

論文の内容の要旨

論文題目 Fabrication and Characterization of III-Nitride Semiconductor Nanocavity Light Emitters
(和訳 III 族窒化物半導体微小共振器型光源の作製と評価に関する研究)

氏名 有田 宗貴

近年、原理的に盗聴不可能な暗号通信としての量子暗号通信が注目されている。量子鍵配布では単一光子の列を自在に送受信できることが望ましく、実用化に向けて単一光子発生器の研究が盛んに行われている。衛星経由量子通信においては回折損を低減できる短波長が有利であり、窒化物半導体を用いて単一光子発生器を構成すれば、このような要求に応えられる。また、他の一般的な半導体と比較して励起子結合エネルギーが大きいため、窒化物半導体量子ドットを利用すれば室温でも安定して単一光子を発生させることができると期待される。一方、単一光子発生器の効率を高めるための工夫として微小共振器構造の導入が挙げられる。微小共振器によって光の取り出し効率が改善されるとともに、放射パターンを制御を通じて外部光学系との結合効率の改善も見込まれる。

垂直微小共振器の基本構造は面発光レーザと共通する点が多い。現在実用化されている窒化物半導体青紫色レーザは端面発光型であるが、これが面発光レーザに置き換えられれば、低しきい値、高速変調、優れた温度特性、二次元集積化などの面発光レーザの特長に加え、既存の青紫色レーザでは実現が困難な鋭い指向性や、真円に近い理想的なモードパターンなども得られると期待される。

本論文では、電流注入型青色面発光レーザや短波長単一光子発生器の実現に向けた研究である、III 族窒化物半導体微小共振器型光源の作製と評価について述べる。

第一に、面発光デバイスの要素技術である導電性窒化物半導体ミラーの結晶成長を行い諸特性について調べた。窒化物半導体の結晶成長は有機金属気相成長法(Metalorganic Chemical Vapor Deposition: MOCVD)を用いて行った。基板にはc 面サファイア(Al_2O_3)を用い、

低温(450~480°C)でGaNバッファ層を堆積した後、約1070°CでGaNを成長する。一方InGaN量子井戸層、AlGaIn/GaN DBR に最適な成長温度はそれぞれ720~820°Cおよび1092°Cである。まず一様ドーピングの条件におけるSiドーピング量依存性を調べた結果、 $1 \times 10^{18}/\text{cm}^3$ 程度のキャリア濃度であればほぼノンドーピング DBR と遜色ない反射率を得られることがわかった。続いてDBR全体の平均キャリア濃度を $5.0 \times 10^{17}/\text{cm}^3$ に固定してDBR総周期数を変化させたところ、広い範囲でノンドーピング DBR とほぼ同等の反射率が得られることがわかった。さらに、n-GaN層キャリア濃度を $1 \times 10^{18}/\text{cm}^3$ に固定してn-AlGaIn層キャリア濃度のみをおよそ $3 \times 10^{18}/\text{cm}^3$ まで高めれば、光学的特性を劣化させずに電気的特性を改善できることが分かった。また、臨界膜厚以下の極薄膜で形成されたAlGaIn/GaN超格子構造を導入し、クラックの発生を抑制しつつ直列抵抗の低減を図った。26周期の超格子DBRを実際に作製し、GaIn層とAlGaIn/GaN超格子とがほぼ完全にpseudomorphicに結晶成長していること、光学的特性に関しても反射率94.5%と、通常のDBRと全く遜色ない反射率が得られることを確認した。電流駆動面発光レーザーへの応用の観点から42周期DBR(33周期ノンドーピングDBR上の9周期n型DBR)を成長し、99%の反射率を確認した。

第二に、窒化物半導体面発光デバイス用のデバイスプロセスを開発した。一般的に窒化物半導体面発光デバイスに用いられる誘電体DBRは絶縁性であるため電流注入方法に工夫が必要となる。本論文ではまず金属リング型電極について検討しキャリアの拡散長の問題を指摘した。その上でこの問題を解決すべく共振器内透明電極として酸化インジウムスズ(Indium Tin Oxide: ITO)を利用した。スパッタ成膜されたITO膜を窒素雰囲気中でアニールすることにより電気特性と透過率が改善される。また、窒化物半導体の高密度アレイの作製に最適な二層レジストを用いたリソグラフィ技術を確認した。さらに、高反射率の窒化物半導体DBRを高品質かつ大面積で均一に得るための基板処理法を開発した。

第三に、これらの知見を応用してInGaIn垂直微小共振器型LEDを試作し、その特性について調べた。図1に作製した構造の概略図を示す。n-GaN/n-AlGaIn DBR(26周期)の上に、n-GaN:Si層、InGaIn量子井戸活性層、p-GaN:Mg層からなる3λキャビティを構成した。Mg活性化アニール、ITO(40nm)スパッタ成膜に続き、Cl₂/Xeプラズマエッチングでメサを形成した。最上面にSiO₂/ZrO₂誘電体多層膜(10.5周期)をEB蒸着によって積層しフッ酸でパターニングした後、n型DBR表面にn型電極(Al)を真空蒸着によって形成した。作製した素子のELスペクトル(図2(a))において、明瞭な微小共振器の効果による単色性の向上を確認した。キャビティのQ値はおよそ110と見積もられた。また、発光の放射角依存性を通常のLED構造と比較したところ、指向性の向上(図2(b))および放射角度の増大に伴う発光ピーク波長の短波長へのシフトが明瞭に観測された。

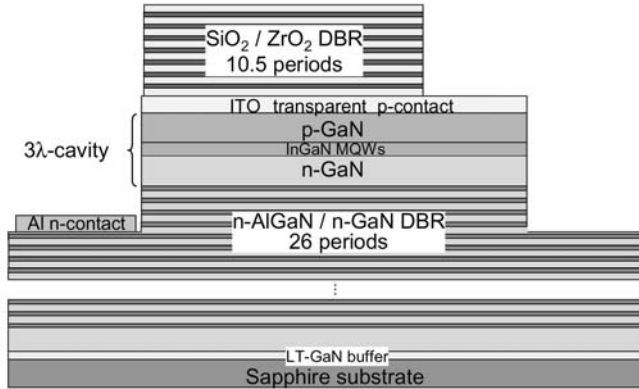


図 1. 作製した InGaN 垂直微小共振器 LED の構造概略図

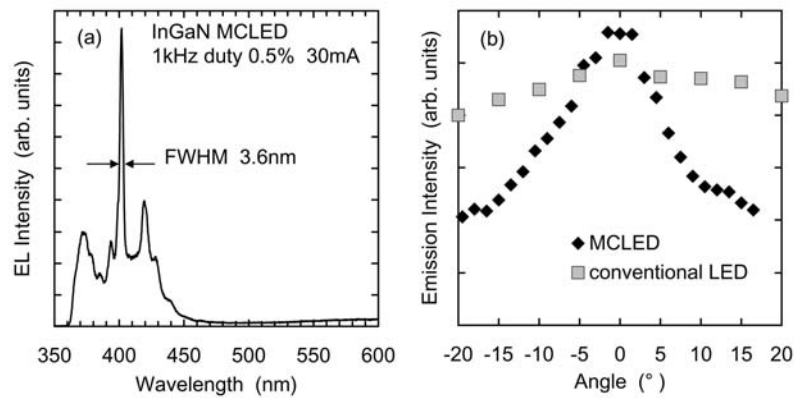


図 2. 微小共振器 LED の (a) EL スペクトル および (b) 放射角特性

また、作製した素子の電気的特性は、超格子DBRを利用することによって通常のDBRより良好な電気的特性が得られることが分かった。過去に例のない窒化物半導体DBRの縦方向電気伝導を実現した本研究の成果がもつ意義は大きい。

第四に、III族窒化物半導体フォトニック結晶微小共振器の作製プロセスを開発した。窒化物半導体の屈折率は比較的小さいため、それらを用いてフォトニック結晶微小共振器を構成する場合いくつかの課題が存在する。共振波長が短波長であるためフォトニック結晶パターンを微細化する必要が生じ、150nm程度の周期構造を作製可能な微細加工技術が必須となる。また、GaN量子ドットの成長に通常用いられる6H-SiC基板はフォトニック結晶スラブの構成材料であるAlNよりも高い屈折率を持つため、この基板を除去しない限り

共振器中への光の閉じ込めは不完全なものとなる。本研究では 6H-SiC 基板の除去方法を独自に開発し、AlN エアブリッジ構造を作製することに初めて成功した。具体的には、光電気化学エッチングを用いて 6H-SiC 基板を AlN との界面に沿って横方向にエッチングすることができることを見出した。この結果 AlN エピタキシャル膜が広い範囲(典型的には直径 30~50 μm)に亘ってリフトオフされるとともに、その内部に結晶成長時に蓄積された面内圧縮歪みも開放され、再現性よく凸型エアブリッジ構造を得ることが可能である。図 3 にこのようにして得られた AlN エアブリッジ構造の模式図(図 3a)およびレーザ顕微鏡による実際の構造の観察像(図 3b)を示す。図 4 にはフォトニック結晶構造の電子顕微鏡観察像を示す。円孔マスクパターンを使用したにもかかわらず六角形の空孔が得られた。これは結晶方位を反映したものであり、反応性イオンエッチングや光電気化学エッチング中に起こった化学反応によって、化学的に不安定な指数面が選択的に除去される結果と考えられる。

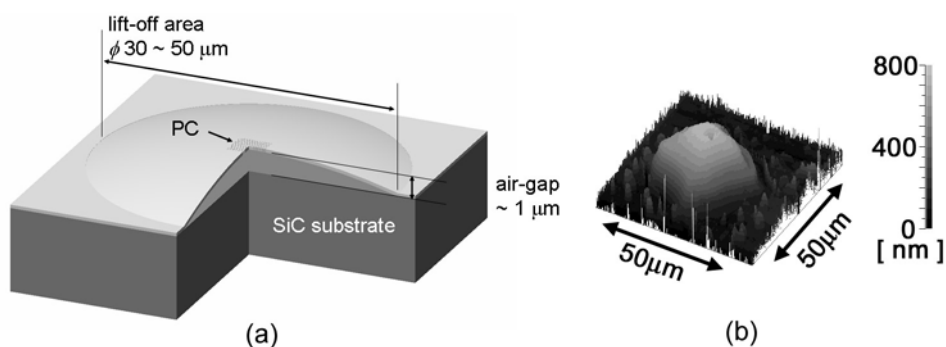


図3. AlNエアブリッジフォトニック結晶構造の(a)概略図 および(b)レーザ顕微鏡像

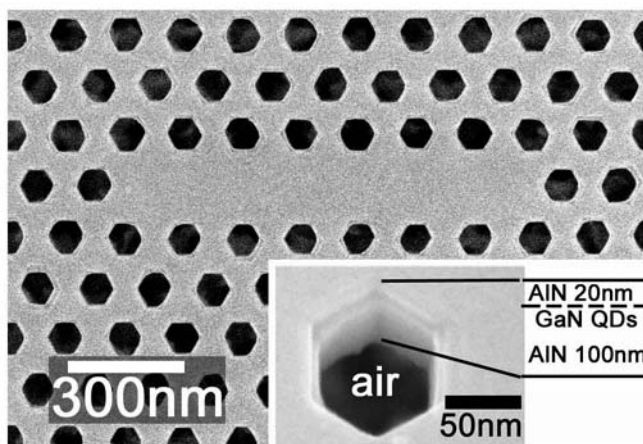


図4. AlNフォトニック結晶の電子顕微鏡像

第五に、上述の新たな手法によって作製した、GaN 量子ドットを含む AlN フォトニック結晶微小共振器の光学特性を評価した。顕微フォトルミネッセンス測定は室温で行い、励起光源には波長 266nm のモード同期レーザを使用した。サンプルからの発光を NA0.6 の対物レンズで集光し、さらにピンホールを通過させて測定範囲を空間的に制限した(プローブ範囲の直径約 2 μ m)。サンプルからの発光は分光器に接続された CCD カメラによって検出される。図 4 に示されるような構造を L7 共振器と呼ぶが、この L7 共振器でフォトニック結晶周期の異なる複数の試料についてフォトルミネッセンス測定を行った結果を図 5 に示す。これらの共振器はすべて同一の充填率($r/a=0.30$)を有する。すべての共振器から鋭いピークが観察され、なおかつフォトニック結晶の周期に従ってこのピークがシフトしていることがわかる。また、これらの発光は共振器の位置に空間的に局在していることが発光像から確かめられた。観測されたピークが共振器モードであることを強く示唆している。周期 150nm の L7 共振器において、基本モードの発光線幅から求めた共振器 Q 値は、2,400 以上という高い値であった。この値は現時点で窒化物半導体フォトニック結晶として最高の値である。これらの結果は本研究において作製された窒化物半導体微細構造の品質が十分高いものであることを示す。

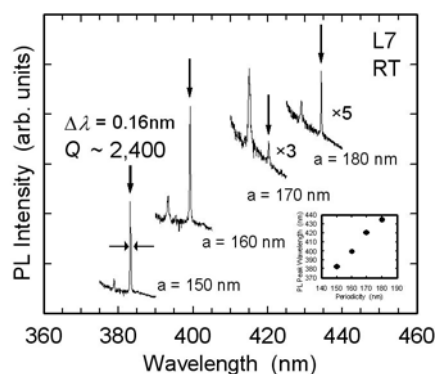


図5. AlNフォトニック結晶のPLスペクトルとピーク波長の周期依存性

以上をまとめると、本論文ではn型AlGaIn/GaN DBRの成長を行い、窒化物面発光デバイスプロセス基盤技術を開発した。この知見を応用してInGaIn垂直微小共振器型LEDを作製し、その特性を確認した。また、AlNエアブリッジ構造の作製方法を独自に開発し、窒化物半導体フォトニック結晶ナノ共振器において史上最高値である Q 値2,400を達成した。これらの成果は窒化物半導体単一光子発生器や電流注入型青色面発光レーザなどの革新的な光デバイスのさらなる研究進展に大きく寄与するものである。