

平成 30 年 6 月 20 日現在

機関番号：13801

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K18048

研究課題名(和文)窒化物半導体マルチサイズディスクアレイによる準レーザー特性発光素子の開発

研究課題名(英文)Development of solid light emitting elements showing sub-laser performance based on multi-size nitride-microdisk arrays

研究代表者

光野 徹也(kouno, tetsuya)

静岡大学・工学部・准教授

研究者番号：20612089

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、マイクロディスクに発現が見込まれるウィスパーリングギャラリーモード微小光共振現象の応用により高効率の発光デバイスの実現に取り組んだ。従来の微細加工技術に水素雰囲気熱エッチングを組み合わせ、直径数ミクロン程度の窒化物マイクロディスクとこれらのアレイを作製した。光励起下では、マイクロディスクからウィスパーリングギャラリーモードによるレーザー発振と考えられるシャープなピークを有する発光スペクトルを得た。また、デバイス構造を有するマイクロディスクアレイを作製し電流注入発光を確認した(現段階ではシャープなピークは含まれない)。以上よりマイクロディスクによる高効率発光デバイス実現への可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we tried to develop high efficiency solid light emitting elements (optical devices) based on a whispering gallery mode optical microcavity in a microdisk. With the combination of the typical microfabrication techniques and hydrogen environment thermal etching technique, we fabricated the nitride microdisks with the diameters of a few microns and arrays of them. Under optically pumped condition, we obtained photoluminescence spectra having sharp peaks from microdisks, which were considered to be lasing actions resonated by whispering gallery modes. Moreover, fabricating the arrays of the microdisks having a pn-junction by the techniques, we observed electron-luminescence from them under current injection conditions (however, we did not observe sharp peaks in those spectra). These results show that such microdisks are expected to be applied to high efficiency optical devices.

研究分野：電子デバイス・電子機器

キーワード：窒化物半導体 マイクロディスク ウィスパーリングギャラリーモード

### 1. 研究開始当初の背景

照明やディスプレイなどの発光デバイスの高効率化が求められている。発光ダイオード(LED)の普及により電力の効率的な利用が進められているが、さらなる高効率化は現在と将来のエネルギー消費の観点から求められている。近年、これら発光デバイスに原理的に量子効率が飛躍的に高い半導体レーザーダイオード(LD)の応用も検討されているが、通常のLDではそのコヒーレンス性と指向性の強い高出力光は眼球を損なうため照明などに応用することにはハードルがある。本研究では、このLDの有する優位な特徴を照明やディスプレイに応用するための技術を開拓する。これまで研究代表者らは、結晶成長により直径数 $\mu\text{m}$ 程度の六角形状のGa<sub>2</sub>Nマイクロディスクがナノ支柱に支えられたキノコのような特異構造を作製してきた。この構造では、光が全反射しながら周回するウィスパーリングギャラリモード(WGM)が発現することが見込まれ、高い光閉じ込め特性を有している。従って、このマイクロディスク構造は低閾値・高電力効率な微小なLDとして機能することが予想される。ここで、マイクロディスクの光学利得の範囲で光共振波長はマイクロディスクの光の周回長によるため、レーザー共振波長はマイクロディスクの大きさに依存する。そこで、異なるサイズのマイクロディスクを一体集積(アレイ化)すれば、アレイ全体から放出されるレーザー光の共振波長に拡がりをもたせることができると考えた。これにより、個々のマイクロディスクは高い電力効率のLDを実現しつつ、アレイ全体からの発光はコヒーレンスを低くできる可能性がある。これは、低いコヒーレンスにより眼球にとって安全性を確保しつつ飛躍的に高い効率のLDであることが予想される準(Sub-)LDとも表現できる新規コンセプトの次世代発光素子となる。そこで本研究では、この異なるサイズのマイクロディスクを半導体結晶構造に大面積にパターニングとエッチングにより一体集積し特性を発揮する構造を探索する。これによりSub-LDの実証に向けて取り組んだ。

### 2. 研究の目的

本研究では、窒化物半導体結晶からなるマイクロディスク構造及びこれらをアレイ化した窒化物マイクロディスクアレイを作製し、これら構造によったSub-LDと研究代表者らが呼称する新規コンセプトの発光デバイスの開拓を目的とした。具体的には、(1) 窒化物半導体結晶からなるマイクロディスクの特性を明らかにすること。(2) 窒化物半導体結晶からなるマイクロディスクの作製とこれらをアレイ化するための作製技術を開拓することの2点を主たる目的として研究を実施した。

### 3. 研究の方法

#### (1) 窒化物マイクロディスク構造の作製

窒化物マイクロディスク構造の作製するための基板としては、市販されている窒化物半導体結晶薄膜を用いた。主にc面サファイア基板上にGa<sub>2</sub>N/AlGa<sub>2</sub>Nなどの薄膜結晶が成長された基板を用いた(実験の目的に応じて結晶構造の詳細は異なる。例えば電流注入型発光デバイスの検討には、pn接合及び活性層を有する薄膜結晶を用いた)。窒化物マイクロディスク構造は下記に示す方法により作製した。はじめに、電子ビームリソグラフィと反応性イオンエッチングにより、マイクロディスクの表面から見たときの幾何形状を作製する。なお、マイクロディスクの形状は自由に設計できる。有田ら(東京大)や菊池ら(上智大)が報告した水素雰囲気を用いたGa<sub>2</sub>Nの選択的熱分解ガスエッチング手法を応用する。研究代表者らは、石英管を管状炉により加熱したりアクターに水素ガス流しながら油回転ポンプにより真空排気する方法によりGa<sub>2</sub>Nの選択的なエッチングを実施した。このエッチングによりGa<sub>2</sub>N上のAlGa<sub>2</sub>Nをベースとするレイヤーはほとんどエッチングされないが、Ga<sub>2</sub>Nはエッチングされることで、AlGa<sub>2</sub>NをベースとするレイヤーをマイクロディスクとしGa<sub>2</sub>Nの支柱によって支えられる構造を作製した。作製フロー概要の一例を図1に示す。

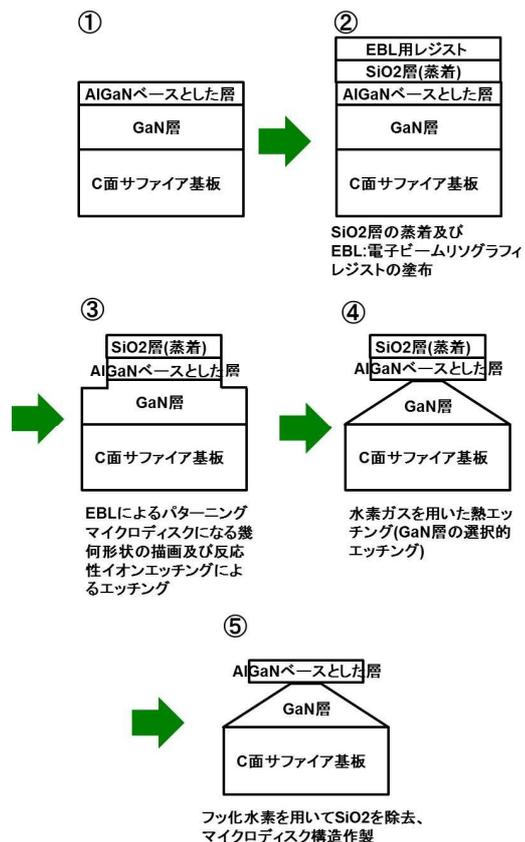


図1. 窒化物マイクロディスク  
作製フローの概要図一例

#### (2) 窒化物マイクロディスク構造の評価

作製した試料の形状評価には、電子線顕微鏡を用いた。光学特性評価にはレーザによる光励起による光学特性評価を行った。また、窒化物マイクロディスク構造が有する微小光共振の特性を必要に応じて有限時間領域差分法などにより検討した。

#### (3) 窒化物マイクロディスクをアレイ化したデバイスの作製と評価

pn ジャンクションを有する(半導体発光デバイス構造を有する)窒化物半導体薄膜から(1)で示した作製方法により窒化物マイクロディスクアレイを作製した。アレイ化した窒化物マイクロディスクに電流を注入することによってする評価のため、蒸着の手法により電極を形成した。また、アレイ化した窒化物マイクロディスクによるデバイス実現に向けた特徴的な課題を解決するため ZnO 結晶をマイクロディスク上に形成及びエッチングする試みについても検討した。

#### (4) 結晶成長による GaN マイクロディスク結晶等の評価によって窒化物マイクロディスクのポテンシャルの検討

本研究構想の基礎となった結晶成長の手法により作製した GaN マイクロディスクなどの結晶の評価をエッチングの手法により作製した窒化物マイクロディスクの検討と並行して進めることで、窒化物マイクロディスクによる発光デバイスのポテンシャルを検討した。

なお、研究の進捗状況及び当初想定していなかった課題などに柔軟に対応しながら研究目的達成に向けて研究遂行できるように取り組んだ。

引用文献： M. Arita et al., Appl. Phys. Express 5, 126502 (2012). R. Kita et al., Jpn. J. Appl. Phys. 54, 046501 (2015).

#### 4. 研究成果

下記に主な研究成果を列記する。

##### (1) 異なる形状の窒化物 (AlGaIn) マイクロディスクの作製と光学評価

形状が異なる窒化物 (AlGaIn) マイクロディスクを作製し、その光学特性を評価した。主な形状としては六角形、四角形、三角形、円形などである。大きさとしては数マイクロメートル程度(作製した AlGaIn マイクロディスクのうち小さいものでは 1 マイクロメートル以下も作製した。)であり、AlGaIn マイクロディスクの厚さは数 100 nm である。これらの光学特性(フォトルミネッセンス法による)を評価した。多くの AlGaIn マイクロディスクからウィスパーリングギャラリモードに起因する光励起レーザ発振と考えられるシャープなピークを含む発光スペクトルを確認した。強度やシャープな発光スペクトルを得

るのに必要な光励起パワーと形状との関係は现阶段では明確な結論には至っていない。数値計算上は円形のマイクロディスクが高いパフォーマンスが予想された。また、大きさや形状が異なる AlGaIn マイクロディスク複数個を同時に光励起するとピーク波長が異なる多数のシャープなピーク発光スペクトル中に現れる現象を確認した。これは、研究代表者らが提案した「発振波長の拡がり」の基本的なコンセプトと考えられる。

##### (2) 窒化物 (AlGaIn) マイクロディスクを接続したマイクロディスクアレイの作製と光学特性評価

窒化物 (AlGaIn) マイクロディスクが各々孤立してはマイクロディスクをアレイ化した場合に全体に電流を注入できない。そこで、マイクロディスクの一部分を幅数 100 nm の架橋により接続するようにパターンニングをすることで AlGaIn マイクロディスクアレイを作製した。典型的な試料の電子線顕微鏡像を図 2 に示す。これら接続した AlGaIn マイクロディスクアレイからも形状のパラメータにもよるが光励起下では各々のマイクロディスクがウィスパーリングギャラリモードによって光励起レーザ発振したと考えられるシャープなピークを発光スペクトル中に確認した。

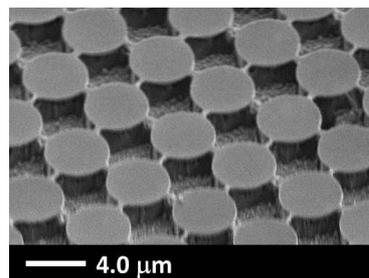
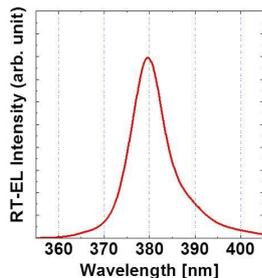
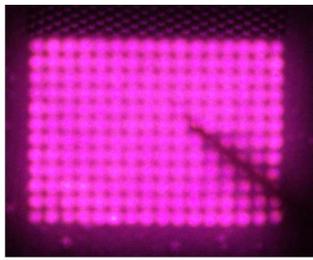


図 2. 接続した窒化物 (AlGaIn) マイクロディスクアレイの電子線顕微鏡像 (一例)

##### (3) 窒化物 (AlGaIn) マイクロディスクを接続したマイクロディスクアレイによるデバイスの作製と評価

図 2 で示したような接続した窒化物 (AlGaIn) マイクロディスク構造を、pn 接合及び活性層を有する薄膜結晶から作製し、デバイスプロセスののち電流注入評価を行った。図 3 に電流注入発光の様子とそのスペクトルの一例を示す。本結果より、マイクロディスクの作製プロセスを経たうえで接続したマイクロディスクアレイからエレクトロニルミネッセンスを得たことは、これらプロセスによって発光層や p 型層が決定的にダメージを受けることはない可能性を示唆している。しかしながら、光励起下で確認されたシャープなピークは確認されなかった。いくつかの課題があると推察されるが、その 1 つについて検討した結果を次項目に示す。



**図 3. 接続した窒化物 (AlGaIn) マイクロディスクアレイに電流注入による発光像 (エレクトロニルミネッセンス (EL)) と EL 発光スペクトルの一例**

(4) 窒化物マイクロディスクデバイスに向けた酸化物結晶を用いたプロセスの検討

電流注入下では窒化物マイクロディスクからはシャープピークを有する発光スペクトルは確認されなかった。マイクロディスクの上面に電極を一様に形成することでマイクロディスクを支える支柱部 (中央部) に電流が流れやすいことがその原因の 1 つと予想された。ここで、ウィスパーリングギャラリーモードにより共振する光はマイクロディスク外周 (側壁) 近傍に局在しやすいため外周近傍に十分な電流を注入し、十分な発光利得を得る必要があると考えた。そこで、マイクロディスク中央部に電流注入の障壁となるマイクロ構造をダメージレスに作製する手法としてミスト CVD 法によりマイクロディスク上への ZnO 系結晶の作製と本構造の水素を用いた低温 (GaIn をエッチングする温度に対して) のエッチングに取り組んだ。ZnO 薄膜はミスト CVD 法により形成可能性を見出すとともに、マイクロディスク構造を外形上は損なうことなく水素を用いた熱エッチングによりマイクロディスク上の ZnO 結晶をエッチングできる条件を見出した。

(5) 窒化物マイクロディスクを用いたマイクロセンサとマイクロセンサアレイの検討

ウィスパーリングギャラリーモードが発現するマイクロディスクをアレイ化する技術開拓の進捗に伴いマイクロディスクをアレイ化したマイクロセンサへの応用という当初予定していなかった展開が期待された。マイクロディスクは個々にマイクロセンサとして機能しつつ、一体集積されたアレイはマイクロ領域で個々のセンサ情報を創出するため 2 次元的なイメージを構築できる可能性を実験的に見出した。

(6) 結晶成長による窒化物マイクロディスク等による光学特性検討

高品質結晶と考えられる窒化物マイクロディスクもしくはナノプレートによりウィスパーリングギャラリーモードにより共振する光の周回する方向が一方向である可能性を見出すとともに、直径が  $1\mu\text{m}$  より小さいナノプレートアレイによる白色光源の可能性など、本研究のターゲットであるマイクロディスクの新たな側面・可能性を見出した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

Tetsuya Kouno, Masaru Sakai, Hoshi Takeshima, Sho Suzuki, Akihiro Kikuchi, Katsumi Kishino, and Kazuhiko Hara, “Microsensors based on a whispering gallery mode in AlGaIn microdisks undercut by hydrogen environment thermal etching”, *Applied Optics* **56**, 3589~3593, (2017). 査読; 有

Tetsuya Kouno, Masaru Sakai, Katsumi Kishino, Akihiro Kikuchi, Naoki Umehara, and Kazuhiko Hara, “Crystal structure and optical properties of a high-density InGaIn nanoumbrella array as a white light source without phosphors”, *NPG Asia Materials* **8**, e289-1~7, (2016). 査読; 有

Tetsuya Kouno, Sho Suzuki, Masaru Sakai, Katsumi Kishino, Kazuhiko Hara, “Periodic radiation patterns and circulating direction of lasing light by quasi whispering gallery mode in hexagonal GaIn microdisk”, *Journal of the Physical society of Japan (Letter)* **85**, 053401-1~4, (2016). 査読; 有

〔学会発表〕(計 5 件)

光野 徹也 他, 窒化物マイクロディスクアレイによる発光デバイスの検討, 第 78 回応用物理学会学術講演会, (2017 年).

Sho Suzuki, Tetsuya Kouno et al., Lasing Action in floated connection type AlGaIn microdisks (Tu-B14), The 6<sup>th</sup> International Symposium on Growth of III-nitride (ISGN-6), (2015).

Sho Suzuki, Tetsuya Kouno et al., AlGaIn Microdisks on Top of Supporting GaIn Columns Fabricated using Hydrogen Environment Anisotropic Thermal Etching (PS-8-10), International conference on Solid State Device and Materials (SSDM-2015), (2015).

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

光野 徹也 (KOUNO, Tetsuya)

静岡大学・工学部・准教授

研究者番号: 20612089