

フォトニック結晶を用いて高出力と高ビーム品質を両立させたガスセンシング向け面発光型量子カスケードレーザー

Surface-Emitting Photonic-Crystal Quantum Cascade Laser Offering Both High Power and Narrow Beam Shape for Gas Sensing Applications

橋本 玲 HASHIMOTO Rei 斎藤 真司 SAITO Shinji

量子カスケードレーザー（QCL：Quantum Cascade Laser）は、中・遠赤外波長域で発振可能な半導体レーザーであり、小型の赤外光源としてガスセンシングや医療応用などへの適用が検討されている。しかし、実用化には、製造コストの低減、及び光出力とビーム品質の向上が課題となっている。

東芝は、高出力と高ビーム品質を両立でき量産性に優れた素子構造を持つ、フォトニック結晶（PC：Photonic Crystal）を利用した面発光型QCLの開発を進めている。今回、電磁界シミュレーションと精密なリソグラフィー・ドライエッチング技術を駆使することで、波長4 μm帯で高ビーム品質を実現するPCの設計・作製技術を開発した。これを用いた面発光型QCLの試作品で特性評価を行った結果、PCを利用する波長4 μm帯の面発光型QCLとして世界初^(注1)となるレーザー発振に成功するとともに、ビーム広がり角2°以下の優れたビーム品質を確認した。

Attention is being focused on the quantum cascade laser (QCL), a type of semiconductor laser covering the medium- and far-infrared wavelength ranges, as a potential candidate for small infrared light sources to be used in various laser-based applications including gas sensing and medical equipment. However, higher manufacturing costs and lower beam quality are serious obstacle to their practical use.

As a solution to this issue, Toshiba Corporation has been developing a surface-emitting QCL using a photonic crystal (PC) to achieve a balance between high output power and a narrow beam shape, in addition to high mass productivity. We have now designed and fabricated a PC capable of efficiently oscillating a laser beam of high beam quality with a wavelength in the 4 μm band through the use of various technologies including electromagnetic field simulation and high-precision lithography and dry etching techniques. Experiments on a prototype surface-emitting PC QCL have successfully realized the world's first surface-emission lasing at a wavelength of around 4 μm and confirmed that this newly developed QCL achieves high beam quality with a laser beam divergence angle of less than 2 degrees.

1. まえがき

中・遠赤外波長域は、様々な物質の吸収帯が存在することから、一般に分子の指紋領域とも呼ばれ、赤外分光法による対象物質の同定やガス濃度測定などに活用されている。量子カスケードレーザー（QCL：Quantum Cascade Laser）は、この中・遠赤外波長域で発振可能な半導体レーザー（図1）であり、レーザーとしての膜構造を変更することで、3～16 μmの波長域において、目標波長からのずれが小さくスペクトル幅が狭い光を生成できる。正確に波長制御された中・遠赤外光が利用できることから、例えば温室効果ガスであるNO_x（窒素酸化物）やSO_x（硫黄酸化物）のモニタリング、遠隔でガス漏えいを検知するリモートセンシング技術、医療・ヘルスケアなどの応用技術の発展や実

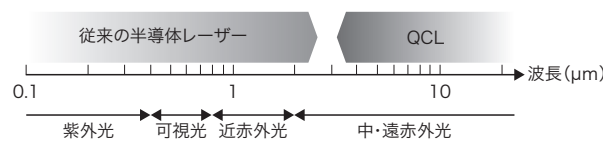


図1. 半導体レーザーの発振波長域

従来の半導体レーザーは、近赤外波長域までしか発振できなかったが、QCLは、より長波長の中・遠赤外波長域まで発振できる。

Oscillation wavelength range of semiconductor lasers

用化に役立つと期待されている⁽¹⁾⁻⁽³⁾。また、QCLが小型な半導体レーザーであることを生かし、こうした用途の機器を小型・ポータブル化できる点も注目されている。

しかし、QCLの膜構造は、ほかの波長の半導体レーザーと比較すると複雑であるため、一般にQCLは製造が難しく、高価である。更に、例えばリモートセンシングのような用途では、数W級の光出力や、ビーム広がり角を1°未満に低減

(注1) 2020年3月時点、PCを利用する波長4 μm帯の面発光型QCLにおいて、当社調べ。

することが要求されている。現在市販されているQCLの光出力は、数十～数百mWが一般的である⁽⁴⁾。また、ビーム広がり角は、30°程度であるため、これを1°未満に整えるためにはほかの光学部品が必要となり、コストの増加につながる。このようにQCLの素子特性が、応用技術の要求仕様に対して不十分であることが、実用化に向けた課題となっている。

これらの課題を解決するには、高出力と高ビーム品質の両立が期待でき、かつ量産性に優れ、製造コストの低減が可能な面発光型のレーザー素子構造を採用することが有効である。面発光型レーザーは、可視光から近赤外光までの波長域において、一般にVCSEL（垂直共振器型面発光レーザー）^(注2)と呼ばれる素子構造が広く利用されている⁽⁵⁾。しかし、QCLは原理上このVCSEL構造の採用が不可能であることから、面発光型QCLの実現は容易ではなく、研究開発の報告例は少ない⁽⁶⁾。

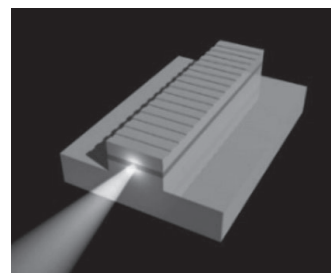
この問題をブレイクスルーする技術として、東芝は、フォトリソニック結晶（PC：Photonic Crystal）を利用する面発光型QCL素子構造の開発を進めている^{(7) (8)}。ここでは、中赤外波長域で高ビーム品質を実現するPCの作製技術と、PCを適用した4μm帯面発光型QCLを試作し、世界初となるレーザー発振を実現した結果について述べる。

2. QCLにおける面発光型素子構造の検討

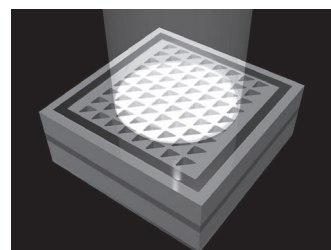
一般に半導体レーザーは、電流を光に変換する発光層に、光密度を高めるための光閉じ込め構造を形成することでレーザー発振を実現する。広く使用されているのは、端面発光型と呼ばれる素子構造であり、発光層と平行な方向に光を閉じ込めることでレーザー発振を誘起し、その方向にレーザー光を射出する。この構造は、レーザー発振に有利なように光閉じ込め構造を小さく形成するため、放熱性に劣り、大電流を注入しての高出力動作には適さない。また、レーザー光の出射面が数μm角と小さいため、レーザー光が数十度の角度で広がって出射されるという欠点がある。

これに対し、面発光型のレーザー構造は、発光層と垂直な方向に光を閉じ込めることで、レーザー光が素子の垂直方向に射出される素子構造である。発光層の面積を調節できるため、面積を狭くして消費電力を抑制することも、面積を広くして放熱性を向上させ高出力動作を有利にすることも可能である。また、レーザー光の出射面を、例えば数mm角まで大きくできるため、射出されるレーザー光の広がり角を狭くして、ビーム品質を向上させることが可能である

(注2) スマートフォンでの顔認証などに広く利用されている面発光型半導体レーザー。



従来の端面発光型QCL



PCを利用した新規面発光型QCL

図2. 端面発光型QCLと面発光型QCL

従来の端面発光型と比較して面発光型は、レーザー光の出射面積を広くできるため、高出力や高ビーム品質などの様々なメリットが得られる。

Conventional edge-emitting QCL and newly developed surface-emitting PC QCL

(図2)。更に、製造時の素子一括検査が可能なることから、製造コストを低減できる特長もある。こうした点からQCLの現状の課題克服に、面発光型素子構造を採用することが有効と考えられる。

面発光型素子構造としては、発光層の上下にDBR（Distributed Bragg Reflector）という反射率の高い層を形成することで垂直方向の光閉じ込めを実現する、VCSEL構造が広く使用されている。ところが、QCLはレーザー発振の原理が従来の半導体レーザーと大きく異なるため、発光層の上下にDBRを形成しても光を閉じ込めることができず、VCSEL構造でQCLを面発光素子化することは原理的に不可能である。面発光型素子の基本構造として広く利用されているVCSEL構造を適用できないという理由から、これまでQCLの研究開発のほとんどは、端面発光型素子での検討に限定されてきた。そこで当社は、DBRを用いずに面発光を実現する手法として、PCを利用する新しい構造をQCLに採用した。

3. PC作製技術

PCは、屈折率が周期的に変化するように形成されたナノ構造体であり、PC周辺の光の伝搬を制御できるという特長を持つ。適切に設計・作製することで、特定の波長だけを伝搬させてほかの波長の侵入を禁止する波長選択性や、光の

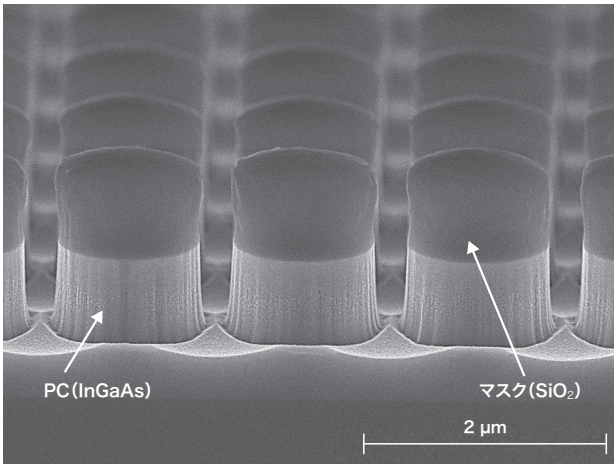


図3. 作製したPCの電子顕微鏡像

ドライエッチングによって形成されたPCの例である。パターニングの際に使用したマスクは、素子化する際に除去される。

Scanning electron microscope (SEM) image of fabricated PC

伝搬方向を平行方向から垂直方向に変更させるビーム出射方向の制御性などが得られる。したがって、このPCを利用することで、全く新しい面発光型のQCLが実現可能になる。

PCを利用した面発光型QCLにおいて、PCの役割は二つある。一つは、QCLの発光層近傍に存在できる光を特定の波長に限定して閉じ込めることで、シングルモード(単一波長)でのレーザー発振を誘起する役割である。もう一つは、発振したレーザー光が垂直方向に出射されるように、光の伝搬方向を制御する役割である。こうした制御性は、電磁界シミュレーションを用いてPCの形状や、大きさ、周期性、高さ、材質などのパラメーターを設計することで実現できる。

今回検討したQCLで、波長4.387 μmの光に対して制御性が得られるように設計・作製されたPCの例を、**図3**に示す。PCを作製するには、まず電子ビーム(EB)描画装置を用いたリソグラフィーによって、厚さ1.0 μmのInGaAs(インジウムガリウムヒ素)層に対し、直径約1.1 μmの円柱状PCが約1.4 μm間隔で正方格子配置になるようにパターニングを行う。その後、ドライエッチング手法でInGaAs層を円柱状に加工する。この際、ドライエッチング条件を詳細に検討することで、円柱側壁の垂直性や円柱の高さを制御し、精密な設計を実際の形状に反映できる。狙い通りのPCの制御性を得るには、高度な設計技術に加え、設計を精密に実物化するためのリソグラフィーとドライエッチング技術が、重要な技術開発項目となる。

4. 面発光型QCL素子の試作

PCの制御性は、周期的な屈折率分布の差が大きいほど、

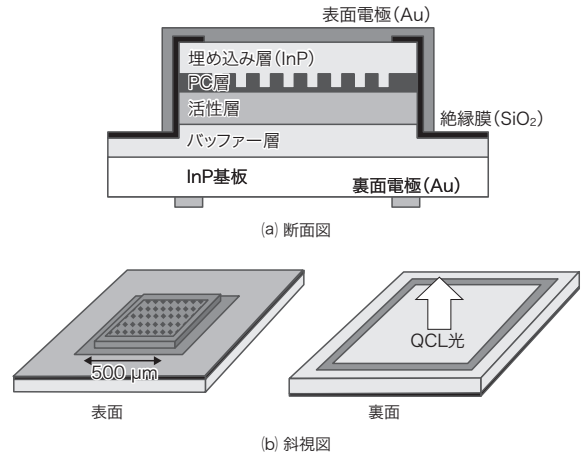


図4. PCを利用した面発光型QCLの素子構造

PCと発光層の位置関係を考慮しながら、垂直方向にレーザー光を取り出せるように、素子構造が設計されている。

Cross-sectional and overall structures of surface-emitting PC QCL

またPCの近傍ほど強くなる。このため、面発光型QCLの素子構造では、レーザーとして動作させるための電流注入構造や光閉じ込め構造に加え、PCとその周辺の材料選択やPCと発光層との位置関係などが重要になる。こうした諸条件を踏まえ、電磁界シミュレーションを用いて面発光型QCLの素子構造について設計検討を行った。**図4**に、PCを利用した面発光型QCLの素子構造として設計した断面図及び斜視図を示す。発光層へのPCの制御性が強くなるように、PC層は発光層の直上のInGaAs層に形成する設計とした。この際、InGaAs層に形成したPC形状の周辺をInP(インジウムリン)層で埋めることで、屈折率差に周期性を持たせ、PCとして機能させる。レーザーとして動作させるために、電流を発光層に限定して注入する電流狭窄(きょうさく)構造と絶縁膜、並びに表面・裏面に金属電極を備えている。レーザー発振時のレーザー光は、PCによって垂直方向すなわち上下両方向に伝搬するように設計されている。ここで、今回検討したQCLでは、約4.4 μmの波長に対し、ほぼ100%の反射率を持つAu(金)を電極材料として表面全面に成膜することで、素子内部で表面方向へ向かうレーザー光を裏面方向へと反射し、レーザー光を全て裏面から出射できる。裏面側の電極は、レーザー光の出射を阻害しないように、開口形状に設計した。

次に、このように設計した構造をレーザー素子として試作した。QCLの膜構造・膜厚や、面発光素子としての素子構造、サイズ設計値などは、従来の半導体レーザーと比較すると大きく異なる。加えて、精密な作製精度を必要とするPCを利用した面発光型QCLという全く新しい素子構造を

作製するプロセスだったため、従来のプロセス諸条件が適用できない工程が多かった。このため、これらの各工程のプロセス条件は、全て個別に要素検討を行った上で決定した。

QCLの膜構造は、分子線エピタキシー法を用いてInP基板上に成膜した。発光層は波長約4.4 μmで発振するよう設計されており、約600層の厚さ数nmのInGaAs層とInAlAs（インジウムアルミニウムヒ素）層で構成されている。成膜されたウエハーに、最初の工程として、3章で述べたEB描画装置とドライエッチング装置を利用してPCを形成した。次に、PCの周辺をInPで埋めるために、有機金属気相成長法を用いてInP層を成膜した。その後、再度リソグラフィとドライエッチング手法を用いて、約500 μm角の電流狭窄構造を作製した。また、発光層以外への電流リークを防止するために素子全体にプラズマCVD（化学気相成長）法を用いてSiO₂（酸化シリコン）絶縁膜を成膜した後、発光層への電流注入を可能にするためにドライエッチング手法を用いて発光層上部の絶縁膜を除去した。更に、表面・裏面のAu電極は、スパッター成膜法を用いて成膜した。表面は、レーザー光を素子内部で裏面側に反射させるために全面に成膜し、裏面は、レーザーが射出される箇所を確保するために一部を開口して成膜した。最後に、スクライバーとへき開器を用いて、個別のレーザー素子化を行った。

5. 特性評価

個別に素子化された面発光型QCLを評価用ヒートシンクに実装し、素子特性の評価を行った。液体窒素温度でのパルス電流評価における、電流-電圧・電流-光出力特性と発光スペクトルを図5に示す。光出力と発光スペクトルは、ともに素子の垂直方向に出射されるレーザー光についての測定結果である。光出力がしきい値を持って急激に上昇していること、半値幅が狭い単峰性の発光スペクトルが得られていることから、レーザー発振していることが確認できる。PCを利用した4 μm帯の面発光型QCLのレーザー発振確認は、世界初の成果である。発振波長は約4.43 μmで、PCの設計波長4.387 μmとほぼ一致している。図6にレーザー発振時の遠距離視野像（FFP：Far Field Pattern）を示す。観測されたFFPは双峰になっているが、今後素子構造の適正化により単峰にできると考えられる。一方ビームは、素子の裏面側からほぼ垂直方向に出射されており、ビーム広がり角は2°以下である。従来の端面発光型QCLのビーム広がり角が数十度であることと比較すると、面発光型QCLのビーム広がり角は極めて狭く、ビーム品質に優れているといえる。PCの設計が適切であり、かつ設計を正確に反映した作製ができた結果と考えられる。

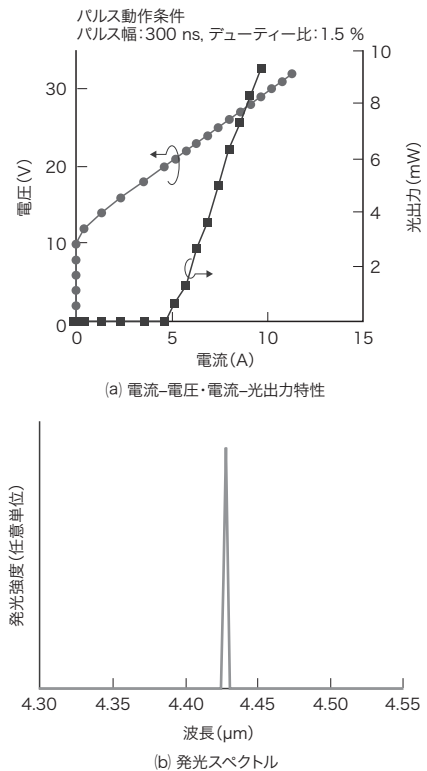


図5. 電流-電圧・電流-光出力特性と発光スペクトル

光出力がしきい値を持って急激に上昇していること、及び幅の狭い発光スペクトルが得られていることから、レーザー発振していることが確認できる。

Light-current-voltage and spectral characteristics of prototype surface-emitting PC QCL

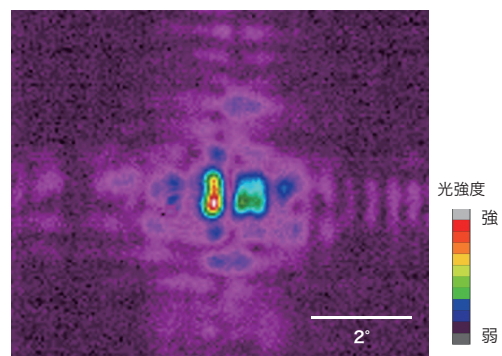


図6. 試作した面発光型QCLのレーザー発振時のFFP

ビーム広がり角が極めて狭く、PCの効果が確認できる。

Far-field pattern (FFP) of prototype surface-emitting PC QCL

6. あとがき

小型赤外半導体レーザーとして、リモートセンシングや医療・ヘルスケアなどへの応用適用が期待されるQCLについて、新しい面発光型素子の開発について述べた。VCSEL

構造の適用が不可能なQCLにおいて、PCを利用した光制御技術を取り入れた面発光型QCLの素子構造を設計・試作し、世界で初めて、波長4 μm 帯の面発光QCLのレーザー発振に成功した。面方向へ出射されたレーザー光のビーム広がり角は2°以下と、端面発光型QCLと比較して極めて狭く、高いビーム品質が確認された。今後、QCL応用技術の実用化に向け、PCを利用した面発光型QCLの高出力化や製造コスト低減に向けた開発を進めていく。

この研究は、国立研究開発法人 物質・材料研究機構と、学校法人 片柳学園 東京工科大学との共同研究である、防衛装備庁安全保障技術研究推進制度 Grant Number JPJ004596の研究課題「フォトニック結晶による高ビーム品質中赤外量子カスケードレーザーの開発」の支援を受けて実施した。

文献

- (1) Bakhirkin, Y.A. et al. Sub-ppbv nitric oxide concentration measurements using cw thermoelectrically cooled quantum cascade laser-based integrated cavity output spectroscopy. *Appl. Phys. B*. 2006, **82**, 1, p.149–154.
- (2) Nikodem, M.; Wysocki, G. Chirped Laser Dispersion Spectroscopy for Remote Open-Path Trace-Gas Sensing. *Sensors (Basel)*. 2012, **12**, 12, p.16466–16481.
- (3) Isensee, K. et al. Biomedical applications of mid-infrared quantum cascade lasers - a review. *Analyst (Lond)*. 2018, **143**, 24, p.5888–5911.
- (4) 浜松ホトニクス. “量子カスケードレーザーの選び方”. 量子カスケードレーザー(QCL). <<https://www.hamamatsu.com/jp/ja/product/lasers/semiconductor-lasers/qcls/index.html>>. (参照 2020-05-11).
- (5) Iga, K. Surface-emitting laser - its birth and generation of new optoelectronics field. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron*. 2000, **6**, 6, p.1201–1215.
- (6) Colombelli, R. et al. Quantum cascade surface emitting photonic crystal laser. *Science*. 2003, **302**, 5649, p.1374–1377.
- (7) Hirose, K. et al. Watt-class high-power, high-beam-quality photonic-crystal lasers. *Nat. Photonics*. 2014, **8**, 5, p.406–411.
- (8) Liang, Y. et al. Room temperature surface emission on large-area photonic crystal quantum cascade lasers. *Appl. Phys. Lett*. 2019, **114**, 3, 031102.



橋本 玲 HASHIMOTO Rei
生産技術センター
製造プロセス・検査技術領域 光学・検査技術研究部
応用物理学学会会員
Optics & Inspection Technology Research Dept.



齋藤 真司 SAITO Shinji, Ph.D.
生産技術センター
製造プロセス・検査技術領域 光学・検査技術研究部
博士(工学) 日本物理学会・応用物理学学会会員
Optics & Inspection Technology Research Dept.