自己組織化量子ドットを用いた広帯域スーパーluminescentダイオードの開発と 光コヒーレンストモグラフィーへの応用

尾崎 信彦

和歌山大学 システム工学部 (〒 640-8510 和歌山県和歌山市栄谷 930)

Development of a Broadband Superluminescent Diode Based on Self-Assembled Quantum Dots for Optical Coherence Tomography Applications

Nobuhiko OZAKI

Faculty of Systems Eng., Wakayama University, 930 Sakaedani, Wakayama, Wakayama 640-8510

(Received June 20, 2019)

This paper reviews a near-infrared (NIR) superluminescent diode (SLD) based on self-assembled InAs quantum dots (QDs). Self-assembled InAs QDs exhibiting a broadband NIR spectrum due to their size and In composite distributions are suitable for optical coherence tomography (OCT) applications. We developed a QD-based SLD (QD-SLD) and demonstrated high-axial-resolution OCT imaging using the QD-SLD. InAs QD layers with controlled emission wavelengths were grown on GaAs, and an edge-emitting SLD with a tilted waveguide and segmented electrodes was fabricated. An electroluminescence spectrum spanning approximately 1 - 1.3 μm with a bandwidth of 144 nm was obtained, and the inverse Fourier transform of the spectrum predicted an axial-resolution of 3.6 μm in air. OCT images of test samples obtained with the QD-SLD actually indicated an axial resolution of $\sim 4 \mu\text{m}$, which is less than that of a conventional OCT (10 - 15 μm). This practical imaging demonstrates the potential of the QD-SLD as a high-axial-resolution OCT light source.

Key Words: Self-assembled quantum dot, Superluminescent diode, OCT

1. はじめに

近赤外光(波長約 0.7~2.5 μm)は、光通信やバイオイメージングなど様々な分野で広く利用されている。特に、波長 0.7-1.3 μm 程度の領域は「生体の窓」と呼ばれ、生体の主要な構成元素である血中ヘモグロビンや、メラニン、水による吸収が少なく、生体内の透過性が高いことから医療・生体イメージングに有用な波長帯とされる¹⁾。この波長帯の光を用いた非侵襲な断層イメージング技術として、光コヒーレンストモグラフィー(OCT)が知られる。OCTは、1991年のHuangらによる網膜と冠動脈壁のin vitro観察の報告²⁾以来、数年の間に眼科臨床応用がなされ、現在では眼科のみならず、皮膚科、循環器内科、歯科など様々な臨床医学分野に広がっている³⁻⁵⁾。また最近では、医療用途のみならず、非破壊検査など産業用途にも応用が進められている。

OCTはマイケルソン干渉計を基本構成とし、光源に広帯域(低コヒーレンス)光を用いた低コヒーレンス光干渉によってサンプル内部の断層画像取得を可能にする。詳細な原理は後述するが、OCTの性能を決めるのは主

として光源であり、特に医療用途には近赤外波長の広帯域光源開発が重要である。これまで様々なOCT用の光源開発が進められてきているが、本稿では、その中で半導体ベースの広帯域光源であるスーパーluminescentダイオード(SLD)^{6,7)}に焦点を当て、その課題である広帯域化を実現すべく、我々がこれまで開発してきた自己組織化InAs量子ドット(QD)⁸⁾を発光材料とするSLD光源(QD-SLD)を中心に紹介する。

2. OCTの原理と光源

OCTには幾つかの画像取得方式があり、ここではHuang²⁾らによって報告された第一世代の時間領域(Time-domain: TD)-OCTを基に動作原理を簡単に述べる。Fig. 1に示すように、OCTは光干渉計をベースとし、光源に低コヒーレンス光を用いる。光源からの光がビームスプリッタにより二分岐され、参照ミラーとサンプルに入射した後、それぞれの反射光が再びビームスプリッタで合波、干渉すると検出器により干渉強度が測定される。ここで、低コヒーレンス光の可干渉範囲は、光源とサン

Fig. 1 Schematic image of TD-OCT.

プル間および光源と参照ミラー間の光学距離が等しい位置から有限の距離(コヒーレンス長: l_c)に限定されるため、サンプル内の光軸上の局所領域の反射強度を計測することになる。参照ミラーを軸上で移動させながら干渉強度を測定すると、サンプル内の光軸上の反射率分布、すなわち反射層の位置を計測でき、光軸をサンプル面内で走査すれば、2次元や3次元のOCT画像が得られる。得られる画像の光軸方向の分解能(Δz)は、コヒーレンス長の半分(反射光路差は光軸上距離の2倍)となり、光源スペクトルがガウシアン形状の場合、 Δz は式(1)で表される³⁾。

$$\Delta z = \frac{2 \ln 2}{\pi} \frac{\lambda_0^2}{\Delta \lambda} \quad (\lambda_0: \text{中心波長}, \Delta \lambda: \text{帯域幅}) \quad (1)$$

この式から分かる通り、OCTの光軸分解能は光源の中心波長と帯域幅に依存し、中心波長が短い、もしくは帯域が広い光源が高分解能化に貢献する。医療用OCTの場合は、サンプル内への浸透長を得るために中心波長は先述の「生体の窓」領域(約0.7~1.3 μm)に設定することが望ましいので、高分解能化には、この波長帯での帯域幅の拡大が必要となる。また、OCTの点拡がり関数(PSF)は、光源パワースペクトルのフーリエ変換で得られる自己相関関数(Wiener-Khinchineの定理)によって決まる³⁾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⁹⁾。そのため、スペクトル形状はガウシアンなどの単峰性形状が望ましい。

TD-OCTの開発後、Spectral-domain(SD)-OCT¹⁰⁾やSwept-source(SS)-OCT¹¹⁾といった、多波長の光干渉信号をフーリエ逆変換によって空間情報に直すFourier-domain(FD)方式と呼ばれるOCTが提案された。TD-OCTと比較して、参照ミラー駆動が不要のため高速で、感度も2-3桁向上できるため、現在の市販OCTの主流となっている。動作原理については既に優れた解説があ

るので¹²⁻¹⁴⁾、詳細はそちらを参考頂きたいが、FD方式においても、OCTの光軸分解能(Δz)が光源の中心波長と帯域に依存することはTD-OCTと同様であり、OCTに適した光源として近赤外波長において広帯域かつスペクトル中にディップが少ない光源が求められる。

このような要求に対し、OCT光源として当初から用いられたのは半導体ベースのSLD光源である。しかしながら、SLDは広帯域化に限界があり、他の選択肢として様々な広帯域光源(熱光源^{15,16)}、fsパルスレーザー¹⁷⁾、Supercontinuum光源^{18,19)}など)が検討、開発され、高分解能化を実現してきている。これらの光源に対し、SLDは半導体デバイスゆえの軽量・コンパクト、低コスト、高信頼性といったメリットがあり、現在も一定の需要がある。SLDの広帯域化が実現されれば、半導体デバイスの利点を活かしながら高分解能OCTを実現する光源としての利用価値がある。

3. 自己組織化量子ドットを用いたSLD光源

SLD^{6,7)}は通常の半導体レーザー(LD)と同様、p-i-n接合内に活性層を埋め込み、上下クラッド層とリッジ型導波路などにより形成された導波モード光を端面出射にて得る。LDとの違いは、端面に反射抑制(AR)コートを施したり、端面に対する導波路の入射角度を傾斜させるなどして端面反射を低減し、チップ内部でのレーザー発振を抑制する点である。つまり、光利得による発光増幅は起こすが、LDのようなコヒーレンス性はわざと低下させているため、高強度な低コヒーレンス光が得られる。この特徴から、SLDはLEDとLDの中間の性質を持つ光源とも言われる。SLDの発光材料は一般的にInGaAsP系などの半導体量子井戸(QW)が用いられ、均一膜厚であるQWの狭帯域発光特性のためSLDの発光帯域幅が100 nm程度に制限される。そこで、QWを自己組織化QD⁸⁾に置き換えて広帯域化を実現する案が1999年にSunらによってなされ²⁰⁾、その後我々を含む多くのグループによって開発がなされてきた²¹⁻²⁹⁾。

GaAs上にInAsをエピタキシャル成長させると、両者の格子定数差による歪により、一定の臨界膜厚以上で三次元(島状)成長に転移する(S-K成長モード)⁸⁾。この島状の微結晶が自己組織化QDと呼ばれるものである。

Fig. 2 (a) AFM image and (b) PL spectrum of self-assembled InAs QDs.

Fig. 2(a)に、InAs-QD集合体の分子間力顕微鏡(AFM)像の例を示す。歪誘起によって自然発生的に成長するため、QD集合体には一定のサイズ分布が発生する。サイズが異なると量子サイズ効果によりQDのバンドギャップエネルギーが変化するため、一定のサイズ分布を持ったQDの集合体からは、広帯域な発光が得られる。GaAs基板上のInAs-QDは、バンドギャップエネルギーが約1 eV(発光波長が1.2~1.3 μm)であり、先述のOCT光源への要求を満たす発光材料となる。

また、QDは3次元の量子閉じ込め効果により、離散的なエネルギー準位を持つ。Fig. 2(b)にQDの室温でのPLスペクトルを示すが、QDのバンドギャップエネルギーに相当する最低次のエネルギー準位(GS: Ground State)間の発光と、その上のエネルギー準位である第一励起準位(ES1: 1st Excited State)間の発光が2つのピークとして表れている。それぞれのピークは、QDサイズ分布による広帯域な発光となり、弱励起状態ではGS間発光強度が支配的であるが、励起強度を上げるとGS間発光強度は飽和し、その後ES間発光強度が増大する。QDはQWと比べてGSの状態数が少ないため、低電流密度でGS間発光が飽和し、高次準位間の発光が寄与するため、発光帯域が短波長側へ拡大しやすい。以上のように、自己組織化QDは、一定のサイズ分布および高次準位間発光の寄与により、広帯域な発光が期待できる。

Fig. 3(a)に、我々が作製したQD-SLDの断面模式図を示す。分子線エピタキシー法により、n-GaAs基板上にp-i-n接合のGaAs/AlGaAs層を積層し、240 nm厚のGaAs導波層を1.5 μm 厚の上下クラッド層(n-/p-Al_{0.35}Ga_{0.65}As)で挟むことでキャリアおよび光閉じ込めを行った。導波層内には、発光波長を制御したInAs-QDを4層積層した。QDの発光波長制御のために、

Fig. 3 (a) Schematic profile of a fabricated QD-SLD. (b) PL spectra of QDs with controlled emission peak wavelengths. (c) Plan-view photograph (left) and schematic drawing (right) of the fabricated QD-SLD with a tilted RWG and segmented contact electrodes.

歪緩和層(SRL: Strain-reducing Layer)³⁰⁾と呼ばれるIn_{0.2}Ga_{0.8}As薄膜をQDとGaAsスペーサー層との間に異なる膜厚(0~4 nm)で積層した。SRLはQDにかかるGaAsからの圧縮応力を低減させ、実効的なQDの量子閉じ込めサイズを拡大する効果があり、厚みを増やすことで連続的な波長シフトが可能となる。SRL膜厚により発光波長を制御したQDからのPLスペクトル例をFig. 3(b)に示す。このようにQDの中心波長を連続的にシフトさせて積層することで、更なる発光広帯域化と、GS間発光とES間発光との間の強度谷間を埋め合わせた単峰性スペクトルが期待できる²⁴⁾。

この成長基板に対し、半導体微細加工プロセスでリッジ型導波路を形成後、長さ4 mmのチップ状にへき開し、端面出射型のSLDデバイスとした(Fig. 3(c))。導波路はへき開面に対し垂直方向から約6度の角度で入射する斜め導波路とした。また、導波路上に設ける電極は、4つの領域に分割した構造²⁷⁾とした。分割電極の出射端に近い領域にのみ電流を注入し、電流密度を上げてQDの高次準位発光を促進するとともに、電流を注入しない領域を光吸収領域としてチップ内のレーザー発振を抑制し、より広帯域なSLD特性が得られるよう図った。

Fig. 4(a)にELスペクトルの例を示す。注入電流量を増加するにつれ発光波長1.2~1.3 μm のGS間発光強度は飽和しES間発光が寄与するため、発光ピーク波長は約1.1 μm にブルーシフトし、帯域は144 nmが得られた。このELスペクトルをフーリエ変換して得られた自己相関関数をFig. 4(b)に示す。半値全幅は3.6 μm となり、

Fig. 4 (a) EL spectrum and (b) IFT spectrum obtained from the fabricated QD-SLD.

OCT 光源として用いた場合、空気中での光軸分解能が約 $4\ \mu\text{m}$ と見込まれる結果になった²⁸⁾。

4. QD-SLD による OCT イメージング

作製した QD-SLD を、実際に OCT 光源として使用した際の性能を評価するため、作製した SLD チップをファイバー結合モジュールとし、Fig. 5(a)に示すような SD-OCT システム²⁶⁾に導入した。ファイバーベースの干渉計から得られた干渉光スペクトルを逆フーリエ変換して光軸上の反射光強度の空間分布を取得した。

Fig. 5(b)に、参照ミラーとの光路差約 $300\ \mu\text{m}$ の位置にサンプルミラーを置いて取得した干渉光スペクトル(左)とフーリエ変換で得た反射光強度分布(右)を示す。この反射光強度ピークが光源の PSF に相当し、その半値幅から見積もられた光軸分解能は $4.2\ \mu\text{m}$ となった。これは Fig. 4(b)の自己相関関数から見積もった値に近い値であり、一般的な市販 SLD による分解能 ($10\sim 15\ \mu\text{m}$)を数倍程度上回る。また、PSF 形状は単峰性であり、顕著なサイドローブが発生していないことから、光源のスペクトル形状制御の有効性も確認できた。

テストサンプルとして厚さ約 $5\ \mu\text{m}$ の高分子(ニトロセルロース)膜の断層画像を取得した。Fig. 6 に QD-SLD 光源モジュールを用いて取得した OCT 画像と、比較のために同じサンプルを市販 SLD (分解能約 $14\ \mu\text{m}$)で取得した OCT 画像を示す。画像の縦軸が深さ(光軸)方向で、横軸が面内(走査)方向である。白い線状像が、サンプルの反射面を表している。市販 SLD による画像(上)では薄膜の表面と裏面の反射が分離されず、一本の太い帯のように見えるのに対し、QD-SLD(下)では表面と裏面が二本の細線として識別されている。プロファイルに示すように二本の線の間隔は約 $7.3\ \mu\text{m}$ であり、物理膜厚 ($5\ \mu\text{m}$)に屈折率(約 1.5)を乗じた値に近い値が得られている。以上から、QD-SLD を用いた OCT による $5\ \mu\text{m}$ 以

Fig. 5 (a)Schematic of the SD-OCT setup with the introduced QD-SLD. (b) Interference spectrum and PSF obtained using the QD-SLD.

Fig. 6 Comparison of the OCT images of a $5\text{-}\mu\text{m}$ -thick film using a commercial SLD and the QD-SLD. Each depth profile was obtained at the left edge of the OCT image.

下の光軸分解能が示され、生体サンプルにおいて単一細胞の平均的なサイズである $5\ \mu\text{m}$ 以下の分解能が期待される結果となった。

次に、擬似的な生体サンプルとして、植物サンプル(キャベツ葉)の OCT 画像取得を行った。Fig. 7(a)に示すように、光プローブをキャベツ葉の葉脈を横切るように走査し、市販 SLD と QD-SLD で取得した OCT 画像を比較した(Fig. 7(b))。QD-SLD による画像(下)の方が解像度が向上しており、葉脈内の管状構造や、葉の表面の細胞壁がクリアに見えている。QD-SLD を用いることで分解能が単細胞サイズ以下となり、生体内部の微細な細胞構造評価の可能性が示された。

5. まとめと今後の展望

自己組織化 InAs-QD を用いた広帯域 SLD 開発と、高分解能 OCT 光源への応用例を紹介した。波長制御された QD を用いた SLD 光源により、一般的な SLD 光源を

Fig. 7 (a) Plan-view optical microscopic image of a cabbage leaf under OCT observation. The lateral scan line is indicated by a solid line. (b) Comparison of the OCT images of the cabbage leaf acquired by the commercial SLD and QD-SLD.

上回る広帯域化と単峰性形状スペクトルが得られた。作製した QD-SLD 光源を SD-OCT システムへ導入し、約 $4\text{ }\mu\text{m}$ の光軸分解能を持つ OCT 画像取得に成功した。これらの結果から、QD-SLD は軽量・コンパクトな半導体デバイスの特性を活かした高分解能 OCT 光源としての利用が期待される。すなわち、光源の小型化により OCT システム全体がポータブルになるなどの展開が期待できる。また、SLD は光学利得媒体としての利用が可能であり、外部共振器による波長掃引型レーザー光源とすることで、SD-OCT のみならず SS-OCT への応用も可能である。

謝 辞

本研究は、JSPS 科研費(25286052, 16H03858, 16KK0130)、テルモ生命科学振興財団、キヤノン財団、文部科学省ナノテク PF 事業(NIMS 微細加工 PF)の支援を受けて実施されました。研究推進には、和歌山大学大学院生であった柴田 弘、保田 拓磨、林 佑真、山内 翔各氏、英国 Glasgow 大学の Richard A. Hogg 教授、David T. D. Childs 講師、物質・材料研究機構の大里 啓孝、渡辺 英一郎、池田 直樹、杉本 喜正各氏、日本電気株式会社の大河内 俊介氏、和歌山県立医科大学循環器内科の赤阪 隆史教授、久保 隆史 准教授、シンクランド株式会社の古城 健司、及川 陽一、宮地 邦男各氏のご協力を頂きました。この場を借りて厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) M. S. Patterson, B. C. Wilson, and D. R. Wyman: *Lasers in Med. Sci.* **6** (1991) 379.
- 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, and J. G. Fujimoto: *Science* **254** (1991) 1178.
- 3) M. E. Brezinski: *Optical coherence tomography: principles and applications* (Academic Press) (2006).
- 4) 春名 正光: *Med. Photon.* **1** (2010) 29.
- 5) W. Drexler and J. G. Fujimoto eds.: *Optical Coherence Tomography Technology and Applications* (Springer, Switzerland) (2015).
- 6) L. N. Kurbatov, S. S. Shakhidzhanov, L. V. Bystrova, V. V. Karpukhin, and S. I. Kolenkova: *Sov. Phys. Semicond.* **4** (1971) 1739.
- 7) 須郷 満, 柴田 泰夫, 吉村 了行: *レーザー研究* **34** (2006) 505.
- 8) L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Le Roux: *Appl. Phys. Lett.* **47** (1985) 1099.
- 9) C. Akcay, P. Parrein, and J. P. Rolland: *Appl. Opt.* **41** (2002) 5256.
- 10) M. Wojtkowski, R. Leitgeb, A. Kowalczyk, T. Bajraszewski, and A. F. Fercher: *J. Biomed. Opt.* **7** (2002) 457.
- 11) S. H. Yun, G. J. Tearney, J. F. de Boer, N. Iftimia, and B. E. Bouma: *Opt. Express* **11** (2003) 2953.
- 12) 安野 嘉晃: *応用物理* **75** (2006) 707.
- 13) 佐藤 学, 渡辺 裕輝: *光学* **37** (2008) 570.
- 14) 湯浅 哲也: *Med. Imaging Tech.* **29** (2011) 277.
- 15) A. F. Fercher, C. K. Hitzenberger, M. Sticker, E. Moreno-Barriuso, R. Leitgeb, W. Drexler, and H. Sattmann: *Opt. Commun.* **185** (2000) 57.
- 16) M. Ohmi and M. Haruna: *Opt. Rev.* **10** (2003) 478.
- 17) B. Bouma, G. J. Tearney, S. A. Boppart, M. R. Hee, M. E. Brezinski and J. G. Fujimoto: *Opt. Lett.* **20** (1995) 1486.
- 18) B. Povazay, K. Bizheva, A. Unterhuber, B. Hermann, H. Sattmann, A. F. Fercher, and W. Drexler, A. Apolonski, W. J. Wadsworth, J. C. Knight, and P. St. J. Russell, M. Vetterlein and E. Scherzer: *Opt. Lett.* **27** (2002) 1800.
- 19) H. Kawagoe, S. Ishida, M. Aramaki, Y. Sakakibara, E. Omoda, H. Kataura, and N. Nishizawa: *Biomed. Opt. Express* **5** (2014) 932.
- 20) Z. Z. Sun, D. Ding, Q. Gong, W. Zhou, B. Xu, and Z. G. Wang: *Optical Quant. Electron.* **31** (1999) 1235.
- 21) M. Rossetti, A. Markus, A. Fiore, L. Occhi, and C. Velez: *IEEE Photon. Technol. Lett.* **17** (2005) 540.
- 22) Z. Y. Zhang, R. A. Hogg, X. Q. Lv, and Z. G. Wang: *Adv. Opt. Photonics* **2** (2010) 201.
- 23) M. Tsuda, T. Inoue, T. Kita, and O. Wada: *Phys. Status Solidi C* **8** (2011) 331.
- 24) N. Ozaki, T. Yasuda, S. Ohkouchi, E. Watanabe, N. Ikeda, Y. Sugimoto, and R. Hogg: *Jpn. J. Appl. Phys.* **53** (2014) 04EG10.
- 25) S. Chen, W. Li, Z. Zhang, D. Childs, K. Zhou, J. Orchard, K. Kennedy, M. Hugues, E. Clarke, I. Ross, O. Wada, and R. Hogg: *Nanoscale Res. Lett.* **10** (2015) 340.
- 26) H. Shibata, N. Ozaki, T. Yasuda, S. Ohkouchi, N. Ikeda, H. Ohsato, E. Watanabe, Y. Sugimoto, K. Furuki, K. Miyaji, and R. A. Hogg: *Jpn. J. Appl. Phys.* **54** (2015) 04DG07.
- 27) 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: *J. Appl. Phys.* **119** (2016) 083107.
- 28) N. Ozaki, S. Yamauchi, Y. Hayashi, E. Watanabe, H. Ohsato, N. Ikeda, Y. Sugimoto, K. Furuki, Y. Oikawa, K. Miyaji, D. T. D. Childs, and R. A. Hogg: *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** (2019) 225105.
- 29) A. F. Forrest, M. Krakowski, P. Bardella, and M. A. Cataluna: *Opt. Express* **27** (2019) 10981.
- 30) K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, and J.-S. Lee: *Appl. Phys. Lett.* **74** (1999) 1111.