

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 4 月 27 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26600082

研究課題名(和文)光源集積型波長変換による深紫外レーザーの超小型化に関する研究

研究課題名(英文)Development of Compact Deep-UV Laser Based on Wavelength Converter Integrated with Blue Laser Light Sources

研究代表者

片山 竜二 (Katayama, Ryuji)

大阪大学・工学研究科 教授

研究者番号：40343115

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：近年実用化された青色半導体レーザーよりも短波長にあたる深紫外域の半導体レーザーは、半導体微細加工や医療分野でのニーズが高いにも関わらず、未だ実現されていない。これに対し本研究では、従来とは全く原理の異なる深紫外光の発生方法を提案した。AlNの強い光学非線形性を利用して青色半導体レーザーの波長を変換し、深紫外波長域にあたる第二高調波を発生するための素子作製・設計と光学測定の要素技術を開発した。

研究成果の概要(英文)：Despite the strong needs for the semiconductor lithography and medical applications, still the semiconductor laser with a deep-UV emission has never been realized. In this work, novel methods for emitting deep-UV has been proposed, via the second harmonic generation in UV regime, pumped by blue laser diodes, based on the wavelength conversion process taking advantage of strong optical nonlinearity in AlN. Also, the elemental technologies for the device fabrication, design as well as the optical investigation have been developed.

研究分野：量子光学

キーワード：非線形光学 第二高調波発生 窒化アルミニウム 酸化ジルコニウム パルスレーザー堆積 反応性スパッタリング 光導波路

## 1. 研究開始当初の背景

近年、窒化物半導体である InGaN を用いた白色・青色の可視域固体光源の実用化が進み、従来の白熱灯やガスレーザを置換することで、劇的な省エネルギー化やコンパクトな情報記録デバイスが実現されている。特に青色半導体レーザの出力は向上し、ソニーと東北大学の研究により現在はピーク出力 100 W を超える報告がなされた。一方これより短波長にあたる深紫外域の半導体発光素子は半導体微細加工や医療分野でのニーズが高いにも関わらず、未だ実現されておらず、依然として電力消費が激しく、かつ大型のレーザ装置を用いる必要がある。これは、紫外波長域で発光する窒化アルミニウムガリウム (AlGaIn) 結晶が極めてワイドギャップであるため、不純物添加による伝導性制御が本質的に困難であり、従来の半導体レーザ構造による電流注入励起が実現できないことが原因である。よって、従来とは全く原理の異なる深紫外光の発生方法の開発が急務である。

## 2. 研究の目的

これに対し本研究では既報とは全く異なる、AlGaIn の伝導性制御に因らないアプローチを提案した。具体的には、AlN が強い二次の光学非線形性 (光の波長を変換する性質) を有することに着目し、これを活性層とした光非線形導波路を作製し、同種材料である InGaIn を用いた青色域半導体レーザと集積化することで、深紫外波長域にあたる第二高調波 (青色の半分の波長の深紫外光) 発生のための要素技術の開発を目的とした。その際、素子長 10 mm 程度で変換効率は 100% に達し、トータルな効率は InGaIn レーザと等しくなる。これにより従来のレーザ装置より超省エネルギー・コンパクト・高輝度な深紫外コヒーレント光源を世界に先駆けて実現することを狙った。

## 3. 研究の方法

本研究では、ZrO<sub>x</sub>/AlN 積層光導波路型波長変換素子の作製と設計プロセスの開発と、素子構造の試作、非線形光学測定系の構築といった要素技術の開発を行った。

### (1) パルスレーザ堆積による AlN 成膜

非線形光学活性層として機能する下部導波路層に用いる、AlN 薄膜をパルスレーザ堆積装置を用いて成膜した。その際 AlN 焼結体を KrF エキシマレーザによりアブレーションし、基板として c 面サファイア基板を用いた。この時高純度窒素ガスを導入し、成膜圧力、レーザ励起強度、基板温度を最適化することで、結晶品質・表面平坦性と膜厚の面内均一性の向上を狙った。

### (2) 反応性スパッタリングによる ZrO<sub>x</sub> 成膜

線形光学活性層として機能する上部導波路層に用いる、ZrO<sub>x</sub> 薄膜を反応性スパッタリ

ング装置を用いて成膜した。その際金属 Zr ターゲットを Ar/O<sub>2</sub> 雰囲気下でスパッタリングし、ガラス基板上にアモルファス薄膜を成膜した。この時成膜圧力、酸素分圧、基板温度を最適化し、表面平坦性と膜厚の面内均一性の向上を目指した。

### (3) 光導波路の設計

成膜した各薄膜の屈折率分散を元に、4 層スラブ光導波路構造またはチャネル光導波路構造を仮定し数値計算することで、モード位相整合を満たす導波層膜厚およびチャネル幅を決定した。

### (4) 素子構造の試作

光導波路の端面光学研磨、チャネル光導波路の試作を行った。

### (5) 非線形光学測定系の構築

実験計画の変更のため、光導波路への光学結合と第二高調波の検出に用いる光学系の再構築を行った。

## 4. 研究成果

### (1) パルスレーザ堆積による AlN 成膜

c 面サファイア基板表面を成膜チャンバ内で熱処理後に直接成膜することで、単結晶薄膜が得られることを反射高速電子線回折、X 線回折測定により確認した。また MOVPE 成膜した +c 面 GaN テンプレート上に AlN を成膜することで、単結晶薄膜が得られ、特に AlN の結晶方位が -c 極性に反転することもアルカリエッチング法により確認した。

### (2) 反応性スパッタリングによる ZrO<sub>x</sub> 成膜

表面粗さ  $R_a \sim 2$  nm、膜厚均一性 1% 程度の光学的に平坦で均質な ZrO<sub>x</sub> 薄膜を得た。得られた薄膜を用いて、分光光度計と分光エリブソメトリを用いた光学測定により、光学吸収端と屈折率分散を評価したところ、250 nm までの透明性と、正常分散を確認した。

### (3) 光導波路の設計

上記で成膜した各薄膜の屈折率分散を元に、まずこれら二層を組み合わせた 4 層スラブ光導波路構造における、可視から深紫外波長域にかけての第二高調波発生に要する位相整合膜厚を算出した。続いてチャネル光導波路については、有限要素法を用いたフルベクトル電磁界解析により、位相整合膜厚・チャネル幅を算出した。

### (4) 素子構造の試作

光励起による第二高調波発生の実験に必要な、素子加工条件の最適化を進めた。端面結合による光学結合のために、試料をダイス後、研磨装置を用いた光学研磨を行い、光学的に平坦な端面が得られた。またチャネル光導波路の試作を行った。チャネルパターンの描画には電子線描画装置を用い、電子線レジストにパターンを転写後、Ni 蒸着とリフトオフ

により Ni ハードマスクを形成し、誘導結合型反応性イオンエッチングを用いて窒化物薄膜をチャネル状に加工することができた。

#### (5) 非線形光学測定系の構築

実験計画にて使用を検討していたチタンサファイアレーザや Nd:YAG レーザといった光源については、前年度まで所属していた研究室に残したため、この代わりとして共用設備である大阪大学工学研究科ウルトラクリーンルーム内に設置のパルス OPO 光源（本学リノベーションセンタが管理）を用いた実験へと計画変更を行い、これに伴い新たに必要となった光導波路への光学結合と第二高調波の検出に用いる光学系の構築を行った。

研究代表者が研究期間中に異動したことから研究計画の変更を行う必要があったため、第二高調波発生の実証には至らなかったが、上記(1)～(5)で得られた要素技術を用いることで、目的とする結果が近々得られるものと期待している。

#### 5 . 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕(計 8 件)

J. Yoo, K. Shojiki, T. Tanikawa, S. Kuboya, T. Hanada, R. Katayama, and T. Matsuoka, Polarity control of GaN grown on pulsed-laser-deposited AlN/GaN templates by metalorganic vapor phase epitaxy, Jpn. J. of Appl. Phys., 査読有, 55(5S)巻, 2015, 05FA04-1-5  
DOI: 10.7567/JJAP.55.05FA04

R. Nonoda, K. Shojiki, T. Tanikawa, S. Kuboya, R. Katayama, and T. Matsuoka, Effects of Mg/Ga and V/III source ratios on hole concentration of N-polar p-type GaN grown by metalorganic vapor phase epitaxy, Jpn. J. of Appl. Phys., 査読有, 55(5S)巻, 2015, 05FE01-1-4  
DOI: 10.7567/JJAP.55.05FE01

T. Tanikawa, K. Shojiki, S. Kuboya, R. Katayama, and T. Matsuoka, Large Stokes-like shift in N-polar (000-1) InGaN/GaN multiple-quantum-well light-emitting diodes, Jpn. J. of Appl. Phys., 査読有, 55(5S)巻, 2015, 05FJ03-1-4  
DOI: 10.7567/JJAP.55.05FJ03

K. Shojiki, T. Tanikawa, J.H. Choi, S. Kuboya, T. Hanada, R. Katayama, and T. Matsuoka, Red to blue wavelength emission of N-polar (000-1) InGaN light-emitting diodes grown by metalorganic vapor phase epitaxy, Appl. Phys. Express, 査読有, 8(6)巻, 2015, 061005-1-4  
DOI: 10.7567/APEX.8.061005

K. Shojiki, J.H. Choi, T. Iwabuchi, N. Usami, T. Tanikawa, S. Kuboya, T. Hanada, R. Katayama, and T. Matsuoka, Suppression of metastable-phase inclusion in N-polar (000-1) InGaN/GaN multiple quantum wells grown by metalorganic vapor phase epitaxy, Appl. Phys. Lett., 査読有, 106(22)巻, 2015, 222102-1-4  
DOI: 10.1063/1.4922131

K. Shojiki, T. Hanada, T. Tanikawa, Y. Imai, S. Kimura, R. Nonoda, S. Kuboya, R. Katayama, T. Matsuoka, Homogeneity improvement of N-polar InGaN/GaN multiple quantum wells by using c-plane sapphire substrate with off-cut-angle toward a-sapphire plane, Jpn. J. of Appl. Phys., 査読有, 55(5S)巻, 2016, 05FA09-1-8  
DOI: 10.7567/JJAP.55.05FA09

Y.C. Lai, A. Higo, T. Kiba, C. Thomas, S. Chen, C.Y. Lee, T. Tanikawa, S. Kuboya, R. Katayama, K. Shojiki, J. Takayama, I. Yamashita, A. Murayama, G.C. Chi, P. Yu, S. Samukawa, Nanometer scale fabrication and optical response of InGaN/GaN quantum disks, Nanotechnology, 査読有, 27(42)巻, 2016, 425401-1-5  
DOI: 10.1088/0957-4484/27/42/425401

T. Iwabuchi, S. Kuboya, T. Tanikawa, T. Hanada, R. Katayama, T. Fukuda, T. Matsuoka, Ga-polar GaN film grown by MOVPE on cleaved ScAlMgO<sub>4</sub> (0001) substrate with millimeter-scale wide terraces, physica status solidi (a), 査読有, 掲載決定済  
DOI: 10.1088/0957-4484/27/42/425401

〔学会発表〕(計 1 4 件)

N. Yoshinogawa, R. Katayama, K. Shojiki, T. Tanikawa, S. Kuboya and T. Matsuoka, Investigation of Modal Dispersion in Nonlinear Optical TiO<sub>x</sub>/GaN Waveguide by m-line Spectroscopy, The 33rd Electronic Materials Symposium, 2014 年 7 月 09 ~ 11 日, ラフォーレ修善寺 (静岡県・伊豆市)  
R. Katayama, N. Yoshinogawa, K. Shojiki, T. Tanikawa, S. Kuboya and T. Matsuoka, Accurate Determination of Modal Dispersion in Nonlinear Optical TiO<sub>x</sub>/GaN Waveguide by Spectroscopic m-line Technique, International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2014), 2014 年 08 月 24 ~ 29 日, Wrocław Congress Center (Wrocław, Poland)

J. Yoo, K. Shojiki, T. Tanikawa, S. Kuboya, T. Hanada, R. Katayama and T. Matsuoka, MOVPE Growth of GaN onto PLD-Grown AlN Interlayer on GaN Templates, The 3rd International Conference on Light-Emitting

Devices and Their Industrial Applications (LEDIA '15), 2015年4月22~23日, パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

三谷 悠貴, 片山 竜二, 劉 陳燁, 正直 花奈子, 谷川 智之, 窪谷 茂幸, 松岡 隆志, 横型疑似位相整合 AlN 導波路を用いた深紫外第二高調波発生素子の設計, 日本結晶成長学会 ナノ構造エピタキシャル成長分科会 第7回 窒化物半導体研究会, 2015年5月7~8日, 東北大学(宮城県・仙台市)

J. Yoo, K. Shojiki, T. Tanikawa, S. Kuboya, T. Hanada, R. Katayama and T. Matsuoka, Polarity control of MOVPE-grown GaN on AlN/GaN templates, 日本結晶成長学会 ナノ構造エピタキシャル成長分科会 第7回 窒化物半導体研究会, 2015年5月7~8日, 東北大学(宮城県・仙台市)

J. Yoo, K. Shojiki, T. Tanikawa, S. Kuboya, T. Hanada, R. Katayama and T. Matsuoka, Polarity-controlled MOVPE growth of GaN on PLD-AlN templates, The 34th Electronic Materials Symposium, 2015年7月15日~17日, ラフォーレ琵琶湖(滋賀県・守山市)

Y. Mitani, R. Katayama, J. Yoo, K. Shojiki, T. Tanikawa, S. Kuboya and T. Matsuoka, Design of the Transverse Quasi-Phase Matched AlN Waveguides for Deep-UV Second Harmonic Generation, The 34th Electronic Materials Symposium, 2015年7月15日~17日, ラフォーレ琵琶湖(滋賀県・守山市)

片山 竜二, ワイドギャップ半導体研究の新展開 量子光学デバイス・システム開発, 第1回 電子材料若手研究会, 2016年8月26日, 広島大学(広島県・東広島市)

片山 竜二, ワイドギャップ半導体の量子光学応用, 第9回 窒化物半導体の成長・評価に関する夏期セミナー, 2016年8月29~30日, 立命館大学(滋賀県・草津市)

片山 竜二, 窒化物半導体極性制御特異構造の非線形光学素子応用, 第77回応用物理学会秋季学術講演会 シンポジウム 窒化物半導体特異構造の科学 ~ 新機能の発現と理解~, 2016年9月13~16日, 朱鷺メッセ(新潟県・新潟市)

片山 竜二, 極性ワイドギャップ半導体の量子光学応用, IEEE Photonics Society Kansai Chapter 講演会, 2017年1月18~19日, 伊勢市観光文化会館(三重県・伊勢市)

片山 竜二, ワイドギャップ半導体の量子光学素子応用, 第64回応用物理学会春季学術講演会 シンポジウム 金属酸化物の結晶物性に迫る, 2017年3月14~17日,

パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

高橋 一矢, 篠田 涼二, 岩谷 素顕, 竹内 哲也, 上山 智, 服部 友一, 赤崎 勇, 片山 竜二, 上向井 正裕, AlN系窒化物半導体のウェハ接合技術の検討, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017年3月14~17日, パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

山下 諒大, 上向井 正裕, 片山 竜二, 高次結合ディープエッチ DBR レーザの作製と単一モード発振, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017年3月14~17日, パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)

〔図書〕(計0件)

該当なし

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

該当なし

取得状況(計0件)

該当なし

〔その他〕

該当なし

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

片山 竜二 (KATAYAMA, Ryuji)  
大阪大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 40343115

### (2)研究分担者

横山 弘之 (YOKOYAMA, Hiroyuki)  
東北大学・未来科学技術共同研究センター・教授  
研究者番号: 60344727

谷川 智之 (TANIKAWA, Tomoyuki)  
東北大学・金属材料研究所・講師  
研究者番号: 90633537

窪谷 茂幸 (KUBOYA, Shigeyuki)  
東北大学・金属材料研究所・助教  
研究者番号: 70583615

### (3)連携研究者

該当なし

### (4)研究協力者

該当なし