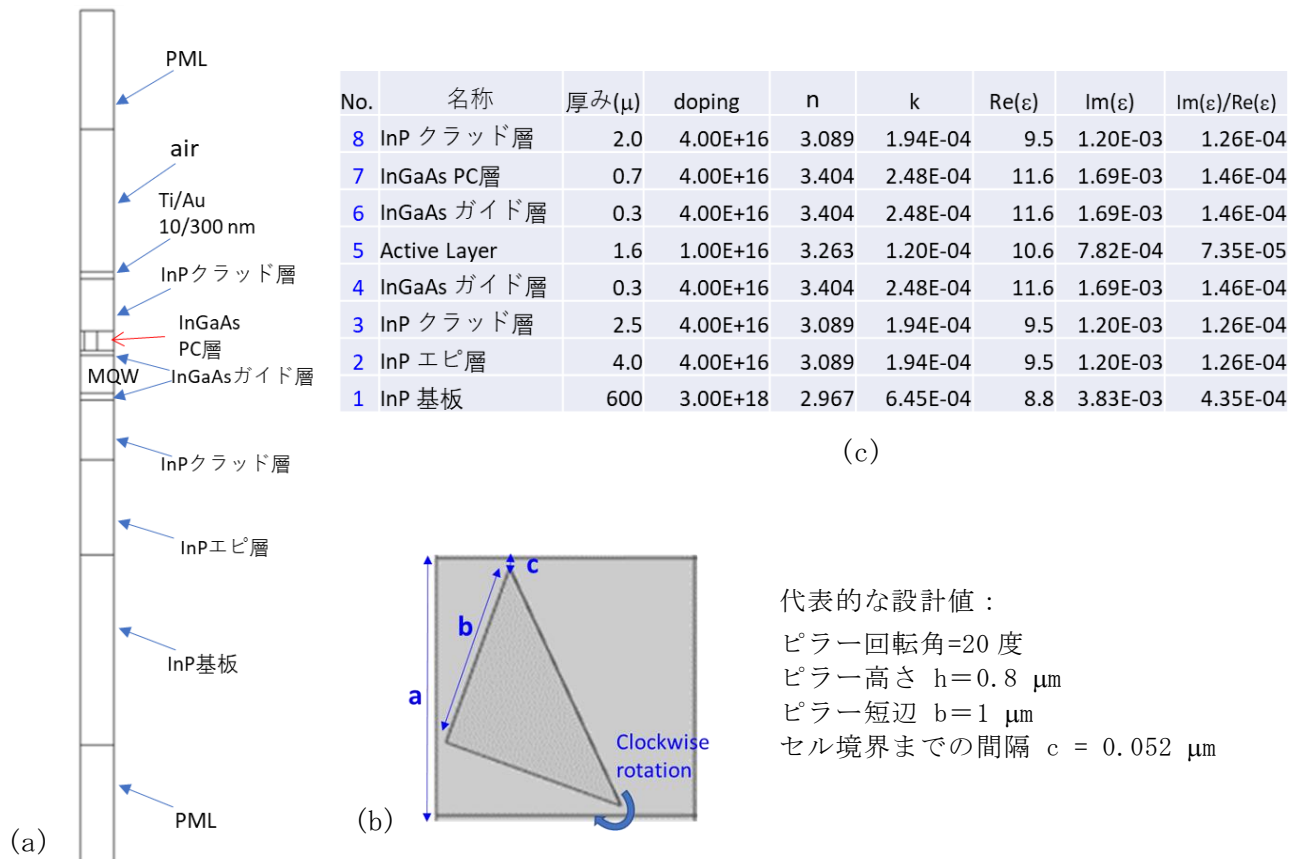


図 3.1.8 3角形ピラーPC-QCLの(a)ユニットセルと(b)PC部の断面構造、および、(c)各層の特性値。

表 3.1.3 レーザ光取出し効率（放射損比率）の3角形ピラー高さ依存性。

h( $\mu$ )	周波数 Re(f)	Q	総損失 [W]	底面からの放射損 [W]	放射損 比率	総吸収損 比率	Au層	Ti層	クラッド層	PC層	MQW層	ガイド層	InP層
0.8	6.67E+13	9732	9.65E-03	2.96E-04	0.030063	0.969	0.035	0.013	0.122	0.047	0.470	0.184	0.098
0.9	6.68E+13	9743	9.60E-03	2.38E-04	0.024384	0.974	0.043	0.016	0.122	0.049	0.475	0.154	0.114
1.0	6.69E+13	9678	9.48E-03	1.91E-04	0.01958	0.979	0.054	0.020	0.122	0.053	0.473	0.131	0.129

計算結果を表 3.1.3 に示す。ここではピラー高さ  $h$  が 0.8、0.9、1.0  $\mu\text{m}$  の3種類の PC を設けた場合について、放射損と各層の吸収損を算出して一覧表にした。特に重要なのはモードの Q 値と放射損比率で、後者はレーザー光の取出し効率でもある。まず、Q 値であるが、ドーピングレベルが比較的低いことからモードの Q 値は 9700 程度で、レーザー発振には十分に大きな値が達成できる。各層の吸収損を見ると MQW 層の吸収損が最も大きく、吸収損全体の 47% を占めている。吸収損は発振閾値や発熱、エネルギー変換効率、レーザー光取出し効率に直結する要因なので、いっそうの低減が重要な研究課題である。次に、放射損比率、すなわち、レーザー光取出し効率を見ると 2~3% 程度と未だ不十分な値である。この要因の一つは上述の大きな吸収損であるが、これに加えて PC 部の回折効率の低さも大きく影響している。

そこで、PC 部の回折効率の改善のために 5 角形ピラー構造を検討した。改善の要点はピラーの充填率、すなわち、ユニットセル断面積に対するピラー断面積の比率である。検討を行ったピラーの断面形状を図 3.1.9(a) に示す。この計算では、 $c_1$  と  $c_2$  の値を変化させて放射損比率 (= レーザー光取出し効率) が最大となる構造を求めた。その際、回折効率を大きくするために、ピラーの充填率が 50% になるように  $b$  の値を調節した。その結果、図 3.1.9(b) に示すように、 $c_1 = 0.4$ 、 $c_2 = 0.8$  のときに放射損比率の最大値 24.5% が得られ、3 角形ピラーの値 (2~3%) に比べて大きな改善である。

なお、正方格子 PC の場合、 $\Gamma$  点には 4 つのモードが組になって現れる。上記の値はそれら 4 モードの平均値である。個々のモードについて特性の一覧を表 3.1.4 に示す。QCL のサブバンド間遷移と強く結合する 4 つの TM-like モードで、Q 値が 4000~9800、放射損比率が 1.5% (TM4 モード) ~57% (TM3 モード) に分布することが分かる。現実の試料作製でこれらの特性が忠実に達成できた場合、レーザー発振は最も Q 値が高く、放射損の少ない TM4 モードで生じると期待される。この限りにおいては、レーザー光取出し効率の増大は望めないのであるが、この問題は次のようにして解決できる。

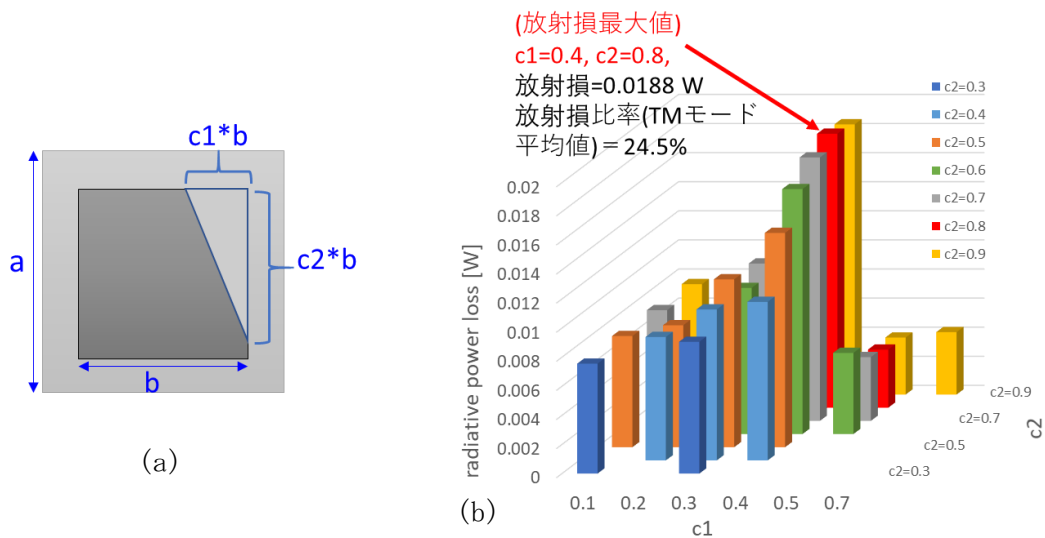


図 3.1.9 (a) 5 角形ピラーの形状と、(b) 放射損比率の形状依存性。

表 3.1.4 5 角形ピラーPC のモード特性。

五角形 $c_1=0.4, c_2=0.8$						
	放射損P[W]	放射損比率	吸収損比率	Q値	f [Hz]	波長 [μ]
TM1	0.002473	0.1867	0.810856	7198	6.62E+13	4.5278
TM2	0.002574	0.2071	0.790357	7400	6.64E+13	4.5128
TM3	0.013644	0.5698	0.426003	4052	6.65E+13	4.5112
TM4	0.000143	0.0152	0.983641	9803	6.66E+13	4.4983

それには、PC の構造を正方格子から長方格子へ対称性を下げればよい。正方格子の場合でもピラー形状を変化させることで、4 つのモードの Q 値を相対的に調節することは可能である。しかし、1 つのモードで Q 値を小さくすると他のモードの Q 値が大きくなるといった、シーソーのような現象が起こるため、4 つのモードの Q 値を平均して小さくすることは難しい。これに対して長方格子の場合には 4 つではなく、2 つのモードが組になって現れるので、たとえシーソー現象が起こったとしても、構造を調節することで 2 つのモードの Q 値をほぼ等しくして、レーザー光取出し効率を最大化することが可能である。

さて、図 3.1.9 の計算結果に基づいて 5 角形ピラーを用いた PC-QCL を設計、試作した (PC-QCL#9)。図 3.1.10 に設計データを示す。ピラー形状は図 3.1.9 の計算で求めた最適値を用いた。MQW 層の利得スペクトルの中心波長である  $4.44 \mu\text{m}$  を目標値とし、試料作製の誤差を考慮して格子定数を  $5 \text{ nm}$  刻みで変化させた 16 種類とした。この試料でレーザー発振が観測された。これら 16 種類の試料のうち、TM-like モードの波長が利得スペクトルのピーク波長に近いと推測される複数の試料で、発振スペクトルは単一ピークで、かつ、放射ビームは単峰の垂直放射であり、スペクトル・ビーム形状ともに良好な特性を示した。

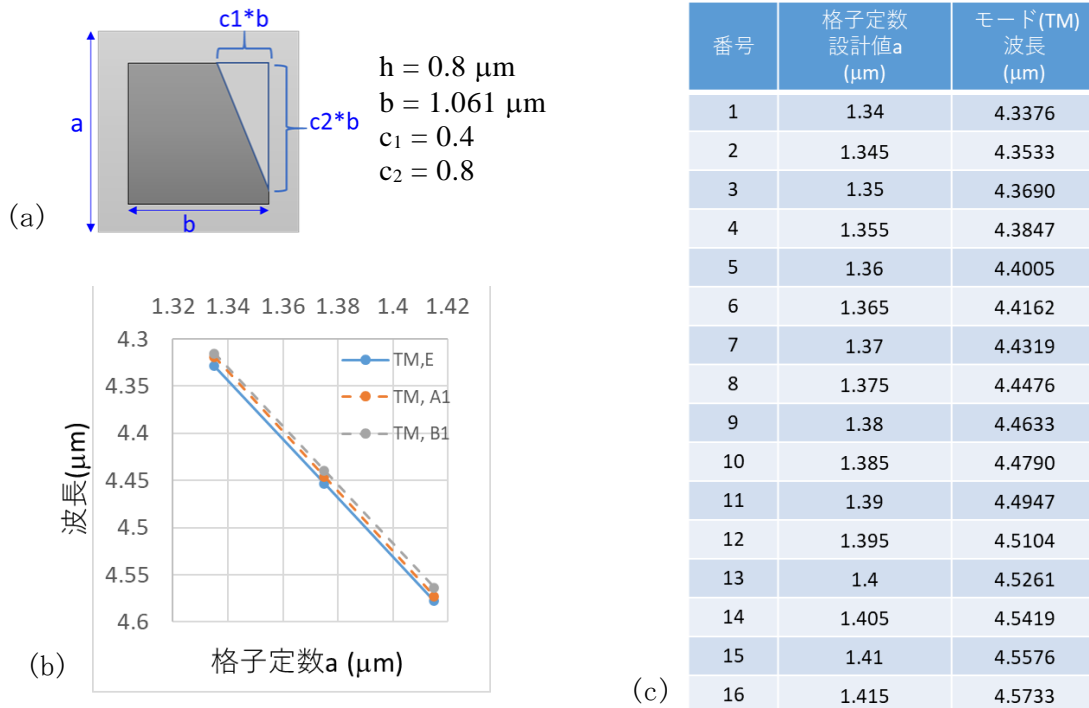


図 3.1.10 PC-QCL#9 の試料設計。(a) 5 角形ピラーの形状、(b) モード波長の格子定数依存性、(c) 試作した 16 種類の PC-QCL の格子定数の設計値と予想されるレーザー発振波長。

- 3.1.1.6 (別紙 2 別冊に記載)
- 3.1.1.7 (別紙 2 別冊に記載)
- 3.1.1.8 (別紙 2 別冊に記載)

### 3.1.1.9 モード特性の温度変化の解析

QCL（量子カスケードレーザ）は非輻射遷移の割合が比較的大きく、電気エネルギーから光エネルギーへの変換効率は最大で20%程度である。残りの投入エネルギーは熱となって放出されるので、発熱の効率的な除去が重要であるとともに、PC（フォトリソニック結晶）構造の光学特性の温度変化の低減も重要な課題であると予想された。そこで、2018年度には、まず、モデル系としてSOI（Silicon-on-insulator）上の2次元PCについて、モード周波数の温度変化を有限要素法で算出したところ、100度の温度上昇でも最大0.15%の周波数変化であった。この変化量は検討前の予想よりもかなり小さく、当初計画に記した「熱変動を相殺する素子構造」を検討するまでもなく、熱安定性が確保できる可能性が得られた。そこで、2019年度には、素子設計の方針が固まり、試作段階に入ったPC-QCLについて、現実の素子構造をモデルとして熱安定性の解析を行った。その結果、以下に示すように、100度の温度上昇でモード周波数の変化は0.57%であり、現在の素子設計で当面必要な熱安定性が確保できる見通しが得られた。

PC面発光QCL素子の単位構造（ユニットセル）を図3.1.20に示す。3.3章で詳しく報告するように、素子はInP基板上にInGaAsバッファ層などを作製した後、発光層であるMQW（多重量子井戸）層の直上に形成したInGaAs層を電子線リソでナノ加工してPC層を作製した。PC層は円柱ピラーの正方格子である。熱伝導性を改善するために、ナノ加工で切り取ったInGaAs PC層の空洞部分にInPを再成長して埋め戻した構造である。この素子構造について、熱膨張とそれに伴うモード周波数の変化を有限要素法で算出した。数値解析には、2018年度に導入したワークステーション（Dell Precision 7920）と市販の有限要素法ソフト（COMSOL）を用いた。

InP基板の厚みが他の構造の厚みよりも圧倒的に大きいので、有限要素法による解析では、まず、InP基板の熱変形だけを算出し、InP基板の寸法はこの計算結果に固定した。その上で、図3.1.20の素子構造について各材料の熱膨張係数を用いて熱変形を計算した。まず、室温から100度の温度上昇で生じる弾性歪みを図3.1.21に示す。InGaAs層とMQW層は熱膨張係数がInP基板よりも大きいので、水平方向には圧縮歪み、垂直方向には引張り歪みが生じる。2つのInP層については、基板と同じ熱膨張係数であることから、歪みはほぼゼロである。

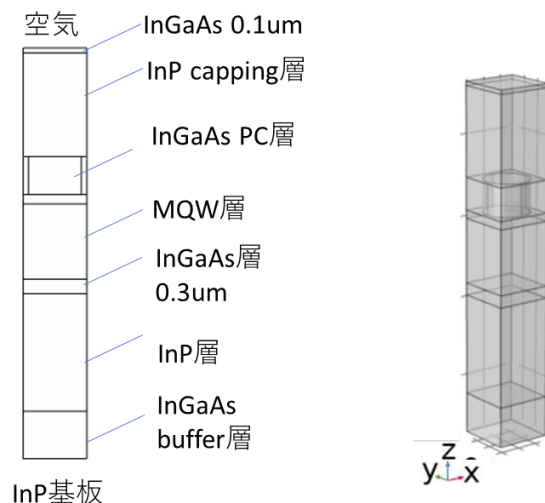


図 3.1.20 PC面発光QCLのユニットセルの(左)断面図と(右)立体図。

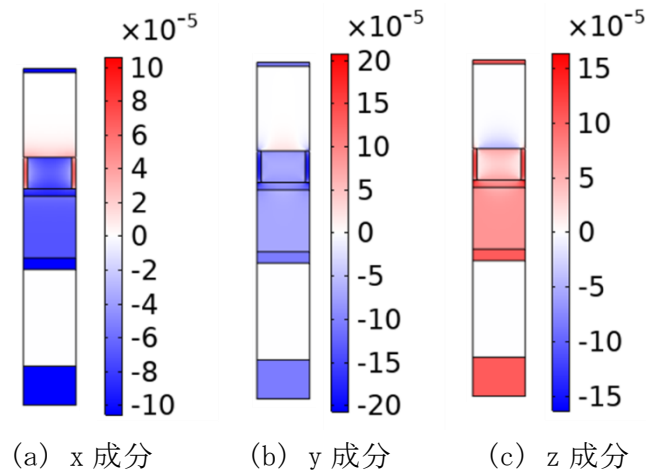


図 3.1.21 100 度の温度上昇で生じる弾性ひずみ。青色は圧縮歪み，赤色は引張り歪み。

表 3.1.5 材料の熱膨張係数。MQW は構成材料の平均値。

材料	熱膨張係数[1/K]
InP(capping層)	4.56E-6
InGaAs(PC層)	5.748E-6
MQW	5.3146E-6

熱膨張が PC の光学特性に及ぼす影響は 3 つに大別できる。(A)1 つ目は PC の格子定数の変化、(B)2 つ目は構成部材の形状変化、(C)3 つ目は構成部材の屈折率の変化である。PC のモード周波数は格子定数に反比例するので、項目(A)は常に重要である。次に、項目(B)は構成部材の熱膨張係数の差異に依存する。計算に用いた構成部材の熱膨張係数を表 3.1.5 に示す。MQW は単原子層レベルの薄膜の積層構造なので、熱膨張係数はその平均値を用いた。InP と InGaAs の熱膨張係数の差が 25%と比較的小さいことから、PC を構成する InGaAs 円柱ピラーの形状変化はごく小さいことが分かった。次ページの図 3.1.22 に示すような InGaAs ピラーの変形が予想されるが、実際の変形は図 3.1.23 に示すようにたいへん小さい。図 3.1.23 では、熱膨張を強調して図示するために、形状の変化分を 100 倍に拡大して作図してあるが、それでも変形はほとんど認められない。

最後に項目(C)であるが、表 3.1.6 に各材料の屈折率の温度係数を示す。実際の素子作製に用いた三元化合物については、表 3.1.6 の値を組成比で内挿して算出した。これらの温度係数から 100 度の温度上昇後の屈折率を求めたのが表 3.1.7 である。屈折率の変化は最大で 0.57%である。

以上の熱変形と屈折率の温度変化をもとに、PC-QCL 素子（試料番号 PC-QCL#6）のモード周波数を有限要素法で算出した。結果を次ページの表 3.1.8 に示す。この表では、出射面に垂直方向のレーザ光放射が期待される E 対称なモードについて波長と Q 値を記した。QCL の利得スペクトル近傍に TE (transverse electric) モードと TM (transverse magnetic) モードがそれぞれ 1 つ存在するが、このうち重要なのは MQW の電子遷移と結合して、レーザ発振に寄与する TM モードである。このモードについて詳しく見ると、100 度の温度上昇で、熱膨張による形状変化だけを考慮した場合の波長変化が 0.045%、屈折率の温度変化まで考慮した場合は 0.57%であることが分かった。モード周波数（波長）の温度変化は当初予想よりもかなり小さい。また、3.2 章で詳述するように、効率的な素子冷却によってレーザ発振時の温度上昇は数十度に抑えられる見込みであることから、モード周波数の温度変化はさらに小さくできる。したがって、「熱変動を相殺する素子構造」を検討するまでもなく、当面必要な熱安定性が確保できる見通しが得られた。

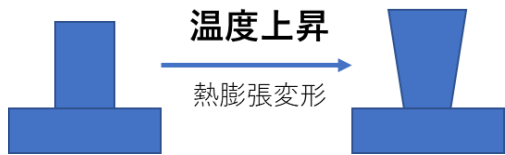


図 3. 1. 22 InGaAs ピラーの変形の模式図。

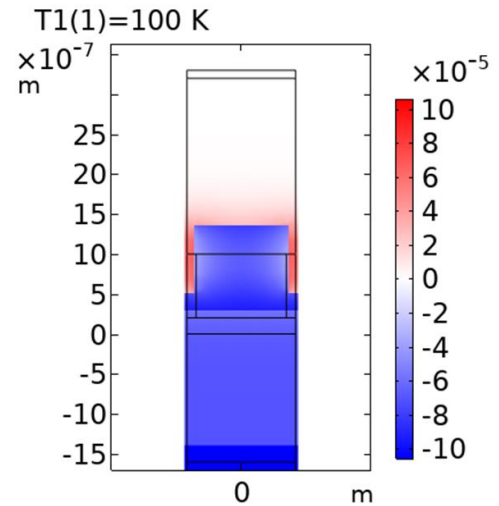


図 3. 1. 23 100 度の温度上昇に伴う InGaAs ピラー部の形状変化。変動を 100 倍に拡大して図示。

表 3. 1. 6 屈折率の温度係数。

	(dn/dT)/n [1/K]
InP	2.7E-5
GaAs	4.5E-5
AlAs	4.6E-5
InAs	6.7E-5

表 3. 1. 7 屈折率の温度変化。

	温度上昇前の屈折率	100度上昇後の屈折率
InP	3.089	3.09734
In <sub>0.532</sub> GaAs	3.336	3.3549
MQW層	3.263	3.28149

表 3. 1. 8 100 度の温度上昇によるモード波長と Q 値の変化。

	熱膨張変形無しモデル	熱膨張変形含むモデル	変形とn(T)も含むモデル
TM,Eモード 波長(um)	4.391397	4.39339 変化0.045%	4.41636 変化0.57%
TE,Eモード 波長(um)	4.389494	4.39143	4.41446
TM,Eモード Q値	75510	73452	64821
TE,Eモード Q値	8737	8801	8585

### 3.1.1.10 遠方場の偏光依存性による共振モードの同定

図 3.1.24 は、円柱および5角柱 InGaAs を単位構造とする PC 共振器を用いた PC-QCL のレーザ出力の遠方場の観測結果の一例である（参考文献 3.1.1）。円柱 PC-QCL (PC-QCL-1) では遠方場がドーナツ状であるのに対して、5角柱 PC-QCL (PC-QCL-2) では鋭い単峰である。この違いはレーザ発振に与る共振モードの特性に起因する。

図 3.1.25 はそれぞれの PC-QCL について、QCL の利得スペクトルに重なる  $\Gamma$  点の 4 つの共振モードの電磁界分布（電場の面直成分）を図示したものであるが、円柱 (PC-QCL-1) では構造の対称性を反映して、電磁界分布も高い対称性を示す。PC-QCL-1 の 4 つの共振モードの内、 $A_2$  モードと  $B_2$  モードは対称性の不整合から PC 面（したがって、レーザ光出射面）に垂直方向には放射できない。このことは回折損がゼロであることを意味するので、E モードと比べて大きな共振の Q 値が予測される。実際に有限要素法で解析すると表 3.1.9 のような特性値が得られた。この表で、Overlap factor は電場の MQW 層への集中度であり、EE (Extraction efficiency) はレーザ光の取出し効率である。予想された通り、E モードよりも  $A_2$  モードと  $B_2$  モードの Q 値が高い。とりわけ  $B_2$  モードは最も大きな Q 値と Overlap factor をもつので、このモードでレーザ発振が起こると予想された。なお、 $A_2$  モードと  $B_2$  モードについては完全に周期的な PC では面直方向への放射が生じないので、EE はゼロである。しかし、実際の PC-QCL デバイスでは PC 部の大きさが有限であり、したがって、完全には周期的でないのでわずかに放射が生じ、この結果、図 3.1.24(a) のようなドーナツ状の遠方場が観測される。この点については以下で詳述する。

さて、PC-QCL-1 の  $B_2$  モードは  $\Gamma$  点の固有モードであるが、その波数ベクトル  $\mathbf{k}$  は厳密にゼロではなく、有限な素子サイズ ( $L$  と記す) を反映して  $\Delta k = \pi/L$  だけの不定性が有る。PC-QCL-1 では  $L = 0.5 \text{ mm}$  であり、発振波長が  $4.3 \text{ }\mu\text{m}$  であることから、この不定性に対応して  $\Delta\theta = 0.25^\circ$  だけの出射角度の不定性が生じる。実際、図 3.1.24(a) でドーナツ形状のピークは  $\Delta\theta$  と概ね一致する。

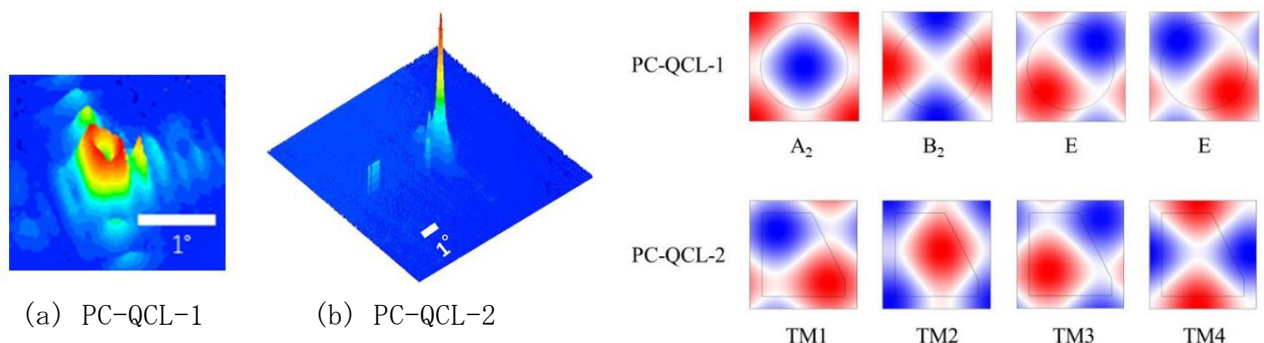


図 3.1.24 (a)円柱, および, (b)5角柱 PC-QCL のレーザ出力の遠方場。

図 3.1.25 PC-QCL-1 (円柱) と PC-QCL-2 (5角柱) の共振モードの電磁界分布 (電場の面直成分)。

表 3.1.9 共振モードの特性。

Device	Mode	Wavelength ( $\mu\text{m}$ )	Q factor	Overlap factor	EE (%)
PC-QCL-1	E	4.450	2778	0.527	6.28
	$A_2$	4.441	3072	0.602	0*
	$B_2$	4.432	3307	0.636	0*
PC-QCL-2	TM1	4.464	2718	0.524	5.31
	TM2	4.445	2904	0.586	3.70
	TM3	4.442	2787	0.600	9.44
	TM4	4.426	3445	0.657	0.22



つぎに、PC-QCL-1 でレーザ発振に与る共振モードを同定するために、遠方場の偏光依存性を 1 次の  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  摂動法で解析した。ブロッホの定理から、PC の固有モードの磁場は周期関数と指数関数の積で与えられる：

$$\mathbf{H}_{\mathbf{k}m}(\mathbf{r}) = \mathbf{v}_{\mathbf{k}m}(\mathbf{r})e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \quad (3.1.11)$$

$$\mathbf{v}_{\mathbf{k}m}(\mathbf{r} + \mathbf{a}) = \mathbf{v}_{\mathbf{k}m}(\mathbf{r}) \quad (3.1.12)$$

ここに  $\mathbf{k}$  は第 1 ブリルアンゾーン中の波数、 $m$  はモード指数、 $\mathbf{a}$  は基本格子ベクトルである。回折損を無視する近似のもとで、固有値問題はエルミート問題になるので、各  $\mathbf{k}$  について  $\mathbf{v}_{\mathbf{k}m}$  ( $m = 1, 2, 3, \dots$ ) の全体は正規完全直交系を成す。上述のように、小さな  $\mathbf{k}$  をもつ固有モードの放射特性が重要であるが、 $\mathbf{v}_{\mathbf{k}m}$  の完全性を用いると  $\mathbf{k} \neq 0$  の固有関数を  $\mathbf{k} = 0$  の固有関数の線形結合で表すことができる。 $\Gamma$  点上の  $B_2$  モードについて言えば、表 3.1.9 に示したように、ごく近くの波長に E モードと  $A_2$  モードが存在し、その他の TM-like モードはかなり波長が離れている。そこで、十分良い近似として、 $B_2$  モードに起因する  $\Gamma$  点近くの  $\mathbf{k} \neq 0$  の固有関数を、 $A_2$  モード、 $B_2$  モード、および、E モードの線形結合で表すことができる。1 次摂動では  $A_2$  モードと  $B_2$  モードが交じり合わないことが分かっているので（参考文献 3.1.2）、結局、

$$\mathbf{v}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \approx A_1 \mathbf{v}_E^{(1)}(\mathbf{r}) + A_2 \mathbf{v}_E^{(2)}(\mathbf{r}) + A_3 \mathbf{v}_{B_2}(\mathbf{r}) \quad (3.1.13)$$

と表すことができる。このとき、係数  $A_1$ 、 $A_2$ 、 $A_3$  は次の行列式を満たす：

$$\begin{pmatrix} 0, & 0, & bk_y \\ 0, & 0, & bk_x \\ b^*k_y, & b^*k_x, & \Delta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1 \\ A_2 \\ A_3 \end{pmatrix} = \Delta^{(1)} \begin{pmatrix} A_1 \\ A_2 \\ A_3 \end{pmatrix} \quad (3.1.14)$$

この式で、 $b$  は PC の構造と非摂動波動関数で決まる定数、 $\Delta^{(1)}$  は 1 次摂動での固有値の補正である。式 (3.1.14) はもともと、モードの偶然縮退によるディラックコーン分散関係の解析のために導出された（参考文献 3.1.2）。したがって、ディラックコーンの場合には  $\Delta = 0$  であるが、今の問題では光速を  $c$ 、E モードと  $B_2$  モードの角周波数をそれぞれ  $\omega_E$ 、 $\omega_{B_2}$  として、

$$\Delta = \frac{\omega_{B_2}^2 - \omega_E^2}{c^2} \quad (3.1.15)$$

である。式 (3.1.14) を解いて、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $A_3$  が求まる。他方、レーザ光の周波数が比較的 low、PC 表面では 0 次の回折光しか発生しないので、レーザからの放射光の遠方場

$$\mathbf{H}_{\mathbf{k}}^{(F)}(\mathbf{r}) = \mathbf{H}_0 e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} \quad (3.1.16)$$

の波数  $\mathbf{k}'$  の面内成分は  $\mathbf{k}$  と同じである。

$$k'_x = k_x, \quad k'_y = k_y, \quad c^2 |\mathbf{k}'|^2 = \omega_{\mathbf{k}}^2 \quad (3.1.17)$$

PC 周辺の近接場と遠方場の結合係数は

$$\xi_{\mathbf{k}} = \frac{1}{V} \int_V d\mathbf{r} \mathbf{H}_{\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{H}_{\mathbf{k}}^{(F)}(\mathbf{r}) \quad (3.1.18)$$

で与えられるが（参考文献 3.1.3）、式 (3.1.14) の解等を式 (3.1.18) に代入すると、簡単な計算の後に

$$|\xi_{\mathbf{k}}|^2 \propto \cos^2(\phi + \theta) \quad (3.1.19)$$

の比例関係があることが示される。ここに、 $\phi$  は x 軸から測った波数ベクトル  $\mathbf{k}$  の方位角、 $\theta$  は遠方場の電場の偏向方向である。

同様の計算は  $A_2$  モードについても行うことができる。 $A_2$  モードと E モードの組合せに対応する式 (3.1.14) に類似の方程式から出発して、結合係数を求めると、

$$|\xi_{\mathbf{k}}|^2 \propto \cos^2(\phi - \theta) \quad (3.1.20)$$

である。これら結果を図示すると図 3.1.26 のようである。 $B_2$  モードの遠方場の強度分布が偏光子の回転と反対方向に回転するのに対して、 $A_2$  モードは同じ方向に回転する。実測の結果、反対方向の回転が観測されたことから、表 3.1.9 に基づく当初の予想通り、レーザ発振は  $B_2$  モードで生じたことが証明できた。

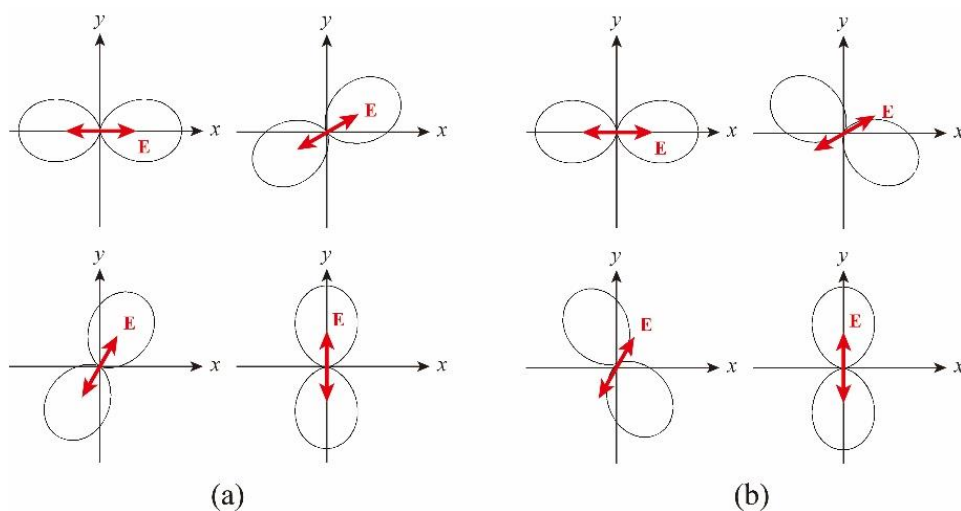


図 3.1.26 (a)  $A_2$  モードと、(b)  $B_2$  モードの遠方場の偏光依存性。赤の矢印は電場の偏向方向を表す。

### 3.1.2 PC面発光QCLの試作と評価

#### 3.1.2.1 電子線リソグラフィによるPC部製作

東芝が作製した QCL#6 の InGaAs 層をエッチングして PC 構造を作製するために、2019 年度には InGaAs 層上に SiO<sub>2</sub> のマスクを物質・材料研究機構 (NIMS) で作製した。電極形成までを含む素子化のプロセスの概要は以下の通りである。

- (1) SiO<sub>2</sub> 600nm 成膜 (NIMS)
- (2) EB 描画 (NIMS)
- (3) Ni 60nm 蒸着 (NIMS)
- (4) リフトオフ (レジストとともに不要な Ni を除去) (NIMS)
- (5) Ni をエッチングマスクにして SiO<sub>2</sub> のドライエッチング (NIMS)
- (6) SiO<sub>2</sub> をマスクにして InGaAs をドライエッチング (東芝)
- (7) SiO<sub>2</sub> 除去 (東芝)
- (8) SiO<sub>2</sub> 再成膜 (東芝)
- (9) 電極パターン等のリソグラフィ (東芝)
- (10) SiO<sub>2</sub> の除去 (東芝)
- (11) Au 電極の成膜 (東芝)

物質・材料研究機構は工程 (1)～(5) を担当した。このうち、工程 (4) で作製した Ni マスクパターンの電子顕微鏡写真を図 3.1.27 に示す。PC-QCL#6 の PC 部では円柱ピラーを採用したが、後には 3 角ピラーも必要となるので、Ni マスクパターンについては円形と 2 等辺 3 角形の 2 種類について検討した。図 3.1.27 は作製条件検討用の試作で、PC の格子定数は約 1.45 $\mu$ m である。表 3.1.10 に示すように、PC-QCL#6 では格子定数が 1.325 $\mu$ m～1.395 $\mu$ m の 15 種類の試料を作製した。

次ページの図 3.1.28 はウエハ上の素子の配列図である。レーザ作製用の PC (0.5mm 角) を 45 個 (上述の 15 種類を各 3 個)、光学特性検証用の PC (3mm 角) を 3 個、同一の QCL ウエハ上にパターンニングした。素子作製のその他のプロセスについては 3.3 章を参照願いたい。

表 3.1.10 QCL#6 の 15 種類の格子定数と TM 偏光 E モードの波長の設計値。

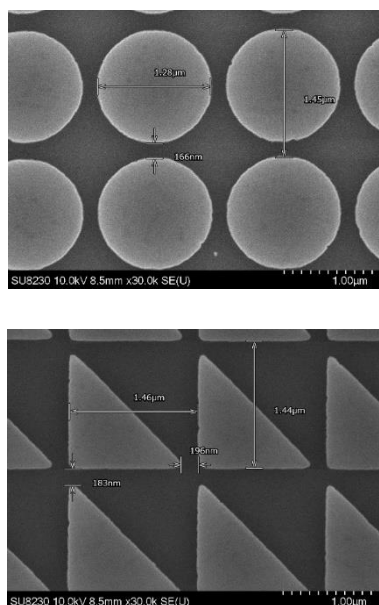


図 3.1.27 工程(エ)で作製した Ni マスクパターンの電子顕微鏡写真。

番号	格子定数 設計値a ( $\mu$ m)	E モード (TM) 波長 ( $\mu$ m)
1	1.325	4.2820
2	1.33	4.2976
3	1.335	4.3133
4	1.34	4.3289
5	1.345	4.3446
6	1.35	4.3602
7	1.355	4.3759
8	1.36	4.3915
9	1.365	4.4072
10	1.37	4.4228
11	1.375	4.4385
12	1.38	4.4541
13	1.385	4.4698
14	1.39	4.4854
15	1.395	4.5011

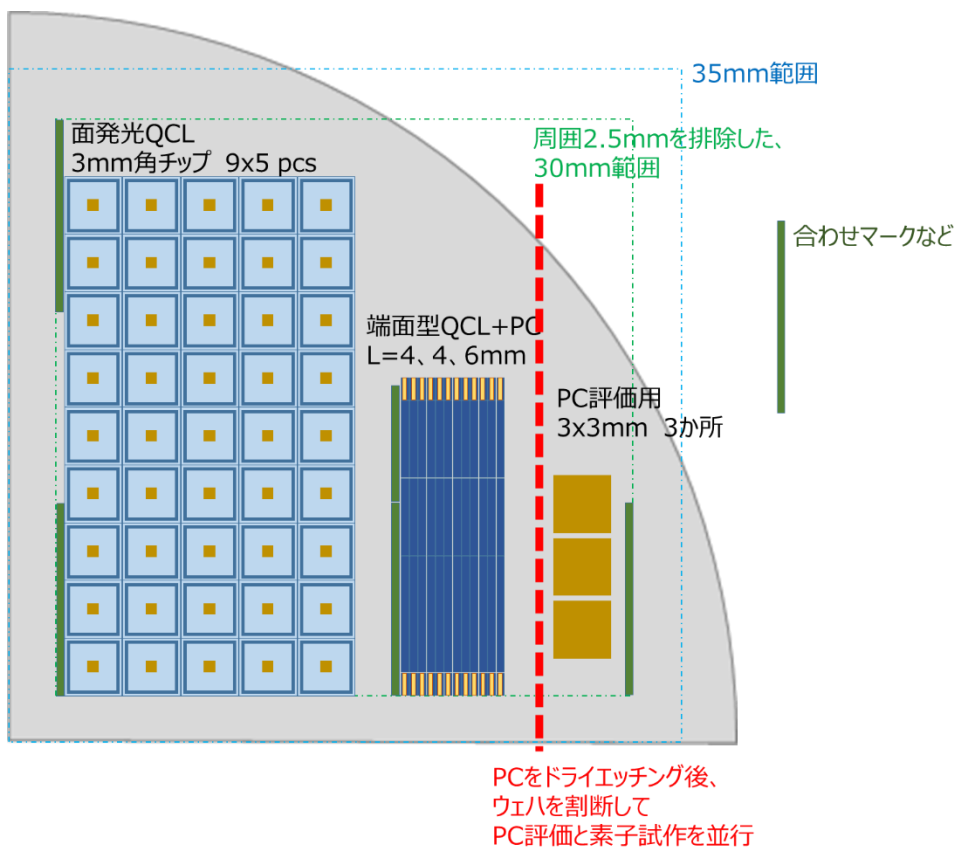


図 3.1.28 PC-QCL#6 試料の設計図（東芝作成）。

### 3.1.2.2 高分解能角度分解反射率測定装置の製作

2017年度に導入した赤外顕微鏡システムには、ATR (Attenuated Total Reflection) 法による反射率測定のアタッチメントが付属しており、当初はこのアタッチメントを用いて角度分解反射スペクトルを測定する予定であった。しかし、実際に測定を試みたところ、2次元PCの鋭い反射ピークを観測できるだけの角度分解能が得られないことが分かった。その理由であるが、試料に赤外光を照射し、反射光を捕捉するための光学系に凹面鏡が使われていて、入射角に角度分布が生じること、および、赤外分光光度計自体の赤外ビームが弱く集光されていて、やはり試料上で入射角の分布の原因になっていることによる。

そこで、市販の光学部品を用いて、角度分解反射スペクトル測定用の光学系を自作した(参考文献3.1.4)。図3.1.29が赤外分光光度計の外観であるが、測定光学系は装置中央の試料室内に組み込んだ(図3.1.30)。装置の要点は、

- (A) 凹レンズを使って分光光度計の弱く集光された赤外ビームを平行光に戻す、
- (B) その他の光学系には平面鏡を用いる、
- (C) 偏光板を使って偏光測定が可能、
- (D) 小さな入射角で測定が可能

などである。この結果、0.3度以下の角度分解能が達成できた。次項以降で述べる2次元PCの角度分解反射スペクトルはこの装置で測定した。



図 3.1.29 赤外分光光度計の外観。  
中央が試料室。

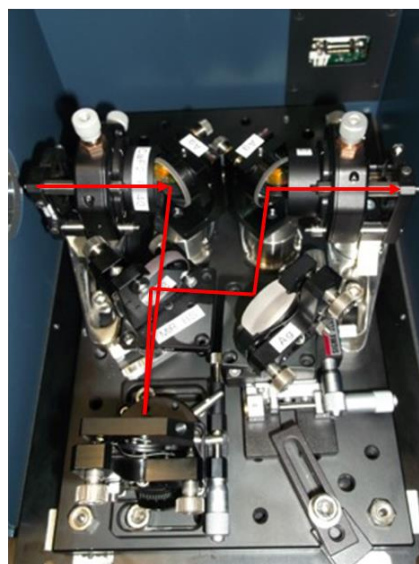


図 3.1.30 自作した角度分解反射率測定装置。赤線は赤外光の光路。

### 3.1.2.3 角度分解反射スペクトル測定によるPC部作製精度の検証

角度分解反射スペクトルを測定して、PC-QCL#6 の作製精度を検証した(参考文献 3.1.5、3.1.6)。レーザ発振スペクトルの帰属の結果と合わせて、高精度な試料作製が確認できた。

まず、図 3.1.31 に PC-QCL#6 の作製精度検証用試料の光学写真を示す。InP でキャッピングする前の試料で、PC 部の格子定数が  $1.33\mu\text{m}$ 、 $1.36\mu\text{m}$ 、 $1.39\mu\text{m}$  の 3 つについて測定を行った。垂直入射の場合の反射スペクトルを図 3.1.32 に示す。反射ピークの選択則から、垂直入射では E 対称なモードだけが観測される。空気中の二酸化炭素による吸収が  $2320\text{cm}^{-1}\sim 2370\text{cm}^{-1}$  に有ってスペクトルをやや見にくくしているが、TE モードと TM モードの計算値に対応する 2 つのピークがいずれの試料にも観測される。有限要素法による数値計算で示された、高周波数側にある TM モードの方が TE モードよりもピーク面積が大きいといった特徴も良く再現されている。ピーク波数については、計算値と実測値の不一致は 0.2%以下であり、たいへん高い試料作製精度が実現できた。

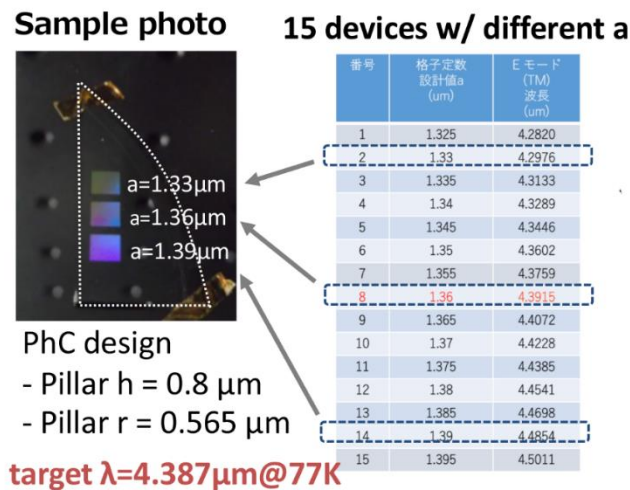


図 3.1.31 PC 構造の検証用試料。

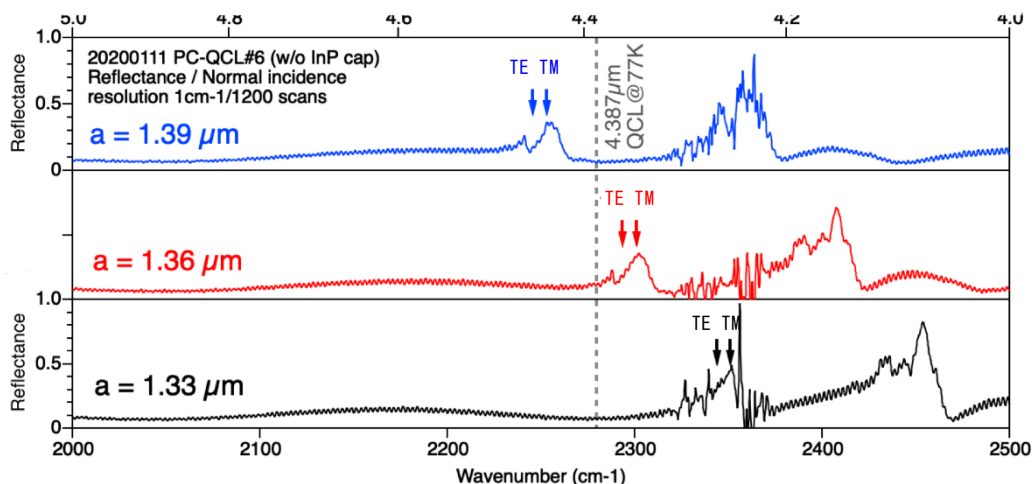


図 3.1.32 検証用試料の反射スペクトル（垂直入射）。矢印は理論計算による TE 偏光と TM 偏光の MQW 層モード（Eモード）の波数を示す。

次に、角度分解反射スペクトルについてであるが、図 3.1.33 は格子定数が  $1.36 \mu\text{m}$  の試料について、入射角を  $0^\circ \sim 3.7^\circ$  まで傾けたときの反射スペクトルの変化である。入射光を垂直入射から  $\Gamma$ -X 方向 ( $(1,0)$  方向) と  $\Gamma$ -M 方向 ( $(1,1)$  方向) に傾けた場合、および、入射光が p 偏光 (電場が入射面に平行) と s 偏光 (電場が入射面に垂直) の場合の 4 通りの組み合わせについて測定を行った。

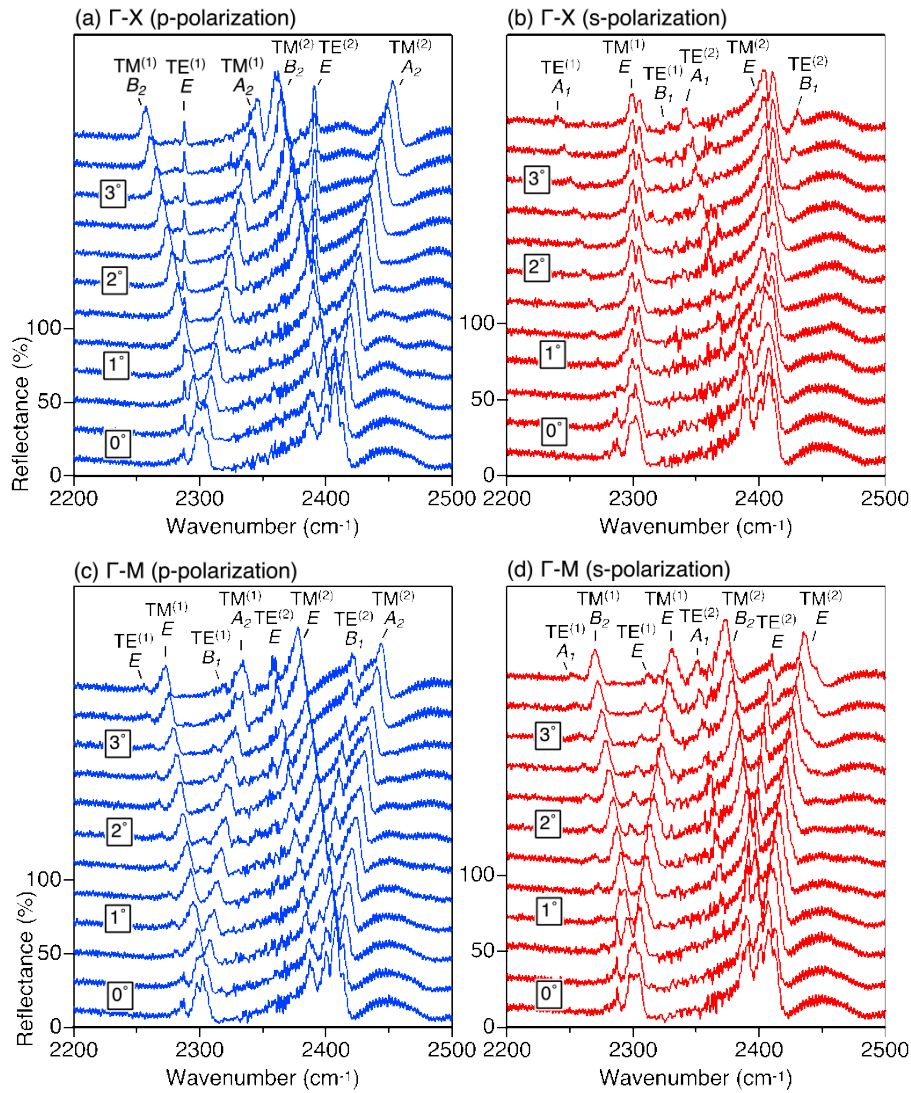


図 3.1.33 PC-QCL#6 の角度分解反射スペクトル。(a)  $\Gamma$ -X 方向、p 偏光、(b)  $\Gamma$ -X 方向、s 偏光、(c)  $\Gamma$ -M 方向、p 偏光、(d)  $\Gamma$ -M 方向、s 偏光。

偏光選択則を参照することで、それぞれの反射ピークを与える電磁モードの対称性が同定できる。図 3.1.33 にはそのようにして求めたモードの対称性も記した。入射光の波数の面内成分を横軸に取り、反射ピークの周波数を縦軸に取ることで、PC-QCL の分散関係が図 3.1.34(a) のように得られた。パネル(b)に掲げた分散関係の計算値と比較すると、両者が良く一致していることが分かる。ただし、先に述べたように、垂直入射の光に対しては E モードだけが活性で、その他のモードは反射ピークを与えない。したがって、 $\Gamma$  点近傍ではいくつかのモードの反射ピークが小さくて判別できない場合もあるので、パネル(a)では分散曲線上のデータ点に少し欠損がある。

この事を別にすると、各モードの周波数の実測値と計算値は全体として 0.5% 程度の誤差でよく一致している。また、正方格子の対称性から期待される選択則も実測データでたいへん良く再現されている。以上から、PC-QCL#6 の試料作製はたいへん精度よく実施できたと判断できる。

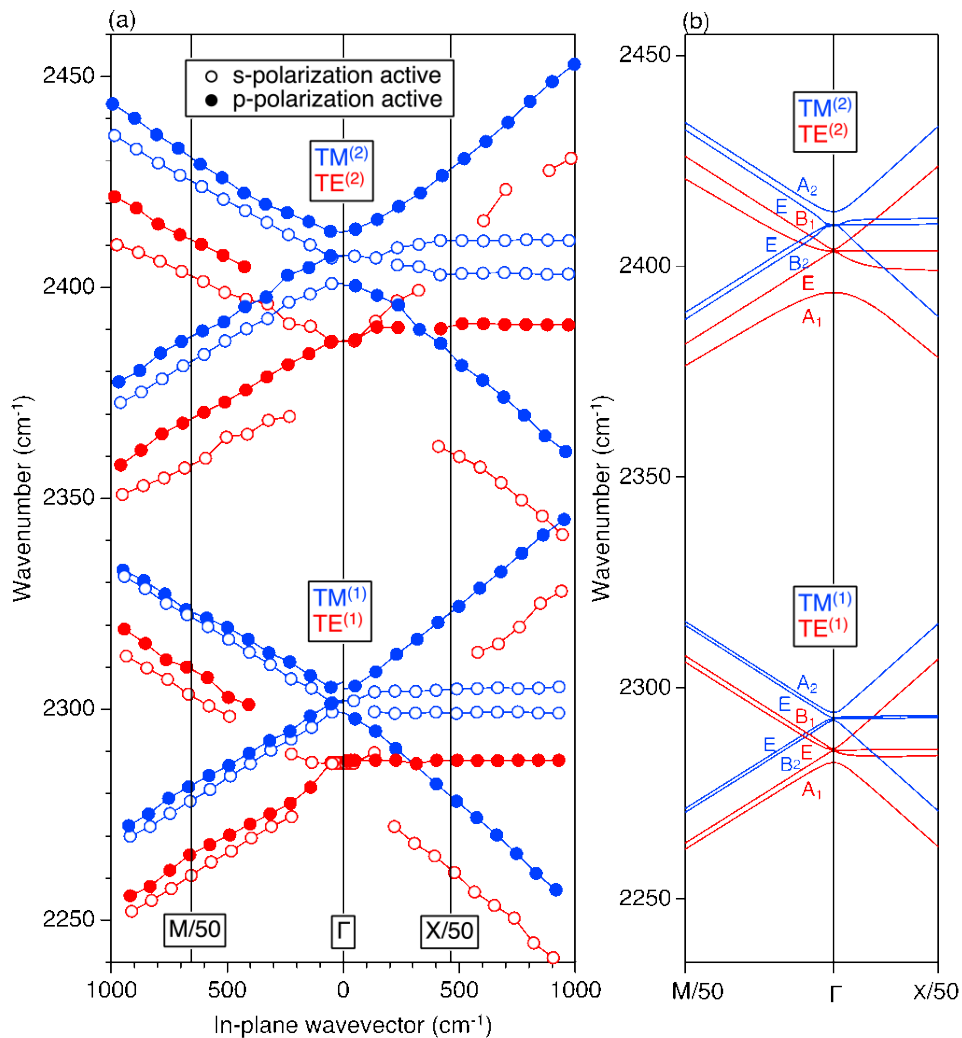


図 3.1.34 PC-QCL#6 の分散関係とモードの対称性。(a) 実測値、(b) 計算値。M/50 と X/50 は、第 1 ブリルアンゾーン の波数を示す横軸が 50 倍に拡大されていることを表す。青と赤はそれぞれ、TM-like モードと TE-like モードを表す。



次に、InP 埋戻し前の PC-QCL#7 試料の垂直入射の反射スペクトルを図 3.1.35 に示す。2350  $\text{cm}^{-1}$  付近のノイズは二酸化炭素による吸収である。また、測定は格子定数  $a$  が異なる 3 つの試料について行った。これを数値計算（縦の短い実線。TE と TM はそれぞれ、TE-like モードと TM-like モードの周波数）と比較すると、誤差が 0.5% 程度で両者が一致しており、設計通りの試料作製が達成できたことが分かる。PC-QCL の製作では、格子定数が 1.315  $\mu\text{m}$ ~1.455  $\mu\text{m}$  までの 8 種類の試料を作製した。その際、InGaAs の 3 角形ピラー間の間隙を InP で埋め戻すが、そのときにモード周波数は 20  $\text{cm}^{-1}$  程度、長波長側へシフトする。MQW 層のゲインスペクトルの中心波長が 4.47  $\mu\text{m}$  なので、この長波長シフトを考慮しても、作製した 8 つの PC-QCL#7 試料のうちいくつかについて、PC の共振波長と MQW のゲインスペクトルの重なりが実現できるはずであり、レーザ動作が期待できる。実際、3.3 章で述べるように、レーザ発振が達成できた。

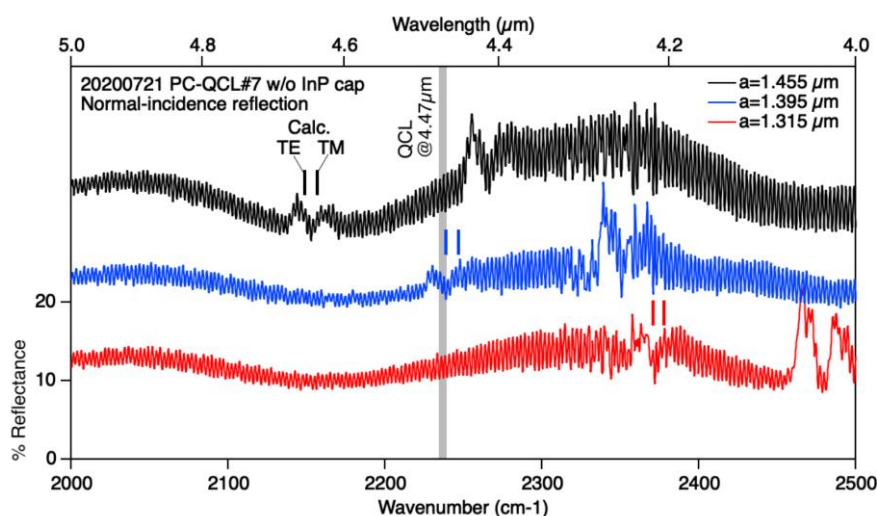


図 3.1.35 PC-QCL#7 の垂直入射の反射スペクトル。

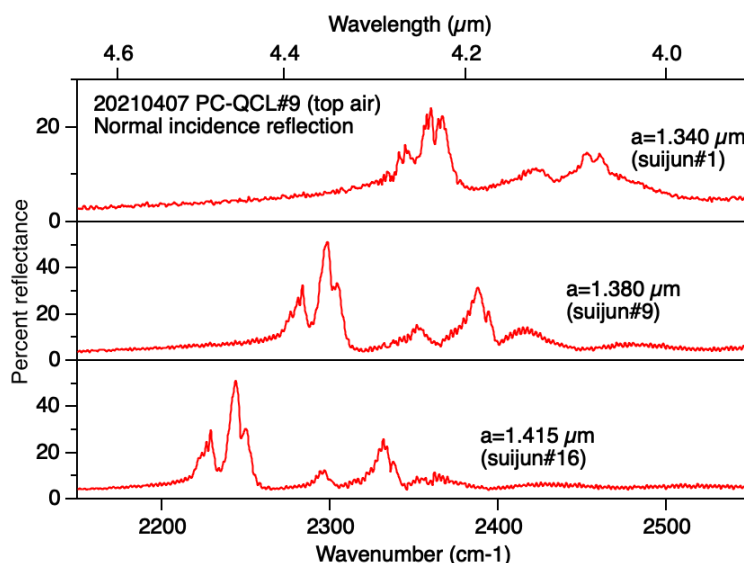


図 3.1.36 PC-QCL#9 の垂直入射の反射スペクトル。

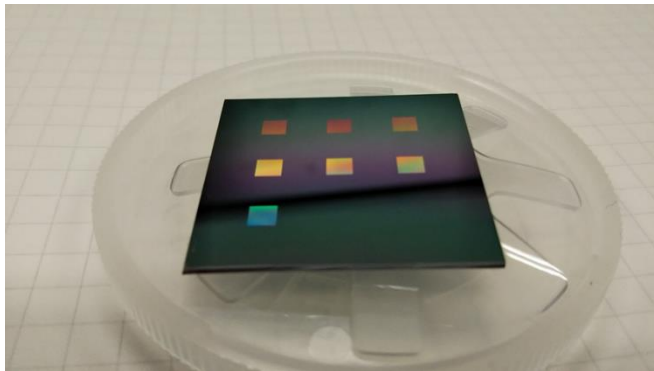
なお、反射スペクトルの測定を InP 埋戻し前の試料で行うのは、埋戻し後の試料は高 Q 値で反射ピークが鋭くなりすぎて、測定に適さないためである。特に、PC-QCL#7 試料の 3 角形ピラーは充填率が低く、InP 埋戻し前の試料も比較的、高 Q 値である。このため、図 3.1.35 のスペクトルは PC-QCL#6 (図 3.1.32) と比べて反射強度が低い。このことは、回折効率の悪さ、したがって、レーザ光取出し効率の悪さに繋がる。前述のように、この点を改善するために充填率が 50% の 5 角形ピラーの構造 (PC-QCL#9) を作製した。

実際、PC-QCL#9 試料の反射スペクトル (図 3.1.36) では、高次モードも含めて、反射ピークが明瞭である。また、単位格子の対称性の低下に伴って、すべてのモードが垂直入射の光に活性であり、各ピークが複数の小さなピークの集合であることが分かる。PC-QCL#9 の製作では、格子定数  $a$  を  $1.340 \mu\text{m}$  ~  $1.415 \mu\text{m}$  まで変化させて 16 種類の試料を作製した。PC-QCL#7 の場合と同様、この試料の範囲に共振波長が MQW のゲインスペクトルと重なるものが複数あり、レーザ発振が期待できる。3.3 章で述べるように、複数の試料でスペクトル、ビームプロファイルともに単峰のレーザ発振が観測された。

### 3.1.2.4 SOI 上 2 次元 PC の製作

理論計算で得られた設計に従って、電子線リソグラフィにより SOI 基板上に 2 次元 PC を試作した。また、大面積化が容易なナノインプリントリソグラフィの方法についても検討した。

まず、図 3.1.37 に電子線リソグラフィで作製した SOI 基板上 2 次元 PC の一例を示す（参考文献 3.1.7）。格子定数  $a$  は 2270nm で、円柱空洞の半径の異なる 7 種の PC を 1 つの基板上に作製した。また、エッチング時間を変えることで、円柱空洞の深さ  $d$  の異なる 3 種のグループを作製した。図 3.1.38 は試料の断面 SEM 写真の一例で、この試料では  $d = 210\text{nm}$  であった。これら電子線リソグラフィによる試料作製結果に基づいて、ナノインプリントリソグラフィ用モールドを設計した。



$a=2270\text{nm}$   
 $R=440\text{nm}$  470nm 500nm  
590nm 560nm 530nm  
620nm

図 3.1.37 電子線リソグラフィで作製した SOI 基板上の 2 次元 PC の一例。円柱空洞の半径  $R$  の異なる 7 種の PC を 1 つの基板上に作製した。トップ Si 層と  $\text{SiO}_2$  層の膜厚はそれぞれ、400nm と  $3\mu\text{m}$  である。

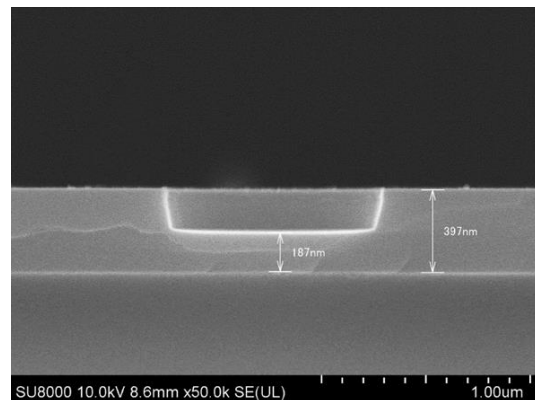
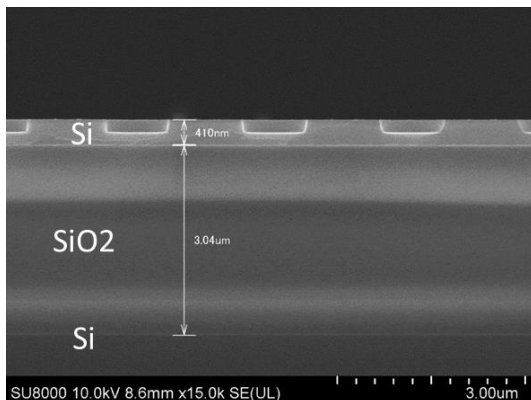


図 3.1.38 試料の断面電子顕微鏡写真。

まず、図 3.1.39 に UV 照射を利用したナノインプリント法によるエッチングプロセスを示す。電子線リソグラフィ法では電子線による描画プロセスに長時間を要するのに対し、ナノインプリント法では石英製のモールドを用いてレジストにナノパターンを形成する。したがって、電子線描画無しに試料が作製できるので大面積の試料を短時間で作製できる。

図 3.1.40 は石英モールドの設計図、図 3.1.41 は装置の外観である。SOI のトップ Si 層に空気孔の正方格子を作製するために、石英モールドには円柱ピラーの正方配列を形成した。直径が 50mm のモールドを使って、円柱ピラーの半径が異なる 10mm×10mm の 4 種類の PC を一度のプレスで作製できる。試料面積が大きいことから、角度分解反射率測定にも好都合である。

トップ Si 層の加工には、 $N_2/Cl_2$  混合ガスによる ICP (Inductively Coupled Plasma) ドライエッチング法を用いた。図 3.1.42 に作製した SOI 上 2 次元 PC の電子顕微鏡写真を示す。エッチング面は十分に平滑であり、規則性も高く、期待通りの試料作製が達成できた。

## UVインプリント: エッチング & リフトオフ

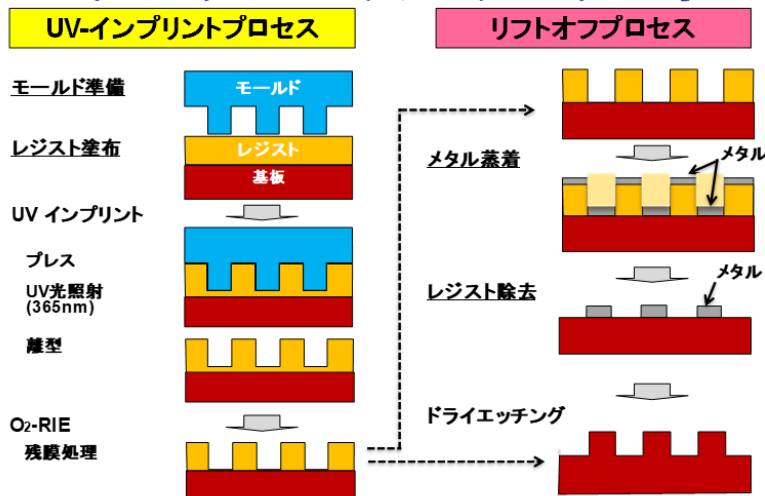


図 3.1.39 UV-インプリントによるエッチングプロセスの概要。

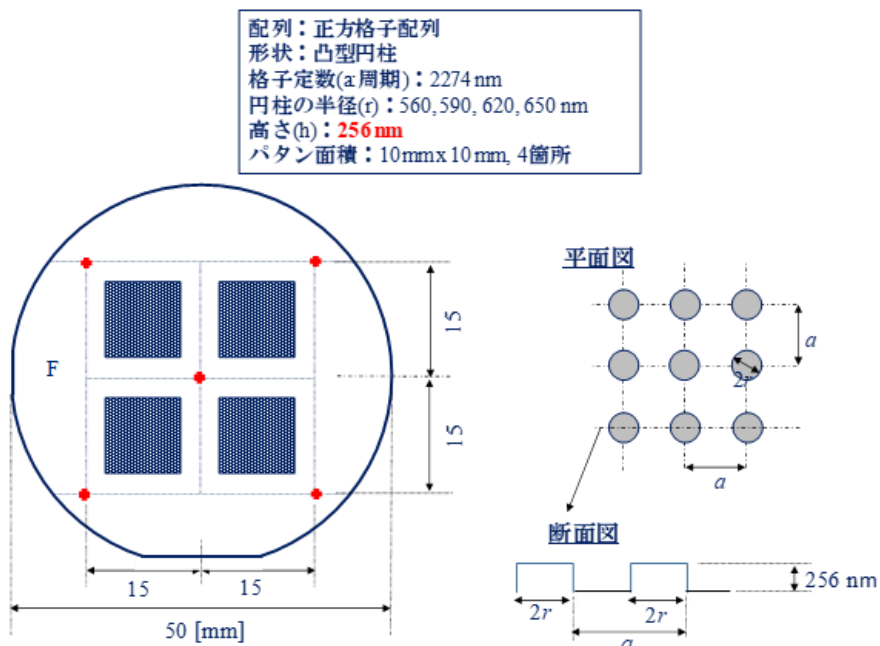
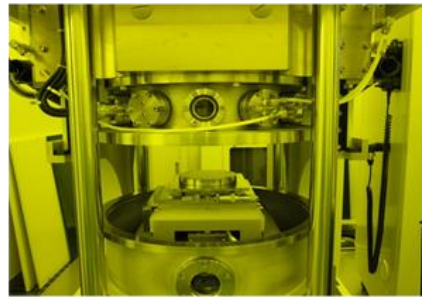
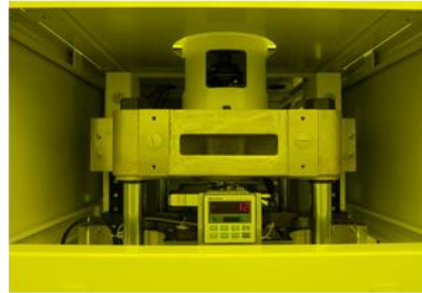


図 3.1.40 石英モールドの設計図。

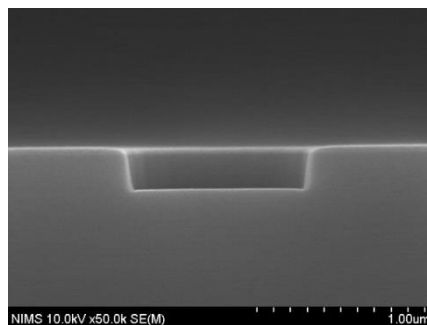
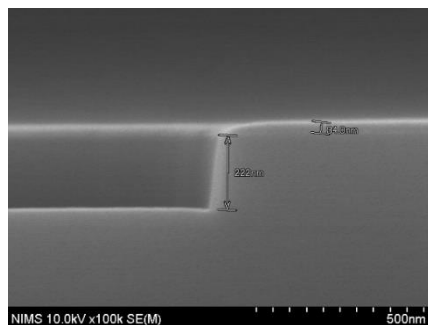
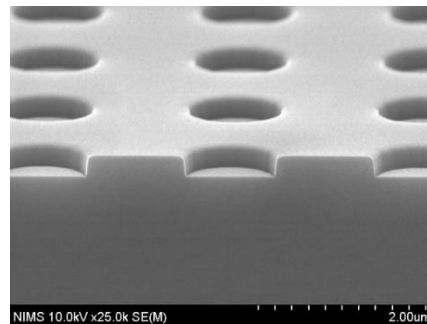
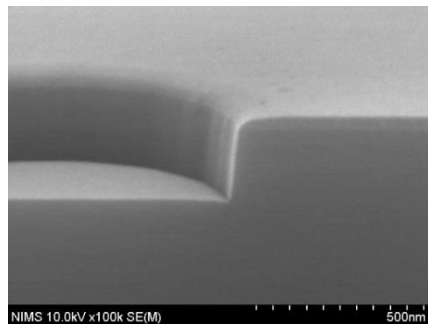
## UV-NIL: Toshiba machinery ST50



### Features

- maximum mold size: 3 inch diameter
- minimum pattern size: ~10 nm
- maximum pressure: 50 kN
- UV light source: 365nm LED array

図 3.1.41 UV-ナノインプリント装置の外観。



ICP etching with  $N_2/Cl_2$  gas (2-620) 10min:  $SiO_2$  34.0nm/ Si 222nm。

図 3.1.42 ナノインプリント法で作製した SOI 上 2 次元 PC の電子顕微鏡写真。

### 3.1.2.5 SOI上2次元正方格子PCの角度分解反射スペクトル

作製した2次元正方格子PCの分散関係を確認するために、角度分解反射スペクトルを測定した(参考文献3.1.7)。まず、モードの偶然縮退が無く、通常の2次分散面をもつ試料の反射スペクトルを図3.1.43に示す。測定は $\Gamma$ -Xおよび $\Gamma$ -Mの方位角についてそれぞれ、s偏光とp偏光で行った。図3.1.43で、入射角が0.2度ずつ異なる25本の反射スペクトルを上下方向にずらして表示した。試料構造は $R=440$  nm、 $d=210$  nmであり、図3.1.44(左)に示した分散関係が実現していると考えられる。実際、表3.1.1に掲げた反射ピークの選択則に照らしてモードの対称性を帰属すると、 $2600$   $\text{cm}^{-1}$ 付近には $A_1$ 、 $B_2$ 、Eの対称性をもつ3つのモードの存在が結論できる。反射ピークは上方の12本のスペクトルと下方の12本のスペクトルとでほぼ対称な入射角依存性を示していることから、中央の曲線がほぼ垂直入射の条件で測定されたスペクトルであると結論できる。図3.1.44の分散関係ともよく整合することが確認できた。例えば、 $\Gamma$ -M方向のスペクトルについては、Eモードに起因する2つのピーク(1つはs偏光に活性、他方はp偏光に活性)のうち、1つ(s偏光)は比較的大きな入射角依存性を示すのに対して、他方(p偏光)はほぼ一定であるが、これは図3.1.44の分散関係とよく一致する。また、 $A_1$ モードと $B_2$ モードが垂直入射の光には不活性であることがモードの対称性から予測されるが、実際の測定データでも入射角がゼロの時に両者の反射ピークが消失することが分かる。

次に、 $B_2$ モードとEモードが縮退して、ディラックコーンが形成される場合の測定データを図3.1.45に示す。試料構造は $R=530$  nm、 $d=210$  nmであり、図3.1.44(右)に示した分散関係が実現していると考えられる。特に、 $\Gamma$ -X方向では比較的大きな波数領域で(したがって、広い入射角の範囲に渡って)ディラックコーンに固有な直線的な分散関係が実現されると予想された。実際、図3.1.45の右下のパネルを見ると、2つの反射ピークが入射角の変化とともに互いにクロスする様子が明瞭に観測でき、しかもその変化が直線的である。また、もう一つの特徴として、図3.1.43でディラックコーンに付随する2次分散面(フラットバンド)が、 $\Gamma$ -M方向にはほぼ平坦で、 $\Gamma$ -X方向には比較的大きな分散を生じることが予想されたが、実測データもそのようになっている。角度分解反射スペクトルの測定値が理論計算による分散関係を非常によく再現することから、理論計算、試料作製、測定のいずれについても高い精度が達成できたと結論できる。

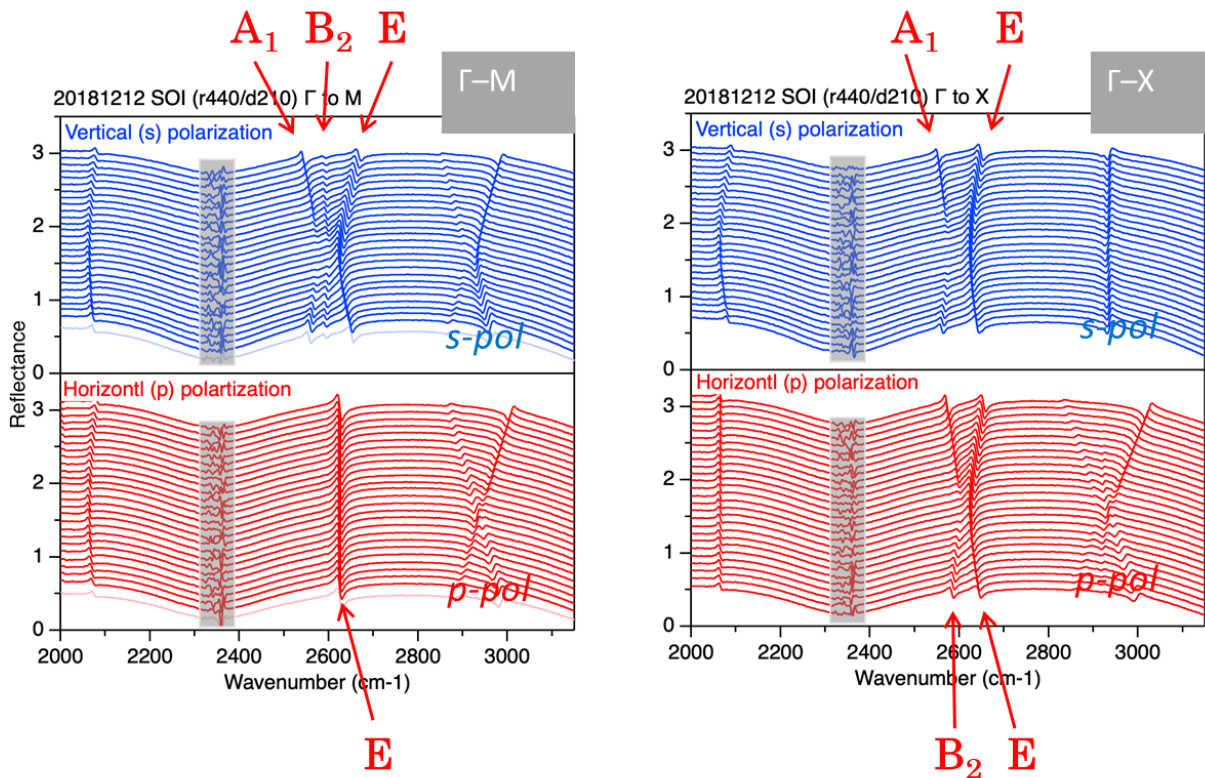


図3.1.43 SOI上2次元PCの角度分解反射スペクトル(偶然縮退の無い場合、 $R=440$  nm、 $d=210$  nm)。分散関係は図3.1.44(左)。

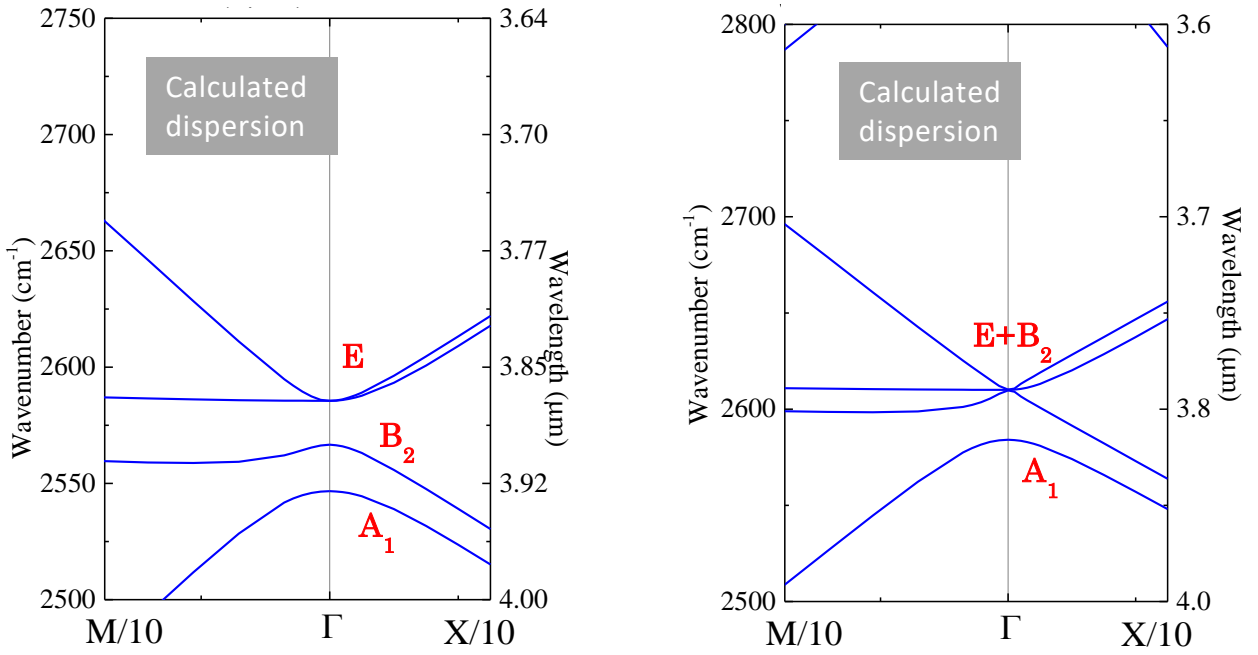


図 3.1.44 有限要素法で計算した SOI 上 2 次元 PC の分散関係。  
 (左) ディラックコーンが生じない例 ( $R=440$ ,  $d=210$  nm)、  
 (右) ディラックコーンが生じる例 ( $R=526$ ,  $d=210$  nm)。

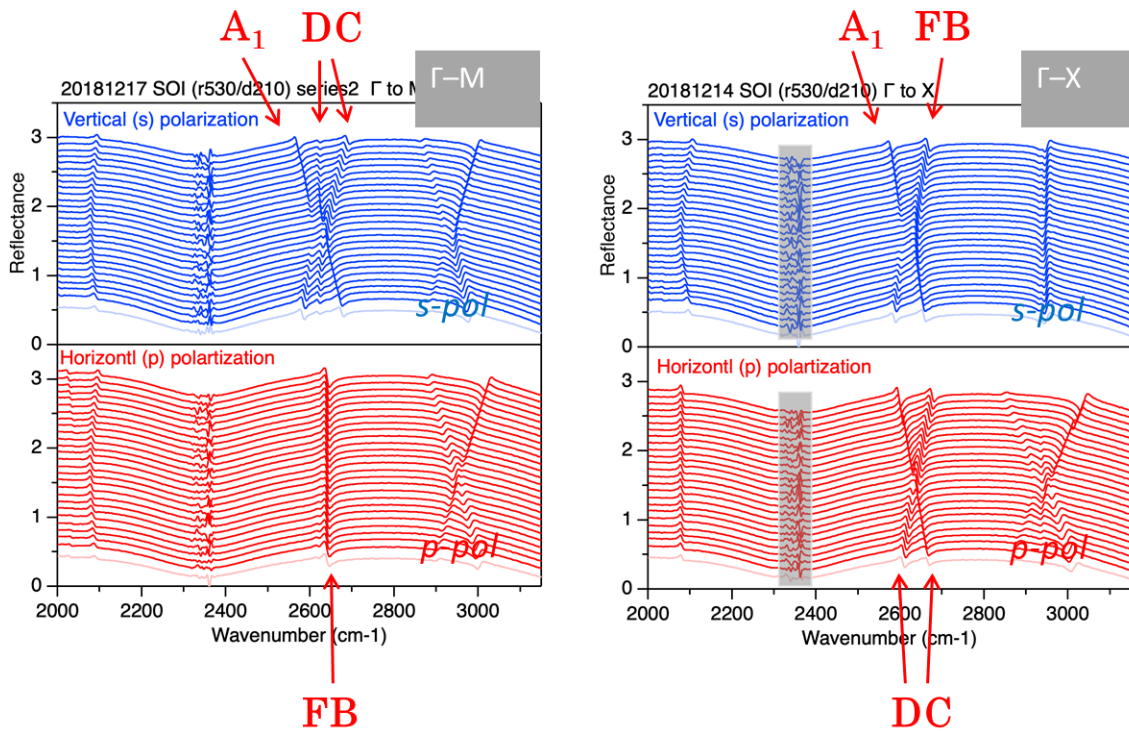


図 3.1.45 SOI 上 2 次元 PC の角度分解反射スペクトル (偶然縮退の場合,  $R=526$  nm,  $d=210$  nm)。分散関係は図 3.1.44(右)。  
 DC: ディラックコーン, FB: フラットバンド。

### 3.1.2.6 SOI上2次元3角格子PCの角度分解反射スペクトル

2020年度は、円柱孔を単位構造とする3角格子PCについて角度分解反射スペクトルを測定し、選択則を用いてピークの帰属を行うとともに、測定された分散関係を計算値と比較することで試料作製の精度を検証した。また、k-p摂動法に依る計算から予測されたモード混合によるQ値の再分配現象が、実測された反射ピークの半値幅の解析で実証できた(参考文献 3.1.8、3.1.9)。

測定は項目 3.1.1.4 の図 3.1.5 に示した試料について行った。5つの試料のうち、図 3.1.46 は円柱空孔の半径  $r$  が 560 nm の試料の反射スペクトルである。測定の配置は図 3.1.6 の通りで、 $\Gamma$ -K と  $\Gamma$ -M の方向に  $0^\circ \sim 4^\circ$  傾けた入射光を用いて、s 偏光と p 偏光について測定した。図 3.1.46 には、偏光選択則(表 3.1.2)による反射ピークの帰属も記した。

図 3.1.47 は分散関係の実測値と計算値の比較である。分散関係の実測値は、入射波の波数の面内成分の大きさと反射ピークの周波数から算出した。6回対称な3角格子PCでは、 $E_1$ モードだけが垂直入射の入射光に活性である。また、 $\Gamma$ 点付近には数個のモードが密集しているために反射ピークが互いに重なって、ピーク周波数の正確な読み取りが難しい場合もあったために、実測値(図 3.1.47(a))のデータ点にはいくつか欠損がある。この点を考慮すると、実測値と計算値の一致はかなり良く、 $\Gamma$ 点上の固有モードの周波数の不一致は最大で  $40 \text{ cm}^{-1}$  (1.2%)程度であることから、試料作製は概ね設計通りに達成できた。

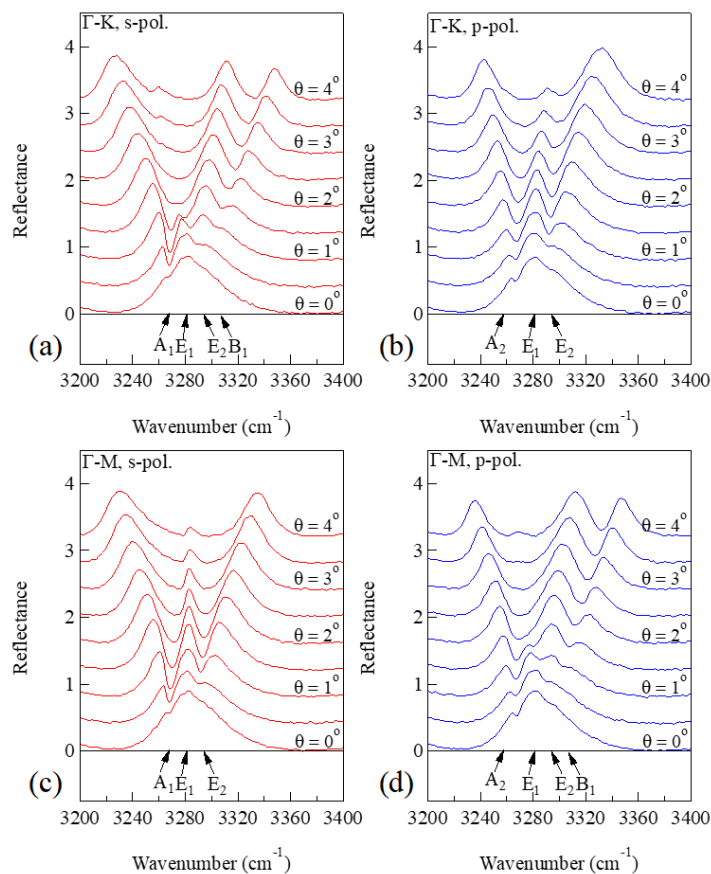


図 3.1.46 SOI 上の円柱孔 3 角格子 PC の角度分解反射スペクトル。



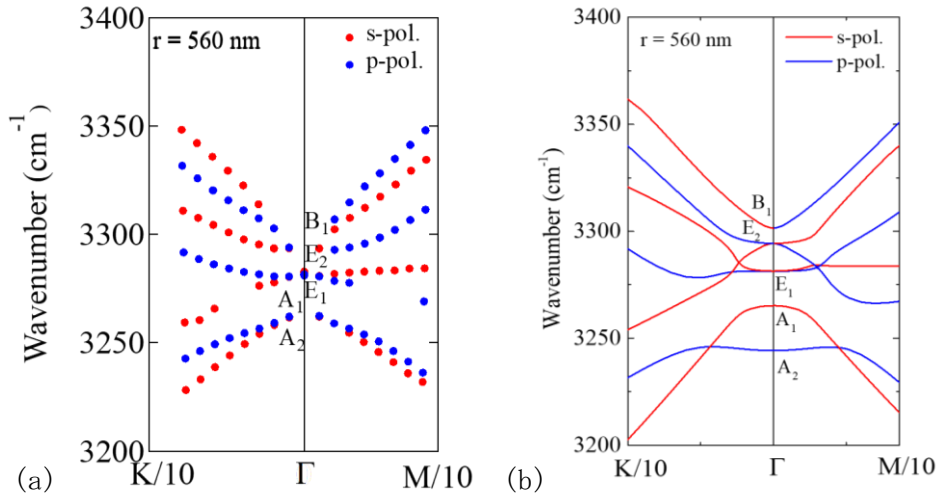


図 3.1.47 SOI 上の円柱孔 3 角格子 PC の分散関係とモードの対称性。(a) 実測値、(b) 計算値。K/10 と M/10 は、第 1 ブリルアンゾーンの波数を示す横軸が 10 倍に拡大されていることを表す。赤色と青色はそれぞれ、s 偏光と p 偏光に活性なバンド。

以上に加えて、互いに近接した 2 つのモードの反射ピークの幅、したがって、固有モードの Q 値に以下のような特徴のあることが分かった。まず、この試料では E<sub>1</sub> モードの回折損が比較的大きく、半値全幅 (FWHM) が 54.6 cm<sup>-1</sup> である。したがって、図 3.1.46(a) で A<sub>1</sub> モードの固有周波数は E<sub>1</sub> モードの反射ピークの周波数に重なっており、実質的に 2 つの周波数は縮退していると見なせる。この場合について、 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  摂動法でバンド構造を調べると、永年方程式の基礎となる摂動行列が

$$D_{\mathbf{k}}^{(E_1, A_1)} = \begin{pmatrix} -i\gamma & 0 & b'k_y \\ 0 & -i\gamma & b'k_x \\ b'^*k_y & b'^*k_x & 0 \end{pmatrix} \quad (3.1.20)$$

で与えられる。ここに、 $\gamma$  は E<sub>1</sub> モードの減衰定数、( $k_x, k_y$ ) は波数ベクトル、 $b'$  はモードの固有関数から決まる定数である。分散関係はこれを解いて、

$$\omega_{\mathbf{k}} = \begin{cases} \omega_D - i\gamma \\ \omega_D + \frac{-i\gamma \pm \sqrt{-\gamma^2 + 4|b'|^2 k^2}}{2} \end{cases} \quad (3.1.21)$$

と求まる。ここに  $\omega_D$  は縮退した E<sub>1</sub> モードと A<sub>1</sub> モードの固有周波数である。入射角が大きくなって波数の面内成分 ( $k$ ) が大きくなると、両者の混成で生じたバンド (上式の下段) の減衰定数は  $\gamma/2$  に近づき、したがって、半値幅は元の E<sub>1</sub> モードの半分になる。実測では、入射角が 4° において A<sub>1</sub> モードに由来する反射ピークの半値全幅は 31.4 cm<sup>-1</sup> であり、E<sub>1</sub> モードのおおよそ半分である。また、計算では同じ条件で、E<sub>1</sub> モードと A<sub>1</sub> 由来のモードの Q 値がそれぞれ、61 と 123 であり、やはり約半分である。もともと A<sub>1</sub> モードは回折損がゼロで Q 値が無限大であることから、この現象はモードの混成による Q 値の再分配と解釈することができる。このことが実験観測されたのはこれが初めてである。

3.1.2.7 (別紙2別冊に記載)

【参考文献】

- 3.1.1 Y. Yao, N. Ikeda, S. Chalimah, T. Kuroda, Y. Sugimoto, T. Mano, H. Koyama, R. Hashimoto, K. Kaneko, T. Kakuno, S. Ookuma, R. Togawa, H. Ohno, S. Saito, N. Takahashi, H. Tanimura, S. Takagi, K. Sakoda “Improved power and far-field pattern of surface-emitting quantum cascade lasers with strain compensation to operate at 4.3  $\mu\text{m}$ ,” Jpn. J. Appl. Phys. **61**, 052001 (2022).
- 3.1.2 K. Sakoda, “Proof of the universality of mode symmetries in creating photonic Dirac cones,” Opt. Express **20**, 25181 (2012).
- 3.1.3 K. Sakoda, “Polarization-dependent continuous change in the propagation direction of Dirac-cone modes in photonic crystal slabs,” Phys. Rev. A **90**, 013835 (2014).
- 3.1.4 T. Kuroda, S. Chalimah, Y. Yao, N. Ikeda, Y. Sugimoto, K. Sakoda, “Apparatus for high-precision angle-resolved reflection spectroscopy in mid-infrared region,” Appl. Spectroscopy **75**, 259 (2021).
- 3.1.5 S. Chalimah, Y. Yao, N. Ikeda, K. Kaneko, R. Hashimoto, T. Kakuno, S. Saito, T. Kuroda, Y. Sugimoto, K. Sakoda, “Mid-infrared dispersion relations in InP based photonic crystal slabs revealed by Fourier-transform angle-resolved reflection spectroscopy,” Phys. Rev. Appl. **15**, 064076 (2021).
- 3.1.6 S. Chalimah, Y. Yao, N. Ikeda, A. Begum, K. Kaneko, R. Hashimoto, T. Kakuno, S. Saito, T. Kuroda, Y. Sugimoto, K. Sakoda, “Mid-infrared angle-resolved spectral characteristics of photonic crystal slabs for application in surface-emitting quantum cascade lasers,” J. Nonlinear Opt. Phys. & Mater. (掲載決定)
- 3.1.7 Y. Yao, N. Ikeda, T. Kuroda, T. Mano, H. Koyama, Y. Sugimoto, K. Sakoda, “Mid IR Dirac-cone dispersion relation materialized in SOI photonic crystal slabs,” Opt. Express **28**, 4194 (2020).
- 3.1.8 Y. Yao, T. Kuroda, N. Ikeda, T. Mano, H. Koyama, Y. Sugimoto, K. Sakoda, “Angle-resolved reflection spectra of Dirac cones in triangular-lattice photonic crystal slabs,” Opt. Express **28**, 21601 (2020).
- 3.1.9 S. Chalimah, Y. Yao, N. Ikeda, Y. Sugimoto, T. Mano, T. Kuroda, K. Sakoda, “Eigenmode symmetry assignment of triangular-lattice photonic crystal slabs and their Dirac cone materialized by effective degeneracy in the mid-infrared region,” Opt. Express **29**, 19486 (2021).

### 3. 2 QCL素子の高温安定動作に向けた熱解析・放熱構造の作製技術（担当：東京工科大学）

#### はじめに

量子カスケードレーザ(QCL)を高出力化するためには、レーザを効率良く励起するMQW(Multiple Quantum Well)の膜構造と、放熱性を高めてMQWの温度上昇を抑制することが重要である。MQWの温度が上昇すると、レーザ励起に必要な反転分布が形成されなくなり、レーザ出力が低下するためである。東京工科大学では、放熱性の定量的指標を熱抵抗として熱抵抗の低減と、高効率なMQW膜構造の開発に取り組んだ。プロジェクトでは、レーザ効率への影響が大きいMQWの熱抵抗を開発目標の指標とし、中間目標で4.0 °C/W以下、最終目標では1.5 °C/W以下とした。

QCLの熱抵抗を低減するため、熱抵抗を定量評価する手法が必要となった。これまで行われてきたDynamic法に対してStatic法の導入を検討し、Statics法による熱抵抗測定が可能なT3Sterを導入した。T3Sterを使った測定方法の確立と実デバイスの測定結果を、「3.2.1 熱伝導の定量的な可視化」で報告する。

熱抵抗を低減に必要なもう一つの手法が、熱抵抗を定量評価できる3D熱解析シミュレーションモデルの開発である。このため、実際のQCL構造を3次元モデルとして形状入力し、形状モデルに材料物性を入力することで、3D熱解析シミュレーションモデルを構築した。モデルの妥当性は、T3Sterで測定した熱抵抗値との比較で検証した。シミュレーションモデルの構築と妥当性について、「3.2.2 熱解析モデルの構築の3.2.2.1 3D熱解析シミュレーション」で報告する。

レーザ出力を高める高効率MQW構造については、非平衡グリーン関数を組み込んだ計算ソフトnextnano.QCLを使って評価・検討した。ソフトウェアを導入後、デバイス温度と発振波長、膜構造と発振波長を指標として、実験結果とシミュレーション結果を比較し、MQWの膜構造に対する発振波長及びゲインを計算できる解析モデルを構築した。

構築した解析モデルを使って、(1)MQW発光層のバリア層を薄膜化する、(2)発光層の障壁層でAlの組成を低減する、(3)電子注入層の障壁層でAlAs層を挿入する、(4)発光層の井戸にInAs層を挿入する、4項目によるゲイン向上について評価した。さらに(1)～(4)を複数組み合わせ合わせた構造についての評価を行った。結果として(3)と(4)の組み合わせでゲインを最大化できることが示され、この構造で適正化のためのより詳細な解析を実施した。

さらに、MQWの発光層の膜厚をパラメータとし、遺伝的アルゴリズムと呼ばれる最適化手法を用いてMQWの適正化を行った。遺伝的アルゴリズムは生物の進化過程を適正化に取り入れた手法で、一般的な山登り法が近接の最大・最小点で最適化計算が終わるのに対し、離れたところにある最大・最小点を見つけて適正化できる。遺伝的アルゴリズムを使って1000ケースの計算を行い、ゲインを最大化するMQW膜構造が得られた。一連の研究について「3.2.2.2 非平衡グリーン関数法による高効率活性層の設計」で報告する。

本プロジェクトで開発した3D熱解析シミュレーションモデル、MQW膜構造の解析モデルを使って、QCLの熱抵抗低減、ゲインの向上対策を検討し、実デバイスへの展開を試みた。端面発光型QCLでは、MQWを含むリッジ部で3種類の構造と実装方法（エピダウン）に対し、3D熱解析シミュレーションと実デバイス試作により熱抵抗の低減を試みた。また、ダイヤモンドサブマウントを使った実装構造について、3D熱解析シミュレーションと実デバイスで評価した。さらに、MQW膜構造によるゲイン向上では、MQWの活性層でバリア層を10%薄膜化する構造について、解析モデルと実デバイスによる評価を行った。面発光型QCLでは、3D熱解析シミュレーションでダイヤモンドサブマウントが有効であることを示し、実デバイスでその効果を確認した。一連の研究結果について「3.2.3 解析モデルを活用した放熱性の改善」で報告する。

プロジェクト目標の達成度については、中間目標ではInP埋込みのエピサイドダウン構造でMQWの熱抵抗2.5 °C/W、最終目標では金埋込み面発光型QCLで熱抵抗が1.2 °C/Wが得られ、設定目標を達成した。

### 3.2.1 熱伝導の定量的な可視化

#### 3.2.1.1 熱伝導定量化のための測定法検討

Static法（冷却法）<sup>[3.2.1]</sup>を用いて高精度な熱抵抗測定が可能なT3Ster装置を導入した。また、2017年度にLCR解析装置を使って構築した高精度な等価回路モデルから、導通時の等価回路が1.86 Ωの抵抗となることが示された。この等価回路からDynamic法（加熱法）<sup>[3.2.1]</sup>による測定が可能であることが示され、Statics法とDynamic法の比較を行った。

##### (1) Dynamic法とStatic法

図3.2.1にDynamic法とStatic法の特徴を示す。Dynamic法では、パルス幅を段階的に変えて電力パルスを連続的に印加し、それぞれの電力パルスによって得られる量子カスケードレーザ(QCL: Quantum Cascade Laser)内の電圧温度依存性から温度変化・熱抵抗を算出する。Static法では、QCLに電力を印加し続け、温度飽和後に電力停止した時のQCL内の電圧温度特性が変化していく過渡現象を計測し、その温度過渡応答特性から温度変化・熱抵抗を算出する。

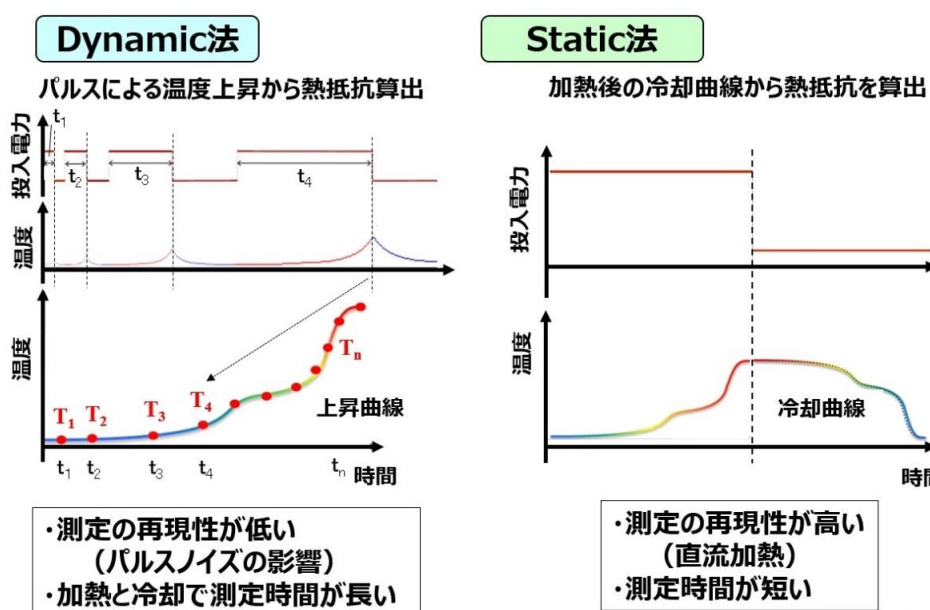


図3.2.1 Dynamic法とStatic法の特徴

表3.2.1にDynamic法とStatic法の比較を示す。Dynamic法はこれまで半導体の熱抵抗評価に用いられてきた測定方法である。デメリットとしては、短時間領域の計測はサンプルのゲートON能力や装置の印加能力の制限があり、スイッチングノイズも発生する。また、加熱時間を変えて何度も計測するため、測定時間が長いことである。

Static法のメリットは、測定結果のノイズ除去により正確な測定ができることと測定時間が短いことである。デメリットとしては、放熱経路が複数あるパワー半導体デバイスの場合、温度上昇特性と降下特性が異なることで計測した値の誤差につながる可能性があることである。

半導体技術協会(JEDEC: Joint Electron Device Engineering Council)のJESD51-14ではStatic法が推奨されている<sup>[3.2.2]</sup>。

表 3.2.1 Dynamic 法と Static 法の比較

項目		Dynamic 法	Static 法
試料	適用デバイス	複数の熱流経路のデバイス (IGBT など)	主要な熱流経路が 1 つのデバイス (LED など)
試験条件	ストレス印加	パルスによる印加 (幅: 数 10 ms)	連続印加による温度飽和後、ストレス OFF
	試験時間	パルス幅 × ON/OFF サイクル数	温度飽和時間 + 冷却時間
	データ収録	パルス印加後、数 ms で計測	ストレス印加 OFF 直前から 1 $\mu$ s 毎計測
構造	冷却機構	温度飽和は不要	飽和温度となるよう冷却機構が必要

測定原理はDynamic法とStatic法、どちらの測定でも動作時に相当する電流で素子を加熱し、測定用の微小電流で発生する端子電圧を利用して冷却特性を測定する (図3.2.2)。すなわち、微小電流に対する端子電圧から、半導体素子の温度を求める。このため、Static法、Dynamic法、どちらの測定でも、温度と電圧の関係の測定 (温度係数、K-factor) が必要となる。

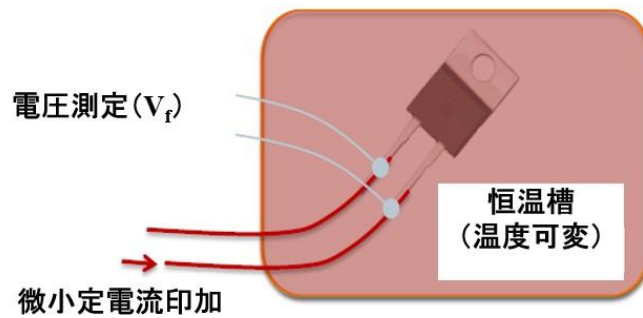


図3.2.2 Dynamic法とStatic法の測定原理

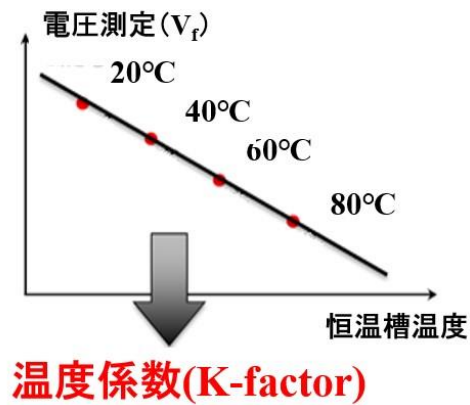


図3.2.3 温度と電圧の関係 (温度係数)

Static法による熱伝導の定量的な可視化の流れをまとめると、以下の図3.2.4のようになる。

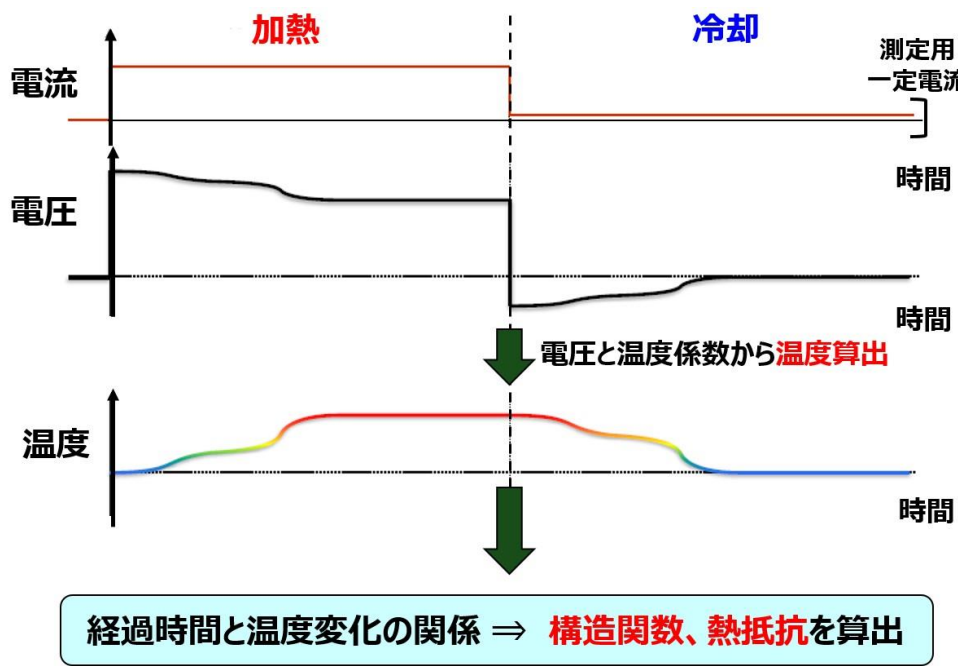


図3.2.4 Static法による熱伝導の定量的な可視化の流れ

## (2) Static 法測定装置 T3Ster の導入

Static法での測定装置として、シーメンス社で製造販売されているT3Ster（トリストアー）を導入した。図3.2.5にT3Sterの外観を示す。温度係数測定や熱抵抗測定を高精度かつ簡便に実行できる。T3Ster本体がメインの測定装置で、電流を供給し、電圧を測定する。ブースターは素子が大きいつきの電流アンプであり、大出力のQCLの測定時に用いた。Cold Plateは素子に大電流を印加するとき用い、素子を置いて温度を一定に保つ役割を果たす。Thermostatは温度係数の測定に使う。

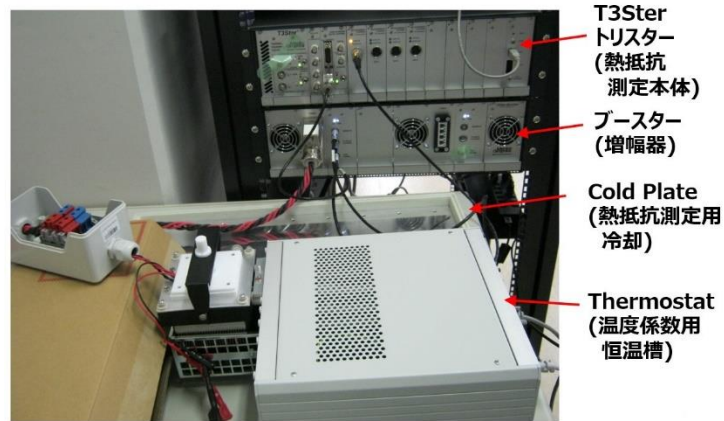


図3.2.5 T3Sterの外観

## (3) 温度係数の測定

QCL素子の温度を変化させ、熱抵抗測定のための基礎データ、すなわち各温度での微小電流とQCL素子の端子電圧との関係（温度係数）を測定する。温度係数測定のための恒温槽と恒温槽内部を図3.2.6に示す。

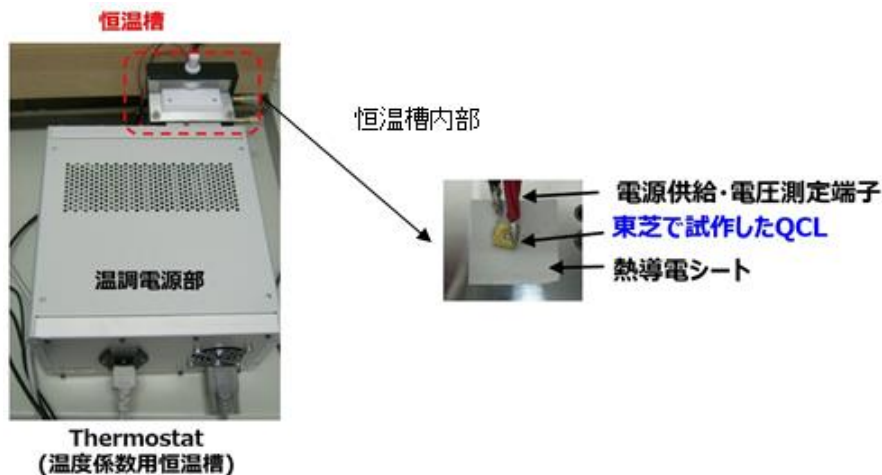
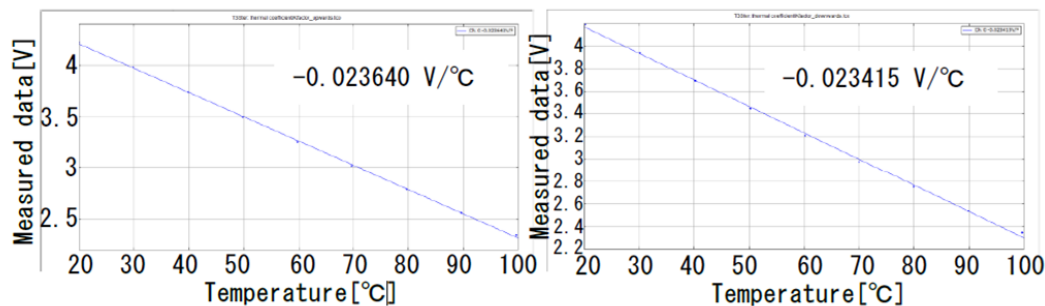


図 3.2.6 温度係数用恒温槽と恒温槽内部

温度係数の測定結果を図3.2.7に示す。横軸が温度[°C]、縦軸が電圧[V]である。温度は20 °C～100 °Cの範囲で変化させ、10 °C刻みで電圧を測定した。低い温度から高い温度にした場合とその逆の場合では、素子構造が複雑な場合は熱のパスが異なり温度係数が異なることがある。本測定では両者の違いが $2.28 \times 10^{-4} \text{ V/}^\circ\text{C}$ と小さく、どちらの場合も $R^2$ 値が0.999以上になっており、測定は正確にできていると推定される。熱抵抗測定には温度係数として(a)の $-0.023640 \text{ V/}^\circ\text{C}$ を用いた。



(a) 低温→高温

(b) 高温→低温

図3.2.7 温度係数の測定結果。横軸が温度[°C]、縦軸が電圧[V]

#### (4) Static 法による熱抵抗測定

本研究に適した測定条件を調べるため、2つの条件で測定を行った。測定条件を表3.2.2に示す。Time300は、T3Sterを製造しているシーメンス社のマニュアルに記載されていた手法であり、Time30は測定時間の短縮を目的とした手法である。Time30では測定時間を短くするために加熱電流を1/2、測定時間と加熱時間を1/10にしている。

以下、Time30とTime300の結果をそれぞれ示す。

表 3.2.2 Static 法の測定条件

	(a)Time30	(b)Time300
測定電流	1 mA	1 mA
加熱電流	100 mA	200 mA
測定時間	30 秒	300 秒
加熱時間	30 秒	300 秒
温度係数	$-0.023640 \text{ V/}^\circ\text{C}$	$-0.023640 \text{ V/}^\circ\text{C}$
恒温槽	25 °C	25 °C

Static法による測定結果を図3.2.8に示す。横軸が時間[秒]、縦軸が温度[°C]である。Static法の測定は加熱後の冷却曲線なので、右肩下がりの曲線となる。 $5 \times 10^{-4}$ 秒以下には初期ノイズが含まれているため、ノイズカット処理している。この処理は構造関数に影響を与えるので、重要な手順であるが、Static法の初期ノイズカット手法はよく研究されており、非常に信頼性が高い。初期ノイズカットの結果、(a)Time30の $R^2 = 0.995082$ 、(b)Time300の $R^2 = 0.997426$ であり、精度としては十分である。



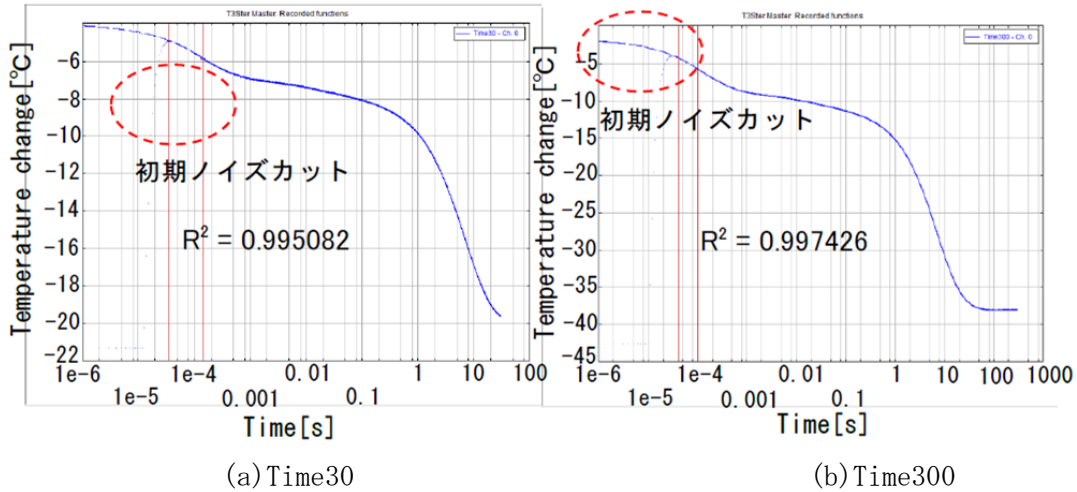


図 3.2.8 Static 法による測定結果。横軸が時間[秒]、縦軸が温度[°C]

測定結果をもとに作成した構造関数<sup>[3.2.3], [3.2.4]</sup>のグラフを図3.2.9に示す。横軸が熱抵抗 $R_{th}$  [K/W]、縦軸が熱容量 $C_{th}$  [Ws/K]である。 $R_{th} = 1 \sim 15$ では(a)と(b)の間には大きな差異はないが、(b)の $R_{th} = 18$ 付近には(a)にはない変曲点が見られる。よって、加熱時間と測定時間が長い(b)Time300の方がより詳細なデータが得られたと考えられる。

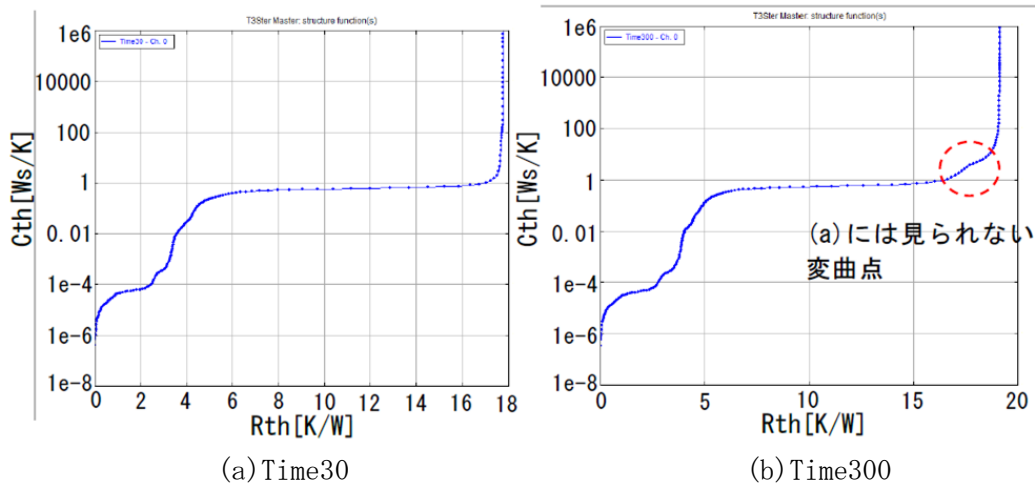


図3.2.9 Static法による構造関数。横軸が熱抵抗 $R_{th}$  [K/W]、縦軸が熱容量

#### (5) 各部位の熱抵抗切り分け

測定された構造関数から、各部位の熱抵抗に切り分けた。QCLは、図3.2.10上段右の構造図のように、(i)リッジ部を含むInP基板、(ii)半田 (AuSn)、(iii)Cu/Wマウントから構成されている。一方、構造関数では部材が変化すると熱抵抗と熱容量が変化するため、曲線上で変曲点をとる。各部位の熱伝導率と部材サイズと構造関数の変曲点から、熱抵抗は図3.2.10下段のように切り分けることができる。InP基板までに小さな変曲点が存在するのは、リッジ部の微細構造が反映されていると推定される。

このように、変曲点と構造図を対応させることで、熱抵抗をQCLの構成部材に切り分ける手法を確立した。

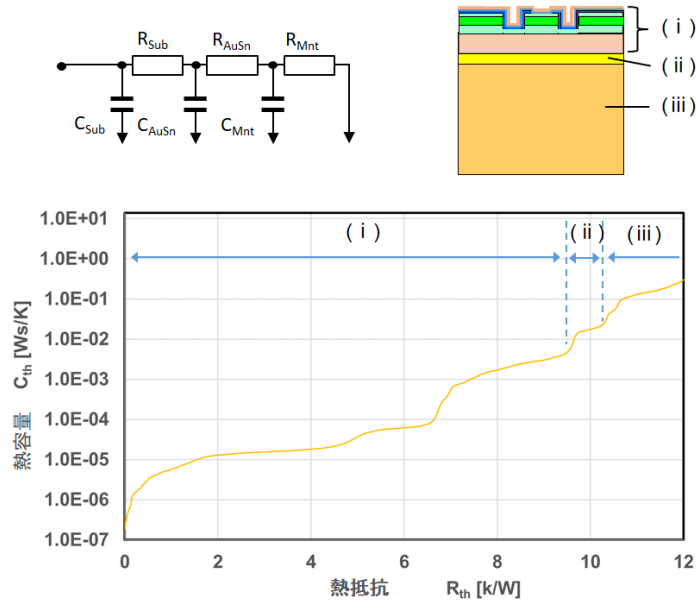


図 3.2.10 熱抵抗の QCL 構成部材への切り分け

#### (6) Dynamic 法による測定

2017年度にLCR解析装置によって得られたQCLの等価回路モデルを図3.2.11に示す。導通時のQCLは、 $1.86 \Omega$ の抵抗として近似できる（モデル導出のための測定は3.2.3.1の(2)で詳細に記載）。Static法のTime30では、 $-4 \text{ }^\circ\text{C}$ から $-20 \text{ }^\circ\text{C}$ まで冷却（ $\Delta T=16 \text{ K}$ ）して、構造関数を抽出している。同様にDynamic法での上昇温度を16Kと想定する。また、Static法からの結果として、マウントまで含めた熱抵抗は $\sim 20 \text{ K/W}$ である。 $\Delta T=16 \text{ K}$ に必要な電力は、 $16 \text{ K}/20 \text{ K/W}=0.8 \text{ W}$ となる。QCLが回路的には $1.86 \Omega$ の抵抗となることから、 $0.8 \text{ W}$ を投入するために必要な電流は $0.656 \text{ A}$ となる。これらの検討結果を表3.2.3に示す。

Dynamic法では、 $0.656 \text{ A}$ 以上の電流を投入すればよいことが分かる。T3SterのDynamic法では、加熱に必要な電流が自動計算されて供給される。T3Sterの電流供給能力は $1 \text{ A}$ 以上あり、加熱に必要な $0.656 \text{ A}$ を供給でき、T3SterでのDynamic測定が可能である。そこで、T3Sterを使ってDynamic法を試み、Static法との比較を行った。

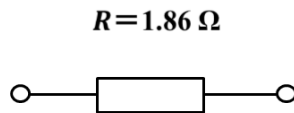


図 3.2.11 QCL の等価回路

表 3.2.3 QCL 加熱に必要な電流計算

項目	値	
時間	30	[秒]
上昇温度 $\Delta T$	16	[K]
熱抵抗	20	[K/W]
投入電力	0.8	[W]
QCL抵抗 R	1.86	[ $\Omega$ ]
$I (W=R \cdot I^2)$	0.656	[A]

Dynamic法による測定条件を表3.2.4に示す。

表 3.2.4 Dynamic 法の測定条件

加熱パルスの立ち下がりエッジから 測定の開始までの時間	100 $\mu$ 秒
1 測定ポイントに対応する サンプリングの継続時間	5 $\mu$ 秒
冷却係数	2

Dynamic法による測定結果とそれをもとに作成した構造関数を図3.2.12に示す。Dynamic法では、電力パルスを連続的に印加し、温度変化を測定しているため、測定結果は右肩上がりの曲線となる。測定結果ではStatic法と同様に初期ノイズが測定されるため、ノイズカットが必要となるが、Dynamic法では初期ノイズカットが難しい。このため、測定結果から作成した構造関数、特に $R_{th} = 0 \sim 5$ の範囲にはエラーが含まれている可能性がある。測定時間はStatic法が数分なのに対して、Dynamic法では2時間以上となった。(測定時間が数十秒になっているが、測定を完結的に実施しているため、実際は2時間以上かかっている)。

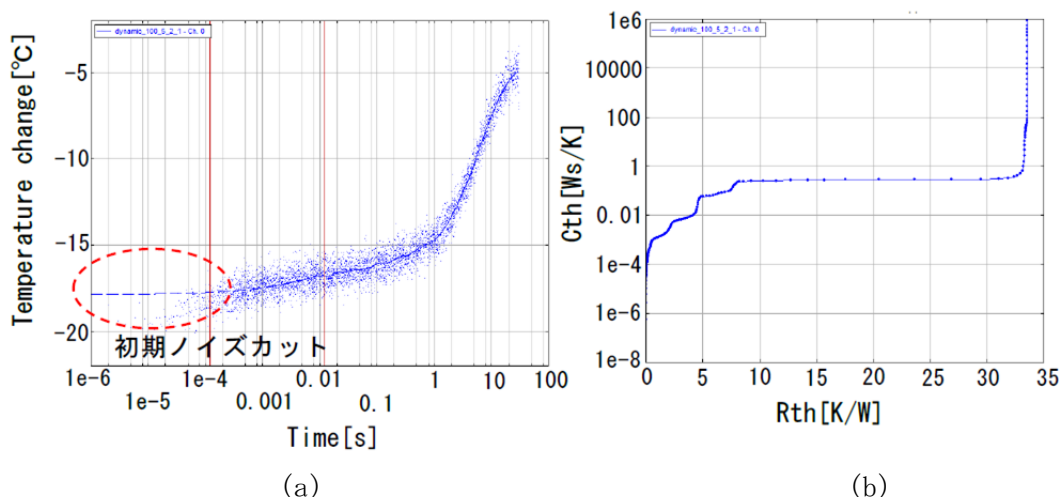
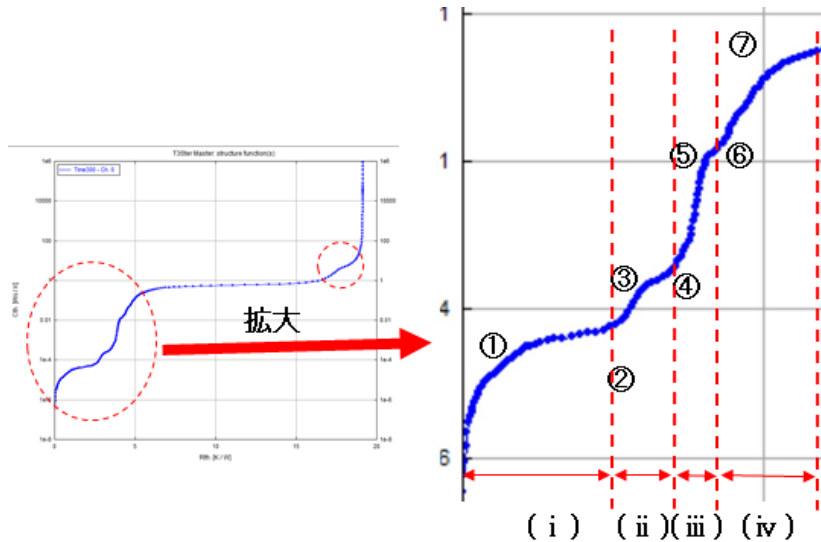


図3.2.12 Dynamic法による測定結果 (a) 冷却曲線の測定結果、(b) (a)の構造関数

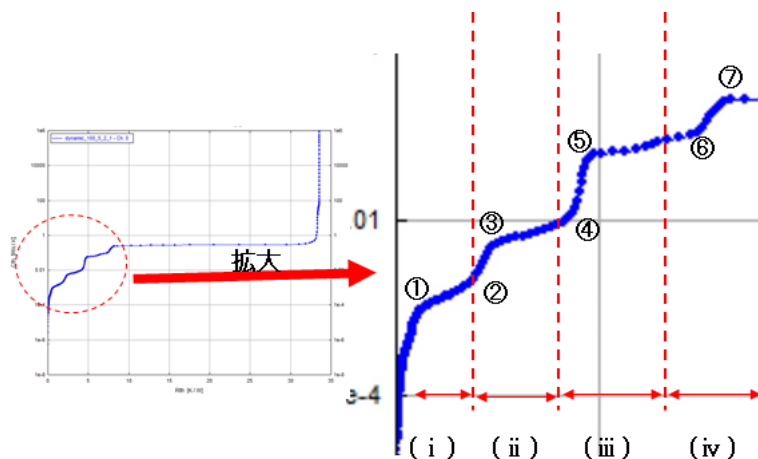
### (7) Static 法と Dynamic 法の比較

Static法とDynamic法を比較するため、構造関数の拡大図を図3.2.13に示す (Static法はTime300)。横軸が $R_{th}$  [K/W]、縦軸が $C_{th}$  [Ws/K]である。両者とも $R_{th} = 0 \sim 10$ に情報が集中している。この部分を拡大してみると、変曲点の数はStatic法もDynamic法も7個であり、4つの部位からなっていることがわか

る。情報量ではStatic法はDynamic法と同程度であることが確認できた。また、Static法ではすでに述べたように $R_{th} = 18$ 付近にDynamic法には見られない変曲点があり、Static法独自の情報が含まれている。さらに、Dynamic法ではノイズカットが困難で構造関数にエラーが含まれている可能性があり、特に $R_{th} = 0 \sim 5$ の信頼性がやや低い。よって、Static法は信頼性の高い妥当な量の情報が含まれた手法であるということが明らかになった。



(a) Static法により得られた構造関数 (Time300) の変曲点の数と部位の数



(b) Dynamic法により得られた構造関数の変曲点の数と部位の数

図3.2.13 Static法、Dynamic法により得られた構造関数の変曲点の数と部位の数

測定結果の信頼性と妥当性、T3Sterによる取り扱いの簡便さ、測定時間が圧倒的に短いことなどから、Static法は本研究に非常に適していることが確認できた。

#### まとめ

Static法にて高精度な熱抵抗測定が可能なT3Ster装置を導入し、測定手法を確立した。また、2017年度にLCR解析装置を使って構築した高精度な等価回路モデルから、パルス加熱で熱抵抗測定を行う従来のDynamic法よる測定が可能と判断した。Static法とDynamic法の比較から、Static法の妥当性を確認した。

### 3.2.1.2 熱伝導の定量による構造検討（端面発光型 QCL）

熱抵抗を低減し、放熱性の高い素子構造を開発するため、3種類の素子構造で熱解析シミュレーションを行った。これらに対応する構造のQCLを東芝にて試作し、Statics法<sup>[3.2.4]</sup>で熱抵抗を測定した結果、2.5 °C/W以下の熱抵抗が得られ、中間目標である4 °C/Wを達成した。

#### (1) 構造・埋め込み材質による熱抵抗

##### (A) シミュレーションによる評価

熱解析シミュレーションにより、図3.2.14に示す3種類の端面発光型QCLで冷却構造の温度上昇を測定した。

(a)は開発当初のQCL構造で、レーザ励起部を含む凸部のリッジを、膜厚200 nmのSiO<sub>2</sub>でカバーした構造である。レーザ励起部(MQW Multiple Quantum Well)で発生した熱は、InP基板を介してマウントに伝熱するとともに、SiO<sub>2</sub>膜を介して大気中に放熱される。

(b)はSiO<sub>2</sub>カバーをなくし、リッジの周囲を膜厚10 μmのCuで埋込んだ構造である。レーザ励起部の熱は、InP基板を介してマウントに伝熱されるとともに、周囲のCuに伝達されて大気中に放熱される。

(c)はリッジの周囲を膜厚10 μmのInPで埋め込み、リッジ側をマウントに半田付けした構造である。レーザ励起部で発生した熱は、InPを介してマウントに電熱される。

(a)と(b)のリッジは、上方向を向いていることから、エピトップ構造と呼ばれる。一方、(c)では、リッジが下方向を向いており、エピサイドダウン構造とよばれている。

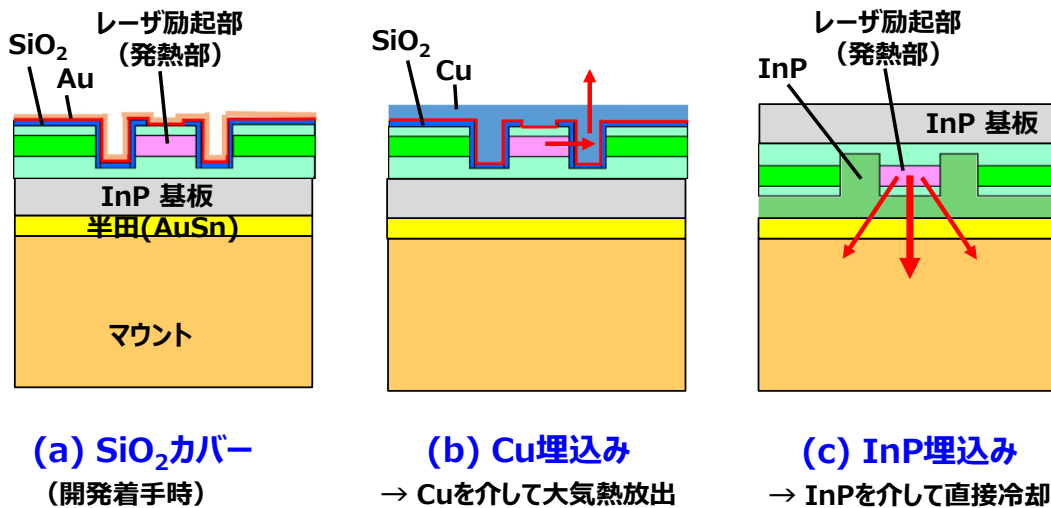


図 3.2.14 端面発光 QCL の冷却構造

熱解析のシミュレータには熱気流解析ソフトFloTHERMを用いた。シミュレーションモデルを図3.2.15(a)に示す。マウントは長さ4 mm×幅4 mm×高さ3 mmのCu/Wで、InP基板は長さ4 mm×幅1 mm×厚さ0.6 mmである。計算の境界条件としては、0 °Cで冷却し、リッジ部のレーザ励起部に10 Wの電力を投入した。解析は、レーザ励起部が過熱され、自然対流が発生するという自然対流モデルで行っている<sup>[3.2.5]</sup>。(b)は、SiO<sub>2</sub>カバーの計算結果で、マウント部の温度はほとんど上昇せず、温度上昇がリッジ部に限定されていることがわかる。

図3.2.14に示した3種類の構造で、リッジ部の最高温度を計算した。この結果を、図3.2.16に示す。SiO<sub>2</sub>カバー構造では120 °C近い温度上昇が、Cu埋め込み構造では55 °C、InP埋め込み構造では38 °Cに低下することがわかる。QCL構造を、SiO<sub>2</sub>カバー、Cu埋め込み、InPへ改良することで、温度上昇が低下し、熱抵抗を低減できることがわかる。また、投入電力が10 Wで、温度上昇が38 °Cであることから、マウントを含むデバイス全体の熱抵抗は、38 °C/10 W=3.8 [°C/W]となる。

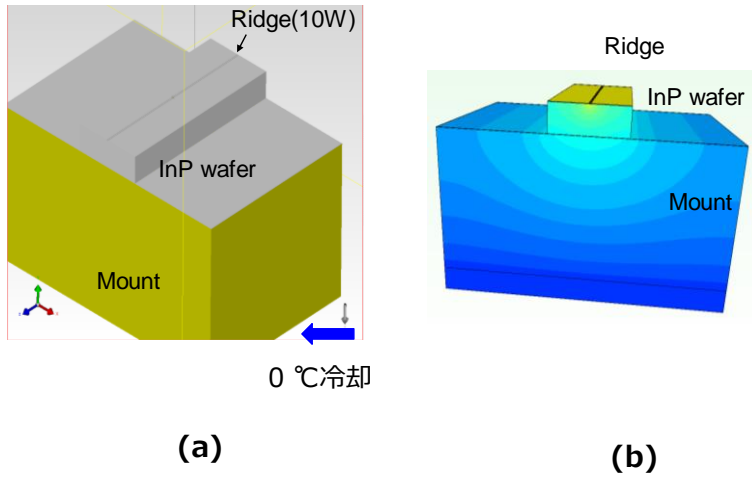


図 3.2.15 熱気流解析のシミュレーションモデル

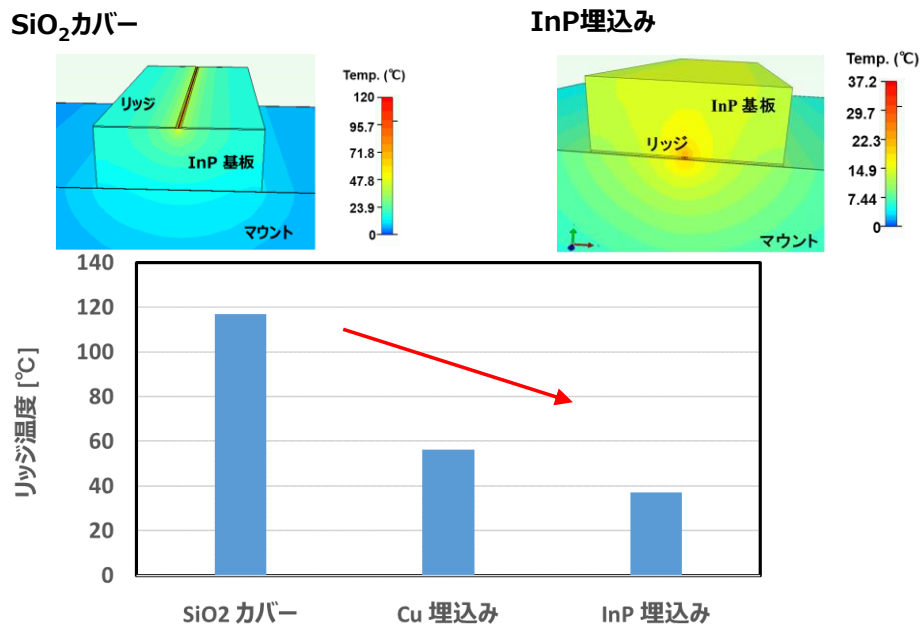


図 3.2.16 3種類の構造でのシミュレーション結果

### (B) 試作 QCL の測定

熱解析シミュレーションから、QCLの熱抵抗はSiO<sub>2</sub>カバー>Cu埋め込み>エピサイドダウンのInP埋め込みの順で大きく、放熱性はその逆でエピサイドダウンのInP埋め込み>Cu埋め込み>SiO<sub>2</sub>カバーの順となることが示された。

この3種類の構造の素子を試作し、熱抵抗を測定、比較した。図3.2.17は試作したSiO<sub>2</sub>カバー構造素子の外観写真である。Statics法と構造関数を使って、試作した3素子の熱抵抗を測定した。Static法の測定には、図3.2.5のT3Sterを用いた。

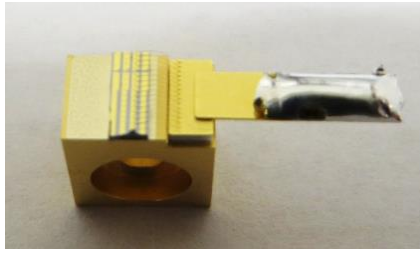


図 3. 2. 17 SiO<sub>2</sub>カバー構造の試作 QCL

SiO<sub>2</sub>カバー構造素子の測定結果を図3. 2. 18に示す。上段がQCLの断面図、下段が構造関数である。測定結果の変曲点が、デバイス構造の変化点（界面）を示している。上段の図に示すように、SiO<sub>2</sub>カバー素子は、レーザ励起部（発熱部）を起点として、①基板界面まで、②半田界面まで、③マウント界面まで、④マウント端部までに領域分けができる。図3. 2. 18では、構造関数の変曲点と、これら①～④との対応関係も示している。

①～④の熱抵抗では、熱源に近いという点から①の熱抵抗が最も重要である。この熱抵抗が大きくと、②～③の熱抵抗が小さくても、熱抵抗は①の熱抵抗で決まる。したがって、この部分の熱抵抗が重要であり、中間評価の目標値4.0 °C/Wもここで定義した。なお、熱抵抗の単位として、使用するソフトウェアにより熱解析では°C/W、T3SterではK/Wと表示される。単位は異なるが、両者は同じ値である。

図3. 2. 18のSiO<sub>2</sub>カバーでは、①の熱抵抗が6.6 °C/Wとなっている。他の構造で同様な測定を行った結果を、図3. 2. 19に示す。(b)がCu埋め込み構造で、(c)がInP埋め込みであり、比較のため、図3. 2. 19の図を(a)に再掲した。レーザ励起部からInP基板界面までの熱抵抗は、(a)のSiO<sub>2</sub>カバーで6.6 °C/W、(b)のCu埋め込みで4.8 °C/W、(c)のInP埋め込みで2.5 °C/Wとなった。それぞれの冷却構造での熱抵抗は、熱解析シミュレーションで見積もられたように、(a)SiO<sub>2</sub>カバー>(b)Cu埋め込み>(c)エピサイドダウンのInP埋め込みとなった。これらの結果から、QCLの冷却構造は、(c)エピサイドダウンのInP埋め込みとすることに決定し、中間評価目標である熱抵抗4.0 °C/W以下を達成した。

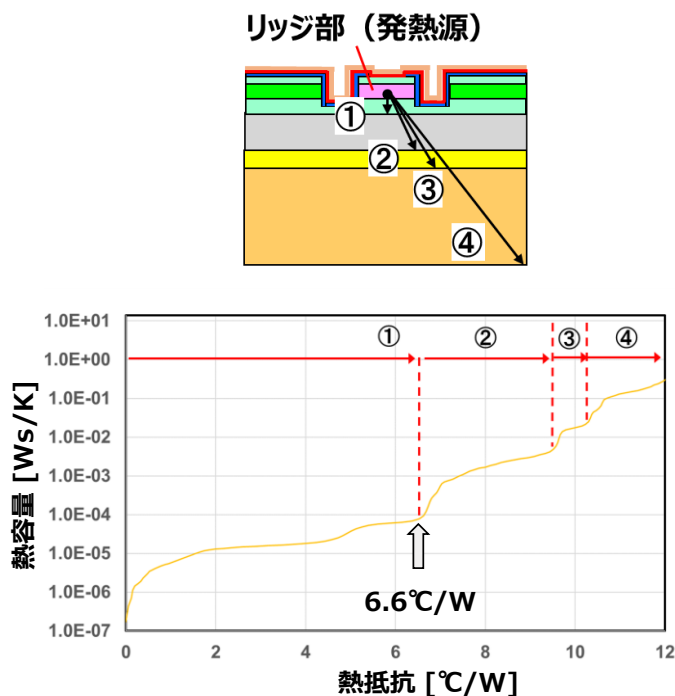
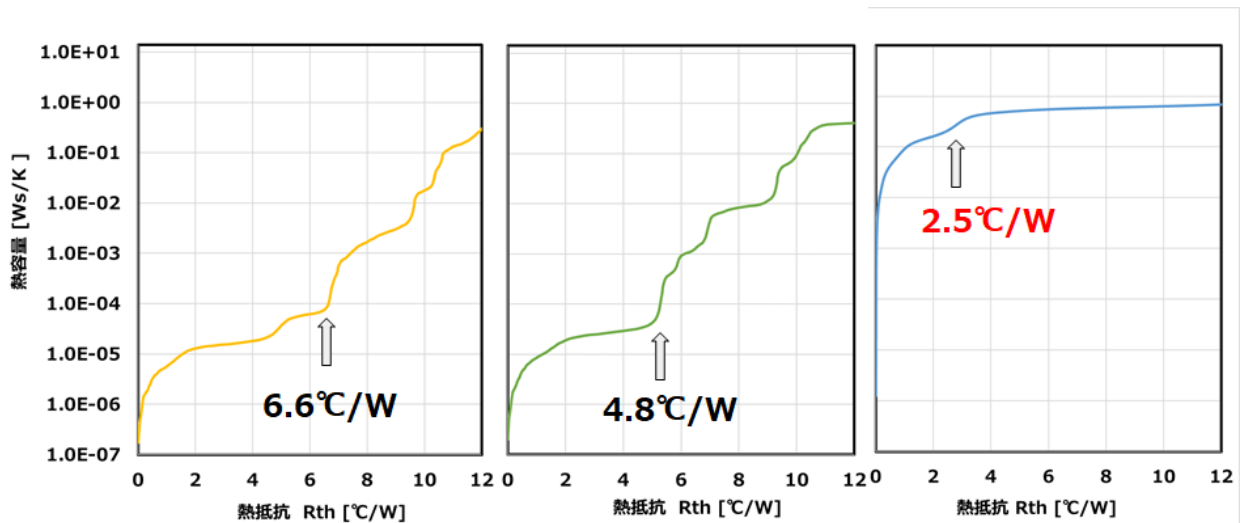


図 3. 2. 18 構造関数による熱抵抗の切り分け



(a) リッジ部 SiO<sub>2</sub>カバー (b) リッジ部 Cu埋込み (c) リッジ部 InP埋込み

図 3.2.19 3 種類の構造の構造関数

(2) サブマウントの検討

前述した(1)のQCLでは、活性層が形成されたInP基板を、Cu/Wマウントに半田付けてしている。リッジ部の放熱性向上のため、高熱伝導サブマウントとして多結晶ダイヤモンド材の適用を検討し、シミュレーションによる評価を行った。計算対象としたのはリッジをCuで埋め込んだ構造のQCLで、InP基板の厚み120 μm、サブマウントの多結晶ダイヤモンドは、熱伝導率が2000 °C/Wとした。解析結果を図3.2.20に示す。サブマウント無しのリッジ部温度は42.5 °C、サブマウント有りでは、36.9 °Cと、サブマウントの効果が確認された。

Static法による熱抵抗の測定で、基板までの熱抵抗はともに4.8 °C/Wとなった。図3.2.18の断面図で、リッジ部からCu/Wマウントまで熱抵抗(図3.2.18の③)が、サブマウントに多結晶ダイヤモンドを用いることで、低下することにより、リッジ部の温度が低下したと考えられる。

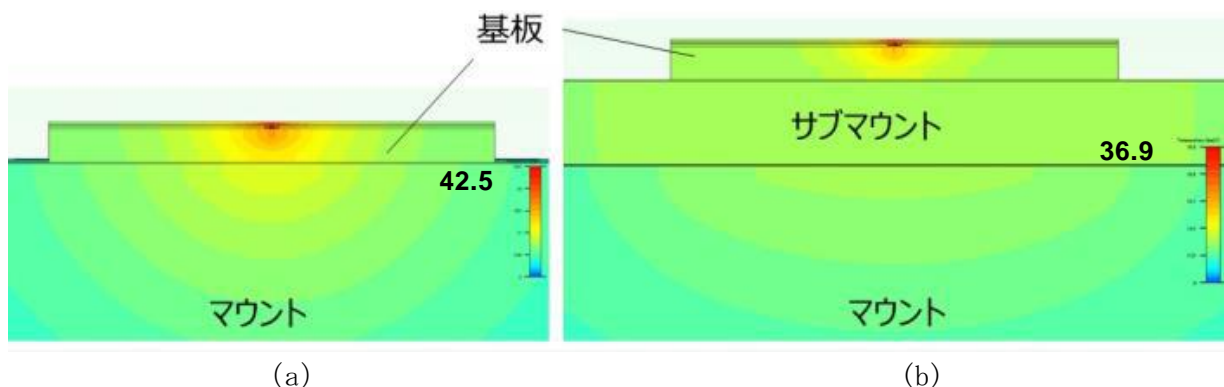


図 3.2.20 サブマウントによる放熱性向上  
 (a)サブマウント無し, (b)ダイヤモンドサブマウント



### 3.2.1.3 面発光型素子への測定及び構造検討の適用

本プロジェクトでは試作した面発光型の QCL で、2019 年度に発振を確認している。面発光型 QCL の放熱部分が広いことで、端面発光型 QCL に比べ、高い放熱性が期待できる。面発光型の QCL 素子について、埋込材を変えた素子を試作し、それぞれの熱抵抗を測定するとともに、埋込材によって熱伝導がどのように変化するか、実験的と 3D 熱解析シミュレーションで検証した。

#### (1) 面発光型 QCL の測定手法の検討

本プロジェクトで最終目標としている面発光型QCLに対し、2018年度に確立したStatic法（冷却法）<sup>[3.2.4]</sup>を適用し、面発光型QCLの測定を試みた

#### (A) 測定した面発光型QCLの構造

東芝にて試作している面発光型QCLを用いて、熱抵抗及び構造関数の測定を行った。測定した面発光型QCLの構造を図3.2.21に示す。(a)は断面図、(b)は斜め上から見た図、(c)が斜め下から見た図である。厚み600 $\mu\text{m}$ のInP基板の上にレーザ光を放出するメサ部とダミーリッジが形成される。メサ部は、レーザを励起するレーザ励起部(MQW)の上にInPが製膜され、その上にフォトリソグラフィで形成されたフォトニック結晶が形成され、Auなどの金属で埋め込まれる。InP基板の反対側には、電流供給のためのAu電極が形成される。面発光型デバイスは、メサ、ダミーリッジ側がCu/Wマウントに実装され、エピソードダウン構造がとられる。図3.2.22は、測定に用いた面発光型QCLの外観写真で、InP基板の上にメサ、ダミーリッジが形成されているのが観察される。

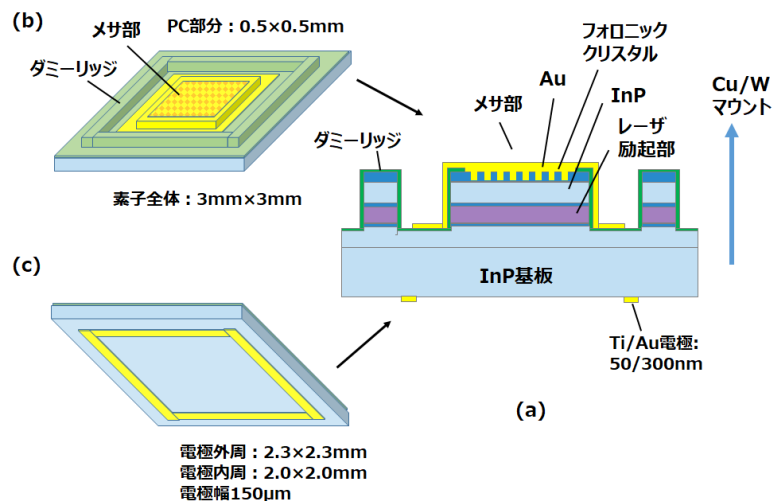


図 3.2.21 面発光 QCL の構造 (a)断面図、(b)斜め上から見た図、(c)斜めから見た図

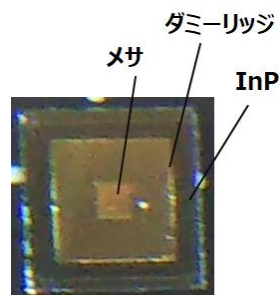


図 3.2.22 面発光 QCL の試作素子

(B) 面発光型QCLの測定手法検討

Static法での面発光型QCLの測定装置としては、図3.2.5に示すT3Sterを用いた。測定に当たって、温度係数を測定した。QCL素子の温度を変化させ、熱抵抗測定のための基礎データ、つまり各温度での微小電流とQCL素子の端子電圧との関係(温度係数、K factor)を測定した。温度係数測定では、図3.2.6に示すT3Sterの恒温槽内部にQCLを設置して測定した。

図3.2.22の面発光型QCLをマウントしたデバイスで、K-factorを測定した結果を図3.2.23に示す。横軸が温度[°C]、縦軸が電圧[V]である。温度は20~80 °Cの範囲で変化させ、10 °C刻みで電圧を測定した。60~80 °Cで素子が破損し、この区間の測定結果が得られなかった。回帰直線とK-Factorは20~50 °Cのデータだけで求めた。R<sup>2</sup>値は0.996885だったので、精度としては十分である。K-factorの値は-0.032167 V/°Cだった。2018年度に実施した端面発光型QCLのK-factorは-0.02364 V/°Cであり、絶対値では面発光型QCLの方が高いK-factorとなった。

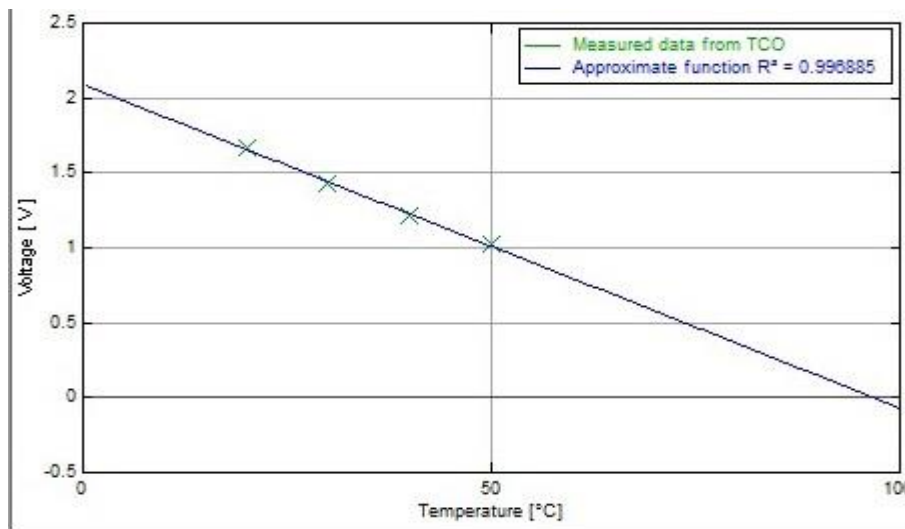


図 3.2.23 K-factor 測定結果

図3.2.22の面発光型QCLで、熱抵抗の測定を行った。表3.2.5に示す端面発光型QCLの測定条件をもとに、条件を変更しながら測定条件の適正化を行った。この結果、表3.2.5に示す条件が得られた。表3.2.5には、比較のため、端面発光型での測定条件も記載した。端面発光型素子では、通常、測定電流1 mA、加熱電流100 mAで測定するが、面発光型素子は端面発光型素子に比べて体積が大きいので、測定電流を5倍、加熱電流を2倍にしている。

表 3.2.5 過渡熱測定条件

	端面発光型 QCL	面発光型 QCL
測定電流	1mA	5 mA
加熱電流	100mA	200 mA
測定時間	30 秒	30 秒
加熱時間	30 秒	30 秒
温度係数	-0.023640 V/°C	-0.032167 V/°C
恒温槽	25 °C	25 °C

面発光型素子の構造関数を図3. 2. 24に示す。横軸が熱抵抗[K/W]、縦軸が熱容量[Ws/K]である。面発光型QCLの素子全体の熱抵抗の値が～2. 3 K/Wと端面発光型素子に比べて非常に小さくなっている。

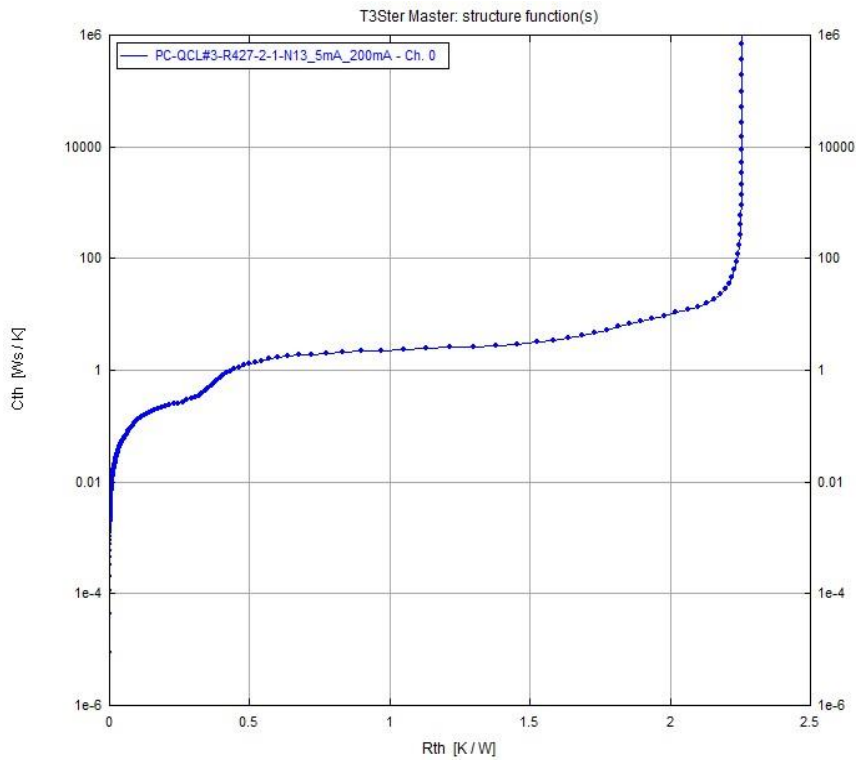


図 3. 2. 24 面発光素子の構造関数

今回の測定結果から、面発光型QCLの測定方法を確立できた。しかしながら、今回の面発光型QCLは初期の試作デバイスであり、試作プロセスも十分には確立できていなかった。プロセスが確立した面発光型QCLを使って、(2)以降で詳細な測定を行った。

## (2) Au 埋込みと InP 埋込みの熱抵抗比較

### (A) 素子構造

試作した埋込材が異なる QCL 素子の断面図を図 3. 2. 25 に示す。(a)は埋込みに InP を用いた素子、(b)は Au を埋込みにして用いた素子の構造である。InP 材で埋込むのがこれまでに論文報告されている方式<sup>[3. 2. 6]</sup>、Au で埋込むのが本プロジェクトで検討している方式である。熱伝導率は Au の方が高く、高い放熱性が期待できる。測定した素子の外観写真を図 3. 2. 26 に示す。(a)は埋込みに InP を用いた素子、(b)は Au を埋込みにして用いた素子の構造である。

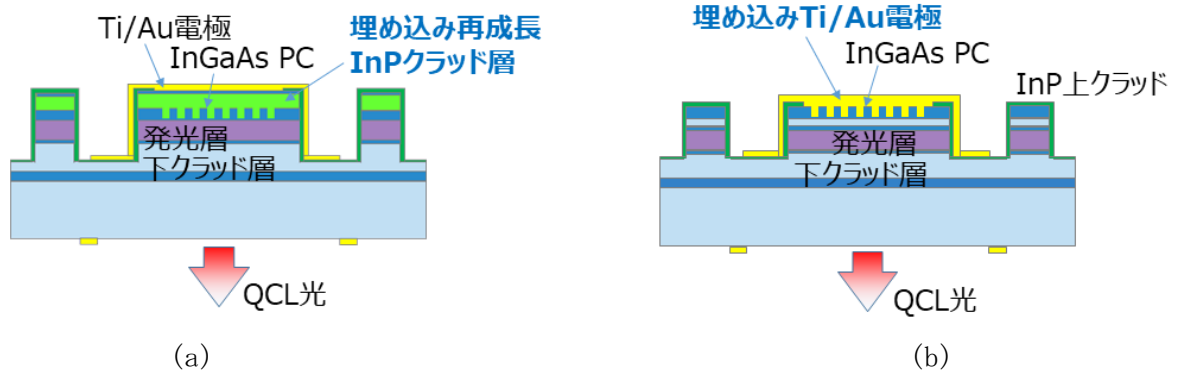


図 3.2.25 面発光型 QCL の構造。(a) InP 埋込み構造、(b) Au 埋込み構造



図 3.2.26 面発光型 QCL の外観写真 (a) InP 埋込み構造、(b) Au 埋込み構造

(B) K-factor の測定

K-factor と過渡熱測定は T3Ster により行った。まず、過渡熱測定に必要な K-factor を測定した。温度範囲は 20~70 °C (10 °C 刻み) で、高温側から順に測定する方法 (Downwards) で測定した。測定電流は 5 mA、加熱電流は 200 mA である。結果を図 3.2.27 に示す。InP 埋込と Au 埋込の値はそれぞれ  $-0.022772 \text{ V/}^\circ\text{C}$  と  $-0.024772 \text{ V/}^\circ\text{C}$  となった。

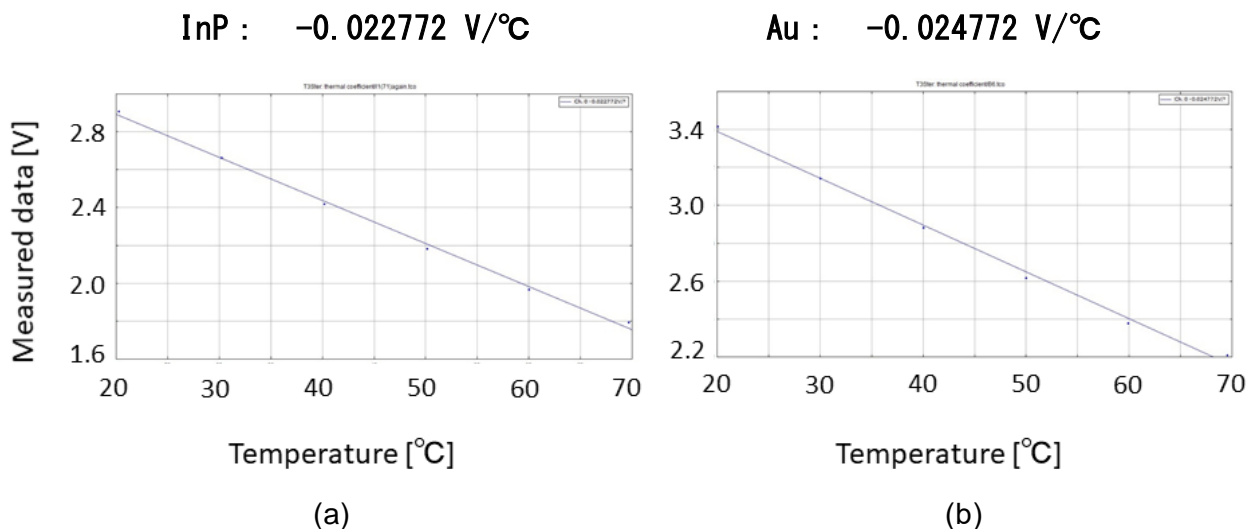


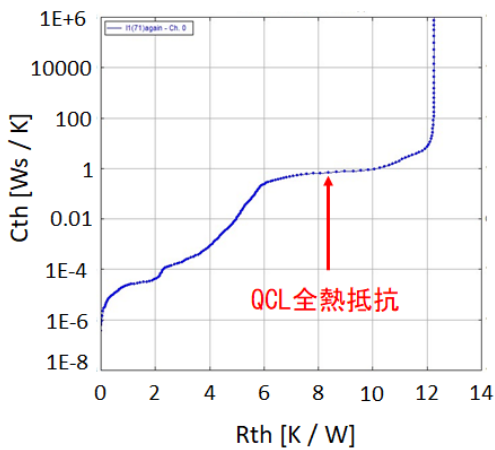
図 3.2.27 K-factor の測定結果。(左) InP 埋込み、(右) Au 埋込み

### (3) 構造関数の測定

Static 法は素子を加熱後、冷却時の電圧電流特性から熱抵抗を測定する方法である。測定時間が短く、再現性に優れている。Static 法で端面発光型 QCL の熱抵抗を測定する方法について 2018 年度、2019 年度に報告してきた。本研究では Static 法により面発光型 QCL の過渡熱測定を行い、その結果から構造関数（熱抵抗対熱容量のプロファイル）を求めた。

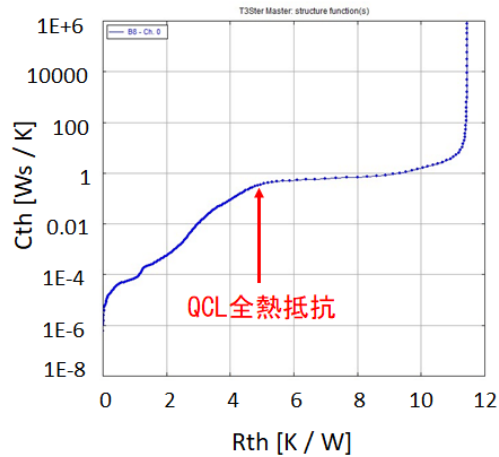
図 3.2.28 に得られた構造関数を示す。(a) が InP 埋込み、(b) が Au 埋込みである。熱抵抗は、InP 埋込みは 8.0 K/W、Au 埋込みは 4.8 K/W となり、Au 埋込のほうが小さくなった。InP と Au の熱伝導率は、InP が 68 W/mK、Au が 296 W/mK である。得られた QCL 素子の熱抵抗値はこれらが反映された結果となった。

InP埋込み 熱抵抗：8.5 K/W



(a)

Au埋込み 熱抵抗：4.8 K/W

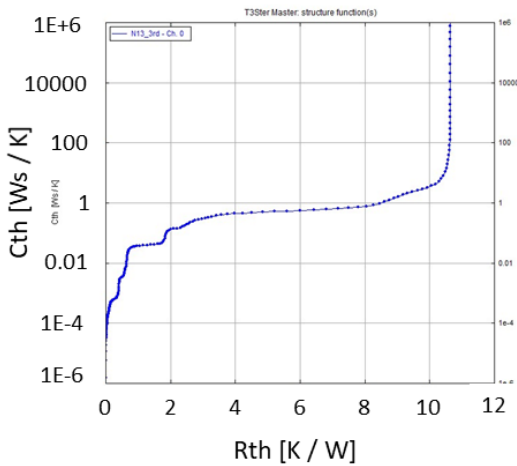


(b)

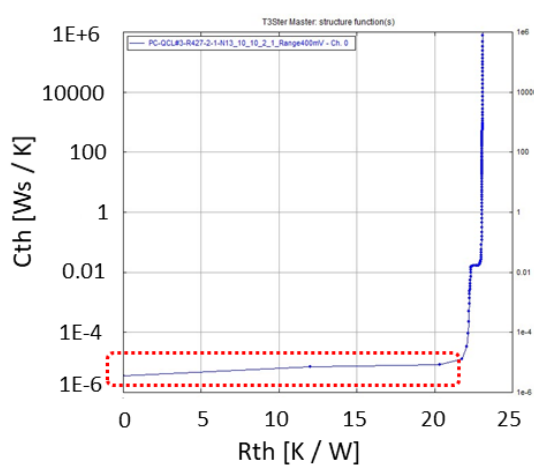
図 3.2.28 面発光 QCL 素子の構造関数。(a) InP 埋込み、(b) Au 埋込み

### (4) Static 法と Dynamic 法の比較

2019 年度までに InP 埋込みの端面発光型 QCL 素子の構造関数を Static 法と Dynamic 法によって測定した。2020 年度は面発光型 QCL 素子の構造関数を同様に Static 法と Dynamic 法により測定した。その結果を図 3.2.29 に示す(a)左が Static 法、(b)が Dynamic 法である。Static 法で



(a)



(b)

図 3.2.29 面型発光素子の構造関数。(a) Static 法、(b) Dynamic 法

は問題なく構造関数を描くことに成功したが、Dynamic 法では赤の点線で示すように測定値が異常となった。面発光型素子は Dynamic 法では測定不可能と考えられる。今後は、面発光型 QCL の構造関数は Static 法で求めることにした。

まとめ

面発光型 QCL の K-factor 測定後、熱抵抗を測定した。埋込材が InP の素子は 8.5 K/W、Au の素子は 4.8 K/W で、放熱性からは Au 埋込みが有利であった。面発光型 QCL では Static 法での構造測定は可能であったが、Dynamic 法では測定できなかった。

#### (5) 面発光型素子での熱抵抗切り分け

面発光型 QCL の熱抵抗を要素部品毎に抽出する手法の確立を目指す。InP 埋込みの面発光型 QCL 素子を図 3.2.30 に示す。この素子の熱抵抗を Static 法で測定する。

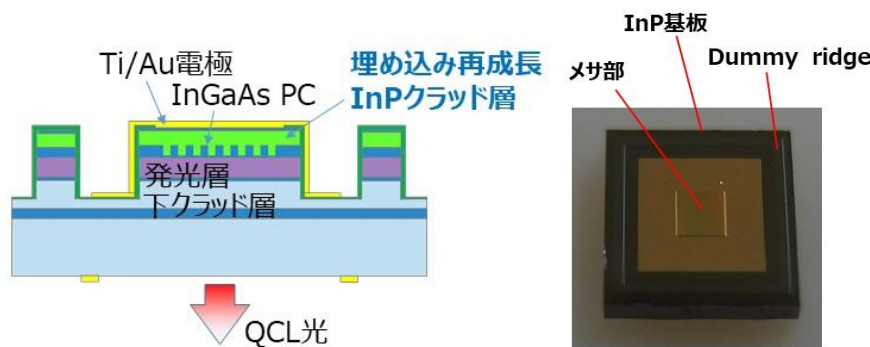


図 3.2.30 InP 埋込構造の断面図 (左) と上から見た図 (右)

構造関数の測定に当たって、K-factor は図 3.2.27 で測定した結果を用いた。すなわち、InP 埋込みは  $-0.022772 \text{ V}/^\circ\text{C}$ 、Au 埋込みは  $-0.024772 \text{ V}/^\circ\text{C}$  とした。測定では QCL マウントの取り付け部を  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  に冷却し、QCL 装置に約  $1.6 \text{ W}$  の電力を供給して加熱した。加熱電源を停止後、冷却時の QCL の温度を測定し、冷却曲線を求めた。QCL を構成する要素部の熱抵抗を  $R_{th}$ 、熱容量を  $C_{th}$  とすると、冷却時の時定数  $\tau$  は次式で表される。

$$\tau = C_{th} \cdot R_{th} \quad (3.2.1)$$

冷却曲線の変曲点から時定数  $\tau$  を抽出し、 $\tau$  から  $R_{th}$  と  $C_{th}$  を求めた。構造関数では、 $R_{th}$  は横軸にプロットされ、 $C_{th}$  は縦軸にプロットされる。

図 3.2.31(a) に InP 埋込み面発光型 QCL の構造関数を示す。構造関数の変曲点から MQW、フォトニック結晶 (PhC)、InP、Cu/W マウントの各要素を切り分けた。このグラフから、InP 埋込み面発光型 QCL 素子では、MQW の熱抵抗が  $2.0 \text{ K/W}$  で全熱抵抗は  $8.5 \text{ K/W}$  と見積もられる。また、同様な手法で、図 3.2.31(b) で Au 埋込み面発光型 QCL の構造関数を、MQW、フォトニック結晶 (PhC)、Au、Cu/W に切り分けた。InP 埋込み面発光型 QCL 素子では、MQW の熱抵抗が  $1.2 \text{ K/W}$  で全熱抵抗は  $4.8 \text{ K/W}$  と見積もられる。

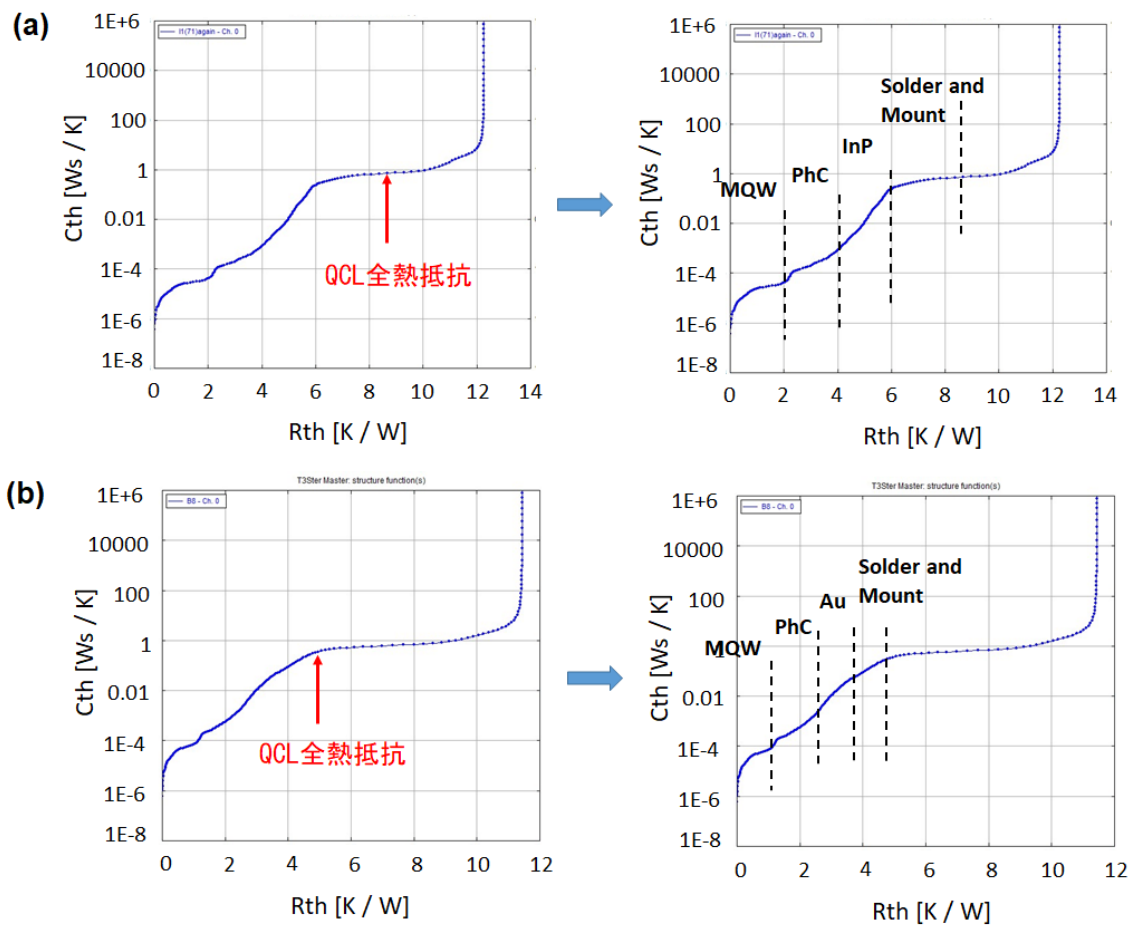


図 3.2.31 InP 埋込みの面発光 QCL 素子の構造関数。変曲点により各要素を切り分けている  
 (a) InP 埋め込み面発光 QCL、(b) Au 込み面発光 QCL

#### まとめ

InP 埋込みと Au 埋込みの面発光型 QCL 素子の構造関数を測定し、熱抵抗を MQW、PhC、InP、マウントに切り分けた。InP 埋込みと Au 埋込みの面発光型 QCL 素子の全熱抵抗は、それぞれ、8.5 K/W、4.8 K/W となった。

### 3.2.2 熱解析モデルの構築

#### 3.2.2.1 3D 熱解析シミュレーション

##### (1) 端面発光型 QCL の熱解析シミュレーションモデルの構築

[FloTHERMから構造関数の抽出]

東芝で試作したQCLを解析対象として、FloTHERMによる構造関数の計算を行った。素子構造を、図3.2.32(a)に示す。InP基板の上にレーザ光が励起されるリッジ部を形成し、Cu/Wマウントに半田付け実装されている。InPの基板厚は600  $\mu\text{m}$ 、レーザを励起するリッジ部の厚みは10  $\mu\text{m}$ とし、素子の長さは4 mmとしている。

この構造のQCLで、FloTHERMの3次元モデルを構築し、構造関数を求めた。また、Static法により構造関数を測定し、両者を比較した。図3.2.32(b)は、このQCL構造をFloTHERM上で3次元モデル化した構造図である。

FloTHERMでは構造関数を求めるにあたり、電力パルスでリッジ部を加熱し、計算対象の温度分布を求める。図3.2.12(a)は電力パルスを加えて温度上昇させるDynamic法で、熱の過渡解析を行い、経過時間と温度変化との関係を求める。計算に用いた加熱時間の推移を図3.2.33に示す。横軸は経過時間を示し、縦軸は基本時間の刻み幅を示している。基本時間は、 $10^{-6}$  秒から10秒まで指数関数的に増やし、基本時間を分割した時間系列で計算している。例えば、経過時間が1秒となったところで、基本時間は1となり、時間刻みは0.25、0.5、0.6・・・なる。この時間幅の経過時間として、1～1.25秒、1.25～1.75秒、1.75～2.35秒・・・と計算時間が決定される。

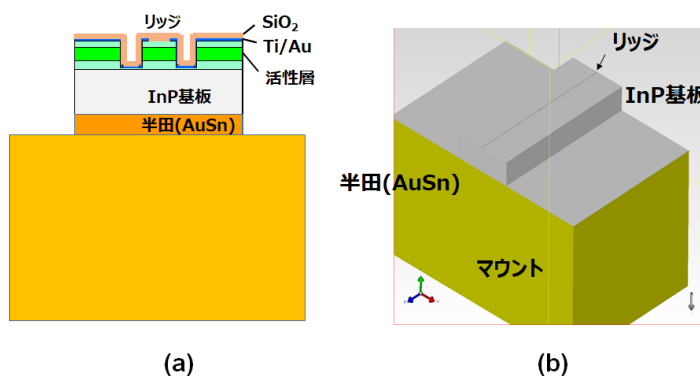


図 3.2.32 構造関数の計算モデル (a)QCL 構造、(b)FloTHERM の 3 次元モデル

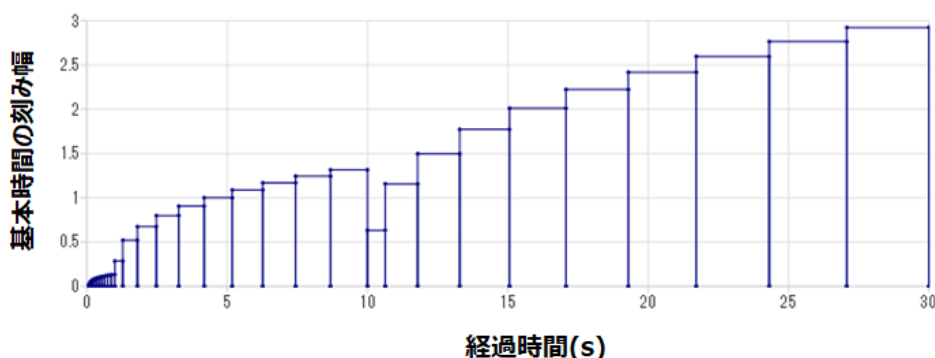


図 3.2.33 FloTHERM で構造関数を計算する過渡熱解析の時間列

こうした過渡熱解析から、構造関数を求めたのが図3.2.34である。図にはFloTHERMで得られた構造関数と、比較のため、T3Sterで測定した構造関数及びその微分関数が示されている。FloTHERMの構造関数で2段階の関数となっており、点線より左側 (i) がリッジからInP基板までの熱抵抗、右側 (ii)



が半田とCu/Wの熱抵抗となっている。QCLの冷却に重要なInP基板までの熱抵抗は、FloTHERMで約5~6 K/W、実測で7~9 K/Wとなった。

FloTHERMの値が幾分小さくなっているが、一連の流れで、FloTHERMの3次元モデルから、熱抵抗を抽出できることが実証できた。今後、新しい構造のQCLや面発光型構造のQCLなどを、試作する前に熱抵抗を予測できる計算手法を確立できた。

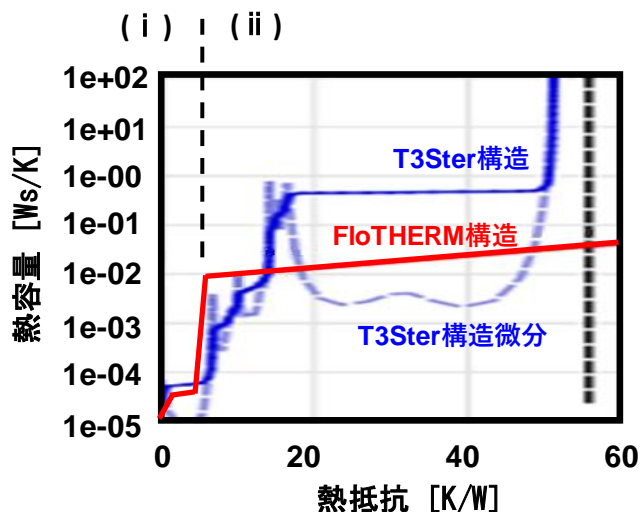


図 3. 2. 34 T3Ster の構造関数と FloTHERM の構造関数の比較

(2) 端面発光型QCLの解析結果

東芝で試作した3種類のQCL構造で、熱解析結果と実測値を比較し、シミュレーションモデルの精度を高めることを目的とした。シミュレータには熱気流解析ソフトFloTHERMを用いた。

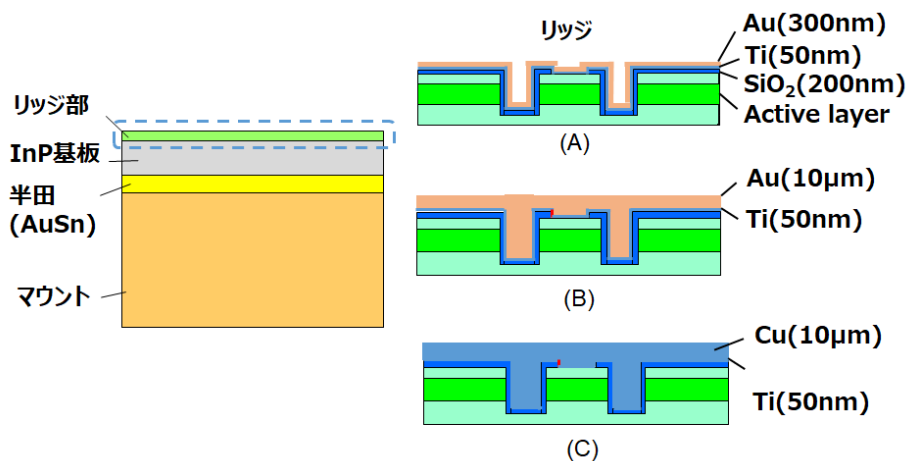


図3. 2. 35 試作した3種類のQCL構造  
(A) SiO<sub>2</sub>被覆、(B) Au埋め込み、(C) Cu埋め込み

3種類のQCL構造を図3. 2. 35に示す。レーザ励起されるリッジ部をInP基板上に形成し、Cu/Wマウントに半田付けした構造である。リッジ部は(A)から(C)の3種類とした。(A)はリッジ部をSiO<sub>2</sub>で覆い薄いTiとAuを成膜した構造、(B)は(A)の上を10µmのAuでリッジ埋め込んだ構造、(C)は(A)の上を10 µmのCuで埋め込んだ構造である。投入電量は3 Wで冷却温度は10 °C、基板厚を600 µmとした。

(B) Auカバーの構造のシミュレーション結果は、図3. 2. 36のようになった。熱はリッジ部で発生し、Cu/W

マウントに伝搬している。温度が高い各構造でのリッジ部（赤線部内）の温度分布を拡大した結果を図3. 2. 37に示す。(B)と(C)のAuとCuでリッジを埋め込んだ構造は、SiO<sub>2</sub>でカバーした構造(a)に比べて、リッジ部の温度が低くなっている。(B)、(C)では、AuとCuがリッジの両側に埋込まれており、この部分を通して熱が放熱されると推定される。

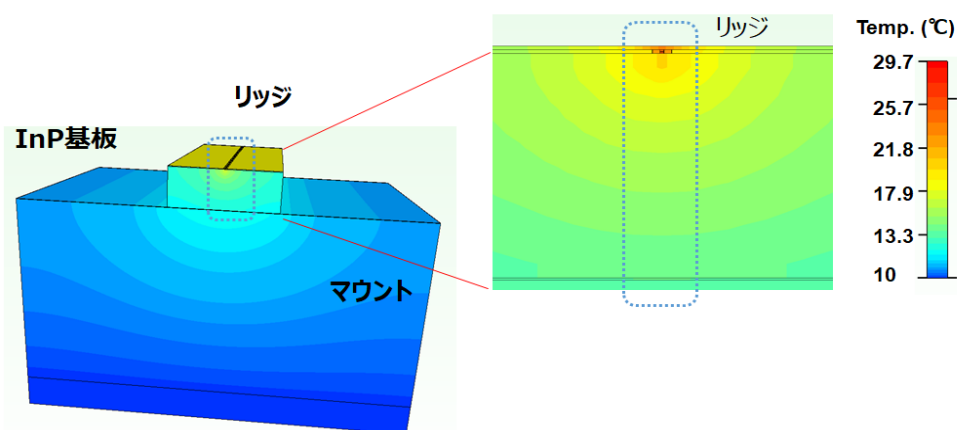


図3. 2. 36 Au埋め込み(B)構造のシミュレーション結果、赤線部内がリッジ部

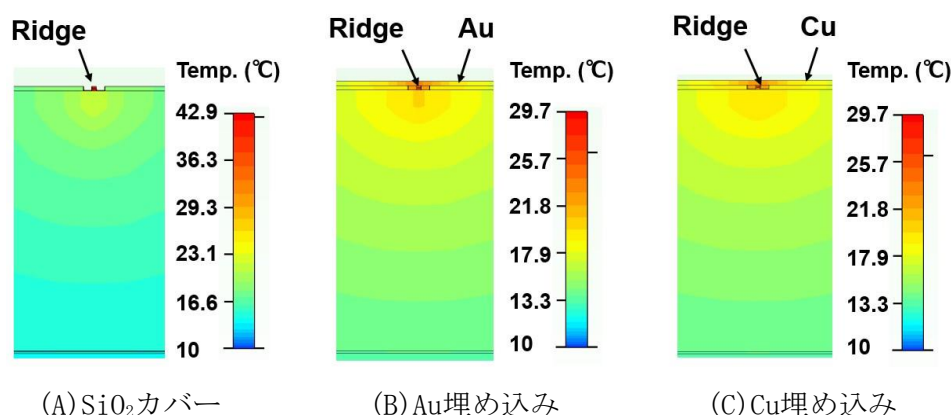


図3. 2. 37 各構造のリッジ部の温度分布のシミュレーション結果

次にシミュレーション結果と比較するため、実際の素子の温度測定について述べる。図3. 2. 38に示す実験系で、サーモビューワによる実験を行った。サーモビューワにはマイクロレンズを取り付け、空間分解25 μmでの測定が可能となっている。また、サーモビューワでは、測定対象の放射率で温度校正を行う。今回の測定では、注目しているInP基板で温度校正を行っている。

測定結果を図3. 2. 39に示す。(a)は動作前の電力を投入していない温度分布、(b)はシミュレーションと同じ3 Wの電力を投入した温度分布である。電力投入した(b)では、InP部の測定結果が青から水色に変化しており、この部分で温度上昇していることが分かる。

図3. 2. 39でリッジ直下を“X”、半田の直上を“+”として、この2点での温度をT<sub>x</sub>、T<sub>+</sub>とした。2点間の温度差ΔTを、図3. 2. 39の実測と図3. 2. 37のシミュレーションで、式(3. 2. 2)で定義した。

$$\Delta T = T_x - T_+ \quad (3. 2. 2)$$

リッジ部への電力を0~4 Wで変化させ、図3. 2. 35に示した(A)~(C)の構造で実測とシミュレーションでΔTを求めた。この結果が図3. 2. 40で、(a)が測定結果、(b)がシミュレーションである。測定結果よ

り、構造(B)、(C)に対して、構造(A)の温度差が大きくなるという測定の傾向を、シミュレーションで再現できた。ただし、絶対値はシミュレーションの方が低くなった。実験とシミュレーションでの測定位置が必ずしも一致していないことが一因と推定される。

今回の結果から、東芝での実測と熱解析シミュレーションの結果を比較し、測定結果を定性的に再現できるモデルを構築できた。

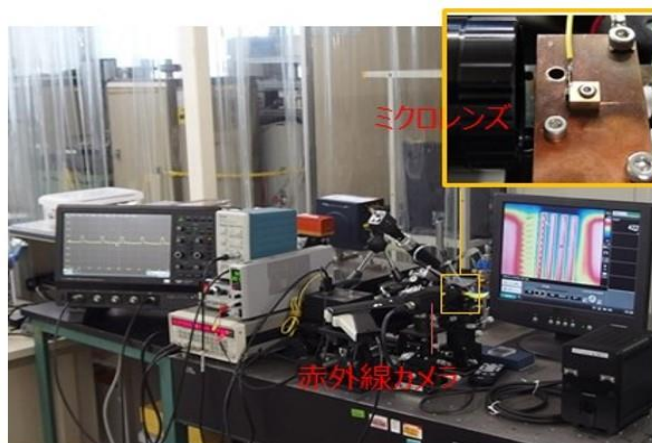
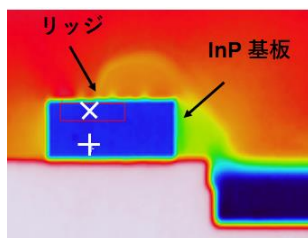
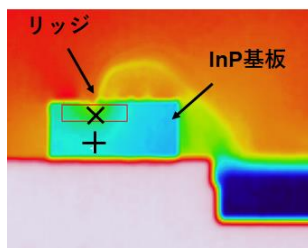


図3.2.38 温度測定系（サーモビューワ）

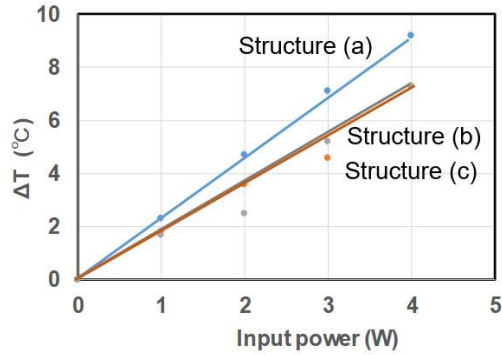
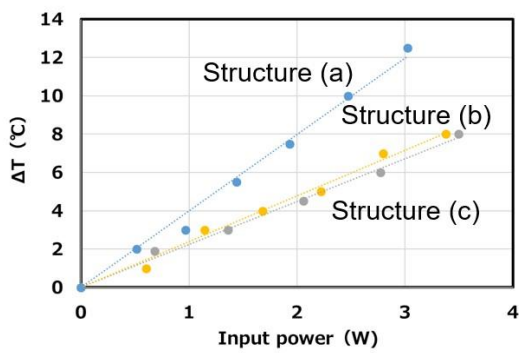


(a) 動作前



(b) 3W入力

図3.2.39 サーモビューワによる測定結果



(a) 測定結果

(b) シミュレーション結果

図3. 2. 40 各構造の測定結果とシミュレーション結果

### (3) 面発光型 QCL のモデリング

面発光型QCLの3次元形状、物性データを入力してシミュレーションモデルを構築した。シミュレータには熱気流解析ソフトFlotHERMを用いた。解析は、レーザ励起部が過熱され、自然対流が発生するという自然対流モデルで行っている<sup>[3.2.5]</sup>。

図3. 2. 41の面発光型QCLの形状寸法を入力し、3次元の形状モデルを構築した。試作したQCLは、厚み600 μmのInP基板の上にレーザ光を放出するメサ部とダミーリッジが形成される。メサ部は、レーザを励起する活性層（レーザ励起部）の上にInPが成膜され、その上にフォトニック結晶が形成され、Auで埋込まれる。InP基板の反対側には、電流供給のためのAu電極が形成される。面発光型QCLは、メサ、ダミーリッジ側がCu/Wマウントに実装され、エピソードダウン構造がとられる。

この形状を3Dモデルに入力したのが、図3. 2. 41の左側の図である。メサ、ダミーリッジ、InP基板、さらには裏面のAu電極エリアの寸法線が示されており、面発光型QCLの構造が再現されている。熱解析の計算では、この形状モデルをエピソードダウンし、ペルチェ冷却されたCu/Wマウントに、エピソードダウンで実装されたモデルとした。

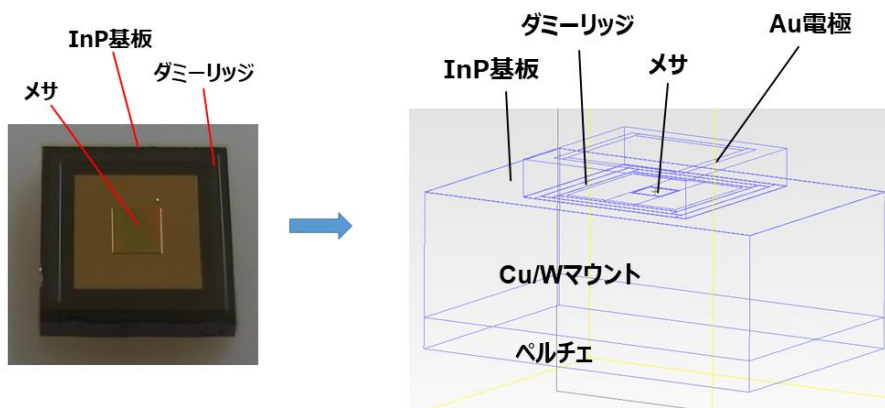


図 3. 2. 41 Au 埋込の面発光型 QCL 素子の 3D 熱解析モデル

この3次元モデルに設定したMQWの物性値の一覧表を表3. 2. 6に示す。レーザ励起部は、 $\text{Al}_{0.638}\text{In}_{0.362}\text{As}$ と $\text{Ga}_{0.331}\text{In}_{0.669}\text{As}$ の薄膜を交互に積層している。2018年度は類似材質の物性値から推定していたが、2019年度に行った再度の調査から、 $\text{Al}_{0.638}\text{In}_{0.362}\text{As}$ の熱伝導率 10.0 W/mK<sup>[3.2.7]</sup>、 $\text{Ga}_{0.331}\text{In}_{0.669}\text{As}$ の熱伝導率 5.6 W/mK<sup>[3.2.8]</sup>が得られた。両者の膜厚から、表3. 2. 6のように積層したレーザ励起部の熱伝導率を計算し、

7.5 W/mKが得られた。レーザ励起部の熱伝導率には、この値を用いた。レーザ励起部以外の部材の熱伝導率は、FloTERMに組み込まれたデータベースの値を用いた。Cu/Wマウント、AuSn半田、InP、SiO<sub>2</sub>、Ti、Au、Cuの熱伝導率は、それぞれ157 W/mK、59 W/mK、68 W/mK、1.38 W/mK、3.2 W/mK、296 W/mK、403 W/mKとした。

温度の境界条件としては、冷却用ペルチェでマウントでは0℃に固定され、面発光型QCLの周囲温度は30℃に設定している。また、電源からの電力はレーザ励起部に投入されると仮定し、レーザ励起部への電力を変化させて温度上昇を計算した。

表 3.2.6 レーザ冷却部の熱伝導率

井戸/障壁	膜材料	熱抵抗率	膜厚 (nm)
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	2.8
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	1.7
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	2.5
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	1.8
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	2.2
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	1.9
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	2.1
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	2.1
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	2
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	2.1
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	1.8
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	2.7
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	1.8
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	3.8
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	1.2
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	1.3
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	4.3
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	1.3
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	3.8
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	1.4
井戸	Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	5.6	3.6
障壁	Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	10.0	2.2
	GaInAs 膜厚		28.1 nm
	AlInAs 膜厚		22.3 nm
	合計膜厚		50.4 nm
	熱伝導率		7.5 W/mK

#### (4) 面発光型 QCL の計算モデル

Au埋込型の面発光型 QCL 素子の 3D 熱解析モデルを構築し、熱気流解析シミュレータ Flotherm より、詳細な熱気流解析を実行した<sup>[3.2.9], [3.2.10]</sup>。解析は、レーザ励起部が過熱され、自然対流が発生するという自然対流モデルで行っている<sup>[3.2.5], [3.2.11]</sup>。ガス流れの式は次式となる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho v_x)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v_y)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho v_z)}{\partial z} = 0 \quad (3.2.3)$$

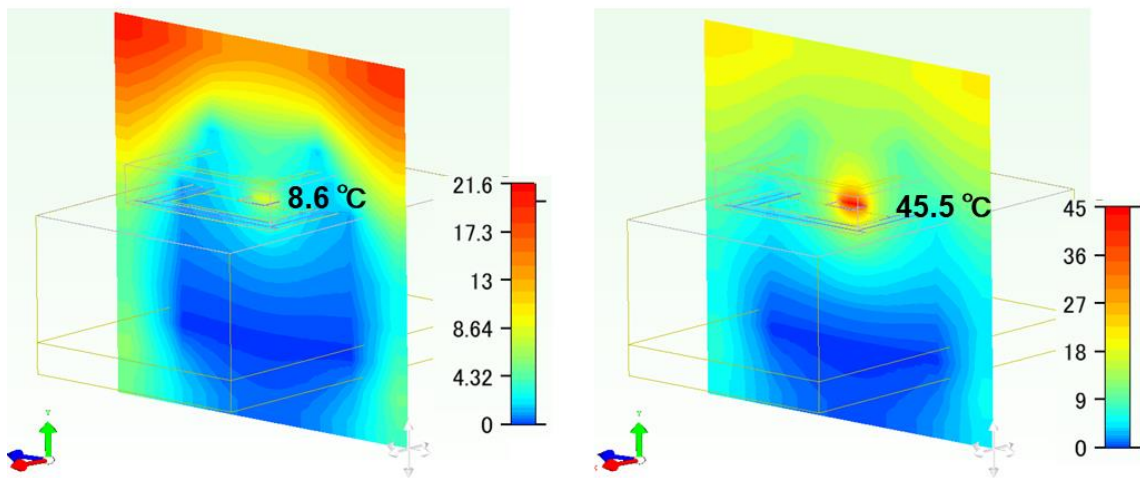
ここで $\rho$ は密度、 $t$ は時間、 $v_x$ 、 $v_y$ 、 $v_z$ はそれぞれ $x$ 方向、 $y$ 方向、 $z$ 方向の速度である。また、熱の式は次式となる。

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{K}{\sigma\rho} \left( \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right) + \frac{1}{\sigma} F(x, y, z, t) \quad (3.2.4)$$

$u$ は位置と時間の関数である温度、 $\sigma$ は比熱、 $K$ は熱伝導率、 $F$ は時間あたりの外部加熱値で、位置と時間の関数である。計算環境はプロセッサ Intel® Xeon® CPU ES-2637 v4@3.50 GHz 4コア、実装 RAM 32.0 GB である。

#### (5) Au 埋込み面発光型 QCL の 3D 熱解析

レーザ励起部への投入電力を 2 W、10 W と変化させ、面発光型 QCL の温度分布を計算した。図 3.2.42(a)、(b)に、投入電力が 2 W、10 W における面発光型 QCL の中央断面での温度分布を示す。ペルチェは 0 °C に固定されており、Cu/W マウントも熱伝導率が高いため、ほぼ 0 °C となっている。電力が投入されているレーザ励起部とその周囲のメサで温度が高くなっている。投入電力が 2 W ではメサの温度は 8.6 °C、10 W では 45.5 °C だった。

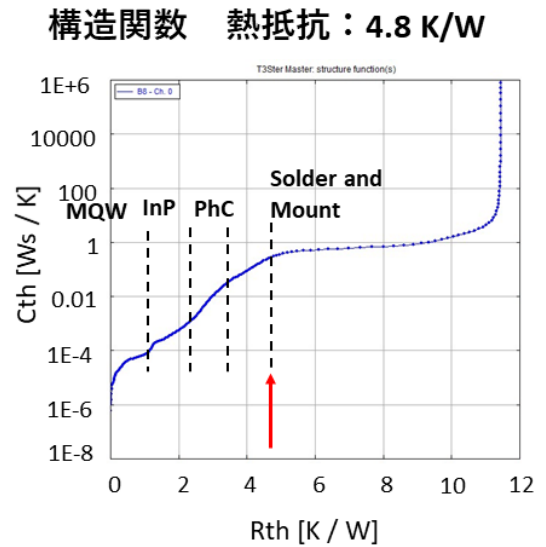
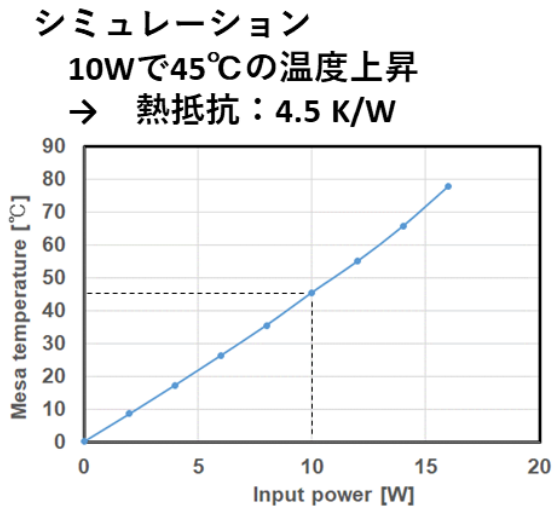


(a) 投入電力 : 2 W

(b) 投入電力 : 10 W

図 3.2.42 Au 埋込の面発光型 QCL 素子の 3D 熱流体解析の計算結果

Au 埋込の面発光型 QCL 素子の熱解析と構造関数の比較を図 3.2.43 に示す。図 3.2.43(a)は、レーザ励起部への投入電力を 0 W から 16 W まで 2 W 刻みで高め、レーザ励起部への投入電力と面発光型 QCL の最高温度との関係を計算により求めた結果である。レーザ励起部への投入電力とともに、面発光型 QCL の最高温度が上昇していくのがわかる。また、10 W での温度上昇が 45.5 °C であることから、熱抵抗は 4.6 K/W と求まる。一方、図 3.2.43(b)に示すように、構造関数では熱抵抗は 4.8 K/W であり、シミュレーションと実験はよく一致している。3D シミュレーションは実素子の熱特性を計算するのに有効であることがわかった。



(a) 熱流体シミュレーション (b) 構造関数  
図 3.2.43 3D シミュレーションと構造関数の比較 (面発光 Au 埋込み)

まとめ

面発光型 QCL 素子の熱抵抗は、3D モデルで 4.6 K/W であった。前節での構造関数による熱抵抗は 4.8 K/W であったので、よく一致している。今回用いた 3D モデルは実素子熱特性を再現できることが確認できた。

(6) InP 埋込みの面発光型 QCL 素子の 3D 熱解析

InP 埋込みの面発光型 QCL 素子の 3D 熱解析モデルを構築し、構造関数で得られた熱抵抗と比較することにより、3D 熱解析モデルの精度を検証する。図 3.2.44 に InP 埋込み面発光型 QCL 素子の 3D 熱解析モデルを示す。

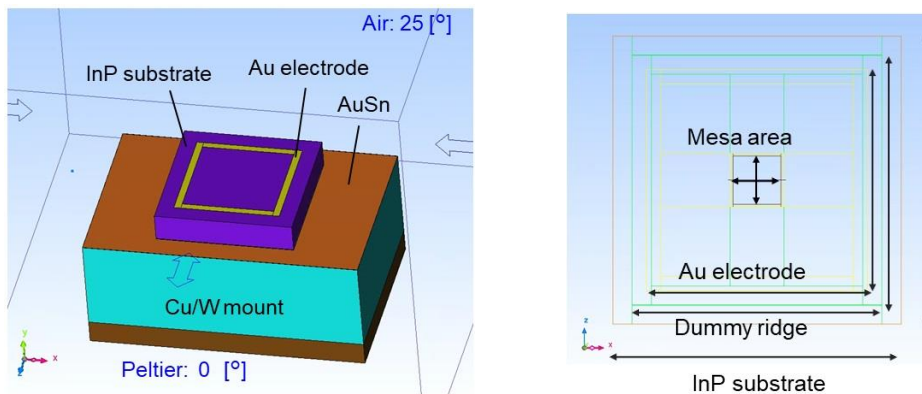


図 3.2.44 InP 埋込みの面発光型 QCL 素子の 3D 解析モデル

InP 埋込み面発光型 QCL 素子の 3D 解析モデルで熱解析計算を行った。計算結果を図 3.2.45 に示す。投入電力は 10 W で温度が 82.63 °C 上昇し、このことから熱抵抗は 8.26 K/W であると求められる。

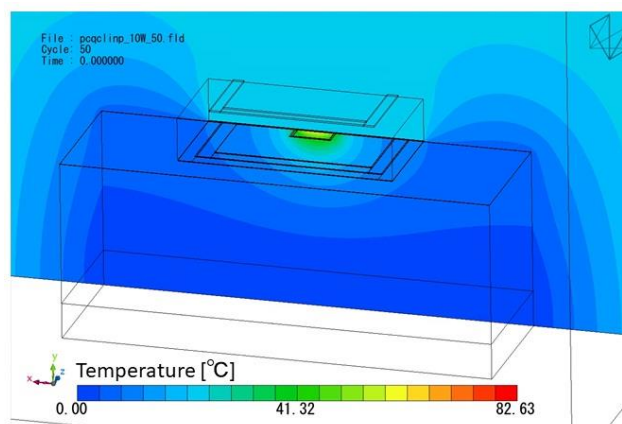


図 3.2.45 InP 埋込み面発光型 QCL 素子の 3D 解析モデルによる熱解析計算の結果

3D 熱解析シミュレーションと構造関数による熱抵抗を比較する。図 3.2.46 で、構造関数から求めた InP 埋込み面発光型 QCL 素子の熱抵抗は 8.5 K/W であり、3D 熱解析シミュレーションにより求めた熱抵抗は 8.3 K/W となった。構造関数と 3D シミュレーションによる熱抵抗はほぼ一致したと言える。QCL の熱抵抗を再現できる高精度モデルが完成した。

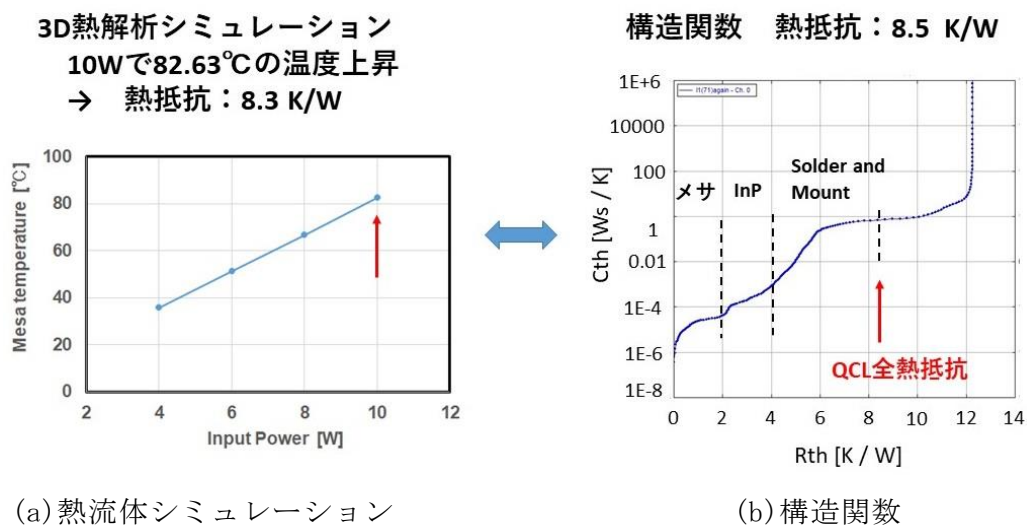


図 3.2.46 3D シミュレーションと構造関数による熱抵抗の比較（面発光 InP 埋込み）

まとめ

InP埋込み面発光型QCL素子の熱抵抗を、構造関数と3D熱解析シミュレーションでそれぞれ求めた。両者はほぼ一致したことから、本研究で用いた手法は、高精度でQCLの熱抵抗を再現できるモデルであると言える。



### 3.2.2.2 非平衡グリーン関数法による高効率活性層の設計

#### (1) 非平衡グリーン関数法による計算精度の検証

[QCL 発光層の量子バンド計算]

QCL 素子の熱対策としては、発振動作時の発熱量を低減する方法と放熱性を高める方法がある。発振動作時の発熱量低減には、QCL 膜厚構造 (MQW) の適正化により発振効率を高め、投入電力を低減する必要がある。量子バンド計算のシミュレータ nextnano.QCL を導入し、性能検証を行うとともに、ラフ精度と高精度で計算する手法を開発して東芝に移管した。また、東芝側で試作している素子の波長をシミュレータで計算し、東芝に提供した。

[シミュレータの検証]

nextnano 社から提供されている nextnano.QCL は、量子カスケードレーザ (QCL) のエネルギー準位、バンド計算、レーザで得られるゲインが計算できる。他のシミュレータに比べ、電子の存在準位が計算できるだけでなく電子密度の分布が計算できる、温度影響が計算できるなど優れた性能を持つ。

そこで nextnano.QCL を導入し、性能検証を行った。シミュレーションの精度検証として、計算サンプルとして提供している素子を対象に、論文測定された波長との比較を行った。また、素子構造の設計スクリーニングを短時間に行うためにラフ精度で計算する手法と、試作前に最終確認するための高精度な計算方法についての精度検証も行った。計算検証に用いたのは、J. S. Yu らが、2010 年に報告した素子である<sup>[3.2.12]</sup>。膜構成を表 3.2.7 に示す。In<sub>0.566</sub>Ga<sub>0.434</sub>As と In<sub>0.447</sub>Al<sub>0.553</sub>As を交互に 20 層積層した膜構成で、実験では ~7.3 μm (169.3 meV) の波長が得られている。

表 3.2.7 nextnano.QCL で検証の膜構造

膜材料	組成	膜厚 (μm)	ドーザ量 (cm <sup>-3</sup> )
InxGaAs	0.566	1.400	U/D
InxAlAs	0.447	0.900	U/D
InxGaAs	0.566	5.600	U/D
InxAlAs	0.447	0.900	U/D
InxGaAs	0.566	4.900	U/D
InxAlAs	0.447	1.000	U/D
InxGaAs	0.566	4.300	U/D
InxAlAs	0.447	1.600	U/D
InxGaAs	0.566	3.500	U/D
InxAlAs	0.447	1.300	U/D
InxGaAs	0.566	3.100	U/D
InxAlAs	0.447	1.400	U/D
InxGaAs	0.566	2.800	Si: 7e16
InxAlAs	0.447	1.400	Si: 1e17
InxGaAs	0.566	2.600	Si: 2e17
InxAlAs	0.447	1.600	Si: 2e17
InxGaAs	0.566	2.500	U/D
InxAlAs	0.447	2.100	U/D
InxGaAs	0.566	2.500	U/D
InxAlAs	0.447	2.900	U/D

この膜構造に対して nextnano.QCL を使って、ラフ精度で計算した結果が図 3.2.47 である。計算時間は 3 時間となった。(a)は電子密度の分布で、中央の細い 3 本のバリア層付近で電子密度が途切れており、この領域で上準位から下準位への遷移が発生していることを示している。

(b)はゲインの計算結果で、横軸は位置を縦軸は波長に相当するエネルギーを示している。(a)の上準位から下準位へ推移する位置が白くなっており、この部分でゲインが発生していることを示している。また、白の強さがゲインの強さに対応している。横軸 20nm と 70nm で、波長に対応するエネルギーで 145~170 meV (波長 7.30~8.56  $\mu\text{m}$ ) のゲインが高くなっている。論文での発振波長は 7.3  $\mu\text{m}$  であり、計算結果と一致している。

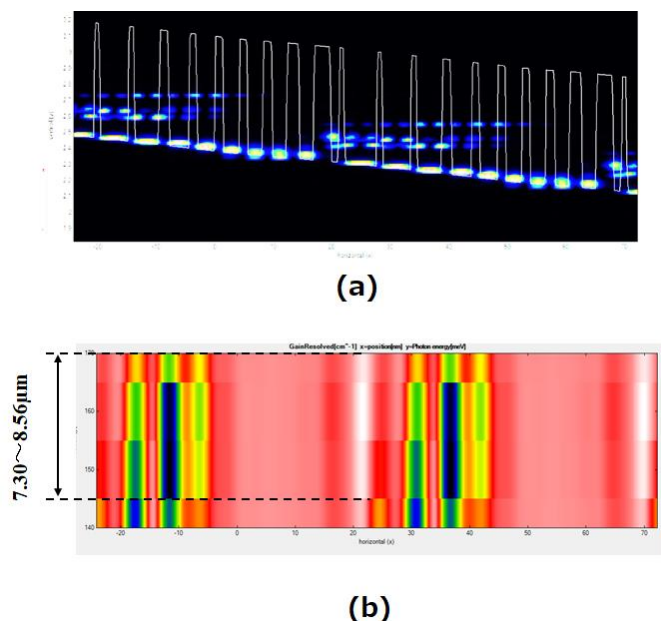
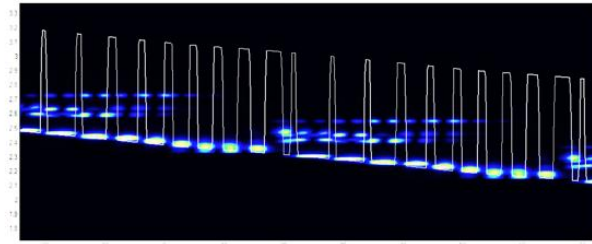


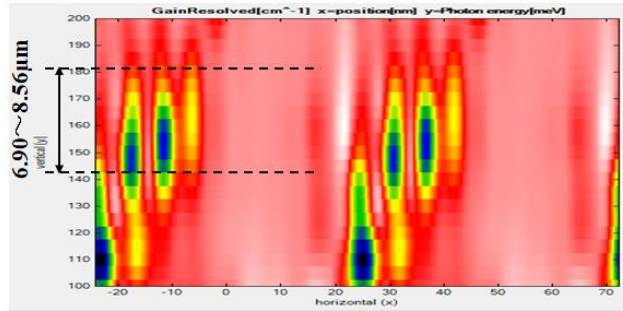
図 3.2.47 検証構造でのラフ精度での計算結果  
(a) 電子密度の分布、(b) ゲイン計算のまとめ

次に、図 3.2.48 は収束条件を強くして計算精度を高めた結果である。計算時間は、ラフ計算精度の 10 倍となる約 30 時間である。(a)、(b)は、それぞれ図 3.2.47 の (a)、(b)に対応している。(a)の電子密度の分布で、ラフ計算と同様、中央の細い 3 本のバリア層付近で、上準位から下準位への遷移が起きていることがわかる。また、(b)でゲインが高くなるのは、波長に相当するエネルギーで 140~180 meV (波長 6.90~8.56  $\mu\text{m}$ ) であり、文献の実験結果と一致することが分かった。

以上の結果から、ラフ精度計算、高精度計算とも、文献の実験結果と一致する結果得られ、nextnano.QCL が QCL の波長予測・設計に適用できることが示された。



(a)



(b)

図 3.2.48 検証構造での高精度での計算結果  
(a) 電子密度の分布、(b) ゲイン計算のまとめ

#### [計算手法の確立]

シミュレータの検証で得られた結果から、設計スクリーニングで行うラフ計算と試作前に波長を確認する高精度計算を行うための計算パラメータ設定手法を確立した。表 3.2.8 は、この結果をまとめたものである。

ラフ計算と高精度計算にあたっては 15 のパラメータを変更している。项目的には、収束条件、計算時の離散化する精度、計算範囲に分けられる。これらの中で、離散化精度や計算範囲は必要に応じて増減すればよい。また、ある程度の波長予測ができている場合は、計算範囲を狭くできる。

表 3.2.8 ラフ精度と高精度の計算パラメータ

	パラメータ名	ラフ精度計算	高精度計算
収束条件	Convergence_Value_GF	5e-3	1e-3
	Energy_Range_Current	5e-3	1e-3
離散化精度	Value unit	40	20
	Energy_grid_spacing_unit	10	5
	dE_Phot unit	10	5
	dE_Min_Self_Consistent_unit	10	5
計算範囲	Number_of_lateral_periods_for_band_structure	3	2
	Energy_Range_Lateral_unit	250	300
	Energy_Range_Axial_unit	400	500
	N_max_iterations	100	200
	Ephoton_Min_unit	140	100
	Ephoton_Max_unit	170	200
	Ephoton_Min_Self_Consistent_unit	140	100
	Ephoton_Max_Self_Consistent_unit	170	200
計算時間		3 h	30 h

計算精度として重要なのは、収束条件である。高精度計算においても、ゲインと波長のみに着

目する場合は、I-V 特性の計算に関する Energy\_Range\_Current の収束条件はラフ精度であってもよい。nextnano.QCL では量子計算にグリーン関数を使っており、Convergence\_Value\_GF は、量子計算の本質にかかわる重要パラメータである。高精度計算には  $1e-3$  以下に指定する必要がある。2018 年度以降の計算では、この表値を参考として、必要とされる計算精度を考慮し、計算パラメータを設定すればよい。

[東芝素子の波長計算結果]

東芝で試作している素子について、nextnano.QCL を使って波長計算を行った。素子は、 $Ga_{0.331}In_{0.669}As / Al_{0.638}In_{0.362}As$  の膜を交互に 22 層積層して構成されている。nextnano.QCL を使って高精度でこの膜構造のバンド計算を行ったのが、図 3.2.49 である。(a) は電子密度の分布、(b) はゲインの計算である。(a) で左から 3 分の 1 程度のところにある 3 本の細い柱の近傍で、上側の電子密度が途切れており、この領域で上準位から下準位への遷移が起きていることがわかる。(b) のゲイン計算では、波長に対応するエネルギーで  $255 \sim 2655$  meV ( $4.686 \sim 4.87 \mu m$ ) で、ゲインが高くなることが示されている。東芝での発振波長は、 $4 \sim 5 \mu m$  であり、シミュレーションは実験と一致する結果となった。

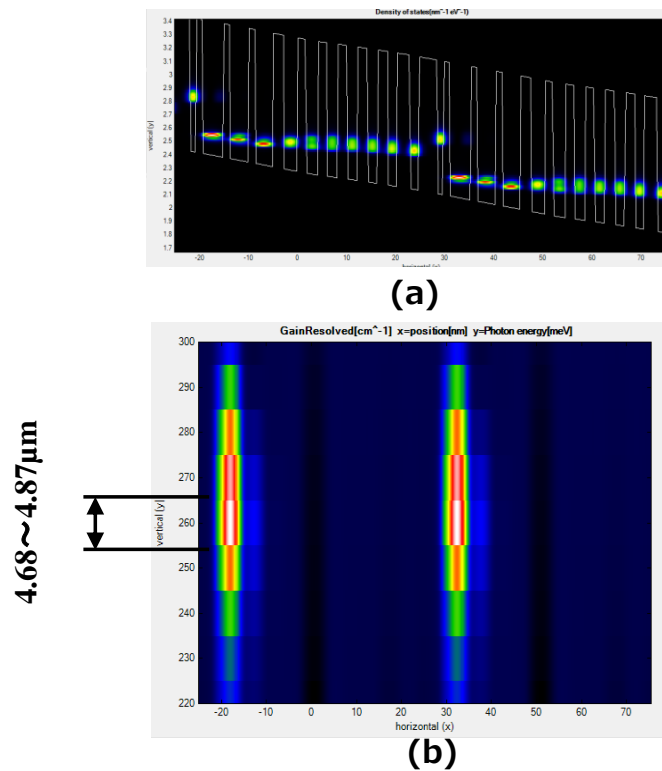


図 3.2.49 東芝試作の高精度での計算結果  
 (a) 電子密度の分布、(b) ゲイン計算のまとめ

[計算精度の向上と熱設計への反映]

QCL素子構造から発振波長を計算する量子井戸シミュレータで温度依存を計算できるように計算精度・手法の検証を行った。シミュレータにはnextnano社から提供されているnextnano.QCLを使用した。nextnano.QCLはThomas Grange氏らによりC#言語で実装されているソフトウェアである<sup>[3.2.13]-[3.2.15]</sup>。電子輸送や利得の計算に非平衡グリーン関数法<sup>[3.2.16]</sup>が用いられている。シミュレーションの流れを図3.2.50に示す。このシミュレーションソフトで、素子温度と波長との関係を調べるとともに、東芝の試作結果との比較を行った。

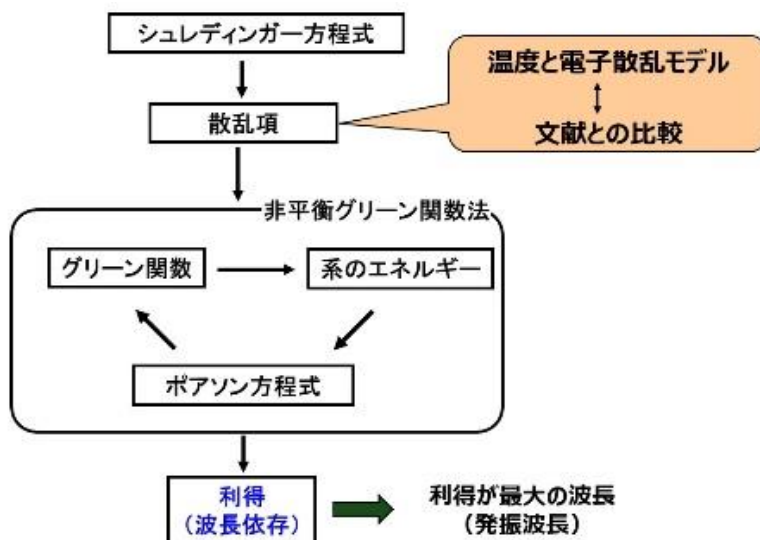


図3.2.50 度依存計算のための計算精度・手法の検証の流れ

[検証に用いたQCL構造]

温度依存を検証するためのQCL活性層には、Yin Wenらが作製したQCLのものを用いた<sup>[3.2.17]</sup>。活性層の1周期の膜構造を表3.2.9に示す。膜材料は、井戸は $\text{Ga}_{0.331}\text{In}_{0.669}\text{As}$ で、障壁は $\text{Al}_{0.638}\text{In}_{0.362}\text{As}$ である。22層からなり、13~16層目にSiを $1.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ドーピングしている。

この構造の素子を、2  $\mu\text{s}$ 、5 kHz、デューティ比1%で動作させた。冷却温度を84 Kから241 Kに変化させ、レーザ発振波長を測定した。論文に記載された波長の変化を図3.2.51に示す。右上のグラフは、温度と発振波長の関係をグラフにした図である。発振波長は、温度とともに長くなる傾向を示している。

表 3.2.9 検証に用いた QCL の活性層の膜構造

膜材料	井戸／障壁	膜厚 (nm)	ドーズ量 (cm <sup>-3</sup> )
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	3.8	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	1.2	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.3	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	4.3	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.3	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	3.8	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.4	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	3.6	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	2.2	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	2.8	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.7	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	2.5	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.8	Si: 1.0×10 <sup>17</sup>
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	2.2	Si: 1.0×10 <sup>17</sup>
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.9	Si: 1.0×10 <sup>17</sup>
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	3.2	Si: 1.0×10 <sup>17</sup>
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	3.2	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	2.0	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	3.2	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	1.8	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	2.7	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	1.8	U/D

[計算パラメータ]

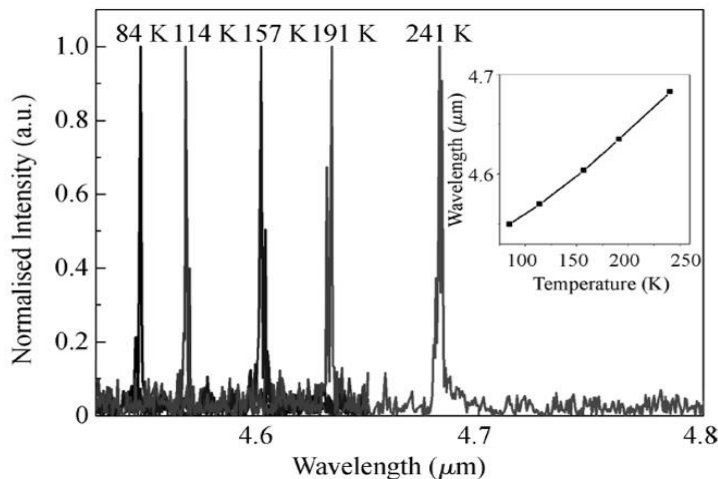


図3.2.51 異なる温度でのレーザ発振スペクトルの測定値

温度依存で必要となる高精度計算のため、計算パラメータを表3.2.10のように変更した。Convergence\_Value\_GFとEnergy\_Range\_Currentは、この2つの収束係数が小さい方のグリーン関数に到達した場合、自己無撞着ループは正常に終了する。Value unitは横方向運動の離散化エネルギーを単位meVで指定する。Energy\_grid\_spacing unitは計算時間にとって重要であり、均一に間隔をあけられ

たグリッドを指定する。より高い温度では、より広い拡がり、すなわちより少ないエネルギー格子点で十分である。dE\_Phot unitとdE\_Min\_Self\_Consistent unitにより、2つの光子エネルギー間のエネルギー間隔が与えられる。

表3.2.10 計算パラメータの変更

	パラメータ名	通常計算	温度依存性計算
収束条件	Convergence_Value_GF	5e-3	1e-3
	Energy_Range_Current	5e-3	1e-3
離散化精度	Value unit	40	20
	Energy_grid_spacing unit	10	5
	dE_Phot unit	10	5
	dE_Min_Self_Consistent unit	10	10

[計算結果]

図3.2.52に活性層のバンド構造と、温度を変化させたときの利得と波長を示す。利得のエネルギー[meV]と波長 $\lambda$  [ $\mu\text{m}$ ]の換算には、式(3.2.5)を用いた。

$$\lambda(\mu\text{m}) = \frac{1.24082}{\text{利得 (meV)} / 1000} \quad (3.2.5)$$

温度が上昇するにつれて、波長が長くなっていく（利得のエネルギーが下がっていく）のがわかる。

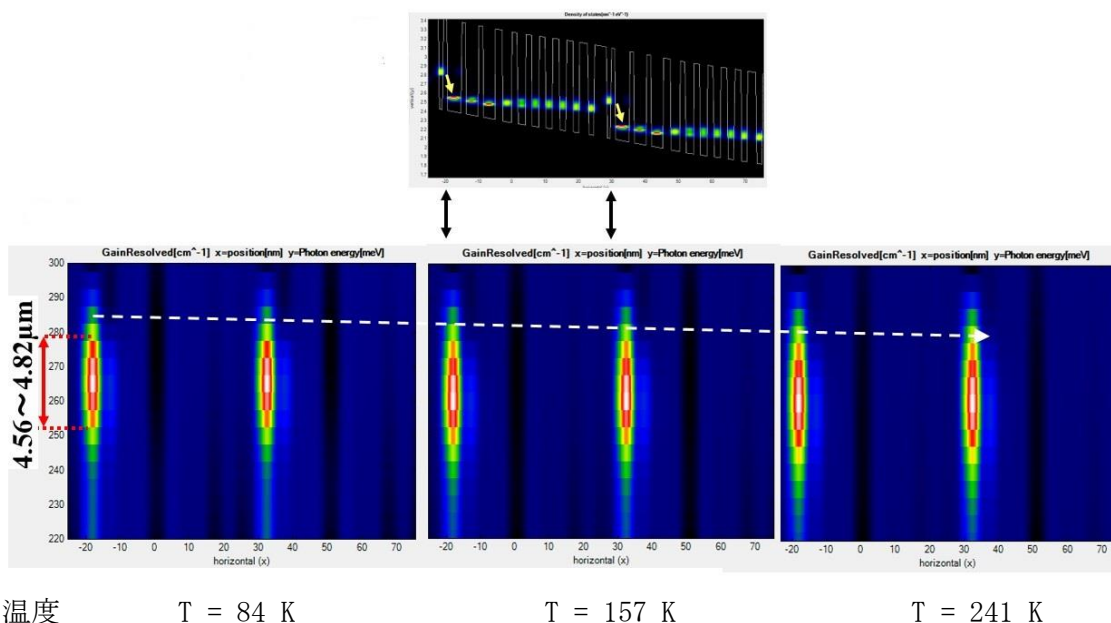


図 3.2.52 活性層のバンド構造と各温度での利得のエネルギー[meV]と波長[ $\mu\text{m}$ ]

[測定値と計算結果の比較]

実験での測定値とシミュレーションでの計算結果のグラフを図3.2.53に示す。計算結果は実験結果の「温度が上がるにつれて波長が長くなる」という傾向を再現している。温度変化に対する波長の変化（波長のチューニング係数）は、以下ようになり、シミュレーションは文献の実験結果に近い値となった。

実験<sup>[3.2.17]</sup>

$$\Delta\lambda / \Delta T \approx 0.85 \text{ nm/K}$$

シミュレーション

$$\Delta\lambda / \Delta T \approx 0.58 \text{ nm/K}$$

実験よりシミュレーションのほうがやや長波長となり、チューニング係数もシミュレーションでやや小さくなったが、実験結果は計算結果のエラーバーに含まれており、実験とシミュレーションの一致は良好であると推定される。

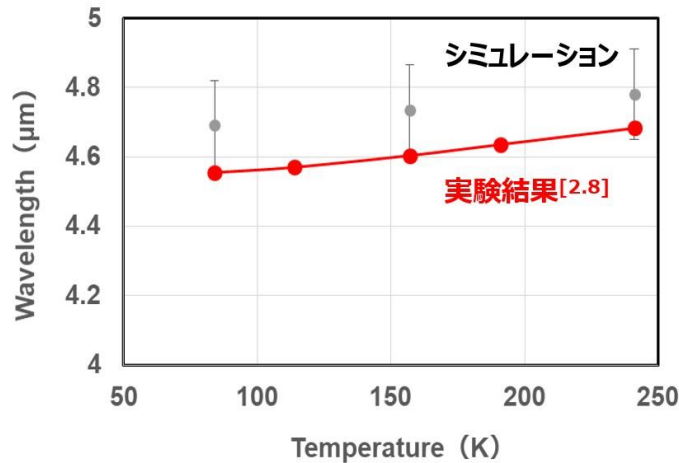


図3.2.53 測定値と計算値の比較

まとめ

計算パラメータの適正化により、動作温度も考慮した波長計算（波長の熱依存の計算）、波長設計が可能なシミュレーションの高精度化に成功した。熱による温度上昇を考慮した素子設計が可能となり、温度による波長変動を考慮した熱設計を行う仕組みを構築できた。2017年度の設計では、動作温度を設計パラメータに入れていなかったが、2018年9月以降の設計では動作温度を加えた熱設計で、QCLの試作を行った。

## (2) 非平衡グリーン関数法による計算方法

### (A) 非平衡グリーン関数

QCL 素子試作のためのシミュレーションとして、量子井戸シミュレータ nextnano.QCL (nextnano 社) を導入した<sup>[3.2.13]-[3.2.15], [3.2.19]</sup>。このシミュレータでは縦光学フォノン散乱・荷電不純物散乱・界面粗さ散乱・合金散乱・電子-電子散乱など電子輸送に関する種々の散乱機構が量子力学的に取り込まれている。nextnano.QCL の計算の流れを図 3.2.54 に示す。このシミュレータは非平衡グリーン関数法に基づいている<sup>[3.2.20]-[3.2.22]</sup>。計算する系のハミルトニアン $\hat{H}$ は

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{scatt}} = \sum_{\alpha} E_{\alpha} \hat{a}_{\alpha}^{\dagger} \hat{a}_{\alpha} + \sum_{\alpha\beta} U_{\alpha\beta}(t) \hat{a}_{\alpha}^{\dagger} \hat{a}_{\beta} + \hat{H}_{\text{scatt}} \quad (3.2.6)$$

と表せる。記号の上の $\hat{\phantom{x}}$ （ハット）はそれが演算子であることを示している。 $\hat{H}_0$ は解くことができる部分のハミルトニアンで、散乱項 $\hat{H}_{\text{scatt}}$ は摂動として扱う。 $\hat{a}_{\alpha}^{\dagger}$ と $\hat{a}_{\alpha}$ はそれぞれエネルギー $E_{\alpha}$ を持つ状態  $\alpha$  の消滅演算子と生成演算子である。 $U_{\alpha\beta}(t)$ は運動エネルギーの行列要素である。まず、Schrödinger 方程式を解くことにより、初期値 $G^{<}$ を求める。 $G^{<}$ は相関関数と呼ばれている。次に、



Poisson 方程式を解いて平均場静電ポテンシャルを求め、後退自己エネルギー $\Sigma^R$ と自己エネルギー $\Sigma^<$ を算出する。 $\Sigma^R$ と $\Sigma^<$ は、式(3.2.7)、式(3.2.8)で表すことができる。

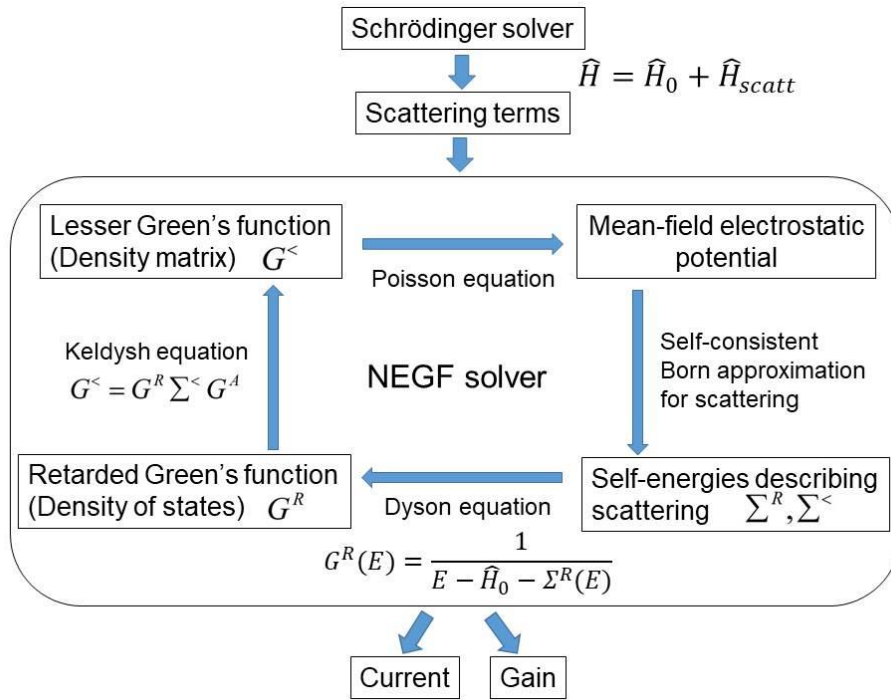


図 3.2.54 非平衡グリーン関数法による計算の流れ

$$\Sigma^R = G^R D^R + G^R D^< + G^< D^R, \quad (3.2.7)$$

$$\Sigma^< = G^< D^<. \quad (3.2.8)$$

$D^R$ は後退グリーン関数の和、 $D^<$ は相関関数の和である。 $\Sigma^R$ は電極へのエネルギー流出の効果を表し、実部はデバイスの固有エネルギーのシフト、虚部は固有エネルギーの広がりを表す。 $\Sigma^<$ は電極から電子を注入する効果を表す。つまり、全ての電極の効果を自己エネルギー関数に加算することができる。次に、以下の Dyson 方程式(3.2.9)により後退グリーン関数 $G^R$ を求める。

$$G^R = \frac{1}{E - \hat{H}_0 - \Sigma^R}. \quad (3.2.9)$$

さらに、次の Keldysh 方程式(3.2.10)により新たな相関関数を求める。

$$G^< = G^R \Sigma^< G^A. \quad (3.2.10)$$

$G^A$ は先進グリーン関数と呼ばれ、 $G^R$ とエルミート共役の関係になる。つまり、

$$G^A = [G^R]^\dagger \quad (3.2.11)$$

である。この $G^<$ と最初の $G^<$ を比較し、設定した閾値に収束するまで繰り返し計算を行う。閾値まで収束したら、ゲインや電流の計算を実行する。密度行列 $\rho(E)$ は式(3.2.12)のように相関関数から求まる。

$$\rho(E) = -\frac{i}{2\pi} \int dE G^<(E). \quad (3.2.12)$$

電子密度は $\rho(E)$ の対角項である。スペクトル関数、つまり状態密度は後退グリーン関数 $G^R$ の虚部である。

### (B) ゲイン計算

電場の存在下での複素動的コンダクタンスを $\sigma(\omega)$ とすると、ゲインは式(3.2.13)のようになる  
[3.2.13], [3.2.14]。

$$g(\omega) \approx -\frac{\text{Re}\{\sigma(\omega)\}}{c\epsilon_0\sqrt{\epsilon_r - \frac{\text{Im}\{\sigma(\omega)\}}{\epsilon_0\omega}}}. \quad (3.2.13)$$

ここで、

$$\sigma(\omega) = \frac{\delta J(\omega)}{\delta F(\omega)} \quad (3.2.14)$$

である。 $\omega$ は角周波数、 $c$ は真空の光速、 $\epsilon_0$ は真空誘電率、 $\epsilon_r$ は比誘電率である。式(3.2.14)で虚部を無視すると、次の式が得られる。

$$g(\omega) = -\text{Re}\left\{\frac{\delta J(\omega)}{\delta F(\omega)c\epsilon_0\sqrt{\epsilon_r}}\right\}. \quad (3.2.15)$$

$\delta J(\omega)$ は摂動電場 $\delta F(t) = \delta F(\omega)e^{-i\omega t}$ に対する電流密度の変化であり、次のような形式を有する。

$$\delta J(\omega) = \frac{e}{\hbar} \int \frac{dE}{\pi V} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{i,j} z_{\alpha\beta}(E_\beta - E_\alpha) \delta G_{\alpha\beta}^<(\mathbf{k}, E), \quad (3.2.16)$$

$e$ は電子の電荷、 $\hbar$ は $h/2\pi$  ( $h$ はプランク定数)、 $V$ は規格化定数、 $z_{\alpha\beta}$ は双極子遷移行列要素、 $\delta G_{\alpha\beta}^<$ は電場がかかったときの相関関数の変化である。式(3.2.16)を式(3.2.15)に代入すればゲインが得られる。

発光に寄与するサブバンド間の振動子強度が強いほど、ゲインは高くなる。同時に、反転分布が達成されるとき、ゲインは高くなる。このように、ゲインの向上には、相反する2つの条件を満たす必要がある。

### (3) 非平衡グリーン関数によるゲイン向上

QCLの活性層の膜構造を様々に変化させたシミュレーションを実施することにより、QCLの利得向上と波長設計について検討した。パラメータを変化させた複数のシミュレーションを実施したが、ここではその中でもっとも効果の大きかった“障壁の膜厚を薄くした膜構造”について述べる。

#### [計算精度と波長設計のベースとなる QCL 構造]

設計のベースとなる活性層には A. Evans らが作製に成功した QCL のものを用いた<sup>[3.2.18]</sup>。1 周期の膜構造の伝導帯を図 3.2.55 に、数値の詳細を表 3.2.11 に示す。膜材料は、井戸は  $\text{Ga}_{0.331}\text{In}_{0.669}\text{As}$  で、障壁は  $\text{Al}_{0.638}\text{In}_{0.362}\text{As}$  であり、表 3.2.9 で用いたものと同じであるが、ドーザ量が異なっている。この膜構造は 1 周期が 22 層からなっており、電子注入層は 1~14 層めで、発光層は 15~22 層めである。7~8 層目に Si を  $2.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  ドーピングしている。この膜構造の歪みは 0.070 % である。歪みは実際に QCL を作製する場合に重要な数値で、歪みが大きいと作製困難な場合がある。以後、このベースとなる構造を APL91 と表記する。

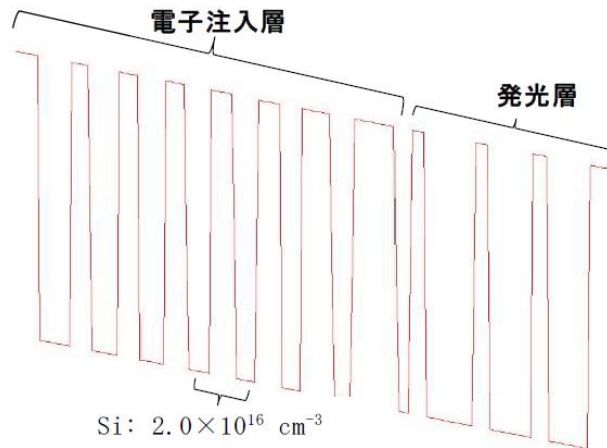


図 3. 2. 55 設計の基準となる APL91 の膜構造の伝導帯

表 3. 2. 11 設計の基準となる APL91 の膜構造

膜材料	井戸／障壁	膜厚 (nm)	ドーズ量 (cm <sup>-3</sup> )
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	2.8	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.7	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	2.5	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.8	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	2.2	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.9	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	3.2	Si: 2.0 × 10 <sup>16</sup>
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	3.2	Si: 2.0 × 10 <sup>16</sup>
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	2.0	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	3.2	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	1.8	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	2.7	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	1.8	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	3.8	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	1.2	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.3	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	4.3	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.3	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	3.8	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	1.4	U/D
Ga <sub>0.331</sub> In <sub>0.669</sub> As	井戸	3.6	U/D
Al <sub>0.638</sub> In <sub>0.362</sub> As	障壁	2.2	U/D

APL91 の利得と波長の計算値を図 3. 2. 56 に示す。印加電圧は 300~600 mV に、温度は 300 K に設定している。以後の計算ではこの印加電圧と温度の値を用いる。利得は印加電圧 300 mV では 2.046304 cm<sup>-1</sup>だが、電圧の上昇とともに増加し、600 mV では 13.47533 cm<sup>-1</sup>である。波長は 4.000~4.429 μm (温度 300 K) であるが、実測値は約 4.7 μm である。本研究は素子構造の設計スクリ

ーニングを短時間に行うためにラフ精度で実施されているので、波長設計には十分な計算精度である。

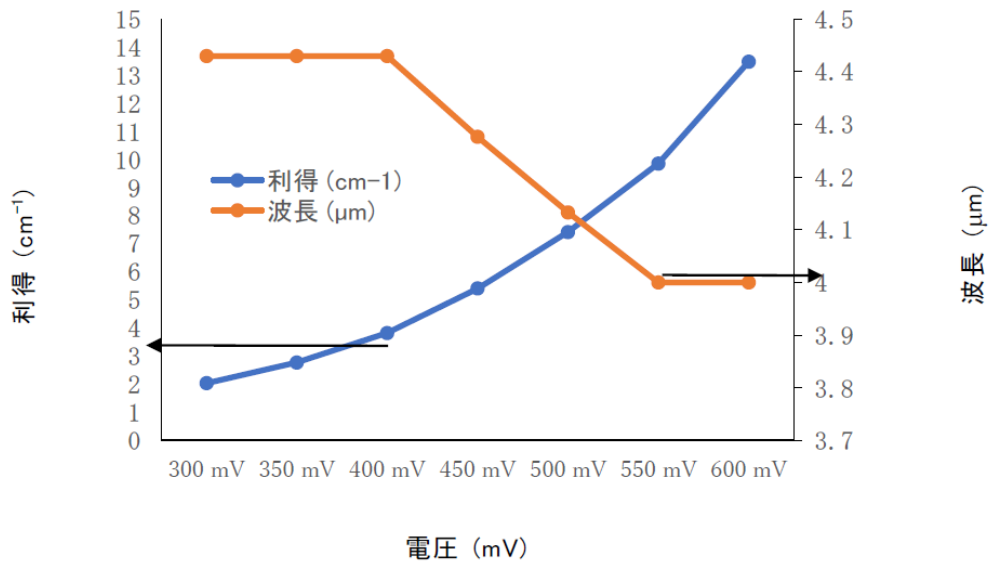


図 3.2.56 APL91 の波長と利得

[障壁の膜厚を変化させる]

APL91 の障壁の膜厚を変化させ、利得や波長にどのような影響が見られるかを検証した。発光層の障壁の膜厚を変化させた結果を、図 3.2.57 に示す。障壁の膜厚を変化させると、30 %薄くした膜構造で利得がもっとも大きくなった。この結果を受けて、障壁の膜厚を 30 %変化させた場合の利得を、図 3.2.58 に示す。

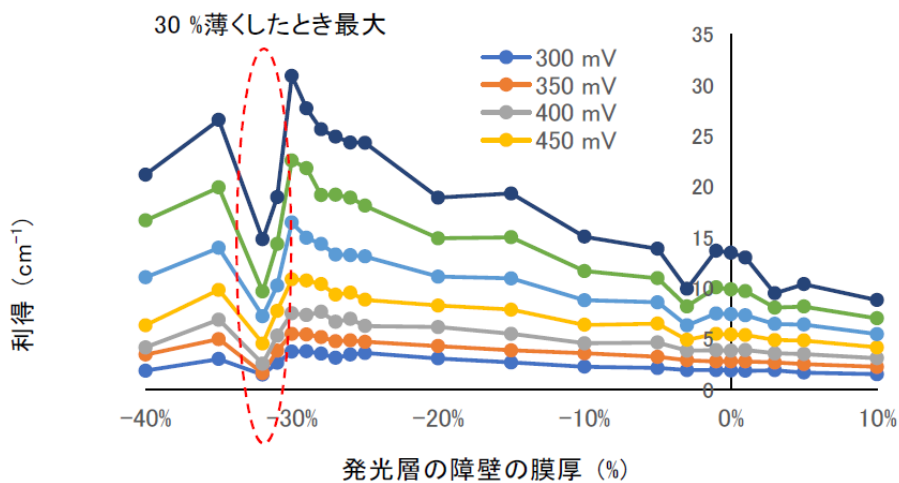


図 3.2.57 発光層の障壁の膜厚を変化させたときの利得 [cm<sup>-1</sup>]

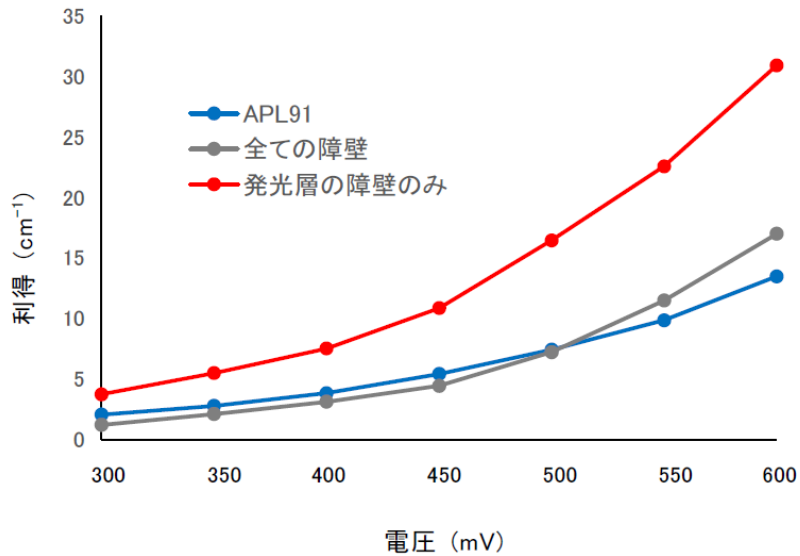


図 3.2.58 障壁の膜厚を 30%薄くしたときの利得 [cm<sup>-1</sup>]

ここまでの計算結果から、全ての障壁を薄くするよりも、発光層の障壁だけを薄くした方が、利得が高くなった。発光層の障壁のみ 30 %薄くした場合の利得は、APL91 の 1.82~2.29 倍である。障壁を 30%薄くした膜構造の歪を図 3.2.59 に示す。全ての障壁を薄くするとやはり歪みが上昇し、APL91 の 3.4 倍となったが、発光層の障壁だけ薄くした膜構造では APL91 の 1.6 倍ほどで、それほど歪みは大きくならなかった。

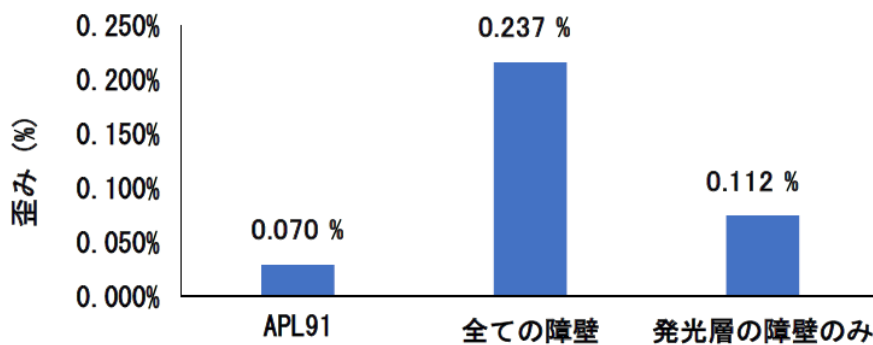


図 3.2.59 障壁の膜厚を 30%薄くした膜構造の歪み [%]

障壁を 30 %薄くした膜構造の波長を図 3.2.60 に示す。発光層の障壁のみを薄くした構造では波長は 4.43~4.77  $\mu\text{m}$  となり、我々が目標とする 4.8  $\mu\text{m}$  に近い、非常に良好な波長を示した。

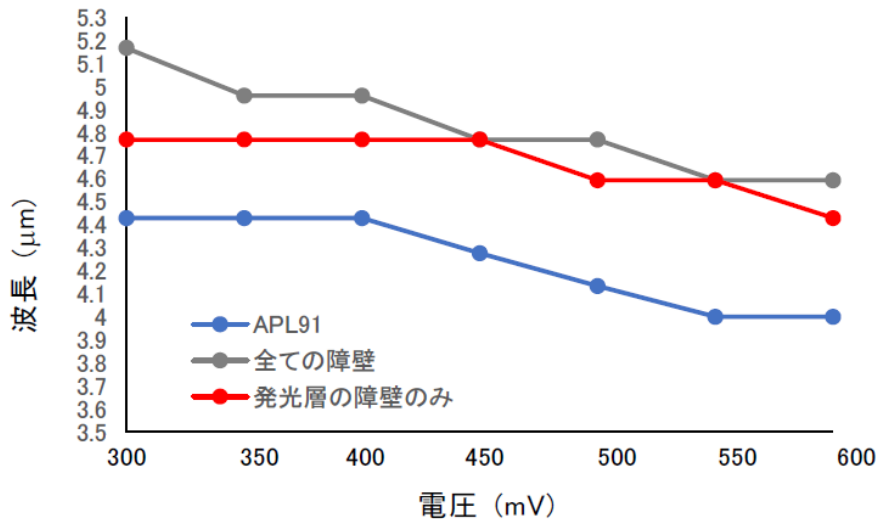
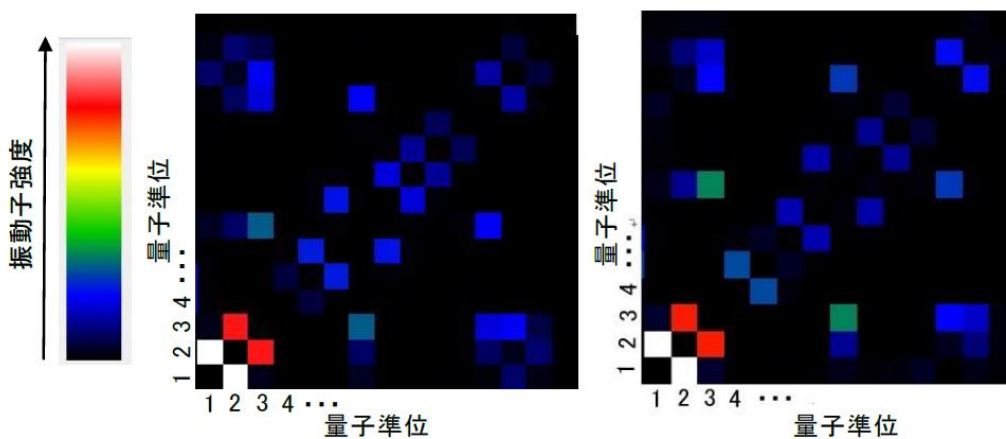


図 3.2.60 障壁の膜厚を 30%薄くした膜構造の波長[μm]

図 3.2.61 には電圧 400 mV での各量子準位間の振動子強度を表す行列が示されている。振動子強度とは原子や分子が光を吸収し、ある量子状態から別の量子状態へ電気双極子遷移するときの強さを表す無次元量である。APL91 と膜厚を薄くした膜構造ではどちらも準位 1 と準位 2 の間、準位 2 と準位 3 の間で振動子強度が強い値となっている。表 3.2.12 に各量子準位間の振動子強度の値を示す。準位 1 と準位 2、準位 2 と準位 3、どちらも膜厚を薄くした膜構造のほうが大きくなっている。これが利得の上昇の主要因と推定される。



(a) APL91

(b) 発光層の障壁を薄くした膜構造

図 3.2.61 振動子強度を表す行列。白色が一番強く、赤色が二番目に強い

表 3.2.12 APL91 と発光層の障壁を 30 %薄くした構造の各準位間の振動子強度の差

APL91	準位 1 → 準位 2	3.05842
	準位 2 → 準位 3	2.50019
発光層の障壁を薄くした膜構造	準位 1 → 準位 2	3.87760
	準位 2 → 準位 3	3.02147

また、図 3.2.62(a)に APL91 構造で準位 1、準位 2、準位 3 と準位 1 から準位 2 への遷移を示す。同様に図 3.2.62(b)には APL91 の発光層を薄くした構造での準位 1、準位 2、準位 3 と準位 1 から準位 2 への遷移を示す。APL91 では準位間の遷移が垂直遷移となっているに対し、発光層を薄くした構造では斜めの対角遷移となっている、これに対応して、APL91 で垂直遷移のため波長が  $4.43 \mu\text{m}$  とやや短くなっている。膜厚を薄くした膜構造では対角遷移となるので波長が  $4.77 \mu\text{m}$  とやや長くなると考えられる。

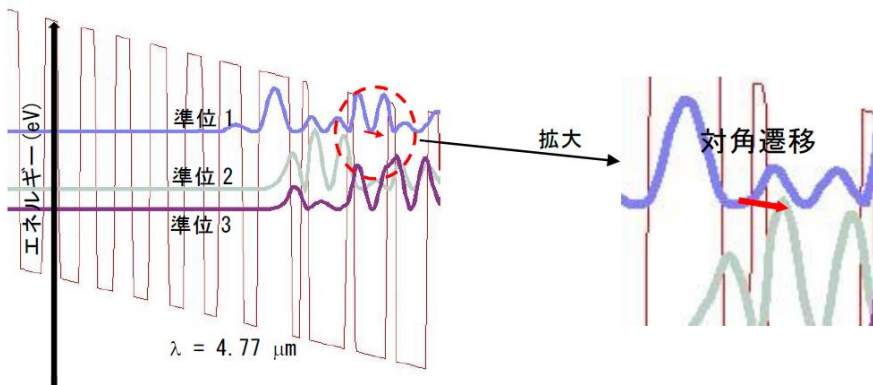


図 3.2.62 (a) 量子準位 1、量子準位 2、量子準位 3 と準位 1 から準位 2 への遷移 (発光層の障壁を薄くした膜構造)

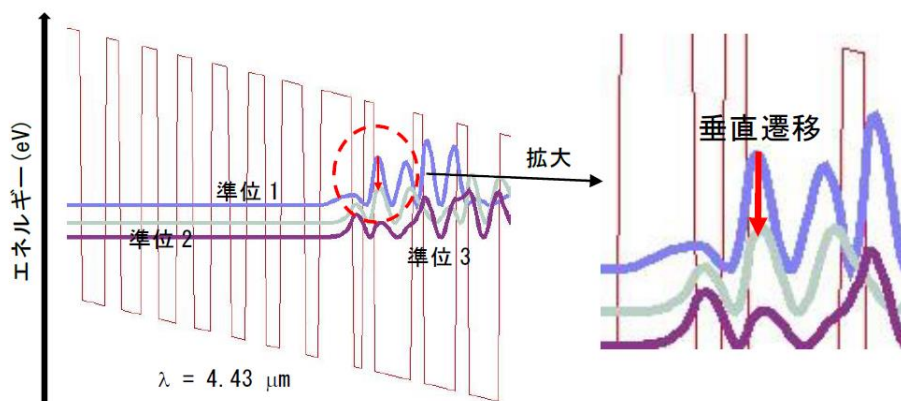


図 3.2.63 (b) 量子準位 1、2、3 と準位 1 から準位 2 への遷移 (APL91)

- (4) (別紙 2 別冊に記載)
- (5) (別紙 2 別冊に記載)
- (6) (別紙 2 別冊に記載)
- (7) (別紙 2 別冊に記載)
- (8) (別紙 2 別冊に記載)
- (9) (別紙 2 別冊に記載)



### 3.2.3 解析モデルを活用した放熱性の改善

#### 3.2.3.1 QCL 素子の熱解析と QCL 等価回路

##### (1) QCL 素子の熱解析

QCL 素子の熱対策として、3D 熱解析シミュレーションと実験により、放熱性向上について検討した。ここでは放熱性の向上で必要となる熱解析結果について述べる。QCL 素子内の熱解析のため、熱気流解析ソフト FloTHERM を導入し、QCL 素子及び QCL 素子実装部までの熱解析を行った。

熱気流解析では最も単純構造の QCL を計算対象とした。図 3.2.114 に示すように、厚み 1 mm で  $5 \times 3 \text{ mm}^2$  の基板の上に、長さ 3 mm で  $10 \times 10 \text{ }\mu\text{m}^2$  のリッジ部を持つ構成とした。ここで、基板とリッジ部の材質は、ともに InP とした。冷却板の材質は Cu とし、サイズ  $5 \times 3 \times 5 \text{ mm}^3$  とし、 $20 \text{ }^\circ\text{C}$  一定に温度固定した。QCL に投入される電力が加熱源であると仮定し、リッジ部に 15 W の出力を投入した。また、周囲の気流は、空気が加熱されて上昇する自然対流モデルとした。

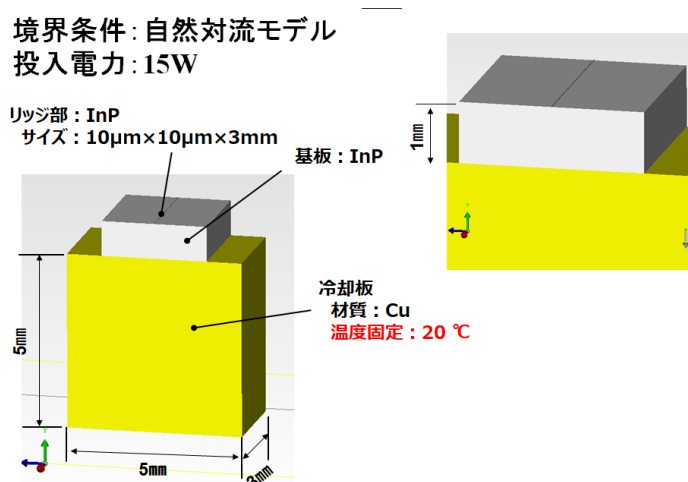


図 3.2.114 QCL 熱分布のシミュレーションモデル

熱気流解析の計算結果を図 3.2.115 に示す。電力がリッジ部に投入されて加熱され、周辺へと熱伝達している。リッジ部の最高温度は  $171 \text{ }^\circ\text{C}$  であり、基板部の最高温度は  $110 \text{ }^\circ\text{C}$  以下となっており、高温部はリッジ部に集中している。リッジ部の最高温度が  $171 \text{ }^\circ\text{C}$  であり、冷却部の温度が  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  であることから、温度差は 151 K である。投入電力が 15 W であることから、熱抵抗は、 $151 \text{ K}/15 \text{ W}=10.6 \text{ [K/W]}$  と求まった。

##### (2) QCL 発熱源の等価回路モデル

LCR 解析装置により QCL 素子のインピーダンス特性を評価し、この結果をもとにした QCL 素子及び QCL 素子実装部まで含めた高精度な等価回路モデルを構築した。この回路モデルを使って、T3Ster から QCL への供給電流を推定し Dynamic 法を QCL に測定が可能と判断する。

QCL の発熱源を電気回路から同定するため、LCR 解析装置 PSM3750-2C-IAI (岩崎通信機社) を導入した。図 3.2.116 に測定装置の外観を示す。メーカーカタログ表記では、入力電源の周波数に対応したインピーダンスの測定誤差は、 $\pm 0.1\%$  以下となっている。

最高温度 : 171℃  
温度差 : 151℃  
熱抵抗 : 10.6℃/W

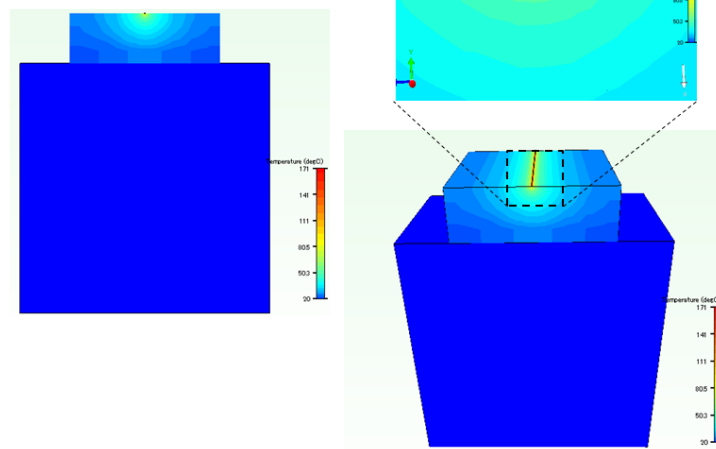


図 3. 2. 115 QCL 温度分布の計算結果

QCL 素子測定に先立ち、高精度な受動素子を使って測定精度の検証を行った。図 3. 2. 117 は、測定電圧として $\pm 2$  V の正弦波を印加して、インダクタンス成分の測定誤差を調べた結果である。測定に使用したのは、メーカー仕様値が 100 mH $\pm 10\%$  のインダクタ (コイル) である。1 kHz でのインダクタンスの測定値は 94.6 mH とメーカー仕様値内であり、インダクタンスが正確に測定できることが示された。

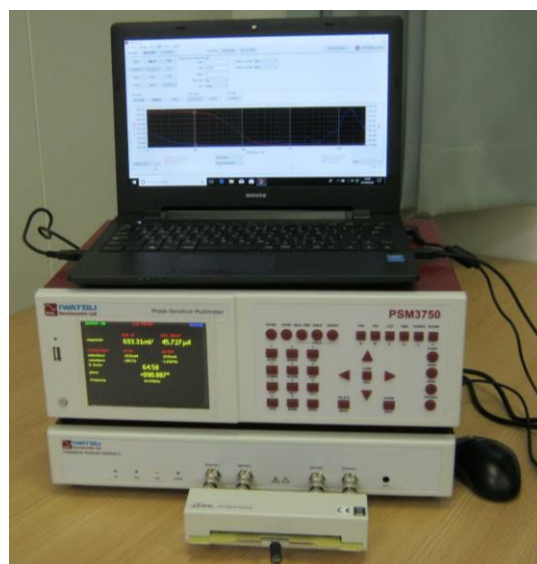


図 3. 2. 116 LCR 解析装置 PSM3750-2C-IAI



メーカ仕様: 100mH ± 10%

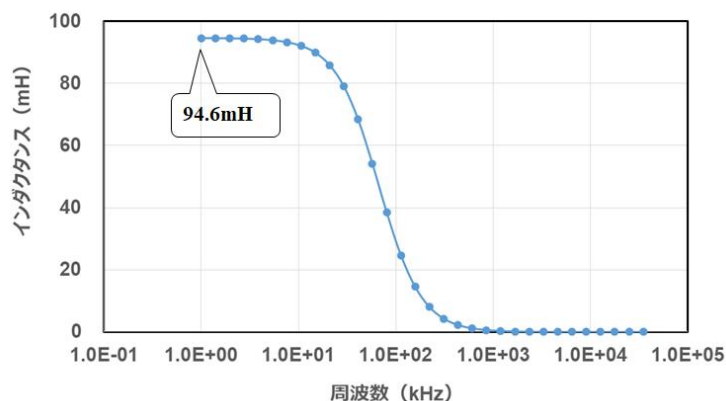


図 3.2.117 LCR 解析装置によるインダクタンス測定

インダクタが正確に測定できることが確認できたことから、QCL のインダクタンス測定を行った。測定結果を図 3.2.118 に示す。この時のインピーダンスは、1.86 Ω の抵抗と 108 nH のインダクタンスが直列に接続された値となり、QCL の等価回路が 1.86 Ω の抵抗と 108 nH のインダクタンスの直列回路となることが示された。この回路モデルから T3Ster により Dymnic 法で必要な電流を供給できることが示された (Dynamic 法への適用は 3.2.1.1 の(6)に記載)。

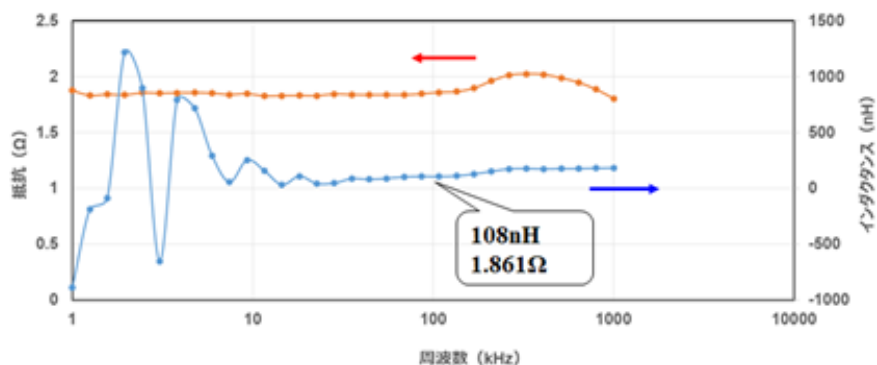


図 3.2.118 QCL の等価回路測定

### 3.2.3.2 QCL 素子実装方式とサブマウントの解析 (端面発光型 QCL)

熱抵抗測定の結果及び熱分布のシミュレーションの結果をもとに、放熱性を向上する QCL 素子実装方式や実装構造・材質、実装時のサブマウントについて検討を開始した。シミュレータには 3.2.2.1 の(4)で高精度化した FloTHERM の 3次元モデルを用いた。

#### (1) 評価項目

放熱性の改善を評価した FloTHERM の 3次元モデルを図 3.2.119 に示す。また、評価項目は、以下の 4項目である。

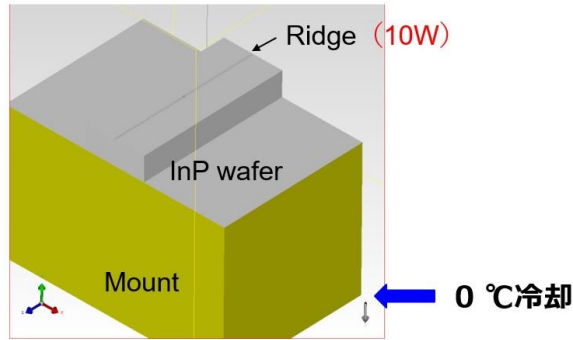


図3. 2. 119 放熱性を評価する計算モデル

基板厚：600  $\mu\text{m}$ 、120  $\mu\text{m}$ （リッジ埋め込みなし）  
 リッジ埋め込み： $\text{SiO}_2$ 、絶縁膜+Au、絶縁膜+Cu、InP（120  $\mu\text{m}$ ）  
 リッジ（エピ相）の冷却構造：エピトップ、エピダウン  
 サブマウント無し、AlNサブマウント、ダイヤモンドサブマウント

(2) 基板厚（リッジ埋め込み無し）

QCLを試作するプロセスでは、厚み600 $\mu\text{m}$ のInP基板厚を用いている。しかしながら、図3. 2. 115でInP基板の熱伝導が悪く、リッジ及びInP基板に熱が集中している。放熱性の改善には、InP基板の薄ウエハ化が有効と考えられる。

InP基板にQCLを試作した後、QCL面を保護してウエハを削る薄ウエハ化が可能であり、この時の最小ウエハ厚は、120  $\mu\text{m}$ である。そこで、シミュレーションにより、InP基板厚の600  $\mu\text{m}$ と120  $\mu\text{m}$ で、薄ウエハ化の効果を調べた。この時のリッジ形状は、図3. 2. 35 (A)の $\text{SiO}_2$ カバー（金属による埋込み無し）とした。

図3. 2. 120に計算結果を示す。リッジ最大温度は、基板厚が120  $\mu\text{m}$ で600 $\mu\text{m}$ より約21  $^{\circ}\text{C}$ 低いという結果になった。InP基板の薄ウエハ化が、放熱性の改善に有効であることが示された。

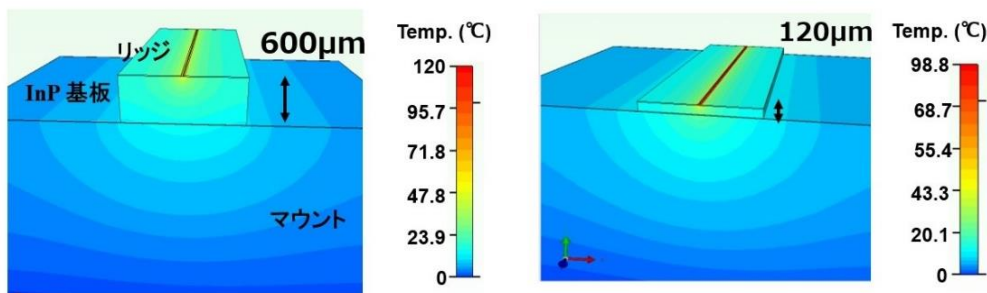
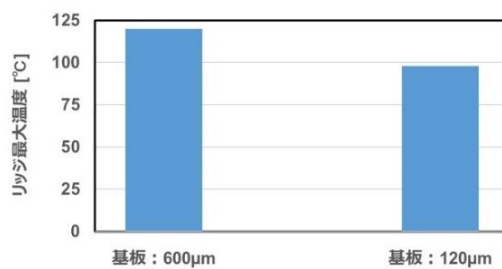


図3. 2. 120 リッジ埋め込みがない場合のリッジ最大温度と温度分布

### (3) リッジ埋め込み

様々な材料でリッジを埋め込んだ場合のリッジ最大温度と温度分布を図 3. 2. 121 に示す。比較のため、埋め込みなしの場合（基板厚 120  $\mu\text{m}$ ）も表示してある。SiO<sub>2</sub>+Au と SiO<sub>2</sub>+Cu でリッジを埋め込んだ場合のリッジ最大温度は低くなり、SiO<sub>2</sub>で埋め込んだ場合より約 61  $^{\circ}\text{C}$ 低い。リッジを Cu あるいは Au などの金属で埋め込む構造は、放熱性の向上に有効である。

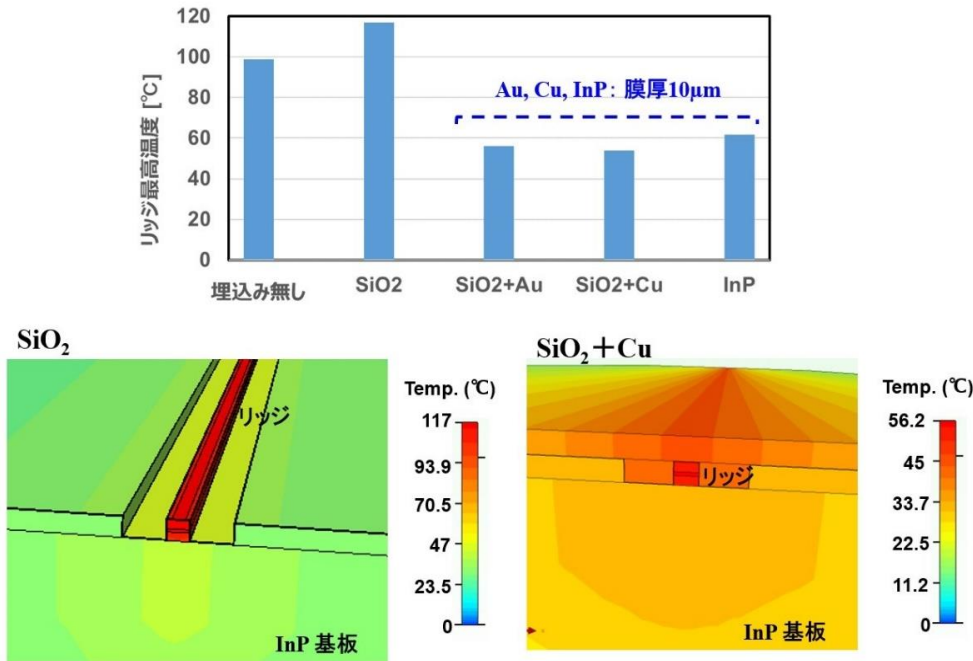


図3. 2. 121 リッジを埋め込んだ場合のリッジ最高温度と温度分布

### (4) エピタキシャル層による冷却効果

デバイスをマウントに実装する方式として、リッジ部のエピ膜がマウントの反対(上)側にあるエピトップ構造と、エピ膜がマウント側にあるエピサイドダウン構造がある。一般には、エピサイドダウン構造の方が、放熱性が高いと報告されている。

そこで、リッジ構造で放熱性の高かった Cu 埋め込みと、多くの文献報告がされている InP 埋め込みの 2 種類の構造で、エピトップとエピサイドダウン構造を比較した。図 3. 2. 122 に計算結果を示す。Cu、InP とともにエピサイドダウンで、リッジ部の最高温度が低くなった。また、エピトップの Cu と InP では最高温度が 20  $^{\circ}\text{C}$ 以上と大きいのに対し、エピサイドダウンでは、Cu と InP での最高温度差は小さくなっている。これらの結果から、放熱性の改善には、エピサイドダウンの実装方式が有効であることが示された。

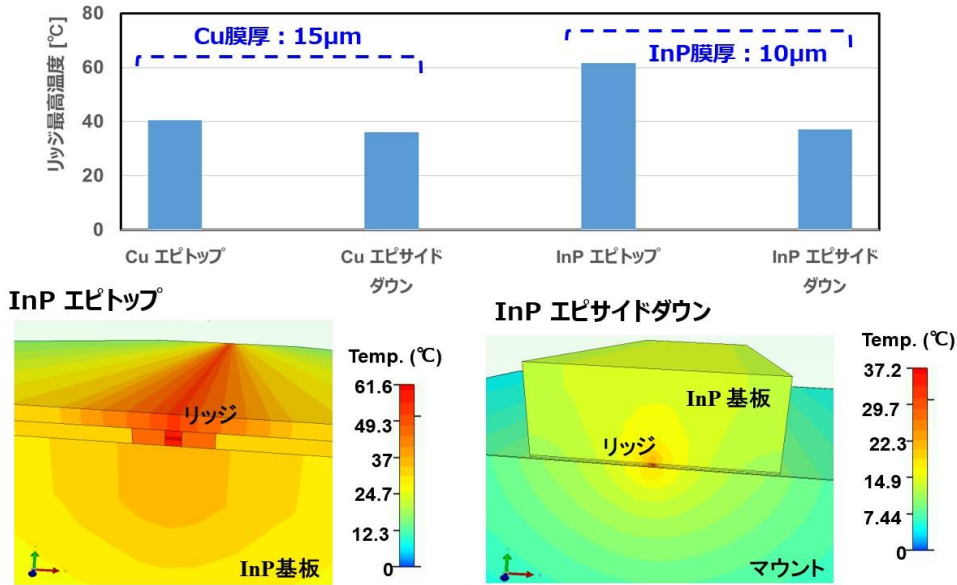


図3. 2. 122 エピトップとエピサイドダウンのリッジ最高温度と温度分布

#### (5) サブマウントの影響

リッジ部の熱放出を高めるため、図 3. 2. 123 に示されるように、マウントと InP 基板との間に、熱伝導の高いサブマウントを挿入する方法が検討されている。サブマウント材として、パワーデバイス用に使われている AlN と、熱伝導が極めて高いダイヤモンドを候補として、放熱性の評価を行った。サブマウントの厚みはともに 300 μm とし、熱伝導率は、ALN で 170 W/mK、ダイヤモンドで 2000 W/mK とした。その他の解析条件は、他の解析と同じとした。

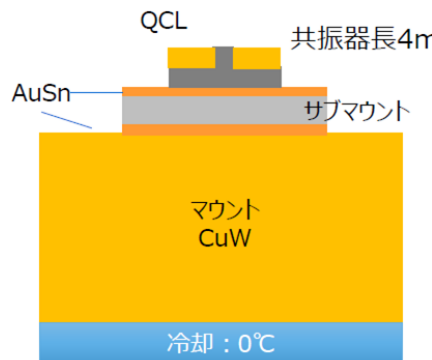


図3. 2. 123 サブマウントの評価用計算モデル

計算結果を図 3. 2. 124 に示す。AlN サブマウントでは、サブマウント無しの場合とほぼ同じで、放熱性の改善効果は期待できない。これに対して、ダイヤモンドサブマウントでは、リッジ部の温度が 42.5 °C から 36.9 °C へと低下している。ダイヤモンドの熱伝導率が 2000 W/mK と著しく高く、リッジ部の熱を水平方向に拡散することで放熱性が改善されると考えられる。

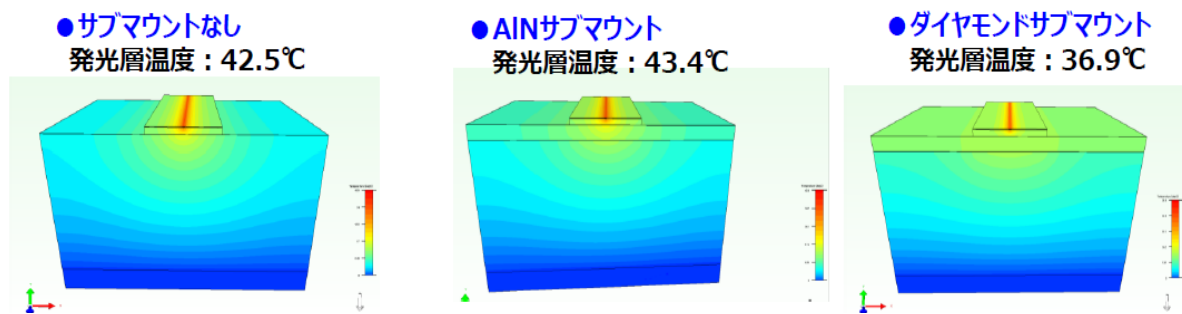


図3. 2. 124 サブマウントの計算結果

図 3. 2. 124 で、シミュレーションにより、ダイヤモンドサブマウントの有効性が確認できた。そこで、サブマウントの無い QCL とダイヤモンドサブマウントを介して実装した素子を試作し、レーザ出力を比較した。この結果を、図 3. 2. 125 示す。

ダイヤモンドサブマウントを挿入して実装した素子は、サブマウントが無い素子より、レーザ出力が高くなっている。電流量が低い領域では、ほぼ同じレーザ出力であるが、電流を高めるとサブマウントの無い QCL では出力飽和が早く起きる。サブマウントの無い QCL での放熱性が低く、出力飽和が早く起きていると考えられ、ダイヤモンドサブマウントによる放熱性向上が確認できた。

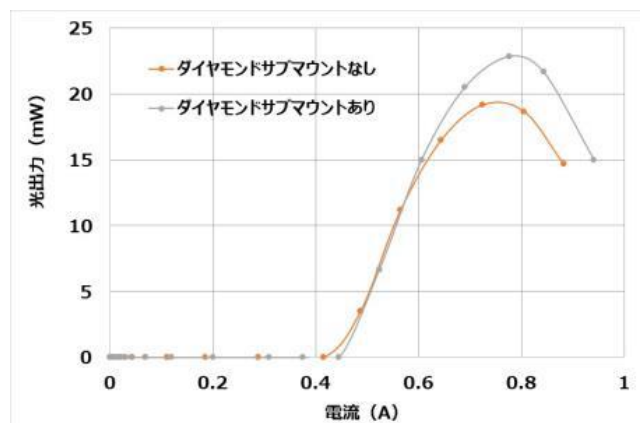


図 3. 2. 125 ダイヤモンドサブマウントによる放熱性の向上

#### まとめ

熱解析シミュレータを用い、放熱性を改善（熱抵抗の低減）する構造を検討した。放熱性向上には、今回評価した構造から、放熱性向上には基板厚 120  $\mu\text{m}$ 、Cu でリッジを埋め込んだエピトップあるいはエピサイドダウン構造が有効であることがわかった。また、実装方式では、ダイヤモンドサブマウントが有効であることが示された。計算で得られたこれらの構造は、東芝にて実験で効果を確認し、試作素子構造に反映した。

#### 3. 2. 3. 3 量子井戸シミュレータによるゲイン向上の検証

2018 年度の成果報告書で発光層の障壁の膜厚を薄くするとゲインが向上するという計算結果を報告した。その後、シミュレーション結果をもとに素子を試作し、EL 強度を測定した。2019 年度に試作素子と EL 強度の比較を行った。

(1) 発光層の障壁の膜厚とゲイン

(A) ベースとする膜構造

ベースとする膜構造は表 3.2.11 に示した APL91 である。図 3.2.126 に電圧 400 mV での APL91 の量子バンド図を示す。APL91 は 14 のミニバンドからなり、Level 10 から Level 12 への電子遷移が発光に主に寄与している。つまり  $\Delta_{emi}$  は Level 10 と Level 12 のエネルギー差である。APL91 の  $\Delta_{emi}$  は 266 meV であり、波長に換算すると 4.772  $\mu\text{m}$  である。

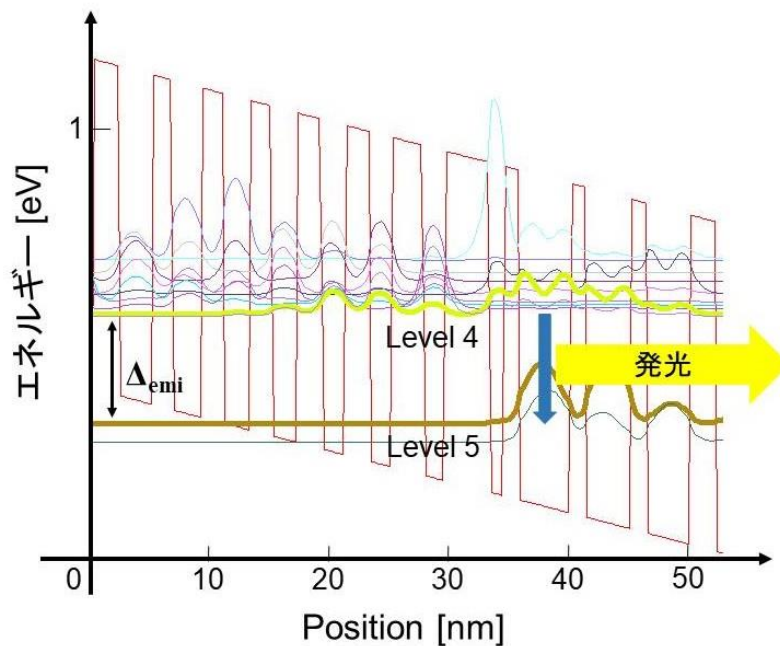


図3.2.126 電圧400 mVでのAPL91の量子バンド図

(B) ゲインと波長

発光層の障壁の膜厚を変化させたときのゲインが図 3.2.127 に示されている。0%が APL91 である。いずれの電圧でも膜厚を薄くするとゲインが徐々に高くなり、-10%で APL91 の 1.17-1.28 倍になり、最大で APL91 の約 1.6 倍になっている。逆に膜厚を厚くすると、すべての電圧でゲインは減少した。

「発光層の障壁が薄い膜構造」では高い出力が期待できるが、構造が大きく変化すると試作が困難になる。図 3.2.128 に発光層の障壁の膜厚を変化させた構造の歪みを示す。膜厚が薄くなるほど歪みが大きくなるため、障壁を 10%薄くした膜構造と、障壁を 10%厚くした膜構造について、波長を計算した。波長の計算値を図 3.2.129 に示す。発光層の障壁を 10%薄くした膜構造は、APL91 よりも若干波長が長くなっている。一方、発光層の障壁が 10%厚くなった構造では、波長が短くなっている。



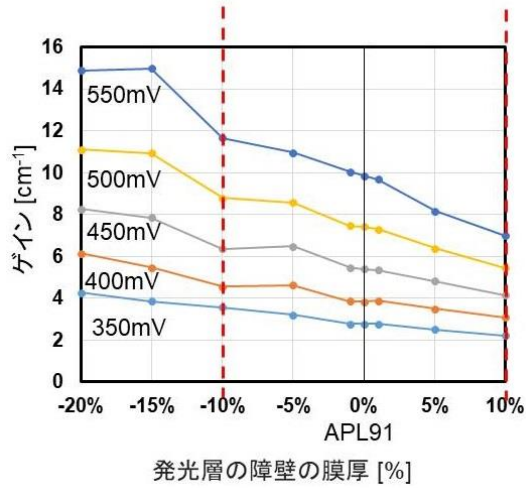


図3. 2. 127 発光層の障壁の膜厚を変化させたときのゲイン

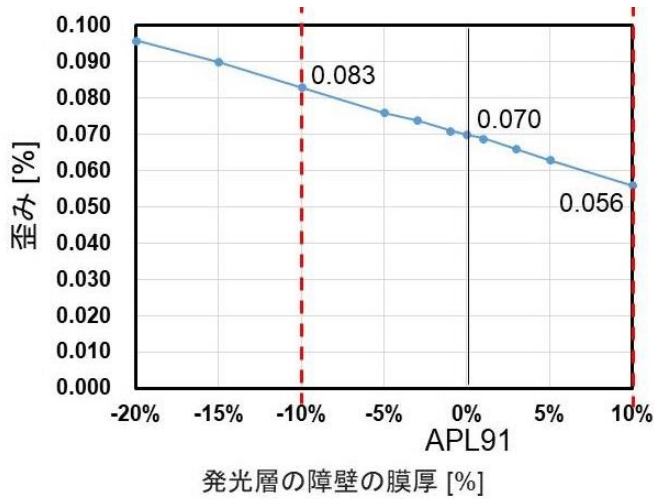


図3. 2. 128 発光層の障壁の膜厚を変化させた構造の歪み

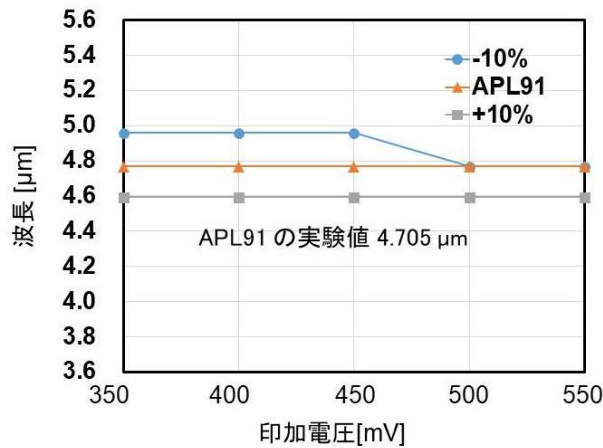


図3. 2. 129 波長の計算値

表 3. 2. 22 に電圧 400 mV での 3 つの膜構造の  $\Delta_{emi}$  を示す。発光層の障壁が 10% 薄い膜構造の  $\Delta_{emi}$  は APL91 よりやや小さくなっている。このため波長が長くなったと考えられる。逆に、発光層の障壁が 10% 厚くなった膜構造では、 $\Delta_{emi}$  が大きくなったため、波長が短くなったと推定される。

表 3. 2. 22 電圧 400 mV での 3 つの膜構造の  $\Delta_{emi}$

膜構造	$\Delta_{emi}$ [meV]	波長換算 [ $\mu\text{m}$ ]
APL91	266. 0	4. 665
-10%	250. 4	4. 955
+10%	288. 5	4. 301

## (2) 素子の試作と EL 強度

計算結果を受けて、膜厚を 10% 薄くした膜構造を持つ EL 素子を試作した。この素子を “-10% device” と表記する。実際の試作素子を図 3. 2. 130 に示す。素子長は 2 mm で、リッジ幅は 100  $\mu\text{m}$ 、マウントは Cu/W である。EL スペクトルの測定機器を図 3. 2. 131 に示す。

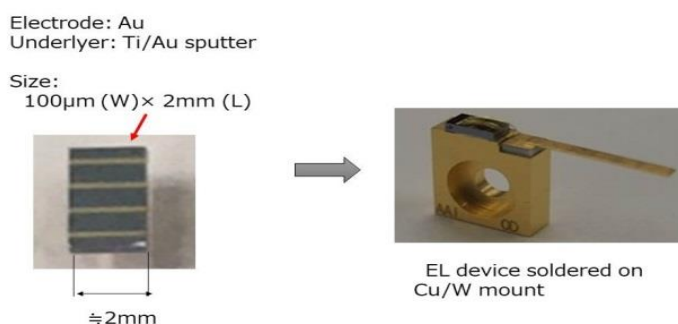


図 3. 2. 130 試作した -10% device

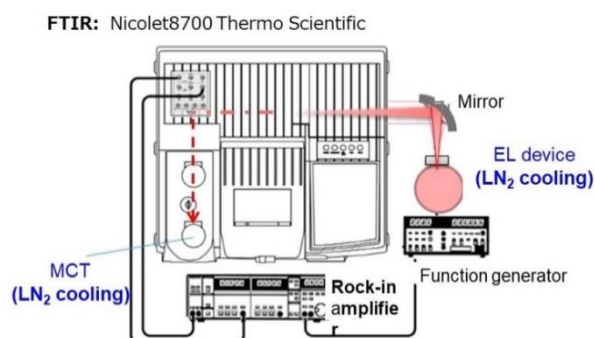


図 3. 2. 131 EL スペクトルの測定機器

測定条件は 100 kHz、パルス幅 300 ns、温度は  $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$  である。EL スペクトルの測定結果を図 3. 2. 132 に示す。横軸は波長 [ $\mu\text{m}$ ]、縦軸は EL 強度である。波長は APL91 が  $4.53\text{ }\mu\text{m}$  に対し、-10% device は  $4.77\text{ }\mu\text{m}$  と長くなった。これは図 3. 2. 129 の波長の計算結果の傾向を再現している。また、-10% device の EL 強度は APL91 の約 1.4 倍となった。シミュレーションで見込まれたゲインの増加量 (1.17-1.28 倍) よりも、実際の EL 強度は強くなった。本研究で用いた非平衡グリーン関数法に基づくシミュレーションが実際の素子の設計に極めて有効であることがわかった。

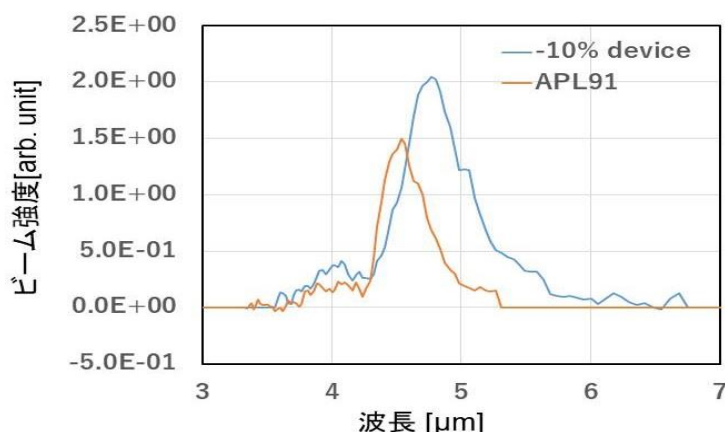


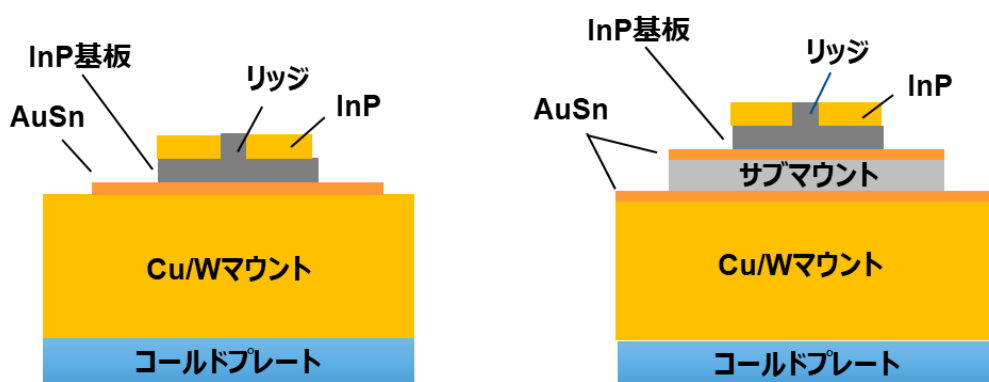
図3.2.132 ELスペクトルの測定結果

### 3.2.3.4 ダイヤモンドサブマウントの効果

QCL 素子の放熱性の向上への対策の 1 つとして、ダイヤモンドサブマウント方式を適用し、その効果を温度測定により確かめた。さらに構造関数と 3D シミュレーションを用いてサブマウントの効果을明らかにした。

#### (1) QCL の構造と温度測定

図 3.2.133 に長さ 4 mm の QCL の断面図を示す。図 3.2.133 (a) では、InP 基板が AuSn で Cu/W マウントにはんだ付けされている。InP 基板、はんだ、マウントの厚さは、それぞれ 600 μm、5 μm、3000 μm である。(b) では InP 基板が、ダイヤモンドサブマウントを介して、Cu/W マウントに実装されている。ダイヤモンドサブマウントは elementsix Inc. の Diafilm TM200 で、その熱伝導率は 2000 W/mK である。また、(a)、(b) ともに Cu/W マウントは、ペルチェ素子により冷却している。構造 (a)、(b) の QCL では、Cu/W マウントを 12.0 °C に冷却した。



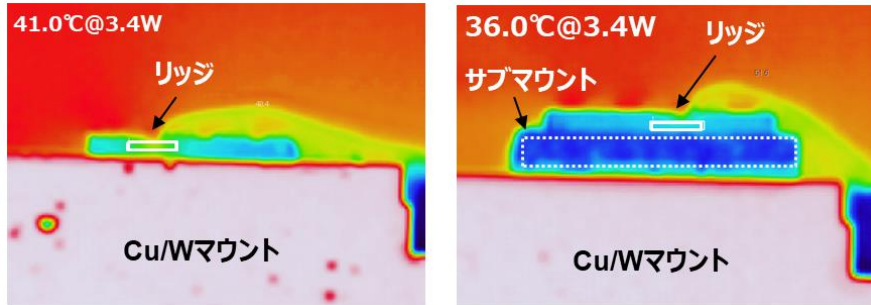
(a) サブマウント無し

(b) ダイヤモンドサブマウント有り

図 3.2.133 長さ 4 mm の端面発光型 QCL の断面図

両マウント構造の QCL に 3.4 W の電力を供給し、デバイスの温度をサーモビューワで測定した。サーモビューワ FSV-210L (Apiste Corp.) は 25 μm レンズとデジタルズームにより、25 μm 以下の空間分解能で温度を測定できる。サーモビューワは InP 基板の放射率で温度を測定するように設定した。図 3.2.134(a) はサブマウント無し、(b) はダイヤモンドサブマウント有りの測定結果

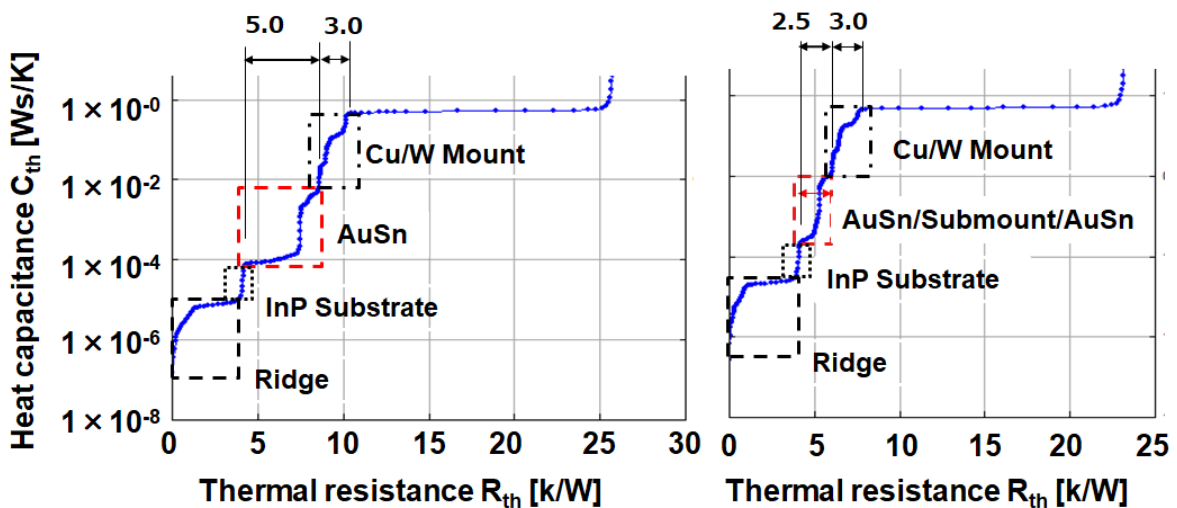
である。(b)でダイヤモンドサブマウントは均一に冷却されている。リッジ部の温度は、(a)で41.0℃、(b)で36.0℃となった。同じ投入電力で、(b)のダイヤモンドサブマウント有りで放熱性が高く、温度上昇が抑制されていることが分かる。



(a) サブマウント無し (b) サブマウント有り

図 3.2.134 サーモビューアによる 3.4 W 電力投入時の QCL 素子の温度

図 3.2.135(a)、サブマウント無しの構造関数、(b)はダイヤモンドサブマウント有りの構造関数である。(a)の QCL では、構造関数変曲点から、熱抵抗はリッジ、InP substrate、AuSn、Cu/W に分割される。同様に、(b)の QCL では、熱抵抗はリッジ、InP substrate、AuSn/submount/AuSn、Cu/W に分割される。(a)と(b)で、リッジ部、InP substrate、Cu/W の熱抵抗はほぼ同じである。一方、(a)の構造では、AuSn の熱抵抗が 5.0 K/W であり、(b)の構造では AuSn/submount/AuSn の熱抵抗は 2.5 K/W である。InP substrate と AuSn/submount/AuSn AuS との熱抵抗が異なることから、デバイス全体の熱抵抗は、サブマウント無しの(a)が 10.0 K/W、ダイヤモンドサブマウント有りの(b)が 7.5 K/W となった。



(a) サブマウント無し (b) サブマウント有り

図 3.2.135 構造関数による熱抵抗の切り分け

## (2) 3D シミュレーションによる熱解析

ダイヤモンドサブマウントの熱特性を評価するもう 1 つの方法として、3D モデルによる熱気流解析を行った。面発光型 QCL の 3 次元形状、物性データを入力してシミュレーションモデルを構築した。シミュレータには熱気流解析ソフト Flotherm を用いた。

図 3.2.133 の QCL 構造でサブマウント有りの 3D 形状モデルを、図 3.2.136 に示す。この 3 次元モデルで、物性値は表 3.2.6 で述べた値と同じ値を用いた。ただし、ダイヤモンドサブマウントの熱伝導率は、カタログ値の 2000 W/mK とした。温度の境界条件はペルチェ温度を 12 °C に固定し、QCL の周囲温度は 30 °C に設定している。また、電源からの電力は活性層に投入されると仮定し、レーザ励起部への電力を変化させて温度上昇を計算した。

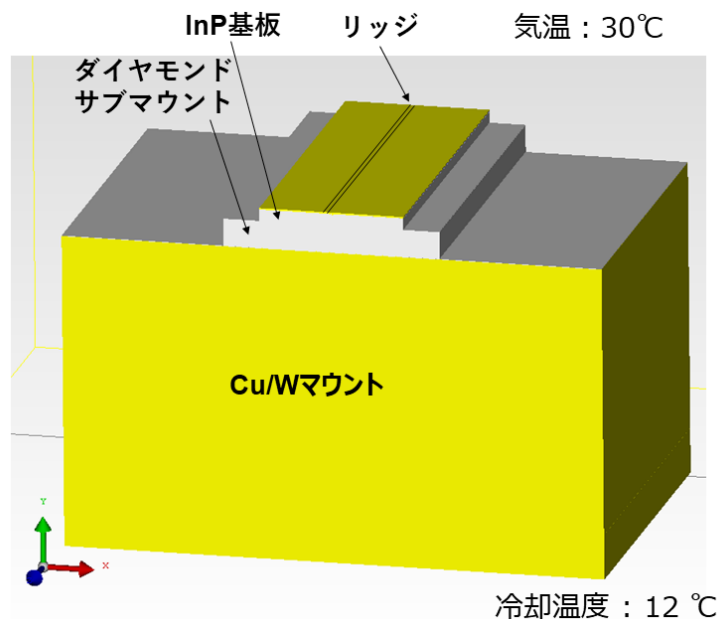


図 3.2.136 ダイヤモンドサブマウント有りの 3D 形状モデル

図 3.2.137 にシミュレーション結果を示す。(a)がサブマウント無し、(b)がサブマウント有りの結果である。(a)、(b)ともに、リッジ部の温度が一番高くなっている。リッジ部の最大温度は、(a)で 42.5 °C、(b)は 36.9 °Cとなった。(b)の温度が(a)の温度より約 5.0 °C低くなる傾向は、前節のサーモビューワの測定結果とよく一致している。(b)でダイヤモンドサブマウントの水平方向の温度はほぼ一定となっている。ダイヤモンドサブマウントの熱伝導率が 2000 W/mK と高く、リッジ部からの熱が水平方向に広がり、放熱されていると推定される。

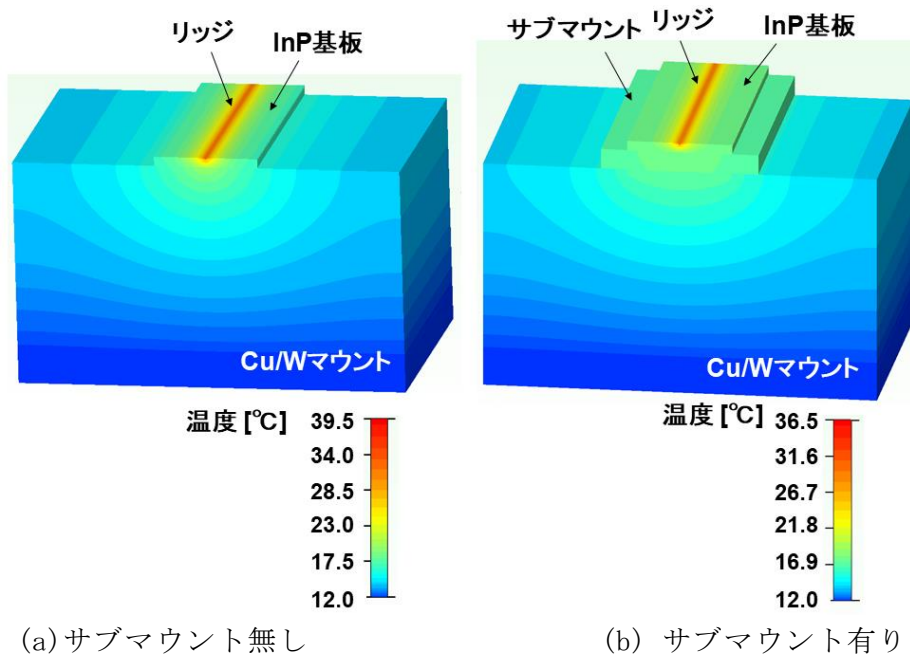


図 3.2.137 シミュレーション結果

そこで(a) (b)の水平方向の熱流束の大きさ[W/m<sup>2</sup>]を調べたのが図 3.2.138 である。(a) (b)ともに同じ、コンターレベルで示してある。また、熱流束は、左から右への流れを正方向に取っている。リッジの熱は左右両側に伝搬するため、リッジの右側は正方向、左側は負方向となっている。ダイヤモンドサブマウントでは、リッジを中心とした広い範囲で、水平方向への熱流束が高くなっているのがわかる。以上より、リッジの熱がサブマウントにより水平方向の左右に広がって伝搬することで、ダイヤモンドサブマウントを用いた実装方法 (b)での熱抵抗が小さくなると推定される。

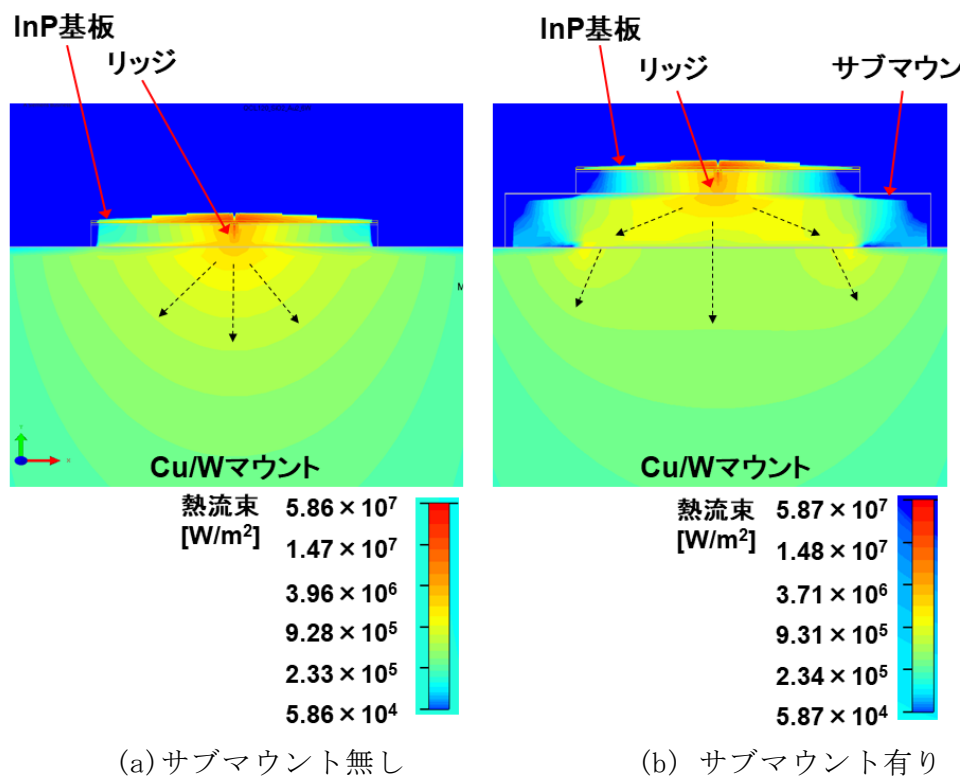


図 3.2.138 水平方向の熱流束の大きさ

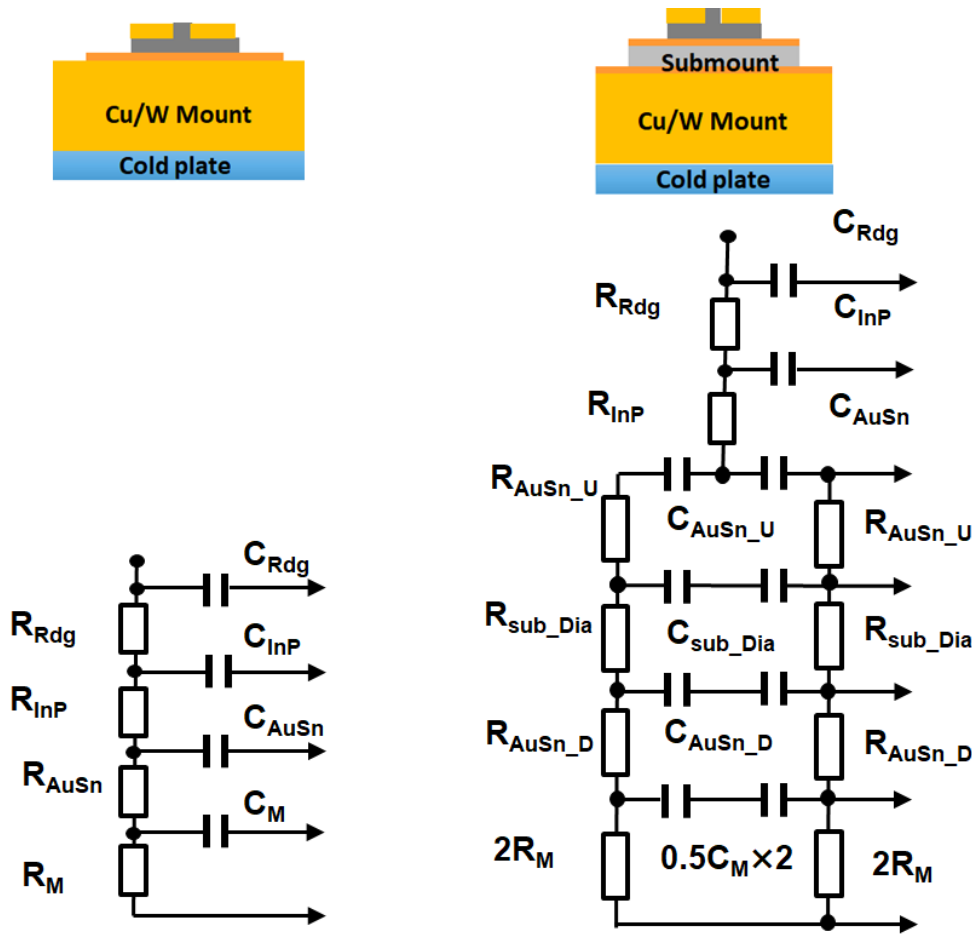
(3) 等価回路による解析

図 3.2.138 の熱流束の水平方向広がりから、リッジで発生した熱が左右に広がって伝搬することを示した。これを熱抵抗  $R$  と熱容量  $C$  の熱抵抗等価回路で考える。図 3.2.139(a) はサブマウント無しの場合の等価回路、(b) ダイヤモンドサブマウント有りの同回路である。図 3.2.135 の構造関数の変曲点から、熱抵抗と熱容量は、リッジ部、InP 基板、AuSn 半田、Cu/W マウントの 4 つの部分に分割される。また、AuSn の熱抵抗  $R_{AuSn}$  は 5.0 K/W、Cu/W マウントの熱抵抗  $R_M$  は 3.0 K/W と読みとれる。

サブマウント有り (b) では、ダイヤモンドサブマウントの熱伝導率が高いことから、熱が左右に拡散して伝達する。これを、図 3.2.139(b) の等価回路で考える。上側の半田部の熱抵抗を  $R_{AuSn_U}$ 、ダイヤモンドサブマウントの熱抵抗を  $R_{sub\_Dia}$ 、下側の半田部の抵抗を  $R_{AuSn_D}$  とする。この部分は、 $R_{AuSn_U}$ 、 $R_{sub\_Dia}$ 、 $R_{AuSn_D}$  が直列接続され、この直列回路が並列接続された回路となる。構造関数から、この部分の抵抗は 2.5 K/W であることから、式(3.2.18)が成り立つ。

$$\frac{R_{AuSn_U} + R_{sub\_Dia} + R_{AuSn_D}}{2} = 2.5 \tag{3.2.18}$$

Cu/W マウントでは、熱伝達の面積は左右で半分となり、それぞれの熱抵抗は図 3.2.139(a)  $R_M$  の 2 倍の  $2R_M$  となる。これが並列に接続された回路となることから、マウント部の熱抵抗は  $2R_M \times 1/2 = R_M$  で、(a) と同じになる。



(a) サブマウント無し (b) サブマウント有り

図 3.2.139 水平方向の熱流束の大きさ

## まとめ

量子カスケードレーザで、サブマウント無しとダイヤモンドサブマウント有りの実装構造に対する放熱性を、サーモビューワによる温度測定と 3D シミュレーションを用いて評価した。3D シミュレーションでは、ダイヤモンドマウント中を水平方向に伝わる熱流束がサブマウント無しより大きくなることが確認された。水平方向の熱流束により InP 基板から Cu/W マウントへの放熱性が向上し、熱抵抗が低下したと推定される。

### 3.2.3.5 面発光型 QCL の熱抵抗低減

#### (1) 3D シミュレーションモデル

ダイヤモンドの熱伝導率は 2000 W/mK で、通常マウントに用いられる銅 (400 W/mK) に比べると格段に高い。そこで面発光型 QCL のマウント実装にダイヤモンドサブマウントを挿入した解析モデルを作製し、その効果を評価する。解析モデルを図 3.2.140 に示す。

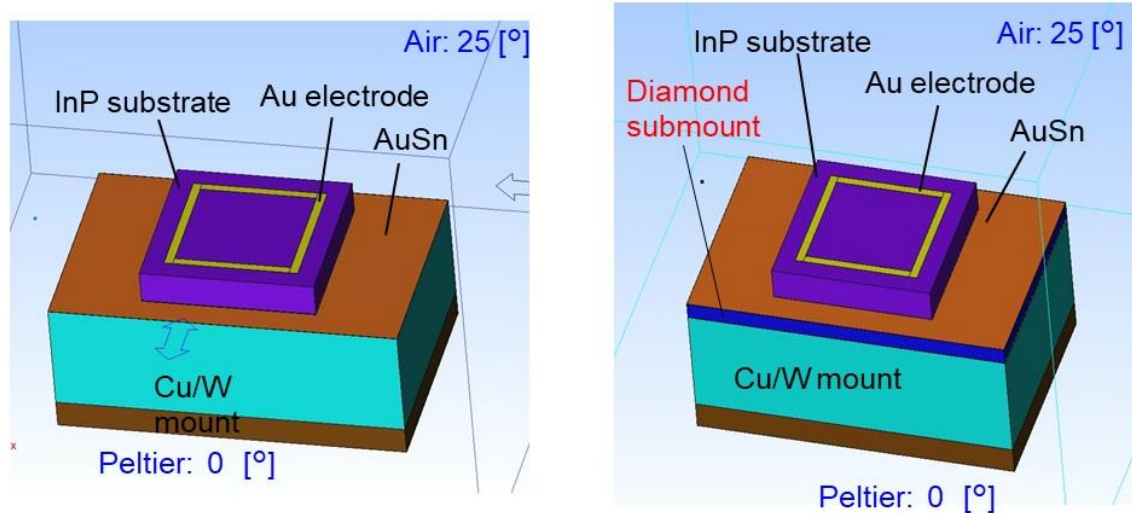


図 3.2.140 InP 埋込面発光型素子の解析モデル。

左：ダイヤモンドサブマウント無し、右：ダイヤモンドサブマウント有り

#### (2) シミュレーション結果

前節で作製したモデルによる熱解析シミュレーションの結果を図 3.2.141 に示す。投入電力は 10 W である。ダイヤモンドサブマウント無しでは温度が 82.58 °C 上昇した。一方、ダイヤモンドサブマウント有りでは、ダイヤモンドの高い熱伝導でメサ部の熱が水平方向に拡散し、マウントの全面で熱放出が発生している。その結果、温度上昇は 52.47 °C に抑制された。



温度上昇：82.58℃

温度上昇：52.47℃

ダイヤモンド  
サブマウント

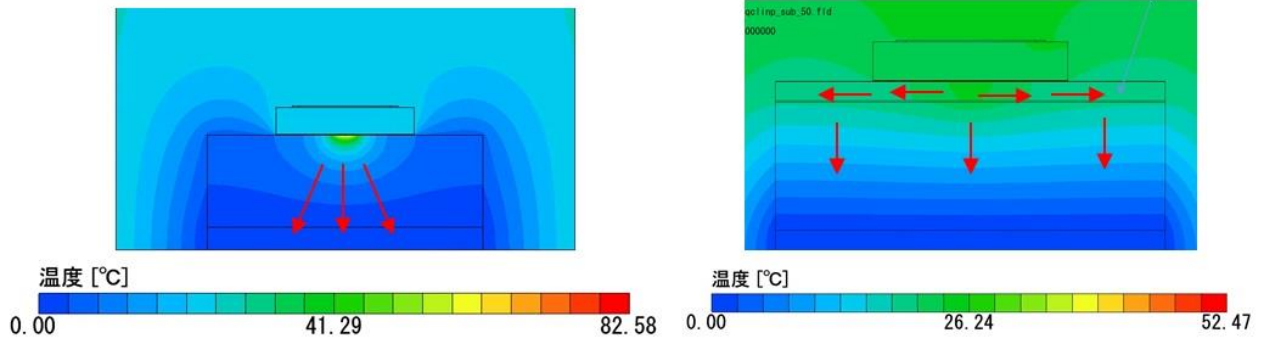


図 3.2.141 投入電力 10 W での熱解析シミュレーションの結果  
左：ダイヤモンドサブマウント無し、右：ダイヤモンドサブマウント有り

次に、投入電力を変化させて熱解析シミュレーションを実行した。図 3.2.142 に投入電力とメサ部の温度の関係を示す。ダイヤモンドサブマウントの改善効果は投入電力が高くなるほど大きくなった。

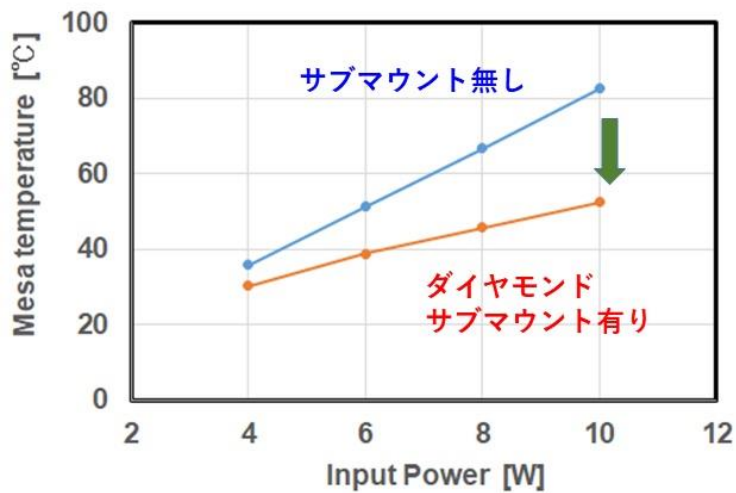


図 3.2.142 投入電力とメサ部の温度の関係

### (3) ダイヤモンドサブマウント素子の試作

熱解析シミュレーションによってダイヤモンドサブマウントには高い放熱効果があることがわかった。そこで、ダイヤモンドサブマウントを実装した QCL 素子を試作し、放熱性を評価することにした。試作した面発光型 QCL 素子を図 3.2.143 に示す。

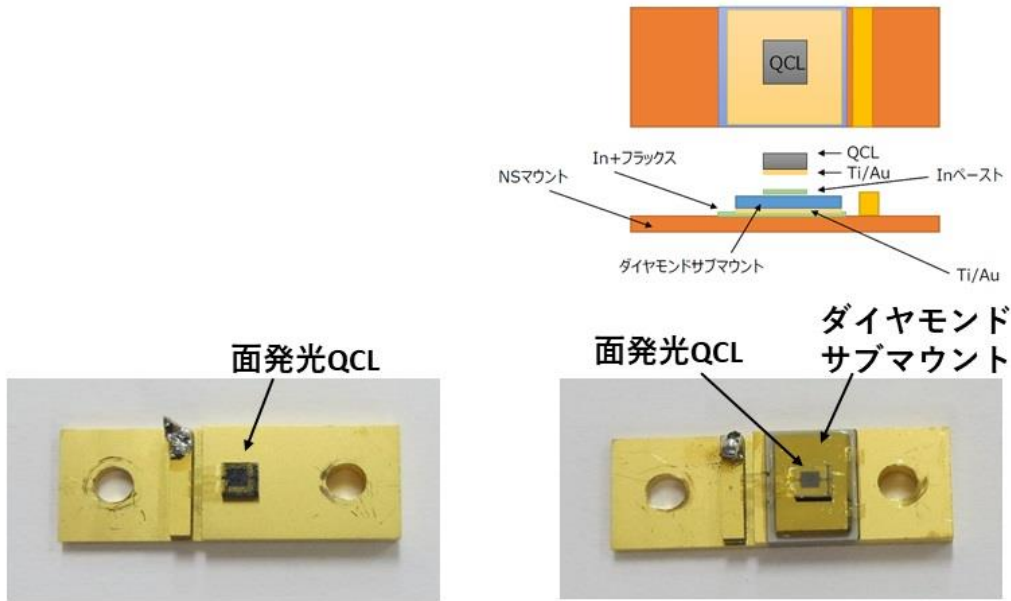


図 3. 2. 143 試作した面発光型 QCL 素子、左：ダイヤモンドサブマウント無し、右：有り

#### (4) 構造関数の測定

構造関数により熱抵抗を評価する。試作した面発光型 QCL 素子の構造関数を図 3. 2. 144 に示す。図 3. 2. 144 の結果より、ダイヤモンドサブマウント無しの素子の熱抵抗  $R_{th}$  は 8.5 K/W である。一方、ダイヤモンドサブマウントを実装した素子の熱抵抗は 6.2 K/W で、ダイヤモンドサブマウントにより熱抵抗が低減したことを確認できた。

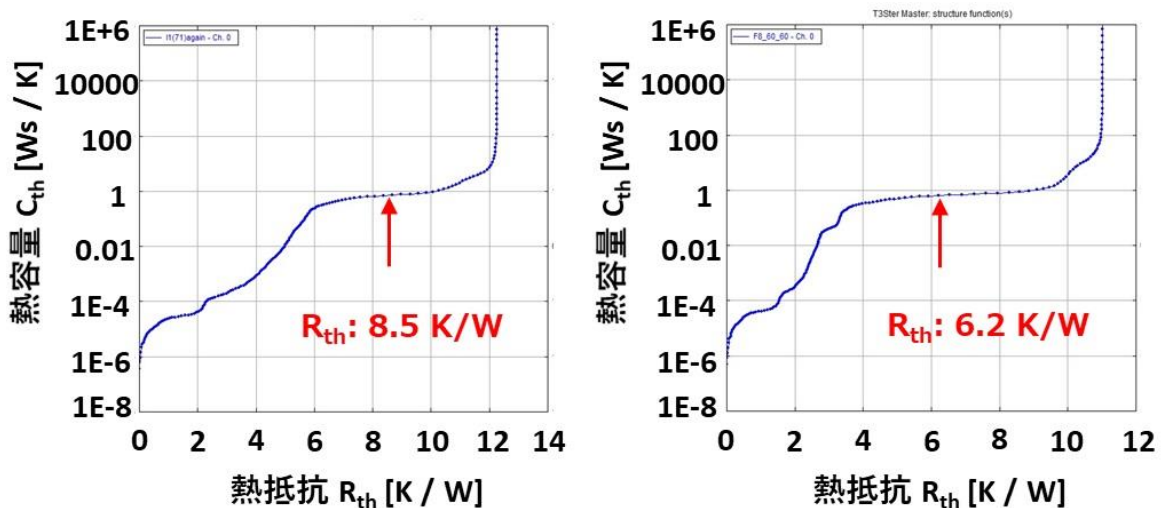


図 3. 2. 144 面発光 QCL 素子の構造関数、左：ダイヤモンドサブマウント無し、右：有り

#### (5) レーザ出力の向上

試作したダイヤモンドサブマウント実装の面発光型 QCL 素子の I-L 特性を図 3. 2. 145 に示す。ダイヤモンドサブマウント無しの素子のピーク出力は 270 mW であるのに対し、ダイヤモンドサ

ブマウント有りの素子のピーク出力は 290 mW であった。ダイヤモンドサブマウントにより放熱性が改善され、出力が向上したことを確認できた。

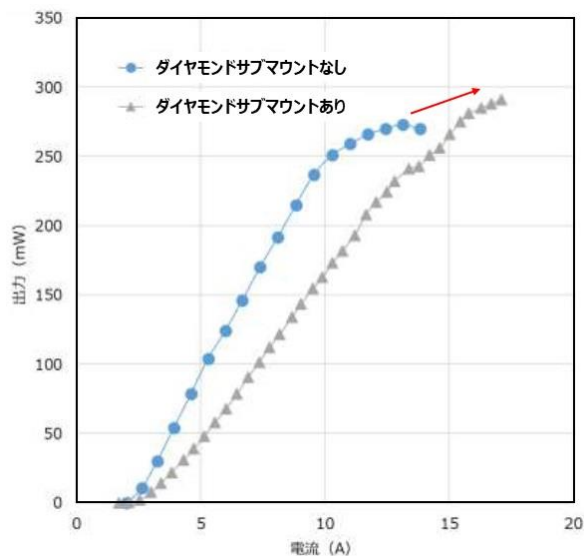


図 3.2.145 試作したダイヤモンドサブマウント実装の面発光型 QCL 素子の I-L 特性

#### 参考文献

- [3.2.1] JEDEC Standard JESD51-1.
- [3.2.2] JEDEC Standard JESD51-14.
- [3.2.3] E. N. Protonotarios and O. Wing, IEEE Transactions of Circuit Theory, 14(1), 13 (1967).
- [3.2.4] V. Székely, Microelectron. J. 28, 277 (1997).
- [3.2.5] Y. Peng, C. Shu, and Y. T. Chew, J. Comput. Phys. 193, 260 (2003).
- [3.2.6] Y. Liang, Z. Wang, J. Wolf, E. Gini, M. Beck, B. Meng, J. Faist, and G. Scalari, Appl. Phys. Lett. 114, 031102 (2019).
- [3.2.7] S. Adachi, J. Appl. Phys. 58, R1 (1985).
- [3.2.8] Y. M. Kim, M. J. W. Rodwell, and A. C. Gossard, J. Electron. Mater. 31, 196 (2002).
- [3.2.9] M. Musallam and C. M. Johnson, IEEE Trans. Power Electron. 25, 1416 (2010).
- [2.2.10] I. Swan, A. Bryant, P. A. Mawby, T. Ueta, T. Nishijima, and K. Hamasa, IEEE Trans. Power Electron. 27, 258 (2011).
- [3.2.11] C. J. Ho, M. W. Chen, and Z. W. Li, Int. J. Heat Mass Transf. 51, 4506 (2008).
- [3.2.12] J. S. Yu, S. Slivken, and M. Razeghi, Semicond. Sci. Technol. 25, 125015 (2010).
- [3.2.13] T. Grange, Physical Review B 92, 241306 (2015).
- [3.2.14] T. Grange, Applied Physics Letters 105, 141105 (2014).
- [3.2.15] T. Grange, Physical Review B 89, 165310 (2014).
- [3.2.16] S.-C. Lee and A. Wacker, Physical Review B 66, 245314 (2002).
- [3.2.17] Y. Wen, L. Quanyong, L. Wanfeng, Z. Jinchuan, W. Lijun, L. Junqi, L. Lu, L. Fengqi, and W. Zhanguo, Journal of Semiconductors 32(6), 064008 (2011).
- [3.2.18] A. Evans, S. R. Darvish, S. Slivken, J. Nguyen, Y. Bai and M. Razeghi, Applied Physics Letters 91, 071101 (2007).
- [3.2.19] T. Grange, D. Stark, G. Scalari, J. Faist, L. Persichetti, L. D. Gaspare, M. D. Seta, M. Ortolani, D. J. Paul, G. Capellini, S. Birner, and M. Virgilio,

- Appl. Phys. Lett. 114, 111102 (2019).
- [3.2.20] J. Schwinger, J. Math. Phys. 2, 407 (1961).
  - [3.2.21] L. P. Kadanoff and G. Baym, Quantum Statistical Mechanics (W. A. Benjamin, Inc., Menlo Park, California, 1962).
  - [3.2.22] L. V. Keldysh, Soviet Physics JETP-USSR 20, 1018 (1965).
  - [3.2.23] D. Kirch, C.-C. Chang, C. Boyle, L. J. Mawst, D. Lindberg, T. Earles, and D. Botez, Appl. Phys. Lett. 106, 151106-1-5 (2015).
  - [3.2.24] C. Y. Wang, L. Kuznetsova, V. M. Gkortsas, L. Diehl, F. X. Kärtner, M. A. Belkin, A. Belyanin, X. Li, D. Ham, H. Schneider, P. Grant, C. Y. Song, S. Haffouz, Z. R. Wasilewski, H. C. Liu, and F. Capasso, Opt. Express 17, 12929 (2009).
  - [3.2.25] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, S. N. G. Chu, and A. Y. Cho, Appl. Phys. Lett. 68, 3680 (1996).
  - [3.2.26] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, S.-N. G. Chu, and A. Y. Cho, Appl. Phys. Lett. 72, 680 (1998).
  - [3.2.27] A. Aldukhayel, S. R. Jin, I. P. Marko, S. Y. Zhang, D. G. Revin, J. W. Cockburn, and S. J. Sweeney, Phys. Status Solidi B, 250 (4), 693 (2013).
  - [3.2.28] S. Saito, K. Kaneko, R. Hashimoto, and T. Kakuno, Japan Patent 2019-173448 (2019).
  - [3.2.29] K. Deb, A. Pratap, S. Agarwal, and T. Meyarivan, IEEE TRANSACTIONS ON EVOLUTIONARY COMPUTATION, VOL. 6, NO. 2. 283-297 (2002).

### 3. 3 QCL素子の高出力化と高効率化技術（担当：株式会社 東芝）

#### はじめに

量子カスケードレーザ（QCL：Quantum Cascade Laser）は1994年に初めて発振が確認された半導体レーザで、中赤外・遠赤外、さらにはTHz域までの波長帯をカバーできる唯一の小型光源である[3.1.1, 2, 3]。2002年には室温での連続動作が達成され、実用化に向けた応用開発が一気に加速した[3.1.4]。特にガスセンシングや化学分析の分野では、中赤外域に分子固有の吸収ピークが多数存在することから、高感度、高精度に分子を検出する分析応用のための光源として用いられている[3.1.5]。QCLを用いた分析機器は高感度でコンパクトなため、今後さまざまな利用方法が想定されている。

本研究の開始当時は、フォトニック結晶を用いた面発光型のQCLは実現されておらず、目標値として掲げた特性を実現するため、QCLの活性層の設計とQCL素子の結晶成長、QCL素子作製プロセス、面発光型QCLを実現するためのPC構造とQCL素子の技術それぞれについて検討を行った。

QCLの活性層の設計とQCL素子の結晶成長においては、高出力な面発光型QCLを実現するため、結晶成長技術研究、高放熱埋め込み構造作製プロセス技術研究、PC構造のレーザ構造への適合技術研究が必須である。結晶成長技術研究においては、高い量子効率をもたらす量子井戸構造をシミュレーションなどの手法を活用して見出すことが求められる。また、そうした設計値を厳密に実デバイスとして成膜できる結晶成長技術が必要になる。

以上の課題に対して3.3.1章QCLの活性層の設計とQCL素子の結晶成長ではQCL素子の光出力の高出力化を目指し、量子井戸設計シミュレータを利用して、電子の散乱や意図しない非発光の遷移過程を低減し、高い電気-光変換効率を有する量子井戸構造の設計を行った。設計においては、ナノメートルスケールでの現象をより正確に計算できる非平衡Green関数を用いた計算手法を導入し、検討を行った。また、この設計においては東京工科大3.2.3章において提案された熱特性の改善提案を導入した。

量子井戸設計シミュレータの精度を向上するため、フォノンの散乱時間、散乱時間及び量子井戸を形成するヘテロ接合のバンドオフセットを計測と既知論文より収集し、シミュレータにおけるパラメータを改善した。量子井戸を形成するヘテロ接合のバンドオフセットを高精度で同定するために、超高分解能光電子分光法により計測を行った。これらのパラメータを導入することで、量子井戸設計シミュレータと実験結果との整合精度を向上させ、設計効率が向上できた。

結晶成長においては、設計された量子井戸構造をMBE法による結晶成長で実現するため、MBE装置に反射高速電子線回折（RHEED：Reflection High Energy Electron Diffraction）によるその場評価システムを活用した。RHEEDによるその場観察で表面状態を把握しつつ量子井戸を構成するヘテロ界面の平坦性と急峻性を、1原子オーダーでコントロールすることで、成長精度を向上できた。作製した量子井戸構造について、透過電子顕微鏡（TEM：Transmission Electron Microscope）評価、3次元アトムプローブ評価（3DAP：3 Dimensional Atom Probe）といった原子レベルの評価を行い、結果をフィードバックする事で、結晶成長条件、ヘテロ界面の切り替え条件の最適化を行った。量子井戸構造全体の定量評価には、X線回折（XRD：X-ray Diffraction）を用いることで、設計した構造を高い精度で実現できた。

次にQCL素子作製プロセスにおける課題は、発熱量が大きいQCLにおいては、放熱構造の最適化が必須であるが、面発光型QCL素子では光を導波するリッジ脇トレンチやPCなどの凹型構造による空隙が表面に存在し熱伝導を阻害するため、熱伝導による放熱性が低い点であった。このため、空隙を高放熱部材で埋め込む等の対策が必要であった。界面熱抵抗の影響は複雑で未解明な部分が多く、このため複数の手法・構造を並行して検討し最適解を導く必要があった。

以上の課題に対して3.3.2章のQCL素子作製プロセスでは、QCL素子単体での性能評価は、光導波路構造を組み込んだ端面発光型QCLにて行った。端面発光型QCLはPCの光取出し性能等の影響を受けないため、QCL素子のみの真の性能を評価できる。端面発光型QCLを動作させ量子効率等の評価を行い、この結果を3.3.1章QCL設計に反映することでQCL素子の性能向上を図った。まずQCL素子構造のウエハ作製条件を確定し、3.1.2章PC面発光型QCLの試作に対しQCL素子構造のウエハの供給を行った。なお、QCL素子作製条件が確定するまではQCL素子に等価な光学特性を有するウエハを供給することとした。QCL素子上の凹部による空隙を熱伝導性の良い材料で埋め込むことで、

QCL素子の放熱性を向上するための構造と形成プロセスの検討を行った。埋め込み材料候補はAu、Cu、絶縁性InP等を想定していたが、他の候補材料の追加検証も検討した。これらの埋め込み材料候補に対して、断面観察による界面状態・ボイドの有無の確認、熱抵抗係数、QCL素子性能への影響の評価及び熱履歴による素子の信頼性評価を行い、さらに構造作製プロセスの困難度を考慮した上で材料を選定した。

QCL素子の熱抵抗係数評価方法として、短パルス印加に対する発熱応答特性の測定によって熱抵抗係数の相対評価をする手法の導入を検討した。また3.2.2章の熱解析モデルによる検証と比較し、実装を含めたモジュール全体の熱設計と連携した検証を進めた。埋め込み材料とQCLを構成する各材料との屈折率差によりQCL素子性能に影響を与えることが想定されるため、電磁場解析シミュレーションにより影響度の評価を行い、構造の最適化を行った。Au、Cu等の金属材料については従来の電磁場解析シミュレーションでは計算の収束が難しいため、計算が収束しやすい計算方法や条件の検討を行った。一方、実験と計算の双方より半導体埋め込みが最適であることがわかり、この構造開発に注力した。

面発光型QCLを実現するためのPC構造とQCL発光素子においては、PC構造をレーザ構造に適合することにも困難が予想された。PCは光取出し・単一モード制御・温度依存性の緩和などの効果をもたらすために極めて精緻な構造作製が必要であり、一方でレーザとしての必須構造を同一素子内で両立させる必要がある。これには高度な素子作製技術が必要である。QCL素子の発振波長とPCによって制御される波長を一致させるために端面発光型QCLにPCを連結した評価用のPC面発光型QCL型を設計・試作し、評価結果を3.1.1章のPC設計及び3.3.1章のQCL素子設計にフィードバックする必要がある。

以上の課題より3.3.1章では、3.1.2章にて確立されたPCの設計及び作製プロセスを導入し、QCL素子上にPCを形成する一連のプロセスの最適化を行った。PC作製プロセスとして、3.1.2で実施するナノインプリントリソグラフィの検討と並行してマスク露光によるフォトリソグラフィの検討も行う。双方の検討結果を比較し、PC面発光型QCLの作製に最適なプロセスを決定した。PCの構造を高精度かつ垂直性高く形成するため、ドライエッチング前のレジストパターンを意図的に変形しておき、ドライエッチング後には所望の形状が得られる手法を導入し、最適化されたPCをQCL素子上に実現した。

PC面発光型QCL素子においてはPCへの電流注入用にAuなどで構成される電極構造を作製するが、Auは赤外波長域に対して吸収又は厚さによっては反射特性を示すため、光射出面に電極構造が存在すると光取出し効率を低下させる要因になる。サブ $\mu\text{m}$ オーダーで作製されるPCへの悪影響を抑制しつつ、電流注入に十分な電極面積を確保するための電極配置と構造作製技術の最適化を行った。

さらにレーザ光を発するQCL素子と、面発光の光射出を担うPCとを光導波路で連結したPC面発光型QCL構造も検討した。QCL素子とPCを分離する事で、電極による光取出し効率低下や発熱による諸特性への不安定要因をPCから隔離できる。上記の評価用のPC面発光型QCLを元に最適化した構造を設計・試作し、問題点を抽出できた。

以上の課題に対し、検討を行い、研究終了時の達成目標であったQCL素子の量子効率30%以上を達成した。量子井戸の膜厚と組成の揺らぎについて、設計値との差3%以下を実現した。PC面発光型QCLの出力10W以上の実現については、シングルモードでは50mW、マルチモードでは420mWを確認した。また、10W出力時のPC面発光型QCLについてビーム品質 $M^2 \leq 1.5$ の実現を確認については、シングルモード10mWにて $M^2 < 1.5$ を確認した。

### 3. 3. 1 QCL設計と結晶成長

#### 3.3.1.1 QCLの発光層設計

QCLは従来の電子と正孔の再結合によるダイオード型の半導体レーザ(LD)とは異なり、電子のサブバンド間遷移により発光が生じる。伝導帯の量子井戸中の上準位から下準位への電子の遷移により発光が生じ、井戸を複数並べることで、複数回のサブバンド間遷移を生じさせ、発振に必要な光子密度を得ることができる。発光メカニズムが異なるため、従来の半導体レーザのシミュレータでは対応できない。特に構造設計は発光波長を求めるだけでも、n型半導体でサンドイッチした1組5-20層程度の量子井戸30-100組の各量子準位、その量子準位で形成されるミニバンド、各準位間の遷移確率を計算する必要があり、従来の半導体レーザの設計に比べ、煩雑な計算が必要となる。

さらにQCLの高性能化のためには発光層を構成する量子井戸構造の準位、波動関数、遷移確率の設計、解析が必要となる。今回、縦光学(L0)フォノンによる散乱、音響フォノンによる散乱、荷電不純物による散乱、界面ラフネス、合金散乱、電子-電子散乱を考慮したシミュレータを用いて、QCLの発光層を構成する量子井戸の設計と構造検討を行った。

#### (1) QCLの量子井戸設計手法の検討

量子井戸構造は非常に複雑で、量子井戸を含む発光層領域と次の組の量子井戸の上準位に電子を移動させるための注入層領域との1組20層程度で構成される。発光波長は発光層内の量子準位のサブバンド間隔(エネルギー差)で決定される。サブバンド間隔は量子井戸を構成する各層の厚さ、つまり量子井戸の井戸幅と障壁層の幅で決定される。QCLの量子井戸は、電子が層間を移動し量子井戸内、量子井戸間を遷移できるように、近接する量子井戸間で電子の波動関数の包絡関数が重なり波動関数が漏れ出すことで、ミニバンドを構成するような非常に薄い障壁層をもって構成される。そのため、単一の量子井戸の量子準位だけでなく、周辺の多数の量子井戸の準位が影響するため、設計を複雑にしている。さらには反転分布形成に重要である発光層を形成する複数の量子井戸の中央障壁の厚さ、高出力を得るために必要な発光層に近接した注入障壁の厚さ、動作電界を決める注入層構造、電界の不均一を抑制する注入層へのドーピング、注入層基底サブバンドと発光層基底サブバンドの差を超えて電子を輸送するための注入層構造等、設計事項は多岐にわたり、相互に作用しているため、これらすべて考慮したシミュレーションが求められる。

量子井戸内の各準位と準位間の遷移確率を計算し、注目する準位間の遷移確率をレート方程式に当てはめ、キャリアの輸送、発光、吸収、フォノンとの相互作用、散乱の各過程に関して確率を設定し、計算を行った。さらに各領域における電界とキャリア密度の関係はポアソン方程式に従うものとする。以上の過程を自己無撞着的に解くことにより、デバイス特性として測定可能な電流電圧特性、利得特性を求めることができる。今回導入したシミュレータでは以上の考慮がなされている。(図 3.3.1.1)

量子井戸内の電子が所望の準位で遷移し、発光する割合を増加できる構造の設計を行うために新規導入したシミュレータを用いて、いくつかの論文構造で計算パラメータを変更しつつ計算を行い、論文で開示されている波長におおよそ一致することを確認した[3.1.6, 7, 8]。(図 3.3.1.2(a))

さらに発光する割合が増加できる、つまり光出力と温度特性を向上させるため、電子が感じる障壁層のエネルギーを高くする極薄膜のAlAs層を挿入した構造の設計を実行した[3.1.9]。(図 3.3.1.2(b))

先に述べたように量子井戸内の波動関数は周辺の量子井戸の波動関数とカップリングし、ミニバンドを形成しているため、量子井戸内には多数の量子準位が存在する、従来の半導体レーザや発光ダイオードのように基底準位のエネルギーを考慮するだけでよいわけではない。周辺の量子井戸との関係を考慮した準位の計算を行い、さらに準位間の遷移確率を計算し、優先的に遷移する準位が所望の波長になるように量子井戸構造を設計した。この設計はQCLの発光層を構成するすべての量子井戸の最適化を含む。

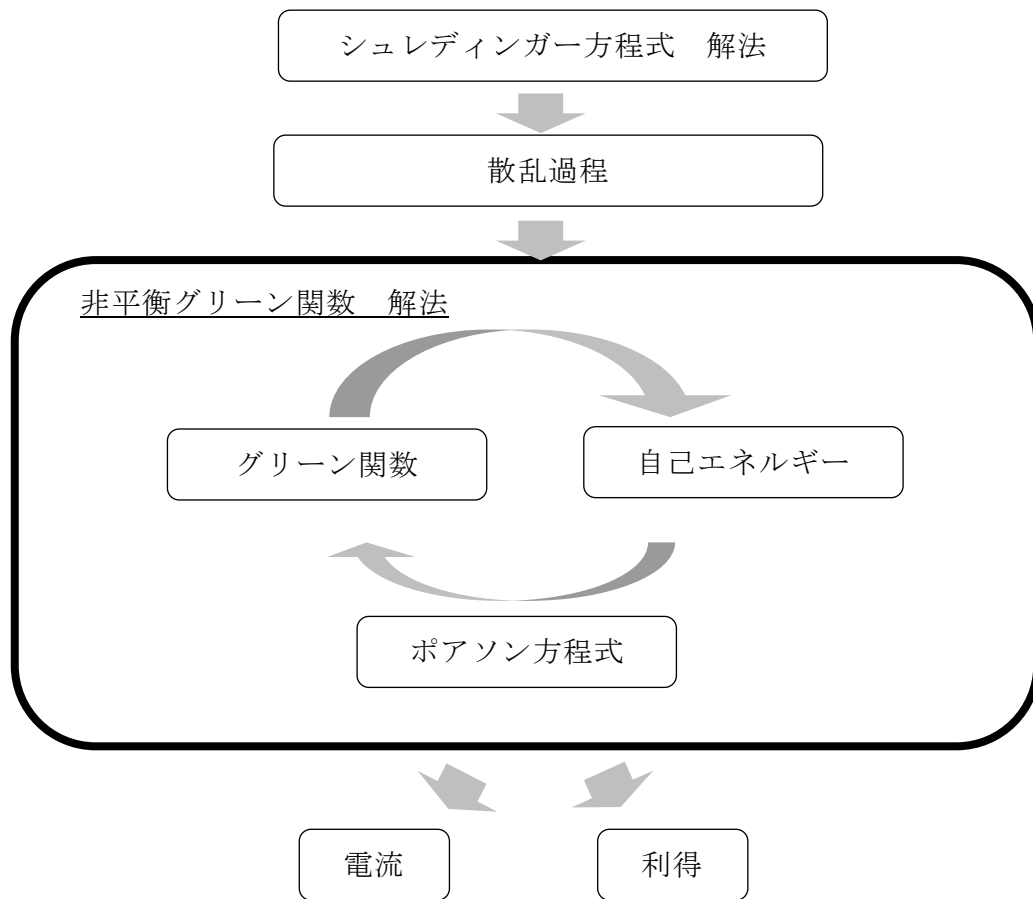


図 3.1.1 非平衡グリーン関数を用いた QCL シミュレーションの計算過程。

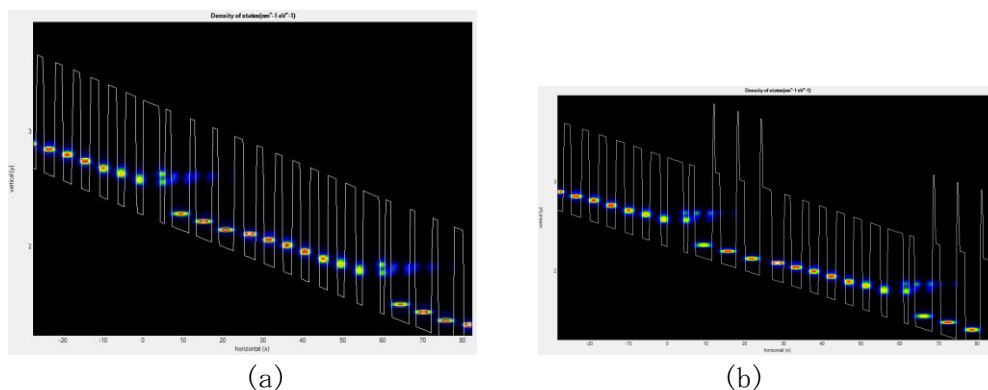


図 3.3.1.2 伝導帯バンド構造と電子密度の計算の一例。

カスケード構造 2 周期分を計算 (a) 4 μm 帯 QCL の標準構造の計算結果、(b) 4 μm 帯 QCL の標準構造に対して電子の閉じ込めを強化する AlAs 層を挿入した構造の計算結果。

## (2) ナノ構造における散乱過程の計算

非平衡 Green 関数を用いた本シミュレータは東京工科大でも導入を行い、基本構造を東京工科大が設計し、その基本構造をもとに東芝が結晶成長、素子試作を行い、発振波長、発振しきい値電流、電圧等の特性をフィードバックし、詳細な構造設計を行う。評価結果は東芝が所有するシ



ミュレータで結晶成長のごとにフィードバックを行い結晶成長に対する精度を向上させるために用いる。現在のところ、試作実績のある構造に対して、計算を行い、発振波長に対して  $0.1\mu\text{m}$  程度の精度で一致することが確認できている。計算に用いるパラメータの修正を行い、ナノメートルオーダーの領域で、各種の散乱現象を考慮した計算を行うことで、量子井戸構造と発振波長を高精度に計算、設計する手法を開発した。非常に薄い層の膜厚変化が電子の閉じ込めに対してどのように作用するかをあらかじめ設計時に把握することで、結晶成長の試作の際の膜厚揺らぎ、設計と試作デバイスとの膜厚の差の影響を定量的に把握することができるようになった。

### (3) QCL の新規量子井戸構造の設計と結晶成長

設計された量子井戸構造を、MBE 結晶成長装置を用いて実現した。1組 5-20 層程度の量子井戸を 30-50 組組み合わせることで発振できる利得を得る必要があるため、長時間にわたり、高精度な結晶成長が必要となる。外乱による瞬間的変動と長期的変動とに影響されずに成膜できる成長方法の検討をおこなった。具体的には高度なヘテロ界面制御を長時間継続するため、結晶成長時の原料切り替えタイミングや原料供給圧力の条件を探索し、X線回折、TEM 評価といった原子レベルの評価方法の結果をフィードバックする事で、条件を最適化した。

特に光出力と温度特性を向上できる量子井戸構造の設計を進めるため、光出力と温度特性を向上させるための 1 つの方法として、電子が感じる障壁層のエネルギーを高くできる量子井戸構造を設計した。図 3.3.1.3 には今回の検討のベースとなる構造を示した [3.1.9]。発光層において電子が所望の準位間の遷移を行わず、熱的に緩和してしまう現象を抑えるため発光層の量子井戸の障壁層にエネルギーバンドギャップが大きい AlAs を用いている。AlAs 層は障壁層を構成する InAlAs 層の In の供給を停止することで実現できる。結晶成長においては結晶の格子定数が一致するもしくは歪が緩和しない程度に歪のバランスをとる必要がある。蓄積される歪が限界を超えた場合には、結晶に欠陥が生じて緩和する。このため歪が緩和しない臨界膜厚以下になるよう膜厚もしくは組成変化を抑えた範囲で設計を行った。

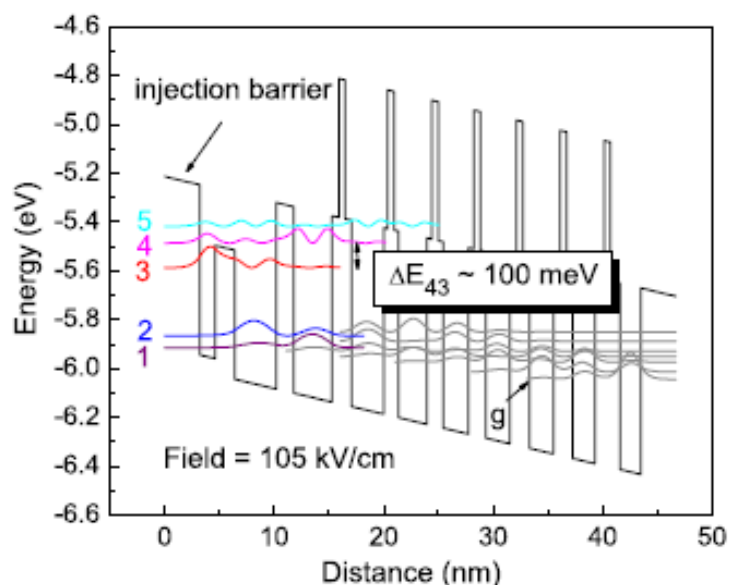


図 3.3.1.3 発光効率および温度特性の向上が示されている構造例。発光層の前段に井戸層と障壁層の組成を他の井戸と異なる組み合わせにし、さらに発光層の後段の障壁層に AlAs 層を挿入した構造 [3.1.9]。

図 3.3.1.4には設計した構造、図 3.3.1.5には設計パラメータである障壁層、井戸層の組成と膜厚を中心値に対して15%増減し、利得と波長の変化を計算した。所望の波長域において従来の3倍に相当する利得が得られる可能性を示していることがわかった。また、温度変化に対して利得の変化量を計算により確かめた結果を図 3.3.1.6に示した。AlAs層を導入することで、素子の温度が高くなった場合でも、従来構造に比べて利得が維持されていることがわかる。

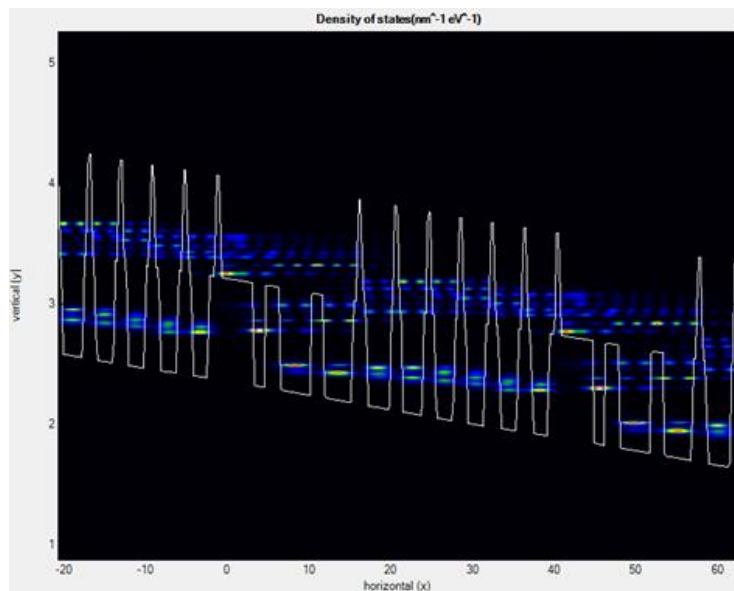


図 3.3.1.4 新規に設計した構造の例。  
 発光層前段の量子井戸も含めすべての層は同一組成の井戸層と障壁層、発光層後段の障壁層に AlAs 層を加えた構造を基本とし、この際の井戸層と障壁層の組成を最適化し新規の構造を検討。

		In <sub>x</sub> Ga <sub>(1-x)</sub> As/In <sub>(1-y)</sub> Al <sub>y</sub> A x,y				
Bias = 500meV						
d <sub>QW</sub>		53%/48%	58%/53%	58%/54%	60%/60%	64%/62%
	× 0.80	90cm <sup>-1</sup>	180cm <sup>-1</sup>	200cm <sup>-1</sup>		20cm <sup>-1</sup>
	× 0.85	120cm <sup>-1</sup>	140cm <sup>-1</sup>	180cm <sup>-1</sup>	80cm <sup>-1</sup>	50cm <sup>-1</sup>
	× 0.90	400cm <sup>-1</sup>	130cm <sup>-1</sup>	140cm <sup>-1</sup>	80cm <sup>-1</sup>	40cm <sup>-1</sup>
	× 0.95	300cm <sup>-1</sup>	200cm <sup>-1</sup>	200cm <sup>-1</sup>	100cm <sup>-1</sup>	50cm <sup>-1</sup>
	× 1.00	170cm <sup>-1</sup>	160cm <sup>-1</sup>	190cm <sup>-1</sup>	150cm <sup>-1</sup>	50cm <sup>-1</sup>
	× 1.05	170cm <sup>-1</sup>	160cm <sup>-1</sup>	170cm <sup>-1</sup>	30cm <sup>-1</sup>	50cm <sup>-1</sup>
	× 1.10	300cm <sup>-1</sup>	160cm <sup>-1</sup>	100cm <sup>-1</sup>	18cm <sup>-1</sup>	50cm <sup>-1</sup>
	× 1.15	80cm <sup>-1</sup>	160cm <sup>-1</sup>	0cm <sup>-1</sup>		80cm <sup>-1</sup>

図 3.3.1.5 新規に設計した構造の組成をパラメータとして利得スペクトルを計算した例。  
 従来構造では 70cm<sup>-1</sup> 程度の利得。

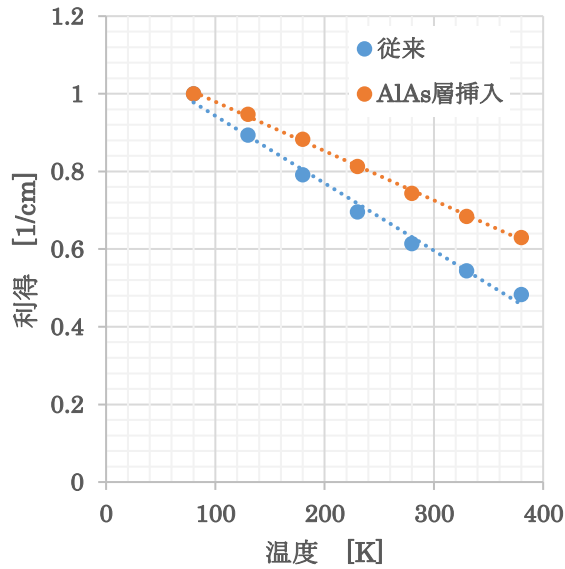


図 3.3.1.6 利得の温度依存性。  
80K で規格化してプロット。

QCL 素子の量子井戸構造の最適化を、非平衡グリーン関数法を用いた量子井戸シミュレータにより行った。東京工科大が提案した新規量子井戸構造を、東芝が結晶成長できるように量子井戸の膜厚等、素子構造パラメータの検討を実施した。東京工科大の提案する構造は量子井戸の障壁層を 30%薄膜化する構造であり、その計算結果を図 3.3.1.7 に示した。量子井戸すべての障壁層の厚さを 30%減少させた場合には利得に変化がほぼ見られないが、発光層のみ厚さを減少させた場合には利得がおおよそ 2 倍になっていることがわかる。

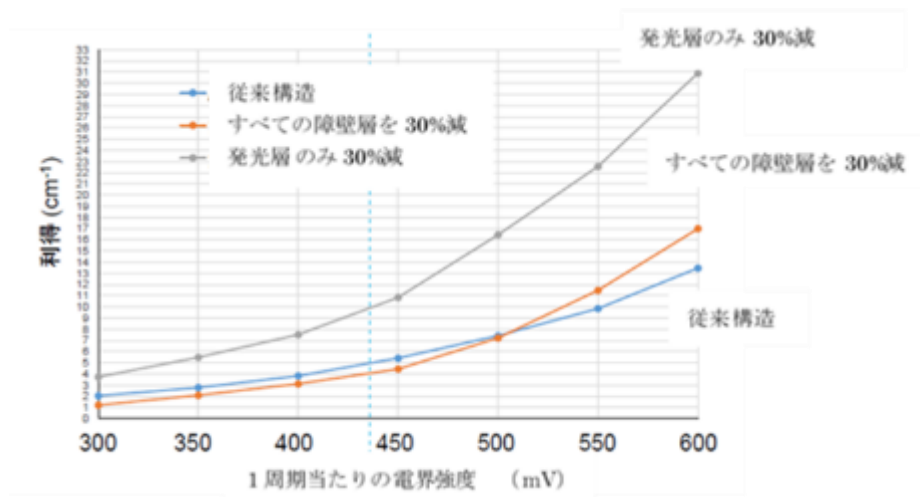


図 3.3.1.7 量子井戸の障壁層の厚さを 30%減とした場合の利得の電界依存性。

表 3.3.1.1 にその構造の設定膜厚を示した。提案された構造は基板となる InP の格子定数に対して、障壁層では、引っ張り歪、井戸層では圧縮歪を受ける。各層ごとの歪、もしくは平均的な歪が臨界値を超えると結晶に欠陥を生じて、歪が緩和する現象が生じる。このため、臨界値を超えない範囲で設計を行う必要がある。今回提案された構造 1 は歪が最大で従来の 1.6 倍程度であることが検討からわかり、結晶成長時に緩和を生じることなく成膜できる可能性がある。一方、

発光層だけでなく、電子注入層の障壁層も 30%減少させた場合の利得変化も計算されており、さらにこの場合歪は従来の 4.8 倍になることが予想される。この場合、結晶の緩和が生じ、良好な結晶が得られないものと考えられる。膜厚減少を 10%に抑えた構造についても結晶成長を行い、比較検討を行った。図 3.3.1.8 には結晶成長を行った構造 1 の XRD の結果を示した。結晶に歪による欠陥が生じて、緩和すると、格子定数が異なる層が発生し、XRD のピークの半値幅が広がるため、結晶の質を判定することが可能である。結果からメインピークの半値幅は 60 秒と従来の構造と同程度の質が保たれていることがわかった。以上により新規 QCL 構造の量子井戸の設計、及び反映した結晶成長を行う 1 つの手段を確立した。

表 3.3.1.1 東京工科大の提案する新規構造。

	各層の膜厚 [nm]		
	従来構造	新規構造 1	新規構造 2
well	2.8	2.8	2.8
barrier	1.7	1.7	1.7
well	2.5	2.5	2.5
barrier	1.8	1.8	1.8
well	2.2	2.2	2.2
barrier	1.9	1.9	1.9
well	2.1	2.1	2.1
barrier	2.1	2.1	2.1
well	2	2	2
barrier	2.1	2.1	2.1
well	1.8	1.8	1.8
barrier	2.7	2.7	2.7
well	1.8	1.8	1.8
barrier	3.8	3.8	3.8
well	1.2	1.2	1.2
barrier	1.3	0.91	1.17
well	4.3	4.3	4.3
barrier	1.3	0.91	1.17
well	3.8	3.8	3.8
barrier	1.4	0.98	1.26
well	3.6	3.6	3.6
barrier	2.2	1.54	1.98

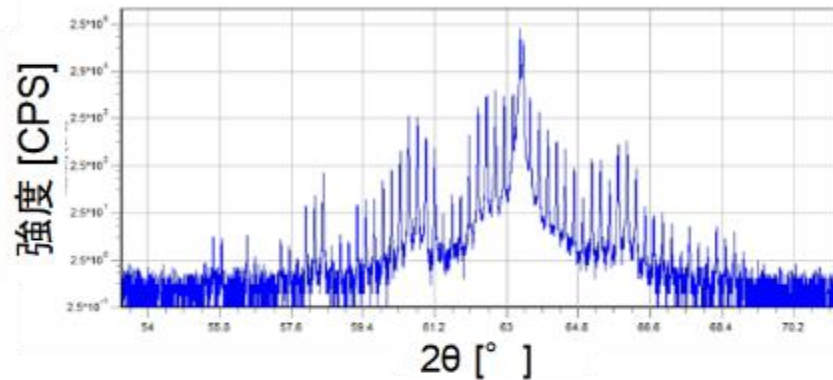


図 3.3.1.8 結晶の XRD 測定結果。

さらに、本結晶を用いて端面発光型の素子を作製し、素子特性を測定した。障壁層を 10%薄膜化した構造で、発振波長  $4.7\mu\text{m}$ 、44mW (20°C、パルス駆動、duty 3%) が得られた。

#### (4) 新規量子井戸構造の検討 設計パラメータ取得

最終目標である量子効率 30%以上を目指し、東京工大が提案する新規量子井戸構造に関して、非平衡グリーン関数法によるシミュレーションを用いて検証を行った。使用しているソフトウェアは既存の物性値として、量子井戸に使用している半導体である InGaAs、InAlAs のバンドギャップエネルギー、有効質量、各半導体材料の接合により形成されるバンドオフセットなどのパラメータセットを持っている。従来この値を用いて計算を行って来たが、計算精度を向上させるため、これらのパラメータセットの見直しを行い、一部パラメータをユーザが代入できるように変更を行った。さらに以下のように東芝の結晶成長装置で成長ができるように量子井戸の膜厚等、素子構造パラメータの微調整を行った。QCL の活性層は、InGaAs 井戸層と InAlAs 障壁層を交互に積層した多数の量子井戸構造で構成されている。発光の特性を向上するための構造がいくつか提案されており [3.1.10, 11]、参考文献 [3.1.10] の Wisconsin 大 Botez 教授らが作製した QCL のバンド図を図 3.3.1.9 に示す。この構造は、①発光部の障壁層のエネルギーを高くして電子の漏洩を防止する、②エネルギー準位の調整と結晶内の歪の調整のために、組成の異なる数種類の井戸層と障壁層を組み合わせる、という特徴を持つ。Botez 教授らは、有機金属気相成長 (MOCVD ; Metal Organic Chemical Vapor Deposition) 法を用いて、複雑な層構造を積層している。MOCVD 法は、原料に有機金属やガスを用いた結晶成長方法である。ガスの流量を変えて、3 元混晶 (InGaAs や InAlAs など) の組成を制御する。ガスの流量は、マスフローコントローラーを用いて幅広く素早く変えることができるため、組成の異なる薄膜を積層することが可能である。一方 MBE 法は、高真空チャンバー内で、加熱した基板に分子線ビームを照射して成膜する方法である。成長速度が遅く、原料の切り替えが瞬時にできるため、原子オーダーで薄膜を成長することができ、界面の制御が MOCVD よりも優れている。しかし、分子線ビーム量は、原料を入れた坩堝を抵抗加熱方式で加熱して制御するため、分子線ビームの量を変えるのに時間がかかってしまい、近接する量子井戸のような組成の異なる薄膜を積層することが難しい。そこで、高 Al 組成の InAlAs 障壁層と高 In 組成の InGaAs 井戸層を実現するために、InAlAs 層に AlAs を挿入する成長方法、InGaAs 層に InAs を挿入する成長方法を検討した。MBE 装置の装備 (原料セルの本数) の関係から、InAlAs の組成を変えて品質の良い薄膜を積層することはできないが、AlAs は、InAlAs を成膜する条件 (同じ Al フラックス量) で、In のシャッターを閉じて成長するため、InAlAs と AlAs を組み合わせて成長することが可能である。InAs も同様に、InGaAs を成膜する条件で Ga のシャッターを閉じて成長する。

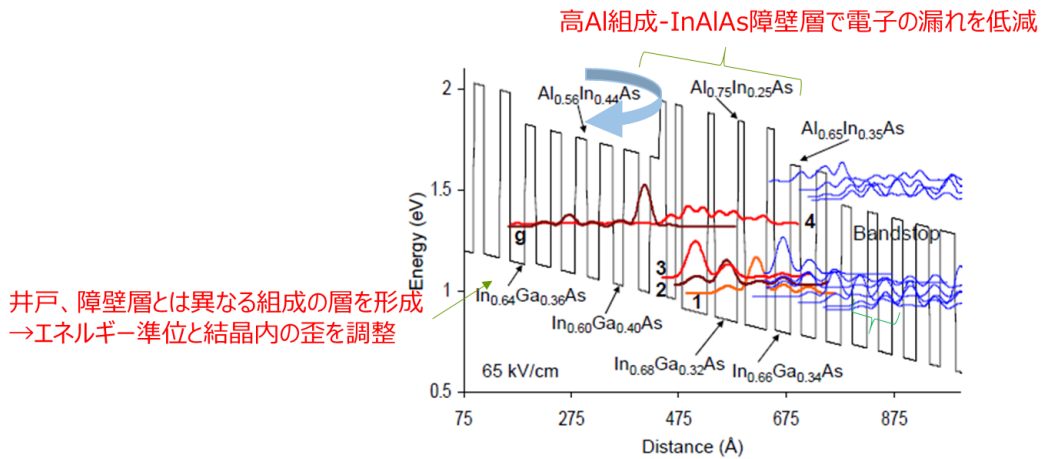


図 3.3.1.9 Wisconsin 大 Botez 教授らが作製した QCL のバンド図。

まず、InAlAs 層に AlAs 層を挿入した単純な超格子構造 (SLS) を成長し、AlAs 層挿入によって変化したヘテロ接合のバンドオフセットを超高分解能光電子分光法 (PES: photo-electron spectroscopy) により同定した [3.1.12]。今回、硬 X 線光電子分光 (HAXPES) を用いた。HAXPES は、X 線光電子分光 (XPS) の励起光に硬 X 線を用いた分析手法である。高エネルギーな X 線励起により通常の XPS よりも検出深さが深く (約 4 倍深い)、深い準位の光電子を測定することができる [3.1.13, 14]。図 3.3.1.10 には SPring8 に設置されている HAXPES 測定装置の概略と装置仕様を示した。

試料の層構造を図 3.3.1.10 に示す。InAlAs と InGaAs の界面に AlAs を挿入したものを 20 回繰り返した構造で、AlAs の膜厚 (成長時間: 0 秒 (AlAs なし)、1 秒、3 秒、5 秒) を変数とした。図 3.3.1.11 は、ワイドスペクトルの結果で、Al、Ga、In、As が検出された。図 3.3.1.12 に、AlAs の成長時間に対するピーク形状を示す。強度は各々のピーク高さで規格化した。AlAs の膜厚に関わらず Al、Ga、In、As の主ピークの形状はほぼ一致しており AlAs と InAlAs で Al と As の結合状態は一定と推定された。次に、Al、Ga、In、As の主ピーク間隔の変化を表 a に示す。AlAs が厚いほど、ピーク間隔 ( $Al1s-Ga2p_{3/2}$ ) が増加する傾向が見られた。これは、InGaAs/InAlAs 界面の価電子帯オフセットが増加したと推定される。AlAs が厚いほど  $Al1s$  ピーク幅が減少する傾向が見られたことは、面でのオフセットが膜厚に依存すること、すなわち極薄膜と薄膜とで、界面のオフセットが変化していることを示している。図 3.3.1.14 に InGaAs と InAlAs 界面のバンドダイヤグラムの模式図を示す。左図は AlAs を挿入していない InGaAs と InAlAs の界面を表し、今回の測定で  $Al1s-Ga2p_{3/2}=443.094eV$  であった。右図は、AlAs を挿入した場合の InGaAs と AlAs/InAlAs の界面であり、AlAs と InAlAs のエネルギーバンドを点線で表す。AlAs が厚いほど  $Al1s-Ga2p_{3/2}$  の差は大きくなり、価電子帯のオフセットが増加したと推測されることと、AlAs の厚さが 1 原子層程度の非常に薄い膜であることから、実際には AlAl と InAlAs のバンドが明確に形成されているのではなく、Al 組成がわずかに高い InAlAs が形成され、それによりエネルギーバンドの変化が生じたと考えられた。また、Al 組成が高くなった分、InAlAs のエネルギーギャップも増加し、伝導帯オフセットも増加すると考察した。以上の結果から、Al フラックス量を変化させずとも AlAs を挿入することでバンドオフセットを広げることが可能であると考えられた。

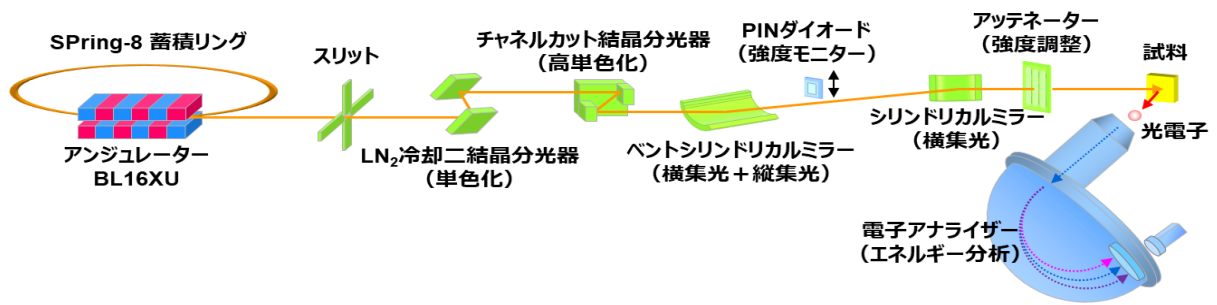


図 3.3.1.10 HAXPES の概略図。

仕様 分解能:250meV、励起エネルギー:7947.96eV (Au4f7/2 ピークで校正)、ビームサイズ:<math>H0.05 \times W0.04 \text{ mm}</math> at 試料位置、光電子検出角: $\sim 89^\circ$  (X線視射角 $\sim 1^\circ$ )、電子アナライザー: SCIENTA R4000 Lens1 10keV、最大分析領域:約  $H0.05 \times W3.6\text{mm}$  (W方向 18分割)。

超格子構造

- ・ 障壁層: In<sub>0.36</sub>AlAsにAlAsを挿入
- ・ AlAs膜厚: 変数 (1s, 3, 5s)
- ・ 井戸層: In<sub>0.67</sub>GaAs
- ・ 周期: 20
- ・ トータル膜厚: 120 nm

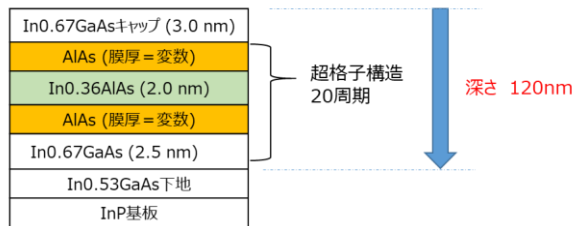


図 3.3.1.11 試料の層構造。

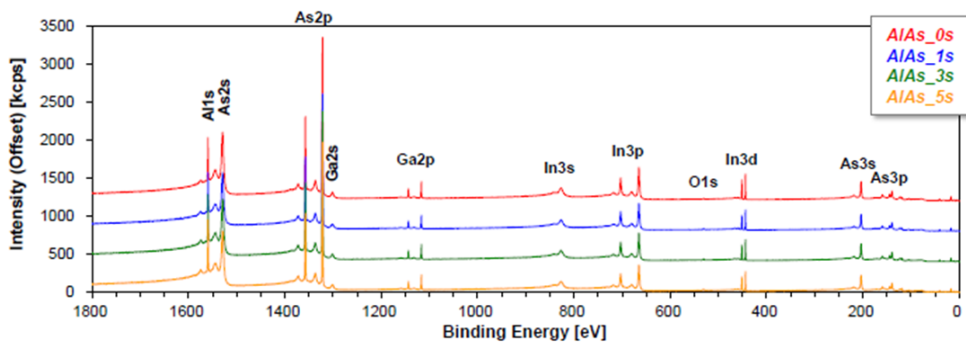


図 3.3.1.12 HAXPES ワイドスペクトル。

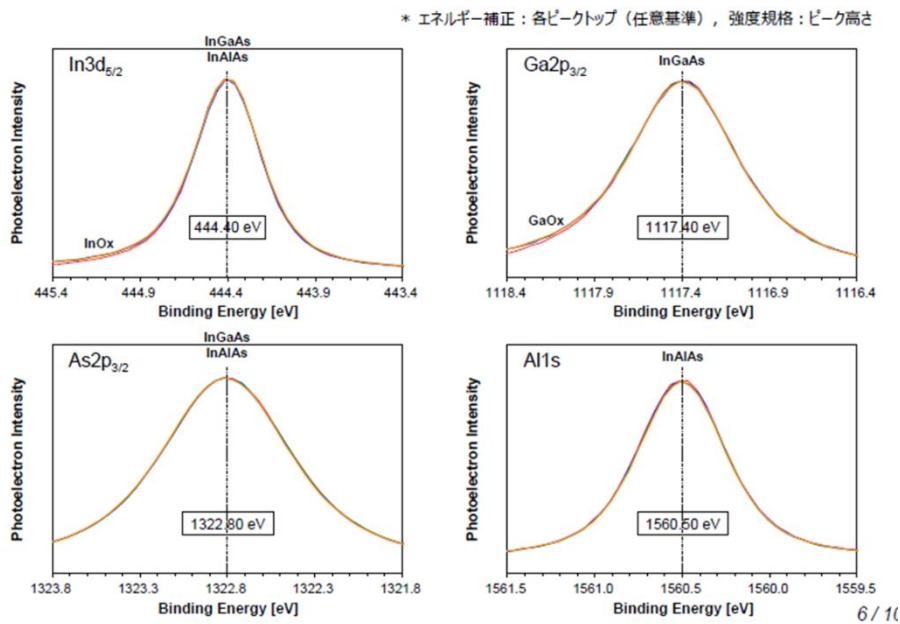


図 3.3.1.13 AlAs の成長時間に対するピーク形状。強度は各々のピーク高さで規格化。

表 3.3.1.2 Al、Ga、In、As の主ピーク間隔の変化。

単位：eV

ピーク間隔 $\Delta E$	Al1s, Ga2p <sub>3/2</sub>	In3d <sub>5/2f</sub> , As2p <sub>3/2</sub>	In3d <sub>5/2f</sub> , Ga2p <sub>3/2</sub>	In3d <sub>5/2f</sub> , Al1s	As2p <sub>3/2f</sub> , Ga2p <sub>3/2</sub>	As2p <sub>3/2f</sub> , Al1s
AlAs_0s	443.094	878.300	672.960	1116.054	205.340	237.754
AlAs_1s	443.095	878.299	672.959	1116.054	205.340	237.755
AlAs_3s	443.100	878.295	672.955	1116.055	205.340	237.760
AlAs_5s	443.107	878.292	672.952	1116.059	205.340	237.767
標準偏差	0.005	0.003	0.003	0.002	0.000	0.005

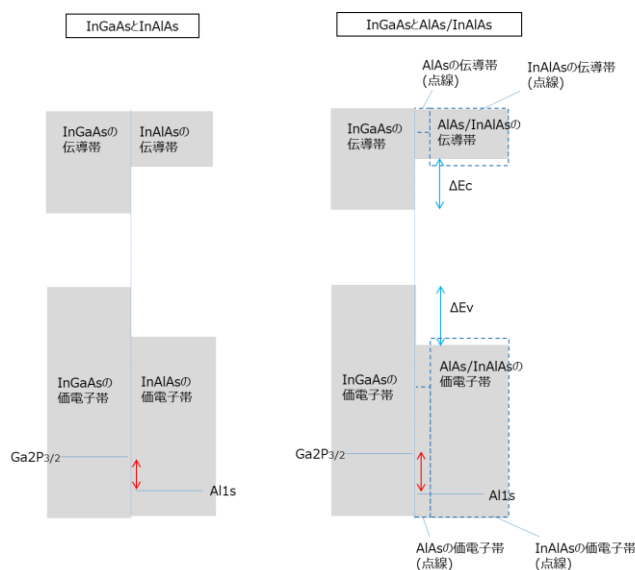


図 3.3.1.14 InGaAs と InAlAs 界面のバンドダイアグラムの模式図。



以上のように半導体界面のバンドオフセットに関する新たな知見を基に、測定から得られたバンドオフセットの値を量子井戸設計シミュレータに導入できるように、ソフトウェアを改良し、量子井戸設計シミュレータと実験結果との整合精度を向上させた。これにより設計効率が向上した。

また、これまでに確立した InGaAs、InAlAs に加え、InAs、AlAs の薄膜成長技術を用いることにより、QCL の新規量子井戸造の試作を行った。次に、結晶とレーザ特性の評価結果を結晶成長にフィードバックするなかで、発光層構造と量子効率の関係を調べるとともに、新しい構造を作製するための成長技術を確立した。

具体的には、電子の散乱や意図しない非発光の遷移過程等を低減するため、障壁層にエネルギーの高い AlAs 層、もしくは高 Al-InAlAs 層を挿入するとともに、井戸層にエネルギーの低い InAs 層、もしくは高 In-InGaAs 層を挿入する、という 2 つの要素を取り入れた新しい構造を検討した。また、結晶の評価では、RHEED によるその場観察で表面状態を確認しつつ薄膜を成長させ、成長した薄膜の組成と膜厚を XRD で確認しつつ成長条件の最適化を行った。次に、作製した QCL 構造ウエハを用いて素子を試作し、素子の特性（波長、光出力、しきい値電流、しきい値電圧等）を評価するとともに、その結果と結晶の評価結果を合わせて検討した上で、結晶成長にフィードバックを行うことにより、高い電気-光変換効率を有する量子井戸構造の実現に必要な、層構造と結晶成長の技術を見出した。

### 3.3.1.2 MBE 成膜装置による QCL 素子の試作

#### (1) RHEED による結晶成長その場観察

薄膜の成長の様子をその場観察できる反射高速電子線回折画像評価装置を導入した（図 3.3.1.15）。反射高速電子線回折（RHEED）とは、約 5kV 以上で加速した電子線を試料表面に数度程度の浅い入射角度で入射させ、電子線の回折を反射配置で観察し、結晶表面の構造を調べる方法である。結晶の表面構造を反映した回折パターン（RHEED パターン）から、成長表面の構造に関する情報が得られる。また、成長しながら RHEED パターンをカメラで観察し、回折点の位置や形状、回折点の強度が時間とともに周期的に変動する様子（RHEED 振動）を解析することで、格子定数の変化や成長モード（島状成長、層状成長の判別）、成長速度を調べることができる。[3.1.15, 16]

QCL の量子井戸を作製する上で、RHEED の役割は主に 2 つある。一つは、井戸層 InGaAs と障壁層 InAlAs の成長モードを調べることである。QCL の量子井戸は、InP 基板と格子整合するように形成される歪系である。つまり、InGaAs 井戸層は圧縮歪、InAlAs 障壁層は引っ張り歪を受けて成長する。強い歪を受けた状態での InGaAs と InAlAs の最表面の形状を RHEED によって分析し、各層が層状成長となる成長条件を決定した。

二つ目は、InGaAs と InAlAs における成長速度の測定である。従来、成長速度は、QCL の成長とは別に、約 20nm の単層膜を成長して XRD から算出する方法と、QCL の断面を TEM で観察して各層の膜厚を測長して算出する方法をとってきた。しかし、XRD による膜厚決定は、回折強度を得るために QCL の量子井戸に比較し厚い単層膜から成長速度を算出しており、QCL の極薄膜においても同じ成長速度が成り立つか不明である。実際のエピでは、最も薄い層では成長時間が 15 秒以下であり、原料の切り替えのタイミングが膜厚に影響する可能性がある。一方、断面 TEM 観察では、InGaAs と InAlAs のヘテロ界面が不明瞭な部分も多く、測長した膜厚の精度はやや落ちる。また、局所的な分析であること、破壊分析であり時間とコストがかかることが問題である。以上のことから、XRD と断面 TEM 観察だけでは、複雑な QCL の量子井戸を評価するには不十分である。よって、RHEED を用いて、実際に成長している InGaAs と InAlAs のその場観察を行い、成長速度を算出して成長条件に即座にフィードバックすることで、膜厚の制御性を向上させた。

まず、InP と格子整合させて成長させるコンタクト層 InGaAs の成長初期の RHEED 観察を行った。図 3.3.1.16 は、1 つの回折点の成長開始から 70 秒後までの強度変化である。強度が周期的に変動する様子（RHEED 振動）が観測された。時間とともに強度は弱くなったが 70 秒間、RHEED 振動が観測されたことから、層状成長が続いていたことを示唆した。RHEED 振動の 1 周期は 1 分子層の厚さに対応している。周期の時間から算出した成長速度は 3.57nm/min であった。設定していた成長速度との差は 2.3% であり、InGaAs の膜厚制御は良好であることが分かった。

次に、QCL の発光層と同じ組成の InGaAs（設定膜厚 2.0nm）と InAlAs（設定膜厚 2.5nm）を 30

回繰り返した超格子構造を作製し、RHEED 観察を行った。InGaAs と InAlAs の RHEED パターンを分離して分析できるように、原料の切り替え時間を通常よりも長い 10 秒間とした。成長開始から 4 分間における、一つの回折点の強度の時間変化を表した結果を図 3.3.1.17 に表す。1 層目の InGaAs の成長では (8 秒から 55 秒の間)、RHEED 振動が 3 つ観測された。10 秒間の成長中断のあと、2 層目の InAlAs の成長では (65 秒から 90 秒の間)、7 つの RHEED 振動が観測された。3 層目の InGaAs の成長では振動は現れず、4 層目の InAlAs の成長では再び振動が観測された。これは、InGaAs は、1 層目は層状成長であるが、3 層目以降は島状成長であることを意味する。一方、InAlAs は、2 層目、4 層目ともに明瞭な振動が観測されたことから、平坦性の良い層状成長であるといえる。3 層目以降の InGaAs が島状成長となる原因は、10 秒間の成長中断の間に下地の InAlAs の表面平坦性が劣化してしまうことが原因と考えている。成長条件 (基板温度、V 族と III 族の比など) や原料切り替えのタイミングを変えて RHEED パターンを観察し、最終的に InGaAs と InAlAs が常に層状成長する条件を確認できた。

RHEED 振動の周期から膜厚と成長速度を算出すると、InGaAs は 2.02nm、2.78nm/min、InAlAs は 2.34nm、5.04nm/min であった。設定値と比べて InGaAs は 1.2%厚く、InAlAs は 4.3%薄かった。この膜厚を XRD の層構造シミュレーションに代入し、実際の回折角プロファイルとフィッティングすることで、従来よりも精度良く組成を求めることが可能となる。さらに RHEED パターン解析と XRD 結果を用いて、薄膜の原子レベル制御をさらに進めていくことが可能である。

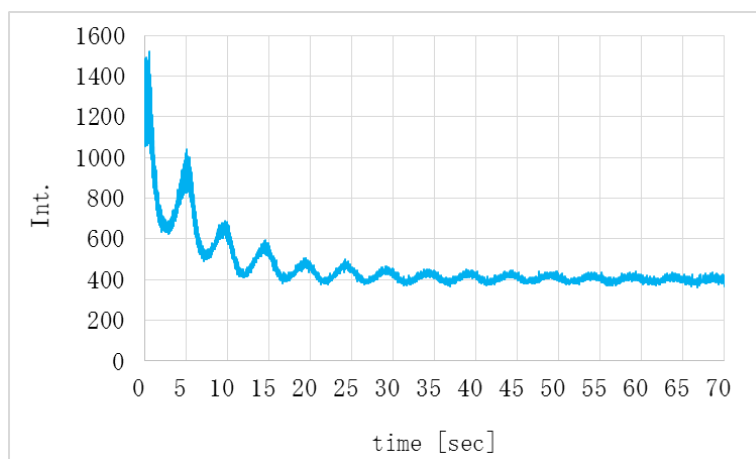


図 3.3.1.16 InGaAs 成長時における回折点の強度の時間変化。

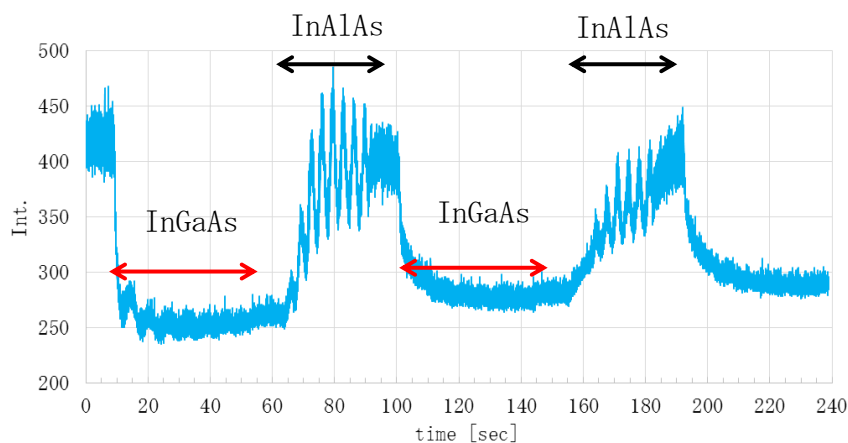


図 3.3.1.17 InGaAs と InAlAs 成長時における回折点の強度の時間変化。

## (2) 原子レベルの評価・観察と成長条件の最適化

高効率の QCL を実現させるには、設計値に対して作製した膜厚と組成の差が 3%以内であること、ヘテロ界面の平坦性と急峻性が優れていることが必要である。例えば、作製した QCL では、最も薄い井戸層は 1.2nm、最も厚い井戸層は 4.3nm であり、1 分子層分 (0.3nm) 膜厚がずれたとすると、設計値との差はそれぞれ、25%、8%となる。つまり、膜厚が 1 分子層分ずれただけで、QCL の発光層は設計からずれてしまい結果として発光効率は著しく低下してしまう。よって、1 原子オーダーで制御する薄膜形成技術を確認することは必須であり、同様に、原子レベルの評価が必要である。量子井戸の原子レベルの評価は、断面 TEM 観察と 3DAP 分析によって行った。その結果を以下に記す。



図 3.3.1.15 RHEED 画像評価装置の概観。蛍光面上の RHEED パターンをカメラにより輝度を数値化する。任意の領域の輝度を数値化できる。

図 3.3.1.18 は、QCL の断面 TEM 観察写真である。格子像の写真において、コントラストの濃い部分が InGaAs 層、薄い部分が InAlAs 層である。格子が等間隔に整列しており、欠陥も見られないことから、InGaAs と InAlAs は大きな歪を受けつつも InP と格子整合して成長していることが分かった。各層の膜厚を測長し、設定値との差を調べた結果を図 3.3.1.19 に示す。横軸が設計膜厚、縦軸が実測膜厚値である。InGaAs と InAlAs の設定値との膜厚の差はそれぞれ、-0.2%、-2.6%であった。成長条件の適正化により、膜厚制御性が向上した結果である。QCL の結晶成長は、原料セルの温度揺らぎや成長室内の真空度の揺らぎなどのわずかな外乱に影響されやすい。MBE 装置の温度や真空度の変動を抑える対策でさらなる性能アップが期待できる。

組成評価は、3DAP を用いた。3DAP は微小領域において原子レベルの空間分解能と高い検出感度を有することから、薄膜積層膜の界面評価に適した分析手法である [3.1.17]。今回、深さ方向の元素 (Ga, In, Al) の濃度プロファイル、元素の濃度面内分布、ヘテロ界面の平坦性、急峻性を分析した。図 3.3.1.20 は、元素 (Ga, In, Al) の深さ方向に対する濃度プロファイルの結果である。測定上、極薄膜では原子の検出感が落ちるため、比較的厚い InGaAs と InAlAs に着目する (厚さ  $\geq 3\text{nm}$ )。Ga, In, Al のうち、検出感度の高い In の濃度値を読み取ると、InGaAs は、17atomic% (In 組成 36%) であり、InAlAs は、32atomic% (In 組成 64%) であった。設定値は、InGaAs (In 組成 39%)、InAlAs (In 組成 68%) である。3DAP の濃度測定精度は 1 割程度の誤差があるが、測定値は設定値に近い値であるといえた。

次に、InGaAs と InAlAs の界面に着目する。界面で濃度が明確に分かれていることから、界面の急峻性は良いと考えられた。図 3.3.1.21 は、最も厚い膜厚の InGaAs での Ga 濃度の面内分布と最も厚い膜厚の InAlAs での Al 濃度の面内分布である。測定範囲  $\phi 20\text{nm}$  において、どちらも面内分布は小さいが、InAlAs の方が InGaAs よりも濃度の均一性が良いことがわかる。

次に、組成の異なる 2 種類の量子井戸構造をもつ QCL の界面平坦性の結果を説明する (構造 A、構造 B)。構造 A は、 $\text{In}_{0.669}\text{Ga}_{0.331}\text{As}$  と  $\text{In}_{0.362}\text{Al}_{0.638}\text{As}$  で構成され、構造 B は、 $\text{In}_{0.68}\text{Ga}_{0.32}\text{As}$  と

$\text{In}_{0.39}\text{Al}_{0.61}\text{As}$  で構成から構成されている。図 3.3.1.22(a)、(b)は、構造 A と構造 B の界面の粗さを RMS で表したグラフである。棒グラフが示されていない部分は、粗さが大きく、測定不能であったことを示す。構造 A の界面での荒さは、平均  $\text{RMS}=0.11\sim 0.22\text{nm}$  であり、構造 B に比べ平坦性が良かった。構造 A で測定不能となっている領域は、膜厚 1nm 程度の InGaAs と InAlAs の層に該当する。3DAP の分析精度限界のために、測定不能となったと考えられる。構造 B の界面での粗さは、測定不能の領域が多く、平均  $\text{RMS}=0.19\sim 0.26\text{nm}$  であり、界面の平坦性が悪かった。構造 B の方が構造 A よりも InGaAs の圧縮歪と InAlAs の引っ張り歪が大きいいため、歪のバランスをとることが、より重要である。歪の影響によって、平坦性に違い生じたと考えている。今後、歪の状況が変化しても平坦性のよい薄膜を積層できる成長技術が必要である。

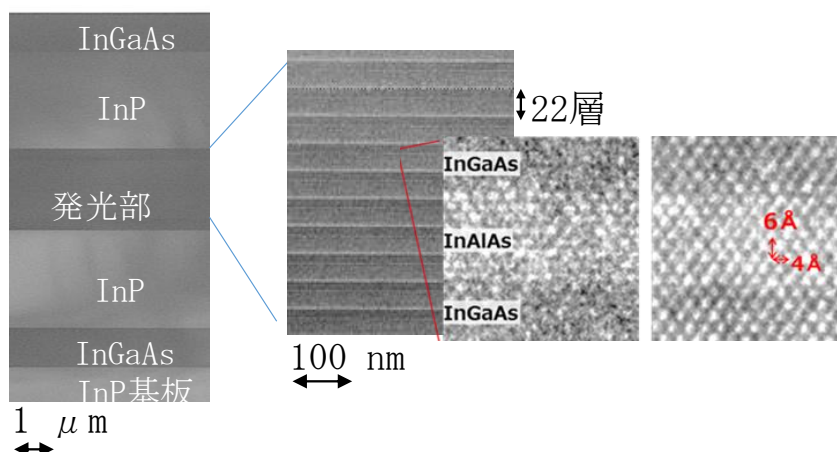


図 3.3.1.18 QCL 素子の量子井戸層の透過電子顕微鏡像。  
左：低倍率による素子全体、中：発光部の拡大、右：発光部量子井戸層の格子像。

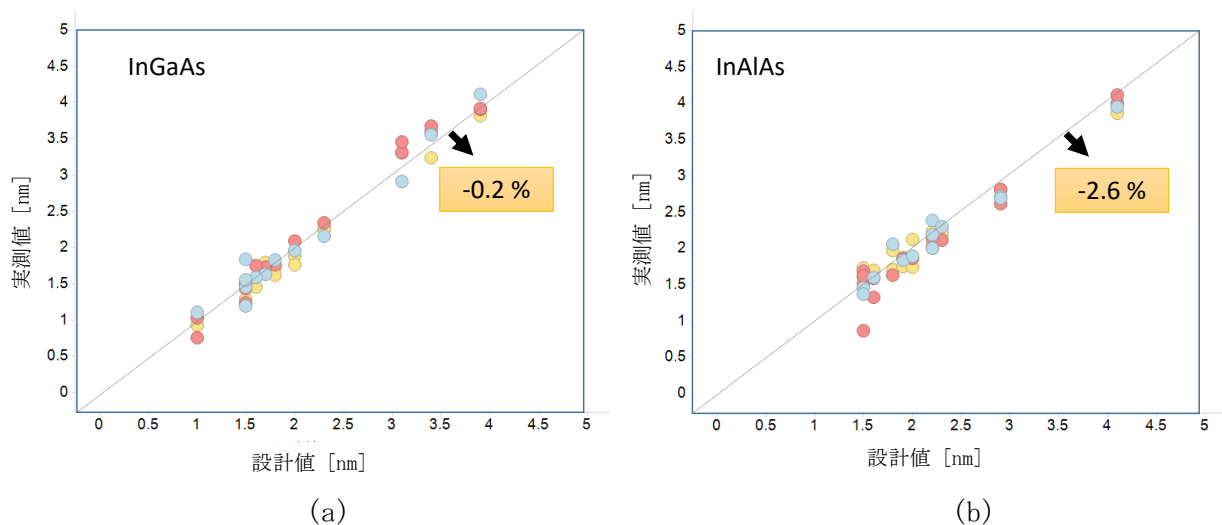


図 3.3.1.19 (a) InGaAs の設定膜厚 (横軸) と TEM から測長した膜厚 (縦軸) の対応を表す図。(b) InAlAs の設定膜厚 (横軸) と TEM から測長した膜厚 (縦軸) の対応を表す図。

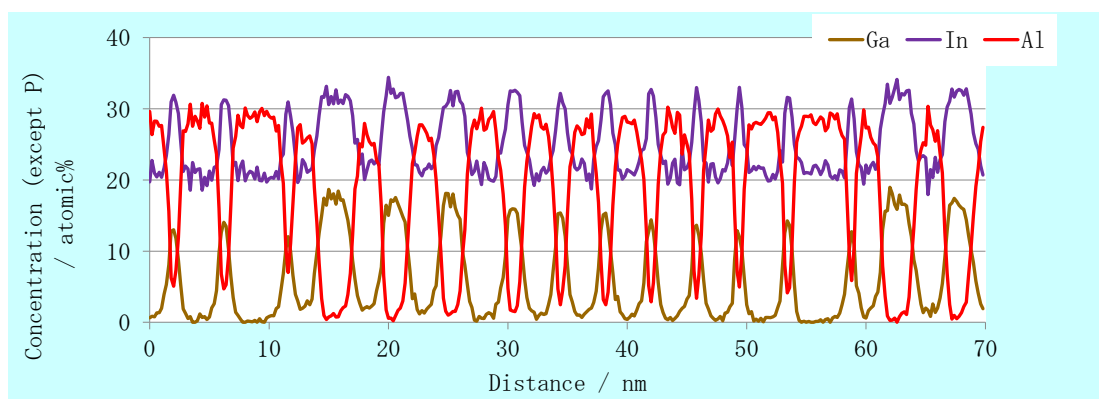


図 3.3.1.20 元素 (Ga、In、Al) の深さ方向に対する濃度プロファイルの結果。

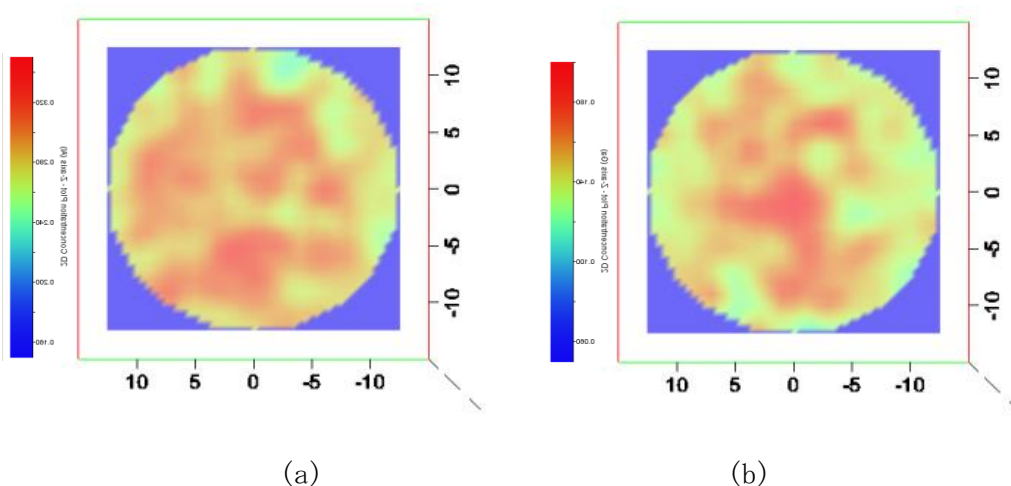
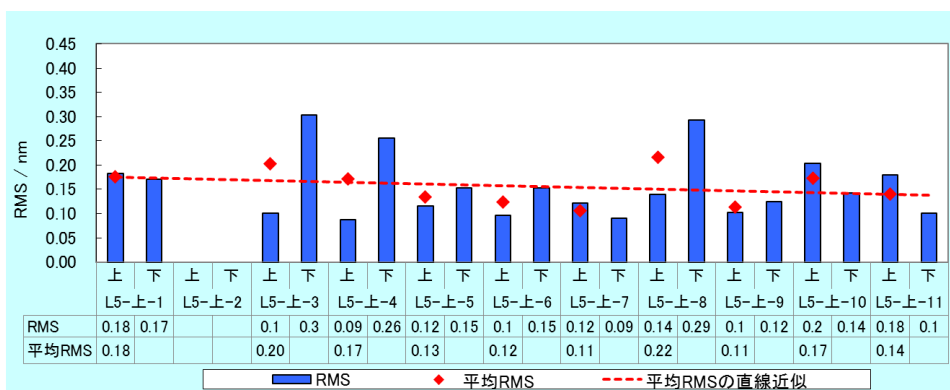
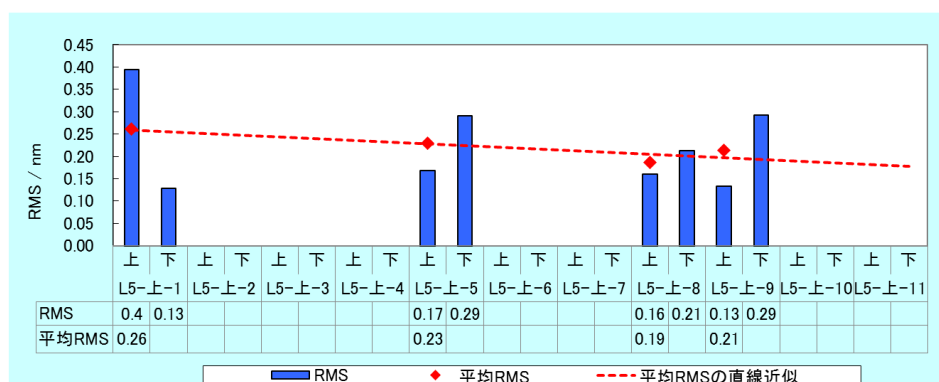


図 3.3.1.21 (a)最も厚い膜厚の InGaAs での Ga 濃度の面内分布の様子。  
(b)最も厚い膜厚の InAlAs での Al 濃度の面内分布の様子。



(a)



(b)

図 3.3.1.22 (a) InGaAs/InAlAs で構成される構造 A におけるヘテロ界面の粗さ。(b) 同じく InGaAs/InAlAs で構成され、In/Ga、In/Al 組成比の異なる構造 B におけるヘテロ界面の粗さ。

### (3) 量子井戸構造全体の定量評価

QCL の発光層は、InGaAs と InAlAs が 600 層積層されており、トータルの厚さは 1.6 $\mu\text{m}$ 、成長時間は約 8 時間にもなる。MBE 装置のわずかな変動により、発光層全体が均一な品質の量子井戸にならない可能性がある。よって、原子レベルの分析だけではなく、量子井戸の全体を定量評価することが必要である。[3.1.18, 19, 20]

我々は、成長した全ての結晶の XRD 評価 ( $2\theta/\omega$  スキャン) を行った。図 3.3.1.23 は、XRD 結果の一例である。図中に、量子井戸からの回折である、0 次ピークとサテライトピーク (-1、-2、+1 次) の位置を示した。0 次ピークの間隔から、量子井戸の平均組成を求めることができ、サテライトピークの半値幅から周期を求めることができる。また、ピークの半値幅は、InGaAs と InAlAs のヘテロ界面の平坦性、急峻性、及び膜厚制御の安定性に関係している。これら結晶品質を反映した項目と素子の光学特性の関係を調べた。ピーク半値幅は、非常にばらつきが大きく 38 秒から 180 秒の間であり、ピーク半値幅の平均は 77 秒であった。同構造の QCL を成長してもピーク半値幅にばらつきが生じることから、MBE 装置の原料セル温度、基板温度、真空度等のわずかな変動が、ヘテロ界面の品質に影響を及ぼしていると考えている。QCL 素子の発光強度は、ピーク半値幅が狭いほど大きい傾向があり、発光強度が 1 番目、2 番目に大きかった結晶のピーク半値幅はそれぞれ、60 秒、38 秒であった。MBE 装置の安定化と成長条件の最適化はヘテロ界面の平坦性と急峻性を改善し、高効率の QCL を実現させることが期待できる。

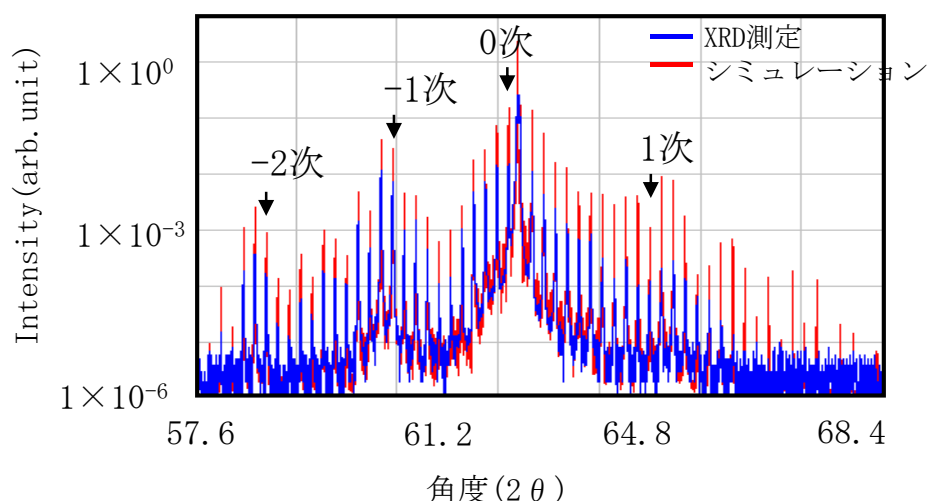


図 3.3.1.23 QCL の InP(002) 面における  $2\theta/\omega$  スキャンの結果。

- (4) (別紙 2 別冊に記載)
- (5) (別紙 2 別冊に記載)
- (6) (別紙 2 別冊に記載)
- (7) (別紙 2 別冊に記載)
- (8) (別紙 2 別冊に記載)
- (9) (別紙 2 別冊に記載)
- (10) (別紙 2 別冊に記載)
- (11) (別紙 2 別冊に記載)
- (12) (別紙 2 別冊に記載)
- (13) (別紙 2 別冊に記載)
- (14) (別紙 2 別冊に記載)
- (15) (別紙 2 別冊に記載)
- (16) (別紙 2 別冊に記載)
- (17) (別紙 2 別冊に記載)
- (18) (別紙 2 別冊に記載)

### 【参考文献】

- [3.1.1] Faist, F. Capasso, D. Sivco, C. Sirtori, A. Hutchinson, and A. Cho, “Quantum cascade laser,” *Science*, 264, 553 (1994).
- [3.1.2] R. Maulini, A. Lyakh, A. Tsekoun, R. Go, C. Pflügl, L. Diehl, F. Capasso and C. K. Patel, *Appl. Phys. Lett.* 95, 151112 (2009).
- [3.1.3] M. I. Amanti, M. Fischer, G. Scalari, M. Beck, and J. Faist, *Nat. Photonics* 3, 586 (2009).
- [3.1.4] Beck M, Hofstetter D, Aellen T, Faist J, Oesterle U, Ilegems M, Gini E and Melchior H, *Science* 295, 301 (2002).
- [3.1.5] D. Weidmann, F. K. Tittel, T. Aellen, M. Beck, D. Hofstetter, J. Faist, and S. Blaser, *Appl. Phys. B: Photophys. Laser Chem.* 79, 907 (2004).
- [3.1.6] A. Bismuto, R. Terazzi, M. Beck, and Jerome Faist, *Appl. Phys. Lett.* 96, 141105 (2010).
- [3.1.7] J. S. Yu, S. Slivken and M. Razeghi, *Semicond. Sci. Technol.* 25, 125015, (2010).

- [3.1.8] A. Evans, S. R. Darvish, S. Slivken, J. Nguyen, Y. Bai, and M. Razeghi, Appl. Phys. Lett. 91, 071101 (2007).
- [3.1.9] Y. Bai, N. Bandyopadhyay, S. Tsao, E. Selcuk, S. Slivken, and M. Razeghi, Appl. Phys. Lett. 97, 251104 (2010).
- [3.1.10] Y. Bai, N. Bandyopadhyay, S. Tsao, E. Selcuk, S. Slivken, and M. Razeghia, Applied Physics Letters, 97, 251104 (2010).
- [3.1.10] D. Botez et al., Proc. SPIE, Vol.7953, p.79530 (2011).
- [3.1.11] Y. Bai et al., Appl. Phys. Lett. Vol.98, p.181102 (2011).
- [3.1.12] [https://www.nanoanalysis.co.jp/business/case\\_example\\_03.html](https://www.nanoanalysis.co.jp/business/case_example_03.html)
- [3.1.13] 竹田, 応用物理学会誌, 67 巻 9 号 p.1077, (1998).
- [3.1.14] K. Kataok et al., R&D Review of Toyota CRDL, Vol.46 No.2 p.21 (2015).
- [3.1.15] 上田一之, 日本結晶学会誌, 26 号, 344 (1984).
- [3.1.16] 鈴木義茂, Materia Japan, 第 35 巻, 53 (1996).
- [3.1.17] 宝野和博, アトムプローブ電界イオン顕微鏡, 分析試験法-13
- [3.1.18] M. A. Moram and M. E. Vickers, Rep. Prog. Phys. 72, 036502 (2009).
- [3.1.19] Manijen Razeghi, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 15, 1077 (2009).
- [3.1.20] V. M. Kaganer, R. Kohler, M. Schmidbaner, R. Opitz, and B. Jenichen, Phys. Rev. B 55, 1793 (1997).

### 3.3.2 QCL 素子作製プロセス

#### 3.3.2.1 QCL 素子作製プロセス開発

##### (1) InP 深堀エッチングのプロセス検討

QCL の高出力化・高効率化検討を進めるにあたり、電流注入評価が可能な QCL 素子を作製し、特性評価を行う必要がある。この際、作製が簡便なリッジ型 QCL 素子を作製する事で、量子井戸構造の適正化ができる。表 3.3.2.1 に現在我々が検討に使用している QCL 構造の代表的な膜厚設計値を示す。表から、中赤外光を発する QCL は量子井戸構造と光導波構造の総膜厚が約  $10\mu\text{m}$  であるとわかる [3.2.1]。このため端面型素子で一般的に使用されるハイメサ型リッジ導波路構造を作製する場合、リッジ上部と底部で最大約  $10\mu\text{m}$  の高低差が生じる事になる。この値は従来のレーザダイオード(LD)が一般的に  $2\sim 3\mu\text{m}$  の高低差である事と比較すると非常に大きい [3.2.2]。QCL 素子作製にあたってはこうした大きな高低差を有する素子にフォトリソグラフィ工程を行うため、フォーカスや位置合わせに困難が生じる。このような約  $10\mu\text{m}$  の高低差を有する QCL 素子の作製に向けたフォトリソグラフィ技術とドライエッチング技術の研究開発を完了した。さらに、本件等のデータをもとに導入したの露光機の仕様を決定した。

表 3.3.2.1 検討に使用した QCL 層構造設計値。

層名	厚さ ( $\mu\text{m}$ )
コンタクト	1.0
クラッド	2.5
量子井戸	2.2
クラッド	2.5
バッファー	1.0
基板	-



表 3.3.2.1 に示した通り、QCL は InP 基板の上に InP バッファ、InP クラッド、InAlAs、InGaAs からなる量子井戸層、コンタクト層などの材料が積層されて構成される。これらの材料は塩素 ( $\text{Cl}_2$ ) 系材料によるプラズマドライエッチングで加工する事が可能である。この際、パターニング用のハードマスク材料としては  $\text{SiO}_2$  や  $\text{SiN}$  などの誘電体膜が一般的に使用され、ハードマスク誘電体膜のパターニングにはレジストマスク利用によるエッチングを行う。従って QCL 材料を約  $10\ \mu\text{m}$  エッチングするのに必要な誘電体膜の厚さと、その誘電体膜のパターニングに必要なレジストマスクのフォトリソグラフィ条件の策定が必要になる。

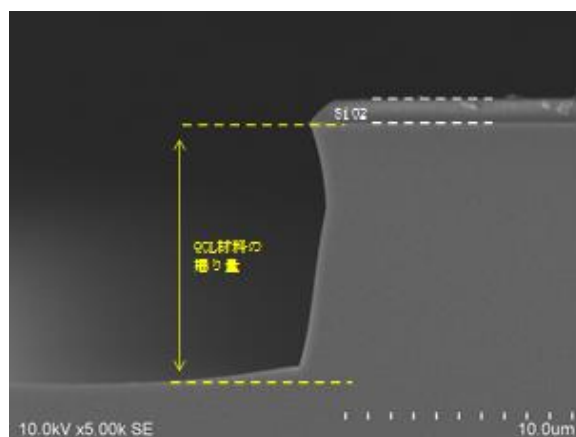


図 3.3.2.1 QCL 膜のエッチング後の SEM 写真。  
 $\text{SiO}_2$  がマスクとして機能して QCL 材料がエッチングされている事が分かる。

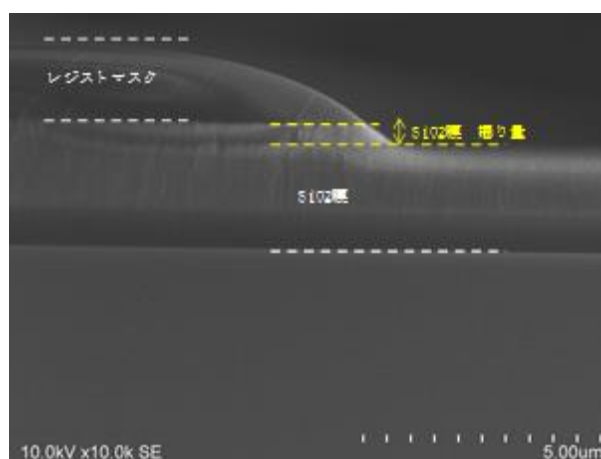


図 3.3.2.2  $\text{SiO}_2$  膜のエッチング後の SEM 写真。  
レジストマスクによって  $\text{SiO}_2$  がエッチングされている事が分かる。

図 3.3.2.1 に  $\text{SiO}_2$  膜をマスクにして QCL 材料を  $\text{Cl}_2$  プラズマによってドライエッチングした結果の断面 SEM 写真を示す。QCL 材料と  $\text{SiO}_2$  のエッチングレート比率は約 10:1 であった。従って  $10\ \mu\text{m}$  の QCL 材料エッチングには  $\text{SiO}_2$  膜が約  $1\ \mu\text{m}$  以上必要と分かった。図 3.3.2.2 にレジスト材料をマスクにして  $\text{SiO}_2$  膜を  $\text{CF}_4$  系プラズマによってドライエッチングした結果の断面 SEM 写真を示す。レジスト材料と  $\text{SiO}_2$  のエッチングレート比率は約 1:1 であった。従って  $1\ \mu\text{m}$  の  $\text{SiO}_2$  膜エッチングにはレジスト膜厚も約  $1\ \mu\text{m}$  以上必要と分かった。以上の要素検討から、マージンを考慮して  $\text{SiO}_2$  膜厚を約  $1.8\ \mu\text{m}$ 、レジスト膜厚を約  $2.5\ \mu\text{m}$  と定めた。

## (2) ハイメサリッジ上でのフォトリソ条件の策定

前述のようにエッチングによって形成された高さが約  $10\ \mu\text{m}$  のリッジ導波路構造に対し、オーム電極を形成する目的でフォトリソパターニングを行う。すなわち高さ  $10\ \mu\text{m}$  のリッジ導波

路構造上で  $1\mu\text{m}$  以下の位置合わせ精度が要求される。このためレジストと露光装置の仕様選定、露光条件策定を行った。

レジストは、粘度  $510\text{cp}$  を利用する事で  $10\mu\text{m}$  の高低差の全域を弾かれることなくコーティングできると分かった。露光に際しては、 $10\mu\text{m}$  の高低差の低い位置と高い位置の両域を露光する必要がある。このため、露光量とフォーカス調整を最適化する事で、 $10\mu\text{m}$  の高低差があるリッジ導波路構造においても所望の範囲を露光できる条件を策定する事ができた。図 3.3.2.3 に、 $10\mu\text{m}$  の高低差があるリッジ導波路構造上に  $1\mu\text{m}$  以下の位置合わせ精度で絶縁膜開口を行った素子の光学顕微鏡写真を示す。これらの検討から、レーザや LED を利用するマスクレス露光機に必要な仕様、例えば露光分解能やオートフォーカスオフセット分解能などを策定する事ができた。



図 3.3.2.3  $10\mu\text{m}$  高さのリッジ上でオーミック電極用フォトソグラフィを行った素子の光学顕微鏡写真。

### (3) InP 系材料の深堀エッチング条件の策定

素子作製ではリッジ型の導波路構造を採用する。リッジ導波路の光閉じ込め効率を高くするには、QCL 材料のエッチングにおける垂直性が高い事が望ましい。このため、 $\text{Cl}_2$  プラズマによる QCL 材料のエッチングにおける諸条件を精査した。

図 3.3.2.4 にドライエッチング装置の RF パワーを変えて、エッチングの垂直性を検討した結果を示す。ここでは RF パワーとして Bias 条件を変えており、図 3.3.2.4 左は Bias  $150\text{W}$ 、右は  $250\text{W}$  であるが、垂直性に強い影響が有る事がわかる。RF パワーの他にガス種、基板温度、加工圧力を検討し最適化を行った。図 3.3.2.5 に、最適化されたエッチング条件で加工したサンプルの断面 SEM 写真を示す。約  $10\mu\text{m}$  のエッチング後の垂直性は約  $4$  度であり、加工側壁や底面の荒れは観察されなかった。以降の QCL 素子試作に置いてはこの最適条件を使用した。

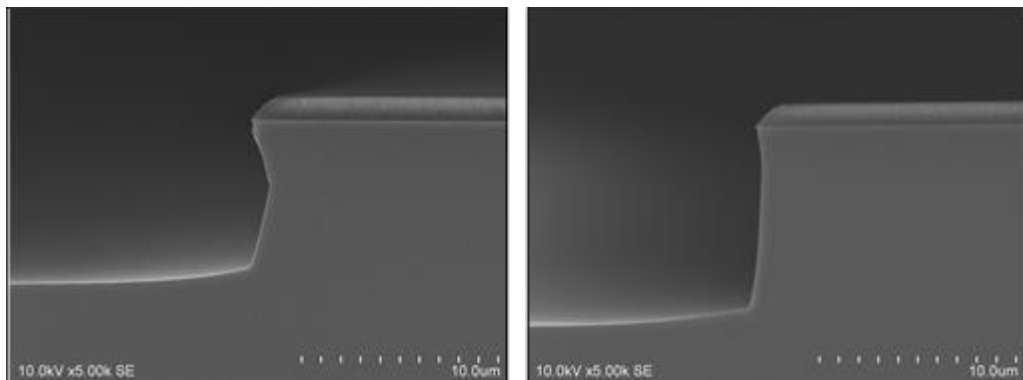


図 3.3.2.4 エッチング条件の異なるサンプルでの加工垂直性の比較。エッチング装置の RF パワーが異なる事で加工形状の垂直性が異なることが分かる。

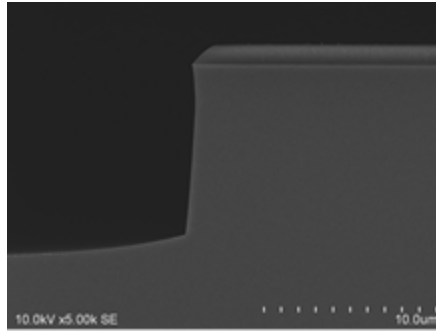


図 3.3.2.5 最適化されたエッチング条件での加工垂直性。垂直性約 4 度。加工底面の荒れが無い事が確認できる。

またリッジ導波路構造や PC の作製においてはエッチング量の精密な制御が必要になる。特に PC においては数 nm～数十 nm オーダのエッチング量制御が要求されることが研究の結果分かったため、測定分解能が nm オーダである接触式表面プロファイラを導入した。図 3.3.2.6 に導入装置と測定例を示す。エッチング量の精密な評価が迅速に行えることで検討精度を向上し、研究を加速する事ができた。



図 3.3.2.6 表面プロファイラと評価一例。

#### (4) 高性能 QCL 実現のためのレーザ露光機導入

光導波路構造としてリッジ導波路構造を採用する端面発光型の半導体レーザにおいては、一般に発振しきい値や最大光出力がリッジ導波路構造の幅に相関関係を持つ。リッジ幅を狭くすることで発光層での電流密度を高めると、発振しきい値は低減される。またリッジ幅を広くして発光層の実効的な体積を大きくすることで、最大光出力を高めることができる。最適値を見出すためには、リッジ導波路構造の設計自由度が高いことが望ましく、また、検討の精度を高めるために実験回数を高めようと思えば、試作を素早く完了できることが望ましい。こうした観点から、ガラスレチクル不要のレーザ露光機を導入した。レーザ露光機を利用して端面発光QCLを作製し光導波路構造の最適化と性能向上を図った。また、面発光型QCLの試作を開始するにあたり、歩留まり低下の要因になるへき開を行うことなく素早い評価とフィードバックを行うためにセミオートプローバを導入し、測定効率の向上を図った。

レーザ露光機は、研究で主に使用する $2\mu\text{m}$ 程度の膜厚をもつレジストに対して露光可能な光出力と、レーザ構造に必要なとされる $2\sim 18\mu\text{m}$ のパターンサイズ、並びにPCに必要なとされる $1\mu\text{m}$ 以下のパターンサイズの両方が露光可能なハイデルベルグ社製の $\mu\text{PG} 101$ を導入した(図3.3.2.7)。導入した $\mu\text{PG}$ で描画したパターンの一例を図3.3.2.8に示す。この装置導入によって、リッジ幅であれば最も細いもので約 $2\mu\text{m}$ のリッジ導波路構造を作製することが可能になり、光導波路の性能が向上できる(図3.3.2.9)。



図 3. 3. 2. 7 レーザ露光機。

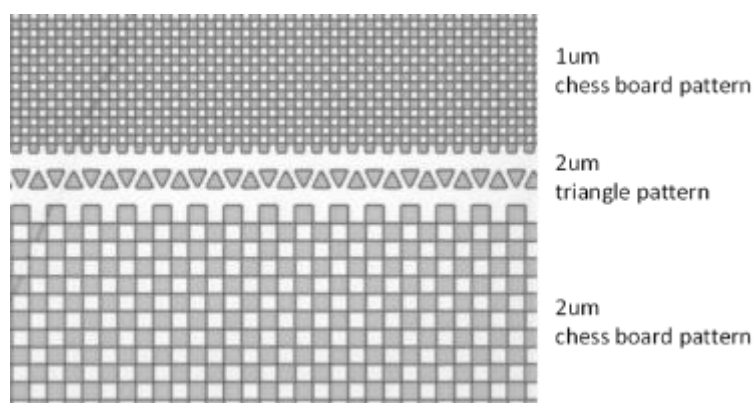


図3. 3. 2. 8 レーザ露光機で作製したパターン例。

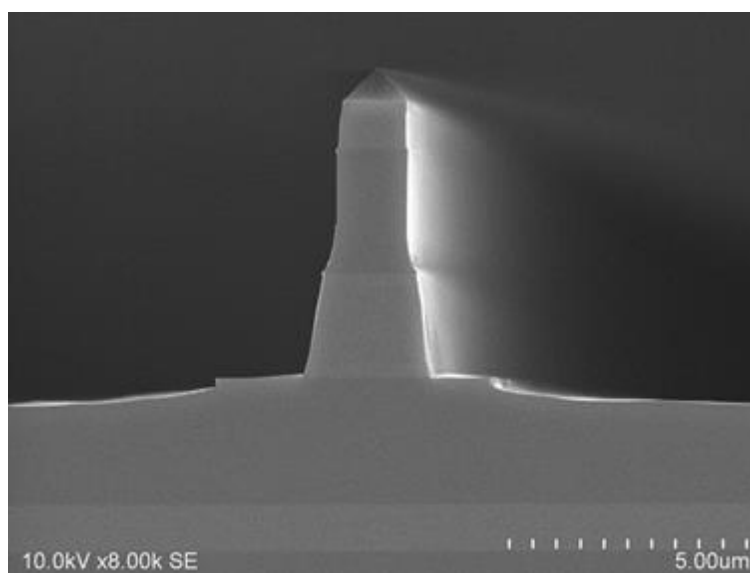


図3. 3. 2. 9 作製された幅 $2\mu\text{m}$ のリッジ導波路構造。

### 3. 3. 2. 2 埋込型デバイス構造の作製手法検討

QCLは発熱量の大きいデバイスであるために、発光層の温度上昇に伴う光出力低下を回避する観点で、素子の放熱構造を最適化することは非常に重要である。高放熱構造の試作と評価を行った。AuやCuで埋め込んだ素子を試作し、高分解能サーモビュア温度計によって素子の動作温度を評価し、放熱の効

果を検討した。この際、高熱伝導サブマウントを利用した実装手法の検証も行った。また東京工科大学による熱抵抗測定、熱シミュレーション解析の結果と比較検証を行うことで界面熱抵抗の影響を把握し、実装手法などモジュール全体の設計検証を行った。さらに、放熱過程をより詳細に評価する目的で、短パルス印加印加時の熱応答特性の評価手法についての検討を行った。素子の高出力化においては、こうした熱に関する検証に加え、導波構造における光学ロスを低減できることも重要である。そこでAu埋め込みと比較して光学ロスが少ないとされるInP埋め込み端面型QCL素子を試作し、光学ロスの比較を行った。さらに面発光型QCLにおけるPC部分の放熱性を高くする目的で、PCを高放熱材料で埋め込むプロセスの検討を行った。

素子の高出力化においては、こうした熱に関する検証に加え、導波構造における光学ロスを低減できることも重要である。そこでAu埋め込みと比較して光学ロスが少ないとされるInP埋め込み端面型QCL素子を試作し、光学ロスの比較を行った。さらに面発光型QCLにおけるPC部分の放熱性を高くする目的で、PCを高放熱材料で埋め込むプロセスの検討を行った。

### (1) 端面発光 QCL での埋め込み構造と放熱性比較検討

図3.3.2.10に、端面発光型QCLの断面構造の模式図を示す。素子駆動時に発熱源になるのは発光層である。このため発光層直近の放熱経路を高放熱材料で形成できる事が望ましい。一般的なリッジ導波路型の端面発光型QCLの場合、リッジ導波路構造はドライエッチングによってリッジ脇をエッチングする事で形成される。この時リッジ脇(トレンチ)は図3.3.2.10左図に示すように、雰囲気(多くの場合、空気)で満たされており熱的に遮断されているため、放熱経路にはなりえない。図3.3.2.10右図に示すように、このリッジ脇のトレンチ部分を高放熱材料で埋め込むことで放熱経路を作り、素子の放熱性を向上させることができる。熱伝導性の良い高放熱材料としてAu、Cu、InPを選択し、それぞれで埋め込まれたQCLを作製、後述のように素子の放熱性に関わる評価を行い比較した。[3.2.3, 4]

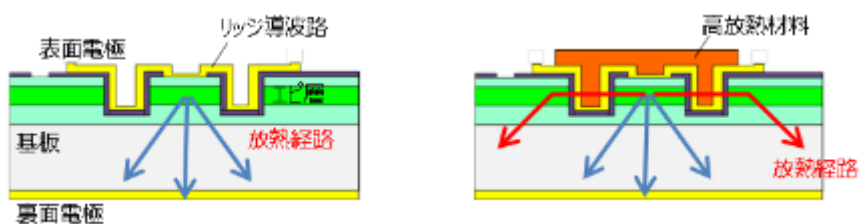


図3.3.2.10 リッジ導波路構造近傍での放熱経路の概念図。

埋め込み材料としてAuとCuを使用する場合、AuやCuそれ自体に導電性があるため、リッジ表面はSiO<sub>2</sub>絶縁膜で被覆する。その後トレンチ内を、メッキ手法を使用してAuやCuで埋め込んだ。メッキに際してはAuやCuなどの埋め込み材料のシードレイヤーとなるTi/Au層やTi/Cu層を事前に成膜してある。図3.3.2.11に、作製したAu、Cuメッキ手法でリッジ導波路構造が埋め込まれたQCLの断面SEM写真を示す。空隙なくリッジ脇のトレンチ部分がAuまたはCuで埋め込まれていることが分かる。

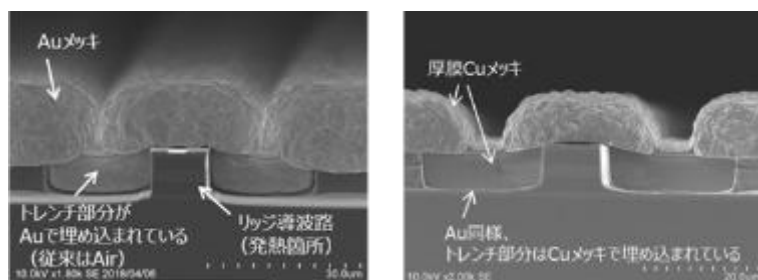


図3.3.2.11 Au、Cuで埋め込んだリッジ導波路構造。

InP 材料での埋め込みに際しては、結晶成長装置による再成長埋め込み手法を使用した。図 3.3.2.12 に、作製した InP の再成長法手法によってリッジ導波路構造が埋め込まれた QCL の断面 SEM 写真を示す。こちらにも空隙なくリッジ脇のトレンチ部分が InP で埋め込まれていることが分かる。

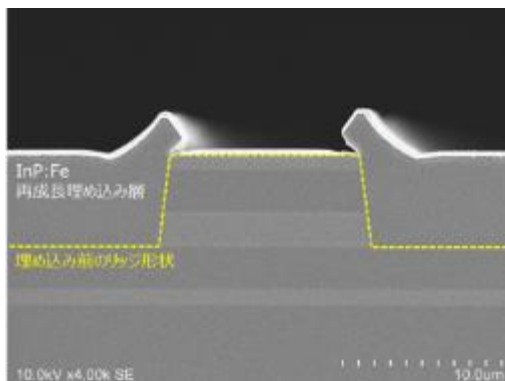


図3.3.2.12 InPで埋め込んだリッジ導波路構造。

次に量子井戸構造が同じであるエピウエハを用いて、Au 埋め込み素子と InP 埋め込み素子の特性評価比較を行った。図 3.3.2.13 に、作製した Au 埋め込み端面発光 QCL と InP 埋め込み端面発光 QCL の断面 SEM 写真を示す。量子井戸構造の設計は同じなので、埋め込み構造の差による放熱性の差異が、QCL 素子特性の差として評価されると考えられる。表 3.3.2.2 に、東京工科大学が測定した両素子の熱抵抗係数を比較して示す。InP 埋め込み素子の熱抵抗係数は 3.3K/W であり、Au 埋め込み素子の 6.5K/W と比較して低い。すなわち InP 埋め込み素子は放熱性の観点で、Au 埋め込み素子よりも優れており、大電流を印加した際の素子の温度上昇を低減できるとわかる。結果として、素子の最大光出力を増大することが可能になる。表 3.3.2.3 に、両素子の最大光出力値を示す。今回の評価において、Au 埋め込み素子では最大光出力は 0.58W であるのに対し、InP 埋め込み素子では最大光出力は 2.0W であり、InP 埋め込み素子の特性が良いことが分かる。こうした検討結果から、QCL の放熱性を向上し最大光出力を増大していく観点では、活性層周辺を InP で埋め込む構造が適正であると考察できる。

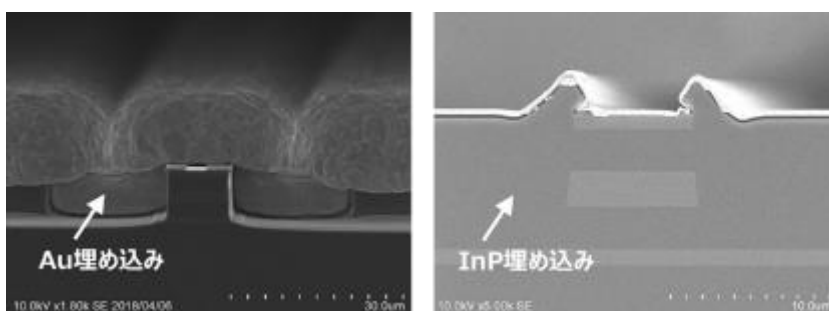


図 3.3.2.13 Au 埋め込み端面発光 QCL と InP 埋め込み端面発光 QCL の断面 SEM 写真。

表 3.3.2.2 熱抵抗係数の比較。

	Au埋め込み素子	InP埋め込み素子
熱抵抗係数 (K/W)	6.5	3.3

表 3.3.2.3 最大光出力値の比較。

	Au埋め込み素子	InP埋め込み素子
最大光出力 (W)	0.58	2.0

## (2) 端面発光 QCL の評価と設計へのフィードバック

QCL 素子単体での特性評価は、端面発光 QCL の試作によって行った。QCL 素子単体での性能評価は、光導波路構造を組み込んだ端面発光 QCL にて行った。端面発光 QCL は PC の光取出し性能等の影響を受けないため、QCL 素子のみの真の性能を評価できる。得られた評価結果を、結晶性の出来栄評価へフィードバックした。

QCL 素子上の凹部による空隙は InP で埋め込み QCL 素子の放熱性を向上させた。材料の選定にあたっては、面発光素子の埋込状態も考慮し、図 3.3.2.14 に示す面発光素子の PC 部を Au で埋め込んだ素子と InP で埋め込んだ素子の SEM 像評価結果から、埋込幅が広い InP を用いた。また、導入した信頼性評価装置を用い 10°C で連続動作させ、InP 埋込材料の効果を確認した。結果を図 3.3.2.15 に示す。

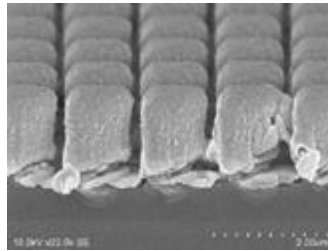


図 3.3.2.14 左図 Au 埋込

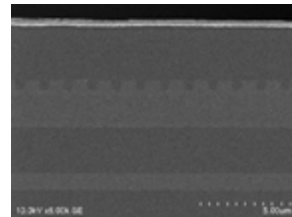


図 3.3.2.14 右図 InP 埋込

図 3.3.2.14 PC 部の材料の違いによる埋込状態。

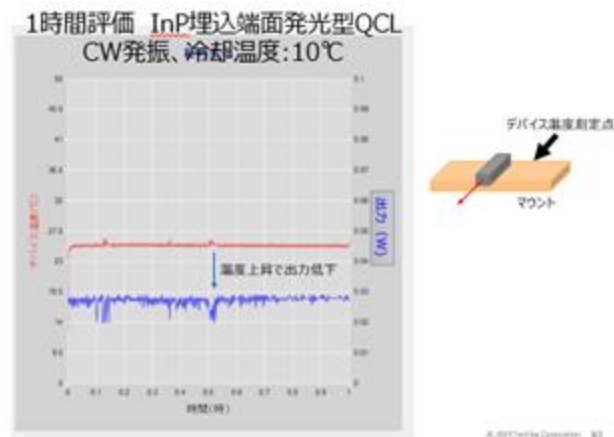


図 3.3.2.15 信頼性評価装置による連続試験評価。

さらに、図 3.3.2.16 に示すように、さらに放熱性を向上させるために、エピサイドアップ実装からエピサイドダウン実装とした。電流-出力評価を行った結果を図 3.3.2.17 に示す。図 3.3.2.17 からわかるように、エピサイドアップにすることで、出力が増加しており 2W を超える出力が得られた。

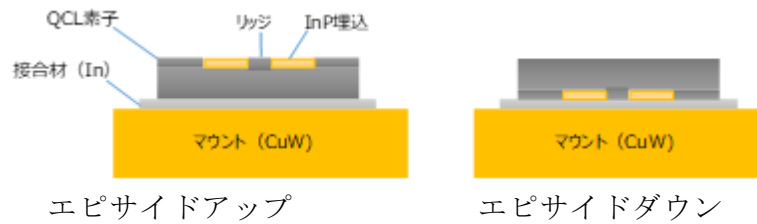


図 3.3.2.16 エピサイドアップとエピサイドダウン実装。

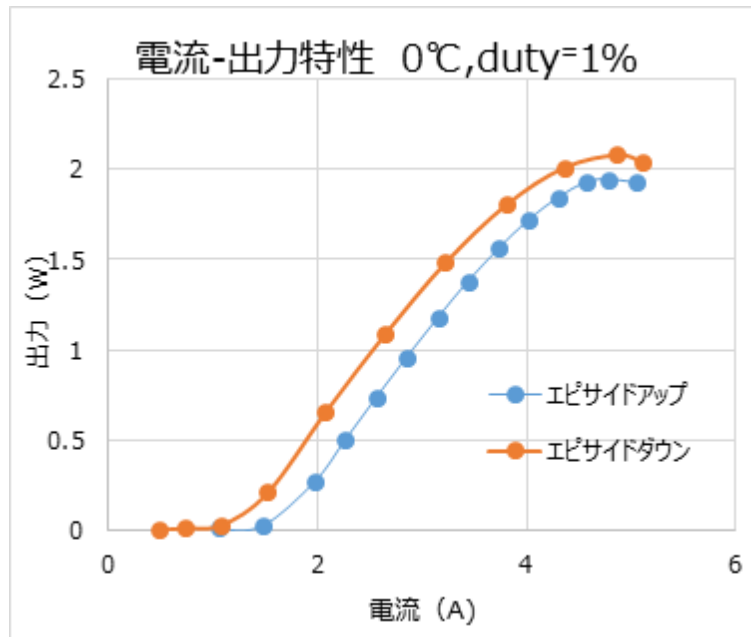


図 3.3.2.17 実装方法による出力特性。

### (3) 面発光 QCL 試作のためのウエハの作製

確定したウエハ作製条件をもとに、面発光型 QCL の試作に対し QCL 素子構造のウエハ供給を行った。また、光取り出しを増大させるための新規の PC 面発光 QCL の試作、検討を行った。活性層で生じた光の一部は結晶内部で吸収されると考えられた。NIMS が行った各層での光吸収損失の計算結果を図 3.3.2.18 に示す。これによると、高濃度に Si ドープされた InGaAs バッファ層での吸収損失が大きいことを示した。図 3.3.2.19 は、光取り出し効率向上のための方策を示したものである。結晶成長が取り組む項目は、⑤ InGaAs ガイド層を薄く、⑥ InGaAs バッファ層を省略、⑧ 全般にドーピングレベルを低く、の 3 つである。

図 3.3.2.20 に、従来の面発光型 QCL と取り組んだ 3 種類の面発光型 QCL の層構造の概略図を示す。比較として、端面発光型 QCL を左の列に示した。3 試料は、InGaAs バッファ層がなく、活性層と InP 基板の間の低 Si 濃度の InP 層の膜厚が厚い。活性層とキャリア濃度の高い InP 基板の距離を広げて、InP 基板での光吸収損失も低減する狙いである。まず試料 A を作製し、エレクトロルミネッセンス測定 (EL 測定) を行ったが、発光しなかった。光を閉じ込める層が必要と考え、次に試料 B と試料 C を検討した。試料 B と試料 C には、PC を形成する InGaAs 層 ( $1\mu\text{m}$ ) の上に、InP 層 ( $2.5\mu\text{m}$ ) と InGaAs 層 ( $1\mu\text{m}$ ) を積層した構造である。試料 B には、活性層の下に InGaAs 層 ( $0.3\mu\text{m}$ ) も形成した。試料 B と試料 C の EL 測定を行った結果、ともに発光を確認した。図 3.3.2.21 は発光スペクトルである。試料 C は、出力が低いが発光波長を確認できた。よって、活



性層の下にある InGaAs 層 ( $0.3 \mu\text{m}$ ) は省略可能と判断した。PC を作製するには、ゲイン波長をもとにして設計を行うため、ウェハ毎に発光波長を測定する必要がある。検討した試料 B と試料 C は、光吸収損失を低減する要素を取り入れているが、EL 波長を測定するために PC 面発光 QCL には不要な InP クラッド層と InGaAs コンタクト層が積層されている。よって、面発光型 QCL を作製するには、EL 測定のために、InP 層 ( $2.5 \mu\text{m}$ ) と InGaAs 層 ( $1 \mu\text{m}$ ) をリン酸によりエッチング除去する必要がある。リン酸系ウェットエッチングによって InP 層 ( $2.5 \mu\text{m}$ ) と InGaAs 層 ( $1 \mu\text{m}$ ) を除去する工程の説明図を図 3.3.2.22 に示す。平坦な表面でエッチングする方法を検討し、面発光型 QCL を作製することでさらなる性能向上が期待できる。

以上のように PC 形状の適正化や素子化プロセス検討用ウェハを供給した。



図 3.3.2.18 各層での光吸収損失の計算結果。

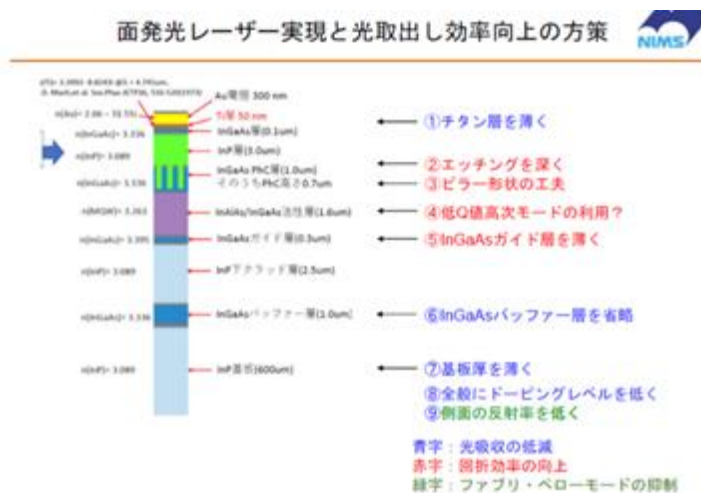


図 3.3.2.19 光取り出し効率向上のための方策。

特徴	端面発光型		PC-QCL型			
	STD		従来型	試料A	試料B	試料C
層	厚さ [um]	ドoping濃度 [cm-3]				
InGaAs	1	1.E+18			<-	<-
InP	2.5	4.E+16			<-	<-
InGaAs	0.3	1.E+17	1 um	1 um	1 um 4E+16	1 um 4E+16
活性層	1.5	1.E+17	<-	<-	<-	<-
InGaAs	0.3	1.E+17	<-		4E+16	
InP	2.5	4.E+16	<-	5 um	6.5 um	6.5 um
InGaAs	1	1.E+18	<-			
InP	0.1	4.E+18	<-			
InP基板	600	3- 9E+18	<-	<-	<-	<-
EL		○	○	X	○	○
PC			○			

図 3.3.2.20 従来の面発光型 QCL と今回取り組んだ 3 種類の面発光型 QCL の層構造の概略図。

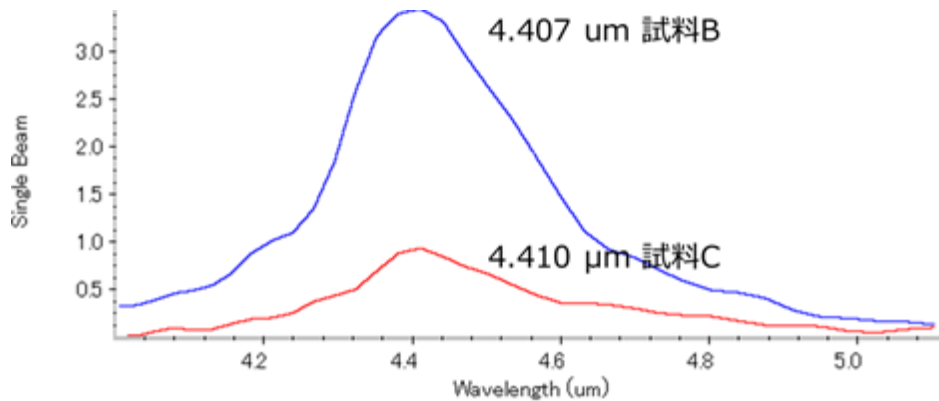


図 3.3.2.21 EL 発光スペクトル。

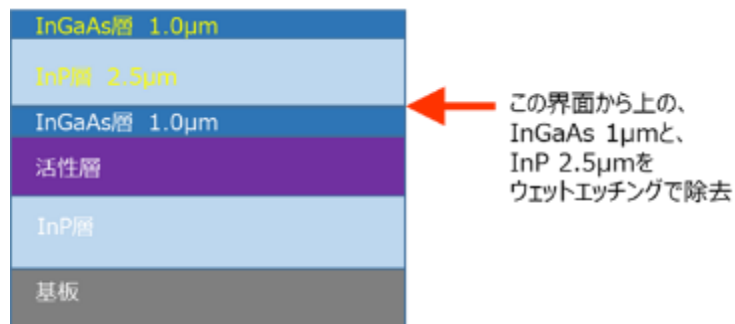


図 3.3.2.22 不要な層を除去する工程の説明図。

#### (4) PC 面発光 QCL での埋め込み材料・構造とモジュールの検討

端面発光 QCL の評価については、結晶成長の品質評価結果をフィードバックするとともに、ダイボンダーの接合条件、マウントおよび接合材といったモジュール全体の熱設計の適正化により熱抵抗の低減を図り、素子の光出力特性を向上させた。また、埋め込み材料及び QCL を構成する各材料の屈折率の差によって QCL 素子の性能に影響を与えることが想定されるため、電磁場解析シミュレーションにより影響度の評価を行い、構造の最適化も行った。

QCL 素子の放熱性を向上するための構造と形成プロセスを用いて、面発光 QCL 素子構造において、金属や InP などの埋め込み材料候補に対して、断面観察による界面状態・ボイドの有無を確認した。図 3.3.2.23 に検討した面発光 QCL 素子構造の断面模式図を示す。PC 構造を埋め込む材料として、PC-QCL 構造 Type A は InP、Type B は Ti/Au を選択し、試作を行った。図 3.3.2.24 に、各ロットの断面 SEM 観察による各埋め込み材料と PC の界面状態の観察結果を示す。Type A、Type B ともに、InGaAs 層をドライエッチングして形成した PC と埋め込み材料の界面に剥離やボイド・空隙などの熱伝導に不利になる欠陥は見受けられない。ただし Type B では、Ti/Au の厚さが 25/300nm であるため、PC の間には完全には埋め込まれていないことがわかる。

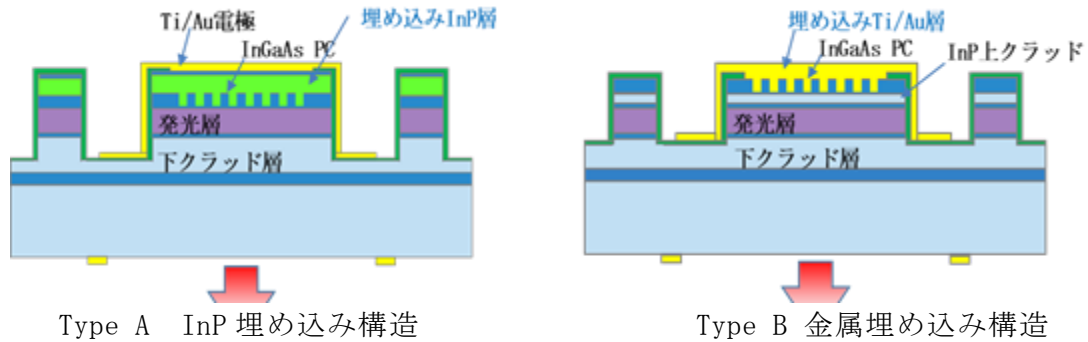
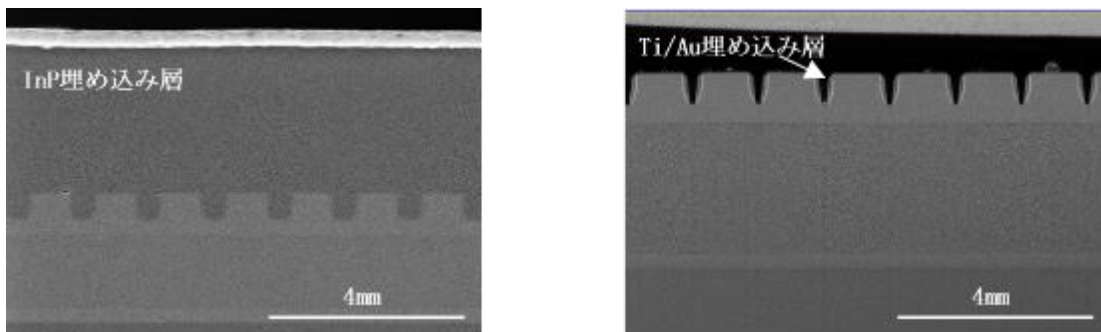


図 3.3.2.23 面発光 QCL 素子構造の断面模式図。



Type A InP 埋め込み構造

Type B 金属埋め込み構造

図 3.3.2.24 断面 SEM 観察像。

QCL 素子の熱抵抗係数を評価する方法として、短パルスを印加したときの発熱応答特性を測定することにより熱抵抗係数の相対評価を行う手法の導入を検討した。また、先に述べた熱解析モデルによる検証と比較することにより、実装を含めたモジュール全体の熱設計と連携した検証を進めた。

これらの素子の熱抵抗係数を評価した結果、Type A は 6.0K/W、Type B は 5.5K/W であった。Type B の金属埋め込み構造の方が熱抵抗係数的には有利とわかる。また電流中による素子特性評価を行った結果では、Type A、Type B ともレーザ発振が確認されたが、Type B においては実装時に AuSn はんだを使用して 340°C 以上に昇温する熱履歴を加えると、発光強度が急激に低下する現象が確認された。PC と実装 AuSn 半田がほぼ密着していることから、熱履歴ないし歪の影響で PC の破損や形状変化、PC の周期的屈折率差に変化が生じ、結果として出力の低下を誘発した可能性が懸念される。こうしたことから、Type B の PC 金属埋め込み構造は、現在の素子作製工程では信頼性の観点から改良の余地がある。さらに素子構造の作製プロセス困難度で比較すると、Type A は埋め込み InP 結晶再成長工程が必要であるため工程数が多く、困難度が高い。一方 Type B は Ti/Au の電極成膜を直接 PC に行えば良いため、工程数は少なく困難度も低い。今回、性能に影響を与える熱抵抗値を優先し、PC 面発光型 QCL においても、InGaAs-PC を埋め込むべき材料候補と

しては InP が望ましいと判断した。これ以降の PC 面発光型 QCL 試作は、原則 InP 埋め込み構造を適用した。以上のように構造作製プロセスの困難度を考慮した上で材料を選定できた。

QCL 素子の熱抵抗係数評価方法は図 3.3.2.25 に示すように、短パルス電力印加に対する発熱応答特性の測定によって熱抵抗係数の相対評価をする手法を用いた[3.2.5]。パルス幅  $1\mu\text{s}$  の電流パルスを素子に印加し、その時の光出力を MCT (HgCdTe) で検出し発熱による出力の低下を評価して相対的に熱抵抗を評価した。

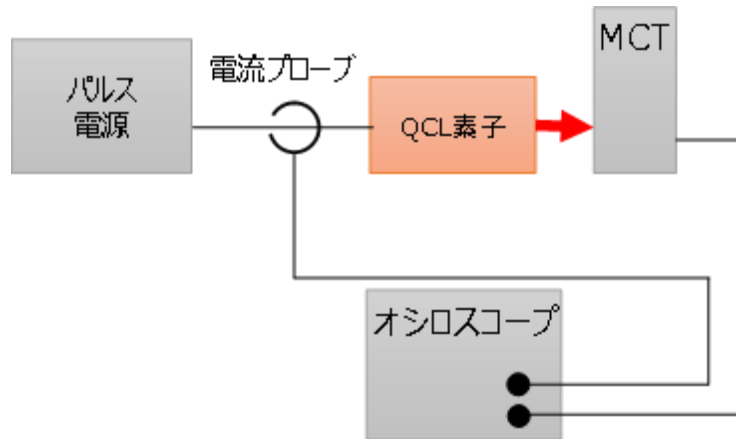


図 3.3.2.25 短パルス電流印加による光波形測定系。

面発光素子ではウエハから個片化する際に、図 3.3.2.26 のように素子周辺にチップングが発生する。この状態で、図 3.3.2.27 のようにダイボンディングする際、素子の周辺に接合材が接触することで、電氣的に短絡を発生させる可能性が高くなる。ダイボンダーを用いてマウント上の接合材である In 領域を図 3.3.2.28 に示すように  $1.2\text{mm}$  角に制限し素子と接合を行った。接合条件として荷重を  $50\text{g}$  とし実装を行い、熱抵抗係数評価方法として、短パルス印加に対する発熱応答を光出力として面発光素子の評価を行った。

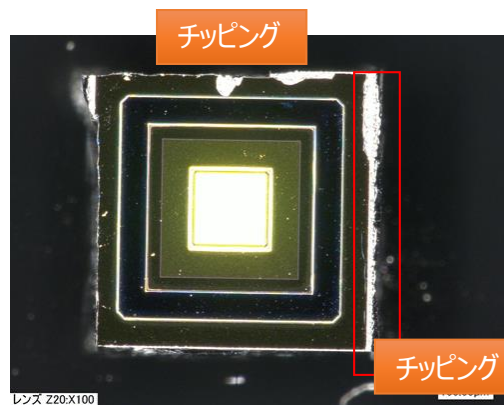


図 3.3.2.26 面発光素子のフォトニック側表面。

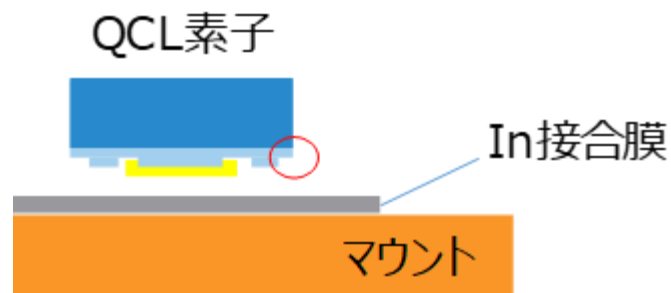


図 3.3.2.27 実装の模式図。

領域が制限されたIn接合膜  
(1.2mm $\square$ )



図 3.3.2.28 In 成膜されたマウント。

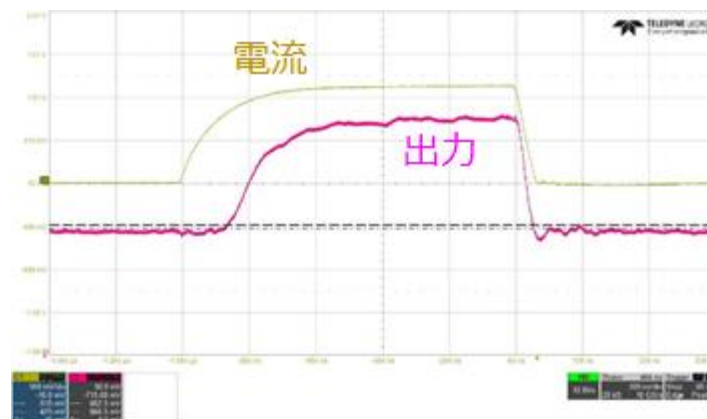


図 3.3.2.29 短パルス電流印加による光波形測定結果。

素子を 77K で測定した結果を図 3.3.2.29 に示す。出力パルス波形の低下は観察されず、77K 下では、接合領域を 1.2 mm $\square$ に制限しても、今回の測定条件であるパルス幅 1  $\mu$ s の電流パルスでは熱的な影響を受けないことを確認した。

また 3.2.2 の熱解析モデルによる検証と比較し、実装を含めたモジュール全体の熱設計と連携した検証を進めた。並行して、先に述べた、端面発光 QCL の評価を行い、結晶成長の結晶評価結果をフィードバックした。

#### (5) PC 埋め込みにおける素子性能への影響検討

埋め込み材料と QCL を構成する各材料との屈折率差により QCL 素子性能に影響を与えることが

想定されるため、電磁場解析シミュレーションにより影響度の評価を行い、構造の最適化を行った。

図 3.3.2.30 には NIMS が有限要素法 (FEM: Finite Element Method) を用いた電磁場解析シミュレーションで、熱伝導に優れる Au で埋め込みを行う構造のモデルを示した。InGaAs の三角柱で形成される正方格子 PC 構造をモデルとして用いた。埋め込み構造は InGaAs との接合金属とする Au 埋込となっている。接合金属は物理的な接着と電気的な接触をどちらも兼ね備えたものとして Ti を選定した。しかし Ti はこの波長域では吸収が大きいため、発光層の光を吸収し損失を生じる。この吸収量と PC による放射損とを定量的に比較した (図 3.3.2.31、左図)。この結果から Ti を用いた構造では放射損つまり、光出力が低いことがわかる。総吸収損 (放射損と吸収損の和) が低い、これは図 3.3.2.31、右図の Q 値が低いことによるものであり、発振閾値が高くかつ光出力が低いという結果になる。よって光吸収となる Ti をできるだけ薄くして、吸収を低減するかもしくは他の金属に置き換える必要があることがわかる。ここで代替の金属として Ni、Cu を検討した。Ni と Cu はこの波長域で、Ti に比べ吸収が低く、反射率が高い。しかし、物理的な接着と電気的な接触に関する実績から Ni を採用した。

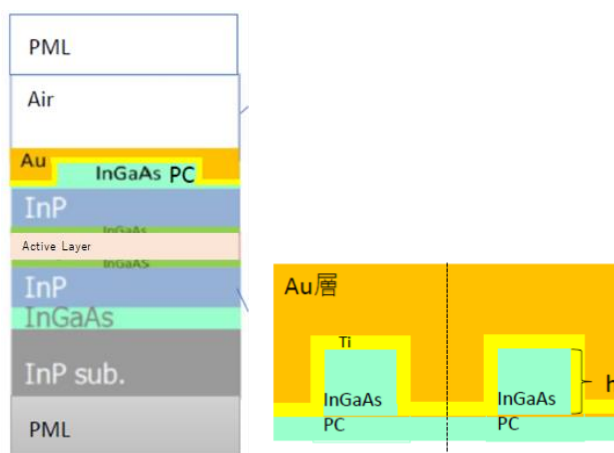


図 3.3.2.30 埋込材料による素子への影響を検討したモデル構造。  
PML: Perfectly Matched Layer (完全整合層)

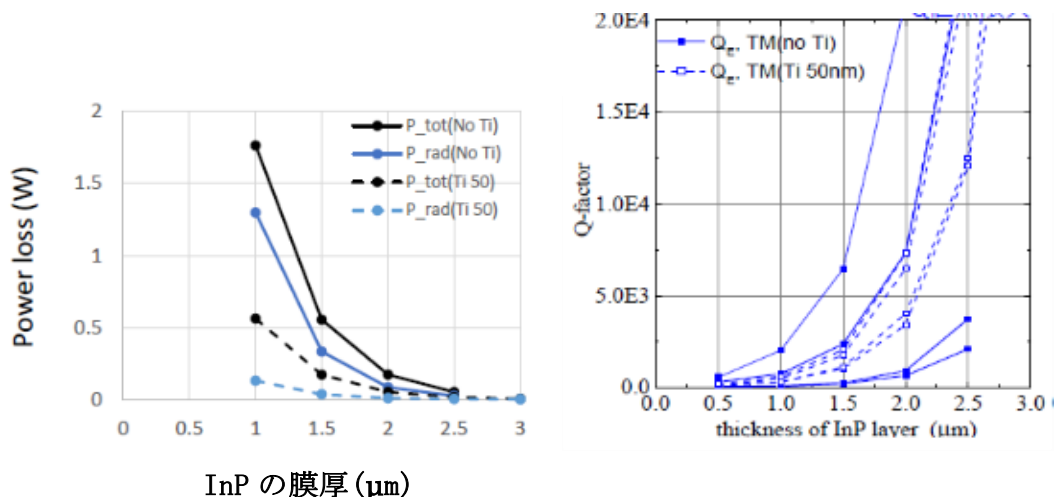


図 3.3.2.31 左図: 放射損 (Ti 有:  $P_{rad}(Ti50)$ 、Ti 無:  $P_{rad}(No Ti)$ )、総損失 (Ti 有:  $P_{tot}(Ti50)$ 、Ti 無:  $P_{tot}(NoTi)$ ) の MQW 上の InP 層の膜厚依存性。

右図: Q 値の MQW 上の InP 層の膜厚依存性。

### (6) 電磁場解析シミュレータによる埋め込み構造の検証

電磁場解析シミュレータを導入し、金属材料による埋め込み構造の検証を行った。電磁場解析シミュレーションは計算が収束しやすい計算方法で解析した。QCL デバイス開発の高出力化を実現するためには放熱対策が肝要であり、その方策の一つとしてレーザ素子表面への金属膜の付加が考えられる。模式図を図 3.3.2.32 に示した。左図には PC と同様に周期構造を持つ DFB レーザ (DFB: Distributed FeedBack) 構造を示した。格子部に金、銅などの放熱性の良い金属を付加した右図構成にすることで、レーザ発振に伴う不要な熱を散逸する効果を期待できる。一方で、金属での反射・吸収は素子内部の電磁場への悪影響、ひいてはレーザの出力特性の劣化に繋がることも懸念される。上述した背景のもと、まずは 2 次元で検討を行える DFB レーザ構造に焦点をおいて解析した。

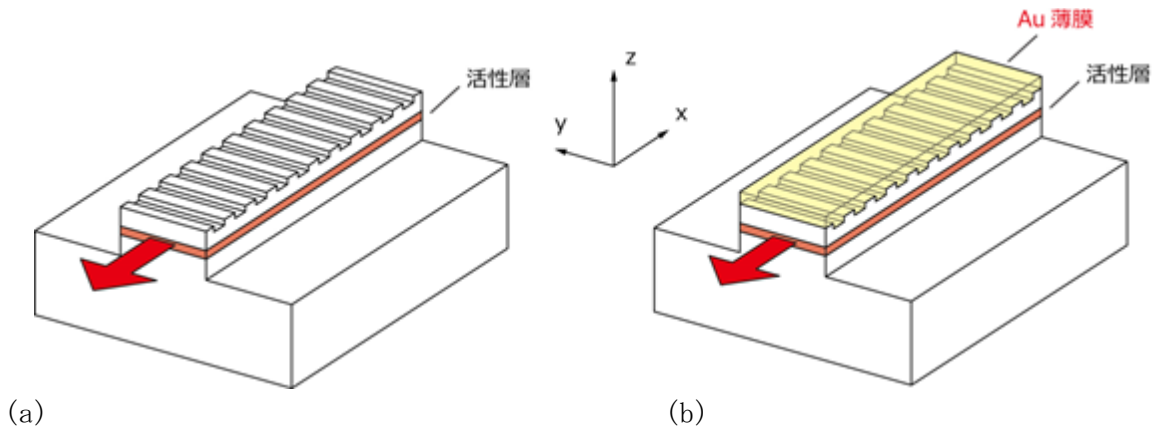


図 3.3.2.32 PC と同様に周期構造を持つ QCL の模式図 (a)通常構成、(b)金属膜を付加した構成。

金属埋め込み構造に対して、電磁場解析法の一つである FDTD 法 (Finite-Difference Time-Domain method:有限差分時間領域法) を用いて解析した。FDTD 法の 3 次元解析は膨大なメモリリソース、時間リソースを要するため、今回、デバイスのリッジ幅は無限とみなして 2 次元解析した。つまり、図中の y 軸方向には波源も物体の構造も変化がないと仮定し、xz 面の電磁場の挙動を解析した。また、空気中の波長は  $4.6 \mu\text{m}$  とした。本手法は、解析空間を微小セルに分割して、電磁場の時間発展を逐次計算する方法であり、セルサイズは、 $\Delta x = 0.1 \mu\text{m}$ 、 $\Delta z = 0.1 \mu\text{m}$  とした。これは、デバイス中の波長の約  $1/13$  に相当する。また、時間ステップは  $\Delta t = 2.0 \times 10^{-16} \text{ s}$  とした。これらは式 3.2.1 の Courant の安定条件を満たす。

$$\Delta t < \frac{1}{c \sqrt{\left(\frac{1}{\Delta x}\right)^2 + \left(\frac{1}{\Delta z}\right)^2}} \quad \dots \text{式 3.2.1}$$

想定した層構成を図 3.3.2.33、表 3.3.2.4 に示す。開発中の QCL 素子の代表的な数値を用いた。基板層と上部の Air 層を含めて 10 層である。第 5 層は多重量子井戸層で、平均的な屈折率を用いた。表面の第 9 層に  $0.5 \mu\text{m}$  厚の金を付加した。金の複素屈折率としては、 $2.66 - 31.55 i$  の値を用いた。なお、4 層、6 層と 8 層の InGaAs の屈折率が異なるのは組成比が異なるためである。

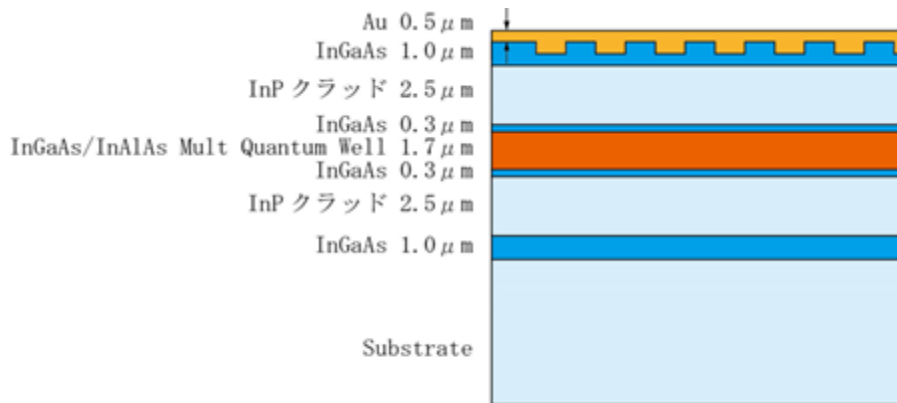


図 3.3.2.33 想定した層構成。

表 3.3.2.4 層構成の諸元。

層番号	材質	厚み [ $\mu\text{m}$ ]	比誘電率	屈折率
10	Air	$\infty$	1.0	1.0
9	Au	0.5	-988.327-167.846 i	2.66-31.55 i
8	InGaAs	1.0	11.0224	3.336
7	InP	2.5	12.7449	3.089
6	InGaAs	0.3	11.0224	3.395
5	Multi Quantum Well	1.7	12.8603	3.263
4	InGaAs	0.3	10.3959	3.395
3	InP	2.5	12.7449	3.089
2	InGaAs	1.0	11.0224	3.336
1	Substrate	$\infty$	8.80309	2.967

解析結果を図 3.3.2.34、図 3.3.2.35 に示す。それぞれ、金薄膜がなしの場合と金薄膜がある場合である。点光源を図中の左方、活性層内に配置して、電磁場の伝搬をシミュレートした結果である。図中の赤色、青色が電磁場の振幅が大きい領域であり、活性内を電磁場が導波しているのが分かる。図 3.3.2.34、図 3.3.2.35 に示した観測点における電磁場の振幅を図 3.3.2.36 に示す。図中の黒色が金属膜なし場合、赤色が金属膜あり場合である。振幅比で 87%である。DFB 構造に金属膜を付加しても大きな電磁場の破綻がないことが分かった。



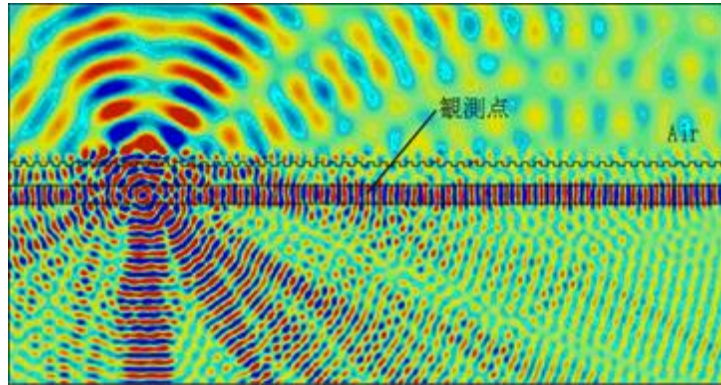


図 3.3.2.34 金属膜がない場合。

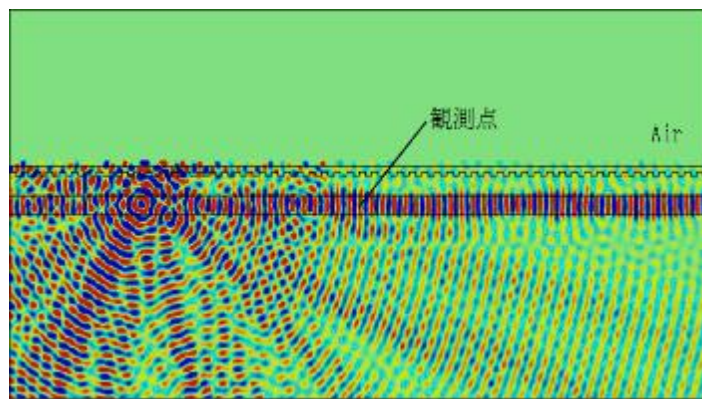


図 3.3.2.35 金属膜がある場合。

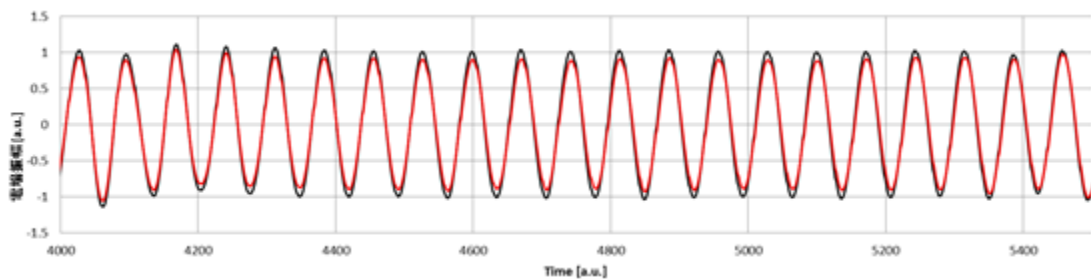


図 3.3.2.36 観測点における電場振幅。

### 3.3.2.3 QCL 素子評価

#### (1) QCL 素子 評価系の構築

QCL 素子単体での性能評価を行うために端面発光 QCL を作製し、成膜、素子の出来栄評価系を構築し実施した。主な評価項目と評価に適用する導入した設備を表 3.3.2.5 に示す。作成した端面発光 QCL に対して、マニュアルプローブを用いたチップ状態での電気特性測定、QCL 素子をパルス電源によりパルス動作させ、電流プローバにより電流波形、MCT 光検出器により光出力時間波形、出力の評価をパワーメータにより実施した。なお、電流波形、光出力波形はオシロスコープにより観測した。以下、詳細について説明をする。

図 3.3.2.37 にチップ状態で電気特性の良否を判定するために導入したマニュアルプローブの外観写真を示す。QCL チップは真空チャックを有するステージに保持する。今回、チップの良否を判定することを目的としたため、ステージには強制冷却機能はない。プローブをチップの上部

電極（カソード）に、ステージを下部電極（アノード）とコンタクトさせ電気特性を測定する。  
 図 3.3.2.38 にプローブがチップ上部電極 とコンタクトしている状態写真を示す。プローブ電圧は、-1V から 5V までと低電圧領域で評価した。

表 3.3.2.5 評価項目と適用設備。

評価項目	適用設備
QCL チップ選定用電流-電圧特性	マニュアルプローブ
QCL 素子 電流-電圧特性	電流プローブ、パルス電源
QCL 素子 電流-出力特性	中出力パワーメータ
QCL 素子 光時間波形	MCT、電流プローブ、オシロスコープ
QCL 素子 光ビーム質	中赤外カメラ、ビームプロファイラソフト
QCL 素子 素子温度	サーモビューア

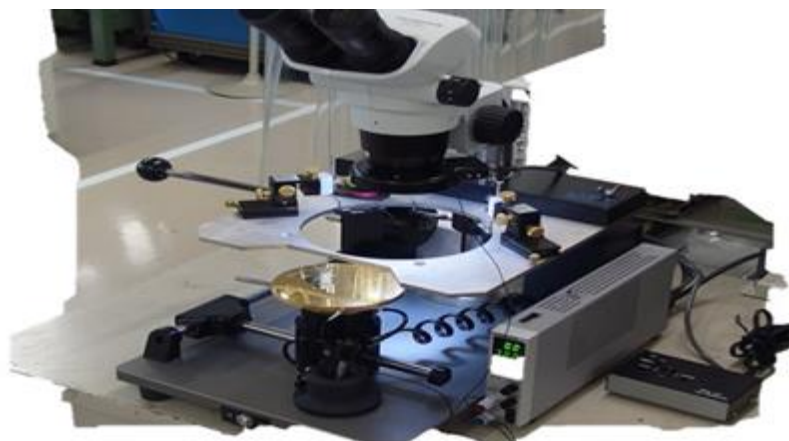


図 3.3.2.37 導入したマニュアルプローバ。

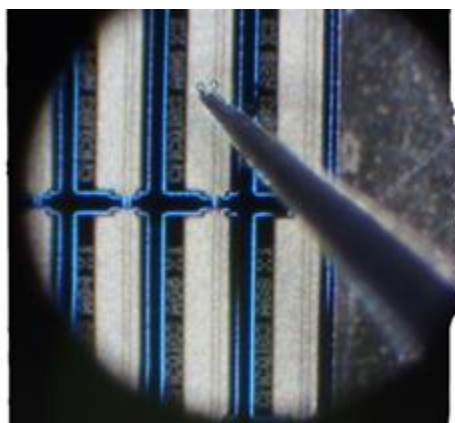


図 3.3.2.38 チップ上部電極にプローブをコンタクトした状態。

代表的な良品の電流-電圧特性を図 3.3.2.39 に不良品の電流-電圧特性を図 3.3.2.40 に示す。  
 導入したマニュアルプローブによりチップ状態で電気特性の良好な素子を選別できるようになっ

た。

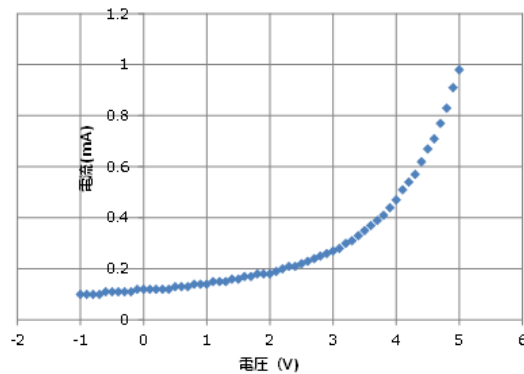


図 3.3.2.39 電圧-電流特性（良品チップ）。

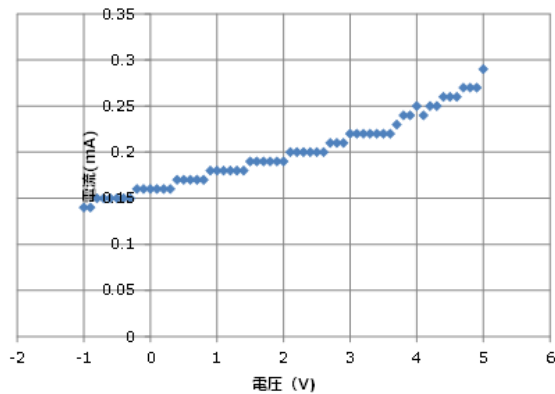


図 3.3.2.40 電圧-電流特性（不良品チップ）。

## (2) 端面発光 QCL の光出力特性

先のマニュアルプローバで電気特性が良好と判断した素子は、光出力特性を評価する。DC 駆動による評価ではチップが発熱するため、その熱を排熱する必要がある。チップをマウントに接合（実装）し冷却ユニットに固定する。マウントの材質はチップの熱膨張率を考慮し CuW(Cu:10%、W:90%)とし、冷却ユニットはペルチェ素子による電子冷却とした。評価に適用したチップの諸元を表 3.3.2.6 に示す。評価に適用した QCL チップをマウントに実装した外観写真を図 3.3.2.41 に示す。

素子冷却温度を 0°C において繰返し周波数 100kHz、パルス幅 100ns、duty1%でのパルス駆動におけるピーク電流-電圧・出力特性を図 3.3.2.42 に示す。結果より、発振閾値電流は 1A、電圧は 12V である。最大ピーク出力は 600mW が得られた。

素子冷却温度 0°C におけるパルス駆動電流と光出力の波形を測定した。測定系を図 3.3.2.43 に示す。パルス電流波形は電流プローブで光波形は液体窒素冷却型 MCT で検出しオシロスコープ HD04034A で測定した。図 3.3.2.44 に測定結果を示す。結果からわかるように繰返し 1MHz、パルス幅 800ns の duty80%で動作している。

表 3.3.2.6 評価した素子仕様。

素子仕様	QCL 素子
素子長 (mm)	6
リッジ幅 ( $\mu\text{m}$ )	10
光共振器	へき開状態
マウント形式	NS 型

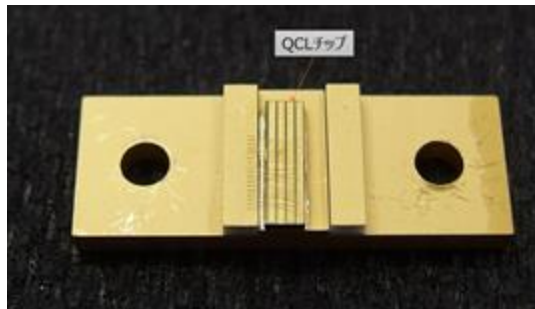


図 3.3.2.41 QCL チップをマウントに実装された状態。

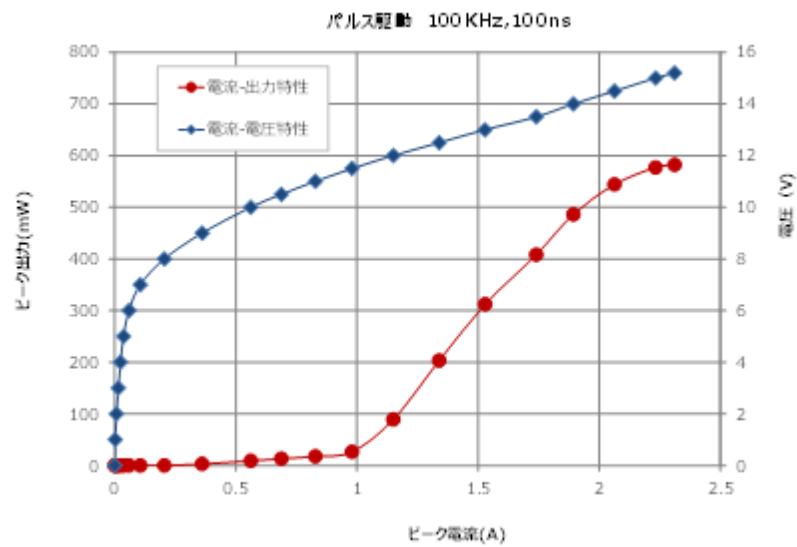


図 3.3.2.42 パルス駆動による電流-電圧、電流-出力特性。

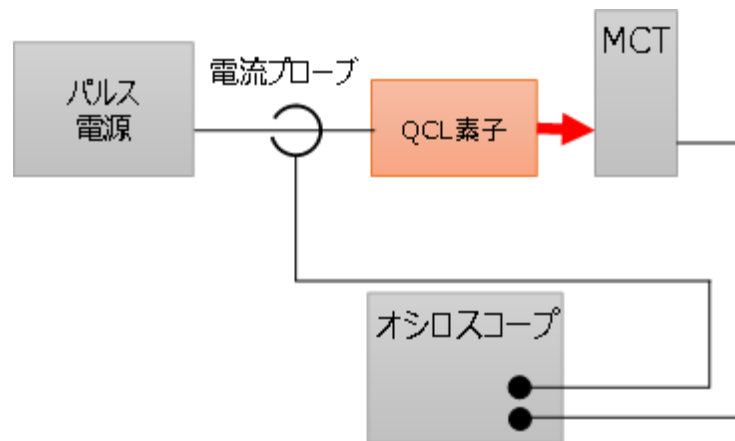


図 3.3.2.43 QCL 駆動電流と光波形の測定系。

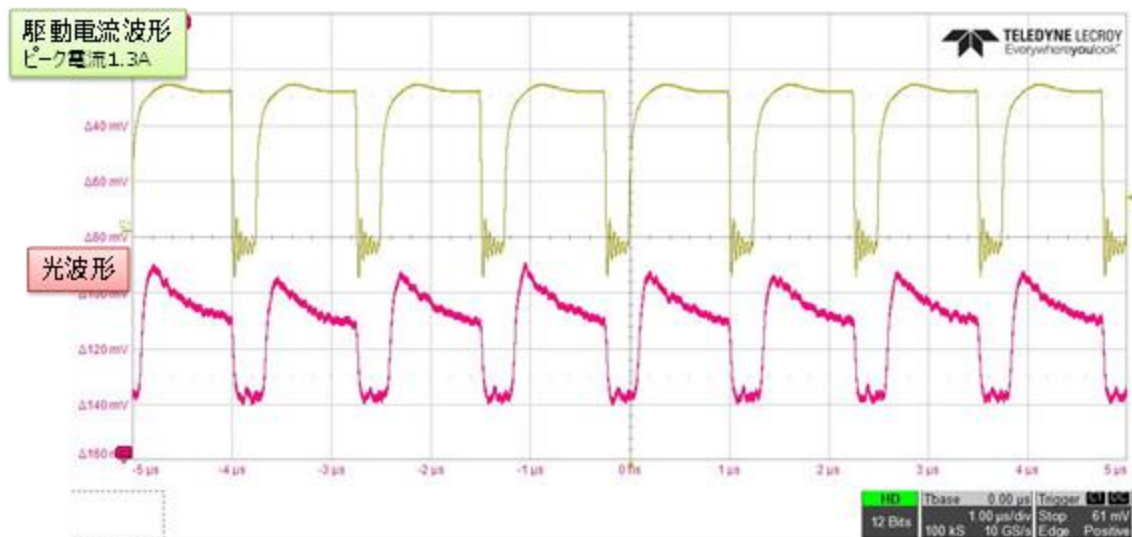


図 3.3.2.44 パルス駆動電流と光出力波形。

### (3) 端面発光 QCL の発振モード測定と解析

リッジ型などの光導波路構造・電極構造の設計を詳細に行うためには、実素子の発光部分の観察を行い、レーザ発振のモードを把握する必要がある。発振モードを評価する事で、実効的な電流注入領域を把握し、また光学設計時に必要となる物性パラメータの推算に向けたデータを積むことができるため、光導波路構造・電極構造設計へのフィードバックを行う事が可能になる。本研究で取り扱う QCL の波長域では一般的に使用される Si 系の検出器が使用できない。このため中赤外検出器を利用して遠視野像 (FFP: Far Field Pattern)、近視野像 (NFP: Near Field Pattern) を観察できる中赤外カメラを導入した。導入したカメラは波長  $3\mu\text{m}$  から  $5\mu\text{m}$  に感度をもつ中赤外カメラである。また、測定された画像から強度分布等解析を行うソフトとしてビームプロファイル解析ソフトを導入した。図 3.3.2.45 に装置外観写真を示す。

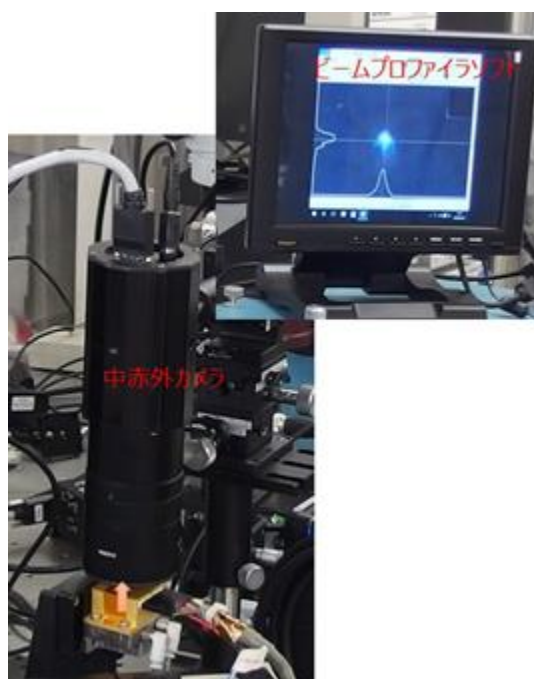


図 3.3.2.45 導入した中赤外カメラによる光ビームプロファイル測定の様子。

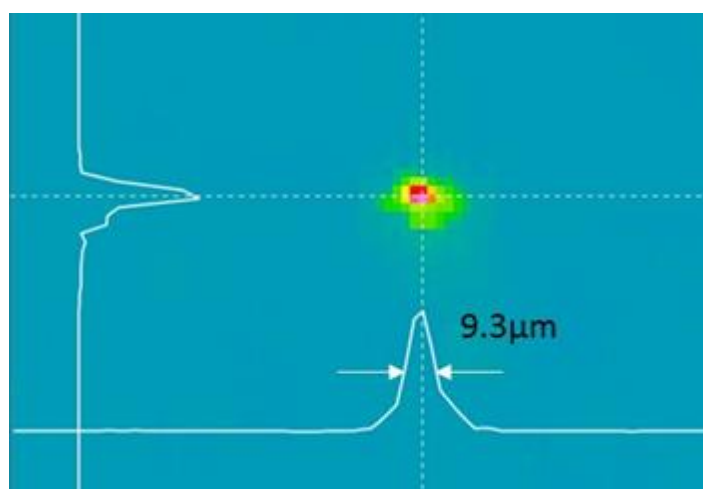


図 3.3.2.46 NFP 測定結果。

作製した長さ 3 mm、リッジ幅  $9\mu\text{m}$  の QCL 素子を用い NFP 測定した結果を図 3.3.2.46 示す。発振モード（横モード）はほぼシングルモードでビーム幅（FWHM）は  $9.3\mu\text{m}$  であることが計測された。今回測定に用いた素子のリッジ幅は  $9\mu\text{m}$  であることから発光層は全領域で有効に発光しているものと考えられる。発光領域、電流注入領域のデータが取得できた。この結果によると現在の動作条件では構造改善のためのフィードバックを行う必要はないと判断できる結果が得られた。高出力化を目指す過程で、モードが多モード化することが想定されるため、発振モードの評価を継続し、物性パラメータ、発光領域、注入電流領域のデータを取得することで特性の改善が期待できる。

(4) 端面発光型 QCL 素子の評価

QCL の発振波長は、活性層の量子井戸構造で決定される。量子井戸構造は数 nm の InGaAs 井戸層、InAlAs 障壁層からなる。この積層構造を 600 層積層し、発振に必要な利得を得る。多数の層があるため、その不均一性により、利得の幅が広がるが、発光原理的には従来の LD の利得幅に比べ、非常に狭い利得幅となる。QCL では量子井戸のサブバンド間遷移により発光が生じるため、図 3.3.2.47 のように半導体のエネルギーバンドギャップとその逆格子空間 (k 空間) の分布は、量子井戸準位間で並行となっており、逆格子空間上の位置がずれた場合でもエネルギー間隔が同一となる。一方、LD では価電子帯と伝導帯間の遷移であるため、逆格子空間上の位置がずれた場合には、エネルギー間隔が異なり、利得幅が広がる。

素子	活性層のバンド構造	活性層の構造	K 空間
QCL		注入層 3~5層 発光層 3~5層 × 10~40層 MBE成膜	
半導体 レーザ (LD)		活性層 数層 ~十数層 MOCVD成膜	

図 3.3.2.47 QCL と LD の発光原理。

発光が生じる遷移、発光層である活性層の構造、発光のための遷移を k 空間で示した模式図。

以上のように QCL は従来の LD に比べ、利得幅が狭いと予想され、利得幅を測定し、PC 構造のパラメータを利得幅に合わせた値にする必要がある。また、エネルギーバンド構造は歪による影響を受け、さらに利得の範囲よりわずかにずれたエネルギーでは光吸収が生じるため、この利得特性のエネルギー依存性を把握することが QCL の特性向上に不可欠である。このため利得特性の測定を行った。

利得  $g$  の測定は Hakki-Paoli 法により測定、解析を行った。

$$g = -\frac{1}{L} \ln \left( \frac{\sqrt{P_{\max}/P_{\min}} + 1}{\sqrt{P_{\max}/P_{\min}} - 1} \right) + \frac{1}{2L} \ln \left( \frac{1}{R_1 R_2} \right) \quad \dots \text{式 3.2.2}$$

ここで  $g$  は利得であり、波長に依存する。L: 共振器長、R1、R2: 共振器の反射率、 $P_{\max}$ 、 $P_{\min}$  は共振器に起因する 1 つの縦モードの最大値と最小値である。スペクトルの測定は縦モード間隔に比べ十分な分解能を有する分光器を用いて行った。図 3.3.2.48 は 400nm 帯の発振波長の LD におけるスペクトルと高分解能による縦モードに対する  $P_{\max}$ 、 $P_{\min}$  を示している。図 3.3.2.48 のように十分な分解能があれば、正確に縦モードの最大、最小値を求めることができる。

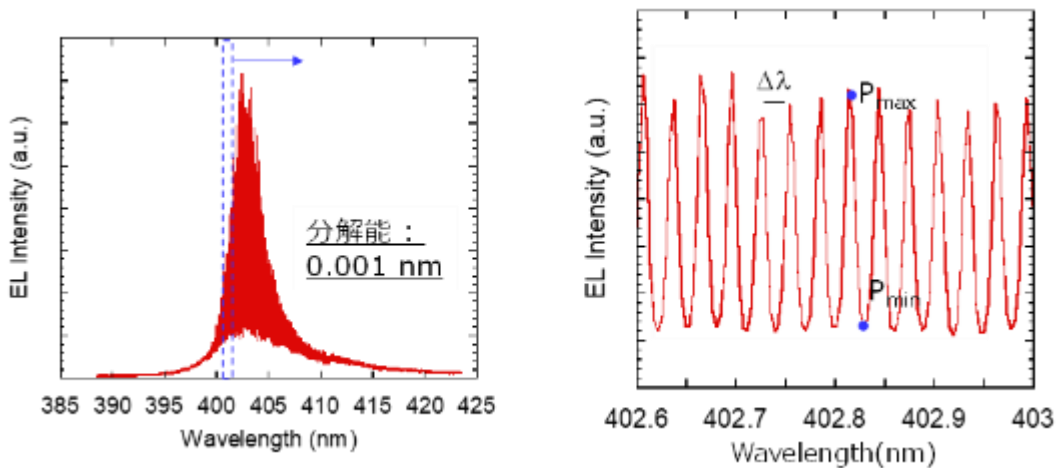


図 3.3.2.48 400nm 帯におけるスペクトルの例と高分解能分光器によるスペクトル。

同様の方法を用いて QCL のスペクトル測定を行い、解析し図 3.3.2.49(a) のような結果を得た。13.4V、13.5V、13.6V のスペクトルを示した。13.4V のスペクトルは解析できるだけの強度が得られていない。13.6V では縦モードの一つが選択的に強度が強くなり、縦モードの解析が不能である。13.5V のスペクトルのみ解析が可能である。QCL は発光原理により自然放出光強度が非常に弱いため、発振前のスペクトルを測定することは LD に比べ難しいものの方法により利得スペクトルを得ることができる。図 3.3.2.49(b) に利得スペクトルを示す。この解析から求めた利得中心は 4.388nm、利得が正となる幅は 40nm と見積もられた。端面発光型 QCL の共振器長に依存したスペクトル特性より、発振性能向上に不可欠な利得スペクトルを求めることができた。さらに得られた利得波長と利得幅より PC の試作構造を決定することができる。

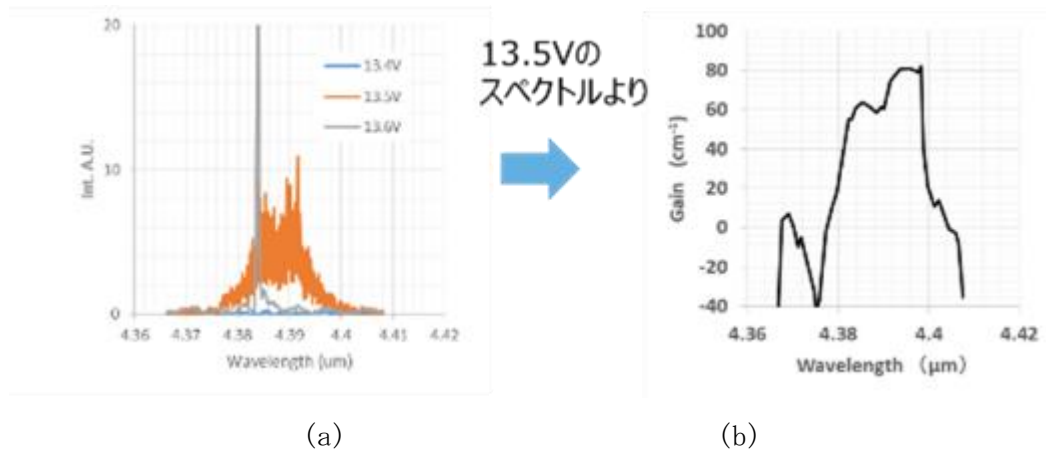


図 3.3.2.49 発振前後のスペクトルと 13.5V のスペクトルから得られた利得スペクトル。

量子カスケードレーザの効率を測定するため、図 3.3.2.50 に示すような測定系を構築した。素子の駆動は発熱による効率低下を防ぐため duty1% のパルス動作とした。測定温度は素子温度を制御しやすい 0°C に設定した。素子は端面発光型 QCL で、共振器の両端面はへき開面そのままであり、測定側の端面と反対側の端面は同じ出力が得られている。測定側の端面からの光出力をサーモパイル型のパワーメータで測定し、測定された平均出力からパルス印加時の光出力に換算し、光出力とした。



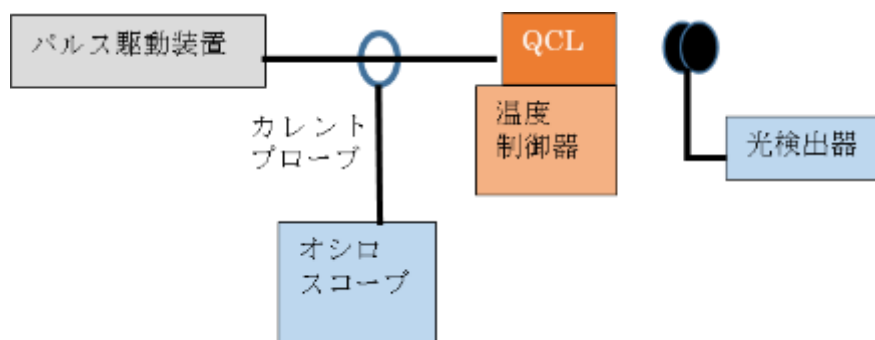


図 3.3.2.50 量子効率測定系。

図 3.3.2.51 に QCL の電流-光出力測定結果と量子効率測定結果を示した。測定対象の素子は 3.3.1 にて、結晶成長における膜厚、組成の精度を高精度化し、設計値に対する差を 5%に抑えたウエハを用いた素子であり、かつ本章において先に述べた導波路リッジの側面を InP による埋込構造とした素子である。リッジ側面の埋込構造は、先に述べたように放熱性能において優れているだけでなく、導波路ロス低減効果もある。導波路幅は  $23\mu\text{m}$ 、共振器長  $6\text{mm}$ 、素子温度  $0^\circ\text{C}$ 、パルス duty1%、での測定結果である。発振しきい電流は  $1.8\text{A}$ 、スロープ効率は  $0.8\text{W/A}$  で、片側端面からの光出力の効率より見積もり、量子効率： $9.5\%$  (片側)  $\times 2 = 19\%$  (両側)を確認できた。

なお、量子効率の求め方の説明を行うと波長  $4.5\mu\text{m}$  において、光子エネルギーは  $276\text{meV}$ 、さらに活性層の段数が 30 段の場合、量子効率 100%でスロープ効率は  $8.27\text{W/A}$  となる。よって、スロープ効率が一方の端面より  $0.8\text{W/A}$  で、両側で  $1.6\text{W/A}$  の場合、量子効率は 19%となる。

比較として、リッジ側面の埋め込みを行っていない素子の光出力特性を示す。図 3.3.2.52 に示した。導波路幅は  $14\mu\text{m}$ 、共振器長  $6\text{mm}$ 、素子温度  $-20^\circ\text{C}$ 、パルス Duty1%、での測定結果である。スロープ効率は  $0.68\text{W/A}$  であり、15%程スロープ効率が低いことがわかる。なお、リッジ側面の埋め込みを行わない場合、閾値電流が高くなると発振が難しいため、導波路幅  $14\mu\text{m}$  の素子としており、さらに放熱性が悪いため、素子温度  $0^\circ\text{C}$  での発振が困難で、素子温度  $-20^\circ\text{C}$ 、パルス Duty1%での測定条件により測定を行った。このように発光層の性能を他の要因にできるだけ影響を受けずに評価できる端面発光型 QCL であっても、導波路における導波ロスが発生するなどの影響があり、その影響を除外するためには、導波路側面を InP で再成長埋め込みを行うなど、導波ロス低減が必要であることがわかった。

活性層の性能指標として量子効率を設定しているが、導波路側面を埋め込んだ構造でない場合、低い値が得られることを留意すべきである。「3.3.1(14) レーザ光出力の量子効率 30%以上を実現にむけた新規量子井戸構造」で述べたように、新規に開発した AlAs-InAs 挿入型 QCL 活性層は、従来型の発光層に対して、スロープ効率 2 倍以上の効率を実現できていることがわかっている。従来型においては、前述のように、量子効率 19%が得られていることから、端面発光型において導波路側面を InP 再成長で覆った埋め込み型導波路を用いることで、19%の 2 倍の 38%の量子効率を得られるものと考えている。

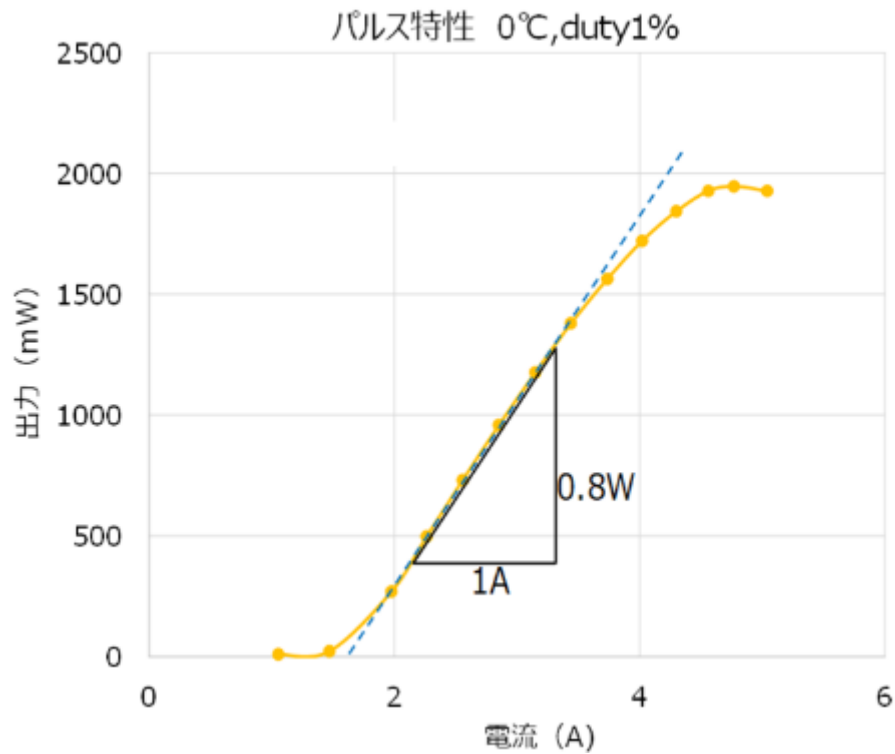


図 3.3.2.51 QCL の電流-光出力測定結果と量子効率測定結果。  
結晶成長における膜厚、組成の精度を高精度化し、設計値に対する差を 5%に抑えた成長条件により作製したウエハを用いてリッジ側面を InP で埋込を行った QCL 素子

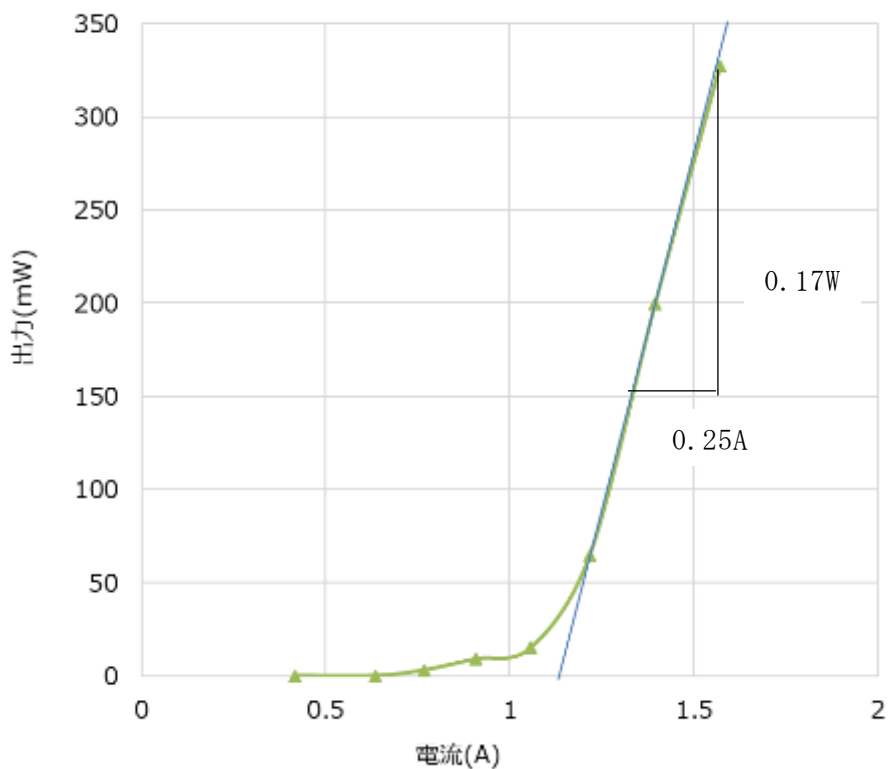


図 3.3.2.52 QCL の電流-光出力測定結果と量子効率測定結果。  
結晶成長における膜厚、組成の精度を高精度化し、設計値に対する差を 5%に抑えた成長条件により作製したウエハを用いてリッジ側面を InP で埋込を行っていない QCL 素子。

#### (5) 高出力評価

大電流を印加しワットクラスの高出力素子の評価において、素子からの発熱が大きくなるため、大容量の電子冷却ユニットを備えた評価系が必要となるため設計し、導入した。最終目標の出力10Wを想定して制御対象電力は50W、制御温度は $-5^{\circ}\text{C}$ から $+25^{\circ}\text{C}$ とした。またQCL素子をマウントするマウントサイズとマウントに対して出射光の方向が水平・垂直に対応できるようにアダプタによって選択できるようにした。冷却はペルチェ素子による電子冷却方式とし冷却面と素子近傍の温度をリアルタイムでロギングできる機能をもっている。表3.3.2.7に仕様を示す。

表 3.3.2.7 高出力評価装置の仕様。

項目	仕様
制御対象電力	50W
冷却方式	電子冷却式 (ペルチェ素子)
温度制御範囲	$-5^{\circ}\text{C}$ ~ $+25^{\circ}\text{C}$
ステージサイズ	50mm 角
光取出し方向	ステージに対し垂直
温度計測	冷却面温度、素子直下温度のロギング機能
素子結露対策	乾燥空気導入 最大 10L/分
電子冷却部放熱方式	水冷式 $15^{\circ}\text{C}$ ただし、チラーは導入設備対象外

導入した装置の冷却部の外観写真を図3.3.2.53に系統図と冷却部の上面図を図3.3.2.54に示す。素子の冷却は熱容量を確保するために80mm角のペルチェ素子を4枚使用している。また、冷却部に乾燥空気を導入し低温での素子の結露を防ぐ構造とした。

約5mm角の抵抗体を冷却ステージに熱伝導シートを介して固定し50Wを印加し冷却性能を検証した。ペルチェ素子のプレート温度を $25^{\circ}\text{C}$ に設定し安定後、 $0^{\circ}\text{C}$ に設定にしたときのデバイス部温度をアダプタ中央直下深さ2mmにある熱電対で測定した。結果を図3.3.2.55に示す。その結果、デバイス部温度は設定温度と $2^{\circ}\text{C}$ の差がある。温度制御開始後約100秒でペルチェ温度は設定温度に達し、安定する。デバイス部温度は $\pm 1^{\circ}\text{C}$ で制御できることを確認した。導入した評価装置を用いて面発光素子の評価を行っていく。



図 3.3.2.53 新規導入した高出力評価装置。

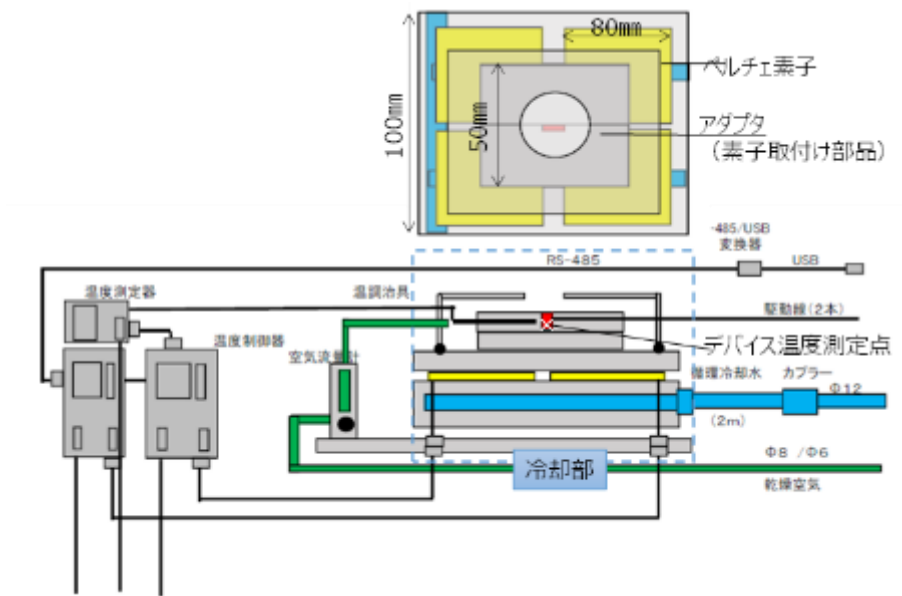


図 3.3.2.54 高出力評価装置 系統図と冷却部上面図。

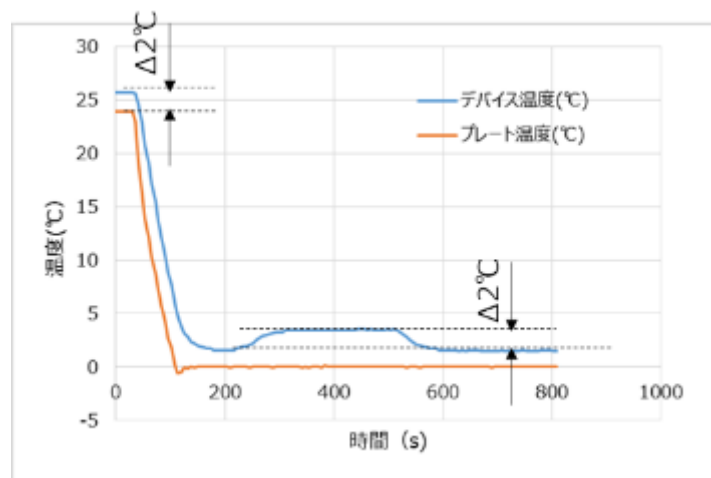


図 3.3.2.55 50W の発熱体による温度制御結果。

(6) 実装条件の検討および評価

QCL 素子进行评估の際、電力を印加することで発生する熱による温度上昇を抑制するために液体窒素およびペルチェ素子などによる冷却素子で冷却する。図 3.3.2.56 に示すように素子はマウントに接合材を介して接合し冷却板に接続される。これまで端面型 QCL 素子の実装ではマウントの材質は素子と熱膨張係数が近い CuW を、素子との接合材には熱伝導率の高い AuSn を用いマウントと素子界面熱抵抗の低減を図った。AuSn (20wt%Sn) の融点は 280℃であることから完全に溶融する 340℃にマウントを加熱した。実装時のマウントと素子の熱膨張差は歪を生じレーザ発振特性を悪化させる可能性がある。面発光素子では高出力化を図るために素子サイズの大型化を図る可能性があり、より顕著に影響が出る可能性もある。実際に試作した PC 面発光 QCL 素子を接合材に AuSn を用い 340℃で接合した結果、図 3.3.2.57 の(a)に示すように正常な電流-電圧特性に対して、図 3.3.2.57 の (b)のように電流に対して電圧が線形特性であり、通常、1V 程度の低電圧領域で、電流値は 10mA 以下であるところ 100mA を超える高い電流値の素子が存在することを確認した。

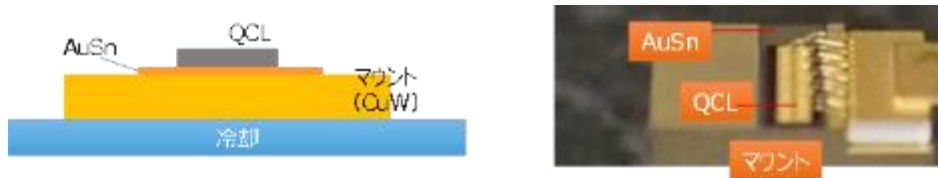


図 3.3.2.56 実装素子の構造断面図。

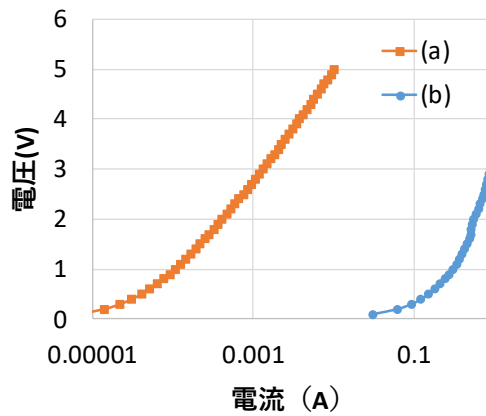


図 3.3.2.57 電流-電圧特性。

これまでの検討からこのような高電流値となる素子では絶縁膜の破壊が生じていると考えられており、さらに絶縁膜の破壊は熱膨張の歪によると推測した。そこで、熱膨張差を低減するために、AuSn と熱伝導率が同程度で融点が高い In を接合材とし実装温度の低温化を図った。さらに、実装全体の熱抵抗低減を図るためにマウント材料を CuW より熱伝導率が約 2 倍高い Cu について検討を実施した。各材料の特性値を表 3.3.2.8 に示す

表 3.3.2.8 材料物性値。

材質	熱伝導率 (W/m・K)	熱膨張率 ( $\times 10^{-6}$ /K)
■ 接合材		
AuSn (20wt%Sn)	57.3 (RT)	17.5 (RT)
In	81.6 (RT)	25.4 (RT)
■ マウント		
CuW (20%-80%)	200 (RT~120°C)	7.9 (100°C)
Cu	394 (RT~120°C)	17.1 (100°C)

接合材 In の評価は CuW (20%-80%) のマウントを用いた。マウントにメタルマスクを介して In を蒸着し厚さ 5mm の In 薄膜を形成した。実装はフラックスを用い 150°Cにて接合を行った。図 3.3.2.58 に素子長 4mm の端面発光型の接合材に AuSn と In を用いた熱抵抗-熱容量測定結果と図 3.3.2.59 電流-電圧特性を示す。結果、In 接合による熱抵抗の増加はなく、電流-電圧特性の変化もなく In による実装が適用できることが分かった。

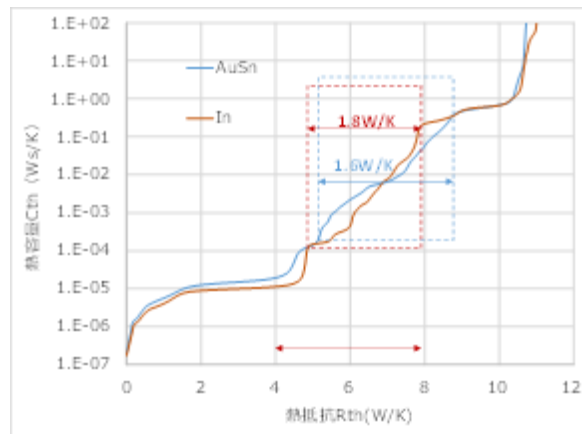


図 3.3.2.58 熱抵抗測定結果。

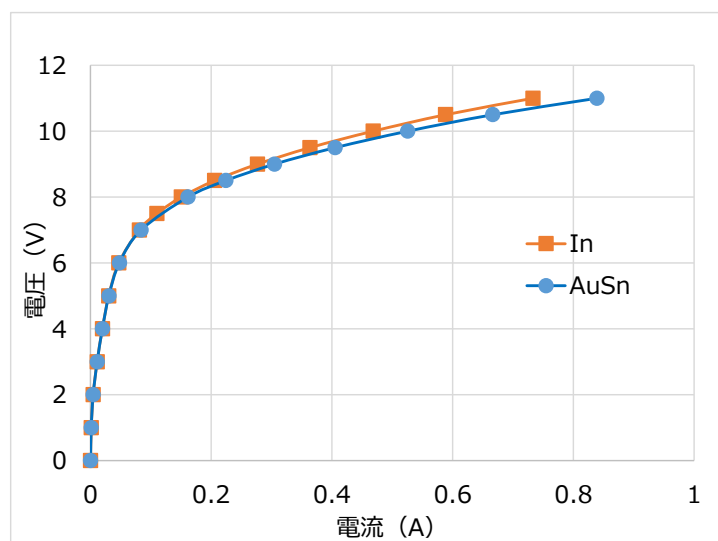


図 3.3.2.59 電流-電圧特性結果 0°C, duty 3%。

マウント材料について CuW より熱伝導率が高い Cu について実装への適用評価を行った。素子長 4mm、6mm の端面発光型素子を用い、材質 Cu のマウントにそれぞれに接合材として AuSn、In を蒸着し接合可否を評価した。実装温度はそれぞれ 340°C、150°C である。外観状態で判断した接合結果を表 3.3.2.9 に示す。Cu マウントに AuSn 材を用いて長い 6mm 素子を実装すると剥離することが分かった。Cu は CuW より熱膨張係数が 3 倍程度高いため加熱温度が高い AuSn 接合では素子と Cu との膨張差から固化する際に歪が発生することに起因するものと考えられる。In 材による低温接合を適用することで Cu 材のマウントも使用できることが分かった。

表 3.3.2.9 接合可否結果。

素子長	AuSn 接合		In 接合	
	Cu マウント	CuW マウント	Cu マウント	CuW マウント
4mm	○	○	○	○
6mm	× (素子剥離)	○	○	○

### (7) 素子の動作安定性と信頼性検討

導入した大容量電子冷却ユニットを活用することで熱歪等によるビーム品質変化を評価する検討を以下のように進めた。まず、実験に先立ち、NIMS により行われた有限要素法による構造解析について検討を行った。図 3.3.2.60 のような円柱状モデルに関して熱による変形量、屈折率変化の見積もりを行った。また表 3.3.2.10 には計算の際に用いた熱膨張係数の値を示した。変形量の計算結果を図 3.3.2.61 に示した。温度が 100K 上昇した際の変形量をコンター図で示したものである。青い部分がマイナスの変位を表している。最も大きな変形で ±2E-4 程度の変形率となっている。さらに表 3.3.2.11 にある屈折率の温度依存性のパラメータ (dn/dt/n) を用いて 100K 温度が上昇した際の屈折率変化を求めた。結果を表 3.3.2.12 に示した。変形量、屈折率の温度依存性より求めた PC のサイズに影響する光路長の変化は 100K で 0.57% との結果となった。これは波長に換算して 25nm に相当し、100K 温度が上昇すると、構造の設計波長が長波長側に 25nm 変化することを意味する。今回、大容量電子冷却ユニットを活用、および液体窒素冷却して利得波長の温度依存性を測定した結果を図 3.3.2.62 に示した。100K 変化した場合利得波長は、長波長側へ 50nm 変化する。以上より温度変化によって生じる変形に伴う光路長の変化、屈折率変化による光路長の変化、利得波長の変化は、温度上昇によりいずれも長波長側へ変化し、その大きさは利得波長の方が大きいことがわかった。このように NIMS による温度による構造的変化の検討と今回の利得波長の温度変化の検討より、理想的な設計は利得波長幅を大きくして、温度変化しても、利得

幅の中に PC の光学的な周期がとどまるような設計が望ましいことがわかった。

表 3.3.2.10 構成する材料の熱膨張係数の値。

材料	熱膨張係数[1/K]
InP(capping層)	4.56E-6
InGaAs(PC層)	5.748E-6
MQW	5.3146E-6

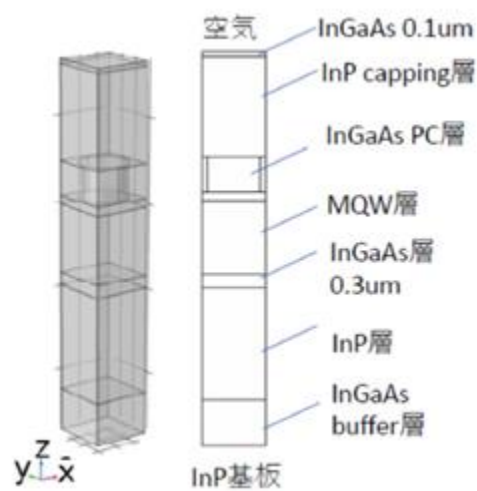


図 3.3.2.60 計算に用いた構造。

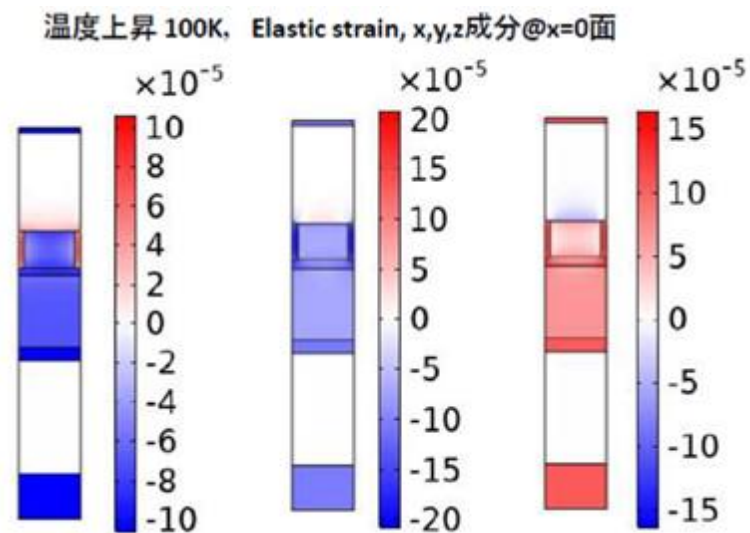


図 3.3.2.61 温度上昇 100K の場合の変形量。



表 3.3.2.11 100K 温度上昇した際の屈折率の温度変化係数と屈折率の変化。

	(dn/dT)/n [1/K]		温度上昇前 屈折率	100K温度 上昇時 屈折率
InP	2.7E-5	InP	3.089	3.09734
GaAs	4.5E-5	In <sub>0.532</sub> GaAs	3.336	3.3549
AlAs	4.6E-5	MQW層	3.263	3.28149
InAs	6.7E-5			

さらに信頼性評価装置を導入した。本装置の外観は図 3.3.2.63 に示した。測定結果を図 3.3.2.64 に示した。このように駆動電流・電圧のいずれかを固定し、設定した後、光出力に時間変化を取得することができた。この信頼性評価装置により長時間駆動を行い、素子を劣化する状態まで駆動することで、素子構造の電氣的に絶縁性の弱い箇所、熱歪による変形による影響、光による破壊現象等の素子劣化を加速試験することができる。さらに破壊モードとメカニズムの解析を原子間力顕微鏡とケルビンプローブ顕微鏡により行うことができる。本装置の導入と立ち上げを行い、図 3.3.2.65 に示すデータが取得できることを確認できた。

表 3.3.2.12 変形量、屈折率の温度依存性より求めた PC の単位胞に対応する波長の変化。

モデル	熱膨張 変形 無	熱膨張 変形 有	熱膨張 変形と n(T) 有
TM,Eモード 波長(um)	4.391397	4.39339 変化0.045%	4.41636 変化0.57%

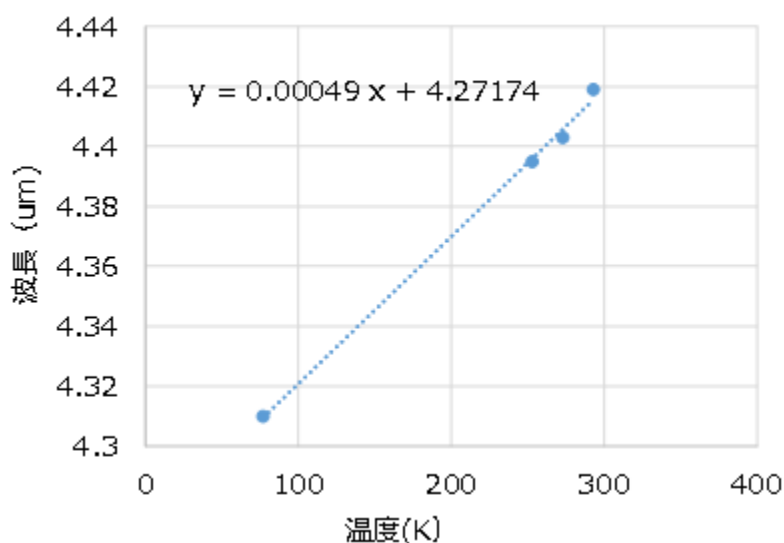
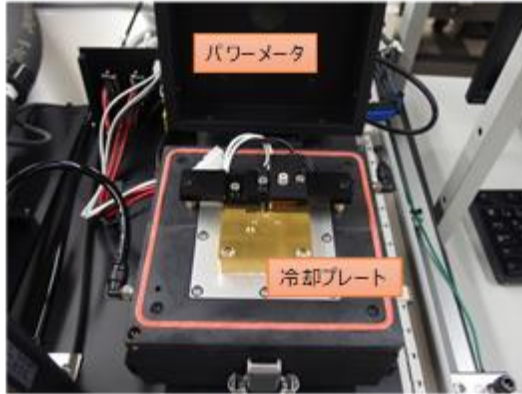


図 3.3.2.62 利得波長の温度依存性の図。

素子ハウジング



素子ハウジング

図 3.3.2.63 信頼性試験装置の外観。

経過時間特性 15°C、CW

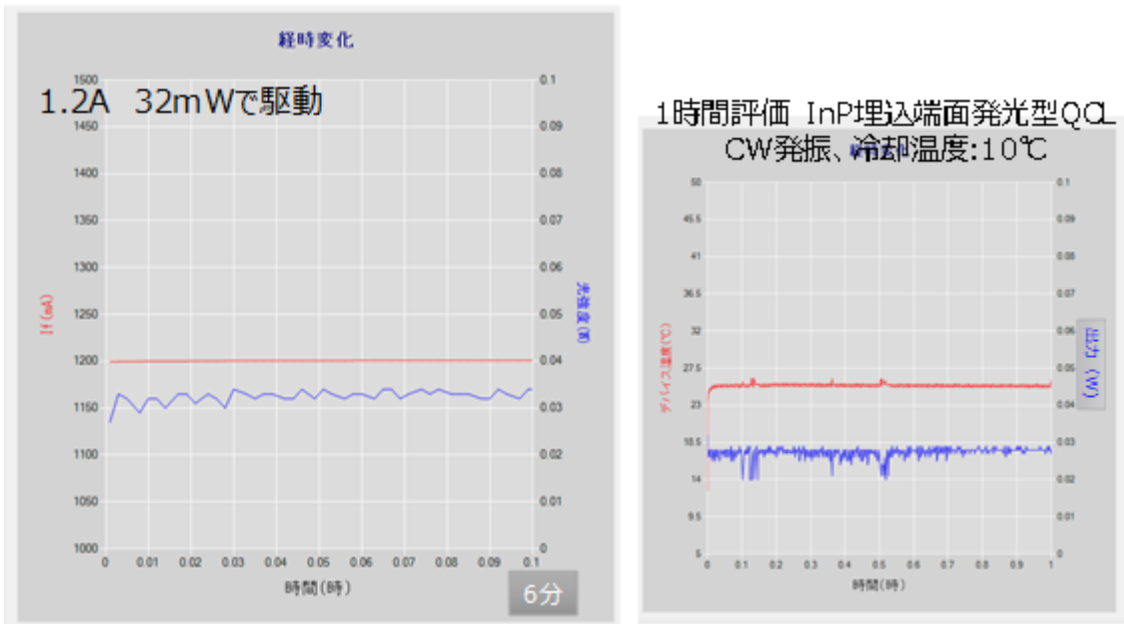


図 3.3.2.64 信頼性試験装置により取得した光出力、電流の時間変化。

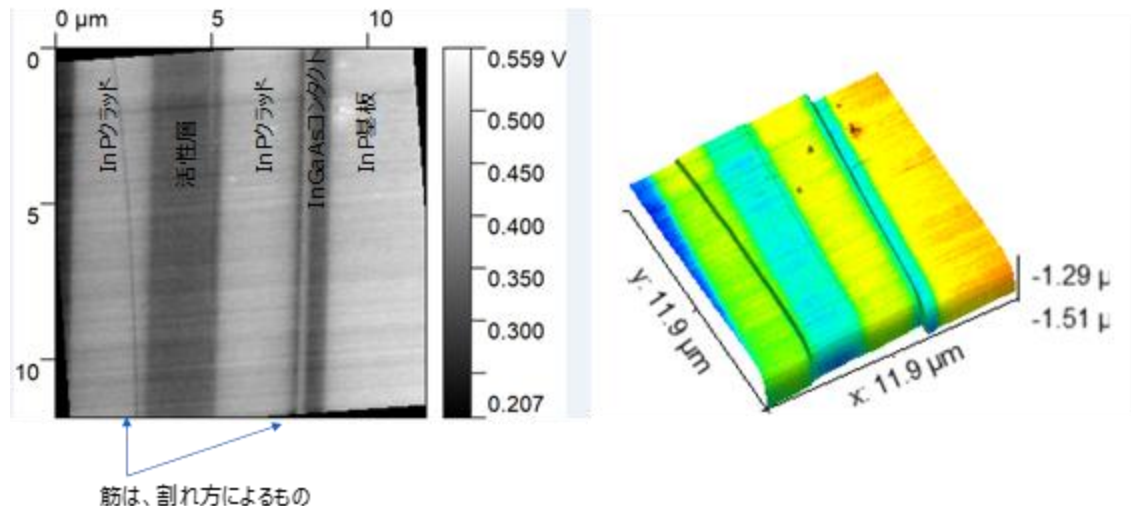


図 3.3.2.65 原子間力顕微鏡とケルビンプローブ顕微鏡により取得した素子断面の表面電位像（左）と凹凸像（右）。

### 3.3.2.4 QCL 素子の熱特性検討と評価

一般に QCL は駆動電圧が 10 数 V であり、電力光変換効率も数%台である。従ってワットクラスの高出力を目的として数 A 程度の大電流を投入すると、発光層の発熱量は数十ワットにもなる。このため、ヒートシンクに十分な冷却能力を持たせると共に、発熱源である発光層からヒートシンクに速やかに放熱できる事が、素子を安定して駆動させるために重要になる。これには高放熱性を有する QCL 素子構造の設計・実現と、熱抵抗係数を低減する高放熱実装技術の確立とが必要になる。加えてそうした放熱効果の定量評価を行う必要も有る。一方で、最終的な素子の全体設計を進めるにあたってはこうした放熱性に関する要素検討と並行して、放熱に必要な埋め込み構造が光閉じ込めや光取出し効率にどのような影響を及ぼすのかを理解しておく必要がある。この目的で、従来手法では困難である金属材料を含む電磁界シミュレーション手法を開発した。

#### (1) QCL の発熱とリッジ構造の放熱性

図 3.3.2.66 に、端面発光型 QCL の断面構造の模式図を示す。前述のように素子駆動時に発熱源になるのは活性層である。このため発光層直近の放熱経路を高放熱材料で形成できる事が望ましい。一般的なリッジ導波路型の端面発光型 QCL の場合、先に節で述べたようにリッジ導波路構造はドライエッチングによってリッジ脇をエッチングする事で形成される。この時リッジ脇（トレンチ）は雰囲気（多くの場合、空気）で満たされており熱的に遮断されているため、放熱経路にはなりえない。図 3.2.10 に示した放熱性検討用の素子の断面構造模式図を改めて図 3.2.66 に示す。図 3.2.66 右に示すように、このリッジ脇のトレンチ部分を高放熱材料で埋め込むことで放熱経路を作り、素子の放熱性を向上させることができる。熱伝導性の良い高放熱材料としては Au や Cu などの金属が想定される[3.2.6]。熱伝導率を比較すると Au が 315W/mK、Cu が 398W/mK であり、いずれも高い数値である。一方でそれらの材料でトレンチを埋め込む場合には通電不良を防ぐため SiO<sub>2</sub> や SiN などの絶縁膜を形成する必要があり、異種材料の界面数が増加する事で界面の熱抵抗成分が増加する懸念もある。このため、金属ではなく InP:Fe などの絶縁性の半導体材料で埋め込む手法も有望である[3.2.7]。InP の熱伝導率は 80W/mK であるため金属材料に劣るものの、熱伝導率の悪い SiO<sub>2</sub> などの絶縁膜を挟む必要が無く、また埋め込み再成長手法を用いる事で空隙なくトレンチを埋め込むことが可能である。これらから最適化を経た後にどの手法が最も放熱性に優れるかを比較検証した。

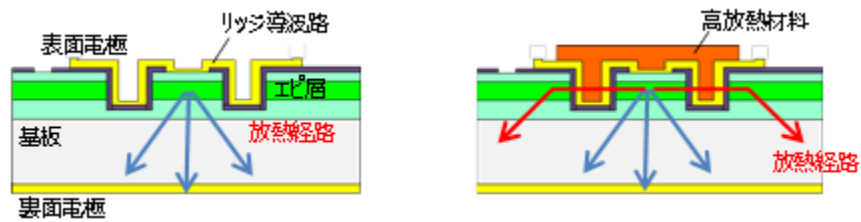


図 3.3.2.66 リッジ型 QCL の断面構造模式図 (矢印は放熱経路)。  
 左図：トレンチ部分が雰囲気 右図：トレンチ部分が効能熱材料

## (2) Au 埋め込み、Cu 埋め込み検討

トレンチ部分を金属で埋め込むにあたってはメッキ手法を用いる。トレンチ部分を埋め込むことを目的としているので、メッキ膜厚はおよそ  $10\mu\text{m}$  であり、こうした厚膜の金属メッキには一般的に電界メッキが利用される。前述したようにリッジ導波路部分に大きな高低差が存在し、かつ各箇所電位も均等になりづらい QCL 素子において電界金属メッキを均一に行うために、素子の電極配置などを最適化した。実際のメッキに際しては、メッキノウハウを持つメッキ専門メーカーへの外注を活用する事で、初期検討を加速した。また並行して、PC やリッジ型 QCL への微細メッキ加工を可能にするべく、メッキ装置を導入し、条件策定などを進めた。図 3.3.2.67(a) に導入したメッキ装置と精密メッキ電源の利用の様子を示す。また図 3.3.2.67(b) に、メッキ膜厚を最適化する事でトレンチ部分を Au メッキで埋め込むことに成功した素子の端面 SEM 観察写真を示す。埋め込み構造作製手法の目途が立った事で、Au メッキ構造は放熱性の詳細な評価を行う事が可能になった。Cu メッキに関してはメッキのシード層材料や、膜応力の把握など、基礎的な要素検討が必要である。実際の素子に適用する前準備として、Si 基板上に Ti/Cu をシード層として成膜し Cu メッキの成膜レート確認や応力確認を行った。

図 3.3.2.67(c) に Cu メッキを行った Si 基板のメッキ前後のウエハ反り量を示す。Ti/Cu をシード層にすることで Cu メッキが可能なる事が確認できた。一方でウエハの反り量から強い膜応力が残留している事がわかった。このため実素子に適用する際には、応力による絶縁膜の破れなどの不良発生が懸念されると分かった。

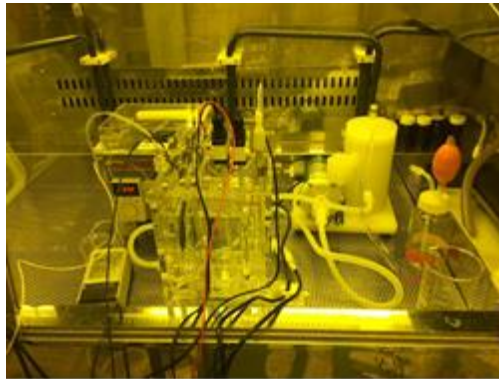


図 3.3.2.67(a) メッキ装置と精密メッキ電源の使用状況。

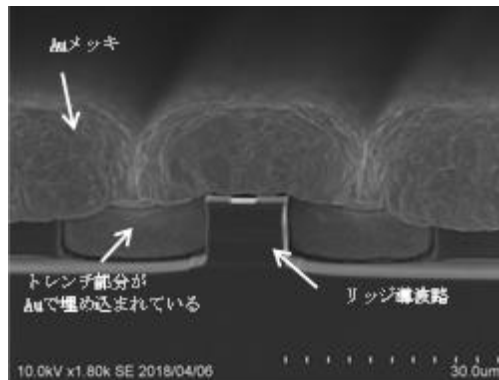


図 3.3.2.67(b) 厚膜 Au メッキを施した素子の端面 SEM 写真。トレンチ部分を Au で埋め込むことに成功した。

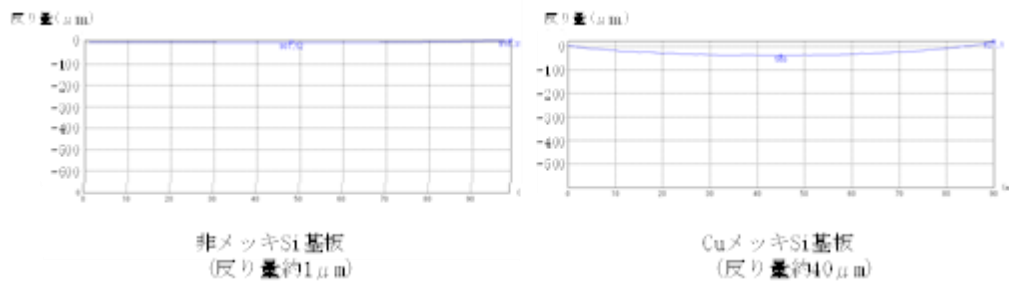


図 3.3.2.67 (c) 厚膜 Cu メッキ前後の Si 基板ウエハ反り量。

### (3) InP 埋め込み検討

InP などの半導体でトレンチを埋め込む構造も高放熱素子構造の候補である。リッジ導波構造を作製した後、周囲を空隙なく InP などの QCL 材料と親和性の高い材料で埋め込む手法である。この手法には一般的に MOCVD 法を用いる領域選択的結晶成長が利用される。このためこの構造の初期検討に際しては、既に装置とノウハウを保有しているメーカーへの外注を利用した。リッジ導波路構造を作製済みの QCL 素子に、MOCVD 法によって絶縁性 InP:Fe と電流注入用 InGaAs:Si 層を再成長した結果を、図 3.3.2.68 に示す。黄色の補助線が元々のリッジ導波路構造の箇所である。再成長された InP:Fe と InGaAs:Si によってリッジの周囲が完全に埋め込まれている事がわかる。一方で、リッジ構造の最外周は矩形ではなくひし形になっており、放熱経路という目線では空隙箇所が存在していることも分かる。これは再成長の膜厚制御とリッジ高さの最適化が不十分だっ

たことが原因の1つであることがわかった。

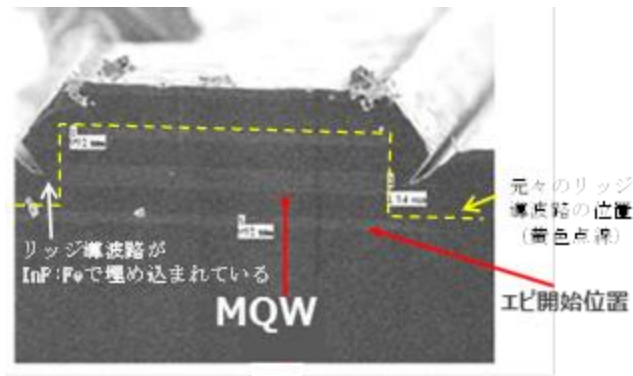
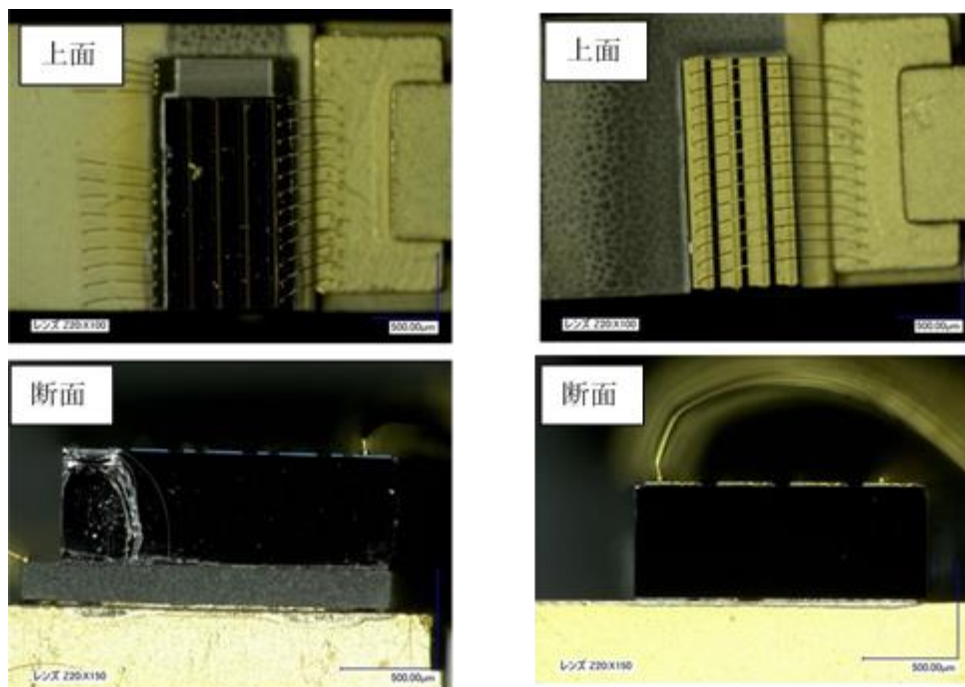


図 3.3.2.68 再成長 InP:Fe によって埋め込んだ素子の断面 SEM 写真。

#### (4) 高空間分解能なサーモビュア温度計による温度分布の評価

既に説明したように、QCL 素子を動作させた際に発生する熱に起因する温度上昇は出力の低下を招く。より高い温度で動作させるために QCL チップ自体および実装後の素子としての熱抵抗を低減する必要がある。熱抵抗改善前後の温度分布状態を可視化することを目的に今回、高空間分解能サーモビュアを導入した。空間分解能は  $10\mu\text{m}$  で、温度測定を実現できる。

1つの例として3.2.3章で説明した QCL 素子のリッジ部両サイドの谷部分を Au による埋込みの有る素子と無い素子で温度測定を行った。温度測定を行った素子の外観写真を図 3.3.2.69 に示す。図のそれぞれ①が埋込み無、②が埋込み有の素子である。



① リッジ両サイド埋込み無                      ② リッジ両サイド Au 埋込み有

図 3.3.2.69 温度測定に適用した素子外観写真。

温度測定はそれぞれ断面方向から実施した。図 3.3.2.70 に温度測定系の写真を示す。また、図 3.3.2.70 に示す素子外觀図のステージを 12℃に保持した状態におけるサーモビュー像を図 3.3.2.71 に示す。サーモビューの放射率の設定はチップ断面部が素子を固定したステージ温度 12℃とほぼ同じになるように 0.67 とした。ステージは Au 膜がコートされている。そのため放射率が低く温度測定ができていない。黒体塗料を塗布するなど温度の測定方法で改善が期待できる。

以上のように高空間分解能なサーモビュー温度計による温度分布の評価が可能であることがわかった。

繰返し 1MHz のパルス電力を投入した。パルス幅をパラメータとし投入電力量を変え、その時の温度分布を測定した。図 3.3.2.72 はほぼ同一の 7W の投入電力での埋め込み有無による温度分布を測定した結果である。最高温度になる位置がチップのリッジ部（活性層）として投入電力と温度測定値をプロットしたグラフを図 3.3.2.73 に示す。埋込み有の素子の方が投入電力に対して発熱温度が低いことがわかる。グラフの線形近似曲線から熱抵抗値は埋込み無が 13.4K/W、埋込み有が 10.7K/W であることがわかった。温度測定精度向上を図ることと東京工科大学が導入する熱抵抗測定装置による測定値と合わせ、測定の精度高め、熱抵抗低減に向けた施策にシステムを適用した。

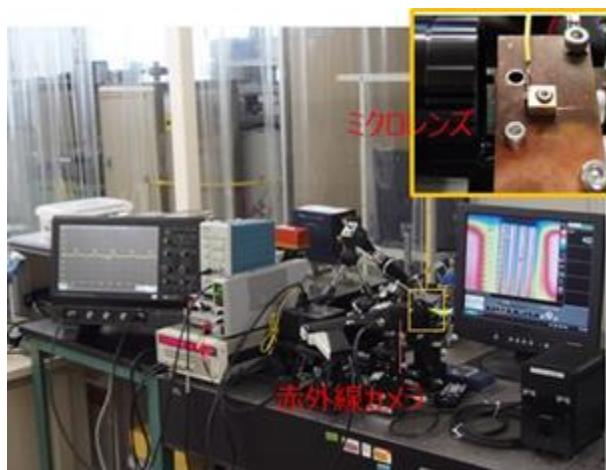
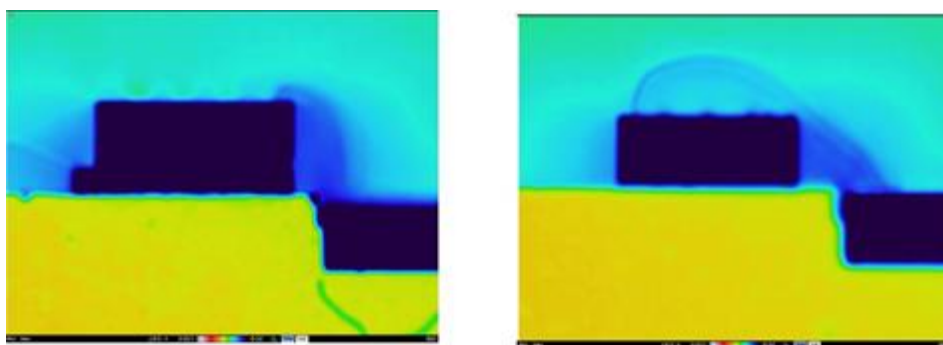


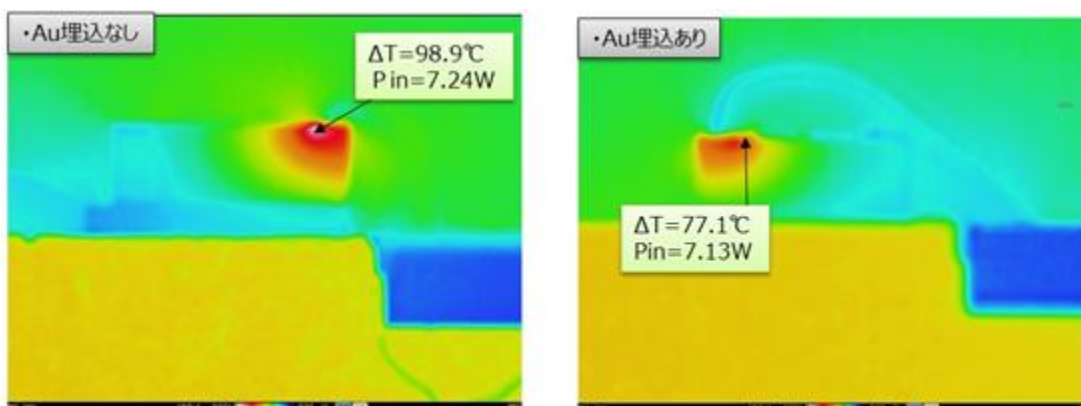
図 3.3.2.70 温度測定系の様子。



① リッジ両サイド埋込み無

② リッジ両サイド Au 埋込み有

図 3.3.2.71 QCL 素子の断面方向から観測したサーモビュー出力像。



① リッジ両サイド Au 埋込無 ② リッジ両サイド Au 埋込有  
 図 3.3.2.72 サーマビュアによる温度測定結果。

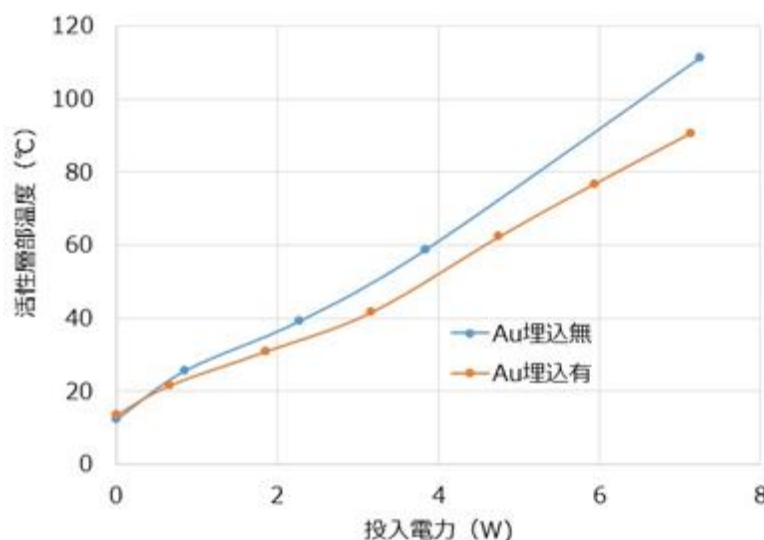


図 3.3.2.73 サーマビュアによる QCL への投入電力と活性層温度上昇測定結果。

#### (5) 高放熱構造の評価

リッジ側壁を Au で埋め込んだ高放熱構造に対し、素子断面の温度を高分解能サーモビュア温度計で測定し、Au 埋込素子の放熱特性がすぐれていることを示した。サーモビュアを使用し、各材料で埋め込まれた QCL の熱的評価を実施した。

図 3.3.2.74 に評価系の概念図を示す。リッジ側壁を Au、Cu で埋め込んだ素子と埋め込んでいない素子をマウントと電子冷却素子で構成されるヒートシンクに接続し、サーモビュアによる素子断面温度の評価と、東京工科大学が導入した熱抵抗測定器：T3Ster による熱抵抗評価を行った。測定には共振器長  $L=4\text{mm}$  の素子を用いた。



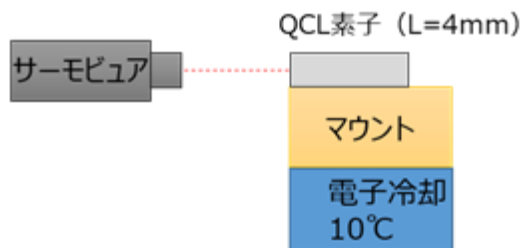


図 3.3.2.74 サーマビュアによる素子断面の温度測定系。

図3.3.2.75にサーモビュアによって、リッジ側壁を埋め込んでいない素子の断面を観測した画像例を示す。マウントの温度は電子冷却素子によって10°Cに制御した。図3.3.2.75 左図は電力を投入していない状態、図3.3.2.75右図は電力を投入した状態である。電力を投入することによる温度上昇分は、図中の点Aの温度とエリアBにおける最大温度との差で評価した。このような評価手法で、リッジ側壁をAu、Cuで埋め込んだ素子と埋め込んでいない素子の、駆動中の温度上昇を比較評価した。

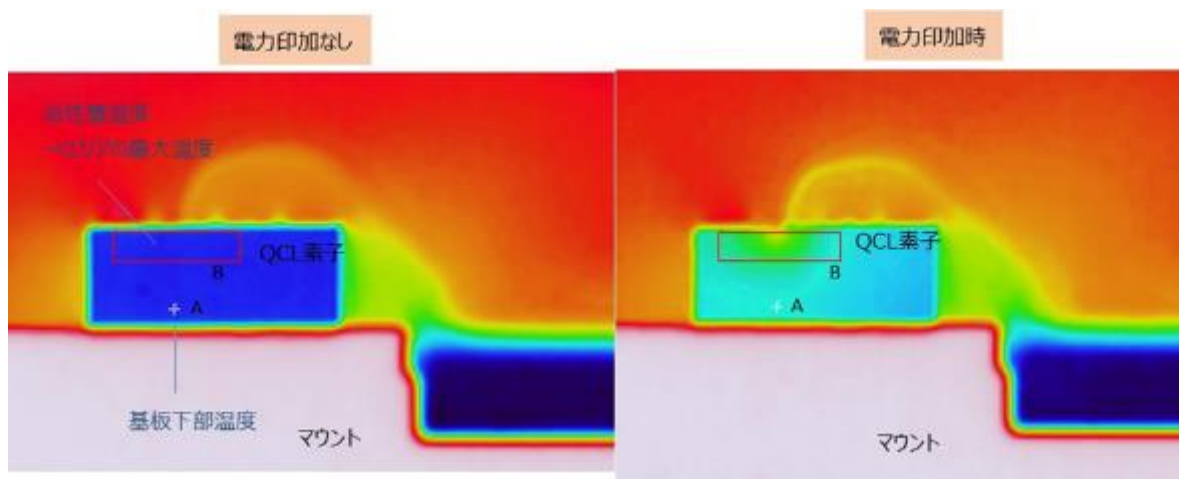


図 3.3.2.75 サーマビュアに素子断面の温度測定結果画像。

図3.3.2.76は、各素子構造において投入電力に対する温度上昇をプロットした結果である。結果から、リッジ側壁を埋め込んでいない素子はAuとCuを埋め込んだ素子と比較し温度上昇が大きいことが分かった。また、AuとCuの材料の相違による温度差は少ない。これは、リッジ側壁を金属材料で埋め込むと熱伝達経路ができるために温度上昇が抑制されるが、AuとCuの熱伝導率が大きく異なるため、このような結果になったと考えられる。この結果は、東京工科大学における熱解析シミュレーションの結果と傾向が一致することが確認できている。

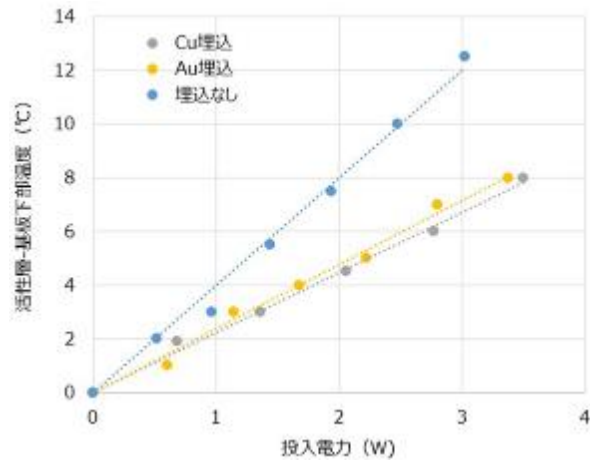


図3.3.2.76 投入電力と素子温度上昇の関係。

さらに同じ3つの構造に対し、熱抵抗測定装置を用いて熱抵抗と熱容量の関係の評価を行った。測定した構造関数の結果を、横軸を熱抵抗値、縦軸を熱容量として図3.3.2.77に示す。QCLチップの熱抵抗値は埋込なし6.8K/W、Cu埋込5.5K/W、Au埋込4.8K/Wであった。AuとCuは同程度で、埋込がない構造が最も熱抵抗が高い結果となった。この結果は、投入電力と素子温度上昇の関係と傾向が一致する。

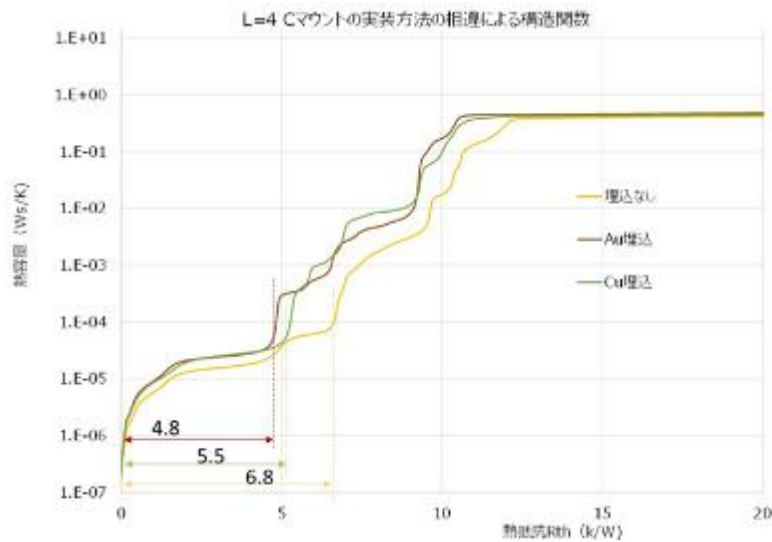


図 3.3.2.77 素子構造に対する熱抵抗と熱容量の関係。

次に、熱的な評価の空間分解能を向上する手法を検討し、測定を行った。前述のサーモビューアによる評価では空間分解能が $20\mu\text{m}$ 程度だが、熱抵抗測定装置では素子より外側の熱伝導率が大きく変化する領域の熱抵抗が測定可能である。リッジ構造近傍数 $\mu\text{m}$ 内での放熱のふるまいを比較評価する目的で、リッジ側壁界面熱抵抗の影響を評価する手法を検討した。

素子に $1\mu\text{s}$ のパルス電流を印加したときの光出力応答の微細変化を測定した。図3.3.2.78に測定系の概念図を示す。マウントに接続された素子を電子冷却し、パルス電源にてパルス電流を印加する。電流プローブで電流パルス波形を測定し、MCTで検知した光出力をオシロスコープによって光波形として取得した。取得した光波形の一例を図3.3.2.79に示す。素子は端面発光型でリッジ側壁部に放熱用の埋込がない素子である。印加パルス電流の立ち上がりから少し遅れてレーザ発振が観測される。これは発振閾値電流まで注入されたのちに、レーザ光が出力されるためである。パルス幅の時間内で、発熱による発光層の温度上昇によって光出力が若干低下する様子が観察できる。印加パルス電流がオフになるとレーザ発振が停止し、光出力は低下する。この時、パルス電流がオンである時間内における最大光出力から、パルス時間内にどの程度光出力が低下しているかを傾きとして評価することで、発光部の温度上昇に伴う光出力の変化を測定することができる。これにより発光領域近傍の放熱性の良さを評価することが可能になる。リッジ側壁の埋込材料を埋込なし、Au、Cu、InPの4種類の素子について、光波形の時間に対する傾きを評価した。

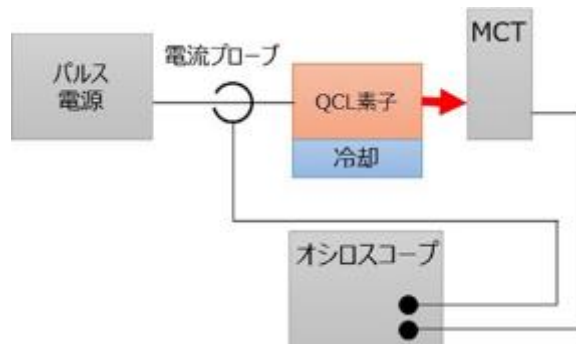


図 3. 3. 2. 78 電流パルスと光波形の測定系。

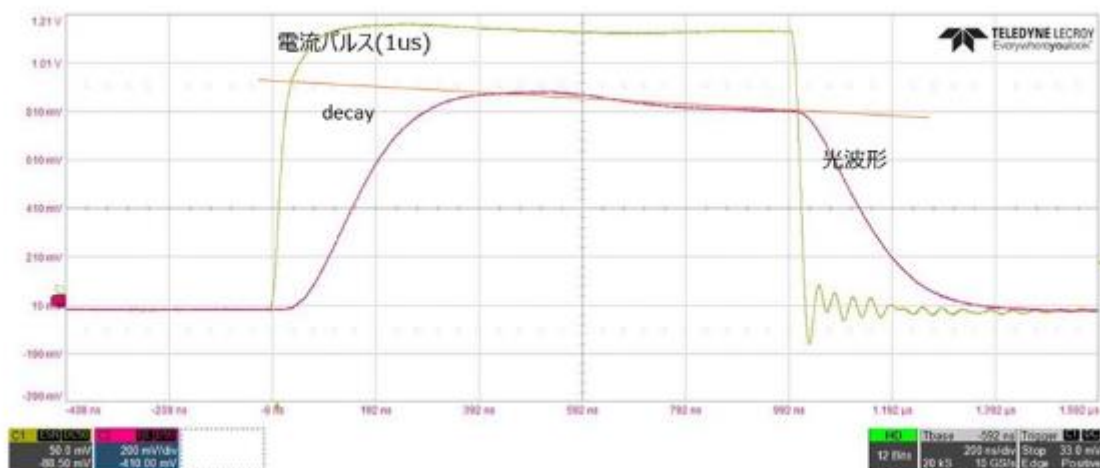


図 3. 3. 2. 79 電流パルス波形と光波形の測定結果。

図3.3.2.80に各素子において、素子温度を $0^{\circ}\text{C}$ に制御し、十分出力が得られる発振領域で発熱量を一定となる $1.4\text{A}$ の電流パルスを選択し印加した。この条件での光出力低下の傾きを測定した

結果を示す。傾きが大きい方が、電流パルス印加の経過時間に対する出力低下率が大きく、埋込なし、Au、Cu、InPの順で大きい結果となった。この結果は発光部近傍において、この順に熱抵抗が大きいことを示している。図3.3.2.76、図3.3.2.77のサーモビュア、熱抵抗測定結果と傾向が一致しており、素子近傍での熱抵抗が素子の温度上昇の主要因になっていることを示している。さらに、InP埋込は、傾き値がAu、Cuの1/4程度であることから放熱性が大きく優れていることが分かった。AuとCu埋込はリッジ導波路構造との間にSiO<sub>2</sub>の絶縁膜を介している。このため界面での熱抵抗が存在する、一方、InP埋込みではInP同士の再成長界面であるため、原子オーダーでの結合がなされており、界面熱抵抗は低いと考えられる。界面熱抵抗の大きさがこのような結果になったと考える。

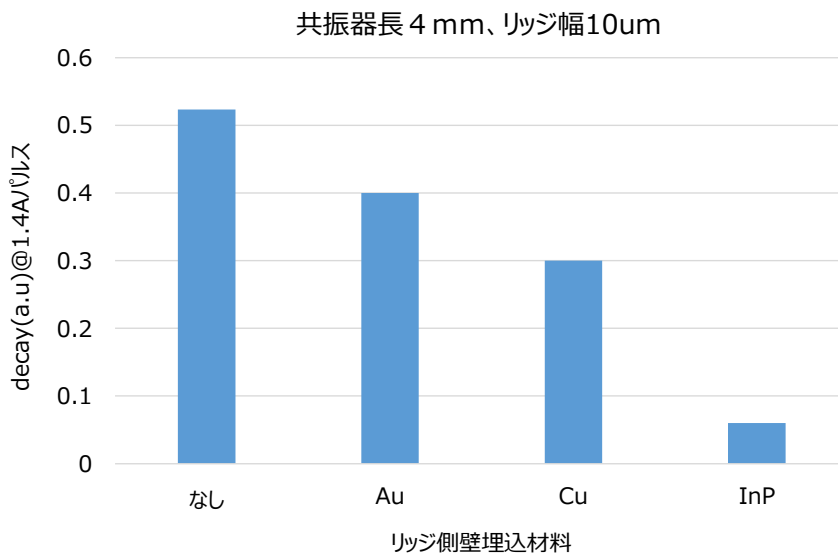


図 3.3.2.80 リッジ側壁埋込材料と光出力パルスの傾きの関係。

次に埋込材料が素子特性に与える影響を定量的に評価するため、量子効率の共振器依存性（式3.2.3）より導波路損失の評価を行った[3.2.8]。

$$\frac{1}{\eta_d} = \frac{1}{\eta_i} + \alpha_i \eta_i \ln\left(\frac{1}{R}\right)L \quad \dots \text{式3.2.3}$$

ここで  $\eta_d$  はスロープ効率から求められる外部量子効率、 $\eta_i$  は内部量子効率、 $\alpha_i$  は内部損出、 $R$  は端面反射率、 $L$  は共振器長を示す。端面反射率は30%とした。

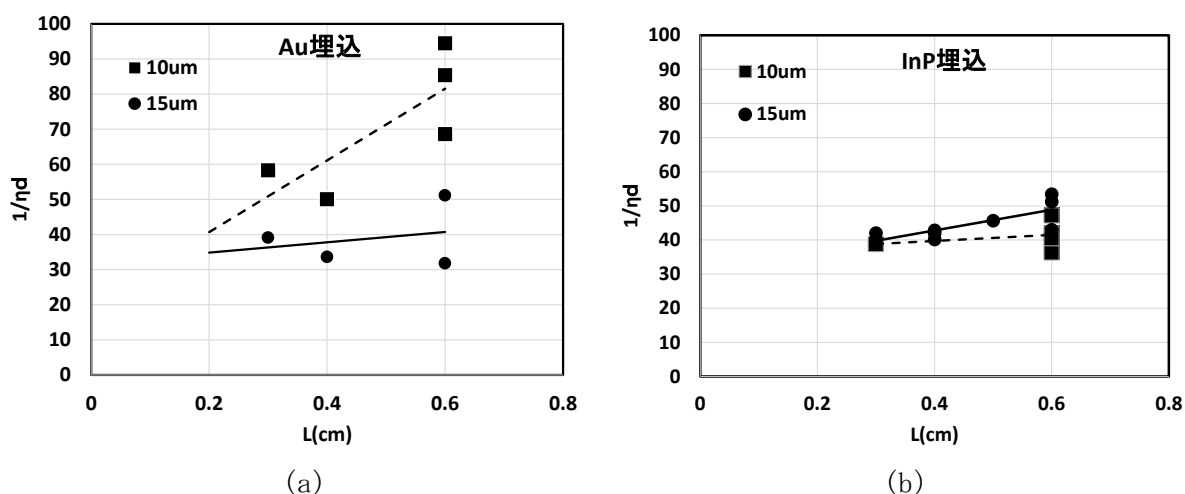


図 3.3.2.81 外部量子効率の共振器長依存性、(a)Au 埋込構造、(b)InP 埋込構造。

InP埋込素子とAu埋込素子について、リッジ幅 $10\mu\text{m}$ と $15\mu\text{m}$ 、共振器長を2、3、4、6mmとした素子の電流-出力特性を測定し、導波路損失を算出した。図3.3.2.81に測定結果、図3.3.2.82に得られた内部量子効率と内部損失の値を示した。素子を $0^\circ\text{C}$ に制御した状態で測定した電流-出力特性から、発振効率と損失を算出した。発振効率は埋込材料による差異は小さい。一方、損失はAu埋込においてリッジ幅が狭くなることで急激に高くなることがわかった。

さらに実装を含めたモジュール全体の熱抵抗の低減を目的とした検討を行った。素子とヒートシンクとの界面熱抵抗を低減させる目的で高熱伝導材を用いた熱拡散増強による手法を検討した。図3.3.2.83に素子の実装状態の断面構造図と、熱抵抗と熱容量の等価回路を示す。放熱特性を向上させるためには、一般的に、構成要素を減らし界面抵抗を低減することで熱抵抗を下げる。本検討では、サブマウントとして高熱伝導材料を挿入することで熱拡散を強め、実装素子全体として熱抵抗低減を図ることを検討した。3.3.2章に記載されているように、事前に東京工科大学にてサブマウントの熱伝導率をパラメータとした熱解析シミュレーションを行った結果、高熱伝導率材料は熱拡散に有効であることを確認できており、これを実験で確認した。

熱拡散材として高熱伝導 $2000\text{ (W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$ の多結晶ダイヤモンドを用いた。ダイヤモンドサブマウントの両面は図3.3.2.84に示すようにTiやPtなどの下地膜を介して接合材としてAuSn膜を蒸着した。

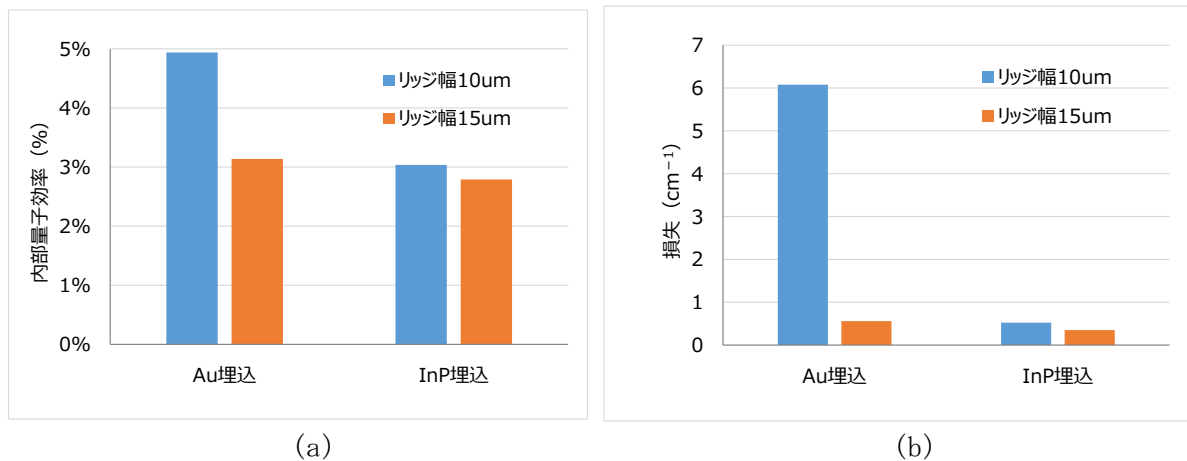


図3.3.2.82 埋込材料と内部量子効率、内部損失の値。  
(a) 内部量子効率 (b) 損失

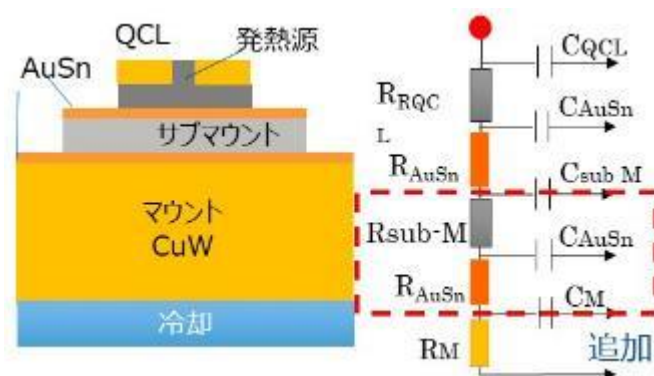


図3.3.2.83 実装素子の構造断面図と熱抵抗・熱容量による等価回路。

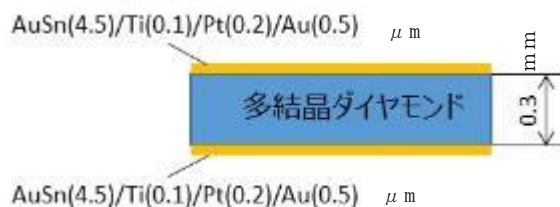


図 3. 3. 2. 84 ダイヤモンドサブマウント。

図3. 3. 2. 85に示すように実装素子を12℃に固定し、ダイヤモンドサブマウントを挿入した場合としない場合の活性層端面部をサーモビュア測定した。

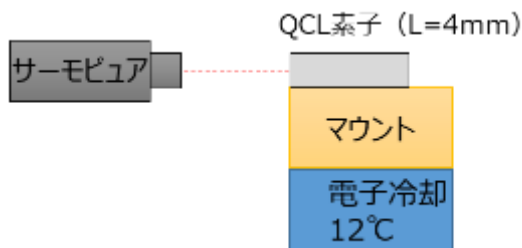


図 3. 3. 2. 85 活性層端面部の温度測定系。

投入電力を3.4Wとした場合のサーモビュアの測定温度分布を図3. 3. 2. 86に、投入電力と活性層端面温度の関係を図3. 3. 2. 87に示す。ダイヤモンドサブマウントを挿入することで、3.4W投入時の活性層温度が、約42℃から36℃へと、約13%低減していることがわかる。

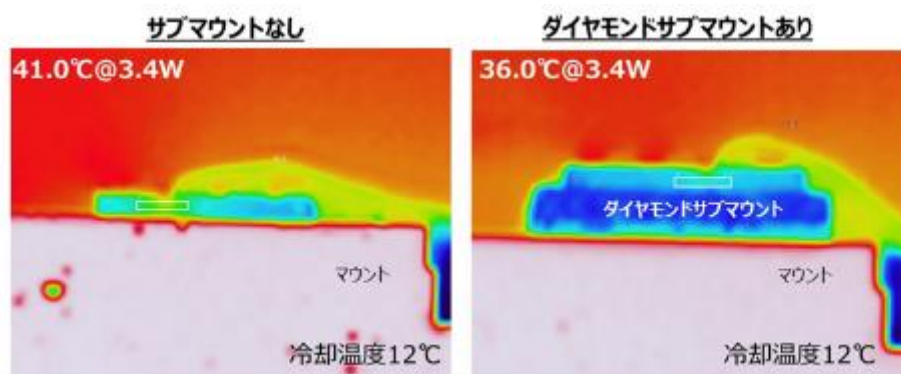


図 3. 3. 2. 86 サーグラフィーによる温度測定結果。

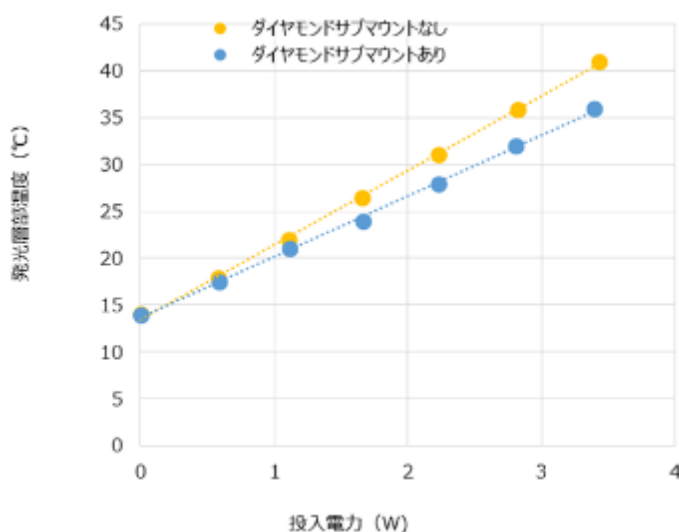


図 3. 3. 2. 87 投入電力と活性層端面温度の関係。

ダイヤモンドサブマウントの有無について、熱抵抗測定装置を使用し測定した結果を図3.3.2.88に示す。素子とマウント間の熱抵抗がダイヤモンドサブマウントを用いることで5.0K/Wから2.5K/Wへと、約50%低減していることが確認できた。この値は、実装素子全体の熱抵抗値で評価すれば約25%の低減に相当する。従って、ダイヤモンドサブマウントを使用することで、実装素子全体の熱抵抗係数を低減できることが分かった。

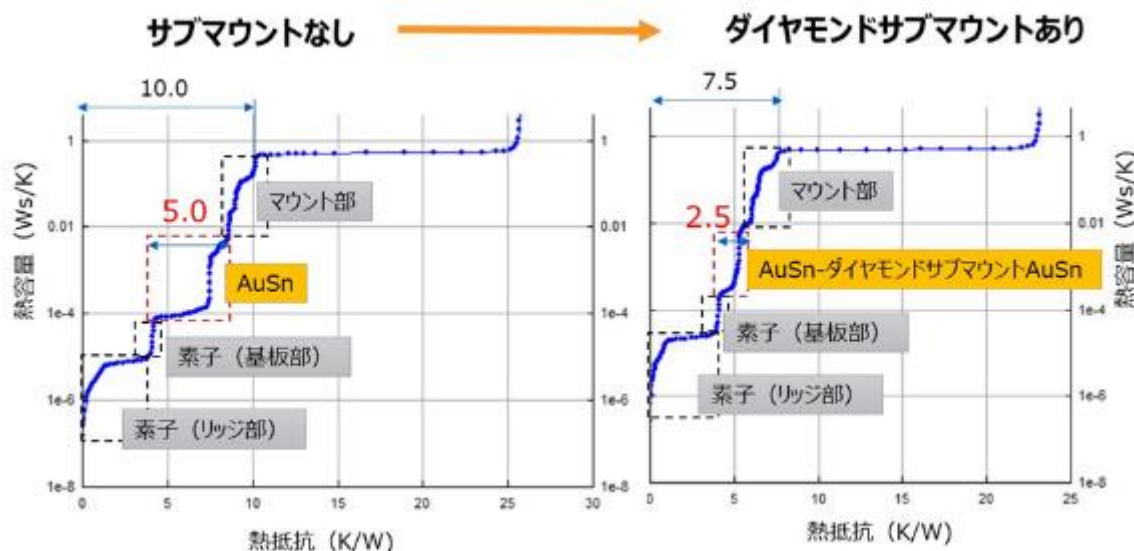


図 3.3.2.88 熱抵抗測定結果。

以上のように各高放熱埋め込み材料について、熱抵抗係数と、発振効率、損失について比較評価を行った結果、InP埋め込みのQCLが優れていることが分かる。一方で、素子作製手法としては、結晶成長装置による再成長法を使用する必要のあるInP埋め込みよりも、メッキ手法を使用することが可能なAuやCu埋め込みの方が作製困難度は低い。こうした結果から、高い特性を期待できるInP埋め込み構造またはAu埋め込み構造を、端面型QCL素子だけではなく面発光型素子構造に適用することの困難度を評価する必要がある、面発光型QCLの実現に必要なとなるPC構造の埋め込み技術について試作、検討を行った。

#### (6) 面発光 QCL 実現に向けた PC 構造の埋め込み技術

Q値や電流注入効率の観点で、発光層とPCとの位置関係や電極構造との兼ね合いもまた非常に重要な設計項目であり、設計検討を進めた。これらの設計事項の進捗に並行して、設計を実際の素子として作製するための素子作製技術の要素検討を行った。設計の結果、PCの近傍に発光層が位置する素子構造が選択される可能性を考慮すると、PC層近傍も熱伝導性に優れることが望ましい。従ってPCの凹凸パターンを上記で比較検討したAu、InPなどの材料で埋め込んだ実素子を作製し比較評価を可能とする、素子作製技術の開発が必要になる。この目的で、面発光素子作製プロセス技術開発を兼ねて、PCのような $\mu\text{m}$ オーダーの大きさの周期構造を作製し、Au、InPで埋め込む要素技術開発を行った。

図3.3.2.89に作製した $\mu\text{m}$ オーダーの周期構造のSEM写真を示す。埋め込み検討にあたっては、対象サンプルを多量に必要とすることから、マスクレス露光機を使用して周期構造を作製した。こうした周期構造をPCに見立て、埋め込み技術の開発を行った。

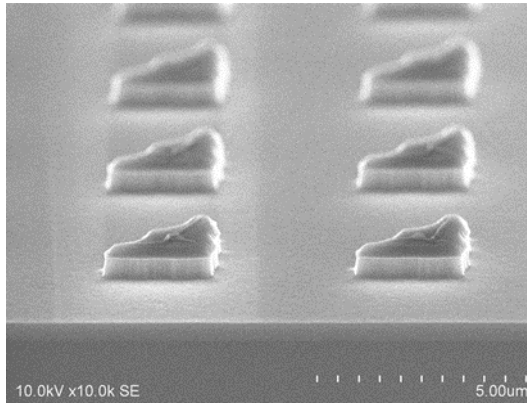


図3. 3. 2. 89 試作周期構造。

図3. 3. 2. 90にAuで埋め込んだ周期構造のSEM写真、図3. 3. 2. 91に再成長法によってInPで埋め込んだ周期構造のSEM写真を示す。ここで使用している周期構造はPCを模したもので、PCとして機能するための設計値は反映されていない。Au埋め込みにおいては、 $\mu\text{m}$ オーダーの周期で配列されたサブ $\mu\text{m}$ オーダーの高さのPCを模した構造が、破断なくAu電極で埋め込まれていることが確認できる。PCの根元部分でAu層が薄くなっている箇所があるが、微細構造に成膜したために根元部分の被覆性が低下したためと考えられる。ただし全体として導通していることから、破断はしておらず薄膜のAu層が成膜されていると考えられる。このAu電極をシード層として利用してAuメッキを行うことで、端面型QCLで検討したAu埋め込み構造と同様の埋め込み構造が作製できると考えられる。またInP埋め込みにおいては、空隙なく周期構造が埋め込まれ、埋め込まれたのちのInP層の平坦性が得られていることが確認できる。従って埋め込みInP層の上に電極などの素子構造を形成し、面発光型素子としての構造を作製することが可能になる。

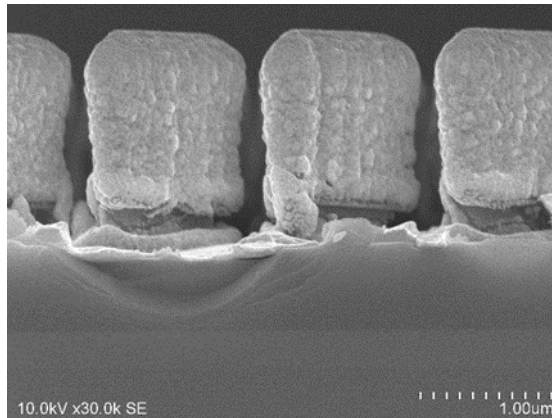


図3. 3. 2. 90 Au埋め込み。

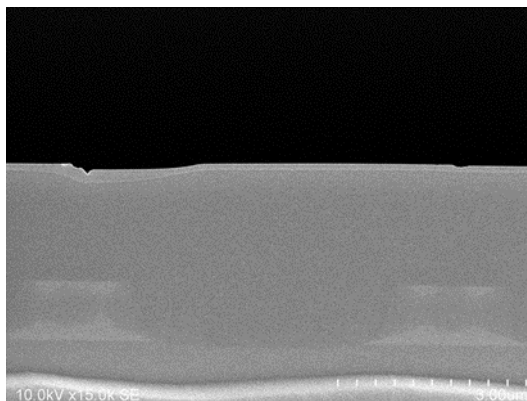


図3. 3. 2. 91 InP埋め込みされた周期構造。



前述したように端面発光型QCLでの検討結果から、放熱性の観点ではAu埋め込みよりもInP埋め込みの方が素子特性を向上できることが分かっている。従って面発光型QCLの構造設計に際しても放熱性の観点ではInP埋め込みが望ましいと考えられる。

さらに埋め込み構造を実現する方法としてMBE結晶成長による試作を行った。InGaAs層をPC構造と同様に周期的なパターンをフォトリソグラフィで形成し、形成されたレジストパターンをマスクにして、ドライエッチングによりInGaAsを加工し図3.3.2.92のような柱状の構造を作製した。この構造をMBE成長装置に導入しInGaAsの再成長を行った。再成長後の表面状態を走査電子顕微鏡により観察した結果を図3.3.2.93に示した。柱状の形状は埋め込まれ、柱の上部に凸部が存在するものPCの埋め込み構造として十分な形状と考えられる。MBE成長はMOCVD成長に比べ、成長温度が低いため表面での原料原子の拡散が小さいと考えられるものの、本結果からMBE成長においても良好な埋め込みが実現できることが示唆される。

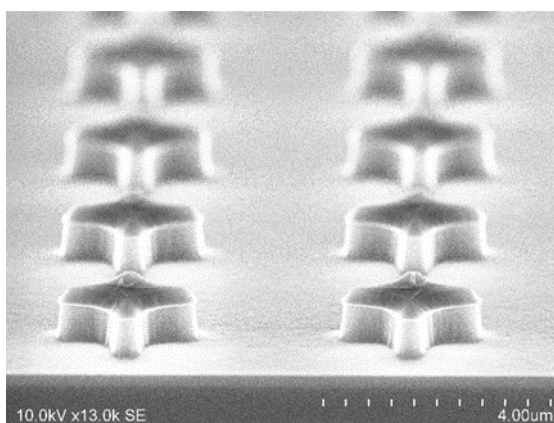


図 3.3.2.92 埋め込み前の柱構造の SEM 像。  
柱構造の上面のコントラストが黒い物質はドライエッチング時の SiO<sub>2</sub> マスク  
再成長の前にウェットエッチングで除去し、再成長を行う。

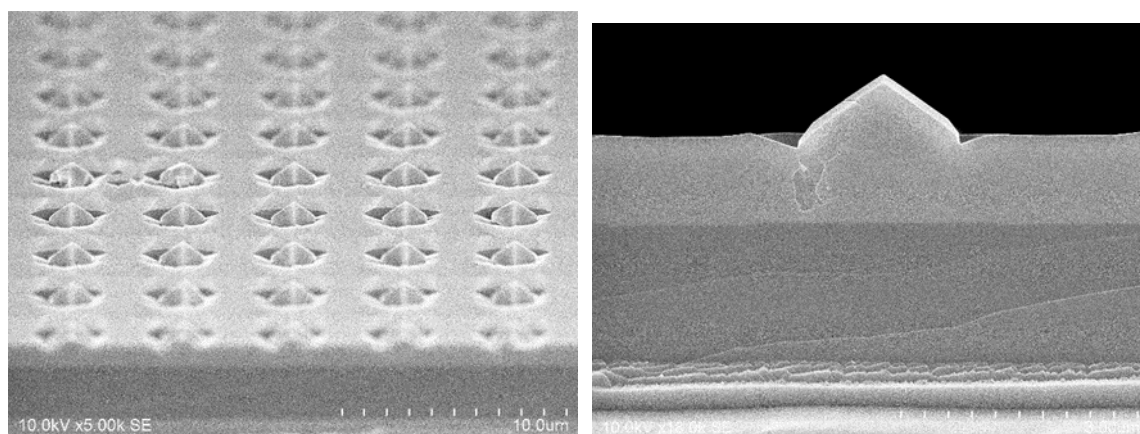


図 3.3.2.93 埋め込み後の柱構造の傾斜観察像と断面図観察像。

#### 【参考文献】

- [3.2.1] B. Gökden, T. S. Mansuripur, R. Blanchard, C. Wang, A. Goyal, A. Sanchez-Rubio, G. Turner, and F. Capasso, *Appl. Phys. Lett.* 102, 053503 (2013).
- [3.2.2] K. Uomi, T. Mishima, and N. Chinone, *Appl. Phys. Lett.* 51, 78 (1987).
- [3.2.3] P. Gutowski, I. Sankowska, T. Slupinski, D. Pierscinska, K. Pierscinski, A. Kuzmicz, K. Golaszewska-Malec, and M. Bugajski, *Materials*, 12, 1621 (2019).
- [3.2.4] M. Razenghi, *IEEE Journal of Selected Topics Quantum Electronics*, 941 (2009).
- [3.2.5] 角野ら, 第80回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-E302-9 (2019).

- [3.2.6] M. Razeghi, N. Bandyopadhyay, Y. Bai, Q. Lu, and S. Slivken, Opt. Mater. Express 3 1872 (2013).
- [3.2.7] Y. H. Ko and J. S. Yu, Phys. Status Solidi A 208, 2900 (2011).
- [3.2.8] J. Faist, “Quantum Cascade Lasers”, Oxford Univ Pr on Demand, (2013).

### 3.3.3 PC構造とQCLによる面発光素子技術

PCを利用する面発光型素子を実現するには、波長選択や光取り出し角度を制御するPC部分の設計・作製技術開発と、QCL素子単体での特性向上に向けた開発と、そしてそれらの技術を融合して面発光型のレーザ素子構造を設計・作製する技術の開発が必要になる。3.3.2において、QCL素子単体での特性向上に向けた開発について述べた。本節では、PCの設計・作製技術検討と、面発光型素子構造の設計・作製技術検討、そして面発光型QCLの試作と評価結果について報告する。

PCについては、作製プロセスの検討を進め、設計値に対する試作におけるずれや再現性等を把握し、設計にフィードバックをかける検討を行った。また、PCをQCL素子に搭載して面発光素子化するプロセスの検討を進め、PC面発光型QCL素子を試作した。素子構造詳細検討、並びに面発光素子に組み込まれているPCの特性評価を行い、設計と実際との相違を検討した。この評価結果を設計と作製プロセスにフィードバックし、PCのモード周波数及びQCLの発振波長を合致させるため構造の適正化検討を行った。

また、面発光型で高出力時に発生する熱を高効率に放熱する手法を検討するため、3.3.2においても述べた通り、端面発光型QCLを用いて埋め込みによる試作を行った。面発光型においては、PC構造、電流注入及び高放熱を兼ね備えた構造を設計するとともに、面発光素子にPCを組み込む際に必要となる放熱構造として、PCを高放熱材料で埋め込む構造の検討と試作を行った。具体的にこの検討にあたり、まず高出力評価装置を用いて高出力時のレーザ発振特性を評価した。次に、低熱抵抗膜成膜装置で高放熱材料を成膜する検討に着手した。PCに対する高放熱材料埋め込み構造を形成し、各構成材料の光学特性、電気特性及び熱伝導特性を確認することで、高熱伝導膜放熱構造の効果を検証した。

これらを通じて、PC面発光QCL素子の試作と評価を行った結果、初となるレーザ発振に成功した。さらに、PC面発光QCL素子の光取り出し効率を定量把握するため、電磁場シミュレータによる設計検討および解析を並行して行った。詳細を以下に報告する。

#### 3.3.3.1 PC面発光QCLのためのPC構造設計

##### (1) 電磁場解析シミュレータによる評価用PC構造の設計

電磁場解析シミュレータにより、端面発光QCLにPCを連結した評価用PC面発光QCLの設計を行い、設計を反映した試作を行った。試作素子の電流電圧特性を取得し、動作を確認した。国立研究開発法人 物質・材料研究機構の中赤外イメージング装置、中赤外ピコ秒OPO及び赤外光子検出器により評価用PCの評価を行い、評価結果を3.1.1のPC設計及び3.3.1のQCL素子設計にフィードバックした。

3.1.2におけるPCの光学評価結果をもとに、QCL素子にPCを搭載するプロセスの検討を行った。電流注入を行うPC面発光QCLでは電流注入する電極と光取り出しが同じ面に存在する。このため、電流注入の均一性と光の取り出し効率とを検討し、PC側を全面電極として、反対側のInP基板側を開口電極とする構造を検討し、電磁場解析シミュレータにより光取り出しの計算を行いPCの高さが $2\mu\text{m}$ 以上で光取り出しが飽和することを確認した。詳細を以下に説明する。

電磁場解析シミュレータにより端面発光型QCLにPCを連結した構成について光学解析した。具体的には、通常の端面発光型QCLと、上部にPCを形成した素子を連結する構成を想定した。図3.3.3.1に構成を示す。図示のように端部からQCLを入射して導波路部に光を導入し、その後PCでの回折により素子上部へ光を取り出す。図3.3.3.2に示すように、素子の短手方向は現実的な長さを想定して $10\mu\text{m}$ とし、空気孔は7個とした。また、入射する光はTM波とした。層構成（層材の厚みと屈折率）を図3.3.3.3に示す。図示したMQW層に外部から光を入射させて導波させる。PCは円柱形状とした。

短手方向には孔数が少ないため、数値解析による特性把握が必要である。FDTD法（有限差分時間領域法）をベースとした電磁場解析により、上方への回折特性を計算した。

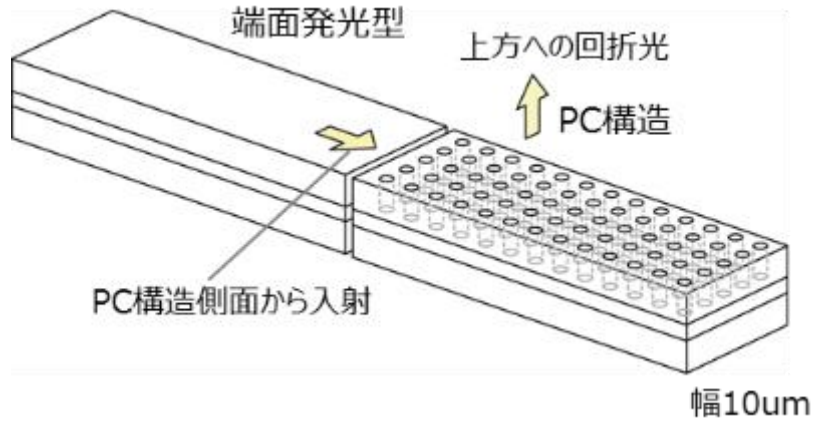


図3.3.3.1 端面発光型QCLにPCを連結した構成。

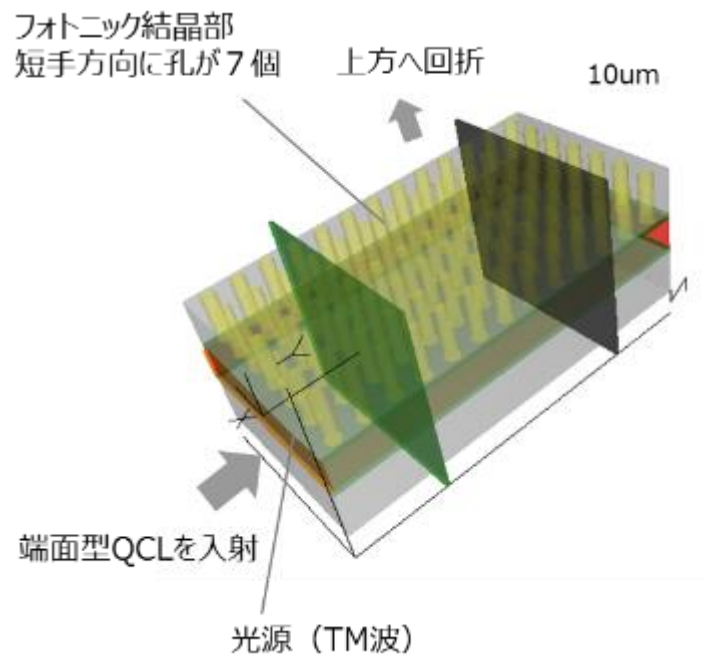


図3.3.3.2 端面発光QCLにフォトニック結晶を形成した素子。

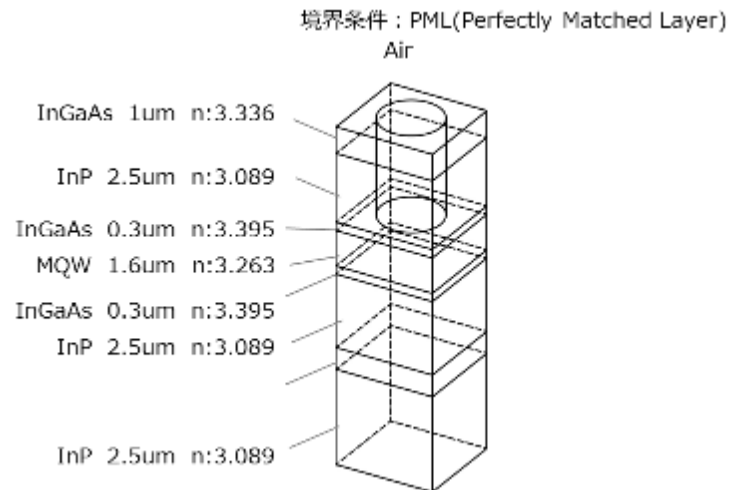


図3.3.3.3 層構成 (層材の厚みと屈折率)。

電磁場解析の結果を図3.3.3.4に示す。上左図は導波路中の電場分布、上右図は磁場分布である。導波方向をz方向とし、素子端部をz=0としている。下図にz=5 $\mu$ mの位置での光強度（青線）とz=15 $\mu$ mの位置での光強度（緑線）を示した。導波するに従ってPCでの回折に起因して上方へ出力するため、光強度が減衰していることが分かる。10 $\mu$ m導波すると光度93%に減衰、すなわち7%が回折光となる結果が得られた。

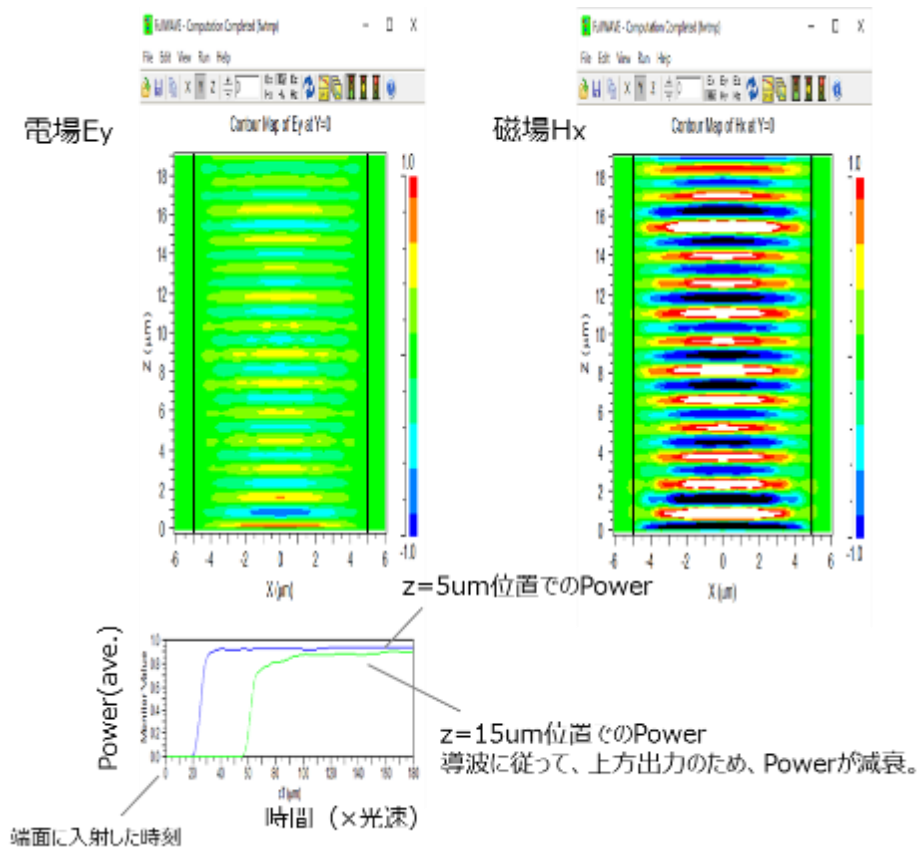


図3.3.3.4 電磁場解析の結果（上左図：電場分布、上右図：磁場分布）。

次いで、電流注入を行うPC面発光QCLでは電流注入する電極と光取出しが同じ面に存在するため、電流注入の均一性と光の取出し効率との最適値を電磁場解析シミュレータにより明らかにした。以下2つの構造として、PCの間に電極を配線し、電極の空隙より光を取り出す構造AとPC側は全面電極とし、PCと逆側のInP基板側に開口部を持つ構造Bを検討した。構造Aでは電極の隙間が周期構造となり、PC構造の周期に影響を与えるため、電極も含めた電磁界解析が必要である。構造BではPCを半導体で埋め込み平坦化することで電流は均一に注入される。さらに電極をAuとすることでPCにより回折され金属側に向かった光はAuで反射されInP基板側の開口部より取り出すことができる。4 $\mu$ m帯ではAuの反射率は95%以上を期待できる。よって、構造Bの全面電極として裏面から光取り出しを行うことにした。この素子構成により電流の均一注入は解決する。

そのためPC面発光QCLにおける光取出しの適正化に関して、電磁場解析シミュレータにより解析した。具体的にはPCの深さ依存性を計算した。光取出し率を上げるには、PCを深く形成すればよいが、ある程度以上にすると光取出しが飽和する筈であり、その見積もりを行った。

図3.3.3.5に示すように、三角柱形状のPCの深さを変えた場合のRadiation constantをモード結合理論で計算した。下記する、4つの基本波に対する特性方程式を数値計算することで求める。

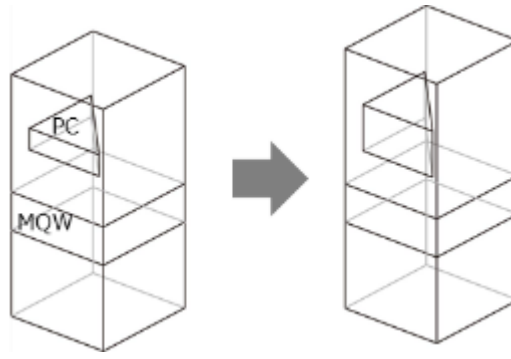


図3.3.3.5 解析条件。

$$\begin{aligned}
 (\delta + i\alpha)R_x &= -\frac{k_0^2}{2\beta_0}\xi_{2,0}S_x \int_{PC} |\theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0}\xi_{1,0} \int_{PC} E_{y,0,0}(z)\theta_0^*(z) dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{1-m,-n} \int_{PC} E_{y,m,n}(z)\theta_0^*(z) dz \\
 (\delta + i\alpha)S_x &= -\frac{k_0^2}{2\beta_0}\xi_{-2,0}R_x \int_{PC} |\theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0}\xi_{-1,0} \int_{PC} E_{y,0,0}(z)\theta_0^*(z) dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-1-m,-n} \int_{PC} E_{y,m,n}(z)\theta_0^*(z) dz \\
 (\delta + i\alpha)R_y &= -\frac{k_0^2}{2\beta_0}\xi_{0,2}S_y \int_{PC} |\theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0}\xi_{0,1} \int_{PC} E_{x,0,0}(z)\theta_0^*(z) dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-m,1-n} \int_{PC} E_{x,m,n}(z)\theta_0^*(z) dz \\
 (\delta + i\alpha)S_y &= -\frac{k_0^2}{2\beta_0}\xi_{0,-2}S_y \int_{PC} |\theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0}\xi_{0,-1} \int_{PC} E_{x,0,0}(z)\theta_0^*(z) dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-m,-1-n} \int_{PC} E_{x,m,n}(z)\theta_0^*(z) dz
 \end{aligned}$$

図3.3.3.6に計算結果を示す。横軸はPC深さ、縦軸はRadiation constantである。図中の赤線、青線、緑線、黒線は4つのモードを示す。PC深さを増やしていくと、初めは比例してRadiation constantが増加する。しかしクラッド層への電場染み出しが減衰するために、PC深さ2 μ m程度を越えるとRadiation constantが飽和しはじめることが分かった。

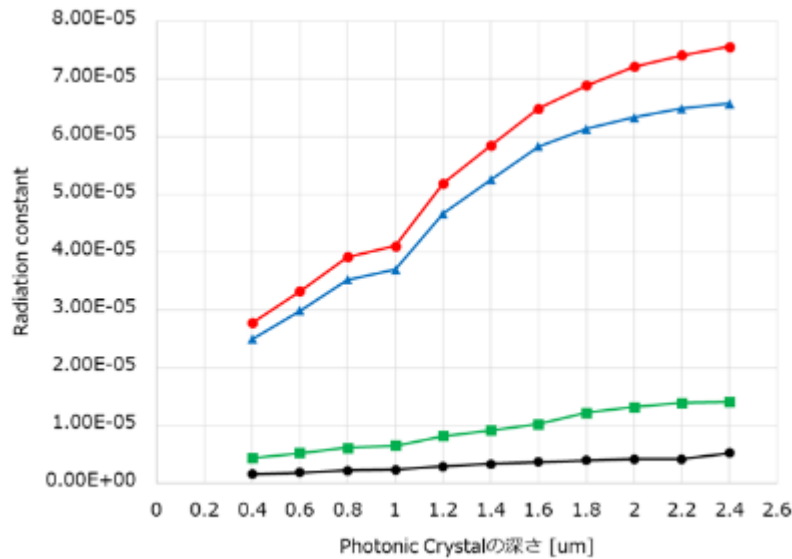


図3.3.3.6 PC深さに対するRadiation constant。

## (2) PC 構造のモード結合理論による検討

モード結合理論に基づく解析法で PC 特性を計算した。結合波方程式の理論式を以下に簡単にまとめる。

電荷や電流、磁性体は含まれないとして、マクスウェル方程式は下式で与えられる。

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{\partial \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad (3.3.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) - \frac{\partial \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad (3.3.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (3.3.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (3.3.4)$$

(3.3.3)、(3.3.4)式が初期条件で満足するように与えられると、その後自動的に(3.3.3)、(3.3.4)式は満たされるため、電磁場の時間発展としては、(3.3.1)、(3.3.2)式を考えればよい。ここでは電磁場の時間振動項は $\exp(i\omega t)$ とする。(3.3.1)式のrotationをとって(3.3.2)式を代入すれば、

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) = k_0^2 \tilde{n}^2(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (3.3.5)$$

が得られる。あるいは成分計算に便利のように左辺を、ベクトル解析の恒等式を用いて式変形して、

$$-\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}) + \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})) = k_0^2 \tilde{n}^2(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (3.3.6)$$

としてもよい。上式において $k_0 = \omega/c$ は真空中の波数である。

格子定数 $a$ の周期構造を有する媒体を想定する。電場 $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = (\mathbf{E}_x(\mathbf{r}), \mathbf{E}_y(\mathbf{r}), 0)$ は、Blochの定理、あるいは数学におけるFloquetの定理により下式(3.3.7)、(3.3.8)で表現できる。

$$\mathbf{E}_x(\mathbf{r}) = \sum_{m,n} E_{x,m,n}(z) \exp(-im\beta_0 x - in\beta_0 y) \quad (3.3.7)$$

$$\mathbf{E}_y(\mathbf{r}) = \sum_{m,n} E_{y,m,n}(z) \exp(-im\beta_0 x - in\beta_0 y) \quad (3.3.8)$$

ここで、 $\beta_0 = \frac{2\pi}{a}$ である。 $m$ 、 $n$ は整数を表す。

複素屈折率 $\tilde{n}(\mathbf{r})$ は、吸収項を $\alpha(\mathbf{r})$ として、

$$\tilde{n}(\mathbf{r}) = n(\mathbf{r}) + i \frac{\alpha(\mathbf{r})}{k_0} \quad (3.3.9)$$

と表記すれば、

$$k_0^2 \tilde{n}^2(\mathbf{r}) = k_0^2 n^2(\mathbf{r}) + 2ik_0 n(\mathbf{r})\alpha(\mathbf{r}) - \alpha^2(\mathbf{r}) \approx k_0^2 n^2(\mathbf{r}) + 2ik_0 n_0(\mathbf{r})\alpha(\mathbf{r}) \quad (3.3.10)$$

と書ける。ここでは、 $|\alpha(\mathbf{r})| \ll k_0 n_0$ と仮定して中辺第3項を消去した。さらに、 $n^2(\mathbf{r})$ をフーリエ級数展開しておく。

$$n^2(\mathbf{r}) = n_0^2(z) + \sum_{m,n \neq 0} \xi_{mn}(z) \exp(-im\beta_0 x - in\beta_0 y) \quad (3.3.11)$$

モード結合理論の起点となる電磁場方程式(3.3.6)式の  $x$  成分を計算すると、

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} - \frac{\partial^2 E_y}{\partial x \partial y} = -k_0^2 \tilde{n}^2 E_x \quad (3.3.12)$$

である。(3.3.12)式に、(3.3.7)、(3.3.8)、(3.3.11)式を代入して、 $e^{-im\beta_0 x - in\beta_0 y}$  因子の項を集めれば次式が得られる。

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} + k_0^2 n_0^2 + 2i\alpha k_0 n_0 - n^2 \beta_0^2 \right) E_{x,m,n} + mn\beta_0^2 E_{y,m,n} = -k_0^2 \sum_{m' \neq m', n' \neq n'} \xi_{m-m', n-n'} E_{x,m',n'} \quad (3.3.13)$$

(3.3.6)式の  $y$  成分を計算して、同様に  $e^{-im\beta_0 x - in\beta_0 y}$  因子の項を集めれば次式が得られる。

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} + k_0^2 n_0^2 + 2i\alpha k_0 n_0 - m^2 \beta_0^2 \right) E_{y,m,n} + mn\beta_0^2 E_{x,m,n} = -k_0^2 \sum_{m' \neq m', n' \neq n'} \xi_{m-m', n-n'} E_{y,m',n'} \quad (3.3.14)$$

が得られる。また、(3.3.6)式の  $z$  成分を計算すると次式を得る。

$$\frac{\partial}{\partial z} (mE_{x,m,n} + nE_{y,m,n}) = 0 \quad (3.3.15)$$

ここで  $\sqrt{m^2 + n^2} = 1$  の波を基本波と呼称するが、その表式を下式で与える。

$$(m, n) = (1, 0) : \begin{bmatrix} E_{x,1,0}(z) \\ E_{y,1,0}(z) \\ 0 \end{bmatrix} \exp(-i\beta_0 x + i\omega t) = R_x \begin{bmatrix} 0 \\ \Theta_0(z) \\ 0 \end{bmatrix} \exp(-i\beta_0 x + i\omega t) \quad (3.3.16)$$

$$(m, n) = (-1, 0) : \begin{bmatrix} E_{x,-1,0}(z) \\ E_{y,-1,0}(z) \\ 0 \end{bmatrix} \exp(i\beta_0 x + i\omega t) = S_x \begin{bmatrix} 0 \\ \Theta_0(z) \\ 0 \end{bmatrix} \exp(i\beta_0 x + i\omega t) \quad (3.3.17)$$

$$(m,n) = (0,1) : \begin{bmatrix} E_{x,0,1}(z) \\ E_{y,0,1}(z) \\ 0 \end{bmatrix} \exp(-i\beta_0 y + i\omega t) = R_y \begin{bmatrix} \Theta_0(z) \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \exp(-i\beta_0 y + i\omega t) \quad (3.3.18)$$

$$(m,n) = (0,1) : \begin{bmatrix} E_{x,0,-1}(z) \\ E_{y,0,-1}(z) \\ 0 \end{bmatrix} \exp(i\beta_0 y + i\omega t) = S_y \begin{bmatrix} \Theta_0(z) \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \exp(i\beta_0 y + i\omega t) \quad (3.3.19)$$

上式において  $\Theta_0(z)$  は垂直方向の電場分布である。

$(m,n) = (1,0)$  の基本波を考え、(3.3.16)式を(3.3.13)式に代入すれば、

$$\left[ \frac{d^2 \Theta_0(z)}{dz^2} + (k_0^2 n_0^2 + 2i\tilde{\alpha} k_0 n_0 - \beta_0^2) \Theta_0(z) \right] R_x = -k_0^2 \sum_{m' \neq 1, n' \neq 1} \xi_{1-m', -n'} E_{y, m', n'} \quad (3.3.20)$$

が得られる。この式と導波路の方程式

$$\left[ \frac{d^2}{dz^2} - (\beta^2 - n_0^2(z) k_0^2) \right] \Theta_0(z) = 0 \quad (3.3.21)$$

を合わせれば、

$$(\beta^2 - \beta_0^2) R_x \Theta_0(z) + 2ik_0 \tilde{\alpha}(z) n_0(z) R_x \Theta_0(z) = -k_0^2 \sum_{m' \neq 1, n' \neq 1} \xi_{1-m', -n'} E_{y, m', n'} \quad (3.3.22)$$

が得られる。(3.3.22)式の両辺に  $\Theta_0^*(z)$  を乗じて、 $(-\infty, +\infty)$  で積分する。ここで、

$$(\beta^2 - \beta_0^2) = (\beta - \beta_0)(\beta + \beta_0) \cong 2\beta_0(\beta - \beta_0) \quad (3.3.23)$$

$$\delta \equiv (\beta - \beta_0) \quad (3.3.24)$$

$$\alpha \equiv \frac{k_0}{\beta_0} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\alpha}(z) n_0(z) |\Theta_0(z)|^2 dz \quad (3.3.25)$$

$$E_{x,0,0} \equiv \Delta E_x(z), \quad E_{y,0,0} \equiv \Delta E_y(z) \quad (3.3.26)$$

$$\kappa_{2,0} = -\frac{k_0^4}{2\beta_0} \xi_{2,0} \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz \quad (3.3.27)$$

として(3.3.22)式を整頓すれば、下式が得られる。



$$\begin{aligned}
(\delta + i\alpha)R_x = & -\frac{k_0^4 S_x}{2\beta_0} \xi_{2,0} \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{1,0} \int_{PC} \Delta E_y(z) \Theta_0^*(z) dz \\
& - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{1-m,-n} \int_{PC} E_{y,m,n}(z) \Theta_0^*(z) dz
\end{aligned} \tag{3.3.28}$$

他の3つの基本波、 $(m,n)=(-1,0)$ 、 $(m,n)=(0,1)$ 、 $(m,n)=(0,-1)$ も同様であり、

$$\begin{aligned}
(\delta + i\alpha)S_x = & -\frac{k_0^4 R_x}{2\beta_0} \xi_{-2,0} \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{-1,0} \int_{PC} \Delta E_y(z) \Theta_0^*(z) dz \\
& - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-1-m,-n} \int_{PC} E_{y,m,n}(z) \Theta_0^*(z) dz
\end{aligned} \tag{3.3.29}$$

$$\begin{aligned}
(\delta + i\alpha)R_y = & -\frac{k_0^4 S_y}{2\beta_0} \xi_{0,2} \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{0,1} \int_{PC} \Delta E_x(z) \Theta_0^*(z) dz \\
& - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-m,1-n} \int_{PC} E_{x,m,n}(z) \Theta_0^*(z) dz
\end{aligned} \tag{3.3.30}$$

$$\begin{aligned}
(\delta + i\alpha)S_y = & -\frac{k_0^4 R_y}{2\beta_0} \xi_{0,-2} \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{0,-1} \int_{PC} \Delta E_x(z) \Theta_0^*(z) dz \\
& - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-m,-1-n} \int_{PC} E_{x,m,n}(z) \Theta_0^*(z) dz
\end{aligned} \tag{3.3.31}$$

の結合波方程式が得られる。

PC構造の一例として、表3.3.3.1に示す層構成を計算した。解析による追試として、数値は参考文献[3.3.1]の値を使用した。半無限の上下空気層を含めて7層構成であり、媒質、厚み、比誘電率を示した。第5層が活性層であり、その直下の第4層にフォトニック結晶層を配置している。フォトニック結晶は空孔とGaAsで構成される。また、端面発光QCLにPCを連結した構造を想定した。電流注入構造がないフォトニック結晶とし、評価用PCの候補の一つとして、空孔断面が直角2等辺3角形のPCを設計した。

表 3.3.3.1 層構成の諸元。

層番号 $j$	媒質	厚み $d_j$ [ $\mu\text{m}$ ]	比誘電率 $\tilde{n}_j^2$
7	Air	-	1
6	Clad (AlGaAs)	1.5	11.0224
5	Active	0.0885	12.8603
4	PC	0.1180	$\epsilon_{av}$
3	GaAs	0.0590	12.7449
2	Clad (AlGaAs)	1.5	11.0224
1	Air	-	1

電磁場シミュレータにより PC 形状のパラメータサーベイを行い、最適化が完了した。最適状態での、4 周期分のフォトニック結晶面内の強度分布 (グレースケールで表示) と等高線を図 3. 3. 3. 7 に示す。mode A から mode D の 4 モードを示した。結合波方程式の行列が 4 行 4 列のため 4 つのモードが存在するためである。

4 つの基本波の重畳で定在波が形成されている。振幅ではなく強度で表示しているため、周期は格子周期の倍となっている。強度が強い部分 (図中の白色部) がモード毎に異なっていることが見て取れる。

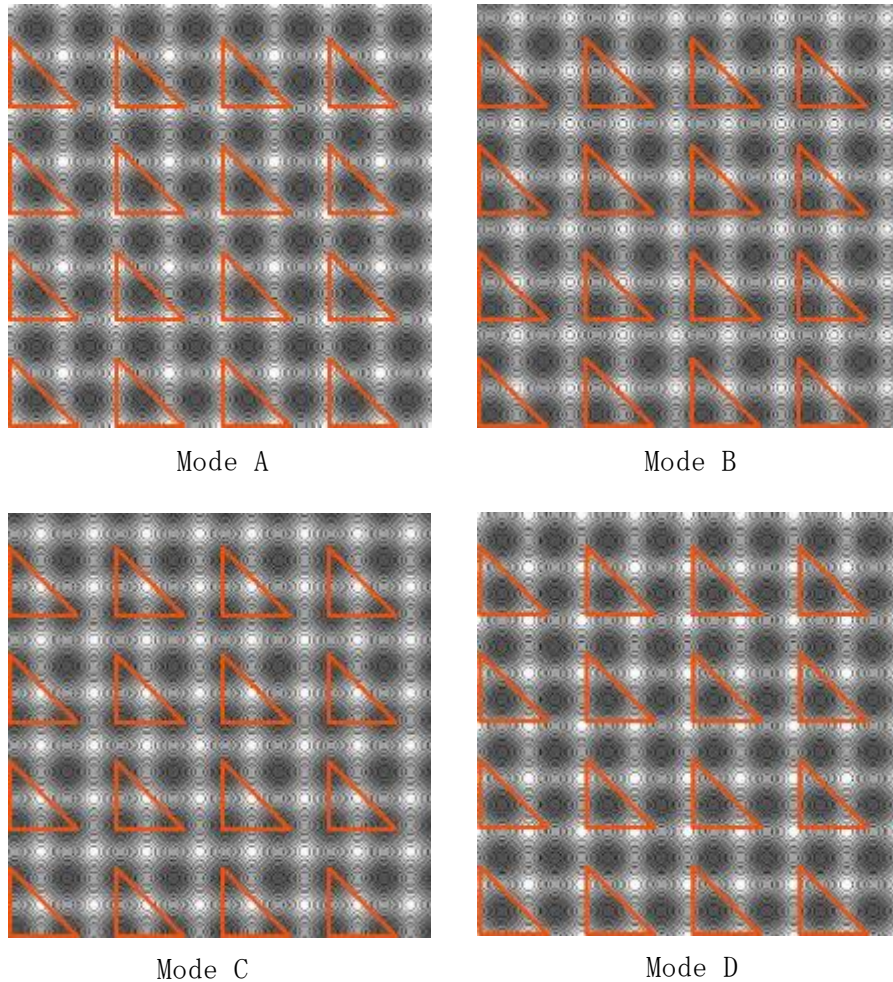


図 3. 3. 7 フォトニック結晶内の電場強度分布と等高線。

### (3) 電磁シミュレーションによる光取り出し効率見積もり

先に PC 面発光 QCL 素子におけるレーザ発振を実現したことを示した。PC 面発光 QCL 素子の光取り出し効率を定量把握すべく、モード結合理論での検討を行って、光取り出し効率が PC を深く形成するに従い増加し、ある程度以上に深くすると光取り出しが飽和する見積もりを行った。さらに取り出し効率にかかわる発振時の横モードの検討を以下のように行った。

解析条件は電磁場の偏光は TM-mode とし、素子のサイズは 1 つの単位胞の大きさを  $a$  として  $200a$  の正方格子配列にて行った。PC の形状は円柱と二等辺三角形 について行い、Filling Factor はそれぞれ 0.35、0.22 となっている。モデルの模式図を図 3. 3. 3. 8 に示している。さらに QCL の層構造に関して図 3. 3. 3. 9 のように設定し、層内での電界分布を求めた。

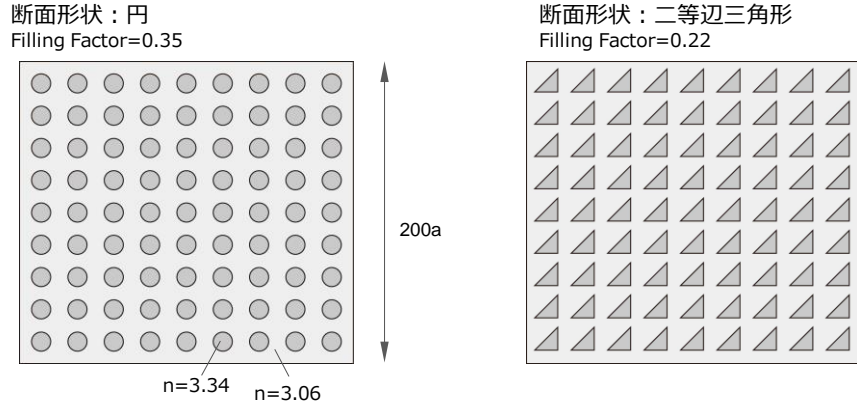


図 3.3.3.8 計算に用いた PC の配置の模式図。

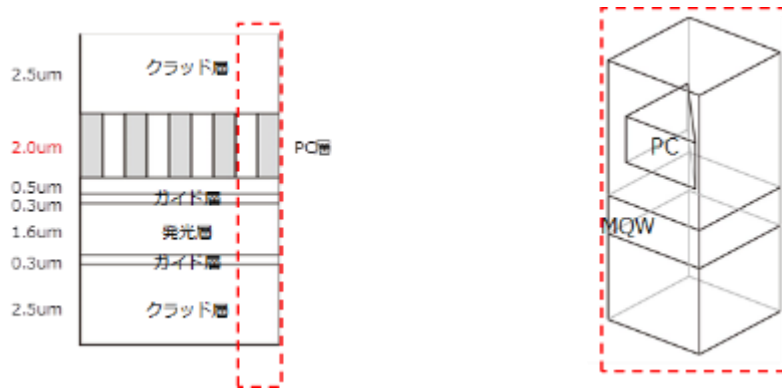


図 3.3.3.9 PC 構造 (左) と単位胞 (右)。

ここで4つの基本波に対する特性方程式は以下ようになっており、 $\Theta_0(z)$ は今回のPC構造に対しての導波電場分布で、マクスウェル方程式より導出した導波方程式の解として図3.3.3.10に示したような導波電磁場分布 $\Theta_0(z)$ が求められる。

$$\begin{aligned}
 (\delta + i\alpha)R_x &= -\frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{2,0} S_x \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{1,0} \int_{PC} E_{y,0,0}(z) \Theta_0^*(z) dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{1-m,-n} \int_{PC} E_{y,m,n}(z) \Theta_0^*(z) dz \\
 (\delta + i\alpha)S_x &= -\frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{-2,0} R_x \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{-1,0} \int_{PC} E_{y,0,0}(z) \Theta_0^*(z) dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-1-m,-n} \int_{PC} E_{y,m,n}(z) \Theta_0^*(z) dz \\
 (\delta + i\alpha)R_y &= -\frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{0,2} S_y \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{0,1} \int_{PC} E_{x,0,0}(z) \Theta_0^*(z) dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-m,1-n} \int_{PC} E_{x,m,n}(z) \Theta_0^*(z) dz \\
 (\delta + i\alpha)S_y &= -\frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{0,-2} S_y \int_{PC} |\Theta_0(z)|^2 dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \xi_{0,-1} \int_{PC} E_{x,0,0}(z) \Theta_0^*(z) dz - \frac{k_0^2}{2\beta_0} \sum_{\sqrt{m^2+n^2}>1} \xi_{-m,-1-n} \int_{PC} E_{x,m,n}(z) \Theta_0^*(z) dz
 \end{aligned}$$

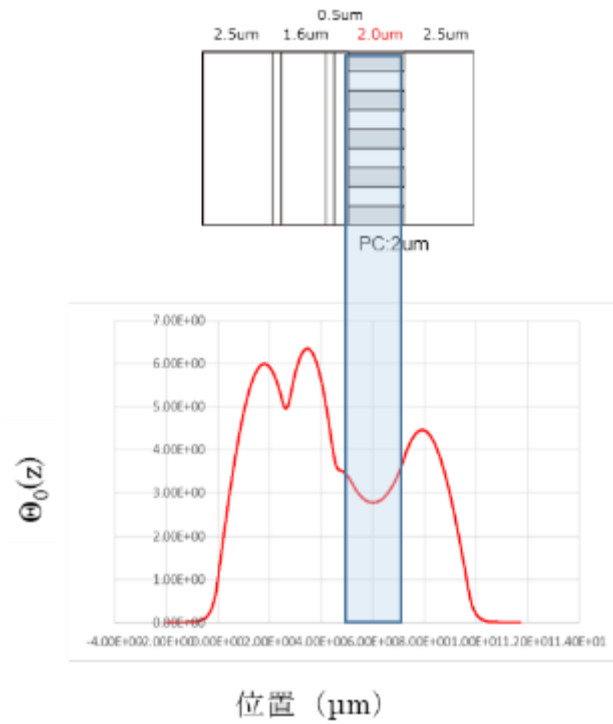


図 3.3.3.10 層構造と導波電磁場。

計算結果は、固有モード周波数に対する発振閾値に関して、円柱と二等辺三角形では、断面形状が二等辺三角形の方が、発振閾値が低くなる結果が得られた。近視野パターンは、それぞれの発振モードにおいて図3.3.3.11に示すような結果が得られた。この近視野像よりフーリエ変換して遠視野パターンを求めることができる。このように光取り出し効率を求めるのに必要な道具立てとして、発振横モードを解析する手法を開発できた。これにより試作素子の遠視野像と発振スペクトル評価から素子設計へのフィードバックが可能となった。

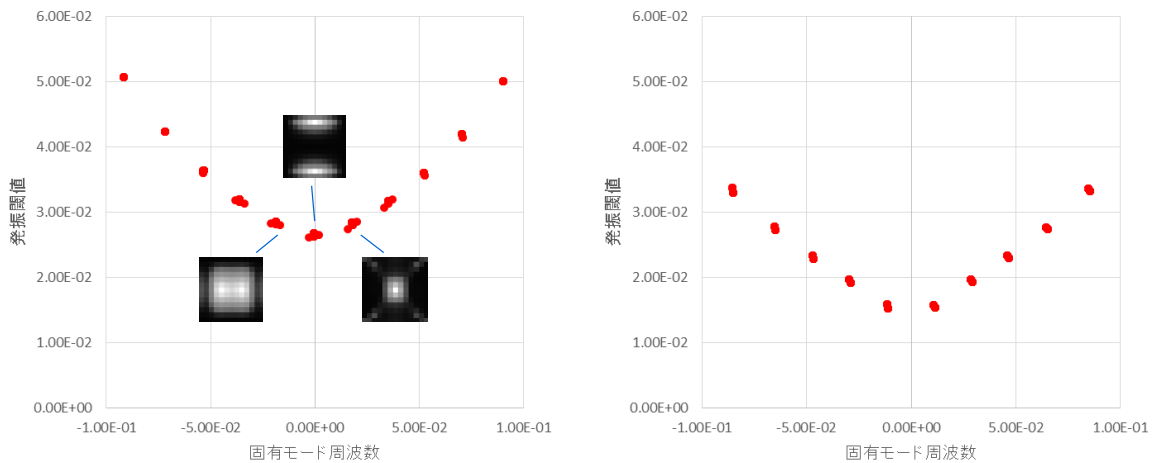


図 3.3.3.11 発振閾値と近視野像 左：円柱形状 PC, 右：三角柱構造 PC。

### 3.3.3.2 評価用端面発光型 QCL と PC 構造との連結構造

#### (1) 端面発光型 QCL と PC 構造との連結構造の試作

面発光型QCLの最適構造検討を進めるに際し、計算の精度を高めるために、面発光型QCL並びに評価用のPC面発光QCLの試作に着手した。図3.3.3.12に、試作した面発光型QCL並びに評価用PCの素子構造CAD図面を示す。また併せて作製される素子構造の概念図を分かりやすさのために示す。サンプルの左半分のエリアからは面発光型QCL、右半分からはPCを使用しない端面発光型QCLと、端面発光型QCLとPCが接続して作製されている評価用PCを試作することが可能である。このCADデータをもとに面発光素子

作製プロセスの技術開発に着手した。PC構造の形成とレーザ構造の作製を連続して行った。

図3.3.3.13に、作製した評価用PCの光学顕微鏡写真を示す。端面型QCLの光射出方向にモノリシックにPCを含むメサ構造が形成されている。この構造を使用することで、端面型QCL部分で生じるレーザ光をモノリシックにPC構造に導入することが可能になる。このため、PCの特性評価を効率的に行うことができる。図3.3.3.14に、作製した面発光型QCLの光学顕微鏡写真とSEM写真を示す。PC領域を約0.5mm角に形成し、そのPC領域を経由して電流注入可能なレーザ構造を作製することに成功した。

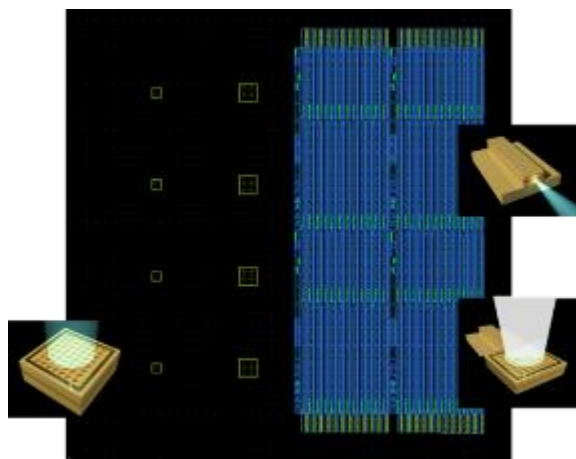


図3.3.3.12 作製した面発光QCLならびに評価用PC構造に使用したCADデータ。



図3.3.3.13 作製した評価用PCの光学顕微鏡写真。

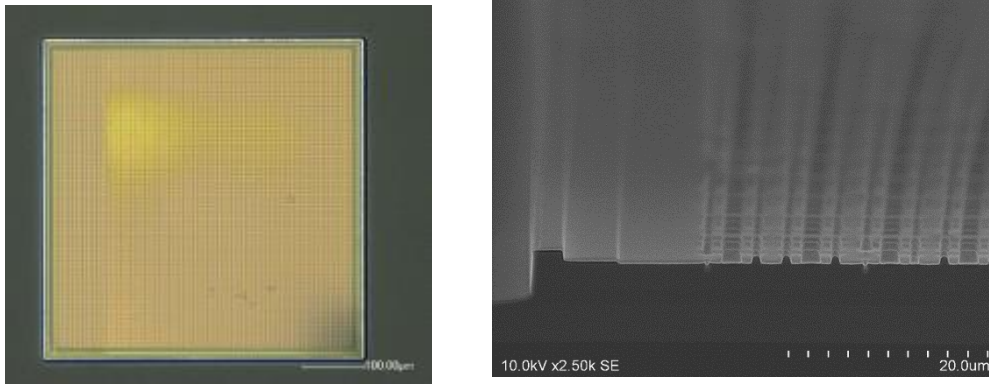


図3.3.3.14 作製した面発光QCLの光学顕微鏡写真と鳥瞰SEM写真。

これらの構造に対して電流注入評価を行った。図3.3.3.15に、評価用PCに電流注入した際の電流電圧特性を示す。電流は端面発光型QCL構造部分にのみ注入されており、そのIV特性は通常の端面発光型QCLのものと差異はなかった。またこの評価用PCにおいてレーザ発振も確認された、すなわちPC領域にQCLレーザ光が導入されていると考えられる。従ってこの評価用PCのPC部分を設計に厳密に基づいた構造を適用して試作・評価していく事で、PCの特性を効率的に評価することが可能になると考えられる。次に作製した面発光型QCLの電流電圧特性評価の結果を図3.3.3.16に示す。電流電圧特性に大きな異常が無く、面発光素子の電極構造が破綻なく形成できていると考えられる。

電流注入による評価に並行し、PC構造の評価をNIMSの中赤外イメージング装置、中赤外ピコ秒OPO及び赤外光子検出器により評価を行う予定であったが、PCからの光の取り出しの評価を東芝所有の中赤外カメラにて、測定した。結果を図3.3.3.17に示す。評価用PCの表面からの中赤外光が放出されていることが確認できる。設計及びPCの加工精度の向上を行い、面発光の観測により、PC構造設計へのフィードバックを行うことができる。また、中赤外ピコ秒OPO及び赤外光子検出器により結晶の欠陥に起因する発光寿命の評価が行えるため、測定対象の試料の準備を行った。これにより結晶成長にフィードバックが行え、発光効率の高いQCL結晶を作製することができる。

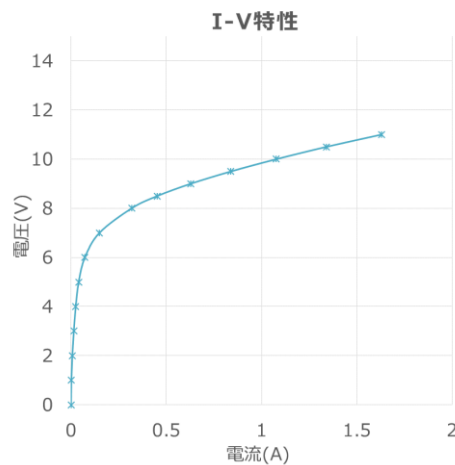


図3.3.3.15 作製した評価用PCの電流電圧特性。

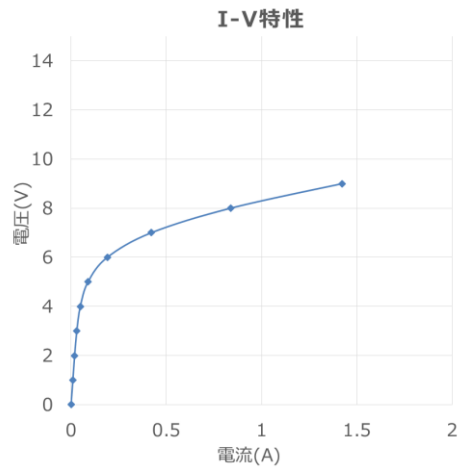


図3.3.3.16 作製した面発光QCLの電流電圧特性。

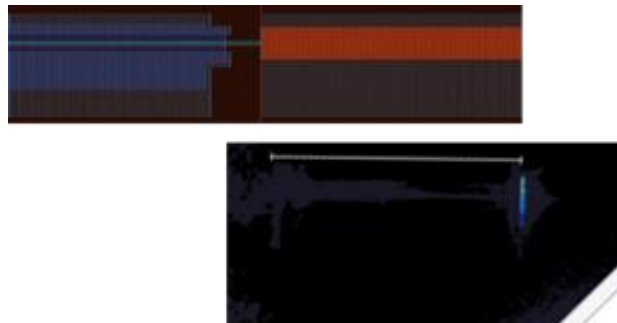


図3.3.3.17 評価用PC構造の模式図（上面図）と近視野像の観測結果。  
 上図：評価用PC構造の模式図（上面図）茶色の領域にPC構造を作製し、  
 緑色の導波路よりPC領域に光を導入し、取り出される光の評価を行う。  
 下図：近視野像の観測結果、光の強度は低い方から黒→青→緑→赤の  
 順に高くなる。この測定系で中赤外光のPC領域からの取り出し強度を  
 評価できることがわかった。

(2) PC 構造との連結構造評価用 PC の構造と評価結果

PC 構造と QCL の発振を分離して評価するため、図 3.3.3.18 に示したような PC 評価用の端面発光型 QCL と PC の連結構造を試作した。PC は正方格子に配置された直角 2 等辺三角柱が面積占有率で 45%となるように形成されている。



図 3.3.3.18 PC 評価用の端面発光型 QCL（左）と PC（右）の連結構造。  
 PC は正方格子に配置された直角 2 等辺三角柱が面積占有率で 45%となるように形成。

端面発光型 QCL 側に電流電圧を供給し、PC 側の表面上に検出器を配置し、電流-電圧-光特性を評価した結果を図 3.3.3.19 示した。発振に伴い、光出力が上昇することがわかり、PC の表面より直上に光が取り出せていることがわかる。

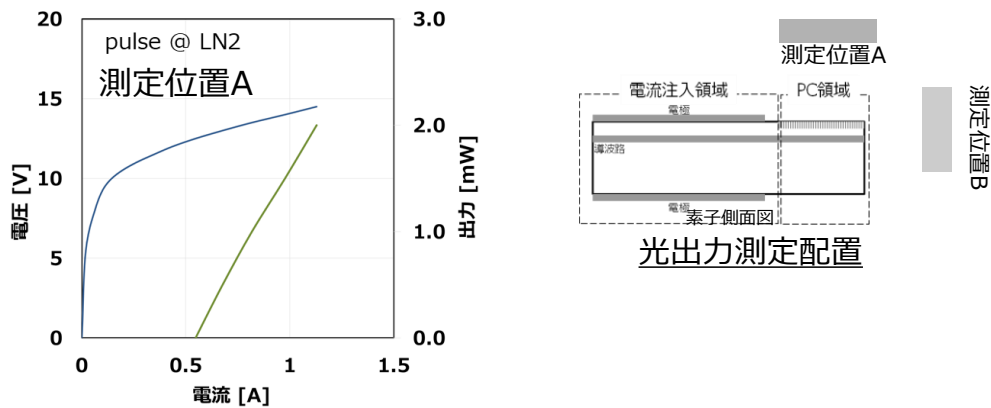
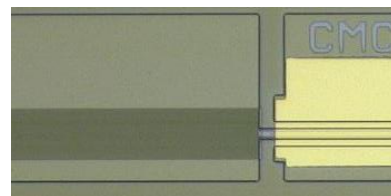


図 3.3.3.19 電流-電圧-光特性と光出力測定時の検出器の測定位置、PC 表面の直上の位置 A にて測定。

発振時の近視野像を図 3.3.3.20 に示した。端面発光型の導波路の延長上に導波路幅と等しい近視野像が観察された。強度の分布は PC を形成した幅に比べ狭く端面発光型の導波路幅の 2 倍程度と見積もられる。像は端面発光型 QCL から離れるに従い、像の焦点が奥側に移動する現象が観察された。



中赤外線カメラによるNFP観察像



PCIリア

リッジ導波路型QCL  
(電流注入領域)

図 3.3.3.20 PC 評価用構造の近視野像と対応する位置の顕微鏡像。

図 3.3.3.21 には遠視野像の測定結果を示した。素子表面に対してほぼ垂直に強度の中心をもち、導波路方向に半値全幅で  $2^\circ$ 、直行方向に  $20^\circ$  の遠視野像が得られた。この遠視野像は Fan-beam と呼ばれ (図 3.3.3.22)、近視野像と矛盾がなく、端面発光型 QCL のレーザ光が結合された PC 構造により表面に直交した方向に取り出されたことがわかる。よって PC 構造の設計に用いた、各半導体の屈折率、消衰係数などのパラメータが大きく異なっていないことが確認できた。



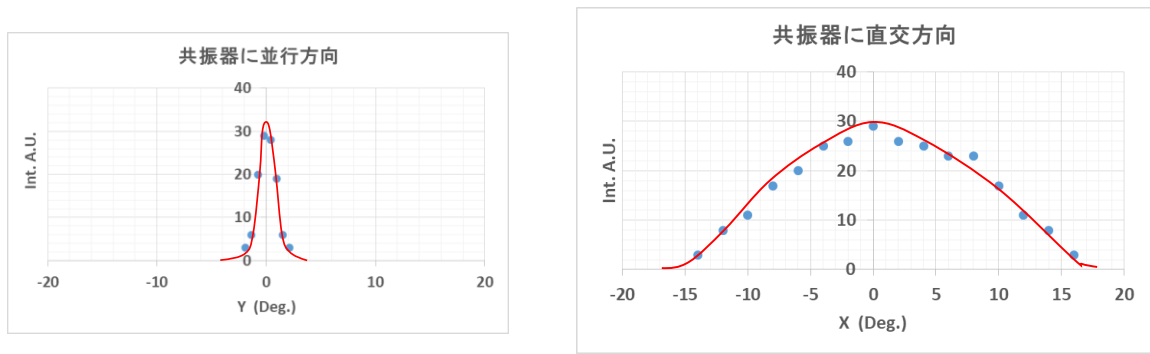


図 3.3.3.21 遠視野像の強度分布。  
左：共振器に平行な方向の強度分布。右：共振器に直交した方向の強度分布。

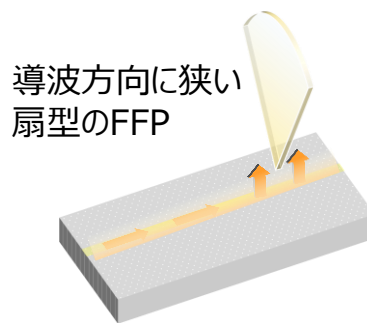


図 3.3.3.22 Fan-beam の模式図。

図 3.3.3.23 には PC 側の表面で測定したスペクトルと PC のバンド構造を示した。表面に垂直な方向は  $k=0$  の  $\Gamma$  点に相当し、QCL は TM 偏光であるため、図 3.3.3.23 中の青線のバンドで、そのバンド端に相当する波長のレーザー光が取り出されていることがわかる。このことから、今回試作した PC 評価用 PC は設計値通りの波長で発振していることが分かった。

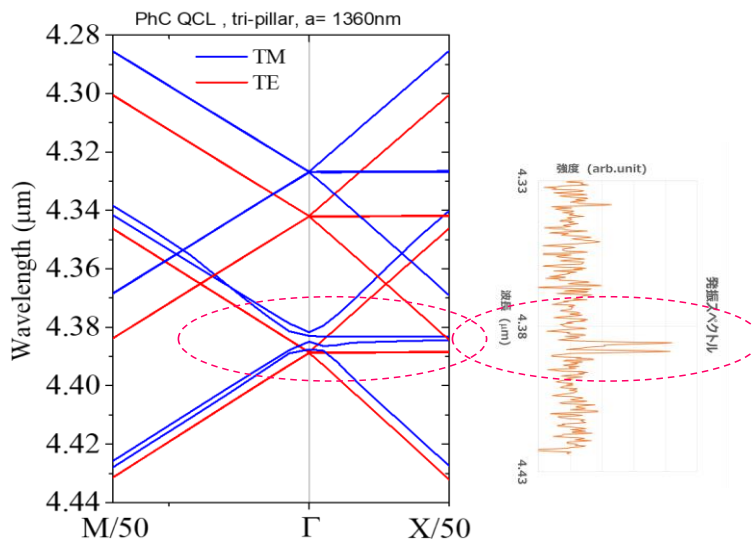


図 3.3.3.23 PC のバンド図と PC 評価用 QCL のスペクトル。

(3) PC を分離し光導波路で連結する構造素子の高出力化と評価

発光層に電流注入して発振したレーザー光をより効率よく取り出すための素子構造の検討を行った。レーザー光をより効率よく取り出すためには、レーザー光発生部分の放熱性を高めることが重

要であり、電極や絶縁膜を含め素子構造全体として放熱性を高めるための検討を行った。光出力に大きく影響するのは電流注入される活性層の温度であり、言ってみれば、電流注入される活性層部分の放熱性さえ向上できれば効果が期待できる。そこで、QCL 素子と PC を分離する事で電極による光取出し効率の低下や発熱による諸特性への不安定要因を PC から隔離する構造の検討として、レーザ光を発する QCL 素子と面発光の光射出を担う PC とを、光導波路で連結した PC 面発光 QCL 構造を検討し、光出力への影響を評価した。図 3.3.3.24 に、作製した PC 面発光 QCL の素子構造の模式図を示す。中央に PC を含むメサ領域が形成されており、その両端にリッジ導波路型の QCL がモノリシックにリッジ導波路を介して接続されている。電流注入はリッジ導波路型 QCL 部分にのみ行われ、PC 部分には電極が形成されておらず電流は注入されない。従って、電流注入に伴って発熱する箇所はリッジ導波路型 QCL の箇所のみになる。表 3.3.3.2 に、試作した端面型と面発光型の QCL の、活性層面積と熱抵抗係数、また得られている光出力の最大値を示す。この表から、基本的な素子構造の比較としては、端面発光型の方が面発光型よりも熱抵抗係数が低くできることが分かる。これは、端面発光型 QCL の場合、発熱箇所が細長く放熱材料との距離が非常に近いのに対し、面発光型では特に面発光素子の中央部分などが放熱材料との距離が離れているという発光部分の形状に因る差である。こうした放熱性の差は光出力の最大値としても確認できる。こうした理由から、レーザ光を発生させる場所のみ、端面発光型に置き換えることで放熱性を向上し、面発光素子としての光出力向上が期待できる。

図 3.3.3.25 に、作製した PC 面発光 QCL の電流-光曲線を示す。PC 部分から垂直方向へ約 30mW（電流 3A 時）の光出力が観測された。すなわち、両脇の端面型 QCL に電流注入して発生した QCL 光が、PC を介して垂直方向に取り出されていることを示しており、この素子構造で QCL 光を垂直方向に取り出すことが可能だと実証できた。一方で、リッジ導波路型 QCL の側面からも QCL 光が射出されており片端面からの光出力は 140mW（電流 3A 時）であった。図 3.3.3.26 に、垂直方向、水平方向のレーザ光のスペクトルを示す。垂直方向のレーザ光と横方向のレーザ光の発振スペクトルは一致しているため、同じモードで制御された QCL 光が垂直と水平とに射出されている状況だと解釈できる。従って、リッジ導波路型 QCL の水平方向の光射出端を Au などで HR コートしてふさぐことで、垂直方向の光出力を増大させることができると推察できる。

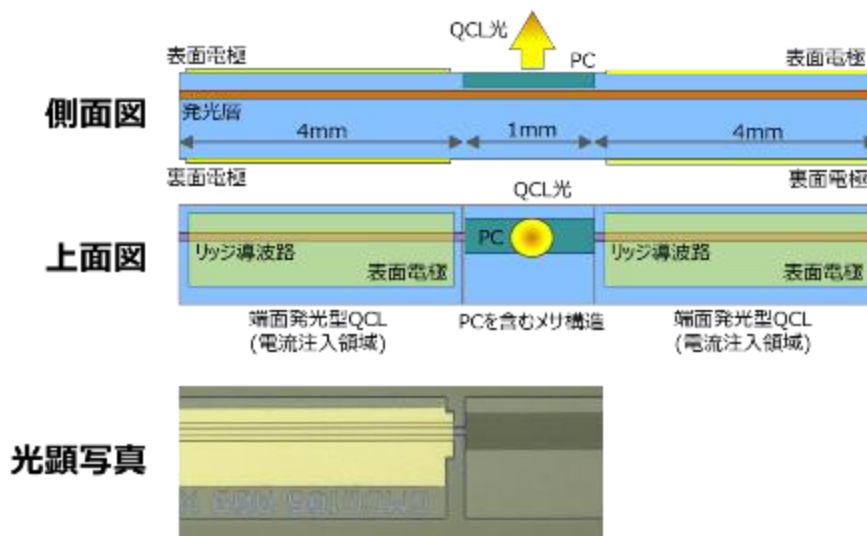


図 3.3.3.24 QCL 素子と光射出 PC とを光導波路で連結した PC 面発光 QCL の構造模式図。

表 3.3.3.2

	端面発光型 (L=6mm)	面発光型 PC 0.5mm角
活性層面積 (mm <sup>2</sup> )	0.06	0.25
熱抵抗係数 (K/W)	6.5	11.5
最高光出力 (W)	2.5	0.4

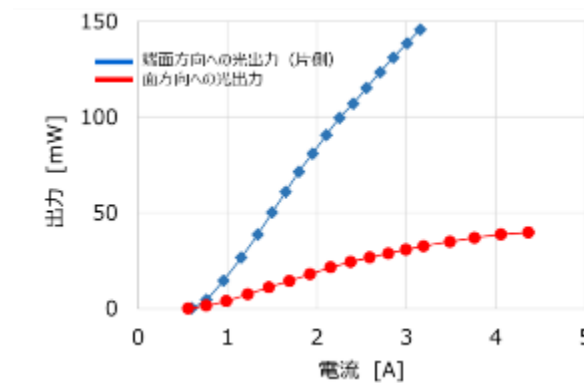


図 3.3.3.25 作製した PC 面発光 QCL の電流-光曲線。

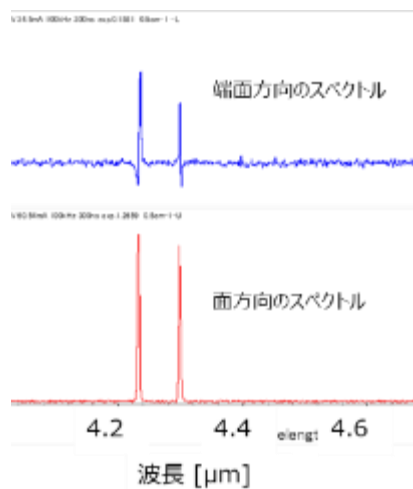


図 3.3.3.26 作製した PC 面発光 QCL の発振スペクトル。

さらにこうした面発光 QCL を放熱性良く実装することで光出力の向上を狙うために、フリップチップ実装の検討を行った。面発光素子の周辺は、へき開しチップ化した際に、チップ周辺の絶縁膜が剥離し接合材と接触することを回避するために、図 3.3.3.27 に示すように接合材 In の領域を 1.2mm 角で制限したマウントを製作した。この In 材の領域に合わせて面発光素子を実装するために図 3.3.3.28 に示す 2017 年に導入したフリップチップボンダーを用いて実装した。この結果、面発光素子の電気特性を損なうことなく、素子全面をマウントと接合することが可能となった。

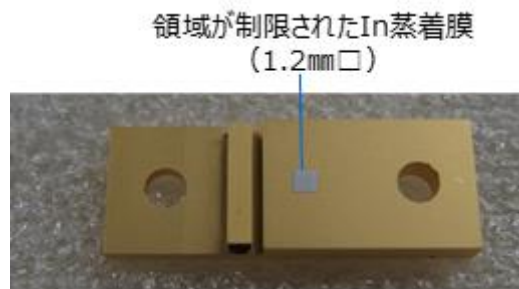


図 3.3.27 領域が制限された In 接合材。

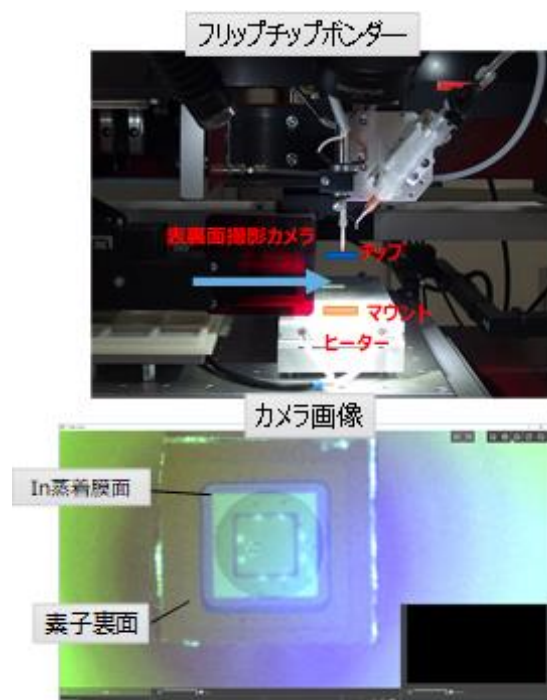


図 3.3.28 フリップチップボンダーとそのカメラ画像。

また、図 3.3.3.29 に示すように低熱抵抗化を目的にダイヤモンドサブマウントの適用を検討した。先に記載したように、東京工科大の熱解析によりダイヤモンドサブマウントの適用することで、低熱抵抗化に効果があることが確認されている。この結果を受け、厚み 0.6mm、熱抵抗 1000W/K のダイヤモンドサブマウントを適用した。

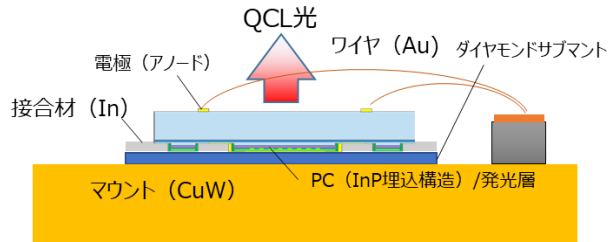


図 3.3.29 面発光素子へのダイヤモンドサブマウントの適用。

素子のPC形状は、5角柱を用いている。さらに、活性層内の発光層のSiドーピング濃度はこれまでの5倍である $5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ である。電流-出力特性を図3.3.30に示す。ダイヤモンドサブマウントを用いた素子は、高電流域まで出力が伸びている。これは、放熱性が向上し、投入電力に対する素子温度上昇が抑制されたためと考える。グラフにおいて光出力増加の傾きが異なっているが、これは評価した素子が異なるウェハのもので格子定数が異なっているからであり、光取り出し効率が相違しているためと考える。ダイヤモンドサブマウントを有する素子の方が、傾きが低いにもかかわらず出力291mWが得られた。

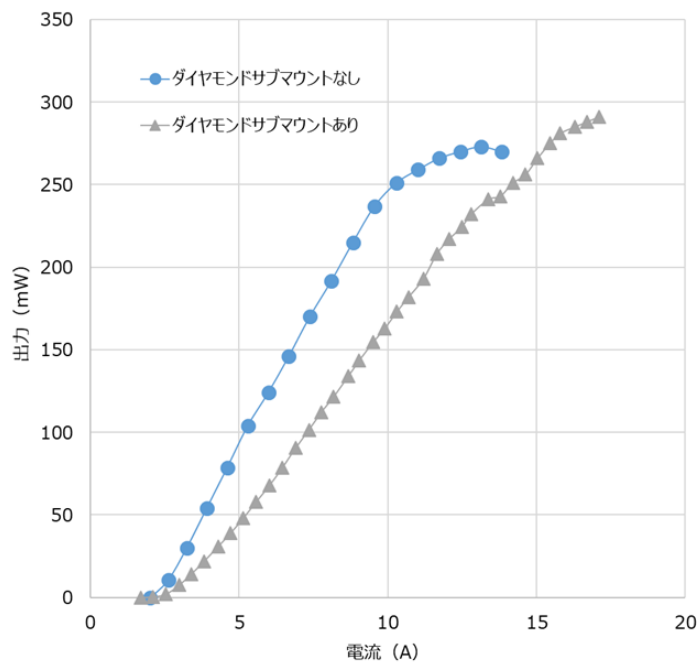


図 3.3.30 電流-出力特性。

### 3.3.3.3 PC 面発光素子

#### (1) PC 面発光素子 作製技術検討

PC 面発光型 QCL における、PC の役割は 2 つある。一つは、QCL の発光層近傍に存在できる光を特定の波長に限定し閉じ込めることで、シングルモード(単一波長)でのレーザ発振を誘起する役割。もう一つは発振したレーザ光が垂直方向に射出されるように、光の伝搬方向を制御する役割である [3.3.2~3.3.4]。こうした制御性は、電磁界シミュレーションを用いて PC の形状、大きさ、周期性、高さ、材質などのパラメータを計算することで設計でき、NIMS にて詳細な検討が継続して進められている。PC のこうしたパラメータは、試作・評価を繰り返してデータを蓄積して

フィードバックをかけ、設計と試作のずれなどを把握・補正することで適正化される。そうした理由から現段階では、PCの形状や大きさについては複数の候補を並行して検討した。

PCの作製工程を述べる。PCの材質は、加工の困難度、面発光QCL構造に適用できる材料であること、またその際の放熱性を高くできること、などの観点で検討し、InGaAsを選択した。まず、厚さ $1.0\mu\text{m}$ のInGaAs層に対し、厚さ約 $0.4\mu\text{m}$ の $\text{SiO}_2$ 層を成膜する。EB描画装置を用いて、この $\text{SiO}_2$ 層に、大きさが $1\mu\text{m}$ 強の円柱状、または三角柱状のPCが正方格子配置になるようにリソグラフィを行う。PCの詳細な大きさは、制御したい波長や光取り出し角度に従った設計事項である。ドライエッチング手法で $\text{SiO}_2$ 層をエッチングし、パターンニングする。PC形状にパターンニングされた $\text{SiO}_2$ 層をハードマスクにして、改めてドライエッチング手法でInGaAs層を円柱または三角柱状に加工する。この際、柱の高さ、すなわちエッチング深さも波長や光取り出し角度に影響する設計事項であり、加工時の制御性が重要になる。図3.3.3.31に、試作した円形型PCと三角形型PCのSEM観察像を示す。個々のPCの大きさばらつきや、周期性のブレなどは観察されず、均一性の高いPCが作製できていることが観察できる。こうして作製したPCは、PC単体での特性を評価するために光学評価を行い、設計にフィードバックをかけた。

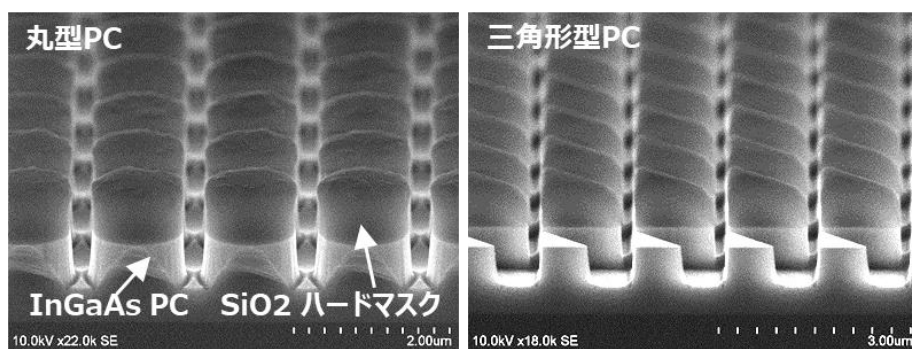


図 3.3.3.31 EB描画装置で作製したPCの一例。

面発光型QCLの素子構造は、レーザとして動作させるための電流注入構造や光閉じ込め構造に加えて、PCとその周辺の材料の選択やPCと発光層との位置関係、さらには素子の放熱性などを考慮して設計する必要がある。PCと発光層、クラッド層の位置関係や、光閉じ込め効果の影響などは、電磁界解析法を用いて行う。試作に際しては、こうした各層の位置関係によって、工程と手法が異なる。このため異なる素子構造を検討する際は、別個の試作ロットを流品して対応した。

図3.3.3.32に、面発光型素子の表面と裏面の構造模式図を示す。表面中央に格子柄で示している箇所が、PCが存在する領域である。PCが存在する領域の活性層のみに電流を印可する目的で、電流狭窄構造としてメサ構造を形成してある。PCのフォトリソニックバンドによって、活性層内に存在できるQCLの波長が限定される。この時、QCLエピウエハのゲイン波長とPCが許容する波長が一致するように設計しておくことで、PCが制御する波長でのレーザ発振を誘起することができる。活性層に均一に電流を注入したい都合で、素子表面はTi/Au電極で覆われている。本検討では $4\mu\text{m}$ 帯のQCLウエハを使用しており、Ti/Au電極はこの波長域で高い反射率を有するため、QCL光は素子裏面側から射出される。そのため裏面電極は口の字状の開口電極となっている。表面のPCメサ構造の周辺には、発光に寄与しないダミーの口の字状のメサ構造を備えた。裏面からレーザ光を取り出す面発光素子を実装する際は、表面側をヒートシンクにハンダ接続するため、PCメサ領域のみに物理的な応力が集中し破損する懸念と、素子が傾いて実装されてしまう懸念とを回避する目的で、このダミーメサ構造を設けている。

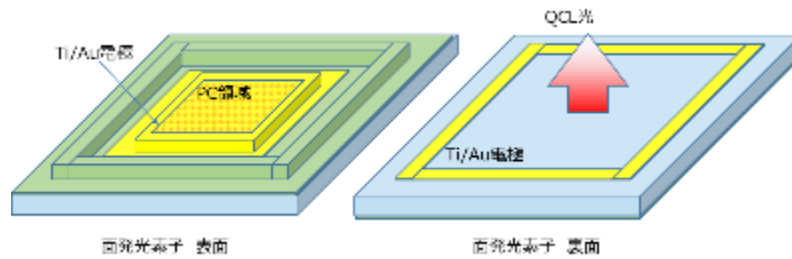


図 3.3.3.32 PC 面発光 QCL 表面、裏面の構造模式図。

図 3.3.3.33 に断面構造の模式図を示す。素子の内部構造、すなわち PC と活性層、クラッド層、金属電極などの位置関係の設計は、PC の設計と同様に、試作・評価を繰り返して適正化を進めるべき項目である。現段階では、面発光型素子の構造は 2 通りの候補について並行して計算による設計検討を行った。

1 つは図 3.3.3.33 左に示した、PC を電極金属で被覆する構造である。この構造は、下クラッド層/活性層/上クラッド層/PC 用 InGaAs 層の順にエピされた QCL ウエハを使用し、最表面の PC 用 InGaAs 層をドライエッチングすることで InGaAs PC 層を形成する。その後、電流注入用の Ti/Au 電極を PC の上に直接成膜する手順で作製できる。この構造は、プロセス手順が少ないために作製プロセス条件の策定に有利であり、また良品歩留まりを高くできることが期待でき、評価とフィードバック、ひいては研究の加速が期待できる。また金属電極が直接 PC 上に形成されているため、実装時の放熱性を高くできる期待が持てる。一方で、PC と活性層の間に InP 上クラッド層が存在するために、PC の活性層への制御性が低下する懸念がある。レーザ発振に必要な活性層への十分な光閉じ込めを実現するためには InP クラッド層を  $1\mu\text{m}$  以上厚くすることが望ましい。しかし、クラッド層が  $1\mu\text{m}$  以上厚い、すなわち PC と発光層の距離が  $1\mu\text{m}$  以上離れることになるため、PC の制御性低下が懸念される。さらに PC 上に金属電極が形成されているため、金属による QCL 光の吸収ロスが懸念される。

もう 1 つは図 3.3.3.33 右に示す、PC を再成長 InP 層で埋め込む構造である。この構造は、下クラッド層/活性層/PC 用 InGaAs 層の順にエピされた QCL ウエハ、つまり上クラッド層が存在しないエピウエハを使用し、最表面の PC 用 InGaAs 層をドライエッチングすることで InGaAs PC 層を形成する。その後、結晶再成長埋め込み手法を用いて、InGaAs PC 層を埋め込む形で InP クラッド層を形成し、その上に電流注入用の Ti/Au 電極を成膜する手順で作製することができる。この構造は、PC と活性層が隣接して距離が近く、PC の影響が活性層に強く及ぶことが期待でき、PC で制御した波長でのレーザ発振に有利となる。また再成長手法で形成する InP クラッドの厚さは PC の制御性に影響を与えないため、レーザ発振を誘起する十分な厚さ、例えば  $1\sim 3\mu\text{m}$  の厚さの InP クラッド層を確保することができる。さらに、3.3.2.1 節で述べたように、InP 埋め込み手法には高い放熱性も期待できる。一方で、InP クラッド層を形成するために結晶再成長埋め込み工程が必要になる。この工程は、MOCVD や MBE などの結晶成長装置を使用するため、プロセス手順が複雑になりコストが高くなる。また InGaAs PC を InP で埋め込む層構造をとるため、PC 部分の周期的な屈折率差を大きくすることができない。そのため PC によるフォトニックバンド設計の困難度が高い。

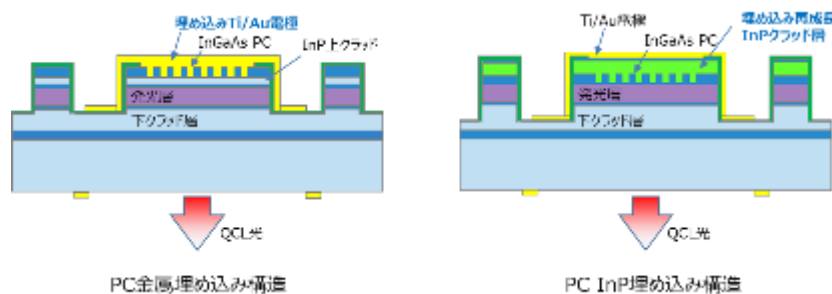


図 3.3.3.33 PC 面発光 QCL の断面構造の模式図。

こうした素子内部の構造起因の有利不利を、計算検証と比較して定量的に把握するために、InP埋め込み型のPC面発光QCLの試作評価を行った。

前述の通り、エピウエハは下クラッド層/活性層/PC用InGaAs層の順にエピされた、つまり上クラッド層が存在しない、波長約 $4.4\mu\text{m}$ のQCLエピウエハを使用した。PCを具備した面発光型QCLを作製するには、主として次のプロセス手順を踏む：①PC形成、②電流狭窄メサ形成、③絶縁膜形成、④表面電極形成、⑤裏面電極形成である。最初に、3.3.2節で述べた手順によってInGaAs PCを形成した。PCの形状は丸型、すなわち円柱状InGaAs PCとした。PCの格子定数はQCLの波長に合わせて約 $1.3\sim 1.4\mu\text{m}$ 、PCの直径は約 $1.0\mu\text{m}$ と設計した。計算による設計と、試作との差異を把握する目的で、PCの格子定数は条件をふって複数種類作製した。次にMOCVDによって結晶再成長法を用いて、PC層をInP層で埋め込んだ。図3.3.3.34にInPで埋め込まれたInGaAs PCの断面SEM写真を示す。大きな空隙なく、InGaAs PCがInPで埋め込まれていることが観察できる。PCを形成したのち、電流狭窄用のメサ構造を形成し、絶縁膜と金属電極を成膜した。最後に、個別レーザ素子として小片化し、実装と特性評価を行った。図3.3.3.35に完成したPC面発光QCLの断面SEM像を示す。

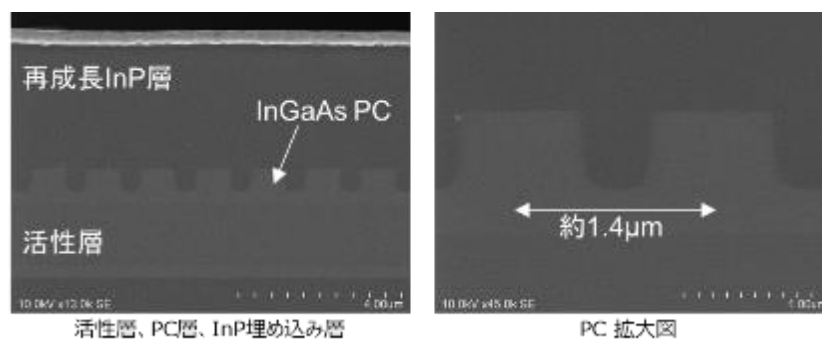


図 3.3.3.34 InP埋め込みされたInGaAs PCのSEM観察像。

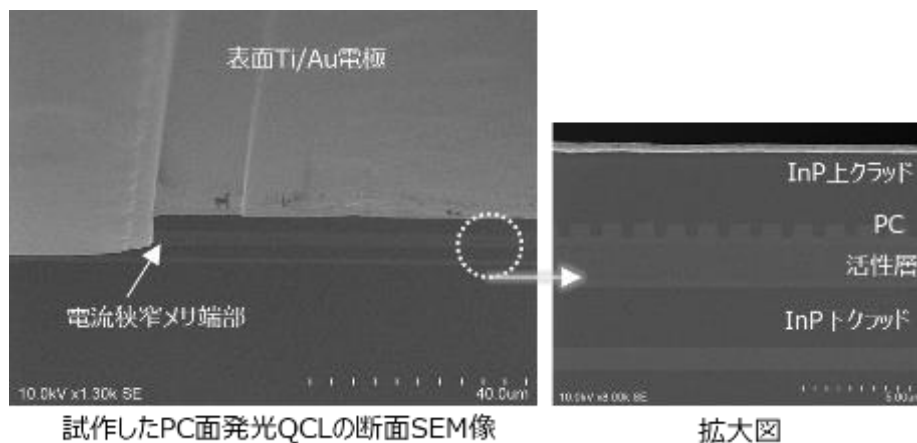


図 3.3.3.35 試作したPC面発光QCLの断面SEM像。

PCの制御性は、PCの形状、大きさ、周期性、高さ、材質などのパラメータに依存し、NIMSにて詳細な検討が継続して進められており、設計最適化を加速するには、試作・評価によるデータのフィードバックが重要となる。そこで、QCL素子の発振波長とPCによって制御される波長を一致させるために端面発光QCLにPCを連結した評価用のPC面発光QCLを設計・試作し、PC設計及びQCL素子設計へのフィードバックを行った。図3.3.3.36に、検討した端面発光QCLにPCを連結した評価用のPC面発光QCLの設計図面を示す。端面型QCLの先端にPCのみ形成される領域が接続されており、この部分のPCを評価することで、電流分布や熱の影響を考慮することなくPCの評価が可能である[3.3.5, 3.3.6]。



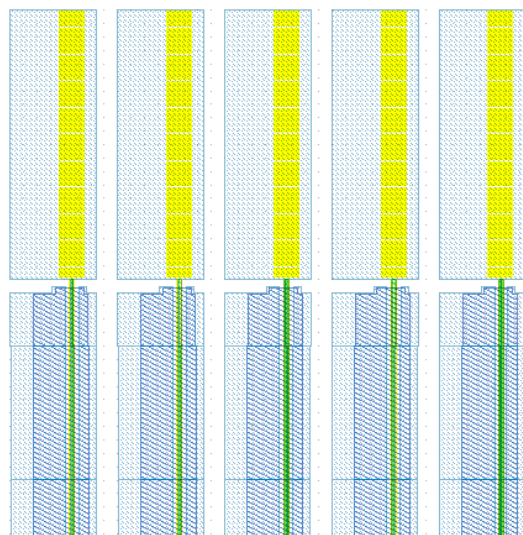


図 3.3.3.36 評価用の PC 面発光 QCL の設計図面。

このようにして、1.2にて確立された PC の設計及び作製プロセスを導入し、PC の試作と評価を進めた。また、QCL 素子上に PC を形成し、面発光素子を作製するための一連のプロセスの最適化を進めた。

前述の通り PC の設計最適化を進めているが、設計パラメータは、数 nm～数十 nm のオーダーで PC の形状や大きさを指定するため、設計通りに実際の PC を作製するプロセス技術の開発が必要となる。またそうした PC 部分の作製技術開発のみならず、PC 面発光 QCL 素子試作も並行して検討加速する必要がある。こうした理由から、短いプロセス時間で PC のパターニングを可能にして研究を加速する技術の検討として、1.2 で記載したナノインプリントリソグラフィの検討と、マスク露光によるフォトリソグラフィによる PC 作製技術の検討を行った。図 3.3.3.37 に、検討に使用したガラスマスクの設計図面を示す。PC 面発光 QCL 試作ロットに適用しているパラメータを EB 描画によってガラスレチクルにパターニングし、等倍のフォトリソグラフィによって PC パターニングの可否を検討した。図 3.3.3.38 に、フォトリソグラフィ後の円柱形状 PC レジストパターンの光学顕微鏡写真と SEM 観察の結果を示す。レジストが周期構造を示していることが分かる。このサンプルの SEM 観察の結果を設計値と比較した結果、円柱形状のレジストパターンが確認できるものの、その他にも本来の設計には無いパターンも存在している事が確認できる。また PC の形状によっては例えば二等辺三角形型の PC においてはパターン消失が散見された。このように、設計通りのパターンが安定して形成されていないことから、等倍のフォトリソグラフィで PC を短時間で形成することは困難と分かった。従って、フォトリソグラフィ手法と EB 描画手法の双方を比較した結果、PC 面発光 QCL の作製に最適な PC 作製プロセスとしては、フォトリソグラフィではなく EB 描画による直描パターニングが最適なプロセスであると決定できた。設計の最適化が完了したのちはナノインプリント手法での加速は期待できる。

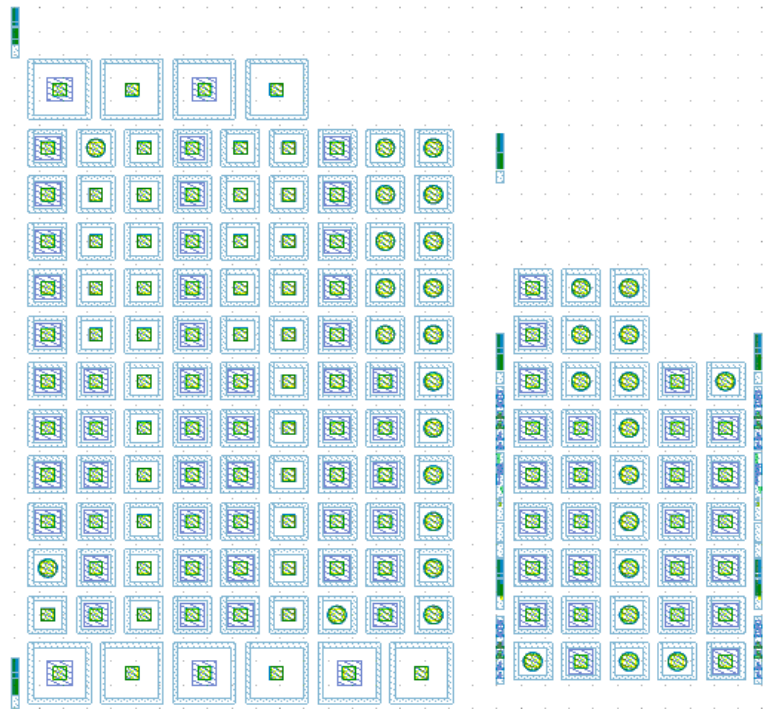


図 3.3.37 検討に使用したガラスマスクの設計図面。

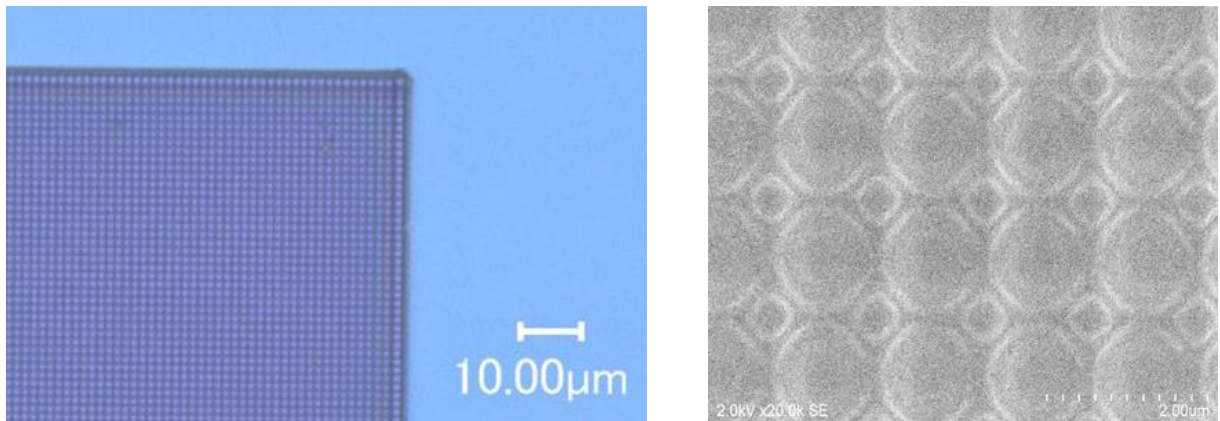
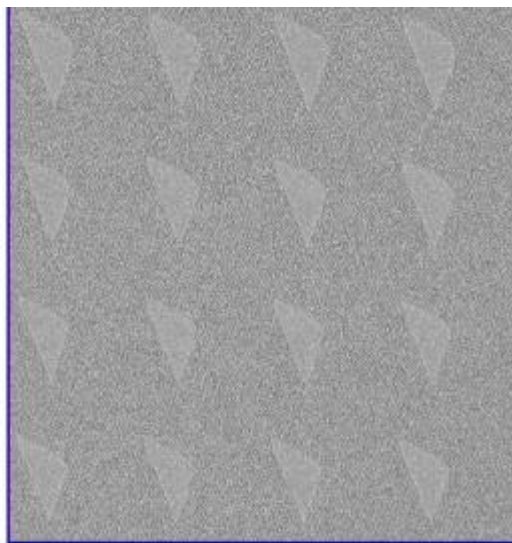


図 3.3.38 レジストパターン of 光学顕微鏡写真（左図）と SEM 像（右図）。

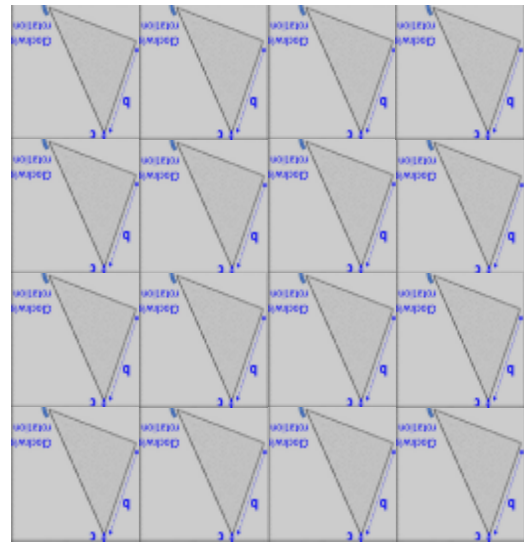
PC 作製プロセスの加速検討と並行して、PC を設計通りの形状・サイズで作製するための技術開発も行った。PC は、厚さ  $1.0\mu\text{m}$  の InGaAs 層をドライエッチングで掘ることで形成するが、EB 直接描画パターンを正確に InGaAs 層に転写するために、数十 nm の薄膜 Ni 層と厚さ約  $0.6\mu\text{m}$  の  $\text{SiO}_2$  層の 2 段階のハードマスクへの転写工程を経る。そののち、ドライエッチング工程における塩素系残渣を除去するために、リン酸系薬液によるウェット表面トリートメントを行う。こうした工程を重ねるごとに、EB 直接描画装置に入力された PC の設計値と、実際の出来上がり寸法には乖離が生じ得る。PC の構造を設計通りに、高精度かつ垂直性高く形成するため、ドライエッチング前のレジストパターンを意図的に変形しておき、ドライエッチング後には所望の形状が得られる手法を開発・導入し、最適化された PC を QCL 素子上に実現する必要がある。現状の手法での出来上がりの PC 寸法と入力設計値の差分を正確に評価できれば、あらかじめ大きくしておくレ

ジストパターン寸法を把握できる。この目的で、最終的な PC の出来上がり寸法を表面スライスアンドビューSEM 手法（以下 S&V）で観察した。図 3.3.3.39 に、InP 埋め込み素子構造として試作された PC-QCL7 の S&V SEM 写真と、設計値を比較して示す。PC-QCL においては、三角形型 PC の設計値と比較して出来上がりの寸法が小さくなっていることがわかる。こうした設計と出来上がり寸法の乖離の程度は PC の形状にも依存するため、PC の詳細設計が改善されるに伴ってその都度、出来上がり寸法を S&V 手法で評価し寸法差を是正したレジストパターンを使用することで、最適化された PC を QCL 素子上に実現できる。

次に、光出力向上に向けた電極構造の最適化を検討した。PC 面発光 QCL 素子においては PC への電流注入用に Au など構成される電極構造を作製するが、Au は赤外波長域に対して吸収又は厚さによっては反射特性を示すため、光射出面に電極構造が存在すると光取出し効率を低下させる要因になる。サブ  $\mu\text{m}$  オーダの精度で作製される PC への悪影響を抑制しつつ、電流注入に十分な電極面積を確保するための電極配置と構造作製技術の最適化を行った。



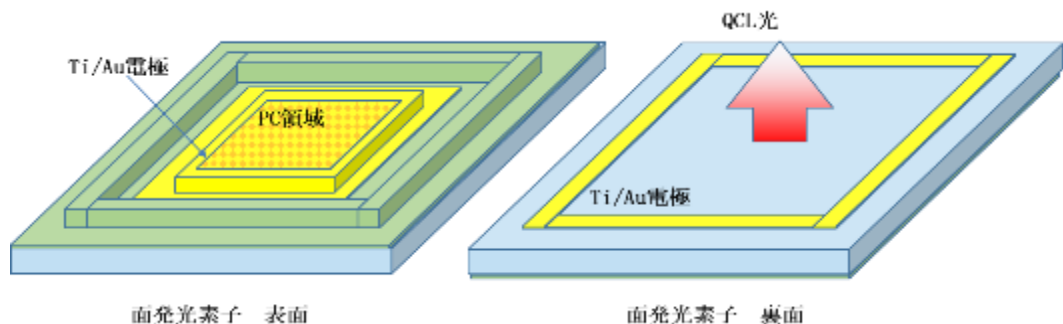
PC-QCL : S&V SEM 写真



設計値図面を、SEM と同数配列した比較

図 3.3.3.39 S&V SEM 写真と、設計値。

図 3.3.3.40 に、PC 面発光 QCL の素子構造の俯瞰での模式図を示す。素子表面には Ti/Au 電極が全面に形成されており、活性層で生じたレーザー光の内、表面方向に向かった光はこの金属電極で反射され、裏面方向に向かう。裏面には開口電極が形成されており、レーザー光は開口部分から面方向へ射出される設計になっている。



面発光素子 表面

面発光素子 裏面

図 3.3.3.40 PC 面発光 QCL の素子構造模式図。

この際、素子内部を通過するレーザ光は、例えば InP 基板などの各層で一定量吸収され、ロスとなる。そうした吸収ロスを減らして素子の光出力を向上するためには、各層における吸収係数を低減するか、または各層の厚さを薄くする必要がある。この目的で、素子の InP 基板を研磨し、光出力を向上する検討を進めている。裏面電極が研磨後の基板全面に成膜すればよい仕様であれば、従来の半導体レーザで一般的に用いられる工程である。しかし PC 面発光 QCL においては裏面に開口電極を形成するため、InP 基板研磨後の物理強度が低い状態のサンプルに、電極パターンニングを行う必要があり、その試作検討を行った。

電極金属は赤外域の QCL 光に対して吸収を持つため、レーザ光射出箇所すなわち PC 領域の垂直方向真下の裏面には金属が存在しない、つまり遮蔽物の無い開口電極が形成されていることが光出力向上の観点では望ましい。しかし、基板研磨を行い表面と裏面の距離が近くなったことで、電流の面方向の拡散が不十分であると予想される素子においては、PC 領域の垂直方向に電極金属が存在しない場合、PC 領域に電流を均一性良く注入できない可能性がある。PC 領域への電流注入が不均一であると、ゲインや発熱に面内分布が生じ、PC 面発光 QCL のシングルモード発振に悪影響を与える懸念が生じる。こうしたことから、開口電極の開口部分、すなわち PC の垂直方向の位置にも電流注入を改善するための電極が多少なりとも形成されている事が望ましいが、前述の通り電極金属は光吸収ロスにつながる。そのため、電流注入の均一性と、光吸収ロスの低減を鑑みて、電極配置設計の最適化が必要になる。本項では、設計を実現するための試作検討について述べる。図 3.3.3.41 に、InP 基板研磨後に、レジストリフトオフ法によって電極パターンニングしたサンプルの光学顕微鏡写真全体と電極パターン詳細を示す。幅  $10\mu\text{m}$  のグリッド細線を有する開口電極を試作し、いずれのパターンも設計通りに形成できることを確認した。裏面電極については設計を反映したパターン電極を形成することが可能になった。

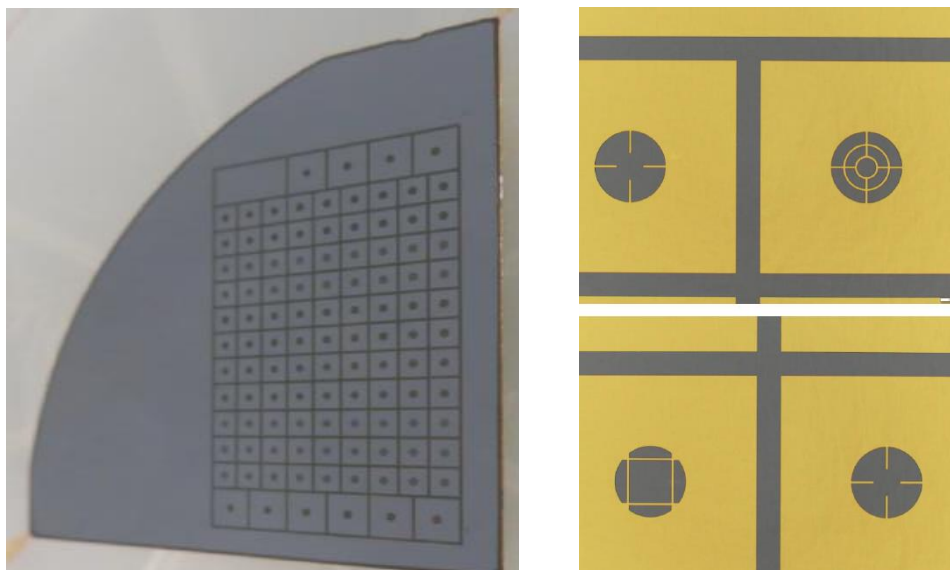


図 3.3.41 InP 基板研磨後の裏面に形成された開口電極（左図：全体、右図：詳細）。

## (2) PC 面発光 QCL 素子のレーザ発振評価

先の PC 面発光素子 作製技術検討で述べた方法で PC 面発光素子を作製する前に、PC の格子定数を決定するために発振波長を測定した。面発光 QCL を製作するエピウエハで端面発光 QCL を作製し、波長スペクトル測定を行った結果を図 3.3.3.42 に示す。この結果から、格子定数は発振中心波長  $4.387\mu\text{m}$  を中心として  $\pm 0.1095\mu\text{m}$  の範囲で設計した。た。この設計値で製作された PC 構造をもつ面発光 QCL 素子を評価した。

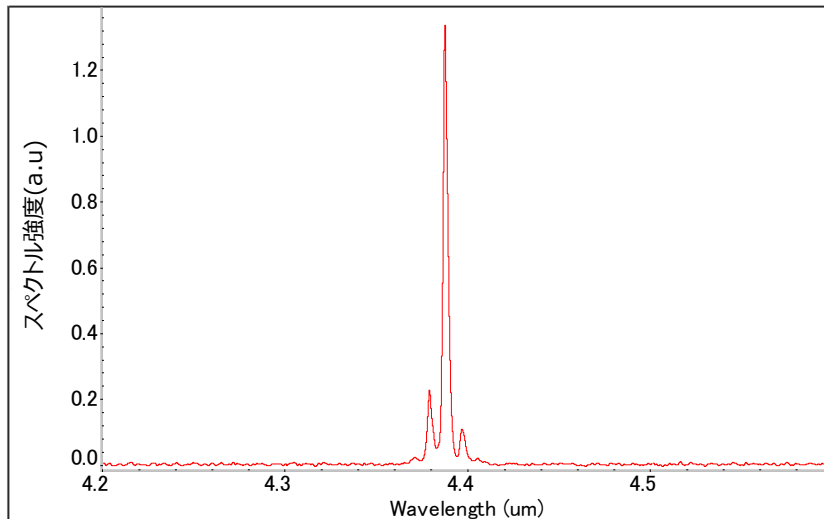


図 3.3.3.42 端面発光 QCL の発振波長スペクトル (77K)。

PC 面発光 QCL 素子は CuW のマウントに In を介してアノード電極面側を上、PC 面側を下として図 3.3.3.43 のように実装した。

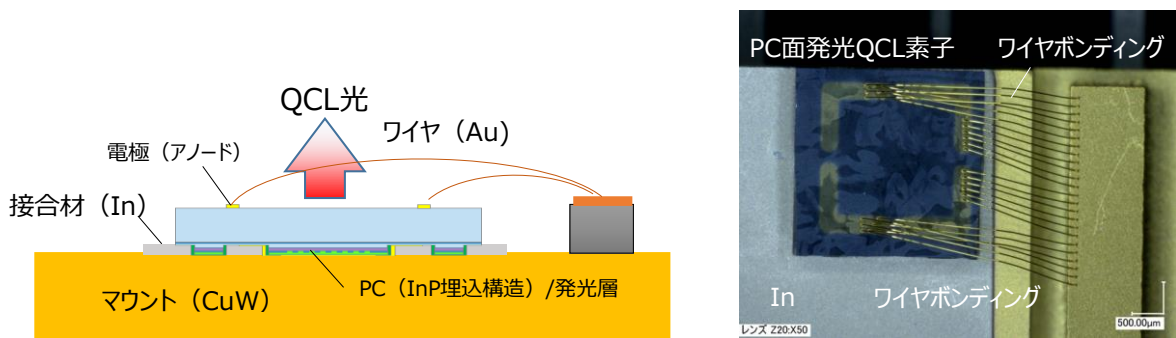


図 3.3.3.43 PC 面発光 QCL 素子の実装状態。

導入した高出力評価装置にマウントに実装した PC 面発光 QCL 素子を設置し適正構造の検討を実施した。素子冷却温度 0°C で評価を開始したが、発振には至らず今回は真空断熱デュワーに素子を設置し、液体窒素で 77K に冷却し評価を行った。評価は波長スペクトルを FTIR で、近視野像 (NFP) をレンズ付きカメラと遠視野像 (FFP) をレンズレスのカメラでそれぞれ実施した。近視野像測定に用いたカメラは導入した設備である。図 3.3.3.44 に FFP 測定の様子を示す。

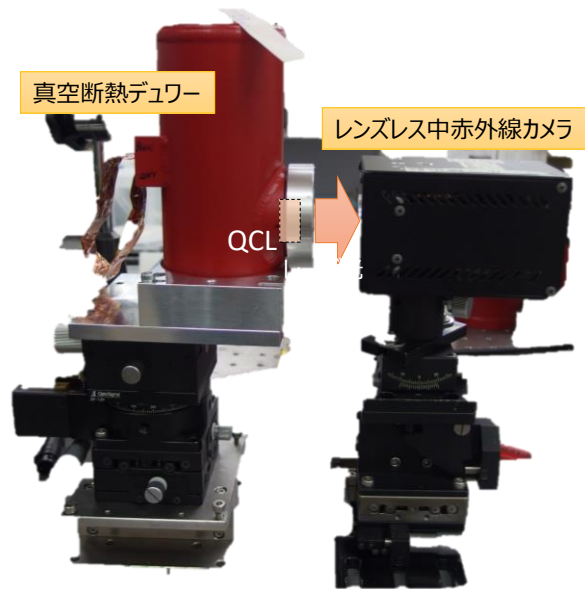


図 3.3.3.44 PC 面発光 QCL 素子の評価 -遠視野像 (FFP) 評価。

図 3.3.3.45 は各波長で設計された PC 構造をもつ面発光素子に対して波長スペクトル、NFP、FFP を測定した結果である。

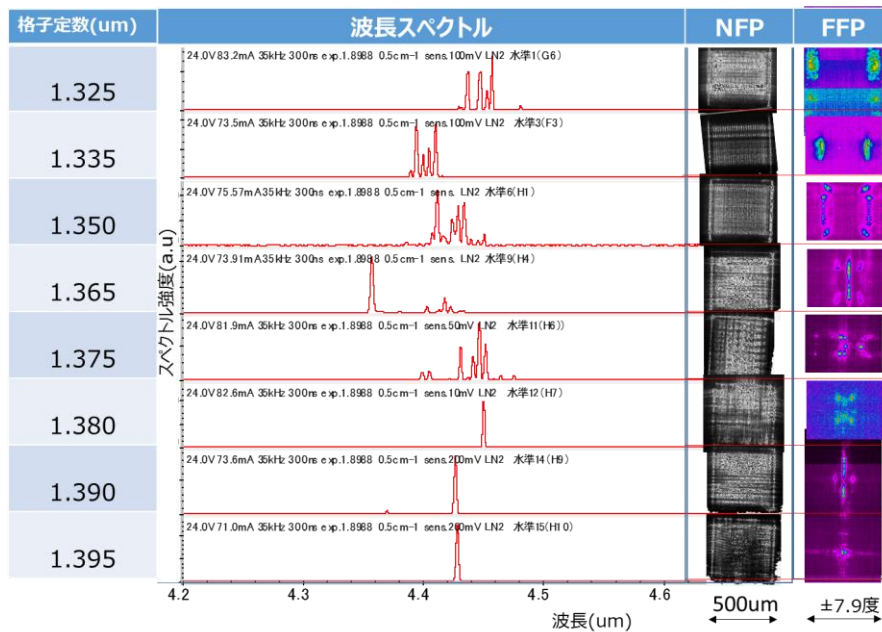


図 3.3.3.45 PC 面発光 QCL 素子の波長スペクトル、NFP、FFP 評価結果。

FFP の結果から、光は発光面に対して垂直に出射しており格子定数の変化とともに単一横モードに漸近していることがわかる。格子定数  $1.395 \mu\text{m}$  において広がり角は約 2 度であることが分かった。端面発光 QCL 素子の広がり角は  $30 \sim 40$  度程度であることから非常に狭いことが確認された。また、NFP 結果から発光は PC 部とメサ部の端面で確認できる。PC による発振で観察される波長スペクトルは理論上活性層とバッファ層に局在する E、A1、B1 モードの 6 つである。今回のスペクトル測定結果ではこの 6 つのモードとメサ部の端面が共振器となって確認されるモードも含まれていると考えている。

格子定数  $1.395 \mu\text{m}$  の PC 構造を持つ面発光 QCL 素子について出力特性を測定した結果を図 3.3.3.46 に示す。12A で出力 10mW が得られ、レーザー発振を実現した。しかし発振閾値電流密度は 200

1.9kA/m<sup>2</sup>と端面発光 QCL 素子より高く、メサ部発光を抑制し活性層のゲインを高くし高出力素子を開発していく。

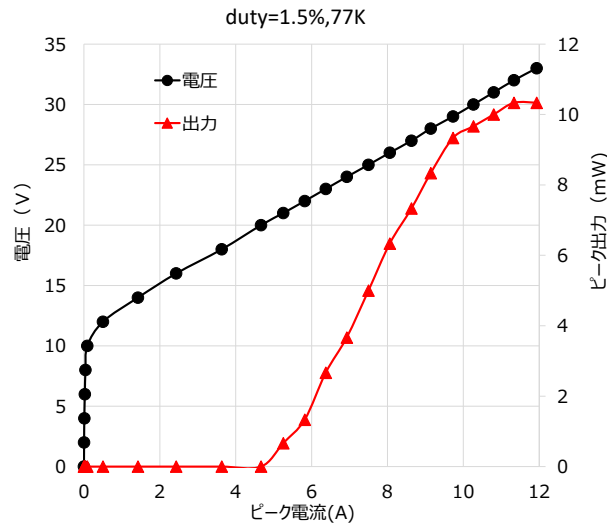


図 3.3.3.46 PC 面発光 QCL 素子のレーザ発振特性。

面発光の実現に必須な PC の構造設計を行うため必要な構造パラメータを端面発光型 QCL と面発光型 PC とを結合した構造を新規に開発、試作し、光学特性を評価した。PC 構造の表面に直交した方向にレーザ光が出射されており、レーザ光の遠視野像とスペクトルは PC 構造の特性を反映した結果となっていた。面発光型 QCL を実現するための設計パラメータの確からしさが検証できた。今回の手法は構造変更や波長変更においても活用できると考えている。

PC 評価用の端面発光型 QCL と PC の連結構造の評価構造試作と並行し、利得測定より求めた利得中心波長、利得幅を設計にフィードバックし、試作における精度を向上するとともに、試作により得られた遠視野像、発振モードから PC のモード周波数と QCL の発振波長を合致させる構造の適正化を進めることができ、単一縦モードの発振を実現した。

### (3) 低熱抵抗膜による特性向上検討

低熱抵抗膜による QCL の放熱特性向上を図るため、低熱抵抗成膜装置を導入した。図 3.3.3.47 に、その外観を示した。本装置は 3 インチ基板上に、到達真空度  $7 \times 10^{-8}$  Pa にて、基板加熱温度最高 850°C の条件下で、低熱抵抗膜を成膜できる。低熱抵抗成膜装置を用いた試作工程では、従来の MOCVD 法に代わり、MBE 法による InP 再成長の検討を行う。このため、PC 構造を施した QCL ウェハ上に InP 再成長を試みた [3.3.7, 3.3.8]。厚さ約  $1 \mu\text{m}$  の InGaAs コンタクト層に、円柱 (直径  $0.8 \mu\text{m}$ 、高さ  $0.6 \mu\text{m}$ 、ピッチ  $1.5 \mu\text{m}$ ) を周期的に形成した PC 構造の SEM 鳥観図を図 3.3.3.48 に示す。

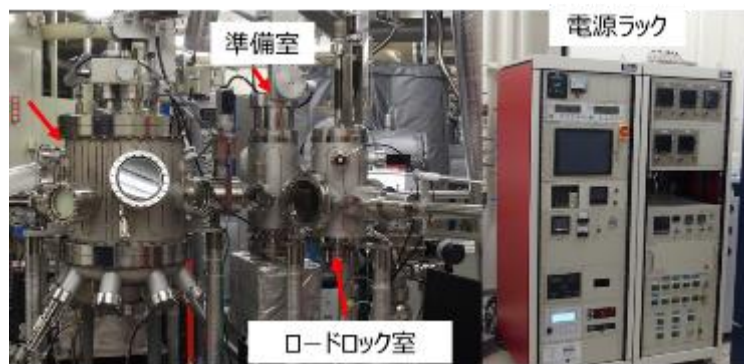


図 3.3.3.47 導入した低熱抵抗成膜装置。

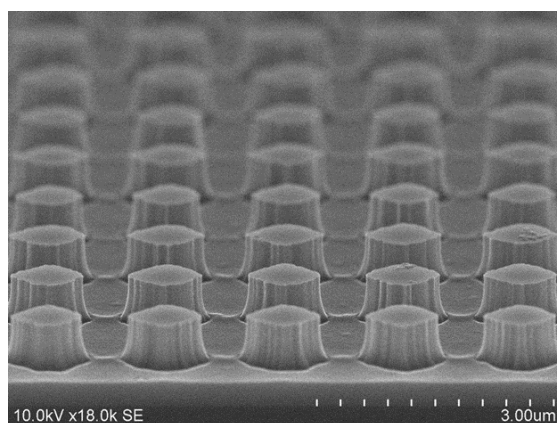


図 3.3.3.48 PC 構造（円柱）を施した QCL ウエハの鳥観図（SEM 観察）。

このウエハを再度、東芝所有の MBE 装置に入れて、InP を約 18 時間（設定膜厚  $5\mu\text{m}$ ）再成長した。図 3.3.3.49 は、再成長後のウエハ表面の干渉顕微鏡写真である。左の写真（x5 倍率）において、1 mm 角の内側が PC 構造を施した領域である。一方向（縦方向）に周期的なパターンがうっすら見え、PC 構造を反映したモフォロジーであると考えられる。右の写真（x100 倍率）では、小さな段差が見える程度であり、表面は平坦化されていることが分かった。図 3.3.3.50(a) は断面 SEM 観察の写真である。コントラストが濃い部分は InP を表し、薄い部分は InGaAs である。円柱の周辺は、InP でほぼ隙間なく埋め込まれていた。円柱の側面に空洞が見られたが、空洞の大きさは小さく、空洞を起点としたクラックは観測されなかった。図 3.3.3.50(b) は、断面 TEM 観察の写真である。再成長した InP に転位は見られなかった。図 3.3.3.51 の左図は、PC の凸部分に見られた空洞周辺の高倍率写真である。空洞は存在するが、空洞を起点とする転位や欠陥は観測されなかった。図 3.3.3.51 の右図は、PC の凹部の高倍率写真（格子像写真）である。界面にコントラストの違いはあるが、目立った格子の乱れはなく、再成長がスムーズに行われていることが分かった。これらの結果から、MBE 法においても、PC 構造を施したウエハ上の再成長ができることが分かった。これは現在外注で行っている MOCVD 成長と同等であり、光学特性、電気特性、熱伝導特性についても同等と推定できる。これにより高熱伝導膜の効果を確認した。



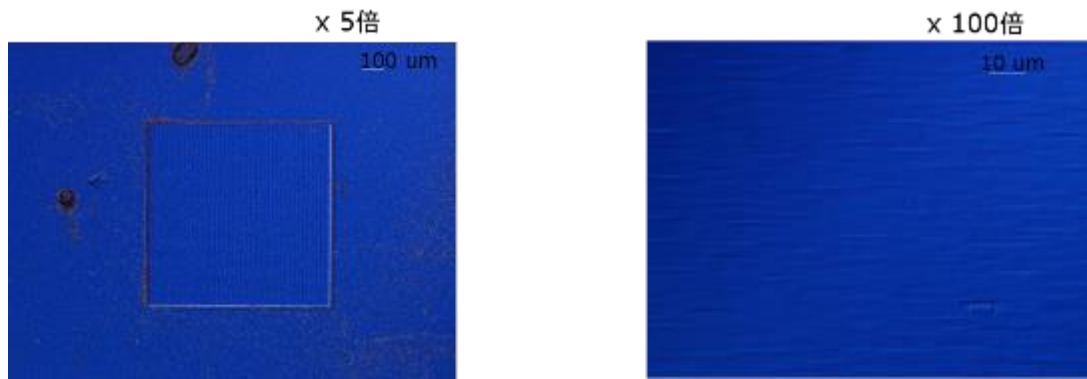


図 3.3.3.49 PC 構造を QCL 上に InP 再成長後の表面写真（干渉顕微鏡観察）。  
左図は、5 倍率レンズの写真、右図は 100 倍率レンズの写真。

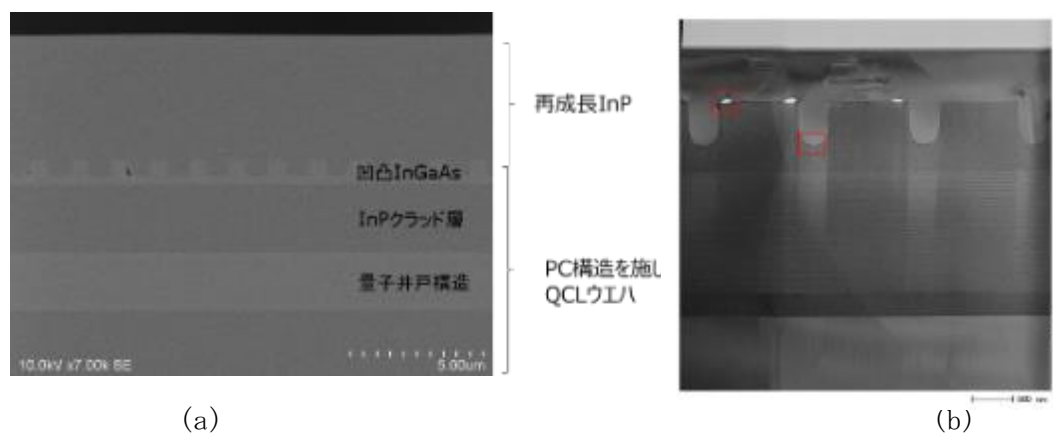


図 3.3.3.50 PC 構造を施した QCL 上に InP 再成長後の  
(a)断面 SEM 観察写真、(b)断面 TEM 観察写真。

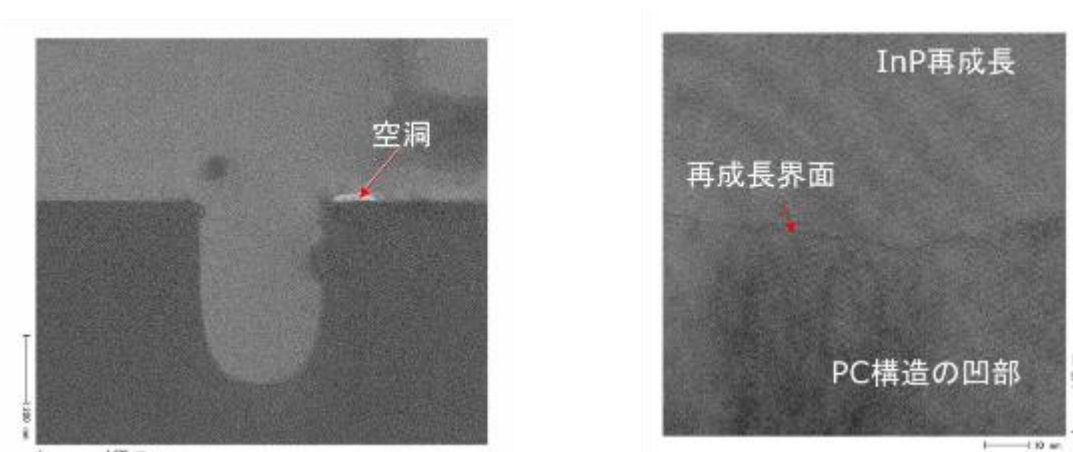


図 3.3.3.51 PC 構造の凸部にある空洞周辺の断面 TEM 観察（左図）と、  
凹部の InP 再成長界面の断面 TME 写真（右図）。

#### (4) PC 面発光素子の高出力化と評価

以下に3.2における面発光素子の高出力化に関して詳細を述べる。図3.3.3.52に正方格子配列、円柱PCのバンドの図を示す。横軸は位置、縦軸は波長である。横軸のX方向（右側）はビームに対して水平方向を表し、M方向（左側）はビームに対して斜め45度方向を表している。面発光 QCLは、 $\Gamma$ 点のバンドエッジモードでのレーザー発振を容易にするように設計されている。図3.3.3.53に示すようにレーザー発振モードの領域を選択して波長測定することで、どのモードが発振しているか

がわかる。図3.3.3.54は、試作した円柱PCの格子間定数 $1.365\mu\text{m}$ の視野角約20度で測定した波長スペクトルと遠視野像の測定結果である。設計値は波長スペクトルに赤線で記載した。設計ではbuffer層とMQW層両方の局在に対応した波長スペクトルが確認できる。

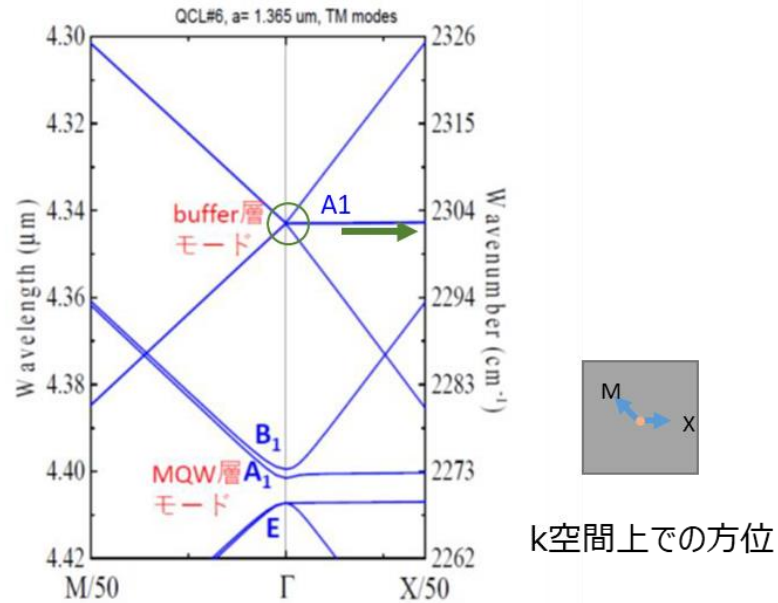


図 3. 3. 3. 52 円柱 PC のフォトニックバンド図。

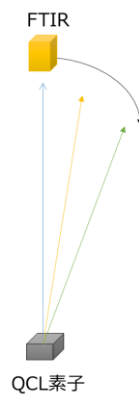


図 3. 3. 3. 53 レーザ発振モードの測定。

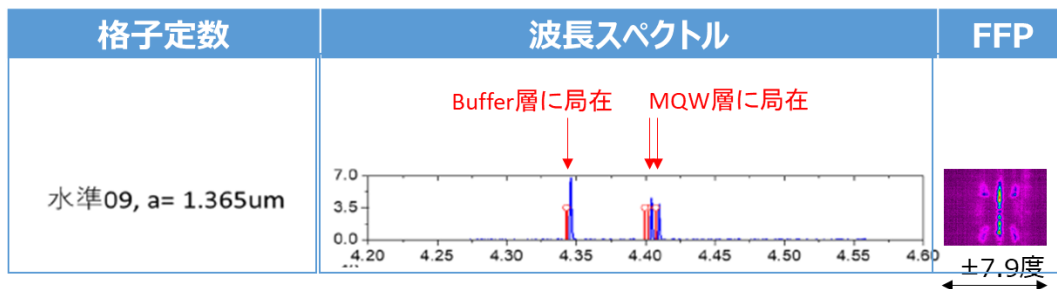


図 3. 3. 3. 54 視野角 20 度における波長スペクトルと遠視野像。

図3.3.3.53の測定を実現するために、図3.3.3.55のように、フーリエ変換赤外分光光度計 (FTIR) の測定視野角をピンホールで $\pm 0.25$ 度とし、Y方向へ1度ステップ (図3.3.3.56 FFP面内の白丸) でスキャンした結果を図3.3.3.56に示す。

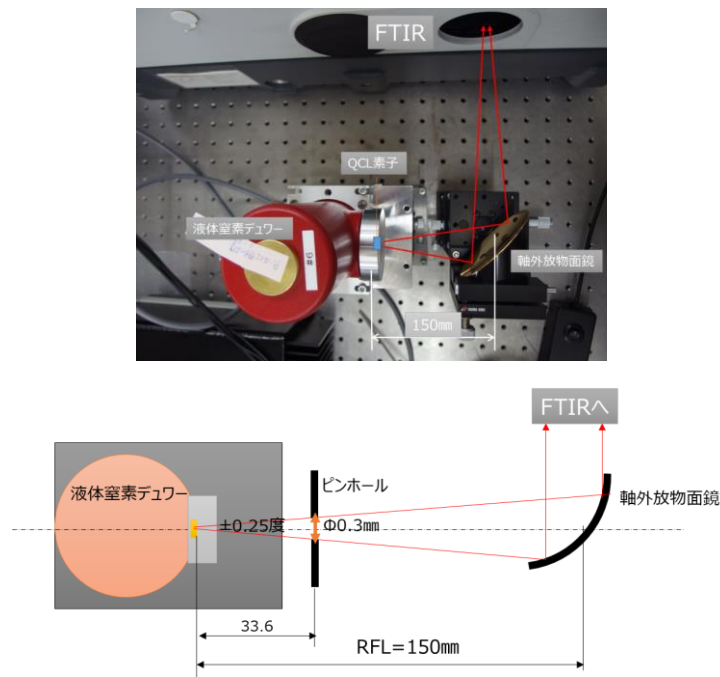


図 3.3.3.55 フーリエ変換赤外分光光度計 (FTIR) の測定視野角をピンホールで $\pm 0.25$ 度とした測定系の模式図 (下図) と写真 (上図)。

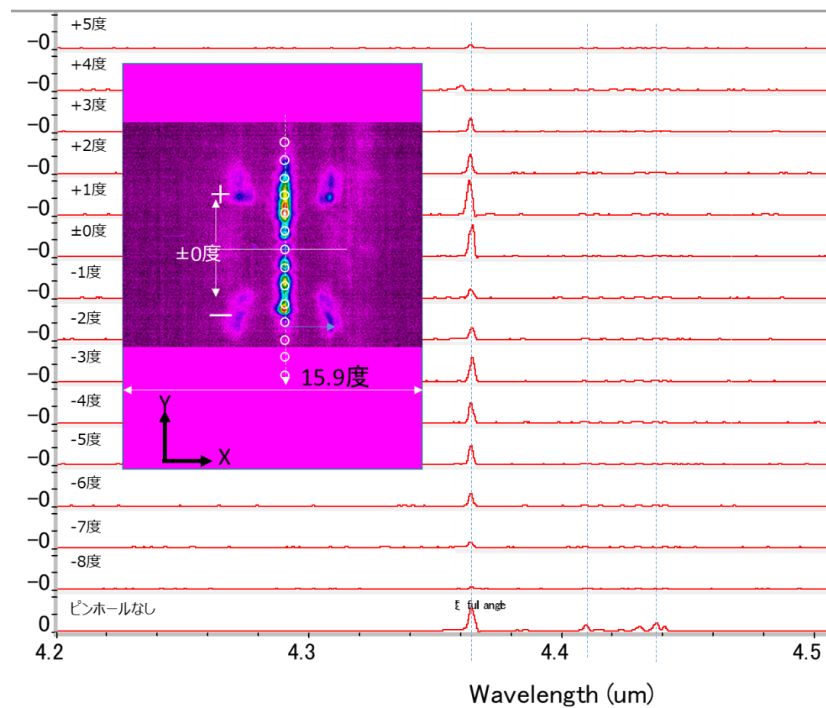


図 3.3.3.56 視野角を制限し測定した波長スペクトル。

ピンホールなし全視野角約20度で確認されていた長波長のスペクトルは観測されなくなり、Y方向にスキャンしても波長は変化しない。図3.3.3.52のバンド図から波長変化がないモードは、 $\Gamma$

点から右方向に移動していることを示しておりbuffer層に局在するA<sub>1</sub>モードは位置が変化しても波長が変化しないことがわかる。一方、素子表面に垂直な方向を0度とし、FFPの周辺にあるモードとしてX方向へ+2度、Y方向へ-2度移動した位置でのモードの波長測定結果を図3.3.3.57に示す。ピンホールを設置しない全視野角の結果から、短波長ピークが消え長波長ピークのみ観測されA<sub>1</sub>モード以外の発振と推測することができる。

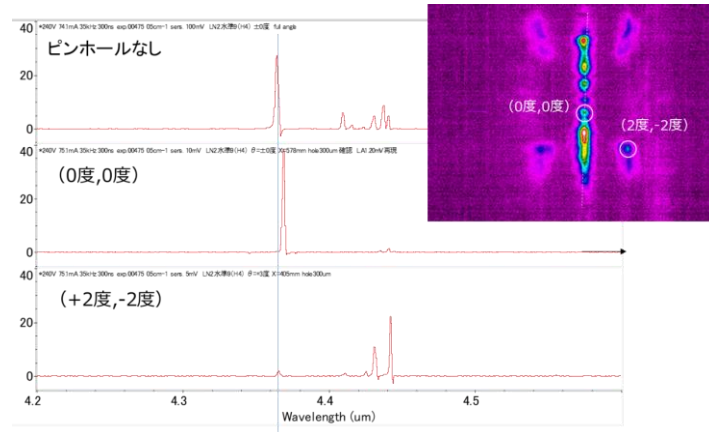


図 3. 3. 3. 57 視野角を制限した遠視野像周辺の波長スペクト

次に、フォトニック結晶形状が五角形で格子定数を $1.340\ \mu\text{m}$ から $0.005\ \mu\text{m}$ ステップで $1.415\ \mu\text{m}$ まで計16水準を試作の面発光レーザの評価結果を説明する。図3.3.3.58は各水準の全視野角（約20度）の波長スペクトルと近視野像（NFP）と遠視野像（FFP）の結果を示す。水準5で単峰の波長スペクトルとFFPが得られていることがわかる。

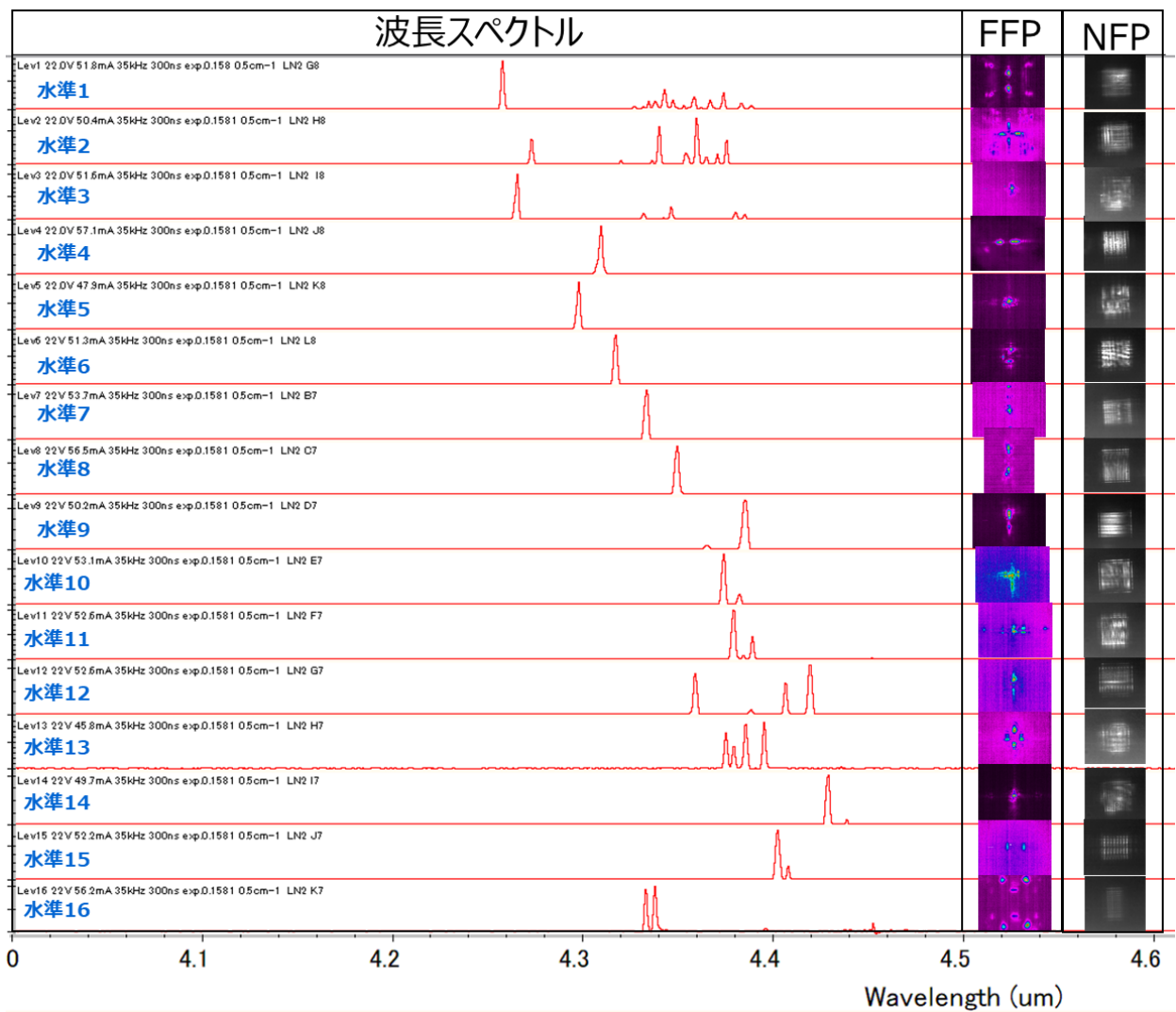


図 3.3.3.58 5 角形 PC 面発光素子の波長スペクトル、遠視野像、近視野像。

図 3.3.3.59 に最大の出力が得られた水準 4 の電流-出力特性を示す。初期の構造と比較し約 5 倍の出力が得られており、発振閾値電流が約半分の 3A となっていることがわかる。

以上のように評価用の PC 面発光 QCL を元に最適化した構造を設計・試作し、問題点を抽出し、面発光 QCL の出力を向上できた。

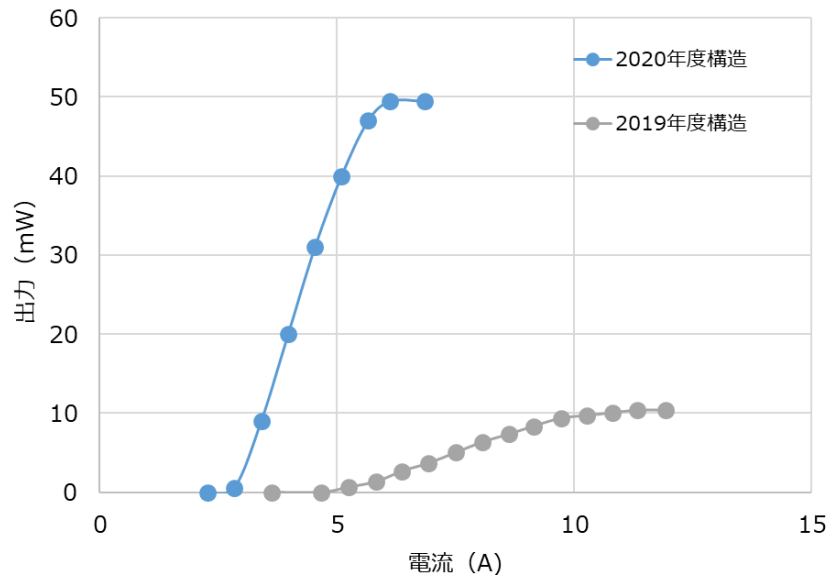


図 3.3.3.59 面発光 QCL 素子の電流-出力特性。

(5) 素子面積拡大に向けた作製技術検討

図 3.3.3.60 に、試作した面発光型 QCL の典型的な電流-光出力曲線を示す。注入電流が 10A を超えるあたりで光出力の伸びが頭打ちになり出力が飽和している様子が分かる。発熱の影響で素子温度が上昇し、発光効率が低下しているためと推察される。そこで素子の放熱性向上によって素子温度を低減させる目的で、発熱箇所の面積を拡大する、すなわち電流狭窄されるメサ部分の面積を拡大する検討を行った。この時、電流注入された活性層の全領域が PC で波長制御されるように、メサ面積の拡大と同時に PC 部分の面積も同等に拡大した。図 3.3.3.61 に、メサと PC 部分の面積を変えて試作した素子の模式図を示す。同じウエハ上で 3 水準の素子全てを試作することで、面積依存性を正しく評価できるようにした。従来メサは 500 μm 角であったが、放熱性の向上を狙いとして、ここでは 1000 μm 角と 1500 μm 角の素子を試作し、比較評価を行った。図 3.3.3.62 にメサ面積が異なる 3 種の面発光 QCL の電流-電圧曲線を示す。同じウエハから作製した素子であることに起因して、電流-電圧曲線に大きな違いは見られなかった。メサ面積を拡大する検討を行い、電流注入構造としてすべて正常に作製できたことがわかる。PC の埋め込み材料の検討は InP 埋め込みが有利であると結論づけていることから、埋め込み材の検討は行わず全て InP 埋め込み素子として検討を行った。

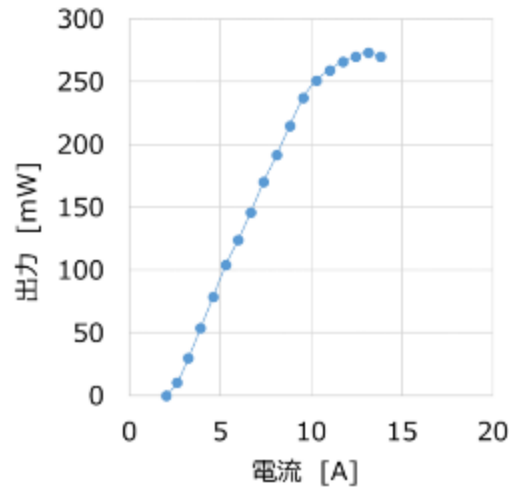


図 3.3.3.60 面発光 QCL の電流-光曲線の一例。

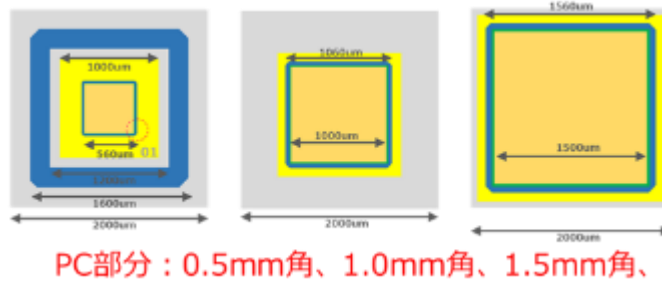


図 3.3.3.61 メサと PC 部分の面積が異なる面発光型 QCL 素子の模式図。

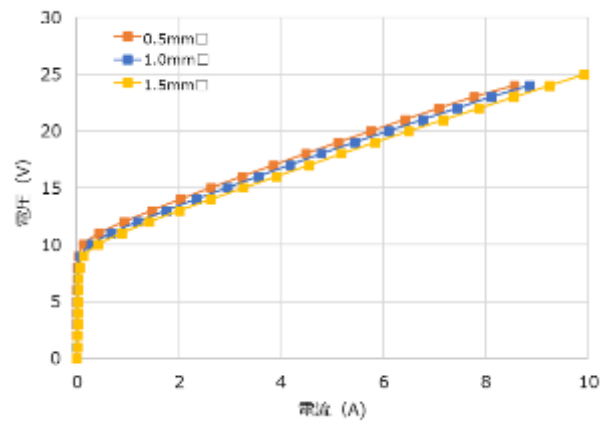


図 3.3.3.62 メサ面積の異なる面発光 QCL の電流-電圧曲線。

- (6) (別紙 2 別冊に記載)
- (7) (別紙 2 別冊に記載)
- (8) (別紙 2 別冊に記載)
- (9) (別紙 2 別冊に記載)

**【参考文献】**

[3.3.1] Y. Liang, C. Peng, K. Sakai, S. Iwahashi, and S. Noda, Phys. Rev. B 84, 195119 (2011).

### 3. 4 プロジェクトの総合的推進（担当：物質・材料研究機構）

まず、参画3機関の連絡会を月1回のペースで開催し、研究の進捗状況を報告するとともに、研究の進展に伴って発生した新しい課題や解決策について討議した（表3.4.1）。その際、報告内容を電子ファイルで作成して3機関で共有し、さらに議事録も作成することで、重要な学術情報や主要な測定結果を共有して研究の推進を図った。また、3機関で分担して担当する研究項目のうち、相互に関係の深い研究課題については、担当者間で随時個別の打合せを行った。具体的には、NIMSの電磁界解析や工科大のQCLの解析などを東芝のデバイス設計に反映した。また、東芝によるPC-QCLのデバイス作製で、PC部のEB描画や角度分解反射スペクトル測定をNIMSで行う等、得意分野で協力することで研究の効率化を図った。研究の成果についてははしかるべく特許出願するとともに、学術誌への投稿、内外の学会での口頭発表、および、nano tech展で試作デバイスの展示を含む、ポスター展示を行なって研究成果の普及に努めた。これらの成果に関連して、橋本玲、斎藤真司（東芝）の両氏が、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業の顕彰「秀でた研究成果」を受賞した。

表3.4.1 3機関連絡会

年月日	開催名称	実施場所	備考
平成29年 11月10日	第1回連絡会	物質・材料研究機構 竹橋会議室	
平成29年 12月8日	第2回連絡会	物質・材料研究機構 竹橋打合せ室	
平成30年 1月12日	第3回連絡会	TV会議	
平成30年 2月15日	第4回連絡会	TV会議	
平成30年 2月28日	第5回連絡会	物質・材料研究機構 並木地区	
平成30年 4月13日	第6回連絡会	TV会議	
平成30年 5月11日	第7回連絡会	TV会議	
平成30年 6月15日	第8回連絡会	TV会議	
平成30年 7月13日	第9回連絡会	TV会議	
平成30年 8月10日	第10回連絡会	TV会議	
平成30年 9月4日	第11回連絡会	物質・材料研究機構 並木地区	
平成30年 10月12日	第12回連絡会	TV会議	
平成30年 11月16日	第13回連絡会	TV会議	
平成30年 12月7日	第14回連絡会	TV会議	
平成31年 1月11日	第15回連絡会	TV会議	
平成31年 2月12日	第16回連絡会	TV会議	



平成 31 年 3 月 11 日	第17回連絡会	TV会議	
平成 31 年 4 月 12 日	第18回連絡会	学術総合センター	
令和 1 年 5 月 10 日	第19回連絡会	TV会議	
令和 1 年 6 月 14 日	第20回連絡会	TV会議	
令和 1 年 7 月 12 日	第21回連絡会	TV会議	
令和 1 年 8 月 9 日	第22回連絡会	TV会議	
令和 1 年 9 月 6 日	第23回連絡会	オフィス東京	
令和 1 年 10 月 8 日	第24回連絡会	電話会議	
令和 1 年 11 月 12 日	第25回連絡会	電話会議	
令和 1 年 12 月 17 日	第26回連絡会	オフィス東京	
令和 2 年 1 月 14 日	第27回連絡会	電話会議	
令和 2 年 2 月 19 日	第28回連絡会	電話会議	
令和 2 年 3 月 9 日	第29回連絡会	電話会議	
令和 2 年 4 月 10 日	第30回連絡会	Web会議	
令和 2 年 5 月 8 日	第31回連絡会	Web会議	
令和 2 年 6 月 12 日	第32回連絡会	Web会議	
令和 2 年 7 月 10 日	第33回連絡会	Web会議	
令和 2 年 8 月 7 日	第34回連絡会	Web会議	
令和 2 年 9 月 11 日	第35回連絡会	Web会議	
令和 2 年 10 月 13 日	第36回連絡会	Web会議	
令和 2 年 11 月 10 日	第37回連絡会	Web会議	
令和 2 年 12 月 1 日	第38回連絡会	Web会議	
令和 3 年 1 月 12 日	第39回連絡会	Web会議	
令和 3 年 2 月 9 日	第40回連絡会	Web会議	

令和3年 3月9日	第41回連絡会	Web会議	
令和3年 4月8日	第42回連絡会	Web会議	
令和3年 5月13日	第43回連絡会	Web会議	
令和3年 6月10日	第44回連絡会	Web会議	
令和3年 7月8日	第45回連絡会	Web会議	
令和3年 8月5日	第46回連絡会	Web会議	
令和3年 9月9日	第47回連絡会	Web会議	
令和3年 10月13日	第48回連絡会	Web会議	
令和3年 11月9日	第49回連絡会	Web会議	
令和3年 12月21日	第50回連絡会	Web会議	
令和4年 1月11日	第51回連絡会	Web会議	
令和4年 2月9日	第52回連絡会	Web会議	
令和4年 3月8日	第53回連絡会	Web会議	

## 4. 委託業務全体の成果

### 4. 1 計画時に想定していなかった成果（副次的成果）や、目標を超える成果

#### (1) 高分解能角度分解反射スペクトル測定装置の開発

項目 3.1.2.3 で述べたように、赤外反射スペクトル測定で当初使用予定であった、市販の角度分解反射率測定用アタッチメントは、PC の電磁モードによる鋭い反射ピークを測定するには角度分解能が全く不十分であった。このため、角度分解反射スペクトル測定系を自作し、FT-IR の試料室に組み込むことで、高い角度分解能 ( $0.3^\circ$ ) と周波数分解能 ( $0.5\text{cm}^{-1}$ ) を同時に実現した。さらに、偏光子による偏光測定も可能であることから、偏光選択則を利用して PC の電磁モードの対称性を同定することもできた。このような特徴を用いることで、PC の分散関係を高精度で計測することができ、さらに有限要素法による計算結果と比較することにより、PC の作製精度の検証などを厳密に行うことができた。

本装置は PC-QCL の研究に限ることなく、一般の PC にも適用可能である。特に、最近急速に研究の進んでいるトポロジカルフォトリニクスの研究などへの応用が期待される。

#### (2) 偏光測定と $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 摂動計算によるレーザ発振モードの同定

項目 3.1.1.10 で述べたように、InGaAs 円柱から成る正方格子 PC を用いた PC-QCL において、レーザビームの遠方場の偏光依存性から、レーザ発振に与る  $\Gamma$  点上の共振モードを特定することができた。その際、小さな波数ベクトル  $\mathbf{k}$  をもつ電磁モードの偏光特性を調べる必要があったが、一次の  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  摂動法を適用することでこれが達成できた。本研究の当初計画では、有限要素法による数値計算を主たる解析手法と捉えていたが、本項目では純粋な解析計算で電磁モードを特定することができた。

#### (3) SOI 基板上 PC による偏光選択則の実証

5 年間の研究期間の前半では、20 段階以上に及ぶ PC-QCL 作製プロセスの一つ一つを精密に構築していく必要があった、このため、PC-QCL に実装する PC の作製精度の検証や性能評価等については、研究期間の中ごろまで待つ必要があった。そこで当初計画において、PC の試料設計や作製精度の検証に関する研究課題を、SOI 基板上の PC をモデルとして検討を進める計画であった。この計画は順調に進み、上記 4.1.1 で述べた高分解能反射率測定を行うことで、PC の分散関係を検証することができた。特に、偏光選択則を利用することで反射ピークを与える電磁モードの空間対称性が同定できたことから、反射スペクトルの実測データと有限要素法による分散関係を精密に比較することが可能となり、PC の作製精度の検証や性能評価で威力を発揮した。

#### (4) (別紙 2 別冊に記載)

#### (5) SOI 基板上 PC による 2 重ディラックコーン分散関係の実現

SOI 基板上に作製した PC 試料の構造を調節することで、3 角格子ブリルアンゾーンの  $\Gamma$  点上で  $E_1$  対称なモードと  $E_2$  対称なモードの周波数を一致させることにより、等方的な 2 重ディラックコーンの生成を実証した。図 4.1.1 は試料の構造と反射率測定の配置、図 4.1.2 は試料の光学写真と SEM 写真である。角度分解反射率測定の結果を図 4.1.3 に示す。入射角は垂直入射から  $\Gamma$ -K および  $\Gamma$ -M 方向へ  $0.29$  度刻みに、 $\theta = -3.5$  度から  $+3.5$  度まで測定した。青線と赤線はそれぞれ s 偏光と p 偏光に関する測定結果である。2 つのピークの周波数が  $\theta = 0$  度で一致し、入射角の変化とともに線形に変化することが分かる。さらに、その変化量は実験誤算の範囲で入射光の偏光や傾き方向に依らず一定であった。以上の観測結果から、等方的な 2 重ディラックコーンの生成が実証できた。2 重ディラックコーンの実証は世界初である (参考文献 4.1.1、4.1.2)。

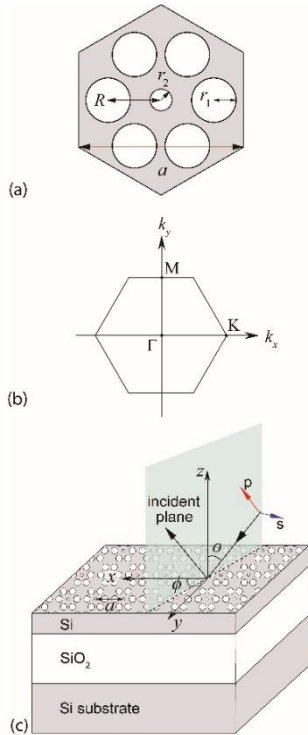


図 4.1.1 2重ディラックコーン検証用 PC の構造。(a) ユニットセル, (b) ブリルアンゾーン, (c) 反射測定の配置。

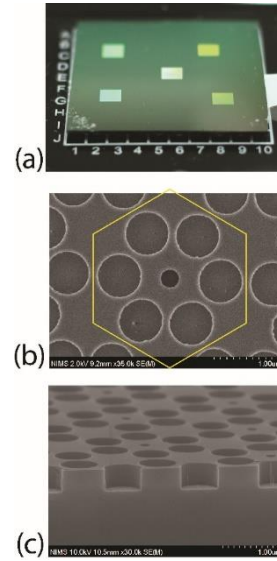


図 4.1.2 2重ディラックコーン検証用 PC 試料の (a) 光学写真と (b), (c) SEM 写真。

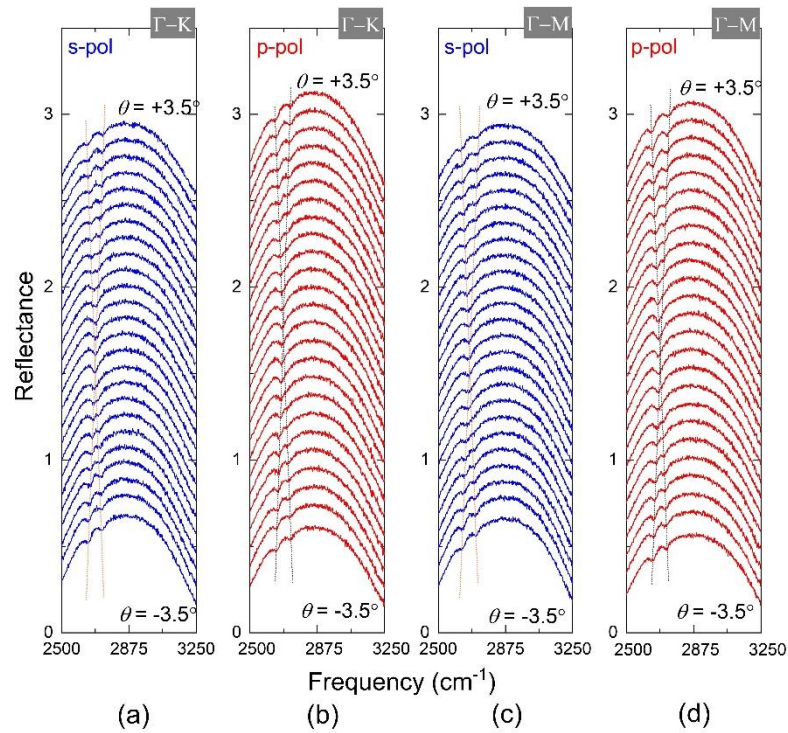


図 4.1.3 角度分解反射スペクトル。(a), (b)  $\Gamma$ -K 方向の入射角, (c), (d)  $\Gamma$ -M 方向の入射角。

(6) (別紙 2 別冊に記載)

参考文献

- 4.1.1 Y. Yao, T. Kuroda, N. Ikeda, T. Mano, H. Koyama, Y. Sugimoto, K. Sakoda, “Angle-resolved reflection spectra of Dirac cones in triangular-lattice photonic crystal slabs,” *Opt. Express* **28**, 21601 (2020).
- 4.1.2 A. Begum, Y. Yao, T. Kuroda, E. Watanabe, N. Ikeda, Y. Sugimoto, Y. Takeda, K. Sakoda, “Observation of two-dimensional isotropic double Dirac cones in the electromagnetic dispersion relation,” *J. Phys. Soc. Jpn.* 掲載決定

#### 4. 2 研究課題の発展性（間接的成果を含む）

##### (1) マルチパスミラー方式による高感度ガス分析

量子カスケードレーザ（QCL）の発振波長域が多様なガス種の吸収ピークを含むことから、レーザの単一波長性や直進性を利用した高感度なガス種の検出が可能である。特に、マルチパスミラー方式（図4.2.1）によるppb～pptレベルの超高感度ガス検出では、良質なビーム形状と小さなビーム広がり角が要求される、しかし、現在の端面発光型QCLはビーム広がり角が大きく、また、高出力化した場合には多モード化の問題が有って、高出力と高ビーム品質を両立させることが困難である。本委託研究で開発した面発光型QCLは、高出力と高ビーム品質を兼ね備えたQCL素子を実現する。したがって、面発光型QCLはマルチパスミラー方式による超高感度ガス検出に最適な光源であり、今後の応用が期待される。

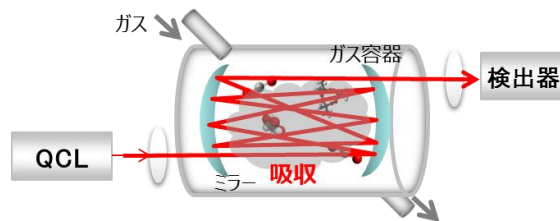


図 4.2.1 マルチパスミラー方式による高感度ガス分析

##### (2) （別紙2別冊に記載）

#### 4. 3 研究成果の発表・発信に関する活動

研究成果の普及を図るために、本委託研究の成果については知的財産権上の支障が無い範囲で積極的に対外発表を行った。その内訳については第7章項目(1)、および、別紙3に記載の通りであるが、これらに関連して以下のような顕彰、ないし、特別な発表の機会を得ることができた。

##### (1) 表彰

- ① 橋本玲、斎藤真司（東芝）両氏が、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業の顕彰「2021年度秀でた利用成果」（研究課題：InP埋め込み再成長によるフォトニック結晶の形成一面発光型量子カスケードレーザの開発ー）を受賞した。

##### (2) 学会等での招待講演

- ① 2019年度、META 国際会議（発表者：迫田、姚、池田、黒田、間野、小山、杉本）  
題目：Mid IR Dirac-cone dispersion relation materialized in SOI photonic crystal slabs
- ② 2019年度、電子情報通信学会研究会（発表者：斎藤、橋本、金子、角野、迫田）  
題目：センシング応用を目指した量子カスケードレーザ
- ③ 2020年度、ICTON 国際会議（発表者：姚、池田、黒田、間野、小山、杉本、迫田）  
題目：Features of mid-IR Dirac cones revealed by angle-resolved reflection and its selection rule
- ④ 2021年度、META 国際会議（発表者：黒田、Siti Chalimah、姚、池田、杉本、橋本、角野、金子、斎藤、迫田）  
題目：Characterization of mid-IR photonic crystal slabs using angle-resolved FT-IR spectroscopy
- ⑤ 2021年度、A3 Metamaterials Symposium（発表者：迫田）  
題目：Dirac cones and relevant features of SOI photonic crystals observed by high-resolution angle-resolved reflection spectroscopy in the mid-IR region
- ⑥ 2021年度、防衛技術協会 光波・ミリ波センシング研究部会第12回シンポジウム（発表者：斎藤）、  
題目：ガス遠隔センシング応用が期待される面発光型量子カスケードレーザ技術のご紹介

##### (3) 注目論文

- ① Optics Express 誌に掲載された下記の論文が注目論文 (Editors' Pick) に取り上げられた。  
S. Chalimah, Y. Yao, N. Ikeda, Y. Sugimoto, T. Mano, T. Kuroda, K. Sakoda, "Eigenmode symmetry assignment of triangular-lattice photonic crystal slabs and their Dirac cone materialized by effective degeneracy in the mid-infrared region," Opt. Express **29**, 19486 (2021).

##### (4) 注目講演

- ① 第67回応用物理学会春季学術講演会（2020年3月開催）で、下記の発表が注目講演に取り上げられた。  
発表者：橋本、角野、金子、斎藤、迫田  
題目：フォトニック結晶を利用した中赤外面発光型量子カスケードレーザの試作と評価

##### (5) プレス発表

- ① 発表者：斎藤  
発表先：日刊工業新聞社 Web 記事「Journagram」  
発表年月日：令和3年10月1日  
題目：波長4  $\mu\text{m}$ において世界初となる面発光型量子カスケードレーザを開発

## 5. プロジェクトの総合的推進

### 5. 1 研究実施体制とマネジメント

- (1) 参画3機関の分担内容を含めて、研究実施体制については概ね当初計画通りであった。ただし、コロナ禍は研究実施のスケジュールに影響を及ぼした。出勤や出張の制限によって参画研究者自身の活動に制約が加わったことに加えて、外注先の納期の大幅な遅れ等が生じた。具体的に言えば、①いくつかの外注先において、担当者の出勤の制限によって作業がしばしば中断ないし延期された、②基板の薄膜化によるレーザ出力の高出力化は研究の当初から検討課題に挙がっていたが、想定外注先から納期の大幅な遅れの可能性の連絡があったことから、委託研究期間内の実施を見送った、③外国製の装置のメンテナンスについて月単位の遅れが生じた、④国内外の学会で積極的に研究発表を行う予定であったが、特に海外の学会出張ができなかった、などである。これらの制約が研究実施に大きな影響を与えないようにするため、試料作製のスケジュールの見直し等で対応した。
- (2) 研究項目「中赤外フォトニック結晶のモード設計と製造技術」ではPC部の設計、製作、評価を実施した。5年間の研究期間の前半では、20段階以上に及ぶPC-QCL素子作製プロセスの一つ一つを精密に構築していく必要があったことから、PC-QCLに実装するPCの作製精度の検証や性能評価等については、研究期間の中ごろまで待つ必要があった。そこで、PCの設計や作製精度の検証に関する諸々の研究課題について、SOI基板上のPCをモデルとして予め検討を進めることとし、当初計画の中間目標には「SOI基板上に作製したPCに外部からレーザ光を入射し、面発光のビーム品質  $M^2 \leq 1.5$  の実現を確認」を掲げた。その結果、高分解能角度分解反射スペクトル測定装置を早期に開発し、電子線リソグラフィによる試料作製の精度検証を行うなど、多くの成果を上げた。しかし、その一方で、PC-QCL作製の各要素技術が想定よりも早くに完成して、研究の中心がPC-QCL素子の作製と特性向上に移ったこと、および、SOI基板上PCへの外部レーザ光の導入効率が悪く、その改善に思いがけず長期間を要したことから、本来の目標であるPC-QCL素子の作製と特性向上に努力を集中することとした。このため、上記の中間目標は未達であるが、最終目標である「単一横モードで $M^2$ が1.5より小さいビーム品質を実現」についてはレーザ出力が目標値に及ばなかったものの、 $M^2$ 値について1.5を下回る値が達成できた。

### 5. 2 経費の効率的執行

本委託研究では20段階以上に渡るプロセスでPC-QCLを作製した。すべてを内製しようとする装置的にも人員的にも費用がかさむため、研究要素が少なく外注可能なものは外注、ないし、共用設備で対応した。具体的には、PC-QCLの最も重要な要素技術の一つであるPCの電子線リソグラフィ加工は、物質・材料研究機構のナノテクプラットフォームに設置された共用装置で行った。また、InPの再成長過程は東京工業大学のナノテクプラットフォームで対応して頂いた。これらにより設備費を大幅に削減するとともに、PC-QCLの開発期間を短縮できた。



## 6. まとめ、今後の予定

### 6. 1 まとめ

#### 6.1.1 中赤外フォトニック結晶のモード設計と製造技術

##### 6.1.1.1 フォトニック結晶のモード設計

- (1) InP 基板から MQW 発光層を含むすべての半導体層、さらに PC 層から上面電極までを複素屈折率分布としてモデル化し、単位構造の表面にはブロッホ型の境界条件、上下方向には完全吸収境界条件を課して、有限要素法で固有値問題を解くことにより、PC-QCL 素子内の電磁モードの分散関係と Q 値を高精度で算出できた。Γ点上で固有モードの周波数と MQW 層の利得スペクトルが重なるように PC を設計することにより、基板面に垂直方向に面発光する単一モード PC-QCL が実現できた。
- (2) レーザ光の放射損と素子自身による光の再吸収までを考慮して、PC-QCL からのレーザ光の取出し効率を算出した。その際、全損失レートは項目(1)で計算した固有周波数の虚数部から算出し、再吸収レートは同じく項目(1)で求めた電磁モードの固有関数と複素屈折率分布を用いて、ジュール損を計算することで算出した。この結果、レーザ光取出し効率の見積りと設計が可能になった。特に、PC を構成する InGaAs ピラーの充填率が高くできる 5 角柱構造を採用することで、25%程度の比較的大きな取出し効率を実現する PC 構造を見出した。
- (3) PC の作製精度の検証を目的として、PC-QCL 素子の角度分解反射スペクトルを有限要素法で計算した。PC に特徴的な反射スペクトルを得るために、キャップ層と上面電極を設けず、PC 層が露出した試料で測定を行うことに合わせて、InP 基板から PC 層までを複素屈折率分布としてモデル化して、有限要素法で反射スペクトルを計算した。項目(1)と同様に単位構造の表面にブロッホ型の境界条件を課すことで、比較的小さな計算領域を対象とすれば良く、高精度で反射スペクトルが計算できた。共振周波数の実測値との誤差は概ね 0.3%程度であったことから、PC 部の試料作製、ならびに、反射スペクトルの計算を高精度で達成した事が検証できた。さらに、入射光の偏光と入射方位を適切に選択して反射スペクトルを計算することにより、PC の対称性に起因する選択則が実証できた。このことは後に実測でも実証できた。
- (4) 5 年間の研究期間の前半では、20 段階以上に及ぶ PC-QCL 素子作製プロセスの一つ一つを精密に構築していく必要があった。このため、PC-QCL に実装する PC の作製精度の検証や性能評価等については、研究期間の中ごろまで待つ必要があった。そこで、PC の設計や作製精度の検証に関する研究課題について、SOI 基板上的 PC をモデルとして予め検討を進めた。PC-QCL の場合と同様に、有限要素法を用いて分散曲線や Q 値、反射スペクトルなどの高精度計算を達成した。
- (5) 項目(1)～(4)で開発した計算手法を用いて、面発光レーザ発振に最適な PC 構造の設計を行った。MQW 層の利得スペクトルがΓ点上のゼロ群速度モード (PC 共振器として働く定在波モード) の周波数と重なり、しかも、Γ点以外のゼロ群速度モードとは重ならないように、PC の分散曲線を設計した。また、PC 構造の対称性低下と充填率の増大によるレーザ光取出し効率の向上や、大きな Q 値や MQW 層への電場集中による発振閾値の低減、および、吸収損と回折損のバランスによる取出し効率の最適化などを考慮して PC 構造を設計した。
- (6) (別紙 2 別冊に記載)
- (7) (別紙 2 別冊に記載)
- (8) (別紙 2 別冊に記載)
- (9) QCL は非輻射遷移の割合が比較的大きく、電気エネルギーから光エネルギーへの変換効率は最大で 20%程度である。残りの投入エネルギーは熱となって放出されるので、発熱の効率的

な除去が重要であるとともに、PC 構造の光学特性の温度変化の低減も重要な課題であると予想された。そこで、試作した PC-QCL 素子について、熱膨張による PC の形状変化と屈折率の温度変化を考慮に入れて有限要素法で解析したところ、100 度の温度上昇でモード周波数の変化は 0.57% であり、現在の素子設計で当面必要な熱安定性が確保できる見通しが得られた。

- (10) PC の単位構造として円柱 InGaAs を用いた面発光 PC-QCL において、ドーナツ状の遠方場が観測された。興味深いことに、偏光子を回転させて遠方場の偏光依存性を測定すると、強度分布は偏光子とは反対方向に回転した。この現象を説明するために、一次の  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  摂動法を用いてレーザ光強度分布の偏光依存性を解析したところ、レーザ発振に与る  $\Gamma$  点の固有モードの空間対称性が  $B_2$  対称であればそのような偏光依存性が生じることが分かり、このことから逆に共振モードが特定できた。

#### 6.1.1.2 PC 面発光 QCL の試作と評価

- (1) 6.1.1.1 節に記した PC 部の設計に基づいて、電子線 (EB) リソグラフィにより PC 部を製作した。PC 部の主材料である InGaAs のエッチングは、InGaAs 層の上に形成した厚さ 600nm の  $\text{SiO}_2$  膜をマスクとする、2 段階エッチングである。この工程の内、物質・材料研究機構では、①  $\text{SiO}_2$  の成膜、② EB 描画、③ Ni 膜 (厚み 60nm) 蒸着、④ リフトオフ (レジストとともに不要な Ni を除去)、⑤ Ni をマスクにして  $\text{SiO}_2$  のドライエッチングまでを担当し、その後の工程は東芝が担当した。InGaAs のおおよその加工精度は SEM 観察で確認し、PC モードの特性は角度分解反射スペクトルを測定して設計値と比較することで確認した。このようにして作製した PC-QCL で PC 面発光レーザ発振が達成できた。特に、5 角形ピラーを PC の単位構造とする PC-QCL では、垂直放射でスペクトル・ビーム形状ともに単峰のレーザ発振が達成できた。
- (2) 赤外反射スペクトル測定で当初使用予定であった、市販の角度分解反射率測定用アタッチメントは、PC の電磁モードによる鋭い反射ピークを測定するには角度分解能が不十分であった。そこで、角度分解反射スペクトル測定装置を自作して FT-IR の試料室に組み込むことで、高い角度分解能 ( $0.3^\circ$ ) を実現した。この測定装置は偏光測定も可能であり、偏光選択則を利用して PC の電磁モードの対称性を同定することができた。このような特徴を用いることで、PC の分散関係を高精度で計測できた。
- (3) 項目 (2) で開発した高分解能角度分解反射スペクトル測定装置を用いて、PC-QCL の PC 部の作製精度を検証した。モード周波数の設計値と実測値の誤差は 0.2~0.5% 程度であり、たいへん高い試料作製精度が確認できた。
- (4) 項目 6.1.1.1(4) で述べたように、研究期間の前半においては、PC の設計や作製精度の検証に関する研究課題について、SOI 基板上の PC をモデルとして検討を進めた。SOI 基板上 PC の作製には電子線リソグラフィに加えて、大面積試料が短時間で作製可能なナノインプリントリソグラフィの方法も適用した。いずれの方法で作製した試料についても、エッチング面は十分に平滑であり、規則性も高く、期待通りの試料作製が達成できた。
- (5) SOI 基板のトップ Si 層に円柱空洞を規則配列した 2 次元正方格子 PC について、角度分解反射スペクトル測定により分散関係を検証した。垂直入射から (1, 0) 方向、および、(1, 1) 方向へ傾けた入射光について偏光毎の角度分解反射スペクトルを測定することで、分散関係の計測に加えてモードの対称性が判別できた。複数の試料で測定を行った結果、いずれの試料でも測定値が理論計算による分散関係を非常によく再現することから、理論計算、試料作製、測定のいずれについても高い精度が検証できた。
- (6) SOI 上の 2 次元 3 角格子 PC についても角度分解反射スペクトル測定で分散関係を検証した。正方格子の場合と同様に、偏光選択則を用いることで、分散関係の計測に加えてモードの対

称性が判別できた。また、測定された反射ピークのスペクトル幅を  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  摂動法で解析することで、モードの混成による Q 値の再分配が初めて実証された。

(7) (別紙 2 別冊に記載)

6.1.2 QCL素子の高温安定動作に向けた熱解析・放熱構造の作製技術

6.1.2.1 熱伝導の定量的な可視化

- (1) Static法とDynamic法の比較 熱抵抗を測定するStatic法とDynamic法で、同一のQCL素子を測定した結果、Dynamic法では熱抵抗の構成要素への切り分けが難しいことが分かった。さらに、測定時間がStatic法では数分であるに対し、Dynamic法では2時間以上となり、QCLの熱抵抗測定にはStatic法を用いることとした。
- (2) 端面発光型で埋込構造の比較 リッジ部の構造がSiO<sub>2</sub>カバー、Cu埋込み、InPエピダウンの端面発光QCLを試作し、Static法による熱抵抗測定を行った。図6.1に示すようにリッジ部の熱抵抗はSiO<sub>2</sub>カバーが6.6 °C/W(=K/W)、Cu埋込みが4.8 °C/W、InPエピダウンが2.5 °C/Wとなり、構造による熱抵抗の差を定量化できるようになった。

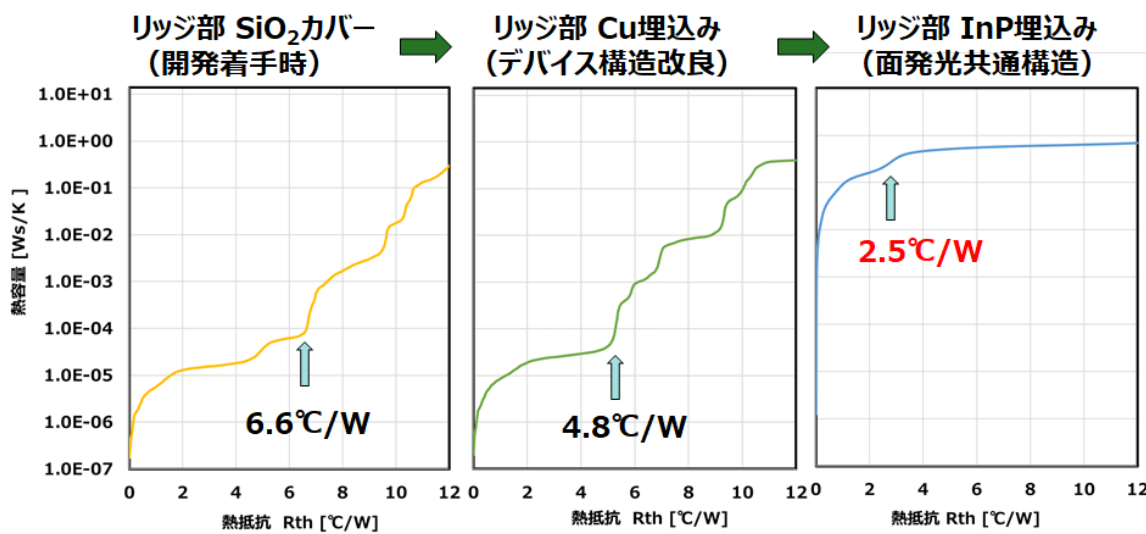


図 6.1 端面発光型 QCL の熱抵抗低減

- (3) 面発光型QCLの構造関数の測定 InP埋込み構造とのAu埋込み構造の面発光型QCLで、Static法によりそれぞれの全熱抵抗を測定した。この結果、図6.2に示すように全熱抵抗はInP埋込みで8.5 K/W、Au埋込みで4.8 K/Wとなった。また、熱抵抗で発振効率への影響が最も大きいMQW(Multiple Quantum Well)の熱抵抗は、InP埋込みで2.0 K/W(=°C/W)、Au埋込みで1.2 K/Wとなった。

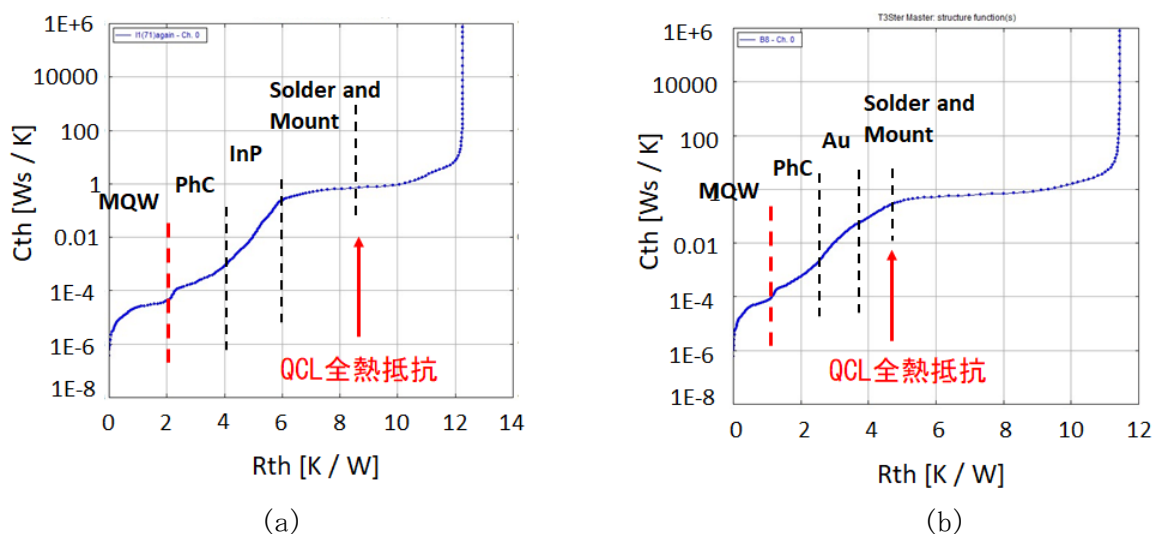


図 6.2 面発光型 QCL の熱抵抗 InP 埋込み、(b) Au 埋込み

### 6.1.2.2 熱解析モデルの構築

#### (1) 3D熱解析シミュレーション

① 端面発光型の3D解析モデル 3D熱解析シミュレーションの妥当性を調べるため、リッジ部の構造がSiO<sub>2</sub>カバー、Au埋込み、Cu埋込みの端面発光QCLで熱解析モデルを構築し、実デバイスとの比較を行った。温度上昇は、熱解析モデルと実験で、SiO<sub>2</sub>カバーが高く、Au埋込みとCu埋込みが同じという傾向をともに示し、実デバイスの熱抵抗を反映した解析モデルが開発できた。

②面発光型QCLの3D解析モデル InP埋込みとAu埋込の面発光QCLの解析モデルを構築し、実デバイスの熱抵抗と比較した。面発光QCLで実測した全熱抵抗は図6.2に示すようにInP埋込みとAu埋込みで8.5 K/W、4.8 K/Wであり、解析モデルでは8.3 K/Wと4.6 W/Kとなった。実測と解析モデルの結果がほぼ同じとなり、実デバイスの熱抵抗特性を再現した解析モデルを構築できた。

#### (2) 非平衡グリーン関数法による高効率活性層の設計

① 非平衡グリーン関数モデルの計算精度確認 非平衡グリーン関数組み込んだnextnano. QCLソフトウェアを導入し、解析モデルを構築し、波長の温度特性、膜構造と発振波長について、実験結果との比較を行った。波長の温度特性では、温度変化 $\Delta T$ に対する波長変化 $\Delta \lambda$ の比を指標として評価した。この結果、文献での実験結果、東芝試作のQCL、計算結果は、それぞれ、0.85 nm/K、0.50 nm/K、0.58 nm/Kとなった。解析結果は、文献での実験結果と東芝試作QCLの中間の結果となり、実際のQCLの波長変化を再現できた。構造と発振波長については、7種類の異なる膜構造で文献報告と計算結果を比較した結果、すべての構造で文献報告との波長差が0.3  $\mu\text{m}$ 以下となった。波長の温度依存、発振波長ともに実デバイスの特性を再現できる解析モデルを構築した。

② (別紙2別冊に記載)

③ (別紙2別冊に記載)

④ (別紙2別冊に記載)

### 6.1.2.3 熱解析モデルを用いた放熱性の改善

(1) 端面発光型 構造による放熱性の評価 リッジ部構造がSiO<sub>2</sub>カバー、Cu埋込み、InP埋込みのエピダウンの端面発光QCLを3D熱解析シミュレーションで評価し、熱抵抗はSiO<sub>2</sub>カバー>Cu埋込み>InPエピダウンとなった。この解析結果をもとに3種類の実デバイス試作し、Static法で熱抵抗を測定した結果、図6.1で示したようにリッジ部の熱抵抗はSiO<sub>2</sub>カバーが6.6 °C/W、Cu埋込みが4.8 °C/W、InPエピダウンが2.5 °C/Wとなり、端面発光の実装構造はInP埋込のエピダウンに決定した。

(2) 端面発光型QCLのダイヤモンドサブマウント 3D熱解析シミュレーションにより、ダイヤモンドサブマウントを使った実装構造では、サブマウント部で熱流束が水平方向に広がり、熱抵抗が低減できることが示された。そこで、ダイヤモンドサブマウントで実装したデバイスを試作し、レーザ出力が15%増加することを確認した。

(3) 端面発光型のMQW適正化 活性層薄膜化によるレーザ出力向上 活性層のバリア層薄膜化では、基準構造のバリア層を-30%まで薄膜化し、波長の変化、膜ストレスについても評価した結果、-10%が最適値となった。この構造の実デバイスを試作して効果を検証した結果、EL出力が1.4倍になることを確認した。

(4) 面発光型のダイヤモンドサブマウント 3D熱解析シミュレーションにより、面発光型QCLでは放熱性の改善にダイヤモンドサブマウントが有効であることが示された。この結果をもとに、ダイヤモンドサブマウントで実装した面発光型QCLを試作し、レーザ出力が270 mWから290 mWに増加することを確認した。

#### 中間・最終目標の達成度

プロジェクト目標の達成度については、図6.1に示すように中間目標ではInP埋込みのエピサイドダウン構造でMQWの熱抵抗 $2.5 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{W}$ が得られた。最終目標では、図6.2に示すようにAu埋込み面発光QCLで熱抵抗 $1.2 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{W}$ が得られ、中間目標、最終目標ともに達成した。

### 6.1.3 QCL素子の高出力化と高効率化技術

#### 6.1.3.1 QCLの活性層の設計とQCL素子の結晶成長

QCL素子の光出力の高出力化を目指し、量子井戸設計シミュレータを利用して、電子の散乱や意図しない非発光の遷移過程を低減し、高い電気-光変換効率を有する量子井戸構造の設計を行った。設計においては、ナノメートルスケールでの現象をより正確に計算できる非平衡Green関数を用いた計算手法を導入し、検討を行った。

量子井戸設計シミュレータの精度を向上するため、フォノンの散乱時間、散乱時間及び量子井戸を形成するヘテロ接合のバンドオフセットを計測と既知論文より収集し、シミュレータにおけるパラメータとした。量子井戸を形成するヘテロ接合のバンドオフセットを高精度で同定するために、超高分解能光電子分光法により計測を行った。これらのパラメータを導入することで、量子井戸設計シミュレータと実験結果との整合精度を向上させ、開発効率を向上できた。高出力を目指した新規構造としてAlAs、InAsを活性層の量子井戸の障壁層、井戸層に挿入し、無効電子の抑制と結晶歪の抑制を両立できる構造を設計した。

設計された量子井戸構造をMBE法による結晶成長で実現するため、研究初期ではMBE装置に反射高速電子線回折 (RHEED) によるその場評価システムを活用した。RHEEDによるその場観察で表面状態を把握しつつ量子井戸を構成するヘテロ界面を形成することで、ヘテロ界面の平坦性と急峻性を、1原子オーダーでコントロールすることで成長精度を向上できた。作製した量子井戸構造について、透過電子顕微鏡 (TEM) 評価、3次元アトムプローブ評価といった原子レベルの評価を行い、結果をフィードバックする事で、結晶成長条件、ヘテロ界面の切り替え条件の最適化により膜厚、組成制御の高精度化を行った。量子井戸構造全体の定量評価には、X線回折 (XRD) を用いることで、設計した構造を高い精度で実現できた。この結果、膜厚と組成の設計値に対する差を3%以下とすることができたことを確認できた。

さらに研究を進め、前述のAlAs、InAsを活性層に挿入した新規構造の成長に取り組み、成長条件を適正化することで、その構造の実現に成功し、端面発光型QCLを試作し、従来の活性層構造に比べ、スロープ効率が2倍となり、高効率動作が得られることが確認できた。従来の活性層構造では、再成長埋め込み構造による低ロス導波構造を採用することで、量子効率19%を確認できていたため、換算値で38%が実現できているものと考えられる。

#### 6.1.3.2 QCL素子作製プロセスの検討

QCL素子単体での性能評価は、光導波路構造を組み込んだ端面発光QCLにて行った。端面発光QCLはPCの光取出し性能等の影響を受けないため、QCL素子のみの真の性能を評価できる。端面発光QCLを動作させ量子効率等の評価を行い、この結果を3.1のQCL設計に反映することでQCL素子の性能向上を図った。まずQCL素子構造のウエハ作製条件を確定し、1.2PC面発光QCLの試作に対しQCL素子構造のウエハの供給を行った。QCL素子上の凹部による空隙を熱伝導性の良い材料で埋め込むことで、QCL素子の放熱性を向上するための構造と形成プロセスの検討を行った。埋め込み材料候補はAu、Cu、絶縁性InP等を検討した。これらの埋め込み材料候補に対して、断面観察による界面状態・ボイドの有無の確認、熱抵抗係数、QCL素子性能への影響の評価及び熱履歴による素子の信頼性評価を行い、さらに構造作製プロセスの困難度を考慮した上でInP埋込を選定した。

QCL素子の熱抵抗係数評価方法として、短パルス印加に対する発熱応答特性の測定によって熱抵抗係数の相対評価をする手法の導入を検討した。また2.2の熱解析モデルによる検証と比較し、実装を含めたモジュール全体の熱設計と連携した検証を進めた。埋め込み材料とQCLを構成する各材料との屈折率差によりQCL素子性能に影響を与えることが想定されたため、電磁場解析シミュレーションにより影響度の評価を行い、構造の最適化を行った。Au、Cu等の金属材料については従来の電磁場解析シミュレーションでは計算の収束が難しいため、計算が収束しやすい計算方法や条件の検討を行った。電磁場解析の結果からもInP半導体埋め込みが最適であることがわかり、この構造に注力した。PCを含むプロセス開発は3.3.3章で報告した。

#### 6.1.3.3 面発光型QCL

PC構造とQCL発光素子を組み合わせ発振に至る検討を報告した。PC-QCL作製には高度な素子作製技術が必要で、QCL素子の発振波長とPCによって制御される波長を一致させるために端面発

光 QCL に PC を連結した評価用の PC 面発光 QCL を設計・試作し、評価結果を 1.1 の PC 設計及び 3.1 の QCL 素子設計にフィードバックを行った。

さらに1.2にて確立されたPCの設計及び作製プロセスを導入し、QCL素子上にPCを形成する一連のプロセスの最適化を行った。PC作製プロセスとして、1.2で実施するナノインプリントリソグラフィの検討と並行してマスク露光によるフォトリソグラフィの検討をおこない、双方の検討結果を比較し、PC面発光QCLの作製に最適なプロセスを決定した。PCの構造を高精度かつ垂直性高く形成するため、ドライエッチング前のレジストパターンを意図的に変形しておき、ドライエッチング後には所望の形状が得られる手法を導入し、最適化されたPCをQCL素子上に実現した。

PC面発光QCL素子においてはPCへの電流注入用にAuなどの金属で構成される電極構造を作製した。Auは赤外波長域に対して吸収又は厚さによっては反射特性を示すため、光射出面に電極構造が存在すると光取出し効率を低下させる要因になる。サブ $\mu\text{m}$ オーダーで作製されるPCへの悪影響を抑制しつつ、電流注入に十分な電極面積を確保するための電極配置と構造作製技術の最適化を行った。

さらにレーザ光を発する QCL 素子と、面発光の光射出を担う PC とを光導波路で連結した PC 面発光 QCL 構造も検討した。QCL 素子と PC を分離する事で、電極による光取出し効率低下や発熱による諸特性への不安定要因を PC から隔離できる。上記の評価用の PC 面発光 QCL を元に最適化した構造を設計・試作し、発振動作を確認し、面発光型の開発へのフィードバックを行った。

面発光型 PC-QCL の試作においては、PC 設計と活性層の利得ピークを一致させる必要があるため、1枚のウェハ内にPCの周期を変えた素子を複数設定し、さらに評価において遠視野像、発振スペクトル取得、PCの周期と利得、発振スペクトルの関係の分析を行い、設計にフィードバックを行った。

当初モード解析を主目的として試作した円柱 PC では、PC 設計から予想された波長でシングルモード発振が実現され、円柱 PC 間隔の周期を変化させた場合にはスペクトルのピークが周期の変化に伴い変化することが確認できた。さらに遠視野像の偏光モード解析によりそのモードが設計にて発振が予想される B モードであることが確認できた。

PC-QCL では、遠視野像やスペクトルに端面での反射共振と考えられるサイドローブ的な遠視野像やマルチモード的スペクトルが混入して観測された。開発が先行している波長  $1\mu\text{m}$  帯の PC を用いたレーザダイオードでは、非電流注入領域の活性層自体が、高い光吸収率を持つ、一方、QCL は発光の原理がサブバンド間遷移であるため、非電流注入領域の活性層の吸収率が低い、よって十分な光路長を持つ吸収領域を電流注入領域の外周に設定する必要があることがわかり、これにより、上記の混入モードが抑制できることがわかった。

達成目標であったQCL素子の量子効率を30%以上、量子井戸の膜厚と組成の揺らぎについて、設計値との差3%以下を前述のように条件付きで実現した。PC面発光QCLの出力10W以上の目標については、シングルモードでは50mW、マルチモードでは420mWを確認した。また、10W出力時のPC面発光QCLについてビーム品質 $M2 \leq 1.5$ の実現を確認については、シングルモード10mWにて $M2 < 1.5$ を確認した。出力とビーム品質の目標に対して、及ばなかったものの、開発開始当初、実現されていなかった波長 $4\mu\text{m}$ 帯のQCLにおいて世界初の発振動作を実現しでき、PC-QCLとしても世界で2番目の発振動作を実現でき、先行者が実現できていない混入モードを除外した発振特性を得ることができた。



6. 2 今後の予定（別紙2別冊に記載）

## 7. 研究発表、知的財産権等の状況

### (1) 研究発表等の状況

種別	件数
学術論文	15件
学会発表	64件
展示・講演	4件
雑誌・図書	1件
プレス	2件
その他	4件

### (2) 知的財産権等の状況

発明の名称	発明者	出願登録区分	出願番号 (出願日)	出願区分	出願国	登録番号 (登録日)
量子カスケードレーザーおよびその製造方法	橋本玲 斎藤真司 高瀬智裕 角野努 山本雄一郎 金子桂	出願	特願2018-227481 (2018/12/4)	国内	日本	
半導体レーザー用ウェーハおよび半導体レーザー	金子桂 斎藤真司 橋本玲 角野努 山本雄一郎 高瀬智裕	出願	特願2019-34322 (2019/2/27)	国内	日本	
量子カスケードレーザーおよびその製造方法	斎藤真司 金子桂 橋本玲 角野努	出願	特願2019-173448 (2019/9/24)	国内	日本	
Quantum cascade laser and method for manufacturing same	橋本玲 斎藤真司 高瀬智裕 角野努 山本雄一郎 金子桂	登録	16/701217 (2019/12/3)	外国	米国	US11205887B2 (2021/12/21)
SEMICONDUCTOR LASER WAFER AND SEMICONDUCTOR LASER	金子桂 斎藤真司 橋本玲 角野努 山本雄一郎 高瀬智裕	登録	16/704157 (2019/12/5)	外国	米国	US11114821B2 (2021/09/07)
SEMICONDUCTOR LASER WAFER AND SEMICONDUCTOR LASER	金子桂 斎藤真司 橋本玲 角野努	出願	20158198 (2020/2/19)	外国	EPC	

	山本雄一郎 高瀬智裕					
QUANTUM CASCADE LASER AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME	斎藤真司 金子桂 橋本玲 角野努	出願	16/898535 (2020/6/11)	外国	米国	
面発光型量子カス ケードレーザ	橋本玲 角野努 金子桂 斎藤真司	出願	特願2020-106268 (2020/6/19)	国内	日本	
Quantum cascade laser and method of manufacturing the same	斎藤真司 金子桂 橋本玲 角野努	出願	102020207904.8 (2020/6/25)	外国	ドイツ	
SURFACE-EMITTING QUANTUM CASCADE LASER	橋本玲 角野努 金子桂 斎藤真司	出願	17/302237 (2021/4/28)	外国	米国	

### (3) その他特記事項

特に無し