戦略的創造研究推進事業 CREST

研究領域 「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」

> 研究課題 「ナノコラム結晶による 窒化物半導体レーザの新展開」

# 研究終了報告書

研究期間 平成17年10月~平成23年 3月

研究代表者:岸野 克巳 (上智大学·理工学部,教授)

# §1 研究実施の概要

GaN ナノコラムは、研究代表者らが rf-MBE 自己形成法によって世界で最初に発見し、先導的 に研究を進めてきた。本研究では、ナノコラム結晶特性を活用して、窒化物レーザ/LED 波長域の 拡大を阻んでいる課題を克服すべく、単一および集団ナノコラムで発現される物性現象とナノ結晶 効果を学術的に探求しつつ、結晶成長とデバイス作製を行って、緑色 InGaN 系半導体レーザ、三 原色 InGaN 系 LED 実現の基盤技術の開拓を進めた。デバイス・結晶成長と物性・物理分野の研 究者間の密接な連携によって研究プロジェクトは運営され、上智大・岸野グループ内では江馬・大 槻・欅田がナノランダム物性と光物性の解明を担当し、関根・黒江はナノコラムの伝導機構とフォノ ン物性の検討を行い、京大・川上グループは単一ナノコラム光物性とナノ結晶効果の解明を中心 に研究を推進した。岸野・菊池・野村は、これらの物性・物理分野の検討結果を、中期的にナノコ ラム結晶成長条件にフィードバックして、デバイス基礎技術の開拓を進めた。

自然核成長を基礎とする InGaN 系自己形成ナノコラムで作られた LED の電流注入発光をみる と、まるで宝石箱を引っ繰り返したように、マイクロメータ領域で隣接して赤、黄色、緑、青などの多 色発光スポットが混ざった多色発光が観測されることがある。これは自己形成ナノコラムのランダム 性に起因する現象である。そのランダム性から発現される物性現象に注目して集団ナノコラム物性 (光物性、フォノン物性、ランダム性)を探究した。一方、現象を単純化しながらナノコラム固有の物 性を明確にするため、単一量子井戸を内在化したナノコラムを作り、一本のナノコラムだけを取り出 して、緑色発光域で単一ナノコラム光物性の解明を進めた。

集団ナノコラムでは、光のアンダーソン局在の理論的研究を行って局在効果の単一パラメータ ースケーリング則を示し、ランダム物性の実験的解明を進めて、はじめて光のアンダーソン局在の 直接観測を行い、GaN 系半導体におけて最初のランダムレージング観測に成功した。単一ナノコ ラム研究では、通常の量子井戸の輻射再結合確率を低下させる分極誘起電界による量子閉じ込 めシュタルク効果は、ナノコラムではほとんど発生していないことが実験的に示唆され、歪低減の波 及効果として InGaN/GaN 系で初めて正の励起子分子束縛エネルギーが観測された。さらに、トッ プダウン型ナノ構造を作って、ナノコラム側面の歪開放とそれに起因した輻射再結合確率の増強 効果との間の関連を系統的に明らかにして、ナノ結晶のもつ歪低減効果を解明した。本研究は、こ れらの諸検討を通してナノコラム物性の理解に大きな進展をもたらした。

デバイス応用にはコラム形状と位置が制御された規則配列ナノコラムの導入が必須である。本研究は、GaN ナノコラムの選択成長法を初めて開拓して、ナノコラムの規則配列化を実現した。研究を開始した当初はGaN選択成長法の開拓が短時間に達成できるとは考えてもいなかった。当時の研究水準では、分子線エピタキシー(MBE)による選択成長はきわめて難しく、それを実現するための適当な方向性が見えない状況にあって、それがMBE研究者の共通認識であったからである。

ここではコラム径と位置の高精度配列化に成功し、発光色の均一性を高め、上記の多色発光メ カニズムを解明し、青色~赤色の可視全域に亘るナノコラム発光色制御性を実験的に示した。均 一緑色発光規則配列ナノコラム LED の作製に成功し、同一基板上で LED の発光色制御を行い、 三原色集積 LED を実現する基礎技術を確立した。

規則配列ナノコラムの実現を受けてただちに、ナノコラムレーザ探索に全力をあげた。研究計画では、ナノコラム側面の大きな屈折率差のために横方向伝搬では大きな光散乱が生じるので、ナノコラムレーザとしてコラム軸方向にレーザ発振させる垂直共振型面発光レーザを念頭にした。これに加えて単ーナノレーザ、アレイ型ナノコラムレーザ、ファブリーペロー型レーザに適する新たなナノウォール構造について検討した。単一ナノレーザでは斬新な六角形外周構造を持つ直径 2 μ m以下の GaN 系微小リング共振器を実現した。一方、光と周期構造との二次元的相互作用を用いるアレイ型において、波長域 530-560nm で光励起緑色レーザ発振を観測し、ナノコラムの緑色域レーザ発振可能性を示した上で、高反射率 GaN/AIN 多層膜反射器(DBR)の作製法を開拓し、DBR 共振器内へナノコラムを集積化して光励起レーザ発振を確認した。これらの研究成果によって面発光型緑色域ナノコラムレーザ基盤技術を確立した。

# §2. 研究構想

#### (1)当初の研究構想

研究開始の時点でみると、青色域では高性能な InGaN 系レーザが実現されていたが、緑色域ではレーザ発振が困難であった。同じ材料系を用いつつ緑色域まで長波長化してゆくと、InGaN 活性層の In 組成揺らぎが増加し、結晶欠陥の導入によって結晶性が劣化するためであったが、平 坦膜 InGaN/GaN 量子井戸構造を用いる範囲では、現時点でもこの課題は十分に解決されていない。最近の報告によれば発振波長が 500nm 以上の緑色域になると 1nm 刻みでしきい値電流密度が増加し、ディスプレイ利用波長 520nm では、レーザ端面に 90%以上の高反射コーティングをしても、7-8kA/cm<sup>2</sup> まで上昇し、依然として技術的壁が存在することを物語っている。このままではレ ーザプロジェクション型ディスプレイに要求される数 W 級緑色レーザへの道筋は見えない。

本研究は、窒化物半導体レーザの波長域拡大を阻むこの壁を、本研究チームが創成したナノコ ラムとナノ結晶効果で突破し、InGaN 系ナノコラム緑色半導体レーザの技術基盤を確立すべく、研 究を構想した。GaN ナノコラムは無転位性結晶で、非発光成分が抑制され、その無転位性は InGaN の In 組成揺らぎの抑制に効果的で、これに加えてナノ領域では In 組成揺らぎが極小化さ れると期待される。さらにナノ結晶領域端の自由端効果で結晶ひずみが軽減され、ピエゾ電界が 抑制され、高 In 組成域における振動子強度の低下が少なくなると予測された。ナノコラムによれば、 InGaN 系発光デバイスの長波長化を阻んでいた三つの要因(結晶欠陥、In 組成揺らぎ、ピエゾ電 界)が軽減されると発想した。

ここではナノコラム結晶の無転位性を利用しつつ、高い発光特性の理由を探求して、新領域の ナノ結晶効果を学術的に明らかにし、ナノコラム結晶を基礎とする新物性現象を探索した。ナノコ ラム結晶の均一化、規則配列化技術を確立して、緑色域ナノレーザの基礎技術を確立し、ナノコラ ムによって窒化物半導体レーザの新分野を開拓することを目的として研究を展開した。ナノコラム によれば、高価な GaN 基板上でなく、例えば Si 基板上でも高品質結晶が得られるので、圧倒的な 数量に対応でき、次世代半導体レーザとしての工業的な価値は高い。

さらに赤色域でもナノコラムが良く光るところに注目し、すでに実用化されている青、緑色に加えて、高輝度の InGaN 系赤色 LED を実現するための技術的基礎を探索した。

rf-MBE による GaN の選択成長は、当時の技術水準としては最難関であったが、計画立案の段階から「ナノコラム形状の均一化と位置制御法の確立」を課題として視野に入れていた。研究開始後すぐに自己形成ナノコラムの限界を認識し、GaN ナノコラム選択成長の開拓を最重要課題として取り組むことになった。結果的には想定外に短い時間で、世界初の GaN ナノコラムの選択成長に成功したが、ここでは限界性能で MBE 装置を酷使するため、装置トラブルが絶えず、再現性の確保に相当の研究努力を必要とした。実現した規則配列ナノコラムは、コラム径、形状、位置制御性がきわめて高く、この技術を極めることで、ナノコラム潜在性を発現し得る水準になった。

規則配列ナノコラムを基礎にナノコラム LED を作って電流注入構造を探索し、光励起によって ナノコラムの緑色域レーザ発振の可能性を示し、最長発振波長 560nm を得た。さらに DBR 共振器 の作製を進めて、緑色域レーザの基礎技術の確立を行なった。ナノコラム物性の解明では、ナノコ ラム内の InGaN 量子井戸の光物性把握に力点をおいて研究を進め、ナノコラムで発現されるナノ 結晶効果の解明を目指した。自己形成ナノコラムのランダム性に注目して、ランダム物性の解明を 進め、どの程度の不均一までがデバイス応用で許されるか、ランダム媒質における新物性発現は あるかなどについて検討し、光のアンダーソン局在や GaN 系で最初のランダムレージング観測な どを行なった。 (2)新たに追加・修正など変更した研究構想

初期段階の成長制御が不十分なInGaNナノコラムLEDの近視野像を、顕微鏡下で評価すると、 多色発光となることがあり、マイクロメータ領域内に赤、緑、青、黄色の明るい発光スポットが観測さ れた。rf-MBE 成長では表面に入射する In と Ga フラックス量は一定であって、何らかのナノコラム 個性の違いによって、In 取り込み量が変化し、発光色に変化がもたらされた。この発光色を制御で きれば、マイクロメータ空間で三原色発光を制御でき、三原色ナノ LED、さらには高機能な白色 LED 応用など、魅力的なデバイスの実現が期待された。

発光色制御を確認するにはナノコラムの形状と位置制御が必須であった。想定外に早く確立した GaN ナノコラムの選択成長法を用いて規則配列ナノコラムを作製し検討を行ったところ、発光色がコラム径とコラム密度で変化し、可発光色視全域でを変化させ得ることが分かった。研究方針を 微調して、発光色制御メカニズムの解明と規則配列ナノコラム LED のデバイスプロセス確立に研究 の重心を移動し、研究構想として新たに同一基板上に異なった発光色のナノコラム LED 集積化を 追加した。これは三原色 LED 一体集積化の実現を促し、さらには三原色集積レーザへの道筋の 明確化にも繋がりて、本研究プロジェクトの波及性が大きく広がると構想したからである。

ナノメートル領域の幅のストライプ窓をもつ Ti マスク上に GaN の選択成長を行なうと、板状形状 を有する新しい GaN 系ナノ結晶(ナノウォール)が成長でき、内部に貫通転位が入らない高品質結 晶が得られることが分かった。このウォール側面は基板に対して垂直で平坦性が高く、ファブリー ペロー型ナノレーザに展開できるので、この新領域ナノ構造を研究構想に追加した。また、ナノウォ ール開拓によって規則的に配列した GaN ナノウォールが得られ、この構造で発現される一次元の フォトニック効果を用いた反射型第2高調波発生(SHG)の増強効果の研究を推進することにした。

研究開始当初から、ナノコラムではナノ結晶領域端の自由端効果で結晶ひずみが軽減され、ピ エゾ電界が抑制されると考えていた。このナノ結晶効果を実験的に解明するため、InGaN/GaN 量 子薄膜構造にナノパターンとドライエッチングプロセスを施し、トップダウン型ナノ構造を作製しナノ コラムの歪緩和効果について探究した。ここでは、ナノ構造寸法を系統的に変化させ、ナノ構造の 有無による発光特性の変化を観測することで歪緩和効果を直接的に探索し、さらには、さまざまな ナノ構造に対する歪緩和効果の統一的な理解を進めることを、研究構想に加えた。

# §3 研究実施体制

(1)「岸野:上智大学」グループ

①研究参加者	

氏名	所属	役職	参加時期
岸野 克巳	上智大学 理工学部	教授	H17.10-H23.3
関根 智幸	同上	教授	H17.10-H23.3
江馬 一弘	同上	教授	H17.10-H23.3
大槻 東巳	同上	教授	H17.10-H23.3
菊池 昭彦	同上	講師~准教授	H17.10-H23.3
野村 一郎	同上	講師~准教授	H17.10-H23.3
欅田 英之	同上	助手~助教	H17.10-H23.3
石沢 峻介	同上	M2~PD	H18.1-H23.3
関口 寛人	同上	M2~学振 PD	H18.1-H22.3
黒江 晴彦	同上	助教~准教授	H19.4-H23.3
幸山 和晃	同上	D2~D3	H19.4-H21.3
山野 晃司	同上	D1~D3	H20.4-H23.3
光野 徹也	同上	D1~D3	H20.4-H23.3
猪瀬 裕太	同上	D1~D2	H21.4-H23.3
神村 淳平	同上	D2~D3	H21.4-H23.3
加藤 圭	同上	M1~M2	H20.6-H22.3
酒井 優	同上	プロジェクト PD	H19.8-H21.11
Ramesh Vadivel	同上	D1~PD	H22.4-H23.3
松山 勇	同上	プロジェクト RA	H22.4-H23.3
水野 愛	同上	プロジェクト RA	H22.4-H23.3

2 研究項目

#### (a) 自己形成 GaN ナノコラム

GaN ナノコラムの結晶特性を自己形成法でナノコラムを作り把握した。

・RF-MBE 法による(0001)サファイアおよび(111)シリコン基板上への自己形成 GaN ナノコラ ムの成長条件を把握する。InGaN 量子井戸を内在した自己形成 InGaN/GaN ナノコラムを 成長し、ヘテロ構造技術を確立した。

・成長条件と発光波長の面内分布の関係を把握しながら、In 組成均一化の為の手法を探り、 内部量子効率を把握した。

- (b) Si 基板上ナノコラム LED
  - ナノコラムレーザのデバイス化技術を確立するためには、ナノコラム電流注入構造の最適 化と電流注入下での発光物性の把握が重要であり、ナノコラム LED を作って、これらにつ いて下記のように検討を進めた。

・導電性 Si 基板上に pn 接合ナノコラムを成長し、p型ドーピングを検討しつつ、LED として 動作させながら、ナノコラムの電流注入構造について検討した。

・紫外から赤色までの広い波長域の LED 動作を実証し、動作波長域拡大を行なった。

・LED としての発展の基礎としてナノコラムの金属膜転写と Si 基板除去技術を確立した。

・InGaN 活性層の井戸幅依存性、発光強度、発光スペクトル半値全幅、さらに素子抵抗な どについて検討した。 (c) ナノコラム形状と位置の精密制御

ナノコラムレーザの基盤技術としては、ナノコラム形状と位置の精密制御が必須であり、本項目では GaN ナノコラムの選択成長法の確立を行い、次のように研究を展開した。
・Si 基板上で Al パターンを用いて GaN ナノコラムの選択成長法を探索した。第一段階ではマイクロメータ寸法の円形 Al パターンで結晶の選択成長性を把握し、次の段階ではナノメータ寸法の Al ドットを用いて、ひとつひとつのナノコラムの配列制御法を検討した。
・Si 基板上において Ti マスクによる GaN 選択成長性を明らかにした。

・GaN テンプレート上で GaN ナノコラムの Tiマスク成長法を確立した。選択成長条件を詳細 に調べ成長メカニズムを探究しながら、規則配列ナノコラムを実現して、空間配列の均一 化とコラム径制御性の向上を進めた。

・選択成長ナノコラムを基礎にして、コラム径と貫通転位との関係について調べた。

- (d) ナノコラム発光色制御
  - 研究を行なう内に、結晶成長におけろ新たな現象を発見し、研究方針を微調して、次のよう に研究を展開した。
  - ・緑色域で発光する規則配列ナノコラムの内部量子効率について検討した。InGaN 量子井 戸層が各ナノコラム構造内にどのように作られているか調べた。
  - ・InGaN/GaN 多重量子井戸ナノコラムにおいて、コラム径とコラム周期による発光色制御性 を実験的に示し、その発光色制御メカニズムについて検討した。
- (e) ナノコラムレーザの探索
  - ナノコラムレーザ媒質では、ナノコラム界面の屈折率段差によって光反射があり、媒質内で 光散乱が生じるので、ナノコラムに適合するレーザ構造の探索を進めた。研究計画では、 ナノコラムを規則的に配列させて、コラムの軸方向に光を伝搬させて発振させる垂直共振 型面発光レーザを開発すべきレーザ構造として想定した。これに加え次のように、単一ナノ レーザ、アレイ型レーザ構造、さらに新たなナノ構造で探索を進めた。
  - ・六角形のリング共振器によって単一ナノレーザの可能性を示した。
  - ・規則配列ナノコラムの周期構造と光の相互作用を積極的に活用する青色と緑色域アレイ型ナノコラムレーザについて検討した。
  - ・垂直共振型面発光ナノコラムレーザ基礎技術の開拓を進めた。GaN/AIN 多層膜反射鏡 (DBR)を下部反射鏡としたナノコラム共振器を作製し、光励起下でレーザ発振特性を検 討し、高反射 GaN/AIN DBR の作製法を確立した。
  - ・新たに GaN ナノウォールの提案と作製を進めて発光特性を調べ、ファブリーペロー型ナノ レーザに向けた基礎技術の検討を行なった。
- (f) ナノランダム物性

集団ナノコラムのランダム物性と光伝搬、ランダムレージングについて検討した。

- ・2次元ランダム系の光局在現象について数値計算で研究を展開し、その周波数依存性と 光局在の全体像の解明を進め、物理的起源を探究した。
- ・自己形成 InGaN/GaN 系ナノコラムのランダム性を基礎にした光のアンダーソン局在の直接観測を行なった。
- ・自己形成 GaN ナノコラムにおけるランダムレージングについて検討した。
- ・人工的にランダム配置させた GaN ナノコラムを作り、ランダムレージング特性を調べた。
- (g) ナノコラムの基礎物性とナノ結晶効果

・集団 GaN ナノコラムのフォノン物性や励起子物性について検討した。

・ナノ構造で発現されるナノ結晶効果について、GaN ナノコラムからの発光、フォトニック配列 GaN ナノウォールの SHG 増強効果、ナノ構造効果としての歪制御について検討した。

(2)「川上:京都大学」グループ

①研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
川上 養一	京都大学 工学研究科	助教授~教授	H17.10~H23.3
船戸 充	同上	講師~	H17.10~H23.3
金田 昭男	同上	COE 博士研究員	H17.10~H21.3
		~学振 PD	

②研究項目

- (a) 集団 InGaN/GaN ナノコラムの光物性を光学的に評価し基礎的な知見を得るとともに、ナノ コラムを機械的な手法で孤立させたときの、単一ナノコラムの光物性を評価し、両者の比較 により、ナノコラム特有の物性を抽出した。
- (b) 単一ナノコラムの光物性をより詳細に理解するために、格子状に並べたミクロンオーダのミラーの利用を提案した。有限差分時間領域法(FDTD)と光線追跡モンテカルロシミュレーションによって、マイクロミラーアレイ(MMA)構造の光学レンズや近接場(SNOM)プローブへの 集光効率を最適化する。さらに、各コラムからの発光スペクトルの偏光異方性を測定できる 光学系を構築した。
- (c) 青から赤色域まで各色で発光するナノコラムを上記 MMA に分散させ、各ナノコラムの発光 再結合寿命を測定した。ナノコラムの直径と、発光波長や寿命との相関などによって、ナノコ ラム内に形成されている発光中心の不均一広がりや次元性を評価した。
- (d) ナノコラム側面においては、格子不整合に起因した歪が開放されている可能性がある。それを定量するために、有限要素法によるシミュレーションを行った。歪は、光物性に強い影響を与えるため、シミュレーションの結果と光学的に得られた物性(特に輻射再結合寿命)との比較を行い、その妥当性を検討した。
- (e) 上記、歪みの開放により、従来の量子井戸構造にはない励起子物性の発現が期待される。 単一ナノコラムの顕微分光により、励起子物性を詳細に評価した。
- (f) 二光子吸収法を用いると、局在励起子を選択的に励起することができる。その特性を利用 して、ナノコラムにおける局在励起子物性をより明確に捕らえ、さらに、不規則に配置された 自然形成ナノコラムの構造に起因したランダムレージングの可能性を検討した。
- (g) 同様の測定を独自に加工して作製したナノピラー中の InGaN 量子井戸(ディスク)に適用し、 ボトムアップ的に作製したナノピラーとの特性比較を通じて、ナノ構造特有の現象を抽出し た。

#### §4 研究実施内容及び成果

# 4.1 ナノコラム結晶による窒化物半導体レーザの開拓と新規ナノ光物性の発現 (上智大学 岸野グループ)

#### (1)研究実施内容及び成果

#### ① 研究のねらい

ナノコラム結晶特性を活用して、窒化物レーザ/LED 波長域の拡大を阻んでいる課題を克服す べく、単一および集団ナノコラムで発現される物性現象とナノ結晶効果を学術的に探求しつつ、緑 色半導体レーザと三原色 LED 実現のための基盤技術の開拓を目指して研究を行なった。GaN ナ ノコラムは、研究代表者らが rf-MBE 自己形成法によって世界で最初に発見し、先導的に研究を 進めてきたが、これを基礎にフルカラー産業に寄与しうる新領域ナノデバイスの開拓を進めた。

自然核成長を基礎とする InGaN 系自己形成ナノコラムで作られた LED の電流注入発光をみる と、まるで宝石箱を引っ繰り返したように、マイクロメータ領域で隣接して赤、黄色、緑、青などの多 色発光スポットが混ざった多色発光が観測される。これは自己形成ナノコラムのランダム性に起因 する現象である。そのランダム性から発現される物性現象に注目して、集団ナノコラム物性(光物 性、フォノン物性、ランダム性)を探究し、同時に単一ナノコラム物性を究めて、ナノコラム固有の物 性現象を明らかにしつつ、研究を展開した。

デバイス応用には、コラム形状と位置が精密に制御された規則配列ナノコラムの利用が必須である。GaN 選択成長法を開拓し、ナノコラムの規則配列を実現して、a)発光色の均一性を高め、b) 多色発光の要因を明確にし、三原色発光の空間制御を狙った。前者によって緑色半導体レーザ、 後者で三原色 LED の一体集積化への突破口を拓くべく、本研究プロジェクトを遂行した。

#### ② 研究実施方法

研究目的を達成するため、次の研究項目を設定して研究を推進した。

- (a) 自己形成 GaN ナノコラムとナノコラム LED
- (b) ナノコラム形状と位置の精密制御
- (c) ナノコラム発光色制御
- (d) 規則配列ナノコラム LED
- (e) ナノコラムレーザの探索
- (f) ナノランダム物性
- (g) ナノコラムの基礎物性とナノ結晶効果

まず rf-MBE によってサファイア基板上に GaN ナノコラムを自己形成させながら、その高品質化 を進め、ナノコラム結晶の優れた結晶特性を実証した。次に、n型(111)面 Si 基板上で自己形成 GaN ナノコラムの高品質化を進め、さらに InGaN/GaN 多重量子井戸(MQW)を作りこみながら pn 接 合構造を成長させナノコラム LED 実現して、室温 CW 動作下で LED 特性を調べ、ナノコラムの有 用性を明らかにした。顕微鏡下でみると、微小発光領域内に、赤、青、緑色など異なった発光色ス ポットが見えた。これは自己形成ナノコラムのランダム性に基づいており、次に GaN ナノコラムの選 択成長法を開拓して、ナノコラムの形状と位置制御を行い、規則配列 GaN ナノコラムの作製法を確 立し、均一な発光色を得た。また規則配列ナノコラムで、コラム径あるいはコラム周期を系統的に変 化させて、InGaN からの発光を調べたところ、発光色がコラム径、コラム周期およびコラム高さで制 御できることが判明した。次に規則配列ナノコラム LED 構造を作り、発光特性をしらべ、さらにナノ コラムの規則配列化を基礎にして、ナノコラムレーザの探索を進めた。これらの研究と並行して、ナ ノコラム物性を明らかにするため、自己形成法で作製した集団 GaN ナノコラムの光物性、ランダム 物性などについて調べ、新物性の発現とナノ結晶効果の解明を進めた。

以下では、上記の各項目の主たる研究内容を系統的に網羅しつつ、本研究プロジェクトの研究 成果について述べる。

# ③ 研究成果

#### (a) 自己形成 GaN ナノコラムとナノコラム LED

#### (a)-1 サファイア基板上ナノコラム

(a)-1-1 GaN ナノコラム<sup>8,9,60,105,175)</sup>

成長条件を系統的に変化させながら、サファイア基 板上に、rf プラズマ分子線エピタキシー(rf-MBE)によ ってGaNナノコラム結晶を自己形成的に成長した。成 長過程では、基板表面に850℃でAINバッファー層を 交互供給(MEE)法で成長し、その上にGaNナノコラ ムを950℃で1時間成長を行なった。AINバッファー 層は島状結晶となりナノコラム成長起点として機能す る。AINのMEE成長時にAI供給量を20秒から90 秒まで変化させながらGaNナノコラムを成長し、そのと きのGaNナノコラムのフォトルミネッセンス(PL)スペク トルを調べた。図J1 は PL 強度と PL-半値全幅 (FWHM)のAI供給量依存性で、AI供給量をそれに 相当するAINバッファー膜厚で表示した<sup>8,9,60,105,175</sup>。

ナノコラム密度とコラム径によって三つのグループ に分類される。グループ1では Al 供給量の増加ととも にコラム径が150から80nmに急激に減少し、コラム密 度が増加し、2ではコラム径は80-90nmに維持されつ つ、Al 供給量とともにコラム密度が減少し、3ではコラ ムの密度も径も同時に減少して、まばらなナノコラム配 置となった。4.6nm 以下の AlN バッファー層厚領域で は、PL-FWHMは48meVで、GaNナノコラムの結晶性 はほぼ一定に保たれ、グループ2でみられるPL 強度 の増加は、コラム密度の減少によって光取り出し効率 の増加がもたらされたと考察される。



(0001) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> substrate 図 J3: 自己形成 GaN ナノコラ ムの断面 TEM 明視野像<sup>8)</sup>

図 J2 には、 AIN が 4.6nm のとき、最も PL 強度が大 きな GaN ナノ

コラムの室温フォトルミネッセンス(PL)スペクトルを示した。 PLピーク強度は、高品質 GaN バルク基板と比べても4倍と 強く、標準的な MOCVD 成長 GaN 膜(N<sub>disl</sub>~5×10<sup>9</sup> cm<sup>-2</sup>) との比較では 500~600 倍の強度が得られた。

図 J3 は GaN ナノコラムの断面 TEM 明視野像である。直径50nmで高さ~1 µmに亘ってコラム径が変化していない。 ナノコラム内に貫通転位は観測されなかった。また、高分 解能 TEM 観測写真でみると、ナノコラムの成長核が島状 AIN 結晶の側面から形成されていることが分かる。

このように、GaN ナノコラムの優れた発光特性は、貫通転位を含まないこと、一次元ナノ構造の高い光取り出し効率によって実現されている。平坦膜の場合、低欠陥結晶を



図 J1 サファイア基板上の自己形成 GaN ナノコラムの室温 PL ピーク強度と発光半 値全幅の AlN バッファー層厚依存性<sup>8,9)</sup>



図 J2: 室温 PL スペクトル<sup>8,9)</sup>

得るには高度の結晶成長技術が必要とされるが、ナノコラムとすることで、GaNバルク結晶に匹敵し うる高品質結晶が容易に得られ、ナノ発光デバイス応用へのナノコラム有用性が示された。

このように作製された集団 GaN ナノコラムからの励起子発光を調べた。細いコラム径では c 面薄 膜やバルクでは観測されない B 励起子、C 励起子からの強い発光が観測された<sup>16,129,199,279)</sup>。この 現象はナノコラムが波長 250nm 程度以下の深紫外域 LED の高輝度化に寄与しうることを示唆する。 よく知られているように、AlGaN の価電子帯は Al 組成の増加とともに変化し、波長 250nm 付近より も短波長域では C 励起子が優勢になって、c面 LED では上方への光放射が激減する。ナノコラム では径を細くすることでコラム側面からの光放射成分が大きくなり、C 励起子の上方放射を促進で きる。これとともに貫通転位も含まれていないので、紫外域 LED 高輝度化への寄与が期待される。 ナノ結晶効果のひとつが示された。

#### (a)-1-2 自己形成 InGaN 量子ディスクの内部量子効率

赤色 LED の高効率化は窒化物半導体の分野全体が直面している課題で、薄膜構造の赤色域 InGaN 量子井戸はほとんど光らない。内部量子効率(IQE)は、赤色域の中心波長(620nm)ではほと んどゼロで1%以下であり、橙色域(590~600nm)でも10%程度にすぎない。

本研究では、図J4のように、<u>rf-MBE法を用いて</u> <u>成長温度 720℃で、(0001)面サファイア基板上に自</u> <u>己形成法で GaN ナノコラムを成長し、そのナノコラム</u> <u>上部に厚さ 5nm の InGaN 単一量子井戸構造を内在</u> <u>化させ、厚さ 30nm の GaN で表面を覆った。GaN ナ</u> ノコラムの直径は 60~100nm、高さは 1.5µm であっ た。波長 405nm の InGaN 半導体レーザで、ナノコラ ム内の InGaN 量子井戸層を選択励起して PL 発光 特性を調べた。波長は 597nm で橙色の発光が見ら れた。PL スペクトルの温度依存性を4K~300K の範 囲で調べ、図 J5 のような PL 積分強度のアレニウス プロットと PL スペクトルの温度依存性が得られた。

PL 強度は温度上昇とともに減少し、低温と室温での PL 積分強度の比は 28.7%であった<sup>134,218)</sup>。極低 温では非発光再結合は抑制され、発光再結 合のみが残り、この値は内部量子効率に対



図 J5: InGaN/GaN SQD ナノコラムの PL 積分強度のアレニウスプロット及び PL ス ペクトルの温度特性



図 J4:InGaN 量子井戸を内在した自 己形成ナノコラムの SEM 写真



図 J6 PL 内部量子効率の波長依存性

応すると考えられている。図 J6 には同様な方法で評価された c 面 InGaN の PL 内部量子効率を文 献から拾い出して、ナノコラムとの比較を行っている。通常の InGaN/GaN 量子井戸では、ピエゾ電 界による遷移確率の減少によって、長波長域(緑~赤)では発光効率が劇的に低下する。これに 比べて、ナノコラム結晶では、波長 596nm(橙色)でも、高い内部量子効率(~30%)、高い発光遷 移確率が実験的に観測され、ナノコラムの発光特性の優位性が示された。

# (a)-2 Si 基板上ナノコラム-AIN バッファー層の導入-

上記で解明されたサファイア基板上の成 長条件に基づいて、(111)面n型Si基板上 にGaNナノコラムの自己形成を行なった。Si 基板上でもAINバッファー層を導入したとこ ろ、Si基板上でナノコラムの高温成長が可能 となり、その結果、結晶品質が向上し、ボトム からトップまで均一な直径のGaNナノコラム が得られた<sup>211)</sup>。ここでは、その研究成果を簡 単にまとめる。

ここでは比較のため、AIN バッファー層の ありなしの二通りの条件で、GaN ナノコラムを、 成長温度を915~970℃の範囲で変化させな がら、Si 基板上に成長した。図 J7 には成長 GaN ナノコラム密度の成長温度依存性を示 した。AIN バッファー層がない場合には、成 長温度を915℃から920℃にわずか5℃増加 させただけで、ナノコラム密度は 6.4×10<sup>9</sup>か ら 1.7×10<sup>8</sup> cm<sup>-2</sup> に急減に減少したが、AlN バッファー層を導入するとナノコラム密度の 温度依存性は微弱で、0.7-1×10<sup>10</sup>cm<sup>-2</sup>の 高いコラム密度に維持された。この現象は、 (a)-1 でも述べたように、バッファー層の AIN 島結晶の側面がナノコラム成長起点として 働き、ナノコラム密度が、成長温度ではなく AIN 島結晶の表面分布で決まると考えると 理解しやすい。

図 J8 は Si 基板上 GaN ナノコラムの PL ス ペクトルの温度依存性で、成長温度を高く するとともに PL ピーク強度が増加し、温度 960℃成長の結晶は、915℃の低温で成長 した結晶に比べて、8 倍の PL ピーク強度を 示し、さらに、<u>この結晶は高品質の HVPE 成</u> 長 GaN 基板に比べても発光強度は 4 倍で あった。



図 J7: GaN ナノコラム密度の成長温度 依存性<sup>211)</sup>



図 J8: GaN ナノコラムの PL スペクトル温度依存性と HVPE-GaN の PL スペクトル

この実験によって、Si 基板上でも AlN バッファー層を用いて高温で GaN ナノコラムを成長することで高品質結晶が得られることが分かった。

#### (a)-3 Si 基板上ナノコラム LED

(a)-3-1 Beドーピングによる表面平坦効果<sup>19, 25, 190, 200, 257, 258)</sup>

直径 50nm~300nm のナノコラム結晶に電流を流すため、図 J9 のように p 型クラッド領域でナノコ

ラムの横方向成長を促進させ、ナノコラム間を結 合させて、表面では平坦膜とした<sup>8,60,105</sup>。この場 合、結晶内部にはナノ構造が存在し、ナノ結晶効 果を発現しつつ、外からみると通常の LED 結晶と 同じに簡単な電極プロセスでナノコラム LED が実 現される。しかしながら、その最表面の平坦性が 不足し、表面への電極形成においてデバイス化 の障害となることがあった。本研究では、二通りの 方法でアプローチした。ひとつは ITO スパッタ膜 を成膜することで横方向伝導性をとる。もうひとつ は Be ドーピングによる最表面平坦効果である。

rf-MBE によって n 型(111)Si 基板上ナノコラム LED 結晶を成長し、GaN ナノコラムの Be ドーピン グ効果を検討した。Be セル温度を 820~975℃と 変化させた。 図 J10 に Be ドープ・ナノコラム LED 結晶の鳥瞰 SEM 写真を示す。Beドーピング量が 少ない領域(セル温度 820~870℃)では、表面に グレイン構造に起因する凹凸が観察されたが、Be ドーピング量の増加とともに表面平坦性が向上し、 Beドーピング量とともに LED 最表面粗さ(AFM に よるRMS値)は、35nm から 10nm まで低下し、平 坦性が向上した<sup>19, 25, 190, 200, 257, 258)</sup>。Beはp型ドー パントとして浅いアクセプタ準位をもつ期待された が、本研究で実験した範囲ではp型結晶は得られ なかった。しかし、Beドーピングによる想定外の効 果として、最表面平坦化に有用なことが分かっ た。







図 J10: 上部を Be ドープした GaN ナ ノコラム LED 構造の鳥瞰 SEM 像、 (a)820℃、(b)870℃、(c)920℃、 (d)975℃

#### (a)-3-2 可視域 自己形成ナノコラム LED

図 J9 は、電流注入型 InGaN/GaN ナノコラム LED<sup>8,105)</sup>の概念図である。(111)面 n型 Si 基板上 に自己形成された直径 80~120nmのn型 GaN ナノコラム内に InGaN/GaN 多重量子井戸(MQW) を内在化させた。InGaN 活性層は上下を GaN バリヤ層、水平横方向はコラム側面で閉じ込められ るので量子ディスク構造となると考えられる。p型 GaN クラッド層では Mgドーピングを行い低温で成 長するため、上記のようにナノコラム径が増加して最表面では連続膜となった。本研究では電極構 造の工夫、最表面平坦化の促進などによって、直径 500 µ mの円形電極に対して素子抵抗は 13 Ωまで低減化された。室温で青色域(496nm)から赤色域(663nm)<sup>8,60,63)</sup>までの広い発光波長域で、 直流電流注入による LED 動作を実現し、初期に作製したナノコラム LED では発光スペクトルはブ ロードで発光半全幅(FWHM) は数百 meV であったが、自己形成ナノコラムの均一化を図ったとこ ろ、半値幅が狭くなり、波長 570nm の半値全幅は 184meV となって、同じ波長域における InGaN 量 子井戸の半値全幅と同程度まで改善された<sup>63)</sup>。InGaN 系 LED の半値全幅は長波長化とともに広 がり、発表論文(Mukai et al., JJAP 37 (1998) L479)によれば波長 593nm で 196meV である。

# (a)-3-3 紫外域 自己形成ナノコラム LED<sup>15, 22, 63, 121, 123, 183, 187, 283)</sup>

GaN ナノコラムは、転位の増加や結晶の品質低下が起こりやすい紫外域デバイスの高性能化で もナノ結晶効果を発現し得ると期待される。本研究では、rf-MBE 法による自己形成法によって、Si 基板上に GaN/AlGaN MQW 紫外ナノコラム LED の作製を行い<sup>15,22,63,121,123,183,187,283)</sup>、ナノコラム LED の波長域を紫外域(波長:354nm)まで拡大することに成功した。

図 J11 は、作製した紫外域ナノコラム LED の断面構造図である。最初にn型(111)Si 基板上に最 初に GaN ナノコラムを成長した。そのナノコラム構造を維持しつつ、n型 Alo 25Gao 75N クラッド層、 GaN(1.5nm)/Al<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>N(2.5nm) MQW(3QW)、i 層 Al<sub>0.35</sub>Ga<sub>0.65</sub>N 電子ブロック層を成長して、p 型 Al, Ga1-, Nクラッド層で横方向成長を促進させてナノコラム間を結合させ、表面層にp型 GaNコンタク ト層を成長させた。ここでは p 型クラッド層の Al 組成比 Xal (8、13、25%)を変化させて、三種類の LED 結晶を作った。最表面に電極径 500 µ mの Ni(2nm)/Au 半透明膜を形成し、電流注入発光を 観測した。発光ピーク波長は 354nm で、Xム=13%で立ち上がり電圧は 4.0V、直列抵抗は 18Ωであ った。X』=25%のとき、p型クラッド層への漏れ電流が少なく、最も狭い発光半値全幅(278meV)が 得られた。図 J12 はマクロ領域(径~500μm)とミクロ領域(径~50μm)で測定した 5mA 時の発光ス ペクトルである。500μm 径のマクロ領域では GaN 量子ディスクの直径や厚さが素子面内で不均一 なため半値全幅が 29.3nm と広かったが、ミクロ領域測定では半値全幅は 12.0nm(FWHM: 119meV)と狭い値が観測され、LED 特性の向上には、ナノコラム形状と位置制御が必要であること を示している。



# 図 J11 紫外域ナノコラム LED の概念図

#### (a)-3-4 自己形成ナノコラム LED の多色発光

顕微鏡下において自己形成 InGaN ナノコラム LED の近視野像を室温 CW 動作下で評価すると、図 J13 のように多 色発光が見られることがある。ナノコラム LED 作製の初期的段階の成長制御が 不十分な時期の試料でよくみられたが、 マイクロメータ領域内に赤、緑、青、黄 色の明るい発光スポットが観測され、ま るで宝石箱を覗くようで興味深い <sup>8, 60,</sup> 259)

rf-MBE 成長中に表面に入射する In と Ga フラックス量は一定であると考えら れるので、何らかのナノコラム個性の違



@5mA

large area

small area

520

図 J13: 自己形成ナノコラム LED 近視野像<sup>259)</sup>

いによって、In の取り込み量に分布ができ、発光色に 変化がもたらされている。青色スポットの近傍に緑色ス ポットがあったり、小さな赤色のスポットがみえたり、さま ざまである<sup>63,205)</sup>。これらの明るい発光スポットを顕微 PL 装置(空間分解能:2µm)で観測したところ、図 J14 の ような発光スペクトルを得た。青、緑、橙、赤色スポット からの半値幅の狭いスペクトルが見られ、とくにピーク 波長 579nm の発光の半値全幅(FWHM)は 98meV と 見積もられた。図 J17 に InGaN 系 LED の発光スペクト ル半値全幅と比較してこの値がプロットした。

通常のLEDのFWHMの180~200meVに比べて著 しく狭く、ナノコラムのもつ優れた発光特性を示唆して いる。自己形成ナノコラムで見られた多色発光を単色



図 J14: 顕微 PL スペクトル

発光ごとにに制御する技術が見出されれば、マイクロメータ空間内で三原色制御ができるようになり、三原色ナノLED、あるいは白色LED応用など、魅力的なデバイスの実現が期待される。

(a)-3-5 微小電極 InGaN/GaN ナノコラム LED (Si 基板除去プロセスの確立)<sup>147,209,235)</sup>

自己形成ナノコラム LED では、自己形成過程に伴う面内ばらつきのため<sup>8)</sup>、ナノコラム本 来の特性がマスクされ、発光スペクトルはブロードになり、上記のように多色発光となる ことが多い。そこで本研究では、電極径を数μm

以下まで微小化した微小電極 LED を作った。

<u>Si 基板上に自己形成ナノコラム LED 結晶を成長</u> させ、p-GaN 層表面に厚さ 50 µ m の金をメッキした 後に Si 基板を取り除いた(図 J9)<sup>209</sup>。露出した n-GaN ナノコラム間に SOG を充填して、直径 1.2 µ m の微小開口を開け、ITO 透明電極を形成した。

注目すべきは、ナノコラム表面への厚膜金メッキ 層の形成とSi基板のエッチングプロセスである<sup>209)</sup>。 この技術の開拓により、Si基板上からナノコラム LED を分離でき、Siによる光吸収がなく、針状の n 型 GaN ナノコラム形状によって光の取り出し効率の 高いLED が実現される。これはナノコラムLED の実 用化技術に一歩踏み込んだ研究ともいえよう。

図 J15 が作製した微小電極ナノコラムLED の構造 図である。互いに独立した n 側 GaN ナノコラム上に ITO 電極をつけ、一本一本のナノコラムの活性層に 直接に電流注入ができる構造とした。つまり、電極 面積を微小化すれば励起ナノコラム本数を限定し ながら、その特性が把握できる。

これに対して、従来のように、p 側に電極を作った 場合、p 型クラッド層における電流広がりのため、励 起ナノコラムを限定し得ない。p型 GaN では、Mg ド ーパントの取り込みをあげるため、低温で成長する ため横方向成長が起こり、Mg ドーピングもそれを促 進し、p型クラッド層は連続膜となる。

図 J16 は、顕微分光で評価した電流注入時の発 光スペクトルで、開口部からは単一発光スポットが観



図 J15: 微小電極ナノコラム LED



図 J16 微小電極ナノコラム LED の 発光スペクトル (電極直径 1.2 µ m)

測された。<u>発光ピーク波長は、緑色域</u> 507nm であり、半値全幅 13nm (63meV)の 非常に狭い単峰性の発光スペクトルが得ら <u>れた <sup>147, ,235)</sup>。</u>図 J17 に微小電極 LED の半 値全幅を示した。このナノコラムからの半値 全幅の狭い電流注入発光は、前項の顕微 EL 測定による観測と矛盾することなく、同じ 傾向の曲線上に載っている。SEM で調べた ところでは、発光したナノコラム集団は、直 径 50nm 程度の細いナノコラムからなり、コラ ム径の微細化が、コラム内に内在化された InGaNのIn 組成揺らぎの抑制に寄与してい る可能性を示している。この実験結果は、微 小電極内に均一に揃ったナノコラム集団が 存在し、色純度の非常に高い発光特性が 得られたと考えられる。



図 J17: InGaN 系 LED とナノコラム LED の発光スペクトル半値全幅

#### (a)-4 自己形成 GaN ナノコラムにおける研究成果とまとめ

rf-MBEによってサファイア基板上へ GaN ナノコラムを成長した。ここでは、AIN バッファー層が有効で、AIN 島状結晶がナノコラムの成長起点として機能し、ナノコラムとすることで容易に GaN バル ク結晶に匹敵しうる高品質結晶が得られることが分かった。GaN ナノコラム内に発光波長 596nm (橙色)をもつ InGaN 単一量子井戸を作りこんだところ、高い内部量子効率(28.7%)が得られた。通常の InGaN/GaN 量子井戸では、ピエゾ電界による遷移確率の減少によって、長波長域(緑~赤)では発光効率が劇的に低下する。これに対してナノコラムでは高い発光遷移確率が得ら、ナノコラム 発光特性の優位性が示された。Si 基板上でも AIN バッファー層を活用することで、ナノコラムの高温成長(960℃)が可能となった。その結果、HVPE 成長の高品質 GaN 基板からのフォトルミネッセンスに比べて、4 倍の発光強度が得られた。<u>Si 基板上でもサファイア基板上ナノコラムに匹敵する結</u>晶性が得られることが分かり、Si 基板上ナノデバイスの基礎が確立された。

n型(111)Si 基板上ナノコラム LED 結晶を成長し、LED 特性を調べた。初期の LED では多色発 光となったが、成長条件を最適化することによって、波長 570nm の半値全幅 184meV を得て、同じ 波長域の通常の InGaN 系 LED と同程度までの改善がみられた。また<u>紫外から赤色域 LED 動作を</u> 得て Si 基板上ナノコラム LED の基礎技術を開拓した。

上記の多色発光 LED の発光近視野を観測すると、自己形成ナノコラムのランダム性に起因して、 まるで宝石箱を覗くように、マイクロメータ領域内で赤、緑、青、黄色の明るい発光スポットがみられ た。この実験は、研究プロジェクトに大きな方針転換をもたらした。すなわち、コラム形状と位置制 御によって制御領域内での発光波長の均一化を行ないつつ、同一基板上の異なった領域に自在 に異なった発光色のナノコラムを作り得る発光色制御を研究目的に追加した。あとの項目で研究 成果については述べるが、マイクロメータ空間内における三原色制御法を確立し、三原色ナノ LED、白色 LED 応用などの革新的光デバイスの基礎技術の開拓を目指すことにした。

一方、多色発光の中から、ピーク波長 579nm の発光スポットに着目して、顕微システムで測定したところ、通常の LED に比べて著しく狭い半値全幅 98meV をもつ発光スペクトルが観測された。さらに、微小電極(1.2 µm 径)LED 構造をつくり、励起ナノコラム本数を限定したところ、顕微 EL による結果を裏付けるように、波長 507nm の緑色域における半値全幅は 13nm(63meV)となって、非常に狭い単峰性の発光スペクトルが得られた。この結果は自己形成の集団ナノコラム内に均一には揃ったナノコラム集団が存在し、色純度の非常に高い発光特性が得られることを示している。

これらによって、ナノコラム潜在性を真に引き出すには、自然核成長による自己形成法 でなく、選択成長によるナノコラム形状と位置の精密制御が必須であることが分かった。

#### (b) ナノコラム形状と位置の精密制御<sup>65,67)</sup>

これまで自然核形成を利用する自己形成法によって GaN ナノコラムの成長は用いてきたが、ナノ コラムの径や横断面形状、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。本研究では、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。

GaN 選択成長は MOVPE 法では十分に確立され、たとえば、SiO<sub>2</sub>マスクを用いた ELO による欠陥低減など、GaN 系デバイスの高性能化に寄与してきた。しかしながら MBE 法に目を転じると、通常の MBE 成長条件では、Ga などのⅢ族原子がマスク上に付着し、結晶の選択成長性を発現させることが難しく、選択成長法は未開拓であった。そこで、<u>新たに選択成長法の開拓が必要となり、それぞれ Al ナノパターン <sup>11, 14, 18, 114, 173, 179, 194</sup> と Ti マスク <sup>23, 26, 127, 128, 130, 191, 202, 210)</sup>を用いる二通りの方法を開拓し、rf-MBE では世界で初めて GaN 結晶の選択成長に成功した。</u>

# (b)-1 AI パターンによる GaN ナノコラム選択成長<sup>11,14,18,114,173,179,194)</sup>

#### (b)-1-1 窒化 AI パターン上 GaN ナノコラム成長

本研究では、図 J18 のように Si 基板上に Al ディスク(厚さ:23nm、直径:2.8 µ m)からなる2次 元正方格子(周期 4 µ m)を形成し、温度 860℃で 原子状窒素ビームを表面に照射して、Al を窒化 して AIN パターンとしたのちに、成長温度 960℃ で 1 時間の間、窒素過剰条件下で、GaN ナノコ ラムを成長した<sup>11,114,173</sup>。

(a)-2-2 における AIN 島状結晶と同じように、 AIN パターンが GaN ナノコラムの成長核発生に 影響し、成長 GaN ナノコラムに空間分布が発生 した。図 J19 は成長後の GaN ナノコラムの SEM 写真で、Si上に比べてAIパターン上とで GaN ナ ノコラムの高さが高く、成長速度に選択性が現れ た。AI ディスク層厚を 5nm~31nm の範囲で変化

させたところ、17nm以上のAI層厚で は、図 J19 に見られるように、AI ディ スクの円周上に添って、直立した GaN ナノコラムが配列された。その AINパターン端に比べて、AINディス ク上ではナノコラムの傾斜が見られ た<sup>11,114,173)</sup>。

Si 基板上では GaN ナノコラムの成 長核発生が遅れ、コラム高さが低く なり、一方、供給された Ga 原子は、 先に GaN ナノコラム成長が開始した AINパターンに向かって Si 基板表面 を拡散し、そこで吸収されるため、パ ターン近傍ではナノコラム高さの減 少が見られた<sup>11)</sup>。



図 J18: Si 基板上 2 次元正方格子 Al ディスクパターン<sup>11)</sup>



図 J19 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<sup>11)</sup>

これらの結果より Al パターンの利用によって GaN の選択成長の可能性が初めて示された。その 結果、Al パターン寸法を、ナノコラム直径と同程度(~100nm)にすることで、1本のナノコラムの位 置制御が実現できると考え、微細パターンでの選択成長を行なった。

# (b)-1-2 AI ナノドットへの選択成長<sup>14,18,194)</sup>

n-Si (111) 基板上に電子線露光を用いて周期 300 nm で三角格子状に配列された Al ナノドットか らなる Al ナノパターンを形成した<sup>14, 18, 194)</sup>。ひとつ の Al ドットは、直径 85nm、膜厚は 20nm で、図 J19(a)は典型的な Al ナノパターン SEM 写真であ る。これを RF-MBE 装置に基板を搬入し、表面初 期窒化を行って AlN を形成した後に、941~ 970℃で GaN ナノコラムを成長した。図 J20(b)~(d) に成長後のナノコラムの表面 SEM 像を示したが、 Al ナノドットの位置にナノコラムが選択的に成長し ている様子がわかる。図 J20(d)は、(b)の四角領域 の拡大像であり、GaN ナノコラムが Al ディスク端に 沿って成長し、ナノチューブ状となっている<sup>14, 18,</sup>



図 J20: Al ナノパターン及び GaN ナノコラ ムの表面 SEM 像. (a):Al ナノパターン、 (b)(c):ナノパターン上に成長したGaNナノ コラム、(d):(b)の拡大像<sup>14)</sup>

ン基板上、A1N 上、シリコン /AIN 境界部の順番で起こりや すいためであると考えられる。

図 J21(a)~(f)は、それぞれ GaNを961℃、961℃、966℃で 成長した場合の鳥瞰 SEM 像で ある。円形状の各ナノパターン は周期 10µmの三角格子状 に配列されている。各パターン 内でナノコラム高さは均一に制 御された。957℃の低温成長で は(a,b)、AIN ドットでの成長核 形成が早いため成長選択性は 見えるものの、パターンの外の Si 基板上に自然形成のGaNナ ノコラムが密集して形成された。 成長温度 961℃では(c,d)、Si

表面上の GaN ナノコラムの自己形成が抑制され、 細い GaN ナノコラムが成長したが、これよりわずか に成長温度を上げて 966℃にすると(e,f)、Si 上で GaN ナノコラム形成を完全に抑制でき、完全な選 択成長が実現された<sup>14, 18, 194</sup>。

本手法は、シリコン基板上へのナノコラムの規 則配列や形状制御に有効で、表面に Al ドット形 成するだけでよく、プロセスは比較的に簡単であ る。しかしながら、昇温過程で Al が融解し、Al ドッ トが変形し、図 J20(d)にみるようにチューブ状ナノ コラムの均一性は不十分であった。現時点では検 討は不十分であるが<sup>214)</sup>、Al ドットではなく、結晶 成長が関与して複雑となるが、初めから Si 基板上 に AlN ドットパターンを作れば解消でき可能性が



図 J21:Al ナノパターンを配置した(111)シリコン基板上に 異なる温度で成長した GaN ナノコラムの鳥瞰 SEM 像<sup>14</sup>. (a,b):957℃、(c,d):961℃、(e,f):966℃



図 J22: PL 発光スペクトル

ある。

図 J22 には Si 基板上の規則配列 GaN ナノコラムの PL スペクトルを示した。発光ピーク波長は 363.8nm と自立性 GaN 基板の 364.1nm にほぼ同じとなり、<u>基板からの残留歪がない自立性結晶で</u> あった。PL 半値全幅は 60meV で、GaN 基板における観測値 64.5meV に比べて狭く、発光ピーク 強度も 2.5 倍で、Yellow 発光がよく抑えられていて、高品質 GaN ナノ結晶であることが分かる<sup>14)</sup>。

これは本手法の有効性を物語っているが、研究プロジェクト期間は有限であって、AIN マスクパ ターンの検討は研究途上で<sup>214)</sup>未開拓となった。これはナノパターン形成にはナノメートル水準で 平坦な AIN 薄膜が必要であったが、現有の rf-MBE で Si 基板上へ平坦性の高い AIN 膜を成長さ せるには、別次元の研究努力が必要であったからである。AIN ドットは、ナノ結晶の結晶核発生に 活用し、GaN ナノコラムは Si と AIN ドットの境界面に形成され、ナノ結晶は自己形成的に高品質結 晶となるので、AIN 膜は表面平坦性が確保されれば、多少の結晶性の悪さは、GaN ナノコラムの結 晶性に影響されない可能性がある。したがって、AIN スパッタ膜のような手軽な手法が活用できるか も知れない。容易に AIN 膜を形成され、ナノ構造の大面積領域への形成に寄与しえよう。

この選択成長法によれば、大面積Si基板上に規則的に並んだGaNナノコラムを形成できるので、 さらに探究してコラム形状の揃ったナノコラムを成長できる手法が完成されれば、将来的にはナノコ ラムデバイス実用化における大面積ナノデバイスの実現、あるいはデバイスコストの低減化に寄与 しうる。さらに、Si基板上のInGaNナノコラムLEDでは、ウエハーボンディングによってSi基板をエ ッチング除去することで、Siによる吸収がなく、光取り出し効率の高いLEDが、高品質なナノ結晶で 実現できる可能性がある。このデバイスプロセスは、上記の微小電極ナノコラムLEDで実証した。こ の技術が成熟すれば、たとえば白色半導体ランプの超低価格化、大面積化に寄与しえよう。

#### (b)-2 GaN の Si 基板上 Ti マスク選択成長<sup>20)</sup>

Al ナノパターンによる GaN ナノコラムの選択成長 法では、Al を窒化して形成された AlN 成長核を用 い、Si 基板上と島状 AlN 結晶ファセット間の核成長 温度の違いを利用して、選択成長を実現している。 しかしながら、昇温時の Al メタルパターン変形のた めに選択成長制御性が不十分であった。

選択成長に適したマスク材料を探し出すため、融 点の高い Ti マスクを利用し、Si 基板上への GaN ナ ノコラムの選択成長を試みた<sup>20,191)</sup>。ここでは、図 J23 のように、厚さ 20nm の Ti 膜にストライプ状の窓 (幅 920、165、120nm)を周期 1 µ mで開け、成長温 度を877、903、935℃と変えてGaNナノコラム成長を

行った。成長温度が 高いほど、Ti マスク上 へのナノコラム自然形 成が減少し、935℃で は完全に抑制され、図 J24 に示すように優れ た選択成長が実現さ れた<sup>20,191)</sup>。これをみる と、幅 102nm ストライプ では、単一ナノコラム



図 J23:Si 基板上 Ti マスク選択成長法<sup>20)</sup>



図 J24: 選択成長 GaN ナノコラムの鳥瞰 SEM 写真<sup>20)</sup>、(a)ストライプ 窓幅 920nm、(b)165nm、(c)120nm、成長温度 935℃。

が直線的に並ぶが、ストライプ幅が広い場合、Si 面が露出した窓部に複数個のナノコラムが自己形成された。Si 面には窒化物の結晶情報をもつ成長起点がないため、ナノコラム成長核発生がラン

# ダムに起こって、径の細いナノコラムが窓内に自己形成され、コラム形状をマスクパターンで制御で きない。Si 基板上に GaN や AIN 薄膜を成長させておく必要があることが分かった。

# (b)-3 GaN テンプレート上の Ti マスク選択成長法<sup>23, 26, 127, 128, 130, 191, 202, 210)</sup>

# (b)-3-1 選択成長条件の探索

前項の実験結果を基礎にして、 GaN ナノコラムの形状制御の実現に は、GaN 膜を成長起点とすることが 必要であると考え、市販のサファイア 基板上 GaN テンプレート上で、GaN ナノコラム選択成長を探究した。

図 J25 のように、(0001)GaN テンプ レート基板(膜厚 3.5  $\mu$  m)上に 5nm の Ti 薄膜を堆積し、集束イオンビーム (FIB)もしくは電子ビーム描画とドラ イエッチングによって、周期 400nm-4 $\mu$ m、直径 100-550nm をもつさまざ まなホールパターン(図 J25(b))を形 成した。Ti の表面窒化を行い、GaN ナノコラムの成長成長条件の開拓を 進めた。Si 基板とサファイア基板上で は成長条件が異なり、成長温度を 880~925℃で、供給窒素流量を 3.5 ~0.5sccm の範囲で、系統的に変化 させながら成長条件を探索した。図



J26にみるように、900℃以上でGaNの選択成長が得られ、明瞭な規則配列ナノコラムが得られた。 成長温度が高いほど、マスクパターン外のTiマスク上へのGaNの析出が抑制され、優れた成長選

択性が実現されたが、パターン内をみると高 温域ではナノコラム形状の不均一性が助長 された。

この結果、均一な規則配列ナノコラムは、 選択成長の臨界温度(900℃)近傍の狭い成 長温度範囲(15℃程度)で実現され、精密な 成長温度の制御が必要となることが分かった。 しかしながら、図 J25 にみるように、その温度 では Tiマスク上へのナノコラム自己形成が起 こりやすく、周期が長くなると、コラム間にもナ ノコラムが自己形成され、十分な成長選択性 が得られない。

そこで、臨界温度近傍の低い成長温度で も、パターン外 Ti マスク上のナノコラム自己 形成を抑制するため、成長温度 900℃にお いて窒素供給量 Q<sub>N2</sub>の成長選択性への寄与 を調べた。Q<sub>N2</sub>を3.5sccmから0.5sccmまで減 少させながら実験を行なったところ、図 J27 に みるように、どの Q<sub>N2</sub> でも均一性の高い規則



図 J27: 選択成長 GaN ナノコラムの窒素 供給量依存性 (Tg=900℃)。成長時間 は、Q<sub>N2</sub>が 3.5、2.0、1.0sccm は 3 時間、 0.5sccm は 2.5 時間である<sup>23)</sup>。

#### 配列 GaN ナノコラムが得られた。

窒素供給量の少ないものほど、パターン外の自己形成 GaN ナノコラムの成長は抑制され、ナノ ホールパターンのみナノコラムが成長し、1sccm 以下では、ほぼ完璧な選択成長が得られた。

窒素供給量が少ない領域では、Tiマスク上のGa拡散長が増加し、マスク表面からのGaの離脱 量も増加して、Tiマスク上でのGaN初期成長核の

形成が抑制されるため、長周期パターンにしても ナノホール上のみに GaN ナノコラムを成長させる ことができ、<u>ナノホール周期を制御することで、周</u> <u>期 400nm~4 $\mu$ m の範囲でナノコラムの規則配列</u> 成長を実証することができた。

図 J28 には規則配列ナノコラム(赤色)と自己形 成ナノコラム(青色)の面内のコラム径分布を比較 した。平均コラム径はそれぞれ 217nm、150nm で、 標準偏差は 4.6nm と 87nm であった。自己形成法 ではコラム径は広く分布したが、規則配列ナノコラ ムでは、マスクパターンの均一性に対応してコラ ム径のバラツキは±2%以内に制御され、径の均 一化が達成され<sup>23,26)</sup>、ナノコラムの径と位置を高 精度に自由に制御しうる手法を確立した。



#### (b)-3-2 選択成長メカニズム<sup>26)</sup>

ここでは選択成長メカニズムを簡単に議論する。図 J29(a)のように Ti をマスクとして、深さ 100nm 程度のナノホールを GaN テンプレートに開けて、成長を開始すると、初期段階ではナノホール側面 から核成長が起こる。小さなホール径ではすぐにナノホールは結晶で満たされ、a 軸方向に横方向

成長が急速に進むが、安定で成長 速度が低いm面が側面に現れて、ナ ノコラム断面は六角形になる。その後 は横方向成長が小さくなるので、成 長速度の速い c 軸方向に優先的に 成長が進み、GaN ナノコラムが形成 される<sup>26)</sup>。

選択成長のキーパラメーターは、 ①Ti マスク面の不活性度、②マスク 上のGa原子の拡散、③Ga原子の離 脱速度、④GaNの解離である。

選択成長は rf-MBE としては異例 の 900℃の高温成長で起こり、Ga 原 子の表面拡散と離脱が十分に促進さ



<u>れた成長環境といえよう。基板表面では飛来した Ga 原子ビームの相当量が表面から離脱し、活性</u> 窒素の供給がそれを抑制しつつ成長が起こる。表面拡散の助長によって Ga 原子はナノホール部 の GaN ナノコラムに吸収され、表面離脱の促進によってマスク上の GaN 自然成長核の発生が抑制 され、優れた成長選択性が実現される。

図 J27 に示した選択成長 GaN ナノコラムの供給窒素流量( $Q_{N2}$ )依存性をみると、 $Q_{N2}$ の減少ととも にコラム高さが減少し、コラムが細くなることに気がつく。前者は成長速度の減少(1.1 から 0.16  $\mu$ m/h へ)を示しており、一方、後者からは、一定のナノホール径(167nm)に対して、ナノコラムの横 方向成長速度を見積もることができる。図 J30 に横方向成長速度の $Q_{N2}$ 依存性を示した。横方向成 長は、2.0sccm 未満で著しく抑制され、ほぼ 10nm/hr の小さな値となった。





図 J31: Ga 原子の拡散長の窒素 供給量依存性<sup>26)</sup>

したがって、低い窒素供給量ではマスクパターンにより忠実に選択成長が起こり、制御性が高い 選択成長 GaN ナノコラムが得られる。しかしながら、成長速度も減少するので、デバイス作製など、 コラム高さが要求されるときには、制御性と成長時間との間のトレイドオフとなることが分かった。

マスク上の Ga 原子の拡散長も窒素供給量によって変化する。単一ナノコラム周囲の GaN 核成 長が抑制された領域の幅からGa 拡散長を算定し、窒素流量依存性を図 J31 に示した。ひとつのナ ノコラムの周囲では Ga 原子が表面を拡散し、GaN ナノコラムに吸収されるため、結晶核の発生が 抑制される。Q<sub>N2</sub>の減少とともに拡散長は増加し、1.0sccm では 200nm と算定された。一方、拡散長 は成長温度により鋭敏に反応し、窒素供給量3.5sccm に対して 900℃から6-7℃も成長温度を高め るだけで拡散長は 200nm に到達する。さらに、成長温度を高め、あるいは窒素供給量を少なくする とともに成長速度が減少し、これは表面からの Ga 原子の離脱速度が増加することを示している。 これらから、GaN ナノコラムの選択成長では、成長温度と窒素供給量を調整しながら、コラム径と コラム周期に適合しつつ、成長条件を設定してゆく制御法が確立した。

#### (b)-3-3 規則配列ナノコラムの空間均一性とコラム径制御性

本研究で開拓したTiマスク選択成長法によるナノコラムの空間的均一性とナノコラム径制御性を 検証した。成長温度 900℃、窒素供給量 1.0sccm で、規則配列ナノコラム成長を試みた。

Q<sub>N2</sub>=1sccm では、横方向成長速度は遅く(10nm/h)、 適度の縦方向成長速度(500nm/h)を示したので、 コラム形状を制御しつつ、適度の成長時間でデバイ ス構造に必要な厚さを実現し得る。図 J32 には規則 配列ナノコラムの空間的な均一性の高さを示した。



図 J32: 規則配列 GaN ナノコラム例 (コラム 70nm、周期:300nm (Tg=900℃、Q<sub>N2</sub>=1sccm) (顕微鏡視野: 10µm×10µm)



図 J33 規則配列 GaN ナノコラムのコラ ム径制御性、コラム径:100、161、192、 252nm、供給窒素流量 Q<sub>N2</sub>=1.0sccm

一方、ナノホール直径を、最大 230nm まで変化させて成長を行なった。横方向成長は、よく抑制されており、ナノコラムはナノホール径の変化にほほ従って、図 J33 のように、100nm から 250nm の範囲で正確に制御された。

#### (b)-3-4 ナノコラム径と貫通転位<sup>87)</sup>

ナノコラム結晶の構造解析を断面 TEM で行い、そのコラム径依存性を観測するため、図 J34 の ように、選択成長法を活用して、ナノコラム径 D を 65nm から 850nm まで段階的に変化させ、22 本 の GaN ナノコラムを直線的に並べたサンプルを作製した。試料の厚さを 400nm として、[1-100]方 向から電子線を入射させ、断面 TEM 明視野像を観測した。ナノコラム全体の TEM 像をみると、下 地層の GaN テンプレートには多数の貫通転位が存在し、それがナノコラムのある位置に偶然に入 ったとき、径の太いナノコラム(D=853、842nm)では、ナノコラム上部まで貫通転位が伝搬するが、 細くなるに従って途中で曲がって、コラム側面で終端してなくなる。この様子は、たとえば、図 J34、 J35 で(b)で表示したナノコラム(D=500nm)の TEM 像から理解される。一方、図 J34 の下側は、径の 細い 5 本のナノコラム(直径 62、136、179、217、245nm)の TEM 像で、直径が 220nm 以下のナノコ ラム内には貫通転位は観測されない。また、(c)で表示した直径 244nm のナノコラムでは、テンプレ



図 J34 GaNナノコラム鳥瞰 SEM 写真と断 面 TEM 明視野像

# (c) ナノコラム発光色制御<sup>73,75)</sup> (c)-1 規則配列ナノコラムの光学特性

周期 400nm の三角格子状に配列された規則 配列ナノコラムにおいて、ナノコラム上部に内在 化させた InGaN/GaN MQW (3QW)からの発光 分布をカソードルミネッセンス(CL)で調べた。図 J36 は単一のナノコラムトップの SEM および CL 発光像(波長 570nm)である。コラム径は、176nm、 コラムトップは、六角形底面をもつピラミッドで、こ

ート内の貫通転位がナノコラムに入射するが、コ ラムの最下部で曲がって消えている。

これは細いコラム径になると、コラム内を貫通 転位が伝搬できないことを示唆している。細いナ ノコラムほど成長の初期段階からコラムトップが ピラミッド状になりやすく、GaN テンプレートから の貫通転位が斜めの結晶面に遭遇して横に屈 曲するからと理解される。



図 J35 GaN ナノコラムの断面 TEM 明視野像



図 J36: 単一のケノコフムトッノ の SEM および CL 発光像

の領域で CL 発光像(波長 570nm)は均一であった。次に断面 EDX 分析を行い、図 J37(b)に緑色ス ポットで示すように、ナノコラムトップの In の空間分布を調べた。これらの実験結果は、InGaN がピラ ミッドトップ側面の{1-101}半極性面上に形成されていることを示しており、<u>規則配列ナノコラムの</u> InGaN/GaN MQW は半極性面となっている。半極性面ではピエゾ電界が抑制され、高効率発光 に適する。そこで、(a)-2-2-1と同様の手法を用いて、緑色域発光の規則配列ナノコラムの PL 内部 量子効率を測定した。



(b) <sup>100 nm</sup> 図 J37: ナノコラムコラムトップの STEM 像とIn 分布の EDX 分析

図 J38 の PL 積分強度の温度依存性から、PL 内部 量子効率は、波長 506nm で 74.9%、515nm で 64.1%と 見積もられた。これらの値を図 J6 にプロットしているが、 緑色発光の規則配列ナノコラムは、報告値の中でも高 い内部量子効率を有することが分かった。



図 J38: 緑色発光(波長:515nm, 506nm)規則 配列ナノコラムの PL 積分強度の温度依存性

# (c)-2 コラム径による発光色制御<sup>44, 139, 216, 236)</sup> 本研究の革新的成果のひとつは、ナノコラム径による発光色制御である。

ここでは開拓した Ti マスク選 択成長法を用いて、コラム径を 136nm~372nm の範囲で微細に変 化させて、同一基板上に InGaN 量 子井戸をもつ規則配列ナノコラ ムを成長させた。ナノコラムから の PL 発光を観測すると、コラム 径の違いによって異なった発光 色で光ることを発見した<sup>44, 139, 216, 236)</sup>。

図 J39は、ナノコラムの鳥瞰 SEM 写真とHe-Cdレーザで励起したと きの発光色を示している。 (a)-3-4 で述べた自己形成ナノコ ラムの多色発光解析から、ある程 度は予測していたものの、これほ ど見事に発光色が制御できると は驚きであった。





この研究成果によって三原色LEDを同一基板 上への一体集積化、あるいは高輝度で高い演色 性を有する白色LEDの実現の可能性が高まった。 発光色制御が観測されたサンプルについて、 少し詳しく述べよう。GaN テンプレート上の Ti 薄膜 (厚さ 5nm)に、集束イオンビーム(FIB)によって、ホ ール径を 50nm から 167nm の範囲で段階的に変 化させ、複数の周期 400nm の三角格子ナノホー ルパターンをもつ選択成長用マスクを作製した。こ れを用いて規則配列 GaN ナノコラムを成長し、ナ ノコラムのトップに 3QW の InGaN/GaN MQW を 作りこんだ。ホール径を変化させることで、ナノコラ ム径を 95nm から 270nm まで、およそ 10nm のピッ チで制御することができた。InGaN 系半導体レー ザ(波長 405nm)をサンプルに照射して、 InGaN/GaN MQWナノコラムを選択的に励起しな がら、図 J40 のように、室温で顕微 PL スペクトルを

測定した。励起密度は 15.2kW/cm<sup>2</sup> であった。コラム径が 159nm よりも細いナノコラムでは、波長 480nm 付近に別の PL ピークがみえ、PL スペクトルは、ダブルピークとなった。この短波長側のピー クは高励起下では優勢になった。一方、長波長側の PL ピーク波長は、コラム径を 137nm から 270nm まで増加させるとともに、513nm から 632nm まで単調に長波長側にシフトした。

### (c)-3 発光色制御のメカニズム<sup>44,87)</sup>

異なったナノコラムの InGaN 層に対し て TEM による断面 EDX 測定を行なった ところ、コラム径の太いものほど In 組成比 が大きくなる傾向がみえた。そこで、In 原 子の結晶への取り込率の違いが、図 J41 の発光波長の変化をもたらしたと考え、 発光波長をもとにして、ピエゾ分極と自然 分極、さらに量子閉じ込め効果を考慮し ながら、InGaN 量子井戸層の In 組成 (X<sub>in</sub>)を算定した。たとえば、コラム径 137nm、量子井戸層厚 3nm のナノコラム で、InGaN のボーイングパラメーターを 2.6eV として計算すると、量子閉じ込め効 果は 32.1nm のブルーシフトをもたらし、 それに対して内部電界によるレッドシフト は 6.8nm に過ぎない。半極性面 InGaNを 仮定したからである。結果的に、X<sub>10</sub>=0.23



図 J41 In 組成比のナノコラム径依存性、 (a)強 shadow 効果 (L=400nm、H=2.5 µ m)、 (b)弱 shadow 効果 (L=2 µ m、H=2.5 µ m)、 および DI モデル (Shadow 効果なし)

とすれば、実験のPLピーク波長513.1nmが得られる。このようにして各コラム径におけるX<sub>In</sub>を求め、 図 J41 上に四角印でプロットした。これをみると、In 組成は、コラム径の変化とともに 0.23 から 0.35 まで単調に増加することが示された<sup>44)</sup>。

コラム径で In 組成比が制御されるメカニズムについて述べよう。すなわち、InGaN 成長時、林立 する規則配列ナノコラムに一様に Ga と In 分子ビームが降り注ぐ。コラムトップでは In と Ga がある 割合で結晶中に取り込まれるが、同時にコラム側面からは、Ga と In が表面拡散によってコラムトッ プに流れ込み、この二つの経路による原子供給によって In 組成比が決まると考えられる。

InGaN層の成長温度650℃でみると、Inはコラム側面からの離脱が大きく拡散長が短く、Gaでは 表面離脱が少ないため拡散長が長くなり、Gaが優先的にコラムトップに流れ込む。この In と Ga 原



図 J42: 規則配列ナノコラムの発光ス ペクトルのコラム周期依存性



図 J43: In 組成のナノコラム 周期依存性

<u>子の拡散長の違いが、In 組成の変化をもたらす。</u>すなわち、<u>ナノコラムを互いに接近させて配置すると、周囲のナノコラムによって分子ビームが遮蔽され、遮蔽効果はコラム径とともに増加し、ナノコラムの側面への Ga 供給量が減少する。結果的にコラムトップへの Ga 拡散量が減少し、In 組成比が増加する。</u>

本研究では、このようなモデルを基礎に、まず第1から第4近接までのナノコラムによるビーム遮蔽効果を考慮して、ナノコラム側面における入射 GaとIn 原子分布を求め、それを用いて拡散方程式を解いて、拡散によってコラムトップに流れ込む GaとIn 供給量を計算し、In 組成比のコラム径依存性を求めた。ここでは、GaとIn の拡散長( $\lambda_{Ga}, \lambda_{In}$ )、In 離脱量( $P_{des}$ )をフィッティングパラメーターとして、図 J41(a)の実線が得られた。 $\lambda_{Ga}=1.2 \mu m$ 、 $\lambda_{In}=120 nm$ 、 $P_{des}=91.5\%$ のとき、実験結果がく説明できることが分かった<sup>44)</sup>。このモデルが正しければナノコラム周期の増大に伴って短波シフトが起こるはずである。図 J42 は、異なるサンプル(コラム径 210nm)に対する PL スペクトルである。これをより、ナノコラム周期が 400nm から 1000nm への増大とともに、発光波長が 508nm から 480nm へ短波シフトし、このモデルを用いると、図 J43 のように、実験値は計算曲線でよく説明できた。

# (d) 規則配列ナノコラム LED

# 規則配列ナノコラム LED 87, 249)

図 J44 に示すような構造の規則配列ナノコラア <u>ムLEDを作製した</u>。MOCVD-GaNテンプレート上 に n-GaN ナノコラムを成長し、続けてナノコラム形 状を維持して、25 ペアの InGaN (1.5nm)/ GaN(1.5nm)短周期超格子、3 ペアの InGaN(3nm) /GaN(12nm)量子井戸を成長、GaN(10nm)でキャ ップした。その後、成長室を移動して、p型 AlGaN (10nm)電子ブロック層、p型 GaN クラッド層を再成 長した。その後にデバイスプロセスを行った。試料 全面をスピンオングラス(SOG)で被覆し、ナノコラ ムLEDのp層上部とn電極部のSOGを除去し、p 及びn電極を形成した。p側表面には直径75µm の ITO 透明円電極を用い、その上に直径 65µm の円形開口部をもつ電極用金パッドを作製した。





室温で直流電流を流したところ、図 J45 に示すように緑色域で発光した。四角の金 パッドに円形発光面が見える。図 J46 に発 光スペクトル、図 J47 には、発光スペクトル の半値全幅とピーク波長の電流依存性を 示した。このナノコラムLED は、周期 250nm で三角格子状に配列したナノコラムからなり、 コラム径は 215nm である。発光ピーク波長 は、530nm 付近にあり、注入電流を 0.2mA から 15mA まで増加するとともに、ピーク波



L= 250 nm, D=215 nm





図 J46 発光スペクトル



図 J47 半値全幅とピーク波長の電流依存性

長は 536nm から 530nm までシフトした。その

<u>シフト量は 6nm と少なく、内部電界が少ないことを示唆している。また、発光スペクトル半値全幅は、</u> 電流範囲 2-8mA では 37nm と狭い値が得られた<sup>86, 249)</sup>。

この結果により、規則配列ナノコラム結晶による電流注入 LED 発光が世界で初めて実現され、 ナノ構造のデバイス応用への道が拓かれた。

#### (e) ナノコラム形状と位置制御によるナノ結晶効果

ナノコラムを周期的に、高い密度で配列すると、ナノコラム形状もよく揃い、均一性が 極めて高いナノコラム系が、結晶成長によって実現される。横方向成長の間によって、隣 り合ったナノコラム同士が、コラム径が周期で決まる値に自己形成的に揃うからで、六角 形コラムの辺と辺が一致するような配列では、完全に近い形状均一性が見られることがあ る。ナノパターンのわずかな不完全さのため、広い領域で必ずしも実現されていないが、 規則配列ナノコラムの決定的な優位性となる可能性が高い。InGaN 量子井戸は、ナノコラム の微小空間に閉じ込められおり、結晶端の境界条件で In 組成揺らぎを制御し得る可能性が あり、ひとつのナノコラムで起こる現象が隣でも完全に繰り返されれば、コラム間の組成 ばらつきが排除されよう。今後に実証してゆきたいナノ結晶効果と考えている。 (d) ナノコラムレーザの探索

#### (d)-1 単一ナノレーザ

窒化物半導体で発現される高いレーザ利得を活用し て、ナノ構造を組み込んだ小さな結晶体積の単一ナノ レーザを探究して、消費電力が小さく、低しきい値の半 導体レーザが実現への可能性を探った。数百 nm 以下 のサイズのナノ構造は無転位性結晶となりやすく、非発 光再結合成分が抑制され、結晶構造を反映して、成長 中に原子層レベルで平坦となった結晶面が自己形成的 に作られ、理想的な構造のレーザ共振器を作り出し得る 可能性がある。従来、マイクロ共振器作製は、マスクパ ターンとエッチングプロセスが利用されてきた。このトッ プダウン型ナノ構造では、もともとの結晶内に入ってい た結晶欠陥はそのままナノ構造に残り、さらに原子層レ ベルで平坦なエッチング面は求むべくもない。



図 J51: GaN/AIN 多層膜反射鏡 ナノコラム共振器

当初は、図 J51 に示すように、ナノコラムに GaN/AIN 多層膜反射鏡(DBR)を作りこんで、面発光型の単一ナノコラムレーザの可能性を探った<sup>167)</sup>。しかしながら、貫通転位の入りにくい直径 200nm 程度(波長 520nm の管内波長 200nm)以下のナノコラム導波路では、空気との大きな屈折率段差においても、導波モードのコラムの外側への広がりが無視できなくなり、それがそのままコラム内に 集積化された GaN/AIN DBR の反射率低下をもたらして<sup>212)</sup>、レーザ特性を悪化させる。

そこで、研究方針を転換して、ナノ構造を有し つつ光を閉じ込めてレーザ発振をさせやすいリ ング型の共振器構造を採用することとした。図 J52 はリング型ナノレーザの概念図である。このレ ーザ共振器における共振モードは、二通りの概 念で考えられることが多い。ウィスパリングギャラリ ーモード(whispering gallery mode:WGM)型がよく 知られている。ある程度の導波路幅があり多重に 横モードが存在するリング構造のモード解析に 有効であった。図J53はrf-MBEで成長した六 角形リング共振器(Hexagonal nanoring)で、リン グ共振器上端に3ペアの InGaN/GaN MQW を 作りこんだ 40, 143, 152, 220, 226, 242)。この六角形リング アレイの低励起 PL スペクトルにみえる多重共振 ピーク波長は、WGM 解析とよく一致した<sup>40)</sup>。ここ では、InGaN の発光ピーク波長 450nm から大き



図 J52: GaN ナノリングと2 つの共振モード



く離れているにも係わらず、緑色域の 515nm にも光強度ピークが観測され、高い Q 値をもつリング 共振きによる光強度の増強効果が見られた<sup>40</sup>。しかしながら、WGM 共振モードを用いるリング共振 器は、共振器長がリングの長さで決まり、それは極端には短くできないので、多重縦モードとなりや すく、スペクトル純度を高めるには必ずしも適していない。

そこでここでは図 J54 に示すような六角形リング構造をrf-MBE による選択成長法によって作製し、 そのレーザ特性を調べた。横モードを単一にすべくリング導波路幅を狭め、導波路幅を 60nm とし た。正六角形一辺の長さ 1085nm、高さ 900nm である。また GaN 下地層の結晶方位に Ti マスクに 開けた正六角形開口の方向を合わせ、成長中に



図 J54: GaN へキサゴナルナノリンク構造の SEM 像 (a) 鳥瞰像、(b)表面像

結晶面(M面)が側面に出るように工夫した。

リング構造側面が平坦な結晶から構成された 優れた幾何形状のリング共振器が得られ、励起



図 J55: GaN ナノリングの強励起下の室温 PL スペクトルとピーク強度の励起密度依存性

光のスポットサイズを調整して単一ナノリングのみを励起したところ、レーザ発振が見られた<sup>148)</sup>。図 J55 は GaN ナノリングの強励起下における室温 PL スペクトルと発光ピーク強度の励起光パワー密 度依存性である。

<u>単一スペクトルをもつレーザ発振に成功した</u>。しきい値励起密度は 750kW/cm<sup>2</sup>、発振波長は 365.6nm で、スペクトル半値全幅は 0.3nm であった。

単一モード発振の理由は、リング幅が狭くしたため、高次横モードがカットオフされ、基本横モードのみが存在し、さらに、6個の辺の結合で共振器が構成され、その基本横モードに関する共振縦 モードは、周期的境界条件で決められ、共振波長の間隔が広がって、利得曲線内に一本の共振 点のみが残ったためである。この結果、単一スペクトルで動作する単一ナノレーザの設計方針が示 された。

- 28

#### (d)-2 アレイ型ナノコラムレーザ

#### (d)-2-1 アレイ型青色ナノコラムレーザ<sup>81)</sup>

ここまで述べたようにナノ構造に光を閉じ込め ると高Q値共振器得られる。一方、GaNナノコラム アレイ内では、周期構造によって二次元的に光 回折が生じ、ある特定波長(ブラック波長)で強い 二次元光閉じ込め作用が発現される。本研究で は、図J56のように選択成長法を用いて、ナノコラ ムを四角格子状に配列させたナノコラムアレイを つくり、ナノコラム上部に8ペアのInGaN MQW 活性層を作りこんだ。

ナノコラム周期をL、コラム系の等価屈折率を



n<sub>ea</sub>、回折次数をsとすると、一次元周期構造に対する光の回折条件は、

(11)

 $\lambda_s = 2n_{eq}L/s$ 

で与えられる。

2次回折におけるブラック波長は $n_{eq}L$ となる。青~緑色域のおおよその等価屈折率は、 $n_{eq} \approx 2$ で、コラム周期の約2倍の波長で、光は周期構造と強く相互作用し、分布帰還(DFB))によって光強度が増強される。



図 J57: (a)四角格子 InGaN 系ナノコラムア レイ、(b)2D-FDTD による光応答スペクト ル、(c)PL 発光スペクトル<sup>31)</sup>

実験では六角形断面をもつナノコラム(1辺の長 さ:92nm)を格子定数  $L_{h}=230$ nm、 $L_{v}=245$ nm、の四 角格子状に配列させた。このナノコラムアレイの鳥 瞰 SEM 像を図 J57(a)に PL スペクトルを図 J57(c)に 示した。平均した格子定数は 237.5nm なので、上 式から2次光回折のブラック波長は 475nm である。 図 J57(c)をみると、InGaN/GaN-MQW の発光スペ クトル(ピーク波長:526.8nm)の短波長側の裾でシ ャープな光強度増強がみられ、波長 471.4nm で単 峰性スペクトルが観測された <sup>31, 149, 237)</sup>。

図 J57(b)は、このナノコラムアレイにおいて、TE 偏光に対して、2次元-時間領域差分(2D-FDTD) 法で計算した光応答スペクトルである。構造内の1 点を白色光で励振したとき、十分長い時間 (1psec)の経過後に光のスペクトル分散を計算 したもので、光局在効果によって構造内に選択 的に残る波長成分が計算され、図から分かるように、 光は波長 465.2nm で構造内に強く閉じ込められる <sup>31)</sup>。観測された光増強波長に近く、その波長で光 は周期構造と強く相互作用する。

2次元平面内の2次光回折現象で、二次元 DFB (distributed feedback)機構が発現していると考えられる。光の閉じ込め作用が2次回折で起こる場合、

1 次回折成分は、光を周期ナノコラム面から垂直方向に放射させるのに寄与する。すなわち、 2D-DFB 機構でレーザ発振が起こると、

レーザ光は垂直方向に取り出されて、 面発光型レーザが実現される。

波長 355nm の Nd: YAG レーザ(パル ス幅:5ns、繰り返し:20Hz)で高励起した ところ、波長 471nm で2D-DFB 機構によ ると考えられる光励起レーザ発振が観測 された。図 J58 には、光励起発振スペクト ルと光強度と励起光密度との関係を示し た。非線形に光強度が立ち上がるところ を、しきい値励起密度と定義すると、 320kW/cm<sup>2</sup>が得られた。

図 J58 のスペクトルは、多数の励起パ ルスの平均スペクトルで、パルスジッタに よってスペクトル広がりが見えたが、単一 励起パルスに対する発光スペクトルでは、



図 J58: InGaN 系ナノコラムアレイの光励起発振スペ クトルと光強度の励起密度依存性<sup>31)</sup>

多モード発振が観測され、一本のモードは半値全幅が2meVの先鋭なスペクトルであった。



図J59: 三角格子・アレイ型InGaN/GaNナノコラム (格子定数L=275nm、コラム径D=210nm)

これらの実験結果は、アレイ型青色域ナノコラムレーザのレーザ発振特性を示している。アレイ 周期とナノコラム径を調整して、青色波長域の455nm~475nmの範囲でレーザ発振を観測すること に成功した<sup>31)</sup>。

(d)-2-2 アレイ型緑色ナノコラムレーザ<sup>87,88,154)</sup>

ナノコラム結晶による緑色半導 体レーザの新展開を目指し、周期 配列 InGaN/GaN MQW ナノコラ ムによる光励起誘導放出実験を行 った。式(1)の回折条件を単純に 適用すると、緑色域でナノコラム周 期構造と光との強い相互作用を発 現させるには、アレイ周期(格子定 数)を 250nm~280nm の範囲で選 ぶ必要がある。さらにナノコラムの 平面充填率が高いほど大きな光 利得が得られるので、正方格子 (四角格子)よりも、三角格子配列 が有利と考えられる。実際、径 156nm のナノコラムを、格子定数 295nm で、三角格子および正方格 子に配列させ、回折波長475nmに



の発振スペクトル (L=275nm、D=210nm)

おいてナノコラム内への光閉じ込め係数を計算する と、三角格子は 90.1%、正方格子は 84.8%となった

そこで、アレイ型緑色域ナノコラムレーザは、三角 格子に規則配列したナノコラムアレイで検討した。 GaNナノコラム内には15ペアのInGaN/GaN MQW を作りこんだ。図 J59 は格子定数 275nm をもつ三角 格子で配列されたアレイ型 InGaN/GaN ナノコラムの SEM 写真((a)~(c))とナノコラム直径分布(d)である。 ナノコラム径の標準偏差は 5nm(2.6%)と算出され、 SEM 解像度(5nm)と同等であることから、ナノコラム の実際のばらつきはそれ以下と考えられる。しかしな がら、図 J59(b)に示す広範囲の SEM 像内にはナノコ



図 J61: 200 パルス積算スペクトル と単一パルススペクトル

ラム位置に穴抜けあるいはナノコラム結合が散見される。周期構造内の欠陥は、光回折現象に影響を与え、意図しない光局在をもたらして、レーザ発振にランダム性が導入されると考えられるため、 選択成長における成長条件のさらなる最適化

表1 作製したアレイ型ナノコラム結晶 の配列構造定数(格子定数,コラム径 D)





が望まれる。

図 J59 のアレイ型ナノコラム結晶に対して、 YAG レーザ(波長 355nm, パルス幅 20 ns, 20 図 J62: 周期 L の異なるアレイ型 ナノコラムの発光スペクトル<sup>87)</sup>

Hz)を励起光として強励起特性を評価した。図 J60 に発光スペクトル(a)と光強度の励起光強度依存性(b)を示した。励起スポット直径は 17µm で、発光スペクトルは、200 励起パルスに対する発光 強度の積算値で示されている。緑色域の波長 552nm において、明瞭なしきい値(~1.5MW/cm<sup>2</sup>) を持つ半値全幅 2.7 nm のシャープな発光が観察された。

単一パルスに対する高分解能スペクトルを調べると、図 J61 のように、発振スペクトルは線幅1~0.3nm 以下の多数のピークで構成され、パルス毎にスペクトル形状が異なっていた。

表1に示すように、さまざまな配列構造定数を有するアレイ型ナノコラム結晶を作製した。サンプルNS127とNS128を成長させたが、15ペアのMQWとしたため、前者は青色から緑色域に広がった低励起 PL スペクトルを示し、後者は緑色から赤色域まで広がったスペクトルを示した。これは一部の量子井戸に寄与し、あるものは光吸収を起こすことを示している。にもかかわらず、高い光励起密度下で評価すると、図J62に示すように、構造効果のためにシャープな発光スペクトルが顕れ、誘導放出現象が観測され、その発光波長は、それぞれ青色域(440-510nm)と緑色域(530-560nm)で配列構造定数の変化とともに変化した。構造定数と発光波長との関係を表1に整理した。

表1をみると、格子定数L(アレイ周期)を、255nmから285nmまで増加するとともに、アレイ型ナノ コラムの発振波長は、ほぼ緑色域の全域に亘って、532nmから560nmまで長波長化した。波長 560nmは、光励起とはいえ、InGaN系レーザ発振における最長波長である<sup>88</sup>。

この研究によって、ナノコラム内に集積化された InGaN/GaN 多重量子井戸構造の緑色域のレー ザ材料としての可能性が明確になり、レーザ構造を工夫し、縦方向の光閉じ込め効果を向上させ ることで、緑色全域での半導体レーザの潜在性が明らかになった。

# (d)-3 ナノコラム DBE 共振器の作製

(d)-3-1 垂直面発光型ナノコラム共振器<sup>250)</sup>

上述のように縦方向の光の閉じ込め構造を 積極的に導入しないアレイ型ナノコラムでも、 緑色域でレーザ発振することが分かった。周 期構造内の光回折によって光の群速度が減 少し、光利得が高められ、ナノコラムトップの 活性領域に利得導波路型に近い構造ができ、 それと二次元 DFB 機構による強い光閉じ込 め効果が作用し、しきい値は高いもののレー ザ発振を実現したと考えられる。

したがって、縦方向に導波路構造を導入 すれば、ドラスティックな発振特性の向上が期 待される。本研究では、図J63に示すような垂 直面発光型ナノコラムレーザ(VCSEL型ナノ コラムレーザ)に着目し、研究を展開した。



# 電流注入型ナノコラム VCSEL

図 J63 垂直面発光型ナノコラムレーザ

VCSEL型ナノコラムレーザでは、縦方向の光共振器構造と横方向の二次元 DFB 機構が同時にレ 一ザ発振に寄与する。その光共振特性を明確にするため、本研究では、図 J64 のように共振器構 造の作製工程を途中で止めながら、光励起下で発振特性を調べた<sup>250</sup>。

(a)ではサファイア基板上に GaN/AIN 多層膜反射鏡(DBR)を成長させ、その上に初めて InGaN/GaN MQW ナノコラムの作製に成功した実験であって、このアレイ型ナノコラムが、前項と同 じようにレーザ発振するか確認した。直径 174nm のナノコラムを格子定数 200nm の三角格子状に 配列した。355nm の YAG レーザで強励起したところ、波長 441.6nm でレーザ発振が見られたが、 この波長はナノコラム周期構造から決まるブラック回折波長とほぼ一致し、上述の2D-DFB 機構に よる光閉じ込め作用が DBR 上のアレイ型ナノコラムでも確認された。

次の工程(b)では、共振器上面にDBR 作製を行なう準備として。ナノコラムを SOG で埋めて上部



図 J64: 面発光型ナノコラムレーザの各作製過程における光励起発振特性

を平坦化した。DBRの反射帯は450nm付近にあるので、平坦化されたSOG表面とDBRで縦方向 共振器が構成される。(b)の発振スペクトルをみると、波長442nmにある発振ピークは、SOG充填の 前後で大きな波長シフトがなく、ナノコラムの横方向周期構造で決まっている。理論的にも、空気と SOG(屈折率:~1.5)媒質とではブラック波長が変化しない。これは回折点ではコラム内にほとんど の光(99%)が閉じ込められているためである。この442nmに加えて、新たに観測された423、455nm のピークは、垂直構造に起因する発光と考えられる。

工程(c)では、表面に TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 誘電体 DBR を作製し、面発光型ナノコラムレーザ構造を完成さ せた。発振スペクトルをみると発振波長は 460nm にあり、縦方向に作られた強い共振器効果によっ て、(b)で見られた縦方向の共振波長のひとつが生き残った。

この実験は縦方向共振波長と横方向 2D-DFB 波長を一致させる必要があることが分かった。さらに、研究計画で策定したナノコラム DBR 共振器作製とレーザ特性評価を行なうことができた。

本研究では、緑色レーザ技術基盤の確立を目的として、デバイス化に必要な基礎技術を、ひと つひとつ確立しながら、一筋の道を歩んできた。選択成長による規則配列ナノコラムの作製技術 を確立し、ここまでのナノレーザ探索では InGaN 系ナノコラムの緑色レーザ発振可能性を示し、さ らに、高反射率 GaN/AIN-DBR 作製法を確立して、緑色ナノコラムレーザの基盤技術は整った。

(d)-3-2 GaN ナノウォール

ファブリ・ペロー(F-P)型ナノレーザの可能性を探索するため、Ti マスクを用いた選択成長技術 を利用し、板状形状を有する新しい GaN 系ナノ結晶 (ナノウォール)の成長を提案した<sup>125, 66, 69,</sup>。

ナノウォールは、GaN テンプレート上に堆積した Ti 薄膜に幅約 200nm、長さ 160 µ m のストライ プ状開口を設けた後に RF-MBE 法で GaN と InGaN 量子井戸を成長することで得られた。図 J69 に GaN ナノウォールの模式図を示した。図 J70 は成長した GaN ナノウォール結晶の表面(a)および 鳥瞰(b)SEM 像で、幅が約 230nm、高さが約 500nm、長さが 160 µ m となった GaN 板状ナノ結晶が Ti マスクの開口部にのみ成長した。GaN テンプレートの[1100]と[1120] 方向 (m 軸と a 軸方向) に沿 って形成したナノウォールの側面は基板面に垂直かつ極めて平坦であり、それぞれ (1120) 面と



図 J69: GaN テンプレート上に Ti マスク選択成長 法で作製した InGaN/GaN ナノウォールの模式図。



図 J70: Ti マスク選択成長技術を用いて、 GaN テンプレート上に成長した GaN ナノウォ ールの表面(a)および鳥瞰(b)SEM 像

#### (1100) 面が形成されていると考えられる。

幅 100~500nm の GaN ナノウォールに InGaN 量子井戸を内在化させ、ナノウォール形状のスト ライプ方向依存性、発光特性への影響について調べた。図 J71 は、六方晶系の m 軸と a 軸方向に ストライプ窓をもつマスクパターン上に形成された典型的な InGaN/GaN-MQW ナノウォールの表面 SEM 像とその断面模式図である。多くのナノウォールについて評価したところ、m 軸方向ナノウォ



図J71: GaN ナノウォールの表面SEM像 と断面形状の模式図、(a)m軸方向ストラ イプ、(b)a軸方向ストライプ

ールは上部に(0001)面の極性面が形成されや すく、a軸方向ナノウォールでは c 面から約 45 度傾いた半極性面が形成される傾向が見られ た。そこで、ナノウォール上部に形成されるファ セット面に対する成長温度およびストライプ方 向依存性を系統的に評価し、上部ファセット面 の制御を試みたところ、次のような傾向が確認 された。すなわち、成長温度 910℃付近におい ては、m 軸方向に沿ったナノウォールの上部 には図 J71(a)に示すようなc面が形成され、a 軸方向に沿ったナノウォールでは図 J71(b)に示 すような半極性面が形成される。一方、成長温 度 880℃付近ではストライプ方向によらずc面と なり、940℃付近ではいずれのストライプ方向に おいても半極性面が形成されやすい。このよう



図 J72: GaN テンプレート上ナノウォールの断 面 TEM 写真. GaN テンプレート内の貫通転 位がナノウォール界面で消失している(矢印 部)ことがわかる.



図77: ナノウォール結晶をベースとした様々な ナノ結晶の表面 SEM 写真. 周期 L の異なるナ ノウォールアレイ(a)L=600nm、(b)L=400nm、 (c)L=300nm、(d)ナノメッシュ構造、(e)六角形リ ング構造

に、制御されたファセット面を内在するナノウォールが成長可能であることを実験的に検証した。 次に、同一基板上の隣接する領域に InGaN 量子井戸を内在する m 軸方向ナノウォールとa軸 方向ナノウォールを成長し、室温PL特性を比較した。前者の発光ピーク波長が 450nm であるのに 対し、後者(a 軸方向ナノウォール)は、発光波長が 410nm と短波長であり、発光強度が 10 倍から 100 倍程度強かった。これは、a軸方向ナノウォール上部には半極性面量子井戸が形成され、ピエ ゾ電界の抑制効果や結晶面方位によるInの取込み効率の違いが生じた結果であると推察される。

図 J72 はGaNナノウォールのストライプ方向に沿って薄片化した試料の断面 TEM 明視野像であ る。GaNテンプレート中の貫通転位がナノウォールと基板の界面で消失し、ナノウォール内部への 伝播が抑制される現象が確認された。測定した範囲においてはナノウォール中に貫通転位は見ら れなかった。図 J73(a)-(c)は、周期 600nm、400nm および 300nm のナノウォールの表面 SEM 写真 で、互いに独立したナノウォール構造が制御性良く成長可能であることが確認された。ナノウォー ル結晶は、Ti マスクの開口形状によって、網状のナノメッシュ構造やリング共振器、分岐導波路構 造など、高い自由度で多様な形状に制御可能であることを実証した。

ナノウォールはナノレーザやナノLED、ナノフォトニック回路などへ応用可能な新しいナノ結晶と して期待される。この新領域を大きく発展させてゆくため、今後は、光のナノウォール上部への閉じ 込める構造の実現が必要となるが、AlGaN ナノウォールを実証して下部の光クラッド層とするか、前 項の DBR を下地層にすることで解決できよう。本研究を通して、ナノウォールレーザへの道筋も明らかになったといえる。

(e) ナノランダム物性 38,47,54,94,134,148,206,221,222,224,225,227,238,251,252,264,268,272,273,281,285,291,297) 単一ナノコラム光物性は、川上グループが担当して、ナノ結晶効果の解明に取り組んでいるの で、岸野グループは集団ナノコラムで発現される物性現象の解明を進めた。最初に自然核成長で 作られる自己形成ナノコラムのランダム性を基礎とするナノランダム物性の解明を行なった。

#### (e)-1 2次元ランダム系における光局在現象の数値的研究 - 周波数依存性の解明-252,260,281,285)

屈折率が周期的に変化する"フォトニック結晶"は、フォトニクス材料として注目され、精力的に研究されている。一方、屈折率の空間変化が不規則となった"ランダム媒質"では、電子のアンダーソン局在に類似した「光のアンダーソン局在」が生じることが知られているが[\*]、理論的に詳細な研究がなされていない。一方、フォトニック結晶でも、完全に構造を作ることは難しく、構成物質の空間揺らぎに由来して光局在が生じる。そこで、この側面からも、ランダム系の光局在現象の解明には大きな意義がある。

本研究では、集団ナノコラムが不規則に配置した系における光のアンダーソン局在を理解し、さらに2次元ランダム系における光局在現象の完全な解明を目指して数値的に研究を行った。系サイズ  $L_{sys}$  が有限な2次元ランダム系では、局在長  $\xi$  と系サイズが $\xi \lesssim L_{sys}$ の関係を満足する場合に局在状態となり、光が空間的に局在する。これに対して、 $\xi \gtrsim L_{sys}$ の場合には実効的な非局在状態となって、急速な光拡散が起こる。しかし、局在効果を表す具体的なパラメーターに関する報告は無く全体像は明らかでなかった。

ナノコラム集団では、コラム半径 r、コラムが空間に 占める充填率  $\Phi$ 、コラム屈折率 n、光の周波数 fなど のパラメーターが局在現象に関係すると考えられる。 そこで本研究では、GaN ナノコラムを対象として、コラ ム半径と屈折率をそれぞれ r = 50 nm, n = 2.4 に固定 して計算を行なった。この場合、局在効果は、周波数 fとコラム充填率  $\Phi$  のみで決定されるので、この2変数 を変化させながら光局在のパラメーター依存性を見 積った。集団ナノコラムでは、図J74 のようにナノコラム の軸方向(z 軸)に垂直な x - y平面内で局在効果が生 じるので、光波伝播シミュレーションは、汎用性の高い



図J74: 2次元 FDTD 法の概略図

2次元 Finite-Difference Time-Domain method (FDTD 法)を使用して、時間領域で計算を行った。 2次元系では TM と TE 偏光の2つの偏光があるが、本稿では TM 偏光に対する計算結果を中 心に記載する。サンプル領域では互いに平行なナノコラムを真空中に配置したが、コラム形状など 余分なパラメーターを排除するために、コラム同士が接しないという条件をつけた上で空間的に不 規則に配置した。最初に局在効果の周波数特性を評価すべく、充填率が Φ = 0.4 となるように、5,



図J75: *L*<sub>sys</sub> = 20 µm における内部エネルギ ーの時間変化。 10, 15, 20 µm 四方の領域内にコラムを配置した。そのサンプル領域の中心部に周波数幅 10 PHz のガウス型パルスを入射し、空間的に 100 nm 間隔で配置したアンテナで電磁場の時間変化を記録した。その後、各アンテナで記録した電磁場信号を、時間窓[ $t_w$ ,  $t_w$  + 2 ps]でフーリエ変換し、その全ての結果を平均化して、系内の内部エネルギーの周波数依存性を計算した。さらに  $t_w$ を変化させ各周波数での内部エネル ギーU(t, f)の時間依存性を調べた。内部エ ネルギーは、波束が系の境界に到達した後に、指数関数的に  $exp(-t/\tau)$ (光子寿命  $\tau$ )の形で減衰する。

図J75は、 $L_{sys}$  = 20 µmにおける内部エネ ルギー $U(t,\hbar)$ の時間変化で、 $t_w$  = 0 ps での 値で規格化した。非局在状態にある周波 数域では、この減衰直線から光子寿命 を見積ることができる。図J76 は各系サイズ の非局在状態における光子寿命の周波数 依存性である。スペクトル上の微細構造は ノイズではなく、光局在を表している微細ス ペクトルであり、利得媒質を導入した場合 には、これらはレージングモードになる。こ の微細構造はコラム配置に依存するが、 大まかな周波数依存性はコラム配置には 依存しない。すなわち、図J76 はナノコラム の充填率  $\Phi$  = 0.4 における光局在の特性 を一般的に表している。

次に非局在状態に対する解析結果を用 いて局在効果のスケーリング則について 議論する。光子寿命 τ を真空における光 速度 cと平均コラム間距離 aを用いて規格 化した値 T は、以下のような関数として記 述できると予測した。

 $T := c \tau / a = F(L_{sys} / \xi) \qquad (J2)$ 

関数 T は光波がサンプル領域から出るまでに散乱される平均回数を意味する。

図J77 の挿入図は、非局在状態におけ る光子寿命の系サイズ依存性である。各 曲線は、得られた減衰率 1/ τ のデータを 0.05 PHz の範囲で平均化したものである。 我々の計算結果と式(J2)とを比較するため、 挿入図の各曲線を横軸方向にシフトさせ、 図に示したように各々のプロット点が単一 曲線を形成することが分かった。このことか ら、T は式(J2)のように単一パラメータース ケーリング則に従うことを確認できた。この 際のシフト量は、相対的な局在長の違い に相当する。

本研究ではこの計算以外にも、ランダム

 $10^{6}$ L\_\_\_ (µm) 20  $10^{4}$ *z*(*f*) (bs)  $10^{2}$  $10^{0}$  $10^{-2}$ 1.0 1.5 2.0 f(PHz)光子寿命の周波数依存性。 図 J 76:  $10^{4}$ 10 € 10°  $10^{3}$ Ē 10 15 20 f(PHz) \_\_\_ (μm)  $10^{2}$ -0.80 **▲** 1.45 -**—** 1 40  $10^{1}$  $10^{0}$  $10^{1}$  $L_{\rm sys}^{\prime}/\xi$ 図 J 77: 光子寿命の系サイズ 依存性(挿入図)と規格化光子寿命。 20 TM polarization TE polarization 15 چ (mm) 10 5 0 0.5 1.0 1.5 2.0f(PHz)



電子系における議論[\*\*, \*\*\*]を参考に電磁場エネルギーの拡散長などを計算し、TM 偏光の 1.2 PHz における局在長  $\xi$  を 1.6  $\mu$  m と見積もった。そこで、その値を基準として、局在長の周波数依存性を得ることに成功した(図J78)。

本研究では光伝播の厳密計算を行って詳細に解析することにより、局在効果のパラメータース ケーリング則や周波数依存性を明らかにした。電子波においてなされた研究手法を光波に適用し た本研究成果は、光のアンダーソン局在の解明に大きく寄与するものである。
[\*] S. John, Phys. Rev. Lett. 53, 2169 (1984). S. John, Phys. Rev. Lett. 58, 2486 (1987).
[\*\*] T. Kawarabayashi and T. Ohtsuki, Phys. Rev. B 53, 6975 (1996).
[\*\*\*] H. D. Raedt, Comp. Phys. Rep. 7, 1 (1987).

# (e)-2 2次元ランダム系における光局在現象の数値的研究<sup>38,221,224,238,268,271,297)</sup> -全体像の解明と物理的起源の探究

前節ではコラム充填率を  $\Phi$  = 0.4と一定にして、光局在の周波数依存性を詳細に検討した。さら に  $\Phi$  も 0.05 刻みで変化させ、Q値を局在効果の指標としてパラメーター依存性に関する光局在マ ップ Q(2  $\pi r/\lambda$ ,  $\Phi$ )を作成し、光局在現象の全体像解明に成功した。その両偏光に対する結果が 図 J79 および図 J80 である。グラフの横軸は充填率  $\Phi$ 、縦軸はコラム径で規格化した周波数 2  $\pi r/\lambda$  で、Q 値の大きさを色で表している。このマップから、光が強く局在するパラメーター領域 は 2  $\pi r/\lambda$  に対して周期的に現れること、また各々の局在領域は  $\Phi$  に対して緩やかに変化し、 $\Phi$ = 0.5 付近で最大の局在効果を示すことが分かった。

続いて、局在マップで明らかになったパラメーター依存性の物理的起源を考察する。近年、同様の系に対する光局在の報告があるが、その物理的要因については分かっていない[\*]。そこで、単一コラムの散乱断面積を FDTD 法で計算し、またコラム集団が周期配置された系における光の状態密度を平面波展開法で計算した。それにより、Mie 共鳴および Bragg 回折条件と局在マップとの比較検討を行った。まず、低充填率の $\Phi = 0.1$ 付近では、Mie 共鳴効果によって生じる散乱断面積のピーク(図中の紫色線)とQ値のピーク部分がよく一致しており、光局在がMie 共鳴によって生じることが分かる。一方で充填率が高い場合は、多重干渉効果によって光の状態密度が小さい領域(図中の桃色線)と強局在域が一致しており、局在が Bragg 回折様の効果から生じることが分かる。これは、コラムが互いに接しないように配置した為に、充填率 $\Phi$ が大きくなるにつれて完全なランダム系から徐々に周期性をもった系になっていることが要因である。



図 J79: TM 偏光の局在マップと局在起源の 概要図。紫色線は単一コラム Mie 共鳴ピー ク、桃色線は三角格子コラム系の Bragg 回 折条件。



図 J80: TE 偏光の局在マップと局在起源の 概要図。紫色線は単一コラム Mie 共鳴ピー ク、桃色線は三角格子コラム系の Bragg 回折 条件。

本研究では、光局在効果のパラメーター依存性を網羅的に調べて局在マップを作成し、その物 理的要因は充填率の増加とともに Mie 共鳴から Bragg 回折条件へと連続的に変化することを明ら かにした。この研究結果は、電子波を始めとするランダム系での波動局在現象における本質的問 題にも重要な貢献を与えるものである。

[\*] C. Vanneste and P. Sebbah, Phys. Rev. E 71, 026612 (2005).

#### (e)-3 InGaN/GaN ナノコラムにおける光のアンダーソン局在 54,225,264)

不均一ポテンシャル中における波動関数の局在はアンダーソン局在として知られているが、ラン ダム系の光局在は"光のアンダーソン局在"と呼ばれる。自己形成ナノコラムは、各ナノコラムの位 置・形状が不規則な"ランダム媒質"で、光は多重散乱と干渉効果によって局在を生じる。自己形 成 GaN ナノコラムは、平均自由行程と波長が同程度であるため強い局在効果が予想されるが、ラ ンダム配置ナノコラムにおける光局在効果はほとんど研究されてこなかった。

本研究では、自己形成 GaN ナノコラムにおいて、近接場光学顕微鏡を用いることで2次 元ランダム媒質中における光局在の直接観察を行った。GaN の吸収端波長より長波長の 光をナノコラムに照射して、開口型の近接場 光学顕微鏡によって、照射光の局在化現象 を観察した。しかしながら、この場合、図J81の ようにサンプル裏面から照射光を当てるので、 照射光の透過光がプローブに入って大きな 背景光となって問題となる。そこで、GaN ナノ コラム上部に InGaN 単一量子井戸(SQW)を 内在化させ、このInGaN ナノコラムを用いて局 在光を別の波長に変換して、局在状態の高 感度観察を行った。ここでは短波長の光(14<

起きれば、局在領域でのみ InGaN が励起されて、可 視域で発光する。すなわち、光局在の強弱は、InGaN の発光強度に反映され、InGaN が光局在状態を映し 出すアンテナとして機能し得る。

実験では、領域(6µm×6µm)に対して(150 点 ×150 点)で分光測定を行い、各点のスペクトル積分 強度を対数でグレースケールにしてイメージ化して図 J82に示した。InGaNナノコラムはサンプル表面一面に 存在するにもかかわらず、発光が強い領域は非常にま ばらである。これは光の局在を示していると期待させる が、InGaNの発光強度のばらつきを見ている可能性も 考えられる。そこで、ここでは各点のスペクトルデータ を用いて発光分布の統計処理を行ない、この光強度



図 J81: 近接場光学顕微鏡の測定配置の模式図



図 J82: 測定結果。強い発光ス ポットが非常にまばらにある。

の空間分布が、多重干渉効果に由来するのか、またはランダムな発光体の発光の足し算に過ぎないのかを調べた。これは、各点の光強度が電場の重ね合わせなのか、強度の重ね合わせなのかに置き換えることが出来る。中心極限定理に基づき発光強度の確率分布 Pを求めると、電場の多重干渉効果によれば  $P \propto (1/\sqrt{I}) \exp(-BI)$ 、強度の重ね合わせであれば  $P \propto \exp(-A(I-\bar{I})^2)$ のガウス分布になり、(但し $\bar{I}$ は発光強度の平均値)、グラフ形状には前者は"下に凸"で、後者は"上に凸"の特徴が顕れる。すなわち、実験で得られた発光強度のヒストグラムの形状を評価すれば多重干渉効果の有無を判断できる。

図 J83 は各波長における発光強度のヒストグラムで、図中の上段が InGaN ナノコラム、下段には 比較のために InGaN 量子井戸層に対するヒストグラムを示した。ナノコラム系では 5 つ全ての波長 において"下に凸"の形状のヒストグラムが見られ、発光強度分布が多重干渉効果を反映したもの であると考えられる。これに対してランダムな散乱体を持たない単なる InGaN 薄膜の場合(図 J80 下段)は、全て"上に凸"となったヒストグラム形状となった。以上より、図 J86 でみられた発光強度分 布は、ナノコラム間の光の多重干渉効果による光局在を観察したものであると考えられる。



図 J83: 各波長における発光強度のヒストグラム. (a)InGaN/GaN ナノコラムの場合と, (b)InGaN 量子 井戸の場合. (a)の場合のみ, ヒストグラムに干渉効果が反映されていることがわかる.

この結果をさらに確実なものとするために、異なった波長の光を照射し、局在状態を相互に比較

した。光局在であれば、同じ観察領域を 励起したとき励起光波長が異なれば局 在領域が変化し、異なった発光イメージ が得られるはずである。2 種類の励起光 ((a) 波長:402nm、(b)375nm)を用いて、 近接場光学顕微鏡によってInGaN/GaN ナノコラムの発光強度分布を観測し、図 J84 に示した。白い〇印の部分の発光 強度を比較すると、片方は 402nm 励起 においてのみ強く発光し、もう片方は 375nm 励起においてのみ強く発光が見 られ、励起波長の違いによる局在状態 の変化が得られた。





励起波長: 402nm <u>1µm</u> 励起波長: 375nm <u>1µm</u>
 図 J84 異なる励起波長に対する発光イメージの比較

これらの実験結果より、自己形成 GaN ナノコラムにおいて光の局在の直接観察に初めて成功したと結論付けた。

# (e)-4 自己形成 GaN ナノコラムにおけるランダムレージング<sup>47,85,137,206,222)</sup>

ランダムに配列した散乱体中では、光は多重散乱と干渉効果によって局在する。さらに、ランダム系が光利得を有する場合、局在した光が微小共振器を形成し、レーザ発振が起きる場合がある

(図 J85)。この現象はランダムレージング(またはランダ ムレーザ)と呼ばれている。初期のランダムレージングは、 色素溶液中に散乱体を分散したサンプルで報告された が、半導体中でも、ZnO 微粒子、ZnO ナノロッド、GaAsN、 GaAs、SnO<sub>2</sub>、ZnSe などで次々に報告されている。またラ ンダムレージングの物理についても、実験と理論の両面 から解明が試みられ、光子統計、カオス的振る舞い、モ ード解析などが行われてきた。しかし、<u>ランダムレージン</u> <u>グの発生とランダム構造の関係性に着目した研究は、こ</u> れまでになされてこなかった。

本研究では、図 J86 に示す充填率の異なる3種類の 自己形成 GaN ナノコラムを用いて、ランダム構造の違い



図 J85 ランダムレーザーの模式図

とランダムレージングの関係性について、 実験と数値計算の両面から検討した 47)

図 J87 は、光学測定配置の模式図で ある。Nd:YAG パルスレーザの 3 倍波 (355nm, 5ns, 20Hz)を用いて、試料の 上面から光照射し、端面方向に出射す る発光のスペクトルを分光器で測定した。 発光の偏光方向(TE,TM)は図中に定義 した。

図 J88 に実験結果を示し、それぞれ (a)、(b)、(c)にサンプル 1、2、3 に対する 発光スペクトルの励起密度依存性を示 した。励起密度が低いとき、どのサンプ ルでもブロードな弱い発光が見られ、こ

れらは GaN のバンド端発光(自然放出)に よるものである。発光強度はコラムの充填 率にほぼ比例しており、個々のナノコラム からの発光強度は、サンプル間でほぼ同 ーであり、結晶品質に違いが無いものと考 えられる。したがって、ランダム構造の違い に起因した発光特性の違いについて議論 し得る。

サンプル1では、励起密度 300~800 kW/cm<sup>2</sup>の範囲で自然放出光のみが観測

ntensity (a.u.

ntensity (a.u.)

360









された。これに対してサンプル2では励起密度を上げると、320kW/cm<sup>2</sup>で自然放出光スペクトルの 中に鋭い発振ピークが現れ、さらに高励起にすると波長範囲 362~370nm で複数の鋭い発振ピー クが観察された.これらの発振ピークは、励起パルス毎に異なった発振スペクトルとなり、半値全幅 が 0.1meV 以下のピークも数多くみられるので、ランダム配列ナノコラムで発生したランダムレージ ングと考えられる。1 つの発振スペクトル内には複数のピークがあるが、これはナノコラム間に複数 の微小共振器が形成されて、それら1つ1つに対応した発振ピークと考えられる。図 J88(b)の挿入 図は、励起密度 770 kW/cm<sup>2</sup>に対する偏光依存性である。ランダムレージングは 0° 方向、すなわ ち TE 偏光を有している。これは GaN のバンド端発光の選択則によって偏光が c 軸に直交する偏 光に限られるためと考えられる。最後にサンプル3では、励起密度を上げると 368nm 付近からやや 太いピークが立ち上がった。この発光ピークは、励起密度を上げるに従ってピーク幅を広げながら 低エネルギー側にシフトしていくことから、電子正孔プラズマ発光(EHP; electron-hole plasma)で あると考えられる。

サンプル1~3の電子顕微鏡写真から GaN ナノコラムのランダム配列モデルを抽出し、2次元 FDTD 法を用いて光局在の強さについてシミュレーションを行った。初期エネルギーとして領域の 中心に中心波長 365nm をもちパルス幅 12fs の白色パルスを与え、時刻 2.0ps までの間の光の拡 散を計算し、コラム系に残留したエネルギー総和を求めた。図 J88(d)は、各サンプルに対する総エ ネルギーの時間変化で、サンプル2は、エネルギー減衰が最も少なく、光局在が最も強いことを示 している。実験的にランダムレージングが観察されたのはサンプル 2 であることから、このシミュレー ション結果は、ランダムレージングが光局在の強い系において観察されることを裏付けている。

以上、本研究では、GaN ナノコラムにおいて初めてランダムレージングを観察するとともに、その ランダムレージングは、光局在が強い系において観察されることを FDTD 計算によって示した<sup>47)</sup>。

# (e)-5 人エランダム配置 GaN ナノコラムにおけるランダムレージング<sup>148, 227,251,291)</sup>

光の散乱体がランダムに配置したランダム系では、光のアンダーソン局在が生じ、利得を有する 場合にはランダムレージングが観察される。この研究を深めるには、ランダム系のパラメーター(コラ ム充填率やシステムサイズ)を系統的に変えながら光学特性(光局在やランダムレージング)との関 係を実験的に調べてゆく手法の確立が必要である。そこで、本研究では、開拓した GaN ナノコラム の選択成長法を用いて、ナノコラムの人工ランダム配置を実現し、この課題を克服することを提案 する。たとえば、図」89のようなランダムレージングの発振モデルを検証すべく、同じランダム配列を

維持しつつ領域サイズを変えてナノコラム系を作製す る。鋭いピークが多数観察されるランダムレージング では、図 J89(a)のようにランダム配列ナノコラム領域内 に形成された複数の微小共振器が、発振のランダム 性に関与していると考えられる。したがって、図 J89(b) のように領域サイズそのものを小さくすれば、レージン グの発振ピーク数も減少することが予想できる。

GaN テンプレート上に Ti 薄膜を蒸着したのちに、集 束イオンビーム(FIB) 法を用いてパターン加工を施し, RF-MBE 法を用いて GaN ナノコラムを作製した。1辺 が 6µm、10 µm、20 µm の正方形領域内にナノコラムを ランダムに配置するように乱数を用いてパターンを設 計した。小さな領域パターンのコラム配置は大きいパ ターンの中心部分の領域を切り出すように設計した。 図 J90 は領域(6µm×6µm)の設計パターン(a)の上に 成長した GaN ナノコラムの電子顕微鏡写真((b)、(c)) である。コラム同士を接近して設計した部分では成長 後にナノコラムが結合してしまったところがあるが、お



図 J89: ランダムレージングの模式図

おむね設計通りの人工ランダム 配置 GaN ナノコラムが得られた。

ここで作製した 20µm 角、10 µm角、6µm角の領域サイズの 異なる人ロランダム配置 GaN ナ /コラムを Nd:YAG パルスレーザ で励起して、光励起ランダムレー ジング発振スペクトルを調べた励 起スポット径は約 30µm であった。 図 J91 のように人ロランダム配置 GaN ナノコラムの領域サイズが小



図 J90: 人工ランダム配置 GaN ナノコラムの (a)設計パターン、(b)正面 SEM 像、(c)鳥瞰 SEM 像



図 J91: 3 種類のシステムサイズの人エランダム配置 GaN ナノコラムにおける, ランダムレージング

さくなるほど発振ピークの数が減少した。

ランダムレージングは、領域内に形成された複数の微小共振器からの発振の重ね合わせで、領 域サイズの微小化とともに発振ピークの数が減少すると予想されたが、これまでに実験的に示した 報告例は無く、それを初めて実証した<sup>148,227)</sup>。

<u>本研究では、Ti マスク選択成長法を用いて人工ランダム配置 GaN ナノコラムを初めて作製し、</u> <u>光学評価を行った</u>。ここで提案したアプローチは、コラム径、コラム密度(コラム充填率)、領域サイ ズなどを系統的に自由に制御することができるので、ランダム系における光の局在現象を研究する 上で非常に有用な手法である。今回は、領域サイズの異なる配列パターン間で発振スペクトルを 比較し、領域サイズの減少に伴って発振ピーク数が減少することを実験的に明らかにした。今後は、 人工ランダム配置の設計パターンを取り込んだ数値計算との比較などから、ランダムレージングの 特性や光の局在について、より詳細な議論・解明が進むことが期待される。

# (f) ナノコラムの基礎物性とナノ結晶効果

#### (f)-1 基礎物性

(f)-1-1 集団 GaN ナノコラムフォノン物性評価 4,10,24,161,162,163,198,254,265,265,275,278,295,298)

図 J92 は Si をドープした 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 フォノンープ ラズモン結合(LOPC)モードを形成し、2つの分枝 L<sup>+</sup> とL<sup>-</sup> モードになる。<u>灰色で示すピークはL<sup>+</sup> モードであ</u> る。Si セルを高温にしたものほど高周波数側に移動し、 <u>ブロードになっているのが分かる。LOPC モードの観測</u> はナノコラム結晶では初めての観測である。

実験では A<sub>1</sub>(LO)フォノンとの結合モードである高周 波数分岐 L<sup>+</sup> 結合モードだけが観測された。これをバ ルク結晶での誘電関数から求められる LOPC モードの ラマン散乱理論曲線でフィッティングすることで、プラ ズモンと A<sub>1</sub>(LO)フォノンの周波数と減衰定数(緩和定 数の逆数)を算出した。<u>プラズモンの周波数より、キャリ</u> 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<sup>10, 198, 269, 278)</sup>。

プラズモンの減衰定数はキャリア依存性が弱い。一方、 図 J93 に示すように、A<sub>1</sub>(LO)フォノンの減衰定数(黒丸)の キャリア密度依存性は、薄膜 GaN の減衰定数の報告値 (黒四角)より大きいことが分かった。これはナノコラム結晶 では電子-格子相互作用が強いことを示唆している<sup>10, 198, 269, 278)</sup>。

固体と外界(空気)の境の界面には局在する表面フォ ノンが存在する。ナノ構造では表面フォノンが格子力学



図 J94: コラム密度の違った不 規則配列 GaN ナノコラムのラマ ンスペクル。比較のため GaN film も載せた。



図 J92: Siドープ 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。灰色は理論曲線を示す。



図 J93: A<sub>1</sub>(LO)フォノンの減衰定数 (Γ)のキャリア濃度依存性

面フォノン<sup>275, 298)</sup>及び GaN/AIN 多重量子ディスクナノコ ラムのフォノン物性を研究した<sup>4, 10, 162, 163, 172, 253, 254)</sup>。

図 J94 に不規則に配列した GaN ナノコラム結晶のラ マン散乱の結果を示す。媒質中にランダムに埋め込ま れた円柱状の誘電体(半径もランダム)の光散乱では表 面フォノンである Fröhlich モードタイプの固有モードが観 測できる。Fröhlich モード(赤の点線)はコラム密度が小 さくなると低周波数側にシフトしていくことが観測できた。 また、コラム密度の不均一により、非対称な幅広いスペク トルになる。この実験で見積もられたコラム平均密度 <u>co</u> や不均一の分散パラメーター<u>c</u>は、SEM 写真より得られ た結果と一致していることより、ラマン散乱はナノコラム試 料のランダム性等の評価に有効である<sup>4, 162, 163, 253)。</sup>

に重要な役割

を果たす。

我々は GaN ナ

ノコラムやナノ ウォールの表

#### (f)-1-2 GaN ナノコラムの励起子分子と電子正孔プラズマ 27,124,263,279,280)

平均コラム径 150 nm をもつ GaN ナノコラムからの発 光の励起光強度依存を測定したところ、図 195 のように 励起子発光に加えて励起光強度に対して非線形に増 大する励起子分子発光(M発光)および、さらに強い 励起で電子正孔プラズマ(EHP)発光が観測された。 発光ピークから見積もられる励起子分子の束縛エネル ギーは、バルクの試料(約 6meV)よりも大きな値 (11meV)である。一方、励起子発光の位置は薄膜や バルクと変わらないので、励起子束縛エネルギーはバ ルクと同じであると考えられる。つまり、励起子分子に のみ閉じ込め効果が生じていることを示唆するもので ある。実際に GaN の物性パラメーターを用いて、変分 法により[\*]、励起子束縛エネルギーと励起子分子束 縛エネルギーのコラム径依存性を計算したグラフを図 .196 に示す。ここでは、バルクのときのエネルギーとの 比で表している。これを見ると、100nm 程度のコラム径 では励起子束縛エネルギーに影響を受けないことが わかる。一方、励起子分子の束縛エネルギーは、励起 子よりも敏感にコラム径の影響を受けていることがわか



図 J96: 励起子および励起子分子の 束縛エネルギー



図 J97: EHP 状態におけるバンドギャップ の減少量



図 J95: GaN1 の PL 励起強度依存性

るが、それでも実験で観測されたような大きな増大 はこの計算では再現されなかった。その原因の一 つには、表面近傍の励起子分子が存在できない 領域の存在があると考えられるが、それ以外にも、 ここで計算したような単純なクーロン相互作用以外 の相関効果が 100 nm 程度のコラム径で生じてい る可能性がある。

励起子分子にサイズ・形状に依存する相関効 果が働いているならば、電子・正孔の密度がより高 い EHP 状態ではもっと顕著になるはずである. EHP 発光は、励起強度とともに、低エネルギーシ フトしながら幅も広がっていく. そのシフトと幅から, キャリア密度とバンドギャップ減少量を見積もること が可能である. その結果が図 \_197 の○である. □ は別のグループの薄膜での報告[\*\*]である.こ れを見ると、ナノコラムでは低いキャリア密度か ら,バンドギャップ減少が顕著になっていること がわかる. 図の点線は良く使われるバンドギャッ プ減少の経験式[\*\*\*]を,実線は電子正孔 BCS 状態を経由して EHP が生成[\*\*\*\*]されるという 計算を行ったものである. 経験式の線は GaAs など多くの半導体で良い一致を示すものである が,ナノコラムでは明らかにその式からはずれ ている.また,電子正孔 BCS 状態を経由した計 算と良く一致しているが,その根拠は明らかで ない. 円柱という形状が, 対となる波数の電子を 生成する確率を高くしているのかもしれないが,

#### 今のところ,詳細はわからない.

このように GaN ナノコラムに関しては、物理の本質的な解明には至っていないものの、特徴的な 形状・サイズの効果を観測することができた.ナノコラムのサイズは、電子が量子閉じこめ効果を受 けるほど小さいナノサイズではなく、キャリアの動的特性が制限されるようなサイズである.このような 中間的サイズ、および、特徴的な形状に起因する光物性の研究はこれまでに殆ど存在しない.ナ ノコラムはその目的の研究に最適な物質であり、本研究において、その分野の研究の大きな扉が 開かれたと信じている.

[\*] O. Akimoto and E. Hanamura, J. Phys. Soc. Jpn. 33, 1537(1972).

[\*\*] T. Nagai, et al. Appl. Phys. Lett. 84, 1284(2004).

[\*\*\*] P. Vashishata, et al. Phys. Rev. B 25, 6492(1982).

[\*\*\*\*] T. Inagaki, et al. Phys. Rev. B 65, 205204(2002).

(f)-2 ナノ結晶効果 16, 39,43, 188,199, 255, 272, 277, 292,296) (f)-2-1 GaN ナノコラムからの発光 16,188,199,255,277)

コラム径100 nm 程度での励起子発光の振る舞いを調 べるために、図 J98 に示したように平均コラム直径の異 なる4つの試料を用いた。各サンプルの低温での発光ス ペクトルを見ると、GaN1 の発光スペクトルには2つのピ ークがあり(高エネルギー側に A 励起子による発光、低 エネルギー側に束縛励起子による発光)、このスペクト ルは、良質な薄膜の低温のスペクトルと大体同じである。 コラム径が細くなるにつれて A 励起子よりも高エネルギ ー側のB励起子とC励起子に相当するエネルギーに新 たな発光が観測されるようになり、各試料によってスペク



図 J98: GaN ナノコラムの模式図

トルの形が異なっていることが判明した。この起源を解明するために、励起子ポラリトンの伝播及び ナノコラムの上部と側面両方からの発光(図 J98)を考慮して GaN ナノコラムの発光スペクトルの計 算を行った。その結果が図 J99 であり、A励起子発光の強度との比で表している。コラム径が減少 すると側面からの発光によって B、C 励起子のピークが顕著になること、コラムという形状の効果で 側面発光が増強されて、上面から観測するときの発光が強くなることがわかった。

A励起子に着目して、同じ充填率でコラム径の違いによる発光強度を計算すると図J100のように なる。ここでは、薄膜での発光強度を1としている。コラム径 250nm 以下では、薄膜に比べて 10 倍 以上の発光効率(と言うより、上面方向での発光収率)があり、コラム径が小さいほど発光強度は強 い。ただし、コラム内の伝搬中にB励起子とC励起子からの緩和の影響で、一度ピークを持つ構造



図 J99: コラム径の違いによるA, B, C励起子の発光強度比



図 J100: コラム径の違いによるA励起 子発光の強度

になっている。以上はすべて低温での解析であり、室温においてポラリトン描像がどこまで当てはまるか微妙ではあるが、基本的な特性は室温でも同じと考えられる。実際に、コラム径80nmの試料では、室温において、薄膜に比べて20倍の発光が観測されたという報告\*があるが、図 J100 のグラフの80nm では18倍となっており、報告値と近い値になっている。

以上により、GaN ナノコラムでは、コラムという特徴的な形状の効果により、側面からの発光が顕 著に表れる。すなわち、光の取り出し効率の向上により、発光デバイスとしての光学特性を大幅に 改善していることが明らかとなった。

#### (f)-2-2 フォトニック配列 GaN ナノウォールによる SHG の増強 39,272,292,296)

上述の(e)で述べたナノウォールの作製法を利用して、 GaNナノウォールを規則的に配列させた。この構造における1次元のフォトニック効果を利用して、図 J101 の配置で 反射型の第2高調波発生(SHG)の増強を試みた。GaN は 比較的大きな2次の非線形光学定数を持つが、複屈折を 用いた位相整合を実現できないため、強い SH 光を取り出 すことが困難である。そこで、規則配列 GaN ナノウォール のフォトニックモードを利用した。

Torres らの報告[\*]と同様に、基本波をフォトニックモードに合わせ、基本波の電場増強を行いる方法(R-NR 条



図 J102: 用いた GaN ナノウォールのフォトニック モードの分散曲線



図 J103: 規則配列 GaN ナノウォール からの反射型 SHG 強度



図 J101: 規則配列 GaN ナノウォ ールからの SHG 増強の実験概 念図

件)、SH 光をフォトニックの漏れモード に合わせて、外部への取り出し効率を 上げる方法(NR-R 条件)、これら二つを 同時に満足する方法(R-R 条件)を試み た。

図 J102 に用いた規則配列 GaN ナノ ウォールのフォトニックモードの分散図 を示す。この図の範囲内では、入射角 度を 23.4 度にして、入射エネルギーを 変化させると、NR-R 条件と R-R 条件を 満足する点があることがわかる。実際に、 入射角を 23.4 度に固定し、入射光のエ ネルギーを変化させたところ、 R-R 条

イルイーを変化させたところ、K=K 朱 件を満たすエネルギーで、約 50 倍の SH 光の 増強が確認された(図 J103)。さらに、R-R 点が フォトニックモードのバンドエッジになるように、 ナノウォールの配列を設計すれば、数桁の SHG 増強が期待できる。この結果は、規則配 列GaNナノウォールが十分なフォトニック効果を 持つことを実証しており、ここで示した SHG 増強 だけでなく、さまざまな非線形光学効果の増強 に利用できることを示している。

[\*] J. Torres, *et al.* Phys. Rev. B **69**, 085105(2004).

# (f)-2-3 ナノ構造効果としての歪制御<sup>43,150,232)</sup>

ナノコラム側面における歪緩和効果は、ナノコラムよって 発現されるナノ結晶効果で、川上グループの(b)-1 で議論 されているように、有限要素法による歪解析で明らかにさ れている。ここではコラム径と歪緩和の関係が解析され、 200nm 以下のコラム径の場合に、径が小さくなるに従って、 歪みの開放が進み、ナノ結晶効果あがより顕著に発現さ れることが示唆された。本項では、ドライエッチングによっ て InGaN/GaN-MQW 構造にナノ加工を施し、ナノストライ プ、ナノホール、ナノピラー(ナノコラム)構造の3種類のナ ノ構造を作製し、ナノ構造における歪緩和効果を系統的 に検討した。図 J104 に示すように、エッチングで作製する トップダウン型ナノコラムを、結晶成長で作るボトムアップ 型のナノコラムと区別するため、



発光波長 510nm の平坦膜量 子井戸を深さ 570nm だけエッチ ングして、図 J105 のように3種類 のトップダウン・ナノ構造(ナノス トライプ、ナノホール、ナノピラ ー)を形成した。

ナノピラーではピラー径 φ を 50nm から 300nm まで変化させ た。これらの構造の光学特性を 評価し、歪緩和効果を調べた<sup>17)</sup>。 このトップダウン・ナノピラー構造 の PL 発光スペクトルのピラー径 依存性を調べたところ、ピラー

径を 130nm まで細くするとともに発光波 長は短波長側にシフトした。このような発 光波長の短波長シフトは、川上グループ が先行して行なったピラー径 500nm まで の実験でも見られた(川上グループ報告 (b)-2)。ここでは直径 50nm の微小ナノピ ラーまで実験を行った。コラム径の減少と ともに、130nm でブルーシフトは最大値 51nm となったが、それ以下にピラー径を 小さくしても歪緩和効果は飽和し、ピーク 波長は変化しないことが分かった。

一方、PL 積分強度の温度変化から見 積もった内部量子効率は、平坦膜の3 4%に比べてナノピラー構造では 60%ま で増加し、発光再結合時間も 20ns から



図 J104 トップダウン型ナノ コラム(ナノピラー)



図 J105 ドライエッチングで作製したナノストライプ (L=400nm,W=210nm),ナノホール(L=500nm,**Φ**=200nm)、 ナノピラー(L=250nm,**Φ**=200nm)の SEM 写真<sup>43)</sup>



図 J106: 歪緩和による波長シフト量⊿んとナ ノ構造側面の空間占有関数 V<sub>soc</sub><sup>43)</sup>

4.2nsまで短くなった。これらの現象は、ポストエッチングによる量子井戸内の歪緩和のため、ピエゾ 効果でもたらされていた振動子強度の低下が改善されることを示している。

さて、<u>金緩和効果は、作製したすべてのナノ構造で発現されたが、これにはナノ構造の側面が</u> 関与している。これを統一的に取り扱うため、本研究では側面の空間占有関数 V<sub>so</sub>(構造内の側面 <u>の長さ(S)/エッチングされていない部分</u> <u>の面積(A))を導入した</u>。すなわち、直径  $\phi$ のナノピラーでは  $V_{soc} = 1/\phi$ で与えられる。 図 J106 には歪緩和効果による波長シフト 量( $\Delta \lambda$ )の $V_{soc}$ 依存性を示した。三種類の ナノ構造が同じ曲線状に重なり、規格化パ ラメーター $V_{soc}$ は、ナノ構造の歪緩和効果 を評価するためのユニバーサルパラメータ ーとして利用できることが確かめられた<sup>43)</sup>。



0.0 2.5x10<sup>3</sup> 5.0x10<sup>3</sup> 7.5x10<sup>3</sup> 1.0x10<sup>4</sup> 1.3x10<sup>4</sup> Spatial occupation of etched side wall V<sub>SOC</sub> (nm<sup>2</sup>) 図 J107: ナノ構造の PL 強度の V<sub>soc</sub> 依存性 <sup>43)</sup>

図 J107 にナノ構造の室温 PL 積分強度 の V<sub>soc</sub> 依存性を示した。V<sub>soc</sub> = 1.3×

10<sup>-3</sup>nm<sup>-1</sup>でPL強度は最大になり、それ以降は急減に減少することが分かる。これは $V_{soc}$ の増加とともに歪緩和効果が増加するが、それとともに発光層体積が減少し、発光強度を低下させるからである。L=300nm、 $\Phi$ =200nmのナノピラーにおいて、エッチング前のナノ構造を含まないものに比べて、PL発光積分強度の約8倍の増大が観測された<sup>43)</sup>。

川上グループの結果(図 K13)によれば、GaN ナノピラーの直径が 200nm 以下で歪量が減少し 始め、100nm 付近から小さな径では歪量は急激に減少する。ナノ構造側面部ではピエゾ電界が抑 制され、再結合速度が速く、キャリアが消費されるため、動径方向にキャリア分布を引き起こし、十 分な歪緩和が起こっていないピラー中心部から側面部へのキャリア拡散を促進する。実験によれ ば、ナノピラー径 130nm 以下の時は、図 J110 にみるように、歪緩和にようる波長のブルーシフトが なく、励起されたキャリアが歪緩和された側面部へ拡散して、速い速度で再結合したと考えられる。

#### (g) 成果の位置づけ、類似研究との比較

研究代表者らはrf-MBEによる自己形成 GaN ナノコラムを最初に(1997 年に)発表し、この分野を 先導してきた。2001 年ごろからナノデバイスへの関心が高まり、論文数が増加し始め、電流注入型 ナノコラム LED の最初の実験は、本研究チームと韓国 Dongguk 大から同時に 2004 年に発表され たが、韓国チームによるその後の発表はない。

その後、本研究プロジェクトが開始され、本チームは引き続いてナノコラム LED 分野を先導 し、可視全域に加えて紫外域のナノコラム LED の実証へと波長域の拡大を行い、また多色発光ス ペクトルの検討と狭スペクトル化、微小電極ナノコラム LED による発光スペクトル解析などを次々に 進めた。さらに、ナノコラム結晶の結晶性の高さをいち早く実証し、サファイアや Si 基板上にも係わ らず GaN ナノコラムが、高品質 GaN 基板に比べて数倍明るいフォトルミネッセンス発光強度を示す ことを明らかにした。これらによってナノコラム結晶の潜在性の高さを示し、国際会議の招待講演 (国際34件、国内16 件)や論文発表などによって、世界にインパクトを発信し続けてきた。

この間、GaNナノコラム研究は世界的に広がり、現在、スペイン、ドイツ、フランス、スウエーデン、 台湾、韓国、米国などで活発に研究されている。昨年からは、ナノコラム LED の開拓を目的とする 欧州プロジェクト(SMASH: Smart Nanostructured Semiconductors for Energy-Saving Light Solutions、2009 年秋~)も開始され、ナノコラム研究に大きな潮流が起こりつつある。

MOVPE でもナノコラム研究が開始されている。しかし、この場合 InGaN 活性層がナノコラム側面 に成長し、デバイス構成法で新たな工夫が必要であり、さらに、ナノ結晶効果の発現のためには、 InGaN をコラムトップに限定する手法の開拓が必要と考えられる。ナノコラム側面に広く InGaN 層が 形成されてしまうと、平坦膜と何ら変わらないからである。この観点で、本研究チームによる rf-MB Eで成長するナノコラム光デバイス研究は、優位性を保っている。

本研究チームが実現したナノコラム規則配列化は、最近の国際会議(MBE2008、バンクーバー) での発表では、参加者にインパクトを与え、ロビーでも多くの研究者から個別質問を受けた。さらに 本研究の革新的成果のひとつは、ナノコラム規則配列化による同一基板上での発光色制御法で ある。最近 Applied Physics Letters にその成果が掲載されたが、コラム径によって青、緑、黄色、赤 色と発光色の変化する実験結果はカバーイメージにも採用され、当該分野の注目を集めた。

この研究によって同一基板上への三原色(RGB)LED の一体集積化への道が拓かれた。また、 白色半導体光源応用に与えるインパクト性は計り知れない。色再現性(演色性)が高く、ストークス 損失のない高輝度白色 LED への展開が期待される。当該分野における著名なスペインの研究者 (E. Calleja 教授)が、国際会議での私の講演の後に「君はまさに新しい分野を最初に開いた」と私 にささやいたのは印象的であった。最近では、規則配列ナノコラム LED の作製プロセスを確立し、 世界に先駆けて緑色域 LED 動作を実証した。この LED のナノコラム径を変えるだけで発光色が変 化し得るので、LED 発光色制御への道は拓かれたと考えている。

ナノコラムの緑色域レーザとしての発振可能性を確認するため、規則配列ナノコラムの上部に InGaN/GaN MQWを作りつけて、光励起レーザ発振に成功した。ナノコラムの周期構造できまる回 折波長で発振し、その波長では2次元光回折によって周期構造と光が強く相互作用して、強い光 の2次元閉じ込め作用が発現して、いわゆる2次元 DFB 作用によってレーザ発振が起こった。周 期とコラム径の変化とともに青色域から緑色域の広い波長域でレーザ発振が確認された。<u>緑色域</u> では530~560nm でレーザ発振し、波長 560nm は未踏破波長域における最長波長で、550nm 以 上の波長域でのレーザ発振の可能性が示された。驚くべきことは、縦方向に何ら光導波機能をも たないナノコラム系でありながら、周期構造によって発現される水平横方向の強い光閉じ込めと利 得の増強効果でレーザ発振に至ったことである。

周期構造と光との相互作用は古くから知られ、レーザ分野では有名な Kogelnik が DFB レーザと して、1990年代初頭に提案し、研究代表者も若い大学院時代に分布帰還型 GaInAsP 系レーザの 研究に精力的に取り組んだ。最近では同じ原理がフォトニック結晶効果ともいわれ、世界的に研究 されている。規則配列ナノコラムでも、光の相互作用として同じ原理によって発振し得るので、フォト ニック結晶の一種と即断されやすい。通常のフォトニック結晶では、平坦膜へテロ構造を用意し、こ れをエッチングしてナノ構造を作り、フォトニック結晶効果によって、平坦膜へテロ構造の光特性を 最大限に引き出している。基本的な概念は、トップダウン型ナノ構造の域をでていない。つまり、も ともと平坦膜が持っていた性質を変えることはない。欠陥が入っていれば欠陥を除去することはで きないし、発光効率が不十分であれば、高効率化には低い発光効率による制限があるし、InGaN の In 組成揺らぎがあっても、それを軽減することはできない。

これに対してナノコラムはボトムアップ型ナノ構造である。ここでは結晶成長によって貫通転位の 含まれない高品質ナノ結晶をサファイアや Si のような異種基板上に作ることができ、青~赤色域の 広い波長域で高い発光効率をもつ結晶を作り得る。この観点からみると、規則配列ナノコラム系は 古くから知られている光と周期構造の相互作用を活用する側面ではフォトニック結晶との類似点が 見られるが、まったく新しい概念の提案であることが理解される。

一方、ナノコラムでは、その高い結晶性を活用することで、2次元光回折現象を利用しなくても、 垂直面発光型のように縦方向に光を閉じ込めるか、あるいは横方向のファブリーペロー型を用いて、 高性能レーザを実現しうる潜在性を有している。さらに、通常の平坦膜構造レーザでは、結晶性は 基板で決まるので、GaN 基板などの高価な基板結晶を用いつつ、高度の結晶成長技術を駆使す る必要がある。これに対して、ナノコラムは自己形成的に高品質結晶が得られるので、Siやサファイ ア基板上でも、手軽にデバイス品質の結晶が得られる。フォトニックス分野の将来を見通すとき、圧 倒的な数量のレーザ/LED を安価に供給してゆく必要性があり、ナノコラムは、大きな産業的インパ クト性を包含している新技術といえる。

赤色域でも InGaN ナノコラムはよく光ることにも着目したい。波長 600nm の自己形成ナノコラムの 内部量子効率として、ナノコラム形状制御による最適化が未完であるにも係わらす、30%に近い値 が測定された。光取り出し効率 70%、電流注入効率 50%を仮定しても、外部量子効率として 10% が試算され、現在の技術レベル(1%以下)を大きく超える可能性を示唆している。 高輝度赤色 LED 実現は、三原色 LED の全窒化物化を促し、産業界垂涎のテーマに解決を与えうる。 <u>光物性評価の点でも成果の位置づけを述べよう。</u>単一ナノコラム光物性は川上グループが担当しているので、岸野グループは集団ナノコラムの物性現象の解明を進めた。ランダムに配列した散乱体中では、光の多重散乱と干渉効果による光の局在効果が発現される。

本研究では、自己形成ナノコラムのもつランダム媒質性を基礎に発現されるランダム物性の解明 を進め、SNOMによりはじめて光のアンダーソン局在の直接観測に成功し、GaN系半導体における 最初のランダムレージングの観測にも成功した。さらに FDTD 計算によってランダムレージングは 光局在が強い系において観察されることを示した。一方、Ti マスク選択成長法を用いて人工ランダ ム配置 GaN ナノコラムを初めて作製し、ランダムレージングを観測し、ランダム媒質の領域サイズの 微小化とともに発振ピークの数が減少することを実験的に初めて示した。

この提案によって、パラメーター(コラム充填率やシステムサイズ)を実験的に系統的に自由に制 御しながら、ランダム系のランダムレージングや光局在の研究を行なう手法が確立され、人工ラン ダム配置の設計パターンを取り込んだ数値計算との比較によって、ランダム物性の議論・解明が格 段に進むものと期待される。

このような GaN 系におけるランダム物性の解明は、これまで研究がなされてこなかった分野であって、本研究チームによって、独自の研究領域が拓かれたといえる。さらに、ランダム系の詳細な研究は、フォトニック結晶の研究にも大きな貢献を与えるであろう。なぜならば、実際のフォトニック結晶では必ずゆらぎが伴うので、ランダムの効果を取り除くことは不可能だからである。実際に最近のフォトニックの分野では、乱れの効果の研究が盛んになりつつありが、本研究チームのランダム物性の研究はその最先端を進んでいる成果である。

さらに、本研究プロジェクトでは光のアンダーソン局在の理論的研究にも着手した。数値解析に よって光伝播の厳密計算を行って、不規則配置ナノコラムからなる集団ナノコラムの光のアンダー ソン局在、さらには2次元ランダム系における光局在現象について研究を行い、局在効果の単一 パラメータースケーリング則や周波数依存性を明らかにした。この新たな視点は、光のアンダーソ ン局在の解明に大きく寄与し得るもので、他に例がない研究成果といえる。一方、光局在効果のパ ラメーター依存性を網羅的に調べて局在マップを作成し、その物理的要因は充填率の増加ととも に Mie 共鳴から Bragg 回折条件へと連続的に変化することを明らかにした。この研究成果は、電子 波を始めとするランダム系での波動局在現象における本質的問題の理解にも貢献し得よう。

#### (2) 研究成果の今後期待される効果

本研究によって GaN ナノコラムのコラム径と位置制御法を開拓し、コラム径と位置を10nm 以下の 精度で自由に制御しうる選択成長法を手に入れた。完全とも言える水準で形状が同一となった規 則配列ナノコラムは、狭い領域であれば実現している。現時点では、ナノコラム径が200-300nm と 大きく、数百本のナノコラムの範囲内に過ぎない。しかしながら、今後の研究展開によっては、この 選択成長法は、究極的にコラム形状が揃った規則配列ナノコラムの作製を可能とするであろう。

この技術は、In 組成揺らぎに一定の規則性を導入し、ナノコラム径を小さくすることで、(a)-3-5で 述べたように、In 組成揺らぎを抑制し得よう。高い In 組成 InGaN の組成揺らぎが抑制されれば微分 利得を高まる。さらに貫通転位発生と内部電界が軽減され、結晶歪の緩和効果がある。これらのナ ノコラムで発現されるナノ結晶効果は、緑色半導体レーザの高性能化をもたらすと期待される。

現在、InGaN/GaN 系緑色レーザのレーザ発振が報告されているが、そのしきい値電流密度は、 波長 500nm 以上の緑色域では nm 刻みで増加し、520nm では 5-7kA/cm<sup>2</sup>と高い。高反射膜(90% 程度)の端面コーティングによって得られた値で、高出力化のために低反射にすると、しきい値電 流密度は大きく上昇する。これを解決しない限り、レーザプロジェクション型ディスプレイに必要な 光出力は実現し得ない。しきい値特性劣化は、長波長化とともに増長される In 組成揺らぎ、貫通転 位、内部電界の増加が原因となる。それに加えて InGaN 層の格子歪が増加し、さらに屈折率段差 が小さくなるので AlGaN クラッド層の Al 組成比を増やす必要性があるが、その場合、結晶歪がさら に増加し、結晶クラックが発生する。そこで屈折率段差に限界があって、長波長になるに従ってそ の段差が小さくなるので、光閉じ込め係数が減少する。これらの要因は相乗的に作用し、長波長 化とともにレーザ特性を劣化させ、レーザの高出力化を阻んでいる。<u>ナノコラムは、上述のナノ結晶</u> 効果によって、これらの課題に挑戦しえる新領域の技術といえる。

本研究プロジェクトで確立したナノレーザの基礎技術によって、規則配列ナノコラムによる緑色 半導体レーザが実現されれば、面型の大面積ナノコラムレーザが得られ、<u>緑色レーザの高出力化</u> への道が拓かれると考えている。赤、青色域高出力半導体レーザはあるので、緑色レーザの高出 力化は、大画面・薄型レーザ TV を現実的なものにして、高精細な臨場感のあるフルカラー映像を 人類にもたらす。これはスーパーハイビジョン(走査線数 4000)時代に向けてディスプレイ革新が求 められる昨今、ディスプレイ技術に大きな躍進をもたらそう。

一方、InGaN 系ナノコラムでは赤色域でも適度に高い内部量子効率が観測されており、今後の 研究展開によって窒化物系で高輝度赤色 LED が実現できる可能性がある。現在、大規模屋外 LED ディスプレイや信号機では GaAs 基板上 GaInP 系赤色 LED を用いているが、GaInP 系 LED は、InGaN 系 LED に比べ温度消光が大きく、さらに膨大な数の Asを含む赤色 LED 利用は環境に 配慮すると問題であり、代替技術として安全な GaN 系赤色 LED の開拓は意義深い。

さらに、本研究で開拓した同一基板上の発光色制御法は、フルカラーLEDと高輝度白色LEDを もたらし、今後の研究展開を通して「世界に先駆けた新規産業の創出」へ大きく貢献するであろう。

発光色制御の白色半導体光源応用に与えるインパクト性は計り知れない。色再現性(演色性) が高く、ストークス損失のない高輝度白色 LED への展開が期待される。ナノコラムは大面積 Si 基板 上でも高品質なナノ結晶が得られるので、半導体照明分野に安価で機能性の高い光源を提供し 得よう。また、マイクロメータ領域内へ三原色 LED を一体的に集積化でき、微小発光面のフルカラ 一発光 LED が実現し得るところも魅力的である。これまで赤・緑・青の三色の LED のすべてを数十 μm 領域内に作りこむ実装技術は存在しない。ナノコラム技術によって可能となるデバイス寸法の 数百分の一のダウンサイジングは、LED 機能性に新たな展開と発展性をもたらし得る。

インコヒーレント光としての特性から LED は、これまで表示・照明など光の輝度の側面が活用され、微小光スポットが必要な用途に使われてはこなかった。発光径が数十µmとなれば、ナノコラム 三原色 LED は、網膜走査型ディスプレイ用光源へ活用できるであろう。ここでは、人間の網膜をキャンバスとしてフルカラー光ビームを走査して映像を書き込む。小さな光出力でよく、微小な LED 発光面積は、網膜上に小さな光スポット像を結び、LED でも十分に利用できる。さらにフォトン散逸がなく、微小パワーで、視野一杯に、鮮明なフルカラー映像が得られ、両眼に少しずれた映像を入れて3D 映像とすれば、仮想現実感を享受できる画期的なディスが実現できよう。これは映像の秘 匿性にも優れ、微弱な光電力で動作し、圧倒的な省エネルギー化が得られる。モバイル・省エネル ギー時代に適合したディスプレイであった、ゲーム機にノート型パソコンに広範囲の利用が予測され、爆発的に普及して、大きな社会的インパクトをもたらそう。<u>必要となるデバイス技術としては、圧</u>倒的な数量に対応しつつ、如何に安価に三原色LEDを供給し得るか、という点に集約できる。ナノ コラムテクノロジーは、まさにこれに適合する新時代の技術といえ、たとえば、12 インチ Si 基板上に 三原色を制御しつつナノコラム LED を作製すれば、使いきれない数量のデバイスが製造できる可 能性がある。ナノコラムでは基板を選ぶことなく高品質な結晶が得られるからである。

# 4.2 ナノ結晶効果の解明と新規ナノ光物性の発現 (京都大学 川上グループ)

#### (1)研究実施内容及び成果

## 研究の目的

窒化物半導体によるナノコラム構造の基礎物性を明らかにするため,顕微分光を中心とした光物 性評価を行う.結晶成長における自然形成を利用したボトムアップ型のナノコラムに加えて,結晶 成長後の量子井戸構造を加工するトップダウン型のナノコラム(ナノピラー)も作製・評価し,それら の相違を検討することにより,ナノコラム効果の抽出を図る.

# 研究の成果

# (a) 自己形成型ナノコラムの光物性<sup>7,28,124,144,168,182,204,290)</sup>

# (a)-1 試料および基本的な光学特性<sup>7、168)</sup>

サンプルは, サファイア(0001)基板上にrf 分子線エピタキシー法により自己形成した GaN ナノコ ラムをベースとした.まず, GaN ナノコラムを1.1-1.5 μm 成長し, その上に, 3-5 nm 幅の InGaN 量 子井戸, 35-100 nm の GaN キャップ層を順次, 積層している. すべての層は, 意図的には不純物

添加されていない.(成長の詳細は岸野グループの 報告を参照)自己形成的に結晶成長しているため, 図 K1 に示すように,形状ばらつきがあり,例えば直 径は,おおよそ40-120 nm の分布を持っていた.

この構造のばらつきの結果として、さまざまな In 組成や井戸層厚をもった InGaN 量子井戸が形成さ れるため、その発光の様子を室温において蛍光顕 微鏡で観察すると、図 K2 に示すように、青から赤 色までの発光色を識別することができる.このような ナノコラム量子井戸のフォトルミネッセンス(PL)を 低温(13K)および室温で測定した.励起光源には、 Ti:サファイアレーザからの 370 nm 発光を用い、 InGaN 量子井戸だけを選択的に励起した.また、こ の場合の励起スポット径は約 100 µm であるため、 図 K1、K2 からもわかるように、多数のナノコラムを



図 KI:日日形成 / ノユノムの岡田 走査型電子顕微鏡(SEM)像.



図 K2: 自己形成ナノコラムの室 温における蛍光顕微鏡像<sup>7)</sup>



同時に励起する巨視的な測定となっている. PL スペクトルを図 K3 に示す. 室温における発光ピー クは 2.28 eV であり, スペクトル半値幅は, 低温で 581 meV, 室温で 448 meV と非常にブロードな発 光である. しかも, 通常, 単独の起源からの発光であれば, 発光半値幅は温度の上昇とともに広が るはずであるが, 実際には逆の傾向を見せている. これらは, 図 K2 から推察されるように, コラム間 の発光波長の分布が非常に大きく, その集合を観察している巨視的な光学測定では, 見かけ上, 発光がブロードになってしまうことが原因であると考えている. なお, 13 K における PL 積分強度を1 とした時の室温の PL 積分強度を内部量子効率と見なすと、ナノコラム量子井戸の内部量子効率 は 12%であった<sup>7)</sup>.

このような巨視的な分光では、ナノコラム 固有の物性を抽出することは難しいと考えら れる. そこで, ナノコラムを基板から機械的 に剥離して別の石英基板上に分散し、その 発光特性を顕微鏡下で評価した. 測定温 度は 13 K, 励起光源には, Ti:サファイアレ ーザからの400 nm 発光を用いた. 結果を図 K4 に示す.励起光(400 nm)の吸収を考慮 すると、6.8  $\mu$ W/cm<sup>2</sup>は7.4×10<sup>17</sup>cm<sup>-3</sup>のキャリ ア密度に相当する. 単一のナノコラム量子 井戸から、半値幅約30meVのシャープな発 光が観測された.この半値幅は、混晶系で 不可避である混晶広がり(約 20 meV)と同程 度である. このナノコラムの PL スペクトルの メインピークエネルギーは 2.34 eV であるが、 数 10 個のナノコラムを調査した結果,発光 ピークエネルギーは 2.2 から 2.6 eV という広 範囲で観察された.これは,巨視的なPL(図 K3)のブロードな発光が、個々のナノコラム の発光の集合であることを直接的に証明す る結果である.



図 K4:単一ナノコラム量子井戸の 13K にお ける PL 励起強度依存性 <sup>7)</sup>

また,励起光強度を680 μW/cm<sup>2</sup> (7.4×10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>) まで強くしても,ピーク位置は,わずか5 meV 程度しか変化せず,一方で,おそらく局在中心における高次の量子準位からの発光と思われるピ ークが,約270meV高エネルギー側に現れた.500 nm 付近で発光する平坦な InGaN 量子井戸構 造において,同じような励起密度で PLを観察すると,ピーク位置は,100 meV 程度ブルーシフトす る.この原因として,局在系裾準位の充填や分極誘起電界のキャリアによる遮蔽が考えられえいる が,これらの効果が,ナノコラムでは非常に小さいことが示唆される<sup>7,164</sup>.この詳細な解釈について は,後述する.

# (a)-2 マイクロミラーアレイの形成<sup>124,182)</sup>

前節の手法では、単一ナノコラムが石英基板上にランダムに分散するため、ある特定のナノコラムに関して、その発光特性や構造特性を異なる評価手法で評価し、その相関を明らかにすることが困難である.もし、ナノコラムを識別する方法が開発できれば、それにより、個々のナノコラムの特性をより詳細に解析できると考え、マイクロミラーアレイ(MMA)を考案した<sup>124,182</sup>.

図 K5(a)に, MMA の作製工程の概略図を提示した.まず, Si(001)基板を用意する.この基板 をバッファードフッ酸(BHF)で処理して表面酸化物を除去した後, 収束イオンビーム(FIB)装置で <110>方向に格子状の模様を描く.この際, イオンビームに使用している Ga が Si 中に注入されるこ とになる.これを 40°C の KOH 水溶液(10%)でエッチングすると, Ga 添加 Si のエッチングレートが極 端に遅く, さらに, 化学エッチング特有の異方性があるため, {111}面で構成された逆ピラミッド上の エッチピットができる.これに Al を真空蒸着することにより, 図 K5(b)に示したような MMA が完成す



図 K5:(a) MMA 作製工程の概略図.(b) 完成した MMA の SEM 像

る.

この MMA の利点の一つは,格子状に逆ピラミッド上のマイクロミラーが並ぶため,各格子点を番地付けできることである.一例を図 K6 に示した. 蛍光 顕微鏡像(上図)では,一辺1 µm 程度のマイクロミラ ーが多数,格子状に並んでいることがわかる.その 内,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,SEM に よる観察の結果(下図),直径 107nm であることが同 定された.

この MMA の別の利点として,発光のディテクタ ーへの集光効率の向上も挙げることができる. FDTD や光線追跡法に基づいたシミュレーションに よると, N.A.= 0.6 の対物レンズで,4 倍まで集光効 率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示された.以下で は、この MMA を利用した単一ナノコラムの顕微分 光について述べる. 

図 K6: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

(a)-3 単一ナノコラムの顕微分光<sup>7,124,168,182)</sup> 図K7に,緑色発光単一ナノコラム量子井戸からの 4.2K における発光測定結果を示す.試料は,

図 K2 から K4 で用いた試料と同一である. 図 K4 での最低光励起キャリア密度が 10<sup>17</sup> cm<sup>-3</sup> 台であったのに対して,ここで 10<sup>16</sup> cm<sup>-3</sup> 台まで低減できているのは,MMA の効果である. 光励起キャリア 密度(1.11×10<sup>16</sup> cm<sup>-3</sup>)の時,発光スペクトルは 10 本程度のスパイク状の発光線が確認できた。この 結果は,ナノコラムの内に複数の微小な発光中心があることを示唆している。光励起キャリア密度 を増加させても,ピーク位置はシフトせず,発光スペクトルが広がっていくことが分かった。特に光励起キャリア密度が 10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup> 以上では 2.4 から 2.7eV 付近にかけて急激に発光強度が増加してい ることが分かった。スパイク状ピークの振る舞いから,ナノコラムでは分極誘起電界が低減されており,光励起キャリアによる分極誘起電界のスクリーニングはほとんど起こっていないと考えられる.また,強光励起キャリア密度における(特に高エネルギー側での)発光スペクトルのブロード化は,局

在準位のフィリングによって,より高エネ ルギー側に存在する非局在準位からの 発光が観測され始めたことを示唆してい る.

分極誘起電界の低減を実験的に示す ためには、いくつかの方法が考えるが、こ こでは、キャリアの再結合寿命を測定した. 分極誘起電界が低減されると電子と正孔 の再結合確率が高まるため、その逆数で ある寿命は短くなると期待される. MMA の特長を活かして、図 K7 と同一の単一 ナノコラムに関して、時間分解 PL 測定を 4.2 K で行った. 結果を図 K8 に示す. 光 励起キャリア密度は、1.11×10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>であ り、図 K8(a)は発光スペクトルの時間発展 を、図 K8(b)は発光減衰曲線を示す. 図 K8(a)を見ると、発光の立ち上がり直後、



図 K8: 4.2 K における(a)単一ナノコ ラム量子井戸の発光減衰曲線およ び(b)発光減衰曲線



スペクトルはブロードであるが,この発光成分はす ぐに減衰することがわかる.しかも,高エネルギー 側での減衰が顕著である.一方,スパイク状の発 光スペクトルは、約2 ns 以降ではっきりと識別でき るようになり、相対的に遅い発光寿命を持っている ことがわかる.これらの結果は、ブロードな発光が 非局在準位,スパイク状の発光が局在準位からの 発光に対応しているという,図 K7 の解釈で説明 することができる. すなわち, 励起直後は, エネル ギーの高い非局在準位にもキャリアが存在し、そ れによるブロードな発光が支配的となる.この非局 在成分が減衰した後に、局在準位からのスパイキ ーな発光が顕在化するのは,局在準位に捕獲さ れたキャリアは、空間的な閉じ込めにより、その輻 射再結合確率が低く,寿命が長くなっているため である. 寿命の定量は, 図 K8(b)で行った. 速い減 衰成分τ」は数百 ps であり,これが,非局在準位か らの発光に対応する.一方,数 ns の遅い減衰成 分では、局在準位からの発光に対応すると考えて いる.このことは、ブロードな発光のみが観察され る波長486 nm においては,スパイク状の発光の位 置, 478, 500, 520, 533 nm に比べて, 速い発光成 分が顕著である(つまり, A1/A2 が大きい)事から も裏付けられる.

図 K8 は極低温で測定をしているため、その減 衰寿命は、輻射再結合寿命に一致すると考えて 差し支えない.先述したように、輻射再結合寿命 は、分極誘起電界の影響を強く受けるため、図 K8 の観察結果を,従来の(0001)面上 InGaN/GaN 量子井戸におけるそれと比較してみる. 緑色領域 で発光する(0001)面 InGaN/GaN 量子井戸における典型的な輻射再結合寿命は 100 ns 前後であ るから,単一ナノコラム量子井戸で観察された輻射再結合寿命は,速い成分も遅い成分も約 2 桁 速くなっていることがわかる. 通常の量子井戸において輻射再結合確率を低下させる要因となって いる分極誘起電界による量子閉じ込めシュタルク効果が,ナノコラムにおいてはほとんど発生して いないことを示唆する有力な実験的証拠が得られた. このような現象が見られるメカニズムについ ては, (b)-1 節で検討する.

# (a)-4 単一ナノコラムにおける励起子分子発光<sup>28, 144, 290)</sup>

ここでも MMA 上に散布した単一ナノコラム InGaN 量子井戸を用いる. 励起光源は, 波長 375 nm にセットした Ti:サファイアレーザの 2 倍高調波であり, InGaN 量子井戸層を選択的に励起した.

図K9に10Kにおける発光のスペクトルとその発光強度の励起密度依存性を示した.発光スペクトルには、3本の輝線、XX<sub>1</sub>、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>が観察された.前節までに報告した通り、ナノ局在発光中心が単一のナノコラム中に複数存在していることを示している.各々のラインに関して、励起光強度を120 W/cm<sup>2</sup>から500 KW/cm<sup>2</sup> に変化させたところ、XX<sub>1</sub>は200 W/cm<sup>2</sup>以上で検出できるようになり、それ以上の励起では、励起光強度の自乗に比例して発光強度が強くなった.一方、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> は比例して大きくなった.したがって、XX<sub>1</sub> は励起子分子発光、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> は励起子発光であると考えることができる.

励起子分子発光の束縛エネルギーを知るためには、同じナノ局在中心から発光している励起 子発光を同定する必要がある。そのために、励起子分子発光と励起子発光の偏光方向が一致し なければならないという特性を利用した(この特性は、励起子分子発光の再結合過程 XX → X+hv<sub>XX</sub>に起因する)。図 K10 に、図 K9 で観察された3本のピークに関する偏光顕微 PL の結果を 示す。偏光子の回転角 θ に従ってスペクトルが変化し、その強度を極座標上にプロットすると、偏 光方向が XX<sub>1</sub>とX<sub>1</sub>では一致し、X<sub>2</sub>のそれとは異なっていることがわかった。つまり、XX<sub>1</sub>とX<sub>1</sub>は同じ ナノ局在中心を起源としていると考えられる。この実験結果より、励起子分子束縛エネルギーはこ れらの発光のピークエネルギー差から求めることが可能となり、具体的には13meV と見積もられた。 特筆すべきことは、励起子分子束縛エネルギーが正の値となっている、すなわち、励起子分子が 励起子に比べて安定であることである。これまで、(0001)面上の窒化物半導体量子井戸における 励起子分子束縛エネルギーは、分極誘起電界のため負の値が報告されていた。これに対して、ナ ノコラム効果によって分極誘起電界が低減された結果、この材料系では初めて正の励起子分子束 縛エネルギーを観測・定量することに成功した。この正の励起子分子束縛エネルギーは、励起子 分子を利用したデバイスなどへの応用に向けて非常に有用である。



図 K9:単一ナノコラム InGaN 量子井 戸の顕微 PL 特性.スペクトルと励起 光強度依存性を示した.



図 K10: 単一ナノコラム InGaN 量子井戸の顕 微偏光 PL 特性. a) 偏光 PL スペクトルの偏 光子角度 θ 依存性と b) PL 強度の極座標上 へのプロット.

#### (a)-5 規則配列ナノコラムにおける励起子発光

以上の結果はすべて自己形成的に、不規則に配列したナノコラムに関する結果であるが、工業的な応用を考えたとき、規則配列したナノコラムが、特性の均一性、再現性の観点から望ましいと考えられ、岸野グループによりその実現が図られてきた.結晶成長の詳細は、該当部を参照するとして、ここでは、そのような規則配列した自己形成型ナノコラムの光物性を評価した結果を述べる.

測定試料は、サファイア(0001)基板上の GaN テンプレートに、Ti マスクを用いて選択成長したナ ノコラムであり、コラム構造は、約 1.5 μm の GaN 上の InGaN 活性層(設計: 3 nm)および GaN キャッ プ層である.また、Ti マスクは、開口径 100、150、200、250 nm、開口間隔は 3 μmと異なるパターン を用意した.Ti:サファイアレーザ(400 nm)で選択励起した顕微分光法により、低温(10 K)における フォトルミネッセンス(PL)を評価した.

図 K11 に(a)選択成長ナノコラムから得られた PL スペクトルと、(b)面内偏光特性を示した. 顕微 分光の分解能(<1 µm)はコラムの間隔(3 µm)より小さいため、単一のナノコラムが観察されている. 単一のナノコラムから複数のピークが観察されている点は、従来のランダム配置自己形成型ナノコ ラムと同様である. P1 から P4 でラベリングしたピークついて、偏光特性を評価した結果が同図(b)に 示してある. P1 から P3 については、偏光度[=(*I*<sub>max</sub>-*I*<sub>min</sub>)/(*I*<sub>max</sub>+*I*<sub>min</sub>)]は、それぞれ 98%、91%、84%であ り、P4 の偏光度は 36%であった.自己形成ナノコラムにおける発光の偏光度は、図 K10 より定量す ると 30-60%程度であったことから、選択成長ナノコラムからの発光には、より強く直線偏光している 成分が混在することが示唆された.この原因の同定は今後の課題であるが、選択成長による形状 の均一化に伴い、例えば、コラム先端のファセット構造が偏光特性に強く反映されるようになった可 能性があると考えている.

# (b) ナノ結晶効果<sup>41,43,144,232)</sup>

#### (b)-1 側面における歪緩和に関して

光物性評価により、ナノコラムでは、分極誘起 電界が低減されていることを示してきた.この節 では、この原因を考察する. そもそも、分極誘起 電界の起源は、結晶にかかる歪である.したがっ て、ナノコラムにおける電界低減の原因を調べる ことは, 歪分布を調べ, 歪が低減していることを 証明することに他ならない. そこで, 有限要素法 により歪分布のシミュレーションを行った. 一例と して, 膜厚 3 nm の In<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>N 単一量子井戸を 内包する直径 200 nm のナノコラムに関する計算 結果を図K12に示した.コラム中心では,格子不 おり、これは通常の 2 次元系の量子井戸と同様 である.一方で、コラム側面では、側面が自由空 間に開放されていることを反映して, 歪が-1.5 か ら-1.0%程度にまで低減していることがわかる.し



図 K12:有限要素法による歪の計算例. 直 径 200 nm のナノコラム中に存在する 3nm のIn<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>N単一量子井戸を仮定し,ここ では, 面内の歪*ε*<sub>xx</sub>を示した<sup>41)</sup>.

たがって、コラム側面では、分極誘起電界も小さくなっていると考えられ、光物性評価とも首尾一貫 した結果となっている<sup>41)</sup>.



図 K13: In 組成 25%, ナノピラー 直径 50, 100, 200, 500 nm 時の歪 みの変化



図 K14: ナノピラー直径 200 nm, In 組成 5, 10, 15, 20, 25, 30%時の歪 みの変化

さらに, 膜厚 3 nm の InGaN 量子井戸構造を内包する, いくつかの GaN ナノコラム構造について 計算を行った. 図 K13 は, In 組成を 25%の場合について, コラム直径を 50, 100, 200, 500 nm とし たときの面内歪のコラム径依存性を示している. 径に関らず, 歪が, 中央よりもコラムの端(side wall) において小さいことは, 図 K12 の計算結果とも合致しており, ナノコラムの構造効果を示している. また, この計算で明らかとなったのは, コラム径が, 200 nm 以下の場合, 径が小さくなるに従い, 歪 みの開放が進むが, 逆に 200 nm 以上の径では, 歪はほとんど変化がないことである. ナノコラム効 果をより顕著に発現させるためには, 200 nm 以下のコラム径が望ましいことが示唆される.

また図 K14 は、コラム径を 200 nm に固定し、In 組成を変えたときの面内歪みの変化を示した. ナノコラム構造の中央部分の歪(青線+○)は、平坦な量子井戸(点線)と同じ程度であるのに対して、 コラム端での歪(赤線+○)は、その約 25%となっていることが読み取れる(黒線+○, 右軸). また、こ の割合は、In 組成にほとんど依存せず、歪みの開放割合が、ナノコラムそのものの構造によって決 定されていることが示唆された.

このような計算も併用することにより、コラム構造の設計や物性予測をより精緻に行うことができると期待される.

#### (b)-2 加エナノコラムの形成と光物性

以上は、ボトムアップ型の自己形成型ナノコラム に関してその物性を調べてきたが、「ナノコラム効 果」はトップダウン型でも普遍的に観察されるべき特 性である.そこで、加工により作製したナノピラーに 関して、顕微(時間分解)発光測定を行い、加工前後 による光学特性の変化について評価を行った.測定 試料は、サファイア(0001)基板上に有機金属気相成 長法で作製した平坦な InGaN/GaN 量子井戸構造を 反応性ガス支援イオンビームエッチング(CAIBE)法 でナノピラー構造に加工したものである.直径は 500 nm、1 µm、および2 µmとした.図K15 に加工後の SEM 像を示した.



図 K15:加工により作製した直径 500 nm のナノピラーの SEM 像<sup>41)</sup>

図 K16 には、4.2 K で測定した PL スペクトルを示した. 加工前(planar)と比較して、加工が進





み, ピラー径が小さくなるに従って, 発光スペクト ルがブルーシフトしていることがわかる. これは,

ピラー側面における歪の緩和を反映している. 図 K17 には,加工ナノピラー構造の蛍光顕微鏡写 真を示した. 低温では加工部とそれを取り囲む非加工部での発光強度に違いはなく,非輻射再結 合が無視できる,内部量子効率ほぼ 100%の状態を示している. 一方,非輻射再結合が顕著にな る室温では,加工部での発光強度が未加工部に比べて際立って強くなっている. これは,ピラー 構造の形成による輻射再結合寿命の高速化が要因である. 実際,輻射再結合寿命の高速化は実 験的にも確認されている. ボトムアップ型においても"ナノコラム効果"が検証されたと考えられる <sup>41)</sup>.

発光パターンをより詳細に調べた. 図 K18 は, 直径 2 μmのピラー構造からの発光の様子を, 顕微鏡で観察した結果である. 同図(a), (b)の比較から, 室温(a)では特徴的なドーナツ状の発光像 が観察されるが, 低温(b)では観察されないことがわかった. この傾向は, 共焦点顕微鏡で観察した



図 K18:直径 2 µmのナノピラ ーの(a), (b)蛍光顕微鏡像, (c), (d)発光強度分布, (e), (f)発光波長分布を示す.蛍 光顕微鏡のスケールは 2 µ m, 共焦点顕微鏡[(c)-(f)]の それは 500 nm である.縦に 並べた(a), (c), (e)は室温で のデータ, (b), (d), (f)は, 4.2 K での測定結果.共焦点顕 微鏡像[(c)-(f)]に示したドット は, ピラーの位置を示す<sup>41</sup>. (c), (d)でも確認された. 一方で発光波長の分布としては, (e)および(f)に示したように, 観察温度に 関係なく, ピラー側面で短波長発光していた. この発光波長分布は, すでに述べた, 歪みの側面 での開放によるものである. このことも踏まえ, (a)から(d)に観察されている発光強度分布の温度依 存性は, ピラー側面付近で歪みの緩和が進行し, そこでの輻射再結合確率が増加したことに起因 していると解釈することができる. すなわち, 低温では, 非輻射再結合過程が無視できるため, 輻 射再結合確率の増強が発光強度の増強に直結しないが, 室温では非輻射再結合過程が顕在化 するため, それとの競合の結果として, 高い輻射再結合確率を持つ側面付近で大きな発光強度が 観察される, との解釈である<sup>41</sup>. 以上のように, ナノコラム効果がより定量的に評価できるようになっ た.

## (c) まとめ

ボトムアップおよびトップダウン型のナノコラム(ピラー)構造における光物性評価を行った.その 結果、コラム側面での歪みの開放がコラムの光物性を強く支配していることが明らかとなった.その 結果として、高い輻射再結合確率、安定な励起子分子、歪分布を反映した特徴的な発光パターン が観察された.光物性の支配的な要因が解明されたことにより、これを人為的に制御しながら、より 高い光機能を付加していくことが、今後の研究の課題となると考えられる.

## (d) 成果の位置づけ、類似研究との比較

本研究の開始前には、ナノコラム構造に特有の、側面における歪の開放とそれに起因した輻射 再結合確率の増強を関連付けた研究はなかった.さらに、歪開放による分極誘起電界低減の波及 効果として、正の励起子分子束縛エネルギーが観測された.これは、ナノコラムだけではなく、 InGaN 系ではじめの発見であり、ナノコラム構造を用いることの有用性を顕著に示したものであると 考えている.本研究の遂行によってはじめてナノコラムの光物性を支配している要因が特定され、 さらに、それに基づく光物性の理解が大きく進展したということができる.

## (2) 研究成果の今後期待される効果

本研究によりナノコラムの物性が明らかとなり、従来の平坦な量子井戸構造に比べての優位性も 明白となった. 今後の展開としては、まず個々のコラムに関しては、コラム物性をいかに人為的に 制御するのか、ということを指摘することができる. たとえば、コラム形状の制御に基づく歪制御がで きるようになれば、物性制御に繋がるものと期待される. 一方で、コラムの集団効果としては、不規 則配置のコラムについては光の局在を利用したランダムレーザへの展開が期待される. さらに、最 近は、コラムの位置制御など結晶成長上の問題が解決されつつあることから、規則配置コラムによ って形成した、二次元的な回折格子(フォトニック結晶)による光の出射制御などが可能であろう.

# §5 成果発表等

- (1) 原著論文発表 (国内(和文)誌0件、国際(欧文)誌48件)
- 1. H. Uchida, S. Matsui, P. Holmstrom, A. Kikuchi and K. Kishino, "Room temperature operation of 1.55μm wavelength-range GaN/AlN quantum well intersubband photodetectors", IEICE Electronics Express, 2 (2005) 566-571.
- 2. Y. Asada, K. Slevin, and T. Ohtsuki, "Possible Anderson transition below two dimensions in disordered systems of noninteracting electrons", Phys. Rev. B. (2006) 73, 041102(R).
- 3. T. Kouno, A. 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) 243 (2006) 1481-1485.
- 4. 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. 4 (2006) 227-232.
- 5. 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. 89 (2006) 041907.1-041907.3.
- 6. A. Kikuchi, M. Tada, K. Miwa and K. Kishino, "Growth and characterization of InGaN/GaN nanocolumn LED," Proceedings of SPIE 6129 (2006) 612905.1-612905.8.
- Y. Kawakami, S. Suzuki, A. Kaneta, M. Funato, A. Kikuchi and K. Kishino, "Origin of high oscillator strength in green-emitting InGaN/GaN nancolumns", Appl. Phys. Lett. vol. 89 (2006) 163124.1-163124.3.
- 8. K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "InGaN/GaN nanocolumn LEDs emitting from blue to red", Proceedings of SPIE 6473 (2007) 64730T.1- 64730T.12. (Invited Paper)
- 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", Journal of Crystal Growth, 300 (2007) pp.259-262.
- 10. T. Sekine, S. Suzuki, M. Tada, T. Nakazato, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Raman Scattering in GaN/AlN Multiple Quantum Disk Nanocolumns", AIP Conference Proceeding, 28th International Conference on the Physics of Semiconductors, Vol.893 (2007) pp.867-868.
- 11. S. Ishizawa, H. Sekiguchi, A. Kikuchi and K. Kishino, "Selective growth of GaN nanocolumns by Al thin layer on substrate", physica stat solidi (b) 244, 6 (2007) pp.1815-1819.
- 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, Vol.300, (2007) pp.160-163.
- K. Kishino, J. Kamimura, A. Kikuchi and P. Holmström "InN/InAIN Multiple Quantum Well Nanocolumns Grown on (111)Si substrates by RF-Plasma Assisted Molecular Beam Epitaxy", State-of-the-Art Program on Composed Semiconductors 46 (SOTAPOCS46) -and- Processes at the Semiconductor/Solution Interface 2, The Electrochemical Society, ecstransactions, 6, 2 (2007) pp.205-210.
- S. Ishizawa, K. Kishino and A. Kikuchi, "Selective-Area Growth GaN Nanocolumns on Si (111) Substrates Using Nitrided Al Nanopatterns by RF-Plasma-Assisted Molecular-Beam Epitaxy", Applied physics Express, 1, 1 (2008) 015006.
- H. Sekiguchi, K. Kishino and A. Kikuchi, "GaN/AlGaN nanocolumn ultraviolet light-emitting diodes grown on n-(111) Si by RF-plasma-assisted molecular beam epitaxy", Electronics Letters 44, No.2 (2008) 151-152.
- 16. K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, N. Suzuki, H. Sekiguchi, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi, K. Kishino, "Photoluminescence of exciton and biexciton in GaN nanocolumns", Journal of

Luminescence 128, No.5 (2008) 969-971.

- K.Tanaka, K. Ikuno, Y. Kasai, K. Fukunaga, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi, K. Kishino, "Ultrafast intersubband relaxation dynamics at 1.55μm in GaN/AlN multiple quantum disk nanocolumns", Journal of Luminescence 128, No.5 (2008) 1084-1086.
- S. Ishizawa, A. Kikuchi and K. Kishino, "Selective growth of GaN nanocolumns with pre-deposited Al patterns by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy", physica status solidi (c), 5 (2008) 1879-1882.
- H. Sekiguchi, K. Kato, A. Kikuchi and K. Kishino, "Effect of Be-doping on InGaN/GaN nanocolumn light-emitting diode structures by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", physica status solidi (c) 5, No.9 (2008) 3069-3072.
- K. Kishino, T. Hoshino, S. Ishizawa and A. Kikuchi, "Selective-area growth of GaN nanocolumns on titanium-mask-patterned silicon (111) substrates by RF-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", Electronics Lett. 44, No.13 (2008) 819-821.
- V. Darakchieva, M.-Y. Xie, F. Tasnádi, I.A. Abrikosov, L. Hultman, B. Monemar, J. Kamimura and K. Kishino, "Lattice parameters, deviations from Vegard's rule, and E<sub>2</sub> phonons in InAlN", Applied Physics Letters 93 (2008) 261908.
- 22. H. Sekiguchi, K. Kato, J. Tanaka, A. Kikuchi and K. Kishino, "Ultraviolet GaN-based nanocolumn light-emitting diodes grown on n-(111) Si substrates by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy", physica status solidi (a) 205, No.5 (2008) 1067-1069.
- 23. H. Sekiguchi, K. Kishino and A. Kikuchi, "Ti-mask selective-area growth of GaN by RF-plasma-assisted molecular-beam epitaxy for fabricating regularly arranged InGaN/GaN nanocolumns", Appl. Phys. Express 1, (2008) 124002.
- T. Sekine, K. Muramoto, S. Suzuki, H. Kuroe, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino, Raman Scattering from Plasmon in Si-doped GaN nanocolumns" Semiconductors and Related Low Dimensional Structures, Proceedings of ICORS 2008, (in Proc. of the XXIst Int. Conf. on Raman Spectroscopy 2008) pp.603-604.
- 25. K. Kato, K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Overgrowth of GaN on Be-doped coalesced GaN nanocolumn layer by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy-Formation of high-quality GaN microcolumns", J. Cryst. Growth 311 (2009) pp. 2956-2961.
- 26. K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Improved Ti-mask selective-area growth (SAG) by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy demonstrating extremely uniform GaN nanocolumn arrays", Journal of Crystal Growth, 311 (2009) 2063-2068.
- K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, N. Suzuki, H. Kunugita, K. Ema, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Exciton and biexciton properties in GaN nanocolumn: dependence on morphology and diameter", physica status solidi (c) 6, No.1 (2009) 141-143.
- R. Bardoux, A. Kaneta, M. Funato, Y. Kawakami, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Positive binding energy of a biexciton confined in a localization center formed in a single In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN quantum disk", Phys. Rev. B, 79, 15 (2009) 155307.1-155307.6.
- 29. T. Kouno, K. Kishino, H. Sekiguchi, and A. Kikuchi, "Ti-mask selective-area growth of GaN nanorings by RF-plasma molecular beam epitaxy", phys. stat. sol. (c) 6 (2009) pp. S607-S610.
- K. Fukunaga, M. Hashimoto, H. Kunugita, J. Kamimura, A. Kikuchi, K. Kishino and K. Ema, "Energy- and desity-dependent dynamics of photoexcited carriers in InN films", Appl. Phys. Lett. 95 (2009) 232114.
- T. Kouno, K. Kishino, K. Yamano and A. Kikuchi, "Two-dimensional light confinement in periodic InGaN/GaN nanocolumn arrays and optically pumped blue stimulated emission", Optics Express 17 (2009) pp. 20440-20447.
- 32. K. Slevin, T. Ohtsuki, "Critical exponent for the quantum Hall transition", Phys. Rev. B80 (2009) 041304 (R) 1-4.
- 33. K. Kobayashi, T. Ohtsuki, K. Slevin, "Point-Contact Conductance in Asymmetric Chalker-Coddington Network Model", J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 084708 1-4.

- K. Kobayashi, K. Hirose, H. Obuse, T. Ohtsuki, K. Slevin, "Transport properties in network models with perfectly conducting channels", J. Phys.: Conference Series 150 (2009) 022041 1-4.
- K. Fukunaga, K. Kouyama, M. Hashimoto, J. Kamimura, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi and K. Kishino, "Evaluation of bandgap energy and carrier density of InN nanocolumns," J. Lumi. 129 (2009) pp. 1735-1738.
- M. Hashimoto, K. Fukunaga, K. Kouyama, J. Kamimura, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi and K. Kishino, "Photo-excited carrier relaxation dynamics in InN films," J. Phys.: Conf. Ser. 193 (2009) 012053.
- 37. M. Hashimoto, J. Kamimura, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi and K. Kishino, "Optical properties of InxAl1-xN film and nanocolumns," J. Phys.: Conf. Ser. 193 (2009) 012054.
- Y. Inose, T. Ohtsuki, H. Kunugita, K. Ema, M. Sakai, A. Kikuchi and K. Kishino, "Anderson localization of light in a random configuration of nanocolumns," J. Phys.: Conf. Ser. 193 (2009) 012055.
- T. Soya, Y. Inose, H. Kunugita, K. Ema, K. Yamano, A. Kikuchi and K. Kishino, "Second harmonic generation from photonic structured GaN nanowalls," J. Phys.: Conf. Ser. 193 (2009) 012056.
- 40. T. Kouno, K. Kishino, and A. Kikuchi, "Whispering gallery mode in periodic InGaN-based hexagonal nanoring arrays grown by rf-MBE using Ti-mask selective-area growth", phys. stat. sol. (a) 207 (2010) pp. 37-40.
- 41. Y. Kawakami, A. Kaneta, L. Su, Y. Zhu, K. Okamoto, M. Funato, A. Kikuchi and K. Kishino, "Optical properties of InGaN/GaN nanopillars fabricated by postgrowth chemically assisted ion beam etching", J. Appl. Phys. 107 (2010) 023522.1-023522.7.
- 42. T. Kouno, K. Kishino, M. Sakai, Y. Inose, A. Kikuchi and K. Ema, "Stimulated emission on two-dimensional distributed feedback scheme in triangular GaN nanocolumn arrays", Electron. Lett. 46 (2010) 644-645.
- 43. V. Ramesh, A. Kikuchi, K. Kishino, M. Funato, and Y. Kawakami, "Strain relaxation effect by nanotexturing InGaN/GaN multiple quantum well", J. Appl. Phys. 107 (2010) 114303.1-114303.3.
- 44. H. Sekiguchi, K. Kishino, and A. Kikuchi, "Emission color control from blue to red with nanocolumn diameter of InGaN/GaN nanocolumn arrays grown on same substrate", Appl. Phys. Lett. 96 (2010) 231104.
- 45. H. Sekiguchi, K. Kishino and A. Kikuchi, "Formation of InGaN quantum dots in regularly arranged GaN nanocolumns grown by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy", Phys. Stat. Sol. C, 7 (2010) 2374-2377.
- 46. J. Kamimura, K. Kishino and A. Kikuchi, "Dislocation reduction via selective-area growth of InN accompanied by lateral growth by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", Appl. Phys. Lett. 97, (2010) 141913.1-141913-3.
- 47. M. Sakai, Y. Inose, K. Ema, T. Ohtsuki, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Random laser action in GaN nanocolumns", Appl. Phys. Lett. 97, (2010) 151109.1-151109.3.
- 48. T. Kouno, K. Kishino, T. Suzuki and M. Sakai, "Lasing actions in GaN tiny hexagonal nanoring resonators", IEEE Photonics Journal, accepted.
- (2) その他の著作物(総説、書籍など)
- 49. 岸野克巳、菊池昭彦、"ナノコラムLED"、越路恵一編(化合物半導体の最新技術 大全集 <第3章第9節> 分担執筆)(2007/4) 技術情報協会 pp.265-281.
- K. Kishino, "GaN Nanocolumn Light Emitting Devices", No.5.1.2: Chapter 5, pp. 287-296, of "Wide Bandgap Semiconductors" edited by K. Takahashi, A. Yoshikawa, and A. Saudhu, (2007) Springer.
- 51. 岸野克巳、 "緑色半導体レーザー実現に向けて"、植田憲一、西岡 一監修 (RGB3原色・白 色光レーザーの開発 <第5章第1節> 分担執筆)(2007/7) サイエンス&テクノロジー株式

会社 pp.229-244.

- 52. 神村淳平、岸野克巳、菊池昭彦、"Mo マスク選択成長法を用いた高品質規則配列 InN 結晶の MBE 成長"、電子情報通信学会、ED2009-131、CPM2009-105、LQE2009-110 (2009).
- 53. 岸野克巳、"ディスプレイ技術と可視光レーザー"、応用物理、Vol.78、No.11 (2009) pp.1029-1034.
- 54. 酒井優, 猪瀬裕太, 大槻東巳, 江馬一弘, 岸野克巳, 「光のアンダーソン局在の直接観察」, 光学 39 巻, 9 月号, 2010, pp.437-444.
- (3) 国際学会発表及び主要な国内学会発表
- ① 招待講演 (国内会議 16 件、国際会議 34件)

国際会議

- 55. K. Kishino and A. Kikuchi, "High efficient blue to red emission of InGaN/GaN nano-disks integrated into GaN nanocolumns", The 18th Annual Meeting of the IEEE Lasers & Electro-Optics Society (LEOS 2005), WT4, Sydney, Australia, October 23-27, 2005.
- K. Kishino and A. Kikuchi, "Self-Assembling of Blue to Red Emitting InGaN/GaN Quantum Nanocolumns by rf-Plasma-Assited MBE", MBE Taiwan 2006 and High-k Materials Workshop, Jhongli, Taiwan, R. O. C., June 1-3, 2006.
- 57. K. Kishino and A. Kikuchi, "Self-assembled (Al,Ga)InN Nanocolumn Technology for Ultraviolet to Infrared Nano-Emitters", International Conference on NANO-Structures Self-Assembling, IK2, Aix-en-Provence, France, July 2-6, 2006.
- K. Kishino and A. Kikuchi and H. Sekiguchi, "Blue to red InGaN/GaN nanocolumn LEDs grown by RF-plasma assistedmolecular beam epitaxy," Asia-Pacific Optical Communications (APOC2006), 6355-29 (APOC05: Advanced LED for Solid-State Lighting), Gwangju, Korea, September 3-7, 2006.
- 59. K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "GaN nanocolumn LEDs for green emission", International Symposium on Contemporary Photonics Technology (CPT2007), K-3, Kanda, Tokyo, Japan, January 10-12, 2007.
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "InGaN/GaN nanocolumn LEDs emitting from blue to red", SPIE Photonics West, OPTO 2007, Optoelectronics 2007 Integrated Optoelectronic Devices, Session 7 LEDs II, 6473-22, San Jose, California, USA, January 20-25, 2007.
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "InGaN Nanocolumn based Green-Red Light Emitting Devices", 26th Electronic Materials Symposium (EMS-26), pp.329-332, Shiga, Japan, July 4-6, 2007.
- P. Holmström, , X.Y. Liu, G. Kobayashi, T. Aggerstam, A. Kikuchi, K. Kishino, S. Lourdudoss, T.G. Andersson, and L. Thylén, "Intersubband photonic devices by III-V nitrides", SPIE Asia-Pacific Optical Communications (APOC) 2008, 6782-59, Wuhan, China, November 1-5, 2008.
- 63. K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "Champaigne-glass type (Al)InGaN-based nanocolumn LEDs emitting from ultraviolet to red", 2008 SPIE Photonics West, Light-Emitting Diodes: Research, Manufacturing, and Applications XII, 6920-10, San Jose, CA, USA, January 19-24, 2008.
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "InGaN/AlGaN nanocolumn LEDs and related nanocolumn growth technology", 2008 RCIQE International Seminar on "Advanced Semiconductor Materials and Devices", Hokkaido, Japan, March 3-4, 2008.
- 65. K. Kishino, A. Kikuchi, S. Ishizawa, H. Sekiguchi and T. Hoshino, "Selective area growth of GaN nanocolumns on Si (111) and GaN (0001) surfaces with Al and Ti nanopatterns by rf-plasma assisted MBE", 7<sup>th</sup> International Workshop on Epitaxial Semiconductors on Patterned

Substrates and Novel Index Surfaces' (ESPS-NIS), Session 6, Marseille, France, April 21-24, 2008.

- 66. A. Kikuchi, K. Kishino and T. Hoshino, "Ti-mask selective area growth of GaN nanowalls by rf-plasma assisted molecular beam epitaxy", International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices (ISSLED-2008), O1, Phoenix, Arizona, USA, April 27-May 3, 2008.
- 67. K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S, Ishizawa, "Position control of GaN nanocolumns by selective area growth on patterned substrates", MBE Taiwan 2008, 10:10~10:40, Hsinchu, Taiwan, June 6-7, 2008.
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "InGaAlN-based nanocolumns and related optical nanodevices", Japan Brazil Memorial Symposium on Science & Technology, Sao Paulo, Session A: Advanced Semiconductor Photonic and Electronic Devices and Materials, A-6, Brazil, June 23-25, 2008.
- A. Kikuchi, K. Kishino and T. Hoshino, "Growth and characterization of GaN based nanowalls", Second International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-2), I-Tu-4, Izu, Japan, July 6-9, 2008.
- K. Kishino, "GaN-based nanocolumn emitters and related technology", 2008 International Nano-Optoelectronics Workshop, W3, Tokyo, Lake Saiko, and Shonan Village, Japan, Aug. 2-15, 2008.
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "Nanocolumn GaN LEDs covering full visible colors and related growth technology", Asia-Pacific Optical Communications (SPIE APOC2008), 7135-107, Hangzhou, China, October 26-30, 2008.
- 72. K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "InGaN-based nanocolumn arrays grown by rf-assisted molecular beam epitaxy", SPIE Photonics West, San Jose, CA, U.S.A., January 24-29, 2009.
- K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Regularly Arranged InGaN-based Nanocolumns and Emission Color Control over Full Visible Range", ISPlasma2009, Nagoya, Japan, March 8-11, 2009.
- 74. K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "InGaN-Based Nanocolumn Arrays and their Controlled Blue to Red Emissions", The Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors 2009, Zhangjiajie, China, May 24-28, 2009.
- 75. K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Three primary color emission from InGaN/GaN quantum well nanocolumn arrays prepared on the same GaN template by rf-MBE selective area growth technique", E-MRS 2009, Strasbourg, France, June 8-12, 2009.
- 76. K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "Nanocolumn Light Emitters from Ultraviolet to Red and InGaN/GaN Nanocolumn Arrays", Integrated Photonics and Nanophotonics Research and Applications (IPNRA), Honolulu, Hawaii, USA, July 12-17, 2009.
- 77. K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Growth and applications of GaN-based nanocolumns emitting from blue to red", The 14<sup>th</sup> International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS-14), Kobe, Japan, July 19-24, 2009.
- 78. K. Kishino, H. Sekiguchi, T. Kouno and A. Kikuchi, "Growth of regularly arranged InGaN/GaN multiple quantum well nanocolumns and visible light emission characteristics", 17<sup>th</sup> American Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ACCGE-17), Lake Geneva, Wisconsin, USA, August 9-14, 2009.
- A. Kikuchi, H. Sekiguchi and K. Kishino, "InGaN/GaN nanocolumn LEDs and selective area growth of GaN nano-crystals by rf-plasma assisted molecular beam epitaxy", European Materials Research Society Fall Meeting (E-MRS 2009), I4, Warsaw, Poland, September 14-18, 2009.
- K. Kishino, H. Sekiguchi, A. Kikuchi and T. Kouno, "Nitride-based nanocolumns and their application to light emitting", 11th International Conference on Advanced Materials (ICAM2009), PM1, Rio de Janeiro, Brazil, September 20-25, 2009.
- 81. K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi, T. Kouno, J. Kamimura and M. Sakai, "Recent progress

in GaN-based nanocolumns and related technology", The 8<sup>th</sup> International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8), Jeju, Korea, October 18-23, 2009.

- K. Kishino, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, T. Kouno and J. Kamimura, "Blue to red emission InGaN-based nanocolumns and related technology", 4<sup>th</sup> Nanowire Growth Workshop 2009 (NWG 2009), Paris, France, October 26-27, 2009.
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi, and T. Kouno, "InGaN-based nanocolumn technology for blue to red emission", The 6<sup>th</sup> International Conference on Advanced Materials and Devices (ICAMD 2009), Jeju, Korea, December 9-11, 2009.
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi, and T. Kouno, "Nitride Nanocolumn LEDs and Related Technology", The Second International Conference on White LEDs and Solid Lighting (WHITE LEDs 2009), Taipei, Taiwan, December 13-16, 2009.
- 85. T. Ohtsuki, "Quantum Network Model and Its Application to Spin Transport", WCU workshop on Quantum Phases of Disordered and Correlated Systems, Pohang, Korea, August 1-5, 2009.
- 86. K. Kishino, K. Yamano, T. Kouno, S. Ishizawa, J. Kamimura and A. Kikuchi, "Metal-Mask Selective Area Growth of InGaN-Based Nanostructures and Related Optical Nanodevices", The 16<sup>th</sup> International Conference on Crystal Growth (ICCG-16)/ The 14<sup>th</sup> International Conference on Vapor Growth and Epitaxy (ICVGE-14), Beijing, China, August 8-13, 2010.
- K. Kishino, K. Yamano, S. Ishizawa, J. Kamimura, T. Kouno, A. Kikuchi and H. Sekiguchi, "Fabrication and Optical Properties of InGaN-based Nanocolumn Arrays", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2010), Tampa, Florida, USA, September 19-24, 2010.
- 88. S. Ishizawa, K. Kishino, R. Araki, S. Sugimoto, K. Yamano and A. Kikuchi, "Optical Pumped Green-range Stimulated Emission from InGaN/GaN MQW Nanocolumn Regular Arrays", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2010), Tampa, Florida, USA, September 19-24, 2010.

国内会議

- 89. 菊池昭彦、岸野克巳、"InGaN 系ナノコラム結晶の開拓とナノコラム発光デバイス"、日本学術 振興会第 162 委員会研究会「量子構造制御による高効率・新波長領域光デバイスの開発」、 弘済会館、東京、2005 年 10 月.
- 90. 岸野克巳、菊池昭彦、"ナノコラム GaN を用いた発光デバイス"、第67回応用物理学会 学術講演会、31p-E-7, 滋賀, 2006 年 9-10 月.
- 91. 岸野克巳、"窒化物半導体光デバイスの進展"、電子情報通信学会、総合大会シンポジウム、CS-4-1、名城大、名古屋、2007年3月.
- 92. 岸野克巳、菊池昭彦、関口寛人、石沢峻介、"InGaN(可視長波長域発光デバイス)ーナ ノコラム InGaN と緑から赤発光ー"、日本学術振興会、結晶加工と評価技術第145 委員 会、第110 回研究会、主婦会館プラザエフ、東京、2007 年 6 月 4 日.
- 93. 岸野克巳、菊池昭彦、野村一郎、"ワイドギャップ半導体光デバイスの動向と新展開 緑色半導体レーザを目指して-"、第三回量子ナノ材料セミナー、阿南工業高等専門学校、徳島、2007 年 6 月 13-14 日.
- 94. 江馬一弘, "半導体ナノ構造の光物性", 第1回フロンティア研究センター シンポジウ ム「ナノテクノロジーと化合物半導体デバイスの最前線」, 徳島大学大学院ソシオテク ノサイエンス研究部フロンティア研究センター, 2007 年 12 月 21 日.
- 95. 岸野克巳、"緑色半導体レーザー実現に向けて、現状と展望"、日本学術振興会 ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第162委員会、特別講演会(第56回研究会)、pp.15-24主婦会館 プラザエフ、東京、2008年1月.
- 96. 岸野克巳、"ナノコラムによる三原色 LED への展開"、(財)科学技術交流財団、第3回窒 化物半導体応用研究会、名城大学、2008 年 10 月 17 日.
- 97. 岸野克巳、"緑色半導体レーザー実現に向けて現状と展望"、光産業技術振興協会、第 307 回マンスリーセミナー、2008 年 12 月 16 日.

- 98. 岸野克巳、"緑色半導体レーザー研究の進展"、第3回レーザーディスプレイ技術研究会、東京、2009年2月10日.
- 99. 菊池昭彦、星野隼之、岸野克巳、"Ti マスク選択成長法を用いた GaN ナノウォール結晶の MBE成長"、日本結晶成長学会ナノエピ分科会、第1回窒化物半導体結晶成長講演会「窒化 物半導体結晶成長の未来を展望する」、Inv-07-01、東京、2009 年 5 月.
- 100. 岸野克巳、"窒化物半導体ナノコラムの MBE 成長と発光素子"、光電相互変換第 125 委員会、「本委員会第 206 回研究会」、東京、2009 年 10 月 14 日.
- 101. 岸野克巳、"窒化物ナノ結晶の新展開-緑色半導体レーザー実現に向けてー"、財団法人神奈川科学技術アカデミー、かわさきサイエンス&テクノロジーフォーラム 2009、pp.III 34-III 40、かながわサイエンスパーク、神奈川、2009年11月18日.
- 102. 岸野克巳、"ナノコラムレーザー/LED 最新技術と照明応用の可能性"、リードエグジビ ションジャパン株式会社、第3回次世代照明技術展〜ライティングジャパン〜、東京ビッグサイ ト、東京、2010年4月14日.
- 103. 岸野克巳、"緑色半導体レーザーの新展開"、社団法人レーザー学会、レーザー EXPO2010 併設レーザー特別セミナー、パシフィコ横浜、横浜、2010 年 4 月 21 日.
- 104. 岸野克巳、菊池昭彦、関ロ寛人、石沢峻介、光野徹也、神村淳平、"GaN 系ナノ構造の 結晶成長と光デバイス応用"、社団法人応用物理学会、第 132 回結晶工学分科会研究会、 pp.7-15、学習院創立百周年記念会館、東京、2010 年 4 月 23 日.
- ② 口頭発表 (国内会議94件、国際会議55件)

国際会議

- 105. A. Kikuchi, M. Tada, K. Miwa and K. Kishino, "Growth and characterization of InGaN/GaN nanocolumn LED", Photonics West, OPTO 2006, The International Society for Optical Engineering, Qunatum Dots, Particles, and Nanoclusters III, 6129-06, San Jose, California, USA, January 21-26, 2006.
- 106. K. Kishino and A. Kikuchi, "(Al, Ga)InN Nanocolumn Technology for Ultraviolet to Infrared Emission", 2006, Japanese-Spanish-German Joint Workshop on Advanced Semiconductor Optoelectronic Materials and Devices, Teikyo Berlin GmbH, Germany, March 8-10, 2006.
- 107. A. Kikuchi, M. Tada and K. Kishino, "Fabrication and characterization of novel InGaN/GaN multiple quantum disk nanocolumn light emitting diodes", TMS2006 136th Annual Meeting & Exhibition, Topic III: Emerging Materials 2006, Nanomaterials: Materials and Processing for Functional Applications, 9:35 AM, San Antonio, Texas, USA, March 12-16, 2006.
- 108. A. Kikuchi, T. Nakazato, H. Sekiguchi, K. Kishino, "Growth and characterization of GaN/AlN multilayer nanocolumns grown by RF plasma assisted molecular beam epitaxy", 2006 Materizals Research Society 2006 Spring Meeting, 3:30PM P12.1, San Francisco, CA USA, April 17-21, 2006.
- 109. M. Tada, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Current injection emission property of InGaN/GaN Multiple Quantum Disk Nanocolumn Light-Emitting Diodes grown on (111) Si substrate by RF-MBE", 2006 International Symposium on Blue Laser and LED (ISBLLED2006), E2.04, Montpellier, France, May 15-19, 2006.
- 110. H. Sekiguchi, A. Kikuchi and Katsumi Kishino, "Structural and optical properties of GaN nanocolumns grown on (0001) just sapphire substrates by rf plasma-assisted molecular beam epitaxy", First International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-1), TuP-14, Linköping, Sweden, June 4-7, 2006.
- 111. J. Kamimura, A. Kikuchi and K. Kishino, "Growth of high-In-content InAlN nanocolumns on Si(111) by RF plasma assisted molecular beam epitaxy", First International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-1), WeP-16, Linköping, Sweden, June 4-7, 2006.
- 112. K. Ikuno, J. Hamazaki, K. Tanaka, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi and K. Kishino, "Ultrafast intersubband relaxation dynamics and coherent nonlinearity in bulk and waveguide structures of GaN/AIN multiple quantum wells", 28th International Conference on the Physics of

Semiconductors (ICPS'06), Vienna, Austria, July 24-28, 2006.

- 113. A. Kikuchi, H. Sekiguchi and K. Kishino, "Growth and characterization of rainbow-colored InGaN/GaN nanocolumn light emitting diodes", Eighth International Conference on Nanostructured Materizals (NANO2006), D4-6, Bangalore, India, August 20-25, 2006.
- 114. S. Ishizawa, H. Sekiguchi, A. Kikuchi and K. Kishino, "Selective growth of GaN nanocolumns by Al thin layer on substrate", International workshop on Nitride Semiconductors 2006 (IWN2006), Tu2-1, Kyoto, Japan, October 22-27, 2006.
- 115. H. Uchida, P. Holmström, A. Kikuchi and K. Kishino, "Optical communication wavelength range quantum disk infrared photodetector using GaN/AlN multiple quantum disk nanocolumn on Si (111)", International workshop on Nitride Semiconductors 2006 (IWN2006), WeOD2-4, Kyoto, Japan, October 22-27, 2006.
- 116. K. Kishino, A. Kikuchi and J. Kamimura, "High-In-content InAlN and InN/InAlN multiple-quantum-well nanocolumns grown on (111) Si substrates by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", Third international workshop on Indium nitride, Ilhabela, Brazil, November 12-16, 2006.
- 117. K. Kishino, S. Ishizawa and A. Kikuchi, "GaN nanocolumns grown on Si substrates with patterned pre-deposited Al layers", The 3rd Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors (APWS 2007), MO2-6, Jeonju, Korea, March 11-14, 2007.
- 118. K. Kishino, J. Kamimura, A. Kikuchi and P. Holmström, "InN/InAlN multiple quantum well nanocolumns grown on (111) Si substrates by rf-plasma assisted molecular beam epitaxy" ECS Meeting Abstracts, MA 2007-01, 211th Meeting of The Electrochemical Society, (E-5, 0788), Chicago, Illinois, USA, May 6-10, 2007.
- 119. A. Kikuchi, J. Kamimura, K. Kishino, "Remarkable reduction of electron concentration of In-rich In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N (x~0.7) by Mg doping", 2007 Electronic Materials Conference, Session U: Indium Nitride, U4, Nortre Dame, Indiana, USA, June 20-22, 2007.
- 120. J. Kamimura, S. Ishizawa, A. Kikuchi and K. Kishino, "Optical Properties of In-Rich InAlN Nanocolumns", 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS 7), Las Vegas, Nevada, USA, September 16-21, 2007.
- 121. H. Sekiguchi, S. Ishizawa, K. Sakamoto, G. Kobayashi, J. Tanaka, K. Kato, A. Kikuchi and K. Kishino, "GaN/AlGaN Nanocolumn Ultraviolet Light Emitting Diodes on N-(III) Si Substrates Grown by Rf-Plasma Assisted Molecular Beam Epitaxy", 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS 7), Las Vegas, Nevada, USA, September 16-21, 2007.
- 122. S. Ishizawa, H. Sekiguchi, T. Hoshino, S. Sugimoto, A. Kikuchi and K. Kishino, "Selective Growth of GaN Nanocolumns with Pre-Deposited Al Pattern on (III) Si by Rf-Plasma Assisted Molecular Beam Epitaxy", 7th International Conference of Nitride Semiconductors (ICNS 7), Las Vegas, Nevada, USA, September 16-21, 2007.
- 123. K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi and S. Ishizawa, "Ultraviolet to red emission nano-LEDs based on one-dimensional III-V nitride nanocolumns grown on (111) conductive Si substrates" ECS Meeting Abstracts, 212th Meeting of The Electrochemical Society, (E-10, 1330), Washington, DC, USA, Oct. 7-12, 2007.
- 124. Y. Kawakami, A. Kanai, A. Kaneta, M. Funato, A. Kikuchi and K. Kishino, "Time-resolved Photoluminescence Spectroscopy of Single InGaN/GaN Nanocolumn", The 34th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2007), pp.256, Kyoto, Japan, October 15-18, 2007.
- 125. A. Kikuchi, T. Hoshino, S. Ishizawa, H. Sekiguchi and K. Kishino, "GaN nanowalls grown by RF-plasma assisted molecular beam epitaxy", 2007 MRS Fall Meeting, Q4.6, Boston, M.A. USA, November 26-30, 2007.
- 126. A. Kikuchi, K. Kishino, T. Hoshino, S. Ishizawa and H. Sekiguchi, "Selective growth of GaN nanowalls with InGaN quantum well by RF-plasma assisted molecular beam epitaxy", 2008 SPIE Photonics West, Gallium Nitride Materials and Devices III, 6894-04, San Jose, CA, USA, January 19-24, 2008.
- 127. K. Kishino, A. Kikuchi, S. Ishizawa, H. Sekiguchi, and T. Hoshino, "Selective area growth of GaN nanocolumns by rf-plasma assisted molecular-beam epitaxy", Workshop on Frontier Photonic and Electronic Materials and Devices –2008 German-Japanese-Spanish Joint Workshop-, Hakone, Japan, March 3-6, 2008.

- 128. H. Sekiguchi, J. Tanaka, A. Kikuchi and K. Kishino, "Well-arranged InGaN/GaN nanocolumns on GaN template with Ti-nanoholes grown by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices (ISSLED-2008), O3, Phoenix, Arizona, USA, April 27-May 2, 2008.
- 129. K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, N. Suzuki, H. Kunugita, K. Ema, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino; "Exciton and biexciton properties in GaN nanocolumn: dependence on morphology and diameter", 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter (EXCON'08), Kyoto, Japan, 22-27 June, 2008.
- 130. K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Improved Ti-mask selective-area-growth (SAG) by rf-MBE demonstrating extremely uniform GaN nanocolumn arrays", 15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2008), WB2.5, Vancouver, Canada, August 3-8, 2008.
- 131. A. Kikuchi, H. Sekiguchi and K. Kishino, "Growth of InGaN/GaN-based hexagonal nano-plate on GaN nanocolumn (nano-parasol) by molecular beam epitaxy using strong anisotropic growth technique", 15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2008), WB2.5, Vancouver, Canada, August 3-8, 2008.
- 132. A. Kikuchi, K. Kishino and T. Hoshino, "Structural characterization of GaN nanowalls grown by Ti-mask selective area growth of molecular beam epitaxy", 35th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2008), Mo 3.4, the Europa-Park Rust near Freiburg, Germany, September 21-24, 2008.
- 133. J. Kamimura, K. Kishino and A. Kikuchi, "Growth and low-temperature-photoluminescence studies of high indium content InAlN nanocolumns", 35th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2008), Mo 3.5, the Europa-Park Rust near Freiburg, Germany, September 21-24, 2008.
- 134. J. Tanaka, K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Optical properties of amber-emission InGaN/GaN single quantum disk nanocolumns", 35th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2008), Mo 3.7, the Europa-Park Rust near Freiburg, Germany, September 21-24, 2008.
- 135. A. Kikuchi, K. Kishino and T. Hoshino, "GaN nanowalls with InGaN quantum wells grown by Ti-mask selective area RF-plasma assisted molecular beam epitaxy", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2008), We3-B-3, Montreux, Switzerland, October 6-10, 2008.
- 136. H. Sekiguchi, K. Kishino, J. Tanaka and A. Kikuchi, "High optical efficiency well-arranged InGaN/GaN nanocolumns grown by selective area growth of rf-plasma-assisted molecular-beam epitax", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2008), We3-B-5, Montreux, Switzerland, October 6-10, 2008.
- 137. M. Sakai, K. Kishino, A. Kikuchi and H. Sekiguchi, "Random Laser Action in GaN", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2008), We4-D-4, Montreux, Switzerland, October 6-10, 2008.
- 138. M-Y. Xie, V. Darakchieva, B. Monemar, J. Kamimura and K. Kishino, "Lattice parameters and optical phonons in In<sub>x</sub>Al<sub>1-x</sub> N (0.64≤x≤1) nanocolumns", International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2008), Th3-F-5, Montreux, Switzerland, October 6-10, 2008.
- 139. H. Sekiguchi, K. Kishino and A. Kikuchi, "Emission-color control of well-arranged GaN nanocolumns on the same substrate by changing the nanocolumn size and period", IEEE Nanotchnology Materials and Devices Conference 2008 (NMDC2008), TuC II-3, Kyoto, Japan, October 20-22, 2008.
- 140. H. Sekiguchi, K. Kishino and A. Kikuchi, "Effect of growth condition on well arranged InGaN/GaN nanocolumns grown by selective area growth of rf-plasma assisted molecular beam epitaxy", International Conference on on Solid State Devices and Materials (SSDM 2008), H-6-3, Tsukuba, Japan, October 23-26, 2008.
- 141. K. Kishino, H. Šekiguchi, and A. Kikuchi, "Emission characteristics of InGaN-based nanocolumn arrays grown by rf-plasma assisted molecular beam epitaxy", MRS fall meeting, Symposium LL: Nanowires-Synthesis, Properties, Assembly, and Application, Boston, U.S.A., December 1-5, 2008
- 142. K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Ti-mask Selective-Area Growth of GaN by RF-Plasma-Assisted Molecular-Beam Epitaxy for Fabricating Regularly Arranged InGaN/GaN

Nanocolumns", PDI Topical Workshop on MBE-grown Nitride Nanowires, Berlin, Germany, March 5-6, 2009.

- 143. T. Kouno, K. Kishino and A. Kikuchi, "Regularly arranged InGaN-based hexagonal-nanorings grown by RF-plasma molecular beam epitaxy", E-MRS 2009, Strasbourg, France, June 8-12, 2009.
- 144. R. Bardoux, A. Kaneta, M. Funato, Y. Kawakami, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Positive biexciton binding energy in a localization center of a single InGaN/GaN quantum disk: internal electric field drastically reduced", E-MRS, J03.2, Strasbourg, France, June 8-12, 2009.
- 145. J. Kamimura, K. Kishino and A. Kikuchi, "Selective Area Growth of InN Nano-Crystals on Pt-Mask Patterned Sapphire (0001) Substrate by RF-MBE", 51st TMS Electronic Materials Conference, Pennsylvania, USA, June 24-26, 2009.
- 146. H. Sekiguchi, K. Kishino, K. Kato, J. Tanaka and A. Kikuchi, "Formation of InGaN quantum-dots in the regularly arranged GaN nanocolumns grown by Rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", The 36<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors, Santa Barbara, USA, August 30- September 2, 2009.
- 147. K. Kato, H. Sekiguchi, K. Kishino and A. Kikuchi, "Observation of narrow electronluminescence spectrum ( $\Delta\lambda$ =13nm) from blue-green (507nm) InGaN/GaN nanocolumn LED with one micron-diameter injection area", The 36<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors, Santa Barbara, USA, August 30- September 2, 2009.
- 148. M. Sakai, K. Kishino, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, Y. Inose, K. Ema and T. Ohtsuki, "Random laser in artificially-disordered GaN nanocolumn", The 36<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors, Santa Barbara, USA, August 30- September 2, 2009.
- 149. T. Kouno, K. Kishino, K. Yamano and A. Kikuchi, "Two-dimensional light confinement in periodic InGaN/GaN nanocolumn arrays and stimulated emission at 471 nm in wavelength", The 8<sup>th</sup> International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8), Jeju, Korea, October 18-23, 2009.
- 150. R. Vadivelu, A. Kikuchi, K. Kishino and Y. Kawakami, "Strain manipulation for improving emission efficincy with top-down InGaN/GaN nano-structures fabricated by ICP etching", The 8<sup>th</sup> International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8), Jeju, Korea, October 18-23, 2009.
- 151. J. Kamimura, K. Kishino and A. Kikuchi, "Rf-MBE growth and optical properties of well-aligned low-dimensinal InN on meal-mask patterned (0001) sapphire substrates", The 8th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8), Jeju, Korea, October 18-23, 2009.
- 152. T. Kouno, K. Kishino, H. Hata and A. Kikuchi, "Growth and characterization of InGaN/GaN-based nano-parasols", 2009 International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Sapporo, Japan, November 16-19, 2009.
- 153. T. Kouno, K. Kishino, T. Suzuki, M. Sakai and A. Kikuchi, "Lasing actions in GaN hexagonal nanorings grown by selective area growth of rf-plasma assisted molecular beam epitaxy", The 8<sup>th</sup> International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices, Beijing, China, May 16-21, 2010.
- 154. K. Kishino, S. Sugimoto, S. Ishizawa, R. Araki and A. Kikuchi, "Stimulated emission at green wavelength of InGaN-based nanocolumn arrays grown on Ti-mask patterned GaN template", 8<sup>th</sup> International Workshop on Epitaxial Semiconductors on Patterned Subsdtrates and Novel Index Surfaces (ESPS-NIS), Como, Itly, June 14-18, 2010.
- 155. J. Kamimura, K. Kishino and A. Kikuchi, "Dislocation Reduction via Epitaxial Lateral Overgrowth of InN by Selective-Area-Growth of RF-MBE", 52<sup>nd</sup> Electronic Materials Conference and Exhibition (EMC 2010), Notre Dame, Indiana, USA, June 23-25, 2010.
- 156. T. Kouno, K. Kishino, H. Hata and A. Kikuchi, "Regularly arranged InGaN/GaN nano-parasols grown by selective area growth of rf-MBE", The 3<sup>rd</sup> International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-3), Tu3-3, Montpellier, France, July 5-7, 2010.
- 157. J. Kamimura, K. Kishino and A. Kikuchi, "Epitaxial Lateral Overgrowth of InN on sapphire substrates with Mo striped patterns by rf-MBE", 16<sup>th</sup> International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2010), Thu B1.3, Berlin, Germany, August 22-27, 2010.
- 158. K. Kishino, K. Yamano, R. Araki, S.Ishizawa, K. Nagashima, A. Kikuchi, M. Goto and T.

Kouno, "Periodically arranged InGaN-based nanocolumns for visible light emitters", 19th European Workshop on Heterostructure Technology, Crete, Greece, October 18-20, 2010.

国内会議

- 159 菊池昭彦、多田誠、岸野克巳、"RF 分子線エピタキシー法による InGaN ナノコラム LED の作 製と評価"、電子情報通信学会、ED/CPM/LQE 研究会、滋賀、2005 年 10 月.
- 160 大橋達男、石沢俊介、Petter Holmstrom、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法による InN/InGaN 多重量子井戸構造の成長と評価"、電子情報通信学会、ED/CPM/LQE 研究会、 滋賀、2005 年 10 月.
- 161 鈴木信太郎、関根智幸、多田誠、菊池昭彦、岸野克己, "GaN ナノコラム結晶のラマン散 乱",日本物理学会 2005 年秋季大会, 21aYD-9,同志社大学京田辺キャンパス,京都, 2005 年9月.
- 162 関根智幸、鈴木信太郎、多田誠、菊池昭彦、岸野克己, "GaN/AIN 超格子ナノコラム結 晶のラマン散乱", 日本物理学会 2005 年秋季大会、21aYD-10, 同志社大学京田辺キャンパ ス, 京都、2005 年9月.
- 163 鈴木信太郎、渡辺耕平、黒江晴彦、関根智幸、多田誠、菊池昭彦、岸野克己, "GaN ナノコラムおよび GaN/AIN 超格子ナノコラムのラマン散乱",日本物理学会 2006 年 第61 回 年次大会,(愛媛大学・松山大学)
- 164 神村淳平、光野徹也、石沢峻介、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法による Si(111)基板上への高 In 組成 InAlN ナノコラムの形状制御"、第53 回応用物理学関係連合講演会、22p-ZF-16, 東京, 2006 年 3 月.
- 165 内田裕行、松井聰、菊池昭彦、岸野克巳、"(111)Si 基板上GaN/AIN 多重量子ディスクの成長 と赤外光検出器構造の作製"、第53回応用物理学関係連合講演会、23a-ZK-5, 東京, 2006 年3月.
- 166 関ロ寛人、中里拓哉、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法を用いた 0.5°オフサファイア基板上 GaN ナノコラムの成長"、第53回応用物理学関係連合講演会、26a-ZE-2, 東京, 2006 年3月.
- 167 中里拓哉、関口寛人、菊池昭彦、岸野克巳、"InGaN/GaN マイクロキャビティー構造を内在したナノコラムの作製"、第53回応用物理学関係連合講演会、26a-ZE-3, 東京, 2006年3月.
- 168 鈴木翔、金田昭男、船戸充、川上養一、菊池昭彦、岸野克巳、"単一 GaN ナノコラム上 InGaN/GaN 量子井戸の発光特性"、第 53 回応用物理学関係連合講演会、26a-ZE-4, 東京, 2006 年 3 月.
- 169 内田裕行、菊池昭彦、岸野克巳、"Si(111)基板上 GaN/AIN 多重量子ディスクナノコラム を用いた光通信波長帯光検出器の作製"、電子情報通信学会、ED/CPM/LQE 研究会、京 都、2006 年 10 月.
- 170 原林透, 大槻東巳, S.Kettemann, A.Struck, B.Kramer, "Effect of potential correlation in quantum Hall wires," 25aXL-4, 日本物理学会, 千葉市, 2006 年 9 月.
- 171 大江純一郎, 大槻東巳, Bernhard Kramer, "Mesoscopic Hall effect driven by chiral spin order, 25pXJ-2, 日本物理学会, 千葉市, 2006 年 9 月.
- 172 鈴木信太郎、本間裕一、関根智幸、内田裕行、中里拓哉、菊池昭彦、岸野克巳、"GaN/AIN 多重量子ディスクナノコラムのラマン散乱",日本物理学会 2006 年秋季大会, 26aWH-2, 千葉大学西千葉キャンパス,千葉, 2006 年 9 月.
- 173 石沢峻介、関ロ寛人、菊池昭彦、岸野克巳、"Al 薄膜パターンを用いた GaN ナノコラ ムの選択成長"、第67回応用物理学会学術講演会、29a-E-1, 滋賀, 2006 年 9-10 月.
- 174 神村淳平、石沢峻介、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法による Si(111)基板上への InN/InAlN ダブルヘテロ・多重量子井戸構造ナノコラムの作製と評価"、第 67 回応用物 理学会学術講演会、29p-C-12, 滋賀, 2006 年 9-10 月.
- 175 関ロ寛人、中里拓哉、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法を用いたサファイア基板上 GaN ナノコラムの形状及び光学特性"、第67回応用物理学会学術講演会、31a-C-5, 滋賀, 2006

年 9-10 月.

- 176 内田裕行、菊池昭彦、岸野克巳、"Si (111)基板上 GaN/AIN 多重量子ディスクを用いた赤 外光検出器の特性評価"、第67回応用物理学会学術講演会、1a-E-11, 滋賀, 2006年9-10 月.
- 177 當洋樹、牛山崇幸、関根智幸、内田裕行、小林剛、菊池昭彦、岸野克巳、" GaN ナノコ ラム結晶の電気伝導"、日本物理学会 2007 年春季大会、19pPRC-11, 鹿児島, 2006 年 3 月.
- 178 田中海一,幾野敬太,葛西洋平,福永和哉,欅田英之,江馬一弘,菊池昭彦,岸野克巳、" GaN/AIN 多重量子ディスクナノコラムにおけるサブバンド間遷移"、第54回応用物理 学関係連合学術講演会、30p-SG-1,神奈川,2007年3月.
- 179 石沢峻介,関口寛人,菊池昭彦,岸野克巳、"Alナノパターンを用いた GaN ナノコラ ムの選択成長"、第 54 回応用物理学関係連合学術講演会、28a-ZC-7,神奈川, 2007 年 3 月.
- 180 関口寛人,石沢峻介,坂本晃輝、菊池昭彦,岸野克巳、"RF-MBE 法を用いた Si 基板上 InGaN/GaN QW ナノコラム LED の特性評価"、第54回応用物理学関係連合学術講演会、 28a-ZC-9、神奈川、2007 年3月.
- 181 小林剛, 内田裕行、菊池昭彦, 岸野克巳、"Si ドープ GaN/AIN 多重量子ディスクナノ コラムを用いた赤外光検出器の偏光依存性の評価"、第54回応用物理学関係連合学術講 演会、28a-ZC-10、神奈川、2007年3月.
- 182 金井聡庸,金田昭男,船戸充,川上養一、菊池昭彦,岸野克巳、"マイクロミラーアレ イを用いた InGaN/GaN 単一ナノコラムの分光"、第 54 回応用物理学関係連合学術講演 会、28p-ZM-15、 神奈川、 2007 年 3 月.
- 183 神村淳平,石沢峻介、菊池昭彦,岸野克巳、"高 In 組成 InAlN ナノコラムの光学特性"、 第54回応用物理学関係連合学術講演会、30p-ZG-5、神奈川、2007年3月.
- 184 河原林透,大槻東巳,小野嘉之,"量子ホール系におけるコンダクタンスプラトー転移— ランダム磁場の空間相関の効果—,"18aTA-10,日本物理学会,鹿児島市,2007年3月.
- 185 廣瀬亘祐, 大槻東巳, K. Slevin, "Chalker-Coddington model described by an S-matrix with odd dimensions," 25aXL-5, 日本物理学会, 鹿児島市, 2007 年 3 月.
- 186 鶴秀生, 石塚崇, 大槻東巳, "音響問題におけるアンダーソン局在," 19aWD-4, 日本物理 学会, 鹿児島市, 2007 年 3 月.
- 187 関ロ寛人、加藤圭、田中譲、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法を用いた GaN/AlGaN 紫 外ナノコラム LED の成長と評価"、電子情報通信学会、ED/CPM/LQE 研究会、福井、 2007 年 10 月.
- 188 井上昌弥、幸山和晃、猪瀬裕太、鈴木直樹、欅田英之、江馬一弘、関ロ寛人、菊池昭彦、 岸野克巳、"GaN 及び InGaN/GaN ナノコラム結晶の光学特性"、第68回応用物理学会学 術講演会、4a-ZK-11、北海道、2007 年9月.
- 189 関ロ寛人、石沢峻介、坂本晃輝、小林剛、加藤圭、田中譲、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法を用いた Si 基板上 GaN/AlGaN ナノコラム紫外 LED の成長と評価"、第68回応用物 理学会学術講演会、4p-S-1、北海道、2007年9月.
- 190 加藤圭、関ロ寛人、坂本晃輝、田中譲、菊池昭彦、岸野克巳、"InGaN/GaN ナノコラム LED 構造の Be ドープ効果"、第68 回応用物理学会学術講演会、4p-S-2、北海道、2007 年9月.
- 191 星野隼之、石沢峻介、関ロ寛人、菊池昭彦、岸野克巳、"Tiマイクロパターンを用いた GaN ナノコラムの選択成長"、第68回応用物理学会学術講演会、4p-S-3、北海道、2007 年9月.
- 192 神村淳平、石沢峻介、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法による高 In 組成 InAlN ナノコ ラムの発光特性"、第 68 回応用物理学会学術講演会、4p-S-7、北海道、2007 年 9 月.
- 193 阿久津正典、Ramesh Vadivelu、関ロ寛人、石沢峻介、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法を用いた GaN テンプレート上 InGaN/GaN 量子井戸の成長"、第68 回応用物理学会学
術講演会、4p-S-8、北海道、2007年9月.

- 194 石沢峻介、星野隼之、杉本修一、関口寛人、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法による Al パターンを用いた GaN ナノコラムの選択成長:パターン形状依存性"第68回応用物 理学会学術講演会、4p-S-9、北海道、2007年9月.
- 195 田中譲、関口寛人、Holmström Petter、菊池昭彦、岸野克巳、"InGaN/GaN 量子ディスク ナノコラムのKOH処理による光学特性評価"、第68回応用物理学会学術講演会、5a-ZR-8、 北海道、2007年9月.
- 196 坂本晃輝、関口寛人、菊池昭彦、岸野克己、"Si 基板上 InGaN/GaN QW ナノコラム LED の電極プロセス"、第68回応用物理学会学術講演会、8a-ZR-7、北海道、2007 年9月.
- 197 岸野克巳、菊池昭彦、関ロ寛人、石沢峻介、神村淳平、"AlGaInN 系赤色~赤外域ナノ コラム光デバイス結晶の開拓"、第 68 回応用物理学会学術講演会、5p-ZR-9、北海道、 2007 年 9 月.
- 198 村本浩介, 黒江晴彦, 関根智幸, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, "GaN ナノコラム結晶 のプラズモンによるラマン散乱 II", 日本物理学会第 63 回年次大会, 23aYJ-7, 大阪府, 2008 年 3 月.
- 199 幸山和晃, 井上昌弥, 猪瀬裕太, 鈴木直樹, 欅田英之, 江馬一弘, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, "GaN ナノコラム結晶の発光特性", 日本物理学会第 63 回年次大会, 23pYJ-7, 大阪府, 2008 年 3 月.
- 200 加藤圭, 関ロ寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, "Be ドープ GaN ナノコラム LED 結晶の評価", 第 55 回応用物理関係連合講演会, 30a-A-4, 千葉県, 2008 年 3 月.
- 201 菊池昭彦, 岸野克巳, "Ti マスク選択領域成長(SAG)を用いた GaN ナノウォールの RF-MBE 成長", 第55回応用物理関係連合講演会, 30a-A-5, 千葉県, 2008 年 3 月.
- 202 関ロ寛人,田中 譲, 菊池昭彦, 岸野克巳, "Ti ナノホールパターンを用いた GaN 連続膜 上規則配列 InGaN/GaN ナノコラムの作製", 第 55 回応用物理関係連合講演会, 30a-A-6, 千葉県, 2008 年 3 月.
- 203 田中譲, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, "InGaN/GaN 量子ディスクナノコラムの光学特性", 第55回応用物理関係連合講演会, 30a-A-7, 千葉県, 2008 年3月.
- 204 金田昭男, 船戸充, 川上養一, 菊池昭彦, 岸野克己, "InGaN/GaN 単一ナノコラムの偏光 発光測定", 第55回応用物理関係連合講演会, 30a-A-8, 千葉県, 2008 年3月.
- 205 関ロ寛人,加藤圭,菊池昭彦,岸野克巳,"RF-MBE 法を用いた Si 基板上 InGaN/GaN ナノ コラム LED の顕微 EL 特性",第 55 回応用物理関係連合講演会,30p-B-1,千葉県,2008 年3月.
- 206 酒井優、岸野克巳、菊池昭彦、関口寛人、猪瀬裕太、江馬一弘、大槻東巳、"GaN ナノコラ ムにおけるランダムレーザー"、第 69 回応用物理学会学術講演会、3a-CA-5、愛知県、2008 年9月.
- 207 神村淳平、岸野克巳、菊池昭彦、"高 In 組成 InAlN ナノコラムにおける PL 発光エネルギーの温度依存性"、第69回応用物理学会学術講演会、4a-CG-5、愛知県、2008 年9月.
- 208 バディヴェル ラメシュ、菊池昭彦、岸野克巳、"ナノ加工による RF-MBE 成長 InGaN/GaN 量 子井戸の歪緩和効果"、第 69 回応用物理学会学術講演会、4p-CA-6、愛知県、2008 年 9 月.
- 209 坂本晃輝、関口寛人、加藤圭、菊池昭彦、岸野克巳、"n-(111) Si 基板上 InGaN/GaN 量子 ディスクナノコラム LED の Au 膜への転写プロセス"、第 69 回応用物理学会学術講演会、 5a-CA-7、愛知県、2008 年 9 月.
- 210 関口寛人、岸野克巳、菊池昭彦、"RF-MBE 法を用いた Ti マスクによる GaN ナノコラム選択 成長の成長条件依存性"、第 69 回応用物理学会学術講演会、5a-CG-6、愛知県、2008 年 9 月.
- 211 長島和哉、関口寛人、加藤圭、光野徹也、菊池昭彦、岸野克巳、"AIN バッファ層を用いた n 型(111)Si 基板上 GaN ナノコラムの成長"、第 69 回応用物理学会学術講演会、5a-CG-1、愛 知県、2008 年 9 月.

- 212 杉本修一、石沢峻介 1、関口寛人、菊池昭彦、岸野克巳、"GaN 連続膜上 AIN/GaN DBR 構造ナノコラムの選択成長"、第69回応用物理学会学術講演会、5a-CG-2、愛知県、2008 年 9月.
- 213 田邊雄一郎、石沢峻介、岸野克巳、菊池昭彦、"RF-MBE 法による GaN テンプレート上 AIN パターンを用いた GaN ナノコラムの選択成長"、第69回応用物理学会学術講演会、5a-CG-3、 愛知県、2008 年 9 月.
- 214 石沢峻介、岸野克巳、山野晃司、菊池昭彦、"RF-MBE 法による Si 基板上 AlN パターンを 用いた GaN ナノコラムの選択成長"、第 69 回応用物理学会学術講演会、5a-CG-4、愛知県、 2008 年 9 月.
- 215 木下萌、関口寛人、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法を用いた Ti マスクによる GaN ナノコ ラム選択性の窒素流量依存性"、第69回応用物理学会学術講演会、5a-CG-5、愛知県、2008 年9月.
- 216 関ロ寛人、岸野克巳、菊池昭彦、"ナノコラム径及び周期による同一基板上規則配列 InGaN/GaN ナノコラムの発光色制御"、第 69 回応用物理学会学術講演会、5a-CA-10、愛知 県、2008 年 9 月.
- 217 加藤圭、関口寛人、菊池昭彦、岸野克巳、"n型(111)Si 基板上BeドープGaN ナノコラムバッファ層上 GaN 結晶の成長"、第 69 回応用物理学会学術講演会、5a-CG-7、愛知県、2008 年9月.
- 218 田中譲、関口寛人、菊池昭彦、岸野克巳、"規則配列 InGaN/GaN 量子ディスクナノコラムの 光学特性評価"、第69回応用物理学会学術講演会、5a-CG-8、愛知県、2008 年9月.
- 219 星野隼之、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法を用いた GaN ナノウォールの Ti マスク選択 成長と構造制御"、第 69 回応用物理学会学術講演会、5p-CG-1、愛知県、2008 年 9 月.
- 220 光野徹也、岸野克巳、関口寛人、菊池昭彦、"RF-MBE 法を用いた選択領域成長による GaN リング構造の成長"、第 69 回応用物理学会学術講演会、5p-CG-2、愛知県、2008 年 9 月.
- 221 猪瀬裕太、酒井優、大槻東巳、欅田英之、江馬一弘、菊池昭彦、岸野克巳、"ランダム配置 GaN ナノコラムにおける光のアンダーソン局在"、日本物理学会 2008 年秋季大会、21aYH-6、 岩手県、2008 年 9 月.
- 222 酒井優、岸野克巳、菊池昭彦、関口寛人、猪瀬裕太、江馬一弘、大槻東巳、"GaN ナノコラム におけるランダムレージング"、電子情報通信学会、LQE 研究会、名古屋工業大学、2008 年 11月27日-28日.
- 223 関ロ寛人、岸野克巳、菊池昭彦、"RF-MBE 法を用いた Ti マスク選択成長法による規則配列 InGaN/GaN ナノコラムの作製"、電子情報通信学会、LQE 研究会、名古屋工業大学、2008 年 11 月 27 日-28 日.
- 224 猪瀬裕太, 酒井優, 大槻東巳, 欅田英之, 江馬一弘, 菊池昭彦, 岸野克己, "ランダム配置 誘電体円柱における光のアンダーソン局在", 日本物理学会第 64 回年次大会, 28aVD-5, 東京都, 2009 年 3 月.
- 225 酒井優, 岸野克巳, 菊池昭彦, 関ロ寛人, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 大槻東巳, 斎木敏治, "GaN ナノコラム集団における光のアンダーソン局在の直接観察", 日本物理学会第 64 回年次大会, 28aVD-4, 東京都, 2009 年 3 月.
- 226 光野徹也, 岸野克巳, 菊池昭彦, "RF-MBE 法を用いた選択成長による GaN ヘキサゴナ ル・ナノリング構造の成長と光学特性", 第 56 回応用物理学関連連合講演会, 31a-ZN-10, 茨城県, 2009 年 3-4 月.
- 227 酒井優, 岸野克巳, 関口寛人, 菊池昭彦, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 大槻東巳, "人工ランダム 配置GaNナノコラム集団におけるランダムレージング", 第70回応用物理学会学術講演 会, 8p-B-18, 富山県, 2009年9月.
- 228 小川高史,石沢峻介,菊池昭彦,岸野克巳, "RF-MBE 法による溝パターニングを用いた AlN/GaN 分布ブラッグ反射鏡の作製",第70回応用物理学会学術講演会,8a-F-6,富山県, 2009年9月.

- 229 木下萌, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, "RF-MBE 法を用いた GaN ナノコラム選択成長の Ti 膜厚依存性", 第 70 回応用物理学会学術講演会, 8p-F-11, 富山県, 2009 年 9 月.
- 230 杉本修一,岸野克巳,山野晃司,菊池昭彦,"GaN 連続膜上高精細高密度規則配列 GaN ナ ノコラム",第70回応用物理学会学術講演会,8p-F-12,富山県,2009年9月.
- 231 長島和哉, 関口寛人, 岸野克巳, 菊池昭彦, "RF-MBE 法による規則配列 GaN ナノコラム 上への AlGaN の再成長", 第 70 回応用物理学会学術講演会, 8p-F-13, 富山県, 2009 年 9 月.
- 232 ラメシュ バディヴェル, 菊池昭彦, 岸野克巳, 川上養一, "InGaN/GaN 多重量子井戸の ナノ加工による歪制御効果", 第70回応用物理学会学術講演会, 8p-F-14, 富山県, 2009年 9月.
- 233 神山幸一, 岸野克巳, 神村淳平, 菊池昭彦, "メタルマスク RF-MBE 選択成長による規則 配列 InN の結晶成長", 第70回応用物理学会学術講演会, 10p-E-11, 富山県, 2009年9月.
- 234 神村淳平,岸野克巳,神山幸一,菊池昭彦,"規則配列InN結晶の光学特性",第70回応用 物理学会学術講演会,10p-E-12,富山県,2009年9月.
- 235 加藤圭, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, "微小電極を用いた InGaN/GaN ナノコラム LED の EL 評価", 第 70 回応用物理学会学術講演会, 11a-X-2, 富山県, 2009 年 9 月.
- 236 関口寛人,岸野克巳,加藤圭,菊池昭彦,"RF-MBE 法による規則配列 InGaN/GaN ナノコ ラムを用いた RGB 三原色発光制御",第70回応用物理学会学術講演会,11a-X-3,富山県, 2009 年 9 月.
- 237 光野徹也,岸野克巳,山野晃司,菊池昭彦,"周期配列 InGaN/GaN ナノコラムの室温光励 起誘導放出",第70回応用物理学会学術講演会,11a-X-4,富山県,2009年9月.
- 238 猪瀬裕太, 大槻東巳, 欅田英之, 江馬一弘, 酒井優, 菊池昭彦, 岸野克己, "誘電体円柱集団における光局在特性", 日本物理学会 2009 年秋季大会, 26pXB-7, 熊本県, 2009 年 9月.
- 239 神村淳平,岸野克巳,神山幸一,菊池昭彦,"RF-MBE 法を用いた選択成長及び横方向成 長による InN 結晶の転位低減",第57回応用物理学関連連合講演会,17a-TC-5,神奈川県, 2010年3月.
- 240 石沢峻介,岸野克巳,杉本修一,荒木隆一,菊池昭彦,"規則配列 InGaN/GaN MQW ナ ノコラムによる光励起緑色域誘導放出",第57回応用物理学関連連合講演会,18a-TA-8, 神奈川県,2010年3月.
- 241 川名健太, 菊池昭彦, ラメッシュ バディヴェル, 岸野克巳, "GaN ナノウォール結晶からの光励起誘導放出", 第57回応用物理学関連連合講演会, 18a-TA-9, 神奈川県, 2010年3月.
- 242 光野徹也,岸野克巳,酒井優,鈴木匠人,菊池昭彦,"GaN ナノリング共振器に拠る誘導 放出現象",第57回応用物理学関連連合講演会,19p-M-10,神奈川県,2010年3月.
- 243 神山幸一,岸野克巳,神村淳平,井上涼平,菊池昭彦, "RF-MBE 法による規則配列 GaN ナ ノコラム上への高 In 組成 InGaN 活性層の成長",第 71 回応用物理学会学術講演会, 14p-NJ-1,長崎県,2009年9月.
- 244 井上涼平,岸野克巳,神村淳平,神山幸一,菊池昭彦, "RF-MBE法を用いた高 In 組成 InGaN ナノコラムの選択成長",第71回応用物理学会学術講演会,14p-NJ-2,長崎県,2009 年9月.
- 245 秦裕史, 岸野克己, 光野徹也, 菊池昭彦, "rf-MBE 法を用いた規則配列 InGaN/GaN ナノパ ラソルの成長", 第71 回応用物理学会学術講演会, 14p-NJ-5, 長崎県, 2009 年 9 月.
- 246 神村淳平, 岸野克巳, 神山幸一, 井上涼平, 菊池昭彦, "RF-MBE 法による InN 結晶の ELO 成長", 第71回応用物理学会学術講演会, 14p-NJ-9, 長崎県, 2009 年 9 月.
- 247 光野徹也,岸野克巳,酒井優,菊池昭彦, "GaN ヘキサゴナルマイクロディスクのウィスパリン グギャラリーモード型光励起発振",第71回応用物理学会学術講演会,15a-B-10,長崎県, 2009年9月.
- 248 鈴木匠人,岸野克巳,光野徹也,菊池昭彦,"GaNナノリング共振器による光励起発振特性", 第71回応用物理学会学術講演会,15a-B-11,長崎県,2009年9月.

- 249 後藤明輝,岸野克巳,山野晃司,菊池昭彦, "規則配列ナノコラム構造を用いた InGaN/GaN 緑色域発光ダイオード",第71回応用物理学会学術講演会,15a-B-17,長崎県,2009年9月.
- 250 荒木隆一,岸野克巳,石沢峻介,小川高史,菊池昭彦, "AlN/GaN 多層膜反射鏡上 InGaN/GaN MQW ナノコラム共振器構造の制御",第 71 回応用物理学会学術講演会, 16a-B-1,長崎県,2009年9月.
- 251 酒井優, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 大槻東巳, "GaNナノコラ ムにおけるランダムレーザーの特性評価", 日本物理学会 2010 年秋季大会、25aRE-3, 大阪 府立大学中百舌鳥キャンパス, 大阪, 2010 年 9 月.
- 252 猪瀬裕太, 酒井優, 江馬一弘, 菊池昭彦, 岸野克巳, 大槻東巳, "半導体円柱集団における 光局在特性", 日本物理学会 2010 年秋季大会、25aRE-4, 大阪府立大学中百舌鳥キャンパ ス, 大阪, 2010 年 9 月.23-26
- ③ ポスター発表 (国内会議 22 件、国際会議 24 件)

国際会議

- 253. 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", International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS-4), Omiya, Saitama, Japan, November 14-17, 2005.
- 254. T. Sekine, S. Suzuki, M. Tada, T. Nakazato, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Raman Scattering in GaN Nanocolumns and GaN/AlN Multiple Quantum Disk Nanocolumns," 28th International Conference on the Physics of Semiconductors, Vienna, Austria, July 24-28, 2006.
- 255. K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, N. Suzuki, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi and K. Kishino, "Photoluminescence of exciton and biexciton in GaN nanocolumns", 16th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids (DPC07), We-P4-51, Segovia, Spain, June 17-22, 2007.
- 256. K. Tanaka, K. Ikuno, Y. Kasai, K. Fukunaga, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi and K. Kishino, "Ultrafast intersubband relaxation dynamics in GaN/AlN multiple quantum disk nanocolumns", 16th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids (DPC07), Mo-P7-18, Segovia, Spain, June 17-22, 2007.
- 257. H. Sekiguchi, S. Ishizawa, K. Sakamoto, K. Kato, J. Tanaka, A. Kikuchi, K. Kishino, "Be-doping effect for InGaN/GaN nanocolumn LEDs grown by rf-assisted molecular beam epitaxy", The 34th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2007), ThCP36, Kyoto, Japan, October 15-18, 2007.
- 258. K. Kato, H. Sekiguchi, A. Kikuchi and K. Kishino, "Overgrowth of GaN on GaN nanocolumns with Be doped coalescing layer by RF-plasma assisted molecular beam epitaxy", Second International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-2), Tu-27, Izu, Japan, July 6-9, 2008.
- 259. H. Sekiguchi, K. Kishino, K. Kato and A. Kikuchi, "Micro-EL characteristics of InGaN/GaN nanocolumn LEDs", Second International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-2), Tu-35, Izu, Japan, July 6-9, 2008.
- 260. Y. Inose, M. Sakai, T. Ohtsuki, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi, and K. Kishino; "Light propagation characteristics in GaN nanocolumn ensemble", The 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL'08), Mo-P-014, Lyon, France, 7-11 July, 2008.
- 261. K. Fukunaga, K. Kouyama, M. Hashimoto, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi, and K. Kishino; "Evaluation of bandgap energy and carrier density of InN nanocolumns", The 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL'08),

MO-P-21, Lyon, France, 7-11 July, 2008.

- 262. N. Suzuki, K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, H. Kunugita, K. Ema, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino; "Optical properties of InGaN/GaN QD nanocolumn and InGaN nanocolumn", The 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL'08), Tu-P-002, Lyon, France, 7-11 July, 2008.
- 263. K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, N. Suzuki, H. Kunugita, K. Ema, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino; "Photoluminescence of biexciton and EHP in highly excited Self-organized GaN nanocolumns", The 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL'08), We-P-134, Lyon, France, 7-11 July, 2008.
- 264. M. Sakai, T. Ohtsuki, Y. Inose, K. Ema, A. Kikuchi and K. Kishino, "Light localization in random distributed InGaN/GaN quantum disk nanocolumns", 29th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2008), Rio de Janeiro, Brazil, July 27 August 1, 2008.
- 265. T. Sekine, K. Muramoto, S. Suzuki, H. Kuroe, H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Raman Scattering from Plasmon in GaN nanocolumns", The 21st International Conference on Raman Spectroscopy (ICORS 2008), J2 12:00-12:20, West London, United Kingdom, August 17-22, 2008.
- 266. T. Kouno, K. Kishino, H. Sekiguchi and A. Kikuchi, "Ti-mask selective area growth of GaN ring-structures by RF-plasma assisted molecular beam epitaxy, International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2008), Tu3-P27, Montreux, Switzerland, October 6-10, 2008.
- 267. J. Kamimura, K. Kishino and A. Kikuchi, "Selective-Area Growth of InN Nanocolumns by RF-MBE using Pt-Mask Patterned Sapphire (0001) Substrate", The Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors 2009, Zhangjiajie, China, May 24-28, 2009.
- 268. Y. Inose, T. Ohtsuki, H. Kunugita, K. Ema, M. Sakai, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Anderson localization of light in random configuration of dielectric circular cylinders," The 14th International Conference on Modulated Semiconductor structure (MSS-14), Kobe, Japan, July 19-24, 2009.
- 269. M. Hashimoto, K. Fukunaga, J. Kamimura, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Photo-excited carrier relaxation dynamics in InN films," 16th International Conference on Electron Dynamics In Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (Edison 16), Montpellier, France, 24-28 August, 2009.
- 270. M. Hashimoto, J. Kamimura, H. Kunugita, K. Ema, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Optical properties of InxAl1-xN film and nanocolumns," 16th International Conference on Electron Dynamics In Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (Edison 16), Montpellier, France, 24-28 August, 2009.
- 271. Y. Inose, T. Ohtsuki, H. Kunugita, K. Ema, M. Sakai, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Anderson localization of light in random configuration of nanocolumns," 16th International Conference on Electron Dynamics In Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (Edison 16), Montpellier, France, 24-28 August, 2009.
- 272. T. Soya, Y. Inose, H. Kunugita, K. Ema, K. Yamano, A. Kikuchi, and K. Kishino, "Second harmonic generation from photonic structured GaN nanowalls," 16th International Conference on Electron Dynamics In Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (Edison 16), Montpellier, France, 24-28 August, 2009.
- 273. K. Fukunaga, M. Hashimoto, H. Kunugita, J. Kamimura, A. Kikuchi, K. Kishino, and K. Ema, "Ultrafast carrier relaxation dynamics in InN films," The 8th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Pacific Rim 2009), Shanghai, China, Augst 30 - September 3, 2009.
- 274. J. Kamimura, K. Kishino and A. Kikuchi, "Selective-Area Growth of In-rich InGaN Nanocolumns on Mo-Mask-Patterned Sapphire (0001) Substrate by RF-MBE", The 3<sup>rd</sup> International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-3), TuP-6, Montpellier, France, July 5-7, 2010.
- 275. Y. Komatsu, S. Mitsui, H. Kuroe, T. Sekine, K. Yamano, H. Sekiguchi, A. Kikuchi and K. Kishino, "Raman Scattering from a Surface Phonon in GaN Nanowalls and Regularly-Arrayed GaN Nanocolumns ", The 30th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2010), Seoul, Korea, July 25-30, 2010.

276. T. Kouno, K. Kishino, M. Sakai and A. Kikuchi, "Whispering Gallery Mode Lasing Action in a GaN Hexagonal Microdisk Fabricated by rf-MBE on a m-plane GaN substrate", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2010), Tampa, Florida, USA, September 19-24, 2010.

国内会議

- 277. 幸山和晃、新井悠子、井上昌弥、猪瀬裕太、鈴木直樹、欅田英之、江馬一弘、菊池昭彦、 岸野克巳、"GaNおよびInGaN/GaNナノコラム結晶の光学特性"、日本物理学会2006年秋 季大会、25aPS-27、千葉、2006年9月.
- 278. 関根智幸、鈴木信太郎、本間裕一、内田裕行、小林剛、菊池昭彦、岸野克巳、"GaNナ ノコラム結晶のプラズモンによるラマン散乱"、日本物理学会2007年春季大会、 19pPSA-46, 鹿児島, 2007年3月.
- 279. 幸山和晃、新井悠子、井上昌弥、猪瀬裕太、鈴木直樹、欅田英之、江馬一弘、菊池昭彦、 岸野克巳、"GaNナノコラム結晶の光学特性"、日本物理学会2007年春季大会、19pPSB -10, 鹿児島, 2007年3月.
- 280. 幸山和晃、井上昌弥、猪瀬裕太、鈴木直樹、欅田英之、江馬一弘、関口寛人、菊池昭 彦、岸野克巳、"GaN ナノコラム結晶の発光特性 II"、日本物理学会第 62 回年次大会、 23pPSA-79、 北海道、2007 年 9 月.
- 281. 猪瀬裕太、酒井優、大槻東巳、欅田英之、江馬一弘、菊池昭彦、岸野克己、"GaN ナノ コラム集団における光の伝搬特性"、日本物理学会第 62 回年次大会、23pPSB-29、 北 海道, 2007 年 9 月.
- 282. 福永和哉、幸山和晃、欅田英之、江馬一弘、神村淳平、菊池昭彦、岸野克巳、"InN ナ ノコラムにおけるバンドギャップとキャリア濃度の評価"、日本物理学会第62回年次大 会、23pPSB-31、 北海道、2007年9月.
- 283. 関ロ寛人、坂本晃輝、加藤圭、田中譲、菊池昭彦、岸野克巳、"紫外域~可視域ナノコ ラムLEDの顕微発光特性"、 応用物理学会結晶工学分科会2007年年末講演会、10、 東 京, 2007年12月14日.
- 284. 井上昌弥, 幸山和晃, 猪瀬裕太, 鈴木直樹, 征矢隆宏, 欅田英之, 江馬一弘, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, "InGaN/GaN ナノコラム結晶の発光特性", 日本物理学会第 63 回年 次大会, 26aPS-18, 大阪府, 2008 年 3 月.
- 285. 猪瀬裕太, 酒井優, 大槻東巳, 欅田英之, 江馬一弘, 菊池昭彦, 岸野克己, "GaN ナノコラ ム集団における光の伝搬特性 II", 日本物理学会第 63 回年次大会, 26aPS-57, 大阪府, 2008 年 3 月.
- 286. 神村淳平、菊池昭彦、岸野克巳、"RF-MBE 法による光通信波長帯 InAlN ナノコラムの成長 評価"、応用物理学会結晶工学分科会 2008 年年末講演会、16、 東京、2008 年 12 月 11 日.
- 287. 橋本雅文, 福永和哉, 神村淳平, 欅田英之, 江馬一弘, 菊池昭彦, 岸野克巳, "InAlN および InN ナノコラムの発光特性", 日本物理学会第 64 回年次大会, 28pPSA-62, 東京都, 2009 年 3 月.
- 288. 関口寛人, 岸野克巳, 田中譲, 菊池昭彦, "RF-MBE 法・規則配列 GaN ナノコラム成長に おける InGaN 量子ドット構造の形成", 第56回応用物理学関連連合講演会, 30a-ZJ-4, 茨 城県, 2009 年 3-4 月.
- 289. 神村淳平, 岸野克巳, 菊池昭彦, "RF-MBE 法による InN ナノ結晶の選択成長", 第 56 回応用物理学関連連合講演会, 30a-ZJ-28, 茨城県, 2009 年 3-4 月.
- 290. Richard Bardoux, Akio Kaneta, Mitsuru Funato, Yoichi Kawakami, Akihiko Kikuchi, Katsumi Kishino, "Positive biexciton binding energy confined in a localized center formed in a single InGaN/GaN quantum disk", 第 56 回応用物理学関連連合講演会, 31p-ZJ-6, 茨城県, 2009 年 3-4 月.
- 291. 酒井優, 岸野克巳, 菊池昭彦, 関口寛人, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 大槻東巳, "GaN ナノコラムにおけるランダムレージング II", 第56回応用物理学関連連合講演会, 1p-ZJ-18, 茨城

県,2009年3-4月.

- 292. 征矢隆宏, 猪瀬裕太, 欅田英之, 江馬一弘, 山野晃司, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克己, " 一次元フォトニック配列した GaN ナノウォールからの第二次高調波発生", 第 56 回応 用物理学関連直合講演会, 1a-ZN-8, 茨城県, 2009 年 3-4 月.
- 293. 神村淳平、岸野克巳、菊池昭彦、"RF-MBE 法による InN ナノコラムの選択成長"、日本結晶 成長学会ナノエピ分科会、第1回窒化物半導体結晶成長講演会「窒化物半導体結晶成長の 未来を展望する」、FRI-20、東京、2009 年5月.
- 294. 関ロ寛人、岸野克巳、菊池昭彦、"Tiマスクを用いた RF-MBE 法による GaN ナノコラムの選択 成長"、日本結晶成長学会ナノエピ分科会、第1回窒化物半導体結晶成長講演会「窒化物半 導体結晶成長の未来を展望する」、SAT-14、東京、2009 年 5 月.
- 295. 小松悠二, 村本浩介, 黒江晴彦, 関根智幸, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克己, "GaN ナノコ ラム結晶の高圧下ラマン散乱", 日本物理学会 2009 年秋季大会, 27aPS-74, 熊本県, 2009 年9月.
- 296. 征矢隆宏, 猪瀬裕太, 欅田英之, 江馬一弘, 山野晃司, 関口寛人, 菊池昭彦, 岸野克巳, " 一次元フォトニック配列した GaN nanowall からの第二次高調波発生", 日本物理学会 2009 年秋季大会, 27aPS-93, 熊本県, 2009 年 9 月.
- 297. 猪瀬裕太, 江馬一弘, 大槻東巳, 関口寛人, 石沢峻介, 光野徹也, 酒井優, 菊池昭彦, 岸 野克巳, "窒化物半導体ナノコラム結晶を用いた新規発光デバイスの研究", 日本物理学会第 65 回年次大会, 22pPSB-35, 岡山県, 2010 年 3 月.
- 298. 小松悠二,三井真太郎,岩谷龍治,黒江晴彦,関根智幸,山野晃司,菊池昭彦,岸野克巳, "GaNナノウォールと規則配列GaNナノコラムにおける表面フォノンのラマン散乱", 日本物理 学会 2010 年秋季大会、25pPSB-45,大阪府立大学中百舌鳥キャンパス,大阪,2010 年9月.

### (4)知財出願

①国内出願(8件)

- 1. 「III 族窒化物半導体微細柱状結晶の製造方法および III 族窒化物構造体」、発明者:岸野 克巳、菊池昭彦、出願人:上智学院、出願日:2007 年 1 月 9 日、出願番号:特願 2007-001812.
- 「III 族窒化物半導体微細柱状結晶の製造方法および III 族窒化物構造体」、発明者:岸野 克巳、菊池昭彦、出願人:上智学院、出願日:2007 年 2 月 28 日、出願番号:特願 2007-049765.
- 3. 「Ⅲ族窒化物構造体およびⅢ族窒化物半導体微細柱状結晶の製造方法」、発明者:岸野 克巳、菊池昭彦、出願人:上智学院、出願日:2007 年 9 月 3 日、出願番号:特願 2007-227935.
- 「Ⅲ族窒化物構造体およびⅢ族窒化物構造体の製造方法」、発明者:岸野克巳、菊池昭 彦、出願人:上智学院、出願日:2007 年 11 月 27 日、出願番号:特願 2007-306654.
- 5. 「半導体素子およびその製造方法」、発明者:岸野克巳、菊池昭彦、関ロ寛人、出願人: 上智学院、出願日:平成20年9月1日、出願番号:特願2008-224129.
- 6. 「半導体素子およびその製造方法」、発明者:岸野克巳、菊池昭彦、関ロ寛人、出願人:上 智学院、出願日:平成20年9月1日、出願番号:特願2008-224131.

②海外出願(6件)

- 「Ⅲ族窒化物構造体およびⅢ族窒化物半導体微細柱状結晶の製造方法」:特願 2007-227935のPCT移行(日本、米国、EU、韓国)、出願日:平成20年9月27日、出願 番号:PCT/JP2008/002322.
- 2. 「Ⅲ族窒化物構造体およびⅢ族窒化物半導体微細柱状結晶の製造方法」:特願

2007-227935の台湾出願、出願日:平成20年9月1日、出願番号:97133451.

- 3. 「Ⅲ族窒化物構造体およびⅢ族窒化物構造体の製造方法」:特願 2007-306654のPCT 移 行(日本、米国、EU、韓国)、出願日:平成 20 年 11 月 27 日、出願番号: PCT/JP2008/003471.
- 4. 「Ⅲ族窒化物構造体およびⅢ族窒化物構造体の製造方法」:特願 2007-306654 の台湾出 願、出願日:平成 20 年 11 月 26 日、出願番号:97145730.
- 5. 「半導体光素子アレイおよびその製造方法」:特願 2008-224129 および特願 2008-224131 の PCT 移行(全指定)、出願日:平成 21 年 8 月 27 日、出願番号:PCT/JP2009/004173.
- 6. 「半導体光素子アレイおよびその製造方法」:特願 2008-224129 および特願 2008-224131 の台湾出願、出願日:平成 21 年 9 月 1 日、出願番号:98129403.
- (5) 受賞·報道等
- ① 受賞

なし

- ② マスコミ(新聞・TV等)報道
  - 1. 「生活を変える光の化学上」で紹介、日経産業新聞、2008年4月8日.
  - 2. 「イノベーションの潮流」で紹介、日経産業新聞、2008 年6 月 12 日.
  - 3. 「レーザー素子 照明応用に道」、日本経済新聞、2010年1月11日(月)

③その他

1. III-Vs Review, Elsevier (vol. 19, no. 1, p. 26, February 2006) に紹介記事

(6)成果展開事例

### ①実用化に向けての展開

■ NEDOの「ナノテク・先端部材実用化研究開発」事業に採択。 課題名「InGaN系ナノコラム結晶による新世代映像表示デバイスの開拓」(H22年度~H25年度)

## ②社会還元的な展開活動

 本研究プロジェクトによって、ナノコラム結晶の潜在性の高さを示し、国際会議の招待講演など を通じて、先導的に世界にインパクトを発信し続けてきた。GaN ナノコラム研究は、この5年間 に世界的に広がり、スペイン、ドイツ、フランス、スウエーデン、台湾、韓国、米国などで活発に 研究されている。昨年からは、ナノコラム LED の開拓を目的とする欧州プロジェクト(SMASH: Smart Nanostructured Semiconductors for Energy-Saving Light Solutions、2009 年秋~)も開 始され、ナノコラム研究に大きな潮流が起こりつつある。

# §6 研究期間中の主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

該当無し

### §7 結び

### 1. 研究の目標等から見た達成度、得られた成果の意義等の自己評価など

本研究は、ナノコラムのもつ優れた結晶特性を活用して、窒化物レーザ/LED 波長域の拡大を 阻む課題を克服すべく、単一および集団ナノコラムで発現される物性現象とナノ結晶効果を学術 的に探求し、結晶成長とデバイス作製を行って、InGaN 系窒化物半導体によって、緑色半導体レ ーザと三原色 LED 実現の基盤技術を開拓することを目標として推進した。

研究チームは、デバイス・結晶成長と物性・物理の異なった分野の研究者集団から構成され、 各研究者がその得意分野で力を発揮し、研究分担と連携が良好に機能した。結びにあたって、参 加研究者に恵まれことに感謝するとともに、研究途上で常に研究代表者を悩ませてきた目的達成 への憂慮が、杞憂であったと総括したい。計画段階における組織構築が適切であったといえよう。 さらに、研究の推進において、研究代表者の研究室および関連研究室では8名の博士課程学生 が研究に関与して成長し、50名近い修士課程学生が世界的研究水準の中で大学院教育を受け、 3名のポスドクが充分なる研究環境を得た。これは人材育成の面でわが国の将来に残しえた本研 究プロジェクトの成果といえる。

単一ナノコラムの光物性探究では、ナノコラム効果はInGaN量子井戸内の分極誘起電界を低減 化し、それによる波及効果として、InGaN系材料としてはじめて正の励起子分子束縛エネルギーを 観測した。この発見によってナノコラム構造の有用性が示され、ナノコラム光物性を支配する要因 が特定された。別の観点からこれを再確認するため、トップダウン型ナノ構造においてナノコラム側 面の歪開放とそれに起因した輻射再結合確率の増強効果との関連を明らかにし、ナノコラム物性 の理解に大きな進展をもたらした。一方、不規則配置・集団ナノコラムを対象に光のアンダーソン 局在の理論的かつ実験的研究を展開し、局在効果の単一パラメータースケーリング則を示すととも に、光のアンダーソン局在の直接観測とGaN系におけるランダムレージング観測に世界で初めて 成功した。GaN系におけるランダム物性の解明は、研究がなされてこなかった分野で、本研究チー ムによって、独自の研究領域が拓かれたといえる。

結晶成長工学の面では、分子線エピタキシー(MBE)による GaN ナノコラムの選択成長法を確立 することに成功した。当時は、研究者間にMBEによる選択成長は難しいとの共通認識があったが、 本研究はこの認識を覆して、ナノメートル領域でコラム径と位置を精密に制御し得る成長法を見出 し、ナノコラムの高精度規則配列化を達成した。この研究成果はナノコラム研究に質的変化をもた らした点でも高く評価しうる。たとえば、ランダム物性研究では、この手法を活用することで、乱数に よる人工ランダム配置 GaN ナノコラムが作製できるようになり、ランダムレージングにおいてランダム 媒質の領域サイズと発振ピーク数の関係を実験的に明らかにした。つまり、この手法によれば、パ ラメーターを系統的に制御しながらランダムレージングや光局在の実験的研究を行なうことができ、 勝手に作られるランダム媒質に依存していた従来のランダム物性研究を別次元に押し上げた。

さらに選択成長法の開拓は、本研究プロジェクトに真に革新的な成果をもたらした。す なわち、コラム径と位置制御は、自己形成ナノコラムで観測された多色発光メカニズムの解明に役 立ち、規則配列ナノコラム発光色が、コラムの径、周期、高さによって制御し得ることが実験的に示 された。この発光色制御法を活用すれば、同一基板上で赤、緑、青色 LED の一体集積化が可 能となって、三原色 LED の実現のための基礎技術が整った。本研究では規則配列ナノコラ ム LED の結晶成長とプロセス技術を完成させ、電流注入下での緑色域発光を実現した。そ こで、コラム配置を調整しながらこのプロセス技術を応用することで、異なった発光色の LED の一体集積化は、比較的容易に実現され得る。

このナノコラム LED の一体集積化によってマイクロメータ領域の微小発光面を有する三 原色 LED が実現され得る。この LED 素子は従来のデバイス構成法では実現し得ない新発想 の LED に分類されるものといえる。微細発光面 LED によれば微小領域内に光の像を結ぶこ とができるので、網膜走査型ディスプレイに活用できる。これは圧倒的な数量に対応が可 能な三原色光源の実現をもたらして、画期的なディスプレイ応用の道を拓く。

規則配列ナノコラムの実現によって、ナノコラムレーザ研究も大きく進んだ。光と周期構造との二 次元的相互作用を用いるアレイ型ナノコラムでは、波長域530-560nm で光励起緑色レーザ発振を 観測し、ナノコラムの緑色域レーザ発振可能性を示した。発振波長としての560nm は最長波長で ある。さらに本研究では、高反射率のGaN/AIN多層膜反射器(DBR)の成長法を開拓し、そのDBR 共振器内へのナノコラム集積化も行って、光励起レーザ発振を確認した。ナノコラムレーザとしては、 ナノコラムの軸方向に光を放射させる面発光レーザを研究目的としているが、本研究成果によって 面発光型緑色域ナノコラムレーザの基礎技術が確立されたと結論付けられる。

電流入動作が実証されたナノコラム LED 構造を組み込み、レーザ構造とすればよく、電流注入 レーザまでもう一歩で、岸野グループ研究成果の(2)項「研究成果の今後期待される効果」で述べ たように、ナノコラムで発現されるナノ結晶効果によって、直面している緑色半導体レーザの課題が 克服され、レーザ高性能化への道が拓かれると考えている。

### 2. 研究室の雰囲気など

クレスト研究によって多くの学生が世界的水準の研究環境の中で、研究活動を溌溂として行ない、 それぞれ社会に雄飛していった。研究費助成をいただいたことに、心より感謝したい。



rf プラズマ窒素源分子線エピタキシー (窒化物系結晶成長に用いる2台の成長室 を装備、写真は学生がロードロック室に結 晶成長用基板を投入している様子)



FIB/SEM 複合装置 (結晶に微細加工を施す FIB 装置、高性能 な SEM 機能を装備、成長/加工後のナノ結 晶観察に利用)



クレスト研究推進中の岸野研究室 (2009 年夏 軽井沢上智セミナーハウスにて)