

フォトニック結晶と機能材料の融合及び超小型光回路素子への応用技術の研究（継続7）

Research on technology for integrating functional materials into photonic crystals and its application to ultra-small optical circuit devices

花泉 修 群馬大学工学部 電気電子工学科
Osamu Hanaizumi Department of Electronic Engineering, Faculty of Engineering, Gunma University

三浦 健太 群馬大学工学部 電気電子工学科
Kenta Miura Department of Electronic Engineering, Faculty of Engineering, Gunma University

研究期間 平成13年度～平成15年度

概要 発光材料で構成された3次元フォトニック結晶(Photonic Crystal: PhC)はフォトニックバンドギャップ効果により自然放光による損失のないレーザ実現の可能性を持っており、PhCの提唱以来、応用デバイスとしての研究対象の一つにあげられている。一方、自己クローニング法は、高周波(rf)バイアススパッタリングに基づく自己整形を利用したPhCの作製方法であり、非常に簡便であるため最も工業化に適した方法の一つである。本研究では、小型・高性能な発光デバイスの創成を目指し、自己クローニング法と活性材料との融合技術と超小型光回路素子への応用技術の開発を行った。具体的には、①CdS系2次元PhCの作製技術の開発、②III-V族化合物半導体発光層を自己クローニング型PhC中に取り入れる技術の開発、及び③自己クローニング法と整合性の良いSiやTiのナノクリスタル薄膜発光体の作製技術の開発、の3項目より成る。ここでは、特に重要な成果と思われる②、③を中心に報告する。

Abstract CdS two-dimensional photonic crystals (PhCs) were fabricated by using double-interference exposure and rf sputtering. A suppressed photoluminescence spectrum was observed normal to the surface in the wavelength range other than in-plane resonance. We developed a dry-etching process to form holes with diameters of 5–50 nm in 7- μm thick a-Si/SiO₂ three-dimensional (3D) PhC layers fabricated on InP substrates by the autocloning method. We also demonstrated wet-etching processes to remove damaged surfaces of exposed InP substrates and selectively grew multiple quantum well by molecular beam epitaxy in a region surrounded by a-Si/SiO₂ 3D PhCs. Si:SiO₂ films are promising for materials introduced into periodic structures as luminescent sources and we found that Si:SiO₂ films sputtered under a limited condition emit white or blue light without annealing.

研究内容

(1) III-V族化合物半導体をフォトニック結晶中に取り入れる技術の開発

図1に示すような、III-V族化合物半導体とPhCとを融合させた構造の作製を試みた。まず、自己クローニング法によりInP基板上にSi/SiO₂系3次元PhCを形成した。電子ビーム露光とドライエッチングにより、面方位(100)のInP基板上に0.7 μm ピッチの三角格子状に孔を形成する。この上にrfバイアススパッタリングによりSi/SiO₂交互多層膜を10周期（一層の厚さはいずれも0.35 μm 、トータルの厚さは7 μm ）積層する。この多層膜は、自己クローニング効果により3次元PhCとなる。次にドライエッチングを用いてPhCに孔を形成した後、そこに分子線エピタキシー(MBE)によりIII-V族化合物半導体活性層を選択成長させた。具体的には、MBE装置(VG、V80H Mk II)によりIn_{0.53}Ga_{0.27}Al_{0.20}Asバッファ層(E_g=1.16eV、厚さ3.5 μm)を選択成長させ、引き続き20周期のMQW活性層(well: In_{0.62}Ga_{0.38}As、E_g=0.66eV、厚さ14.9nm、barrier: In_{0.45}Ga_{0.31}Al_{0.24}As、E_g=1.21eV、厚さ9.6nm、トータルの厚さ490nm)を選択成長させた。図2は、Si/SiO₂系3次元PhCを用いた試料の電子顕微鏡(SEM)写真である。Si/SiO₂系多層膜の壁面と上面には、化合物半導体がアモルファス状に堆積されている。図3は、PhC中を基板面に平行な方向に伝搬する自然放光スペクトルの測定結果である。選択成長領域から75 μm の距離をおいて試料をへき開した後、先球ファイバにより波長0.98 μm のレーザ光をMQW層に照射し、へき開面からのPLスペクトルを観測した。膜面に平行な成分をTE、垂直な成分をTMと定義した場合、TE成分はTM成分に比べて強度が大きく、ピークの位置は50nm程度短波長側に存在することが分かった。PhCの面内透過率の偏波依存性が反映されたものと考えられる。

(2) 白色や青色に発光するSiナノクリスタル薄膜の作製と評価

SiO₂(65mm ϕ)上に1~3枚のSiタブレット(20mm ϕ)のをせたものをターゲットとし、rfスパッタ装置(Eiko、ES-350)で熔融石英基板(20mm \times 20mm \times 1mm ϕ)上に成膜する。スパッタ条件は、ベース圧力: 2.7 \times 10⁻⁵ Pa、導入Ar圧力: 1Pa、rfパワー: 200W、基板加熱なし、である。膜中のSiO₂に対するSiの体積比は、(ターゲットの面積比) \times (成膜レートの比=0.28)により試料毎に見積もった。Siタブレットの数に合わせ、試料番号を決めている。成膜後の

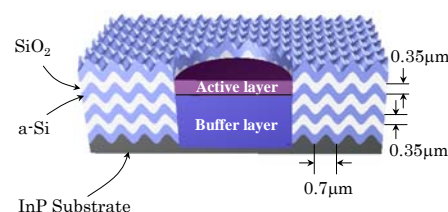


図1. PhCとMQWを融合した構造の概念図

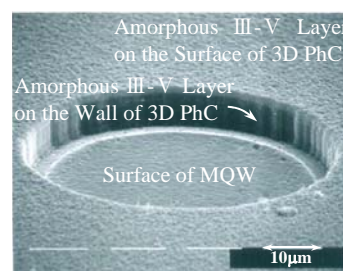


図2. 3次元PhCに対してMQWを選択成長させた試料のSEM写真

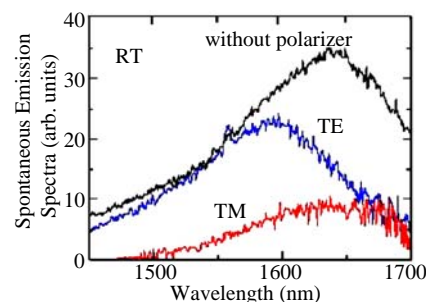


図3. Spontaneous emission spectra of the 3D PhC structure

アニールなど、後処理は一切行わない。

He-Cdレーザ光(波長 $\lambda=0.325\mu\text{m}$ 、金門電気、IK3251R-F)を当てると、室温でも、Sample 1 では青色の、Sample 2 と 3 では白色の発光が肉眼で確認できた。Sample 1 の青色発光の写真を図 4 に示す。更にHe-Cdレーザ($\lambda=0.325\mu\text{m}$)を励起光源として室温で測定したPLスペクトルを図 5 に示す。測定には、モノクロメータ (Nikon、P250)、フォトマル (Hamamatsu、R3896)、ロックイアンブ (NF、LI-572B) が使用された。黒と赤の矢印は、それぞれSample 1、2 の吸収端エネルギーを示している。Sample 1 が最も強い発光を示し、スケールを 1/50 に縮小して描いている。短波長側のピークは 3.10eV にあり、従来の実験におけるSample 1 と殆ど同じである。半値全幅(FWHM)は 0.38eV である。長波長側のピークは 1.60eV にあり、FWHMは 0.20eV である。長波長側のピーク強度は短波長側の 3.4 倍であり、従来の実験におけるSample 2 のピーク値の 11.3 倍である。水冷によってターゲットの温度が安定した結果、ターゲットから飛び出すSi原子のエネルギーがより均一になり、マイグレーションなどによって形成されるSi微粒子のサイズがより均一になったものと考えられる。また、2つの発光ピークがクリヤーに分離しており、発光の起源がSiとSiO₂界面の状態が寄与する 1.7eV 近傍の発光と、量子閉じ込め効果によって可視域にシフトしたバンドギャップエネルギー近傍の発光が同時に起きているという仮説と矛盾しない結果が得られた。Sample 2 や 3 ではSample 1 のような発光強度の増強は観測されなかったが、これはSiターゲットの面積比が大きいほど形成されるSi微粒子のサイズが大きくなり、発光に寄与するサイズの微粒子が十分に形成されていないためであると考えている。

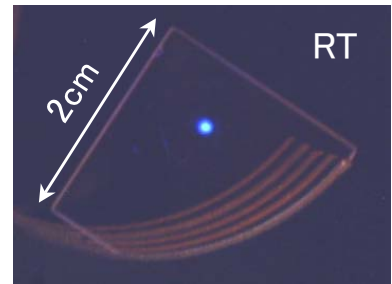


図 4. Si ナノクリスタル薄膜の青色発光の様子

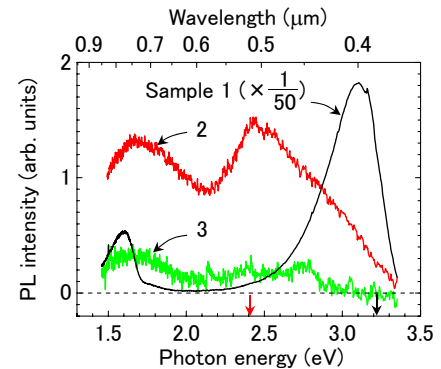


図 5. Si ナノクリスタル薄膜の PL スペクトル (矢印は吸収端エネルギーを示す)

研究結果

機能材料から成る 3 次元 PhC 構造を実現するための第一ステップとして、InP 基板上で、横方向を 3 次元 PhC で閉じ込められた領域に半導体活性層を選択エピタキシャル成長させるプロセスを開発した。すなわち、InP 基板上で、ドライエッチングにより 3 次元 PhC に孔を形成し、そこに InGaAs/InGaAlAs 系 MQW 活性層を選択エピタキシャル成長させた。また、主に PhC 層を横方向に伝搬した自然放出光のスペクトルを測定し、PhC の効果による偏波依存性を確認した。現実的なデバイスへ応用が可能な機能材料から成る 3 次元 PhC 構造を実現するための第二ステップは、より狭い領域に活性層を選択エピタキシャル成長させること、及び PhC 中の機能材料を取り入れた領域に光が局在する構造を形成することである。我々は、PhC 中に直径 5 μm 程度の孔を形成する技術は既に確立しており、そこに選択エピタキシャル成長させる実験、及び微細加工と自己クローニングの併用により発光層を基板に対し垂直な方向にも閉じ込める手法の検討を進めているところである。一方で、自己クローニング法と整合性の良い新しい発光体スパッタ材料を開発できた。これは、結果が予想されていたものではなく、本研究遂行中に偶然発見されたものである。すなわち、自己クローニング法と同じ rf スパッタにより Si ナノクリスタルを形成したところ、アニールなしで白色や青色の発光を得ることができた。

誌上发表リスト

- [1] O. Hanaizumi, K. Ono, Y. Ogawa, T. Koga, Y. Hasegawa, A. Ogihara, and G. Saito, "Fabrication and assessment of Si:SiO₂ sputtered films emitting white light without annealing", Japanese Journal of Applied Physics Vol.41 No.10A ppL1084-L1087 (2002. 10)
 - [2] O. Hanaizumi, K. Ono, and Y. Ogawa, "Blue-light emission from sputtered Si:SiO₂ films without annealing", Applied Physics Letters Vol.82 No.4 pp538-540 (2003. 1)
 - [3] O. Hanaizumi, Y. Sakurai, Y. Aizawa, S. Kawakami, E. Kuramochi, and S. Oku, "Fabrication of structures with III-V semiconductors embedded into 3D photonic crystals", Thin Solid Films Vol.426 no.1-2 pp172-177 (2003. 2)
- 他 5 編

申請特許リスト

- [1] 花泉修、白色発光Si:SiO₂膜およびそれを具備した白色発光素子、日本、2002年1月17日
- [2] 花泉修、青色発光Si:SiO₂膜とそれを具備した青色発光素子ならびに青色発光Si:SiO₂膜の製造方法、日本、2002年8月27日

受賞リスト

- [1] 花泉修、第 6 回横山科学技術賞、“フォトリック結晶と機能材料の融合及びデバイス応用技術の研究”、2003 年 3 月 8 日

報道発表リスト

- [1] “非シリコン系スパッター膜 室温青色発光に成功”、日刊工業新聞、2003 年 1 月 15 日

ホームページによる情報提供

<http://www.el.gunma-u.ac.jp/~hana>