

世界初の新規 GaN 基板上純緑色レーザ開発 I

京野孝史*・塩谷陽平・秋田勝史
 上野昌紀・足立真寛・住友隆道
 徳山慎司・池上隆俊・片山浩二
 中村孝夫

The World's First True Green Laser Diodes on Novel Semi-Polar {20 $\bar{2}$ 1} GaN Substrates I — by Takashi Kyono, Yohei Enya, Katsushi Akita, Masaki Ueno, Masahiro Adachi, Takamichi Sumitomo, Shinji Tokuyama, Takatoshi Ikegami, Koji Katayama and Takao Nakamura — InGa \bar{N} based green laser diodes (LDs) with a wavelength of 531 nm were demonstrated on semi-polar {20 $\bar{2}$ 1} GaN substrates under pulsed operation. The advantages of {20 $\bar{2}$ 1} planes for green lasing have been revealed by investigating the optical properties of spontaneous emission from LD structures. The amounts of the blueshift on {20 $\bar{2}$ 1} planes were dramatically reduced from those on conventional c-planes, indicating that piezoelectric fields within InGa \bar{N} active regions are well diminished on {20 $\bar{2}$ 1} planes compared with on c-planes. Moreover, the full width at half maximum values on {20 $\bar{2}$ 1} planes were far narrower than those on other planes. This result suggests that the utilization of {20 $\bar{2}$ 1} planes improves the homogeneity of the In composition and the thickness of the InGa \bar{N} active layers. These features contribute to the enhancement of emission efficiency in green spectral regions, leading to the realization of green LDs.

Keywords: GaN, green laser, semiconductor laser diode

1. 緒言

近年、半導体発光素子を光源としたTVやプロジェクタなどの映像表示機器が市場を賑わせている。発光ダイオード(LED*)をバックライトに用いた液晶TVが普及期に入る一方、新たな製品として現在注目を集めているのが超小型プロジェクタである。2008年頃から市場に登場し始めた手のひらサイズのプロジェクタ単体の他、最近になって発表されたプロジェクタ搭載の携帯電話やデジタル・カメラは大きな反響を呼んでおり、これらが市場に受け入れられる新しい価値であることを示した。市場規模は2011年に約300万台、それ以降も年率2~3倍のペースで伸張すると予測がなされている(図1)⁽¹⁾。

小型プロジェクタ用の光源にはレーザとLEDの2種類がある。レーザは、光学部品を削減でき小型化しやすい、色再現範囲を拡大することができる、といった特徴がある。カラー映像を表現するためには、光の三原色であるR(赤色)・G(緑色)・B(青色)が必要であり、赤色と青色については半導体レーザが既に実用化されている。しかし、緑色についてはレーザ発振自体が実現されていなかった。そのため、緑色レーザとしては赤外光の波長(~1064nm)を第2高調波発生(SHG*)素子を使って半分に変換(~532nm)するものが用いられている。これに対し、半導体によって直接レーザ光を得ることができれば、小型、低コスト、高効率な光源を実現可能であり、大きな波及効果をもたらすものと期待できる。このために、半導体による緑色レーザの開発が非常に活発化している。

緑色発光を可能にする半導体材料は、窒化ガリウム(GaN)と窒化インジウム(InN)の混晶から成るInGa \bar{N} である。InGa \bar{N} はIn組成の調整によって原理上可視光全域をカバーできる材料であり、具体的にはIn組成の増加に伴い紫色(波長400~435nm)、青色(波長435~480nm)、緑色(波長500~560nm)のように発光色が波長の長い方向に変化する。この特性を応用して、これまでに青紫色~青緑色レーザ、近紫外~青色~緑色LED、白色LEDなど様々な発光デバイスが実用化されてきた。しかし、次節で述べる問題点のために、発光色が青色から緑色へと長波長化するに従いLEDに関しては発光効率が低下し、レーザに関しては発振が難しくなる。一方、さらに波長が長い赤色領域については、AlGaInP系の材料によって高輝度な

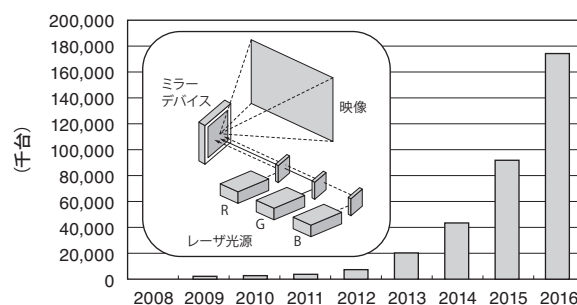


図1 小型プロジェクタの市場予測 (出典 TSR⁽¹⁾)

LEDやレーザが得られているため、**図2**に示すように、可視光の中で緑色領域でのみ発光効率が低いということになる⁽²⁾。この状況は「グリーンギャップ」と呼ばれており、後で一部言及するように様々な研究機関が問題の克服に取り組んできた。今回、我々は従来と異なる面方位を有するGaN結晶を新たに開発することで、波長531nmの純緑色での室温パルスレーザ発振に成功した⁽³⁾。さらに、波長520nmでの室温連続発振も確認した⁽⁴⁾。詳細なレーザ特性は次の「世界初の新規GaN基板上純緑色レーザ開発II」で述べることにし、本報告では緑色レーザ発振に結びついた新規面方位の特徴を紹介する。

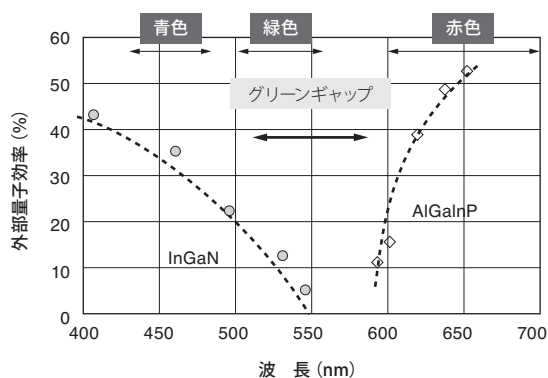


図2 LEDの外部量子効率の波長依存性⁽²⁾

2. 緑色レーザ実現に向けた課題

図3に、GaNの結晶構造を示す。発光素子は、半導体基板の上にエピタキシャル層を結晶成長して作製される (**図4**参照)。既に実用化されているGaNのLEDやレーザはすべて(a)のc面上に作製されたものである。前述のとおり、緑色の発光を得るためには、発光層を構成するInGaNのIn組成を高める必要がある。これに付随して、レーザ発振を阻害する2つの課題が顕在化する。1つは、発光層内部に発生するピエゾ電界が大きくなることである。ピエゾ電界とは、InGaNが成長面内方向に圧縮歪みを受ける時に、

正の電荷を持つGa及びInと負の電荷を持つNの分極のバランスが崩れることに起因して、c軸方向に生じる電界のことである。このように、c面は極性を持つことから極性面とも呼ばれる。このピエゾ電界は、**図4**に示した2つの悪影響を引き起こす。第1に、(a)のようにピエゾ電界によって発光層のバンドが曲がり、電子と正孔の波動関数の重なりが小さくなる問題がある。これは、電子と正孔が発光再結合する遷移確率の低下、すなわち発光効率の低下を招く。第2に、(b)のように電流値の増加に従い注入された電子と正孔によってピエゾ電界が遮蔽され、遷移エネルギーが大きくなる現象が生じる。発光波長で言い換えると、電流値の増加に伴い短波長側にシフト (ブルーシフト) することになる。これは、LEDに比べて駆動電流密度が大きいレーザにとっては極めて深刻な問題である。

2つ目の課題は、InGaN発光層の高In組成化に伴い結晶品質が劣化しやすくなることである。これは、格子定数が大きく異なるGaNとInNが非混和性を示すことに由来しており、凝集したInが非発光性の欠陥を発生させることが報告されている⁽⁵⁾。c面上で緑色レーザを発振させるためには、上述のブルーシフトを見越して低電流域ではさらに長い波長で発光するように、InGaN発光層のIn組成を高く設計する必要がある。しかし、その場合にはInGaNの結晶品質が悪化し、発光効率が低下してしまうのである。

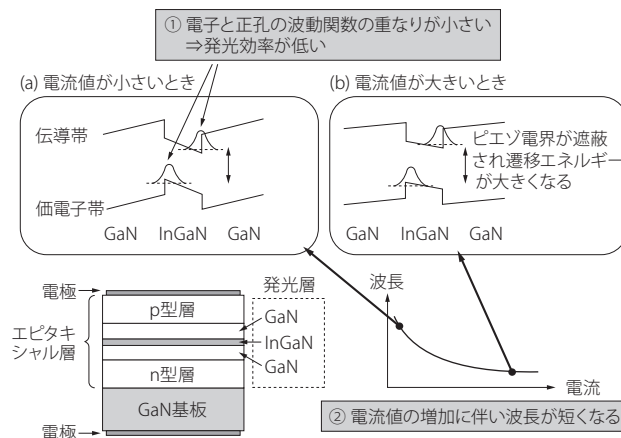


図4 ピエゾ電界が及ぼす影響

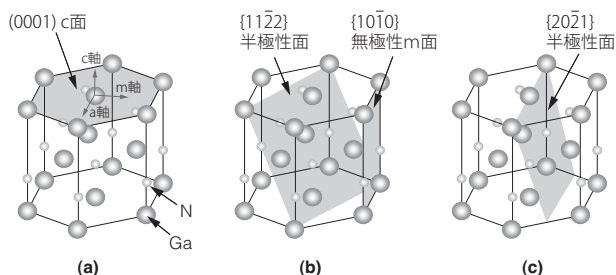


図3 GaNの結晶構造と面方位

このような課題を抱えつつも、c面上では結晶成長方法の改善により、最長515nmのレーザが報告されるようになってきた^{(6),(7)}。その一方で、課題の抜本的解決のために、素子を作製する結晶面をc面から傾けた面に変更する検討も精力的に行われている (**図3 (b)**)。ピエゾ電界はc軸方向に発生するため、c面から傾いた方向にレーザ構造を作製することでピエゾ電界の影響を低減することが可能になる。c面から90度傾けたm面やa面は、結晶成長する方向

のpiezo電界がゼロであるため、無極性面と呼ばれている。また、傾斜角度がc面と無極性面の中間的な位置にある面は半極性面と呼ばれている。これまでに、無極性m面上では波長499.8nmの連続発振が、半極性{1122}面上では波長426nmのパルス発振がそれぞれ報告されている^{(8),(9)}。しかし、これらの面方位においても上記2つ目の課題であるInGaN発光層の高品質化は依然克服されておらず⁽¹⁰⁾、さらなる長波長化を困難なものにすると予想される。そこで、我々はpiezo電界の低減のみならず、高In組成InGaNの高品質結晶成長の実現にも重きを置き、緑色レーザに適した新たな結晶面を開拓することにした。そして、**図3(c)**に示す{2021}面という独自の面方位を見出し、緑色レーザ発振を実現した。以下に、{2021}面上に作製したInGaN発光層の特性を述べる。

3. レーザ構造の作製

{2021}面自立Ga_{0.9}In_{0.1}N基板上にレーザのエピタキシャル層構造を作製した。Ga_{0.9}In_{0.1}N基板はハイドライド気相成長(HVPE^{*3})法によって作製した⁽¹¹⁾。Ga_{0.9}In_{0.1}N基板はn型導電性を有し、その転位密度は $1 \times 10^6 \text{cm}^{-2}$ 以下である。エピタキシャル層の成長は有機金属気相成長(OMVPE^{*4})法によって行った。Ga_{0.9}In_{0.1}N基板上にn型Ga_{0.9}In_{0.1}Nを成長した後、n型InAlGa_{0.9}Nクラッド層、n型InGa_{0.9}N光ガイド層、発光層、p型AlGa_{0.9}N電子ブロック層、p型InGa_{0.9}N光ガイド層、p型InAlGa_{0.9}Nクラッド層、p型Ga_{0.9}Nコンタクト層を順に成長した。発光層はInGa_{0.9}Nを井戸層とする3周期の量子井戸(MQW^{*5})構造で構成されている。エピタキシャル層を成長した後、表面にp型電極、裏面にn型電極をそれぞれ形成し、電流注入により発光特性を評価した。

4. {2021}面上のInGa_{0.9}N-MQW発光層の特性

先に、高In組成InGa_{0.9}Nにおける(1) piezo電界の増大と(2) 結晶品質の劣化が緑色レーザ実現に向けた課題であることを述べた。本節では、これら2点に対して{2021}面を用いることの効果を検証する。

まず、(1)のpiezo電界の影響を見るために、井戸幅が異なるレーザ構造を作製し、電流注入量に対する自然放出光の波長シフトを比較した。発熱の影響を低減するために、電流注入は幅2μsec、duty5%のパルスによって行った。結果を**図5(a)**に示す。井戸幅が2.4nm、3nm、4nmと増加するに従い、ブルーシフト量が増加していることが分かる。なお、**図5(b)**に示すように、これらの半値幅はほぼ同等であった。ブルーシフトの起源として、**図4**に示したpiezo電界の遮蔽の他に、InGa_{0.9}N井戸層のIn組成の不均一化に起因したバンドテイルのフィリングの効果が考えられる。piezo電界は井戸幅が厚いほど大きくなり、In組成も井戸幅が厚いほど不均一化しやすいが、In組成の均一

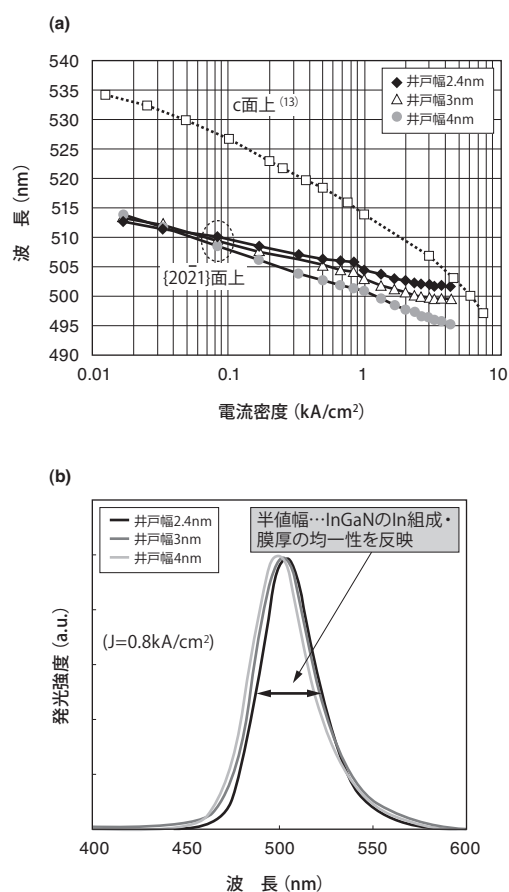


図5 (a) 発光波長の電流密度依存性および (b) 発光スペクトルの井戸幅依存性

性を反映する半値幅が井戸幅によって大きく変化しなかったことから、サンプル間でバンドテイルの状況はほぼ同等と言える。従って、ここではpiezo電界の遮蔽がブルーシフトに支配的に寄与しているものと考えられる。報告されている他の面方位と比較すると、ブルーシフト量は無極性m面上⁽¹²⁾より大きいながら、**図5(a)**に合わせて記載したc面上⁽¹³⁾よりは大幅に小さい値であった。これらより、{2021}面上ではpiezo電界の影響は存在しているものの、その度合いはc面上と比較して十分抑制されていることが分かった。

次に、(2)の結晶品質を考察するために、自然放出光の半値幅を比較した。**図6**は、様々な面方位上の半値幅の波長依存性を示したものである。ここで、各データの駆動電流密度は 150A/cm^2 付近に統一してある。報告されているc面上⁽¹⁴⁾、m面上⁽¹⁵⁾、および{1122}面上⁽¹⁶⁾の中で、{2021}面上の半値幅が最も小さい値を示した。また、波長が長くなるにつれて、その差が顕著になっていることが分かる。これは、他の面方位上のInGa_{0.9}Nは高In組成化に伴い組成あるいは膜厚が不均一化しやすいのに対し、{2021}面上のInGa_{0.9}Nは極めて均質であることを示唆している。

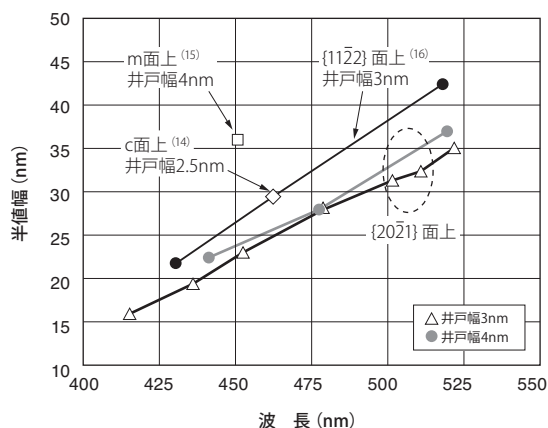


図6 半値幅の波長依存性

これを裏付けるために、波長520nmで発振するレーザ構造表面の蛍光顕微鏡観察と断面の走査透過電子顕微鏡(STEM^{※6})観察を行った。写真1及び写真2にそれぞれの結果を示す。写真1の蛍光顕微鏡像は非常に均質で、視野内で非発光領域は認められなかった。c面上のレーザ構造では波長が450nmを超えると非発光領域が出現するとの報告例があり、InGa_N発光層におけるInリッチな領域の結晶品質の悪化がその起源とされている⁽⁵⁾。{20 $\bar{2}$ }面上の

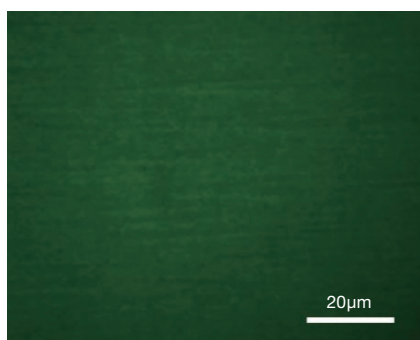


写真1 緑色レーザ構造表面の蛍光顕微鏡像

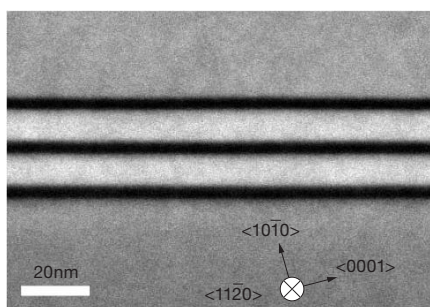


写真2 緑色レーザ構造断面のBF-STEM像

InGa_NはIn組成の均一性が高いために、結晶品質の悪化が抑制されたものと考えられる。写真2は、レーザ構造をa軸方向から観察した明視野(BF)-STEM像である。発光層近傍に欠陥が認められないことに加え、井戸層界面が非常に急峻であることが分かる。これらはいずれも、上記半値幅が狭いことと一致する結果である。

以上より、{20 $\bar{2}$ }面はpiezo電界の低減だけでなく、高In組成InGa_Nの高品質結晶成長にも優位な面方位であることが分かった。これらに起因した小さい波長シフトと高い発光効率が緑色レーザ発振に結びついたものと考えられる。

5. 結 言

世界初の緑色レーザ発振に成功した{20 $\bar{2}$ }面上の発光層の性質を、piezo電界と結晶品質の観点から紹介した。{20 $\bar{2}$ }面上の電流注入によるブルーシフト量はc面上と比較して小さく、発光層におけるpiezo電界が低減されていることを確認した。また、その発光半値幅は他の面方位と比較して狭く、高In組成のInGa_Nが均質に成長されていることを示唆する結果を得た。これと対応して、表面から蛍光顕微鏡で観測した微視的な発光は均一性が高く、断面STEMで観察したMQWは極めて急峻なヘテロ界面を有していた。以上の特徴がブルーシフトの低減と発光効率の向上につながり、純緑色レーザ発振に寄与したものと考えられる。この技術により、光の三原色のレーザ光源がすべて半導体で実現できることになり、冒頭で述べた映像表示機器はもちろん、医療分野など新たな応用製品への展開が期待できる。続く「世界初の新規Ga_N基板上純緑色レーザ開発II」では、具体的なレーザ特性を紹介する。

用語集

※1 LED

Light Emitting Diode：電流を注入し電子の持つエネルギーを光に変換する半導体素子。

※2 SHG

Second Harmonic Generation：入射した光の半分の波長の光が発生する現象。

※3 HVPE

Hydride Vapor Phase Epitaxy：V族原料に水素化合物ガスを用いる気相成長方法。

※4 OMVPE

Organometallic Vapor Phase Epitaxy：構成元素の原料に有機金属化合物蒸気を用いる気相成長方法。

※5 MQW

Multiple Quantum Well：膜厚が数 nm オーダーの材料（井戸層）と井戸層よりもバンドギャップが大きい材料（障壁層）を交互に複数周期積層した構造。

※6 STEM

Scanning Transmission Electron Microscope：収束した電子線で試料を走査し各領域の透過波あるいは回折波を結像する電子顕微鏡。

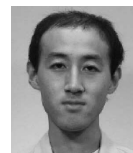
参考文献

- (1) 木村、「超小型 Projector の開発動向と将来展望」、TSR、2008年12月（図1は(1)を基に作成）
- (2) 根津、「緑色LEDの発光効率を高める、GaN結晶の成長面を変えて挑戦」、日経エレクトロニクス、2006年8月14日号、pp.65-70（図2は(2)を基に作成）
- (3) Y. Enya, Y. Yoshizumi, T. Kyono, K. Akita, M. Ueno, M. Adachi, T. Sumitomo, S. Tokuyama, T. Ikegami, K. Katayama and T. Nakamura, "531 nm Green Lasing of InGaN Based Laser Diodes on Semi-Polar {20 $\bar{2}$ 1} Free-Standing GaN Substrates", Appl. Phys. Express 2 (2009) 082101
- (4) Y. Yoshizumi, M. Adachi, Y. Enya, T. Kyono, S. Tokuyama, T. Sumitomo, K. Akita, T. Ikegami, M. Ueno, K. Katayama and T. Nakamura, "Continuous-Wave Operation of 520 nm Green InGaN-Based Laser Diodes on Semi-Polar {20 $\bar{2}$ 1} GaN Substrates", Appl. Phys. Express 2 (2009) 092101
- (5) S. Nagahama, T. Yanamoto, M. Sano and T. Mukai, "Wavelength Dependence of InGaN laser Diode Characteristics", Jpn. J. Appl. Phys. Vol.40 (2001) 3075
- (6) T. Miyoshi, S. Masui, T. Okada, T. Yanamoto, T. Kozaki, S. Nagahama and T. Mukai, "510-515 nm InGaN-Based Green Laser Diodes on c-Plane GaN Substrate", Appl. Phys. Express 2 (2009) 062201
- (7) A. Avramescu, T. Lermer, J. Müller, S. Tautz, D. Queren, S. Lutgen and U. Strau β , "InGaN laser diodes with 50 mW output power emitting at 515 nm", Appl. Phys. Lett. 95 (2009) 071103
- (8) K. Okamoto, J. Kashiwagi, T. Tanaka and M. Kubota, "Nonpolar m-plane InGaN multiple quantum well laser diodes with a lasing wavelength of 499.8 nm", Appl. Phys. Lett. 94 (2009) 071105
- (9) H. Asamizu, M. Saito, K. Fujito, J. S. Speck, S. P. DenBaars and S. Nakamura, "Demonstration of 426 nm InGaN/GaN Laser Diodes Fabricated on Free-Standing Semipolar (11 $\bar{2}$ 2) Gallium Nitride Substrates", Appl. Phys. Express 1 (2008) 091102
- (10) A. M. Fishcer, Z. Wu, K. Sun, Q. Wei, Y. Huang, R. Senda, D. Iida, M. Iwaya, H. Amano and F. A. Ponce, "Misfit Strain Relaxation by Stacking Fault Generation in InGaN Quantum Wells Grown on m-Plane GaN", Appl. Phys. Express 2 (2009) 041002
- (11) 元木、「窒化ガリウム基板の開発」、SEIテクニカルレビュー、175号、pp.10-18 (2009)
- (12) M. Kubota, K. Okamoto, T. Tanaka and H. Ohta, "Continuous-Wave Operation of Blue Laser Diodes Based on Nonpolar m-Plane Gallium Nitride", Appl. Phys. Express 1 (2008) 011102
- (13) D. Queren, A. Avramescu, G. Brüderl, A. Breidenassel, M. Schillgalies, S. Lutgen and U. Strau β , "500 nm electrically driven InGaN based laser diodes", Appl. Phys. Lett. 94 (2009) 081119
- (14) K. Iso, H. Yamada, H. Hirasawa, N. Fellows, M. Saito, K. Fujito, S. P. DenBaars, J. S. Speck and S. Nakamura, "High Brightness Blue InGaN/GaN light Emitting Diode on Nonpolar m-plane Bulk GaN Substrate", Jpn. J. Appl. Phys. vol.46 (2007) L960

- (15) A. Chakraborty, B. A. Haskell, S. Keller, J. S. Speck, S. P. Denbaars, S. Nakamura and U. K. Mishra, "Demonstration of Nonpolar m-Plane InGaN/GaN Light-Emitting Diodes on Free-Standing m-Plane GaN Substrates", Jpn. J. Appl. Phys. vol.44 (2005) L173
- (16) M. Funato, M. Ueda, Y. Kawakami, Y. Narukawa, T. Kosugi, M. Takahashi and T. Mukai, "Blue, Green, and Amber InGaN/GaN Light-Emitting Diodes on Semipolar {11 $\bar{2}$ 2} GaN Bulk Substrates", Jpn. J. Appl. Phys. vol.45 (2006) L659

執筆者

京野 孝史*：半導体技術研究所 光半導体技術研究部
博士（工学）
光デバイス用半導体の結晶成長に関する
研究開発に従事



塩谷 陽平：半導体技術研究所 光半導体技術研究部
秋田 勝史：半導体技術研究所 結晶技術研究部 主査 博士（工学）
上野 昌紀：半導体技術研究所 光半導体技術研究部
グループ長 博士（理学）
足立 真寛：半導体技術研究所 光半導体技術研究部 博士（工学）
住友 隆道：半導体技術研究所 光半導体技術研究部 博士（工学）
徳山 慎司：半導体技術研究所 光半導体技術研究部
池上 隆俊：半導体技術研究所 技師長
片山 浩二：半導体技術研究所 光半導体技術研究部
グループ長 博士（工学）
中村 孝夫：半導体技術研究所 光半導体技術研究部
部長 博士（工学）

*主執筆者