

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 29 日現在

機関番号：14701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25286052

研究課題名(和文)多波長量子ドット成長による超広帯域SLD光源開発と医療OCTへの応用

研究課題名(英文)Development of an ultra-broadband SLD light source based on multi-wavelengths quantum dots and its application to medical OCT

研究代表者

尾崎 信彦(Ozaki, Nobuhiko)

和歌山大学・システム工学部・准教授

研究者番号：30344873

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、医療用光断層イメージング技術(OCT)の高性能化に寄与する光源開発を目的とし、GaAs 基板上の自己組織化InAs量子ドットを用いた近赤外広帯域光源を作製した。発光中心波長を制御した多波長のQDを活性層に含有する電流注入型導波路端面発光デバイス(QD-SLD)を作製し、発光中心波長約1.2 μm のガウシアン形状の発光を得た。このQD-SLDを光源とするOCTセットアップを立ち上げ、実際にOCT画像を取得することに成功した。結果、多波長量子ドットによる光源を用いることで、既存のOCTを上回る光軸分解能および低ノイズな画像を様々なサンプルに対して取得可能であることを実証するに至った。

研究成果の概要(英文)：We have developed an ultra-broadband SLD light source based on multi-wavelengths quantum dots and applied it to the medical optical coherence tomography (OCT) system. A current-driven light source including four layers of QDs with different emission wavelengths (QD-SLD) exhibits a broadband (85-nm-bandwidth) emission centered at approximately 1.2 μm with a Gaussian-like spectral shape at room temperature. Spectral-domain OCT (SD-OCT) using the QD-SLD as a light source was developed and imaging with the SD-OCT was demonstrated. The axial resolution was estimated to be approximately 8 μm in air and no apparent side lobes appeared beside the point spread function, indicating the effectiveness of the QD-SLD for high-resolution, noise-reduced OCT imaging.

研究分野：半導体ナノ結晶工学、光応用

キーワード：量子ドット 分子線エピタキシー(MBE) 近赤外広帯域光源 スーパーluminescentダイオード(SLD)
光コヒーレンストモグラフィ(OCT)

1. 研究開始当初の背景

生体の断面を非侵襲かつ高分解に画像化可能な光干渉断層計(OCT)[1]は、1990年代初頭の原理提案以来急速に発展しており、眼科臨床応用に始まり、今では循環器や消化器など様々な医療分野に拡がりつつある。近赤外波長の光をプローブとして用いるため、X線CTやMRIに比べ小型軽量、安価であり、また患者への負荷が少ないといったメリットがあり、今後の更なる性能向上(高分解能化、低ノイズ化)が期待されている。

図1に示すように、OCTの画像取得原理は低コヒーレンス光干渉を利用した光軸方向の反射率分布測定であり、光源のコヒーレンス長(l_c)が光軸方向の分解能を決定する[2]。例えば光源のスペクトル形状がガウシアンの場合、OCTの光軸分解能は $0.44 \times \lambda_0^2 / \Delta\lambda$ と表され、光源のスペクトル帯域幅 $\Delta\lambda$ が広く中心波長 λ_0 が短いほど分解能は高くなる。また、OCT画像の各画素スペクトルは光源の点拡がり関数(PSF)に依存する。PSFは光源スペクトルの逆フーリエ変換で得られるコヒーレンス関数によって表現されるため、光源スペクトル中にディップが存在するとPSFにサイドローブが発生し、画像ノイズの原因となる[2]。そのため、スペクトル形状は理想的にはガウシアン形状が望ましい。さらに、生体内への浸透長(到達深度)はなるべく長い方がよく、そのためには生体内のヘモグロビンや水による吸収、散乱が最も少ない近赤外波長光を用いる必要がある[3]。

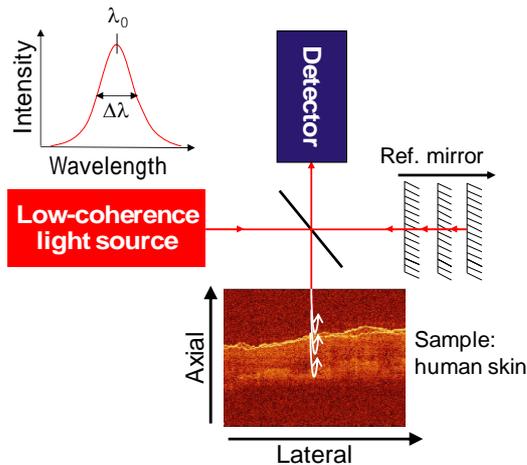


図1 OCTの原理模式図

上記の要求を満たす光源として、GaAs基板上に自己組織的に成長した自己組織化InAs量子ドット(QD)[4]を発光材料に用いた光源が有用視されている。GaAs基板上のInAs-QDは、エピタキシャル成長時に基板と成長層の格子定数差によって発生する歪みにより自己組織的に成長(S-Kモード成長)する3次元の量子閉じ込め構造である。単一のQDは量子閉じ込め効果によって離散的な電子準位を持つが、基板上に成長した多数

の自己組織化QD群には一定のサイズ分布が生じる。そのため、量子サイズ効果により発光スペクトルは広帯域に拡がりやすい。さらに、QDの離散的な準位により、強励起下では基底準位(GS)間のみならず励起準位(ES)間の発光も寄与するため、より広帯域な光源となりやすい。我々はこれまでに、このInAs-QDの発光中心波長を制御する手法を様々開発してきている。この技術を用いて、近赤外波長帯での広帯域発光デバイスを実現すれば、OCTの高分解能化に有用な光源としての応用が期待できる。

2. 研究の目的

本研究では、OCTの高分解能かつ低ノイズ化に寄与する光源を実現するため、発光波長を制御した複数のInAs-QD層(多波長QD)を発光材料とした光源デバイスの開発を行った。具体的には、電流注入型のsuperluminescent diode(SLD)を作製し、このデバイスを実際にOCTシステムに導入して、OCT画像の高分解能化の実証を目指した。

3. 研究の方法

(1)多波長量子ドット層を含む基板成長

多波長InAs-QDをGaAs基板上に分子線エピタキシー(MBE)法を用いて成長させた。図2に示すように、電流注入型発光デバイスへの利用を想定してp-i-n接合内の厚さ240nmのGaAs活性層内にQDを4層埋め込んだ基板を作製した。活性層は厚さ1.5μmのp-/n-Al_{0.35}Ga_{0.65}Asクラッド層で挟み、光及びキャリア閉じ込めを図っている。各QD層には異なる厚みの歪緩和層(SRL)を積層しており、QDの発光中心波長を制御している。

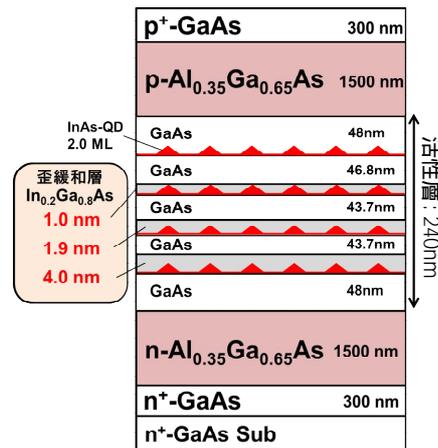


図2 多波長QDを含む成長基板の断面模式図

SRLはIn_{0.2}Ga_{0.8}As薄膜であり、格子定数がGaAsとInAsの中間的な値を持つため、InAs-QDにかかる圧縮歪が緩和され、実効的なQDサイズが大きくなる。その結果、量子サイズ効果によって発光波長がレッドシフトする。SRLの厚みを0-4nmの範囲で変化させ、歪緩和効果を連続的に変調させることで、QDの発光中心波長を連続的にシフトさせた。

(2)光源デバイス作製

MBE 法にて成長した多波長 QD 層を含有する基板に対し、フォトリソグラフィとドライエッチングによる微細加工技術を用いて光源デバイス作製を実施した。図 3 に示す通り、クラッド層に対してリッジ型導波路 (RWG) を形成し、端面出射型の電流注入デバイスを作製した。RWG の高さは約 $1.4\mu\text{m}$ 、幅は約 $25\mu\text{m}$ である。絶縁膜として SiO_2 を成膜後、RWG 上のみウェットエッチングで SiO_2 を除去し、p 層側に Ti/Pt/Au 、n 層側に Ni/AuGe/Ni/Au を蒸着、アニールして電極を形成した。作製したサンプルは劈開により長さ約 3mm のチップ状デバイスとした。作製したデバイスに CW 定電流を印加し、注入電流密度を変えながらエレクトロルミネッセンス (EL) を室温にて測定した。

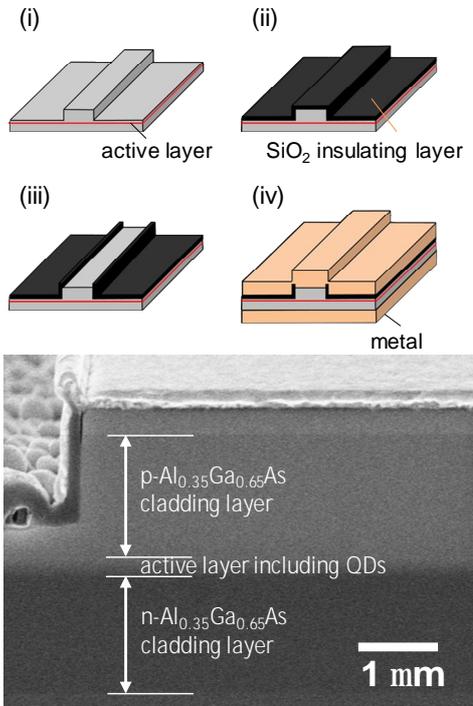


図 3 光源デバイス作製プロセス模式図(上)と作製後のデバイス劈開面の SEM 像(下)

(3)SD-OCT 構築

作製した光源デバイスの OCT 光源としての性能を評価するため、ファイバーベースでの OCT セットアップを立ち上げた。図 4 に立ち上げた OCT セットアップの模式図を示す。光源は、先述のチップをファイバー結合させたモジュールとし、OCT 光学系に組み込んだ。50:50 カプラーにより二分岐された光は、参照ミラーとサンプルにそれぞれ入射され、両者からの反射光が再び 50:50 カプラーにより合波され干渉光となる。この干渉光のスペクトルを分光器および InGaAs 検出器によって測定した。得られたスペクトルを波数軸上の干渉光スペクトルに直し、逆フーリエ変換により空間情報に直すことで断面プロファイルを取得した。さらに光軸プローブを面内走査することで 2 次元の OCT 画像を取得した。

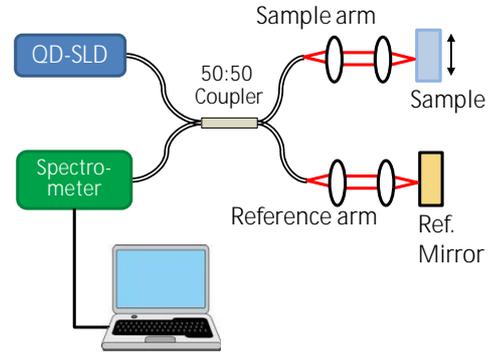


図 4 SD-OCT セットアップ模式図

4. 研究成果

(1)QD-SLD デバイス

作製したデバイスから得られた、各注入電流密度 (J) における EL スペクトルを図 5 に示す。スペクトルは J の増加に伴いピーク発光波長が短波長にシフトしながら、ガウシアン形状に徐々に推移した。これは、注入電流増加により QD の基底準位のキャリアが飽和し、高次準位 (ES) に供給され始めることで ES 間発光強度が徐々に増加したためと考えられる。最大帯域幅は約 85nm で、近赤外波長にて広帯域かつスペクトル形状が単峰性のガウシアン形状に制御された発光デバイスが実現された。

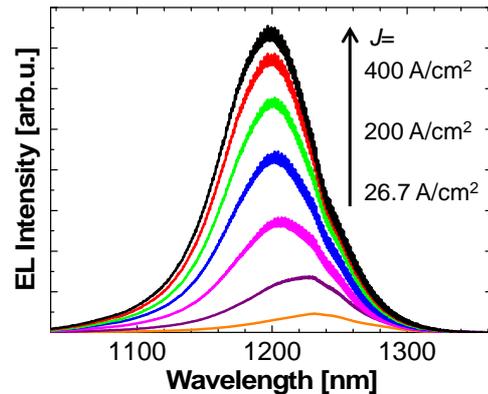


図 5 電流密度 (J) に対する EL スペクトル変化

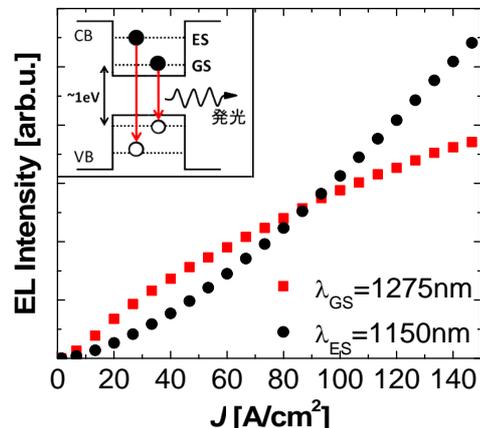


図 6 J に対する ES、GS 間発光強度変化の比較

I の増加に伴う ES 間発光の寄与を確認するため、波長ごとに I に対する EL 強度変化をプロットしたものを図 6 に示す。広帯域な発光スペクトルの内、GS 発光が支配的であるとされる長波長発光(λ_{GS} :1275nm)と ES 発光が支配的であるとされる短波長発光(λ_{ES} :1150nm)では EL 強度が異なる変化を示した。すなわち、低い注入電流密度(数十 A/cm² 以下)では λ_{ES} に対し λ_{GS} の強度が上回っているが、高い電流密度(数十 A/cm² 以上)では λ_{GS} の強度が飽和し、一方で λ_{ES} の強度が増大していく傾向が見られた。これは、注入電流密度増大によって GS キャリアが飽和し、その後 ES に供給されたキャリアの再結合による発光が増加するという 2 段階の発光増強を示す QD 発光デバイスの特性を表していると考えられる。

(2)OCT への光源導入および画像取得 PSF 評価

立ち上げた SD-OCT セットアップに、作製した QD-SLD 光源を導入し、まず点拡がり関数(PSF)の評価を行った。サンプルにミラーを設置し、光軸方向に 0~200 μm の範囲で光軸方向に移動させながら、各位置で干渉光スペクトルを得た(図 7 (左))。この干渉光スペクトルを逆フーリエ変換して得られた反射光強度の光軸方向空間分布を図 7 (右)に示す。反射光強度分布内のピークはサンプルミラーの位置を表している。サンプルミラーの移動距離に応じた位置に反射光強度ピークが現れており、SD-OCT 方式によって反射面の位置情報を得られることが実証された。また、このピークが光源の PSF に相当し、ピークの半値全幅から見積もられる光軸方向分解能は 7.5 μm と、一般的な市販 OCT の分解能 10~15 μm に比べ高分解能が期待できる結果となった。また、PSF 両側にサイドローブは確認されず、OCT 画像形成時のノイズ抑制効果も期待される。

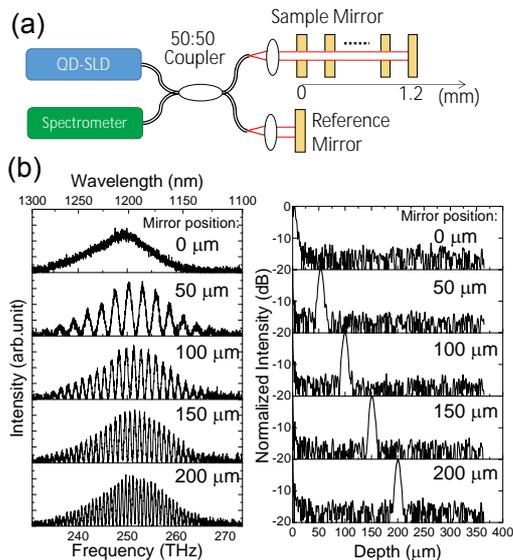


図 7 QD-SLD を導入した SD-OCT (a) を用いて取得した干渉スペクトル (b) 左) と PSF (b) 右)

薄膜ガラス断面画像

次に、サンプルにカバーガラス(厚さ約 150 μm 、屈折率 1.5)を用いて OCT 画像取得を試みた。図 8 に QD-SLD 光源により得られた OCT 画像および画像中心部でのプロファイルを示す。OCT 画像の縦軸は光軸(深さ)方向、横軸は面内方向を表している。2 本の白い線が画像内に確認でき、それぞれのプロファイルは 7.8 μm の半値幅を持つピークとして検出されている。ピーク間隔は 223 μm で、ガラス膜厚に屈折率を乗じた値(225 μm)にほぼ一致しており、この 2 本の白い線がガラス表面および裏面からの反射を表していることが分かる。この結果から、QD-SLD 光源を用いて OCT 画像が得られ、その光軸分解能が、PSF によって見積もられた値を反映していることが確認できた。

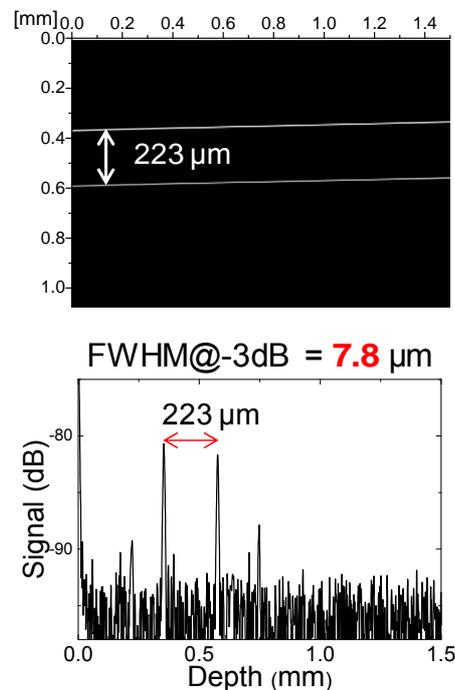


図 8 カバーガラスの断面 OCT 画像 (上) および画像中心部でのプロファイル (下)

バイオサンプル画像

医療用 OCT への有用性を確認するため、バイオサンプルの OCT 画像取得を試みた。擬似的なバイオサンプルとしてタマネギ薄片を用いた。図 9 にタマネギ薄片の断面 OCT 画像および画像中の点線部でのプロファイルを示す。縦軸が光軸(深さ)方向、横軸が面内方向である。図中の最も反射強度の強い白線が、サンプル表面と空気の境界を表し、この境界線の下にキャベツの内部構造が画像化されている。大きさ 100~200 μm の表皮細胞が確認でき、サンプル内の三層程度までの細胞が画像化できている。この結果から、QD-SLD を光源とする SD-OCT により、バイオサンプルの断面画像も取得可能であることが示された。

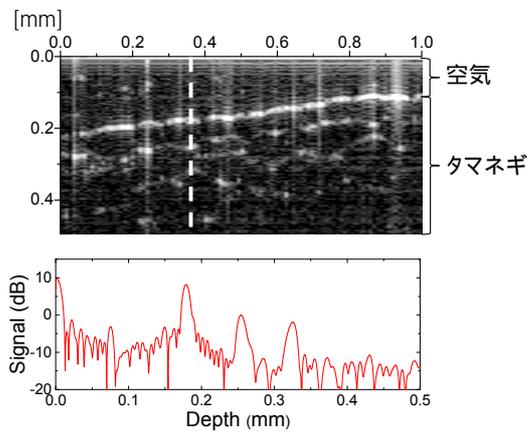


図9 タマネギ薄片の OCT 画像 (上) と
点線部での断面プロファイル (下)

以上から、本研究の目的である、InAs 量子ドットを用いた近赤外広帯域光源開発および OCT への導入が達成され、既存の OCT を上回る光軸分解能および低ノイズな画像を様々なサンプルに対して取得することに成功した。

< 引用文献 >

- [1] D. Huang, et al., *Science* **254**, 1178 (1991).
- [2] M. E. Brezinski, *Optical Coherence Tomography: Principles and Applications* (Academic Press, 2006).
- [3] E. Salomatina and A. N. Yaroslavsky, *Phys. Med. Biol.* **53**, 2797 (2008).
- [4] Self-Assembled Quantum Dots, *Lecture Notes in Nanoscale Science and Technology Series Vol. 1*, Z. M. Wang ed. (Springer, 2008).

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 12 件)

1. N. Ozaki, D. T. D. Childs, J. Sarma, T. S. Roberts, T. Yasuda, H. Shibata, H. Ohsato, E. Watanabe, N. Ikeda, Y. Sugimoto, and R. A. Hogg, “Superluminescent diode with a broadband gain based on self-assembled InAs quantum dots and segmented contacts for an optical coherence tomography light source”, *J. Appl. Phys.* **119**, 083107 pp. 1–7 (2016). (査読あり) DOI: 10.1063/1.4942640
2. T. Yasuda, N. Ozaki, H. Shibata, S. Ohkouchi, N. Ikeda, H. Ohsato, E. Watanabe, Y. Sugimoto, and R. A. Hogg, “Electrically driven near-infrared broadband light source with Gaussian-like spectral shape based on multiple InAs quantum dots”, *IEICE Trans. Electron.* **E99-C** pp. 381–384 (2016). (査読あり) DOI: 10.1587/transle.E99.C.381
3. S. Kitamura, M. Senshu, T. Katsuyama, Y. Hino, N. Ozaki, S. Ohkouchi, Y. Sugimoto, and R. A. Hogg, “Optical characterization of In-flushed InAs/GaAs quantum dots emitting a broadband spectrum with multiple peaks at $\sim 1\mu\text{m}$ ”, *Nanoscale Res. Lett.* **10**, 231 pp.1–6 (2015). (査読あり) DOI: 10.1186/s11671-015-0941-0
4. H. Shibata, N. Ozaki, T. Yasuda, S. Ohkouchi, N. Ikeda, H. Ohsato, E. Watanabe, Y. Sugimoto, K. Furuki, K. Miyaji, and R. A. Hogg, “Imaging of spectral-domain optical coherence tomography using a superluminescent diode based on InAs quantum dots emitting broadband spectrum with Gaussian-like shape”, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 04DG07 pp. 1–5 (2015). (査読あり) DOI: 10.7567/JJAP.54.04DG07
5. N. Ozaki, K. Takeuchi, Y. Hino, Y. Nakatani, T. Yasuda, S. Ohkouchi, E. Watanabe, H. Ohsato, N. Ikeda, Y. Sugimoto, E. Clarke, and R. A. Hogg, “Integration of Emission-Wavelength- Controlled InAs Quantum Dots for Ultrabroadband Near-infrared Light Source” (**Invited Review Article**) *Nanomat. Nanotechnol.* **4**, 26 pp. 1–17 (2014). (査読あり) DOI: 10.5772/59315
6. N. Ozaki, T. Yasuda, S. Ohkouchi, E. Watanabe, N. Ikeda, Y. Sugimoto, and R. A. Hogg, “Near-Infrared Superluminescent Diode Using Stacked Self-Assembled InAs Quantum Dots with Controlled Emission Wavelengths” *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, 04EG10 pp. 1–4 (2014). (査読あり) DOI: 10.7567/JJAP.53.04EG10
7. N. Ozaki, Y. Hino, S. Ohkouchi, N. Ikeda, and Y. Sugimoto, “Broadband emission centered at $\sim 1\mu\text{m}$ with a Gaussian-like spectrum by stacking In-flushed QD layers”, *Phys. Stat. Solid. C* **10**, 1361–1364 (2013). (査読あり) DOI: 10.1002/pssc.201300291
8. N. Ozaki, K. Takeuchi, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, H. Oda, K. Asakawa, and R. A. Hogg, “Monolithically grown multi-color InAs quantum dots as a spectrum-shape- controllable near infrared broadband light source”, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 051121 pp. 1–4 (2013). (査読あり) DOI: 10.1063/1.4817386
9. N. Ozaki, Y. Nakatani, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, K. Asakawa, E. Clarke, R. A. Hogg, “Extending emission wavelength of InAs/GaAs quantum dots beyond 1.3 μm by using quantum dot bi-layer for broadband light source”, *J. Cryst. Growth* **378**, 553–557 (2013). (査読あり) DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.12.110
10. Y. Hino, N. Ozaki, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, “Growth of InAs/GaAs quantum dots with central emission wavelength of 1.05 μm using In-flush technique for broadband near-infrared light source”, *J. Cryst. Growth* **378**, 501–505 (2013). (査読あり) DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.12.077

〔学会発表〕(計 27 件)

(招待講演)

1. Nobuhiko Ozaki, "Optical coherence tomography using a low-coherence light source based on emission-wavelength-controlled self-assembled InAs quantum dots", 5th Int. Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures, Hsinchu, Taiwan, Sep. 9, 2015.
2. Nobuhiko Ozaki, "Progress in MBE growth technologies for OCT light sources – Emission wavelength control and selective-area growth of InAs quantum dots –", Int. Workshop on Photonics for Imaging and Sensing, Kolkata, India, Mar. 27, 2015.
3. N. Ozaki, Y. Hino, Y. Nakatani, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, E. Clarke, and R. A. Hogg, "Wide-range control of emission wavelengths of InAs/GaAs QDs grown by MBE towards ultrabroadband NIR light source for biomedical imaging", The 2013 Collaborative Conference on Crystal Growth (3CG), Cancun, Mexico, June 10-13, 2013.

(国際会議)

4. N. Ozaki, T. Yasuda, H. Shibata, H. Ohsato, E. Watanabe, N. Ikeda, Y. Sugimoto, D. T. D. Childs, and R. A. Hogg, "Broadband Gain Superluminescent Diode Based on Self-assembled InAs Quantum Dots with Segmented Contacts" 2015 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2015), P-7-7, Sapporo, Japan, Sep. 27-30, 2015.
5. N. Ozaki, T. Yasuda, H. Shibata, S. Ohkouchi, H. Ohsato, E. Watanabe, N. Ikeda, Y. Sugimoto, D. T. D. Childs, and R.A. Hogg, "Superluminescent Diode with Near-infrared Broadband Emission Using Self-assembled InAs Quantum Dots for Optical Coherence Tomography", the 18th European Molecular Beam Epitaxy Workshop, Mo1.3, Canazei, Italy, Mar. 16, 2015.
6. T. Yasuda, N. Ozaki, H. Shibata, S. Ohkouchi, N. Ikeda, H. Ohsato, E. Watanabe, Y. Sugimoto, and R. A. Hogg, "Broadband near-infrared light source using multi-color InAs quantum dots for optical coherence tomography", Int. Symp. Recent Progress of Photonic Devices and Materials, P-2, Kobe, Japan, Nov. 13-14, 2014.
7. H. Shibata, T. Yasuda, S. Ohkouchi, N. Ikeda, H. Ohsato, E. Watanabe, Y. Sugimoto, K. Furuki, K. Miyaji, R.A. Hogg, and N. Ozaki, "Optical Coherence Tomography Imaging by Using a Superluminescent Diode Based on InAs/GaAs Quantum Dots", the 2014 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2014), B-3-2, Tsukuba, Japan, Sep. 10, 2014.

8. M. Senshu, S. Kitamura, Y. Wen, K. Imai, T. Katsuyama, Y. Hino, N. Ozaki, Y. Sugimoto, "Time-Resolved Photoluminescence of InAs QDs Fabricated by In-Flush Technique", The 3rd Int. Symp. Photonics and Electronics Convergence (ISPEC 2013), P-2, Tokyo, Japan, Nov. 18-20, 2013.
9. Y. Nakatani, N. Ozaki, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, E. Clarke, R. Hogg "Emission Wavelength Extension of Bi-layer InAs/GaAs-QDs by Controlling the Growth Rate of QD Layers", 12th Int. Conf. Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-12), 7PN-27, EPOCHAL Tsukuba, Japan, Nov. 4-8, 2013.
10. N. Ozaki, T. Yasuda, S. Ohkouchi, E. Watanabe, N. Ikeda, Y. Sugimoto and R. A. Hogg, "Broadband near-infrared superluminescent diode based on stacked multi-color InAs/GaAs quantum dots", the 2013 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2013), K-2-3, Fukuoka, Japan, Sep. 25, 2013.

(国内学会)

(応用物理学会他、各種研究会、セミナー、シンポジウム、展示会などで 17 件発表)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称：量子ドットの製造方法及び量子ドット
発明者：尾崎信彦、林 佑真、大河内俊介
権利者：和歌山大学、日本電気株式会社
種類：出願中

番号：特願 2015-167889

出願年月日：平成 27(2015)年 8 月 27 日

国内外の別：国内

〔その他〕

<http://www.wakayama-u.ac.jp/~ozaki/>にて研究成果を公開している。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾崎 信彦 (OZAKI, Nobuhiko)

和歌山大学・システム工学部・准教授

研究者番号：30344873

(2) 研究分担者

杉本 喜正 (SUGIMOTO, Yoshimasa)

物質・材料研究機構・先端ナノフォトニクス材料ユニット・主席研究員

研究者番号：60415784

(3) 連携研究者

赤阪 隆史 (AKASAKA, Takashi)

和歌山県立医科大学・医学部・教授

研究者番号：70322584

(4) 連携研究者

久保 隆史 (KUBO, Takashi)

和歌山県立医科大学・医学部・准教授

研究者番号：30316096