

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 24 日現在

機関番号：33302

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560385

研究課題名(和文)へき開共振器ミラーを有する非極性GaN基板上緑色半導体レーザに関する研究

研究課題名(英文)Research on non-C-oriented green laser diodes with cleaved facet cavity mirrors

研究代表者

山口 敦史 (Yamaguchi, Atsushi A.)

金沢工業大学・工学部・教授

研究者番号：60449428

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：低コスト・高性能の緑色半導体レーザを実現するためには、素子の構造設計が重要である。本研究では、構造設計の理論計算を行う際に用いる材料パラメータ(変形ポテンシャルなど)の信頼性について理論・実験両面から研究した。その結果、偏光PL測定の実験結果を基に求められている現在の材料パラメータは信頼できず、偏光PLE測定を用いて決定しなければならないことがわかった。これは、ポテンシャル揺らぎが大きいInGaN系独特の効果が原因となっている。

研究成果の概要(英文)：Device structural design is very important for realizing high-performance and low-cost pure-green semiconductor laser diodes. In this work, reliability of material parameters which are used for the calculation of the structural design, has been investigated theoretically and experimentally. It is found that the reported parameters based on polarization-resolved PL measurements are not reliable due to large potential fluctuation in InGaN alloy material, and that polarization-resolved PLE measurements are needed for the precise determination of the parameters.

研究分野：半導体 光物性

キーワード：半導体レーザ 窒化物半導体

1. 研究開始当初の背景

高輝度青色 LED、白色 LED、青紫色半導体レーザの実現を契機に、窒化物半導体を用いた光デバイス研究開発が盛んに行われている。窒化物半導体は、従来材料に比べ、毒性が低く環境への影響も少ない。また、バンドギャップを大きく変化できるため、深紫外光から紫外、可視、赤外光までの幅広い波長の光を発する素子を作製することが原理的に可能である。しかしながら、現状で半導体レーザとして実用レベルの特性が実現しているのは、青緑色～近紫外の波長領域のみであり、この波長範囲の拡大が急がれている。特に3原色の1つである純緑色(520-530nm)の半導体レーザは他の材料系でも商品化されておらず、商品化されれば産業へのインパクトも大きい。実用レベルの緑色半導体レーザが実現していない主な要因は、GaN 基板上に歪みの大きな発光層(In組成の大きなInGaN層)を結晶成長しなければならない点にあると考えられている。窒化物半導体素子は通常c面 GaN 基板上に作製されるが、c面上では上記の歪みに起因して発光層内に大きなピエゾ電界が発生し、電子と正孔が空間的に分離し、発光確率が減少してしまう。これに対して、c面ではない面(非極性面と呼ぶ)の基板上ではこの電界が大幅に抑制されるため、発光確率が維持されることが期待される。そこで近年、非極性基板上半導体レーザの研究開発が進んでおり、c面から約75°傾いた基板上などで緑色レーザ発振が実現している[1]。しかしながら、この非極性基板上レーザにおいても課題が存在する。その1つは、共振器ミラー作製の問題である。非極性面はc面のような高い対称性を持たないため、発光強度は偏光方向に大きく依存し、通常は、図1に示すX1方向(基板面内でc軸に垂直な方向)に電界が向く偏光(X1偏光と呼ぶ)がX2偏光(基板面にc軸を射影した方向の偏光)よりもずっと強く発光する。このため、これまでの非極性基板上半導体レーザにおいては、X1偏光がレーザ発振するように、図2(a)のような構造をとる必要があった。しかし、この構造では共振器ミラー面(レーザ光が射出する面)が「へき開面」にはならず、平坦な共振器ミラーを歩留まり良く作製することは困難である。もしX2偏光が強く発光する状態を実現できれば、この偏光をレーザ発振させるため、図2(b)の素子構造をとることになり、共振器ミラーを「へき開」で作製することができるようになる。そこで、我々は、2006年よりこの問題に理論的な視点で取り組み、基板面方位や発光層構造をうまく設計することで発光層量子井戸の価電子帯のエネルギー準位に交差を引き起こし、X2偏光の発光を強くできることを2007年に初めて理論予測した[2]。その後、他の研究機関よりこの偏光特性が実際に実験的に観測され[3]、我々の理論予測が裏付けられた形となったが、同時に理論予測と実験結果の間に

は定量的な差異もあり、我々が理論計算に用いた材料パラメータに問題があることも浮き彫りになった。我々は、2009年より科学研究費補助金特定領域研究「窒化物光半導体のフロンティア」に公募研究の形で参加し、非極性基板上の窒化物半導体の偏光特性のすべての実験的報告を矛盾なく説明するための理論体系を構築し、不確かな材料パラメータを一切用いずに偏光特性を理論予測する新手法を考案した[4]。そして、その手法により、c面からの傾き角(図2の)を従来研究されてきた $\theta = 60 \sim 90^\circ$ よりも大幅に低角側( $\theta = 30 \sim 40^\circ$ )にすることでX2偏光の発光が非常に強くなり、「へき開共振器ミラー」を有する緑色レーザ素子が実現可能となることを結論として導いた(図3参照)。しかしながら、このような面方位の基板(以後、低角半極性基板と呼ぶ)上にInGaN発光層を作製した例はこれまでほとんどなく、上述の理論予測の真偽はまだ確かめられていない状況である。

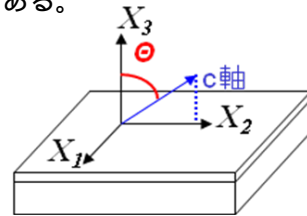


図1 非極性基板での座標系。

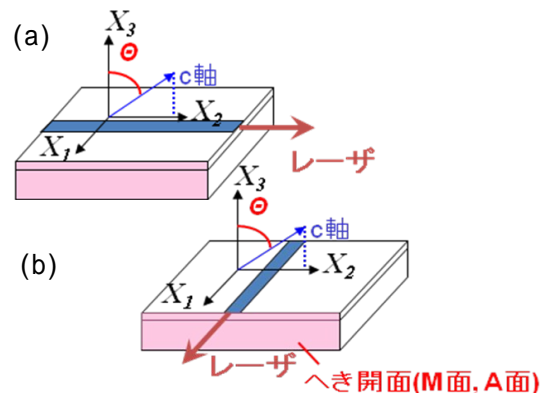


図2 非極性基板上のレーザ構造の2つの可能性。従来のレーザはすべて(a)であるが、本研究では、「へき開」で共振器ミラーを容易に作製できる(b)構造を目指す。

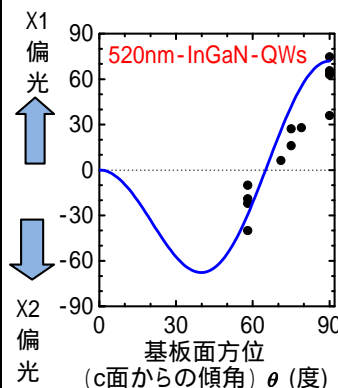


図3 非極性基板上緑色InGaN発光層の偏光特性の理論予測。

## 2. 研究の目的

本研究では、実際に非極性 GaN 基板上に作製した InGaN 量子井戸構造の光学特性（主に偏光特性・利得特性）を研究し、低角半極性 GaN 基板上に作製した「へき開共振器ミラー」を有する窒化物緑色半導体レーザの実現の可能性を実証することを目標とした。

## 3. 研究の方法

本研究では、理論的研究と実験的研究を並行して行った。理論研究においては、 $k \cdot p$  摂動による量子井戸のバンド構造計算をベースにして、In 組成揺らぎなどのポテンシャル揺らぎの効果を考慮してモデルを作製して、光学利得の計算をすることを最終目標とした。ただし、その計算の中で用いる変形ポテンシャルや有効質量テンソルなどの材料パラメータについては、正しい値を使わないと計算する意味がない。InGaN においては、これらの材料パラメータの文献値がばらついており、真の値がわかっていない状態なので、実験からそれらの値をきちんと決める必要がある。本研究の実験的研究においては、様々な In 組成、基板面方位の InGaN 量子井戸に対して、偏光特性を測定し、変形ポテンシャルなどの材料パラメータを正確に決定することを目標とした。さらに、デモンストレーションとして低角半極性 GaN 基板上に InGaN 量子井戸レーザ構造を作製し、その試料において光励起誘導放出光を観測し、この素子の有用性を実証する計画も立てた。

## 4. 研究成果

### (1)

まず初めに、ポテンシャル揺らぎの効果は偏光特性に大きな影響は及ぼさないと仮定し、それを無視した状態での光学利得の計算を  $k \cdot p$  摂動によって行った。そして、そこでは材料パラメータの様々な文献値を用いて、偏光特性を計算し、多数報告されている実験結果と比較した。しかしながら、報告されているすべての実験結果を完全に再現するような材料パラメータセットは見つからなかった。完全とは言えないまでも、ある程度の実験結果を再現する材料パラメータセットを用いて、光学利得特性の基板面方位依存性を計算したところ、すでに予測している「低角半極性基板」上のレーザ素子で X2 偏光の利得が最大になることが予測された（図 4）。

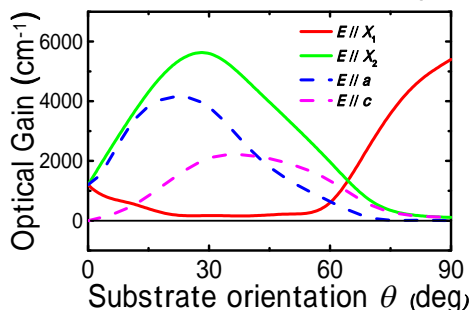


図 4 : 光学利得の基板面方位依存性

### (2)

次に、前述の理論計算と実験結果（文献値）が完全に一致しないこと、及び、文献データにかなりのバラつきがあることを鑑み、自らも実験を行うこととした。その際に、最初の段階として、面方位の定義が明確で、かつ、量子井戸の内部電界もゼロであることが保証されている無極性（ $m$  面）GaN 基板上 InGaN 量子井戸を調べた。その結果、価電子帯の 2 つのバンドのエネルギー間隔  $E$ （偏光特性を実質的に決定するパラメータとなる）を偏光 PL 測定によって見積もると正しい結果が得られないことがわかった。図 5 に示すように、同一の試料に対して、偏光 PL 測定と偏光 PLE 測定を行い、各々の測定から  $E$  を見積もると両者は全く異なる値となる。これは、In 組成揺らぎにより状態密度が裾を引く影響によるもので、偏光 PL 測定から見積もった  $E$  はこの影響で間違った値を示し、一方、偏光 PLE 測定から見積もった  $E$  は常に正しい値を示すことが理論解析により実証できた。これまでの  $E$  の報告値はほぼすべてが偏光 PL 測定から見積もられており、それらの結果に基づいて得られた非極性 InGaN 量子井戸の材料パラメータは、すべて再考する必要があることが明らかとなった。

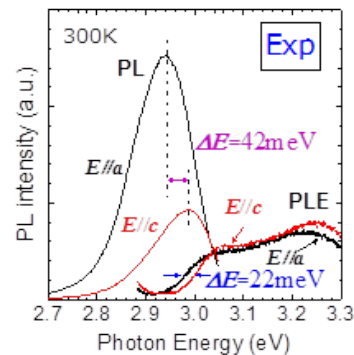


図 5 :  $m$  面上 InGaN 量子井戸に対する偏光 PL 測定と偏光 PLE 測定の結果の比較。

### (3)

そこで、In 組成が異なる InGaN 試料 ( $m$  面 GaN 基板上) を用意し、それぞれについて偏光 PLE 測定を行い、 $E$  の In 組成依存性の正しいラインを測定した。従来は  $E$  は In 組成に比例して大きくなっていくと考えられていた（偏光 PL 測定の結果はそのようになっている）が、図 6 に示すように、偏光 PLE 測定から見積もられた  $E$  の値は In 組成が増えても、ほぼ一定（もしくは、むしろ減少傾向）となっている。これは従来の理解とは大きく異なる結果であるので、さらなる測定と解析を行って確信をもつ必要があるが、InGaN の価電子帯構造の研究をもう一度はじめて構築する必要性が明らかになったと言える。それを行った後に、へき開面を共振器ミラーとする半極性 GaN 基板上レーザ素子の設計に移っていききたい。

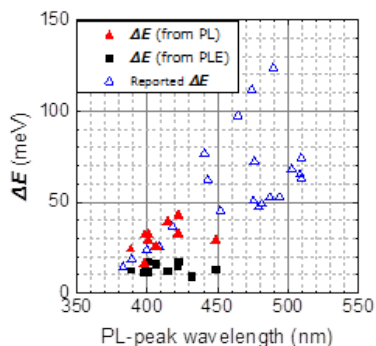


図6 : m 面 InGaN 量子井戸における E の In 組成依存性。は偏光 PLE 測定から見積もったもの(正しいと考えられる)で、三角は偏光 PL 測定から見積もった値(誤りを含むと考えられる)である。

(4)

最後に、半極性 GaN 基板上 InGaN 量子井戸レーザ素子の光学利得を実験的に測定するための「光励起誘導放出測定系」を構築した。YAG-THG レーザ(355nm、ナノ秒パルス)をストライプ状のビームにしてサンプルを励起することで誘導放出を引き起こす系である。さらに、ストライプ長を変化させ、それに伴う発光強度の変化を記録することで、光学利得を正確に求めることが可能である。現段階で、実際に測定した光学利得スペクトルを外部に公開できる状態にはないが、光学利得スペクトル自体は測定・解析できている状況である。

<引用文献>

Y. Enya et al., Appl. Phys. Express 2 082101 (2009).  
 A. A. Yamaguchi, Jpn. J. Appl. Phys. 46 L789 (2007).  
 M. Ueda et al., Phys. Rev. B 78 233303 (2008).  
 A. A. Yamaguchi et al., Appl. Phys. Lett. 98 101905 (2011).

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2件)

S. Sakai and A. A. Yamaguchi, Theoretical Analysis of Optical Polarization Properties in Semipolar and Nonpolar InGaN Quantum Wells for Precise Determination of Valence-Band Parameters in InGaN Alloy Material, Physica Status Solidi B, 査読有, Vol. 252, 2015, 885-889.  
 坂井繁太、山口敦史、栗原香、長尾哲、非極性 InGaN 量子井戸の偏光特性、信学技報、査読無、114 巻、2014、23-26.

[学会発表](計13件)

A. A. Yamaguchi, S. Sakai, K. Kurihara, S. Nagao, Optical Polarization Properties in Nonpolar InGaN Quantum Wells, 2015 Energy Materials and Nanotechnology East Meeting, invited, Beijing, China, 2015

A. A. Yamaguchi and S. Sakai, Theoretical Study of Optical Gain Characteristics in InGaN Pure-Green Laser Diodes on Semipolar GaN Substrates, Energy Material Nanotechnology Open Access Week Meeting, invited, Chengdu, China, 2014.

A. A. Yamaguchi, Optical Polarization and Anisotropic Gain Characteristics in Semipolar and Nonpolar InGaN Quantum Well Lasers, Photonics Global Conference 2012, invited, Singapore, Singapore, 2012.

A. A. Yamaguchi, Physics and Advantages of InGaN LDs Grown on Semipolar and Nonpolar Surfaces, Workshop on Optical Science of Dynamically Correlated Electron Systems in Asia, invited, Tokyo, Japan, 2012.

R. Maeda, S. Sakai, A. A. Yamaguchi, K. Kurihara, S. Nagao, Optical Polarization Properties of Nonpolar InGaN Films Measured by Polarization-Resolved

Photoluminescence Excitation Spectroscopy, The 7<sup>th</sup> Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors, Seoul, Korea, 2015.

S. Sakai, A. A. Yamaguchi, K. Kurihara, S. Nagao, Effects of Alloy Compositional Fluctuation on Optical Polarization Properties in Nonpolar InGaN Quantum Wells, the 10<sup>th</sup> International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices, Kaohsiung, Taiwan, 2014.

S. Sakai and A. A. Yamaguchi, Theoretical Analysis of Optical Polarization Properties in Semiconductor and Nonpolar InGaN Quantum Wells for Precise Determination of Valence-Band Parameters in InGaN Alloy Material, International Workshop on Nitride Semiconductors, Wroclaw, Poland, 2014.

A. A. Yamaguchi and S. Sakai, Theoretical Prediction of Optical Gain Characteristics in InGaN Green Laser Diodes Fabricated on Low-Angle Semipolar GaN Substrates, 2014 Asia-Pacific Workshop on Fundamentals

and Applications of Advanced Semiconductor Devices, Kanazawa, Japan, 2014.

S. Sakai and A. A. Yamaguchi, Theoretical Studies on Anisotropic Optical Gain Characteristics in Semipolar-Oriented InGaN Quantum-Well Laser Diodes, New Taipei, Taiwan, 2013.

坂井繁太、山口敦史、栗原香、長尾哲、非極性 InGaN 量子井戸の偏光特性、電子情報通信学会レーザ・量子エレクトロニクス研究会、大阪大学(大阪府・吹田市)、2014.

坂井繁太、山口敦史、緑色半導体レーザの低コスト・高性能に向けた光学利得特性の理論研究、平成 25 年度応用物理学会北陸・信越支部学術講演会、金沢工業大学(石川県・野々市市)、2013.

坂井繁太、山口敦史、栗原香、長尾哲、In 組成の空間的ゆらぎが非極性量子井戸の偏光特性へ及ぼす影響、2014 年秋季第 75 回応用物理学会学術講演会、北海道大学(北海道・札幌市)、2014.

坂井繁太、山口敦史、半極性 InGa<sub>N</sub>-QWs における光学利得の理論研究、2013 年秋季第 74 回応用物理学会学術講演会、同志社大学(京都府・京田辺市)、2013.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

山口敦史 (YAMAGUCHI Atsushi A.)

金沢工業大学・工学部・教授

研究者番号：6 0 4 4 9 4 2 8