

平成22年6月10日現在

研究種目：基盤研究（S）
 研究期間：2005～2009
 課題番号：17106005
 研究課題名（和文） 205～250nm 帯深紫外半導体レーザの研究開発
 研究課題名（英文） Research on Deep-UV Semiconductor Laser Lasing
 in 205～250 nm Region
 研究代表者
 川西 英雄（KAWANISHI HIDEO）
 工学院大学・工学部・教授
 研究者番号：70016658

研究成果の概要（和文）： 紫外から深紫外発光素子への応用が期待される AlGa_N 系窒化物半導体は、「光学異方性（発光強度に方位依存性がある現象。この為 AlN では、表面からの光放射は皆無となる）」があるものの、この波長域総てに渡ってレーザ利得（光の増幅作用における利得で、横方向には強い発光と光増幅作用とがある）があることを明らかにするとともに、光励起で 228.9nm の室温レーザ発振を実現し、それを実証した。また、最終年度には、電流注入型 AlGa_N 系深紫外半導体レーザの実現を可能とする、カーボンを添加した p 型 AlGa_N（ $p \approx 3 \times 10^{18} [\text{cm}^{-3}]$ のホール密度を示す）を世界で初めて示し、電流注入型 AlGa_N 系半導体レーザ実現への基礎を固めつつある。

研究成果の概要（英文）： AlGa_N is becoming promising semiconductors for developing violet to deep-ultraviolet light emitting semiconductor devices. The AlGa_N has a large optical gain to achieve the lasing in this spectral region, as if the AlGa_N has anisotropic optical property. Then, the shortest lasing of 228.9 nm was demonstrated, for the first time, at room temperature under optical pumping by our experiment. And, extremely promising result as highly doped p-type AlGa_N was demonstrated by carbon-doped AlGa_N grown by low-pressure metal organic vapor phase epitaxy. The maximum hall-concentration that we have achieved was $3 \times 10^{18} [\text{cm}^{-3}]$.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005年度	43,100,000	12,930,000	56,030,000
2006年度	12,200,000	3,660,000	15,860,000
2007年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
2008年度	3,300,000	990,000	4,290,000
2009年度	3,100,000	930,000	4,030,000
総計	66,500,000	19,950,000	86,450,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 / 電子デバイス・電子機器

キーワード：半導体レーザ、窒化物半導体、深紫外域、量子井戸構造、超格子

1. 研究開始当初の背景

本研究を開始した当初、国内外における窒化物系半導体レーザの現状は次のようであ

った。

当時の AlGa_N 系半導体レーザの最短発振波長は、それぞれ、

(1)「電流注入型 AlGaIn 半導体レーザ」では、350.9nm (ただし、パルス発振で、連続動作 (直流動作) ではない)。

(2)「光励起型 AlGaIn 半導体レーザ」では、我々が達成した 241.5nm (室温)。(われわれの発表以前では、328 nm が当時の最短波長であった)。

しかしながら、「何故、この様な最短波長でレーザ発振が達成できたのか」には、多くの「謎」が含まれていた。

一方、AlGaIn 系半導体は、深紫外までの短波長化の可能性を有し、従って、更なる短波長化の実現、及び、「電流注入型 AlGaIn 系深紫外半導体レーザ」を世界に先駆けて開発する事が、当時における基礎研究の観点からの重要な研究課題であった。

この様な時代背景の下では、解決しなければならない「二つの研究課題」があった。

(1) 世界最短波長でレーザ発振した「謎」を科学的に分析し、更に短波長で発振するレーザを実現すること。

(2) 電流注入型深紫外域半導体レーザを実現すること。

特に、後者については、n 型はもちろんだが、特に、「p 型の電気伝導特性を有する低抵抗 AlGaIn 半導体層」を実現しなければならなかった。AlGaIn 層の電気抵抗が高いと言う事は、紫外域・深紫外域での電流注入型半導体発光デバイス (たとえば、LED と呼ばれる発光ダイオードや、本研究で取り上げた半導体レーザを示している) の実現における、大きな障害であった。

しかしながら、当時、Mg による p 型半導体の達成が唯一可能であるだけで、世界的レベルにおいても解決法は存在しなかった。すなわち、当時の時代背景の中で、新しい p 型不純物の探索が求められていた。

2. 研究の目的

世界最短波長でレーザ発振した「謎」を科学的に分析し、更に短波長で発振する半導体レーザを世界に先駆けて実現しようとするものである。

また、電流注入型半導体レーザの開発にも挑戦する。その為に、本研究では、AlGaIn 系半導体に対する、「新しい p 型不純物の探索」を行い、低い電気抵抗値を有する (従って、p 型キャリア密度を高くする) AlGaIn 成長層を作ることである。

3. 研究の方法

3-1 AlGaIn 系半導体の高品質化

最新の半導体成長装置 (有機金属気相エピタキシャル装置) により、高品質な AlGaIn 系

半導体を成長する。そのために、Alternate Source-Feeding Epitaxy と名付けた「交互供給法」によるエピタキシャル成長技術による結晶成長を開発、透過電子顕微鏡による転位の直接観察と分析、を通して AlGaIn 結晶の高品質化を目指す (本研究課題の推進のために、透過型電子顕微鏡を導入し、本研究環境を整えた)。

3-2 AlGaIn 系半導体レーザの製作とその光学特性を解明

成長した極めて高品質な AlGaIn 結晶で、半導体レーザを製作し、短波長化の限界を極める。併せて、その光学特性を解明し、レーザ発振達成の「謎」を明らかにする。

3-3 新規な p 型不純物の探索

Be、Ca、Zn などが AlGaIn 系半導体における p 型不純物の候補としてあったが、本研究では、申請書の段階から p 型不純物として、カーボン (原子記号: C) に、特に、注目してきた。

従って、

(1) カーボンが、AlGaIn 半導体における p 型不純物となるかどうか。

(2) 必要なホール密度を達成するための製作条件はどうなるか。

(3) カーボンをどの様な材料を用いて導入するか

など、基本的な疑問と研究課題とがあった。

本研究課題を念頭に置き、

(1) ホール効果測定装置 (本装置は、p、n 判定とともに、キャリア密度を測定できる)

(2) C-V 測定装置 (本装置は、p、n 判定とともに、添加した不純物の内、キャリアを出した不純物の密度が測定できる)

を整備し、本研究に備えた。

4. 研究成果

4-1 AlGaIn 半導体結晶の高品質化

AlGaIn などの窒化物半導体では、格子整合基板が無いことから、サファイア基板、SiC 基板上、GaN 基板上に成長した AlGaIn 層内には、基板との界面で発生した「ミスフィット転位」を元に、極めて高密度の格子欠陥が存在する。従って、窒化物半導体では、この格子欠陥を如何に減少させるかが重要となる。

本研究では、この格子欠陥密度を、次に示す三つの方法で減少させた。

(1) (AlN/GaN) 多重バッファ層構造を基板とその上のエピタキシャル層の間に

- 挿入する。
 (2) AlN テンプレート層を導入し、ここでの結晶品質を最高レベルにした。

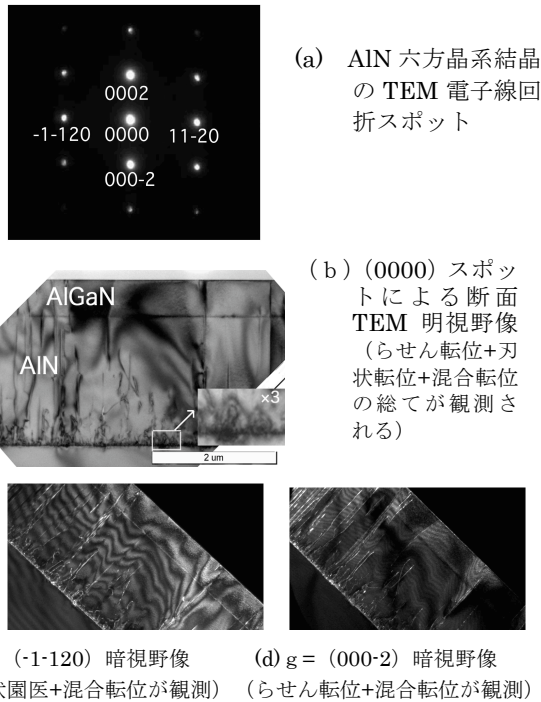


図.1 透過型電子顕微鏡による転位の直接観測と転位密度の分類と転位密度の算出

- (3) AlN テンプレート上に AlGaIn を「交互供給法」で成長し、結晶の発光効率を大幅に向上する。

前の(1)と(2)は、本研究で導入した透過型電子顕微鏡により直接観測し、「刃状転位密度」、「らせん転位密度」及び、「混合転位密度」を選別し評価する方法を確立するとともに、それらの値を決定。転位密度の小さい高品質 AlGaIn を得ることに成功した。

図.1 は、AlGaIn 半導体試料の断面・透過型電子顕微鏡による断面写真である。回折スポットを選ぶことで、転位の種類を分別しそれぞれの転位密度を算出出来るのである。

一方、(3)の方法では、欠陥密度との関係(特に、点欠陥密度との関連性)は把握しなかったが、本方法で成長した AlGaIn 半導体レーザの発振閾値は、確実に、大幅に減少するとともに、本研究では、波長 228.9nm での室温におけるレーザ発振を達成した。

尚、この波長でのレーザ発振は、AlN の単層構造(導波路構造が無いため、誘導放出と定義される)により 220nm での誘導放出に次いで短波長である。

また、この「交互供給法」は、変形された様々な「交互供給法」へと発展・進歩し、各

研究機関でも使用されている。この様に、現時点も、この分野の標準的な結晶成長法とされ、関連研究への波及効果は大きい。

4-2 レーザ発振達成の「謎」の解明

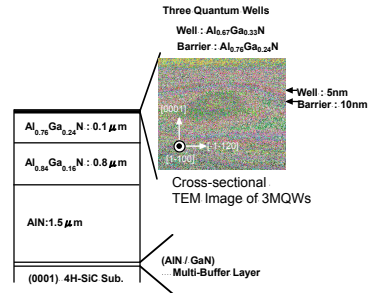


図.2 AlGaIn 多重量子井戸構造半導体レーザの断面構造

製作した半導体レーザの断面構造を図.2 に示した。光を発光する活性層は 20~40 原子層程度の厚さしかない量子井戸構造と呼ばれる構造からなり、この活性層で効率よく発光するように工夫されている。

これを励起し、活性層で発光した光は、図では横方向に伝搬しながら光の増幅が

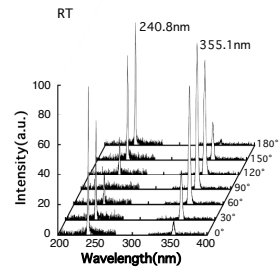


図.3 半導体レーザの偏光角による発振強度変化

起こるが、ある値以上の励起強度で、光の発振が起こる。このとき半導体レーザは発振したことになる。

最初の「謎」を解くために、増幅された光の偏光(偏波とも言われる)特性を調べた。その結果、レーザ光は、深紫外域では TM モードと呼ばれる、光の電界成分が垂直方向の成分のみを有する光となっていることが明らかになった。これをまとめたのが図.3 である。世界で初めて実験的に確認された。

また、それに伴い、表面からの発光強度は極微弱になることも発見した。これを「光学異方特性」と呼ぶ。

この光学異方性特性による表面発光強度の低下が深紫外域でのレーザ発振を妨げていた一つの理由である。この様に、本研究を開始する際の、一つの大切な「謎」が解明されたのである。

これをより詳しく説明してみよう。この光学異方特性のため、表面発光強度は、発光波長が深紫外域に近づくに伴い低下し、最後は消える。しかしながら、これと垂直な方向のレーザ発振に必要な光増幅に関する利得、すなわち「レーザ利得」と呼ぶ利得の内、横方向の光利得は、ほとんど変化が無く、横方向に光が伝搬することでレーザ発振ができるに十分であることになる。

この原因は、AlGaIn 半導体の特異なバンド構造、特に、価電子帯の構造に由来していることが、本研究で明らかになった。深紫外域では、AlGaIn 半導体の価電子帯の内、HH、LH バンドより、CH バンドが、深紫外域での発光および光学利得に関係していることが、本研究の実験結果から分かった。

この研究成果は、更に他機関での研究へと発展、量子井戸構造内の歪みを制御、いわゆる「バンド・エンジニアリング（結晶内の歪み等を人工的に変化させ、半導体のバンド構造を調整すること）」を行い、この偏波特性は、一定の範囲内でチューニング可能であることも示されるなど、関連分野への波及効果が認められた。

また、これらの現象を詳しく実験的に調べれば調べるほど、この CH バンドが発光過程に及ぼす影響と効果は、まだ十分に解明されていないことが分かってきた。

特に、現在の AlGaIn 半導体の結晶品質はずいぶん高品質となったが、非発光再結合中心密度は測定したキャリア寿命の値から判断して極めて大きい。にもかかわらず、レーザ発振が達成できたことには、未知の「謎」がたくさん残されている。必要に応じて、今後の研究の発展も必要であろう。

4-3 新規な p 型不純物の発掘

最終的に、電流注入型 AlGaIn 半導体レーザの実現には至っていないが、今後の研究を進めるに当たり、極めて重要な研究成果を得た。

すなわち、最終年度における最も大きな研究成果は、

「カーボンは、AlGaIn 半導体では、結晶成長条件を制御することで、p 型不純物となる」

ことを発見したことである。

図. 4 は、ホール効果測定に対する実験結果を示しており、AlGaIn 半導体に対するカーボン添加特性である。約 2-3 μmol 以上の CBr_4

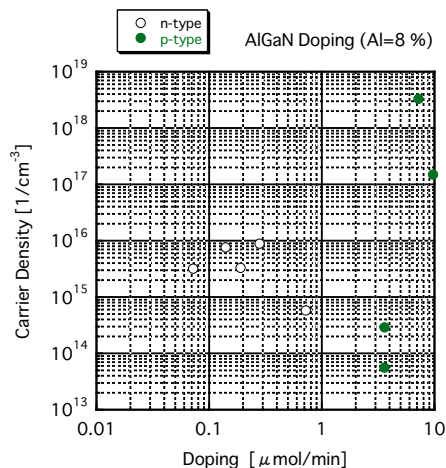


図. 4 AlGaIn (Al=8%) に対するカーボン添加特性。キャリア密度及び pn 判定は、ホール効果測定による。尚、黒丸 (●) は p 型特性を示し、白丸 (○) は n 型特性を示す。

添加量の領域では、AlGaIn は p 型の特性を示している。

この新しい p 型添加物は、AlGaIn 系窒化物半導体では、今後の半導体レーザ研究の進展に有意義な以下のような特長を持っている。

この研究成果から、電流注入型 AlGaIn 紫外・深紫外域半導体レーザの実現への「希望」が開かれたことになる。

- (1) 成長後、そのまま、p 型半導体特性を示す (有名な Mg では水素との結合を切り、p 型半導体とするために、熱処理を必要とする。カーボンでは、この作業が必要ない)
- (2) カーボンは、添加した後、安定に格子点に存在する (熱的に安定である)。
- (3) AlGaIn のホール密度は、その結晶品質にほとんど左右されない。(Mg では添加量を増加すると、格子欠陥に Mg が偏析し、添加量が制限される)
- (4) 多量に添加しても、結晶品質を低下させない。AlGaIn 内におけるホール密度は、現段階で最も高いもので、 $3 \times 10^{18} [\text{cm}^{-3}]$ を達成した。

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 11 件)

1. 川西英雄, 「AlGaIn 系深紫外半導体レーザの現状と課題」, 査読有, **28**, No. 1, 7-11 (2010) .
2. Yuu Wakamiya, Fumio Hasegawa, Hideo Kawanishi, “ Investigation on

- Conductivity at the GaN/AlN/SiC Substrate interface for Vertical Nitride Power FETs”, 査読有, Physica Status Solidi, (C), No.6, 1505-1507 (2008)
3. Kouichi Murakawa, Eiichiro Niikura, Fumio Hasegawa, and Hideo Kawanishi, “Reduction of Threading Dislocations in AlGaN/AlN/SiC Epitaxial Layers by Controlled Strain with (AlN/GaN) Multibuffer-layer Structure”, 査読有, Japan. J. Appl. Phys., **46**, No. 6A, 3301-3304 (2007)
 4. Eiichiro Niikura, Koichi Murakawa, Fumio Hasegawa, Hideo Kawanishi, “Improvement of crystal quality of AlN and AlGaN epitaxial layers by controlling the strain with the (AlN/GaN) multi-buffer layer,” Journal of Crystal Growth. 査読有, **298**, 345(2007).
 5. Kouichi Murakawa, Eiichiro Niikura, Fumio Hasegawa and Hideo Kawanishi, “Reduction of Threading Dislocations in AlGaN/AlN/SiC Epitaxial Layers by Controlled Strain with (AlN/GaN) Multibuffer-layer Structure,” Japan. J. Appl. Phys, 査読有, **46**, 6A (2007).
 6. Hideo Kawanishi, Eiichiro Niikura, Mao Yamamoto, and Shoichiro Takeda, “ Experimental energy difference between heavy- or light-hole valence band and crystal-field split-off-hole valence band in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$,” Appl. Phys. Lett, 査読有, **89**, 25, 251107(2006).
 7. Hideo Kawanishi, Masanori Senuma, Mao Yamamoto, Eiichiro Niikura, and Takeaki Nukui, “Extremely weak surface emission from (0001) c-plane AlGaN multiple quantum well structure in deep-ultraviolet spectral region,” Appl. Phys. Lett, 査読有, **89**, 8, 081121 (2006) .
 8. Hideo Kawanishi, Masanori Senuma, and Takeaki Nukui, “ Anisotropic polarization characteristics of lasing and spontaneous surface and edge emissions from deep-ultraviolet ($\lambda \approx 240$ nm) AlGaN multiple-quantum-well lasers,” Appl Phys. Lett, 査読有, **89**, 4, 041126 (2006) .
 9. 川西英雄、高野隆好、瀬沼正憲、貫井猛晶、 「光励起による AlGaN 多重量子井戸型深紫外レーザーの発振特性-発振波長域 240~360nm-」応用物理, 査読有, 第 74 巻 第 11 号 1462 (2005)
- [学会発表] (計 30 件)
1. Hideo Kawanishi, Tomohito Takeda, Yusuke Tsutagawa, and Fumio Hasegawa, “Crystal quality control of AlN template grown on SiC substrate using (AlN/GaN) multi-buffer layer and alternate source-feeding Mo-VPE”, 2nd International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-2), Mo-49, Shuzenji, Shizuoka, Japan, (2008 July 6-9).
 2. Hideo Kawanishi, Tomohito Takeda and Yusuke Tsutagawa, “Extremely Small Edge Dislocation Density of AlN Template Grown on 4H-SiC Substrate by ASFE-MOVPE with (AlN/GaN) MBL Structure” , 14th International Conference on Metal Organic Vapor Phase Epitaxy, Tu-P.40, Metz, France, (2008 June 1-6).
 3. Hideo Kawanishi, “ Experimental weak surface emission from (0001) c-plane AlGaN multiple quantum well structure in deep-ultraviolet spectral region” , Workshops on Frontier Optoelectronic Materials and Devices, T7. Hakone, Kanagawa, Japan (2008. March 3-6)
 4. Kouichi Murakawa, Fumio Hasegawa, and Hideo Kawanishi, “Reduction of Threading Dislocations in AlGaN/AlN/SiC Epitaxial Layers by Tensile Strain in a-Axis Induced with the (AlN/GaN) Multi-Buffer-Layer ” , 7th International Conference of Nitride semiconductors, MP29, MGM Grand Hotel, Las Vegas, Nevada, USA (2007. 09)
 5. Eiichiro Niikura, Koichi Murakawa, Shoichiro Takeda, Fumio Hasegawa, and Hideo Kawanishi, “What Kind of Crystal Quality of AlGaN is Improved by an Alternate-Source-feeding MOVPE or ME-MOVPE? ” , 7th International Conference of Nitride semiconductors, MP32, MGM Grand Hotel, Las Vegas, Nevada, USA (2007. 09)
 6. Hideo Kawanishi, Eiichiro Niikura, Masanori Senuma, and Shoichiro Takeda, “Anisotropic Polarization of Deep-UV Lasing and Spontaneous Surface and Edge Emissions from c- and m-plane AlGaN” , The 3rd Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors, M01-4, Jeonju Core Riviera Hotel, Jeonju, Korea, (2007. 03)
 7. Kouichi Murakawa, Eiichiro Niikura,

Fumio Hasegawa, and Hideo Kawanishi,
“ Dislocation Reduction in AlN
Template grown on SiC by Tensile Strain
induced by (AlN/GaN)
Multi-Buffer-Layer ” , The 3rd
Asia-Pacific Workshop on Widegap
Semiconductors, PO-9, Jeonju Core
Riviera hotel, Jeonju, Korea,
(2007.03)

8. Kenichi Isono, Eiichiro Niikura,
Kouichi Murakawa, Fumio Hasegawa,
and Hideo Kawanishi, “Reduction of
Point Defects in N-AlGaN by an Alternate
Source Feeding Metalorganic Vapor
Phase Epitaxy”, The 3rd Asia-Pacific
Workshop on Widegap Semiconductors,
PO-13, Jeonju Core Riviera hotel,
Jeonju, Korea, (2007.03)
9. Hideo Kawanishi, Masanori Senuma, and
Takeaki Nukui, “TM-mode lasing and
anisotropic polarization property of
AlGaIn multiple quantum well lasers in
deep-ultraviolet spectral region” ,
SPIE Photonics West, 6473-41, San
Jose, California, USA (2007.01)

[図書] (計 2 件)

1. 高橋、吉川、長谷川、「ワイドギャップ半
導体光・電子デバイス」、共立出版
(2006,03,31) (2.2.4 節(89-98 ページ)
及び 5.2.7 節 (384-387 ページ) を分担)
2. Takahashi, Yoshikawa, Hasegawa、
“Mechanical and Thermal Properties of
Wide Semiconductors” , Wide Bandgap
Semiconductor, Springer, 2.2.4.,
Springer (2007.04) (2.2.4 節 (70-77
ページ) 及び 6.2.8 節 (415-417 ページ)
を分担)

[産業財産権]

○出願状況 (計 7 件)

名称: ” Growth of Nitride Semiconductor
Crystals”

発明者: H. Hashimoto, A. Horiuchi, and
H. Kawanishi

権利者: HONDA MOTOR CO.LTD, and
H. Kawanishi

種類: 特許

番号: No. 11/659, 339

出願年月日: 05-FEB-2007

国内外の別: 国外 (アメリカ合衆国)

名称: ” Growth of Nitride Semiconductor
Crystals”

発明者: H. Hashimoto, A. Horiuchi, and
H. Kawanishi

権利者: HONDA MOTOR CO.LTD, and

H. Kawanishi

種類: 特許

番号: No. 05778340.9

出願年月日: Aug. 31, 2004

国内外の別: 国外 (ヨーロッパ)

○取得状況 (計 2 件)

名称: 「窒化物半導体結晶の成長法、成長
装置、および、プログラム」

発明者: 橋本英喜、堀内明彦、川西英雄

権利者: 本田技研工業、川西英雄

種類: 特許

番号: 特許第 4467615 号

取得年月日: 平成 17 年 8 月 31 日

国内外の別: 国内

名称: 「窒化物半導体結晶の成長法、成長
装置、および、プログラム」

発明者: 橋本英喜、堀内明彦、川西英雄

権利者: 本田技研工業、川西英雄

種類: 特許

番号: 特許番号 10-0895654

取得年月日: 2009 年 4 月 23 日

国内外の別: 国外 (韓国)

[その他]

ホームページ等

<http://www.ns.kogakuin.ac.jp/~wwc104/8/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川西 英雄 (KAWANISHI HIDEO)

工学院大学・工学部・教授

研究者番号: 70016658

(2) 研究分担者

本田 徹 (HONDA TOORU)

工学院大学・工学部・教授

研究者番号: 20251671

(H20→H21: 連携研究者)

(3) 研究分担者

坂本 哲夫 (SAKAMOTO TETSUO)

工学院大学・工学部・准教授

研究者番号: 20313067

(H20→H21: 連携研究者)

(4) 研究分担者 (HASEGAWA FUMIO)

長谷川 文夫

工学院大学・工学部・教授

研究者番号: 70143170

(H20: 定年退職に伴い研究分担者から
外れる)