

量子カスケードの現状と展望

笠原 健 一*¹

1 現状

サブバンド遷移を使って中赤外からテラヘルツ領域で発振する量子カスケード・レーザ (Quantum Cascade Laser: QCL) の研究開発は欧米で盛んに行われている。Google Scholarで“Quantum Cascade Laser”で検索をかけると現在、2万件以上が出てくる。QCLのアイディアは1971年にKazarinovと Surisによって出された。しかしながらサブバンドにおける電子寿命はピコ秒と短いために、実現が疑問視され長い間、まともには見られていなかった。QCLはその後、20年以上たった1994年に、Bell 研にいたJ. Faist, F.Capasso等によって実現された。Scienceに掲載された最初の報告では発振波長は4.2 μm 、10Kでの閾値電流は850mA (閾値電流密度: 15kA/cm²) 最大動作温度は ~ 90 Kでのパルス発振であり、光出力は8 mWであった。現在では4 \sim 13 μm で室温動作するまでに至っている。InGaAs/InAlAs系を用いた6 μm 帯のQCLでは333Kでの室温連続発振が実現されており、最大光出力は30mWである。QCLの発振域はテラヘルツ帯にまで及んでおり、米国MITからは159 μm で連続発振時の最高温度として117Kが報告されている。量子井戸中でのサブバンド間遷移に関する国際会議“International Conference on Intersubband Transitions in Quantum Wells (ITQW)”が隔年で行われている。9回目となる2007年はUKで行われたが、QCLの発表件数は40件以上はある。

(<http://www.itqw07.leeds.ac.uk/dlcenter.php>) また、

* 1 立命館大学理工学部 電子光情報工学科
教授

2006年にはイタリアで第2回International Workshop on QCLsが開かれている。

(<http://www.rle.mit.edu/2006qcl/default.htm>) これらの国際会議のスポンサーは米国ではDARPAやOffice of Naval Research (ONR)、US Army Res. Lab.がなっている。

QCLは環境モニタや半導体プロセス、食品製造時のガス計測、エンジンの燃焼診断、薬品や爆発物の発見、個人向けの医療診断、生命科学への応用が考えられている。米国では軍事面から安全を脅かす化学的、生物学的媒介物の検知や秘話通信での応用も考えられている。

ガス・センシングの市場規模は現在、世界的に見て\$ 7 billion、日々の健康チェックも含めた診断では\$ 22 billion、と推定されている。4 \sim 5 μm ではCO₂、COの吸収があり環境計測や排ガス分析によるエンジン開発、呼気診断への応用が期待されている。5.2 μm ではNOの吸収があるが、NOは循環器系における信号伝達物質の役割を果たしており、分子イメージングなど生体計測への応用も期待されている。NO₂の吸収は6.1 μm にあってエンジン開発や環境計測の対象となる。またSO₂の吸収は7.4 μm にある。9.5 μm 近傍ではグルコースのセンシングなどが挙げられる。大気中の塵などによるレイリー散乱は波長の4乗に反比例する。したがって中赤外光のレイリー散乱は可視光に比べて小さくなる。DARPAなどの米国の政府系機関がQCLのスポンサーになっている理由はQCLを使ったレーダや測距、秘話通信システムに関心を持っているためである。

QCLを使った機器を開発している代表的なメー

カを以下に述べる。Cascade Technologies (UK) は2003年にthe University of Strathclydeからスピ
ン・オフして設立された。10.25 μm ガスセンサを
開発中である。車のエンジン直後の排気ガス中
には有毒なCOやNO_x、未燃炭化水素(エチレン)が
含まれているがその分析用検知器をシングル・
モードで発振する分布帰還形QCL (DFB-QCL) を
使って開発している。PPTオーダの高い感度とリ
アルタイムでの測定が可能となっている。分光用
途では波長を掃引する必要がある。QCLに300nsの
パルスを印加すると温度上昇で波長が自然に時間
的にシフトする。これを逆手に取って利用するこ
とで広範な波長域での分光を実現している。(図1)
QCLでの周波数変調測定法と光音響法を組み合わ
せると安価な吸収検出システムが実現できる。光
音響法は被測定物質での吸収、熱膨張の繰り返
しにともなう周期的な音の発生をマイクで拾うこ
とで検出する。

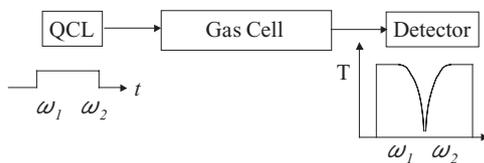


図1 周波数変調測定法

Daylight Solutions (CA, USA) は4~12 μm で
QCLを使った波長可変外部共振器型レーザを出し
ている。DFB-QCLの温度を変化させて波長を
チューニングする方法では可変範囲は10cm⁻¹の
オーダである。この値は発振波長の1%であり、
10 μm ならば0.1 μm となる。それに対して
Daylight SolutionsはQCLを組み込んだ外部共振器
形レーザを開発している。波長可変幅は中心波長
に対して10%と可変幅が1桁、大きい。焦点距離
2mmのカルコゲナイド・ガラス製非球面レンズ
2個で外部共振器を構成しており、長さは25mm
と小さい。Physical Sciences (MA, USA) はCO、

NO₂をターゲットに大気監視や汚染放出監視、呼
気分析用機器の開発を行っている。

QCLは現在、非常に多くの論文が出ており、そ
れを使って応用機器を開発する所もいくつか出て
いる。しかしながらQCLをデバイスとして実際に
製造、販売しているメーカは限られる。代表は
Alpes Lasers (Neuchâtel, Switzerland) である。こ
の会社は1988年 J.Faist等がNeuchatel大学からス
ピンオフして設立したものである。~10人程度の
規模と思われるが、QCLを応用した機器開発の会
社や研究機関 (Cascade Technologies、フラウン
ホーファ研究所、ジェット推進研究所等) に素子
を供給している。Alpesのホームページ
(<http://www.alpeslasers.com/>) を見ると火星探査機
にQCLの搭載が計画されているとのことである。
この会社はまた2007年1月からは73 μm and 84
 μm (LN₂温度、パルス、マルチモード) とい
ったテラヘルツ域でのQCLの供給を開始している。
波長250 μm の素子も近いうちに提供されるよ
うになるとのことである。

QCLを供給できるもう一つの会社は浜松ホトニ
クスである。2007年8月にはSPC (Single photon
resonance-continuum) 構造と呼ぶQCLの出荷を開
始している。(図2) 供給される波長帯は

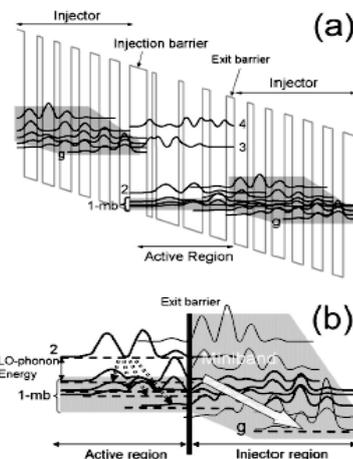


図2 SPC構造QCL (K. Fujita et al.,
Appl. Phys. Lett., Vol. 91 (2007) 141121.)

4.8/5.2/5.8/7.8/9.7 μm である。このうち7.8 μm と9.7 μm がDFB構造となっている。分解能は0.005nm、レーザ出力は10mW以上、入力電圧は9~15Vである。SPC構造では3→2間のサブバンド間遷移でレーザ発振が起こる。従来の典型的な単一フォノン共鳴構造では準位2とその下にある準位1の間はLOフォノンのエネルギー (~30meV) になるように設計されている。これによってレーザ下側準位(準位2)の電子はLOフォノンとの共鳴散乱で~0.5psの時間で準位1に緩和する。それによって準位3と2の間に反転分布が形成される。室温連続動作を実現するには更に二重フォノン共鳴構造とする必要があった。単一フォノン共鳴構造では温度が室温レベルになると準位1からの電子が準位2に熱的に励起される確率が無視できなくなるためである。しかしながら~30mVの間隔で正確に2つの準位を活性領域内に形成することは膜厚の制御という観点から容易でない。その問題を回避するためにSPCでは準位1の下にミニバンドが出来るようにしている。これによって準位2への電子の熱的励起と膜厚の厳密制御の2つの問題が解消できる。

QCLは分光的な応用からスペクトル幅が狭く、またそれを広げるスペクトル幅増大係数 (α パラメータ) が小さいという特徴を有している。通常1.55 μm DFB-LDのスペクトル幅は~1 MHzである。それに対して8.5 μm DFB-QCLでは12kHzと2桁ほど小さな値が報告されている。これは自然放出光ゆらぎのレーザ光への結合確率がpsと高速な非発光緩和過程によって実効的に小さくなるためである。

α パラメータはスペクトル幅を広げる。定常状態のLDのスペクトル幅はSchawlow-Townsのスペクトル幅に対して $(1 + \alpha^2)$ 倍となる。1.55 μm DFB-LDでは3~5の値をとる。それに対して

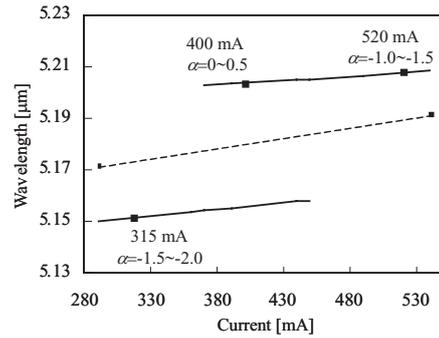


図3 5 μm DFB-QCLのスペクトル幅増大係数(実測値)

QCLではこれまで $\alpha = 0$ と考えられてきた。その理由はQCLの発振を最初に報告した1994年のFaistのNatureに掲載された論文にあると思われる。Faistはサブバンド間利得がピーク波長に対して対称であるのでQCLでは $\alpha = 0$ と論じている。しかしながら著者等のグループはサブバンドの非放物線性等によって利得は非対称となり、それによって α はゼロではなくなることを示した。 α の電流依存性も明瞭に現れ、マイナスの値を取る。(図3)

QCLはチップ単体でもまだ高価である。当然ながらその寿命が気になるところであるが、20%出力低下時で10~50年といった推定が成されている。pn接合を有するバイポーラ形の半導体LDと比べて劣化のメカニズムは異なるものと思われる。バイポーラ形の半導体LDに比べて発光部でのドーパント制御が不要になる点からして、QCLは比較的丈夫なレーザではないかと考えている。

2 今後の課題、展望

QCLでは2~4 μm を何とかカバーできないか? またテラヘルツ域での室温cw発振が実現できないかということが今後の課題である。

短波長化では3.3 μm にCH₄の強い吸収帯があるので期待が大きい。CH₄は都市ガスの主成分となっており、CH₄に対しての非接触、リアルタイムな漏洩検知器や遠隔監視システムが望まれている。

る。CH₄はまたCO₂とともに温室効果ガスである。平均気温の上昇は極地の氷の融解をもたらし、地中からのCH₄の発生を促すものと予想されている。そのためのリアルタイムなモニター光源が望まれている。中赤外のQCLはInGaAs/InAlAs系が用いられ歪みの導入で $\sim 4.8\ \mu\text{m}$ は性能面から問題なく実現できる。しかしながらそれ以下では閾値電流の増大が生ずる。そこでGaInAs/AlAsSbといったSbを加えた材料系での研究開発が進められている。フラウンホーファ研究所からは2006年に $3.7\sim 3.9\ \mu\text{m}$ の発振が報告されている。発振最大温度は310Kで17mW（パルス、100ns、1 kHz）の光出力が得られている。短波長化での課題は伝導帯バンドオフセット（ ΔE_c ）を大きくし、電子の次段の注入層へのリークを如何に防ぐかがポイントとなる。GaInAs/AlAsSbの ΔE_c は Γ 点では1.6eVと大きいX点では0.9eVにまで下がってしまう。その点が $3.7\ \mu\text{m}$ 以下での短波長化を進める際の問題となる。

テラヘルツ域ではレーザ上側準位と下側準位の差がLOフォノンのエネルギーよりも小さくなっている。上側準位にだけ電子を共鳴的に注入する

ことが望ましいが、下側準位が近いので、そこにも同時に電子が入り込むことになる。そのために反転分布を形成することは一般的に難しくなる。中赤外でのサブバンド内の電子の緩和過程は主にLOフォノン散乱であったがテラヘルツ域でのサブバンド間エネルギーはLOフォノンのエネルギー以下になる。したがって非発光緩和過程は電子-電子散乱や不純物散乱、界面での散乱が主となる。活性領域の両側を金属で挟んだ構造で光閉じこめ係数を上げ、冒頭で述べたように117Kのcw発振が達成されている。この温度を更に高めるためにはもう一つ、アイディアが欲しいところである。この領域は生命科学の観点から興味深い。DNAやタンパク質、酵素など生体高分子の振動周波数がこの周波数域にあることが明らかになっており、簡便な光源が実現すれば医学、薬学など様々な分野への応用研究が盛んになってくるだろう。テラヘルツ波はX線に比べて物質に対する適度な透過性を有し、かつ安全であることから、非破壊検査や違法薬物検査システムなどへの応用も期待される。