

# 量子カスケードレーザー開発と計測への応用

山西 正道\*・枝村 忠孝\*・秋草 直大\*\*

## Development of Quantum Cascade Lasers and Their Applications

Masamichi YAMANISHI\*, Tadataka EDAMURA\* and Naota AKIKUSA\*\*

Quantum cascade lasers, QCLs are semiconductor lasers that emit in the mid-infrared region. Unlike typical interband semiconductor laser diodes the QCLs emit radiation through intersubband transitions. Since the QCL is the only mid-infrared semiconductor lasers achieving room temperature operation, various applications have been demonstrated in the precise and high sensitivity gas sensing applications.

**Key words:** quantum cascade laser, mid-infrared, gas sensing

半導体量子井戸中に形成されるサブバンド間の光学遷移を利用した量子カスケードレーザー (quantum cascade laser; QCL) は、1994年にJ. FaistとF. Capassoらによって初めて報告された<sup>1)</sup>。彼らは共鳴トンネル効果を用いて効率的に上位準位に電子を注入し、かつ極性縦光学 (longitudinal optics; LO) フォノン散乱を利用して超高速に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、レーザー発振に成功した。その後、量子カスケードレーザーに関する研究は欧米を中心に盛んに行われ、波長100  $\mu\text{m}$  以上のいわゆるテラヘルツ領域においても発振が達成された<sup>2)</sup>。現在では波長3~20  $\mu\text{m}$  の中赤外領域で室温動作可能な唯一の実用的半導体レーザーであり、環境計測をはじめとしてさまざまな分野への応用が期待されている。

### 1. 動作原理と特徴

図1に、典型的な3つのサブバンドからなる三準位系の量子カスケードレーザーの、活性領域の伝導帯におけるエネルギーバンド図を示す。活性領域は電子注入層と発光層を1ユニットとし、それを多段 (通常、30~50段) にカスケード結合した構造となっている。電子注入層は量子井戸の厚さが (図の左から右に向かうにつれて) 徐々に薄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

は素子に印加される電圧によって超格子内のミニバンドが平坦になるように設計されている。このミニバンドから、共鳴トンネルによって発光層に形成された第3準位 (E3) へ電子が注入される。バンド間遷移による通常の半導体レーザーの場合と異なり、サブバンド間遷移には不可避な形で高速 (緩和時間ピコ秒オーダー) のLOフォノン放射による非発光緩和が存在する。この状況のもとで分布反転を維持するためには、第2準位 (E2) から、さらに高速に電子を引き抜く必要があり、第2準位 (E2) と第1準位 (E1) とのエネルギー差は、通常LOフォノンのエネルギー程度となるように設計し、共鳴的なLOフォノン緩和を利用する。

サブバンド間遷移を利用することで、量子カスケードレーザーは、次のような特徴をもっている。

- (1) 発振波長は材料のバンドギャップによるものではなく、同一材料系で中赤外からテラヘルツ領域まで設計可能である。
- (2) 中赤外域で動作するデバイスを、GaAsやInGaAsといったこれまでの半導体レーザーで使用実績のあるIII-V化合物半導体材料で実現でき、既存の結晶成長、プロセスおよび組み立て技術をそのまま利用できる。
- (3) 電子注入層と発光層の段数を大きく (30段以上) す

\*浜松ホトニクス(株)中央研究所 (〒434-8601 浜松市浜北区平口5000)

\*\*浜松ホトニクス(株)開発本部 (〒434-8601 浜松市浜北区平口5000) E-mail: aki@crl.hpk.co.jp

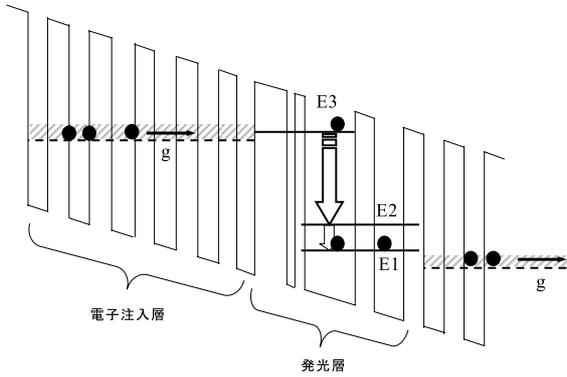


図1 三準位系の量子カスケードレーザーの活性領域の伝導体におけるエネルギーバンドの概略図。

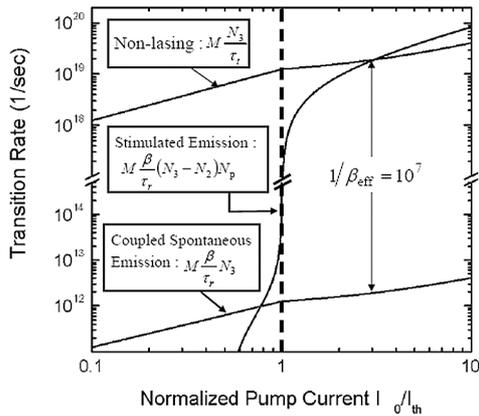


図2 規格化注入電流に対するレーザー上位準位からの緩和レート，誘導放出レート，および自然放出レートの計算結果の一例。

ることにより，レーザー発振時には注入電子1個当たり複数の光子発生が可能となり，結果として高い量子効率を得られる。

- (4) 以下に示すように，高速の非発光緩和に起因して，外部共振器を用いることなく本質的に狭いスペクトル線幅 (1 kHz 程度) が得られる。

これまでのところ，テラヘルツ領域では高温における利得係数の低下のため，その動作温度は 180 K 程度にとどまっている。一方，短波長側では，使用する材料系の伝導帯のバンドオフセットで発振波長が 3  $\mu\text{m}$  以上に制限されている。

図2に，規格化した注入電流 ( $I_0/I_{\text{th}}$ ) に対する (誘導放出を除く) 上位準位からの緩和レート (図では non-lasing rate と表示)，誘導放出，自然放出の各レートの計算結果の一例を示す。図中の  $\beta_{\text{eff}}$  は実効的な自然放出結合係数で，次のように定義されている<sup>3)</sup>。

$$\beta_{\text{eff}} = (\tau_l/\tau_r)\beta$$

上式で， $\tau_l$  は (誘導放出を除く) 上位準位からの緩和時間， $\tau_r$  は自然放出寿命， $\beta$  は自然放出結合係数 (中赤外の

場合， $10^{-3} \sim 10^{-4}$ ) である。 $\tau_r \sim 10 \text{ ns}$  に対して  $\tau_l \sim \text{ps}$  であるため，実効自然放出結合係数はきわめて小さな値となる，すなわち， $\beta_{\text{eff}} = 10^{-7} \sim 10^{-8}$ 。この小さな実効自然放出結合係数は量子カスケードレーザーの特徴的な発振特性を明確に描き出している。例えば図に示されるように，誘導放出レートが発振閾値付近で飛躍的に増大し，いったんレーザー発振が起これば，高速の非発光過程の存在にもかかわらず高い発光効率を確保しうることがわかる。また，レーザー発振モードに結合する自然放出レートは，誘導放出レートに比べて極度に小さい値にとどまるため，レーザー発振出力のスペクトル線幅は極度に狭くなる。(真性) スペクトル線幅は，Schawlow-Townes の式を書き直す形で， $\beta_{\text{eff}}$  を用いて定式化されている<sup>3)</sup>。

$$\delta f = (1/4\pi)(1+\alpha^2)[\beta_{\text{eff}} g/(I_0/I_{\text{th}}-1)]$$

ここで， $\gamma$  は光子の減衰レートで， $10^{11} \sim 10^{12} \text{ 1/s}$  程度の値をとる。また， $\alpha$  は線幅増大係数とよばれる量で，量子カスケードレーザーでは，サブバンドの曲率がバンドに依存しないため，ほぼゼロとみなしうる。同時に， $\beta_{\text{eff}}$  が非常に小さいため，結果として線幅がきわめて小さくなる ( $\delta f \sim 1 \text{ kHz}$ )。実際，4  $\mu\text{m}$  帯の量子カスケードレーザーで  $\sim 500 \text{ Hz}$  という狭い線幅が観測されている<sup>4)</sup>。いずれにしても，通常の半導体レーザーの線幅に比べて3桁も狭い線幅が高速の非発光過程の存在のお陰で得られることは，驚くべきことであると同時に，本質的なスペクトル線幅の狭さは，量子カスケードレーザーの分光分析用光源としての有用性を示している。

## 2. 活性領域の構造および素子特性

### 2.1 室温 CW 駆動量子カスケードレーザー

半導体レーザーを光源に用いたシステムでは，変調が容易で大きな平均出力が得られる CW 駆動は実用上非常に重要である。量子カスケードレーザーは一般に動作電圧が高く，活性領域での発熱が大きい。したがって，室温近傍での CW 駆動では，低閾値化が可能な活性領域の設計，および熱伝導効率に優れた素子構造が重要となる。図3に活性領域のバンド図を示す。InP 基板上に格子整合する InGaAs/InAlAs 量子井戸構造より構成されており，活性領域は通常 30~40 段程度のカスケード結合となっている。図中の level-3 がレーザー動作に寄与する上位準位，level-2 が下位準位に対応する。結晶成長は量産性を考慮して有機金属気相成長法 (MOCVD) で行っている。活性領域はフォノン共鳴-ミニバンド緩和 (single-phonon resonance continuum depopulation; SPC 緩和<sup>5)</sup>) とした。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

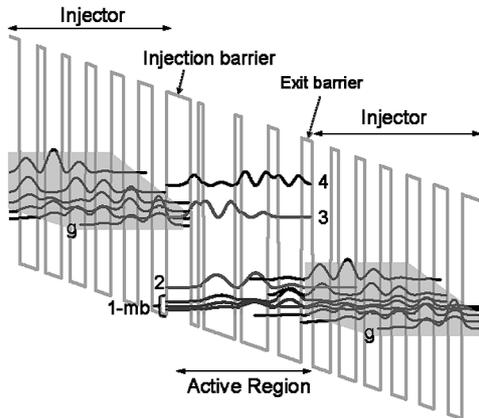


図3 シミュレーションにより計算されたフォノン共鳴-ミニバンド緩和 (SPC 緩和) 構造の量子カスケードレーザーのバンド構造.

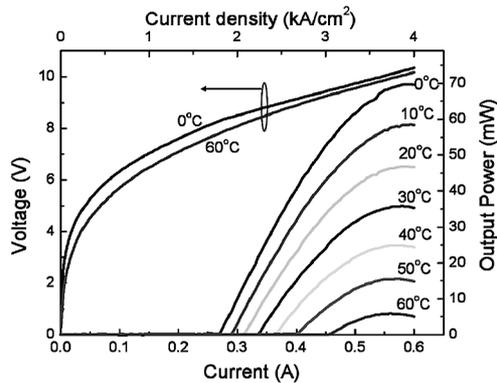


図4 SPC 緩和構造を用いた CW 駆動型量子カスケードレーザーの電流-電圧特性, および電流-光出力特性.

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した構造となっている. 非常に短い下位準位寿命 ( $<0.2$  ps) を実現し, か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特性が得られるという特徴がある. 素子はリッジストライプ構造を Fe ドープ半絶縁性 InP を用いた埋め込みヘテロ (buried hetero; BH) 構造とし, Cu ヒートシンクに epi-side down でマウントしている. 図4に SPC 緩和構造の CW 駆動における電流-電圧特性および電流-光出力特性を示す.  $30^{\circ}\text{C}$  における発振波長は  $7.9\ \mu\text{m}$ , 発振閾値電流密度  $2.2\ \text{kA}/\text{cm}^2$ , 平均光出力  $36\ \text{mW}$ , 最高動作温度  $65^{\circ}\text{C}$  が得られており, SPC 緩和構造において良好な CW 駆動を実現している.

## 2.2 縦シングルモード化: 分布帰還型量子カスケードレーザー

通常のファブリー・ペロー型素子では, 発振スペクトル

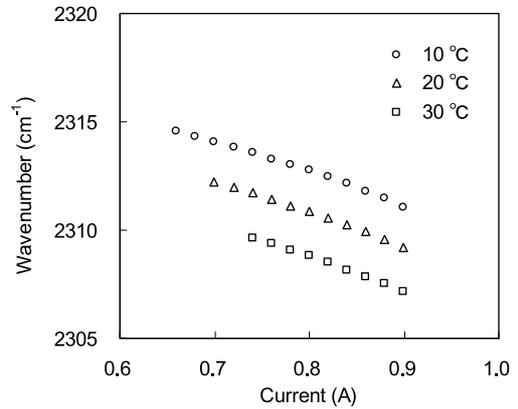


図5  $\text{CO}_2$  分析用に開発した発振波長  $4.3\ \mu\text{m}$  の CW 駆動 DFB 型量子カスケードレーザーの発振波長と, 素子温度および駆動電流の依存性.

は共振器軸モードに起因したマルチモードスペクトルとなっている. 一般に, 高精度な分光分析用光源としては, 縦シングルモードでの発振が求められる. シングルモード化には, 通信波長帯などの LD と同様に, 回折格子を素子中に組み込んだ分布帰還型構造 (distributed feed back; DFB)<sup>6)</sup> が用いられる. 発振波長が通信波長帯に比べて長波長であり, 比較的容易に一次の回折を利用でき, サイドモード抑圧比は  $30\ \text{dB}$  以上が得られている. シングルモード DFB 型量子カスケードレーザーの波長可変性は実効屈折率の微小な温度分散により実現され, 素子温度が高くなるにつれて発振波長はシングルモードを維持したまま長波長側にシフトする. 素子温度を連続的に変化させることで, 連続的な波長挿引が可能である. 図5に,  $\text{CO}_2$  分析用に開発した波長  $4.3\ \mu\text{m}$  帯の CW 駆動 DFB 型量子カスケードレーザーの発振波長と, 素子温度および駆動電流の依存性を示す. レーザーチップがマウントされているヒートシンクの温度を TEC により制御することで, 発振波長をチューニングすることが可能となっている. また, 発振波長は駆動電流にも依存性がある. これは駆動電流により発生する素子の自己発熱 (ジュール熱) に起因している. TEC で制御しているヒートシンク温度は一定であっても, 駆動電流を変化させることでレーザーチップの温度は局所的に変化する. この駆動電流による波長可変性を利用して, 駆動電流に鋸歯状波バイアスを重畳するなどして周期的かつ連続的な波長挿引が可能である.

## 2.3 長波長帯 ( $12\ \mu\text{m}$ 以上) 量子カスケードレーザー

波長  $12\ \mu\text{m}$  以上の長波長帯では, 上位準位と下位準位のエネルギー間隔が  $100\ \text{meV}$  以下となり, 上位準位寿命が急激に短くなるために, レーザー発振に必要な反転分布の形成が困難となる. また, 自由キャリア吸収による内部損失も大きく, 本質的に閾値電流密度が高く, 室温付近で

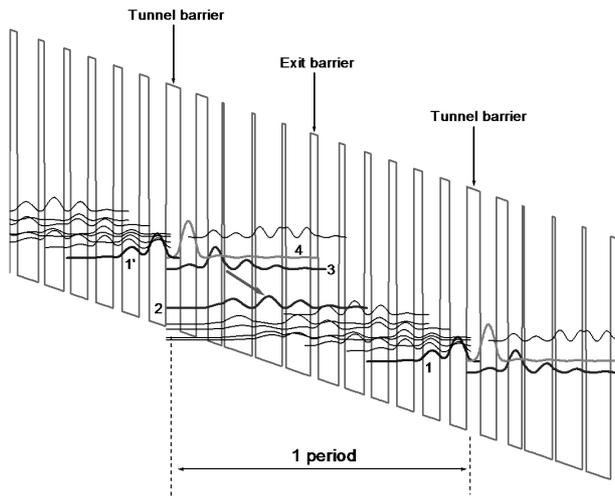


図6 シミュレーションにより計算された間接注入励起 (IDP) 構造のバンド構造。

の駆動は容易ではない。そこで、上位準位にキャリアを効率的に注入する新たな構造を提案し、実証した。従来構造では、電子注入層のキャリアは共鳴トンネル効果により発光層の上位準位に直接的に注入されていた。このように電子注入層の基底準位と発光層の上位準位が直接結合した状態では、常に上位準位から電子注入層への逆向きのキャリアの流れが存在する。そのため、発光層に最大注入できるキャリア数は電子注入層に配置されたキャリアの2分の1となり、これがレーザー動作時の最大電流を制限する要因となっている。そこで間接注入励起 (indirect pump scheme; IDP) 構造<sup>7)</sup>を提案した。バンド構造を図6に示す。電子注入層の基底準位1'からキャリアは共鳴トンネル効果により発光層の上位準位よりもLOフォノンのエネルギー(約34 meV)だけ高エネルギー側に設けられた励起準位4に注入され、そこからLOフォノン散乱を介して高速に上位準位3に注入される。このような構造では励起準位4のキャリアは常に電子注入層に戻るよりも速く上位準位3に緩和するため、理想的には電子注入層に配置されたキャリアの大部分を発光層に注入可能である。また、電子注入層のキャリアのクエンチング効果により、自由キャリア吸収による内部損失を大幅に低減することができる。上位準位寿命を延ばし効率的な反転分布を形成する工夫としては、上位準位3と下位準位2を空間的に分離し、発光遷移を対角遷移となるようにした。長波長領域では、遷移の双極子モーメントを犠牲にしても上位準位寿命を延ばすほうがレーザー素子特性の向上には有効である。図7に発振波長15 μm帯のパルス駆動(100 ns/100 kHz)における素子特性を示す。300Kにおける閾値電流密度3.5 kA/cm<sup>2</sup>、最高動作温度390K、閾値電流の温

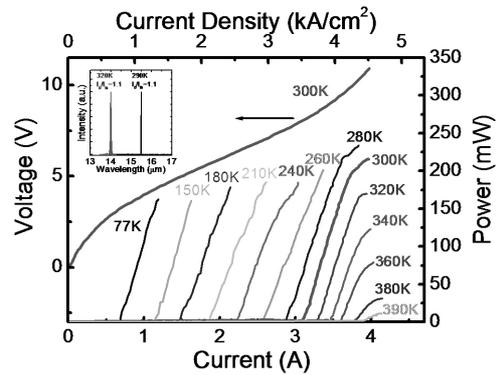


図7 IDP構造を用いた波長15 μm帯のパルス駆動量子カスケードレーザーの電流-電圧特性、および電流-ピーク光出力特性。

度依存性を示す特性温度 $T_0$ は450Kを記録した。きわめて温度安定性の高い特性は、電子注入層のキャリアのクエンチング効果による内部損失の低減に起因していると考えられる。

### 3. 量子カスケードレーザーの計測応用

#### 3.1 量子カスケードレーザーと分光応用

量子カスケードレーザーの主たる応用分野は、超精密なガス計測や分子分光計測である。温室効果ガスとして知られる二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)やメタン(CH<sub>4</sub>)、亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O)などの基本振動に由来した強い吸収線が中赤外領域に存在するため、その吸収を計測することでppbレベルの極微量濃度のガス計測が可能である<sup>8)</sup>。すでに温室効果ガスや自動車排ガスのリアルタイム計測などへの応用が始まっている<sup>9,10)</sup>。量子カスケードレーザーを光源とする最大の優位点は、きわめてすぐれた波長分解能により、孤立した1本の吸収線からの吸収強度を計測できることである。実ガスの計測においては、水分などの干渉ガスが存在する雰囲気中であっても、対象とするガスからの吸収線を選択的にとらえることができる。そのため、サンプルガスの脱湿や吸着などの前処理が不要となり、in-situでin-lineなガス計測が実現できる。

中赤外領域の半導体レーザーを用いた吸収分光の歴史は古く、液体窒素冷却の鉛化合物半導体レーザーを用いた研究は1960年代に開始されている<sup>11)</sup>。半導体レーザーを光源とした精密な分光手法として期待されていたが、液体窒素冷却が障害となり、商用化で先行した近赤外半導体レーザーを光源とした分光手法に遅れをとっていた。現在はペルチェ冷却で動作可能な量子カスケードレーザーが出現したことで状況が一変し、デバイス研究のみならず、さまざまな計測手法などが提案されるに至っている。メタンおよ

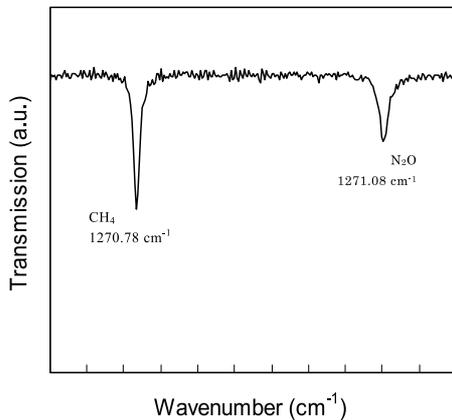


図8 波長 7.87  $\mu\text{m}$  の CW 駆動 DFB 型量子カスケードレーザーを用いて計測した大気中の亜酸化窒素とメタンの吸収スペクトル。

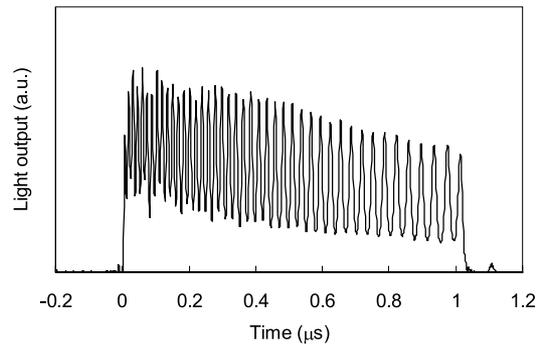


図9 連続的な波長チャーピングを有するパルス駆動 DFB 型量子カスケードレーザーのファブリー・ペロー・エタロン透過後の光出力の時間波形。

び亜酸化窒素の測定例は、DFB 型量子カスケードレーザーの実現直後に実証されている<sup>12)</sup>。11 ns の短パルス駆動を行うことで波長チャーピングによるレーザー線幅のブロードニングを抑え、鋸状歯バイアスすることで波長掃引を実現させた。その後、量子カスケードレーザーを用いた計測例は、F. Tittle らのグループにより精力的になされ、数多くの実証例が報告されている<sup>13)</sup>。量子カスケードレーザーを光源としたガス分析装置は、すでに海外を中心に商用化がなされており、ガス分析用途の量子カスケードレーザーはデバイス研究の域を脱し実用化のレベルにある。

### 3.2 温室効果ガスの微量検出

図8に、発振波長 7.87  $\mu\text{m}$  の CW 駆動型 DFB 量子カスケードレーザーを用いた、大気中の亜酸化窒素 ( $\text{N}_2\text{O}$ ) とメタン ( $\text{CH}_4$ ) の吸収分光実験結果を示す。亜酸化窒素とメタンは温室効果ガスとして知られており、大気中の濃度はそれぞれ約 320 ppb、約 1.8 ppm であることが報告されている<sup>14)</sup>。実験は、レーザー駆動電流に鋸状歯バイアスを重畳することで  $0.5 \text{ cm}^{-1}$  (3 nm) の周期的な波長掃引を行い、ガスセル透過後の光出力を MCT 検出器で測定した。測定サンプルである大気は、光路長 100 m の多重反射型セルに導入し、圧力を 1 Pa まで減圧したものを使用した。わずか 3 nm の波長掃引幅の中に、孤立した亜酸化窒素とメタンの近接した吸収線が独立に観察されており、1 回の波長掃引で 2 種類の気成分が同時に検出できている。それぞれの吸収線のアサインは HITRAN データベースを参照して行った。このように、量子カスケードレーザー、赤外検出器、ガスセルといった単純な機器構成で、サブ ppm 程度のガス検出は容易に行うことができる。

### 3.3 チャープパルスを利用した高速波長掃引

量子カスケードレーザーを利用した吸収分光の大きな利

点のひとつに、リアルタイム性があげられる。特にパルス駆動の量子カスケードレーザーを用いる場合、1 パルス内で生じる波長チャーピングを積極的に利用した超高速な波長掃引が可能であり、これを利用してきわめて高い時間分解能で実時間計測が可能である。この手法の優位点は、対象となるガスを透過させた後の光出力の時間波形をオシロスコープ上で観測することで、吸収スペクトルが簡便に取得できる点にある<sup>15)</sup>。この波長チャーピングは、1 発の駆動電流パルス内で誘起されるジュール熱によるレーザー素子の温度変化によってもたらされている。両面光学研磨したゲルマニウムをファブリー・ペロー・エタロンとして用い、波長 7.8  $\mu\text{m}$  のパルス駆動型 DFB 量子カスケードレーザーの 1 パルス内で生じている波長チャーピングの評価を、エタロンフリッジの観察により行った。図9にエタロン透過後の光出力の時間波形を示す。駆動パルスの前縁から後縁に向かって連続的なエタロンフリッジが観察され、1 パルス内で時間経過とともに発振波長が連続的に掃引されていることが確認できる。図9において、エタロンフリッジの間隔は一定ではなく、波長チャーピングは時間に対して線形でないことがわかる。エタロンの共振周波数間隔 (free spectral range;  $\text{FSR}=0.096 \text{ cm}^{-1}$ ) から、パルス印加を開始した時刻をゼロとしたときの時刻と発振波長の関係を図10に示す。パルス前縁における発振波長の絶対周波数は、別途の FTIR を用いた評価により  $1272 \text{ cm}^{-1}$  とした。チャープレートは二次の累乗近似でよくフィッティングできている。チャープレートの非線形性は、1 発の駆動パルス印加に伴うジュール熱の蓄積過程を反映しているものと解釈できる。このように 1 パルス内での波長チャーピングを利用すれば、1  $\mu\text{s}$  の時間窓で  $4 \text{ cm}^{-1}$  (20 nm) 程度の高速波長掃引が可能である。パルス駆動カスケードレーザーの繰り返し周波数は数百 kHz から数 MHz まで可能である

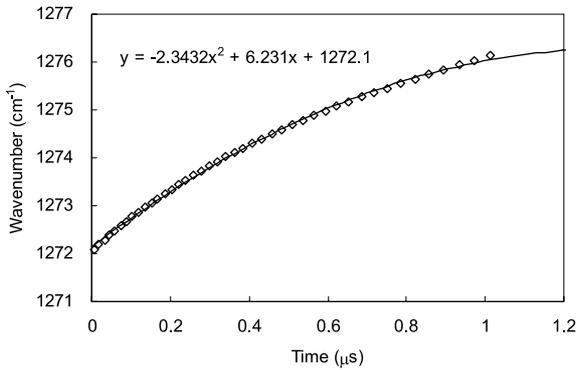


図10 ファブリー・ペロー・エタロンを用いたパルス駆動DFB型量子カスケードレーザーのチャーププレート.

ため、S/N向上のための積算回数を考慮しても、きわめて高い時間分解能でガスの実時間計測が可能である。

量子カスケードレーザーの動作原理から計測応用までを概説した。生来的な特徴はサブバンド間遷移にあるものの、p-n接合型の半導体レーザーダイオードを凌駕し得る点は、量子力学に基づいた「バンドエンジニアリング」により、超格子半導体中のキャリアのトランスポートや遷移確率、緩和寿命などの設計の自由度が与えられる点にある。発振スペクトル線幅や高速変調性、広帯域発振において、p-n接合型の半導体レーザーダイオードを凌駕することが予見され、実証されはじめている。フォトニック結晶やプラズモニクスを利用した研究も行われており、今後ますます研究の裾野は拡大するものと期待している。

## 文 献

- 1) J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. Hutchinson and A. Y. Cho: "Quantum cascade laser," *Science*, **264** (1994) 553-556.
- 2) B. S. Williams, S. Kumar, H. Callebant, Q. Hu and J. N. Reno: "Terahertz quantum-cascade laser at  $\lambda \approx 100 \mu\text{m}$  using metal waveguide for mode confinement," *Appl. Phys. Lett.*, **83** (2003) 2124-2126.
- 3) M. Yamanishi, T. Edamura, K. Fujita, N. Akikusa and H. Kan:

"Theory of the intrinsic linewidth of quantum cascade lasers: Hidden reason for the narrow linewidth and line-broadening by thermal photons," *IEEE J. Quantum Electron.*, **44** (2008) 12-29.

- 4) S. Bartalini, S. Borri, P. Cancio, A. Castrillo, I. Galli, G. Giusfredi, D. Mazzotti, L. Gianfrani and P. De Natali: "Observing the intrinsic linewidth of quantum cascade laser: Beyond the Schawlow-Townes limit," *Phys. Rev. Lett.*, **104** (2010) 083904.
- 5) K. Fujita, S. Furuta, A. Sugiyama, T. Ochiai, T. Edamura, N. Akikusa, M. Yamanishi and H. Kan: "High-performance, homogenous broad-gain quantum cascade lasers based on dual-upper-state design," *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 141121.
- 6) C. Gmachl, A. Straub, R. Colombelli, F. Capasso, D. L. Sivco, A. M. Sergent and A. Y. Cho: "Single-mode tunable distributed feedback and multiple wavelength quantum cascade lasers," *IEEE J. Quantum Electron.*, **38** (2002) 569-581.
- 7) M. Yamanishi, K. Fujita, T. Edamura and H. Kan: "Indirect pump scheme for quantum cascade lasers: Dynamics of electron-transport and very high T0-values," *Opt. Express*, **16** (2010) 20748-20758.
- 8) A. A. Kosterev and F. K. Tittle: "Chemical sensors based on quantum cascade lasers," *IEEE J. Quantum Electron.*, **38** (2002) 582-591.
- 9) J. B. McManus, J. H. Shorter, D. D. Nelson, M. S. Zahniser, D. E. Glenn and R. M. McGovern: "Pulsed quantum cascade laser instrument with compact design for rapid, high sensitivity measurements of trace gases in air," *Appl. Phys. B*, **92** (2008) 387-392.
- 10) H. Sumizawa, H. Yamada and K. Tonokura: "Real-time monitoring of nitric oxide in diesel exhaust gas by mid-infrared cavity ring-down spectroscopy," *Appl. Phys. B*, **100** (2010) 925-931.
- 11) J. O. Dimmock, I. Melngailis and A. J. Strauss: "Band structure nad laser action in  $\text{Pb}_x\text{Sn}_{1-x}\text{Te}$ ," *Phys. Rev. Lett.*, **16** (1996) 1193-1196.
- 12) K. Namjou, S. Cai, E. A. Whittaker, J. Faist, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco and A. Y. Cho: "Sensitive absorption spectroscopy with room-temperature distributed-feedback quantum-cascade laser," *Opt. Lett.*, **23** (1998) 219-221.
- 13) F. K. Tittle, Y. Bakhirkin, A. A. Kosterev and G. Wysocki: "Recent advances in trace gas detection using quantum and interband cascade lasers," *Rev. Laser Eng.*, **34** (2006) 275-282.
- 14) World Meteorological Organization: *WMO Greenhouse Gas Bulletin*, **5** (2009).
- 15) 枝村忠孝, 秋草直大, 杉山厚志, 落合隆英, 藤田和上, 山西正道, 菅 博文: "DFB量子カスケードレーザーとその分光応用", *レーザー研究*, **36** (2008) 75-79.

(2010年10月25日受理)