

「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、青色域で発展してきた窒化物半導体可視光デバイスの長波長化に限界があり、緑色半導体レーザーの実現の目処は立っていない。本研究プロジェクトでは、窒化物可視光デバイスが直面する技術的壁を、本研究チームが創成したナノ結晶効果で突破して、波長域拡大の基盤技術を確立するとともに、新領域のナノ効果を学術的に明らかにし、ナノコラム結晶に基づく新物性現象を探索する。

本年度は、分子線エピタキシー装置を用いて、InGaN ナノコラム結晶の高品質化を進めて、電流注入型 InGaN ナノコラム LED を作製した。さらに、ナノコラムに内在化された AlN/GaN 多層膜反射鏡を作製してナノコラム共振器への基礎技術の探索を進め、ナノコラムの径と組成均一化を目指してナノコラムの規則配列化の糸口を見出した。また集団および単一ナノコラムの物性評価法の確立を進めて、基礎的な光・フォノン・電気物性評価を行い、ナノコラム物性の基礎的理解を深めた。

## 2. 研究実施内容

GaN 系窒化物半導体による光デバイスの波長域拡大は、材料的難しさに直面しているが、本研究プロジェクトではこの状況をナノ結晶効果の発現によって克服することを目的として研究を進めている。本年度は、自己形成 GaN ナノコラム結晶を基礎として、①電流注入型 InGaN/GaN ナノコラム LED 結晶の成長、②集団・単一ナノコラムの光・フォノン・電気物性の評価、③ナノコラム多層膜反射鏡(DBR)の検討、④ナノコラム規則配列化の探索を取り上げ、次のような成果を得た。

## 1. 電流注入型 InGaN/GaN ナノコラム LED 結晶の成長

図1は電流注入型 InGaN/GaN ナノコラム LED 構造である。(111)面 n 型 Si 基板上に直径 80~120nm の n 型 GaN ナノコラム結晶を自己形成し、引き続いてナノコラム結晶内に InGaN/GaN 多重量子井戸を内在化させる。InGaN 井戸層厚は 2nm、井戸数は1~8とした。InGaN 領域は上下を GaN バリヤ層、水平横方向はコラム側面で閉じ込められ量子ディスク構造となる。InGaN 量子ディスク活性層の成長後に p 型 GaN ナノコラムクラッド層でナノコラム

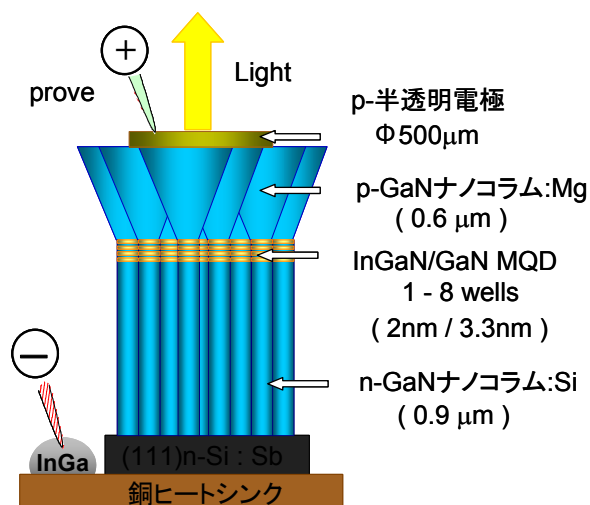


図1 InGaN/GaN ナノコラム LED 構造

径を増加して最表面を連続膜化し、エピ表面と基板裏面に p および n 側電極を形成して LED 構造をつくる。本年度は Si 基板の上の InGaN 多重量子ディスクを従来(680~740°C)よりも 100°C 以上高い 840°C で成長する条件を見出した。図 2(a)に示すように高温成長に伴い発光強度は著しく増大した。波長域は 530~560nm の緑色域である。p 型層の成長温度や V/III 比の最適化を進めたところ、p 型 GaN ナノコラム成長中の横方向成長が促進による最表面平坦性の改善によって、図 2(b)のように逆方向リーク電流が抑制され、順方向直列抵抗が低減化し、急峻な立ち上がりが得られた。しかし、電極抵抗の低減化、p クラッド層の電流広がり最終的なデバイス性能としては十分ではないので、今後は ITO などの透明電導膜の利用、GaN/AlGaN 超格子電流広がり層の導入などでさらなる改善を図る。

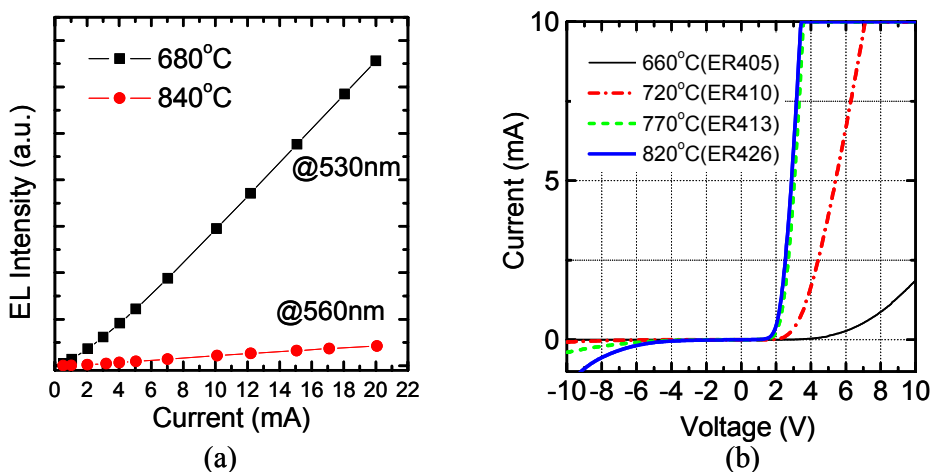


図 2 InGaN ナノコラム LED の高温成長による発光強度および電流電圧特性の改善

## 2. 集団・単一ナノコラム物性の評価

### 2.1 集団 GaN ナノコラムの光学特性

集団 GaN ナノコラムのコラム径に依存したナノコラム特有の光学特性に焦点を当て、平均コラム径が 150nm (GaN1)、120nm (GaN2)、80nm (GaN3)、70nm (GaN4) の4種類のサンプルについて評価した。平均コラム径が 100nm を越える GaN ナノコラムでは、低温での PL スペクトルおよび反射スペクトルに GaN の励起子構造が明瞭に観測され、A 励起子(A)に加え低エネルギー側に束縛励起子(I)による発光が見えた。さらに励起子分子の発光も観測されたが、その

束縛エネルギーは GaN1で 11meV、GaN2 で~20meV となってバルク試料の約 5.7meV よりも大きな値であった。またコラム径が細くなるにつれて、ナノコラム側面からの発光が上方に放射されるため A 励起子の高エネルギー側の B、C 励起子のピークが顕著になることが解った。

### 2.2 単一ナノコラム光物性評価法の確立

Si 基板を加工して図4のようなマイクロミラーアレイ(MMA)を作製し、各アレイ構造にナノコラムをアドレス化して分散配置することで位置の特定を行い、単一 InGaN ナノコラム光物性を再現性よく評価する手段を確立した。MMA は発光のディテクターへの集光効率の向上をもたらし、シミュレーションによれば N.A.= 0.6 の対物レンズで 4 倍まで集光が改善すると予測され、ナノ構造からの微弱な発光測定に有力な手段となることが実証された。図4に示すように、青緑色で発光するナノコラムは、(13,5)でアドレス化されたマイクロミラーの中に配置され、走査型電子顕微鏡(SEM)による観察の結果、直径 107nm であることが同定された。

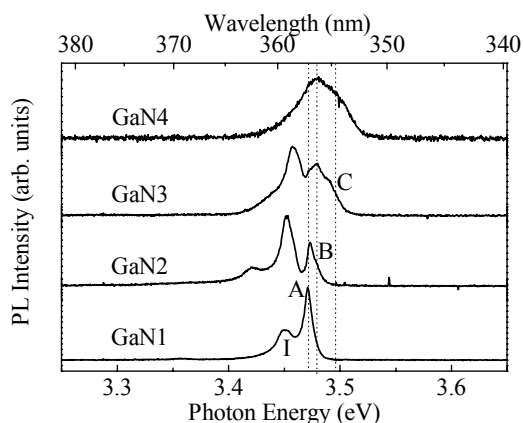


図3. 各試料のPLスペクトル比較

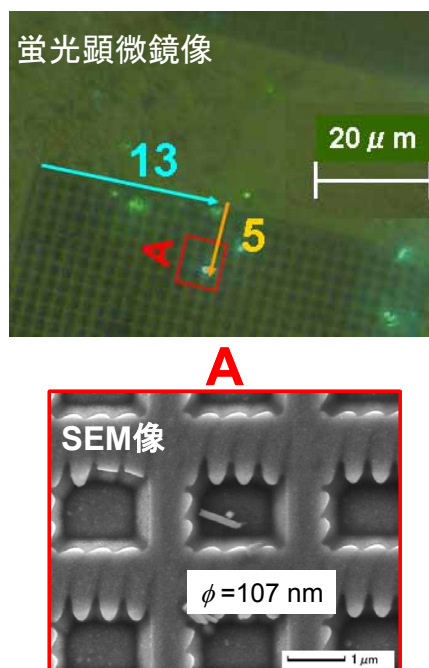


図4 MMA 構造にナノコラムを分散させた蛍光顕微鏡像と領域 A の SEM 像

### 2.3 集団 GaN ナノコラムフォノン物性評価

図5はSiをドーパした GaN ナノコラムのラマンスペクトルである。電子の集団励起であるプラズモンは縦光学(LO)フォノンと結合することでLOフォノン-プラズモン結合 (LOPC) モードを形成し、2つの分枝  $L^+$  と  $L^-$  モードになる。赤丸で示すピークは  $L^+$  モードである。Si セルを高温にしたものほど高周波数側に移動し、ブロードになっているのがわかる。LOPC モードの観測はナノコラム結晶では初めての観測である。バルク結晶での誘電関数から求めた LOPC モード周波数の理論曲線より、キャリア濃度を見積もったところSiセル温度との関係で妥当な値が得られ、直接測定が難しいナノコラムのキャリア濃度の見積もり法が確立された。

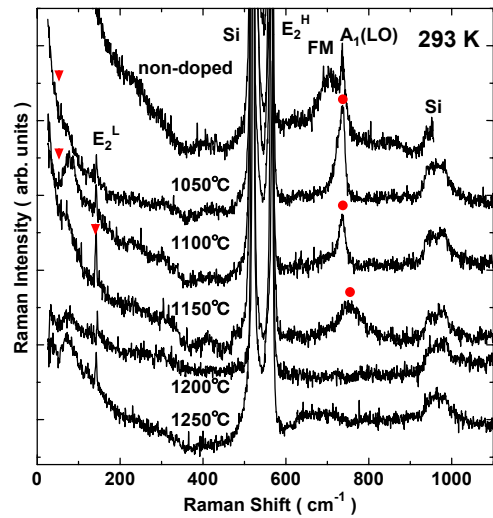
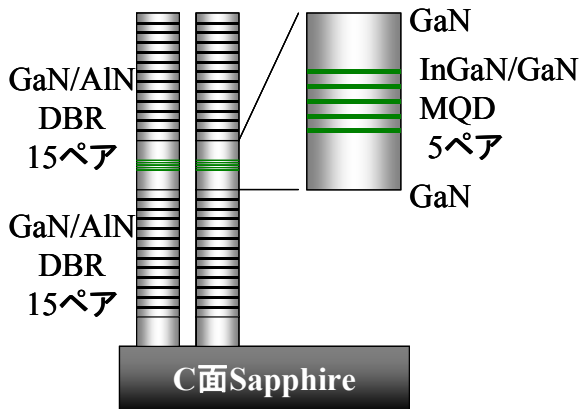
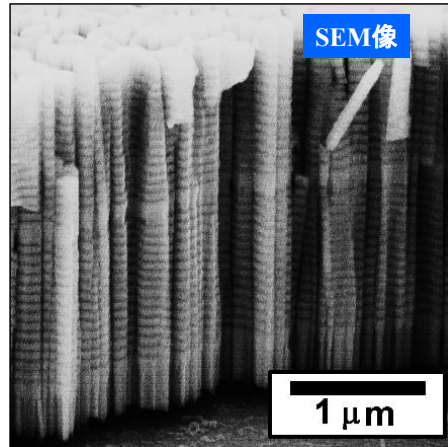


図5 Siドーパ GaN ナノコラムの室温ラマンスペクトル。温度はSiセル温度を示す。

### 3. ナノコラム多層膜反射鏡(DBR)の検討



(a) 狙った試料構造



(b) SEM像(鳥瞰図)

図6 GaN/AIN 多層膜反射鏡ナノコラム共振器、(a)狙った試料構造、(b)成長試料のSEM 鳥瞰図

昨年度に引き続いてナノコラムに GaN/AIN 多層膜反射鏡(DBR)構造を内在化するための基礎検討を行った。図6は狙ったナノコラム共振器の構造図と作製試料のSEM像で、上下にDBR構造をもつ共振器構造が作製されているのが分る。しかしながら、意図した InGaN/GaN 量子ディスク活性層は共振器内に形成されなかった。これは GaN/AIN DBR の成長温度が 930°Cと高いため、730°Cで InGaN/GaN 層を形成したのちに上部のDBRの成長に際してナノコラム側面からのIn抜け

が発生するためと考えられる。可視域ナノコラム共振器作製には、今後工夫が必要となる。

#### 4. ナノコラム規則配列化の探索

GaN ナノコラムの成長は自然核形成を利用する自己形成的成長法を用いてきたが、直径や断面形状、InGaN 量子ディスクの発光波長のばらつきが大きいため、発光デバイス応用においては特性を均一化することが望ましい。本年度はナノコラムの径と組成均一化を目指してナノコラムの規則配列化を実現するため、ナノコラム選択成長法の確立を行った。Si 基板上に厚さ 5~31nm、直径  $2.8\mu\text{m}$  の Al ディスクからなる 2 次元正方格子（周期  $4\mu\text{m}$ ）を形成し、Al を窒化して AlN パターンとしたのちに、GaN ナノコラムを成長した。図 8 は成長後の GaN ナノコラムの SEM 写真であり、Al パターン上と Si 上では GaN ナノコラムの成長速度に違いが現れ、選択成長が可能であることが見出された。17nm 以上の Al 層厚では Al ディスクの円周上に添って直立した GaN ナノコラムが配列することが見られた。これらの結果より Al パターンをナノコラム直径と同程度（ $\sim 100\text{nm}$ ）にすることで 1 本のナノコラムの位置制御が可能になると期待される。

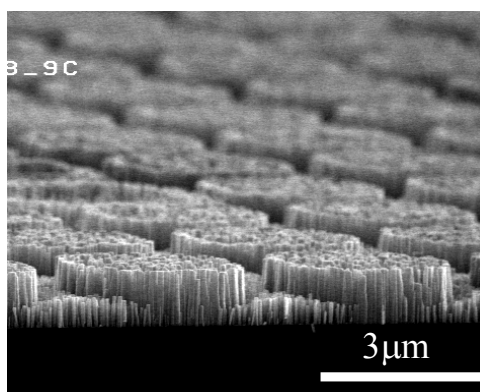


図8 Si 基板上 2 次元正方格子 Al ディスクパターン上の GaN ナノコラムの成長

#### 5. ナノコラム系における光の伝搬現象

ナノコラムが多数集まった系における光の 2 次元平面内の伝搬現象を調べる。本年度は、ナノコラム系に光が入射したのち、多重散乱をうけてどのように伝搬していくかを、FDTD 法によって数値的に解析した。ここではナノコラムの規則配置、フラクタル配置、ランダム配置を仮定したが、規則配置ではフォトニック結晶で知られている光の閉じこめが GaN ナノコラムで起こるが、ランダム配置では波長にほとんど依存しない弱い拡散を示した。今後は、光閉じこめの周波数依存性を詳しく調べるため、平面波展開法と転送行列法の 2 つの方法から分散関係を計算する。またナノコラム系における光伝搬をランダムなネットワーク上の波の伝搬としてとらえて、光の伝搬に対するゲインやロス効果を研究する。

### 3. 研究実施体制

#### (1) 岸野 克巳「上智大学」グループ

##### 研究項目

- ・ 電流注入型 InGaN/GaN ナノコラム LED 結晶の成長
- ・ 集団・単一ナノコラムの光・フォノン・電気物性の評価
- ・ ナノコラム多層膜反射鏡(DBR)の検討
- ・ ナノコラム規則配列化
- ・ ナノコラムランダム性と光伝搬

#### (2) 川上 養一「京都大学」グループ

##### 研究項目

- ・ マイクロミラーアレイ(MMA)構造の設計, シミュレーションおよび作製
- ・ MMA 構造への単一ナノコラム InGaN/GaN 量子構造の分散技術開発
- ・ 単一ナノコラム InGaN/GaN 量子構造の時間分解発光スペクトル測定

### 4. 研究成果の発表等

#### (1) 論文発表(原著論文)

- Y. Asada, K. Slevin, and T. Ohtsuki, "Possible Anderson transition below two dimensions in disordered systems of noninteracting electrons", **Phys. Rev. B** vol. 73, 041102(R) (2006).
- T. Sekine, S. Suzuki, 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).
- T. Ohashi, P. Holmstrom, A. Kikuchi and K. Kishino, "High structural quality InN/In<sub>0.75</sub>Ga<sub>0.25</sub>N multiple quantum wells grown by molecular beam epitaxy", **Appl. Phys. Lett.** vol. 89, 041907 (2006).
- A. Kikuchi, M. Tada, K. Miwa and K. Kishino, "Growth and characterization of InGaN/GaN nanocolumn LED," **Proceedings of SPIE 6129**, 612905 (2006).
- Tetsuya Kouno, Akihiko Kikuchi and K. Kishino, "Growth of high-In-content InGaN multiple quantum disk nanocolumns on (111) Si by RF plasma-assisted molecular-beam epitaxy", **physica stat solidi (b)** vol. 243, no.7, 1481-1485 (2006).
- Y. Kawakami, S. Suzuki, A. Kaneta, M. Funamoto, A. Kikuchi and K. Kishino, "Origin of high oscillator strength in green-emitting InGaN/GaN nanocolumns", **Appl. Phys. Lett.** vol. 89, 163124 (2006).
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "InGaN/GaN nanocolumn LEDs

emitting from blue to red", **Proceedings of SPIE 6473, 64730T-1 (2007)**.

- H. Sekiguchi, T. Nakazato, A. Kikuchi and K. Kishino, "Structural and optical properties of GaN nanocolumns grown on (0001) sapphire substrates by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy," **J. Cryst. Growth vol. 300, 259-262 (2007)**.
- T. Sekine, S. Suzuki, M. Tada, T. Nakazato, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Raman Scattering in GaN/AlN Multiple Quantum Disk Nanocolumns", **Proceedings of 28th International Conference on the Physics of Semiconductors (to be published)**.
- J. Kamimura, T. Kouno, S. Ishizawa, A. Kikuchi and K. Kishino, "Growth of high-In-content InAlN nanocolumns on Si (111) by RF-plasma-assisted molecular-beam epitaxy," Journal of Crystal Growth, **J. Crystal Growth (to be published)**.
- S. Ishizawa, H. Sekiguchi, A. Kikuchi and K. Kishino, "Selective growth of GaN nanocolumns by Al thin layer on substrate," **physica status solidi (b) (to be published)**.

## (2) 特許出願

平成 18年度特許出願:2件(CREST 研究期間累積件数:2件)