2.9 THz 束缚态向连续态跃迁量子级联激光器研制*

万文坚 尹嵘 谭智勇 王丰 韩英军 曹俊诚*

(中国科学院上海微系统与信息技术研究所,中国科学院太赫兹固态技术重点实验室,上海 200050)(2013 年 6 月 25 日收到; 2013 年 7 月 17 日收到修改稿)

采用气源分子束外延技术生长了 GaAs/AlGaAs 束缚态向连续态跃迁的太赫兹量子级联激光器材料,基于半绝缘等离子体波导工艺制作了太赫兹量子级联激光器.测量了激光器的发射光谱和功率-电流-电压关系曲线,研究了器件的激光特性.器件激射频率约 2.95 THz,脉冲模式下,最高工作温度为 67 K.连续波模式下,阈值电流密度最低为 230 A/cm²,最大光输出功率 1.2 mW,最高工作温度为 30 K.

关键词:太赫兹,量子级联激光器,分子束外延,波导 PACS: 07.57.Hm, 42.55.Px, 68.65.Fg, 81.15.Hi

DOI: 10.7498/aps.62.210701

1引言

太赫兹 (THz) 波^[1-3] 是一种介于微波与红外 之间的电磁波,频率范围约为0.1—10 THz,对应的 波长为 30—3000 µm, 具有介质穿透性强、电离性 弱以及相干性好等优点. 太赫兹技术在材料特性研 究、成像技术、医学诊断、环境监测、无线通信 等领域具有广阔的应用前景. 太赫兹量子级联激 光器 (THz QCL) 作为一种重要的太赫兹辐射源,具 有体积小、重量轻、易集成以及转换效率高等优 点,是太赫兹领域的一个研究热点^[2-8]. THz OCL 发出的光子能量低于极化光学声子能量,要实现粒 子数反转比中红外量子级联激光器更加困难.为了 实现粒子数反转,已有不同的有源区结构被设计出 来,包括啁啾超晶格结构⁹、束缚态向连续态跃迁 结构^[10,11]以及共振声子结构^[5,12]等. 第一个 THz QCL 就是采用啁啾超晶格有源区结构设计^[9], 辐 射跃迁发生在上微带最低态和下微带最高态之间, 电子的抽取依靠微带内散射机理. 由于电子在微 带内的散射强于微带间的散射,从而实现带边态粒 子数反转. 共振声子结构设计原理是通过快速的

纵光学声子散射来实现下辐射能级的电子抽取,从 而实现辐射能级间的粒子数反转,辐射跃迁发生 在局域的上辐射能级和下辐射能级之间^[4]. 束缚 态向连续态跃迁结构的辐射跃迁发生在束缚的上 辐射态和微带顶部的下辐射态之间,下辐射态电子 的抽取也是依靠微带内散射机理. 由于注入态与 上辐射态耦合比跟下微带耦合更强,电子注入过程 更具选择性. 这些设计在器件性能上各有特点, 啁 啾超晶格结构在功率和工作温度方面都不及后两 者,束缚态向连续态跃迁结构具有较低的阈值电流, 但工作温度比不上共振声子结构,而共振声子结 构具有很高的阈值电流,器件焦耳热很大,此外,周 期材料的不完美性对微带能级的影响比局域能级 的影响大,从这个意义上说,共振声子结构对材料 的生长要求最为严格.考虑到束缚态向连续态跃迁 结构具有阈值电流小以及材料器件相对容易实现 的优点,本文采用气源分子束外延 (GSMBE) 技术 生长了束缚态向连续态跃迁的 THz OCL 有源区材 料,然后通过半绝缘等离子体波导工艺^[13]制作了 THz QCL 器件,并且给出了器件的光电特性测试 结果.

^{*} 国家高技术研究发展计划 (863 计划) (批准号: 2011AA010205)、国家自然科学基金 (批准号: 61131006, 61021064)、国家重大科学仪器设 备开发专项 (批准号: 2011YQ150021)、国家科技重大专项 (批准号: 2011ZX02707)、中国科学院知识创新工程重要方向性项目 (批准号: YYYJ-1123-1) 和上海市基础研究重点基金 (批准号: 10JC1417000) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: jccao@mail.sim.ac.cn

2 材料生长与器件工艺

THz OCL 有源区采用束缚态向连续态跃迁 结构,材料体系为 GaAs/AlGaAs,由气源分子束外 延设备在半绝缘 GaAs(100) 衬底上外延生长. 外 延生长步骤为:首先在衬底上生长 800 nm 厚的 GaAs 缓冲层; 然后生长 200 nm 厚的 Alo 55 Gao 45 As 刻蚀阻挡层;再生长 700 nm 厚的重掺杂 GaAs 下接触层, Si 掺杂浓度为 2×10¹⁸ cm⁻³; 接着 生长 90 个周期的多量子阱, 多量子阱结构与 Barbieri 等 [11] 的结构类似, 周期结构参数为 **3.7**/13.7/**0.6**/8.8/**0.6**/15.5/**1.5**/12.5/**1.8**/12.0/**2.0**/ 11.8/2.0/11.2/2.7/11.1/3.4/11.4 nm, 其中, 粗体表 示 Al_{0.15}Ga_{0.85}As 势垒层, 下划线字体表示掺杂层, 掺杂浓度为 1.6×10¹⁶ cm⁻³, 普通字体表示 GaAs 层; 之后生长 50 nm 重掺杂 GaAs 上接触层, Si 掺杂 浓度为5×10¹⁸ cm⁻³;最后在上接触层上生长一薄 层低温 GaAs 帽层.

采用高分辨率 X 射线衍射仪对 THz QCL 材料 进行表征, 如图 1 所示, 其中模拟 XRD 曲线是根据 预期的材料参数模拟所得, 通过对比测试 XRD 曲 线和模拟 XRD 曲线可以分析生长的材料组分及结 构与预期材料之间的偏差.测试曲线中衍射最强 的为 GaAs 衬底 (004) 峰, 衍射次强的为零级衍射 峰, 峰位由 Al 组分决定.此外, 还有许多超晶格特 有的多级衍射峰, 衍射峰的周期由外延层多量子阱 周期决定.只有当材料的周期界面和表面都非常平 整时, 才会出现一定强度的多级衍射峰^[14]. 从图中 可以看到, 多级衍射峰峰值较强且半高宽很小, 表 明生长的多量子阱材料晶体质量好, 周期界面很平 整. 对比测试曲线和模拟曲线, 两条曲线衍射峰对 应的很好, 说明实验生长的材料组分和各层厚度较 为准确.

本文 THz QCL 器件采用半绝缘等离子体波导 工艺制作. 工艺的主要流程包括溅射上电极、湿法 腐蚀台面、蒸发下电极以及减薄、解理、封装等后 续工艺. 首先采用光刻、溅射、剥离等技术在 MBE 生长的 THz QCL 外延片上制作上电极,磁控溅射 的上电极金属层为 Ti/Au(20/250 nm). 然后用光刻 胶将金属电极保护起来,采用湿法腐蚀技术刻蚀出 脊型波导结构,腐蚀液采用 H₃PO₄:H₂O₂:H₂O(体积 比 1:1:25). 为了保证器件电学导通,需要腐蚀至下 重掺杂层,腐蚀深度约 12 μm,如果没有到达下重 掺杂层或者下重掺杂层全部被腐蚀掉,器件电学是 断开的.实验中采用台阶仪控制腐蚀深度,最后用 探针测量器件 *I-V* 特性确认电学导通性.腐蚀好的 外延片再用光刻和剥离等技术制作下电极,下电极 金属层为 GeAuNi/Au(50/250 nm),采用电子束蒸发 技术镀膜.再对器件进行退火处理以使电极和半 导体合金化形成欧姆接触,退火温度 370°C,退火 时间 40 s.将衬底减薄至 120 μm 左右,然后解理出 端面,QCL 长度为 3 mm,图 2 是器件解理端面的 SEM 图,下电极金属层分布在脊波导的两侧,局部 放大图中可以清晰地看见衬底和外延层以及上电 极金属层.最后,用铟片将解理的小芯片焊接在铜 热沉上,金丝直接热压键合在上、下电极上并引出 电极管脚以便于器件测试.



图 1 THz QCL 材料 XRD 曲线及模拟 XRD 曲线



图 2 THz QCL 解理端面 SEM 图

3 器件测试与分析

将封装好的 THz QCL 器件安装在温控冷头里 制冷,采用 Bruker IFS 66v/S 远红外傅里叶变换光 谱仪测量 THz QCL 的激射谱,采用 AVTECH AVO-6C-B 脉冲源对器件进行供电,器件电流通过电流 探针测量,焦热电探测器测量器件的光功率.

图 3 是 3 mm 长、180 μm 宽的 THz QCL(器件 编号 W1303A) 脉冲模式下的电流-电压 (*I-V*) 特性. 脉冲电源重复频率为 2 kHz (占空比 1%), 脉宽为 5 μs. 插图是不同工作温度下光强最大时的激射谱. 9 K 工作温度下,器件表现为多模激射,最强峰对应 为 2.94 THz, 各峰间距相等, 这是典型的 F-P 腔多 模激射现象. 相邻谱峰的间距均为 0.015 THz, 谱峰 间距 Δ*f* 满足公式



图 3 THz QCL 脉冲模式下 I-V 特性 (插图为不同温度下 的激射谱)

式中, n_{eff} 为有效折射率, l 为腔长, c 为光速. 由此 可推算出本 THz QCL 有效折射率为 3.33, 与 Kohen 等 ^[15] 采用的有效折射率 3.6 相比稍偏小. 随着工 作温度的增加, 器件变为单模激射, 激光峰值向高 频方向移动. 这种峰位移动是 F-P 腔激光模式的跳 变, 说明了这是由于材料的增益谱向高频方向移动 引起的. 脉冲模式下, 器件最高工作温度为 67 K, 表现为单模激射, 激射频率 2.97 THz. 从 I-V 曲线 上看, 随着温度的增加, 器件的电阻变小, 曲线向右 方移动. 值得注意的是, 在电流 0.6 A 附近, 曲线出 现奇特的负微分电阻区域, 负阻到最大的时候, 电 压急剧回升, 这跟通常的 n⁺-n-n⁺ 结击穿特性 ^[16] 不同,且随着温度的增加这种现象更加明显.这 种现象在其他连续态向束缚态跃迁结构激光器中 并没有出现^[6,8],并且实验中同一批次其他器件也 没有这种现象,暂时此处只能归结为工艺可靠性 问题.

图 4 是器件连续波模式下的光功率-电流-电压 (*L-I-V*) 特性. 插图是 9 K 工作温度时的激射谱. 9 K 工作温度下, 阈值电流密度约 230 A/cm², 器件表现 为单模激射, 激射频率 2.95 THz, 最大输出光功率 约 1.2 mW. 器件最高工作温度为 30 K, 阈值电流密 度增大至 250 A/cm², 最大输出光功率仍有 0.4 mW, 且有很宽的电流激射范围.



需要说明的是,本文在器件工艺方面还存在一 些问题需要加以改进以提高激光器的性能.首先, 激光器后端面没有镀反射膜,器件镜面损耗较大, 结果造成阈值电流增大并且激光输出功率减小.其 次,从波导端面 SEM 图看出,湿法腐蚀侧壁倾角较 小.器件工作时,大部分电流直接从下重掺杂层垂 直流向上电极,上电极垂直区域外多出的三角区域 增益小,相当于增加了波导损耗.采用干法刻蚀可 以得到陡直的侧壁,但是干法刻蚀会对材料产生损 伤与污染,并且干法刻蚀的平面粗糙度比湿法腐蚀 大.综合考虑,可以采用干法刻蚀结合湿法腐蚀的 方法,先干法刻蚀出主要形状,然后再湿法腐蚀一 薄层,既保证了刻蚀的各向异性,又保证了腐蚀面 的洁净与平整. 另外, 在连续波模式测量下, 激光强 度刚开始很强,达到稳定后,强度有所降低,说明器 件的散热性很差. 要提高器件的散热性, 需要尽量 减薄衬底并且保持衬底与热沉良好的导热性. 实验 中存在的问题是器件与热沉的导热性不良, 铟片与

GaAs 衬底界面退火时浸润不好,并且铟片表面有 氧化的倾向. 拟改进的措施是减薄衬底之后再在背 面溅射一层 Au 薄膜, 利用 Au-In 合金反应形成良 好的热接触.

4 结 论

本文采用 GSMBE 系统生长了束缚态向连续 态跃迁结构的 THz QCL 有源区材料,高分辨率 XRD 分析表明,生长的有源区材料晶体质量高,组 分和各层厚度跟预计的参数相比较为准确.基于 半绝缘等离子体波导工艺制作了 THz QCL 器件, 远红外傅里叶变换光谱仪分析了器件的光谱特性,并测量了器件的*L-I-V*特性.器件激射频率约2.95 THz,脉冲模式下,9K工作温度下器件表现为 F-P 腔多模激射,具有很宽的频谱范围.随着工作温 度增大,器件变为单模激射,最高工作温度为67 K. 连续波模式下,器件为单模激射,阈值电流密度最 低为230 A/cm²,最大光输出功率1.2 mW,最高工 作温度为30 K.为了进一步提高器件的性能,可考 虑端面镀高反射膜以降低激光器的镜面损失、各 向异性刻蚀以降低波导损耗以及减薄片背面镀金 以提高器件的散热性能.

- [1] Cao J C 2006 Physics 35 632 (in Chinese) [曹俊诚 2006 物理 35 632]
- [2] Ma Y R, Guo S F, Duan S Q 2012 Chin. Phys. B 21 037804
- [3] Fu A B, Hao M R, Yang Y, Shen W Z, Liu H C 2013 Chin. Phys. B 22 026803
- [4] Williams B S 2007 Nat. Photon. 1 517
- [5] Cao J C, Li H, Han Y J, Tan Z Y, Lü J T, Luo H, Laframboise S, Liu H C 2008 Chin. Phys. Lett. 25 953
- [6] Liu J Q, Chen J Y, Liu F Q, Li L, Wang L J, Wang Z G 2010 Chin. Phys. Lett. 27 104205
- [7] Kumar S 2011 IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 17 38
- [8] Wang T, Liu J Q, Chen J Y, Liu Y H, Liu F Q, Wang L J, Wang Z G 2013 Chin. Phys. Lett. 30 064201
- [9] Köhler R, Tredicucci A, Beltram F, Beere H E, Linfield E H, Davies A G, Ritchie D A, Iotti R C, Rossi F 2002 Nature 417 156

- [10] Faist J, Beck M, Aellen T, Gini E 2001 Appl. Phys. Lett. 78 147
- [11] Barbieri S, Alton J, Beere H E, Fowler J, Linfield E H, Ritchie D A 2004 Appl. Phys. Lett. 85 1674
- [12] Williams B S, Callebaut H, Kumar S, Hu Q, Reno J L 2003 Appl. Phys. Lett. 82 1015
- [13] Li H, Han Y J, Tan Z Y, Zhang R, Cao J C Acta Phys. Sin. 59 2169 (in Chinese) [黎华, 韩英军, 谭智勇, 张戎, 曹俊诚 2010 物理学报 59 2169]
- [14] Chang J, Li H, Han Y J, Tan Z Y, Cao J C 2009 Acta Phys. Sin. 58 7083 (in Chinese) [常俊, 黎华, 韩英军, 谭智勇, 曹俊诚 2009 物理学 报 58 7083]
- [15] Kohen S, Williams B S, Hu Q 2005 J. Appl. Phys. 97 053106
- [16] Lu X X, Luo H W, Yao R H, Lin Z C 2008 Microelectronics 38 469 (in Chinese) [路香香, 罗宏伟, 姚若河, 林志成 2008 微电子学 38 469]

Study of 2.9 THz quantum cascade laser based on bound-to-continuum transition*

Wan Wen-Jian Yin Rong Tan Zhi-Yong Wang Feng Han Ying-Jun Cao Jun-Cheng[†]

(Key Laboratory of Terahertz Solid-State Technology, Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai

200050, China)

(Received 25 June 2013; revised manuscript received 17 July 2013)

Abstract

The material of GaAs/AlGaAs bound-to-continuum terahertz quantum-cascade laser (THz QCL) was grown by gas source molecular beam epitaxy. A THz QCL device was fabricated with semi-insulating surface-plasmon waveguide. Its spectrum and light intensity-current-voltage characteristics were studied. The device emits about 2.95 THz, and yields a maximum temperature of 67 K in pulse mode. In continuous-wave mode, it displays a threshold current density of 230 A/cm² at 9 K with maximum emitted power of 1.2 mW and lases up to 30 K.

Keywords: terahertz, quantum cascade lasers, molecular beam epitaxy, waveguide

PACS: 07.57.Hm, 42.55.Px, 68.65.Fg, 81.15.Hi

DOI: 10.7498/aps.62.210701

^{*} Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2011AA010205), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61131006, 61021064), the Major National Development Project of Scientific Instrument and Equipment, China (Grant No. 2011YQ150021), the National Science and Technology Major Project of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2011ZX02707), the Main Direction Program of Knowledge Innovation of Chinese Academy of Sciences (Grant No. YYYJ-1123-1), and the Shanghai Municipal Commission of Science and Technology, China (Grant No. 10JC1417000).

[†] Corresponding author. E-mail: jccao@mail.sim.ac.cn