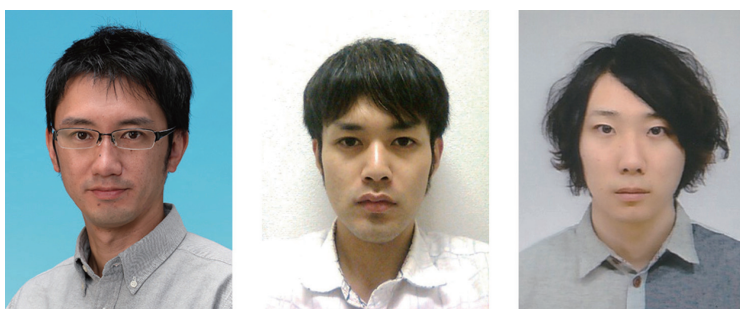


自己組織化量子ドットを用いた医療 OCT 用近赤外広帯域光源の開発

和歌山大学システム工学部 尾崎 信彦, 竹内 晃一, 保田 拓磨
 物質・材料研究機構 池田 直樹, 渡辺 英一郎, 大里 啓孝, 津谷 大樹, 杉本 喜正



(左から) 和歌山大学システム工学部 尾崎 信彦, 竹内 晃一, 保田 拓磨



(左から) 物質・材料研究機構 池田 直樹, 渡辺 英一郎, 大里 啓孝, 津谷 大樹, 杉本 喜正

1. はじめに

近赤外光は波長 $0.7 \sim 2.5 \mu\text{m}$ 程度の光であり, 生体組織に対して透過率が高く, 非侵襲であることから, 生体・医療イメージングへの応用が進んでいる. 生体内には光を吸収・散乱する物質が多く, 特に水やヘモグロビンによる吸収が強い. 図 1 に示すように, 血液中に含まれる酸素化ヘモグロビンは波長 $\lambda < 0.7 \mu\text{m}$ の光を大きく吸収し, 水は $\lambda > 1.3 \mu\text{m}$ の光を大きく吸収する. 両者の光吸収が最小となる $0.7 \mu\text{m} < \lambda < 1.3 \mu\text{m}$ 程度の波長域は生体に対して特に透過性の高い領域であり, 「生体の窓」と呼ばれ生体・医療イメージングに有用な波長域と考えられている [1].

この波長領域の光源を用いた医療用断層イメージング技術である OCT (Optical Coherence Tomography) が近年著しい発展を見せている. OCT は非侵襲に生体内部断

層を観察できる手法であり, 1990 年代初頭に原理提唱 [2] されてから僅か 10 年の間に眼科臨床において実用化され, 現在は循環器や消化器といった様々な部位への応用が進められている [3]. 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) な光源をプローブ光として用いることにより, 観察対象物内部の局所領域における干渉強度を測定する. この干渉強度は干渉対象物の反射率 (屈折率) に比例するため, 参照ミラーを掃引し干渉強度分布をコントラスト表示することでプローブ光の光軸方向の層構造を画像化できる. さらにプローブ光をサンプル面内で走査すれば 2 次元もしくは 3 次元の断層画像が得られる (図 2). このとき, OCT の光軸方向分解能は, 干渉が起こる範囲すなわち光源のコヒーレンス長 (l_c) の半分となり, 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 $0.44 \times \lambda_0^2 / \Delta\lambda$) [4]. 従って, 中心波長を近赤外領域に持ち波長帯域が広い光

源が、高到達深度、高分解能を得られる光源となる。また、OCT 画像の画素スペクトルは、光源スペクトルのフーリエ変換で得られるコヒーレンス関数によって決まるため、光源スペクトル中にディップが存在すると画像ノイズの原因となる [5]。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。

まとめると、OCT の高性能化には、①広帯域（高分解能に寄与）、②ガウシアンライクなスペクトル形状（低ノイズ化に寄与）、③近赤外中心波長（高到達深度に寄与）の3つの条件をみたす光源の開発が要求される。我々はこの課題に応える光源として、次節に述べる GaAs 基板上に自己組織的に成長した InAs 量子ドット (QD) を用いた

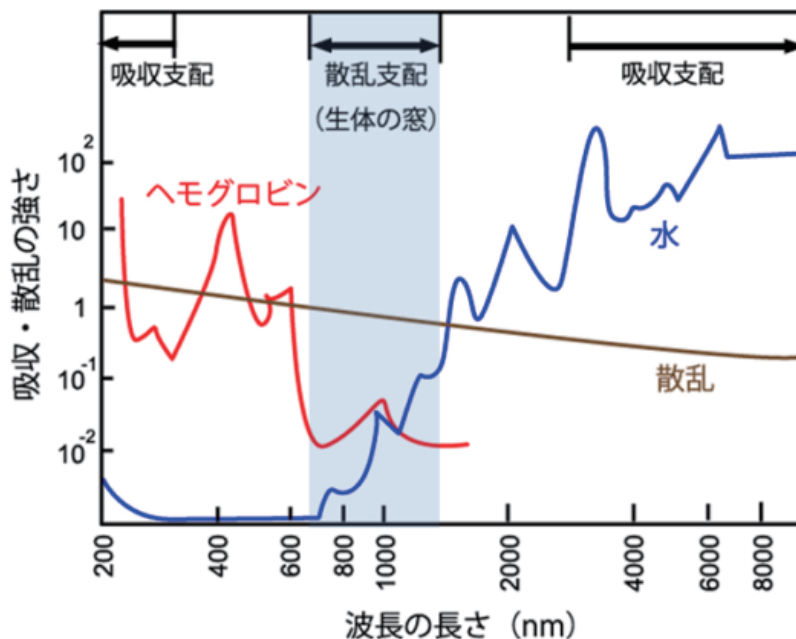


図1 生体による光吸収および散乱強度の波長依存性 [1]

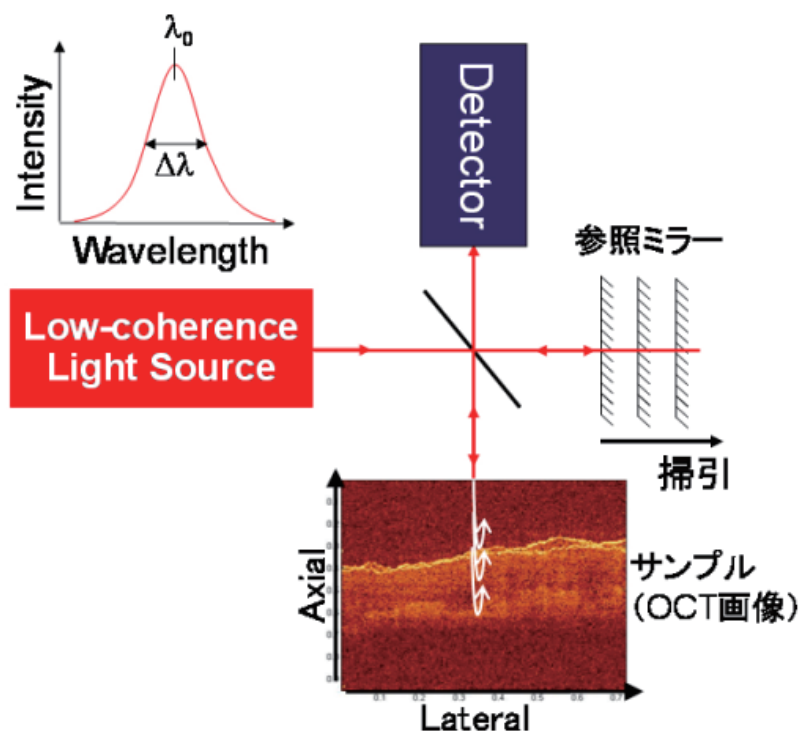


図2 OCTの構成模式図

「スペクトル形状制御可能な広帯域近赤外光源」を提案し、その開発を行っている。

なお、本研究は、著者（尾崎，池田，杉本）らが以前に光通信用の光学素子開発にて培った QD 成長技術や半導体微細加工技術が、奇しくも医療イメージング分野においても応用可能であることを見出したのをきっかけにスタートした。和歌山大学と NIMS が互いに得意とする技術（QD 成長と微細加工）を活用できる文科省ナノテクノロジープラットフォーム事業により研究推進が大いに加速されたことを付記する。



2. 自己組織化 InAs-QD を用いたスペクトル形状制御可能な広帯域光源の提案

GaAs 基板上的 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 [6]。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（図 3 左）。そのため、QD のサイズによってバンドギャップが変化する量子サイズ効果により発光スペクトルは広帯域になりやすい。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（図 3 右）。また、GaAs 基板上 InAs-QD の発光中心波長は $1.2 \sim 1.3 \mu\text{m}$ 程度と「生体の窓」領域の波長を得やすい。

我々はこれまで MBE 法による GaAs 基板上 InAs-QD の成長時に、基板上的所望の領域に中心波長を制御した QD 群を複数成長する技術を開発してきた [7]。この技術は、回転式メタルマスク成長法と名付けており、次節で詳しく述べるが、金属製のシャドウマスク（メタルマスク）を基板上に被覆し、マスクに設けられた開口部下のみに

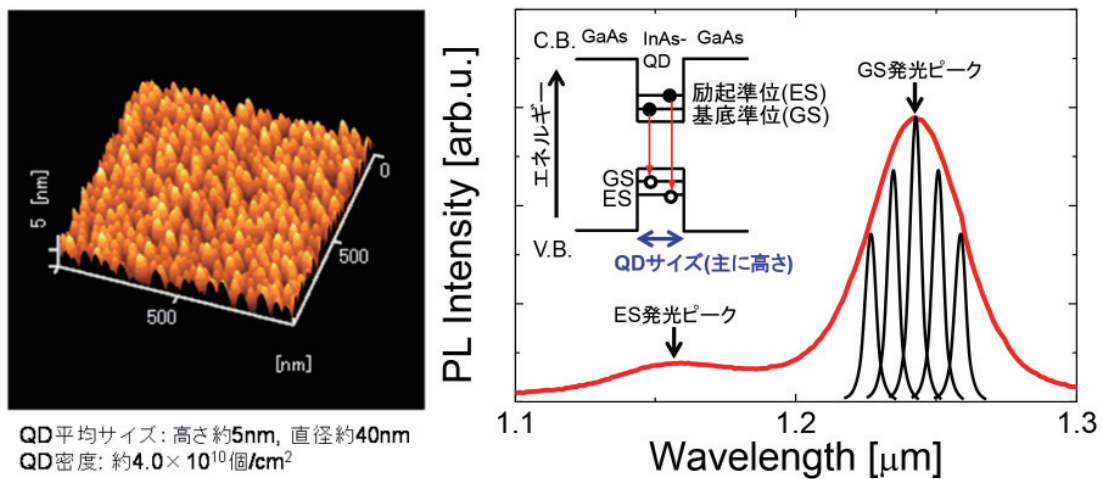


図 3 GaAs 基板上に成長した InAs-QD の AFM 画像（左）と室温での PL スペクトル（右図中の赤線）

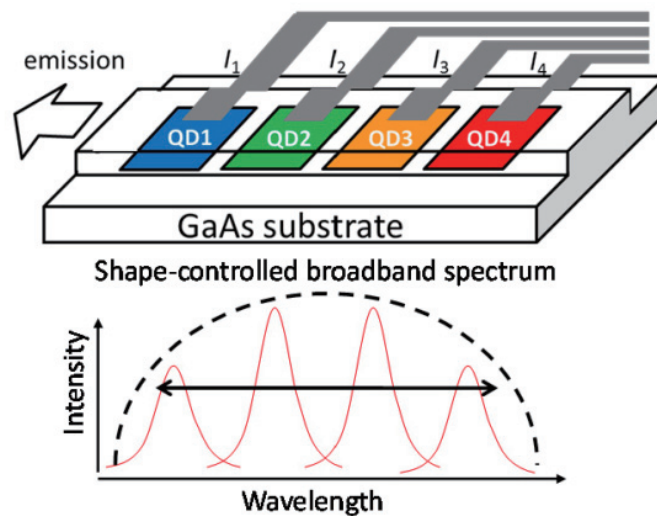


図 4 4 波長 QD 並列構造によるスペクトル形状制御可能な超広帯域光源の模式図。

原料供給がなされる仕組みになっている [8]. このマスクの特長として、超高真空中で脱着および回転が可能となっており、また開口部のパターンが回転非対称になっているため、一定の角度で回す度に開口部が移動し、成長領域を隣接領域に並べていくことが可能である。さらに、それぞれの QD 上に歪緩和層 (SRL) [9] と呼ばれる QD への圧縮応力を緩和する InGaAs 層を異なる厚みで積層することで、QD の実効的な高さを制御して発光波長を制御することが可能となる。この手法を応用して、図 4 に示すような多波長 QD 成長によるスペクトル形状制御可能な広帯域光源を提案した [10][11]. 中心波長を制御した 4 つの QD 群 (QD1-4) を基板上にモノリシックに成長し、これらを活性層に含むリッジ型光導波路を形成することにより、端面から 4 つの QD 群からの発光を合成したスペクトルが得られる。また、それぞれの QD 群への励起強度を制御することにより、スペクトル形状の成形が可能となる。この手法により、先に述べた OCT の高性能化に寄与する 3 つの条件 (広帯域、スペクトル成形性、近赤外波長) を満たす光源が実現可能となる。



3. モノリシック 4 色 QD を含む導波路作製と出射光評価

3.1 多波長発光 QD を含む基板成長

前節で提案した多波長の自己組織化 QD を含む光導波路の作製を行った。図 5 は多波長 InAs-QD を GaAs 基板上にモノリシックに成長するために開発した 90 度回転式のメタルマスク (MM) の写真と成長時の構造模式図である [12]. 通常の MBE 成長時に GaAs 基板上に MM を被覆し、MM 上に設けられた開口部下にのみ原料供給を行うことで、領域選択成長が可能となる。また、MM は超高真空チャンバー内で脱着および回転が可能で、MM を 90 度回転させるごとに開口部が移動し、選択成長領域を隣接領域に並べていくことが可能である (図 5 (b)).

各領域で QD を成長後、成長した QD 上に SRL ($\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$) を異なる厚みで積層することにより、QD にかかる圧縮応力を緩和し実効的な QD 高さを変化させて発光波長をレッドシフトさせた。波長シフト量は SRL 膜厚に対してほぼ線形に変化し、中心波長を約 1.2 ~ 1.3 μm の範囲で精度よく制御できた。図 6 に得られた 4 色のモノリシック QD 群からの PL 強度マップおよび各 QD 領域からの PL スペクトルを示す。中心波長シフト量約 120nm, GS 発光のみの帯域は約 160nm が得られた。

3.2 リッジ型導波路作製

回転式メタルマスク法により作製された多波長 QD を含む基板に対して微細加工プロセスを行い、リッジ型光

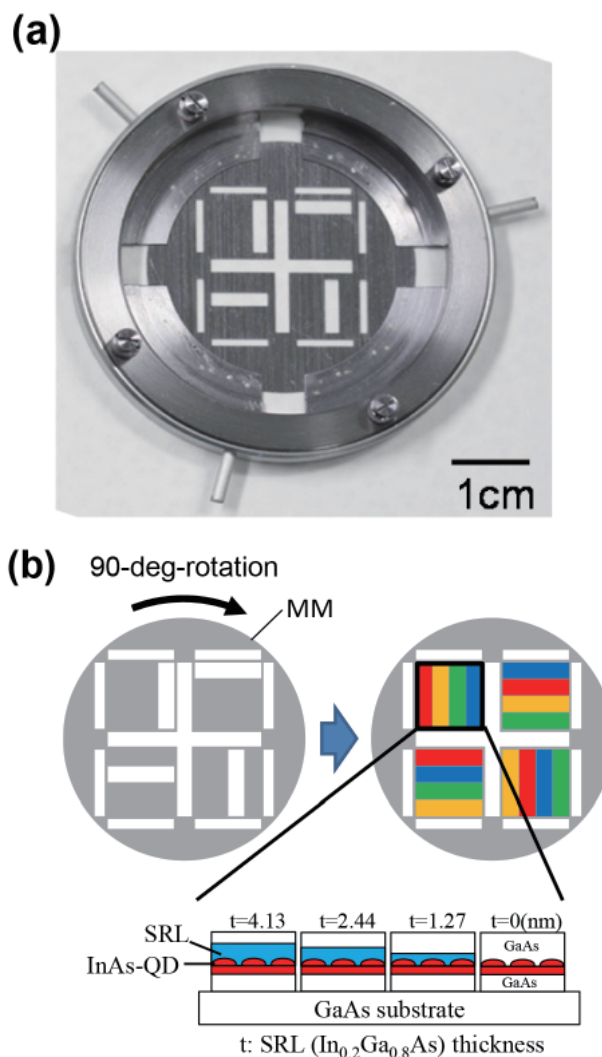


図 5 多波長 QD のモノリシック成長に用いた 90 度回転式メタルマスクの写真 (a) と成長時の構造模式図 (b)

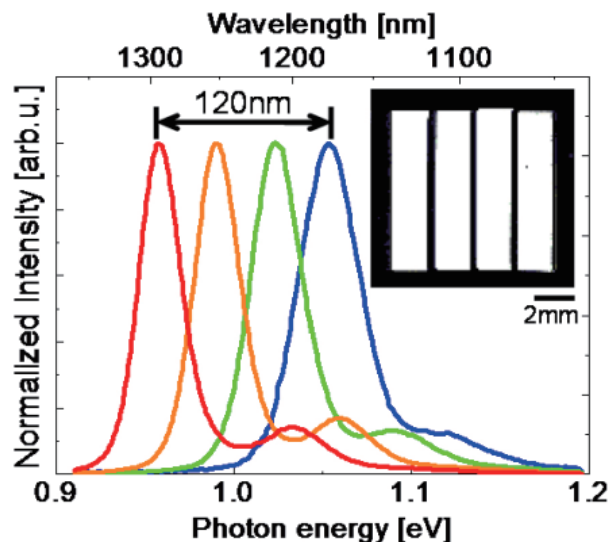


図 6 90 度回転式メタルマスクによって成長した 4 領域の InAs-QD からの PL 強度マッピング (挿入) と PL スペクトル

導波路を作製した。導波路作製にあたり、ビーム伝搬法によるシミュレーションをもとに導波路構造を図7のように決定した。n-GaAs(100) 基板上に GaAs バッファ層 300nm, $\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$ クラッド層 (バリア層) $1.5 \mu\text{m}$ を成長後、メタルマスク法により4色 InAs-QD/GaAs を3層含む活性層の成長を行った。活性層厚は200nmとした。SRL厚はそれぞれ QD1=0, QD2=1.27, QD3=2.44, QD4=4.13 [nm]とした。活性層上に $\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$ クラッド層 (バリア層) $1.5 \mu\text{m}$, GaAs cap 層 20nm を積層し、導波路作製用の基板とした。

図8に示すようにレーザー描画によるフォトリソグラフィにより、4つのQD領域を横切る直線導波路パターンを描画し、ICP-RIEによるドライエッチングでリッジ

導波路を作製した。導波路高さは約 $1.4 \mu\text{m}$, 幅は $3 \sim 100 \mu\text{m}$ の範囲で複数作製した。導波路の両端は劈開により端面形成した。

3.3 光励起による多波長 QD 発光スペクトル合成およびスペクトル形状制御

3.2で得られた導波路に対し2つの励起レーザーを照射し、発生したPL発光を導波路端面から測定した。励起レーザー照射位置および励起強度を変えることにより、得られるスペクトル形状の変化を調べた。測定例を図9に示す。

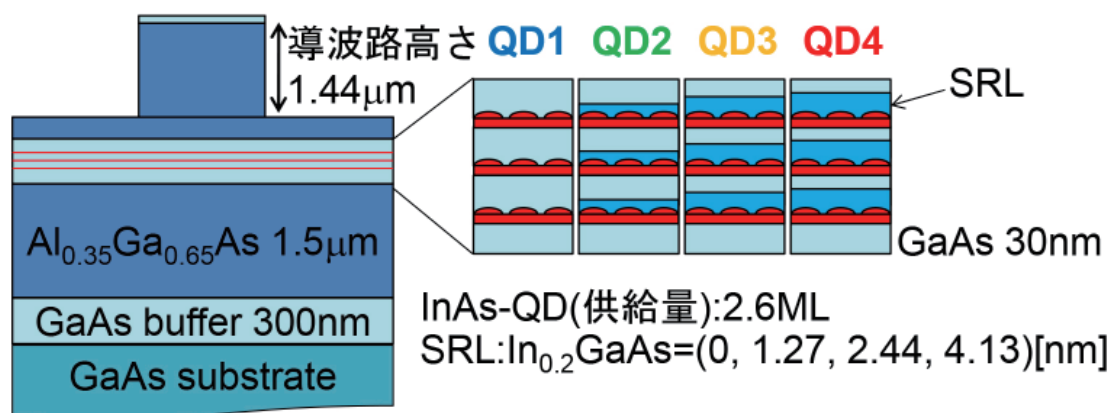


図7 作製したリッジ型導波路の構造断面模式図

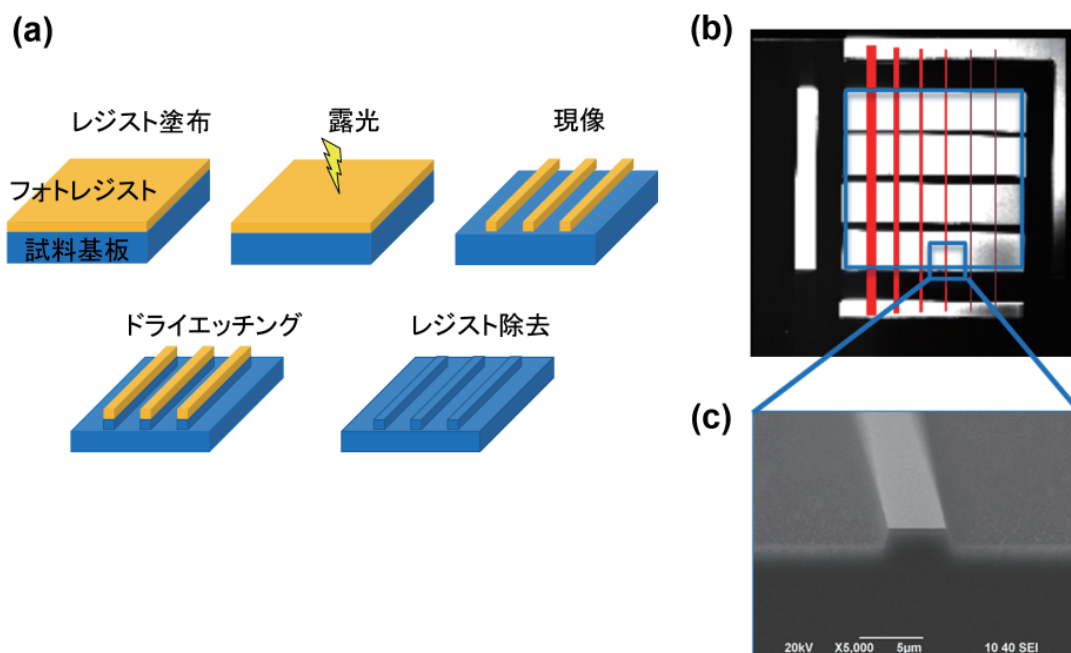


図8 (a) 多波長 QD を含む基板からのリッジ型導波路作製プロセス模式図
(b) 多波長 QD を含む基板からの PL マッピング像と導波路描画パターン
(c) 導波路作製後の端面の SEM 像

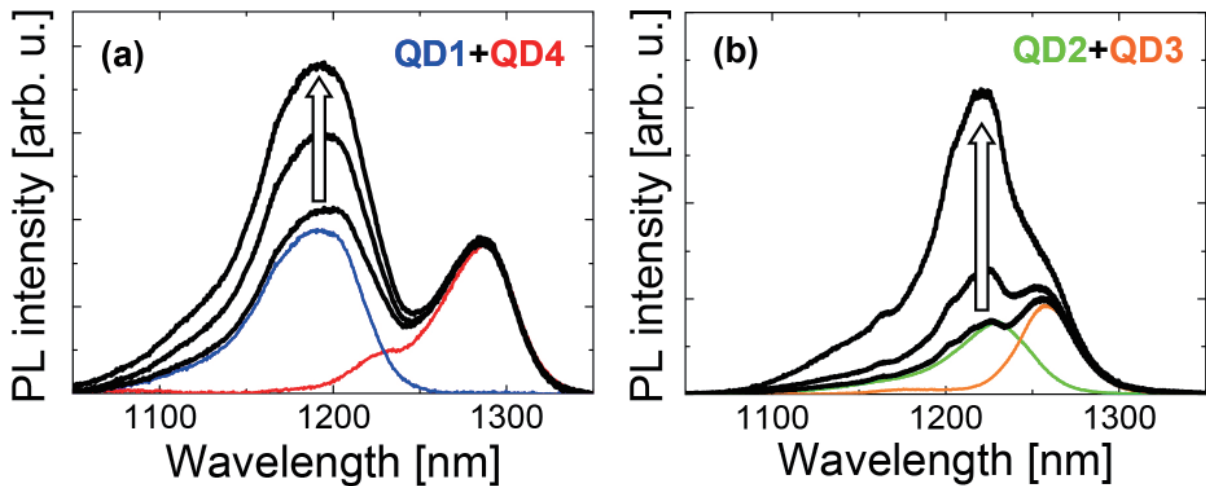


図9 導波路内の異なる QD 領域 2 か所をレーザー励起し、導波路端面から得られたスペクトルの例。励起強度を変化させることでスペクトル形状を制御することにも成功した [13].

図9 (a) は QD1 と QD4 を (b) は QD2 と QD3 を励起した際に得られたスペクトルを黒線で示している。3本の黒線スペクトルはそれぞれ QD1 もしくは QD2 の励起強度のみを増加させていった際に得られたスペクトルである。各色線で示されたスペクトルは、QD1-4 の各領域のみを励起した際のスペクトルであり、これらの QD 発光を合成したスペクトルが導波路端面から得られていることが分かる。また、QD1 もしくは QD2 の励起強度を増加させるにつれ、各 QD からの発光強度が増加し、合成スペクトル形状が変化していることも示された [13].

以上の結果から、多波長発光の QD を含むリッジ型導波路によって広帯域の発光スペクトルを得ることができ、かつ、個別の QD 領域の励起強度を変化させることによりスペクトル形状を成形することに成功した。本研究での提案通り、OCT 高性能化に要求される光源をモノリシック成長した多波長発光 QD によって実現できることが実証された。



4. まとめ

生体・医療用 OCT の高性能化に寄与する、多波長 InAs-QD を発光材料とした近赤外広帯域光源を提案し、その有用性を実証した。我々が独自に開発した成長手法により、もともと広帯域な発光を示す InAs-QD 群を発光波長制御して基板上にモノリシックに複数並列に成長させることに成功した。この手法によって得られる広帯域かつスペクトル形状制御可能な光源は、OCT の画質を向上させる画期的な光源となり得る。現在、この QD を用いた電流注入型の実用的な SLD 光源へと開発を進めており、近い将来に OCT 光源としての実用化が期待される。



謝辞

本研究は、科研費 (23760015, 25286052) およびキャノン財団の助成を受けて実施されました。また、微細加工は文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業 (NIMS 微細加工プラットフォーム) の支援を受けて実施されました。ここに厚く御礼申し上げます。



参考文献

- [1] M. S. Patterson, B. C. Wilson, D. R. Wyman, *Lasers in Med. Sci.* **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**, 1178-1181 (1991).
- [3] A. M. Zysk, F. T. Nguyen, A. L. Oldenburg, D. L. Marks, and S. A. Boppart, *J. Biomed. Opt.* **12**, 051403 (2007).
- [4] M. E. Brezinski, *Optical Coherence Tomography: Principles and Applications* (Academic Press, Burlington, 2006).
- [5] C. Akcay, P. Parrein, and J. P. Rolland, *Appl. Opt.* **41**, 5256 (2002).
- [6] D. Leonardo, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, and P. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3203 (1993).
- [7] N. Ozaki, S. Ohkouchi, Y. Takata, N. Ikeda, Y. Watanabe, Y. Sugimoto, and K. Asakawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **48**, 065502 (2009).
- [8] 特許第 5077880 号

[9] K. Nishi, H. Saito, S. Sugo, and J. S. Lee, Appl. Phys. Lett. **74**, 1111 (1999).

[10]特願 2010-184710

[11]N. Ozaki, K. Takeuchi, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, K. Asakawa, and R. A. Hogg, J. Cryst. Growth **323**, 191 (2011).

[12]N. Ozaki, K. Takeuchi, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y.

Sugimoto, K. Asakawa and R. A. Hogg, IEICE Trans. Electron. **E95-C**, 247 (2012).

[13]N. Ozaki, K. Takeuchi, S. Ohkouchi, N. Ikeda, Y. Sugimoto, H. Oda, K. Asakawa and R. A. Hogg, Appl. Phys. Lett. **103**, 051121 (2013).

(和歌山大学システム工学部 尾崎 信彦)



【お問い合わせ】

微細加工プラットフォーム

NIMS 微細加工プラットフォーム

☎ 029-851-3354

E-mail NIF-office@nims.go.jp

ホームページ

<http://www.nims.go.jp/nfp/>