

令和 2 年 6 月 11 日現在

機関番号：33919

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06360

研究課題名(和文) InN/GaN短周期超格子による窒化物半導体レーザー導波光制御構造の高機能化

研究課題名(英文) Development of the optical wave-guide of nitride based laser diodes by using InN/GaN short-period superlattices

研究代表者

今井 大地 (Imai, Daichi)

名城大学・理工学部・助教

研究者番号：20739057

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、InN/GaN短周期超格子(SPS)からなる擬似InGa_N混晶により、窒化物系半導体レーザー(LD)の新しい導波光制御構造を提案し、その素子応用にむけた基盤的技術の開拓を目的とした。そこで、InN/GaN-SPSおよびその基礎構造である1分子層(ML)-InNの物性制御方法の解明に取り組んだ。SPSは同等のバンドギャップをもつInGa_N混晶に対しバンドエネルギー揺らぎに由来する発光素子の損失を低減できる可能性をもつこと、SPSおよび単一ML-InN量子井戸のバンド構造や発光機構についての知見を得た。SPSによりLDの発光層や光導波路の高機能化が十分可能であることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

擬似InGa_N混晶による半導体レーザー導波光制御構造の有効性の実証は、窒化物系半導体レーザー動作特性の更なる向上と、発振波長の長波長側拡大に資する新しいデバイス設計手法の構築に繋がり、省エネルギー化を推進する現代社会においてその研究意義は大きいと考えている。また擬似InGa_N混晶の物性は、依然未解明な点が多く、本研究を通して光学的物性の解明が進んだことは学術的にも意義のあることであると考えている。

研究成果の概要(英文)：In this work, we have proposed a quasi-InGa_N ternary alloy based optical waveguide for GaN based laser diodes (LDs) instead of conventional waveguide composed of InGa_N ternary alloys. We have, in particular, conducted optical characterizations of quasi-InGa_N ternary alloys based on InN/GaN short-period superlattices (SPSs) and 1 ML-InN quantum wells (QWs). It was revealed that optical losses inside the wave guide or active layer originating from the potential fluctuations of InGa_N ternary alloys are possibly reduced by quasi InGa_N ternary alloys due to the low potential fluctuations. We have also analyzed energy band structure and carrier recombination processes of SPSs and single 1ML-InN QW embedded in GaN. We conclude that the development of the LD's waveguide by using quasi-InGa_N ternary alloys based on InN/GaN-SPSs is possible.

研究分野：半導体工学

キーワード：窒化物半導体 半導体レーザー 1分子層InN 短周期超格子 秩序混晶

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

窒化物半導体は、主要 2 元化合物および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発光素子を実現できる。しかし、GaN と InN に働く強い非混和性や約 11% の大きな格子不整合、最適成長温度差により、InGaN 系発光素子の実用波長域は 360~530 nm に限られている。これに加え、端面発光型レーザーでは、利得が発生する発光層に光を閉じ込める AlGaIn クラッド層/GaN ガイド層間の屈折率差が、発振波長 λ の長波長化に伴い減少するため、光閉じ込めが弱くなる。この対策として GaN よりも屈折率の大きい InGaIn 混晶(In \leq 10%) がガイド層に用いられているが、臨界膜厚の問題により、光閉じ込めに十分な厚膜の積層は、直上にある発光層の結晶性劣化による発光効率低減を引き起こす。このため、InGaIn 混晶ガイド層の膜厚は概ね 50 nm 程度が採用されている。これらの問題や制約の下、発振波長がおよそ 460 nm を越えると閾電流密度は増大し始める。[1]

2. 研究の目的

これらの問題の打開策として、本研究では強い非混和性を逆に利用して“混ぜない”InN/GaN 短周期超格子(SPS)による擬似 InGaIn 混晶に注目した。これまでに、意図しない InGaIn 混晶化のない、構造完全性の高い GaN を 4 分子層(ML)まで薄膜化した 1ML-InN/4ML-GaN SPS の 100 周期(130 nm 以上)のコヒーレント積層が実証されている。[2] そこで本研究では、厚膜積層制御に優れた擬似 InGaIn 混晶を利用して、窒化物半導体レーザーの発振波長の長波長側拡大に対する問題点や制約を打破することを目指し、擬似 InGaIn 混晶の素子応用へ向けた基盤技術の開拓に取り組んだ。

3. 研究の方法

擬似 InGaIn 混晶の光導波路応用にむけ、本研究ではその適正を検証するために、InN/GaN-SPS の物性解析を中心に取り組んだ。試料として、GaN 層厚を 4 ML から 9 ML で制御した InN/GaN-SPS 試料と、それらの基礎構造である単一 1 分子層 InN 量子井戸を準備した。試料はいずれも分子線エピタキシー(MBE)法で成長したものであり、設計通りの周期構造が形成されていること、下地の GaN 層状にコヒーレントに積層していることが X 線回折より確認されている[2]。これらの光学特性を種々の測定手法により解析し、光導波路応用に対する適正を検証した。

4. 研究成果

InN/GaN-SPS については、周期構造の形成とそれによる発光波長の制御についてこれまで報告があるものの、そのエネルギーバンド構造とその GaN 層厚依存性については不明な点が多い。また、X 線回折より得られた SPS 層の平均 In 組成は、設計層厚比で決まる In 組成に対していずれも低く、これは 1ML-InN が全面に均一に被覆されていないためと考えられる。MBE 法による構造制御技術の進展により、これまでに平均被覆率が 40%前後の構造を安定的に作製できるようになっており、よって、まずは現状で安定的に構造制御可能な平均 InN 被覆率 30~50% の InN/GaN-SPS 試料において、エネルギーバンド構造やキャリア再結合機構について解析を行った。

(1) 図 1 に InN/GaN-SPS 試料の極低温における PL スペクトルおよび PLE スペクトルを示す。これらの試料の PLE スペクトルは既に報告していたが[3]、本研究では測定系を改良し、吸収端近傍の微弱な PLE 信号の S/N 比を向上させ、それによって得られたスペクトルに基づき吸収端の広がりや評価した。図 2 に PLE スペクトルのフィッティングにより得られた、測定温度 10K における吸収端広がりやのバンドエネルギー依存性を示す。これらの値は、同じ測定温度下で同等のバンドエネルギーを有する InGaIn 混晶に対し、同程度またはそれより小さくなっていることがわかる。これは、擬似 InGaIn 混晶では二元化合物を周期的に積層しているため、原理的に In 組成の空間的偏りが抑制できること、また擬似 InGaIn 混晶では、平均 In 組成(層厚比で決まる)を同等のバンドギャップを有する InGaIn 混晶よりも小さくできることによると考えている。バ

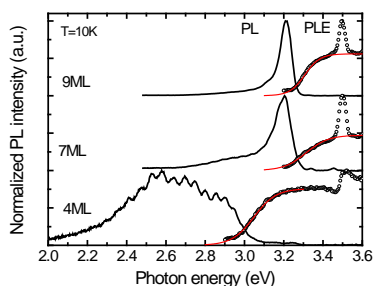


図 1 InN/GaN-SPS の 10K における PL (実線)、PLE スペクトル。赤線はシグモイド関数によるフィッティング曲線。

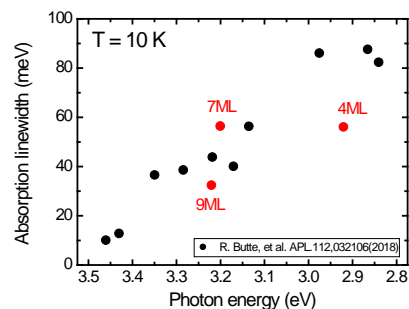


図 2 InN/GaN-SPS の吸収端におけるエネルギー広がりやのバンドエネルギー依存性。近年報告された自立 GaN 基板上に MOVPE で成膜した InGaIn 混晶における吸収端広がり(吸収スペクトルを同様の関数でフィッティングしたもの)の報告値[4]と比較用に示す。SPS の吸収端広がりや、ポテンシャル揺らぎの小さい InGaIn 混晶と同程度、またはそれ以下となっている。

バンドエネルギー広がり主要因の一つは In 組成の空間的偏りであるが、これは一般的に In 組成の増大に伴い増加する傾向が報告されている。よって、二元化合物で構成され、かつ少ない In 組成でバンドエネルギーの低下が可能な擬似 InGaN 混晶では、In 組成増大によるバンドエネルギー揺らぎの問題を従来よりも抑制できる可能性があると考えられる。

(2) 図 3 に InN/GaN-SPS(GaN=7 ML)試料の室温における PL スペクトル、反射スペクトル、変調反射スペクトルを示す。隣接量子井戸間の波動関数重なるの理論計算からは、GaN=7ML で SPS は混晶的になることが予測される[5]。室温では 3.2 eV 付近に PL ピークが観測され、変調反射スペクトルでは PL ピークのやや高エネルギー側に僅かではあるがディップ構造が観測された(図中の青点線)。反射スペクトルにおいても同エネルギー帯にキックが観測されている。これは SPS 層により形成されたエネルギーバンド特異点による遷移を反映しているものと考えられ、今後、測定温度制御等により、バンド構造を詳細に解析できるものと考えられる。InN/GaN-SPS 構造ではこれまで PL スペクトルの報告はいくつかあるものの、バンド構造の形成を直接的に観測した例はなく、本研究により、はじめてエネルギーバンドの形成が確認された。

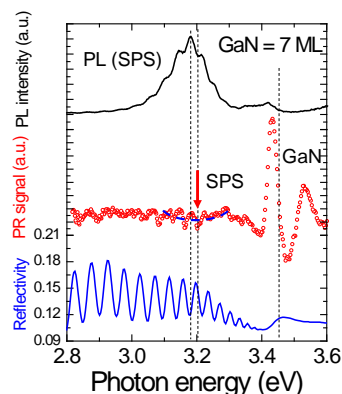


図 3 InN/GaN-SPS(GaN=7ML)試料の PL、変調反射、反射スペクトル。青点線はガイド線。

(3) InN/GaN-SPS 構造は、バンドエネルギー構造をはじめ物性に不明な点が多く、その要因の一つとして、その基礎構造である 1ML-InN 超薄膜の物性が明らかになっていないことが挙げられる。そこで本研究では、GaN 中に InN1 分子層を 1 層だけ挿入した 1ML-InN/GaN 単一量子井戸 (SQW) 構造により、1ML-InN 層そのものの物性評価に取り組んだ。図 4 に 1ML-InN の PL スペクトルを示す。PL スペクトルの半値全幅は、これまで MBE 試料で報告されたものの中では最も狭い部類のものであった。PL スペクトルの温度依存性により、3.2 eV 付近のピークが 1ML-InN 層からの主ピークであり、その低エネルギー側のピークは、それぞれ 1LO, 2LO フォノンレプリカであることがわかった。図 5 に PL および PLE スペクトルの検出エネルギー依存性を示す。ここで、GaN のピーク強度が相対的に大きくなっているが、これは測定箇所により、InN の面内被覆状態、GaN 層で生成された励起子の InN 層への輸送効率にばらつきがあるためと考えられる。まず 2.78 eV で検出した PLE スペクトルには、1ML-InN SQW による吸収が現れており、僅か 1ML であっても電子状態が形成されていることが確認された。また PLE スペクトルには、いずれも GaN の励起子ピークが明瞭に観測されている。装置分解能のため、厳密な議論はできないが、PL スペクトルにある GaN ピーク (ドナー束縛励起子) に対し、PLE スペクトルに現れている GaN 由来のピークは高エネルギー側にあり、これは 1ML-InN における発光機構が、GaN 層で生成された自由励起子の輸送により起こっていることを示すと考えられる。低エネルギー側の 2.78 eV で検出した PLE スペクトルにおいても GaN の励起子ピークが支配的に観測されており、このことから、1ML-InN 層まで励起子状態を保ったまま輸送されていることが考えられる。InN/GaN-SPS の発光機構については、励起子再結合、自由キャリアによる再結合、双方の報告がこれまでにあるが [6, 7]、これらの差異は未だ発光機構が 1ML-InN 層の構造制御の影響を受けているためと思われる。

以上のように、本研究では InN/GaN-SPS およびその基礎構造である 1ML-InN 層の光学特性解析を進め、エネルギーバンド構造や発光機構に関する知見を得た。今後、更に構造制御技術が進

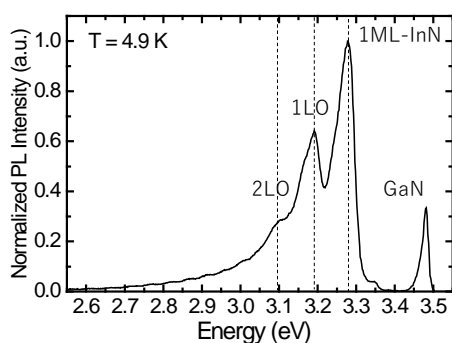


図 4 1ML-InN SQW の極低温 PL スペクトル。

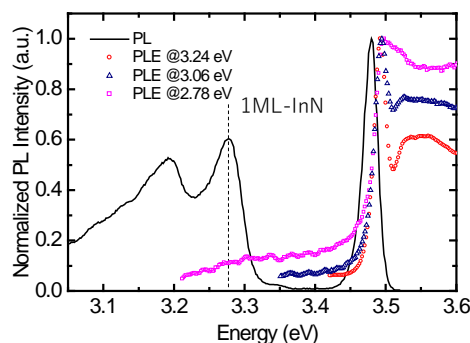


図 5 1ML-InN SQW の極低温 PL スペクトルおよび PLE スペクトルの検出エネルギー依存性。

展すれば、本構造を LD の光導波路や発光層に適用できる可能性は十分あると考えられる。

謝辞

光変調反射測定は、工学院大学の尾沼猛儀准教授にご協力頂きました。

参考文献

- [1] R. M. Farrell, P. S. Hsu, D. A. Haeger, S. P. DenBaars, J. S. Speck, and S. Nakamura, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 231113 (2010).
- [2] K. Kusakabe, N. Hashimoto, T. Itoi, K. Wang, D. Imai, and A. Yoshikawa, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 152107 (2016).
- [3] K. Kusakabe and A. Yoshikawa, *Semiconductors and Semimetals* **96**, “Nitride Semiconductors”, Chap. 1, (Elsevier, January 2017).
- [4] R. Butté, L. Lahourcade, T. K. Uždavinys, G. Callsen, M. Mensi, M. Glauser, G. Rossbach, D. Martin, J.-F. Carlin, S. Marcinkevičius, and N. Grandjean, *Appl. Phys. Lett.*, **112**, 032106 (2018).
- [5] K. Kusakabe, D. Imai, K. Wang, and A. Yoshikawa, *Phys. Stat. Sol. C*, **13**, No. 5–6, 205–208 (2016)..
- [6] D. Ma, X. Rong, X. Zheng, W. Wang, P. Wang, T. Schulz, M. Albrecht, S. Metzner, M. Müller, O. August, F. Bertram, J. Christen, P. Jin, M. Li, J. Zhang, X. Yang, F. Xu, Z. Qin, W. Ge, B. Shen, and X. Q. Wang, *Scientific Reports*, **7**, 46420 (2017).
- [7] F. Feix, T. Flissikowski, C. Chéze, R. Calarco, H. T. Grahn, and O. Brandt, *Appl. Phys. Lett.*, **109**, 042104 (2016).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Tsurugi Kondo, Ryoma Seiki, Yasuhiko Imai, Kazushi Sumitani, Shigeru Kimura, Kenta Takagi, Nanami Goto, Daichi Imai, Satoshi Kamiyama, and Takao Miyajima
2. 発表標題 Structural analysis of m-plane Ga _{1-x} In _x N/GaN multi-quantum wells grown on GaN nano-wires by using 1 -1 0 0 reflection of X-ray nano-beam
3. 学会等名 2018 International Workshop on Nitride Semiconductors (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 近藤 剣、清木 良麻、今井 康彦、隅谷 和嗣、木村 滋2、高木 健太、後藤 七美、市川 貴登、今井 大地、上山 智、宮嶋 孝夫
2. 発表標題 X線ナノビームによる1-100反射を用いたGa _{1-x} In _x N/GaN量子井戸の構造評価
3. 学会等名 第79回秋季応用物理学会学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 宮嶋 孝夫、清木 良麻、近藤 剣、市川 貴登、伊奈 稔哲、新田 清文、宇留賀 朋哉、鶴田 一樹、隅谷 和嗣、今井 康彦、木村 滋、安田 伸広、三好 実人、今井 大地、竹内 哲也、上山 智
2. 発表標題 放射光を使ったGa _N 系混晶半導体とGa _N 系量子殻の局所構造評価
3. 学会等名 第66回春季応用物理学会学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今井 大地、山路 知明、三好 実人、竹内 哲也、宮嶋 孝夫
2. 発表標題 Al _{1-x} In _x N混晶におけるバンド端近傍のポテンシャル揺らぎと光学定数の解析
3. 学会等名 第66回春季応用物理学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮嶋 孝夫、山田 祐輔、市川 貴登、今井 大地、鮫島 俊之
2. 発表標題 パルスレーザによるGaNにイオン注入したMgアクセプターの活性化
3. 学会等名 第66回春季応用物理学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高木 健太, 安藤 壮, 片山 竜二, 上向井 正裕, 今井 大地, 竹内 哲也, 宮嶋 孝夫
2. 発表標題 Pendeo成長GaNを下地とした3次表面グレーティングを有する横結合分布帰還型GaN系半導体レーザの設計と作製
3. 学会等名 第66回春季応用物理学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Daichi Imai, Tomoaki Yamaji, Makoto Miyoshi, Tetsuya Takeuchi, and Takao Miyajima
2. 発表標題 Characterization of Potential Fluctuations and Optical Constants in Al _{1-x} In _x N Alloys Grown on C-Plane GaN Substrate
3. 学会等名 ICNS-13 (2019) 13th International Conference on Nitride Semiconductors (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takao Miyajima, Yusuke Yamada, Takato Ichikawa, Daichi Imai, and Toshiyuki Sameshima
2. 発表標題 Pulsed-Laser Activation of Implanted Mg Acceptors in GaN Grown on a GaN Substrate
3. 学会等名 ICNS-13 (2019) 13th International Conference on Nitride Semiconductors (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tsuyoshi Andou, Kenta Takagi, Yoshiki Morioka, Masahiro Uemukai, Ryuji Katayama, Daichi Imai, and Takao Miyajima
2. 発表標題 Optically Pumped GaN-based Laterally Coupled Distributed-feedback Semiconductor Lasers with 3rd-order Surface Gratings Grown on Pendeo-epitaxy GaN
3. 学会等名 ICNS-13 (2019) 13th International Conference on Nitride Semiconductors (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今井大地, 草部一秀, 吉川明彦
2. 発表標題 (InN) ₁ /(GaN) _n 短周期超格子による秩序InGa _n 混晶の物性評価
3. 学会等名 第10回窒化物半導体の成長・評価に関する夏季ワークショップ (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Daichi Imai, Kazuhide Kusakabe, and Akihiko Yoshikawa
2. 発表標題 Optical Characterization of Ordered InGa _n Ternary Alloys Based on (InN) ₁ /(GaN) _n Short-period Superlattices Grown by Dynamic Atomic Layer Epitaxy (D-ALEp)
3. 学会等名 International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices 2017
4. 発表年 2018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
---------------------------	-----------------------	----