生体・医療 OCT 光源への応用を目指した $1\mu\text{m}$ 帯広帯域発光 InAs 量子ドットの作製と光学評価†

尾崎 信彦* 日野 雄司* 大河内 俊介**
池田 直樹*** 杉本 喜正***

Growth and Optical Characterizations of InAs-QDs Emitting at $1\mu\text{m}$ with a Broadband Spectrum for a Light Source for Biomedical Optical Coherence Tomography

by

Nobuhiko OZAKI*, Yuji HINO*, Shunsuke OHKOUCHI**, Naoki IKEDA*** and Yoshimasa SUGIMOTO***

Emission wavelengths of self-assembled InAs quantum dots (QDs) were controlled at around $1.05\mu\text{m}$ by using the In-flush technique. A rapid annealing (In-flush) process after the growth of the GaAs capping layer, which partially covers the InAs-QDs, reduces the height of the InAs-QDs to the thickness of the capping layer. Using this technique, the emission wavelengths of the QDs were precisely controlled by varying the thickness of the capping GaAs layer. The central emission wavelength was suitably controlled in the range of approximately $0.95\text{--}1.22\mu\text{m}$. This method enables the realization of a broadband $1.05\mu\text{m}$ light source with a bandwidth of beyond 200nm via a combination of In-flushed QDs. Such a broadband light source with a wavelength of $1.05\mu\text{m}$ is applicable to optical coherence tomography (OCT), thereby enabling high resolution and large penetration depth in the OCT images. In addition, we have grown a sample including stacked layers of In-flushed QDs and obtained an emission spectrum with a central peak at $1.09\mu\text{m}$ and a bandwidth beyond 100nm . These results suggest that an axial resolution of approximately $5\mu\text{m}$ will be achieved by the use of the light source in OCT.

Key words: Quantum dot, Molecular beam epitaxy, In-flush, Broadband near-infrared light source, Biomedical optical coherence tomography (OCT)

1 緒 言

医療用光干渉断層計 (OCT) は、近赤外光を用いた医療イメージング装置であり、生体サンプルの断面を非侵襲的にその場観察できるため、臨床応用に優れた技術として近年発達著しい。¹⁾ 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、プローブ光の光軸方向の干渉強度分布をコントラスト表示し、プローブ光を面内で走査することで 2 次元もしくは 3 次元の断面画像を得ることができる。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の半分となり、 $0.44 \times \lambda_0^2 / \Delta\lambda$ と表される。従って、光源のスペクトル帯域幅 $\Delta\lambda$ が広く、中心波長 λ_0 が短いほど分解能が向上する。²⁾ 一方、生体内の観察では、水やヘモグロビンによる光吸収が起きるため、これらの光吸収が最も少ない波長である $1.05\mu\text{m}$ ($1\mu\text{m}$ 帯) の中心波長を持つ光源であれば、より深い到達深度が得られ、特に眼科臨床分野などで、この波長帯を用いた OCT が注目されている。³⁾

以上から、OCT の高分解能化・高到達深度化には発光中心波長が $1\mu\text{m}$ 帯かつ広帯域なスペクトルを持つ光源が望ましく、そのような光源を実現する発光材料として、我々は自己組織化 InAs 量子ドット (QD) に注目した。InAs-QD は、GaAs 基板上に InAs をエピタキシャル成長させる際に格子不整合により発生するひずみ応力によって自己組織的に成長する (S-K モード成長) QD としてよく知られる。3 次元量子閉じ込め効果により高効率な近赤外発光を示し、そのサイズによって発光波長が変化する。さらに、自己組織的に成長するため、もともと一定のサイズ分布を持ち、発光が広帯域になりやすい。GaAs 基板上に成長させた InAs-QD は、約 $1.2 \sim 1.3\mu\text{m}$ に発光中心波長を示すが、本研究では In-flush 法⁴⁾ と呼ばれるサイズ制御法を用いることで、InAs-QD の発光波長を $1\mu\text{m}$ 帯に短波長化し、先述の医療 OCT に有用な広帯域光源材料とすることを目指した。

2 実験手法

サンプル作製には分子線エピタキシー (MBE) 法を用いた。GaAs (100) 基板上に InAs-QD を基板温度約 480°C 、InAs 供給量 2.0ML で成長させた。成長した QD の密度は約 $4.6 \times 10^{10}\text{cm}^{-2}$ 、平均直径と平均高さはそれ

† 原稿受理 平成 25 年 3 月 11 日 Received Mar. 11, 2013 ©2013 The Society of Materials Science, Japan

* 和歌山大学システム工学部 〒640-8510 和歌山市栄谷, Wakayama Univ., Sakaedani, Wakayama, 640-8510

** 日本電気(株) 〒305-8501 茨城県つくば市御幸が丘, NEC Corp., Miyukigaoka, Tsukuba, 305-8501

*** (独)物質・材料研究機構 〒305-0047 茨城県つくば市千現, NIMS, Sengen, Tsukuba, 305-0047

ぞれ約 48nm, 4.5nm であった。このときの QD の発光中心波長は約 1.22 μ m であった。QD 成長後, 基板温度約 420 $^{\circ}$ C で GaAs-cap 層を 1 ~ 5nm 程度の様々な厚み (d_{cap}) で堆積させ, 基板温度を短時間で上昇および下降させる (In-flush) ことで QD 高さを GaAs-cap 層厚に制御し, 発光波長を 1 μ m 帯に短波長化させた (Fig. 1 (a)). このときの In-flush 時の到達温度 (T_{max}) と GaAs-cap 層成長温度 (T_{cap}) との差を基板温度上昇値 (ΔT) とする (Fig. 1 (b)). 成長後の QD 構造評価には原子間力顕微鏡 (AFM) および透過型電子顕微鏡 (TEM) を用い, 光学特性は室温におけるフォトルミネッセンス (PL) 測定により評価した。PL の励起光源には He-Ne ($\lambda = 632.8$ nm) レーザーを用いた。

3 結果と考察

3・1 In-flush を行った QD の構造評価

GaAs 基板上に自己組織的に成長した InAs-QDs の AFM 観察像を Fig. 2 (a) に, GaAs-cap 層 ($d_{cap} = 1.2$ nm) で積層後に In-flush を行ったサンプル表面の AFM 観察像を (b) に示す。In-flush 時の ΔT は約 60 $^{\circ}$ C であった。これらの像より, cap 層から部分的に突出した QD は In-flush によって拡散し, サンプル表面が平坦化していることがわかる。また, Fig. 2 (c) は同条件で In-flush を行った後に GaAs で埋め込んだ QD の断面 HRTEM 像であ

Fig. 2 AFM images of sample surfaces : (a) as-grown InAs-QDs and (b) In-flushed QDs. (c) Typical cross-sectional HRTEM image of the In-flushed QD with $d_{cap} = 1.2$ nm.

る。GaAs の面間隔をもとに見積もられた QD 高さは約 1.2nm となり, In-flush によって InAs-QD の高さがほぼ GaAs-cap 層厚に制御できていることが確認された。

3・2 In-flush を行った QD の PL 評価

次に, In-flush 時の GaAs キャップ層厚 (d_{cap}) を様々な厚みに変え, QD の高さ制御を行った。Fig. 3 に d_{cap} を変化させて In-flush を行ったサンプルの PL スペクトルをまとめた。 d_{cap} を薄くするほど InAs-QD の発光波長が短波長化され, In-flush を行っていないサンプル J に対し, 最大で 270nm の短波長シフトを得た。In-flush による QD の高さ減少により, 量子サイズ効果のために発光短波長化が起きた結果と考えられる。 d_{cap} による発光中心波長制御は再現性も良く, 所望の 1 μ m 帯発光への応用が見込まれる手法であることが示された。

また, d_{cap} を 2.0nm 以下に小さくしたサンプル (A ~ E) において, PL スペクトル中に複数のピークが表われた。Fig. 4 上部にサンプル A-E の PL スペクトルと, 現れた複数のピーク (マルチピーク) を 1 ~ 6 の破線で示した。注目すべきは, 異なるサンプルにおいてもマルチピークのピーク波長が破線部で一致していることである。これは, マルチピークが InAs-QD の ML 単位の高さ変化によ

Fig. 1 (a) Schematic image of height control of InAs-QDs with the In-flush. (b) Growth sequence of the In-flush process.

Fig. 3 Summary of PL spectra of In-flushed InAs-QDs (samples A-J) capped with GaAs layers of different d_{cap} .

Fig. 4 Multiple peaks (#1-#6) in PL spectra of samples A-E (upper) and schematic image of QDs with height-fluctuations of ML-step (lower).

る離散的な発光準位によるものであることを示唆している。 d_{cap} を小さくしてIn-flushを行ったため、QDの直径方向の量子閉じ込めよりも高さ方向の量子閉じ込めが支配的となり、Fig. 4下部に示すようなML単位のQD高さゆらぎがPLスペクトル中にマルチピークとして顕著に表われた結果ではないかと考えられる。

3・3 In-flushed QD における PL 発光強度

In-flushを行うことでInAs-QDの発光中心波長は精度良く制御できることが示されたが、 d_{cap} を薄くするにつれてIn-flush後のQDのPL発光強度が減少する傾向がみられた。QDは成長時の基板温度や成長条件によって構造や光学特性が大きく変化するため、In-flushによる基板温度上昇時にQDの構造劣化や非発光中心の導入が起きたことが原因ではないかと考えられた。⁵⁾そこで、In-flush時の基板温度上昇値(ΔT)を変化させ、PL発光強度に及ぼす影響を調べた。

ΔT を $33^\circ\text{C} \sim 80^\circ\text{C}$ とした各サンプルからのPL発光強度と発光中心波長をプロットしたものをFig. 5に示す。

Fig. 5 Plots of PL emission intensities and wavelengths versus the increase in temperature (ΔT) for In-flushed QDs.

d_{cap} は全て 2.0 nm とした。 ΔT を低くすることで、発光中心波長は約 $1.06 \mu\text{m}$ からほぼ変化せず、一方で、PL発光強度が増加することが分かった。

また、Fig. 6は $\Delta T =$ (i) 80°C , (ii) 45°C , (iii) 33°C の各サンプルのPLスペクトルを示したものである。 ΔT が最も低いサンプル (iii) は、 ΔT が最も高いサンプル (i) に対して約3倍のPL発光強度が得られた。これらの結果は、 ΔT を低くすることによってIn-flush時の基板温度上昇によるQDの構造劣化や非発光中心の導入を抑制できたためと考えられる。

3・4 In-flushed-QD 積層サンプルの光学評価

以上の結果を踏まえ、発光中心波長を $1 \mu\text{m}$ 帯とした広帯域な発光を得るため、異なる d_{cap} でIn-flushを行ったQDを5層積層したサンプルを作製した。Fig. 7に示すように、下層から順に、 $d_{\text{cap}} = 2.4 \text{ nm}$, $\Delta T = 59^\circ\text{C}$ を1層、 $d_{\text{cap}} = 2.0 \text{ nm}$, $\Delta T = 29\text{--}35^\circ\text{C}$ を3層、 $d_{\text{cap}} = 1.4 \text{ nm}$, $\Delta T = 31^\circ\text{C}$ を1層積層成長し、3・3節の実験結果から得られたように、薄い d_{cap} でIn-flushを行ったQD層に対しては、発光強度減少を抑制するため ΔT を低くして成長を行った。

Fig. 7のサンプルに対して、上方から励起光を入射してPL評価を行った結果をFig. 8に示す。発光中心波長約 $1.09 \mu\text{m}$ 、帯域約 102 nm の広帯域なスペクトルが得られた。単層InAs-QDのスペクトル半値幅が $40 \sim 50 \text{ nm}$ 程度であるのに対し、 ΔT を制御したIn-flushed-QDを5

Fig. 6 Comparison of PL spectra of In-flushed QDs for different values of ΔT : (i) 80°C , (ii) 45°C , and (iii) 33°C .

Fig. 7 Profile image of grown sample including stacked 5 layers of In-flushed QDs.

Fig. 8 PL spectrum obtained from the sample including stacked 5 layers of In-flushed QDs.

層積層することによって 50nm 以上の広帯域化が実現された。このようなスペクトルを持つ光源を OCT に使用した場合、光軸方向分解能は理論上約 $5\mu\text{m}$ となり、高い分解能が期待できる。

また、発光スペクトル中には僅かにディップが発生しているが、概ねガウシアン形状に近い単一ピークが得られた。OCT 画像取得時の干渉強度の包絡線関数は、発光スペクトルのフーリエ変換であるコヒーレンス関数で表されるため、発光スペクトル中に大きなディップなどの形状が含まれると、画像内のノイズの原因となるサイドローブが発生する。⁶⁾今回得られた発光スペクトルをフーリエ変換して得られたコヒーレンス関数 (Fig. 9) にはサイドローブが殆ど確認されず、OCT 画像取得時のノイズ抑制効果も期待できる結果となった。

Fig. 9 Fourier transformed spectrum of the PL spectrum shown in Fig. 8.

4 結 言

生体・医療 OCT の高性能化に寄与する光源を目指し、発光波長 $1\mu\text{m}$ 帯かつ広帯域発光を示す InAs-QD の作製と光学評価を行った。MBE 法による QD 成長時に、QD 高さ制御法である In-flush 法を用いることで $1\mu\text{m}$ 帯への発光波長制御を行った。また、In-flush 時の基板温度上昇値 (ΔT) を制御することで、GaAs-cap 層厚の薄い In-flushed-QD の発光強度減少を抑制することに成功した。これらの結果を踏まえ、 ΔT を制御した異なる GaAs-cap 層厚を持つ In-flushed-QD を 5 層積層したサンプルを作製した結果、発光波長 $1\mu\text{m}$ 帯かつ帯域 102nm の広帯域なスペクトルを実現した。これは、理論光軸方向分解能約 $5\mu\text{m}$ が期待でき、高分解能かつ高到達深度 OCT 光源としての有用性が示された。

本研究は、科研費、カシオ科学振興財団およびキャノン財団の助成を受けました。TEM 試料作製および観察は、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)、東北大学金属材料研究所研究部共同利用研究、大阪大学大学院理学研究科河野日出夫先生らのご協力により実施されました。

参 考 論 文

- 1) Adam M. Zysk, Freddy T. Nguyen, Amy L. Oldenburg, Daniel L. Marks and Stephen A. Boppart, "Optical coherence tomography : a review of clinical development from bench to bedside", Journal of Biomedical Optics, Vol.12, No.5, 051403, pp.1-21 (2007).
- 2) M. E. Brezinski, "Optical coherence tomography : principles and applications" (2006) Academic Press.
- 3) M. Hangai and Medical Photonics, No.7, pp.58-64 (2011).
- 4) Z. R. Wasilewski, S. Fafard and J. P. McCaffrey, "Size and shape engineering of vertically stacked self-assembled quantum dots", Journal of Crystal Growth, Vol.201/202, pp.1131-1135 (1999).
- 5) N. Kumagai, S. Ohkouchi, S. Nakagawa, M. Nomura, Y. Ota, M. Shirane, Y. Igarashi, S. Yorozu, S. Iwamoto and Y. Arakawa, "Suppression of indefinite peaks in InAs/GaAs quantum dot spectrum by low temperature capping in the indium-flush method", Physica E, Vol.42, pp.2753-2756 (2010).
- 6) Ceyhun Akcay, Pascale Parrein and Jannick P. Rolland, "Estimation of longitudinal resolution in optical coherence imaging", Applied Optics, Vol.41, pp.5256-5262 (2002).