

グラフェンテラヘルツトランジスタレーザー

電気通信研究所 尾辻泰一 (otsuji@riec.tohoku.ac.jp)

1. はじめに

炭素原子が六員環構造をなす単層シートのグラフェンは、ギャップレスかつ線形・対称な分散特性を有するバンド構造に起因して、極限的に秀逸なキャリア輸送特性とともに特異な光電子およびプラズモニックな物性を有する[1],[2]。その結果、グラフェンは電波からテラヘルツ (THz) 波を跨いで光波に至る広い周波数領域において、超高速トランジスタ、フォトディテクタ、THz レーザー、光変調器、非線形周波数変換素子等の様々な機能応用を極めて高いエネルギー効率で実現することが期待できる[3]。本稿では、グラフェンの THz レーザーへの応用に関する最近の研究動向について紹介する。

2. グラフェンの光学導電率と THz 帯利得

グラフェン内の伝導電子は、エネルギーと運動量が線形な関係にあり、伝導帯と価電子帯が対称な円錐形を成しており、それらの頂点同士が 1 点 (Dirac 点) で交わっている (図 1)。このため、伝導帯の自由電子と価電子帯の正孔は電荷の極性のみが反転した完全対称な量子であり、かつあたかも光のように質量ゼロの相対論的量子 (ディラックフェルミオン) として振る舞い、通常の半導体とは全く異なる特異な光電子物性を有する[1]。

損失・利得に関わる応答は光学導電率によって特徴づけられる。角周波数 ω におけるグラフェンの光学導電率の実部は、バンド内キャリア輸送・遷移に伴う成分 $\text{Re}\sigma_{\omega}^{\text{intra}}$ と、バンド間キャリア遷移に伴う成分 $\text{Re}\sigma_{\omega}^{\text{inter}}$ の和によって次式で与えられる[4]。

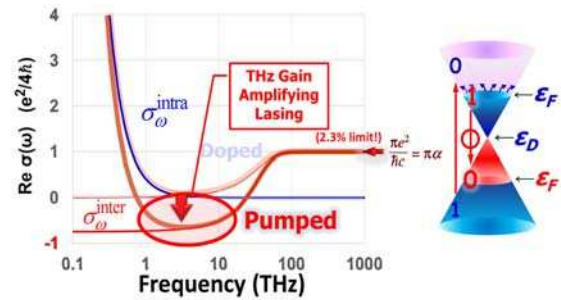


図 1. グラフェンの光学導電率 (実部) と光学励起時のバンド図。反転分布の形成によってフェルミエネルギーの 2 倍以下の周波数帯では Pauli ブロックによりバンド間遷移にともなう導電率は負値をとる。

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{\omega} &= \text{Re } \sigma_{\omega}^{\text{intra}} + \text{Re } \sigma_{\omega}^{\text{inter}} \\ &\approx \frac{e^2 (\ln 2 + \varepsilon_F / 2k_B T)}{\pi \hbar} \frac{k_B T \tau_m}{\hbar (1 + \omega^2 \tau_m^2)} \\ &\quad + \frac{e^2}{4\hbar} (f_c(-\hbar\omega/2) - f_c(\hbar\omega/2)) \quad (1) \end{aligned}$$

ここで、 e は素電荷、 ε_F はフェルミ準位、 $k_B T$ は熱エネルギー、 \hbar は還元プランク定数、 τ_m は運動量緩和時間、 f_c は電子の確率密度関数である。

ポンピングによって光電子・正孔対を形成すれば、 $2\varepsilon_F$ 未満のエネルギーの光子に対しては $\text{Re}\sigma_{\omega}^{\text{inter}}$ は負値を取り得る[5] (図 1)。このとき、 $\text{Re}\sigma_{\omega}^{\text{inter}}$ が $\text{Re}\sigma_{\omega}^{\text{intra}}$ を上回れば、最終的に利得を獲得することができる (図 1)。ここで、グラフェンの負性導電率は最小量子導電率: $e^2/4\hbar$ 、したがってバンド間遷移に伴う光吸収係数: $\alpha = e^2/(c\hbar) \approx 1/137 \approx 2.3\%$ によって律速される[5] (c は真空中の光速) ことに留意されたい。

3. グラフェンキャリアの非平衡緩和過程

ポンピングによって生成された高いエネルギーを有する光電子・正孔対は、クーロン相互作用や光学フォノン、或いは不純物などによる散乱を受け

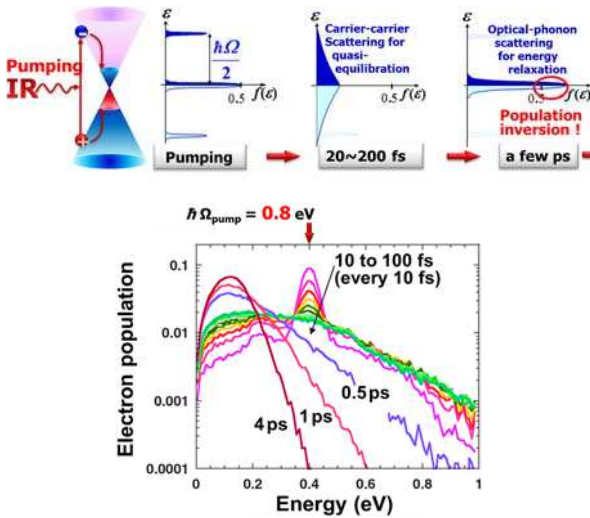


図2. 光学励起グラフェンの非平衡キャリアダイナミクス。下図はモンテカルロシミュレーションによるキャリア密度分布の緩和過程[9]。

てエネルギーを失い、やがて熱平衡状態（定常状態）に戻る（図2）。この非平衡エネルギー緩和過程においては、散乱因子ごとに時間スケールと緩和過程が異なり、それらが重畳されて複雑なダイナミクスを呈する[6]-[13]。キャリア間散乱はフェムト秒オーダーの最も高速な散乱過程であり、キャリアエネルギー分布を擬平衡化する。次に高速な散乱過程はバンド内光学フォノン散乱であり、バンド間光学フォノン散乱がそれに続く。いずれもピコ秒オーダーの時定数を有する。音響フォノン散乱やバンド間キャリア再結合の緩和時間はそれらに比して桁違いに長い。この緩和速度のアンバランスによって光学フォノンを放出したキャリアはDirac点近傍に集群し、ある閾値以上のポンピング強度条件では、キャリアの分布に反転状態が生じ得る。筆者らは、グラフェン内キャリアの非平衡エネルギー緩和過程をモデル化し、室温下においても実用的なポンピング強度で反転分布の形成が可能であり、広いTHz周波数帯で正味の利得が得られることを、理論（図2）・実験両面から明らかにしている[9]-[11],[14]。

4. グラフェンTHzトランジスタレーザ

光ポンピングによって高いエネルギーを得た光電子正孔対は、キャリア間散乱によって瞬時に

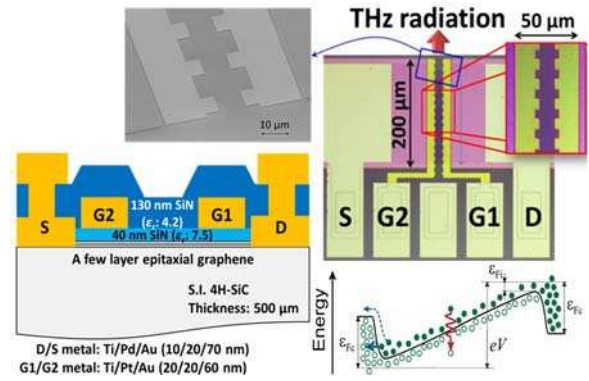


図3. 分布帰還型デュアルゲート構造のグラフェンチャネルトランジスタレーザ[9]。

高温化する[7],[10],[11]。このキャリア温度の上昇は、キャリアエネルギー緩和過程の初期におけるキャリア分布の擬平衡化を促進する。その結果、キャリアの擬フェルミ準位は引き下げられ、反転分布を阻害する[9],[11]。従って、反転分布形成の促進および高利得化には、ポンピング光子エネルギーの低下によって、キャリアの温度上昇を抑制することが有効である[11],[16]。究極のポンピングエネルギー低下は、電流注入ポンピングによって実現できる[15],[16]。

筆者らは、二重ゲート（DG: Dual Gate）構造のグラフェンチャネル電界効果トランジスタ（GFET: Graphene-channel Field Effect Transistor）構造によって電流注入レーザを構成できることを早くに提案し[15]、その有効性を理論解析によって明らかにしている[16],[17]。DGに相補的にバイアスを印加することによってGFETチャネル内にp-i-n構造を形成できる。その状態でドレインに数mV～数10mVの微弱な電位を与えてグラフェンp-i-n接合を順バイアスに印加すれば、DGの隙間に形成されるi領域において反転分布が形成できる（図3）。ドレインバイアスが実効的なポンピング光子エネルギーに相当することから、究極的なポンピングエネルギー低減が果たされる。

電流注入レーザ実現のためには、レーザ発振を単一周波数に定める必要があるが、グラフェンのギャップレスかつContinuumなバンド構造

のために、利得媒質（グラフェン自身）によってレーザー発振準位を特定できない。そのため、 Q 値の高い共振器構造をレーザー素子内部に実装する必要がある[18]。筆者らは、二重ゲート電極を鋸歯状に形成し、電極間隔を周期的に変調することによって利得係数を周期変調した分布帰還形（DFB: Distributed Feed-Back）共振器構造を導入した DFB-DG-GFET を設計・試作した[19]（図 3）。ここで、共振器効果による誘導放出を得るためには、キャリア反転分布によって生じた自然放出 THz 光の空間分布が利得媒質であるグラフェン領域に閉じ込められる必要がある。しかしながら本試作では基板厚方向の閉じ込めが構造的に果たされておらず、その結果、利得オーバーラップ係数が非常に低い欠点があり、今後の改善が求められる。この事情によって、共振器の周波数応答はグラフェンキャリアの輸送特性（運動量緩和時間 τ ）に敏感であり、高品質（ $\tau \sim 7$ ps）条件ではグラフェン本来の利得スペクトル（図 1）を反映したブロードバンドな応答が、また中～低品質（ $\tau \sim 2$ ps）の場合には、基本モード ~ 5 THz における共振型応答（ Q 値 ~ 200 ）が数値解析によって認められた[19]（図 4）。

まず、試作素子の直流電流電圧特性を測定した結果、グラフェンのギャップレスなバンド特性を反映した良好なアンバイポーラ特性が観測された。観測されたトランスコンダクタンスから抽出されたゲート直下の真性領域における電解効果キャリア移動度は試料によってばらつきがあり、最大 $100,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ に迫る秀逸な値を示した[19]。

次に、電流注入励起による THz 帯発光特性をフーリエ変換遠赤外分光（FTIR）計測装置（日本分光製）および 4.2K Si コンポジットボロメータ（Infrared Lab. 製）を用いて室温から液体窒素温度付近の 100K の間で測定した（図 5）。一つの試作素子からは、 100K の低温下で $1\sim 7$ THz の広帯域な増幅自然放出が観測された。別の素子においては、 5.2 THz での単一モード発光が観測された（図 6）。それらの結果は、レーザー素子端面をミラーとする疑似ファブリペロー共振効果を考慮した複合共振構造に対するモード利得解析結果（図 4）

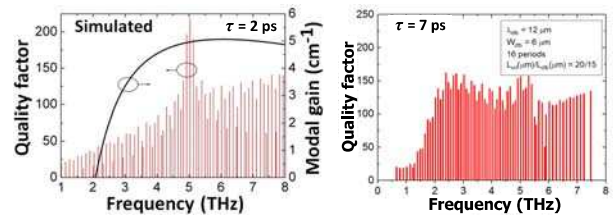


図 4. 分布帰還型デュアルゲート共振器構造の周波数応答数値解析結果[9]。左図： $\tau = 2$ ps。右図： $\tau = 7$ ps。

とよく一致する[19]。また、試作素子は注入電流を与えるドレインバイアスに対して発振強度が非線形に変化する特異な発振閾値特性を示した。筆者らが理論発見したキャリア過冷却現象[16]やグラフェンプラズモン不安定性[20]などの関与が推察されるが、物性解明は今後の課題である。

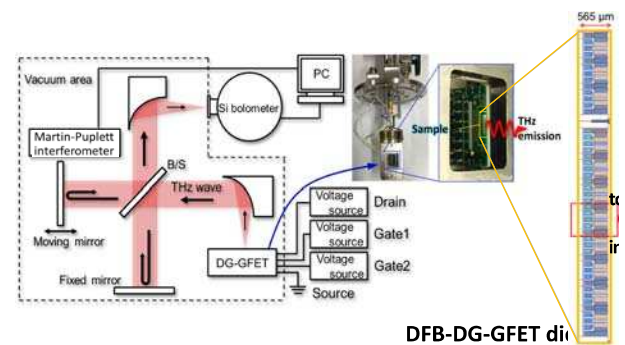


図 5. 液体ヘリウム冷却による Si ボロメータを検出器とし、クライオスタット（液体窒素温度以上）に試料を搭載し、FTIR 装置で放射スペクトルを計測した。

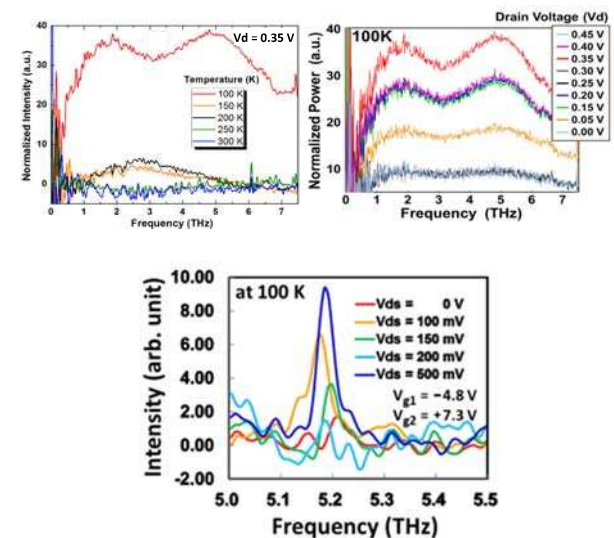


図 6. FTIR による放射スペクトル測定結果。上図：試料 No. 1 より得られた増幅自然放出の測定結果。下図：異なる試料 No. 2 より得られた単一モード発光の測定結果。

5. むすび

グラフェンの THz レーザーへの応用に関する最近の研究動向について紹介した。グラフェンの特異な光電子物性により、これまで固体素子としての実現が困難であった室温レーザー発振が期待される。現在までに 100K での単一モード発振が観測されており、今後の性能向上が期待される。

謝辞

研究成果は、東北大学 Victor Ryzhii 客員教授、末光眞希教授、Stephane Boubanga Tombet 准教授、末光哲也教授、吹留博一准教授、佐藤昭准教授、渡辺隆之助教、Deepika Yadav 博士、玉虫元氏、会津大学 Maxim Ryzhii 准教授、北海道大学 佐野栄一教授、ロシア科学アカデミー・コテルニコフ無線電子工学研究所 Vyacheslav Popov 教授、同・マイクロ構造物理学研究所 Alexander Dubinov 博士、Vladimir Ya. Aleshkin 博士、同・モスクワ物理工学研究所 Dmitry Svintsov 博士、ニューヨーク州立大バッファロー校 Vladimir Mitin 教授、レンセラー工科大学 Michael Shur 教授らとの共同による。素子は、東北大学電気通信研究所ナノ・スピン実験施設を利用した製作された。本研究は、JST-CREST、JSPS 科研費特別推進研究(23000008)、基盤研究(S)(16H06361)、JSPS 先端研究拠点事業、JSPS 日露二国間交流事業、米 NSF-PIRE-TeraNANO の支援を受けた。

参考文献

- [1] A.K. Geim, K.S. Novoselov, *Nat. Mater.* **6** (2007) 183.
- [2] A.N. Grigorenko et al., *Nature Photon.* **6** (2012) 749.
- [3] A. Tredicucci and M.S. Vitiello, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **20** (2014) 8500109.
- [4] L. Falkovsky, A. Varlamov, *Eur. Phys. J. B* **56** (2007) 281.
- [5] V. Ryzhii et al., *J. Appl. Phys.* **101** (2007) 083114.
- [6] J.M. Dawlaty et al., *Appl. Phys. Lett.* **92**

(2008) 042116.

- [7] M. Breusing et al., *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009) 086809.
- [8] A. Satou et al., *Phys. Rev. B* **78** (2008) 115431.
- [9] E. Sano, *Appl. Phys. Exp.* **4** (2011) 085101.
- [10] T. Otsuji et al., *MRS Bull.* **37** (2012) 1235.
- [11] A. Satou et al., *J. Appl. Phys.* **113** (2013) 143108.
- [12] T. Someya et al., *Appl. Phys. Lett.* **104** (2014) 161103.
- [13] D. Brida et al., *Nature Comm.* **4** (2013) 1987.
- [14] S. Boubanga Tombet et al., *Phys. Rev. B* **85**, (2012) 035443.
- [15] M. Ryzhii, V. Ryzhii, *Jpn. J. Appl. Phys.* **46** L151 (2007).
- [16] V. Ryzhii et al., *J. Appl. Phys.* **110** (2011) 094503.
- [17] V. Ryzhii et al., *J. Appl. Phys.* **113** (2013) 244505.
- [18] A.A. Dubinov et al., *Appl. Phys. Exp.* **2** (2009) 092301
- [19] D. Yadav et al, *Nanophoton.* **7** (2018) 741-752.
- [20] Y. Koseki et al., *Phys. Rev. B* **93** (2016) 245408.