

論文の内容の要旨

論文題目 Fabrication of Nitride-Based Quantum Dots and Their Application to Optical Devices

(和訳 窒化物半導体量子ドットの形成と光デバイスへの応用)

氏名 橋 浩一

可視光から紫外光領域で発光する短波長光デバイスの実現を目指し、窒化物半導体 (GaN 系) の研究が盛んに行われている。短波長発光素子の応用として、フルカラーフラットディスプレイパネルや光ディスクの記録密度の増大、高精細なレーザプリンタなど、様々な用途が期待されている。現在では $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子井戸を活性層に用いた青色、緑色、白色発光ダイオードはすでに製品化されている。また $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子井戸を活性層に用いたレーザにおいても、光ディスク書き込み用途に必要な出力 30mW 動作で長寿命のものが作製されている。ただし、しきい値電流密度は数 kA/cm^2 と GaAs 系量子井戸レーザに比べると高い。

一方、デバイスの高性能化を図るために量子ドットに関する研究が GaAs 系を中心に行われてきた。量子ドット構造は 3 次元的に電子を閉じ込める究極の閉じ込め構造であり、量子ドット構造をレーザの活性層に導入すると、特性温度 T_0 の向上、低しきい値電流密度など、レーザ特性が飛躍的に向上することが理論的に示されている。近年、GaN 系においても量子ドット構造に関する研究が報告されているが、GaN 系量子ドットの研究は緒についたばかりである。

本論文では、GaN 系量子ドット光デバイス実現に向けて、量子ドット構造の形成過程と光学評価について述べる。

第1に、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドット の自然形成について調べた。自然形成による量子ドットにおいては、結晶の成長機構のみを用いるので構造の微細化や高密度化が容易であるという利点を持つ。試料の結晶成長には、有機金属気相成長法 (Metalorganic Chemical Vapor Deposition, MOCVD) を用いた。成長圧力は $1.0 \times 10^5 \text{ Pa}$ である。基板としては、一般に使用されている Al_2O_3 (0001) を用いた。ただし、 Al_2O_3 (0001) を使っても GaN との格子定数差は 16% あり、いかに高品質なバッファ層を成長できるかがその上に成長させる構造にも影響を与える。本研究では、 Al_2O_3 (0001) 上に 490°C で GaN 低温バッファ層を 25nm 成長させた後、 1071°C で GaN を $2\mu\text{m}$ 程度成長させる 2 段階成長法を用いた。Root-mean-square 粗度が 0.17nm と極めて平坦な表面が得られていることを原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscopy, AFM) によって確かめた。その後、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ を供給することにより、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットを自然形成させる。 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 供給量 (0.53~20mono-layer) や成長温度 ($675\sim 770^\circ\text{C}$) を系統的に変化させることにより、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットの成長条件に対する振る舞いが、InAs/GaAs 系に代表される自然形成量子ドットのそれと類似していることが分かった。ここで In 組成比 x は、0.2~0.4 である。図1に $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 自然形成量子ドットの AFM 像を示す。図1で量子ドットの平均直径と高さはそれぞれ 16nm と 4nm であり、密度は $1.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ である。また、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 自然形成量子ドットの単一ドット分光にも取り組み、線幅が $170\mu\text{eV}$ と非常に狭いフォトルミネッセンス (Photoluminescence, PL) を観測した。これは、量子ドット中の 3 次元量子閉じ込めを反映したものであると考えられる。さらに、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットを成長方向に積層化することによって、全体の量子ドット密度と PL 強度が増加することを見出した。

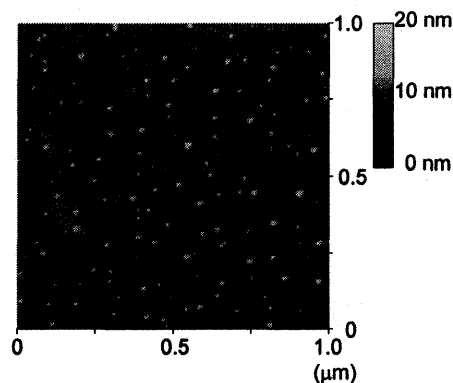


図1: $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 自然形成量子ドットの AFM 像

第2に、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットの選択成長について調べた。選択成長による量子ドットの形成では、リソグラフィーによってパターンニングした基板上で成長を行うので、量子ドット構造の均一性や位置の制御性が優位である。 $\text{SiO}_2/\text{GaN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 基板上に、フォトリソグラフィーによって $4\mu\text{m}$ 周期で1辺が $2\mu\text{m}$ の正方形のパターンを描画する。成長温度 945°C で GaN を成長した場合に、GaN 六角錐構造が形成されることを走査電子線顕微鏡 (Scanning Electron Microscopy, SEM) を用いて見出した。その後、 $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}/\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ 多重量子井戸構造を3周期成長させる。膜厚は全面成長で $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ 量子井戸 2.4nm 、 $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ バリア層 4.1nm に相当する。GaAs系選択成長の類推より材料は頂上付近に集まりやすいと考えられ、図2(a)のように六角錐構造の頂上部分に $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットが形成されると考えられる。図2(b)は実際の試料のSEM鳥瞰像である。均一な六角錐構造が形成されていることが確認できる。試料の断面像より、六角錐構造の先端の曲率半径は 30nm

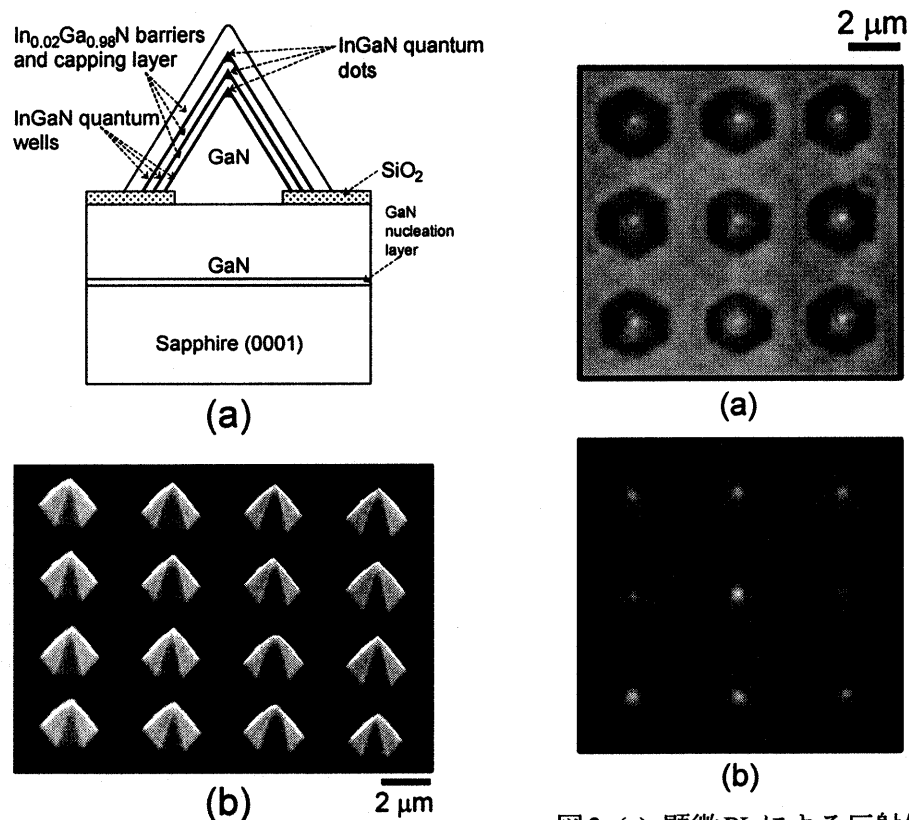


図2: (a)選択成長による $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットの模式図、(b)実際の試料のSEM鳥瞰像

図3: (a) 顕微PLによる反射像、(b)波長 430nm の発光像

以下であり、先鋭な構造であることが分かる。量子ドットの横方向の大きさも、先端の曲率半径と同じ程度であると考えられる。室温において PL 評価を行ったところ、ピーク波長 430nm において $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットからの明瞭な発光を観測した。発光位置を特定するために、150~200nm という非常に高い空間分解能を有する顕微 PL によって発光像を調べた。図 3(a)は顕微 PL による反射像であり、均一な六角錐構造を明瞭に見ることができる。これより、高空間分解能が達成できていることが分かる。一方、図 3(b)の 430nm の発光像では、頂上部分でしか発光が観測されなかった。発光の空間的な半値幅は 330nm であり、顕微 PL の空間分解能と同程度である。このことより、六角錐構造の頂上に $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットが形成されていると言える。

第 3 に、GaN 量子ドットの選択成長について調べた。GaN は $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ と比較して大きなバンドギャップエネルギーを有するので、紫外光領域で発光するデバイスを作製する上で適している。また $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットと比較して、混晶ではないため考察や解析を行いやすくなる。SiO₂/GaN/Al₂O₃ 基板上に上述と同様に、GaN 六角錐構造を形成する。その後、GaN/Al_{0.2}Ga_{0.8}N 多重量子井戸構造を 20 周期成長する。膜厚は全面成長で GaN 量子井戸 1.4nm、Al_{0.2}Ga_{0.8}N バリア層 3.2nm に相当する。選択成長による $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 量子ドットの場合と同様に六角錐構造の頂上部分に GaN 量子ドット構造が形成されると考えられる。SEM 断面像より先端の曲率半径は 10nm 以下であった。このことから、非常に先鋭な構造であることが分かる。GaN 量子ドットの横方向の大きさは、この曲率半径と同程度であると考えられる。

第 4 に、これまでの知見で得られた GaN 系量子ドット構造を、光デバイスに応用することを試みた。10 層積層化した $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 自然形成量子ドットを活性層に有するリッジ型レーザ構造を作製し、室温において光励起によって評価を行った。明確なしきい値が観測されたことや、発振後のスペクトル線幅が分解能以下まで細くなったことから、GaN 系量子ドットレーザを初めて実現したと言える。

以上をまとめると、本論文では、GaN 系において量子ドット構造の形成を行い、その光学特性を明らかにした。また、GaN 系量子ドット構造を活性層に有するレーザ構造を作製し、室温においてレーザ発振を確認した。