

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 4 日現在

機関番号：14701

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23760015

研究課題名（和文） 多色量子ドットのモノリシック成長によるスペクトル制御可能な近赤外広帯域光源の開発

研究課題名（英文） Spectrum-shape-controllable near-infrared light source based on multi-color quantum dots monolithically grown in selective areas

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

研究成果の概要（和文）：GaAs 基板上に自己組織的に成長する InAs 量子ドット(QD)を用いて、光コヒーレンストモグラフィー(OCT)の光源として有用な近赤外広帯域光源の開発を行った。InAs-QD は生体透過性の高い発光波長(1.2-1.3 ミクロン)を有し、また、一定のサイズ分布による広帯域発光という OCT 光源として有用な特長をもつ。我々は、この InAs-QD の発光中心波長を制御し基板上に複数モノリシックに成長させるという独自手法により、従来光源よりも広帯域(約 160nm)かつスペクトル形状制御可能な光源作製に成功した。この成果は、OCT の更なる性能向上に寄与する新規光源への応用が期待される。

研究成果の概要（英文）：We have developed a near-infrared broadband light source based on InAs/GaAs quantum dots (QDs) for optical coherence tomography (OCT). Self-assembled InAs-QDs possess useful features for the OCT imaging: emissions with long penetration depth in bio-samples and with broadband spectrum due to their certain size distribution. We realized a broadband and spectrum-shape-controllable light source by using our developed technique for monolithic growth of InAs-QDs with different emission wavelengths. This demonstrates a potential for novel NIR light source to obtain high quality OCT images.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|-------|-----------|-----------|-----------|
| 交付決定額 | 3,400,000 | 1,020,000 | 4,420,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：量子ドット、近赤外広帯域光源、MBE、光コヒーレンストモグラフィー(OCT)

1. 研究開始当初の背景

現在の医療分野では、簡単に素早く病変の所在を確認でき、かつ患者には低負荷（非侵襲）なイメージング技術が求められている。そのような課題に貢献し得る医療・生体イメージ装置として、光コヒーレンストモグラフィー(OCT)が近年大変注目されている。OCT は低コヒーレンス（広帯域）光の干渉現象を利用して生体組織の断面を非破壊に観察できる技術であり、眼科臨床を中心に様々な医療分野で実用化され始めている。光源に光（近赤外光）を用いるため、X 線 CT に比べ

人体にとって低負荷で、かつ軽量コンパクトなシステムで済む。この技術を皮膚や腸管組織に応用すれば、皮膚がんや大腸がんなどを初期の内に素早くかつ非侵襲に発見できるなど、画期的な診断手法になると期待されている。

図 1 に示すように、OCT はマイケルソン型の光干渉計を基本構成とし、観察対象物からの反射光と鏡からの反射光（参照光）との干渉強度をコントラストとして表示することにより断層画像を得る。このとき、光源に低コヒーレンス（広帯域）な光を用いることで

干渉が発生する実空間の大きさ（コヒーレンス長： l_c ）が小さくなり、対象サンプル内部の局所領域からの干渉強度すなわち反射率を測定することで断層画像を得ることができる（生体サンプルにおいては内部組織の屈折率差や組織壁による反射率差がコントラスト差として画像化される）。従って、像の分解能はコヒーレンス長で決まり、光源の帯域が広いほど分解能は高くなる。また、画像を構成する干渉スペクトルは光源スペクトルのフーリエ変換に相当し、光源スペクトル形状がガウシアン形状やフラットトップなど、画像ノイズの原因となる余分な波形（サイドローブ）を発生しにくい形状が求められる。さらに、生体用には浸透長の長い近赤外波長の光源が適しており、皮膚組織などには $1.3\mu\text{m}$ 帯が適しているとされている。

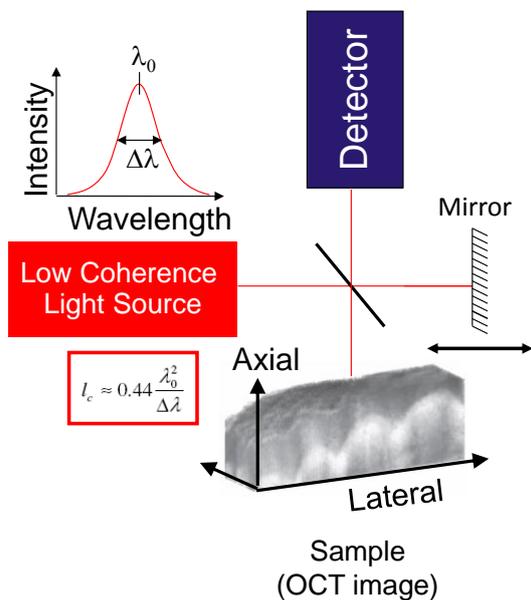


図1 光コヒーレンストモグラフィー(OCT)の原理模式図

OCT 光源として、現状では半導体量子井戸ベースの SLD (Superluminescent Diode) という高輝度光素子がよく用いられるが、帯域は 100nm 程度であり、分解能は $10\mu\text{m}$ 程度である。また、広帯域化するとスペクトル形状の制御が困難で、OCT 画像ノイズの原因となるスペクトルディップが現れやすい。生体内の毛細血管や病理組織といった微細組織の診断を可能にするには $5\mu\text{m}$ 以下の細胞レベルの分解能と低ノイズな OCT 画像を得る必要がある、これを実現するためには、従来よりも帯域が広く、かつスペクトル形状を制御可能な SLD 光源が必要である。このような要求を満たす光源材料として、我々は半導体ナノ構造である量子ドット(QD)に着目した。成長基板と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エピタキシャル成長する QD は、もともとサイズにばらつき（不均

一分布）があり、サイズによって発光波長が決定される QD 群の発光スペクトルが広帯域になりやすい。さらに、各 QD は離散的な準位をもつため、電流注入などの強励起によって、基底準位間のみならず励起準位間の発光も寄与し、高効率で広帯域な光源となる素養を持っている。我々は、これまで GaAs 基板上に歪誘起で自己組織的に成長する InAs-QD の光通信用素子開発を行ってきたが、InAs-QD の発光波長は奇しくも生体組織内で浸透長が長いとされる波長（約 $1.3\mu\text{m}$ ）と一致している。この特長を活かし、医療・生体イメージングに応用可能な近赤外広帯域光源を提供することが可能である。さらに、我々がこれまで QD ベースの光集積素子用に開発してきた InAs-QD の領域および波長選択成長技術を応用すれば、本研究で提案する広帯域かつスペクトル形状制御可能な近赤外光源へと展開でき、従来の SLD 性能を凌駕する QD ベース SLD の開発が期待できる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、エピタキシャル InAs 量子ドットの領域および波長選択成長技術を用いて、広帯域かつスペクトル形状が制御できる近赤外光源を実現することである。図2に概念図を示す通り、もともと一定の帯域を持って発光する複数の QD 群(QD1-QD4)を中心波長を変えて一つの基板上に集積し、光導波路で結合することにより、単一の QD 群よりも遥かに広帯域な発光を得ることが出来る。さらに、領域を変えて QD 群を成長しているので、各 QD 群への励起強度を個別に制御することができ、全体のスペクトル形状を成形することが可能となる。この広帯域かつスペクトル形状制御可能な光源を実証することにより、OCT の性能向上に寄与する光源開発へ展開することが最終的な目標となる。

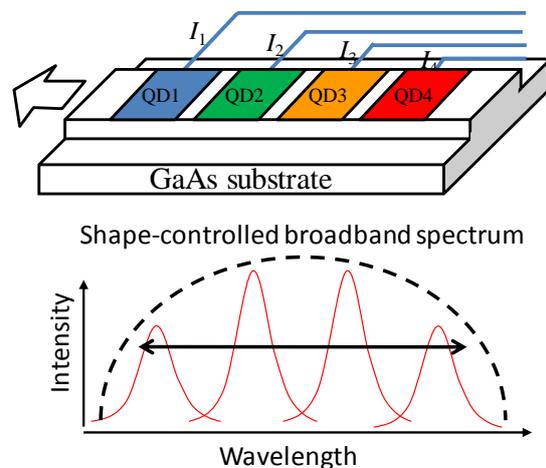


図2 基板上にモノリシックに成長した多波長 QD による広帯域かつスペクトル形状制御可能な光源の概念模式図

3. 研究の方法

研究目的で述べた光源作製の手法として、我々がこれまで独自に開発してきた、MBEとメタルマスク法によるエピタキシャルInAs量子ドットの領域および波長選択成長法を活用し、4色のQDをモノリシックに成長した基板を作製した。その後、作製した基板に微細加工プロセスによってリッジ型の光導波路を形成し、多波長のQD発光を結合させた。さらに、各波長のQDを個別に励起強度を変えながら発光させることで、結合されたスペクトル形状の制御を試みた。以下に詳細を記述する。

(1)多色QDのモノリシック成長

まず、これまで我々が独自に開発してきた180度回転式メタルマスクをさらに発展させ、90度の回転式メタルマスク(図3)を開発し、4色の多波長QDのモノリシック成長を行った。メタルマスクは超高真空装置内で基板ホルダーに脱着および回転が可能で、マスク被覆した状態でRHEED観察も可能となるように設計されている。

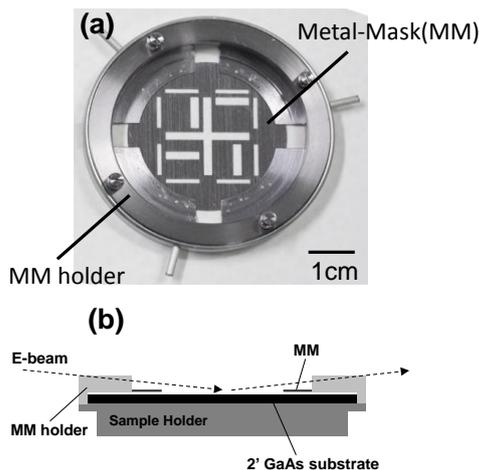


図3 新規開発した90度回転式メタルマスクの全体写真(a)と断面模式図(b)

図4は4色量子ドット作製の模式図である。2×8mm²の開口部を4箇所設けたメタルマスクをMBE成長時に基板に被覆し、開口部下のみに原料を供給し、QDを選択領域に成長させる。さらに、QD成長後に歪緩和層(SRL: In_{0.2}Ga_{0.8}As)を異なる厚さで積層することにより、QD波長を長波長側へシフトさせる。我々のこれまでの研究で、歪緩和層の厚さを0~4nm程度の範囲で変化させた時、発光波長がおよそ1.2~1.3μm程度の範囲で厚さに対して連続的に長波長へシフトすることが分かっている。マスクを90度ずつ回転させることで開口部が順に移動するため、QDと異なる厚さのSRL成長を4回繰り返せば、最

終的に4色の異なる発光波長を持つ量子ドット群を基板上にモノリシックに形成することが可能となる。この手法を用いて、40nmずつ中心波長を離調した4色のQDを作製し、室温でのPLスペクトル測定およびPL強度のマッピングにより評価を行った。

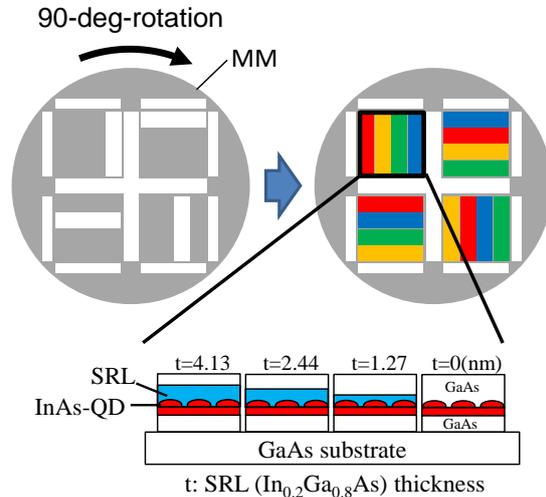


図4 回転式メタルマスクを用いた多色量子ドット成長の模式図

(2)多色QDを含むリッジ型光導波路の作製および発光スペクトル合成評価

(1)で述べた手法により基板上にモノリシックに成長したQDを、図5に示すようなリッジ型導波路(RWG)によって結合し、発光スペクトルを合波させた。多色QD3層ずつを含むGaAsの活性層(厚さ200nm)を厚さ1.5ミクロンのAl_{0.35}Ga_{0.65}As層で挟んだ基板を成長し、その基板に対してフォトリソグラフィとドライエッチングによって直線の光導波路を形成した。導波路幅と高さはそれぞれ約5ミクロン、1.44ミクロンである。

この導波路に対して、2つのレーザーを用いて2か所の異なる箇所を対物レンズを介して励起し、導波路を通じて出射される合成PLスペクトルを測定した。用いた2つの励起レーザーはHe-Neで、個別に励起強度を変えることが出来る。測定は全て室温で行った。

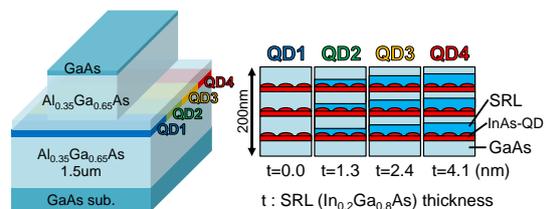


図5 作製した4色QDを3層ずつ含有するリッジ型導波路の模式図

4. 研究成果

(1) 多波長 QD のモノリシック成長

新規開発した 90 度回転式メタルマスクによって成長を行った基板からの PL スペクトルと強度マップの結果を図 6 に示す。挿入図の強度マップからメタルマスクによって並列の 4 領域に QD が成長していることが分かり、各領域からの発光スペクトルから中心波長を 40nm ずつ離調された QD が設計通りに成長していることが示された。

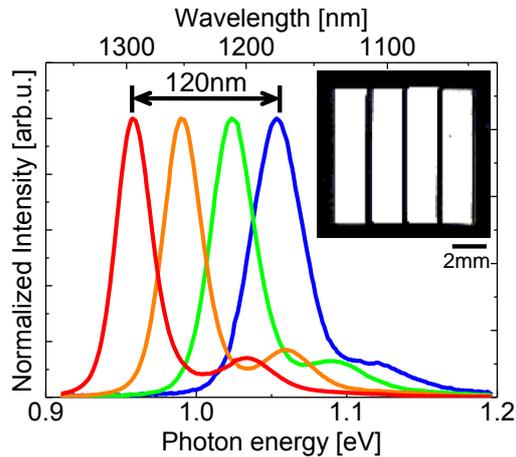


図 6 90 度回転式メタルマスクによって成長した 4 色量子ドットからの PL スペクトルと PL 強度マップ (挿入)

同一基板上的 4 つの並列領域に InAs-QD を選択成長させ、さらに各 QD 上に歪緩和層の厚さを制御することで、4 つの InAs-QD の中心波長を 40nm ずつ離調し、およそ 1180~1300nm の範囲で約 120nm の発光中心波長シフトを達成した。この 4 色の InAs-QD の基底準位間発光スペクトルの和は帯域約 160nm になり、各 QD の励起準位間発光も寄与した場合、帯域は 200nm 以上確保できると考えられる。このとき、OCT の分解能は 4 ミクロン以下となり、従来光源を超える分解能を達成できる可能性が示された。

(2) RWG からの合成 PL スペクトル評価

得られた 4 色の InAs-QD を含むサンプル基板に対して、リッジ型光導波路を微細加工によって作製した。図 7 にその SEM 観察像を示す。

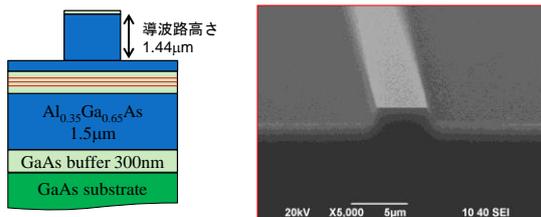


図 7 4 色 QD を含む RWG の SEM 像

この導波路の端面から、レーザー光励起による複数の QD 発光の合成スペクトルを測定した例を図 8 に示す。2 つのレーザーによる光励起で QD1 と QD4 を発光させた場合 (図 8 (a)) と、QD2 と QD3 を発光させた場合 (図 8 (b)) でそれぞれの QD 群の単一スペクトル (青、赤、緑、橙色線) を合成したスペクトル (黒線) が導波路端面から得られることを確認した。また、それぞれの合成スペクトルにおいて、QD1 または QD2 に対する励起強度を変化させた場合の合成スペクトルの形状変化を合わせて示している。それぞれ、QD1 に対する励起強度を 1.25 倍、1.50 倍に増加した場合と、QD2 に対する励起強度を 1.18 倍、1.76 倍に増加した場合のスペクトルである。合成スペクトルの形状が励起強度によって変化することが確認でき、特に QD2 の強度を最大にした際にガウシアン形状に近いスペクトルが得られることが示された。このような合成スペクトルおよび励起強度に対するスペクトル形状変化は、他の領域の QD の組み合わせにおいても同様に確認できた。

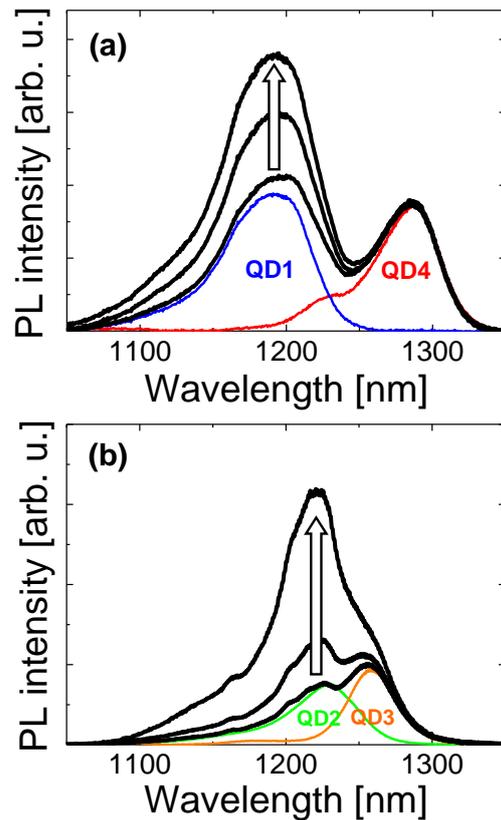


図 8 選択領域に成長した各 QD に対する光励起により、導波路端面から得られた合成発光スペクトルの測定例

以上の結果から、我々が提案した広帯域かつスペクトル形状制御可能な光源を実証することが出来た。

(3) 更なる広帯域化や新規波長帯に向けた QD 成長技術開拓への取り組み

当初の研究計画時には挙げていなかったが、InAs-QD 発光のさらなる広帯域化を目指した新たな発光波長制御技術開発にも取り組み、①InAs-QD の高さ制御法である In-flush 法を用いた発光短波長化、および②InAs-QD の近接二層積層法による発光長波長化を行った。①の手法では発光中心波長約 0.9~1.2 マイクロに及ぶ短波長化、また②においては最大で中心波長約 1.4 ミクロンの長波長化に成功した。これらを融合すれば、最大で 500nm 近い波長制御が可能となり、さらなる広帯域化が期待される結果となった。また、OCT に実用する際には、観察対象部位によって、より大きな浸透長を得るために中心波長帯を 1 ミクロンなどに変更する可能性もある。それらの要求にも対応できるような新規光源応用も期待される。

以上を纏めると、本研究の目的である、OCT に有用な広帯域かつスペクトル形状制御可能な光源作製に向けた研究が順調に遂行され、我々が開発した回転式メタルマスク法による多波長 QD の成長および光導波路作製による提案光源の実証に成功した。さらに、より広帯域な光源や新規波長帯に向けた新しい QD 成長技術の開拓にも成功し、今後のさらなる発展の可能性を示す結果も得られた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

(主要査読付原著論文)

1. "Extending emission wavelength of InAs/GaAs quantum dots beyond 1.3 μm by using quantum dot bi-layer for broadband light source"
N. Ozaki, Y. Nakatani, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, K. Asakawa, E. Clark, R. A. Hogg
J. Crystal Growth, *in press*, DOI: [10.1016/j.jcrysgro.2012.12.110](https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2012.12.110),
2. "Growth of InAs/GaAs quantum dots with central emission wavelength of 1.05 μm using In-flush technique for broadband near-infrared light source"
Yuji Hino, Nobuhiko Ozaki, Shunsuke Ohkouchi, Naoki Ikeda, Yoshimasa Sugimoto
J. Crystal Growth, *in press*, DOI: [10.1016/j.jcrysgro.2012.12.077](https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2012.12.077)
3. "Broadband light source based on four-color self-assembled InAs quantum dot ensembles monolithically grown in selective areas"

Nobuhiko Ozaki, Koichi Takeuchi, Shunsuke Ohkouchi, Naoki Ikeda, Yoshimasa Sugimoto, Kiyoshi Asakawa, and Richard A. Hogg

IEICE Trans. Electron. **E95-C** (2) 247-250 (2012). DOI: [10.1587/trasele.E95.C.247](https://doi.org/10.1587/trasele.E95.C.247)

(他に日本語査読付論文、査読無国際会議プロシーディングスに 2 件発表)

[学会発表] (計 20 件)

(招待講演)

1. Nobuhiko Ozaki, Koichi Takeuchi, Yuji Hino, Yohei Nakatani, Shunsuke Ohkouchi, Naoki Ikeda, Yoshimasa Sugimoto, Kiyoshi Asakawa, Richard A. Hogg, "Monolithic growth of multi-color InAs-QD ensembles for broadband and spectrum-shape-controllable near-infrared light source", 2012 Collaborative Conference on Crystal Growth (3CG 2012), Orlando, Florida, USA, December 11-14, 2012.
2. 第 23 回 GRL 浜松セミナー ~若手研究者のための光・電子・情報科学に関する情報交換~ (静岡大学浜松キャンパス総合研究棟) 2012 年 1 月 25 日
「多波長量子ドットによる近赤外広帯域光源開発と OCT への応用」
尾崎信彦

(国際会議)

3. Nobuhiko Ozaki, Yuji Hino, Shunsuke Ohkouchi, Naoki Ikeda, and Yoshimasa Sugimoto, "Growth of stacked In-flushed-QD layers emitting at 1 μm with Gaussian-like broadband spectrum", the 40th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2013), MoPC-01-01, Kobe Convention Center, Kobe, Japan, May 19-23, 2013.
4. N. Ozaki, Y. Nakatani, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto and R. Hogg, "Expanding emission wavelength of self-assembled InAs quantum dots beyond 1.3- μm by using the QD bi-layer for broadband light source", the 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2012), TuA-3-7, Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Japan, Sep. 23-28, 2012.
5. Y. Hino, N. Ozaki, S. Ohkouchi, N. Ikeda and Y. Sugimoto, "Controlling emission wavelength of InAs quantum dots using the In-flush technique for broadband 1.05- μm light source", the 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy

(MBE2012), ThP-59, Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Japan, September 23-28, 2012.

6. K. Takeuchi, N. Ozaki, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, K. Asakawa, R. A. Hogg, "Selective-area growth of 4-color InAs-QD ensembles for broadband light source", 2011 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2011), Nagoya, Japan, Sep. 28-30, P-8-1, 2011.

(国内会議)

7. 中谷擁平, 尾崎信彦, 大河内俊介, 池田直樹, 杉本喜正, Edmund Clarke, Richard Hogg, 「近接二層積層による GaAs 基板上 InAs-QD の発光長波長化の検討(II)」第 60 回応用物理学会春季学術講演会(神奈川工科大学) 29a-PB7-2, 2013 年 3 月
8. 日野雄司, 尾崎信彦, 大河内俊介, 池田直樹, 杉本喜正 「発光波長制御された In-flushed-QD の積層成長による 1 ミクロン帯広帯域発光」第 60 回応用物理学会春季学術講演会 (神奈川工科大学) 28p-G20-8, 2013 年 3 月
9. 日野雄司, 尾崎信彦, 大河内俊介, 池田直樹, 杉本喜正 「In-flush 法による 1 ミクロン帯発光 InAs-QD の発光強度改善」第 73 回応用物理学会学術講演会 (愛媛大学城北地区, 松山大学文京キャンパス) 12p-PB11-8, 2012 年 9 月
10. 竹内晃一, 尾崎信彦, 大河内俊介, 池田直樹, 杉本喜正, 小田久哉, 浅川 潔, Richard Hogg 「多色量子ドット並列構造による近赤外広帯域光源のスペクトル成形」第 59 回応用物理学関係連合講演会 (早稲田大学早稲田キャンパス) 17p-F4-13, 2012 年 3 月
11. 日野雄司, 尾崎信彦, 大河内俊介, 池田直樹, 杉本喜正 「医療・生体イメージング光源に向けた 1 ミクロン帯発光 InAs-QD 作製」第 59 回応用物理学関係連合講演会 (早稲田大学早稲田キャンパス) 17p-DP3-15, 2012 年 3 月
12. 中谷擁平, 尾崎信彦, 大河内俊介, 池田直樹, 杉本喜正 「近接二層積層による GaAs 基板上 InAs-QD の発光長波長化の検討」第 59 回応用物理学関係連合講演会 (早稲田大学早稲田キャンパス) 16p-A8-15, 2012 年 3 月
13. 竹内晃一, 尾崎信彦, 大河内俊介, 池田直樹, 杉本喜正, 浅川 潔, Richard Hogg 「90 度回転メタルマスク法により作製した広帯域光源用 4 色量子ドットの光学評価」第 72 回応用物理学会学術講演会 (山形大学小白川キャンパス) 1a-ZA-14, 2011 年 9 月

(他にセミナー、研究会、シンポジウムにて 7 件発表)

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