

量子级联激光器的原理及研究进展

宋淑芳, 邢伟荣, 刘 铭
(华北光电技术研究所, 北京 100015)

摘 要:量子级联激光器的发明是半导体激光器领域里程碑的发展, 开创了中远红外半导体激光的新领域, 在红外对抗、毒品和爆炸物检测、环境污染监测、太赫兹成像等方向有广泛的应用前景。本文阐述了量子级联激光器的基本原理、以及材料和器件的研究, 结合应用方向对其研究进展进行了综述性介绍。

关键词:量子级联; 中远红外; 激光器

中图分类号: TN248.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3969/j.issn.1001-5078.2013.09.02

Theory and research advancement of quantum cascade lasers

SONG Shu-fang, XING Wei-rong, LIU Ming
(North China Research Institute of Electro-optics, Beijing 100015)

Abstract: The invention of quantum cascade lasers was a milestone in the semiconductor laser field, and created a new field of semiconductor laser for operation in mid-infrared to far-infrared. Quantum cascade lasers are playing important roles in many fields, such as: infrared countermeasures, drug and explosive detection, environment survey and terahertz imaging. In this paper, we described the theory, the research on materials and devices of quantum cascade lasers. We also gave an overview on research progress and applications of quantum cascade lasers.

Key words: quantum cascade; mid-infrared, far-infrared; lasers

1 引 言

20世纪60年代,随着固体激光器、气体激光器、半导体激光二极管、染料激光器的相继诞生,激光器的研究进入到了黄金时期。与其他三种激光器相比较,半导体激光二极管由于体积小、重量轻、寿命长等特点,一直以来是研究的热点。科学家们沿着结型带间跃迁机制的思路,先后研制成功近红外、可见、紫外、短波中红外pn结注入双极型半导体激光二极管,其应用范围覆盖了整个光电子学领域,已成为当今光电子科学的核心技术和信息产业的重要支柱。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,因此利用结型带间跃迁机制很难实现中红外中波段、长波段和远红外波段的激射。

1971年,前苏联约飞技术物理研究所 Kazarinov 和 Suris 提出通过强电场下多量子阱中量子化的电子态之间实现光放大的原创概念^[1]。此后,美国贝

尔实验室 Capasso^[2] 和加拿大国家科学院 Liu^[3] 对该理论和导带有源区子能级设计做了进一步的发展,经过20多年的潜心创新研究,基于超晶格、量子阱理论和分子束外延(MBE)技术,终于在1994年贝尔实验室发明了第一个量子级联激光器^[4]。量子级联激光器的激射波长覆盖两个大气窗口,并可以向远红外波段拓展,因此量子级联激光器的发明与发展,开创了中远红外半导体激光的新领域。

2 量子级联激光器的理论基础

量子级联激光器是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。量子级联激光器理论的提出和发展,以及量子级联激

作者简介:宋淑芳(1971-),女,博士,高级工程师,主要从事Ⅲ-V族半导体光电材料器件的设计、制备和测试工作。
E-mail: sfsong@center.njtu.edu.cn

收稿日期:2013-01-29;修订日期:2013-02-13

光器发明是超晶格、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成功典范。

2.1 量子级联激光器的工作原理^[5] (三阱耦合垂直跃迁结构为例)

量子级联激光器的有源工作层由有源区和注入区组成一个周期,有源区是耦合三量子阱结构,注入区为递变超晶格。图1中给出了有源区的电子子能级位置、波函数布局、注入区中的微带、微带隙位置及形状。图中清楚地显示了量子级联激光器的有源工作层的基本物理过程。在外场作用下,有源区三个量子阱组成最低三个能级 n_1, n_2, n_3 。 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射波长,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有源区 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 能级并发射光子, n_2 能级上的电子释放一个光学声子,通过共振输运快速弛豫到 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。

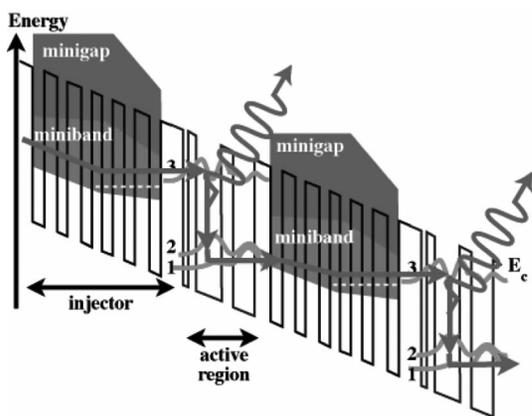


图1 三阱耦合垂直跃迁结构示意图

如图2所示,异质结构和量子阱结构pn结半导体激光二极管是基于带间跃迁,即在pn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复合实现激射,激光的产生来源于电子与空穴的复合,一个电子-空穴对可以产生一个光子,激射波长是由材料的禁带宽度决定的;量子

级联激光器是基于量子阱中导带子带间的跃迁,激光的产生来源于电子从子带的高能级向低能级的跃迁,一个电子可以产生 N 个光子,激射波长是由子带的高能级和低能级差决定的,可以通过改变有源区量子阱的宽度,从而改变子带的高能级和低能级差,最终改变激射波长,理论预测可覆盖几微米到几百微米以上很宽的波长范围。量子级联激光器的发明,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该领域研究长期处于停滞不前的状态,是半导体激光理论的里程碑发展。

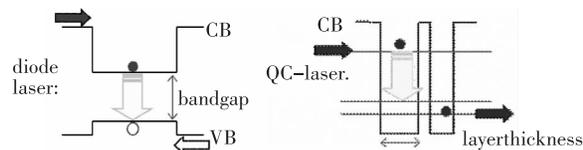


图2 半导体激光二极管和量子级联激光器电子跃迁示意图

2.2 量子级联激光器的材料研究

量子级联激光器有四种材料体系,其中 InP 基 GaInAs/AlInAs 材料体系^[6]、GaAs 基 GaAs/AlGaAs 材料体系^[7]以及铋化物材料体系^[8](比如 InAs 基 InAs/AlSb 材料体系、InP 基 InGaAs/AlAsSb 材料体系、InP 基 InGaAs/AlGaAsSb 材料体系)都属于第一类超晶格,基于 InAs/GaSb/AlSb 材料体系属于第二类超晶格^[9]。1994年,贝尔实验室发明的第一个量子级联激光器所采用的是 InP 基 GaInAs/AlInAs 材料体系,该材料体系涵盖了所有第一类超晶格有源区结构设计理念,其激射波长覆盖了中红外全波段,其中采用应变补偿量子阱结构 GaInAs/AlInAs 材料体系,激射波长最短达到了 $3.0 \mu\text{m}$ 。GaAs 基 GaAs/AlGaAs 材料体系是远红外波段的首选材料,主要用于太赫兹波段量子级联激光器,这是由于 GaAs/AlGaAs 作为天然的晶格匹配材料,其导带的不连续性约为 0.25 eV ,理论上只能用于设计激射波长 $10 \mu\text{m}$ 以上的量子级联激光器件。铋化物材料体系和 InAs/GaSb/AlSb 材料体系主要应用于发展中红外短波段量子级联激光器,采用这两种材料体系已实现了 $2.5 \mu\text{m}$ 的激射。

量子级联激光器自发明以来,分子束外延(MBE)是量子级联激光器唯一的生长技术,2006年开始引入金属有机化合物气相沉积(MOCVD)生长技术。数百上千层纳米量级的外延层构成了有源区和注入区,外延层厚度、组分、界面控制精度在单原子层水平,因此给半导体纳米材料生长带来极大的

挑战。

2.3 量子级联激光器的器件研究

量子级联激光器中有源区的热损耗是制约室温连续工作的瓶颈,一直以来是量子级联激光器器件研究的重点。多年来通过优化有源工作层结构设计,选择低热阻波导层材料,采用特殊的器件封装等工艺,实现了高功率、室温工作、多模法布里-珀罗量子级联激光器。为了实现单模、宽波长调谐、面发射,开拓了分布反馈、外腔调谐以及光子晶体量子级联激光器。分布反馈量子级联激光器是在半导体激光器内部建立一个布拉格光栅,依靠光的反馈来实现纵模选择^[10]。分布反馈激光器的光栅制备是获得高耦合效率、低波导损耗、高分布反馈的关键。外腔调谐量子级联激光器由量子级联激光器、准直透镜、光栅三部分组成,利用可旋转的衍射光栅实现宽波长单模调谐^[11]。与分布反馈量子级联激光器相比,外腔调谐激光器波长调谐范围较大,但是器件结构较为复杂。由于子带跃迁横向磁场的偏振,因此量子级联激光器的激光发射平行于材料生长的方向,成为侧面发射,这样的器件结构给焦平面阵列以及器件集成带来了困难,光子晶体量子级联激光器的出现,很好地解决了这个问题。光子晶体量子级联激光器的表面是由二维周期性光子晶体组成,由于表面等离子激元引起垂直光的限制,从而实现面发射^[12]。分布反馈、外腔调谐以及光子晶体量子级联激光器构筑了实现单模、窄线宽、宽调谐激光器,为今后量子级联激光器的集成开辟了新的方向。

3 量子级联激光器的应用

中远红外波段位于电磁波 $2.5 \sim 300 \mu\text{m}$ 新型激光器的研发引起了世界范围内的广泛兴趣。在用于军事方面红外对抗、毒品和爆炸物监测、环境污染监测、太赫兹成像方面有非常重要的应用前景。

$3 \sim 5 \mu\text{m}$ 和 $8 \sim 12 \mu\text{m}$ 是红外探测的两个大气窗口,因此该波段高功率激光器可以实现红外对抗,量子级联激光器以小型、相干、可调谐等优点,被认为是红外对抗的理想光源。2012 年 2 月 6 日, Northrop Grumman 公司联合 Selex Galileo 和 Daylight Solutions 公司获得美国军方三千万美元的研究合同,用于第五代红外对抗系统(CIRCM)的开发,其核心技术就是利用量子级联激光器代替原有的激光器,以降低系统的重量、提高可靠性。

大多数原子、分子转动振动跃迁在中红外波段具有很强的特征吸收谱线,如图 3 所示,因此单模、宽波长调谐中红外激光器在毒品和爆炸物监测、环

境污染监测、医学诊断等方面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。

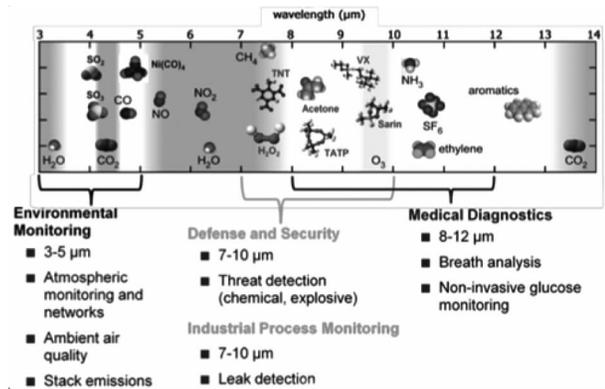


图 3 各种物质的中红外波段特征谱线图

太赫兹波可以穿透衣物、纸张、塑料、皮革和陶瓷等绝缘材料,而且光子能量低,不会在生物组织中产生有害的光致电离。因此,太赫兹成像技术是探测人员藏匿及包装内隐蔽危险物的一种极具竞争力的方法,可以在机场、车站等地对行李、物品、旅客进行安全检测。尤其对一些塑料泡沫等绝缘材料内部的缺陷和裂痕等进行无损检测和成像,在战略导弹和航空、航天结构材料的检测和评估方面具有重要的应用价值。量子级联激光器以小型、相干、可调谐等优点,是太赫兹成像的首选光源。

4 量子级联激光器的研究进展

自从 1994 年第一台量子级联激光器发明以后,各大研究机构开始了该项目的研究,其中具有代表性的包括美国贝尔实验室、美国哈佛大学(Federico Capasso 小组)、美国西北大学(Manijeh Razeghi 小组)、瑞士 Neuchatel 大学(Jerome Faist 小组)。

量子级联激光器的理论研究经历了以下几个发展阶段:1994 年,贝尔实验室发明的第一台量子级联激光器有源区采用耦合三阱单声子共振隧穿斜跃迁机制,注入区采用递变超晶格^[4];1995 年,贝尔实验室提出了耦合三阱垂直跃迁有源区结构,注入区采用递变超晶格,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量子级联激光器获得更大的增益^[5];1996 年,贝尔实验室把漏斗注入机制引入到量子级联激光器中,所谓漏斗注入就是在靠近有源区时,注入区的微带变窄,使得电子被驱赶到有源区的激发态上,并且首次采用热阻更低材料作为波导层、包覆层和等离子增强层^[13];1997 年,贝尔实验室提出了超晶格有源区结构,利用电子在微带内快速弛豫实现粒子数反转^[14];2001 年, Faist 小组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,提出了束缚态到连续态跃迁的新思路,该结构吸收和综合了量子级联激光器两种有源区结构的优点^[15];2002年,Faist小组提出了耦合四阱、束缚态到连续态子能级跃迁、双声子共振隧穿有源区的新结构。采用该结构研制出第一个室温连续工作中红外量子级联激光器,是量子级联激光器从实验室到实际应用的关键性跨越^[16]。

从1994年到2002年的八年时间是量子级联激光器理论研究的黄金时期,特别是贝尔实验室和Faist小组的科研人员通过对量子级联激光器的基本物理过程的认知,逐步改善有源区结构,形成了一套完整量子级联激光器理论基础。束缚态到连续态、耦合四阱量子阱、双声子共振隧穿的设计思想以及进一步融合调控斜跃迁和垂直跃迁优点的有源区结构成为了中红外量子级联激光器室温连续工作的最佳基本结构。

在量子级联激光器理论的指导下,通过对器件结构的不断改进,于2002年,Faist小组成功研制出第一个室温连续工作、激发波长为 $9.1\ \mu\text{m}$ 的中红外多模法布里-珀罗量子级联激光器,连续输出功率为 $17\ \text{mW}$ ^[16];2006年,Razeghi小组研制出第一个室温连续工作、激发波长为 $9.6\ \mu\text{m}$ 的中红外分布反馈量子级联激光器,连续输出功率为 $100\ \text{mW}$ ^[17];2007年,Faist小组首次报道了室温连续工作、外腔宽调谐量子级联激光器,激发波长可以从 $7.96\ \mu\text{m}$ 调节到 $8.84\ \mu\text{m}$,峰值功率为 $20\ \text{mW}$ ^[18];值得一提的是美国西北大学的Razeghi小组,他们研制的量子级联激光器器件的关键性能和指标都处于世界领先水平,例如他们在2011年报道了激发波长为 $4.6\ \mu\text{m}$ 的法布里-珀罗量子级联激光器,室温连续工作最大功率为 $5\ \text{W}$,是迄今为止最高输出功率^[19]。同年他们报道了激发波长为 $4.6\ \mu\text{m}$ 的分布反馈量子级联激光器,室温连续工作最大功率为 $2.4\ \text{W}$ ^[20]。

当量子级联激光器的研究发展到了一定阶段,有了实际的应用空间,便开始了商业化的进程,目前主要的商业公司包括Alpes Lasers、Daylight Solutions、Pranalytica等。Alpes Lasers是由瑞士Neuchatel大学的Jerome Faist教授创办的,占据85%的量子级联激光器市场份额。主要产品包括室温连续或脉冲工作法布里-珀罗量子级联激光器、室温连续或脉冲工作和低温连续工作分布反馈量子级联激光

器以及低温连续或脉冲工作太赫兹量子级联激光器,激光波长覆盖中远红外波段,激光功率为几十到上百毫瓦^[21]。Daylight Solutions和Pranalytica公司主要研究大功率、连续工作模式、高工作温度的中红外量子级联激光器的核心技术,获得了世界上唯一输出功率为 $2\ \text{W}$ 的商用中红外量子级联激光器,并且将此核心技术运用到外腔宽调谐量子级联激光器中,近年来不断获得美国军方和美国国防部的资金支持^[22]。

我国中远红外量子级联激光器的研究工作几乎和国际同步,开始于1995年,主要的研究小组是中国科学院半导体研究所的刘峰奇、王占国小组^[23]以及中国科学院上海微系统和信息研究所张永刚、李爱珍小组^[24]。中国科学院半导体研究所于2000年采用应变补偿结构量子级联激光器实现了 $3.5\ \mu\text{m}$ 的激光,从2004年开始,陆续实现了 $5.5\ \mu\text{m}$ 、 $7.8\ \mu\text{m}$ 、 $9.75\ \mu\text{m}$ 、 $10\ \mu\text{m}$ 和 $11.2\ \mu\text{m}$ 的法布里-珀罗量子级联激光器,还制备出了 $5.5\ \mu\text{m}$ 、 $7.8\ \mu\text{m}$ 的分布反馈量子级联激光器;中国科学院上海微系统和信息研究所于1998年报道了国内第一个量子级联激光器,并与2004年报道了我国第一个中红外分布反馈量子级联激光器,近几年还分别成功研制出了低阈值电流密度的室温脉冲分布反馈量子级联激光器。

5 小结

本文综述了量子级联激光器发明的背景,基本工作原理、以及材料和器件的研究,并且简单介绍了其应用方向和研究进展。从上面的讨论我们不难发现,量子级联激光器的发展无论在民用还是军用方面都有着广阔的应用前景。但是我国量子级联激光器的研究相对于国外来说,仍然存在着巨大的差距,主要是未实现室温连续工作成为了产业化的最大障碍,因此对该方向的研究迫在眉睫。

参考文献:

- [1] Kazarinov R F, Suris R A. Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice[J]. Sov. Phys. Semicond., 1971, 5(4): 707 - 709.
- [2] Capasso F. Band gap engineering: from physics and materials to new semiconductor devices [J]. Science, 1987, 235(4785): 172 - 176.
- [3] Liu H C. A novel superlattice infrared source [J]. J. Appl. Phys., 1988, 63(8): 2856 - 2858.
- [4] Faist J, Capasso F, Sivco D L, et al. Quantum cascade la-

- ser[J]. *Science*, 1994, 264(5158): 553 – 556.
- [5] Faist J, Capasso F, Sirtori C, et al. Vertical transition quantum cascade with Bragg confined excited state[J]. *Appl. Phys. Lett*, 1995, 66(5): 538 – 540.
- [6] Bai Y, Slivken S, Kuboya S, et al. Quantum cascade laser that emit more light than heat [J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(2): 99 – 102.
- [7] Williams B S. Terahertz quantum-cascade lasers[J]. *Nature Photonics*, 2007, 4(1): 517 – 525.
- [8] Teissier R, Baranov N, Marcadet X, et al. Room temperature operation of InAs/AlSb quantum-cascade lasers[J]. *Appl. Phys. Lett*, 2004, 85: 167 – 169.
- [9] Olafsen L J, Aifer E H, Vurgaftman I, et al. Near-room-temperature mid-infrared interband cascade laser [J]. *Appl. Phys. Lett*, 1998, 72: 2370 – 2372.
- [10] Lee B G, Belkin M A, Pflügl C, et al. DFB Quantum cascade laser arrays[J]. *IEEE Journal of quantum electronics*, 2009, 45(5): 554 – 565.
- [11] Hugi A, Maulini R, Faist J. External cavity quantum cascade laser [J]. *Semicond. Sci. Technol.* 2010, 25: 083001 – 0830014.
- [12] Colombelli R, Srinivasan K, Troccoli M, et al. Quantum cascade surface-emitting photonic crystal laser [J]. *Science*, 2003, 302: 1374 – 1377.
- [13] Faist J, Capasso F, Sivco D L, et al. High power mid-infrared ($\lambda \sim 5\mu\text{m}$) quantum cascade laser operating above room temperature [J]. *Appl. Phys. Lett*, 1996, 68: 26 – 28.
- [14] Scamarcio G, Capasso F, Sirtori C, et al. High-power infrared ($8\mu\text{m}$ wavelength) superlattice laser [J]. *Science*, 1997, 276: 773.
- [15] Faist J, Beck M, Lellen T, et al. Quantum cascade lasers based on a bound-to-continuum transition [J]. *Appl. Phys. Lett*, 2001, 78(2): 147 – 149.
- [16] Beck M, Hofstetter D, Aellen T, et al. Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature[J]. *Science*, 2002, 295: 301 – 305.
- [17] Darvish S R, Slivken S, Evans A, 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: 201114 – 1 – 3.
- [18] Mohan A, Wittmann A, Hugi A, et al. Room-temperature continuous-wave operation of an external-cavity quantum-cascade lasers [J]. *Optics Lett*, 2007, 32(19): 2792 – 2794.
- [19] Bai Y, Bandyopadhyay N, Tsao S, et al. Room temperature quantum cascade lasers with 27% wall plug efficiency [J]. *Appl. Phys. Lett*, 2011, 98: 181102 – 1 – 4.
- [20] Lu Q Y, Bai Y, Bandyopadhyay N, et al. 2.4 W room temperature continuous wave operation of distributed feedback quantum cascade lasers[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2011, 98: 181106 – 1 – 4.
- [21] Faist J, Jerome F, Aellen T, et al. Mid-Infrared Coherent Sources and Applications; Progress in quantum cascade lasers[M]. Berlin: Springer, 2008: 171 – 192.
- [22] Maulini R, Dunayevskiy I, Lyakh A, et al. Widely tunable high-power external cavity quantum cascade laser operating in continuous-wave at room temperature[J]. *Electronics Letters*, 2009, 45: 107.
- [23] Liu Fengqi, Wang Zhanguo. Infrared quantum cascade lasers[J]. *Physics*, 2001, 30(10): 596 – 601. (in Chinese) 刘峰奇, 王占国. 红外量子级联激光器[J]. *物理*, 2001, 30(10): 596 – 601.
- [24] Li Aizhen. The invention and advancement on unipolar quantum cascade lasers[J]. *Chinese Journal of Lasers*. 2010, 37(9): 2213 – 2220. (in Chinese) 李爱珍. 单极型量子级联激光器的发明及其进展[J], *中国激光*, 2010, 37(9): 2213 – 2220.