

「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」  
平成 17 年度採択研究代表者

岸野 克巳

(上智大学理工学部 教授)

「ナノコラム結晶による窒化物半導体レーザーの新展開」

## 1. 研究実施の概要

InGaN 発光層の材料特性のために、窒化物半導体可視光デバイスの性能と波長域に限界がある。青色域半導体レーザーは実用的レベルに達したが、緑色域になると InGaN 発光層の材料特性が著しく劣化し、緑色半導体レーザーの実現の目処は立っていない。これは、In 組成比の増加とともに、In 組成揺らぎが大きくなり、結晶欠陥が増加して、結晶性が劣化するからである。さらに、大きなピエゾ電界が導入され、発光再結合確率を減少させ、赤色域 LED の発光効率、青色域に比べ数十分の一に低下する。

本研究プロジェクトでは、これらの窒化物半導体可視光デバイスの直面する壁を、本研究チームが創成したナノコラムで突破して、波長域拡大の基盤技術を確立し、新領域ナノ結晶効果を学術的に明らかにし、ナノコラム結晶による新物性現象を探索することを目的としている。

本年度は研究の基礎段階であり、GaN ナノコラム結晶の高品質化を進め、無転位性を調べつつ、高い発光特性の探索を行った。さらに、InGaN ナノコラムにおける集団および単一ナノコラム物性の基礎的理解を進めて、またナノレーザー共振器への基礎技術の探索を開始した。

## 2. 研究実施内容

本年度は、研究課題として、①ナノコラム結晶の高品質化、②集団・単一ナノコラム物性の評価、③ナノコラム多層膜反射鏡 (DBR) の作製、④InAlN ナノコラム結晶成長、⑤ナノコラムランダム性の解析を取り上げ、次のような成果を得た。

### 1) ナノコラム結晶の成長と高品質化

GaN ナノコラム結晶をサファイヤ基板上に成長しつつ、成長条件を系統的に変化させて結晶評価を行い、最適成長条件の探索を進めた。(0001)面からのオフ基板効果、AlN 成長核の形成条件 (成長温度と Al 供給量依存性)、Ga<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>N ナノコラム成長中の V 族/III 族供給比依存性を調べた。ナノコラム内の貫通転移は、(0001)基板上ではほとんどみられないが、0.5° オフ基板上ではナノコラム中心にらせん転移がみられ、相対的に発光効率も低く、ジャスト基板上で高品質のナノコラムが形成されることが分かった。

本実験でもっとも良質であった GaN ナノコラムの室温フォトルミネッセンス (PL) 強度は、

高品質 GaN 自立基板 (HVPE 成長、貫通転移密度  $N_{dis1} \sim 5 \times 10^5 \text{cm}^{-2}$ ) と比べても 3 倍と強く、標準的な MOCVD 成長 GaN 膜 ( $N_{dis1} \sim 5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$ ) とでは 500~600 倍の強度が得られた。このことは、ナノコラムでは GaN バルク結晶に匹敵する高品質結晶が得られ、GaN ナノコラムの表面再結合速度が遅いことを表しており、ナノ発光デバイス応用におけるナノコラム有用性を示している。

Si 基板上にナノコラム LED 結晶を作り、室温 CW 動作下で、直径  $500 \mu\text{m}$  の半透明円形電極を通して顕微 EL 観測 (分解能  $3 \mu\text{m}$ ) を行い、発光の面内分布や発光波長の電流依存性など、LED 基礎特性を調べた。

## 2) 集団および単一ナノコラム光物性評価

集団および単一ナノコラムの発光特性の基礎的評価を開始した。(0001) サファイヤ基板上に GaN ナノコラムを形成し、この一次元ナノ結晶内に井戸幅 3nm の InGaN 多重量子井戸 (MQW ; 8QW)、および単一量子井戸 (SQW) を内在させたサンプルを作り、PL スペクトル、時分解 PL で光物性評価を行った。

集団 MQW ナノコラムの室温 PL スペクトル半値幅は、たとえば、発光ピーク  $2.25\text{eV}$  (波長  $550\text{nm}$ ) のサンプルでは  $320\text{meV}$  と広く、井戸層間、コラム間の組成揺らぎが懸念された。しかし、発光ピーク  $2.28\text{eV}$  の集団 SQW ナノコラムでも、室温 PL 半値幅  $448\text{meV}$  とブロードな発光が観測されたので、ナノコラム間バラツキが主な原因と考えられる。また低温 PL スペクトルは一つのガウス分布でなく数個のローレンツ型に分解できるため、複数コラムの塊が結合して発光中心を作っている可能性がある。

図 2 は単一 SQW ナノコラムの低温 PL スペクトルである。単一ナノコラムの半値幅は約  $30\text{meV}$  とシャープで、またメインピーク ( $2.34\text{eV}$ ) は励起光強度を 2 桁強くしてもほとんど変化せず、その代わり約  $270\text{meV}$  高エネルギー側にシャープな発光ピークが現れ、ナノコラム内に量子ドットの局在準位が形成されていることを示唆している。今後の詳細な物性評価によりナノ結晶効果に関する知見がさらに深まるものとする。

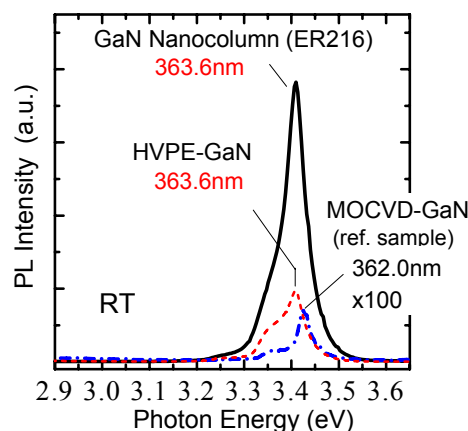


図 1 室温 PL スペクトル

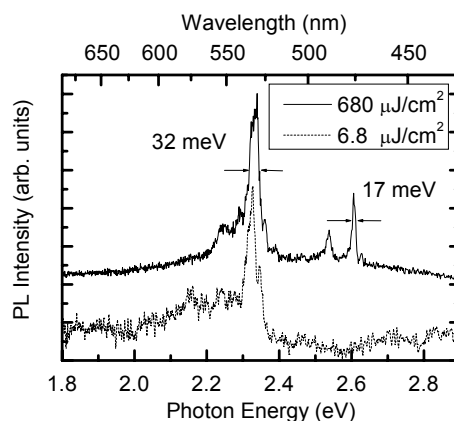


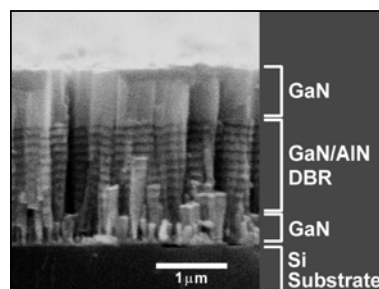
図 2 単一 SQW ナノコラム PL スペクトルの励起強度依存性

### 3) ナノコラム多層膜反射鏡(DBR)の作製

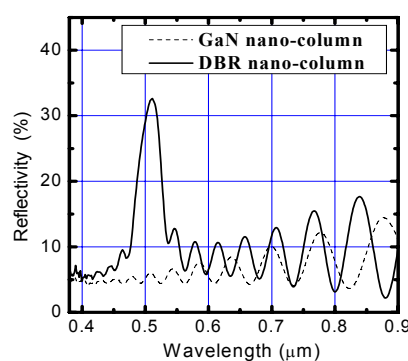
ナノコラム内にレーザ共振器を構成する基礎技術の開拓を目指して、ナノコラム多層膜反射鏡(DBR)構造を成長し、反射特性の評価を進めた。

図3(a)に、rf-MBE法を用いて(111)面Si基板の上に成長した15ペアのGaN/AlN DBR ナノコラム構造の断面SEM像を示す。互いに独立し良好な周期性をもつDBR ナノコラムが確認されたが、ナノコラム径は基板付近では120nm、表面近くでは270nmとなり、成長方向に径が太くなる傾向が見られた。ナノコラム密度は、 $1.1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ で、断面SEMおよびXRDから膜厚はAln:50nm、GaN:71nmと見積もられた。15°斜め入射で反射スペクトルを測定したところ、図3(b)のように、波長506nmの緑色域に反射ピークが確認され、基礎的な反射特性が得られた。しかし、现阶段では反射率のピーク値は36%とDBRペア数からみると低いが、この原因としてはナノコラム高さのバラツキなどが考えられる。

また、GaN/AlN ナノヘテロ構造の極限制御を狙って、5.5ML(モノレイヤ)/12.6MLの短周期超格子からなる量子薄膜構造を成長し、 $1.55 \mu\text{m}$ 域サブバンド間遷移光検出素子を試作して、世界で始めて室温動作を得た。



(a) 断面SEM像



(b) 反射スペクトル

図3 GaN/AlN DBR ナノコラムの断面SEM像(a)と反射スペクトル(b)

### 4) InAlN ナノコラム成長

Si基板の上に形成したGaNドットを成長核に用い、基板温度400°Cで $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ ナノコラムの成長を試み、図4に示すように、高さ0.7~1.1 μm、平均直径50~100nm、コラム密度 $0.7 \sim 3.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 、高いIn組成比( $X_{\text{In}}=0.73 \sim 0.89$ )で、InAlNナノコラムの自己形成に成功した。

### 5) 集団ナノコラムフォノン物性の評価

GaNナノコラム結晶のラマン散乱を調べた。図5はコラム密度 $c$ の違う3種類のGaNナノコラム試料の表面に局在するフレリッヒモード(赤点線)からのラマンスペクトルである。フレリッヒモード周波数はコラム濃度 $c$ により大きく変化する。幅広いスペクトルは、コラム濃度の不均一性を反映しており、ここではコラム濃度 $c$ をガウス分布 $\exp\{-(c-c_0)^2/\sigma_c^2\}$ で仮定し、有効誘電関数から計算したラマンスペクトルを実験結果に合わせた。試料コラム濃度 $c$ をSEM写真をもとに、白黒ピクセル解析を行い、面積 $S$ の範囲を約2000箇所ランダムに選択して、平均コラム濃度 $c_0$ と濃度

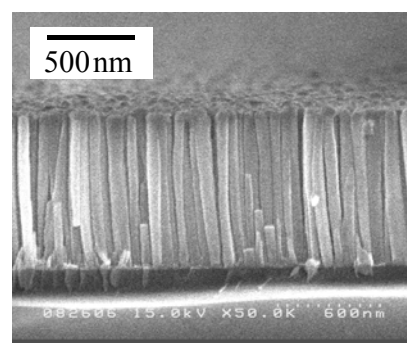


図4 InAlN ナノコラムのSEM断面写真

分散  $\sigma_c$  を求めた。サンプリング面積  $S$  が、入射光波長 (514.5nm) を基礎とする約  $\lambda/2 \times \lambda/2 \sim \pi(\lambda/4)^2$  に一致したとき、ラマン散乱の結果と同等なガウス分布の分散  $\sigma_c$  を得ることが分かった。以上により、ラマン散乱によるナノコラムの結晶評価法が確立された。

### 6) ナノコラムランダム性と光伝搬

ランダムナノコラム媒質の光伝搬解析を目指して、アナロジーがなりたつランダム媒質中の音波伝搬を調べた。障害物をランダムに配置させ、これを乱してゆくことで、波動伝播がどのように変化するかを解析し、平均自由行程と局在長の見積もった。障害物がフラクタルな配置をとる場合は不規則電子系の輸送現象と密接な関係する。そこでフラクタル格子上的電子状態を調べた。

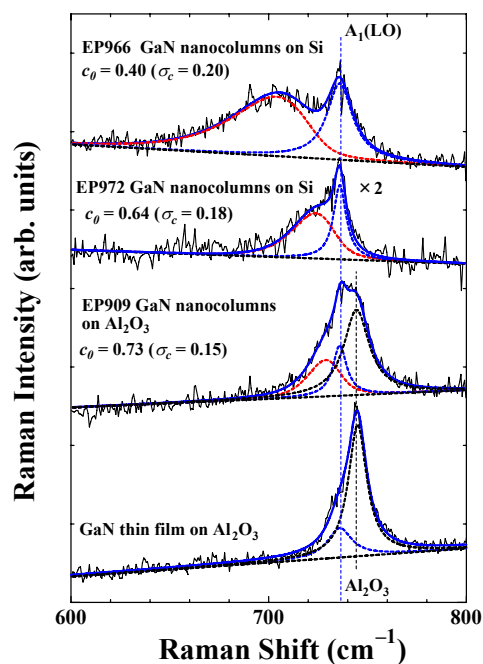


図5 ナノコラム結晶のラマン散乱スペクトル

## 3. 研究実施体制

「上智大学」グループ

- ① 研究分担グループ長：岸野 克巳（上智大学理工学部、教授）
- ② 研究項目：
  - ナノコラム結晶の高品質化
  - ナノコラム多層膜反射鏡 (DBR) の作製
  - InAlN ナノコラムの成長
  - InGaN/GaN ナノコラム LED 基礎特性の把握
  - 集団ナノコラムの光物性・フォノン物性評価
  - ナノコラムランダム性と光伝搬

「京都大学」グループ

- ① 研究分担グループ長：川上 養一（京都大学大学院工学研究科、助教授）
- ② 研究項目：
  - ナノコラム上 InGaN/GaN 量子構造のマクロ発光ダイナミクス評価
  - 単一ナノコラム InGaN/GaN 量子構造の分散技術開発
  - 単一ナノコラム InGaN/GaN 量子構造の顕微 PL 測定

#### 4. 主な研究成果の発表

(1) 論文 (原著論文) 発表

- T. Sekine, S. Suzuki, H. Kuroe, M. Tada, A. Kikuchi, and K. Kishino, “Raman Scattering in GaN Nanocolumns and GaN/AlN Multiple Quantum Disk Nanocolumns” , e-J. Surf. Sci. Nanotech. Vol.4, 227-232 (2006).
- H. Uchida, S. Matsui, P. Holmstrom, A. Kikuchi and K. Kishino, “Room temperature operation of 1.55 $\mu$ m wavelength-range GaN/AlN quantum well intersubband photodetectors” , IEICE Electronics Express, Vol. 2, No. 22, pp.566-571 (2005).
- Y. Asada, K. Slevin, and T. Ohtsuki, “Possible Anderson transition below two dimensions in disordered systems of noninteracting electrons” , Phys. Rev. B 73, 041102(R) (2006).