# 科学研究費助成事業 研究成果報告書



 令和 5年 6月16日現在

 機関番号: 33919

 研究種目:基盤研究(B)(一般)

 研究期間: 2019~2022

 課題番号: 19H02176

 研究課題名(和文)蛍光パイオイメージング用小型光源をめざした超短パルス半導体レーザの要素技術開発

 研究課題名(英文)Study on ultrashort pulsed semiconductor laser diodes for fluorescent bio-imaging

 研究代表者

 宮嶋 孝夫(Miyajima, Takao)

 名城大学・理工学部・教授

 研究者番号: 50734836

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,300,000 円

研究成果の概要(和文):臨床現場で利用可能な蛍光バイオイメージング用超短パルス半導体レーザの実現に向けて、構造設計、作製及び発生する光パルスの特性評価を行った。分子線エピタキシー法でGaAs系半導体レーザを作製し、電流注入によるレーザ発振(波長:828 nm)を確認する一方で、有機金属気相成長法による成長を外部研究機関に依頼し、再現性のある3インチ径ウェハーを使ってプロセス検討を行うことを可能にした。オーミック電極の改良や無反射コートの成膜は可能になったが、安定したリッジ形成に問題が発生し、電流注入による光パルスの発生には課題を残した。一方で、ビーム品質を低減させることなくピークパワーを増強する手法を提案した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究で実用化を目指している蛍光バイオイメージング用超短パルスレーザは、その基本材料としてGaAs系半導 体を利用している。これを利用した半導体レーザはコンパクトディスクプレーヤーの光源として、1980年代には 実用化されている。したがって、その成長や作製プロセスは既に確立されており、2000年以降に実用化された GaN系半導体レーザに比べれば平易である。しかしながら、実用化されたGaAs系半導体レーザの研究や製造は急 速に減少している。本研究では、これらの技術を継承して有効利用しつつ、日本が直面している少子高齢化にお ける健康寿命を延ばすことに貢献できると考える。

研究成果の概要(英文): Toward the realization of ultrashort-pulsed semiconductor laser diodes for fluorescence bio-imaging that can be used in clinical sites, we performed structural design, fabrication, and characterization of the generated optical pulses. GaAs-based semiconductor laser diodes were fabricated by molecular beam epitaxy, and the laser oscillation with a wavelength of 828 nm was confirmed by current injection. Moreover, it made it possible to examine the process using 3-inch diameter wafers grown by metal-organic chemical vapor deposition. Although it became possible to improve the ohmic electrodes and form a anti-reflective coating, there were problems with stable ridge formation, and problems remained with the generation of light pulses by current injection. On the other hand, we proposed a method to increase the peak power without reducing the beam quality.

研究分野:半導体レーザ

キーワード: 超短パルス GaAs系半導体 無反射コート バイセクション構造

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

#### 1.研究開始当初の背景

1981 年以来、日本人の死因の第一位を占めているがんに対して、有効な治療法の確立と、その根絶につながる本態解明が求められている。そのための強力な手法の1つが、"2光子顕微鏡を使った蛍光バイオイメージング"である。この手法では、蛍光タンパク質[1]を使ってがん細胞自体を特異的に標識した後、その2光子蛍光を検出することで、生体深部におけるがん細胞を「生きたまま」高い空間分解能で可視化し、浸潤・転移におけるがん細胞の動態を観察可能である[2]。このような特徴から、がん切除手術前に行う検査手法としても期待されている。ところが、その光源には、高価なチタン・サファイアレーザ等が使われ、その有用性が分かりながらも臨床現場での普及は難しく、利用可能な研究機関も限られている。そこで、メンテフリーで安価な小型半導体パルス光源の開発が期待され、超短パルス半導体レーザを用いた蛍光バイオイメージング[3]が報告されているが、実用化のためには更なる高ピークパワー化が必要である。

一方、近年、2 光子吸収を使った3次元多層光記録の光源として、モード同期レーザと半導体増幅器を組合せた GaN 系超短パルス半導体レーザが開発され、そのピークパワーは300W に達し[4]、これを光源とした2光子吸収による光記録が報告された[5]。更に、分散補償とチャープパルス増幅を使って9kWもの高ピークパワーが実現している[6]。しかしながら、ここで実現している発振波長は405 nm 程度であるため、その光は生体深部には到達できず、バイオイメージング用光源としては不向きである。

そこで、本研究では、750-870 nm の波長領域での発振が可能な GaAs 系超短パルスレーザ を作製し、GaN 系超短パルス半導体レーザで実証された高ピークパワー化の技術を利用するこ とで、バイオイメージング用光源の要素技術開発を行った。

#### 2.研究の目的

GaN 系超短パルス半導体レーザにおいて開発した光パルス発生技術と、GaAs 系半導体レー ザの作製技術を融合させ、発振波長 800nm 程度の GaAs 系超短パルス半導体レーザの要素技 術を開発する。これにより、臨床現場でも利用可能な、世界初蛍光バイオイメージング装置の 実現を目指す。

#### 3.研究の方法

本研究では、GaN 系超パルス半導体レーザの高 ピークパワー化を実現したモード同期レーザと半 導体増幅器を GaAs 系半導体で作製し、両者を組 み合わせることで超短パルスを発生させることを 目指した。そのために、まずは、単純なリッジ形 状の屈折率導波型 GaAs 系半導体レーザの試作と 性能確認を行った上で、モード同期レーザの基本 構造となるバイセクション構造を導入した GaAs 系半導体レーザと GaAs 系半導体増幅器の設計と 作製を試みた。



図 1:GaAs 基板上に成長したレーザ構造

GaAs 系半導体レーザの基本的な縦構造とリッジストライプ形状は、以下の2つのシミュレータを使って設計を行った。1つは STR 社が開発した1次元シミュレータ SiLENSe[7,8]であり、 もう1つは Math Work 社が開発した科学技術計算用汎用ソフト MATLAB 上で動作する有限差 分法を利用した2次元光導波路解析ソフト Waveguide Mode Solver [9]を使用した。

図1に、ここで用いたGaAs系半導体レーザの基本的な縦構造を示した。基板としては、(100) 方位のn型GaAs:Siを用いた。基板の電子濃度はn=1×10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup>、厚さは350 µm であった。成長 法としては、はじめに分子線エピタキシー法を使い、その後に有機金属気相成長法を使用した。 分子線エピタキシー法による成長は、(株)日本真空技術製 MBC-300 において、Al、Ga、As、 Si、Beの金属原料の分子線をKnudsen-Cell(K-Cell)により発生させ成長を行った。このとき 用いたn型GaAs:Si基板の大きさは、成長装置の基板ホルダーに合わせて、15 mm×15 mmと した。そのために、1 回の成長で作製した試料を使って、プロセス検討や、異なった条件のデ バイスを作製しそのデバイス特性を比較することが難しい。そこで、上述のように分子線エピ タキシー法で成長を行いつつ、外部研究機関で、有機金属気相成長法を用いた成長をお願いす ることとした。その結果、3 インチ径の n 型 GaAs:Si 基板上に、図 1 に示した構造を 1 度に複 数枚成長することが可能になった。

成長した試料をデバイス化するプロセス工程では、ドライエッチングを使わずに、化学エッ チングを使用し、リッジストライプ形状の屈折率導波路型レーザの作製を行った。絶縁体膜と してスパッタ法で成膜した SiO<sub>2</sub>、n型オーミック電極として AuGe/Ni/Au[10-12]、p型オーミッ ク電極として Ti/Pt/Au[13]を用いた。オーミック電極における、それぞれの膜厚及びアニール条 件の最適化は、円形 TLM (Transmission Line Method)法[11, 12]によるコンタクト比抵抗を求め ることで行った。

モード同期レーザと半導体増幅器の実現とその高性能化のためには、誘電体多層膜を使った レーザ端面の反射率制御と無反射コートを形成する技術が必要である。そのために、誘電体層 として SiO<sub>2</sub>、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、ZrO<sub>2</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>薄膜を芝浦メカトロニクス社の多元スパッタ装置 i-Miller を 用いて、Si 基板上にそれぞれ成長し、その膜厚、屈折率及び消衰係数を Sopra 社製回転検光子 型の分光エリプソメトリーES-4G で解析・評価した。その後、GaAs 基板上に誘電体多層膜であ る Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub>やTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub>等を製膜し、その反射率を日立製分光光度計 UH4150 で測定し、 最適化を行った。

4.研究成果

(1)シミュレータを使った GaAs 系半導体レーザの特性計算

図 1 に示した縦構造を有するレーザの特性を、1 次元シミュレータ SiLENSe を用いて計算したところ、図 2 のような結果が得られた。ここでは、キャリア濃度を、*p*+-GaAs 層において *p*=3×10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>、*p*-Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As において *p*=3×10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup>、*n*-Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As において *n*=3×10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup> とし、 共振器長を 600 µm とした。



図 2(a):屈折率分布と TE モードの光強度分布 図 2(b):電流-電圧(IV)及び電流-光出力(IL)特性

図 2(a)に示したように TE モードの光分布は活性層を中心に分布し、垂直横モードが単一で あることが確認された。ここで得られた光閉じ込め係数は 5.0 %であった。また、図 2(b)に示し たような電流-電圧(IV)及び電流-光出力(IL)特性が得られ、しきい値電流は 7.9 mA、微分抵抗は 7.8 Ω であった。また、この時の発振波長は 816.2 nm と計算された。

(2) GaAs 系半導体レーザの作製と特性評価 [16, 17]

図 3 に、分子線エピタキシー法で成長した GaAs 系半導体レーザを室温パルス駆動させたと きの特性を示した。印加した電気パルスは、パルス幅 5.0 µs で Duty 比 0.5%、繰返し周波数 1 kHz。 共振器長は 600 µm であった。



図 3(a)に示した IL 特性より、しきい値電流 *I*th=445 mA、しきい値電流密度 *J*th=37.1 kA/cm<sup>2</sup> が 得られた。また、図 3(b)の光スペクトルより、波長 828 nm 程度でレーザ発振が起きていること が分かる。プロセス後のデバイスを光学顕微鏡で観察すると p 型オーミック電極が剥離してい ることから、しきい値電流密度が高い原因は結晶成長よりも p 型オーミック電極の形成にある と考え、プロセス工程の見直しと改善を行った。

n型オーミック電極に関しては、n型 GaAs:Si (電子濃度  $n=1\times10^{18}$  cm<sup>-3</sup>)に対して、エッチン グにより表面酸化膜を除去後、AuGe(重量比 Au:88%,Ge:12%、厚さ 160 nm)/Ni(厚さ 50 nm) /Au (厚さ 200 nm)を電子ビーム蒸着後、窒素ガス雰囲気中で 420°C 1 分間のアニールを行う ことで、コンタクト比抵抗  $\rho_c=2.24\times10^{-4} \Omega \text{cm}^2$ 、シート抵抗  $r_s=38.5 \Omega/\text{sq}$  が得られた。また、p型 オーミック電極に関しては、有機金属気相成長法により成長した GaAs 基板上の Undoped-GaAs (厚さ 50 nm)/p型 GaAs:C(正孔濃度  $p=2\times10^{18}$  cm<sup>-3</sup>)に対して、エッチングにより表面酸化 腹を除去後、Ti(厚さ 10 nm)/Au(厚さ 200 nm)を電子ビーム蒸着後、窒素ガス雰囲気中で 420°C 1 分間のアニールを行うことで、コンタクト比抵抗  $\rho_c=2.83\times10^{-5} \Omega \text{cm}^2$ 、シート抵抗  $r_s=329$  $\Omega/\text{sq}$  が得られた。また、リッジ部分の SiO2 絶縁膜を除去する工程を見直し、エッチング液を HF(50%):H2O=1:10 から、NH4F と HF との混合液であるバッファードフッ酸(BHF、濃度 1%)に変更して、エッチング速度を落としつつ、エッチング時間を5分間とした。これにより、 SiO2 絶縁膜のエッチング除去工程が制御され、その後に蒸着される p型オーミック電極である Ti/Au の剥離も抑制することができるようになり、上述の問題は解決された。

これらの改善されたプロセス条件を用いて、有機金属 気相成長法で図1のレーザ構造を成長した試料を使って デバイス作製を行ったところ、図3のような逆メサ形状 のリッジが形成された。この形状は、リッジを形成する 結晶方位を90°回しても変化はなかった。以前、GaAs単 層や分子線エピタキシー法で成長したレーザ構造の試料 では、理想的なメサ形状のリッジが形成されていた。図 4 に示した断面形状のまま、上部に p型オーミック電極 を形成するとリッジの側壁で電極が断線してしまう可能性 が高い。この問題解決は、安定した性能のデバイスを作製 するためには必要であり、現在、改善を行っている。

 (3)超短パルス発生用バイセクション構造の試作[17] モード同期による光パルスの発生には、通常のp型オー ミック電極の一部を電気的に分離した領域を形成したバイ セクション構造を導入し、可飽和吸収を起こさせる必要が ある[18]。そこで、図5のような、バイセクション構造を有 するGaAs系半導体レーザを作製して、2つのp型電極であ る利得領域と可飽和領域の間の電気抵抗を測定したところ、 R 20 kΩと十分に電気的分離していることが確認できた。 この構造を使って、光パルスの発生を目指す。

(4)誘電体多層膜を使った端面反射率制御と無反射コート

GaAs 基板上に誘電体 2 層膜である Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (厚さ 37.1 nm)/SiO<sub>2</sub>(厚さ 48.7 nm)を成膜 し、反射率を測定したところ、810 nm の波長 において 4.3×10<sup>-2</sup>の反射率が得られ、モード 同期レーザの無反射コート膜として利用で きることが確認できた。また、より安定した 特性が期待される Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>(厚さ 51.4 nm)/SiO<sub>2</sub> (厚さ 46.8 nm)からは、825 nm の波長にお いて 2.7×10<sup>-3</sup>の反射率が得られた。また、リ ッジ型傾斜導波路を導入し、端面を 2-3°傾斜 させることで、図 6 に示されるように、反射 率は 10<sup>-8</sup>程度まで低減可能であることをシミ レーションにより示すことができた。ただし、



図 4: リッジの断面 SEM 像



図5:バイセクション構造



図 6: 傾斜導波路における端面反射率

現在の装置では、安定した屈折率の誘電体を成膜することが難しく、分光エリプソメトリーに よる評価を適切に行うことが重要であることが分かった。 また、ここで開発した分光エリプソメトリーによる解析を、GaN 系面発光レーザに使われる AlGaInN の物性評価に適用し、そのデバイス特性向上へ寄与が期待されている[19]。

(5)利得スイッチング動作による短パルス発生とピークパワーの増強 [20] より高精細なバイオイメージングを行うためには、より高ピークパワーの超短パルス半導体レ ーザが期待される。しかしながら、一般に、その高ピークパワー化のために、注入電流密度を 上げる必要があるが、これにより出力されるレーザ光のビーム品質が低下してしまう。そのた めに、レーザ光をレンズで高密度に集光することが難しくなり、ピークパワーを上げる効果が 相殺されてしまう。そこで、図7のように、利得スイッチング動作により発生させた2つの光 パルスを、偏光ビームスプリッタで重ね合わせることで、低注入電流密度でもピークパワーの 増強ができるかを試みた。その結果、時間幅 100 ps の光パルスのピークパワーが 1.8 倍に増強 可能であることが分かった。同様な試みは、連続したレーザ光の高出力化のために行われてい るが、短パルスレーザではどこまで効果的を見極めたい。



#### < 引用文献 >

- [1] O. Shimomura, F.H. Johnson, and Y. Saiga, J. Cell. Comp. Physiol. 59, 223–239 (1962).
- [2] S. Koga, Y. Oshima, N. Honkura, T. Iimura, K. Kamada, K. Sato, M. Yoshida, Y. Yamamoto, Y. Watanabe, A. Hikita, T. Imamura et al., Cancer Sci. 105, 1299-1306 (2014).
- [3] M. Kuramoto, N. Kitajima, H Guo, Y. Furushima, M. Ikeda, and H. Yokoyama, Opt. Lett. 32, 2726-2728 (2007).
- [4] R. Koda, T. Oki, S. Kono, T. Miyajima, H. Watanabe, M. Kuramoto, M. Ikeda, and H. Yokoyama, Appl. Phys. Exp. 5, 022702 (2012).
- [5] S. Tashiro, Y. Takemoto, H. Yamatsu, T. Miura, G. Fujita, T. Iwamura, D. Ueda, H. Uchiyama, K. S. Yun, M. Kuramoto, T. Miyajima, M. Ikeda, and H. Yokoyama, Appl. Phys. Exp. 3, 102501 (2010).
- [6] S. Kono, R. Koda, H. Kawanishi, and H. Narui, Opt. Exp. 25, 14926-14934 (2017).
- [7] https://str-soft.com/devices/silense/
- [8] K. A. Bulashevich, V. F. Mymrin, S. Yu. Karpov, D. M. Demidov, and A. L. Ter-Martirosyan, Semicond. Sci. and Technol. 22, 502-510 (2007).
- [9] A. B. Fallahkhair, K. S. Li, and T. E. Murphy, J. Lightwave Technol. 26, 1423-1431 (2008).
- [10] G. Y. Robinson, Solid-State Electronics 18, 331-338 (1975).
- [11] M. Ogawa, J. Appl. Phys. 51, 406-412 (1980).
- [12] 小川正毅、応用物理 第 60 巻、171-172 (1991).
- [13] C. -Y. Su and C. Stolte, Electronics Letters 19, 891-892 (1983).
- [14] V. Ya. Niskov and G. A. Kubetskii, Soviet Physics Semiconductors 4, 1553-1554 (1971).
- [15] G. S. Marlow and M. B. Das, Solid-State Electronics 25, 91-94 (1982).
- [16] 宮嶋孝夫,荒川亮太,石川裕介,神林大介,森田悠斗,森本晃平,宇野光輝,下原光貴, 今井大地,成塚重弥、名城大学総合研究所紀要,第25号,pp.17-19 (2020).
- [17] 石川裕介,荒川亮太,神林大介,成塚重弥,今井大地,宮嶋孝夫、2019 年第88回応用物 理学会秋季学術講演会 講演予稿集, CD-ROM, 20p-E204-2,北大札幌キャンパス (2019).
- [18] T. Miyajima, H. Watanabe, M. Ikeda, and H. Yokoyama, App. Phys. Lett. 94, 161103 (2009).
- [19] H. Toyoda, Y. Murakami, R. Miyata, D. Imai, M. Miyoshi, T. Takeuchi, and T. Miyajima, Jap. J. Appl. Phys. **61**, SA1017 (2022).
- [20] 間渕勇多,太田翔也,鈴木晴道,今井大地,宮嶋 孝夫,2023 年第70回応用物理学会春季 学術講演会 講演予稿集,17p-B401-12,上智大学(2023).

#### 5.主な発表論文等

# 〔雑誌論文〕 計3件(うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)

1.著者名	4.巻
Imai Daichi、Murakami Yuto、Miyata Rino、Toyoda Hayata、Yamaji Tomoaki、Miyoshi Makoto、	59
Takeuchi Tetsuya, Miyajima Takao	
2.論文標題	5 . 発行年
Analysis of the optical constants and bandgap energy in Al <sub>1-x</sub> ln <sub>x</sub> N alloys	2020年
grown on a c-plane freestanding GaN substrate by using spectroscopic ellipsometry	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Japanese Journal of Applied Physics	121001 ~ 121001
掲載論文のD01(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.35848/1347-4065/abc29f	有
「オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

<ol> <li>著者名</li> <li>宮嶋孝夫、荒川亮太、石川裕介、神林大介、森田悠斗、森本晃平、宇野光輝、下原光貴、今井大地、成塚</li></ol>	4.巻
重弥	25
2.論文標題	5 . 発行年
分子線エピタキシー法により成長したGaAs系半導体レーザの室温パルス発振	2020年
3. 雑誌名	6 . 最初と最後の頁
名城大学総合研究所 紀要	17-19
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
なし	無
「オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

1.著者名	4.巻
Hayata Toyoda, Yuto Murakami, Rino Miyata, Daichi Imai, Makoto Miyoshi, Tetsuya Takeuchi and	61
Takao Miyajima	
2.論文標題	5 . 発行年
Near-bandgap optical properties of Al1 - xlnxN thin films grown on a c-plane freestanding GaN	2022年
substrate	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Japanese Journal of Applied Physics	SA1017-1~-3
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.35848/1347-4065/ac148a	無
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

# 〔学会発表〕 計4件(うち招待講演 0件/うち国際学会 1件)1.発表者名

間渕勇多、太田翔也、鈴木晴道、今井大地、宮嶋孝夫

2.発表標題

利得スイッチ駆動させた青紫色 GaN 系半導体レーザからの短パルス光の偏光多重とピークパワーの増強

3 . 学会等名

第70回応用物理学会春季学術講演会

4.発表年 2023年

#### 1.発表者名

Hayata Toyoda, Yuto Murakami, Rino Miyata, Daichi Imai, Makoto Miyoshi, Tetsuya Takeuchi and Takao Miyajima

#### 2.発表標題

Near-bandgap optical properties of Al1-xInxN thin films grown on a c-plane freestanding GaN substrate

## 3 . 学会等名

ISPIasma 2021(国際学会)

# 4.発表年

2021年

 1.発表者名 豊田隼大,村上裕人,宮田梨乃,今井大地,宮嶋孝夫,三好実人,竹内哲也

2.発表標題

分光エリプソメトリーを用いたAll-xInxN混晶の光学特性解析における誘電関数モデルの検討

3 . 学会等名

第68回応用物理学会春季学術講演会

4.発表年 2021年

## 1.発表者名

石川裕介、荒川亮太、神林大介、成塚重弥、今井大地、宮嶋孝夫

2.発表標題

分子線エピタキシー法で成長したGaAs系バイセクションレーザの設計と作製

3 . 学会等名

第80回応用物理学会秋季学術講演会 (2019 北海道大学 札幌キャンパス)

4.発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6.研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
	上山智	名城大学・理工学部・教授	
研究分担者	(Kamiyama Satoshi)		
	(10340291)	(33919)	

6	. 研究組織 ( つづき )		
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
	今井 大地	名城大学・理工学部・准教授	
研究分担者	(Imai Daichi)		
	(20739057)	(33919)	
	成塚 重弥	名城大学・理工学部・教授	
研究分担者	(Naritsuka Shigeya)		
	(80282680)	(33919)	

# 7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

# 8.本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------