

令和 3 年 6 月 11 日現在

機関番号：12612

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23508

研究課題名（和文）能動素子と受動素子を同時集積した窒化物半導体フォトニック結晶

研究課題名（英文）III-nitride semiconductor photonic crystals integrating active and passive devices

研究代表者

田尻 武義 (Tajiri, Takeyoshi)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・助教

研究者番号：00842949

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：可視光領域における発光特性の制御性に優れた窒化物半導体を材料として、フォトニック結晶への能動素子と受動素子の同時集積化の実現に向けた検証実験を行った。半導体レーザー光源を利用した光電気化学エッチングを用いることで、可視光を閉じ込められる中空状窒化ガリウム薄膜（スラブ）構造を高品質に作製できることを示した。さらに、同手法により、中空スラブ型フォトニック結晶を作製できる可能性と、そこに受動素子と能動素子を同時集積するための光素子および局在量子井戸の実現可能性を示唆する実験結果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果は、GaN スラブ型フォトニック結晶上において、InGaN QWの局所形成が可能であることを示しており、今後、フォトニック結晶における能動素子・受動素子の同時集積化の実現につながる可能性がある。光素子の集積化による高度な可視光制御は、イメージングなどの応用に向けた基盤技術として将来期待される。

研究成果の概要（英文）：Using III-nitride semiconductors with excellent controllability of light emission characteristics in visible wavelengths as a material, we experimentally investigated the feasibility of simultaneous integration of active and passive circuit components in a photonic crystal. A photo-electrochemical etching method using a semiconductor laser was developed for fabrication of high-quality air-suspended gallium nitride thin films (slabs) that can confine visible light. The possibility of fabricating a slab-type photonic crystal by this method, and feasibility of optical elements and localized quantum wells in the photonic crystal towards simultaneous integration of passive and active components were suggested in this study.

研究分野：フォトニック結晶

キーワード：窒化物半導体 フォトニック結晶 光回路

1. 研究開始当初の背景

屈折率に光の波長程度の空間周期性を有する構造体(フォトリソニック結晶)は、周期構造に揺らぎ(欠陥)を与えることで、微小な光素子としての機能を実現することができる。例えば、点状や線状の欠陥を埋め込むことで共振器や導波路等の受動素子を実現されている他、発光領域を欠陥部に形成することで、光源などの能動素子を実現されている。シリコンやリン化インジウムなどの材料では、これらの光素子を集積し、近赤外領域において動作する光回路の研究が進展しており、光情報処理技術やセンサーなどへの応用が期待されている。一方、分光や生物分野などへの応用が期待される可視・紫外光領域においては、窒化物半導体を用いたフォトリソニック結晶の活用が期待されている。

窒化物半導体の一つである窒化ガリウム(GaN: Gallium Nitride)は、可視光全域で透明であるため、可視光領域において動作する光受動素子への応用が期待される。また、直接遷移型のバンド構造を有し、かつ窒化インジウム(InN: Indium Nitride)との混晶を形成することでバンドギャップ幅を広く制御できることから、様々な波長で発光する量子構造の形成と、それを利用した光源への応用が可能である。しかしながら、窒化物半導体フォトリソニック結晶を用いた光回路素子は、その一部が実現されている(参考文献①②③)が、各光素子は単独での原理実証にとどまっておらず、光回路化の検討はされていない。光回路化に向けた課題の一つとして、能動素子と受動素子の同時集積化が挙げられる。例えば、能動素子の一つとなる光源は、元になる量子井戸発光層が結晶成長過程でウェハ全面に形成されるため、光源の周囲に導波路などの受動素子を集積することは量子井戸吸収により困難である。この課題を解決するためには、量子井戸をフォトリソニック結晶の所望の位置に局在して形成するなど、量子構造とフォトリソニック結晶構造をより高度に制御できる窒化物半導体の成膜・加工技術が重要となる。

2. 研究の目的

本研究では、窒化物半導体フォトリソニック結晶光素子の光回路化に向けた課題に対して、フォトリソニック結晶構造と量子構造の双方を制御する技術を開発する。それらの技術を用いることで、可視光源と受動素子を同時に集積した窒化物半導体フォトリソニック結晶の実現を目指す。

3. 研究の方法

窒化物半導体フォトリソニック結晶の基本構造として、フォトリソニック結晶の周期構造が中空状の薄膜(スラブ)の面内に形成された構造(スラブ型フォトリソニック結晶)に着目し、窒化物半導体の中でも成膜が容易なGaNを材料として作製を行う。中空スラブ構造は、比較的容易にスラブ面内に光を閉じ込めることが可能であることに加え、半導体リソグラフィと反応性イオンエッチング(RIE: Reactive Ion Etching)により、スラブ面内に所望のフォトリソニック結晶構造を高い精度で作製することが可能である。しかしながら、スラブ構造の下側を中空状にする手法は現在も様々な研究があり、決定的なものはない。本研究では、成膜が比較的容易なInNとGaNの混晶(InGaN)をGaNスラブ層下に成膜し、光電気化学(PEC: Photo-Electrochemical)エッチングにより、InGaN層(犠牲層)を選択的に除去する方法を用いることを検討した。

PECエッチング法を用いた犠牲層の選択エッチングでは、水溶液中で光を犠牲層に材料選択的に吸収させることで、スラブ層を残したまま犠牲層のみを酸化・エッチングする方法である。従来はPECエッチング用の光源として広帯域光源が用いられてきたが、近年では、レーザー光源を用いた高選択性のPECエッチング法も提案されている。過去の研究では、レーザー光源には高価なチタンサファイアレーザーが用いられていたが、本研究では比較的安価な半導体レーザーを用いたPECエッチング技術の開発に取り組む。犠牲層とスラブの成膜には有機金属気相成長法を用い、その評価にはX線回折法を利用する。PECエッチングは、溶液や光照射強度等のエッチング条件の調整と、走査型電子顕微鏡(SEM: Scanning Electron Microscope)によるエッチング跡の試料表面の観察により、高い選択性が得られる条件を明らかにする。また、より詳細な評価方法として、マイクロディスク共振器を作製し、その共振器モードのQ値を測定する評価法も検討する。この光学評価のための光学測定系は新たに構築する。

上記方法により、GaNスラブ型フォトリソニック結晶を作製することを検討した。作製する構造は、光バンド構造の数値解析に基づいて設計する。光回路素子を実現するためには、スラブ内に光が閉じ込められる全反射条件を満たす波数・周波数において、フォトリソニック結晶構造がスラブ面内の全方位に光バンドギャップを有することが重要となる。設計では、電子線リソグラフィ(EBL: Electron-Beam Lithography)の空間分解能や、RIEが可能なエッチング径と深さを考慮しつつ、InGaN発光が得られやすい青紫波長帯において上記条件の光バンドギャップを有する構造を明らかにする。数値解析手法は、無償パッケージ(bandsolve)を使用する。また、光源と受動素子を集積するために、位置合わせEBLを利用したGaNスラブ型フォトリソニック結晶における局在量子井戸の形成法も新たに検討した。

4. 研究成果

(1) 中空 GaN スラブ構造の作製と評価

① 中空 GaN スラブ構造の作製

中空 GaN スラブ構造を作製するために、元となる基板構成 (図 1) を検討し、有機金属気相成長法を用いて成膜を行った。同基板では、サファイア上で GaN をバッファ層として、InGaN/GaN 超格子犠牲層と、GaN スラブ層を順に製膜している。また、図 1 には、作製した基板の透過率スペクトルの測定結果を示している。犠牲層は波長 430 nm より短波長側で光吸収による透過率の減少がみられる。そのため、PEC エッチング用の光源としては、犠牲層に選択的に吸収される波長 405 nm のレーザダイオードを用いる。

同基板を用いて、中空スラブ型マイクロディスク構造を作製した。作製プロセスでは、まず、EBL と CF₄ ガスを用いた RIE プロセスにより SiO₂ マスクパターンを作成し、塩素・三塩化ホウ素・アルゴンの各ガスを用いた RIE プロセスにより、GaN スラブ層にマイクロディスク構造を形成する。PEC エッチングでは、白金触媒を GaN 基板上に蒸着した後に、塩酸水溶液に試料を浸し、波長 405 nm のレーザー光を一定時間照射することで犠牲層のエッチングを行なった。

本手法で作製を試みたところ、RIE プロセスにおける材料損傷により、PEC エッチングの進行が妨げられることが新たに分かった。PEC エッチング後の試料の SEM 像 (図 2(a)) では、RIE により GaN スラブ層がエッチングされた領域で、犠牲層がエッチングされずに残っていることが分かる。こうした問題は犠牲層の選択エッチングに関する過去の報告では議論がなく、本研究ではその解決のために新たに多段階 RIE プロセスを利用することを検討した。図 2(b)は、材料損傷を除去するため低バイアスの RIE ステップを後段に組み込んだ二段階の RIE プロセスを行った試料に対し、PEC エッチングを行った試料の SEM 像である。図 2(a)と比較すると、深くまで犠牲層がエッチングされており、中空マイクロディスク構造が形成できていることがわかる。

② 中空状スラブ構造の光学評価

中空スラブの品質を評価するために、InGaN 量子井戸 (QW: Quantum Well) が一層埋め込まれたマイクロディスク構造の発光スペクトルを測定することを検討した。測定するための顕微発光 (PL: Photoluminescence) 分光測定系は新たに構築した。構築した光学系では、連続波の紫外レーザーを試料に集光し、その発光スペクトルを測定している。得られた発光スペクトルを図 3 に示している。同図より、波長 390 nm に QW に起因する発光ピークを観測することができる。長波側のピークは、犠牲層に起因する発光ピークであり、マイクロディスクの中央部の犠牲層からの発光が観測されていると考えられる。同図より QW 発光スペクトルの帯域では、鋭いピークが複数観測されることが分かる。これらのピークは、間隔が密の複数のピークが、より大きな間隔で配列しており、基底モード以外に高次のモードが観測できていると考えられる。ピーク線幅より Q 値は 1000 以上と見積もることができる。この結果は、過去の文献と比較しても良好であり、本研究で開発した PEC エッチングにより、優れた光回路素子を実現できる可能性を示している。

(2) フォトニック結晶スラブへの光素子の集積化

上記作製法を用いて中空状 GaN 二次元フォトニック結晶の実現可能性について検討を行った。図 4(a) の SEM 像は、中空 GaN スラブに三角格子状の円孔が配列した二次元フォトニック結晶を作製したものである。マイクロディスクの場合と同様の手法で作製が可能であることも分かった。図 4(b)には、作成した構造と同様の GaN スラブ型フォトニック結晶の光バンド構造を、

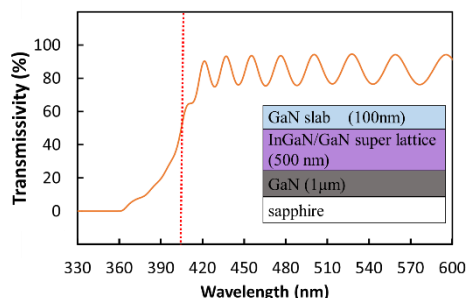


図 1 中空 GaN スラブ構造作製用基板の透過率スペクトル。挿入図は基板断面の模式図

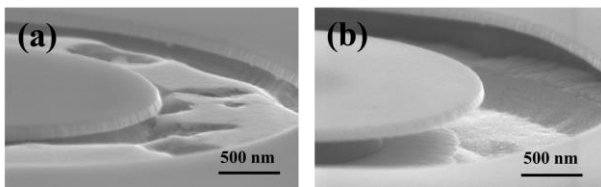


図 2 中空 GaN スラブに作製されたマイクロディスク構造。(a)単一 RIE プロセス (b) 多段階 RIE プロセス

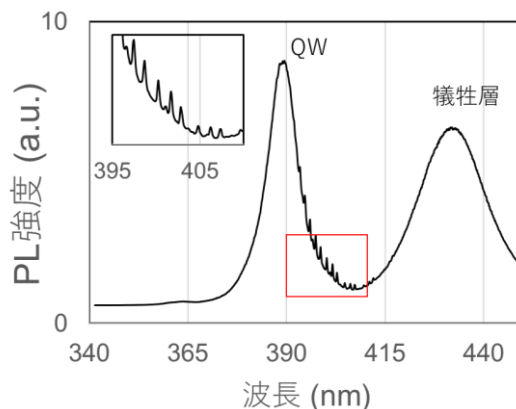


図 3 中空 GaN スラブに作製されたマイクロディスク共振器の顕微 PL スペクトル。挿入図は赤枠部分の拡大図

数値解析した結果を示している。スラブ厚み(t)および、穴の半径(r)は、三角格子の格子定数(a)との比が $r/a = 0.35$, $t/a = 0.5$ である。同図より、第一・第二バンド間に光バンドギャップ (PBG: Photonic Band Gap) が存在することがわかる。また、作製した $a \sim 170$ nm では、PBG の中心波長は青紫波長帯となる。また中央部の穴が埋められた領域は共振器としての動作が可能であることが解析でわか

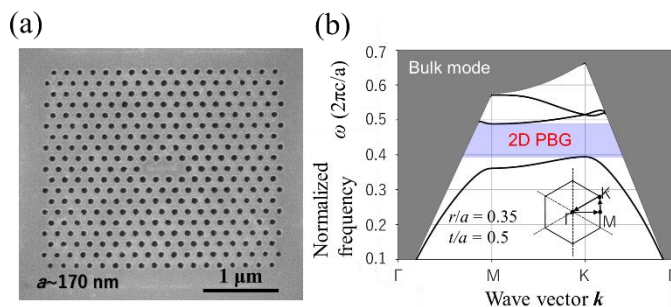


図 4 (a) 作製した GaN スラブ型フォトニック結晶の SEM 像と、(b)フォトニックバンド図

っており、その動作実証実験を近く実施する予定である。また、GaN スラブ型フォトニック結晶共振器に、位置合わせ EBL を用いた局在 InGaN QW の実現方法も検討した。本手法では、フォトニック結晶の円孔配列を 1 回目の EBL によって形成した後、2 回目の EBL で共振器部に位置を合わせて局在 QW 形成用マスクを作製する。このマスクを用いて共振器部以外に埋め込まれた QW 層を RIE によりエッチングし、局所的に QW を形成できる可能性を調べた。初期的な検証実験では、歩留まりは高くないが、共振器部にほぼ一致した高い位置合わせ精度でマスクを作製できることが分かった。また、エッチング後に、マスクの無い領域では、マスクの有る領域と比べて QW の発光強度が大きく低下していることも分かった。この結果は、本手法によって GaN スラブ型フォトニック結晶共振器部に局在する InGaN QW を作製できる可能性を示しており、今後の研究により、GaN スラブ型フォトニック結晶共振器を基礎とした可視光源と、所望の受動素子の集積が可能になることが期待される。

<引用文献>

- ① C. -H. Lin , J. -Y. Wang, C. -Y. Chen, K. -C. Shen, D. -M. Yeh, Y. -W. Kiang, C. C. Yang, *Nanotechnology* **22** 025201 (2011).
- ② N. V. Triviño, U. Dharanipathy, J.-F. Carlin, Z. Diao, R. Houdre, and N. Grandjean, *Appl. Phys. Lett.* **102** 081120 (2013).
- ③ S. T. Jagsch, N. V. Triviño, F. Lohof, G. Callsen, S. Kalinowski, I. M. Rousseau, R. Barzel, J. -F. Carlin, F. Jahnke, R. Butté, C. Gies, A. Hoffmann, N. Grandjean and S. Reitzenstein, *Nat. Commun.* **9** 564 (2018).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 下吉 賢信, 浮田 駿, 内田 和男, 田尻 武義 |
| 2. 発表標題 紫波長帯にフォトリソバンドギャップを有する窒化ガリウム二次元フォトリソ結晶スラブの設計 |
| 3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 下吉 賢信, 浮田 駿, 内田 和男, 田尻 武義 |
| 2. 発表標題 厚膜InGaN系犠牲層の光電気化学エッチングによる中空GaNマイクロディスク構造の作製 |
| 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 |

〔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 |
|---------|---------|
|---------|---------|