

# 不均一ナノ結晶材料による超広帯域 1 ミクロン帯波長可変 レーザーの実現と生体イメージングへの応用

和歌山大学 システム工学部 尾崎信彦

Development of Broadband 1- $\mu$ m-band Tunable Laser using Inhomogeneous Nanocrystal  
Material for Bioimaging Applications

Nobuhiko Ozaki

Faculty of Systems Engineering, Wakayama University

サイズおよび組成が不均一な In (Ga) As ナノ結晶材料により、波長 1 ミクロン帯で広帯域な発光を示す新たな発光材料の開発を行った。この不均一ナノ結晶材料は、GaAs 基板上に格子不整合性を持つ In(Ga)As 薄膜をエピタキシャル成長する際に、膜厚、In 組成比、成長温度の最適な組み合わせによって発現する。薄膜の表面形状および In 組成の不均一化により、1 ミクロン帯において 100nm 近くの広帯域発光が高強度で発生する。In (Ga) As 薄膜成長条件の系統的評価により、この現象のメカニズムを検証し、その再現性を確保することができた。この発光材料により、様々な近赤外光応用技術への展開が期待でき、特に、生体断層イメージング技術である光コヒーレンストモグラフィーの高分解能および高画像深度に寄与する光源応用の可能性が示された。

In this study, In(Ga)As thin films epitaxially grown on GaAs were investigated for broadband light source applications with emissions at the 1- $\mu$ m waveband. By optimizing the growth conditions (film thickness, In composition ratio, and growth temperature), an In(Ga)As nanostructure ensemble with size and In composition distributions were grown. This inhomogeneous material emits a broadband spectrum with a bandwidth of  $\sim$ 100nm in the 1- $\mu$ m waveband. Systematic investigations of In(Ga)As thin films with various growth conditions revealed the mechanism of this phenomenon and ensured its reproducibility. The 1- $\mu$ m waveband broadband light from this material is particularly suitable for noninvasive cross-sectional biological imaging, that is, optical coherence tomography (OCT), because the light source contributes to obtaining large imaging depth and high-resolution OCT images.

## 1. はじめに

近赤外光は、光通信や医療イメージングなど様々な分野で応用されている。中でも波長約 0.7–1.3 $\mu$ m の領域は「生体の窓」と呼ばれ、生体の主な構成要素である水とヘモグロビンによる光吸収や、散乱強度が相対的に少なく、生体透過性が高いことから生体・医療イメージングに有用と考えられている<sup>1)</sup>。生体・医療イメージング技術の一つである光コヒーレンストモグラフィー(OCT)<sup>2)</sup>は、近赤外光を用いて生体組織の断面を非侵襲に観察する技術であり、特に眼科臨床の分野で多く用いられている。

OCTはマイケルソン干渉計を基本構成とし、広帯域(低コヒーレンス)な光源をプロ-

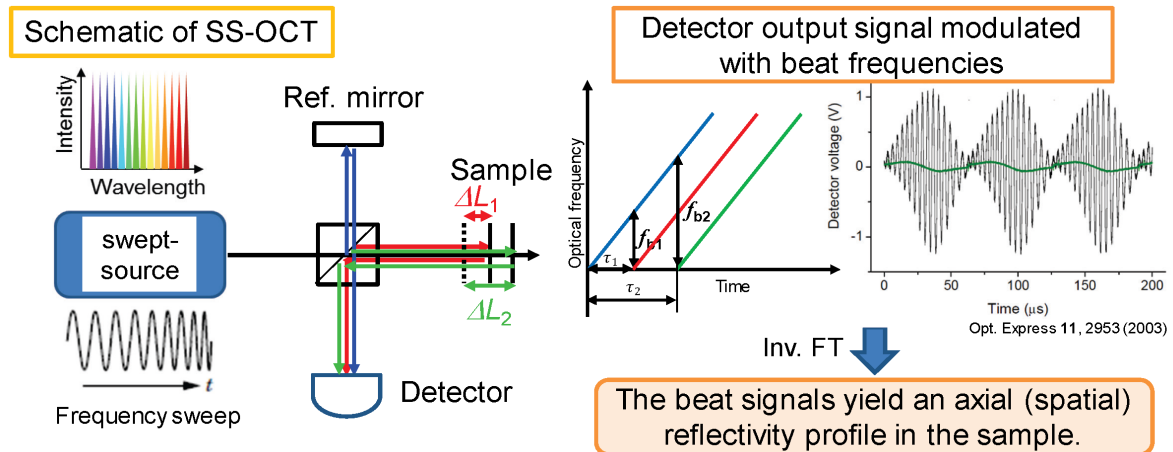


図1 SS-OCT構成模式図(左)とサンプル内反射層位置検出のイメージ図(右)

ブ光として用いることにより、観察対象物内部の反射率(屈折率)分布を表示することで断層像を得る。これまで様々な画像取得方式が開発されているが、現在主流となりつつある波長掃引型(Swept Source: SS)-OCT<sup>3)</sup>は、図1に示すように、光干渉計に波長可変光源を導入し、光源波長を時間に対して掃引しながら、サンプル側と参照ミラー側からの反射光同士による干渉強度を測定する。光源から一定の時間レートで波長(周波数)が変化する光が導入されるため、仮にサンプル内の光軸上に反射層が存在する場合、参照ミラーと反射層との光学距離差( $\Delta L$ )に応じた周波数差のビート( $f_b$ )が検出される。干渉強度の時間変調を逆フーリエ変換し、ビート周波数およびその強度を求めれば、対応する光軸上の反射層の位置と反射率の情報が得られる。さらに光軸を面内で走査し、反射率分布をグレースケールで表示すれば2次元もしくは3次元の断層画像を取得できる。

OCTの光軸方向分解能は光源の可干渉距離の半分となり、中心波長 $\lambda_0$ の光源の帯域幅 $\Delta\lambda$ が広いほど小さくなる(光源スペクトルがガウシアン形状の場合は $0.44 \times \lambda_0^2 / \Delta\lambda$ )<sup>4)</sup>。従って、中心波長を生体の窓領域に持ち、波長帯域の広い光源が、生体内で高到達深度、高分解能を得られる光源となる。特に、目など水を多く含む部位に対しては、水による光吸収が最小となる波長1ミクロン帯で広帯域な光源が有用となる。しかしながら、現在SS-OCTに一般的に用いられている波長可変レーザーは波長掃引幅に限界があり、光軸分解能が10~20 $\mu m$ 程度に留まっている。仮に単一細胞レベルの分解能(約5 $\mu m$ )を得るには、100nm程度の掃引幅が必要となるが、それだけの広帯域な利得幅を持った発光材料をいかにして実現するかが、SS-OCTの分解能と画像深さの両立にとっての課題となる。

そこで本研究では、この課題解決につながる新規発光材料として、In(Ga)Asベースの不均一半導体ナノ材料に着目した。この材料は、GaAs基板上に格子不整合性を持つIn(Ga)As薄膜をエピタキシャル成長する際に、膜厚、In組成比、成長温度の最適な組み合わせによって発現することを、以前我々の研究によって見出した材料である<sup>5)</sup>。薄膜の表面形状およびIn組成の不均一化により、1ミクロン帯において100nm近くの広帯域発光が発生する。しかしながら、この現象がどのようなメカニズムで発生し、再現性がどの程度あるのかといった基礎的な情報が乏しく、本研究では、その知見を得ることで、OCT光源としての応用の可能性を検証することを目指した。

## 2. 実験方法

サンプルは分子線エピタキシー法を用いて、n-GaAs (100) 基板上に作製した。図 2 に作製サンプルの断面模式図を示す。基板表面の酸化膜を除去するために超高真空 ( $\sim 10^{-8}$  Pa) にて基板温度  $600^{\circ}\text{C}$  で 3 分間加熱した後、基板温度を  $580^{\circ}\text{C}$  に下げて GaAs buffer 層を  $300\text{nm}$  積層させた。GaAs の成長速度は  $0.3\text{ML/s}$  とした。キャリアを閉じ込めるエネルギー障壁層として  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  を  $10\text{nm}$  積層した後、GaAs を  $30\text{nm}$  積層させてから成長中断して基板温度を設定後、InGaAs 薄膜を成長させた。InGaAs 薄膜の成長条件は、以前の我々の研究で  $1\text{ミクロン}$  帯において広帯域発光が得られた成長条件である In 組成比  $34\%$ 、膜厚  $6\text{nm}$ 、基板温度  $520^{\circ}\text{C}$  を基準値とし、その近傍の膜厚、成長基板温度にて系統的に変化させた。InGaAs 薄膜成長後、GaAs を  $30\text{nm}$  積層し、さらに  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$   $10\text{nm}$ 、GaAs  $20\text{nm}$  の順に積層して、構造評価のためにサンプル表面にも同じ成長条件の InGaAs 薄膜を積層した。

サンプル成長中の表面構造のその場観察を行うために反射高速電子線回折 (RHEED) 評価を用いた。また、作製したサンプルを大気中に取り出した後、表面構造を原子間力顕微鏡法 (AFM) により、また光学特性をフォトルミネッセンス (PL) 測定によりそれぞれ評価した。

## 3. 結果と考察

図 3 に、成長温度  $510\text{--}540^{\circ}\text{C}$  で InGaAs 薄膜を作製した各サンプルに対する RHEED および AFM 観察結果を示す。成長開始直後の RHEED 回折パターンは、表面の平坦性を反映してストリーク状であったが、InGaAs の膜厚が増加すると、蓄積された歪によって表面が三次元化し、RHEED パターンがストリーク状からスポット状に変化する (図中赤枠内) 傾向が見られたが、成長温度が低いほどその変化が顕著であり、成長温度が高くなると、表面形状が変化するのに、より大きな成長膜厚が必要であることがわかる。すなわち、成長温度によって臨界膜厚がより大きくなっていることを示している。また、作製したサンプルの AFM 画像からは、成長温度  $510^{\circ}\text{C}$  では三次元島状構造が高密度に分布しており、三次元構造への転移が起きていることが分かる。対照的に成長温度  $540^{\circ}\text{C}$  の AFM 画像は、表面が平坦構造 ( $\text{RMS}=0.12\text{nm}$ ) をもっており、これらは RHEED の観察結果と一致する。また、成長温度  $520$ 、 $530^{\circ}\text{C}$  では、三次元島状構造同士が結合し、特定方向に伸長した構造が観察された。

これらの結果から、基板温度に依存して形成される InGaAs 薄膜の表面構造に変化が生じることが示され、特に格子歪による臨界膜厚近傍では成長温度変化による構造変化が顕著に現れることが分かった。その理由として、In の熱拡散および再蒸発によって、島状構造同士の結合が生じ、また同時に In 組成比が局所的に変化することが挙げられる。

次に、各サンプルから得られた PL スペクトルを図 4 に示す。基板温度  $540^{\circ}\text{C}$  で成長した InGaAs 薄膜の PL スペクトルは、狭帯域かつピーク波長が約  $900\text{nm}$  と比較的短波長の



図 2 サンプル断面模式図

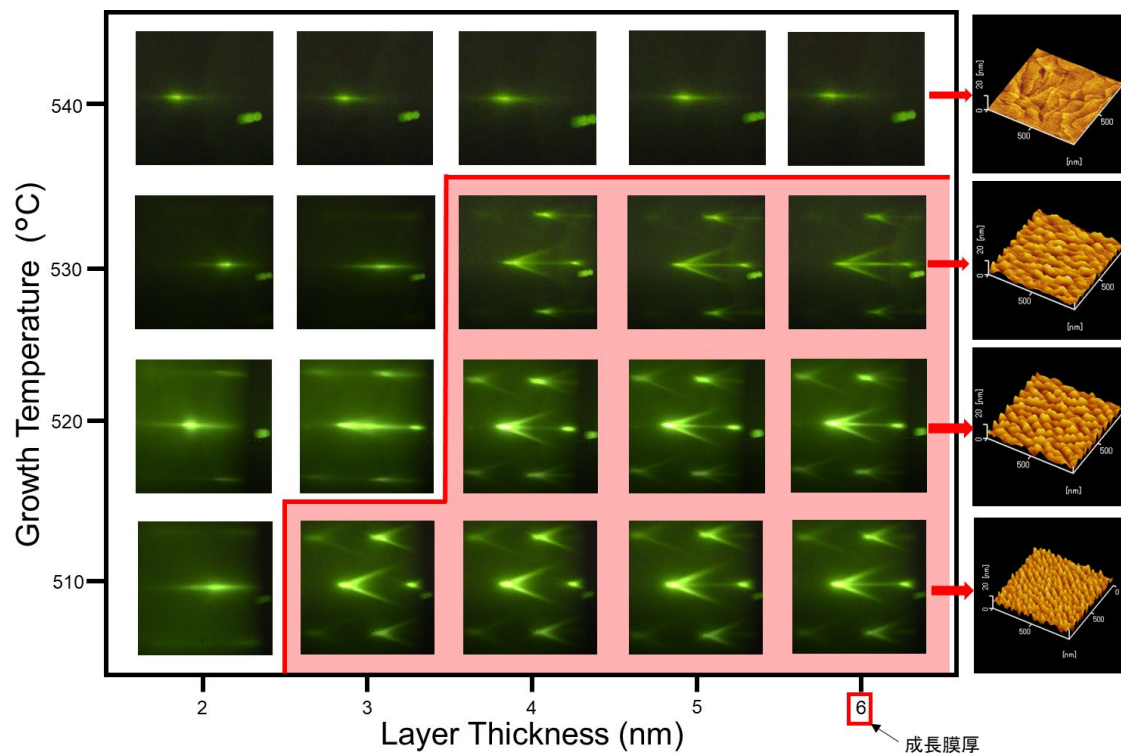


図3 様々な基板温度で作製した  $\text{In}_{0.34}\text{Ga}_{0.66}\text{As}$  薄膜の膜厚に対する RHEED パターン変化および膜厚 6nm での表面構造の AFM 像(右端)

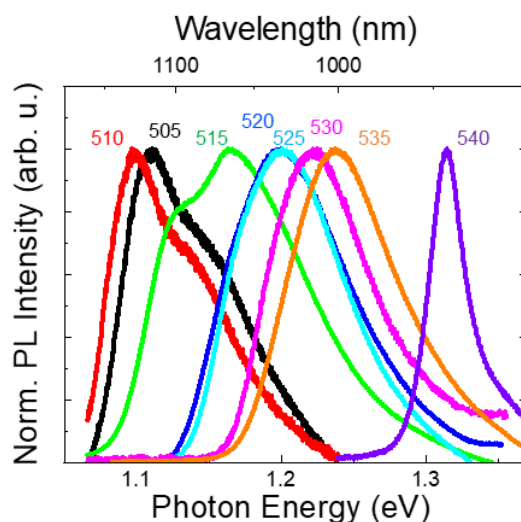


図4 様々な成長温度で作製した  $\text{In}_{0.34}\text{Ga}_{0.66}\text{As}$  薄膜(膜厚 6nm)の PL スペクトル

スペクトルが得られた。これは、先の構造評価でも示されていたように、平坦な表面をもつ 2次元薄膜構造からの狭帯域発光によるものと考えられ、ピーク波長が短いことから、基板温度上昇による In 再蒸発が In 組成比を低下させたと考えられる。一方、505–535°C の PL スペクトルは、1–1.1 $\mu\text{m}$  にピークを持つ広帯域な発光が得られた。成長温度の上昇に伴ってピーク波長はほぼ単調に減少しており、In 再蒸発の影響による組成比の低下がほぼ単調に生じていることを示唆している。また、成長温度が低い 505–515°C の PL スペ

クトルは二つのピークが現れたが、520–535℃の PL スペクトルはおおよそ単峰性の形状であった。この理由として、成長温度が低いサンプルは In 組成分布が膜の下方と上方で異なっていることや、三次元構造のサイズ分布が二峰性をもつことが考えられる。その要因として成長中の In 偏析が考えられ、低温で成長した薄膜は、In 偏析によって膜内部で In 組成比が分離している可能性が考えられる。しかし、成長温度が高くなると、In の拡散がより促進されるため、膜内部での In 組成比の分布は低減し、膜表面の 3 次元構造における局所的な In 組成比の分布や、構造のサイズ分布による発光波長変化がより主要因となって、広帯域な発光が単峰性形状で現れたのではないかと考えられる。

結果として、適度な成長基板温度(約 520–530℃)によって In 拡散を促進することで、単一ピークの広帯域な発光が 1 ミクロン帯で得られることが明らかになった。また、発光強度も同時に強まることが確認できている<sup>6)</sup>。この要因としては、成長温度上昇によるアニール効果により、非発光中心となる欠陥の低減が起きたことが考えられる。得られた発光帯域は約 100nm となり、近似式による見積もりでは、OCT 光源として利用した際にはおおよそ 4 $\mu$ m の光軸分解能となり、一般的な OCT の分解能を上回る性能が期待できる結果となった。

#### 4. 結 論

生体イメージングに有用な波長 1 ミクロン帯での広帯域な近赤外光源を実現すべく、不均一 In (Ga) As ナノ結晶材料成長技術を確立した。最適な In 拡散を促進する成長基板温度を設定することにより、帯域約 100nm の 1 ミクロン帯広発光スペクトルが得られ、OCT 光源として用いた場合に約 4 $\mu$ m の分解能が期待できる結果となった。現在、本材料を用いた波長掃引レーザー光源を開発しており、今後この新たな半導体ナノ結晶材料を活かした SS-OCT 光源の実用化を目指していく。

#### 謝 辞

本研究は、令和 2 年度日本板硝子材料工学助成会の研究助成を受けて実施されました。また、本稿で紹介した成果は、著者の指導学生である祝出 航佑氏、奥野 光基氏の協力によって得られました。関係各位に深く感謝致します。

#### 参考文献

- 1) M. S. Patterson, B. C. Wilson, and D. R. Wyman, *Lasers in Medical Science* **6**, 379 (1991).
- 2) D. Huang, E. A. Swanson, C. P. Lin, J. S. Schuman, W. G. Stinson, W. Chang, M. R. Hee, T. Flotte, K. Gregory, C. A. Puliafito, J.G. Fujimoto, *Science* **254**, 1178 (1991).
- 3) S. H. Yun, G. J. Tearney, J. F. de Boer, N. Iftimia, and B. E. Bouma, *Opt. Express* **11**, 2953 (2003).
- 4) M. E. Brezinski, *Optical Coherence Tomography: Principles and Applications* (Academic Press, Burlington, 2006).
- 5) N. Ozaki, S. Kanehira, Y. Hayashi, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, and R. A. Hogg, *J. Cryst. Growth* **477**, 230 (2017).
- 6) 祝出 航佑, 尾崎 信彦 第 69 回応用物理学会春季学術講演会 23p-P07-5 (2022).