

基于 MOCVD 生长的 4.6 μm 中红外量子级联激光器

庞磊^{1,2,3}, 程洋^{2,3}, 赵武^{2,3}, 谭少阳^{2,3}, 郭银涛^{2,3}, 李波^{2,3}, 王俊^{1,2,3}, 周大勇³

- (1. 四川大学电子信息学院, 四川成都 610065;
2. 苏州长光华芯光电技术股份有限公司, 江苏苏州 215163;
3. 材料科学姑苏实验室, 江苏苏州 215123)

摘要: 中红外量子级联激光器在红外对抗、痕量气体检测、自由空间光通信等领域具有广阔的应用前景, 采用 MOCVD 生长量子级联激光器的方法具有生产效率高、可做再生长、便于多组分生长等优点。报道了室温连续波工作的中红外量子级联激光器, 波长 4.6 μm , 采用 MOCVD 生长应变补偿的 InGaAs/InAlAs 材料。实验探究了不同掺杂对芯片性能的影响, 通过优化掺杂浓度提升了器件性能。腔长 3 mm, 脊宽 13 μm 的芯片在 288 K 的温度下, 脉冲模式下最大峰值功率达到 722 mW, 电光转换效率和阈值电流密度分别为 6.3% 和 1.04 kA/cm^2 , 在连续模式下功率输出达到 364 mW。文中成功实现了用 MOCVD 生长中红外量子级联激光器, 为中红外波段的激光应用提供了技术支撑。

关键词: 中红外; 量子级联激光器; 金属有机物化学气相沉积; 掺杂优化; 连续波工作

中图分类号: TN248.4 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA20210980

Mid-infrared quantum cascade laser grown by MOCVD at 4.6 μm

Pang Lei^{1,2,3}, Cheng Yang^{2,3}, Zhao Wu^{2,3}, Tan Shaoyang^{2,3}, Guo Yintao^{2,3}, Li Bo^{2,3}, Wang Jun^{1,2,3}, Zhou Dayong³

- (1. College of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu 610065, China;
2. Suzhou Everbright Photonics Co., Ltd., Suzhou 215163, China;
3. Gusu Laboratory of Materials, Suzhou 215123, China)

Abstract: Mid-infrared quantum cascade laser has various application prospects in infrared countermeasures, trace gas detection, free space optical communication and other fields. The method of using MOCVD to grow quantum cascade lasers has the advantages of high production efficiency, convenience for regrowth and multi-components growth. This paper reported a mid-infrared quantum cascade laser capable of continuous-wave operation at room temperature, with a wavelength of 4.6 μm , using MOCVD to grow strain-compensated InGaAs/InAlAs materials. The experiment explored the impact of different doping on chip performance, and determined that the device performance can be improved by optimizing the doping concentration. The maximum peak power of the chip with a cavity length of 3 mm and a ridge width of 13 μm in pulse mode was 722 mW at a temperature of 288K, the wall-plug efficiency and threshold current density were 6.3% and 1.04 kA/cm^2 , respectively, and the power output reached 364 mW in continuous-wave operation. This article has successfully realized the growth of mid-infrared quantum cascade laser by MOCVD, which provides technical support for laser applications in the mid-infrared band.

Key words: mid-infrared; quantum cascade laser; MOCVD; doping optimization; continuous-wave operation

收稿日期: 2021-12-17; 修订日期: 2022-02-21

作者简介: 庞磊, 男, 硕士生, 主要从事中红外量子级联激光器方面的研究。

导师简介: 王俊, 男, 教授, 博士生导师, 博士, 主要从事半导体激光器方面的研究。

0 引言

量子级联激光器 (Quantum Cascade Laser, QCL) 是一种单极性器件, 由于其采用子带跃迁原理, 激射波长可以覆盖中红外到太赫兹波段, 近年来, 随着量子级联激光器在连续模式下功率性能不断提升, 它在气体检测、自由空间光通信以及红外对抗等领域逐渐得到了广泛应用^[1]。早期, 高功率的量子级联激光器主要是采用分子束外延 (Molecular Beam Epitaxy, MBE) 技术生长方式, 进行原位监控, 生长厚度和界面控制更精准, Faist 等人使用 MBE 成功研制了世界上第一个量子级联激光器, 波长为 $4.2 \mu\text{m}$ ^[2], 并在 2001 年, 首次实现室温连续工作^[3]。美国西北大学的 Razeghi 课题组^[4]采用 MBE 生长高应变材料, 设计了 AlAs 高势垒, 实现 QCL 单管芯片在室温、连续条件下工作达到 5.6 W 的最高纪录, 器件电光转换效率达到 21%, 波长为 $4.7 \mu\text{m}$ 。随着金属有机物化学气相沉积 (Metal-Organic Chemical Vapor Deposition, MOCVD) 技术的进步, Roberts 等人首次将 MOCVD 用于 QCL 材料制备^[5], 后来也有课题组使用 MOCVD 生长出了室温连续工作的高功率 QCL, 美国威斯康星大学的 Dan Botez 等人^[6]使用 MOCVD 生长的 $5 \mu\text{m}$ 量子级联激光器, 在室温连续波条件下的最大输出功率已经达到了 2.6 W。在国内, 中国科学院半导体研究所的刘峰奇课题组最近也使用 MOCVD 生长出高质量的超晶格材料, 其 $8.5 \mu\text{m}$ 的长波量子级联激光器室温连续模式下达到了 1.04 W 的输出功率^[7]。使用 MBE 生长 QCL 有源区时, 因其在界面和厚度控制更具优势^[8], 器件的阈值电流密度更低, 斜率效率更高。但 MBE 设备存在维护困难, 生长效率低的问题, 不便于大批量生产。MOCVD 是在低压环境下的气体反应, 其生长切换存在延迟效应, 因此其生长的异质界面相比 MBE 生长的异质界面具有较差的陡峭度, 但是 MOCVD 设备维护简单, 重复性好, 生长效率高, 适合大批量生产, 在商业化方面具有更大的应用前景。并且 MOCVD 在提升器件功率效率方面有两大优势: (1) 可用于器件的再生长工艺, 提高侧向散热效率; (2) 源流量可以通过流量计线性调节, 容易生长多种组分, 组合出更灵活的有源区结构。目前国内几乎没有 MOCVD 生长 $3\sim 5 \mu\text{m}$ 波段 QCL 的相关研究报道,

因此开展 MOCVD 生长中红外 QCL 的研究具有重要意义。

笔者报道了 MOCVD 生长出的 $4.6 \mu\text{m}$ 的高功率中红外量子级联激光器, 通过在生长超晶格时采用厚度补偿, 得到高质量的外延材料, 使用 MOCVD 生长出在室温连续模式下激射的中红外 QCL, 在 288 K 温度下, 连续模式输出功率达到 364 mW, 阈值电流密度低至 1.04 kA/cm^2 , 与参考文献 [9] 中使用 MBE 生长的水平基本一致。并在脉冲模式下达到 720 mW 的功率, 最大电光转换效率达到 6.3%, 对推动中红外激光器的发展具有重要意义。

1 外延生长和器件制备

在文中生长实验中, QCL 的整个外延结构使用 MOCVD 生长方式, 设备型号为德国 AIXTRON, 反应腔室采用近耦合喷淋式结构。MO 源包括三甲基镓 (TMGa)、三甲基铟 (TMIn)、三甲基铝 (TMAI), 氢化物源包括砷烷 (AsH_3)、磷烷 (PH_3)、乙硅烷 (Si_2H_6)。文中生长量子级联激光器的全结构采用类似双声子共振的 QCL 有源区结构, 基于参考文献 [9] 并作结构优化设计, 界面切换处作有效厚度的补偿, 并改变了掺杂浓度。生长全结构时采用高掺杂的 N 型 InP 衬底, 有源区结构为交替生长的应变平衡的 $\text{In}_{0.669}\text{Ga}_{0.331}\text{As}/\text{In}_{0.362}\text{Al}_{0.638}\text{As}$ 超晶格。从衬底开始依次生长外延层如下: $0.5 \mu\text{m}$ 的 InP 缓冲层, $3 \mu\text{m}$ 的低掺杂 InP 波导层, $0.3 \mu\text{m}$ 的 InGaAs 限制层, 30 个周期的 InGaAs/InAlAs 的有源区, $0.3 \mu\text{m}$ 的 InGaAs 限制层, $3 \mu\text{m}$ 的低掺杂 InP 波导层, $1 \mu\text{m}$ 厚的高掺杂 InP 波导层。

笔者课题组进行了改变有源区掺杂浓度的生长实验, 设计生长了 Structure1, Structure2 和 Structure3 三个实验样品, 样品的注入区 Si 掺杂浓度从低到高分别为 $2\times 10^{17}\text{cm}^{-3}$ 、 $3\times 10^{17}\text{cm}^{-3}$ 和 $4\times 10^{17}\text{cm}^{-3}$, 全结构的生长反应温度为 $610 \text{ }^\circ\text{C}$, V/III 为 100~130。

在全结构生长时, 使用反射率曲线对其三个结构的生长过程进行监控, 如图 1 所示, 图中为有源区超晶格中 14 个周期的反射率曲线, 可以明显看出三个结构生长过程具有高度的一致性, 表明 MOCVD 在进行长时间生长超晶格时的生长重复性好, 可监控性强。

生长的样品使用原子力显微镜 (Atomic Force Microscope, AFM) 观察其表面形貌, 并采用高分辨

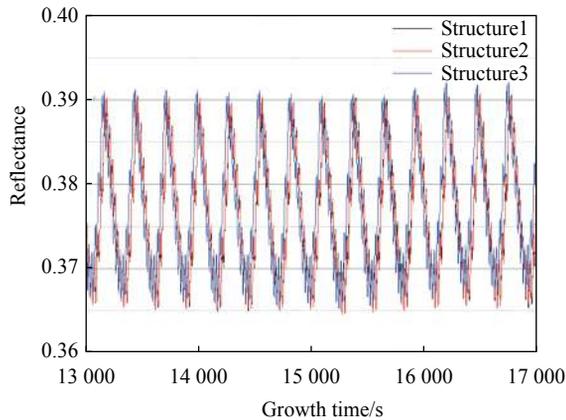


图 1 三种不同掺杂浓度样品的反射率曲线监控

Fig.1 Reflectance curve monitoring of three samples with different doping concentrations

X 射线衍射仪 (XRD) 进行晶体质量分析。AFM 测试结果如图 2 所示, 测试区域大小为 $5\ \mu\text{m}\times 5\ \mu\text{m}$, 其表面均方根粗糙度 (Root-Mean-Square, RMS) 分别是 0.215 nm、0.205 nm 和 0.209 nm, 可以看出三个样品均具有明显的台阶流式的表面形貌, 表面生长形貌良好, 且改变掺杂浓度对样品的表面形貌无明显影响。

XRD 作为常用的材料表征手段, 可以反映生长的层厚和组分的均匀性信息, 是否观测到多个清晰的衍射卫星峰可以作为评价高质量的异质界面的依据。图 3 对比了三组样品的 X 射线光谱图, 从结果中可以清晰地看到, 三组样品峰位基本保持一致, 均有多个高阶的卫星峰, 样品半高宽为 17° , 峰宽较窄, 表明生长的材料具有良好的周期性和陡峭的异质界面。

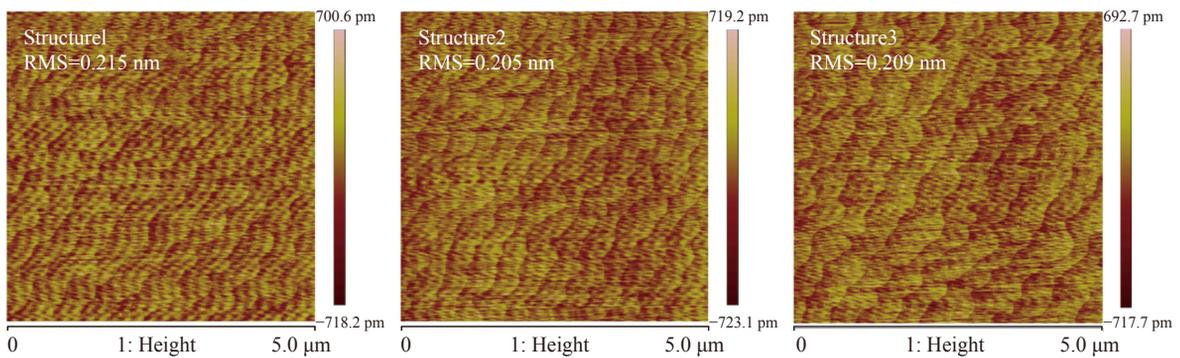


图 2 三种不同掺杂浓度样品的 AFM ($5\ \mu\text{m}\times 5\ \mu\text{m}$) 测试结果图

Fig.2 AFM images ($5\ \mu\text{m}\times 5\ \mu\text{m}$) of three samples with different doping concentrations

外延片经过器件工艺制作成 $13\ \mu\text{m}$ 宽的双沟单脊型结构, QCL 的工艺制作流程如下, 经过晶圆清洁

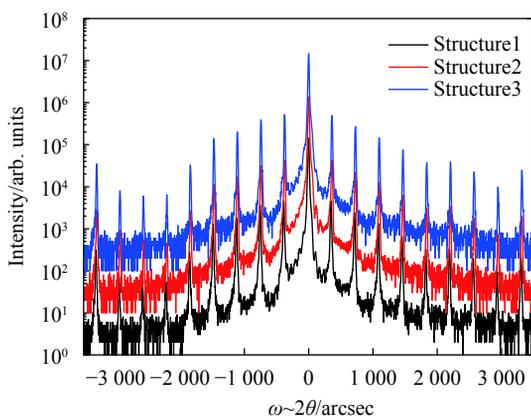


图 3 三种不同掺杂浓度样品的 X 射线光谱图

Fig.3 X-ray spectra of three samples with different doping concentrations

后, 用等离子增强化学气相沉积 (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition, PECVD) 生长 $300\ \text{nm}$ 的 SiO_2 当掩膜, 经过匀胶, 光刻, 显影等工艺后, 用湿法刻蚀做出双沟的几何结构, 条纹图案刻在 $[110]$ 方向。然后去除 SiO_2 掩膜, 并生长新的 $300\ \text{nm}$ 厚的 SiO_2 作为电绝缘层, 并在脊的上方进行刻蚀, 露出表面高掺杂接触层。表面溅射 Ti/Pt/Au 层并退火, 作欧姆接触, 并电镀 $4\ \mu\text{m}$ 的厚金层来增加散热, 制作的双沟型结构截面图如图 4 所示, 将衬底减薄至 $150\ \mu\text{m}$ 并且抛光后, 蒸镀 Ge/Au/Ni/Au 层作为背面电极。然后将晶圆片切成不同长度的巴条, 并在一端腔面镀上 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti/Au}$ ($200/10/100\ \text{nm}$) 作为高反膜。封装时芯片焊在 AlN 热沉上, 采用倒焊封装方式, 减小有源区和热沉的距离来增加散热效率。

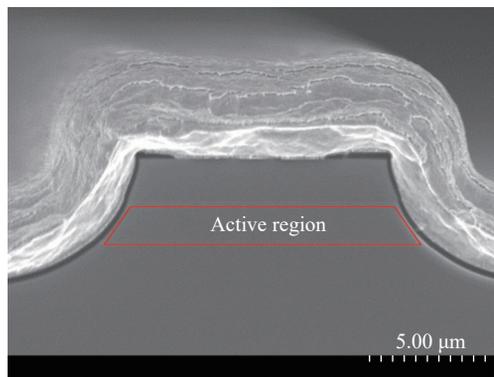


图 4 双沟型结构的扫描电子显微镜截面图

Fig.4 Cross-sectional scanning electron microscope image of the double-channel structure

2 测试结果及分析

图 5 展示的是不同注入区掺杂浓度的未镀膜器件在脉冲模式下最大单面的峰值输出功率,使用的脉冲电流源型号为 KETHIELY-2601 pulse,功率采集是使用 Coherent 的热堆,型号为 PM-USB PM10,芯片腔长为 3 mm,测试温度在 203 K,测试脉宽为 100 μs,占空比为 10%。从图中可以看出,当掺杂浓度为 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 时, Structure1 器件阈值电流为 0.72 A,对应阈值电压为 10.0 V,随着注入区掺杂的提高,阈值电流增大,阈值电压降低,当掺杂浓度为 $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 时, Structure3 阈值电流增大到 1.17 A,阈值电压降至 9.6 V,显然,优化掺杂可以得到阈值电压更低的器件,这是因为粒子数反转的条件可以在更低的电场下实现^[10],另一方面,器件阈值电流随掺杂浓度增大,这是由于 QCL 中自由载流子吸收损耗是主要的损耗,有源区中载流子增加,对光的吸收增强,吸收损耗随注入区掺杂浓度而提高。对于 Structure1,其最大输出功率为 776 mW,斜率效率为 0.85 W/A, Structure2 中,器件的输出功率为 678 mW,斜率效率为 0.72 W/A。在 $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的掺杂浓度下, Structure3 输出功率最低,为 600 mW,斜率效率为 0.66 W/A,此时最大功率和斜率的变化主要是由于热回填效应,低能态的电子跃迁回上能级,减弱粒子数反转,该效应与注入区的掺杂浓度成正比,并且对温度非常敏感^[11],由于 QCL 的转换效率低,大部分输入功率转变成了热功率,三组器件在相同功率输出下, Structure3 的工作电流最大,有源区总热量最多,热反转最严重。

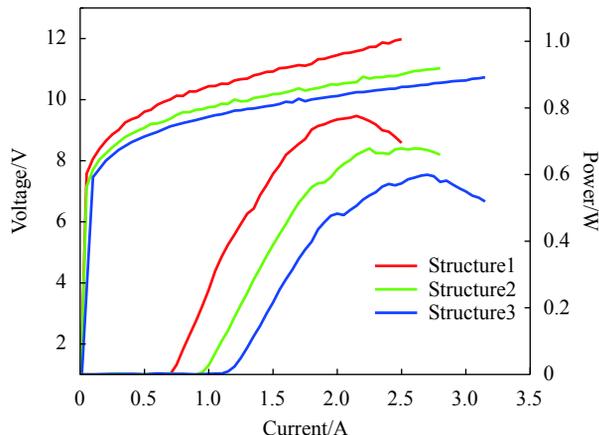


图 5 不同掺杂浓度样品的 L-I-V 曲线

Fig.5 L-I-V curves of samples with different doping concentrations

三组样品中表现最好的是 Structure1,此样品在保持低阈值电流密度和高斜率效率的同时能达到最大的功率输出,器件的最佳输出功率是由这些条件综合决定的,可见在这一组实验中 Structure1 中 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的掺杂浓度设置最为合理,并且掺杂设计仍有优化空间,进一步细化实验掺杂设计可找到更优的功率输出条件。低掺杂设计可以降低吸收损耗,使阈值电流降低,激光时产生总热量少可以减小热回填,有利于芯片在连续模式下工作。文中实验结果总体趋势与参考文献 [12] 的结果是一致的,但斜率效率与阈值电流的变化幅度不同,这是由于实验的掺杂梯度设计跟参考文献 [12] 不同。在实际操作中,可进一步减小占空比,排除热效应干扰,确定真实斜率效率与掺杂浓度的关系。

图 6(a) 为掺杂和生长优化后的器件在不同温度下的 L-I-V 曲线,器件进一步降低了掺杂浓度为 $1.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$,同时为降低吸收损耗,减小了波导层掺杂。测试使用脉宽为 10 μs,占空比为 10%,芯片温度由热沉下的热敏电阻监控,由 TEC 制冷板控温。器件脊宽 13 μm,腔长 3 mm,在室温 288 K 下,脉冲模式输出功率达到 722 mW,阈值电流为 0.39 A,阈值电流密度仅为 1.01 kA/cm²,并且斜率达到 1.6 W/A。随着温度升高,阈值电流增大,斜率效率降低,在 328 K 的温度下阈值电流为 0.54 A,斜率效率降至 0.8 W/A,最大输出功率依然有 300 mW。

图 6(b) 展示的是不同温度下计算出的电光转换效率随电流的变化关系,可以看出,随着温度升高,

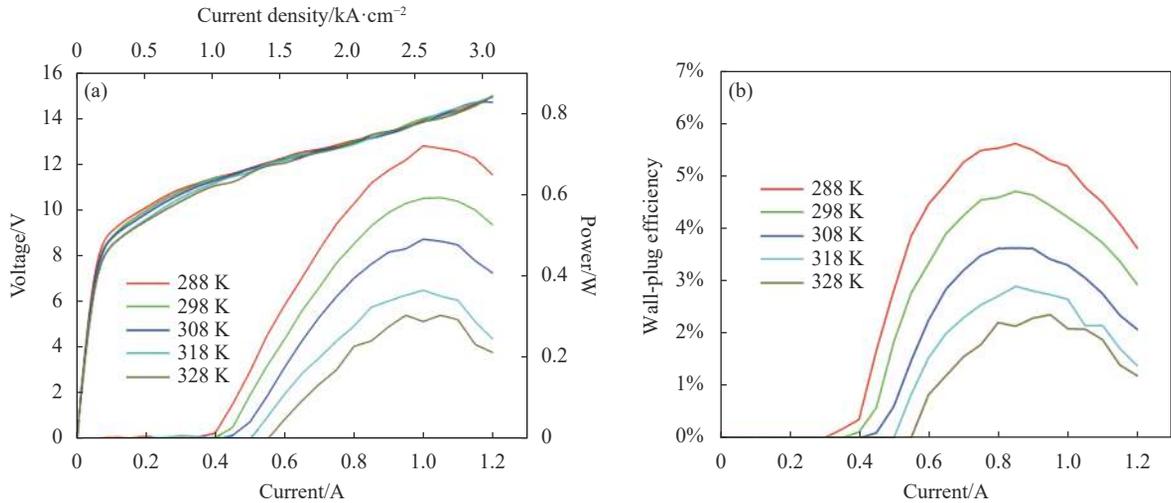


图 6 (a) 芯片在不同温度下的 $L-I-V$ 曲线; (b) 芯片在不同温度下的电光转换效率

Fig.6 (a) $L-I-V$ curves of the chip at different temperatures; (b) Wall-plug efficiency of the chip at different temperatures

电光转换效率不断降低, 最大效率点是在 278 K 下 $I=0.85$ A 时, 达到 6.3%, 在 328 K 的温度下, 芯片仍能工作, 并还有 2% 的电光转换效率。

芯片的高温工作性能可以根据特征温度 T_0 来表示, 计算方法根据如下经验公式: $J_{th} = J_0 \exp(T/T_0)$, T 是热沉温度, T_0 是脉冲模式下阈值电流密度的特征温度系数。图 7 展示了芯片的阈值电流密度随温度变化的趋势, 阈值电流密度从 288 K 时的 1.0 kA/cm² 升高到 328 K 时的 1.38 kA/cm², 计算得到的特征温度为 128 K, 可以通过进一步优化结构和提高散热效率后提高芯片高温工作时的性能。

图 8 展示的是室温连续模式下芯片的 $L-I-V$ 测试

结果和光谱, 光谱测试采用 Bruker 的傅里叶红外光谱仪, 3 mm 的器件在室温连续模式下, 器件最大输出 360 mW 的功率, 此时电流为 0.8 A。连续模式工作时, 阈值电流为 0.4 A, 阈值电流密度为 1.03 kA/cm², 斜率效率为 1.25 W/A, 在 $I=0.5$ A 时, 激光光谱波数在 2170 cm⁻¹, 对应中心波长在 4.6 μm。与脉冲模式相比, 连续模式下工作的芯片阈值电流变大, 斜率效率降低, 并且在 0.8 A 后便提前出现功率下降的现象, 这是由于连续模式工作时产生热量更多, 导致芯片有源区温度高, 热反转严重。由于芯片未做再生长工艺, 横向散热较差, 再生长后的掩埋脊型结构可以有效提高散热效率, 进一步提高连续模式下的工作功率, 这

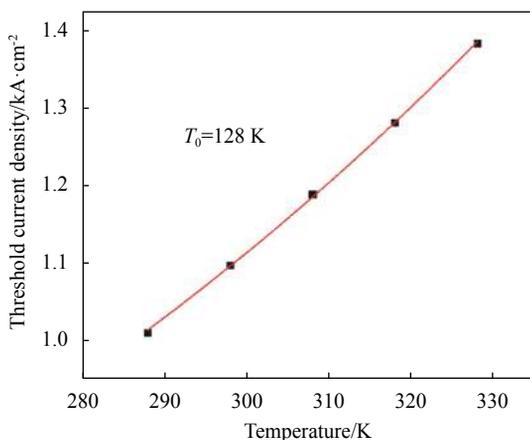


图 7 不同温度下的阈值电流密度和特征温度 T_0

Fig.7 Threshold current density and characteristic temperature T_0 at different temperatures

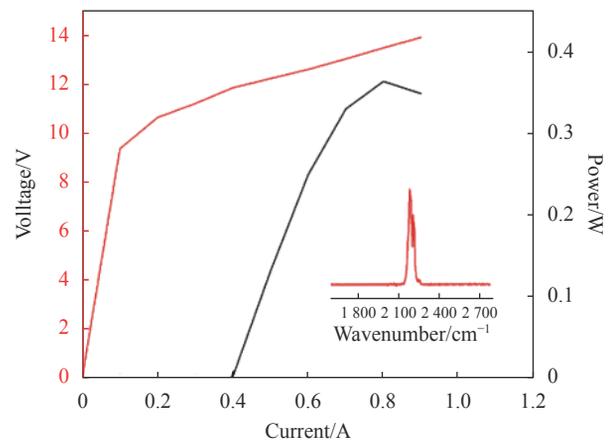


图 8 室温连续模式下的 $L-I-V$ 和光谱

Fig.8 $L-I-V$ and spectra in continuous-wave operation at room temperature

也是 MOCVD 生长高功率连续模式 QCL 的优势所在。

3 结 论

文中使用 MOCVD 生长出了可室温连续工作的中红外量子级联激光器, 研究了不同注入区掺杂浓度对器件阈值斜率及功率的影响, 在低掺杂浓度条件下实验器件获得最优性能, 经过结构优化后, 新器件室温连续模式下具有较低的阈值电流密度 1.03 kA/cm^2 , 可实现 364 mW 的功率输出, 且脉冲模式下峰值功率输出达 722 mW , 电光转换效率达 6.3% , 为目前国内采用 MOCVD 生长中红外 QCL 的先进水平, 这为中红外波段的激光应用提供技术支撑。

参考文献:

- [1] Liu Fengqi, Zhang Jinchuan, Liu Junqi, et al. Progress in quantum cascade lasers [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(7): 0701007. (in Chinese)
- [2] Faist J, Capasso F, Sivco DL, et al. Quantum cascade laser [J]. *Science*, 1994, 264(5158): 553-556.
- [3] Beck M, Hofstetter D, Aellen T, et al. Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature [J]. *Science*, 2002, 295(5553): 301-305.
- [4] Bai Y, Bandyopadhyay N, Tsao S, et al. Room temperature quantum cascade lasers with 27% wall plug efficiency [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(18): 125017.
- [5] Roberts J S, Green R P, Wilson L R, et al. Quantum cascade lasers grown by metalorganic vapor phase epitaxy [J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(24): 1921-1922.
- [6] Dan B, Kirch J D, Colin B, et al. High-efficiency, high-power mid-infrared quantum cascade lasers [Invited] [J]. *Optical Materials Express*, 2018, 8(5): 1378.
- [7] Fei T, Zhai S Q, Zhang J C, et al. High power $\lambda \sim 8.5 \mu\text{m}$ quantum cascade laser grown by MOCVD operating continuous-wave up to 408 K [J]. *Journal of Semiconductors*, 2021, 42(11): 112301.
- [8] Bour D, Troccoli M, Capasso F, et al. Metalorganic vapor-phase epitaxy of room-temperature, low-threshold InGaAs/AlInAs quantum cascade lasers [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2004, 272(1/4): 526-530.
- [9] Evans A, Darvish S R, Slivken S, et al. Buried heterostructure quantum cascade lasers with high continuous-wave wall plug efficiency [J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(7): 553.
- [10] Scarpa G, Lugli P, Ulbrich N, et al. Non-equilibrium electronic distribution within one period of InP-based quantum cascade lasers [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2004, 19(4): S342-S344.
- [11] Wittmann A, Hugi A, Gini E, et al. Heterogeneous high-performance quantum-cascade laser sources for broad-band tuning [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 2008, 44(11): 1083-1088.
- [12] Yu J S, Slivken S, Razeghi M, et al. Injector doping level-dependent continuous-wave operation of InP-based QCLs at $\lambda \sim 7.3 \mu\text{m}$ above room temperature [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2010, 25(12): 125015.