次世代超高密度光記録用青紫色面発光レーザの開拓研究

代表研究者 染 谷 隆 夫 東京大学先端科学技術研究センター講師 共同研究者 荒 川 泰 彦 東京大学先端科学技術研究センター教授

1.はじめに

室化ガリウム(GaN)系半導体における最近の目覚しい発展によって、青色発光ダイオード(LED)や青色半導体レーザが商品化されるに至っている。青色レーザは主に DVD などの高密度光記録用の光源として開発され、大容量メモリ技術が不可欠なマルチメディア時代に極めて重要な役割を担っている。現在では室温連続発振状態で 10.000 時間以上の寿命、高出力(420mW) 遠視野像の単一性などが実現され、しきい値電流密度も 1~2kA/cm2 まで下がってきた。

このように青色レーザの最近の進展は目覚しいが、さらに性能を向上するためには、量子ドットや縦形共振器を活用 する新手法が有効であると期待される。例えば、縦形共振器を用いた面発光型の青色レーザは、平面上に多数配列でき るため、光メモリの並列処理が可能となる。また、InGaN 量子ドットをレーザの活性層に用いると、低しきい値や狭 スペクトル線幅などの高性能化が期待される。

本研究では、大容量の映像・画像データに超高速アクセスできる超高密度テラバイト光メモリ用の光源として供する ことを目的として、青色面発光レーザの素子化研究に取り組んだので、その研究・開発成果について報告する。特に、 InGaN 量子ドットの結晶成長に取り組み、均一で高密度なナノメートル寸法の量子ドットを活性層に導入することに 成功した。さらに、電流注入型素子に向けて、伝導層制御に取り組んだ。

2.青色面発光レーザ

DVD へ高速にアクセスするには、平面状に青色レーザを配列する手法が有効であるため、配列化に有利な面発光型 の青色レーザへ期待が高まっている。InGaN を活性層とした青色面発光レーザは、東工大の研究グループなどによっ て提案されて以来、国内外の主要な研究機関によって作製が試みられてきた。しかし、水平の通常構造の青色レーザが 製品化された段階でも、青色面発光レーザの成功例は全くなかった。この主な理由は、青色波長帯における半導体多層 膜反射鏡(DBR)の作製が非常に困難で、90%程度の反射率しか得られなかったことにある。筆者らは、有機金属気 層成長(MOCVD)法に改良を加え、世界最高反射率の半導体ミラーを作製するなど主要な作製技術を確立してきた。 その結果、世界に先駆けて青色面発光レーザの光励起による室温光励起発振に成功した。本研究では、これらの研究を さらに発展させて、伝導層の制御に取り組んだ。まず、これまでの研究をもとに、青色面発光レーザの動作原理につい て説明する。

試料構造を図1に示す。まず、常圧 MOCVD 法でサファイア基板上に42周期の GaN と Al_{0.34}Ga_{0.66}N からなる多層膜 反射鏡(窒化物DBR)を成長した。AlGaN と GaN は格子定数や熱膨張係数の違いが大きいため、従来は周期数を上げ ることが難しかったが、成膜の条件を最適化することによって、良好に42周期の多層膜を作製することができ、反射率 を98%まで改善できた。さらに、In_{0.1}Ga_{0.9}N 量子井戸層を含む2。5 共振器部分を成長した。最後に電子ビーム蒸着法 によって ZrO₂ と SiO₂ からなる反射率99.5%の酸化物 DBR を成膜した。

次に、室温で光励起によるレーザの入出力特性を測定した。図2(a)に示されているように、明瞭な発振しきい値(43nJ)が観測された。図2(b)に高分解能スペクトルの励起強度依存性を示す。発振前のスペクトル線幅(0.8nm)より、共振器のQ値は500と見積もられ、品質の良さが分かる。発振後はスペクトルの線幅が 0.1nm にまで先鋭化しかつ直線偏波となり、室温レーザ発振が確認された。

さらに、同様の構造で微小共振器効果が観測されている。微小共振器効果は、自然放出光がどれだけ有効にレーザモ ードに結合しているかを示す自然放出結合係数 で評価される。入出力特性のしきい値における「跳び」の逆数より、

は0.01と求められた。通常のリッジ型レーザでは が 10⁵ 程度であるので、本レーザは1000倍ほど自然放出光を有効 に利用していることになり、デバイス化した際に大幅な低消費電力化が期待できる。



図1 青色面発光レーザの構造図

3. GaN/AlGaN分布ブラッグ反射鏡へのSiドーピング

Ⅲ族窒化物半導体を利用した垂直共振器型面発光レーザ(VCSEL)は、二次元に集積化された短波長光源を実現で き、高速・高密度の光記録などへの応用が期待される。我々は現在までに GaN 系 VCSEL の光励起発振を確認してい る。今回、電流注入型素子の実現を目指し GaN/AlGaN 分布ブラッグ反射鏡(DBR)に Si をドープした場合の光学 的・電気的特性について検討した。

DBR 構造は、常圧 MOCVD 法を用いて成長した。c 面サファイア上に490 でバッファ層となる GaN を成長した後、 ノンドープの GaN を1071 で260nm成長し、その上に GaN/AlGaNDBR 構造を1092 で成長した。ストップバンドの 設計値は =394nmとした(Al₀₃₄Ga₀₆₆N 層厚:40nm、GaN 層厚:38nm)。これらはノンドープ DBR について以前得ら れた最適成長条件である。

3.1 Siドーピング濃度依存性

GaN/AIGaN を15周期積層した DBR について、Si ドーピング量による影響を調べた。高濃度(約5.0×10¹⁸cm⁻³)に ドープしたサンプルでは、AFM 観察で表面に巨大なピット状の欠陥(直径~100nm)が多数確認され、反射率もノ ンドープに比べて1割ほど低くなっていることがわかった。X線回折測定でも Si ドーピング量が多くなるほど DBR 周 期構造によるサテライトピークが不明瞭になるなど、Si を過剰にドープしたことによって界面のラフネスが増してい るものと思われる。一方で 1×10¹⁸cm⁻³ 程度のドーピングであれば、ほぼノンドープと遜色ない反射率を得られた。電 気的特性については今後の検討課題であるが、VCSEL への応用を前提とした最適なドーピング濃度は慎重に決定する 必要がある。

3.2 DBR周期(総膜厚)依存性



図3 DBR反射率の周期数依存性と体積あたりキャリア濃度()

キャリア濃度を 5.0×10¹⁷cm⁻³ に固定して、DBR の周期数を変化させた場合の特性を調べた。AFM の観察から、一 部の巨大なピット状欠陥を除いては、ノンドープについて以前われわれが得ていたのと同様、高い歪を有する系である にもかかわらずクラックフリーの表面であることを確認した。図3は反射率の DBR 周期数依存性である。20周期程度 以下の DBR については、ノンドープと同等の光学特性が得られる。一般に AIGaNとGaN の厚い多層膜構造を高品質 に作製するには精密な組成制御が重要である。今回 AIGaN 層の AI 組成が若干高いほうにシフトしていることが判明 しており、反射率の変動はそのような最適条件からのずれに起因すると考えられる。

3.3 電気的特性

SiH₄を 10sccm 流して成長した n-DBR を van der Pauw 法によってホール測定したところ、DBR 多層膜全体に均一 にキャリアが分布していると仮定したキャリア濃度は 約5.0×10¹⁸cm⁻³ と見積もられた。一方、同じ SiH₄ 流量で成長し た n-GaN バルクでは n-DBR よりも2倍程度高いキャリア濃度に見積もられることがわかった。DBR 中のほぼ半分の膜 厚を占める AlGaN 層にほとんど電流が流れていなかった可能性が考えられる。



図4 DBRシートキャリア濃度()

図4は DBR の周期数を変えた場合のシートキャリア濃度、体積あたりのキャリア濃度を示したものである。総膜厚 の薄いサンプルで体積あたりのキャリア濃度が低く見積もられる傾向が見受けられる。AlGaN/GaN ヘテロ接合の電気 伝導特性の研究結果から、AlGaN/GaN 超格子構造を下地にしたほうがバルク上に成長したヘテロ接合よりも高いキャ リア濃度を示す(AlGaN/GaN超格子バッファ効果)ことがわかっているが、今回の結果もそれで説明できる可能性が ある。

GaN/AlaN DBR に Si をドーピングした場合の特性について検討した。成長条件を精密に制御することによってノン ドープと同等の反射率を得ることは可能である。今後、さらに最適化した条件で慎重に組成を制御し、光学特性の優れ た高反射率 Si ドープミラーを作製するとともに、それらの電気的特性を詳細に評価することが重要である。

4.青色量子ドットレーザ

量子ドットを半導体レーザの活性層に導入すると、発振しきい値の低減など高性能化が期待されるため、窒化物半導体においても量子ドットが非常に関心を集めている。特に、InGaN系における高い発光効率の理由をナノ寸法の構造 揺らぎに求める説もあり、量子閉じ込め効果との関連は物理的にも興味深い。また、直接に量子効果とは関係ないが、 微小なドットやディスク構造の導入によって、欠陥を介した無輻射再結合が低減できるとの期待もある。

InGaN 系では これまでに Si を AIGaN バッファ表面に供給して InGaN 量子ドットを作製方法が報告されている程 度で、この分野の研究はまだ始まったばかりである。筆者らは、より簡便な方法の開発を目指し、GaN 層上に直接 InGaN 量子ドットを自己形成させる条件を見出した。この方法では InGaN 量子ドット層とバリア層を同じ基板温度で 作製することができるため、量子ドット層を多層に積層することが容易である。積層化した InGaN 量子ドットを活性 層に含むレーザ構造を作製した結果、光励起によるレーザ発振を室温で観測することに成功した。本研究では、より品 質の高い青色活性層の実現を目指して、InGaN 量子ドットの選択成長などに取り組んだので報告する。

4.1 常圧 MOCVD 法による量子ドットの成長

試料の結晶成長には、横型2層流の有機金属気相成長法(Metalorganic Chemical Vapor Deposition、 MOCVD)を 用いた。成長圧力は760Torr である。III族元素の原料としては、TMG、TMA、TMIを用いた。また、V族元素の原 料としては NH₃を使用している。

基板としては、一般に使用されている Sapphire (0001)を用いた。ただし、Sapphire (0001)を使っても GaN との 格子定数差は 16.1% あり、いかに高品質なバッファ層を成長できるかがその上に成長させる構造にも影響を与える。 本研究では、Sapphire (0001)上に 490 という低温でアモルファス状の GaN バッファ層を 25nm成長させた後、 1071 で高温 GaN を 2µm 程度成長させる2段階成長法を用いた。1071 における GaN の成長条件は、TMG 88µ mol/min、NH₃ 4slm (standard liter per minute), H₂ 4.0slm、N₂ 11.5slm である。この時の成長速度は 2.2µm/h で ある。

図5に、GaN の表面形態を原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscopy、AFM)で調べた結果を示す。走査プロー プはSi₃N₄でできており、コンタクトモード AFM である。図5において、直径数 nm の点とステップを観測すること ができる。ここで数 nm の点は、Sapphire 基板と GaN の間で生じる貫通転位によることが知られており、このことか ら貫通転位密度を見積もると、6x10⁸cm⁻²となる。この値は、以前の報告と遜色ないものである。ステップの高さは、 AFM 断面像から約 0.3nm であることから、単原子層ステップであることが分かる。RMS 粗度は 0.17nm であるから、 極めて平坦な平面が得られている。

さらに基板と GaN 層の間の転位密度を低減する方法として、Nishinaga らが提案した MCE(Microchannel Epitaxy)の一種である横方向成長(Epitaxial Lateral Overgrowth、ELO)を用いると、転位密度が 10⁶cm⁻² と非常に少ない領域を作製できることが示されている。また、ホモエピタキシャル成長を可能とする GaN 基板に関する研究も盛んに行われている。



図6 InGaN量子ドットの成長

1071 で GaN 層を成長した後、720 - 820 に成長温度を下げて InGaN を供給し、InGaN 量子ドットの形成を行う。 InGaN の成長条件は、TMG 10µmol/min、TMI 30µmol/min、NH3 10.0slm、H2 0.20slm、N2 12.3slm である。この 時の成長速度は 0.21ML(mono-layer)/s である。図6 は供給量を 1.05ML で一定にし、成長温度を変化させた場合 の InGaN 量子ドットの AFM 像である。ここで、InGaN 量子ドット中の In 組成は、0.2 - 0.4 である。図6 (a)では、 量子ドットの直径・高さの平均がそれぞれ16nm、4nm であり、密度は 1.6x 10¹⁰cm⁻² である。図6より、成長温度を上 げていくと、個々の量子ドットの形状が大きくなり、密度が減少していく。図6 (c)の成長温度が 820 の場合では、 成長温度が高すぎるために量子ドットが全く形成されていない。このような成長温度に対する振る舞いは、 InAs/GaAs 量子ドットと同じである。

4.2 InGaN 量子ドットの光学特性

InGaN 量子ドットを埋め込んだ試料を作製し、室温においてフォトルミネッセンス(PL)の測定を行った。埋め込 む前の試料の AFM 像を図7(a)に示す。量子ドットの平均の直径と高さはそれぞれ 23nm、5nm である。また、密 度は 1.0x 10¹⁰cm⁻²である。

PL の励起光源として、He--Cd レーザ(励起波長 325nm)を用いた。長さ 0.3m の分光器を用い、グレーティング 300grooves/mm で測定を行った。この時の波長分解能は 0.8nm である。検出器には、液体窒素冷却型 CCD カメラを 用いた。

図7(b)に、PL スペクトルを示す。ピークエネルギーが 2.86eV、半値幅が 390meV である。半値幅が広い原因と

して、量子ドットのサイズ揺らぎや組成揺らぎが反映しているためと考えられる。

本来、量子ドットの発光は、離散的な状態密度を反映した先鋭なものになるはずである。しかし、実際には量子ドッ トにサイズ・組成揺らぎが存在するため、大量の量子ドットを励起・検出するマクロ PL では限界がある。量子ドット 固有の発光を観察するためには、少量の量子ドットを評価することが不可欠である。そこで、1 辺が 400nm の正方形 の開口部を設けた AI マスクを試料に施して、µ-PL によって評価を行った。励起光源には、Ar レーザ(励起波長 351nm)を用いた。50 倍の対物レンズを用いて、レーザ径を 2µm まで絞り、試料を励起した。ここで、量子ドット 密度が 1.0x10¹⁰cm² であり、開口部の面積を考慮すると、励起・検出する量子ドットの個数は約 20 個に限定される。 長さ 0.5m の分光器を用い、グレーティング 2400grooves/mm で測定を行った。この時の波長分解能は、0.03nm (170µeV)である。検出器には、液体窒素冷却型 CCD カメラを用いた。なお、測定は 3.5K で行った。図8に測定結 果を示す。

ここで、個々のピークが単一量子ドットからの発光であると考えられる。最も鋭いピークの発光線幅は 170µeV で あり、測定系の分解能で制限される値である。この発光は電子の3次元量子閉じ込めを反映したものであると考えら れる。





図 8 低温でのPLスペクトル

図 7 ドットのAFM像とPL

4.3 InGaN 量子ドットの積層化



図9 量子ドットの積層化

量子ドットの積層化は、量子ドットレーザの活性層に用いる量子ドット密度を増加させる上で非常に重要な技術である。また、積層量子ドット間の相互作用など物理的側面からも興味深いものである。

積層化量子ドットを作製するときには最初に InGaN を 10.5ML 供給し、量子ドットの形成を行う。成長温度は 740 である。このときの量子ドットの直径・高さの平均はそれぞれ 18nm、nm であり、密度は 1.2x10¹⁰cm⁻² である。この 後に、バリア層を 5nm 成長し、再び同じ成長条件で InGaN を供給することにより量子ドットの形成を行う。

図9は、積層数を増加させていったときの AFM 像である。図9より、積層数を 10 まで増加させても量子ドットが 形成されている。図9(c)より、積層数が 10 の時における最上層の量子ドット密度は 2.5x10¹⁰cm² である。

図10は、単層の量子ドット、3 層積層化したもの、10 層積層化したものの PL スペクトルである。図10より、積層数 を増加させていくことにより発光強度が著しく増大している。この理由として、全体の量子ドット密度が増大したこと、 積層化していくことにより InGaN 層の結晶性が改善されたことなどが考えられる。

4.4 量子ドットレーザ



図11 量子ドットレーザの構造図



図13 選択成長による量子ドット

レーザ構造は、量子ドットを含む活性層を Al_{0.07}Ga_{0.93}N クラッド層で挟み込んで作製される(図11)。活性層は In_{0.2}Ga_{0.8}N 量子ドットと In_{0.2}Ga_{0.98}N バリア層を10周期積層したものである。図11(a)は、同じ条件で作製された参照 用 In_{0.2}Ga_{0.8}N 量子ドットの AFM 像である。量子ドットの直径と高さの平均はそれぞれ20nmと5nm、密度は 6x10⁹cm⁻² である。

次に、光励起によるレーザの入出力特性を室温で測定し、図12(a)に示した。TE偏波の入出力特性は 6.0µJ をし きい値とした非線形性を示している。図12(b)に高分解スペクトルに示す。発振前(0.5Eth)のスペクトルは線幅が 1.9nm であったが、発振後(1.3E_{th})には分解能の 0.1nm 以下となり、レーザ発振が確認できた。強励起下(1.7E_{th}) では多モード発振になったが、これは量子ドットの組成・サイズ揺らぎによると思われる。

自己形成法による量子ドットは、構造の均一性などに課題を残す。そこで、リソグラフィー技術で精密にパターニン グされた基板上に結晶成長する手法(選択成長法)よって、均一な量子ドット構造の作製が試みられている。図13(a) に示されているように、均一な窒化物六角錐構造を実現し、その上に(b)のような先端曲率数 nm の量子ドット構造 を作製した。InGaN 系量子ドットでは室温で強い発光が確認され、高空間分解能を有する蛍光顕微鏡で発光位置の特 定を行った結果、頂上部分に電子の局在状態が形成されていることが示された。

5.まとめ

本研究では、超高密度光メモリ用の光源として供することを目的として、青色面発光レーザの素子化研究ならびに高 品質活性層の開発研究に取り組んだ。GaN/AlaN 多層膜反射鏡に Si をドーピングした場合の特性について検討した結 果、成長条件を精密に制御することによってノンドープと同等の反射率を得ることが可能であることが分かった。また、 高利得青色利得材料の実現を目指して、InGaN 量子ドットの選択成長に取り組んだ結果、均一で高密度なナノメート ル寸法の量子ドットの作製に成功した。

題名	掲載誌・学会名等	発表年月
MOCVD 選択成長による GaN 量子ドットの作製	第 61 回応用物理学会学術講演会, 6a-L-9	2000年9月
Fabrication of InGaN quantum dot structures by selective growth	19th Electronic Materials Symposium (EMS19), p.167.	2000年6月
次世代窒化物半導体レーザーの展望 -青色面発光 レーザーと青色量子ドットレーザー-	応用物理、 第69巻、第10号、pp.1196-1199	2000年10月
Growth and Physics of Nitride-based Quantum Dots and Heterostructures	The fourth European GaN Workshop, Invited Talk 3, University of Nottingham, UK	2000年6月
Progress in Nitride-Based Quantum Dots and Heterostructures	Japan-Germany Nanotechnology Workshop, Berlin, Germany	2000年10月
Growth and Physics of Nitride-based Quantum Dots for Optoelectronics Applications	International Workshop on Nitride Semiconductors -IWN2000-, Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, pp.39-41	2000年9月
Growth and optical properties of III-V quantum dots for optoelectronics applications	The Tenth International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy, We- I12, Sapporo, Japan	2000年6月
Growth and Optical Properties of Nitride-Based Quantum Dots and Heterostructures	International Symposium on Physics and Applications of Semiconductors, Cheju Island, Korea	2000年12月
Observation of enhanced spontaneous emission coupling factor in blue InGaN microcavities	25th International Conference on Physics of Semiconductors, J12, Osaka, Japan	2000年9月
Light emission from a single InGaN quantum dot formed by selective area growth	Conference on Lasers and Electro-Optics, CWB6, USA	2000年5月
High-density InGaN quantum dots fabricated by selective MOCVD growth	International Workshop on Nitride Semiconductors, PMD-46, Nagoya, Japan, September 2000; IPAP Conference Series 1, pp. 417-420	2000年9月

< 発 表 資 料 >