高出力量子カスケードレーザーの現状と将来展望

枝村 忠孝¹, 秋草 直大¹, 山西 正道¹, 石井 克典², 栗津 邦男²

¹浜松ホトニクス(株) (〒434-8601 静岡県浜松市浜北区平口5000)

²大阪大学大学院 工学研究科 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1)

Recent Progress on High-Power Quantum Cascade Lasers and Future Prospects

Tadataka EDAMURA,¹ Naota AKIKUSA,¹ Masamichi YAMANISHI,¹ Katsunori ISHII,² and Kunio AWAZU²

¹HAMAMATSU PHOTONICS K.K., 5000 Hirakuchi, Hamakita-ku, Hamamatsu, Shizuoka 434-8601

²Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

(Received November 27, 2012)

During the last decade, the development of Mid-IR (4~11 μm) Quantum Cascade Lasers (QCLs) has shown substantial progress toward the commercial availability of such devices. In developing newly high performance QCLs, we focused on high-power QCLs for bio-medical applications, and developed a Fabry-Perot (FP-) type QCL emitting at the 6- μm ($\sim 1700\text{-cm}^{-1}$) wavelength range. This wavelength range is expected to be absorbed by organic matter. The active region structure of QCL is based on InGaAs/InAlAs super lattice grown by MOCVD. High reflection coated FP-QCL chip is mounted upside down on the Cu heat-sink. The average output power exceeds 1.1-W in pulsed operation (duty-cycle 50%) at 20 °C. High-power QCLs show good potential for less-invasive and selective laser surgery.

Key Words: Mid-IR, High-power, Quantum Cascade Laser, Laser Surgery

1. はじめに

量子カスケードレーザー(Quantum Cascade Laser: QCL)は半導体量子井戸中に形成されるサブバンド間の電子遷移を利用した半導体レーザーである。サブバンド間で光増幅が可能であることは1971年、KazarinovとSurisによって議論¹⁾されたが、サブバンド間では超高速で起こる非発光緩和過程との競合が不可避であり、レーザー発振に必要な反転分布を形成することが極めて困難であることから、実現は不可能と考えられていた。ところが1994年、FaistとCapassoらはInGaAs/InAlAs超格子構造を用いて、波長4.2 μm で初めてレーザー発振に成功²⁾した。彼らは共鳴トンネル効果を用いて効率的に発光上位準位に電子を注入し、且つ極性縦光学フォノン(LO-phonon)散乱を利用して超高速に発光下位準位から電子を引き抜くことにより実効的な反転分布を実現した。当初は極低温動作に限られていたが、2002年に室温連続発振が達成³⁾された。既に、波長4~11 μm の中赤外領域では研究開発レベルを脱し、実用的汎用半導体レーザーとして市販されており、各種分析装置への実装も行なわれている。これまでのところ最も成功している応用例は吸収分光法に基づく環境ガス計測であり、光源に要求される出力レベルは数十mWから100 mW程度である。これ

に対してレーザー加工や生体分野ではワットクラスの高出力化が要求されている。現在、我々は医療応用を目指して波長6 μm 帯で高出力化の研究開発を進めており、本稿では単素子でワットクラスの出力が可能な高出力QCLの現状および今後の展望について概観する。また、応用の一例として我々が取り組む、高出力QCLを用いたレーザー医療についても紹介する。

2. 量子カスケードレーザーの特徴

Fig. 1に模式的に表した典型的な3つのサブバンドからなるQCLの活性領域の伝導帯におけるバンド図を示す。発振波長はE3-E2で決定され、E2-E1は電子を高速緩和させるためにLOフォノンのエネルギーに共鳴する(30~40 meV)ように設計されている。このような構造が多段に直列に結合(カスケード結合)して活性領域が構成されている。電子注入層は量子井戸の幅が徐々に狭くなっていくチャープ超格子構造となっており、動作状態では素子にかかる電圧によって実効的なバンドが平坦となり、電子注入層から共鳴トンネル効果によって発光層に形成されたE3へ電子の注入が行われる。QCLはサブバンド間の電子遷移を利用することで次に示すような利点を有する。

Fig. 1 Schematic conduction band diagram of one period of the laser structure under an applied voltage.

- (1) 発振波長は材料のバンドギャップに制限されず同一材料で中赤外からTHz帯まで設計可能。
- (2) GaAsやInGaAsといったこれまで実績のある材料で実現でき、既存の結晶成長技術およびプロセス、組立技術をそのまま利用できる。
- (3) カスケード結合を利用することで注入電子1個当たり複数の光子を放出することが可能であり、高出力動作が期待できる。
- (4) 非常に高速な非発光緩和過程に起因して本質的にスペクトル線幅が狭い^{4,5)}。

Fig. 1に示すような3準位系のモデルにおいてE3とE2の電子数および光子数に対するレート方程式を解いてしきい値電流 I_{th} を求めると次式のようになる。

$$I_{th} = eP_{th} = e(n_{sp}/\eta) \left[\frac{\gamma}{M\beta_{eff}} + \frac{N_{2therm}}{\tau_T} \right] \quad (1)$$

ここで実効自然放出光結合係数 β_{eff} は

$$\beta_{eff} = (\tau_T/\tau_R)\beta \quad (2)$$

で与えられる。ただし

$$\frac{1}{\tau_T} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_{NR}} \approx \frac{1}{\tau_{NR}}, \quad \frac{1}{\tau_{NR}} = \frac{1}{\tau_{32}} + \frac{1}{\tau_{31}} \quad (3)$$

$$\tau_T \approx \tau_{NR} \approx 1\text{ps}, \quad \tau_R \approx 10\text{ns}$$

である。したがって β_{eff} は上位準位(E3)からの高速の非発光寿命($\sim$ ピコ秒)のため非常に小さな値となる。 M はカスケード結合の段数、 n_{sp} は反転分布パラメータ、 η はポンプ効率、 γ は共振器中の光子数の減衰率、 N_{2therm} は下位準位(E2)における電子の熱分布をそれぞれ表す。自然放出光結合係数 β は中赤外の場合 $10^{-3} \sim 10^{-5}$ であるので β_{eff} は $10^{-7} \sim 10^{-8}$ と非常に小さな値となる。したがってしきい値電流は本質的に高いと言えるが、カスケード結合の段数 M を稼ぐことによって緩和される構造となっている。Fig. 2に $\beta_{eff} = 10^{-7}$ 、 $\gamma = 5 \times 10^{11}/\text{s}$ 、 $n_{sp} = 1.25$ 、 $\eta = 1$ として規格化した注入電流(I_0/I_{th})に対する非発光遷移、誘導放出、自然放出の各レートを計算した結果を示す。誘導放出レートのしきい値での増大が 2×10^8 倍と巨大で、一旦レーザー発振が起これば高い効率を確保で

Fig. 2 Calculated transition rate of non-lasing relaxation, stimulated emission, and coupled spontaneous emission as a function of the normalized pump current I_0/I_{th} .

きることがわかる。また、高い誘導放出レートはしきい値直上での爆発的とも言える急激な光子数の増加によってもたらされ、結果として誘導放出レートはレーザー発振モードに結合した自然放出レートに比べて7～8桁程度高くなる。ここで重要なことは、しきい値直上($I_0/I_{th} < 1.5$)では空間的に均一な非発光緩和レートが依然として誘導放出レートより高いため、上位準位の空間的ホールバーニングが発生することなく安定な動作が維持されうることである⁴⁾。

3. 高出力化

QCLの活性領域はFig. 1に示されるような発光層と電子注入層のペアが多段にカスケード結合した構造となっている。前段の電子注入層よりE3に注入された電子はE2へと発光遷移し、さらにLOフォノン散乱を介して高速にE1へ緩和する。高速緩和した電子は続く電子注入層によって次段の発光層へと再び注入される。このような電子のリサイクリング効果によりカスケード結合の段数を増やすことで高出力化が可能となる。一般に光出力およびスロープ効率はカスケード結合の段数 M に比例して増大するため、高出力化には単純に段数 M を増加すればよいことになる。ところが、段数 M が増加するとそれに伴って駆動電圧(1段当りの電圧降下 $\times$ 段数)も増加してしまう。駆動電圧の増加は素子の発熱をまねき、光出力が熱飽和する。したがって高出力化には段数 M の最適化や端面コーティングおよび長共振器構造によるミラー損失の低減に加えて、熱伝導率に優れた材料選択といった放熱対策も重要となる。

これまでQCLの高出力化は主にセキュリティ応用を目的として波長 $4.5 \sim 5 \mu\text{m}$ で集中的に進められており、Razeghiたちのグループを中心に精力的に研究開発が行われている。2005年に波長 $4.8 \mu\text{m}$ で200 Kの低温ながら平均光出力1 W以上が達成⁶⁾された。その後2007年には室温で675 mWが報告⁷⁾された。これでは活性層段数30段、共振器長3 mm、後端面を高反射(High-Reflection: HR)コート、放熱対策として熱伝導率に優れたダイヤモンド

ンドを用いたヒートシンクにエピダウンでマウントしている。これ以降、長共振器化、ダイヤモンドヒートシンクの使用が主流となり2008年には半絶縁性FeドープInPによる埋め込みヘテロ (buried hetero: BH) 構造を用いて波長4.6 μm 、室温で1.3 W⁸⁾、Capassoらのグループからは2009年に共振器長5 mmで3 Wが報告⁹⁾された。現在では後端面HRコート、出射端面側を無反射 (Anti-Reflection: AR) コートで5.1 W (波長4.9 μm 、共振器長5 mm, BH構造, ダイヤモンドヒートシンク, エピダウンマウント) が達成¹⁰⁾されており、今後はアレイ構造により数十ワットクラスのさらなる高出力化が進むものと考えられる。

一方、4 μm 帯以外の波長ではあまり開発が進んでいない状況である。特にサブバンド間のエネルギー差が100 meVを切るような長波長領域では上位準位寿命は極端に短くなり、レーザー発振に必要な反転分布の形成が非常に難しくなる。これまでのところ波長15 μm では室温パルス駆動が達成されており、ピーク光出力216 mW¹¹⁾が得られているが、波長が長くなるほど室温でのレーザー発振は困難なものとなる。さらに長波長領域となる波長100 μm 前後のいわゆるTHz帯と呼ばれる領域では2002年にレーザー発振が達成¹²⁾されて以降、多くのグループで势力的に研究開発が進められているが、未だに最高動作温度はパルス駆動で200 K以下¹³⁾である。THz帯におけるQCLのCW駆動は、Huらのグループによって発振波長3 THz、最高動作温度117 K、動作温度11 Kにおける平均光出力2.6 mWが報告¹⁴⁾されている。このように長波長領域ではレーザー発振そのものが困難であるため、高出力化にまでは至っていない状況であり、その応用研究も限定的なものとなっている。

現在、我々は医療応用を目的として、様々な有機分子の吸収ラインが存在する波長5.7~6.1 μm (~1700 cm^{-1} 付近) で高出力QCLの研究開発を行なっている。活性領域はフォノン共鳴 - ミニバンド緩和 (Single-Phonon resonance Continuum depopulation: SPC) 構造¹⁵⁾となっている。SPC構造では従来構造で問題となっていた下位準位の電子の流れを改善し、効率的な反転分布形成のためにLOフォノン散乱を介してミニバンドへ電子を落とし、ミニバンド内の高速緩和を利用する構造となっている。Fig. 3にSPC緩和構造を用いた活性領域のバンド図を示す。非常に短い下位準位寿命 (~0.18 ps) を実現し、且つ下位準位からの緩和構造をミニバンドとすることで設計および結晶成長が容易となり、許容範囲が広く安定した動作が得られるという特徴を有している。

Fig. 4に20 °Cで駆動した場合の電流 - 光出力特性、およびFig. 5に発振スペクトルを示す。n型InP基板上にMOCVD法によりInGaAs/InAlAs超格子で構成されるSPC構造QCLを成長した。素子はカスケード段数50段 ($M=50$)、共振器長4 mm、端面はAR/HRコート、BH構造で通常のCuヒートシンクにエピダウンでマウントしている。duty-cycle:50% (パルス幅500 ns、繰返し1 MHz) のパルス駆動で、中心波長6 μm 、発振しきい値電流1.2 A、平均光出力1.1 Wを達成した。尚、発振スペクト

Fig. 3 Schematic conduction band diagram and moduli squared of the relevant wave functions in the designed active region of a SPC-QCL.

ル中に存在する鋭い吸収線は大気中の水蒸気 (H_2O) によるものである。

一般にQCLにおいては高出力動作においてもレーザー発振に伴う素子内部の結晶あるいは端面における劣化は存在せず、動作寿命は化合物半導体の電子デバイスと同程度であると推測されている。これはQCLがユニポーラデバイスであり、動作中に放出される光子エネルギー

Fig. 4 Current-light output characteristic of a 6 μm range QCL in pulsed operation at 20 °C.

Fig. 5 Lasing spectrum of a 6 μm range QCL at 20 °C.

ギーが使用される半導体材料のバンドギャップに比べて十分小さいことによるものと考えられる。

4. 高出力QCLの医療応用

一般にレーザー治療とは、レーザー光の照射により誘起される光化学的、熱的、機械的な相互作用を介して治療効果を得るものである。レーザー照射の条件を最適化することによって、所望の相互作用を病変部位に選択的に誘起し、最小侵襲処置が可能となる。生体組織を構成する生体分子は複雑な多原子分子から成っており、ある特定の官能基の振動モードが存在する。例えばエステル基のC=O伸縮振動モードは $5.75\ \mu\text{m}$ 、ヒドロキシル基のOH変角振動モードは $6.1\ \mu\text{m}$ に存在する¹⁶⁾。レーザー光の単色性による優れた波長選択性を利用して、ある特定の振動モードを励起し選択的反応を誘起できる。従来はレーザー光照射による熱的效果のみを利用していましたが、それぞれの振動モードに適した波長のQCLを照射することにより、選択的なレーザー生体相互作用を起すことが可能である。またQCLでは単なる光出力だけでなくパルス幅、繰返し周波数、duty-cycleなどの照射条件を広い範囲で設定することができ、熱的效果(凝固、炭化を伴う蒸散切開など)や機械的效果(非熱的な蒸散切開など)を治療目的によって切り替え、治療行為の低侵襲化を図ることが可能になると期待される。高出力QCLの生体組織の凝固切開(レーザーメス)への応用例として、Fig. 6に生体軟組織(トリ胸部組織)へ高出力QCLを照射したときの切削痕の断面像を示す。QCLは中心波長 $5.75\ \mu\text{m}$ 、 $500\ \text{ns}/1\ \text{MHz}$ のパルス駆動である。平均パワー密度は $3400\ \text{W}/\text{cm}^2$ 、照射時間は $0.5\ \text{s}$ で行なった。

現在、注目されているレーザー治療のひとつとしてカテーテルを用いた治療があげられる。カテーテルとは医療用の中空の管で、消化管や尿管などの管腔部または血管に挿入し、検査や治療を行なうものである。カテーテル内にレーザー光を導光するファイバー(中赤外波長域の場合は中空ファイバー)を入れ、患部に直接レーザー光を照射する。カテーテルの太さは通常 $1\ \text{mm}$ 以下であるので術後の傷はほとんど残らない。また、レーザー光照射中に痛みや熱さを感じることも少なく、患者の肉体的

Fig. 6 Cross-sectional view of irradiated chicken breast tissue.

的および精神的負担を最小限に留めた治療法として理想的である。具体的には動脈硬化部位の除去¹⁷⁾、尿管結石や胆石の破碎などが考えられる¹⁸⁾。

粥状動脈硬化部位ではコレステロールが脂肪酸とエステル結合した物質であるコレステロールエステルが主成分のプラークが血管壁に蓄積している。エステル基のC=O伸縮振動モードに対応した波長 $5.75\ \mu\text{m}$ のレーザー光を照射することによってエステル結合に特異的に反応を誘起し、粥状動脈硬化部位を除去することが可能である。そこで動脈硬化部位の模擬サンプルとしてのコレステロールオレイト薄膜、正常動脈組織の模擬サンプルとしてのブタ胸部大動脈血管に $5.75\ \mu\text{m}$ 高出力QCLを照射し、動脈硬化治療への有用性を検討した¹⁹⁾。実験に使用したコレステロールオレイト薄膜の厚さは約 $10\ \mu\text{m}$ 、ブタ胸部大動脈は生理食塩水処理した約 $5\ \text{mm} \times 5\ \text{mm}$ の切片である。QCLは中心波長 $5.75\ \mu\text{m}$ 、 $500\ \text{ns}/1\ \text{MHz}$ のパルス駆動である。平均パワー密度は $20 \sim 300\ \text{W}/\text{cm}^2$ 、照射時間は $1 \sim 30\ \text{s}$ で行なった。Fig. 7に平均パワー密度 50 、 $100\ \text{W}/\text{cm}^2$ 、照射時間 1 、 $5\ \text{s}$ で照射したときのコレステロールオレイト薄膜の表面形状を示す。またFig. 8にはブタ胸部大動脈血管片に対して平均パワー密度 100 、 $250\ \text{W}/\text{cm}^2$ 、照射時間 1 、 $10\ \text{s}$ としたときの表面形状を示す。

平均パワー密度 $30\ \text{W}/\text{cm}^2$ 以下では、いずれの照射時間

Fig. 7 Irradiation effect to cholesteryl orate thin-film.

Fig. 8 Surface view of irradiated porcine thoracic aorta.

でもコレステロールオレイト薄膜は変化がなく、50～100 W/cm²では照射時間1 s以上で融解が確認された。一方、ブタ胸部大動脈では平均パワー密度150 W/cm²では変化なく、200 W/cm²、照射時間1 sで熱変性、5 s以上で炭化、250 W/cm²以上では照射時間1 sで炭化が確認された。以上の結果より正常動脈組織には損傷を与えずにコレステロールオレイトを融解できることが認められ、QCLを用いた動脈硬化病変部位の選択的除去の可能性が示された。今後は最適なレーザー照射パラメータの検討が重要となる。実際の治療においては血管内で行なうため血液やフラッシュ用生理食塩水中の水分による巨大な吸収が存在する。そのため血管内環境と同様な湿潤状態で選択的治療が可能な照射パラメータがどのような範囲で存在するかについて検討を行なう必要がある。次のステップとしてはウサギの動脈硬化病変を用いて照射パラメータについて詳細な検討を行なう予定である。

5. まとめ

波長6 μm帯のQCLにおいて、活性領域の最適化および放熱対策により単素子で平均光出力1 W以上の高出力化を実現した。模擬サンプルへの照射実験により、選択的な動脈硬化治療の可能性が示され、安全性の高い(正常組織には非侵襲)治療方法として有望である。中赤外領域の半導体レーザーである高出力QCLは固体レーザーを中心とした従来の医療用レーザーに比べて小型、長寿命、メンテナンスフリー、低コストといった優位性があり、今後は実機への導入が期待される。また、アレイ構造により数十ワットクラスが実現されれば波長5 μm以上に強い吸収をもつ樹脂材料(フッ素系樹脂、スチレン系透明樹脂など)への微細加工、マーキング、溶着といった直接加工、中赤外ライダー(Light Detection And Ranging: LIDAR)、危険物質の遠隔イメージングなどへの応用展開も可能である。

謝 辞

素子作製および評価に協力頂いた浜松ホトニクス(株)中央研究所材料研究室、レーザーデバイス開発グループ、レーザー事業化部の諸氏に深く感謝致します。

参考文献

- 1) R. Kazarinov and R. Suris: *Sov. Phys. Semicond.* **5** (1971) 207.
- 2) J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho: *Science* **264** (1994) 553.
- 3) M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Illegems, E. Gini, and H. Melchior: *Science* **295** (2002) 301.
- 4) M. Yamanishi, T. Edamura, K. Fujita, N. Akikusa, and H. Kan: *IEEE J. Q. Electron.* **44** (2008) 12.
- 5) S. Bartalini, S. Borri, I. Galli, G. Giusfredi, D. Mazzotti, T. Edamura, N. Akikusa, M. Yamanishi, and P. De Natale: *Opt. Express* **19** (2011) 17996.
- 6) W. W. Bewley, J. R. Lindle, C. S. Kim, I. Vurgaftman, J. R. Mayer, A. J. Evans, J. S. Yu, S. Slivken, and M. Razeghi: *IEEE J. Q. Electron.* **41** (2005) 833.
- 7) A. Evans, S. R. Darvish, S. Slivken, J. Nguyen, Y. Bai, and M. Razeghi: *Appl. Phys. Lett.* **91** (2007) 071101.
- 8) Y. Bai, S. R. Darvish, S. Slivken, W. Zhang, A. Evans, J. Nguyen, and M. Razeghi: *Appl. Phys. Lett.* **92** (2008) 101105.
- 9) A. Lyakh, R. Maulini, A. Tsekoun, R. Go, C. Pflugl, L. Diehl, Q. J. Wang, F. Capasso, C. Kumar, and N. Patel: *Appl. Phys. Lett.* **95** (2009) 141113.
- 10) Y. Bai, N. Bandyopadhyay, S. Tsao, S. Slivken, and M. Razeghi: *Appl. Phys. Lett.* **98** (2011) 181102.
- 11) K. Fujita, M. Yamanishi, T. Edamura, A. Sugiyama, and S. Furuta: *Appl. Phys. Lett.* **97** (2010) 201109.
- 12) R. Kohler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi: *Nature* **417** (2002) 156.
- 13) S. Fathololoumi, E. Dupont, C. W. I. Chan, Z. R. Wasilewski, S. R. Laframboise, D. Ban, A. Matyas, C. Jirascsek, Q. Hu, and H. C. Liu: *Optics Express* **20** (2012) 3866.
- 14) B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, and J. L. Reno: *Optics Express* **13** (2005) 3331.
- 15) K. Fujita, S. Furuta, A. Sugiyama, T. Ochiai, T. Edamura, N. Akikusa, M. Yamanishi, and H. Kan: *Appl. Phys. Lett.* **91** (2007) 141121.
- 16) 石井 克典, 栗津 邦男: *医学のあゆみ* **240** (2012) 511.
- 17) 石井 克典, 月元 秀樹, 間 久直, 栗津 邦男: *日本レーザー医学会誌* **30** (2009) 126.
- 18) H. Hazama, S. Yamada, K. Ishii, and K. Awazu: *Proc. SPIE* **6991** (2008) 6991H.
- 19) K. Hashimura, K. Ishii, N. Akikusa, T. Edamura, H. Yoshida, and K. Awazu: *Proc. Conference on Laser Surgery and Medicine 2012* (2012) p.30.