研究成果報告書 科学研究費助成事業



交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3.000.000円

研究成果の概要(和文):本研究は砒化ガリウム材料および窒化ガリウム材料における量子構造の最適化と両面 金属導波路構造の作製技術の構築を行うことで、テラヘルツ帯量子カスケードレーザの最大の課題である動作温 度の高温化を実現することを目的とした。 砒化ガリウム系材料において変調障壁層と電子引抜障壁層を量子カスケード構造に組み込むことで、145 Kまで の高温動作化に成功した。窒化ガリウム系材料における両面金属導波路構造の作製技術構築では、メタルボンディング条件を確立しレーザアブレーションを施すことによって窒化ガリウム系量子構造をサファイア基板から剥 離することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究は量子カスケードレーザ(QCL)の課題である動作温度の高温化を目指しており、本課題の遂行によって砒 本研究は量子ガスゲードレーザ(dcc)の課題でのる動作温度の高温化を自指しており、本課題の逐行にようで祉 化ガリウム(GaAs)系材料で145 Kまでの高温化を達成した。また窒化ガリウム(GaN)系材料では高温動作に有利な 両面金属導波(DMW)構造の作製技術の構築を目指した。DMW構造の完成までには至らなかったが、その前段である 基板からの量子構造の分離プロセスまでの技術を獲得した。病理組成診断・危険物検査・半導体物性検査等様々 な分野での応用が期待できるTHZ光を身近な光にするためには小型堅牢なTHZ-QCLの室温動作化が必須であり、本 研究成果は高温動作化のための重要な知見が得られたと考えられる。

研究成果の概要(英文):A fabrication process of double metal waveguide structures on gallium-nitride materials and a design of functionalizing quantum cascade structures on gallium-arsenide materials are investigated for the purpose of higher temperature operation of terahertz quantum cascade lasers. High temperature operation up to 145 K is realized by incorporating a modulation- and an electron-barrier extraction layers to quantum cascade structures on gallium-arsenide materials. On the establishment of the fabrication process for double metal waveguide structures on gallium-nitride materials, the lift-off of gallium-nitride quantum structures from sapphire substrates is realized by optimizing metal bonding conditions and applying laser ablation.

研究分野:半導体工学、電子デバイス、光デバイス

キーワード: 量子カスケードレーザ テラヘルツ 窒化物半導体 砒化ガリウム 両面金属導波路

Е

1. 研究開始当初の背景

(テラヘルツ応用)

300-30 µm の波長領域に位置するテラヘルツ(THz)光は物質・構造を非破壊かつ安全に検出する 光源として、病理組成診断・医薬品検査・危険物所持検査・半導体物性検査など、様々な分野へ の応用に期待されている。また THz 光は周波数が現行の電波に比べ 3-4 桁高いため超高速大容 量無線通信事業への応用にも期待されている。

(量子カスケードレーザの特長と現状)

電流注入型の半導体サブバンド間遷移(ISBT)発光を利用した量子カスケードレーザ(QCL)は超小型素子(数 mm³)・連続動作・高効率・高出力・長寿命・狭線幅といった特長を有していることから、簡便に扱える実用型 THz レーザ光源として期待されている。

(窒化物半導体系 THz-QCL の魅力)

申請者が世界に先駆けて着目してきた窒化物半導体を用いた THz-QCL は、材料の電子-LO フ オノン散乱周波数帯が 18-22 THz 帯と巨大であるため、事実上の標準材料である砒化ガリウム (GaAs)系半導体では本質的に難しい周波数領域 5-12 THz 帯でのレーザ発振が期待できる[①]。 (これまでの研究成果)

最近、これまでの知見から独自に考案した「純粋3準位レーザ構造」を用いた窒化ガリウム(GaN) 系 THz-QCL において、世界で初めて未踏周波数帯 5.5 THz でのレーザ発振を実現した[②]。し かし、その発振温度は5Kと極低温に留まっている。発振が極低温に留まっている大きな要因の 一つに小さな光閉じ込め効率が挙げられる。THz 帯の光導波路には表面プラズモンを利用した 金属導波路が用いられる。現行の導波路構造には量子カスケード構造の上面のみに金属を配置 した表面プラズモン導波路(SPW)型が用いられている。この構造は通常の半導体レーザプロセス と同様の方法で作製ができるためデバイス工程が比較的簡単な半面、片面しか光を導波しない ため光閉じ込め係数Γが0.5程度と低く光損失が大きい。一方、量子カスケード活性層両面に金属 を配置した両面金属導波路(DMW)構造は光閉じ込めをほぼ1にし、光損失を劇的に低減できる ので、動作温度の高温化や閾値電流の低減化が期待できる。しかし、過去に窒化物半導体光デバ イスに対して DMW 構造を施した例はなくその技術は確立されていない。

2. 研究の目的

本課題は窒化物半導体材料を用いたテラヘルツ帯量子カスケードレーザ(THz-QCL)における両 面金属導波路(DMW)構造の新機軸作製技術を構築することで、GaN 系 THz-QCL の動作温度の 高温化を実現することを目的とする。

研究の方法

まずサンプル基板とレセプタのメタルボンディングを行う。温度、圧力をパラメータとして最 適なボンディング条件を確立する。次にサンプル側基板のレーザリフトオフを行う。レーザの繰 り返し周波数や強度をパラメータとして均一大面積でリフトオフできるレーザアブレーション 条件を獲得する。次にレーザリッジ構造及び上面への金属パターンの作製を行い、DMW 構造有 する THz-QCL デバイス特性を評価する。以上の手法で両面金属導波路構造の作製技術を構築し GaN 系 THz-QCL の動作高温化を目指す。

4. 研究成果

(1)GaN 系 THz-QCL の新機軸 DMW 構造作製技術の構築

①メタルボンディング条件の探索

サンプル基板にはサファイア基板上 GaN 膜を、レセプタ基板には GaAs 基板を用いた。ウェハ ーサイズは 1 cm² とした。両基板表面に 10/180/10/500 nm 厚の Ti/Al/Ti/Au を蒸着した。基板温度 は 200-360 ℃、加圧力は 10-200 kg/cm² とし、金属表面同士を張り合わせ窒素雰囲気中でメタル ボンディングを行った。ボンディング時間は 40 分とした。図 2 に温度 200 ℃、加圧力が 50 kg/cm² と 100 kg/cm² のときの断面 SEM 像(金属部分)を示す。加圧力 50 kg/cm² で行ったサンプル では金属同士の境界が見えており融着できていなかった。一方、加圧力 100 kg/cm² で行ったサン プルは金属同士の界面がみえず完全に融着されている様子がわかった。図 3 にボンディング状 態の温度と加圧力の関係図を示す。丸、三角、バツ点はそれぞれ、融着でできた、融着できたが 基板が割れた、基板同士が剥がれた、状態を示している。加圧力が 20 kg/cm²以下では基板同士 の融着がされず、120 kg/cm²以上では基板にクラックが入ることが分かった。また 180 ℃以下の 基板温度でも基板同士が剥がれてしまうことが分かった。金属の合金化による導波路としての 機能劣化を考慮すると、サファイア/GaN 基板と GaAs 基板を用いた Au ボンディングの最適条 件は基板温度 200 ℃、加圧力 100 kg/cm² (40 分保持)であることが分かった。 ②サファイア基板からのレーザリフトオフ

193 nm ArF エキシマレーザの繰り返し周波数や強度をパラメータとして均一大面積でリフトオフできるレーザアブレーション条件の探索を行った。図 4 に特定の条件で行ったレーザアブレーション後の GaAs 基板とサファイア基板の表面光学写真を示す。貼りつけた面積の 1/4 程度ではあるがサファイア基板上の膜が剥離し GaAs レセプタ基板上にリフトオフしていることがわ

かる。図5にサファイア基板における剥離されなかった部分の断面 SEM 像を示す。Al_{0.8}Ga_{0.2}N 層と Al_{0.8}Ga_{0.2}N:Si 層界面に隙間があるのが見える。GaN モル分率が高くなるこの界面でレーザ アブレーションが起き、層の剥離ができることを確認した。

図 1: GaN 系 THz-QCL の新機軸 DMW 構造作製技術構築に向けた研究手順



 \boxtimes 2: Cross-sectional SEM images for samples bonded at the pressures of 50 kg/cm² in (a) and

100 kg/cm² in (b) at the temperature of 200 $^{\circ}$ C.



Fabrication of laser ridge structure and upper waveguide

 \boxtimes 3: Correlation chart of the bonding state plotted by a function of temperature and pressure.



図4: レーザアブレーション処理後のGaAs レセプタ基板とサファイア/GaN-QC構造 基板(その上に量子カスケード構造を成膜 しているサンプル)の表面写真



図5: レーザアブレーション処理後のサフ ァイア基板側の断面SEM像(リフトオフは できなかった部分).



(2)変調障壁層、電子引抜障壁層を用いた GaAs 系 THz-QCL の高温動作化

本研究では、量子カスケード構造設計の側面からも THz-QCL の高温動作化に対する知見を得たいと考え、まず基本の材料である GaAs 系材料を用いた量子構造設計を行い、THz-QCL 素子作製及び電流注入測定を行った。基板には半絶縁 GaAs 基板を用いた。その上にエッチング層Al0.6Ga0.4As/下部コンタクト層 n-GaAs/~10 µm 厚量子カスケード構造(GaAs/Al_xGa1-xAs)/上部コンタクト層 n-GaAs を分子線エピタキシ法で成膜した。量子カスケード構造は4つの量子井戸(4つの障壁層)からなる構造を1周期とし185周期積層した。GaAs レセプタ基板上 Cu 蒸着膜とのメタルボンディングを行い、成膜側の GaAs 基板を除去した。フォトリソグラフィ及びドライエッチングを施し Cu 電極を蒸着することで両面金属導波路レーザリッジ構造を完成させた。図6に

ベースとなる量子構造(a)と本研究で新たに導入した変調障壁層及び電子引抜障壁層を用いた量 子構造(b)を示す。量子井戸構造設計の過程において、以下のことが明らかになった。①従来同じ 組成の障壁層を用いて構成していた量子カスケード層のうち、発光領域にある障壁層の電子エ ネルギー高さを低くし、またその膜厚を厚くすること(変調障壁層の導入)で、発光上位準位から 発光下位準位への非発光な電子散乱を低く抑えることができ、より大きな利得を得ることがで きる。また、発光上位準位と下位準位の空間的な波動関数の重なりを小さくすることができ結果 として選択的な波長の制御が容易になる。②電子引抜領域に障壁層高さが高く膜厚が薄い障壁 層を置くこと(電子引抜層の導入)によって、発光下位準位から電子引抜準位への効率的な電子の 引抜きができる。また発光上位準位から電子注入層への電流リークを小さくすることができ結 果大きな利得を得ることができる。図7に、図6(b)の量子カスケード構造を用いて作製したDMW-THz-QCLの電流密度-電圧-出力特性を示す。挿入図には77Kにおける発振スペクトル(3.7 THz) を示す。従来の構造(図 6-a)での最高動作温度は112Kであったのに対し、新しい構造(図 6-b)の 最高動作温度は145Kと上昇した。本研究で行った GaAs 系 THz-QCL の電温動作化のための量子 設計に非常に重要な知見が得られた。







図7:変調障壁層、電子引抜障壁層を有する GaAs-THz-QCLの電流密度-電圧-出力特性(挿入 図)発振スペクトル@77 K



<引用文献>

- W. Terashima and H. Hirayama: "Design and fabrication of terahertz quantum cascade laser structureb ased on III-nitride semiconductors", Phys. Status Solidi C, 6(S2) S615-S618 (2009). DOI 10.1002/pssc.200880772
- ② 発明者: <u>寺嶋亘</u>、平山秀樹:「窒化物半導体量子カスケードレーザ」出願番号 2014-165222:
 出願日 2014 年 8 月 14 日

〔雑誌論文〕(計3件)

- 1. 平山秀樹、<u>寺嶋亘</u>、林宗澤、佐々木美穂:「テラヘルツ量子カスケードレーザーの進展と今後の展望」、応用物理、2015年10月号, vol. 84, no. 10, pp. 918-923 (2015). (査読有)
- 2. <u>寺嶋亘</u>、平山秀樹:「GaN 系未開拓波長 QCL の進展」、信学技報、Vol. 115, No. 387, P. 31-35 (2015). (査読有)
- <u>W. Terashima</u> and H. Hirayama: "Terahertz frequency emission with novel quantum cascade laser designs", SPIE Newsroom, URL: <u>http://spie.org/x115009.xml</u>, August 19 (2015). (査読有) 〔学会発表〕(計5件)
- 1. <u>寺嶋亘</u>:「「未来の光」テラヘルツ光と未開拓領域テラヘルツ量子カスケードレーザの開発」、工学院大学年末講演会 2015、工学院大学八王子キャンパス、東京、2015 年 12 月 26 日.(Oral)
- <u>W. Terashima</u> and H. Hirayama: "Precise Growth Control of AlGaN/GaN Superlattices by MBE and MOCVD for Developing GaN-based THz Quantum Cascade Lasers", Energy Material and Nanotechnology (EMN) 3CG 2015 Collaborating Conference on Crystal Growth, Hong Kong, China, Dec. 14-17 (2015). (Oral)
- <u>W. Terashima</u>: "Development of GaN/AlGaN based Terahertz Quantum Cascade Lasers", Energy Material and Nanotechnology (EMN) Hong Kong Meeting, Hong Kong, China, Dec. 9-12 (2015). (Oral)
- <u>W. Terashima</u> and H. Hirayama: "Up to 40 K lasing operation of 5.7 THz GaN/AlGaN quantum cascade laser", The 6th International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-6)", Hamamatsu, Japan, Nov. 8-13 (2015). (Oral)
- 5. <u>W. Terashima</u> and H. Hirayama: "GaN-based terahertz quantum cascade lasers", SPIE, Terahertz Physics, Devices, and Systems IX, Advanced Applications in Industry and Defense (SPIE-DSS), Baltimore, Maryland, USA, April 20-24 (2015). (Oral)

[その他]

ホームページ http://www2.riken.jp/lab/optodevice/

6. 研究組織

(1)研究分担者
 研究分担者氏名:該当なし
 ローマ字氏名:
 所属研究機関名:
 部局名:

職名: 研究者番号(8桁):

(2)研究協力者 研究協力者氏名:林 宗澤 ローマ字氏名:Tsung-Tse Lin

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。