

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：33919

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15182

研究課題名（和文）窒化物系混晶半導体のサブギャップ領域における光物性解明とLD用低損失光共振器開発

研究課題名（英文）Optical characterizations in the sub-bandgap energy region of nitride semiconductor alloy thin films for the development of low-internal-loss LD waveguides

研究代表者

今井 大地 (Imai, Daichi)

名城大学・理工学部・准教授

研究者番号：20739057

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では主に青・緑色面発光レーザーの光共振器等に応用されているAlInN混晶薄膜において、レーザー駆動時の損失源となり得るバンド端以下のエネルギー領域（サブギャップ領域）における光吸収過程の解析を行った。バンド端近傍の光学定数は分光エリブソメトリーにより解析し、光学定数やバンドギャップを精度良く解析するための最適なモデルを提案した。更にこれと光熱偏向分光法を組み合わせ、AlInN混晶薄膜におけるサブギャップ領域の微小な光吸収過程の観測とそれを引き起こす起源を明らかにした。また吸収係数の定量評価についても見通しがたっている。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の学術的意義は、素子レベルに高品質な窒化物系混晶半導体薄膜において、サブギャップ領域の微小な光吸収過程とそれを引き起こす起源の解析、さらには吸収係数の定量評価に向けた基盤技術が構築されたことである。将来的には、窒化物系端面発光半導体レーザー（LD）や面発光レーザー（VCSEL）を構成する混晶半導体において、レーザー駆動時に損失を引き起こすサブギャップ領域の物性制御指針を、実験解析に基づき具体的に提示することが可能となると考えている。これにより窒化物系LDやVCSELの高効率・高出力化や動作波長域の拡大による省エネルギーな次世代光素子開発に貢献したい。

研究成果の概要（英文）：In this work, we have analyzed below-bandgap optical absorption processes in AlInN thin films, which may lead to internal absorption losses of nitride-based laser diodes and/or VCSELs. Optical constants near the band-edge region and bandgap energies were analyzed by spectroscopic ellipsometry (SE). Sub-bandgap optical absorption processes were observed and analyzed by photothermal deflection spectroscopy (PDS). In SE analyses, we have proposed suitable model-dielectric-functions for AlInN alloys. Sub-bandgap optical absorption processes of AlInN thin films were successfully observed and analyzed by the PDS. It was also revealed that, by combining the SE and PDS measurements, absorption coefficients in sub-bandgap energy region of AlInN thin films could be estimated.

研究分野：半導体工学

キーワード：窒化物半導体 面発光レーザー AlInN サブギャップ 光熱偏向分光法 分光エリブソメトリー

## 1. 研究開始当初の背景

窒化物半導体は、主要二元化合物とそれらの混晶組成比の制御により、原理的には深紫外から近赤外の幅広い波長域の光素子を作製でき、これまで紫から緑色の高出力な端面発光 LD が実用化された。LD の更なる動作効率向上や動作波長域拡大には、素子を構成する混晶半導体の物性制御が重要である。例えば、可視光領域の端面発光 LD の発光層や、光を増幅する光共振器に用いられる GaInN 混晶では、GaN と InN に働く強い非混和性や約 11% の大きな格子不整合により混晶組成が空間的に偏り、バンドエネルギーにばらつきが生じる。これにより、LD では発振波長の広がりによる利得の低減や、導波する光の自己吸収による共振器損失が起こる。In 組成の増加に伴いこのばらつきは大きくなり、発振波長の長波長化に伴う閾電流密度増大や、動作効率の急激な低減を引き起こす要因の一つとなっている [1, 2]。また近年、低閾値かつ小型・高出力な次世代光源として、面発光型 LD (VCSEL) の開発が進められ、導電性を有する GaN/Al<sub>0.82</sub>In<sub>0.18</sub>N 混晶による分布ブラッグ反射鏡 (DBR) を搭載した青色発光 VCSEL の室温連続発振が報告された [3]。共振器長が短いため (端面発光型の約 1/100)、レーザー発振のためには 99.9% に及ぶ高反射率が共振器端の DBR に要求されるが、それを構成する AlInN 混晶のバンドエネルギーのばらつきは GaInN 混晶の 2 倍以上との報告がある [4]。0.1% 台の厳密な反射率制御が必要なため、AlInN 混晶のサブギャップ領域の光学特性制御は、より一層重要である。このように、いずれの場合も LD の高効率化、動作波長域拡大には、混晶半導体のサブギャップ領域における物性制御が極めて重要である。しかし、サブギャップ領域の吸収係数は一般に 10<sup>3</sup>cm<sup>-1</sup> 台未満と小さく、吸収係数を評価する代表的手法である透過測定で検出するには、数十 μm の厚膜が必要であることを意味する。またこの値は一般的な分光エリプソメトリーでは測定限界近傍である。臨界膜厚等の問題により素子レベルの結晶性を維持できるのは高々数 10 ~ 数 100 nm 程度であるため、混晶半導体薄膜では解析の困難性が高く、サブギャップ領域における吸収係数やその制御指針には不明な点が多い。

## 2. 研究の目的

本研究では、実際の素子同様に欠陥密度の少ない臨界膜厚以下の混晶半導体においてサブギャップ領域の光吸収過程を解析する素子応用に有効な解析手法を確立し、光吸収を引き起こす起源の解明と制御指針の構築を目的とした。具体的には、光熱偏光分光法 (PDS 法) を中心に、複数の光学測定手法を組み合わせることでサブギャップ領域を解析し、それを基礎吸収端近傍から高エネルギー領域の光学定数解析において高い精度を有する分光エリプソメトリーと相互に補完して吸収係数を導出する。まずは可視端面発光 LD や VCSEL に応用されており、サブギャップ領域の物性制御が重要な AlInN 混晶を対象とした。

## 3. 研究の方法

バンド端近傍の光学定数は分光エリプソメトリーにより解析し、サブギャップ領域における光吸収過程は PDS スペクトルから解析した。またサブギャップ領域における吸収係数は、PDS スペクトルと分光エリプソメトリー、透過測定を組み合わせることで、その定量評価を試みた。PDS 測定系は研究初年度に独自のシステムを構築した。PDS 法はモノクロ光源により半導体試料を励起し、励起された試料の非発光再結合過程で発生する熱を観測することで光吸収係数を評価する手法である。サブギャップ領域で吸収されたキャリアは、深い準位を介した発光または非発光再結合過程により基底状態に戻るため、非発光再結合が支配的であれば、PDS 信号強度は吸収係数に比例する [5, 6]。窒化物半導体では深い準位に直接励起されたキャリアの非発光効率が不明であるため、支配的な再結合過程をフォトルミネッセンス (PL) 測定を用いて解析した。

## 4. 研究成果

PDS 法のみでは吸収係数の絶対値を決めることは難しいため、バンド端近傍では分光エリプソメトリーや透過測定により吸収係数の絶対値を評価する必要がある。また素子応用が進められている Al<sub>0.82</sub>In<sub>0.18</sub>N 混晶薄膜は GaN 上に成膜されており (GaN と a 軸格子整合するため) そのバンドギャップエネルギーは GaN (3.4 eV) よりも大きい。数百 nm の薄膜の場合、透過測定では GaN の強いバンド間光吸収が表れるため、AlInN 混晶のみのバンド端近傍 (4.0 eV 以上) の吸収係数を評価することは困難である。そこで本研究では分光エリプソメトリーによる評価を行った。

分光エリプソメトリーでは試料で反射した光の P/S 偏光成分の振幅比と位相差に相当するスペクトルが得られ、そのスペクトルを誘電関数モデルによりフィッティングすることで光学定数を導出する。これまで窒化物半導体では、GaN、AlN、InN の二元化合物や AlGaIn 混晶に対し、六方晶ウルツ鉱構造におけるエネルギーバンド構造の各特異点を異なる理論式を組み合わせることで表現した Adachi Critical-point モデル (AC モデル) により良好な解析結果が得られることが報告されている ([7] など)。一方、AlInN 混晶はその結晶性などから非晶質に用いられる Tauc-Lorentz モデル (T-L モデル) による解析がなされてきた。そこでバンド端近傍で正確な光学定数

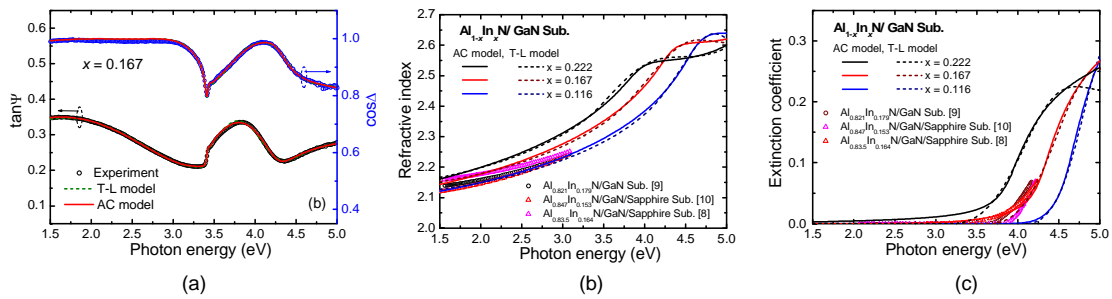


図1 (a) GaN 基板上 AlInN 混晶における  $\tan\psi$ 、 $\cos\Delta$  スペクトルと誘電関数モデルによるフィッティング。SE 解析より得られた (b) 屈折率と (c) 消衰係数のエネルギー分散関係。

を導出するため、本研究ではまず誘電関数モデルの検討を行った。図1(a)に AC モデル、T-L モデルで解析した GaN 基板上 AlInN 混晶の  $\tan\psi$  および  $\cos\Delta$  スペクトルを、スペクトル解析から得た屈折率および消衰係数スペクトルをそれぞれ図1(b)、(c)に示す。どちらのモデルにおいても良好なフィッティング結果が得られているが、屈折率スペクトルは両モデルでほぼ重なっている一方で、消衰係数スペクトルはバンド端から低エネルギー側にかけて大きな違いがみられた。T-L モデルで消衰係数が小さく見積もられているのはモデル上で  $T_{auc}$  ギャップ以下の消衰係数を 0 と仮定していることが要因の一つと考えられる。またこの領域における消衰係数の大きさは分光エリプソメトリーによる測定限界近傍であるため、正確な値を分光エリプソメトリーのみで決めることは困難である。これに関連して、T-L モデルからバンドギャップを導出する際に用いる  $T_{auc}$  プロットでは、AlInN 混晶の吸収スペクトルがブロードなことに起因して、スペクトル解析の範囲により見積もられるバンドギャップエネルギーが大きく変化してしまうため、導出する際には注意を要することがわかった。一方で AC モデルではフィッティングパラメータから一意にバンドギャップエネルギーを決定でき、その値は反射スペクトルのファブリー・ペロー干渉振動が消失するエネルギーから見積もったバンドギャップエネルギーとも良い一致を示すことを明らかにした [11, 12]。

図2は GaN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> テンプレート上に成膜された AlInN 混晶の PDS スペクトルである。GaN テンプレートに対し、その上に AlInN 混晶を成膜した試料では GaN のバンド端以下の領域において PDS 信号の増大が観測された。更にこれらの試料の PDS 信号強度は PL スペクトルのバンド端発光強度が小さい試料ほど大きくなる傾向が得られており、このことから PDS 信号強度の増大は AlInN 混晶のサブギャップ領域における光吸収過程によることを明らかにした。PDS 信号強度の増加傾向は分光エリプソメトリー解析から得られた吸収係数の試料間における大小関係とも良い一致を示していることから、AlInN 混晶のサブギャップ領域における支配的な光吸収過程は非発光性の深い準位により引き起こされているものと推察される。サブギャップ領域では非発光過程が支配的であるとして、SE から見積もった消衰係数スペクトルと PDS スペクトルを相互に補完してこれらの試料のサブギャップ領域における吸収係数を見積もると  $7 \times 10^2 - 8 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$  という値が得られた [13]。今後は吸収係数の導出精度向上と、更に小さな吸収係数を見積もる試料においても解析を進める。

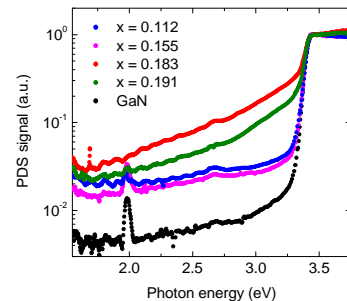


図2 GaN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> テンプレート上 AlInN における PDS スペクトル。X は In 組成比。

以上のように、本研究では主に分光エリプソメトリーと PDS 法を用いて AlInN 混晶薄膜のバンド端近傍からサブギャップ領域にかけての光吸収過程解析に取り組んだ。分光エリプソメトリー解析では光学定数解析に用いる最適な誘電関数モデルを検討し、精度よく光学定数を導出した。さらにこれと PDS スペクトルを組み合わせることで、数百 nm の AlInN 混晶におけるサブギャップ領域の光吸収過程の観測と吸収係数の定量評価の可能性を示すことができた。今後は深い準位に励起されたキャリアの非発光効率の定量化に基づく吸収係数の導出精度向上や、更に小さな吸収係数の見積りに取り組む予定である。

#### 参考文献

- [1] R. M. Farrell, P. S. Hsu, D. A. Haeger, K. Fujito, S. P. DenBaars, J. S. Speck, and S. Nakamura, *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 231113 (2010).
- [2] G. Muziol, H. Turski, M. Siekacz, P. Wolny, S. Grzanka, E. Grzanka, P. Perlin, and C. Skierbiszewski, *Appl. Phys. Express* **8**, 032103 (2015).
- [3] K. Ikeyama, Y. Kozuka, K. Matsui, S. Yoshida, T. Akagi, Y. Akatsuka, N. Koide, T. Takeuchi, S. Kamiyama, and M. Iwaya, *Appl. Phys. Express* **9**, 102101 (2016).

- [4] K. Wang, R. W. Martin, D. Amabile, P. R. Edwards, S. Hernandez, E. Nogales, K. P. O'Donnell, K. Lorenz, E. Alves, V. Matias, A. Vantomme, D. Wolverson, and I. M. Watson, *J. Appl. Phys.*, **103**, 073510 (2008).
- [5] W. B. Jackson, N. M. Amer, A. C. Boccara, and D. Fourier, *Appl. Opt.* **20**, 1333 (1981).
- [6] M. Sumiya, S. Ueda, K. Fukuda, Y. Asai, Y. Cho, L. Sang, A. Uedono, T. Sekiguchi, T. Onuma, and T. Honda, *Appl. Phys. Express* **11**, 021002 (2018).
- [7] K. Takeuchi, S. Adachi, and K. Ohtsuka, *J. Appl. Phys.* **107**, 023306 (2010).
- [8] M. Miyoshi, M. Yamanaka, T. Egawa, and T. Takeuchi, *Appl. Phys. Express* **11**, 051001 (2018).
- [9] M. Miyoshi, M. Yamanaka, T. Egawa, and T. Takeuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SC1006 (2019).
- [10] T. Aschenbrenner, H. Dartsh, C. Kruse, M. Anastasescu, M. Stoica, M. Gartner, A. Pretorius, A. Rosenauer, T. Wagner, and D. Hommel. *J. Appl. Phys.* **108**, 063533 (2010).
- [11] D Imai, Y Murakami, R Miyata, H Toyoda, T Yamaji, M Miyoshi, T Takeuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59** (12), 121001 (2020).
- [12] H Toyoda, Y Murakami, R Miyata, D Imai, M Miyoshi, T Takeuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **61** (SA), SA1017 (2022).
- [13] 村上 裕人, 豊田 隼大, 久保 寿敏, 正木 京介, 今井 大地, 宮嶋 孝夫, 三好 実人, 竹内 哲也, 第 69 回応用物理学会春季学術講演会 23p-E202-14, (2022).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Daichi Imai, Yuto Murakami, Rino Miyata, Hayata Toyoda, Tomoaki Yamaji, Makoto Miyoshi, Tetsuya Takeuchi and Takao Miyajima	4. 巻 59
2. 論文標題 Analysis of the optical constants and bandgap energy in Al <sub>1-x</sub> In <sub>x</sub> N alloys grown on a c-plane freestanding GaN substrate by using spectroscopic ellipsometry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 121001-1, -7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/abc29f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hayata Toyoda, Yuto Murakami, Rino Miyata, Daichi Imai, Makoto Miyoshi, Tetsuya Takeuchi, Takao Miyajima	4. 巻 61
2. 論文標題 Near-bandgap optical properties of Al <sub>1-x</sub> In <sub>x</sub> N thin films grown on a c-plane freestanding GaN substrate	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SA1017-1, -5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac148a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Hayata Toyoda, Yuto Murakami, Rino Miyata, Daichi Imai, Makoto Miyoshi, Tetsuya Takeuchi and Takao Miyajima
2. 発表標題 Near-bandgap optical properties of Al <sub>1-x</sub> In <sub>x</sub> N thin films grown on a c-plane freestanding GaN substrate
3. 学会等名 ISPlasma2021/IC-PLANTS2021（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 豊田 隼大, 村上 裕人, 宮田 梨乃, 今井 大地, 宮嶋 孝夫, 三好 実人, 竹内 哲也
2. 発表標題 分光エリプソメトリーを用いたAl <sub>1-x</sub> In <sub>x</sub> N混晶の光学特性解析における 誘電関数モデルの検討
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 豊田 隼大, 村上 裕人, 宮田 梨乃, 今井 大地, 宮嶋 孝夫, 三好 実人, 竹内 哲也
2. 発表標題 分光エリブソメトリーを用いたサファイア基板上Al <sub>1-x</sub> In <sub>x</sub> N混晶のバンド端近傍における光学特性解析
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 村上 裕人, 豊田 隼大, 久保 寿敏, 正木 京介, 今井 大地, 宮嶋 孝夫, 三好 実人, 竹内 哲也
2. 発表標題 サファイア基板上Al <sub>1-x</sub> In <sub>x</sub> N混晶薄膜における基礎吸収端以下の光吸収過程
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関