

第4章

GaN 系面発光レーザーの検討

4.1 はじめに

発光領域が、その発光波長と同程度の共振器長をもつ共振器中に置かれたとき、この微小共振器中では共振器方向の光の電磁場モードが離散的になり、共振条件を満たす電磁波は定在波を形成する。これにより、発光層における自然放出が制御され、放射パターンや自然放出寿命が変調されることが実験的に確認されている。1次元共振器では放射パターンが制御されることにより、高い外部量子効率やキャリア寿命に制御されない高速スイッチング等が実現可能であり、高性能LEDとして期待されている。本章では、基板側に半導体多層膜反射鏡を有するLEDを作製し、反射鏡による光出力の向上を試みた。さらに、表面側に誘電体多層膜反射鏡を形成することによる発光特性の変化を調べた。また、半導体多層膜反射鏡の上に形成するLED構造の総膜厚を微小にし、微小共振器構造を持つLEDを作製した。

4.2 GaN/AlGaN 多層膜反射鏡を用いたLEDの作製と評価

InGaN MQW LEDの発光層には、 $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{N}$ 3 nmの井戸層と、 $\text{In}_{0.01}\text{Ga}_{0.99}\text{N}$ 5 nmの障壁層からなる3QW構造を採用した。 $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{N}/\text{In}_{0.01}\text{Ga}_{0.99}\text{N}$ 3QWの発光波長である440 nmを半導体多層膜反射鏡の中心波長に設定し、 $\text{GaN}/\text{Al}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{N}$ からなる15周期の多層膜反射鏡を作製した。常圧MOCVD法により、500 °CでGaN低温緩衝層を100 nm堆積した後、1080 °Cで約2 μm のGaNを成長し、 GaN , $\text{Al}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{N}$ 交互多層膜を15周期成長した。 GaN , $\text{Al}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{N}$ の設計膜厚はそれぞれ51, 52 nmとなる。図4.1に作製した多層膜反

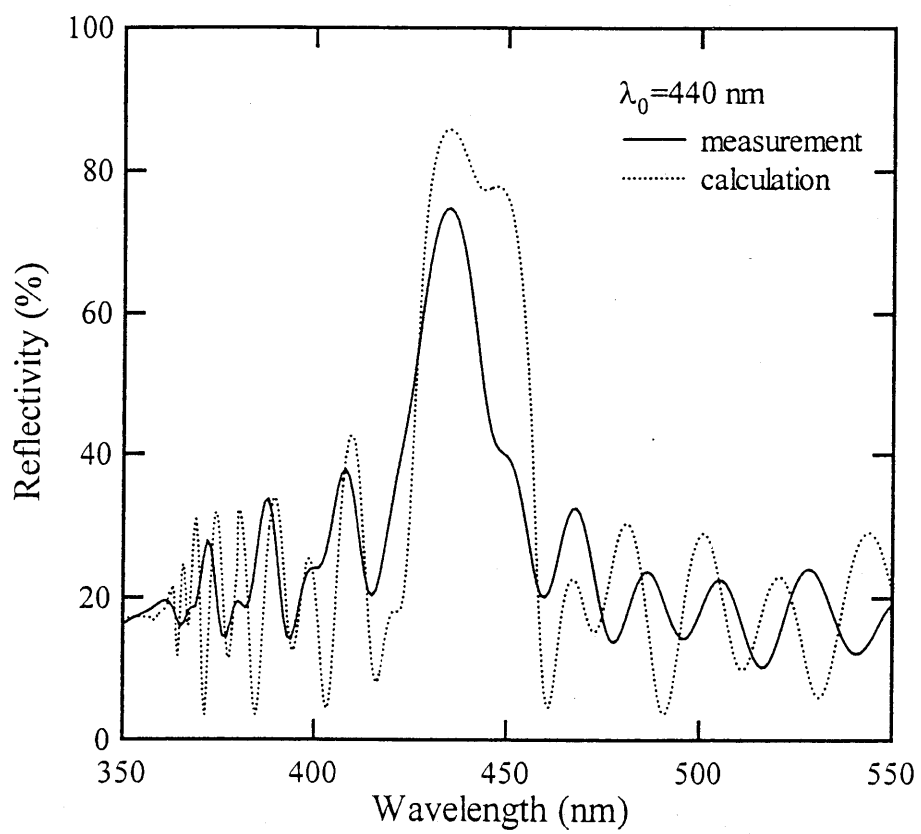


図 4.1 GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 15 周期多層膜反射鏡の反射率測定結果

射鏡の室温での反射率測定結果を計算結果と併せて示す。最高反射率は 435 nm の波長で 74.7 % が得られた。中心波長を 440 nm に設定した 15 周期の多層膜反射鏡では、計算によると最高反射率は 435 nm の波長で 85.7 % が得られる。最高反射率では計算結果より低い値であるが、設計通りの波長に高反射率帯を持つ反射鏡が作製されたといえる。この反射鏡の上に InGaN MQW LED を作製した。構造図を図 4.2 に示す。

MOCVD 法により 15 周期の多層膜反射鏡を成長した後、GaN を約 0.5 μm 、n-GaN を約 4 μm 成長した。n-GaN のキャリア濃度はホール測定において $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 程度とした。その後、成長温度を 740 $^{\circ}\text{C}$ まで降温し $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{N}/\text{In}_{0.01}\text{Ga}_{0.99}\text{N}$ QW を 3 周期と p- $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ を 20 nm 成長し、再び 1080 $^{\circ}\text{C}$ に昇温して p-GaN を 0.2 μm 成長した。p-GaN のキャリア濃度はホール測定において $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 程度とした。成長終了後サンプルを 1 cm 角に劈開し、 BCl_3 プラズマ反応性イオンエッチング (RIE ; reactive ion etching) により成長層を n-GaN 層まで約 1 μm エッチングし、n 側電極を形成した。n 側電極には Ti/Al (250 \AA /1500 \AA) を用い、蒸着後 N_2 雰囲気中、900 $^{\circ}\text{C}$ で 30 秒間アニール処理を行った。また、p 側電極には Ni/Au (50 \AA /100 \AA) を用い、同じく N_2 雰囲気中にて 600 $^{\circ}\text{C}$ で 3 分間アニール処理を行った。ここで、p 側電極は直径 400 μm の円形電極とし、その厚さを薄くし半透明とすることにより光を取り出した。比較のため、多層膜反射鏡を用いない構造の LED を作製した。これは図 4.2 の構造において、1 μm の GaN 層と多層膜反射鏡を除いたものである。また、PL 測定には活性層までの構造を作製し測定に用いた。

多層膜反射鏡を用いた LED の反射率測定結果を、図 4.3 に計算結果と併せて示す。ここで、断面 SEM 観察より、多層膜反射鏡上に形成された LED 構造の総膜厚が 4.49 μm であることから、計算には 15 周期の GaN/ $\text{Al}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{N}$ 多層膜反射鏡上に GaN を 4.49 μm 形成した構造を用いた。この構造にて計算を行ったのは、InGaN の屈折率が既知でなかったことと、InGaN MQW が GaN に比べて非常に薄いためである。図 4.3 より、それぞれのピーク位置はずれているものの、測定結果の反射率のピーク間隔は、計算結果のピーク間隔と合っている。このピーク間隔は干渉によるもので、多層膜反射鏡上に形成した GaN の 4.49 μm の厚さによって生じている。また、短波長での反射率が計算結果より小さいのは、InGaN における吸収が原因である。計算は反射鏡上に形成した 4.49 μm の GaN という構造で行っており、GaN の吸収は 362 nm より短波長の領域となる。

室温での PL 測定結果を図 4.4 に示す。測定には InGaN MQW までで成長を終了させたものを用いた。ここで、He-Cd レーザの励起光はレンズにより集光し、そのスポット径はおよそ 0.3 mm である。このときの励起強度は 1.68 W/cm^2 となる。図 4.4 より 15 周期の GaN/ $\text{Al}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{N}$ 多層膜反射鏡上に活性層を形成する

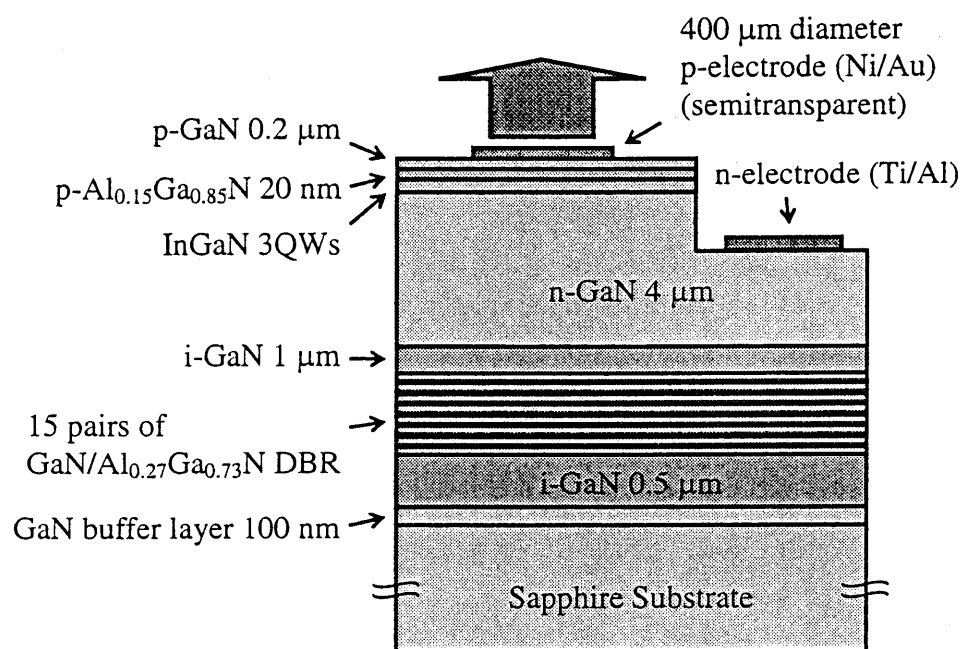


図 4.2 GaN/ $\text{Al}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{N}$ 15 周期多層膜反射鏡を用いた LED の構造図

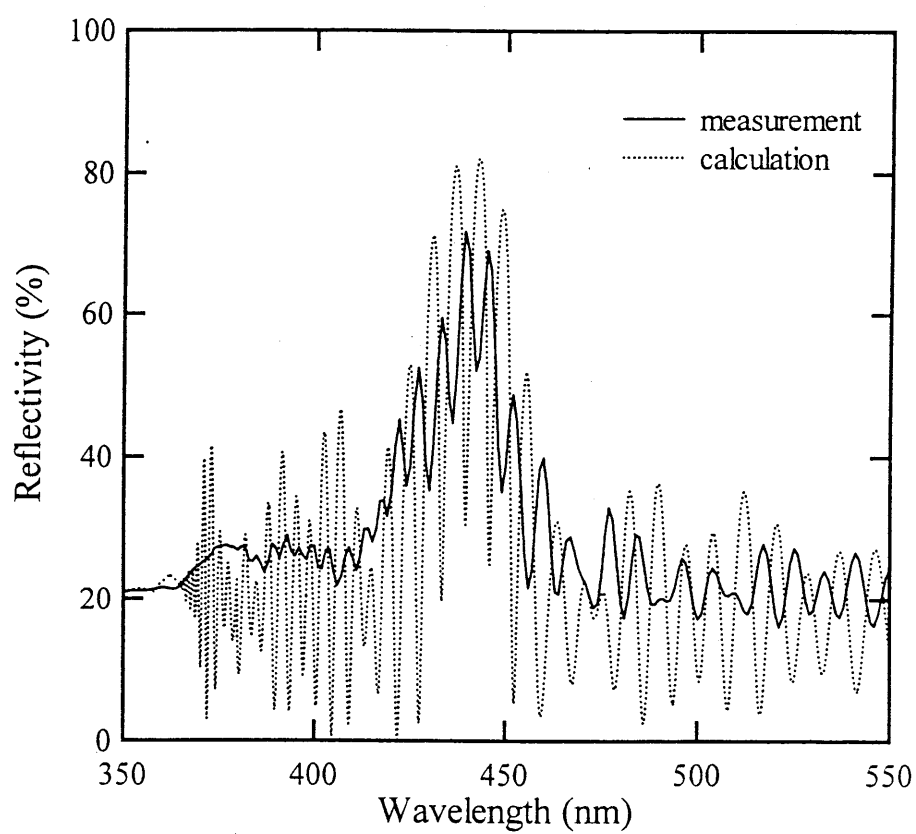


図 4.3 GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 15 周期多層膜反射鏡を用いた LED の反射率測定結果

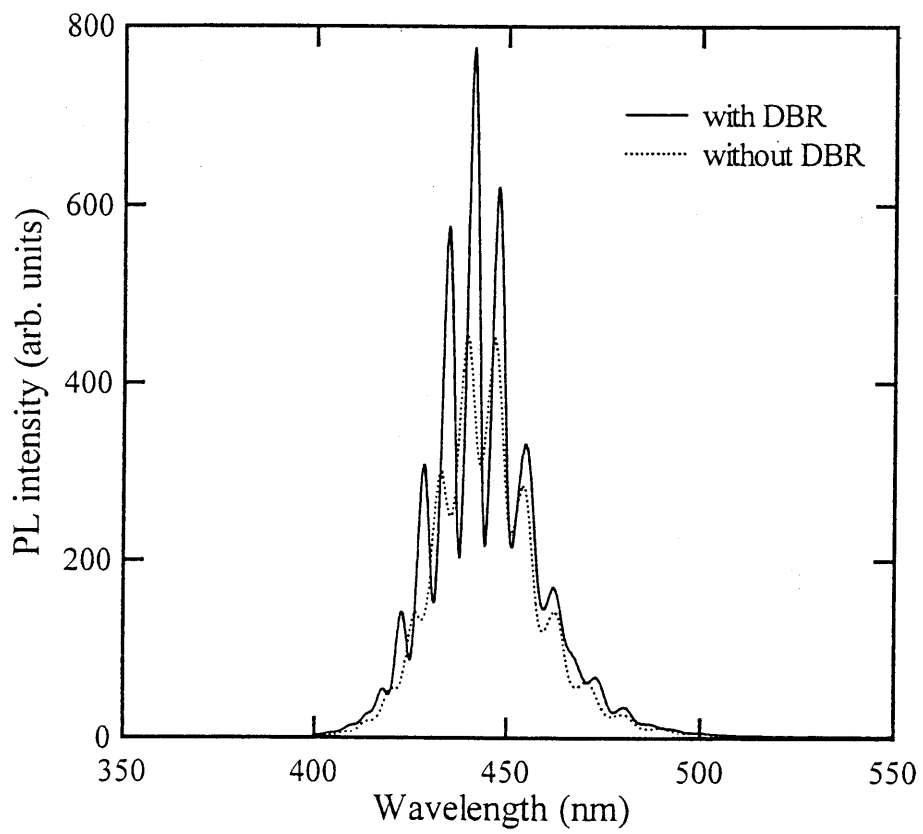


図 4.4 GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 15 周期多層膜反射鏡を用いた LED の PL 測定結果

ことにより、多層膜反射鏡を用いない場合と比べ PL 強度が強くなっていることが分かる。その発光中心波長は 441 nm で、15 周期の GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 多層膜反射鏡の反射率測定結果における中心波長と良く合う。さらに、縦モードからの発光も確認される。ここで、共振器を構成する媒質の屈折率を n 、共振器長を L 、波長を λ とすれば、共振器内に存在する定在波は、半波長の整数倍であるから、

$$\frac{\lambda}{2n}q = L \quad (4.1)$$

という関係が成り立つ。ここで、 q は整数である。 $L \gg \lambda$ の場合 $q \gg 1$ であり、 q が 1 だけずれても共振波長はわずかしき変化しない。モード間隔 $\Delta\lambda$ は $|\Delta\lambda| \ll \lambda$ であり、次のように求められる¹。

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda_0^2}{2n_{eff}L} \quad (4.2)$$

ここで、 n_{eff} は実効屈折率と呼ばれ、屈折率の波長依存性を考慮に入れると次式で与えられる。

$$n_{eff} = n \left(1 - \frac{\lambda_0}{n} \frac{\partial n}{\partial \lambda} \Big|_{\lambda=\lambda_0} \right) \quad (4.3)$$

λ_0 を 441 nm とし、共振器媒質の屈折率を GaN の屈折率で近似すると、 n_{eff} は分光エリプソメトリーにより見積もった屈折率から波長分散を考慮に入れると、式(4.3)よりおよそ 3.1 となる。共振器長 L は 15 周期の GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 多層膜反射鏡とサンプル表面間であるとすれば、断面 SEM 観察より 4.49 μm であるが、多層膜反射鏡が光を反射する際、水平共振器型の DBR レーザに対して考慮されたように、反射鏡内へ光の染み込みがある。この染み込み長さ L_{pen} は、多層膜反射鏡の位相変化 ϕ とブラッグ波長での伝搬定数 β_0 からのずれ $\Delta\beta$ を用いて次式で与えられる²。

$$L_{pen} \equiv \frac{1}{2} \frac{\partial \phi}{\partial (\Delta\beta)} \Big|_{\Delta\beta=0} \quad (4.4)$$

結合モード理論による計算結果から、 L_{pen} は総膜厚が L_{DBR} の多層膜反射鏡に対して次式で与えられる³。

$$L_{pen} = \frac{1}{2} \frac{\alpha_g L_{DBR} \left(\frac{\tanh(\gamma_0 L_{DBR})}{\gamma_0 L_{DBR}} - \frac{1}{\cosh^2(\gamma_0 L_{DBR})} \right) + \tanh^2(\gamma_0 L_{DBR})}{\alpha_g \tanh^2(\gamma_0 L_{DBR}) + \gamma_0 \tanh(\gamma_0 L_{DBR})} \quad (4.5)$$

ここで、 $\gamma_0^2 = \kappa^2 + \alpha_g^2$ で、 α_g は多層膜反射鏡での損失、 κ は結合定数で、

$$\kappa = \frac{\pi}{\lambda} (n_h - n_l) \quad (4.6)$$

である。ここで、 n_h, n_l は多層膜を構成する 2 つの薄膜の屈折率である。損失を無視すれば、式(4.5)から次式が得られる。

$$\frac{L_{pen}}{L_{DBR}} = \frac{1}{2} \frac{\tanh(\kappa L_{DBR})}{\kappa L_{DBR}} \quad (4.7)$$

多層膜を構成する 2 種類の薄膜が $\lambda_0/4n$ の光学膜厚にて形成されている場合、交互多層膜の周期数が N の多層膜反射鏡における総膜厚 L_{DBR} は、

$$L_{DBR} = \left(\frac{\lambda_0}{4n_h} + \frac{\lambda_0}{4n_l} \right) N \quad (4.8)$$

となり、 κL_{DBR} は波長に関係なく、

$$\kappa L_{DBR} = \frac{\pi}{4} \left(\frac{n_h^2 - n_l^2}{n_h n_l} \right) N \quad (4.9)$$

となる。これより、実効的な共振器長は、断面 SEM 観察により得られた $4.49 \mu\text{m}$ に多層膜反射鏡への染み込み長さ $L_{pen} = 0.27L_{DBR} = 0.37 \mu\text{m}$ を加えた $4.86 \mu\text{m}$ となり、式(4.2)よりモード間隔 $\Delta\lambda$ は 6.45 nm と計算される。ここで、測定からモード間隔を求めると、図 4.4 より 434.8 nm と 441.2 nm のピーク間で 6.4 nm であり、計算結果と良く合う。したがって、PL 測定において観察されたモード間隔は 15 周期の $\text{GaN}/\text{Al}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{N}$ 多層膜反射鏡とサンプル表面との間に形成された共振器構造によるものであると考えられる。

LED の I-V 特性を図 4.5 に示す。多層膜反射鏡を用いた LED では、 20 mA で 4.5 V と、反射鏡を用いない場合と同程度の値が得られた。また、直列抵抗は多層膜反射鏡を用いない場合が 56Ω であるのに対し、反射鏡を用いた場合は 60Ω と、これもほぼ同程度の値が得られた。多層膜反射鏡では、高反射率を得るた

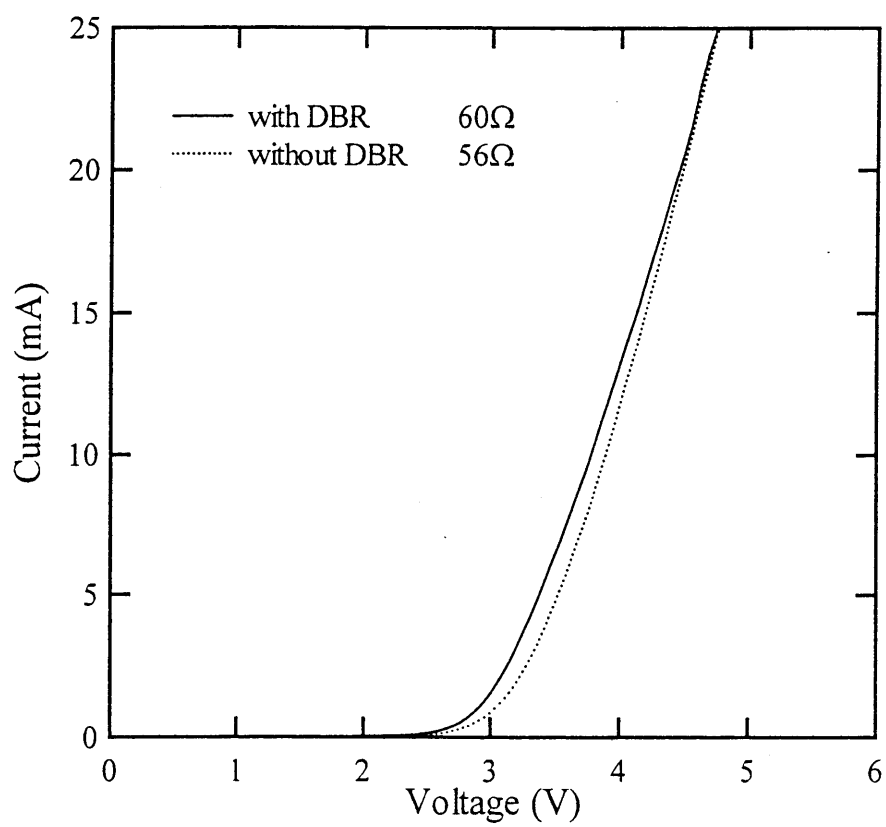


図 4.5 GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 15 周期多層膜反射鏡を用いた LED の I-V 特性

めには周期数を多くしなければならないが、周期数を多くするとクラックが発生し、表面平坦性が悪くなるという問題がある。ここでは周期数の比較的少ない、表面平坦性の良い多層膜反射鏡を用いて LED を作製したが、I-V 特性は多層膜反射鏡がない場合と同程度のものが得られたと言える。図 4.6 に LED の L-I 特性と、20 mA 動作時のスペクトルを併せて示す。サンプルの垂直方向への出射光を検出する目的で、光検出器はサンプルの直上に設置した。したがって、測定結果は LED の全発光強度ではない。多層膜反射鏡を用いた場合、20 mA で 120 μ W と、反射鏡を用いない場合(79 μ W)と比べ 1.5 倍の光出力が得られた。ここで、表面の反射率を R_f 、基板側の反射率を R_r とすると、光強度比 η_m は、

$$\eta_m = \frac{(1-R_f)(1+R_r)}{2(1-R_f R_r)} \quad (4.10)$$

で与えられる⁴。これは一定の光強度を持つ光源を 2 枚の反射鏡で挟んだとき、光源の何割が表面の反射鏡から出射されるかを表したもので、内部での反射、吸収などは全て無視している。今、 R_f は GaN と空気との間の反射率であり、計算より 441 nm の波長では 17.6 % となる。これは 15 周期の GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 多層膜反射鏡を用いた場合、用いなかった場合ともに共通である。一方、 R_r は 15 周期の GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 多層膜反射鏡では、測定結果より 441 nm の波長において 61.6 %、反射鏡がない場合は GaN と厚さ 360 μ m のサファイア基板との界面として、GaN 中から見た反射率は計算より約 11 % となる。ここで、反射鏡が無い場合の基板側の反射率の計算では、サファイアには吸収がないものとし、裏面の空気の層を無限としてサファイアと空気との界面も考慮に入れて計算を行った。これを用いて光強度比 η_m を計算すると、反射鏡を用いた場合は 74.7 %、用いない場合は 46.6 % となる。したがって、基板側に反射鏡を用いることにより、反射鏡を用いない場合に比べて 1.6 倍の光強度が表面側で得られることになる。これより、多層膜反射鏡を用いたサンプルにおいて光出力が増大したのは、反射鏡の効果であると考えられる。また、発光スペクトルより多層膜反射鏡を用いた場合も用いない場合も、ともに FWHM は 22 nm であった。また、PL 測定と同様に縦モードからの発光が確認され、そのモード間隔は反射鏡とサンプル表面との間の干渉によるものであることが確認された。

外部量子効率を L-I 特性から求めた。ここで、外部量子効率 η_r は、注入電子数に対する出力光子数の比で定義され、

$$\eta_r = \frac{P/\hbar\omega}{I/e} \cong \frac{P}{IE_g} \quad (4.11)$$

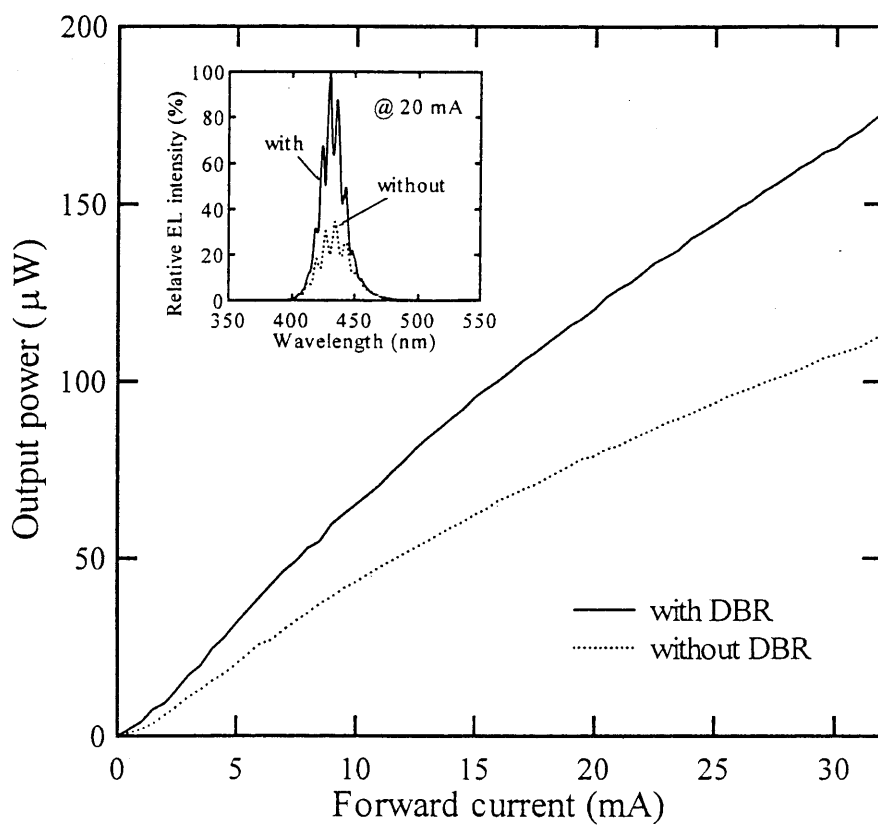
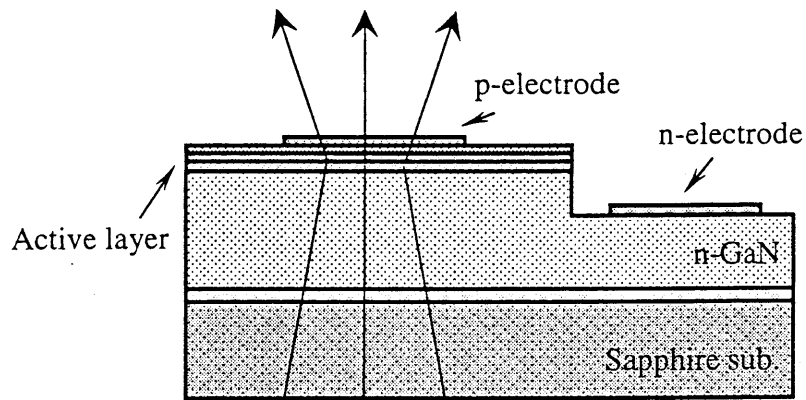


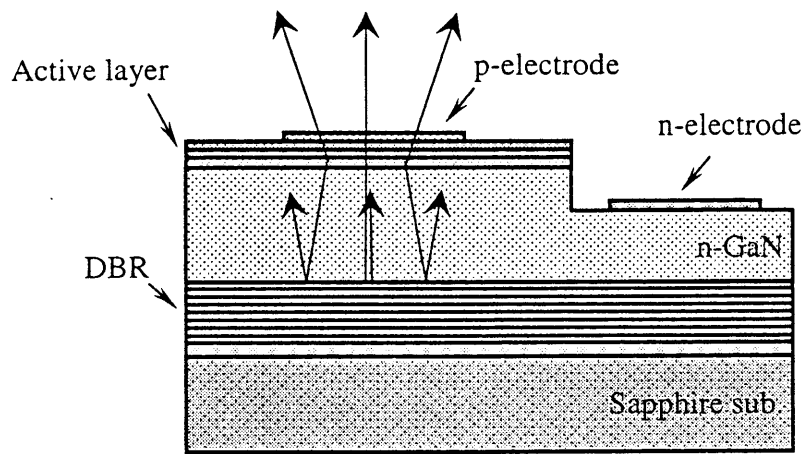
図 4.6 GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 15 周期多層膜反射鏡を用いた LED の L-I 特性

となる¹。ここで、 e は電子の電荷、 E_g (eV)はバンド間エネルギーである。多層膜反射鏡を用いた場合、用いない場合とも外部量子効率が最大になるのは駆動電流 10 mA 付近で、その値は多層膜反射鏡を用いた場合は 0.23 %、反射鏡を用いない場合は 0.15 %であった。また、20 mA 動作時では多層膜反射鏡を用いた場合は 0.21 %、反射鏡を用いない場合は 0.14 %であった。図 4.7に模式的に示すように、LED 構造の基板側に半導体多層膜反射鏡を形成することにより、基板側へ出射した光が表面へ反射し、LED の光出力が増大する。

次に、LED 構造を形成する前に作製した多層膜反射鏡の周期数を増やし、反射率を向上させた LED を作製した。多層膜反射鏡の作製は減圧成長により行い、交互多層膜の各層の膜厚は $\lambda/4$ からずらして設計し、SL 構造は用いなかった。MOCVD 法により水素雰囲気中 1180 °C でサーマルクリーニングを行った後、500 °C で GaN 低温緩衝層を 30 nm、1130 °C で GaN を 500 nm、 $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ を 20 nm 成長した。ここで、基板温度を成長温度に保ったままドライポンプによりリアクタ内圧力を常圧から 100 torr まで減圧した。圧力が 100 torr で安定した後、LP-GaN/LP- $\text{Al}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{N}$ からなる交互多層膜を 30.5 周期形成した。中心波長は 420 nm とし、LP-GaN、LP-AlGa_{0.85}N の膜厚はそれぞれ 72.8、33.7 nm とした。100 torr において多層膜反射鏡を形成した後、再びリアクタ内圧力を常圧に戻し、LED 構造の形成を開始した。常圧から 100 torr に減圧する際の成長中断はおよそ 2.5 min、100 torr から常圧に戻す際はおよそ 1.5 min である。リアクタ内圧力を常圧とした後、1130 °C で n-GaN を約 4 μm 、770 °C で $\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{N}$ ウェル層 2 nm、 $\text{In}_{0.01}\text{Ga}_{0.99}\text{N}$ バリア層 5 nm からなる量子井戸構造を 3 周期、p- $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ を 20 nm 成長し、再び 1130 °C に昇温して p-GaN を 0.2 μm 成長した。n-GaN のキャリア濃度はホール測定において $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 程度、p-GaN のキャリア濃度は $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 程度とした。成長終了後サンプルを 1 cm 角に劈開し、RIE により成長層を n-GaN 層まで約 500 nm エッチングし、n 側電極を形成した。n 側電極には Ti/Al/Ni/Au (150/800/120/600 Å)を用い、蒸着後 N_2 雰囲気中、700 °C で 30 秒間アニール処理を行った。p 側半透明電極として Au/Ni/Au (30/60/120 Å)を蒸着し、コンタクトを取るため一部に Ni/Au (100/1000 Å)を蒸着した。p 側電極蒸着後、 N_2 雰囲気中にて 600 °C で 1 分間アニール処理を行った。比較のため、多層膜反射鏡を用いない構造の LED を作製した。作製した LP-GaN/LP- $\text{Al}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{N}$ 30.5 周期多層膜反射鏡の反射率測定結果を図 4.8に示す。測定に用いた構造は、多層膜反射鏡を形成したところで成長を止めたもので、LED 構造は形成されていない。最高反射率は 421 nm の波長で 96 %が得られている。ほぼ設計通りの波長に高反射率が得られ、90 %以上の反射率を示す高反射率帯幅は 13 nm である。多層膜反射鏡を用いた場合と用いない場合の LED の L-I 特性を図 4.9に、20 mA 動作時の発光スペクトルを図 4.10に示す。20 mA 動作時、多層膜反射鏡を用い



(a) LED without DBR



(b) LED with DBR

図 4.7 多層膜反射鏡を用いた LED

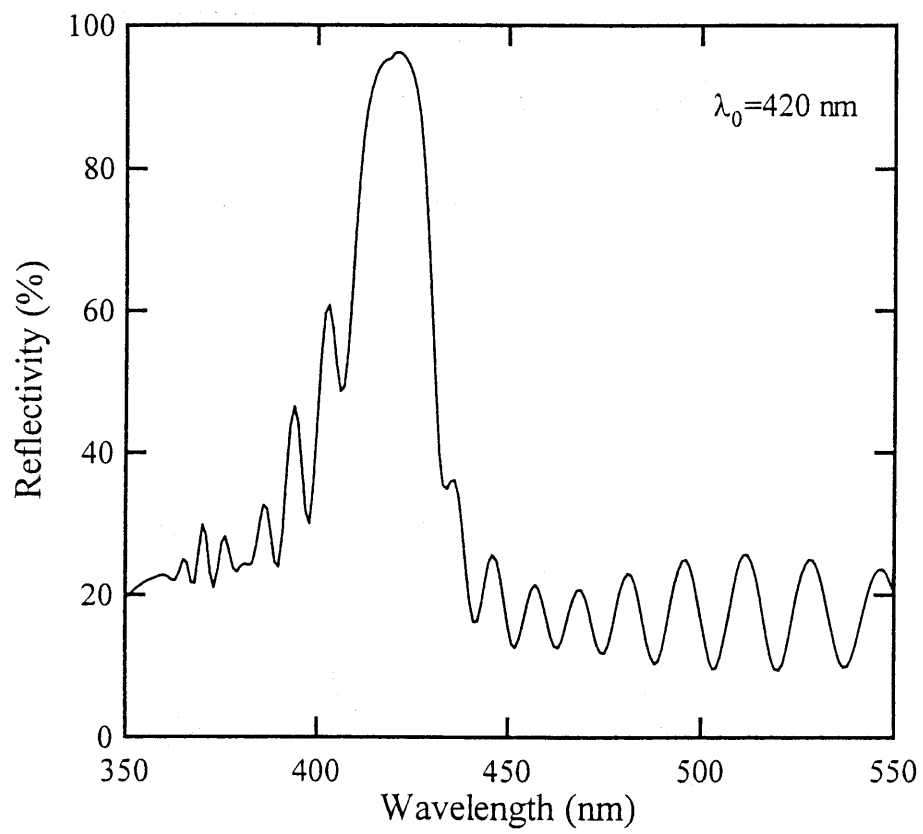


図 4.8 LP-GaN/LP-Al_{0.60}Ga_{0.40}N 30.5 周期多層膜反射鏡の反射率測定結果

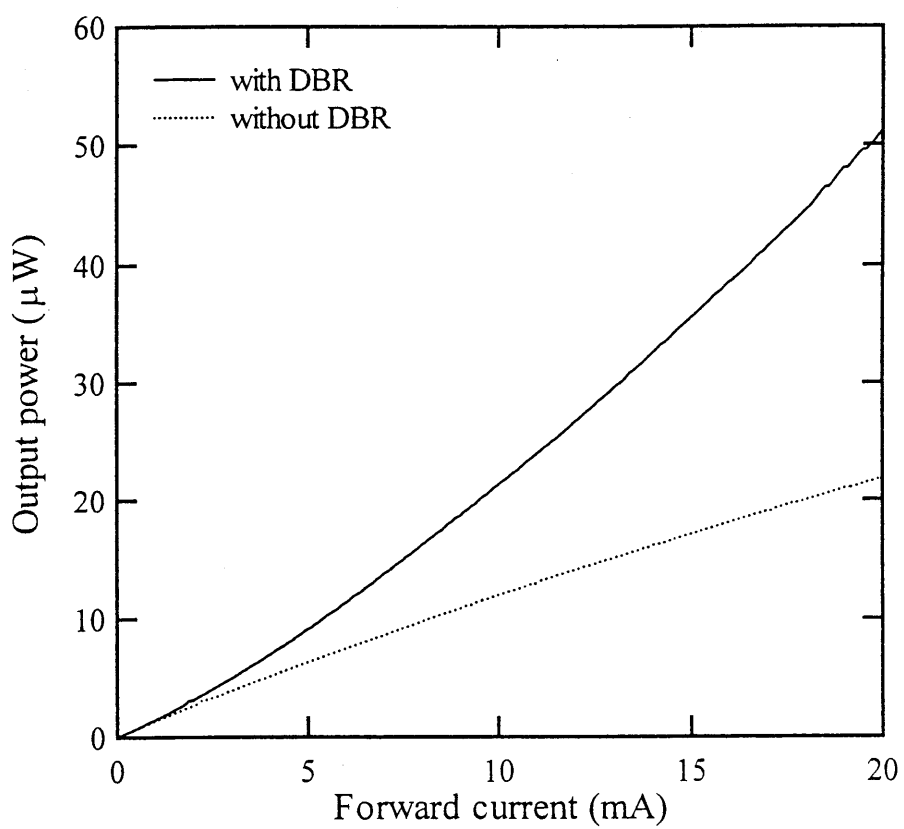


図 4.9 LP-GaN/LP-Al_{0.60}Ga_{0.40}N 30.5 周期多層膜反射鏡を用いた LED の L-I 特性

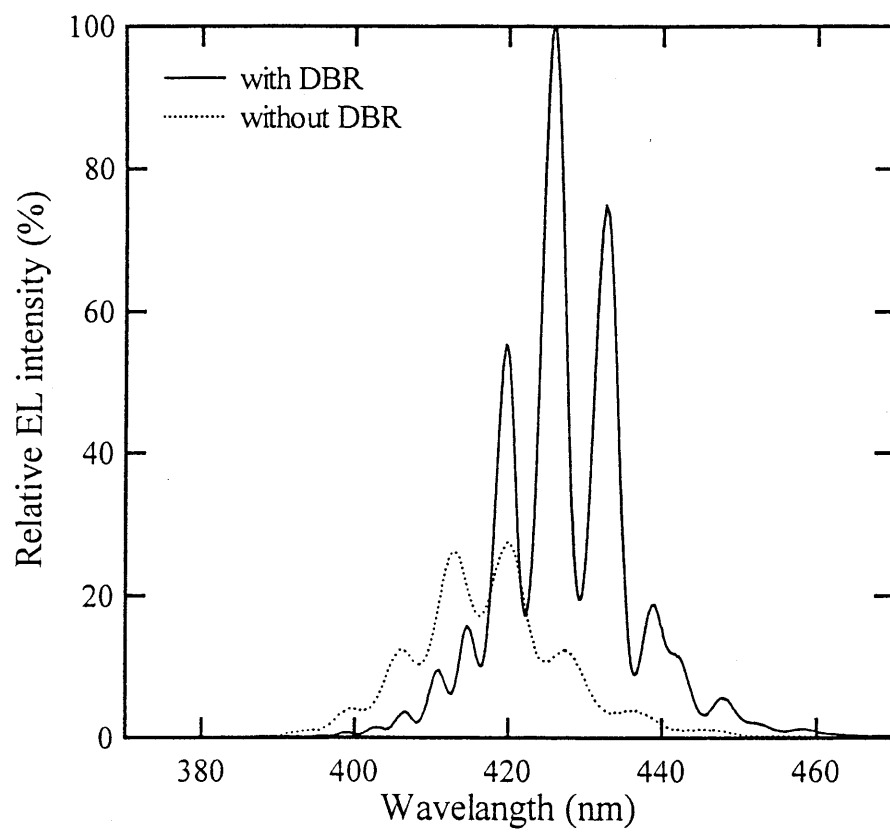


図 4.10 LP-GaN/LP-Al_{0.60}Ga_{0.40}N 30.5 周期多層膜反射鏡を用いた LED の 20 mA 動作時における発光スペクトル

ない場合の光出力が $22 \mu\text{W}$ であるのに対し、多層膜反射鏡を用いた場合は $51 \mu\text{W}$ と、多層膜反射鏡を用いることにより LED の強度が 2.3 倍に増大している。これについて、式(4.10)より光強度比 η_m を求める。表面側の反射率は GaN と空気との界面として、GaN 中から見た場合、計算より 420 nm の波長では 18.1 % の反射率となり、多層膜反射鏡の有無にかかわらず共通である。一方、基板側の反射率は、多層膜反射鏡を用いない場合は GaN と厚さ $360 \mu\text{m}$ のサファイア基板との界面として、計算より 420 nm の波長では約 10 % となる。ここで、多層膜反射鏡を用いない場合の基板側の反射率は、サファイア基板には吸収はないものとし、基板裏面の空気の層を無限としサファイアと空気との界面も考慮に入れて計算を行った。一方、多層膜反射鏡の反射率は測定より 96 % である。これより η_m を計算すると、多層膜反射鏡を用いた場合は全発光強度の 97.1 % が、多層膜反射鏡を用いない場合は 45.9 % が前面に放射されるということになる。これより、基板側に多層膜反射鏡を用いたことによる光強度の増大は 2.1 倍と計算される。両サンプルは多層膜反射鏡の有無以外は全く同じ条件で作製していることから、活性層は同じ発光強度であることができ、多層膜反射鏡を用いたことによる光強度の向上は多層膜反射鏡の反射率による効果であるといえる。図 4.10 の発光スペクトルでは、ピークの中心波長は多層膜反射鏡を用いない場合は 420 nm であるが、多層膜反射鏡を用いた場合は 426 nm となっている。LED の発光ピークが 420 nm であったため多層膜反射鏡の中心波長を 420 nm と設計したが、実際に作製した多層膜反射鏡を用いた LED の発光ピークはこれよりも長波長の 426 nm となっている。これは多層膜反射鏡の中心波長が 420 nm よりも長波長にシフトしているためであり、反射率の測定によりこれを確認した。LED 構造は多層膜反射鏡を用いた場合も用いない場合も成長速度などの成長条件の相違はないと考えられるが、多層膜反射鏡を用いた LED のサンプルを切り出した場所が基板の中心よりも端寄りであった。この領域では成長速度が中央部と比べて速く、各層の膜厚が厚くなり反射率の中心波長が長波長へシフトする。また、同様に活性層も厚くなっていることが考えられ、井戸幅の増大による発光波長の長波長化も現れていると思われる。このように、多層膜反射鏡では膜厚が設計からずれると高反射率を示す波長がずれるが、GaN/AlGaIn 多層膜反射鏡では高反射率帯幅が狭いため、その影響が大きく膜厚制御が重要となる。図 4.10 より発光スペクトルの FWHM は、多層膜反射鏡を用いた場合も用いなかった場合も、ともに 15 nm であった。縦モードからの発光が確認でき、 426 nm と 432.6 nm のピーク間隔 6.6 nm は多層膜反射鏡とサンプル表面との間の干渉によるものである。また、I-V 測定から、多層膜反射鏡を用いた場合も用いなかった場合もともに、立ち上がり電圧は $3.6 \sim 4.0 \text{ V}$ 、直列抵抗 63Ω と、多層膜反射鏡を用いることによる電気的特性の変化は確認されなかった。

4.3 RCLED の作製と評価

Resonant cavity LED (RCLED)は、1991年に Schubert らにより発表された活性領域を共振器の中に置いた構造を持つ発光素子である⁵。高反射率の反射鏡と適度な反射率の反射鏡によって共振器が形成され、作製プロセスは通常の LED と変わらないが、その光出力は通常の LED と比べて大きく、鋭い発光スペクトルを示す。

前節で作製した、基板側に 30.5 周期の LP-GaN/LP-Al_{0.60}Ga_{0.40}N 多層膜反射鏡を有する LED を用い、さらにその表面側に TiO₂/SiO₂ 多層膜反射鏡を形成することによる発光特性の変化を調べた。基板には両面研磨の 2 インチサファイア基板を用い、結晶成長面側へ放出される光と、サファイア基板を通して裏面へ放出される光の双方について調査を行った。以降、測定位置について結晶成長面側を表面側(front)、基板裏面側を裏面側(rear)とし、反射鏡についてはそれぞれ表面側(top)、基板側(bottom)とする。

基板側に 30.5 周期の LP-GaN/LP-Al_{0.60}Ga_{0.40}N 多層膜反射鏡を有する LED について、表面側に 10 周期の TiO₂/SiO₂ 多層膜反射鏡を形成した場合と形成しない場合における表面側、裏面側双方での L-I 特性を図 4.11 に、基板側に LP-GaN/LP-Al_{0.60}Ga_{0.40}N 多層膜反射鏡を有さない通常の LED についても同様に図 4.12 に示す。また、ここで用いた両多層膜反射鏡の反射率測定結果を図 4.13 に示す。基板側の LP-GaN/LP-Al_{0.60}Ga_{0.40}N 多層膜反射鏡は 421 nm の波長で最高反射率が 96 % の反射鏡であり、表面側の TiO₂/SiO₂ 多層膜反射鏡は 455 nm の波長で 99 % の最高反射率を示す。また、90 % 以上の反射率を示す波長帯幅は、それぞれ 13 nm と 125 nm で、表面側に形成した誘電体多層膜反射鏡は基板側の半導体多層膜反射鏡のストップバンドを完全にカバーし、これらの波長帯では表面側の反射率の方が高い。つまり、図 4.11 に示すように、基板側に多層膜反射鏡を有する LED において、表面側に反射鏡を形成しない場合は基板側の反射率の方が高く、表面側の光出力が裏面側より強い。しかし、表面側に誘電体多層膜反射鏡を形成すると、その反射率は 99 % であるため光はほとんど表面側には出射されず、裏面側での光出力は最大値を示す。一方、基板側に多層膜反射鏡を有さない LED では、図 4.12 に示すように、表面側に誘電体多層膜反射鏡を形成した場合も形成しない場合も、ともに裏面側での光出力が表面側より強くなる。これは、前節でも述べたように、基板側の反射率が 10 % 程度と低く、表面側の誘電体多層膜反射鏡の有無に関わらず基板側の反射率が表面側の反射率より低いためである。さらに表面側へ出射される光は、半透明とした電極を通して検出されるが、電極による吸収もあるため光出力は低下する。このため、こ

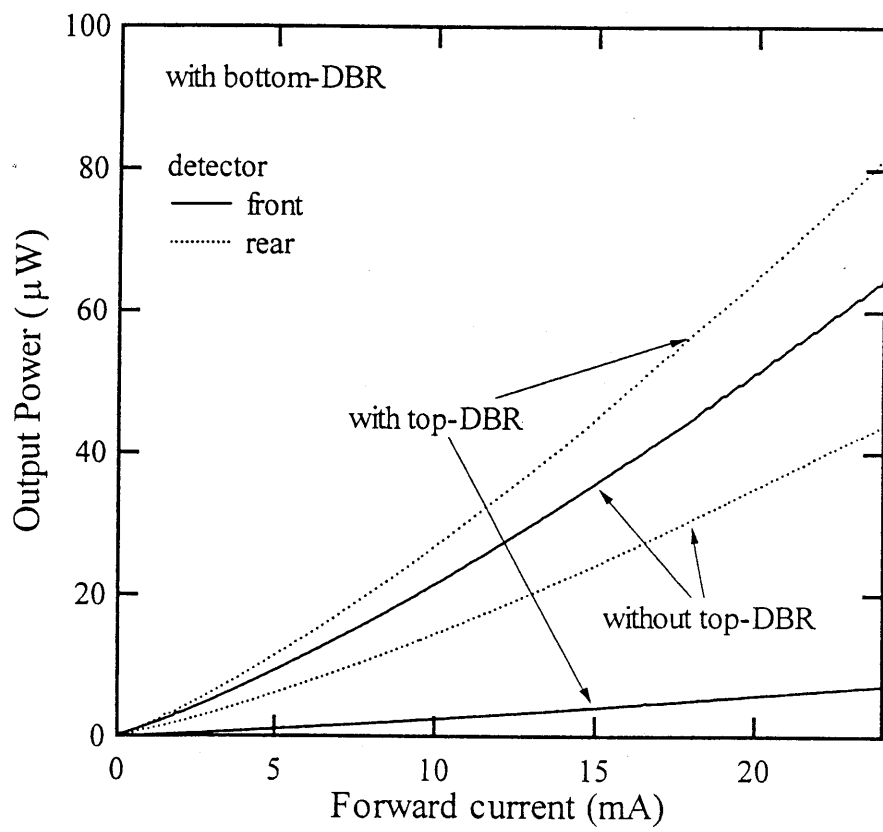


図 4.11 基板側に半導体多層膜反射鏡を有する LED の L-I 特性

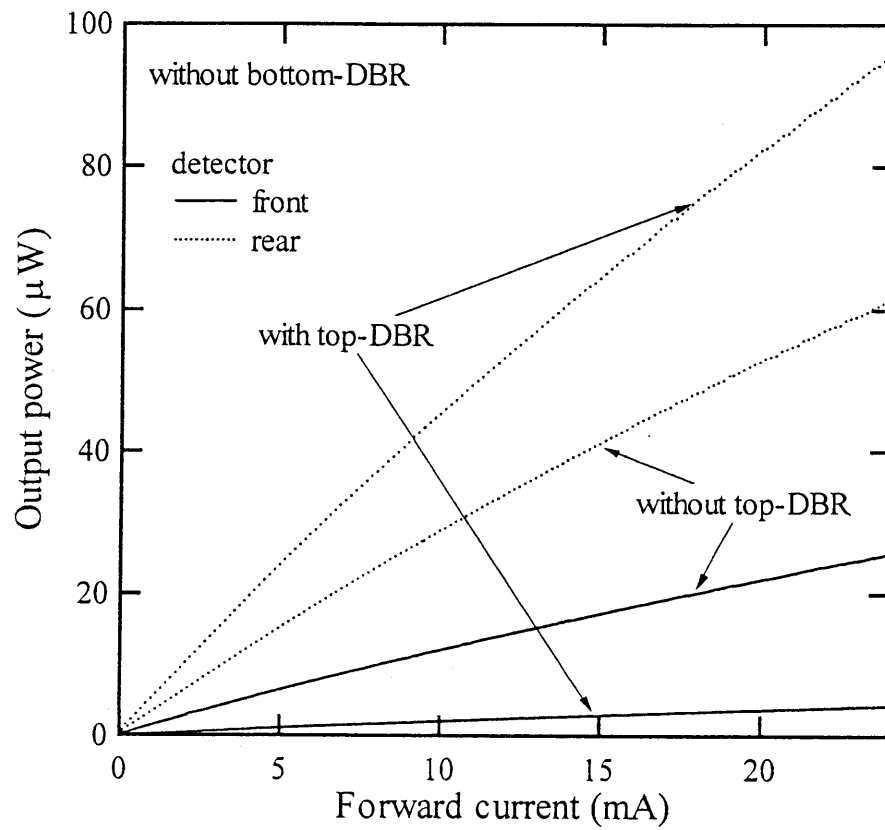


図 4.12 基板側に反射鏡を有さない LED の L-I 特性

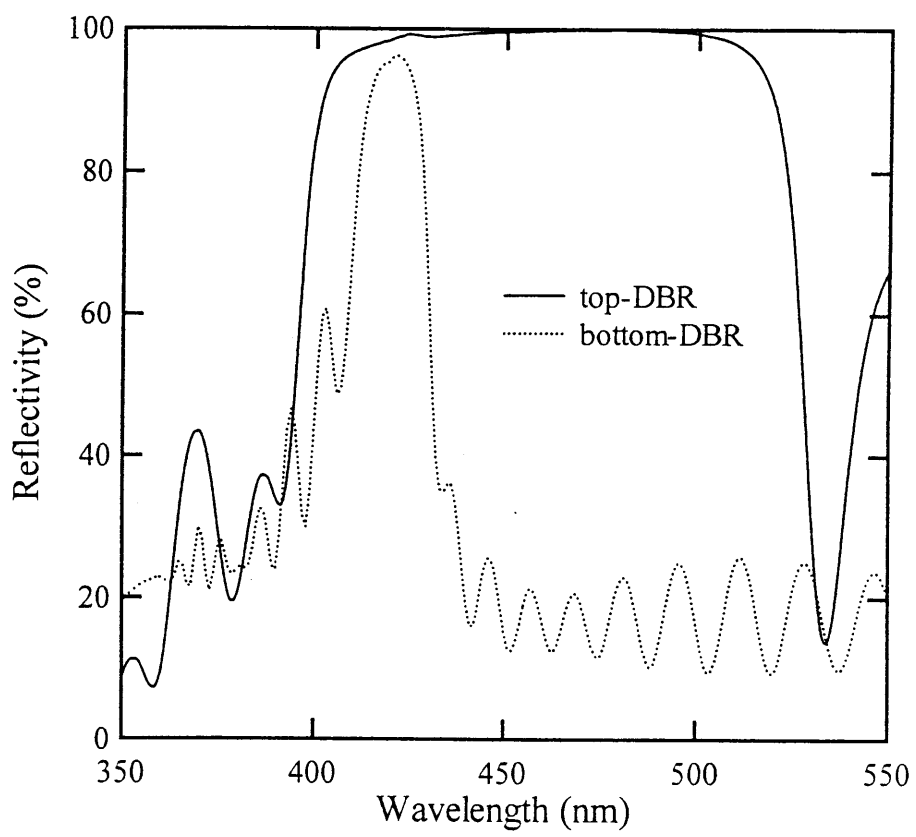


図 4.13 基板側および表面側に形成した多層膜反射鏡の反射率測定結果

の波長帯で高い反射率を示す Ag を電極材料に加えることにより表面側の反射率を上げ、基板裏面から光を取り出す Flip-Chip 型の LED も作製されている。

それぞれの LED における 20 mA 動作時の発光スペクトルを、基板側に半導体多層膜反射鏡を有する LED について図 4.14 に、基板側に半導体多層膜反射鏡を有さない LED について図 4.15 に示す。図 4.14 (a) に示すように、基板側にのみ反射鏡を有する LED では、表面での発光スペクトルにおいて縦モードからの鋭い発光が確認される。このモード間隔は基板側反射鏡とサンプル表面との間の共振によるものである。一方、裏面での発光スペクトルは、表面で観察された発光スペクトルのピーク波長域では強度が弱く、その前後の波長域で強度が強くなっている。強度が弱い波長域は基板側反射鏡のストップバンドに対応し、この波長帯では表面での光強度は大きくなるが、裏面では小さくなる。表面側にも反射鏡を形成し 2 つの反射鏡で挟んだ LED の発光スペクトルは、図 4.14 (b) に示すように裏面において縦モードからの鋭い発光が観察される。この場合は表面側の反射率が基板側より高いため、表面へはほとんど光が出射せず、裏面での光強度が最大となる。

次に、多層膜反射鏡上に形成する LED 構造の総膜厚を 3λ と微小にした LED を作製した。半導体多層膜反射鏡の結晶成長は減圧条件下で行い、クラックの発生を抑制する目的で反射鏡の形成前に LP-GaN/LP-AlN SL 構造を導入した。また、基板には 2 インチ C 面サファイアを用いた。水素雰囲気中 1230 °C でサーマルクリーニングを行った後、500 °C で GaN 低温緩衝層を 30 nm 堆積し、1180 °C で GaN を 500 nm 成長した。TMGa の供給量は低温緩衝層堆積時において 36 $\mu\text{mol}/\text{min}$ 、GaN 成長時は 72 $\mu\text{mol}/\text{min}$ とした。GaN 成長後、キャップ層として $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ を 20 nm 成長した。TMGa と TMAI の供給量は、それぞれ 24, 6.0 $\mu\text{mol}/\text{min}$ である。常圧条件下ではアンモニアの流量を 5 l/min で一定とした。 $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ キャップ層の成長終了後、基板温度を成長温度に保ったままドライポンプによりリアクタ内圧力を常圧から 100 torr まで減圧した。リアクタ内圧力が 100 torr で安定した後、減圧条件下 1080 °C にて多層膜の形成を開始した。LP-GaN/LP-AlN からなる SL 構造は、AP- $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ キャップ層上に LP-GaN から成長を開始し LP-GaN で終える 10.5 周期とした。LP-GaN, LP-AlN の設計膜厚はそれぞれ 20, 5 nm とした。LP-GaN 成長時の TMGa 供給量は 72 $\mu\text{mol}/\text{min}$ とし、LP-AlN 成長時の TMAI の供給量は 18 $\mu\text{mol}/\text{min}$ とした。LP-GaN/LP-AlN SL 構造形成後、LP-GaN/LP-AlGa_N からなる多層膜反射鏡を成長した。LP-AlGa_N から成長を開始し高屈折率膜である LP-GaN で表面を終端した。ここで、各層の膜厚は $\lambda/4$ にて設計を行い、周期数は 15 周期と 45 周期の 2 種類とした。LP-GaN 成長時の TMGa 供給量は、SL を構成する LP-GaN と同じ 72 $\mu\text{mol}/\text{min}$ とし、LP-AlGa_N 成長時の TMGa, TMAI の供給量はそれぞれ 18, 7.7 $\mu\text{mol}/\text{min}$ とした。

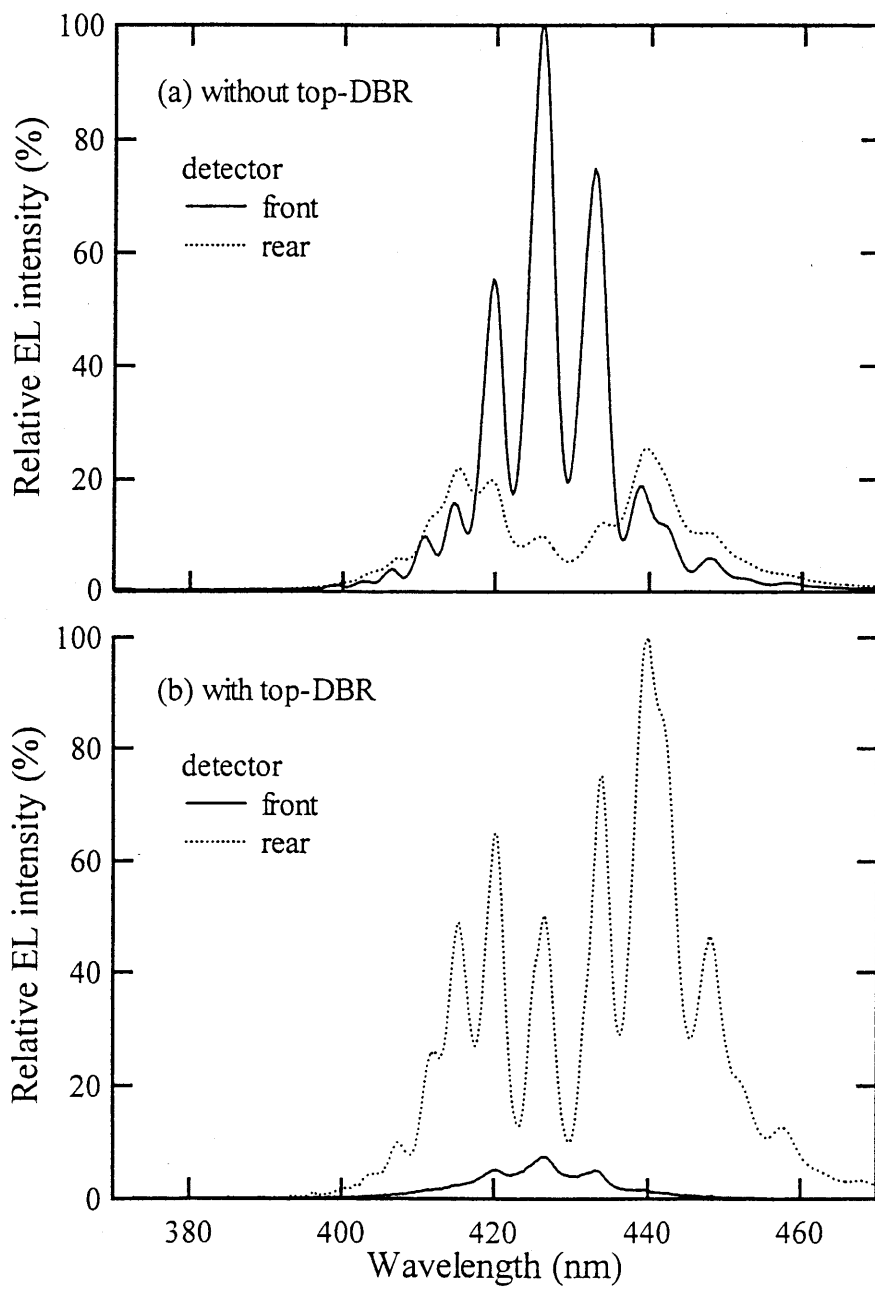


図 4.14 基板側に半導体多層膜反射鏡を有する LED の発光スペクトル

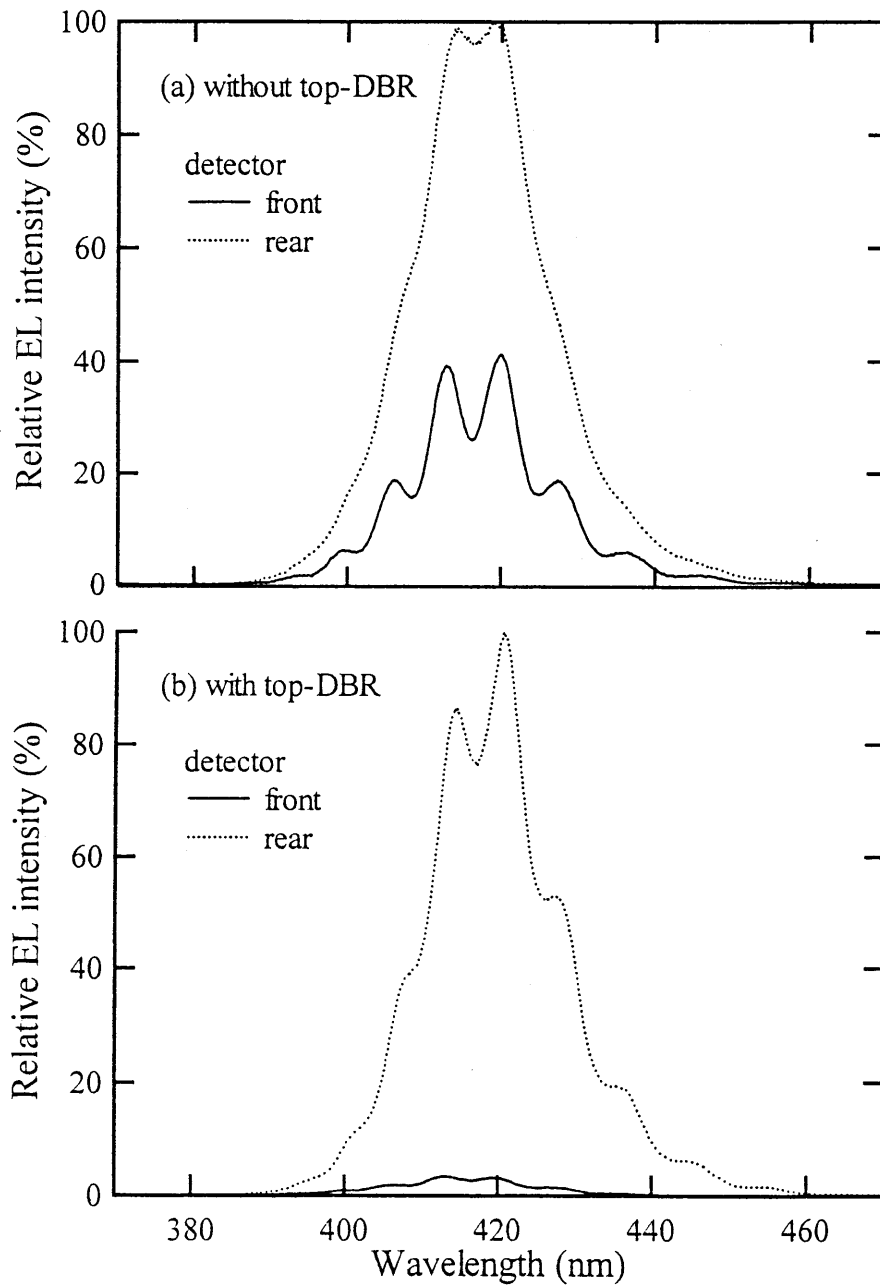


図 4.15 基板側に半導体多層膜反射鏡を有さないLEDの発光スペクトル

また、アンモニアの流量は減圧条件下では 2.5 l/min 一定とした。多層膜反射鏡の形成後、再びリアクタ内圧力を常圧に戻し、LED 構造の形成を開始した。常圧から 100 torr に減圧する際の成長中断はおよそ 2.5 min, 100 torr から常圧に戻す際はおよそ 1.5 min である。リアクタ内圧力が常圧となった後、1180 °C で n-GaN, 770 °C で $\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{N}$ を井戸層、 $\text{In}_{0.01}\text{Ga}_{0.99}\text{N}$ を障壁層とした量子井戸構造を 10 周期、p- $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ を 20 nm 成長し、再び 1180 °C に昇温して p-GaN を成長した。多層膜反射鏡の設計中心波長は 435 nm と 460 nm の 2 種類とし、QW の井戸層の膜厚を変化させることにより発光波長の制御を行った。すなわち、中心波長を 435 nm とした場合の反射鏡の設計膜厚は LP-GaN, LP-AlGaN それぞれ 43.7, 47.3 nm で、QW の井戸層、障壁層の膜厚はそれぞれ 2.2, 4.2 nm、460 nm を中心波長とした場合は LP-GaN, LP-AlGaN それぞれ 46.3, 49.8 nm, 井戸層、障壁層の膜厚は 3.2, 4.2 nm とした。共振器長の設計は、共振器中の屈折率を GaN の屈折率で近似することにより行い、10QW は共振器の中央に設置した。これにより、p-GaN, n-GaN 層の膜厚は、435 nm を中心波長に設計した場合それぞれ 218, 238 nm, 460 nm を中心波長に設計した場合はそれぞれ 221, 241 nm となる。サンプルは 1 cm 角に切り出し、電極形成フローにかけた。RIE にて表面から 400 nm の深さまでエッチングし、n 側電極を形成し、半透明の p 側電極を形成した後、その一部に p 側電極を形成した。

作製したサンプルの GaN (0004)面周辺の X 線回折測定結果を図 4.16に示す。測定には多層膜反射鏡の周期数が 15 周期のものについて、MQW までで成長を終えた構造を用い、図 4.16には中心波長を 460 nm としたものについて示した。GaN と AlGaN のピーク間隔から、多層膜反射鏡を構成する LP-AlGaN の Al 組成は 0.35 と見積もられるが、前章で述べたように LP-AlGaN は引っ張り応力を受けて歪んでおり、逆格子マッピングより格子間隔を求めると Al 組成は 0.32 と見積もられる。また、主に多層膜反射鏡の周期構造によるものと思われるフリンジが GaN と AlGaN のピーク間に見られる。さらに、AlGaN のピークより高角側に見られるフリンジは SL 構造によるもので、GaN のピークより低角側のフリンジは MQW 構造によるものである。これらのフリンジ間隔から算出した各周期構造の 1 周期の平均膜厚は設計と良く合うことから、作製したサンプルはほぼ設計通りの膜厚となっていると考えられる。また、図 4.16に併せて示した計算結果は歪みを考慮していないため、各ピーク位置は測定結果からずれているが、そのフリンジ間隔は測定によるフリンジ間隔と良く合う。

LED に用いた多層膜反射鏡の反射率測定結果を図 4.17に示す。測定に用いた構造は、多層膜反射鏡までで成長を終了したものである。中心波長を 435 nm とした反射鏡において、15 周期では 430 nm の波長で 70 %の反射率が、45 周期では 436 nm の波長で 99 %の反射率が得られた。一方、中心波長を 460 nm とした

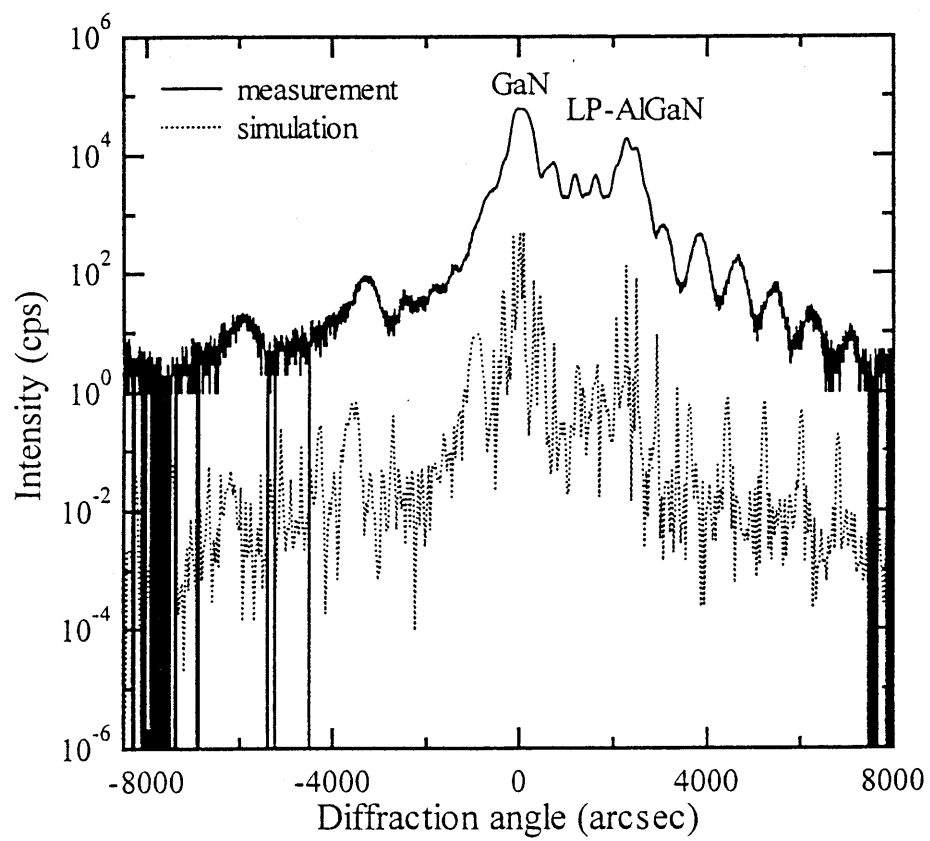


図 4.16 多層膜反射鏡上に作製した MQW の X 線回折結果

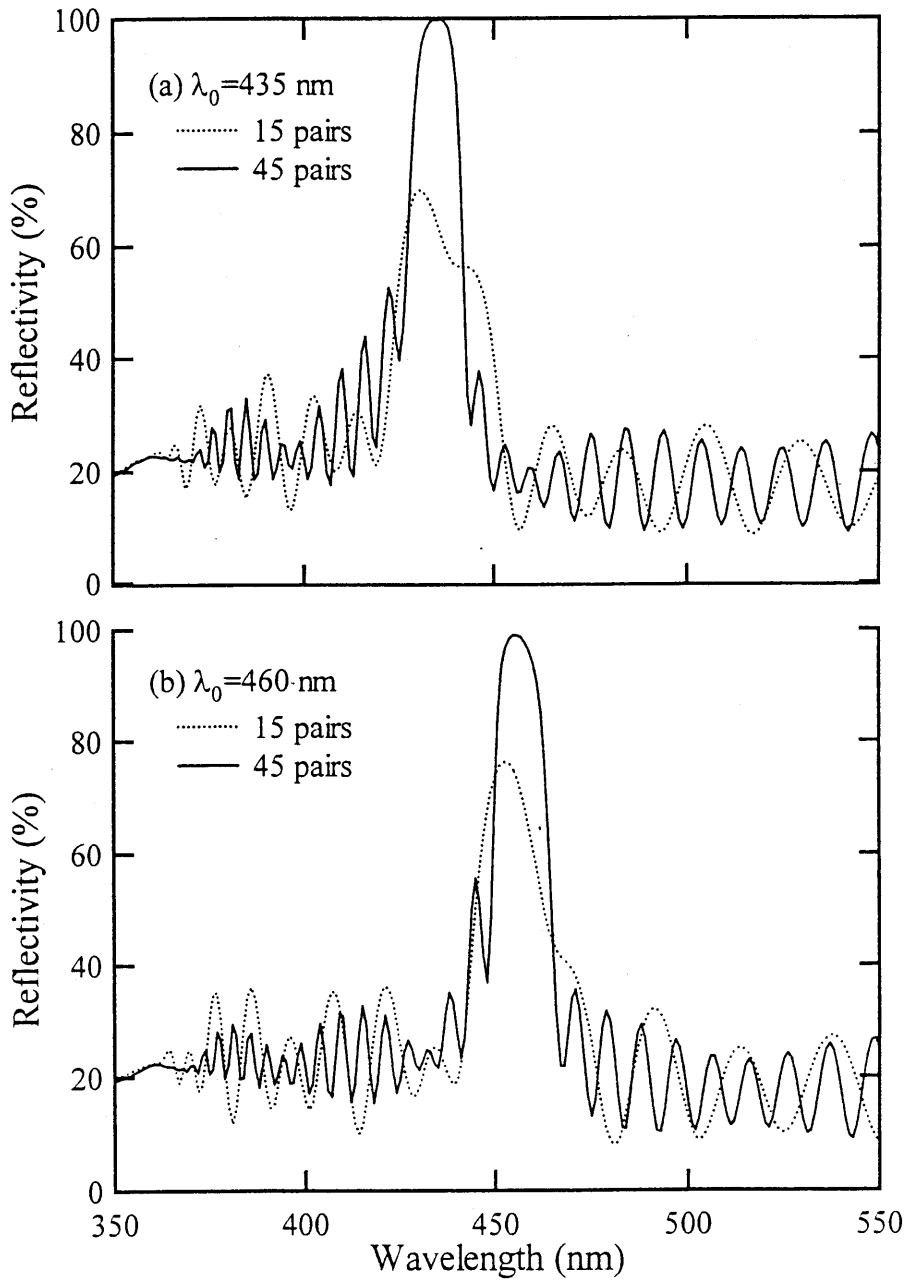


図 4.17 LED に用いた多層膜反射鏡の反射率測定結果

反射鏡では、15 周期の場合 453 nm の波長で 76 % の反射率が、45 周期では 455 nm の波長で 99 % の反射率が得られた。どちらの設計中心波長においても、45 周期では設計に近い波長において 99 % の最高反射率が実現されており、90 % 以上の反射率を示す高反射率帯幅もともに 11 nm である。これに対し、15 周期の反射鏡では、最高反射率を示す波長が設計中心波長よりも短波長側にある。これは周期数が少ないため、最高反射率を示す波長は短波長側に現れているが、ストップバンドの中心波長は設計中心波長付近にあり、周期数の増加とともに中心波長での反射率が增大していくと思われる。

作製した LED 構造の断面 SEM 像を図 4.18 に示す。図には多層膜反射鏡の周期数を 45 周期としたものについて示した。白く見える層が GaN 層で黒く見える層が AlGaIn 層である。図 4.18 より、多層膜反射鏡の領域には 45 周期の周期構造が形成されているのが確認できる。また、10.5 周期の SL 構造についても各層が確認でき、これらは膜厚の揺らぎの少ない多層構造であることが分かる。

中心波長を 435 nm とした LED の発光スペクトルを図 4.19 に、中心波長を 460 nm とした LED の発光スペクトルを図 4.20 に示す。図 4.19 より、435 nm を中心波長に設定した LED では、多層膜反射鏡の周期数を 15 周期とした場合 432.0 nm の波長に、45 周期の場合は 436.8 nm の波長にピークを持つ。460 nm を中心波長に設定した LED では、図 4.20 より、周期数が 15 周期の場合は 456.2 nm の波長に、45 周期の場合は 458.6 nm の波長にピークを持つ。これらピーク波長は多層膜反射鏡における反射率のピーク波長と良く合っている。また、多層膜反射鏡の周期数を 15 周期から 45 周期に上げ、その反射率を向上させることにより発光スペクトルの FWHM が 435 nm を中心波長とした LED では 18.0 nm から 10.0 nm に、460 nm を中心波長とした LED では 19.6 nm から 11.0 nm へと狭くなった。また、これらの L-I 特性を図 4.21 に示す。基板側反射鏡の反射率が向上することにより、光出力が増大している様子が分かる。表面側の反射率を GaN と空気との界面とすると、計算から 435 nm の波長では 17.7 %、460 nm の波長では 17.2 % 程度となる。さらに測定より求めた基板側の反射率を用いて式(4.10)より光強度比 η_m を求めると、基板側の反射率増大により、中心波長が 435 nm の場合は 1.3 倍、中心波長が 460 nm の場合は 1.2 倍に光出力が増大することになる。測定結果では、20 mA 動作時においてそれぞれ 1.5、1.2 倍に増大している。

さらに、基板側に 45 周期の半導体多層膜反射鏡を形成した LED において、表面側に誘電体多層膜反射鏡を形成した。表面側反射鏡には $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜反射鏡を用い、周期数を 5 周期とした。その反射率は LED の発光波長域において ~90 % となる反射鏡を用いた。表面側に反射鏡を形成したことによる発光スペクトルの変化を、中心波長が 435 nm の LED について図 4.22 に、460 nm の LED について図 4.23 に示す。また、L-I 特性を図 4.24 に示す。図 4.22 より、中心波

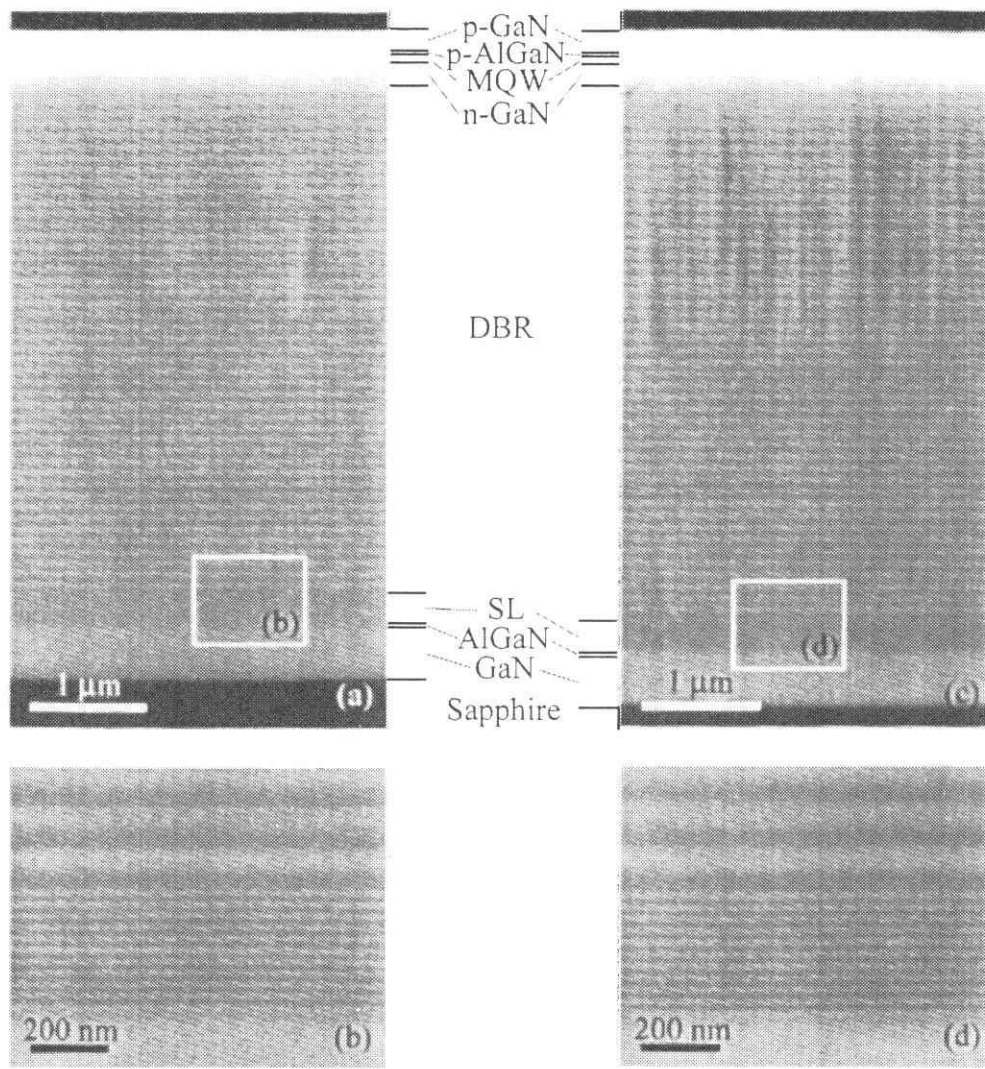


図 4.18 45 周期の多層膜反射鏡を有する微小共振器構造 LED の断面 SEM 像
中心波長が(a) 435 nm, (c) 460 nm で(b), (d)は四角で囲んだ領域の拡大像

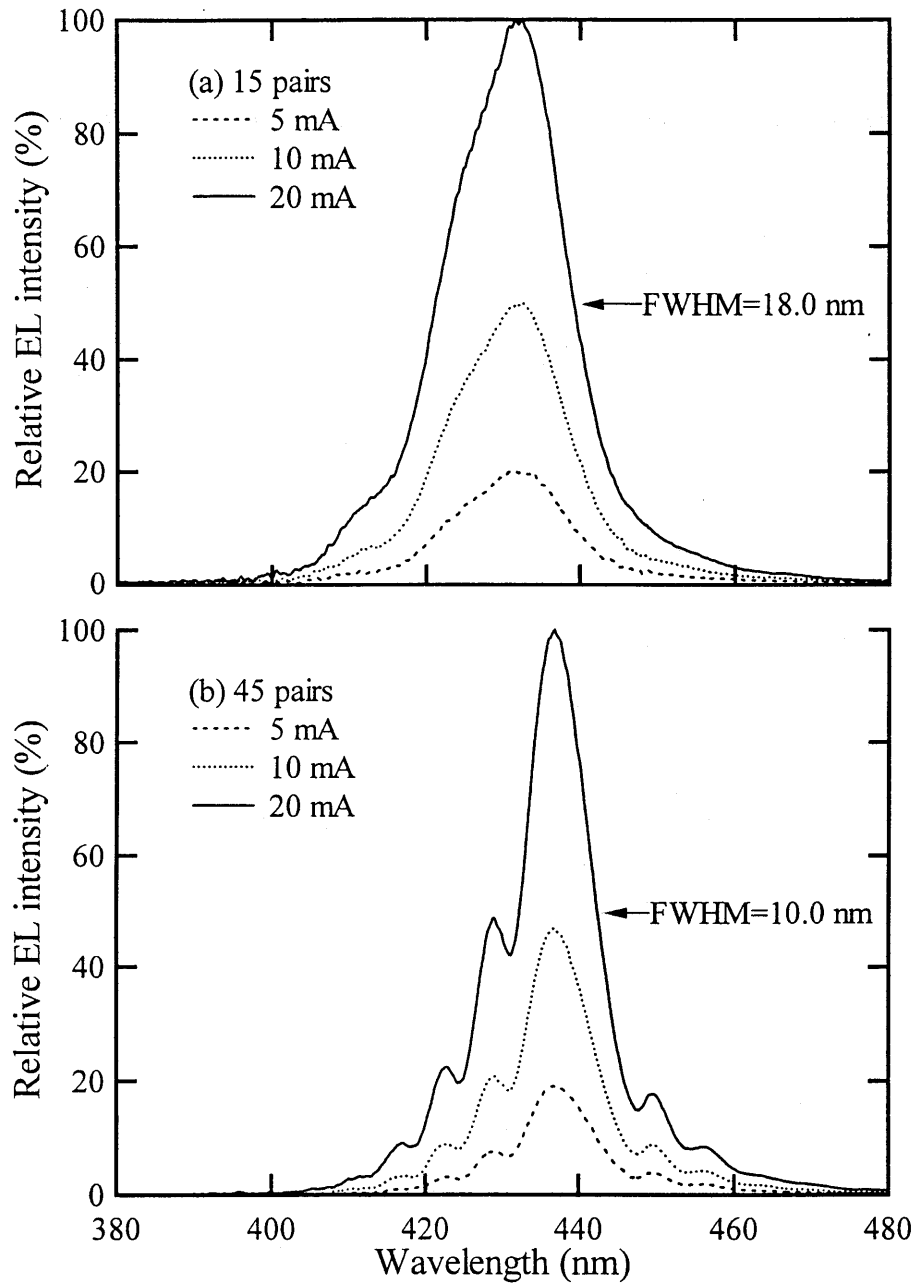


図 4.19 多層膜反射鏡上に作製した微小共振器構造 LED の発光スペクトル
 周期数は(a) 15 周期、(b) 45 周期で、中心波長は 435 nm

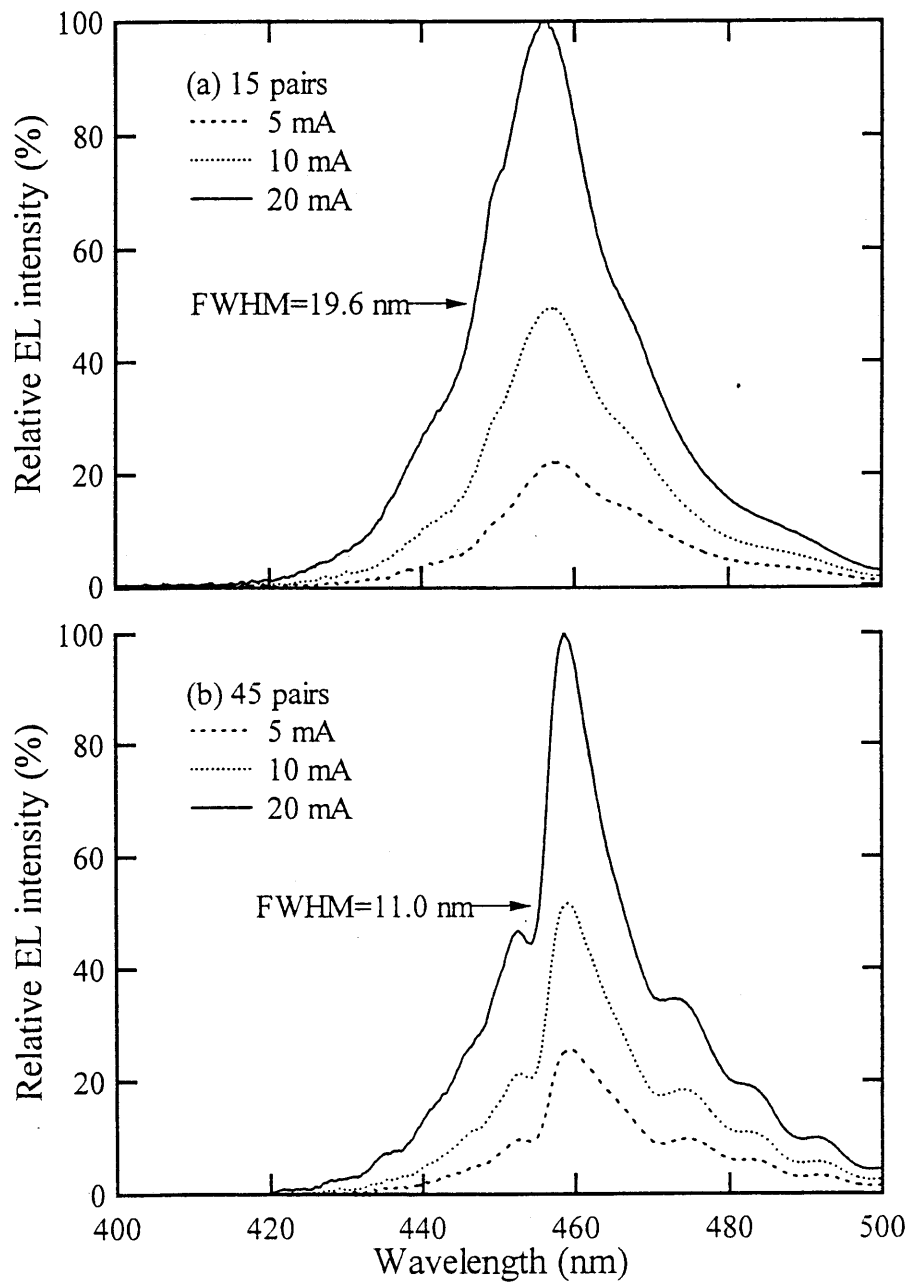


図 4.20 多層膜反射鏡上に作製した微小共振器構造 LED の発光スペクトル
 周期数は(a) 15 周期、(b) 45 周期で、中心波長は 460 nm

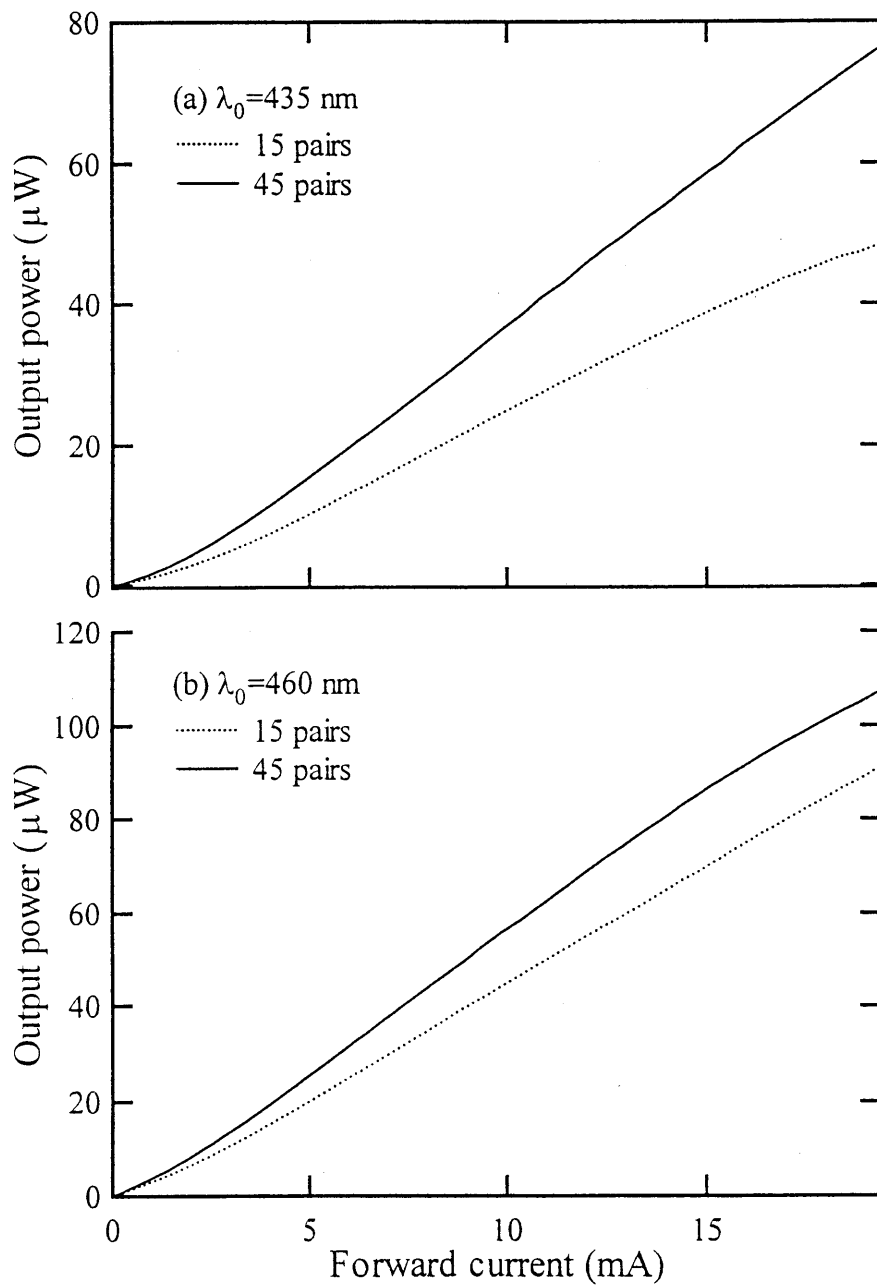


図 4.21 多層膜反射鏡上に作製した微小共振器構造 LED の L-I 特性

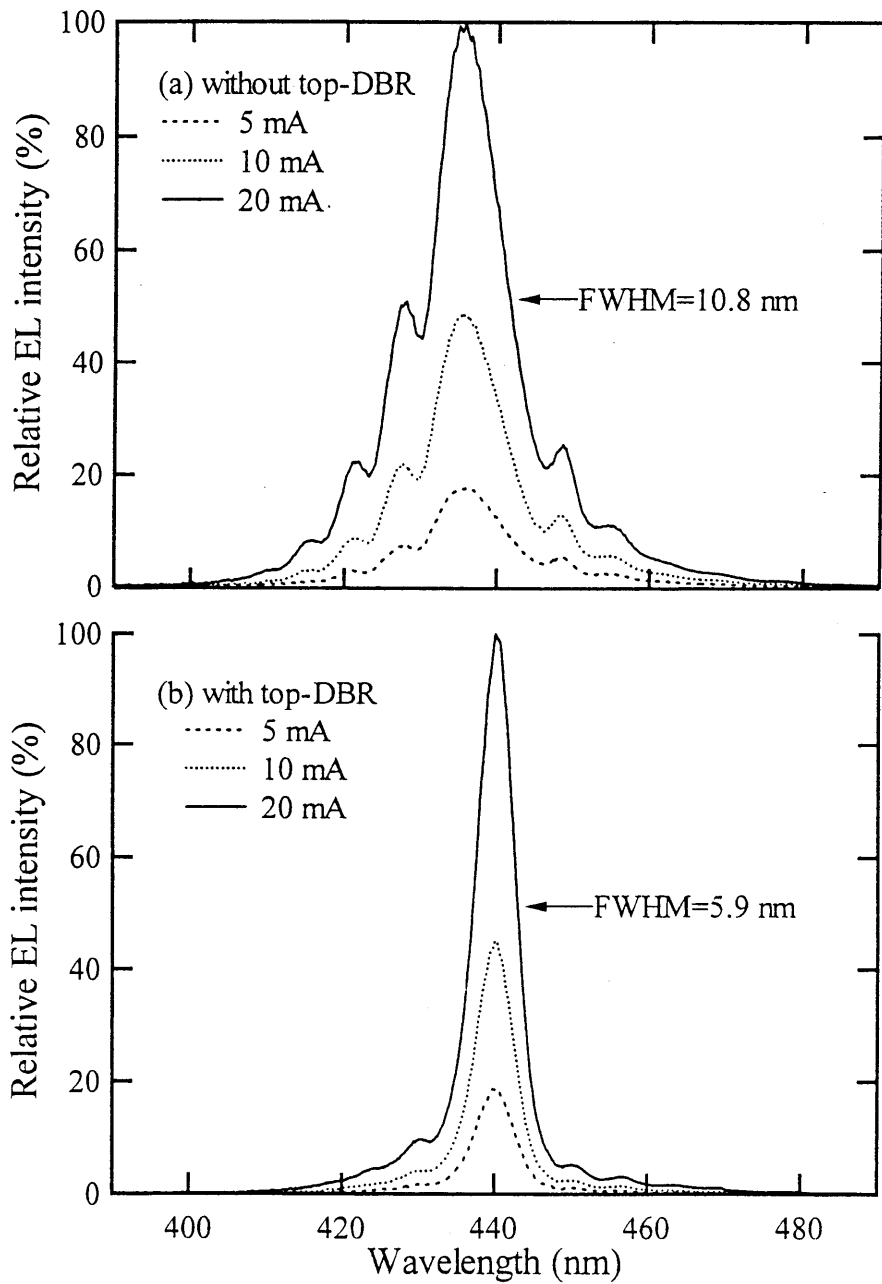


図 4.22 多層膜反射鏡上に作製した微小共振器構造 LED の発光スペクトル
表面側に誘電体多層膜反射鏡を(a) 形成前、(b) 形成後で、中心波長は 435 nm

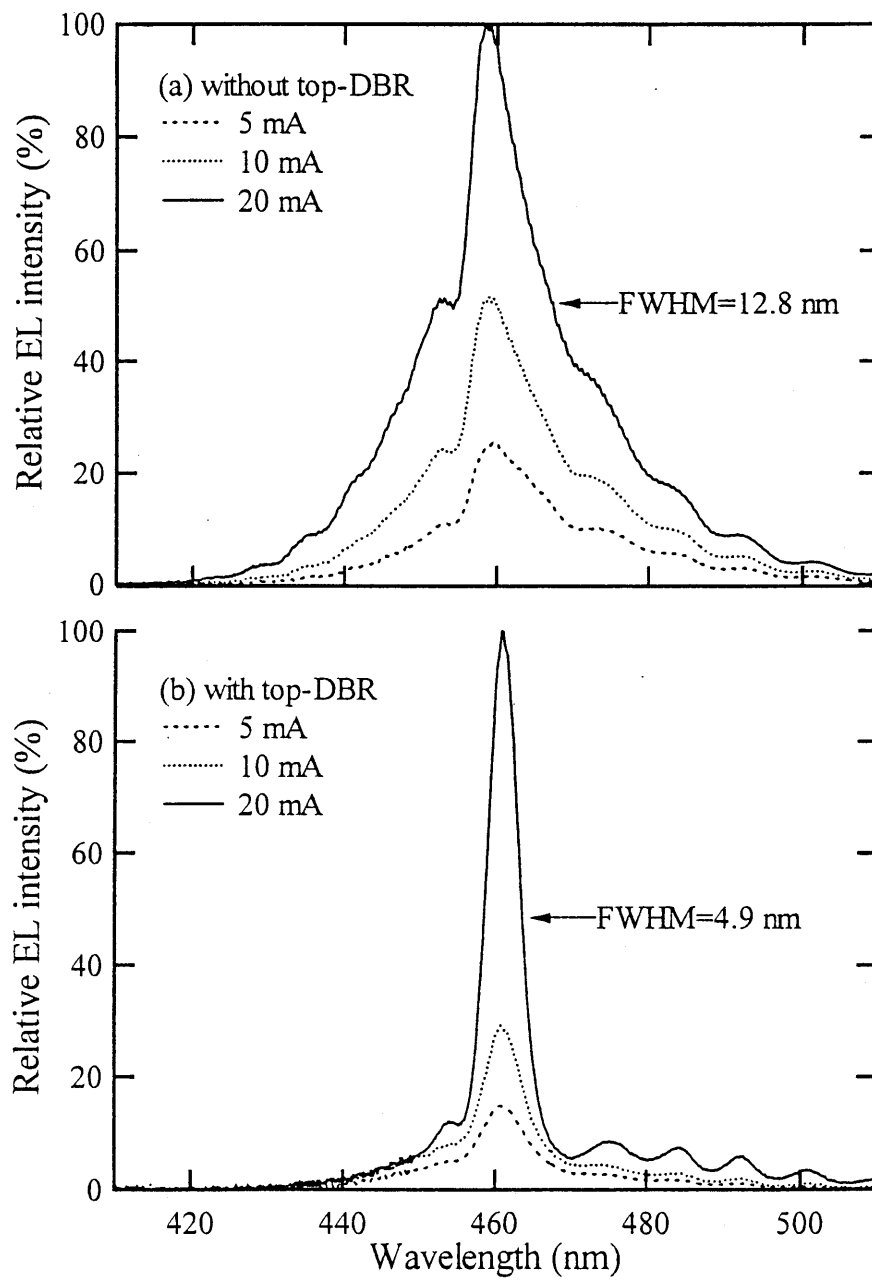


図 4.23 多層膜反射鏡上に作製した微小共振器構造 LED の発光スペクトル
表面側に誘電体多層膜反射鏡を(a) 形成前、(b) 形成後で、中心波長は 460 nm

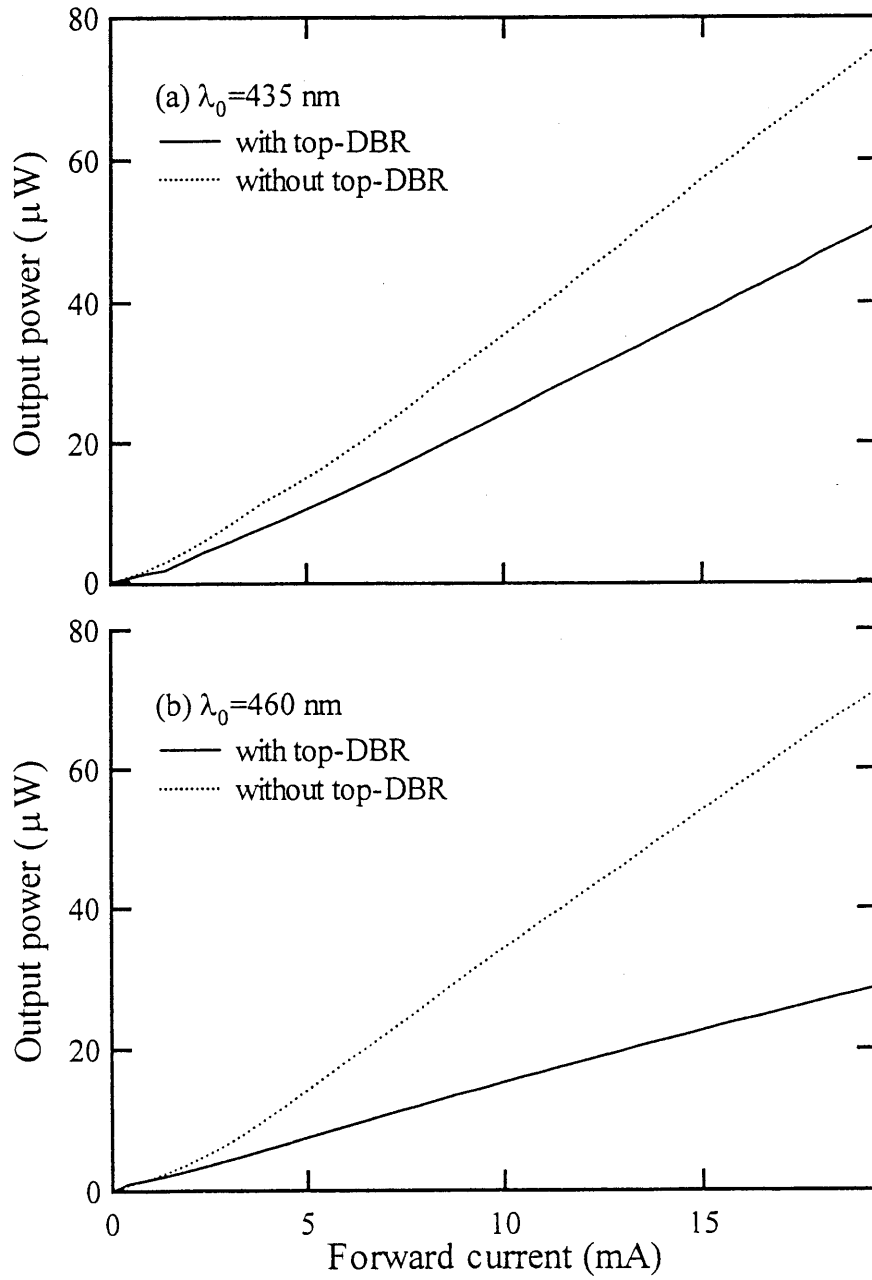


図 4.24 45 周期の多層膜反射鏡上に作製した微小共振器構造 LED の L-I 特性

長を 435 nm とした LED では、表面側に反射鏡を形成しない場合は 435.6 nm の波長にピークを持ち、その FWHM は 10.8 nm、表面側に反射鏡を形成した場合は 440 nm の波長にピークを持ち、FWHM は 5.9 nm となる。また、中心波長を 460 nm とした LED では、図 4.23 より、表面側に反射鏡を形成しない場合、458.4 nm の波長にピークを持ち、FWHM が 12.8 nm、表面側に反射鏡を形成した場合は 460.8 nm の波長でピークを持ち、FWHM は 4.9 nm となる。すべての LED において、駆動電流を 5 mA から 10, 20 mA へと増加させても FWHM には変化は確認されなかった。

共振器構造による半値幅 $\Delta\lambda_0$ は次式で与えられる⁶。

$$\frac{\Delta\lambda_0}{\lambda_0} \approx \frac{1}{Q} = \frac{\lambda}{2L_{cav}} \left(\frac{1 - \sqrt{R_f R_r}}{\pi \sqrt{R_f R_r}} \right) \quad (4.12)$$

ここで、 Q は Q 値で、 R_f , R_r はそれぞれ表面側、基板側の反射率、 L_{cav} は実効共振器長である。式(4.7), (4.9)より、45 周期の LP-GaN/LP-AlGaIn 多層膜反射鏡上に作製した共振器構造の実効共振器長を計算すると、中心波長が 435 nm の LED において、表面側に $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜反射鏡を形成しない場合は $L_{cav} = 5.11\lambda$ 、形成した場合は $L_{cav} = 5.58\lambda$ 、中心波長が 460 nm の LED では、それぞれ $L_{cav} = 5.11\lambda$ 、 $L_{cav} = 5.57\lambda$ となる。これらを用いて FWHM を求めると、中心波長が 435 nm の LED では、表面側に反射鏡を形成しない場合は $\Delta\lambda_0 = 12.1$ nm、形成した場合は $\Delta\lambda_0 = 0.52$ nm、中心波長が 460 nm の LED は、それぞれ $\Delta\lambda_0 = 13.0$ nm、 $\Delta\lambda_0 = 0.56$ nm となる。これらの値は、表面側に誘電体多層膜反射鏡を形成しない場合については、測定結果において同程度の値が得られている。しかし、表面側に誘電体多層膜反射鏡を形成した 2 つの LED では、FWHM が 5 nm 前後の発光スペクトルが測定より得られた。また、基板側の反射鏡が 99 % の反射率を持つ LED の表面側に反射率が ~ 90 % の反射鏡を形成した場合、式(4.10)より光強度比 η_m を求め、表面側に反射鏡を形成する前後での光出力の比を見積もると、表面側に反射鏡を形成することにより光出力は形成前の 80 ~ 90 % 程度に低下する。しかし、図 4.24 の測定結果では、中心波長が 435 nm の LED では 67 %、中心波長が 460 nm の LED では 40 % にまで低下している。さらに、発光スペクトルの FWHM から、表面側の反射率は 50 % 程度に相当することが計算から分かる。これらから推測すると、表面側に形成した誘電体多層膜反射鏡の反射率が設計よりも低く、透過率も低いということが考えられる。表面側における反射率の低下の原因として、表面側反射鏡である $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜反射鏡が、Au/Ni/Au (30/60/120 Å) からなる p 側半透明電極上に形成されている事が原因として考えられる。表面側反射鏡の反射率は ~ 90 % であるが、反射鏡と共振器構造との間に電極が存在する事

により、共振器の上部界面における反射率は 40 ~ 50 %にまで低下する事が計算から求まる。このような反射率の低下により、発光スペクトルの FWHM が 5 nm 程度にとどまったと考えられる。また、縦モードの利得整合を得るため、共振器の中心に活性領域を配置した場合、 3λ の共振器に接する多層膜反射鏡の第一層を低屈折率層とするなど、構造の再検討も必要と考えられる。

4.4 まとめ

本章では、GaN/AlGaN 多層膜反射鏡を用いた電流注入型デバイスの作製を行った。LED の基板側に 70 %程度の反射率を持つ 15 周期の GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 多層膜反射鏡を形成することにより、基板側へ放出された光が表面側へ反射され、光出力が 1.5 倍に向上した。この光出力の向上は基板側に形成した反射鏡による効果であることが確認された。また、発光スペクトルでは、サンプル表面と基板側の多層膜反射鏡との間に形成された共振器構造による縦モードからの発光が観察された。光出力は、基板側反射鏡の周期数を上げ反射率を 96 %程度にまで向上させることにより、通常の LED に対して 2.3 倍の光出力が得られた。

また、GaN/AlGaN 多層膜反射鏡上に作製する LED 構造の総膜厚を薄くし、 3λ の共振器長を持つ微小共振器構造 LED を作製した。基板側反射鏡の反射率を 70 %程度から 99 %へと向上させることにより、発光スペクトルの半値幅が 20 nm 程度から 10 nm 程度へと鋭くなった。さらに、表面側に TiO₂/SiO₂ 多層膜反射鏡を形成し表面側の反射率を上げることにより、半値幅が 5 nm の鋭い発光スペクトルを得た。

参考文献

- ¹ 末松安晴, 伊賀健一, “光ファイバ通信入門”, オーム社 (1989).
- ² Y. Suematsu, S. Arai, and K. Kishino, *IEEE J. Lightwave Technol.* **LT-1**, 161 (1983).
- ³ F. Koyama, Y. Suematsu, S. Arai, and T. E. Tawee, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-19**, 1042 (1983).
- ⁴ T. Kato, H. Susawa, M. Hirotsu, T. Saka, Y. Ohashi, E. Shichi, and S. Shibata, *J. Cryst. Growth* **107**, 832 (1991).
- ⁵ E. F. Schubert, Y. H. Wang, A. Y. Cho, L. W. Tu, and G. J. Zyzik, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 921 (1992).
- ⁶ N. E. J. Hunt, E. F. Schubert, R. F. Kopf, D. L. Sivco, A. Y. Cho, and G. J. Zyzik, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 2600 (1993).

第5章

総括

本研究では、MOCVD法によるサファイア基板上 GaN 系面発光レーザの実現に向けて、高反射率を有する多層膜反射鏡の作製と、多層膜反射鏡を用いた LED を作製した。

第2章では、AFM測定を用いて観察されるピットやステップ形状から n-GaN を電氣的、光学的、結晶構造的に評価した。純粹らせん転位と混合転位の表面終端である直径の大きなピットは、その密度の減少とともにバンド端発光強度が増大することを示し、らせん成分をもつ貫通転位は非発光再結合中心となっている事を示した。また、転位密度の減少が PL 強度比 I_B/I_Y を増加させることを示し、PL 強度比 I_B/I_Y が転位密度と移動度を評価する上で有効なパラメータとなることを示した。さらに、X線回折測定から得られた半値幅の比 $FWHM_{(0004)}/FWHM_{(20\bar{2}4)}$ は、ピット密度の増大とともにその値が減少することを示した。これらは AFM 測定による表面のステップ形状によっておよそその判別が可能であり、AFM の表面観察が転位に関する評価に有効であることを示した。

また、気相中の寄生反応が問題となる AlGaIn の結晶成長において、寄生反応を抑制するためリアクタ内圧力を減圧とし、その成長条件の調査を行った。リアクタ内に供給するガスの総流量とリアクタ内圧力を変化させたとき、TMGa と NH_3 の寄生反応はほぼ無視できるほど小さいが、TMAI と NH_3 の寄生反応は AlGaIn の結晶成長に大きく影響を及ぼす。このような寄生反応は、ガスの流速を増大させ、原料ガスが混合されてから高温となったサセプタ上を通過するまでの時間を短くすることにより抑制できる。これにより、常圧条件下では得られなかった Al 組成が 0 から 1 までの任意の AlGaIn の作製が可能となった。

第3章では、高反射率を有する GaN/AlGaIn 多層膜反射鏡の作製に関する検討を行った。クラックの発生を抑制するための手法として、1. 多層膜の設計膜厚を $\lambda/4$ からずらす、2. 中間層として SL 構造を導入する、という手法が有効であることを示した。X線回折測定から、中間層として SL 構造を導入することにより、多層膜反射鏡を形成する GaN が圧縮応力を受けて歪んでいることが分かつ

た。これにより、多層膜反射鏡を構成する AlGa_N の受ける引っ張り応力が抑制され、クラックの発生を防ぐことができる。中間層として 10.5 周期の LP-GaN/LP-AlN SL 構造を導入した 45 周期の LP-GaN/LP-Al_{0.32}Ga_{0.68}N 多層膜反射鏡において 99 % という高反射率を実現した。

第 4 章では、GaN/AlGa_N 多層膜反射鏡を用いた発光デバイスを作製した。LED の基板側に GaN/AlGa_N 多層膜反射鏡を導入することにより、基板側に放射された光が効率良く表面側に反射され、光出力の向上を得た。LED の基板側に 70 % 程度の反射率を持つ 15 周期の GaN/Al_{0.27}Ga_{0.73}N 多層膜反射鏡を形成することにより、光出力が 1.5 倍に向上した。また、縦モードからの発光が確認され、そのモード間隔は多層膜反射鏡とサンプル表面との間に形成された共振器構造によるものであることを示した。光出力の向上は多層膜反射鏡の反射率による効果であり、反射率の高い反射鏡を形成することによりその効果は増大する。基板側反射鏡の周期数を上げ、反射率を 96 % 程度にまで向上させることにより、通常の LED に対して 2.3 倍の光出力が得られた。さらに、GaN/AlGa_N 多層膜反射鏡上に、LED の総膜厚を薄くした微小共振器構造 LED を作製した。共振器長を光の波長程度に小さくすることにより、単一モードからの発光を得た。また、多層膜反射鏡の反射率を 99 % へと増大させることにより、半値幅が 10 nm 程度の鋭い発光スペクトルを得た。出射側に TiO₂/SiO₂ 多層膜反射鏡を形成することにより、その半値幅は 5 nm にまで狭まった。

本研究で得た結果は、近く行われるであろう電流注入による GaN 系面発光レーザーの実現に貢献するものと信ずる。