

文章编号: 0258-7025(2010)09-2213-08

# 单极型量子级联激光器的发明及其进展

(邀请论文)

李爱珍<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 中国科学院上海微系统与信息技术研究所, 上海 200050; <sup>2</sup> 信息功能材料国家重点实验室, 上海 200050)

**摘要** 1960 年发明的固态激光器和气体激光器, 1962 年发明的双极型半导体激光器和 1994 年发明的单极型量子级联激光器(QCL)是激光领域的三个重大革命性里程碑。自 1994 年发明单极型 QCL 以来, 目前已研制出波长覆盖 2.63~360  $\mu\text{m}$ , 室温连续功率达瓦级的系列中远红外波段单极型 QCL。本文对 QCL 的发明、激射机制、材料与激光器进行了综述性介绍。讨论了 QCL 及其在环境与气候监测、医学成像和检查及疾病诊断、通信、国土安全等战略新兴应用领域的研究现状和未来发展趋势。

**关键词** 半导体激光; 量子级联激光器; 分子束外延; 中远红外

中图分类号 TN248.4 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL20103709.2213

## The Invention and Advancement on Unipolar Quantum Cascade Lasers

(Invited Paper)

Li Aizhen<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China  
<sup>2</sup> State Key Laboratory of Functional Materials for Informatics, Shanghai 200050, China

**Abstract** There are three major revolutionary milestones in the laser field: the invention of solid-state lasers and gas-state lasers in 1960, the invention of bipolar semiconductor lasers in 1962, and the invention of unipolar quantum cascade lasers (QCLs) in 1994. Currently, mid- and far-infrared unipolar QCLs cover 2.63~360  $\mu\text{m}$  wavelength, continuous wave operation at room temperature with power up to watts. This paper gives an overview on the invention of the QCL and research progress in its theory, materials and devices. The article also discusses the current research status and the future development of QCLs and their applications in emerging strategic areas, including environment and climate monitoring, medical imaging and testing for disease diagnosis, communications, and homeland security.

**Key words** semiconductor lasers; quantum cascade lasers; molecular beam epitaxy; mid- and far-infrared

## 1 引言

1916 年爱因斯坦提出的受激辐射概念奠定了实现微波放大和光放大的理论基础。1954 年美国科学家研制成功世界上第一台微波激射器(Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation, MASER)。受到受激辐射实现微波放大思路的启发,科学家在 1960 年研制出红宝石固

体激光器和氦氛气体激光器。随后,科学家又探索在半导体中实现粒子数反转获得光放大,在 1962 年发明了第一个 p-n 结注入型砷化镓半导体激光二极管(Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation, LASER)。近红外光电子材料和器件引领了光通信高新技术走上产业化。之后,人们沿着结型带间跃迁机制思路,先后研制成功近红外、可

收稿日期: 2010-07-20; 收到修改稿日期: 2010-07-30

**作者简介:** 李爱珍(1936—),女,半导体材料学专家。2003 年当选亚太材料科学院院士,2007 年当选为美国国家科学院外籍院士。20 世纪 70 年代主要研究半导体薄膜材料,1980 年开始研究超晶格、量子阱、异质结人工合成微结构及其在电子和光电子器件中应用和分子束外延纳米技术。2004 年获第三世界科学院(TWAS)工程科学奖,1985 年至今先后获国家发明奖 1 项,国家科技进步奖 4 项。获中国科学院和上海市自然科学奖、科技进步奖 20 项;发表论文 230 余篇,国家发明专利 21 个,获国际发明展银奖 1 个。20 世纪 80~90 年代美国和德国访问学者、客座教授,在多个重要系列国际会议任职。

E-mail: azli@mail.sim.ac.cn

见、紫外、短波端中红外波段 p-n 结注入双极型半导体激光二极管,形成继微电子之后的光电子产业,成为信息产业的重要支柱。但当波长继续向中红外中波端、长波端和远红外波段推进时,由于自然界缺少理想的带隙宽度处于中远红外波段的半导体材料,研究长期处于停滞状态。得益于 1970 年 Esaki 等<sup>[1]</sup>提出的超晶格概念和 Cho 等<sup>[2,3]</sup>发明的分子束外延(Molecular beam epitaxy, MBE)纳米技术,1971 年前苏联约飞技术物理研究所 Kazarinov 和 Suris<sup>[4]</sup>提出通过在强电场下多量子阱中量化的电子态之间实现光放大的原创概念。此后,美国贝尔实验室 Capasso 等<sup>[5,6]</sup>、加拿大 Liu<sup>[7]</sup>对该理论和导带有源区子能级设计作了进一步发展。经 24 年的潜心创新研究,基于超晶格、量子阱概念和 MBE 技术的发展<sup>[8]</sup>,1994 年贝尔实验室采用 MBE 材料发明了第一个基于电子在导带子带间跃迁声子共振辅助隧穿单极型量子级联激光器(Unipolar Quantum Cascade Laser, Unipolar QCL)<sup>[9]</sup>。目前已研制出波长覆盖 2.63~360  $\mu\text{m}$  中远红外波段单极型 QCLs。我国中远红外 QCL 研究始于 1995 年,1998 年中国科学院上海冶金研究所(2001 年易名中国科学院上海微系统与信息技术研究所)发表了第一批经器件验证的 5.0  $\mu\text{m}$  和 8.16  $\mu\text{m}$  中红外气态源分子束外延(GSMBE)QCL 结构材料<sup>[10]</sup>,2000 年中国科学院半导体研究所研制出 3.5~3.6  $\mu\text{m}$  应变补偿中红外固态源分子束外延(SSMBE)QCL 器件<sup>[11]</sup>。目前国内已研制出 3.5~9.7  $\mu\text{m}$  多模中红外法布里-珀罗(Fabry-Perot, F-P)腔<sup>[12~15]</sup>和中红外中波端单模分布反馈 QCLs<sup>[16,17]</sup>以及 3.2 THz-QCLs,进入应用演示试验研究<sup>[18]</sup>。对 QCLs 基本物理过程进行认知研究<sup>[19]</sup>以及研制出 3.2 THz-QCLs<sup>[20]</sup>。

单极型 QCL 的发明与发展,开创了中远红外半导体激光新领域。中远红外 QCL 以它的小型、实时、远程、高分辨、高灵敏度、宽光谱范围连续单模调谐的优势在气候变化与环境污染在线实时监测、非侵入医学诊断、国土和社会安全、大气保密通信等应用方向和战略性新兴产业有重要实用价值。

本文对中远红外 QCL 的激射机制、材料与激光器进行了综述性介绍。评述该前沿领域的发展、现状和发展趋势。展示该领域的新概念、新理论、新结构、新材新、新技术、新兴应用领域和正在开拓的新方向,同时也展示了正在形成的战略性新兴产业方向产业。

## 2 QCL 的发明和理论研究

固体和气体激光器是基于分立能级的窄光学传输,通过电抽运或光抽运实现粒子数反转;异质结构和量子阱结构 p-n 结半导体激光器二极管是基于带间跃迁,即在 p-n 结加正向偏压,把导带的电子与价带的空穴注入到有源区,通过带间电子与空穴辐射复合实现粒子数反转的;QCL 则基于导带子带电子能态间跃迁和声子共振辅助隧穿实现粒子数反转。QCL 理论的提出、发展和实验验证、发明是超晶格量子阱波函数能带工程与单原子层分子束外延及界面质量控制相结合的典范。

QCL 的有源核工作层(Active core)由有源区和注入区组成一个周期。QCL 的理论研究的核心是认知有源区电子子能级位置、波函数的布居,注入区中微带、微带隙位置及形状的基本物理过程,进行导带能带和波函数的优化设计,获得高效的粒子数反转。图 1 展示了自 1971 年 Kazarinov 等提出的通过在强电场下多量子阱中的电子量子态之间实现光放大的原创概念之后,QCL 理论、工作层设计和实验验证研究进展的典型关键结构在外场作用下工作层的基本物理过程。QCL 理论研究发展经历了如下关键进程:

1) 图 1(a)为 1994 年贝尔实验室发明的第一个 QCL 的导带能带结构<sup>[9]</sup>。工作层采用耦合三阱单声子共振隧穿斜跃迁机制,注入区采用渐变超晶格,级联数为 25 级。电子受激辐射跃迁发生在有源区相邻的两个阱中,由于行程长有利于粒子数反转。但由于跃迁上下能级不在同一阱中,电子在穿越不同量子阱界面时,QCL 性能受量子阱界面缺陷、粗糙散射影响,而且由于处在不同阱产生跃迁的上下能级波函数交叠较少,降低了声子散射和受激跃迁几率的影响,获得大的增益。因此,1994 年发明的第一个波长为 4.26  $\mu\text{m}$  的中红外 QCL,脉冲运行于 10 K 下,输出功率仅 8 mW,阈值电流密度高达 11  $\text{kA}/\text{cm}^2$ ;

2) 图 1(b)为克服图 1(a)斜跃迁的缺点,1995 年贝尔实验室提出的耦合三阱垂直跃迁有源区结构<sup>[21]</sup>。有源核工作层由有源区和注入区构成一个周期(级),有源区是耦合三量子阱结构,注入区为渐变超晶格。图中给出有源区中的电子子能级位置、波函数的布居,注入区中的微带、微带隙位置及形状。图 1(b)清楚地显示了 QCL 有源核工作层的基本物理过程。在外场作用下,有源区三个量子阱的基态组成有源区最低的 3 个能级, $n_3$  和  $n_2$  能级为

电子受激跃迁的上激发态能级和下激发态能级,通过设计各阱的宽度和间隔,使  $n_3$  和  $n_2$  能级的能量差  $E_3 - E_2$  对应于所需激光器的激光波长,并使  $n_2$  和  $n_1$  能级的能量差  $E_2 - E_1$  为一个光学声子的能量;设计注入区中各阱的宽度和间隔,使在外场作用下注入区形成微带和微带隙,使微带与同一周期有源区中的  $n_2$  和  $n_1$  能级对齐并与下一个周期有源区的  $n_3$  能级对齐。使微带隙与同一周期中有源区的  $n_3$  能级对齐。在有源区  $n_3$  能级上的电子受激跃迁到  $n_2$  能级并发射一个光子。 $n_2$  能级上的电子释放一个光学声子,通过共振运输快速弛豫到  $n_1$  能级,在声子辅助下隧穿经过注入区的微带注入到下一个周期有源区的上激发态。重复上一周期的输运物理过程,一级一级传递下去,通过级联过程实现一个电子可发射和级数  $N$  相等的  $N$  个光子。耦合三阱垂直跃迁有源区结构的特点是受激辐射跃迁过程

的上下能级发生在同一个量子阱中,提高了跃迁几率从而使 QCL 获得更大的增益。经改进有源核工作层设计和不断优化,在 1996 年采用 25 级耦合三阱,垂直跃迁机制,研制成功第一个室温脉冲多模  $5.2 \mu\text{m}$  中红外 QCL, 300 K 下的阈值电流密度  $J_{\text{th}} = 8 \sim 10 \text{ kA/cm}^2$ , 光功率 200 mW, 连续运行模式工作温度 140 K<sup>[22]</sup>。QCL 性能取得了实质性突破;

3) 图 1(c) 为 1997 年贝尔实验室提出超晶格有源区结构<sup>[23]</sup>, 电子在超晶格形成的微带中辐射跃迁产生, 利用电子在微带内的快速弛豫实现粒子数反转。与量子阱有源区比较, 超晶格有源区可承受更大的驱动电流, 从而可获得大的输出光功率; 4) 2001 年 Faist 小组<sup>[24]</sup> 分析了量子阱有源区结构具有高注入效率的优势, 但电子隧穿时间长、排空速度慢, 而超晶格有源区结构则具有微带排空时间极快的优势, 提出了由束缚态到连续态跃迁的新思路。

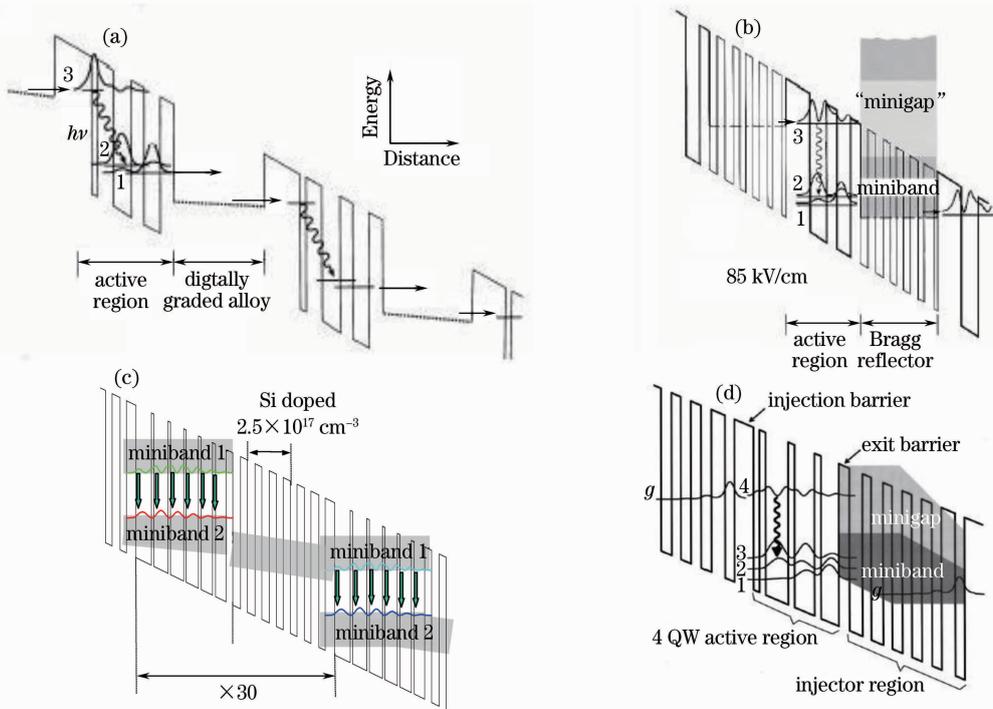


图 1 量子级联激光器有源核工作层理论与设计发展过程的代表性导带能带结构示意图。(a) 25 级 InP 基 AlInAs/GaInAs 三阱耦合斜跃迁、单声子共振辅助隧穿 QCL 能带结构图;(b) 三阱耦合、单声子共振辅助隧穿、垂直跃迁 QCL 的导带能带结构;(c) 25 级超晶格有源区 QCL 的导带能带图;(d) 四阱耦合垂直跃迁、束缚态到连续态、双声子辅助共振隧穿 QCL 的导带能带结构

Fig. 1 A representative QCL coupled-well active region design; the schematic conduction band diagrams depict one stage of the QCL active core under an applied electric field. Schematic conductor band diagram of (a) one stage of the active core with moduli-squared relevant wave functions in the three-QW active region based on a single-phonon resonance; (b) one stage of the active core with moduli-squared relevant wave functions in the three-QW active region based on a single LO-phonon resonance;(c) one stage of the structure with superlattice active core;(d) one stage of the active core with moduli-squared relevant wave functions in the four-QW active region based on a double LO-phonon resonance

该结构吸收和综合了 QCL 两种有源区结构的优点。2002 年 Faist 研究组采用了耦合四阱、束缚态至连续态子能级跃迁、双声子共振隧穿有源区新结构。如图 1(d)所示,等间隔布居有源区耦合四阱中的 3 个低能级,其能量间隔等于一个光学声子的能量。耦合四阱、双声子共振有源区使电子更快地从低跃迁能级逃逸,从而达到更大的粒子数反转。采用这种结构,2002 年研制出第一个室温连续工作、激光波长为  $9.1 \mu\text{m}$  中红外多模 QCL(F-P 腔 QCL)<sup>[25]</sup>,2006 年研制出第一个室温连续工作、激光波长为  $9.6 \mu\text{m}$  中红外分布反馈量子级联激光器(DFB-QCL)<sup>[26]</sup>。这是自 1994 年发明 QCL 以来的一个具有革命里程碑性质的突破,是 QCL 从实验室到实际应用的关键性跨越。

束缚态至连续态、耦合四量子阱和双声子共振隧穿设计思想及其后进一步融合调控斜跃迁和垂直跃迁的优点所发展的 QCL 结构成为沿用至今的实现中红外 QCL 室温连续工作的最佳基本结构。束缚态至连续态跃迁机制的物理思想和设计理念已被成功用于远红外 THz-QCL 领域<sup>[27]</sup>,提高了 THz-QCL 性能。

在 1994 年发明的导带内子能级间跃迁的单极型量子级联激光器之后,1995 年加拿大杨瑞青<sup>[28]</sup>提出带间级联激光器概念(Interband Cascade Lasers, ICLs),激光机理为带间电子和空穴辐射复合实现粒子数反转,但又采用在外场作用下,使电子返回导带一级一级传递重复使用,发射与级数相等的光子。带间级联激光器是双极型激光器的一种结构。美国海军实验室已研制出高温连续  $3.7 \mu\text{m}$  中红外 ICLs,最高温度达  $62 \text{ }^\circ\text{C}$ 。

从上述可见,提高 QCL 有源区粒子数反转和增益的理论研究的每一个创新概念、思路的突破为创新设计 QCL 有源区导带结构提供了科学依据和理论指导,带来 QCL 性能的实质性的跨越和里程碑突破。

### 3 QCL 材料和器件的研究开发

材料是器件的先导和基础,中远红外 QCL 材料主要集中研究和开拓  $2.5 \sim 25 \mu\text{m}$  中红外波段和特指远红外  $30 \sim 300 \mu\text{m}$  THz-QCL 人工量子结构材料以及纳米、亚纳米量级的薄膜生长和组分、厚度、界面质量控制技术。QCL 用同一种材料体系如 InGaAs/InAlAs/InP, AlGaAs/GaAs, 只需改变有源区阱层和垒层的厚度就可覆盖很宽的光谱范围,

而不像传统的半导体 p-n 结激光二极管,不同波长激光二极管需要换不同的材料体系。自 1994 年发明 QCL 以来,MBE 是 QCL 采用的唯一生长技术。2006 年开始引入金属有机化合物化学气相沉积(MOCVD)生长技术<sup>[29]</sup>。图 2 为 InP 基 QCL 有源核工作层 InGaAs/AlInAs 组成的有源区和注入区的高分辨透射电镜图像,从图中可见,阱层 InGaAs 的厚度为  $2.5 \sim 5.1 \text{ nm}$ ,垒层 AlInAs 厚度为  $1.1 \sim 3.5 \text{ nm}$ 。外延层厚度波动  $0.5 \text{ nm}$ ,就会导致波长改变  $3 \text{ meV}$  ( $0.4 \mu\text{m}$ )。因此,要求 QCL 外延层厚度控制精度在单原子层水平。单原子层水平控制和亚纳米生长技术被视为最具挑战的半导体纳米材料和纳米生长技术巅峰。16 年来围绕开拓、发展新一代中远红外半导体光源领域,围绕实现室温连续工作多模 F-P 腔 QCL,室温连续工作单模 DFB-QCL,室温瓦级大功率 QCL,在理论、材料、器件、表征、应用开展了全面创新研究,取得了实质性的里程碑进展。

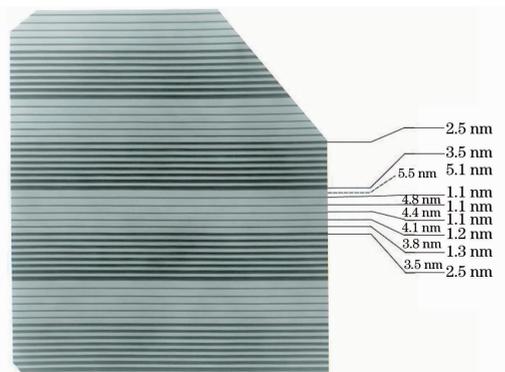


图 2 由数百纳米级外延层组成的 MBE 量子级联激光器有源区和注入区透射电镜图

Fig. 2 Transmission electron microscopy (TEM) image of the active core of the one stage of QCL grown by molecular beam epitaxy

中红外波段 QCL 首选的主要材料体系是 InP 基 InGaAs/AlInAs 体系和 InAs 基 InAs/AlSb 体系,远红外波段 QCL 首选的主要材料体系是 GaAs 基 GaAs/AlGaAs 体系。采用 MBE 原子层生长技术生长的晶格匹配、应变补偿量子结构材料已研制出  $2.63 \sim 360 \mu\text{m}$  中远红外 QCLs。其中采用晶格匹配和应变补偿 InP 基 InGaAs/AlInAs 材料,已生长  $3.3 \sim 24.5 \mu\text{m}$  器件质量 QCLs 结构材料<sup>[30~33]</sup>;采用 InP 基 InGaAs/AlSbAs 体系已生长  $3.0 \sim 3.3 \mu\text{m}$  器件质量 QCLs 结构材料<sup>[34]</sup>;InAs 基 InAs/AlSb 体系主要应用于发展中红外短波端 QCLs<sup>[35]</sup>。采用 InAs 基 InAs/AlSb 体系已将中红外 QCL 波长推至  $2.63 \mu\text{m}$  中红外短波端<sup>[36]</sup>。采用 MBE GaAs/

AlGaAs 材料已研制出  $67\sim 250\ \mu\text{m}$ <sup>[37,38]</sup>, 在外加磁场辅助下已扩展至  $360\ \mu\text{m}$  远红外 THz-QCLs 器件结构材料<sup>[39]</sup>。

QCL 器件的工作层有源区由数百至上千层纳米外延层组成。有源区的数百至上千的异质结量子阱界面的散射, 高注入电流(安培量级)、高工作电压(10 V 量级)相当于注入功率在 10 W 量级、面功率密度  $10^8\ \text{W}/\text{m}^2$  量级, 比太阳表面的面功率密度  $6\times 10^7\ \text{W}/\text{m}^2$  还高, 有源区的热损耗是制约 QCL 长期未能实现室温连续工作的瓶颈。十多年来, 通过优化有源核工作层结构设计, 选择低热阻波导层材料、深入研究 QCL 器件热特性和科学设计热管理以及器件封装等<sup>[40]</sup>, 多模高功率 F-P 腔 QCL 器件和单膜宽波长调谐 DFB-QCL 取得了重大进展。其中室温脉冲 F-P QCLs 最高脉冲功率已达 120 W, 连续功率过瓦级, 电-光转换效率达  $15\%\sim 20\%$ 。自 2002 年获得第一个  $9.3\ \mu\text{m}$  室温连续 F-P QCL 以来, 在  $3.6\sim 10\ \mu\text{m}$  中红外波段 QCLs 实现了室温连续工作。单模中红外 QCL 自 2006 年研制成功第一个  $9.6\ \mu\text{m}$  室温连续 DFB-QCL 以来, 已从个别波长扩展至  $3.6, 4.6, 4.8, 5.6\ \mu\text{m}$  等多个波长实现室温连续工作。

为实现 QCL 单模、宽调谐, 开拓光子晶体 QCL 和外腔调谐 QCLs 研究, 2003 年美国贝尔实验室、加州理工大学、哈佛大学、普林斯顿大学、法国 IEF 联合研究组首次报道研制成功 InP 基  $8\ \mu\text{m}$  中红外量子级联面发射光子晶体激光器<sup>[41]</sup>, 2006 年德国小组报道研制出  $11.9\ \mu\text{m}$  中红外 GaAs/AlGaAs 室温光子晶体 QCL<sup>[42]</sup>。近几年来, 法国 Colombelli 小组在这个方向取得了突破性进展<sup>[43,44]</sup>。光子晶体 QCL 的研究成功开拓了把半导体带隙与光子带隙结合的量子电子-量子光子交叉学科。2004 年 Faist 小组开展了外腔宽调谐 QCL 研究<sup>[45]</sup>, 2006 年首次报道外腔调谐 QCL 的波长调谐范围在  $8.2\sim 10.4\ \mu\text{m}$  可调<sup>[46]</sup>。DFB-QCL, 光子晶体 QCL (PH-QCL), 外腔调谐 QCL (EC-QCL) 构筑了实现单模、窄线宽、宽调谐 QCL, 为今后单模 QCL 集成开辟了新的方向。

THz-QCL 已研制出  $67\sim 250\ \mu\text{m}$  远红外 THz-QCLs<sup>[27, 37, 38]</sup>, 在外加磁场辅助下已扩展至  $360\ \mu\text{m}$ <sup>[39]</sup>。远红外 THz-QCLs 在激射波长范围取得了重大突破, 但工作温度一直在低于 200 K 徘徊, 输出光功率未获重大突破。远红外 THz-QCLs 性能的突破期待工作层结构、波导结构和新结构材料

体系的创新。

由上述可见, 自 1994 年采用 MBE QCL 结构材料研制出第一个  $4.3\ \mu\text{m}$  中红外 QCL 以来, 16 年间科学家们解决了一系列 QCL 材料与器件核心技术问题, 包括数百层纳米尺度外延层组成的 QCL 结构组分、厚度、界面、组元混溶、记忆效应, 掺杂浓度与能带结构和应变及其补偿度调控, 低热阻材料选择, QCL 器件高注入电流和高面功率密度热管理、热特性调控, 使 16 年间中远红外 QCL 材料和器件的研究取得了突飞猛进的发展。

## 4 中远红外 QCL 的应用

中远红外波段位于电磁波谱  $2.5\sim 1000\ \mu\text{m}$ , 大多数分子在该波段具有很强的基频特征指纹吸收谱线, 涵盖了揭示波谱本质的原子振动激励、分子振动激励; 中远红外电磁波辐射与半导体自由载流子的相互作用引发了一系列的红外物理新现象、新效应, 有相当丰富的物理内涵。这些特点决定了工作于中远红外波段光谱区透射窗口和吸收带、吸收线的 QCL 的重大科学、技术意义和战略性应用价值。中远红外 QCL 以它的小型、相干、可调谐优良性能在光谱、成像、空间通信有重要的应用。引起不同应用领域和产业部门的极大兴趣和关注。作为高分辨、高灵敏度在线实时检测痕量气体的可调谐中红外光源吸收光谱受到环境与资源、高分辨分光光谱、声子光谱、医学临床诊断的密切关注与跟踪。

1) 在痕量气体检测应用领域, 中红外 QCL 具有独特的优越性。全球关注的  $\text{CO}_2, \text{CH}_4, \text{N}_2\text{O}$  温室效应气体, 导致我国年损失千亿美元的大气中的  $\text{SO}_2$  酸雨和造成年损失约占我国 GDP 的  $2\%\sim 3\%$  的大气污染气体, 神经毒气、糜烂毒气、爆炸物等的气体特征基频吸收谱线均落在  $2\sim 14\ \mu\text{m}$  中红外光谱区内。中红外半导体激光器对这些气体的检测灵敏度高达  $10^{-9}$  量级, 比近红外半导体激光器光源高  $2\sim 4$  个数量级。与其他检测方法如电化学方法、固体光源、气体光源相比, 具有在线、实时、远程、体积小、重量轻、宽光谱范围连续单模调谐的优势, 因此, 单模、宽波长调谐中红外激光器痕量气体检测在环保、气候变化、外星球水和气体探测、化学战、生物战、爆炸、化工生产过程监控、无损害医疗诊断学、分子光谱等方面的应用占有十分重要的地位, 被认为是最理想的半导体吸收光谱仪光源<sup>[47]</sup>。图 3 为 2008 年北京奥运会举办期间, 中国科学院大气物理研究所与美国普林斯顿大学中红外健康环境中心合

作,用中红外 QCL 半导体吸收光谱系统对奥运中心体育场的臭氧层和环境空气质量进行监测的实景和谱线图,发表于 2008 年在瑞士召开的量子级联激光器国际研讨会(QCL Workshop, September 2008, Switzerland)和该校网页上;

2) 在大气通信应用方面:处于  $2\sim 14\ \mu\text{m}$  中红外大气窗口和 THz 波段的 QCL 具有对雾、尘埃不敏感的优点,信息强度高、分辨率高,是自由空间无线光通信、保密通信的理想光源,有重要实用价值,

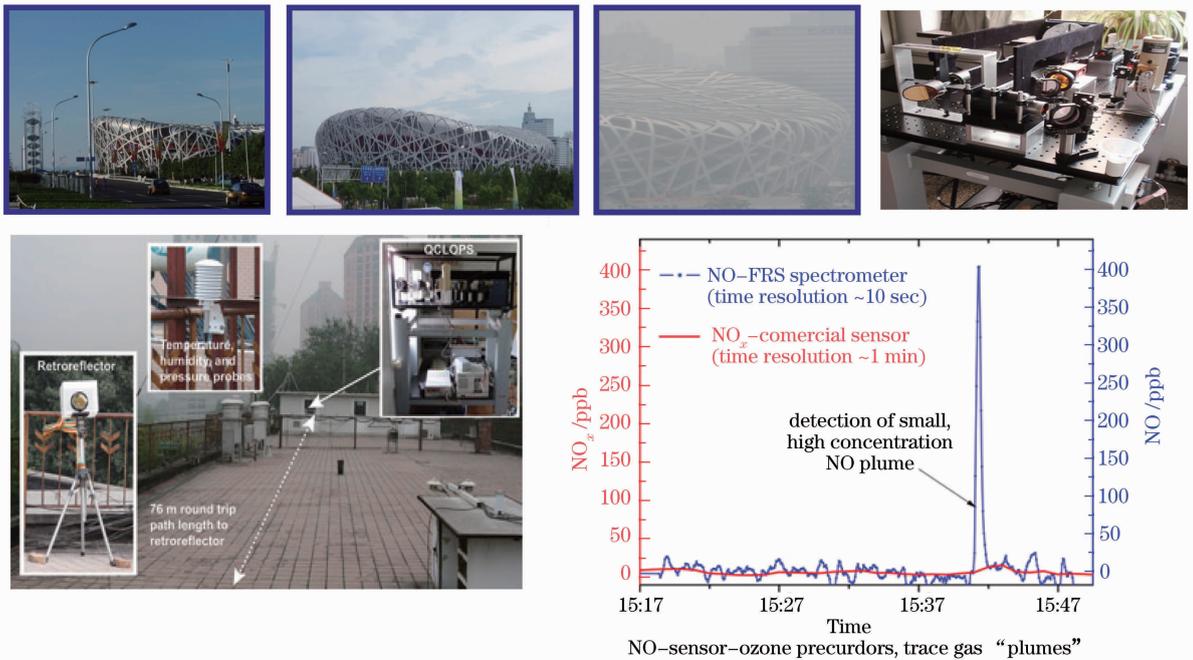


图 3 用 QCL 气体吸收光谱系统在 2008 奥运期间对北京市空气质量进行在线实时监测

Fig. 3 An air-quality study (monitoring ozone and aerosol emissions) in Beijing by MIR QCL-absorption spectroscopy during 2008 Olympic Games

## 5 小结与展望

综述了面对双极型激光器激射波长受材料带隙物理极限挑战时,单极型 QCL 的发明和发展,评述了 QCL 受激辐射基本物理过程基础研究对结构设计和器件质量突破的科学指导意义、QCL 纳米结构材料生长与质量的原子层量级精度控制,极高面功率密度 QCL 器件的热特性与热管理的理论和实验研究。在理论、材料、器件形成完整的创新研究链后,中远红外单极型 QCL 获得突飞猛进的发展,自 1994 年发明第一个 10 K 下激射的  $4.6\ \mu\text{m}$  QCL 起,16 年间已研制出波长覆盖  $2.63\sim 360\ \mu\text{m}$  单极型 QCL,开创了中远红外半导体激光前沿领域,开辟了战略性应用方向并正在引领战略性新兴产业的形成。

瑞士<sup>[48]</sup>、德国进行了近距离通信试验,中国进行了原理性演示;

3) 非侵入式医学诊断和红外成像是中远红外 QCL 的重要应用方向:与疾病相关的医学波长如通过分析呼吸呼出的气体所反映的哮喘、溃疡、肾、肝、胸、肺、糖尿病、器官排异、精神分裂、加压氧化的特征气体医学波长处于中红外波段<sup>[49]</sup>。此外,大功率中红外激光器在红外制导有重要应用。

与 1962 年发明的 p-n 结双极型半导体激光器相比较,1994 年发明的单极型 QCL 具有下述特点: 1) 受激辐射实现光放大激射理论:QCL 是基于电子在导带子能级间跃迁和共振声子辅助隧穿实现光激射,受激辐射过程只有电子参加而没有空穴参加,是单极型半导体激光器。其激射波长由有源区阱层和垒层的厚度决定而与材料带隙无关,理论预测可覆盖几个微米至  $250\ \mu\text{m}$  以上很宽的波长范围,从根本上解决了自然界缺少带隙位于中远红外波段理想的半导体激光材料所导致的中远红外半导体激光领域研究长期处于停滞不前的状态,是半导体激光理论的革命里程碑发展。2) 在光放大机制上:QCL 的级联效应允许一个电子产生多个光子,其光子数目等于 QCL 的级数,由此提高了量子效率,并成为目前唯一实现瓦级大功率室温脉冲,室温连续工作的

多模中红外半导体激光器,功率比商用注入型铅盐激光器高3~4个数量级。由于QCL的受激辐射机制是光学声子发射而不是俄歇复合效应,因此具有高特征温度 $T_0$ 和高工作温度特点。3)宽调谐、高增益特性:量子级联分布反馈激光器(QC-DFBL)是第一个实现室温脉冲运转、室温连续运转的单模中红外半导体激光器,其温度波长调谐范围宽达150 nm,其边模抑制比达30 dB。QC-DFBL是目前唯一适用于宽光谱范围连续单模调谐的中红外半导体激光器,是高分辨吸收光谱十分重要和首选的理想光源。而通过带间辐射复合实现粒子数反转的传统p-n结激光器,增益谱很宽。4)单原子层水平控制和亚纳米生长技术:35~75级级联QCL材料结构含有800~1800层外延,最薄的外延层厚度仅0.4~0.6 nm,为原子层量级。外延层厚度波动0.5 nm,就会导致波长改变3 meV(0.4  $\mu\text{m}$ )。因此,要求QCL材料层厚度、组分、界面控制精度在单原子层水平。它被视为最具挑战的半导体纳米材料和纳米生长技术巅峰。5)材料体系:QCL用同一种材料体系如InGaAs/InAlAs/InP, AlGaAs/GaAs,只需改变有源区阱层和垒层的厚度就可覆盖很宽的光谱范围,而不像传统的半导体p-n结激光二极管,不同波长激光二极管需要换不同材料体系。6)与双极型带间激光二极管不同,QCL的注入面功率密度高达 $10^8 \text{ m}^{-2}$ ,因此,QCL的热特性和热管理的理论和实验研究仍需创新。

进入21世纪后,可以看到以下的发展趋势:

整个世界都被高速的微波和光通讯系统网络连接起来;

个人健康将用便携式的非侵入体内的仪器进行监控和诊断;

自然界资源的更有效利用和开采将由微传感器自动监控,达到人类和自然的和谐发展。

展望中远红外半导体激光领域,将会在碳排放科技、人口健康、人类和自然和谐发展中开拓战略性的新兴产业,造福人类。开创和发展新兴交叉学科。

将于2010年9月在意大利召开的量子级联激光器国际研讨会(2010 International QCL workshop, Italy)和2010年9月5~9日在中国上海召开的第十届中红外光电子学材料和器件国际会议(The 10<sup>th</sup> International Conference on Mid-Infrared Optoelectronics; Materials and Devices (MIOMD-X, September 5~9, Shanghai, China)将展现该领域的最新成果和进展。

**致谢** 首先感谢中国科学院,上海分院,中国科学院上海微系统与信息技术研究所,信息功能材料国家重点实验室,国家自然科学基金委员会,国家科技部863新材料领域,973材料领域长期以来在建立SIM(2001年易名SIMIT)分子束外延实验室和中红外量子级联激光器研究领域过程给予的支持、资助。感谢我的恩师邹元熾先生。感谢美国Carnegie-Mellon大学电子与计算机系固体物理实验室Milnes教授在20世纪80年代和90年代为我提供在他实验室学习和从事III-V MBE微结构研究的机会。感谢MBE之父美国贝尔实验室卓以和博士长期以来的鼓励、支持以及极其有价值的讨论和建议。感谢我的研究生们和合作的同事们。

## 参 考 文 献

- 1 L. Esaki, R. Tsu. Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors[J]. *IBM J. Res. Dev.*, 1970, **14**(1): 61~65
- 2 A. Y. Cho, M. Panishi, I. Hayashi. Molecular beam epitaxy of GaAs,  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  and GaP [C]. Proc. Symp. GaAs and Related Compounds, 1970, **2**: 18
- 3 A. Y. Cho. Film deposition by molecular beam techniques[J]. *J. Vac. Sci. Technol.*, 1971, **8**(5): S31~S38
- 4 R. F. Kazarinov, R. A. Suris. Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice[J]. *Sov. Phys. Semicond.*, 1971, **5**(4): 707~709
- 5 F. Capasso, K. Mohammed, A. Y. Cho. Resonant tunneling through double barriers, perpendicular quantum transport phenomena in superlattices, and their device applications[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1986, **QE-22**: 1853~1869
- 6 F. Capasso. Band gap engineering: from physics and materials to new semiconductor devices [J]. *Sciences*, 1987, **235** (4785): 172~176
- 7 H. C. Liu. A novel superlattice infrared source[J]. *J. Appl. Phys.*, 1988, **63**(8): 2856~2858
- 8 A. Y. Cho. Advances in molecular beam epitaxy (MBE)[J]. *J. Crystal Growth*, 1991, **111**(1-4): 1~13
- 9 J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco *et al.*. Quantum cascade laser [J]. *Science*, 1994, **264**(5158): 553~556
- 10 A. Z. Li, J. X. Chen, Q. K. Yang *et al.*. GSMBE grown infrared quantum cascade laser structures [J]. *J. Crystal Growth*, 1999, **201-202**: 901~904
- 11 F. Q. Liu, Y. Z. Zhang, Q. S. Zhang *et al.*. High performance strain-compensated InGaAs/InAlAs quantum cascade lasers[J]. *Semicon. Sci. Technol.*, 2000, **15**(12): L44~L46
- 12 A. Z. Li, H. Li, G. Y. Xu *et al.*. Key issues associated with low threshold current density for InP-based quantum cascade lasers[J]. *J. Crystal Growth*, 2007, **301-302**: 129~133
- 13 Yu Guo, F. Q. Liu, Z. G. Wang *et al.*. 8  $\mu\text{m}$  strain-compensated quantum cascade laser operating at room temperature[J]. *Semicond. Sci. Technol.*, 2005, **20**(8): 844~846
- 14 Xiu-Zhen Lu, Feng-Qi Liu, Jun-Qi Liu *et al.*. High temperature operation of 5.5  $\mu\text{m}$  strain-compensated quantum cascaded lasers [J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2005, **22**(12): 3077~3079
- 15 L. Li, Y. Shao, J. Q. Liu *et al.*. High-power operation of uncoated strain-compensated quantum cascade lasers at 4.8  $\mu\text{m}$  [J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2007, **24**(12): 3428~3430

- 16 A. Z. Li, G. Y. Xu, Y. G. Zhang *et al.*. Low threshold distribution feedback quantum cascade lasers at  $7.6 \mu\text{m}$  grown by gas source molecular beam epitaxy[J]. *J. Crystal Growth*, 2005, **278**: 770~773
- 17 Gangyi Xu, Aizhen Li, Yaoyao Li *et al.*. Low threshold current density distributed feedback quantum cascade lasers with deep top gratings[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89**(16): 161102
- 18 Zhang Yonggang, Xu Gongyi, Li Aizhen *et al.*. Pulse wavelength scan of room temperature Mid-infrared distributed feedback quantum cascade lasers for  $\text{N}_2\text{O}$  gas detection[J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2006, **23**(7): 1780~1782
- 19 G. Y. Xu, A. Z. Li. Interface phonons in the active region of a quantum cascade laser[J]. *Phys. Rev. B*, 2005, **71**: 235304
- 20 Li Hua, Han Yingjun, Tan Zhiyong *et al.*. Device fabrication of semi-insulating surface-plasmon terahertz quantum-cascade lasers [J]. *Acta Physica Sinica*, 2010, **59**(3): 2169~2172  
黎 华, 韩英军, 谭智勇 等. 半绝缘等离子体波导太赫兹量子级联激光器工艺研究[J]. *物理学报*, 2010, **59**(3): 2169~2172
- 21 J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori *et al.*. Vertical transition quantum cascade with Bragg confined excited state[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **66**(5): 538~540
- 22 J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori *et al.*. High power mid-infrared ( $\lambda \sim 5 \mu\text{m}$ ) quantum cascade lasers operating above room temperature[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(26): 3680~3682
- 23 G. Scamarcio, F. Capasso, C. Sirtori *et al.*. High-power infrared (8-micrometer wavelength) superlattice lasers [J]. *Science*, 1997, **276**(5313): 773~776
- 24 J. Faist, M. Beck, T. Lellen *et al.*. Quantum-cascade lasers based on a bound-to-continuum transition [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2001, **78**(2): 147~149
- 25 M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen *et al.*. Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature[J]. *Science*, 2002, **295**(5553): 301~305
- 26 S. R. Darvish, S. Slivken, A. Evans *et al.*. Room-temperature, high-power, and continuous-wave operation of distributed-feedback quantum-cascade lasers at  $\lambda \sim 9.6 \mu\text{m}$ [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(20): 201114
- 27 R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram *et al.*. Terahertz semiconductor-heterostructure laser [J]. *Nature*, 2002, **417**(6885): 156~159
- 28 R. Q. Yang. Infrared laser based on intersubband transitions in quantum wells [J]. *Superlattices and Microstructure*, 1995, **17**(1): 77~82
- 29 L. Diehl, D. Bour, S. Corzine *et al.*. Pulsed- and continuous-mode operation in high temperature of strained quantum-cascade lasers grown by low-pressure metal organic vapor-phase epitaxy [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(4): 041102
- 30 M. Razeghi. High-performance InP-based mid-IR quantum cascade lasers[J]. *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 2009, **15**(3): 941
- 31 Y. Bai, S. Slivken, S. Kuboya *et al.*. Quantum cascade lasers that emit more light than heat [J]. *Nature Photonics*, 2010, **4**(2): 99~102
- 32 M. Razeghi, S. Slivken, Y. Bai *et al.*. High power quantum cascade lasers[J]. *New J. Phys.*, 2009, **11**(12): 125017
- 33 R. Colombelli, F. Capasso, C. Gmachl *et al.*. Far-infrared surface-plasmon quantum-cascade lasers at  $21.5 \mu\text{m}$  and  $24 \mu\text{m}$  wavelength[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2001, **78**(18): 2620~2622
- 34 M. P. Semtsiv, M. Wienold, S. Dressler *et al.*. Short-wavelength ( $\lambda \approx 3.05 \mu\text{m}$ ) InP-based strain-compensated quantum-cascade laser[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **90**(5): 051111
- 35 K. Ohtani, H. Ohno. Mid-infrared intersubband electroluminescence in InAs/GaSb/AlSb type II cascade structures [J]. *Physica E: Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, 2000, **7**(1-2): 80~83
- 36 O. Cathabard, R. Teissier, J. Dverson *et al.*. Quantum cascade lasers emitting near  $2.6 \mu\text{m}$ [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2010, **96**(14): 141110
- 37 B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu *et al.*. Operation of terahertz quantum-cascade lasers at 164 K in pulsed mode and 117 K in continuous-wave mode[J]. *Opt. Express*, 2005, **13**(9): 3331~3339
- 38 C. Walther, M. Fischer, G. Scalari *et al.*. Quantum cascade laser operating from 1.2 to 1.6 THz[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **91**(13): 131122
- 39 J. Faist, G. Scalari, C. Walther *et al.*. 2007 Materials Research Society (MRS) Spring Meeting, San Francisco, California, April 2007
- 40 C. Zhu, Y. G. Zhang, A. Z. Li *et al.*. Analysis of key parameters affecting the thermal behavior and performance of quantum cascade lasers[J]. *J. Appl. Phys.*, 2006, **100**(5): 053105
- 41 R. Colombelli, K. Srinivasan, M. Troccoli *et al.*. Quantum cascade surface-emitting photonic crystal laser[J]. *Science*, 2003, **302**(5649): 1374~1377
- 42 S. Höfling, J. Heinrich, Ho. Hofmann *et al.*. Photonic crystal quantum cascade lasers with improved threshold characteristics operating at room temperature[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89**(9): 91113
- 43 G. Y. Xu, R. Colombelli, R. Braive *et al.*. Surface-emitting mid-infrared quantum cascade lasers with high-contrast photonic crystal resonators[J]. *Opt. Express*, 2010, **18**(11): 11979~11989
- 44 G. Y. Xu, Y. Chassagneux, R. Colombelli *et al.*. Polarized single-lobed surface emission in mid-infrared, photonic-crystal, quantum-cascade lasers[J]. *Opt. Lett.*, 2010, **35**(6): 859
- 45 R. Maulini, M. Beck, J. Faist *et al.*. Broadband tuning of external cavity bound-to-continuum quantum-cascade lasers[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **84**(10): 1659~1661
- 46 R. Maulini, A. Mohan, M. Giovannini *et al.*. External cavity quantum-cascade laser tunable from  $8.2$  to  $10.4 \mu\text{m}$  using a gain element with a heterogeneous cascade[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(20): 201113
- 47 Y. A. Bakhrkin, A. A. Kosterev, R. F. Curl *et al.*. Sub-ppbv nitric oxide concentration measurements using cw thermoelectrically cooled quantum cascade laser-based integrated cavity output spectroscopy[J]. *Appl. Phys. B*, 2006, **82**(11): 149~154
- 48 E. Brundermann, M. Havenith, G. Scalari *et al.*. Turn-key compact high temperature terahertz quantum cascade lasers: imaging and room temperature detection [J]. *Opt. Express*, 2006, **14**(5): 1829~1841
- 49 A. Amann, D. Smith. Breath Analysis for Clinical Diagnosis and Therapeutic Monitoring[M]. Singapore: World Scientific, 2005. 75~84