

安全保障技術研究推進制度 令和3年度終了課題 終了評価結果

1. 評価対象研究課題

- (1) 研究課題名：フォトリ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ーの開発
- (2) 研究代表者：物質・材料研究機構 迫田 和彰
- (3) 研究期間：平成29年度～令和3年度

2. 終了評価の実施概要

日時：令和4年11月29日

場所：ビジョンセンター田町

評価委員：未来工学研究所 理事長、上席研究員／東京大学 名誉教授

平澤 洽（委員長）

産業技術総合研究所 執行役員、エネルギー・環境領域 領域長

小原 春彦

東京工業大学 工学院 電気電子系 教授

梶川 浩太郎

東京農工大学 名誉教授

佐藤 勝昭

公立千歳科学技術大学 理工学部 特任教授

下村 政嗣

東京工業大学 名誉教授

谷岡 明彦

科学技術振興機構 研究開発センター 企画運営室長、フェロー

中山 智弘

理化学研究所 光量子工学研究センター センター長

緑川 克美

（委員長以外は五十音順・敬称略）

3. 研究と成果の概要

研究の概要

本研究では面発光型の量子カスケードレーザー*（QCL）を新たに開発し、活性層の大面积化によって高出力と高ビーム品質の両立を目指す挑戦的な取り組みであった。一般的な半導体レーザーダイオードと異なり、QCLでは積層方向と偏光方向が平行であるために従来の垂直共振構造は適用できない。そこで、本研究では世界初となる

フォトニック結晶** (PC) の TM (Transverse Magnetic) 共振モードによる面発光 QCL レーザ (PC-QCL) の実現と世界トップレベルの出力とを目指した。

* 量子カスケードレーザ: 半導体レーザで波長 3~5 μm を含む中赤外~遠赤外、さらにはテラヘルツ (THz) 域までの波長帯をカバーできる唯一の小型光源

** フォトニック結晶: 屈折率が周期的に変動するナノ構造体。内部での光の伝わり方が半導体内の電子の伝わり方に似ていて、デバイスへの応用が期待されている。

成果の概要

量子井戸シミュレータに遺伝的アルゴリズムを適用して高効率発光層の構造探索を行い、その結果に基づいて、分子線エピタキシー (MBE) 法で精緻な薄膜成長を実施、共振モードの Q 値と光取出し効率、および、ビーム品質の制御性を高める PC 構造を考案し、QCL 上に実装することで、優れたビーム品質をもつ単一モード面発光レーザ発振に成功した (発振波長: 4.3 μm)。この波長域での面発光 QCL 実現は世界初であり、平均出力としては世界最高値を記録した。ただし、高出力発振、量子効率、及び連続発振は目標未達であり、課題を明らかにするに留まった。

実現した面発光 QCL (パルス駆動) の特性は以下のとおり。

- ① レーザ出力: 60 mW (単一モード)、400 mW (マルチモード)

ただし、終了時点で作製済みであった試料の出力は、その後の評価によれば単一モード 290 mW、マルチモード 1.1 W であった。

- ② ビーム品質: M^2 値: 1.4 (単一モード)

4. 終了評価の評点

C 期待通りでは無かったが、一応の成果があった。

5. 総合コメント

基礎理論とその検証とで一定の成果は見られているが、理論的な考察による知見がデバイス作製に十分活かされておらず、特に重要な高出力発振及び連続発振について、終了時点では目標値に遠く及ばなかった。高い目標を掲げた非常に難しい課題であること、パンデミック下による研究の困難さなどのハンディがあり、またその後実施した未測定試料の測定結果で世界最高値を記録していたことは評価する。室温動作による連続発振や高出力化は多くの用途に繋がる重要な方向であるため、目標設定の妥当性や、達成に至らなかった理由をしっかりと科学的に明らかにすることによって、次の課題に着実に取り組んで頂きたい。

6. 評価の観点ごとの評価結果と個々の委員によるコメント

6-1. 研究開始時に設定した研究目標の達成度（主題的成果）

光出力の目標値 10 W に対して、マルチモードで 400 mW と、当初目標の 1/10 以下であり達成度は高くない。多重量子井戸構造（MOW）の開発等により、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 2.3 W が得られた。

従来型の発光層による QCL 素子の量子効率の実測値は 19% と、目標の 30% に達していない。ただし、従来構造比で 2 倍の効率増が見込まれる、<InP 再成長で覆った埋め込み型導波路>が開発されており、それを導入すれば目標に到達する見込みはある。さらに①PC-QCL の作製プロセスの確立、②MBE 法による埋め込み構造の作製技術の検討、③FEM による設計と電子線リソグラフィ加工による SOI-PC 作製、④角度分解反射測定による PC 評価、⑤放熱設計などの検討を総合することで、当初計画の最終目標「10 W 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」のうち、 M^2 値について 1.5 を下回る値 (1.4) は達成された。

プレス発表される面発光の実現などレベルの高い成果や、Dirac コーンの確認などの基礎研究の成果もある程度得られていることは評価できる。

高効率発光層の探索、MBE における精密な薄膜成長、ビーム品質の制御など、研究の実施過程で明らかになった多くの検討項目など実用化の道筋は明確である。

【個々の委員によるコメント】（主題的成果）

- ・特に重要な出力及び動作については目標値を達成できていない。他に関しては達成できている。採択時の構想よりは劣るが、及第点のレベル。
- ・フォトリソグラフィ結晶の Dirac コーンを確認したのは科学的には興味深い、実用性を確認できなかった。
- ・出力において、最終目標にはるかに未達であるほか、連続発光が未達でパルス動作しかできていない。
- ・遺伝的アルゴリズムをはじめ、シミュレーションの結果とのミスマッチングを明らかに出来ていないようである。
- ・目標の達成度は十分ではないので、今後の検討が望まれる。申請時点での研究デザインに問題があった。
- ・評価会で示された今後の方針は平凡で、見通しが甘い。

6-2. 計画時に想定していなかった成果（副次的成果）

(1) 高分解能角度分解反射スペクトル測定装置の開発

赤外反射スペクトル測定で、自作した角度分解反射スペクトル測定系を FT-IR の試料室に組み込むことで、高い角度分解能 (0.3°) と周波数分解能 (0.5 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した。このような特徴を用いて、PC の分散関係を高精度で計測と有限要素法による計算結果と比較して、PC の作製精度の厳密な検証などを実現したことは評価できる。

(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

InGaAs 円柱から成る正方格子 PC を用いた PC-QCL において、一次の $k \cdot p$ 摂動法を適用して、小さな波数ベクトル k をもつ電磁モードの偏光特性を調べることができ、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 Γ 点（面内波数が 0 の点）上の共振モードが特定された。

(3) SOI 基板上 PC による偏光選択則の実証

上記(1)で述べた高分解能反射率測定装置により、偏光選択則を利用した反射ピークを与える電磁モードの空間対称性の同定ができたことから、反射スペクトルの実測データと有限要素法による PC の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が可能となった。

(4) 一様な電流密度を実現する裏面電極構造

実装可能と思われるいくつかの裏面電極の形状について、レーザ素子中の電流分布を有限要素法で算出し、一様な電流分布が得られる電極構造を探索した結果、基板厚みが $150 \mu\text{m}$ 、開口部の直径が $600 \mu\text{m}$ の標準試料の場合に、電流密度の空間変動量を 0.6%以下に抑える優れた電極構造を見出した。

(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 試料の構造を調節して、3 角格子ブリルアンゾーンの Γ 点（中心）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検証し、等方的な 2 重ディラックコーンの生成を世界で初めて実証した。

(6) SOI 上 PC によるトポロジカルバンドギャップとエッジモード

従来知られていた SOI 基板上の PC では、試料構造の非対称性から TE (transverse electric) 波と TM (transvers magnetic) 波の区別が無く、厳密な意味ではトポロジカルバンドギャップが実現できないため、以下の①～③の特徴は近似的にしか実現されない。

- ① 電磁モードの偏光と伝搬方向に一对一の対応が有る。
- ② 構造欠陥による後方散乱が生じない。
- ③ 偏光を指定するとエッジモードは一方向にしか伝搬しない。

そこで、SOI 基板のトップ Si 層に形成した PC について、その上面に SiO₂ キャップ層を設けることで上下対称な PC 層を形成することを検討し、有限要素法による解析から、TE 波と TM 波の結合をなくすことで TE 波によるトポロジカルバンドギャップが実現できることを見出した。

【個々の委員によるコメント】(副次的成果)

- ・高分解能角度分解反射スペクトル測定装置の開発などある程度の成果はみられる。
- ・副次的成果ならびに学術的成果については、他の課題と比べて高いとは言えない。

6-3. 他の者により派生した成果 (間接的成果)

特に無し。

6-4. 科学技術上特筆すべき成果

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).

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リソニック結晶の形成—面発光型量子カスケードレーザの開発—) を受賞した。

【個々の委員によるコメント】(科学技術上特筆すべき成果)

- ・ディラックコーンの実現など、基礎科学的な成果が出ている。
- ・4 ミクロン帯で PC-QCL 発振を得た点は評価できる。
- ・その他、特に目立った成果は見られない。

6-5. 論文 (投稿中のものも含む), 学会発表等

学術論文 13 件 学会発表 64 件

6-6. 特許 (出願中のものも含む)

出願中: 国内 9 件 外国 9 件 登録済み: 外国 2 件

6-7. 科学技術への波及効果

室温動作化や高出力化は多くの用途に繋がる重要な方向であるものの、研究終了時点で派生的な成果はまだ薄い。研究の実施過程で明らかになった多くの項目をしつかりと検討して解決されることを期待したい。

6-8. 効率的な研究実施体制とマネジメント

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が、コロナ禍により、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、以下の①～④の様な事態が生じる等、研究実施のスケジュールに影響があった。

- 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

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。

【個々の委員によるコメント】（効率的な研究実施体制とマネジメント）

- ・物質・材料研究機構と企業との連携が不十分である。
- ・コロナの影響も配慮する必要がある。
- ・コロナ遅れ等を取り戻すためのマネジメント面での工夫が必要ではなかったか。
- ・軌道修正が可能な体制が望まれた。

6-9. 研究推進時に生じた問題への対応

(1) 角度分解反射率測定 of 分解能の改善

項目 6-2(1)で述べたように、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 の鋭い反射ピークを測定するには分解能が不十分であったため、角度分解反射測定系を自作して FTIR の試料室に組み込むことで、PC 測定に十分な角度分解能 (0.3 度) を実現した。

(2) コロナ禍による開発スケジュールの遅延

項目 6-8 で述べたように、コロナ禍によって素子開発に遅延の恐れが生じたが、試料作製のスケジュールの見直し、および、試作装置の無人運転とネットを

介したリモート監視、評価装置のリモート測定等で対応した。

6-10. 経費の効率的な執行

本研究で実施された 20 段階以上に渡る PC-QCL の作製プロセスのうち、研究的要素が少なく外注可能なものは外注、ないし、共用設備で実施された。例えば、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実施された。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実施された。

【個々の委員によるコメント】（経費の効率的な執行）

- ・適切と思われるが特筆すべきものはない。
- ・成果を上げていないため、効率的とは言えない。