

1. 「サファイア基板上GaN系
面発光レーザに関する研究」

第1章 序論

1.1 はじめに

近年、情報関連技術は2000年の流行語に“IT革命”が選ばれたことに象徴されるように、目覚ましい発展を遂げてきた。この技術において重要な役割を果たしているのが、オプトエレクトロニクスである。

オプトエレクトロニクスは情報化社会の進む中で、多方面にわたる展開が期待され、中でも光ディスクシステムを中心とした情報処理機器は、ますます重要な役割を果たすことになる。この光ディスクシステムにおいて、その性能を支配するのが光ヘッドである。そして、そこに用いられる半導体レーザはシステム全体の機能に大きな影響を与える基礎部品である。

半導体レーザはCD(Compact Disk) プレーヤ用光源として本格化したものであり、産業として一分野を形成できたのはこのCDプレーヤの普及によるものであるといっても過言ではない。このCDプレーヤ用半導体レーザを出発点として、半導体レーザは、波長、光出力、および雑音特性などの性能面、さらに信頼性、生産性などの工業的な面での技術開発が進み、今やオプトエレクトロニクスの主要部品としての地位を確固たるものにしてきている。しかしながら現在においても、光ディスクシステムをはじめとする光機器の一層の高性能化、多機能化のため、半導体レーザは短波長化・高出力化・低雑音化などのさらなる要求がなされている。

一般に光をレンズで絞ったときに、回折限界で決まるスポットの大きさ d は式(1-1)で得られる。

$$d = \frac{\lambda}{2NA} \quad (1-1)$$

λ は光の波長、NAはレンズの開口数である。NA \sim 0.6なので、 d は波長 λ 程度である。従来のAlGaInP系赤色レーザの場合、読み出せる最小マークサイズは600nm程度ということになる。従って、スポット径を小さくし高密度化を図るには、NAを大きくするか波長を短くすればよいことになる。NAを0.85程度にし、青

紫色レーザを用いることができればスポット径は半分となり、従ってトラックピッチを半分にすれば4倍の高密度化が実現できる。DVD (Digital Versatile Disk) については、青紫色レーザの採用により12 cm ディスクで25 GB の大容量化が可能であることが示されている^[1]。また、次世代 DVD-RW についても、高 NA レンズと青紫色レーザにより、22 GB の大容量化に見通しがついた^[2]。

現在では、Ⅲ族窒化物半導体を用いた GaN 系端面レーザ ($\lambda \sim 405$ nm) が実用レベルの出力と寿命を達成し、これを用いた光記録の実験が行われている。現在のところ、電子ビームマスタリングで作製したトラックピッチ 0.26 mm, マーク長 0.213 mm の容量 25 GB の DVD を、高開口数 (NA=0.85) のレンズを用いて再生することに成功した^[3]。また、405 nm を用いた相変化記録では、直径 12 cm のディスクに 22.4 GB の容量、50 Mbit/s のデータレートで記録再生するという成果を達成している。また、2層構造の DVD において、NA=0.65 のレンズでトラックピッチ 0.34 mm, マーク長 0.29 mm, 層間距離 35 nm, 容量 27 GB ディスクの記録再生を行い、33 Mbps の転送レートを達成している^[4]。

半導体レーザには、ここまで述べてきた端面発光レーザと面発光レーザがある。面発光レーザは半導体基板と垂直に光が取り出せるように考えられた半導体レーザである。基板の上に多くのレーザが並べられるので、並列光情報処理や光インターコネクタなど、新しいオプトエレクトロニクス分野への応用を目指した新しい半導体レーザとして注目されている。この半導体レーザは半導体のプロセス技術によって集積回路のように、いわゆるモノリシックに作製でき、2次元並列集積化が可能であることを特徴としている。

青色から紫外域にかけての発光をもつ GaN 系面発光レーザは、高密度光記録、フォトリソグラフィ、レーザプリンタの画質向上、高速化において重要な半導体レーザである。

1.2 窒化物半導体

Ⅲ族窒化物半導体である AlN, GaN, InN は、室温でのバンドギャップが 1.9 eV (InN) から 6.2 eV (AlN) までをカバーすることができる、いずれも室温大気圧において安定な、ウルツ鉱型の結晶構造であり直接遷移型半導体である。また、同一結晶構造同士では混晶の作製も可能で、それらも全て直接遷移型であるこ

とから、特に短波長光源や耐環境デバイスなどへの応用が期待されている。そのため本項では発光素子の研究を中心にして簡単に述べる。

GaN は融点が高く、さらに窒素の平衡蒸気圧が非常に大きいため、Si や GaAs などで行われているような融液からのバルク結晶の成長は困難である。また、V 族に水素化物を使用するハイドライド気相成長法 (Hydride Vapor Phase Epitaxy : HVPE) 法、有機金属気相成長 (Metalorganic Chemical Vapor Deposition : MOCVD) 法、分子線エピタキシー (Molecular Beam Epitaxy : MBE) 法によるヘテロエピタキシャル成長においても、GaN などの窒化物半導体は格子定数が他の半導体結晶に比べて小さいことから、格子定数が整合する基板が存在しないため、単結晶薄膜の成長は困難であった。表 1-1 に各種物性値を示す^[5-7]。

1969 年に HVPE 法によってサファイア基板上に GaN 単結晶の作製に成功したことにより^[8]、GaN 系化合物半導体に関する研究は加速した。1971 年には Pankove らによって GaN 単結晶薄膜を用いた MIS(Metal-Insulator-Semiconductor) 構造による青緑色 LED が開発された^[9]。しかしながら、これらの GaN は単結晶とはいえ表面の凹凸が激しく、しかもクラックの多いものであった。そのため、1970 年代後半から 1980 年代前半にかけてこれら GaN 系化合物半導体に関する研究活動は次第に下火になった。しかし、Amano らは GaN 成長前に低温 AlN を緩衝層として用いることで、鏡面な面が得られ結晶性も飛躍的に向上することを発見した^[10]。1991 年には AlN の代わりに GaN を低温 (約 550 °C) で成長し、その上に高温 (約 1000 °C) で GaN を成長しても同様に鏡面で平坦な膜ができ、膜の結晶性も向上することが確認された^[11]。このような低温堆積緩衝層技術の開発により、GaN の結晶性ならびに電気的、光学的特性が飛躍的に向上し、p 型伝導性結晶の実現への足がかりとなった。p 型 GaN は、1989 年に Amano らによって、p-GaN に低速電子線照射 (Low Energy Electron Beam Irradiation : LEEBI) することで、低抵抗 p-GaN を得ることが可能となった^[12]。これは電子線照射のエネルギーにより格子間位置にあった Mg が Ga サイトに移動することでアクセプタとして作用するためであると説明された。この技術により世界で初めて GaN による pn 接合型 LED が作製された。また、Nakamura らは p-GaN に熱的アニーリングを施すことで低抵抗 p-GaN を得ることに成功した^[13]。これは MOCVD 法による成長時では搬送ガスに H₂、V 族源に NH₃ を用い

ていることから、Mg が H で不活性化されてしまうため p-GaN を得ることができないが、熱的アニーリングを施すことで H と Mg の結合が外れ、低抵抗 p-GaN が得られると説明された。

また、発光素子の作製には AlGaIn や InGaIn といった混晶の結晶成長が必要である。しかしながら、AlGaIn の成長において Al がリアクタの石英と反応するため HVPE 法では困難である。MOCVD 法においても Al 源であるアルキル化合物と NH₃ が気相で強く反応してしまい、付加生成物が AlGaIn の成長を妨げてしまう^[14]。このことから当初、AlGaIn の結晶成長は非常に困難とされていたが、リアクタの改良によってこの問題は解決した。また、InGaIn は In の組成比が大きい場合、組成安定性が低いため熱分解し易い^[15]。Osamura^[16]、Nagatomo ら^[17]によって InGaIn の研究がなされていたが、これらの研究では InGaIn の成長温度は 600 °C 以下であった。しかし Nakamura らによってバンド端遷移発光を可能とする InGaIn は N₂ をキャリアガスに用い、比較的高温の 700~800 °C の成長温度で得られることが示された^[18-21]。Koukitsu らによって熱力学的に InGaIn の MOCVD 成長の解析を行っているが、そこで高い V/III 比と高い N₂ 分圧が InGaIn の成長時に必要であることを示している^[22, 23]。

現在では、様々な問題が克服され、InGaIn/AlGaIn ダブルヘテロ構造の 1 cd 以上の光度を有する高光度青色 LED が製品化されている。

1.3 本論文の構成

本論文は、GaN 系面発光レーザの実現に向け、GaN 系面発光レーザに用いる反射鏡と GaN 系面発光レーザ構造の LED についての研究をまとめたものである。まず第 2 章で半導体レーザの原理を述べ、第 3 章で GaN 系面発光レーザに用いる誘電体多層膜反射鏡を作製し、その特性について述べる。第 4 章でサファイア基板をエッチングした面発光型 InGaIn LED を作製し、その特性について述べる。第 5 章で基板側反射鏡に半導体多層膜反射鏡を用い、成長層側反射鏡に誘電体多層膜反射鏡を用いた GaN 系面発光レーザ構造の LED を作製し、その特性について述べる。そして第 6 章ではこれらの総括とする。

第 1 章 参考文献

- [1] T. Imai, N. Shida, K. Suga, T. Higuchi, T. Iida and F. Yokogawa : *Digest ISOM2000, Sept 5-8, 2000, Chitose*, p. 20.
- [2] H.J. Borg, M. van Schijndel, M.H.R. Lankhorst, G.F. Zhou, B.A.J. Jacobs and M.J. Decker : *Digest ISOM2000, Sept 5-9, 2000, Chitose*, p. 6.
- [3] M. Katsumura, H. Kitahara, M. Ogasawara, Y. Kojima, Y. Wada, T. Iida and F. Yokogawa : *Digest ISOM2000, Sept 5-9, 2000, Chitose*, p. 18.
- [4] T. Akiyama, M. Uno, H. Kitahara, K. Narumi, K. Nishiuchi and N. Yamada : *Digest ISOM2000, Sept 5-9, 2000, Chitose*, p. 116.
- [5] 応用物理 : **64** (1995) 642.
- [6] S. Strite, M. E. Lin and H. Morkoç : *Thin Solid Films* **231** (1993) 197.
- [7] S. M. Sze : *Physics of Semiconductor Devices* 2nd Edition (Wiley Interscience)
- [8] F. A. Ponce, B. S. Krusor, J.S. Major, Jr., W. E. Plano and D. F. Welch : *Appl. Phys. Lett.* **67** (1995) 410.
- [9] J. I. Pankove, E. A. Miler, D. Richman and J. E. Berkeyheiser : *J. Lumin.* **4** (1971) 63
- [10] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki and Y. Toyoda : *Appl. Phys. Lett.* **48** (1996) 353.
- [11] S. Nakamura : *Jpn. J. Appl. Phys.* **30** (1991) L1705.
- [12] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, N. Sawaki and I. Akasaki : *Jpn. J. Appl. Phys.* **28** (1989) L2112.
- [13] S. Nakamura, N. Iwasa, M. Senoh and T. Mukai : *Jpn. J. Appl. Phys.* **31** (1992) 1258.
- [14] Y. Koide, H. Itoh, N. Sawaki, I. Akasaki and M. Hashimoto : *J. Electrochem. Soc.* **133** (1986) 1956.
- [15] A. Koukitsu and H. Seki : *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** (1996) L1638.
- [16] K. Osamura, N. Nakajima and Y. Murakami : *Solid State Commun.* **11** (1972) 617.
- [17] T. Nagatomo, T. Kuboyama, H. Minamino and O. Omoto : *Jpn. J. Appl. Phys.* **28** (1989) L1334.

- [18] S. Nakamura and T. Mukai : Jpn. J. Appl. Phys. **31** (1992) L1457.
- [19] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh, S. Nagahama and N. Iwasa : J. Appl. Phys. **74** (1993) 3911.
- [20] S. Nakamura, T. Mukai and M. Senoh : Jpn. J. Appl. Phys. **32** (1993) L16.
- [21] S. Nakamura, N. Iwasa and S. Nagahama : Jpn. J. Appl. Phys. **32** (1993) L338.
- [22] A. Koukitu, N. Takahashi, T. Taki and H. Seki : Jpn. J. Appl. Phys. **35** (1996) L673.
- [23] A. Koukitu and H. Seki : Jpn. J. Appl. Phys. **35** (1996) L1638.

表1-1 窒化物半導体と各種基板材料の物性定数 [5-7]

	Crystal structure	Band gap energy (eV)	Melting point (°C)	Lattice constant (Å)	Coefficient of thermal expansion ($10^{-6}K^{-1}$)
AlN	Wurtzite	6.2	3000	a=3.112	$\Delta a/a=4.2$
				c=4.982	$\Delta c/c=5.3$
GaN	Wurtzite	3.39	>1700	a=3.189	$\Delta a/a=5.59$
				c=5.185	$\Delta c/c=3.17$
InN	Wurtzite	1.89	1100	a=3.548	
				c=5.760	
Si	Diamond	1.12	1415	a=5.431	$\Delta a/a=2.6$
Sapphire	Corundum	>10		a=4.758	$\Delta a/a=7.5$
				c=12.99	$\Delta c/c=8.5$
6H-SiC	Wurtzite	2.89		a=3.08	$\Delta a/a=4.2$
				c=15.12	$\Delta c/c=4.68$

第2章 半導体レーザーの理論

2.1 はじめに

レーザー(laser)とは“Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation”の頭文字から名付けられたデバイス名である。“放射(電磁波)の誘導放出による光の増幅”であり、光と励起状態の電子との相互作用に基づいた光の増幅・発光デバイスである。

半導体レーザーの有利な点には、以下のようなものがある。

- ① 小型・堅牢である
- ② 他のレーザーと比べて高効率
- ③ 広い波長選択の可能性
- ④ 長寿命・高信頼性
- ⑤ 低価格
- ⑥ 大量生産が可能

面発光レーザーは半導体基板と垂直に光が取り出せるように考えられた半導体レーザーの一種である。基板の上に多くのレーザーが並べられるので、並列光情報処理や光インターコネクトなど、新しい光エレクトロニクスの分野への応用を目指した半導体レーザーとして注目されている。この面発光レーザーは半導体のプロセス技術によって集積回路のように、いわゆるモノリシックに作製でき、2次元並列集積化が可能であることを特徴としている。

2.2 半導体レーザーの動作原理

pn接合に順バイアスを加えることにより半導体を励起状態にし、励起状態にある半導体から再結合によって自然放出光が生じる。この光が種となり、反射鏡などの光学系によってその種を反転分布状態にした半導体中にフィードバックし、誘導放出を起こさせる。誘導放出による光の増幅が、全光学系の損失に打ち勝てば、光の種は成長してレーザー発振となる。

このように、レーザー発振に必要な条件は3つある。

- ① 反転分布
- ② 光共振器
- ③ 高い光利得

2.2.1 反転分布

半導体は平衡状態においては、伝導帯よりエネルギー状態の低い価電子帯に電子が多く存在する。したがって、この状態で半導体に光が入射すると、電子が光を吸収し価電子帯から伝導帯に遷移する。光の照射及びpn接合への電流注入などにより外部からエネルギーを与えれば高いエネルギー状態に電子は存在できるが、その電子数が少ないと入射光は吸収され、誘導放出は起こらない。これらのことより誘導放出を利用する半導体レーザにおけるレーザ発振の条件とは、誘導放出が吸収に打ち勝つことである。誘導放出が吸収に打ち勝つためには、伝導帯に電子が存在する確率が価電子帯に電子が存在する確率より大きくなければならないことになる。この状態を反転分布という。これを式で表すと以下のようになる。

$$F_c - F_v > E_c(k_c) - E_v(k_v) \quad (2-1)$$

ここで、 F_c, F_v はそれぞれ注入された伝導帯の電子及び価電子帯の正孔の間で再結合が生じている場合の、準平衡な電子及び正孔の分布に対する擬フェルミ準位として定義されるもので、 $E_c(k_c), E_v(k_v)$ は波数 k_c, k_v を持つそれぞれのキャリアのエネルギーである。その関係を図2-1に示す。

擬フェルミ準位は、外部からの入射光やpn接合への電流注入により電子、正孔が平衡状態より増加した場合、これらキャリアの絶対温度での上限エネルギーを示すものである。電子が伝導帯中のエネルギー準位 $E_c(k_c)$ に存在する確率 f_c 、また、価電子帯中のエネルギー準位 $E_v(k_v)$ に存在する確率 f_v は、フェルミ-ディラック(Fermi-Dirac)分布で与えられ、それぞれ以下のように表される。

$$f_c = \left\{ 1 + \exp\left(\frac{E_c(k_c) - F_c}{kT}\right) \right\}^{-1} \quad (2-2)$$

$$f_v = \left\{ 1 + \exp\left(\frac{E_v(k_v) - F_v}{kT}\right) \right\}^{-1} \quad (2-3)$$

ここで、 k はボルツマン定数(8.62×10^{-5} eV/K)、 T は絶対温度である。

よって、式(2-1)の条件が満たされると、伝導帯では F_c , $E_c(k_c)$ 間は電子で満たされ、価電子帯では F_v , $E_v(k_v)$ 間は電子が存在せず、正孔で満たされているということになる。したがって、 $h\nu$ の光が次の条件を満たすと誘導放出が吸収に打ち勝つことになる。

$$F_c - F_v > h\nu \quad (2-4)$$

上述のような反転分布の状態を半導体レーザーでは pn 接合に電流注入することにより得る。

2.2.2 共振器

半導体を反転分布の状態にしただけでは光は増幅するがレーザー発振は起こらない。レーザー発振を起こさせるためには共振器を作る必要がある。

最も基本的な光の共振器は、2枚の平行鏡からなるファブリ・ペロー (Fabry-Perot)共振器である。結晶格子には特定の割れやすい面 (へき開面)がある。この劈開面は原子間隔のスケールで平面であるから、光波にとって十分平らな反射面である。反射鏡の方向へ進む光は誘導放出作用によって増幅され反射鏡で反射され、向きを 180 度かえて進行する。これを繰り返したとき、増幅利得が共振器損失に打ち勝てば、レーザー発振が生じる。共振器は、エッチングにより作製されたり、分布帰還形構造(DFB 構造 ; Distributed FeedBack), 分布型ブラッグ反射鏡構造(DBR 構造 ; Distributed Bragg Reflector) などがある。

2.2.3 光利得

共振器の中で半導体が反転分布状態であるとする、再結合によって発生する自然放出光は等方的に伝搬し、反射鏡のない方向に進んだ光は半導体から出てしまうが、反射鏡の方向へ進んだ光は増幅され、反射鏡で反射されてまた同じ場所に戻ってくる。ここで図 2-2 に示すように、反射鏡の反射率を r , 共振器長を L とし、媒質による光の損失を単位長さ当り α とすると、ある点から出発した光が反射鏡で 2 回反射されて元の位置に戻ってきたときの光の強度は、次式のように表される。

$$r^2 \exp(-2\alpha L) \quad (2-5)$$

一方、誘導放出によって光が増幅される割合を単位長さ当りの利得 g (利得係

数) で表すと一往復で $\exp(2gL)$ 倍となる。したがって、レーザ発振するのは次式が成り立ったときである。

$$r^2 \exp(-2\alpha L) \cdot \exp(2gL) = 1 \quad (2-6)$$

また、そのときの利得係数は、

$$g_{th} = \alpha + \frac{1}{L} \ln \frac{1}{r} \quad (2-7)$$

となる。

レーザ発振が起こると 2 つの反射鏡の間には定在波が起こり、反射鏡から透過した光が外部に取り出せる。媒質の屈折率を n とすると、媒質内の半波長 $\lambda/(2n)$ の整数 m 倍が共振器長 L であることから

$$\frac{\lambda}{2n} m = L \quad (2-8)$$

が成り立つ。 m は整数倍であればよいが、利得を持つ波長の範囲が限られているので、特定の数值となる。すなわち半導体レーザでは、擬フェルミ準位間と禁制帯幅のエネルギー間に相当する波長に対してのみ利得があることから、ある波長を中心にとびとびにいくつかの波長で発振することになる。また、これらの発振スペクトルはレーザ光の進行方向における光波の状態を表すので縦モードといわれる。

2.3 GaN 系レーザの歴史と現状

Ⅲ族窒化物半導体の代表格である GaN は、室温におけるバンドギャップが 3.39 eV で、堅牢かつ化学的にも安定であることから、青色・紫外域の発受光デバイスへの応用が期待され、はやくから結晶成長の研究が行われてきた。

GaN 系青色レーザは 1995 年末に InGaN 多重量子井戸構造を発光層とすることにより室温パルス下において、初めて電流注入による発振が報告された。続いて 1996 年には、InGaN 多重量子井戸構造で、 -40°C において、発振波長 410 nm、閾値電流 200 mA (閾値電流密度 5~10 kA/cm^2)、動作電圧 10 V の低温連続発振が報告された。さらに同年後半には、発振波長 406 nm、閾値電流 80 mA (閾値電流密度 3.6 kA/cm^2)、動作電圧 5.5 V、寿命 35 時間に達する室温連続発振青紫レーザが報告された。このような研究開発を経て、現在では青紫色半導体レー

ザが日亜化学工業より市販化されている。

2.4 面発光レーザ

2.4.1 面発光レーザの構造

半導体基板と垂直方向に光を出射する面発光レーザには、基板と垂直にレーザ共振器を構成する、いわゆる垂直共振器構造のほかにも、回折格子や45度反射鏡を用いて光を基板と垂直に取り出す構造など、いろいろな形態の面発光レーザの研究が主に高出力応用と並列処理の観点から盛んに行われている。

現在研究の進められている面発光レーザは、レーザ共振器の点から以下のように3種類に大別されている。

- (A) 垂直共振器型
- (B) 水平共振器型 (回折格子型、45度反射鏡型)
- (C) 曲がり共振器型 (曲がり導波路型、45度内部反射鏡型)

2.4.2 面発光レーザにおける閾値電流密度

面発光レーザの閾値利得 g_{th} は、活性層厚を d 、2つの反射鏡の反射率を R_m 、共振器長を L 、活性層およびクラッド層での損失をそれぞれ α_{ac} 、 α_{ex} としたとき、次式のように表される。

$$g_{th} = \alpha_{ac} + \alpha_{ex} \left(\frac{1}{\xi} - 1 \right) + \frac{1}{\xi L} \ln \left(\frac{1}{R_m} \right) \quad (2-9)$$

ここで、 ξ は共振モードが活性領域に閉じ込められる割合を示す光閉じ込め係数で、共振器の横方向の割合 ξ_x と縦方向の割合 ξ_z の積で表される。

$$\xi = \xi_x \xi_z \quad (2-10)$$

面発光レーザでは閉じ込め係数 ξ は以下のようになる。

$$\xi = \frac{d}{L} \quad (2-11)$$

注入キャリア密度に対して光学利得が線形に変化すると近似すれば、閾値利得は、

$$g_{th} = A_0 N_{th} - \alpha_{in} \quad (2-12)$$

と表される。ここで A_0 は線形利得係数、 N_{th} は閾値キャリア密度、 α_{in} はキャリ

アを注入しない状態での過剰損失である。

閾値キャリア密度 N_{th} は式(2-9), (2-12)より次式で表わすことができる。

$$N_{th} = \frac{1}{A_0} \left\{ \alpha_{ac} + \alpha_{in} + \alpha_{ex} \left(\frac{1}{\xi} - 1 \right) + \frac{1}{\xi L} \ln \left(\frac{1}{R_m} \right) \right\} \quad (2-13)$$

また、閾値電流密度は、閾値キャリア密度および自然放出の発光寿命時間 τ_s を用いて次の式で与えられる。

$$J_{th} = \frac{q d N_{th}}{\eta_i \tau_s} \quad (2-14)$$

ここで η_i は内部量子効率、 q は電子の電荷である。

キャリア寿命時間 τ_s は、一般的には注入キャリア密度に依存しており、以下の式で近似できる。

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_s} &= B_{rad} N + A_1 + A_2 N + A_3 N^2 \\ &= \frac{B_{eff}}{\eta_{spon}} N^{\gamma-1} \end{aligned} \quad (2-15)$$

ここで B_{rad} は放射再結合定数、 B_{eff} は実効再結合数、 η_{spon} は放射再結合効率である。また、 A_1, A_2, A_3 は、非発光再結合寿命を注入キャリアの関数として展開した項である。 $\gamma=2, \eta_{spon}=1$ とすると式(2-13), (2-14), (2-15)より閾値電流密度は以下のように表される。

$$J_{th} \cong \frac{q d B_{eff}}{\eta_i \eta_{spon}} \left[\frac{1}{A_0} \left\{ \alpha_{ac} + \alpha_{in} + \alpha_{ex} \left(\frac{1}{\xi} - 1 \right) + \frac{1}{\xi L} \ln \left(\frac{1}{R_m} \right) \right\} \right]^2 \quad (2-16)$$

短波長面発光レーザでは、電子の有効質量が大きいため閾値が高くなる傾向にある。しかし、高反射率反射鏡ができれば、閾値は低くなる。このため高反射率反射鏡を作製する必要がある。

2.5 面発光レーザにおける反射鏡

面発光レーザの実現には高反射率が得られる反射鏡が必要となる。反射鏡には、半導体多層膜反射鏡、誘電体多層膜反射鏡、金属薄膜反射鏡などが考えられている。

2.5.1 多層膜反射鏡の種類とその形成

一般的に多層膜反射鏡は、屈折率の異なる化学的に安定な 2 つの材料の積層構造により形成される。多層膜反射鏡には半導体多層膜反射鏡と誘電体多層膜反射鏡がある。青色面発光レーザに用いられる半導体多層膜反射鏡の材料としては、GaN, AlGaIn が考えられる。この 2 つの材料は、屈折率差が小さいため、高反射率を得るには多くのペア数を必要とする。しかし、結晶成長時に反射鏡を形成できるという利点がある。一方、誘電体多層膜反射鏡の材料としては表 2-1 に示すような物質が挙げられる。誘電体は、GaN, AlGaIn に比べ屈折率差が大きく取れるため少ないペア数で高反射率を得ることができる。

表 2-1 誘電体多層膜反射鏡に用いられる物質

高屈折率材料	屈折率 n	低屈折率材料	屈折率 n
TiO ₂	2.2~2.7 ($\lambda=550$ nm)	CaF ₂	1.23~1.26 ($\lambda=546$ nm)
ZnS	2.35 ($\lambda=550$ nm)	MgF ₂	1.38 ($\lambda=550$ nm)
ZrO ₂	2.1 ($\lambda=550$ nm)	SiO ₂	1.46 ($\lambda=500$ nm)

2.5.2 多層膜反射鏡の設計

屈折率の異なる媒質を 1/4 波長の光学的厚さで交互に積み重ねると反射鏡となることが知られている。この際、2 つの媒質の屈折率差が大きいほど高反射率が得られる。1/4 波長厚の多層膜が反射鏡となる原理を図 2-3 に示す。屈折率の高い媒質から低い媒質への境界では図 2-3 (a)の n_2 と n_1 の境界に見られるように位相が変化せず、逆に屈折率の低い媒質から高い媒質への境界では図 2-3 (b)の n_2 と n_1 の境界に見られるように位相が π だけ変化する。このため、中心波長では入射光に対する各境界から反射光の位相がそろい、高い反射率が得られる。

特性マトリクス法を用いて多層膜反射鏡の反射率と透過率について求めるため、図 2-4 のようなモデルを考える。

複数の媒質 ($i = 1 \sim 2N$) 番目の境界がそれぞれ x - y 平面に平行な面にあり、その中を $+z$ 方向に進む平面波について考える。媒質 $2N$ 番目の電界のうち、媒質 $2i-1$ 番目と媒質 $2i$ 番目との境界における電界をそれぞれ図 2-4 のようにおくと電力反射率 R 、電力透過率 T は

$$R = \frac{|E_0^{-R}|^2}{|E_0^{+R}|^2} = \frac{|S_{21}|^2}{|S_{11}|^2} \quad (2-17)$$

$$T = \frac{n_{2N+1}}{n_0} \frac{|E_{2N+1}^{+L}|^2}{|E_0^{+R}|^2} = \frac{n_{2N+1}}{n_0} \frac{1}{|S_{11}|^2} \quad (2-18)$$

で与えられるので、マトリクスを随時計算してこれらを求める。ただし S_{ij} は各層の特性マトリクスの積より求めた全領域のマトリクス要素である。

2.6 多層膜反射鏡を用いる面発光レーザ共振器

2.6.1 共振モード

2つの反射鏡により厚さ L_c 、反射率 n_s のスペーサ層をはさんだ共振器を考える。2つの反射鏡が波を反射するときの位相シフトをそれぞれ ϕ_1 、 ϕ_2 とする。波長 λ_0 の波が共振する条件は

$$\phi_1 + \phi_2 + \frac{4\pi n_s}{\lambda} L_c = 2\pi N \quad (N=1, 2, \dots) \quad (2-19)$$

である。代表的には次の2つの場合が考えられる。表2-2に共振モードの電界分布のいくつかを示す。

(a) $\phi_1 = \phi_2 = \pi$ の場合 ($n_s < n_1 (> n_2)$)

$$L_c = \frac{N-1}{2} \cdot \frac{\lambda_0}{n_s} \quad (2-20)$$

$N=2$ のとき、 $L_c = (\lambda_0/2n_s)$ となりスペーサの中心で定在波が腹となる $\lambda/2$ 共振器となる。スペーサの中央では定在波が腹となってここに活性層をおくと利得整合が得られる。

(b) $\phi_1 = \phi_2 = 0$ の場合 ($n_s > n_1 (< n_2)$)

$$L_c = \frac{N}{2} \cdot \frac{\lambda_0}{n_s} \quad (2-21)$$

$N=2$ のとき、 $L_c = (\lambda_0/n_s)$ となって、やはり中央で腹となる λ 共振器となる。なお、 N は共振器中の節の数を表す。 N の偶奇性は定在波の偶奇性に対応する。 N が奇数のとき、スペーサの中央では定在波が節となりここに活性層をおいても発振しない。

表 2-2 多層膜反射鏡の共振モード

$N =$	(a) $\phi_1 = \phi_2 = \pi$ の場合 ($n_s < n_1 (> n_2)$)	(b) $\phi_1 = \phi_2 = 0$ の場合 ($n_s > n_1 (< n_2)$)
$N = 1$	$L_c = 0$	$L_c = \frac{1}{2} \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$
$N = 2$	$L_c = \frac{1}{2} \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$	$L_c = \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$
$N = 3$	$L_c = \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$	$L_c = \frac{3}{2} \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$
$N = 4$	$L_c = \frac{3}{2} \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$	$L_c = 2 \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$
$N = 5$	$L_c = 2 \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$	$L_c = \frac{5}{2} \left(\frac{\lambda_0}{n_s} \right)$

スペーサ層 : 高屈折率層 : 低屈折率層 :

第2章 参考文献

- [1] 伊賀健一, 小山二三男 共著: 面発光レーザーの基礎と応用 (共立出版, 1999)
- [2] 伊賀健一, 小山二三男 共著: 面発光レーザー (オーム社, 1990)
- [3] 赤崎勇 著: 青色発光デバイスの魅力 (工業調査会, 1997)
- [4] 伊藤良一, 中村道治 共著: 半導体レーザー [基礎と応用] (培風館, 1989)
- [5] 伊賀健一 著: 半導体レーザー (オーム社, 1994)
- [6] 稲場文男 著: レーザ工学入門 (電子情報通信学会, 1997)

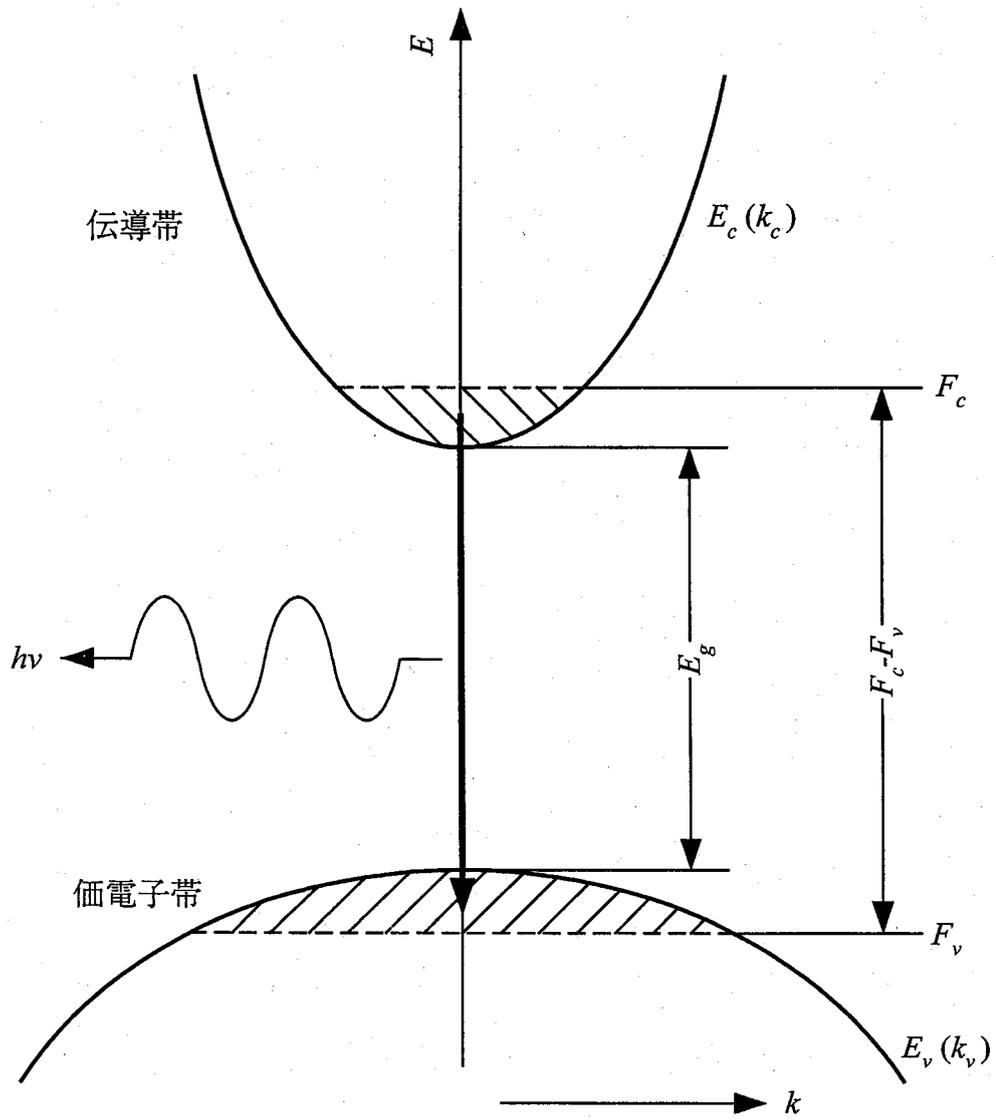


図 2-1 直接遷移によるレーザ作用

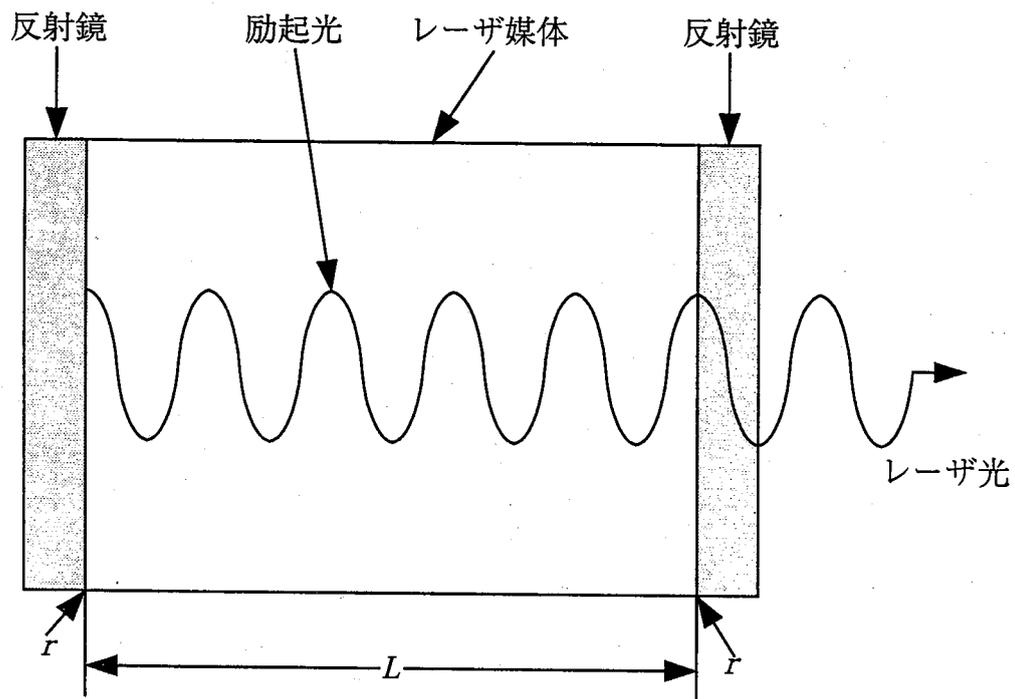
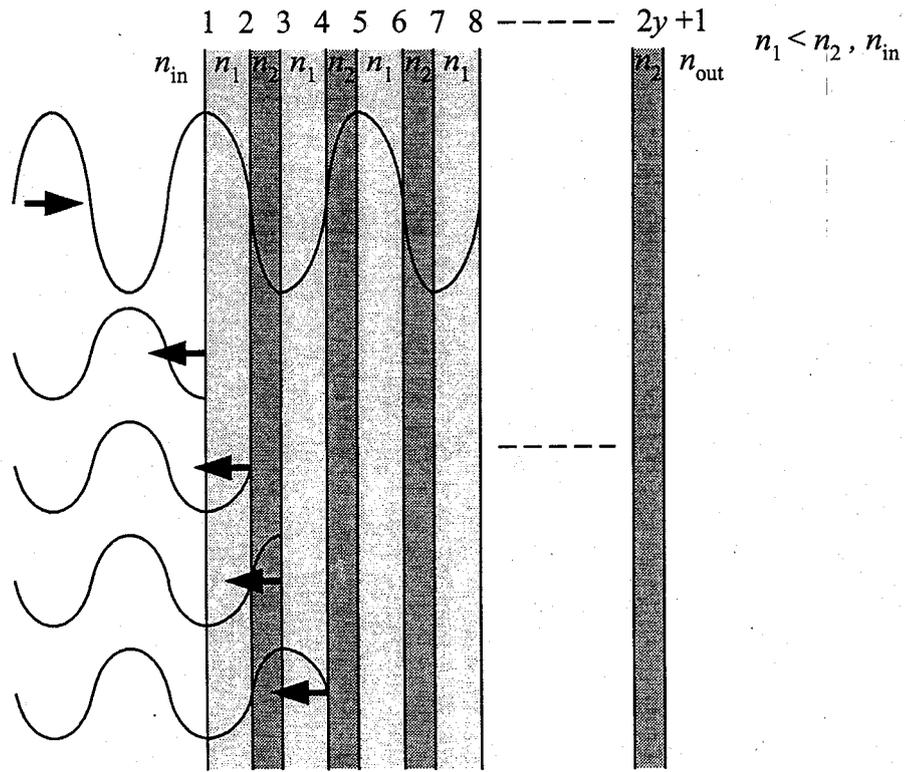
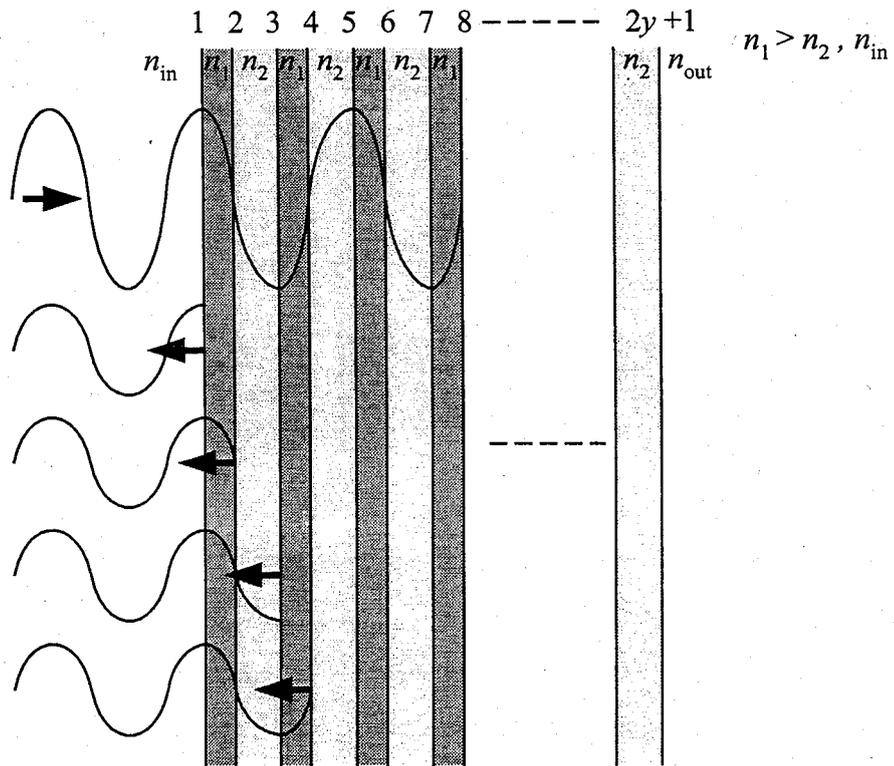


図 2-2 レーザ発振と共振器



(a) 入射が高屈折率側から



(b) 入射が低屈折率側から

図 2-3 多層膜反射鏡の反射原理

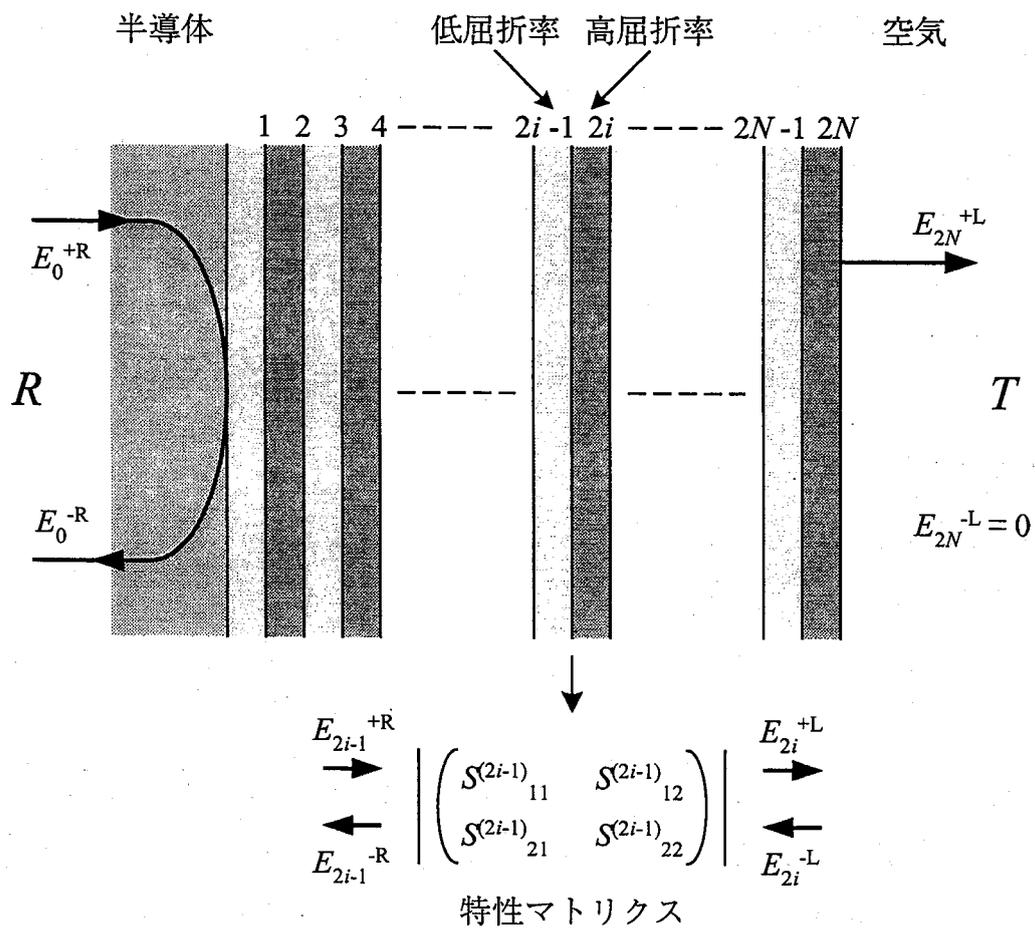


図 2-4 マトリクスモデル

第3章 GaN系面発光レーザ用 誘電体多層膜反射鏡について

3.1 はじめに

GaN系面発光レーザの実現には高反射率を有する2つの反射鏡を作製することが必要である。GaN系面発光レーザに用いる多層膜反射鏡には、半導体多層膜反射鏡と誘電体多層膜反射鏡がある。半導体多層膜反射鏡として考えられているGa_{0.5}N_{0.5}/AlGa_{0.5}N_{0.5}半導体多層膜反射鏡は、交互多層膜を形成する2つの材料の屈折率差が小さいため高反射率を得るには多くのペア数を必要とする。本章では屈折率差が大きく取れる誘電体多層膜反射鏡を取り上げる。また、その誘電体材料をTiO₂, SiO₂とし、これによる反射鏡の作製および評価を行う。

3.2 測定方法^[1]

3.2.1 反射率測定方法

反射率の測定は、反射率が既知である平面反射鏡を参照に、それに対する相対的な反射光強度を測定し、参照した反射鏡の反射率で補正することにより試料の反射率を求めるといった方法をとった。光源にはタングステンヨウ素ランプ、検出器には光電子増倍管を用いた。試料の垂直入射光に対する反射率 R_s は、図3-1に示す光学系を分光光度計に取り付けて測定する。本測定系では、入射角は5度であるが、その反射率スペクトルは、垂直入射光とほぼ変わらないスペクトルを示す。また、本測定では、測定波長範囲において高反射率が得られる参照平面反射鏡としてAl平面反射鏡を用い、この反射率を R_{Al} とする。相対反射率を R_{obs} とした場合、サンプルの反射率 R_s は式(3-1)であらわされる。

$$R_s = R_{obs} \cdot R_{Al} \quad (3-1)$$

このため、Al平面反射鏡の絶対反射率 R_{Al} が必要となる。図3-2に絶対反射率測定系を示す。まずAl平面反射鏡を挿入しない状態にて、ABCDEの光路(実線部分)において光強度を測定する。次に、Al平面反射鏡を挿入し、ABXC'D'Eの光路(破線部分)にてAl平面反射鏡によって反射された光強度の測定を行う。どちらの光路においても、反射鏡 $M_1, M_2 (=M_2'), M_3 (=M_3')$ への入射角度および光路

長は等しい。よって、この光強度比より Al 平面反射鏡の絶対反射率 R_{Al} が求まる。

3.2.2 透過率測定方法

透過率の測定方法は、試料を挿入していない場合の光強度と試料を挿入し、透過した光強度との比で透過率を求める方法をとった。試料への垂直入射光に対する透過率は、図 3-3 に示す光学系にて測定する。

3.3 TiO₂/SiO₂ 誘電体多層膜反射鏡

3.3.1 酸化物の酸素導入反応性蒸着

酸化物、炭化物、窒化物を直接加熱蒸着する場合には問題がある。それは、これらの化合物は加熱すると分解が生じ、非化学量論組成の膜しか得られないことである。本実験で使用する TiO₂, SiO₂ などの酸化物を蒸着させると酸素不足の膜が形成され、このように作製された膜は光を吸収する。しかし、酸素雰囲気中で金属を蒸着すると、蒸着された金属原子は極めて活性であるため、酸素と反応し安定な酸化物を作る^[1]。このため、酸化物は酸素雰囲気中で蒸着することが反射鏡作製において有効である。このことから、本研究では酸素導入反応性蒸着により TiO₂, SiO₂ 薄膜を作製した。

3.3.2 TiO₂, SiO₂ の屈折率、消衰係数の見積もり

TiO₂, SiO₂ の屈折率は文献によればそれぞれ 2.2~2.7, 1.46 であるが、TiO₂, SiO₂ を利用するには、多層膜反射鏡の材料としてその薄膜の膜厚設計が重要であり、それには正確な屈折率を知る必要がある。また高反射率を得るためには両薄膜の光の吸収率を調べる必要がある。以上のことからここでは、分光エリプソメトリーにより TiO₂, SiO₂ 薄膜の屈折率 n と消衰係数 k を見積もった。

分光エリプソメトリーより見積もった TiO₂ 薄膜の屈折率 n と消衰係数 k を図 3-4 に、SiO₂ 薄膜について図 3-5 に示す。TiO₂ 薄膜の測定には、酸素分圧 7×10^{-3} Pa, 堆積速度 0.7 Å/sec の条件で、酸素導入反応性蒸着によって Si 基板上に 300 nm 堆積したものをを用いた。また、SiO₂ 薄膜の測定には、酸素分圧 5×10^{-3} Pa, 堆積速度 1.5 Å/sec の条件で、酸素導入反応性蒸着によって Si 基板上に 300 nm 堆積したものをを用いた。ここで、基板温度に関しては、基板加熱ヒータがサン

ルの直上に位置するため、高温で蒸着した場合、裏面のレジストが焦げたり、サンプル側面に付着していたレジストが沸騰し、蒸着膜表面に付着する等の問題があった。そこで、本実験ではこのような問題が生じない 100 °C を基板温度に採用した。測定の手順としては、入射光の波長を 338 nm から 600 nm まで 2 nm ずつ変化させ、それぞれの波長において反射光の振幅反射率比 $\tan \Psi$, 位相差 Δ を測定し、これより屈折率と消衰係数を計算するというものである^[3]。

TiO₂ の屈折率の文献値は 2.2~2.7 と紹介したが、図 3-4 に示すように本測定では 440 nm の波長において 2.30 であり、消衰係数は波長 440 nm で 1.88×10^{-5} であった。また、SiO₂ の屈折率の文献値は 1.46 と紹介したが、図 3-5 に示すように本測定では波長 440 nm で 1.43, 消衰係数は波長 440 nm で 2.40×10^{-7} であった。さらに図 3-4 (a), 3-5 (a) より、屈折率は短波長ほど大きくなるのがわかり、同時に TiO₂, SiO₂ 薄膜の屈折率差も大きくなる。また、図 3-4 (b), 3-5 (b) より消衰係数も短波長ほど大きくなり光を吸収しやすくなるのがわかる。本研究では、ここで得られた屈折率および、消衰係数を用いて TiO₂/SiO₂ 多層膜反射鏡の設計を行った。

3.3.3 TiO₂/SiO₂ 誘電体多層膜反射鏡の設計

設計中心波長を 440 nm とし、TiO₂, SiO₂ 薄膜とも波長による屈折率、消衰係数の変化があるとした場合の TiO₂/SiO₂ 誘電体多層膜反射鏡の設計を行った。設計中心波長を 440 nm に設定すると、TiO₂ の膜厚は 47.8 nm, SiO₂ の膜厚は 76.9 nm と計算される。図 3-6 にペア数を 3, 5, 7, 10 とした場合の反射率計算結果を示す。また、図 3-7 に反射率ペア数依存性計算結果を示す。図 3-6 より 10 ペアで 99.98 % という高反射率が得られることがわかる。また、図 3-7 より 18 ペアを超えると反射率は飽和するが、これは吸収によるものである。

3.3.4 TiO₂/SiO₂ 誘電体多層膜反射鏡の作製

TiO₂/SiO₂ 誘電体多層膜反射鏡を、酸素導入反応性蒸着によりガラス上に作製した。図 3-8 に作製したサンプルの構造図を示す。設計中心波長を 440 nm とし、TiO₂, SiO₂ の設計膜厚をそれぞれ 47.8 nm, 76.9 nm, 作製ペア数は 3, 5, 7, 10 ペアとした。ここで、堆積速度および酸素分圧は、TiO₂ についてはそれぞれ 0.7 Å/sec,

7×10^{-3} Pa, SiO_2 については $1.5 \text{ \AA}/\text{sec}$, 5×10^{-3} Pa で、基板温度は $100 \text{ }^\circ\text{C}$ とした。また、 TiO_2 蒸着時は、堆積速度 $0.7 \text{ \AA}/\text{sec}$ において酸素分圧を 7×10^{-3} Pa 一定とするため、酸素導入量を図 3-9 に示すように変化させた。ここで、酸素導入量は、ターボ分子ポンプの排気速度を $1.5 \times 10^4 \text{ l}/\text{min}$, 真空計の酸素相対感度を 0.879 とし TiO_2 薄膜蒸着後の真空計指示圧力 P Pa より算出した値である。ここで算出に用いた式を式(3-2)に示す^[4]。

$$\begin{aligned} \text{酸素導入量 (sccm)} &= \frac{\text{酸素導入量 (l/min)}}{1000} \\ &= \frac{\left(\frac{\text{真空計指示圧力 } P \text{ (Pa)}}{\text{酸素相対感度}} \right) \cdot (\text{排気速度 (l/min)})}{1013 \text{ (hPa)}} \Bigg/ 1000 \\ &= \frac{\left(\frac{P \text{ (Pa)}}{0.879} \right) \cdot 1.5 \times 10^4 \text{ (l/min)}}{1.013 \times 10^5 \text{ (Pa)}} \Bigg/ 1000 \end{aligned} \quad (3-2)$$

これより、酸素分圧 7×10^{-3} Pa において酸素導入量は、1.18 sccm となる。図 3-9 より酸素導入量は蒸着開始時より増加し、6 ペア蒸着後には酸素導入量 1.18 sccm と、設定した酸素分圧 7×10^{-3} Pa における酸素導入量にまで変化しているのがわかる。その後、酸素導入量は徐々に増加し、10 ペア蒸着後には 1.28 sccm まで増加している。また、蒸着後の蒸着源は金黒色であり、この色から判断すると TiO となっていると考えられる。これらより、蒸着源の TiO_2 は徐々に酸素が抜け TiO に変化していると考えられ、均一な TiO_2 薄膜の蒸着には酸素導入反応性蒸着が不可欠であるといえる。

3.3.5 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 誘電体多層膜反射鏡の反射率測定

作製した $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 誘電体多層膜反射鏡の反射率測定結果を図 3-10 に示す。ここで、反射率は測定波長範囲において誘電体に吸収はないものとし透過率測定より見積もった。最高反射率は、3, 5, 7, 10 ペアにおいて、それぞれ 85.77 %, 96.64 %, 99.48 %, 99.83 % となる。図 3-10 より反射率のピーク波長は設計中心波長よりずれていることがわかる。これは、多層膜の膜厚が 1 nm ずれると強め合う波長が 10 nm ずれてしまうためであり、実際の膜厚が設計膜厚と異なってい

ることが考えられる。しかし、誘電体多層膜反射鏡は屈折率差が大きいため帯域が広く、ピーク波長が設計中心波長からずれても高反射率が得られている。図 3-11 に $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜反射鏡における反射率のペア数依存性計算結果に測定結果をあわせて示す。図 3-11 より反射率測定値は、どのペア数においても計算値を下回っている。このように測定値が計算値を下回っているのは、膜厚が設計膜厚と異なっていることが考えられる。そこで、作製した $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 10 ペア誘電体多層膜反射鏡の各層における膜厚を調べるため断面 SEM 観察を行った。得られた断面 SEM 像を図 3-12 に示す。これより求めた各層の膜厚を図 3-13 に示す。これらより、各層の膜厚にばらつきがあることが確認された。しかし、断面 SEM 観察より得られた膜厚は設計膜厚の付近にあり、これが反射率測定において計算結果に近い反射率が得られた理由であると考えられる。

3.3.6 まとめ

GaN 系面発光レーザーの反射鏡として $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 誘電体多層膜反射鏡を作製した。作製するにあたり、分光エリプソメトリーにより TiO_2 , SiO_2 薄膜の屈折率 n , 消衰係数 k を見積もった。 TiO_2 の波長 440 nm における屈折率、消衰係数は、それぞれ 2.30, 1.88×10^{-5} で、 SiO_2 ではそれぞれ 1.43, 2.40×10^{-7} であった。分光エリプソメトリーにより見積もった屈折率、消衰係数を用い、設計中心波長を 440 nm とすると TiO_2 , SiO_2 の設計膜厚はそれぞれ 47.8 nm, 76.9 nm となる。さらに、ペア数を 3, 5, 7, 10 ペアとした $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜反射鏡を作製した。反射率測定結果より、最高反射率は、3, 5, 7, 10 ペアそれぞれ 85.77 %, 96.64 %, 99.48 %, 99.83 % であった。

第3章 参考文献

- [1] 吉田貞史 著：応用物理工学選書3 「薄膜」(培風館, 1990)
- [2] H.A.Macleod 著, 小倉繁太郎, 中島右智, 矢部孝, 吉田国雄 共訳：光学薄膜
(日刊工業新聞社, 1989)
- [3] 河東田隆 著：半導体評価技術 (産業図書, 1989)
- [4] 日本真空技術株式会社 編：真空ハンドブック (オーム社, 1992)
- [5] 伊賀健一, 小山二三男 共著：面発光レーザー (オーム社, 1990)
- [6] 伊賀健一, 小山二三男 共著：面発光レーザーの基礎と応用 (共立出版, 1999)

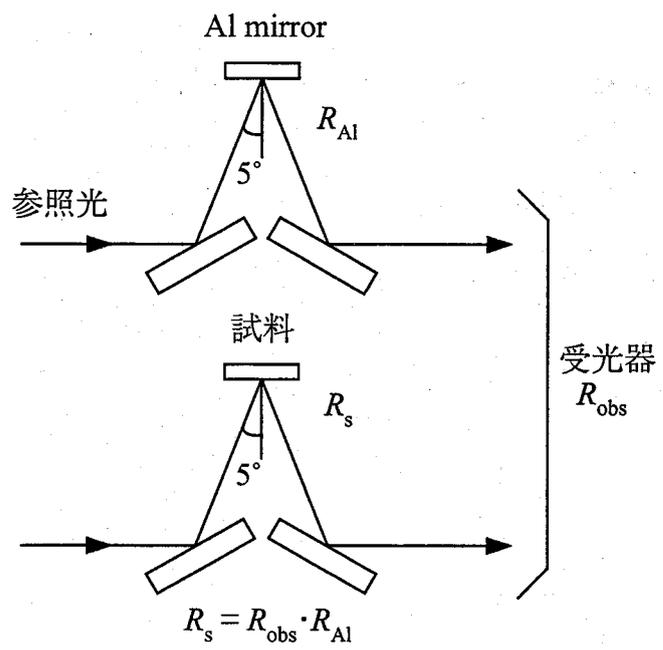


图 3-1 相对反射率测定原理

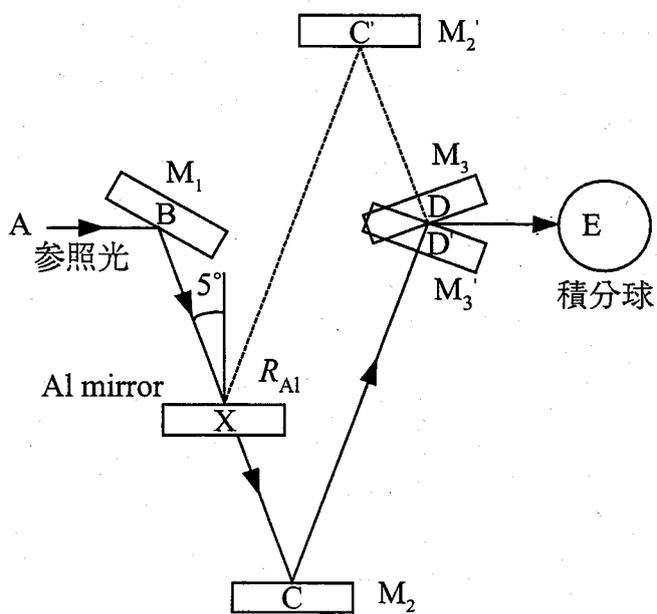


图 3-2 绝对反射率测定原理

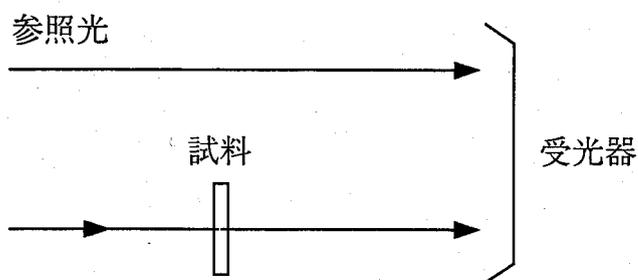
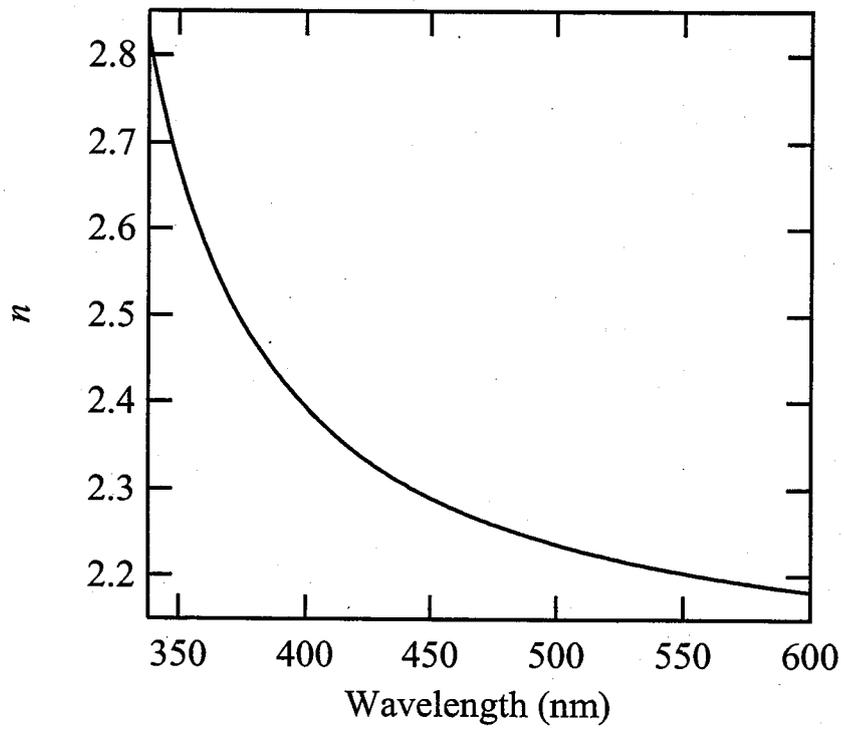
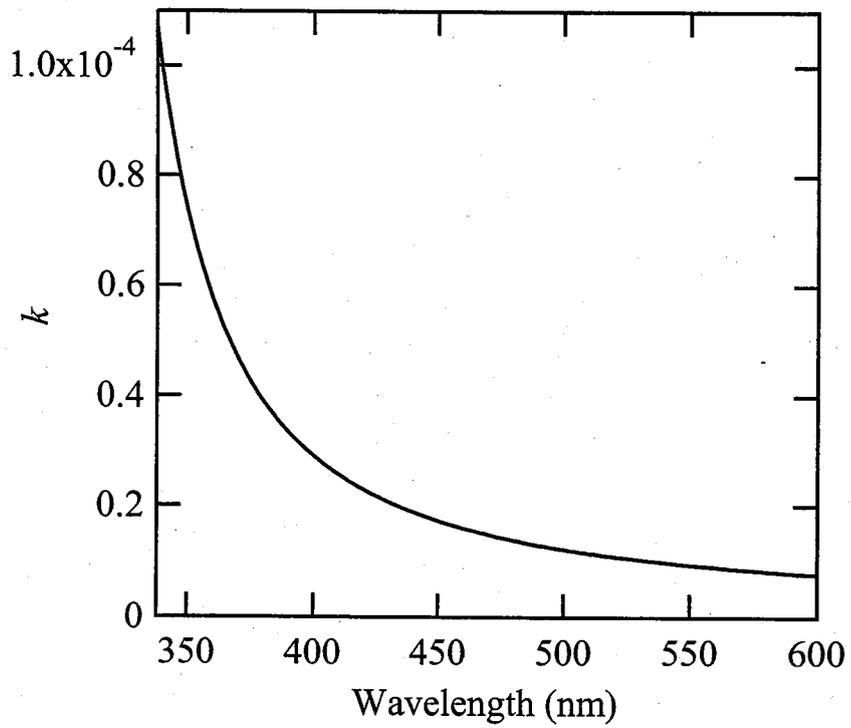


图 3-3 透过率测定原理

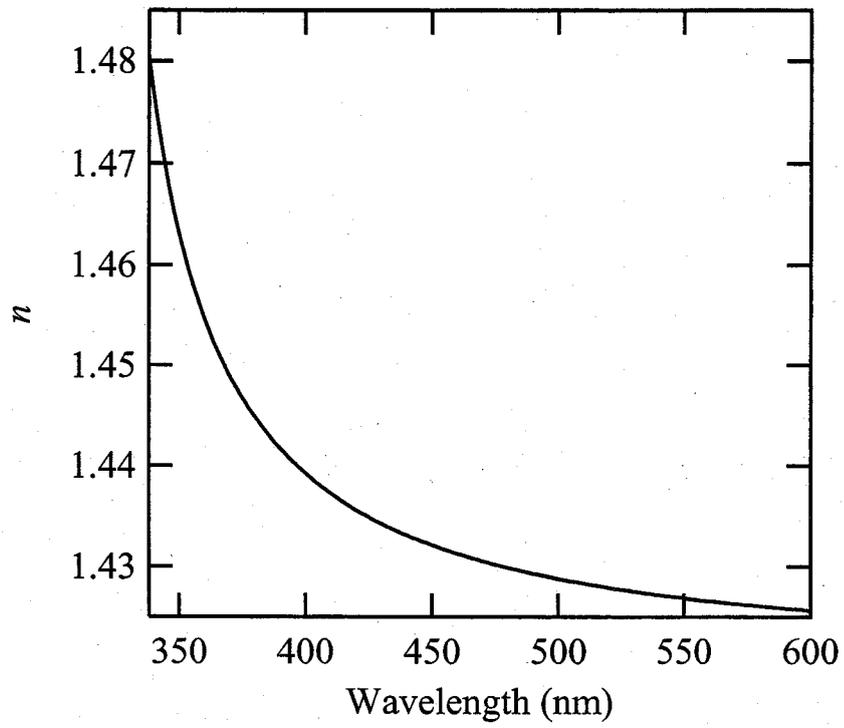


(a) 屈折率 n

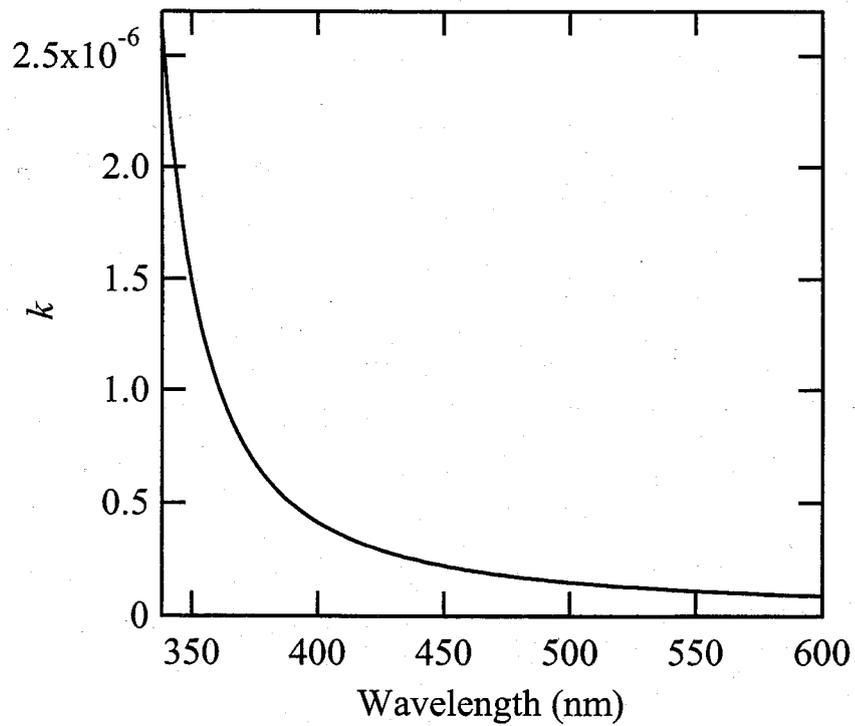


(b) 消衰係数 k

図 3-4 分光エリプソメトリーにより見積もった TiO_2 薄膜の屈折率と消衰係数



(a) 屈折率 n



(b) 消衰係数 k

図 3-5 分光エリプソメトリーにより見積もった SiO₂ 薄膜の屈折率と消衰係数

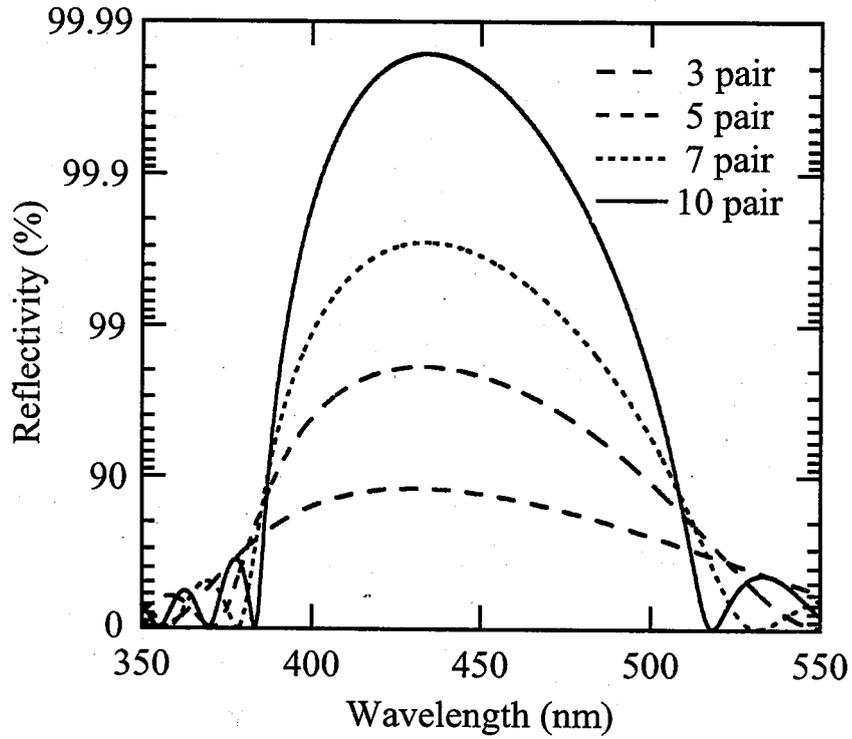


図 3-6 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜反射鏡の 3, 5, 7, 10 ペアでの反射率計算結果
(設計中心波長 $\lambda_0=440$ nm)

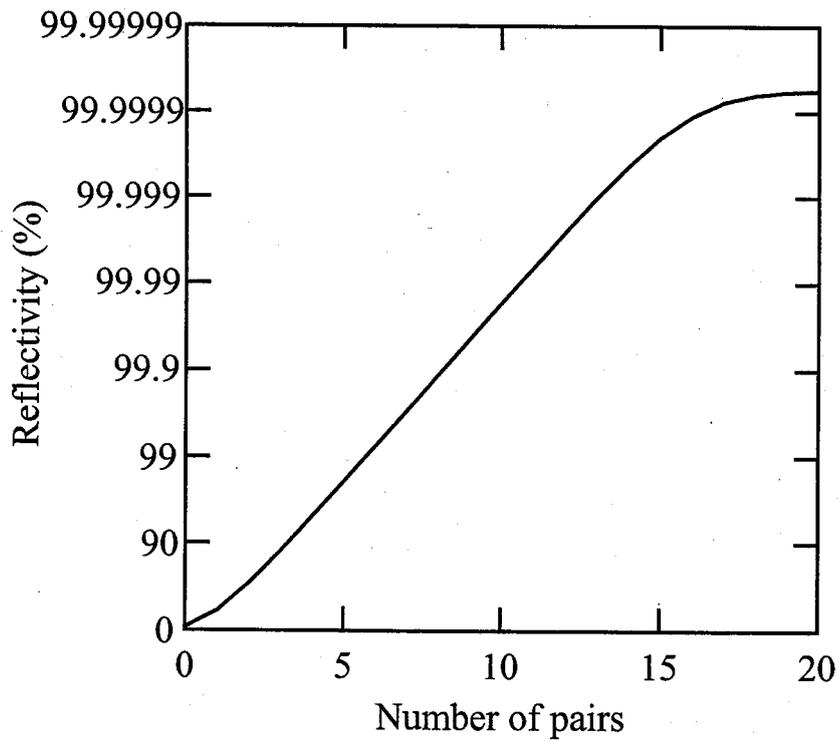


図 3-7 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜反射鏡の反射率のペア数依存性計算結果
(設計中心波長 $\lambda_0=440$ nm)

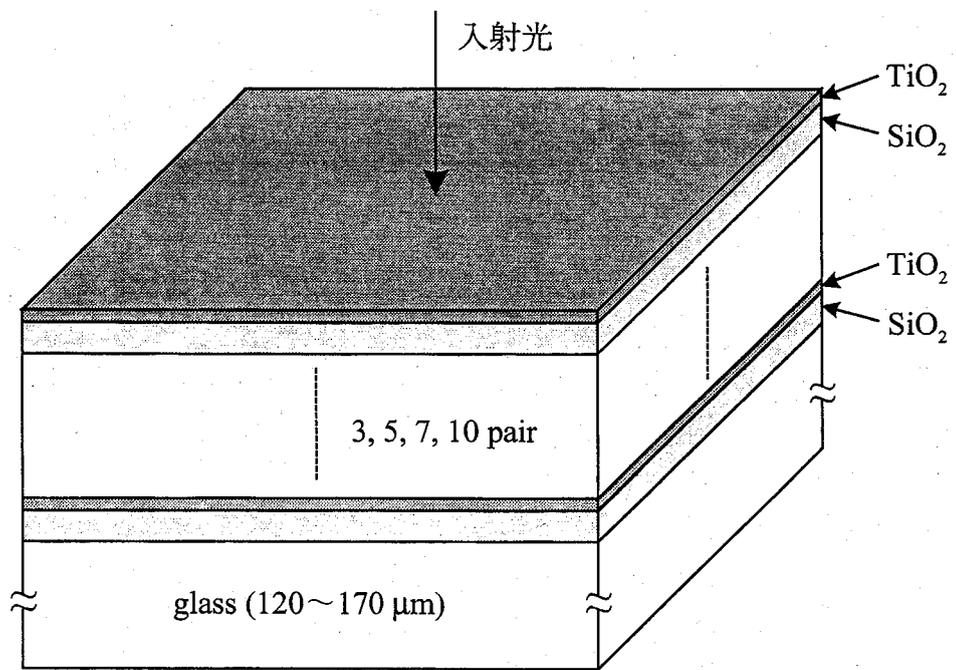


図 3-8 作製したTiO₂/SiO₂多層膜反射鏡の構造図
(サンプルサイズ：17×17 mm)

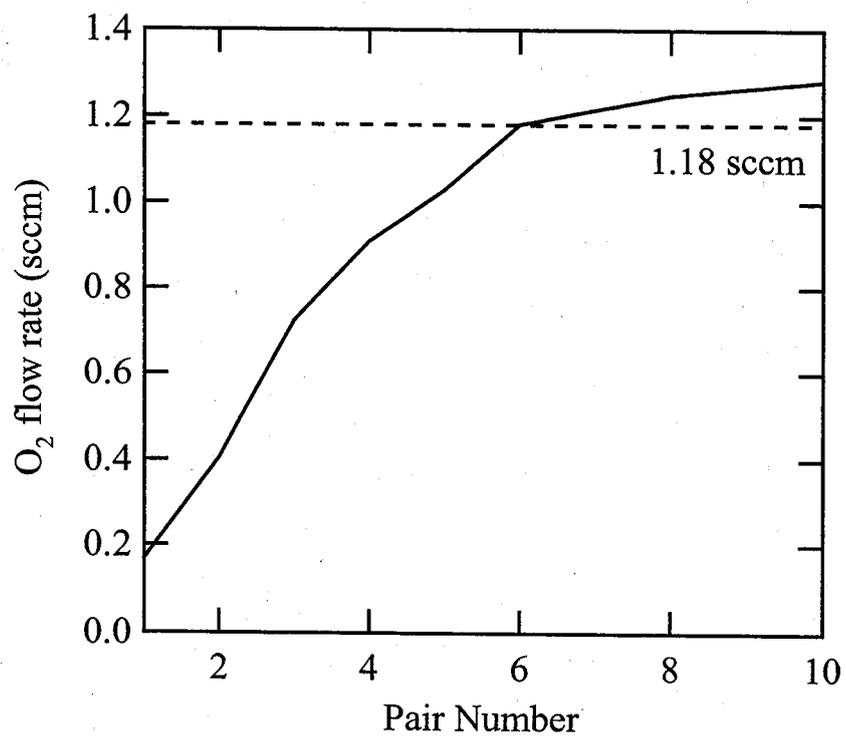


図 3-9 TiO₂/SiO₂ 10 ペア多層膜反射鏡の作製時、
TiO₂ 薄膜堆積時において酸素分圧 7×10^{-3} Pa となる酸素導入量

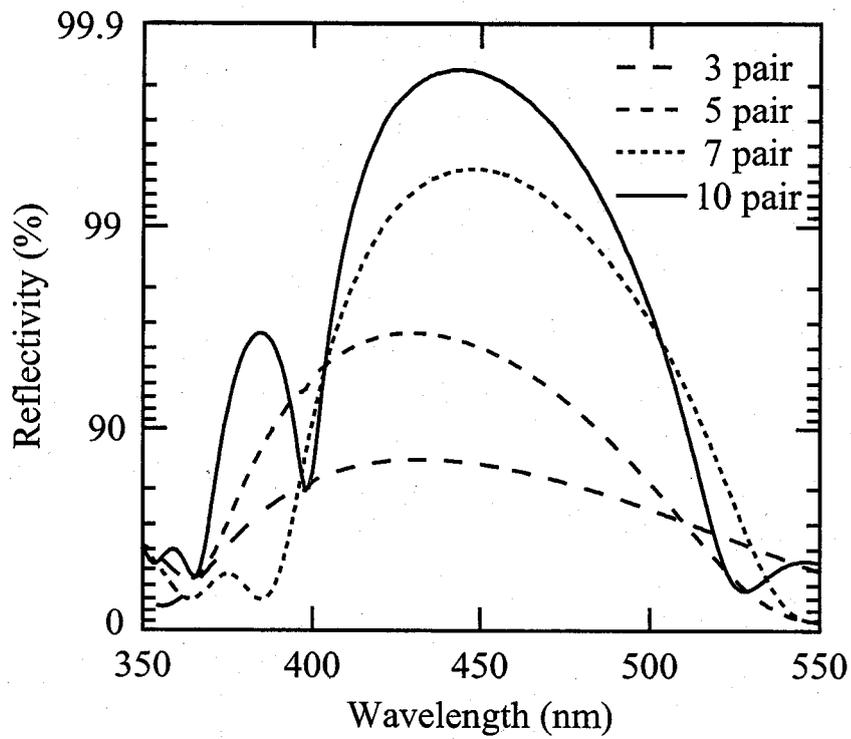


図 3-10 作製した $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 3, 5, 7, 10 ペア多層膜反射鏡の反射率測定結果

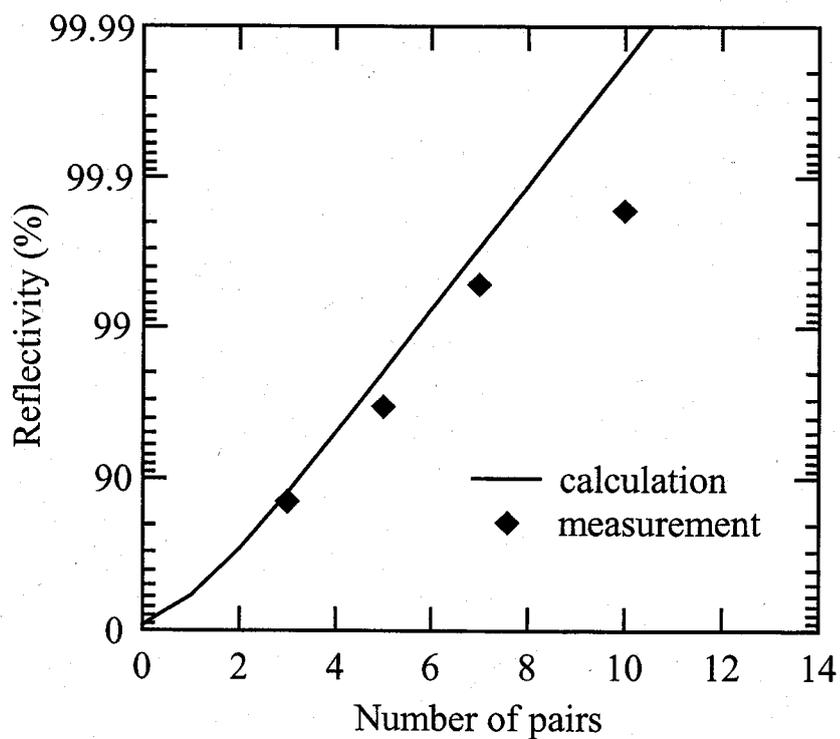
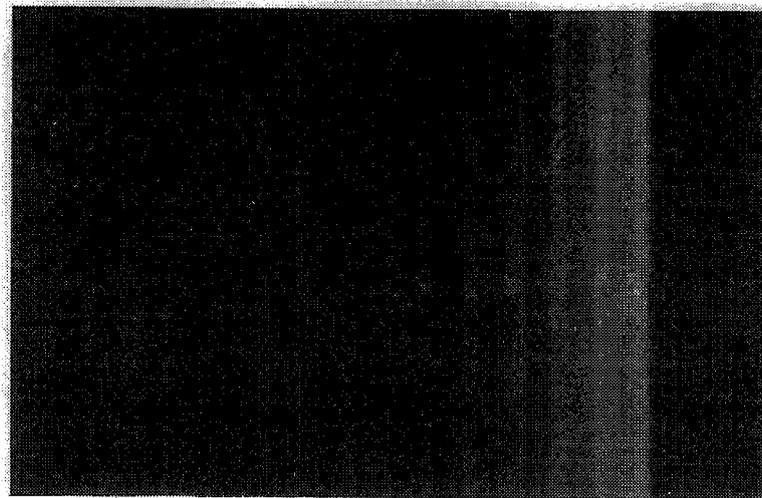


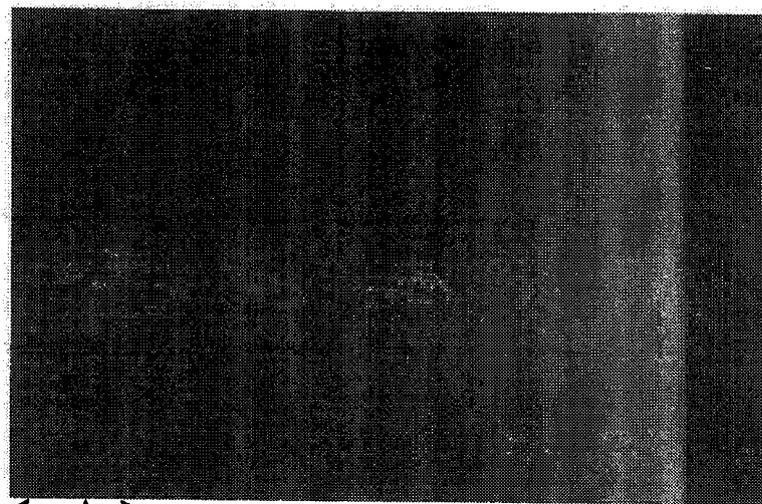
図 3-11 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜反射鏡の反射率の周期数依存性計算結果及び、作製した 3, 5, 7, 10 ペア反射鏡の反射率測定結果 (設計中心波長 $\lambda_0=440$ nm)



↑
Si sub. ↗ ↘
 SiO₂ TiO₂

500 nm

(a)



↑ ↑ ↗ ↘
Si sub. SiO₂ TiO₂

100 nm

(b)

図 3-12 作製したTiO₂/SiO₂ 10ペア多層膜反射鏡の断面SEM像

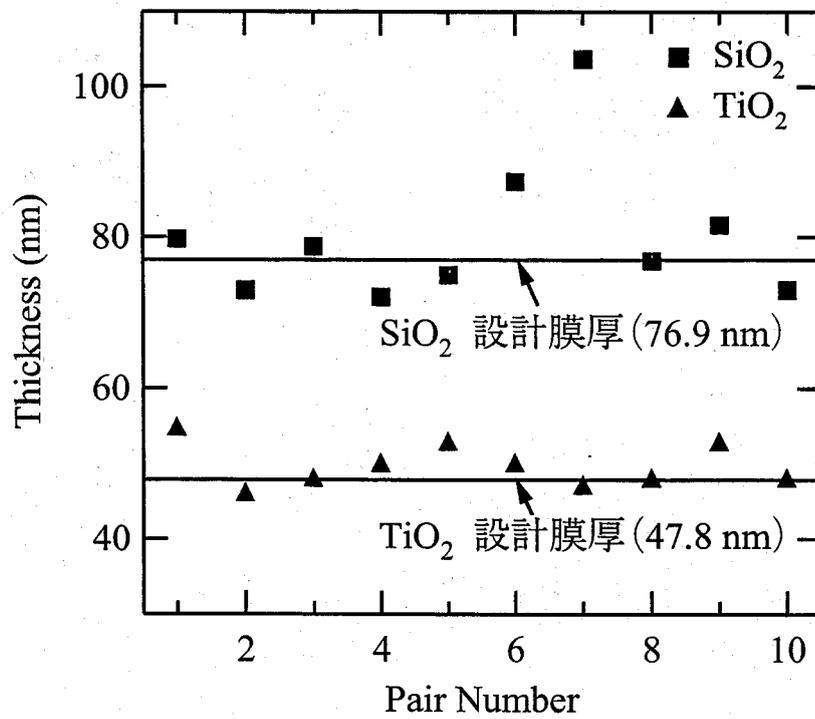


図 3-13 作製した TiO₂/SiO₂ 10 ペア多層膜反射鏡の各層における膜厚
(設計膜厚は TiO₂, SiO₂ それぞれ 47.8 nm, 76.9 nm)