分子線エピタキシー法を用いた フォトニック結晶レーザ作製法の開発と 空孔立体形状の検討



目次

第1章	序論	1
1.1	研究背景	1
1.2	フォトニック結晶レーザ	4
1.3	研究目的	6
1.4	本論文の構成	6
第2章	フォトニック結晶レーザの基礎と従来の作製法および新しい作製法の提案	13
2.1	はじめに	13
2.2	フォトニック結晶レーザの構造および発振原理	13
2.3	フォトニック結晶レーザの従来の作製法	17
2.4	分子線エピタキシー法を用いた作製法の提案	18
2.5	まとめ	19
第3章	分子線エピタキシー法によるフォトニック結晶構造の埋め込み手法の開発	21
3.1	はじめに	21
3.2	分子線エピタキシー法による結晶成長の基礎	21
3.3	成長前表面処理の検討	24
3.3	3.1 酸浸漬による基板表面処理の検討	26
3.3	3.2 サーマルクリーニング条件の検討	28
3.4	成長条件の検討	31
3.4	4.1 空孔埋め込み過程の評価	31
3.4	4.2 分子線の照射方向による埋め込み後の空孔形状の変化	38
3.4	4.3 基板温度による埋め込み後の空孔形状の変化	42
3.5	まとめ	49
第4章	分子線エピタキシー法を用いたフォトニック結晶レーザの作製	53
4.1	はじめに	53
4.2	作製プロセス	53
4.3	特性評価	57
4.3	.1 発振特性	57
4.3.2 集光特性		
4.4	3 次元結合波解析による考察	64

4.5	まとめ		
第5章	原子状水素を用いた表面処理の導入	71	
5.1	はじめに	71	
5.2	原子状水素導入の目的と原子状水素の生成方法	71	
5.3	原子状水素による成長前表面処理の検討	73	
5.4	まとめ		
第6章	空孔の立体形状の検討と新規機能の提案		
6.1	はじめに		
6.2	空孔立体形状の設計による偏光制御可能性		
6.3	円偏光の出射を実現する空孔立体形状の提案		
6.4	まとめ		
第7章	結論		
7.1	本研究の成果		
7.2	今後の展望		
7.2	結び		
謝辞			
研究業績			

第1章 序論

1.1 研究背景

光は、有史以前より人類の生活を照らし続けてきた。また、近代以降の科学の目覚 ましい発展に伴ってその応用範囲を大きく広げ、21世紀現在においては、工業、医療、 情報通信、エネルギー、芸術といった多岐にわたる分野で光技術が使われており、光 技術なしに現代社会は成り立たないと言える。中でも、レーザの発明は数ある光技術 のなかで最も偉大な発明といっても過言ではない。レーザは Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation (輻射の誘導放出による光増幅)の頭文字を組み合わ せ Laser とした造語である。レーザ光は、波長や位相が揃った理想的な状態に近い光 であり、その高い可干渉性(コヒーレンス)により指向性と収束性に優れ、強い光を 遠くまで伝搬させたり、光のエネルギーをきわめて小さいスポットに集めたりするこ とができる。その性質を利用して、測距儀や材料加工、手術用レーザメス等に用いら れ、身近な例としては、インターネットに代表される光ファイバーを用いた情報伝送 や、CD(Compact Disc)、DVD(Digital Versatile Disc)、BD(Blu-ray Disc)などの光デ ィスクの読み取り/書き込みデバイスに用いられている。近年では、生命科学・医学な どの分野で細胞などの生きたままの観察を可能にした共焦点レーザ顕微鏡や、レーザ リソグラフィや2光子マイクロ光造形法などの光微細造形への応用も研究されており、 レーザの応用範囲は広がり続けている。使用されるレーザ光源としては、固体レーザ、 液体レーザ、気体レーザなど様々な種類があるが、本研究で扱う半導体レーザは小型、 軽量、高効率、安価、メンテナンスフリーという特徴を生かして、最も多く用いられ ているレーザであろう。上記の固体レーザや気体レーザなどは、現状では半導体レー ザと比べて出力の点で優れているが、半導体レーザの高出力化は着実に進んでおり、 今後固体レーザや気体レーザは半導体レーザに置き換えられていくと期待されている。

半導体レーザは、1962年に初めて GaAs のホモ接合を用いて低温下で発振に成功し [1-3]、その後 1970年に GaAs/AlGaAs のダブルヘテロ構造において室温発振に至った [4]。しかしながら、当初は単一波長での発振の維持が困難であった。それは、レーザ 共振器としてファブリーペロー共振器(図 1.1 (a))という構造を採用していたためで ある。ファブリーペロー共振器は2枚の鏡を向かい合わせた単純な構造であり、半導体レーザにおいては劈開面を鏡として用いるため作製が簡便である。一方で、ファブリーペローレーザでは発振可能なモードの波長間隔が近いために、レーザ発振に至る利得を得るモードが複数存在してしまうという問題をはらんでいる。このため、モード選択性を高めるために共振器構造に関する研究が進められ、分布帰還型(Distributed Feedback:DFB)や分布ブラッグ反射型(Distributed Bragg Reflector:DBR)

の 共振器構造(図1.1(b),(c))が考案された[5-8]。これらの共振器は屈折率の周期分 布をもった構造を導入することによって、半波長の整数倍の長さと構造の周期が合致 してブラッグ条件を満たして反射する波長のみを選択的に共振させるものである。ま た、垂直共振器面発光レーザ(Vertical Cavity Surface Emitting Laser: VCSEL)と呼ば れる基板に対して垂直方向に DBR などの反射膜を配置した構造も用いられ、面発光 という特性を活かして2次元アレイ化などで成果を挙げている[9-11]。しかしながら、 こういった共振器構造においては縦方向のモード選択性は向上したものの、横モード については屈折率差による光閉じ込めを利用しており、横方向に共振器を大きくする ことは多モード化を引き起こすため、単一デバイスの出力の向上に必要な共振面積の 増大は困難であった。こういった背景のもとで、単一縦横モードでの大面積共振を可 能とする新世代の半導体レーザとして期待されているのが次節で紹介するフォトニッ ク結晶レーザ(図1.2) [12-24]である。

2



図 1.1 半導体レーザの基本的な共振器構造 (a)ファブリーペローレーザ、(b)DFB レーザ、(c)DBR レーザ、(d)VCSEL



図 1.2 フォトニック結晶レーザの模式図

1.2 フォトニック結晶レーザ

フォトニック結晶とは周期的な屈折率分布を持つ構造体であり、固体結晶中の周期 的なポテンシャルによって電子に対してバンド構造が形成されるのと同様に、フォト ニック結晶内では周期的な屈折率分布により光子に対してエネルギー(周波数)と波 数の間に特異な分散関係(フォトニックバンド構造)が形成される[25]。DFB は 1 次 元のフォトニック結晶と言える。フォトニックバンドの傾きが零となる点(バンド端) において、光の群速度は零となり定在波を形成する。フォトニック結晶レーザは、こ のバンド端共振作用をレーザ共振器として利用したものである。このバンド端共振作 用は共振器面積を大きくしてもコヒーレントな発振が可能とされ、大面積化による高 出力半導体レーザの実現が期待されている。また、フォトニック結晶レーザは面発光 特性も有するため、大面積からの面発光による理想的なガウスビームに近い高品質な ビームの発生も同時に実現可能である。フォトニック結晶レーザに関する研究として は、90 年代後半に Meier らによって有機材料をレーザ媒質として 2 次元フォトニック 結晶の共振作用が報告され[12]、Imada らによって半導体を用いたフォトニック結晶レ ーザが実現された[13]。その後、2000年代に入り研究が進むにつれて大面積・高出力 化が進み、近年では単一モード連続発振で 0.5 W の出力と拡がり角が 1°以下かつビ ーム品質を表す M²値が1に近い高品質なビームの出射を同時に達成している[17]。ま た、フォトニック結晶の格子点(空孔)の形状や配列の設計を工夫することによって、 ビームパターン・偏光の制御(図 1.3) [18-20]や、ビーム出射方向の制御(図 1.4) [21] といった新規機能の創出もなされている。

4





図1.3 フォトニック結晶の設計によるビームパターン・偏光の制御 (a)格子点形状や位相シフトによるビームパターン変化、(b)高次ベクトル ビームの生成、(c)径偏光・狭リング形状ビームの生成



図1.4 複合フォトニック結晶によるビーム出射方向制御

さらに、デバイス特性の解析手法も確立されつつあり、DFB レーザで用いられてい た結合波理論を 2 次元フォトニック結晶に展開した解析手法が構築され[22]、近年で は空孔の立体形状も考慮した 3 次元結合波理論の研究もなされている[23, 24]。こうし た解析手法の発達から、フォトニック結晶の空孔の立体形状への理解が深まり、立体 形状の設計によって出射効率が増大することが予見されている[26]。しかしながら、 空孔の立体形状をいかにして制御するかといったデバイス作製面での課題が残されて いた。このため、空孔の立体形状を制御可能な作製手法の確立が望まれている。

1.3 研究目的

以上のような背景を踏まえて、本研究では空孔の立体形状を制御可能な新たな作製 法の開発を目的とする。そこでまず、空孔の立体形状を制御し得ると考えられる手法 を提案し、実際に立体形状を制御可能であるかを確認しつつ新たな作製法を構築する。 その後に、開発した作製法を用いてフォトニック結晶レーザを作製し特性を評価する ことによって、空孔の立体形状がレーザ特性に与える影響を明らかにする。また、空 孔の立体形状に着目し、フォトニック結晶レーザでこれまで実現されていなかった機 能を実現し得る空孔形状を提案する。

1.4 本論文の構成

本論文は序論と結論を含む全7章と謝辞、研究業績一覧から構成される。以下に各 章の概要を記す。

第2章

本章では、まず本研究で扱うフォトニック結晶レーザのデバイス構造と発振原理を 説明する。その後、従来の作製法を述べ、その課題について説明する。さらに、空孔 の立体形状を制御し得る手法として、分子線エピタキシー法(MBE)を用いた作製法 を提案する。

第3章

本章では、第2章で提案した MBE を用いた作製法の核となる、フォトニック結晶 構造上への MBE による結晶成長について検討する。まず、MBE による結晶成長の基 礎について述べる。続いて、結晶成長前の基板表面処理について、フォトニック結晶 構造を損なうことなく表面を清浄にする手法を検討する。さらに、成長前の加熱処理 の適切な温度について検討する。その後、MBE による埋め込み成長過程を詳細に評価 しながら、空孔の埋め込みおよび立体形状を制御可能であることを実証する。さらに、 成長条件を変えながら埋め込み後の空孔立体の変化を評価する。

第4章

本章では、第3章で開発したフォトニック結晶構造上への結晶成長手法を用いてフ オトニック結晶レーザを作製し、その特性を評価することを目的とする。まず。作製 プロセスについて述べる。続いて、作製したデバイスの電流-電圧特性、電流-光出力 特性、スペクトル、遠視野像および集光特性を評価する。ことによって空孔の立体形 状がレーザの特性に与える影響を評価する。さらに、3次元結合波解析での数値計算 を行い、空孔の立体形状とレーザ特性の関係を明らかにし、実験結果を考察する。

第5章

本章では、第3章および第4章の結果をもとに、MBEを用いたフォトニック結晶レ ーザの作製法の最適化を図る。まず、結晶成長の改善手法として原子状水素による基 板表面処理を提案する。続いて、原子状水素処理の有無によるフォトニック結晶構造 上の再成長層への影響を調査する。具体的には、埋め込み後の空孔形状や再成長層の 転位・欠陥を評価する。

第6章

本章では、まず従来の偏光制御手法を説明した後に、フォトニック結晶の面垂直方 向に対して空孔の形状を変化させることによって各方向の電界成分に位相差をつけら れる可能性があることを述べる。続いて、各方向の電界に位相差がある偏光状態であ る円偏光を出射するための空孔立体形状について3次元結合波解析を用いて検討する。 その結果をもとに、円偏光の直接出射を実現可能な空孔形状を提案する

第7章

本章では、本研究で得られた知見をまとめ、今後の展望を述べる。

参考文献

- R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys and R. O. Carlson, "Coherent Light Emission from GaAs Junctions," *Physical Review Letters* 9, 366 (1962).
- 2. M. I. Nathan, W. P. Dumke, G. Burns, F. H. Dill Jr. and G. Lasher, "Stimulated Emission of Radiation from GaAs p-n Junctions," *Applied Physics Letters* **1**, 62 (1962).
- T. M. Quist, R. H. Rediker, R. J. Keyes, W. E. Krag, B. Lax, A. L. McWhorter and H. J. Zeigler, "Semiconductor Maser of GaAs," *Applied Physics Letters* 1, 91 (1962).
- M. B. Panish, I. Hayashi and S. Sumski, "Double-Heterostructure Injection Lasers with Room-Temperature Thresholds as Low as 2300 A/cm²," *Applied Physics Letters* 16, 326 (1970).
- H. Kogelnik and C. V. Shank, "Stimulated Emission in a Periodic Structure," *Applied Physics Letters* 18, 152 (1971).
- K. Aiki, M. Nakamura, J. Umeda, A. Yariv, A. Katzir and H. W. Yen, "GaAs-GaAlAs Distributed-Feedback Diode Lasers with Separate Optical and Carrier Confinement," *Applied Physics Letters* 27, 145 (1975).
- I. P. Kaminow, H. P. Weber and E. A. Chandross, "Poly(Methyl Methacrylate) Dye Laser with Internal Diffraction Grating Resonator," *Applied Physics Letters* 18, 497 (1971).
- F. K. Reinhart, R. A. Logan and C. V. Shank, "GaAs-Al_xGa_{1-x}As Injection Lasers with Distributed Bragg Reflectors," *Applied Physics Letters* 27, 45 (1975).
- H. Soda, K. Iga, C. Kitahara and Y. Suematsu, "GaInAsP/InP Surface Emitting Injection Lasers," *Japanese Journal of Applied Physics* 18, 2329 (1979).
- J. P. van der Ziel, D. G. Deppe, N. Chand, G. J. Zydzik and S. N. G. Chu, "Characteristics of Single- and Two-dimensional Phase Coupled Arrays of Vertical Cavity Surface Emitting GaAs-AlGaAs Lasers," *IEEE Journal of Quantum Electronics* 26, 1873 (1990).

- F. Koyama, "Recent Advances of VCSEL Photonics," *Journal of Lightwave Technology* 24, 4502 (2006).
- M. Meier, A. Mekis, A. Dodabalapur, A. Timko, R. E. Slusher, J. D. Joannopoulos and O. Nalamasu, "Laser Action from Two-Dimensional Distributed Feedback in Photonic Crystals," *Applied Physics Letters* 74, 7 (1999).
- M. Imada, S. Noda, A. Chutinan, T. Tokuda, M. Murata and G. Sasaki, "Coherent Two-Dimensional Lasing Action in Surface-Emitting Laser with Triangular-Lattice Photonic Crystal Structure," *Applied Physics Letters* 75, 316 (1999).
- S. Noda, M. Yokoyama, M. Imada, A. Chutinan and M. Mochizuki, "Polarization Mode Control of Two-Dimensional Photonic Crystal Laser by Unit Cell Structure Design," *Science* 293, 1123 (2001).
- 15. M. Imada, A. Chutinan, S. Noda, and M. Mochizuki, "Multidirectionally distributed feedback photonic crystal lasers," *Physical Review B* **65**, 195306 (2002).
- I. Vurgaftman and J. R. Meyer, "Design Optimization for High-Brightness Surface-Emitting Photonic-Crystal Distributed-Feedback Lasers," *IEEE Journal of Quantum Electronics* 39, 689 (2003).
- K. Hirose, Y. Liang, Y. Kurosaka, A. Watanabe, T. Sugiyama, and S. Noda, "Watt-Class High-Power, High-Beam-Quality Photonic-Crystal Lasers," *Nature Photonics* 8, 406 (2014).
- E. Miyai, K. Sakai, T. Okano, W. Kunishi, D. Ohnishi, and S. Noda, "Lasers Producing Tailored Beams," *Nature* 441, 946 (2006).
- S. Iwahashi, Y. Kurosaka, K. Sakai, K. Kitamura, and S. Noda, "Higher-Order Vector Beams Produced by Photonic-Crystal Lasers," *Optics Express* 19, 11963 (2011).
- K. Kitamura, M. Nishimoto, K. Sakai, and S. Noda, "Focusing Properties of Vector Vortex Beams Emitted by Photonic-Crystal Lasers," *Optics Letters* 37, 2421 (2012)

- Y. Kurosaka, S. Iwahashi, Y. Liang, K. Sakai, E. Miyai, W. Kunishi, D. Ohnishi, and S. Noda, "On-chip beam-steering photonic-crystal lasers," *Nature Photonics* 4, 447 (2010).
- K. Sakai, E. Miyai, and S. Noda, "Coupled-Wave Theory for Square-Lattice Photonic Crystal Lasers With TE Polarization," *IEEE Journal of Quantum Electronics* 46, 788 (2010).
- C. Peng, Y. Liang, K. Sakai, S. Iwahashi, and S. Noda, "Coupled-Wave Analysis for Photonic-Crystal Surface-Emitting Lasers on Air Holes with Arbitrary Sidewalls," *Optics Express* 19, 24672 (2011).
- Y. Liang, C. Peng, K. Sakai, S. Iwahashi, and S. Noda, "Three-Dimensional Coupled-Wave Analysis for Square-Lattice Photonic Crystal Surface Emitting Lasers with Transverse-Electric Polarization: Finite-Size Effects," *Optics Express* 20, 15945 (2012).
- 25. Sajeev John, "Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices," *Physical Review Letters* **58**, 2486 (1987).

第2章 フォトニック結晶レーザの基礎と従来の作製法

2.1 はじめに

本章ではフォトニック結晶の発振原理と従来の作製法について説明し、本研究の主 題である分子線エピタキシー法によるフォトニック結晶レーザの作製法を新たに提案 する。

2.2 節では、フォトニック結晶レーザの発振原理について述べる。2.3 節では、フォトニック結晶レーザの従来の作製法について説明する。2.4 節では、分子線エピタキシー法による作製法を提案し、期待される利点を述べ、2.5 節で本章をまとめる。

2.2 フォトニック結晶レーザの構造および発振原理

本節では、フォトニック結晶レーザの構造および発振原理について概略を述べる。 フォトニック結晶レーザの構造の模式図を図 2.1 に示す。基本的には他の半導体レ ーザと同様に、光利得を得る活性層の上下にクラッド層と呼ばれる活性層よりも屈折 率の低い層が配置されている。クラッド層の役割としては2つあり、①屈折率差によ る光閉じ込めにより光を活性層付近に集中させることと、②エネルギーバンドギャッ プの差により半導体中のキャリア(電子および正孔)を活性層に集中させることであ る。これらの役割によって、光の閉じ込めとキャリアの閉じ込めを同時に実現でき、 効率よくレーザの利得を得ることができる。本研究では、活性層に InGaAs/AlGaAs の 多重量子井戸 (Multiple Quantum Well: MQW)を、クラッド層として AlGaAs を使用 している。

フォトニック結晶レーザが一般的な半導体レーザと異なる点が、活性層の近傍(数 +nm)にフォトニック結晶層(本研究においてはGaAsと空孔で構成される)が配置 されていることである。フォトニック結晶とは、序論でも述べたように周期的な屈折 率分布を持つ構造体であり、光に対して特異な分散関係(フォトニックバンド構造) を形成する。活性層で発光した光の一部はフォトニック結晶層にも分布し、フォトニ ック結晶による回折効果を受ける。このとき、フォトニックバンドにおける分散曲線 の傾きが零となる点(バンド端)において、回折された光が干渉を起こして定在波を 形成する。これがバンド端共振作用である。図 2.2 に真円格子点正方格子フォトニック結晶のバンド図の例を示す。図 2.2 (b)に示すようにバンド端は複数存在するが、本研究においては Γ_2 点(図 2.2 (c))と呼ばれる点を用いている。これ以降、本研究では正方格子フォトニック結晶の Γ_2 点を扱う。



図 2.1 フォトニック結晶レーザ構造の模式図



図 2.2 正方格子フォトニック結晶のバンド図の例 (a)正方格子フォトニック結晶の模式図、(b)バンド図、(c)Γ₂点近傍のバンド図

Γ₂点の逆格子空間上における光波の結合の概念図を図 2.3 に示す。逆格子点の間隔 は正方格子の格子定数 *a* を用いて 2π/*a* で表される。フォトニック結晶のような周期構 造において、原点から逆格子点を結ぶベクトルは逆格子ベクトルと呼ばれ、回折ベク トルが逆格子ベクトルと一致するときに Bragg の法則によって強い回折が起きる。Γ₂ 点における共振状態を形成する基本波は 2π/*a* の長さを持った4つのベクトルで表現で き、このとき図 2.3 (a)のように 4π/*a* の長さをもった回折ベクトルによって 180°方向 の基本波同士が結合する。また、図 2.3 (a)のように高次の波を介して 90°方向の基本 波が結合する。この 2 つの回折効果によって 2 次元の共振状態を形成する。さらに Γ₂ 点においては、図 2.3 (c)のように面内の波数が 0 となる回折効果も存在し、このとき 周波数保存則によって面垂直方向に回折される。この回折効果を利用することによっ て面発光特性を得られる。以上のように、正方格子フォトニック結晶の Γ₂点を利用す ることによって 2 次元の共振作用と面垂直方向への出射を実現可能である。



図 2.3 フォトニック結晶中における光波の結合の概念図 (a)1 次元の結合、(b)高次波を介した 2 次元の結合、(c)放射波への結合

2.3 フォトニック結晶レーザの従来の作製法

本節では、従来のフォトニック結晶レーザの作製法を紹介する。

半導体ベースのフォトニック結晶レーザは最初に InP 系材料においてウエハ融着法 を用いて実現された[1]。ウエハ融着法とは、図 2.4 に示すように 2 枚の基板を用意し て、片方の基板にフォトニック結晶構造を形成した後に基板同士を貼り合わせて加熱 し、フォトニック結晶構造を基板内部に埋め込む手法である。比較的簡便な手法であ り、GaAs 系の材料でもウエハ融着法が用いられてきた[2]。しかしながら、融着界面 における界面準位が発生してしまい、非発光再結合による熱の発生によって出力の飽 和や素子の低寿命化を引き起こしてしまうといった課題があった。



図 2.4 ウエハ融着法の模式図

そういった課題を克服するため、図 2.5 のようにフォトニック結晶構造上に直接半 導体結晶を再成長する手法が検討された。再成長によって下地となる基板の結晶性が 引き継がれるため、界面での不要な準位の発生を抑制できると期待されている。実際 に結晶成長法有機金属気相成長法(MOVPE)を用いてフォトニック結晶を基板内部に 埋め込む手法が開発され、最近では連続発振でW級の出力を達成している[3]。



図 2.5 フォトニック結晶構造上への半導体結晶再成長の模式図 (a)フォトニック結晶構造の形成、(b)クラッド層の成長、(c)コンタクト層の成長

しかしながら、上記の方法ではフォトニック結晶の空孔の立体形状を制御する方法 は未だ確立されていない。序論でも述べたように、空孔の立体形状を制御することは フォトニック結晶レーザの特性の向上に有効な手段であるとともに、新たな自由度を 獲得することによって新たな機能の創出につながる可能性もあり、空孔の立体形状を 制御可能な手法の確立が望まれている。

2.4 分子線エピタキシー法を用いた作製法の提案

本節では、フォトニック結晶の空孔の立体形状を制御できる可能性がある手法とし て、MOVPE と並ぶ代表的な結晶成長法である分子線エピタキシー法(MBE)を用い た手法を提案する。詳細は次章で述べるが、MBE とは超高真空中(1×10⁻⁸ ~ 1×10⁻¹⁰ mbar 程度)で結晶の原料を蒸発ないし昇華させ、ターゲット基板に原子もしくは分子 の状態で照射し、ターゲット基板上に所望の結晶を成長させる真空蒸着の一種である。 原料の原子や分子は超高真空下であることから平均自由行程が長く、互いに衝突せず にターゲット基板まで到達する。これを Molecular Beam(分子線)と呼ぶ。図 2.6 の ように分子線を斜めに入射させた場合を考えると、分子線の影になる部分は原料原子/ 分子が供給されないため、成長が起こらないと考えられる。影になる部分は再成長後 に基板内部に残るため、フォトニック結晶構造を基板内部に埋め込むことができると 期待される。また、分子線の照射方向を変化させることによって分子線の影の分布が 変わり、埋め込み後の空孔の立体形状をある程度制御できる可能性がある。この効果 は気相成長である MOVPE では実現しえないものであり、物理蒸着である MBE を用 いた手法独自の特徴と言える。

次章では、本節で提案した MBE を用いた作製法を実現可能か検証し、空孔の立体 形状の制御可能性についても探っていく。



図 2.6 フォトニック結晶構造上へ分子線を入射したときの断面図

2.5 まとめ

本章ではフォトニック結晶の発振原理と従来の作製法について説明し、本研究の主 題である分子線エピタキシー法によるフォトニック結晶レーザの作製法を新たに提案 した。

2.2 節では、フォトニック結晶レーザの発振原理の概略について述べた。2.3 節では、 フォトニック結晶レーザの従来の作製法について説明し、従来の作製法において空孔 の立体形状の制御がなし得ていないことを述べた。2.4 節では、分子線エピタキシー 法による作製法を提案し、分子線の照射方向を変えることによって成長後の空孔の立 体形状を制御できる可能性があることを述べた。

参考文献

- M. Imada, S. Noda, A. Chutinan, T. Tokuda, M. Murata and G. Sasaki, "Coherent Two-Dimensional Lasing Action in Surface-Emitting Laser with Triangular-Lattice Photonic Crystal Structure," *Applied Physics Letters* 75, 316 (1999).
- D. Ohnishi, K. Sakai, M. Imada, and S. Noda, "Continuous Wave Operation of Surface Emitting Two-Dimensional Photonic Crystal Laser," *Electronics Letters* 39, 612 (2003).
- K. Hirose, Y. Liang, Y. Kurosaka, A. Watanabe, T. Sugiyama, and S. Noda, "Watt-Class High-Power, High-Beam-Quality Photonic-Crystal Lasers," *Nature Photonics* 8, 406 (2014).

第3章 分子線エピタキシー法によるフォトニック結晶構造の 埋め込み手法の開発

3.1 はじめに

2 章ではフォトニック結晶レーザの発振原理と従来の作製法について述べ、分子線 エピタキシー法(MBE)を利用した作製法を提案し、空孔の立体形状を制御できる可 能性があることを述べた。そこで本章では、まず MBE を用いて 2 次元フォトニック 結晶構造を基板内部に埋め込むことが可能であるかを検討し、そのうえで空孔の立体 形状の制御可能性について述べる。

3.2 節では、まず MBE による結晶成長の基礎について述べ、本研究で用いた MBE 装置の構成を説明する。3.3 節では、結晶成長の前段階である基板表面処理について 検討した結果を述べる。3.4 節では、フォトニック結晶構造上に再成長する際の成長 条件について検討した結果を述べる。最後に3.5 節で本章のまとめを述べる。

3.2 分子線エピタキシー法による結晶成長の基礎

分子線エピタキシー法(Molecular Beam Epitaxy: MBE)は、超高真空下で結晶の原 料を蒸発ないし昇華させ、ターゲット基板に原子もしくは分子の状態で照射し、ター ゲット基板上に所望の結晶を成長させる手法である。真空蒸着の一種であり、原料の 原子や分子は超高真空下であることから平均自由行程が長く、互いに衝突せずにター ゲット基板まで到達する。このように原料がビーム状に入射することから、"Molecular Beam" Epitaxy と呼ばれている。ターゲット基板に到達した原料原子や分子は、付着係 数に応じて基板表面に吸着ないしは脱離する。このとき、各原料の供給量を個別に調 節することによって、成長モードや成長速度、組成比などを制御できる。

本研究では、VG Semicon 製固体ソース MBE 装置 V80H(図 3.1)を用いて試料を作製 した。図 3.2 に V80H の模式図を示す。格納室、準備室、成長室の 3 区画から構成さ れている。このうち、格納室はターボ分子ポンプにより排気され、最高到達真空度は 1×10⁻⁸ mbar 程度である。試料の搬入および搬出は格納室を通じて行われる。格納室 のみを大気解放し、試料の出し入れをした後に再度ターボ分子ポンプで排気すること により、準備室および成長室への大気などのガスの流入を最小限にする。準備室はイ オンポンプにより最高到達真空度が1×10⁻¹⁰ mbar 程度に排気されており、準備室で試 料を加熱して脱ガスすることによって成長室の汚染を防ぐ。成長室はイオンポンプと クライオポンプによって排気されており、結晶成長時には内壁を液体窒素で冷却する ことによってガスを吸着する。このときの最高到達真空度は1×10⁻⁹ mbar 程度である。 また、成長室の残留ガスは四重極質量分析計でリアルタイムに計測することができる。



図 3.1 分子線エピタキシーV80Hの外観



図 3.2 V80Hの模式図 (a)真空チャンバーの構成 (b)各原料セルの配置

本研究で使用した原料は、III 族原料として Ga (純度:7N)、Al (純度:6N)を用 いている。これらの原料は株式会社 E&M から購入した。また、V 族原料である As は 純度 7N5 の高純度金属 As を古河電子株式会社から購入した。ドーパントとして純度 5N の Be を使用した。各原料セルの位置関係を図 3.2 の模式図に示す。III 族原料およ び Be は熱分解窒化ホウ素 (Pyrolytic Boron Nitride: PBN)のるつぼに入れて PID 制御 下のヒーターにより加熱される。As はバルブドクラッカーセル[1]を用いており、蒸 発部において 350℃~400℃に加熱され蒸発した As4分子を 900℃に加熱したクラッキ ング部において熱分解することによって As2分子を供給できる。蒸発部およびクラッ キング部のヒーターは III 族原料のるつぼと同様に PID 制御されている。III 族の供給 量は、イオンゲージを基板直前に挿入してビーム等価圧力(Beam Equivalent Pressure : BEP)を計測し、ヒーターの温度によって調節する。As の供給量の調節はバルブの開 閉によって行う。

結晶の成長速度については、反射高速電子線回折(Reflection High Energy Electron Diffraction: RHEED)を用いて測定した。RHEEDとは、電子銃から加速された電子を 基板に対して1°程度の浅い角度で照射し、その回折像から基板の表面状態を調べる 手法である。浅い角度で入射することによって、電子線の基板への侵入長は表面の数 原子層分に限られ、表面の原子の配列を反映した回折像が反射方向に現れる。回折像 の観察には蛍光スクリーンを使用している。RHEED は成長に影響を与えないため、 成長中のその場観察が可能な手法である。結晶が2 次元的に成長している場合、 RHEED の回折像の強度は周期的に振動し、その振動の周期から1分子層を成長する のに要する時間を求めることができる[2,3]。

基板は図 3.3 に示す1 cm 角の基板ホルダによって固定される。

23



図 3.3 基板ホルダの模式図

基板の温度は k-spase 社のリアルタイムウェハ温度モニター(kSA-BandiT)を用い て計測した。半導体のバンドギャップは温度依存性をもつことが知られており、基板 を加熱しているヒーターからの熱輻射光を光源として、透過光スペクトルを計測する ことにより、バンドギャップエネルギーを検出し、基板温度に換算することができる。 基板加熱ヒーターの熱電対によりある程度の基板温度の管理は可能であるが、ヒータ ー温度と基板温度には差異があり、その差は基板ごとに異なる。kSA-BandiTを用いる ことにより、基板の温度を直接計測することが可能となり、より厳密な温度の管理が 可能となる。

3.3 成長前表面処理の検討

MBEによる結晶成長においては、エピタキシャル成長を行うために成長前に完全に 表面酸化膜を除去することが重要である。特に本研究では、フォトニック結晶パター ンを形成する工程を経た後、フォトニック結晶構造上に直接クラッド層を成長してレ ーザ素子として利用するため成長界面の影響を受けやすく、表面処理が極めて重要と なる。一例として、フォトニック結晶構造のない平坦な基板に、表面処理を施さず基 板表面に厚い酸化膜が存在している状態で、典型的な酸化膜除去の手法である As 雰 囲気下での加熱処理(以下ではサーマルクリーニングと表記する)を試みた。図 3.4 に As の照射圧をおよそ 1×10⁻⁵ mbar 程度として GaAs 基板を 600℃で 20 分でサーマル クリーニングを実施した試料と、同様の条件でサーマルクリーニングを実施した基板 上に GaAs を成長させた後の試料の表面を原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscope: AFM)で観察した結果を示す。このときの成長レートは 0.56 ML/s、V-III 比は 15 程度、 成長時間は 20 分間であった。図 3.4 (a)を見ると、基板表面に多数の孔(ピット)が形 成されていることが分かる。このように、基板表面にピットができるのは、下記の化 学式のように Ga の酸化物である Ga₂O₃が GaAs 基板から Ga を奪って Ga₂O に変化し てから蒸発することが原因と報告されている(図 3.5) [4]。

 $Ga_2O_3 + 4GaAs(bulk) \rightarrow 3Ga_2O \uparrow + 2As_2 (or As4) \uparrow$

次に成長後の表面(図 3.4 (b))を見ると、表面に 10 nm 程度の凹凸があり、良好な 成長ができていないことが分かる。このようにピットはエピタキシャル成長を阻害す るため、ピットの発生を抑制する必要がある。この Ga 酸化物の蒸発に伴うピットの 発生を抑制するには、基板を MBE 装置へ搬入する前に表面の酸化膜をできるだけ薄 くしておくことが有効と考えられる。そこで、酸による表面酸化膜の除去を検討した。



図 3.4 サーマルクリーニング後および成長後の基板表面の AFM 像 (a) サーマルクリーニング後、(b) GaAs 成長後



図 3.5 サーマルクリーニング時のピットの発生過程の模式図

3.3.1 酸浸漬による基板表面処理の検討

ここで、フォトニック結晶構造を埋め込むことを考慮すると、GaAs の酸化膜はエ ッチングするが、GaAs そのものはエッチングしないエッチャントを用いる必要があ る。そこで、硫酸によって酸化膜を除去することを考えた。厚さ 625 µm の GaAs の半 絶縁性基板を用いて、30℃の濃硫酸に5分間浸漬した後に純水で5分間リンスした試 料を用意した。この試料に対して、硫酸処理前後の酸化膜の膜厚を分光エリプソメー タで評価したところ、硫酸処理前は 28.4 Åだったのに対して、硫酸処理後は 9.7 Å であり、酸化膜が薄くなっていることが分かった。なお、硫酸処理後でもわずかに酸 化膜が残っているのは、流水洗浄中あるいは大気に暴露した段階で表面が酸化される ためであると考えられる。

次に、硫酸処理後と、処理後にサーマルクリーニングおよび GaAs を成長した後の 表面を AFM で観察した結果を図 3.6 に示す。



図 3.6 硫酸処理後の基板表面の AFM 像 (a) 硫酸処理後、(b) GaAs 成長後

また、表面の平坦性を自乗平均面粗さ(D_{rms})で評価した。ここで、自乗平均面粗 さとは、平均面から測定曲面までの偏差の自乗を平均した値の平方根で、以下の式で 表される。

$$D_{\rm rms} \equiv \sqrt{\frac{\int_{0}^{l_x} \int_{0}^{l_y} f(x, y)^2 dx dy}{l_x l_y}}$$
(3.1)

ここで、 l_x 、 l_y はそれぞれ x、y 方向の測定範囲であり、f(x,y)は平均面からの高さである。

その結果、GaAs 成長後は 0.22 nm と 1 nm 以下であり、図 3.4 と比較して平坦に成 長できていると言え、硫酸処理によって成長前の表面状態が改善されることが分かっ た。

次に、硫酸処理によってフォトニック結晶構造が損なわれないか調べるために、フ オトニック結晶構造を形成した基板に対して同様の処理を施し、断面を走査型電子顕 微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)で観察したところ、図 3.7 のようにフォト ニック結晶構造は損なわれないことが分かった。これらのことから、MBE 搬入前に硫 酸による表面処理を施すことが適当であると言える。



図 3.7 硫酸処理後の断面 SEM 像

3.3.2 サーマルクリーニング条件の検討

前節において、MBE 搬入前の表面処理について検討した。次に、MBE へ搬入した 後に実施するサーマルクリーニングの温度について検討した。サーマルクリーニング の温度については、570℃~600℃程度が必要とされているが[5-7]、フォトニック結晶 構造を形成した基板においては、温度が高すぎると原子拡散(マイグレーション)に よってフォトニック結晶構造が損なわれてしまう可能性がある。そこで、適切なサー マルクリーニング温度を見出すことを目的として、undope の GaAs 基板上に格子定数 295 nm、空気充填率 25%、孔深さ 250 nm の真円正方格子フォトニック結晶構造を電 子線リソグラフィーとドライエッチングによって形成した試料を用意し、有機溶媒に よる洗浄と酸素プラズマ処理により、表面に残留した有機物を除去した。その後、30℃ の濃硫酸に 5 min 間浸漬した後、純水で 5 min 間リンスした。600℃、550℃、500℃、 450℃の各温度でサーマルクリーニングを実施し、断面形状を SEM で観察した。この ときの As の照射圧は全て 1×10⁻⁵ mbar 程度、サーマルクリーニングの時間は 20 分間 とした。

図 3.8 にはサーマルクリーニング前の断面 SEM 像とサーマルクリーニング後の各試料の断面 SEM 像を示す。600℃でサーマルクリーニングを行った試料ではフォトニック結晶構造の形状が損なわれていることが分かる。550℃ではエッジ部分が丸みを帯びるなど若干の形状変化が見受けられるものの、フォトニック結晶構造は保っていた。

500℃以下では断面形状の変化は確認できなかった。次に、各試料のサーマルクリーニ ング後の RHEED パターンを図 3.9、図 3.10 に示す。すべての温度で酸化膜に起因す るハローパターンは見られなかった。600℃および 550℃では、ストリーク状のパター ンが確認できたため、酸化膜の除去ができていると推測される。500℃、450℃ではや やスポット状のパターンであるため、表面に凹凸があると考えられ、酸化膜の除去が 不完全な可能性がある。

以上の結果から、サーマルクリーニングは 550℃以下で行う必要があることがわかった。



図 3.8 サーマルクリーニング後の断面 SEM 像 (a) 600℃、(b) 550℃、(c) 500℃、(d) 450℃



図 3.9 サーマルクリーニング後の RHEED パターン([110]入射) (a) 600°C、(b) 550°C、(c) 500°C、(d) 450°C



図 3.10 サーマルクリーニング後の RHEED パターン([110]入射) (a) 600°C、(b) 550°C、(c) 500°C、(d) 450°C

3.4 成長条件の検討

前節ではサーマルクリーニング温度を検討し、550℃以下でサーマルクリーニング を行う必要があることを見出した。本節では、フォトニック結晶構造上に実際に結晶 を成長し、フォトニック結晶構造が埋め込まれる過程の観察および成長条件の検討を 行う。

3.4.1 空孔埋め込み過程の評価

フォトニック結晶上への埋め込み成長において、どのようにフォトニック結晶の空 孔が埋め込まれていくのかを知ることは埋め込み成長によるデバイス作製の可能性を 探る上で非常に重要である。そこで、成長膜厚を少しずつ変化させた試料を作製、評 価し、その特徴について調べた。

まず、図 3.11 のように RHEED で[110]方向の回折パターンが観察される方向(各分 子線が概ね[110]方向に照射される条件)に基板を固定し、フォトニック結晶構造上に クラッド層となる AlGaAs をそれぞれ 30 nm、70 nm、110 nm、200 nm の厚さまで成長 した試料を作製した。AlGaAs の成長の条件は、Al 組成が 0.4 程度、成長レートが 0.6 ML/s、成長時の基板温度 530℃、V-III 比は 20 程度である。また、サーマルクリーニ ングは前節の検討結果から 550℃で 20 分間実施した。



AlGaAsの成長膜厚 30 nm、70 nm、110 nm、空孔充填率 25%の試料を [110]、[110] 方向にそれぞれ劈開した断面の SEM 像を図 3.12 に示す。同図より、空孔内部の形状 変化に関して、[110]方向に劈開した断面においては空孔内の両側面から成長しており、 試料表面には傾斜約 25°の {113}面と思われる面が確認できる(図 3.13 (a))。[110]方向 に劈開した断面においては、成長膜厚が大きくなるにつれて分子線の下流側の側面(空 孔の右側面)が盛り上がるように成長しており、空孔の左右両側に傾斜約 55°の {111} 面と思われる面と、分子線の上流側の側面(空孔の左側)のみではあるが、傾斜約 25° の(113)面と思われる面が現れていることがわかる(図 3.13 (b))。フォトニック結晶構 造よりもスケールとして一桁程度大きいパターンではあるが、数 µm 程度の大きさの パターン基板上に成長を行った結果、{111}面や{113}面が出現したという報告[8,9]も あり、GaAsにはこれらのファセット面を形成しやすい特徴があると考えられる。


図 3.12 成長膜厚ごとの空孔断面 SEM 像 AlGaAs 膜厚: (a) 30 nm、(b) 70 nm、(c) 110 nm



図 3.13 推定されるファセット面 (a) [110]方向の断面、(b) [110]方向の断面

また、基板の上面から SEM で観察した結果を図 3.14 に示す。図 3.11 の結果と併せ て見ると、空孔上部の空隙の面積は成長膜厚が増えるに伴って小さくなっていき、空 孔が基板内部に埋め込まれていく様子がわかる。図 3.15 には AlGaAs の成長膜厚を 30 nm~110 nm まで 20 nm きざみでそれぞれ成長させた試料の上面 SEM 像から見積もっ た単位面積あたりの空孔開口部の面積比率の変遷を示す。次第に開口部面積は小さく なり、膜厚を更に増やすと完全に埋め込むことが可能であると予想される。



(b)



(c)



図 3.14 成長膜厚ごとの上面 SEM 像 AlGaAs 膜厚: (a) 30 nm、(b) 70 nm、(c) 110 nm



図 3.15 成長膜厚ごとの単位面積あたりの空孔開口部面積の比率

次に、成長膜厚 30 nm、70 nm、110 nm の空孔充填率 25%の試料について試料表面 の形状を AFM で観察した結果を図 3.16 に示す。この図を見ると、成長に伴う表面形 状の変化について、まず空孔の間の平坦な部分に山のような形状ができた後にそれら が [110]方向に繋がり畝状の形状となることが分かる。[110]方向に畝状の表面形状と なるのは、[110] 方向と[110]方向とで成長速度に異方性があるためであると考えられ る。K. Ohta らや M. Hata らの報告によると、GaAs(001)-(2×4)の再構成表面において、 <110>方向の拡散長が<110> 方向の拡散長の 4 倍程度大きい、つまり<110> 方向の成 長速度のほうが速いとされており[10, 11]、この畝状の表面形状はそれを反映したもの であると考えられる。









図 3.16 成長膜厚ごとの AFM 像 AlGaAs 膜厚: (a) 30 nm、(b) 70 nm、(c) 110 nm

3.4.2 分子線の照射方向による埋め込み後の空孔形状の変化

次に、分子線の方向を変えた時に2章で述べたように空孔形状が変わるのかを確か めるために、次の3種類の試料を用意した。

試料①:図3.17(a)のようにRHEEDで[110]方向の回折パターンが観察される方向(各 分子線が概ね[1ī0]方向に照射される条件)に基板を固定してAlGaAsを200 nm 成長させた試料

試料②:図 3.17 (b)のように RHEED で[110]方向の回折パターンが観察される方向

(各分子線が概ね[110]方向に照射される条件)に基板を固定して AlGaAs

を 200 nm 成長させた試料

試料③: 基板を回転(10 rpm) させながら AlGaAs を 200 nm 成長させた試料 このときのフォトニック結晶の空気充填率は 25%、深さは 250 nm であり、成長条件 は、Al 組成が 0.4 程度、成長レートが 0.6 ML/s、成長時の基板温度 530℃、V-III 比は 20 程度であった。



各試料を[110]方向および[110]方向に劈開した断面の SEM 像を図 3.18 に示す。すべ ての試料で空孔が完全に基板内部に埋め込まれていることがわかる。ここで、図 3.18 (b)に示す試料②の埋め込み後の空孔の大きさが、図 3.18 (a)に示す試料①の場合と比 べて小さくなっているのは、試料②では成長速度が速い<110>方向に概ね沿うように 分子線を照射しているために、図 3.17 (a)の配置の場合と比べて空孔内部へと拡散される III 族原子が多く,結果として空気孔内での成長速度が早くなったためであると考えられる。図 3.18 (c)に示す試料③の断面において、空気孔の大きさは試料①と試料②の中間的なサイズとなっていることがわかる。

次に、空孔の形状に着目すると、試料①では[110]方向に劈開した断面で左右非対称 な形状となっているのに対して、試料②では[110]方向に劈開した断面で左右非対称な 形状となっている。これらは図 3.17 に示す分子線の照射方向に沿って非対称な形状に なっており、2 章で述べたように分子線の当たる部分では成長が進み、分子線の影と なる部分では成長が起こらない状況を作り出すことによって空孔形状を制御可能であ ることを示すものである。基板を回転させた試料③では空孔形状がどちらの断面にお いても左右対称となっていることからも、埋め込み成長後の空孔は分子線の照射方向 を反映した形状となると言える。



図 3.18 分子線の照射方向を変えた試料における断面 SEM 像 (a)試料①、(b)試料②、(c)試料③

続いて、このような空気孔を埋め込んだ構造をフォトニック結晶レーザに応用する ことを視野に、表面の平坦性について議論する。先述した、試料①~③の表面の自乗 平均面粗さ(RMS)を評価した結果、試料①では 24.9 nm、試料②では 22.9 nm、そして 試料③では, 15.7 nm という結果が得られた。この結果は、基板を回転させることに よって分子線をより均一に照射することができ、よりよい平坦性が得られる可能性を 示唆している。したがって、所望の形状の空気孔を埋め込みつつ、かつ平坦な表面を 得るためには、空孔が完全に埋まった後に回転させながら成長を行うことが有効であ ると考えられる。そこで、最も大きな空気孔を埋め込むことができた条件(図 3.17 (a) のように各分子線が概ね[110]方向に照射される条件)において AlGaAs を 200 nm 成 長させて空気孔を残した成長を行った後、基板を回転(10 rpm)させながらさらに 300 nmのAlGaAs層を成長させた試料(AlGaAs 膜厚合計 500 nm)、および 800 nmのAlGaAs 層を成長成長させた試料(AlGaAs 膜厚合計 1 μm)を作製し、AFM により表面形状を 評価した。AFM 像および各像における RMS 値を図 3.19 に示す。AlGaAs を合計 500 nm 成長させたものでは、[110]方向に沿った筋状の表面がやや残っており RMS 値は 2 nm 程度となった。さらに成長を進め、AlGaAs を合計 1 μm 成長させたものについては、 筋状の表面形状は見られず RMS 値も1nm 以下と平坦性の良好な表面を得ることがで きることが明らかになった。実際にレーザを作製する際にはクラッド層となる AlGaAs を1µm程度成長したのちにコンタクト層のGaAs層を成長することを想定しているの で、この成長条件でレーザ素子として平坦性が良好な表面を得られると考えられる。



図 3.19 空孔埋め込み後(成長膜厚 200 nm)に基板を回転させながら AlGaAs を さらに成長した試料の AFM 像 (a)AlGaAs 膜厚合計 500 nm、(b)AlGaAs 膜厚合計 1 μm

3.4.3 基板温度による埋め込み後の空孔形状の変化

前章では成長時の基板温度は 530℃であったが、空孔形状制御の可能性を探る上で サーマルクリーニングや成長時の基板温度を変化させた際に埋め込み成長後の形状が どのように変化するのかについて調べることは重要である。そこで、下に示すように 3 種類の基板温度を変えた試料を作製し、基板温度の変化が埋め込み成長後の形状に 与える影響について調べた。

試料 A: サーマルクリーニング温度 550℃、成長温度 530℃

試料 B: サーマルクリーニング温度 550℃、成長温度 480℃

試料 C: サーマルクリーニング温度 500℃、成長温度 480℃

上記の各試料について、 [110]方向の回折パターンが観察される方向(図 3.17 (a)の条件)に基板を固定し、AlGaAsを 200 nm 成長させた後、10 rpm で回転させて 300 nm 成長させた(AlGaAs合計膜厚 500 nm)。なお、Al組成は 0.4程度、成長レートは 0.6 ML/s、
V-III 比は 20 程度とした。

図 3.20 に各試料を[110]方向および[110]方向にそれぞれ劈開したときの断面の SEM 像を示す。どの試料においても分子線の照射方向を反映して、空孔が[110]方向に非対 称な形状に埋め込まれている。各試料の空孔の大きさを比べると、成長温度とサーマ ルクリーニング温度を下げることにより、空孔の体積が大きくなることがわかった。 これは、成長温度を下げることによってマイグレーションが抑制され、空孔内部に入 り込む原料原子が少なくなるためであると考えられる。また、サーマルクリーニング 温度を下げることによって図 3.8 に示すようにサーマルクリーニング時の形状変化が 起きにくく、特にエッジ部分が丸くならないためにエッジ部分で表面エネルギーが大 きくなり、原子がトラップされやすくなり、成長中に空孔内部に入り込む原料原子が 少なくなる可能性もある。



図 3.20 基板温度が異なる試料の断面 SEM 像 (a) 試料 A、(b) 試料 B、(c)試料 C

次に、試料表面を AFM によって観察した結果を図 3.21 に示す。成長温度 530℃の 試料 A は図 3.16 と同様に[110]方向に伸びる畝状の形状ができているのに対して、成 長温度が 480℃の試料 B と C では[110]方向に伸びる畝状の形状ができており、成長の 進みやすい方向が 90°変化している様子が分かる。



成長温度を 530℃から 480℃まで下げた際に、成長後の表面形状の傾向が大きく変 化することに関して、GaAs の(001)面上において 530℃では(2×4)γの表面再構成が、 480℃では c(4×4)表面再構成が RHEED により観察されている(観察された RHEED 像 を図 3.22 に、表面再構成に対応する RHEED パターンを図 3.23 に[12]、それぞれの表 面再構成の模式図を図 3.24 に示す[12,13])。図 3.22 のように、530℃のときでは、[110]方 向のパターンに 2 倍周期のパターンが、[110]方向では 4 倍周期のパターンが見られる が、2/4 の輝線が見られないので(2×4)γであり、480℃のときは、[110]方向、[110]方向 ともに 2 倍周期のパターンが見られるので、c(4×4)であることが分かる。この表面再 構成の変化が表面形状に影響を与えていると考えられる。

45





図 3.23 [110]方向の RHEED パターンと(2×4)表面再構成の関係 (参考文献 12 より引用)



図 3.24 GaAs の表面再構成の模式図 (a) (2×4)γ (b) c(4×4)

続いて、サーマルクリーニング温度を 500℃、成長温度を 480℃としたときの分子 線照射方向による空孔形状の変化を調べるために、次の 3 種類の試料を用意した。 試料 I:図 3.17 (a)のように RHEED で[110]方向の回折パターンが観察される方向(各 分子線が概ね[1ī0]方向に照射される条件) に基板を固定して AlGaAs を膜 厚 200 nm まで成長させた後、回転(10 rpm)させて 300 nm 成長させた試料 試料 II:図 3.17 (b)のように RHEED で[1ī0]方向の回折パターンが観察される方向 (各分子線が概ね[īī0]方向に照射される条件) に基板を固定して AlGaAs

を膜厚 200 nm まで成長させた後、回転(10 rpm)させて 300 nm 成長させた 試料

試料Ⅲ: 基板を回転(10 rpm) させながら AlGaAs を 500 nm 成長させた試料 それぞれの試料の断面 SEM 像を図 3.25 に示す。

サーマルクリーニング温度 550℃、成長温度 530℃の場合(図 3.18) とは異なり、 分子線の照射方向によって埋め込み後の空気孔の体積が大きく異なることはなかった。 これは、成長温度が低くなったことによるマイグレーションの抑制と、表面再構成が (2×4)γから c(4×4)へと変化したことに起因すると考えられる。c(4×4) では拡散長の異 方性はあまり大きくなく比較的等方的に近いとする報告があり[14]、これは分子線の 照射方向によって埋め込み後の空気孔の体積が変わらないという実験結果とも一致し ている。



図 3.25 分子線照射方向が異なる試料の断面 SEM 像 (a) 試料 I、(b) 試料Ⅱ、(c)試料Ⅲ

3.5 まとめ

本章では、MBEを用いて2次元フォトニック結晶構造を基板内部に埋め込むことが 可能であるか検証し、空孔の立体形状の制御可能性についても検討した。

3.2 節では、まず MBE による結晶成長の基礎について述べた。3.3 節では、結晶成 長前の基板表面処理について検討し、硫酸に浸漬することによってフォトニック結晶 構造を損なうことなく基板表面の酸化膜を除去でき、良好な成長が可能となることを 示した。3.4 節では、まず成長前のサーマルクリーニング温度について検討し、600℃ ではマイグレーションによってフォトニック結晶構造が損なわれてしまうために、 550℃以下でサーマルクリーニングを実施する必要があることを見出した。続いて、 MBE による埋め込み成長過程を詳細に評価しながら、分子線の照射方向に沿って成長 が進む様子を示した。また、分子線の照射方向によって空孔形状が変化することを実 証した。さらに、サーマルクリーニング温度や成長温度についても調査し、低温での 成長によってさらに大きく空孔を埋め込むことが可能であることを示した。

参考文献

- N. Chand, T. Harris, S. Chu, E. Fitzgerald, J. Lopata, M. Schnoes and N. Dutta, "Performance of a valved arsenic cracker source for MBE growth," *Journal of crystal* growth 126, 530 (1993).
- J. H. Neave, B. A. Joyce, P. J. Dobson and N. Norton, "Dynamics of film growth of GaAs by MBE from Rheed observations," *Applied Physics A* 31, 1 (1983).
- J. Van Hove, C. Lent, P. R. Pukite and P. I. Cohen, "Damped oscillations in reflection high energy electron diffraction during GaAs MBE," *Journal of Vacuum Science & Technology B* 1, 741 (1983).
- 4. M. Yamada and Y. Ide, "Anomalous behaviors observed in the isothermal desorption of GaAs surface oxides," *Surface Science* **339**, L914 (1995).
- J. P. Contour, J. Massies, A. Salètes and P. Staib, "X-Ray Photoelectron Spectroscopy Study of GaAs (001) Surface Thermocleaning Prior to Molecular Beam Epitaxy" *Applied Physics A* 4, 984 (1985)
- S. Ingrey, W. M. Lau and N. S. McIntyre, "An x-ray photoelectron spectroscopy study on ozone treated GaAs surfaces," *Journal of Vacuum Science and Technology A* 4, 984 (1986).
- A. J. SpringThorpe, S. J. Ingrey, B. Emmerstorfer, P. Mandeville and W. T. Moore, "Measurement of GaAs surface oxide desorption temperatures," *Applied Physics Letters* 50, 77 (1987).
- 8. M. Walther, T. Röhr, G. Böhm, G. Tränkle, and G. Weimann, "Facetted MBE growth of (GaAl)As on RIE patterned surface," *Journal of Crystal Growth* **127**, 1045 (1993).
- 9. W. Limmer, K. Bitzer, and R. Sauer, "MBE growth of AlGaAs on patterned GaAs substrates," *Physica E* 21, 573 (2004).
- K. Ohta, T. Kojima and T. Nakagawa, "Anisotropic surface migration of Ga atoms on GaAs (001)," *Journal of Crystal Growth* 95, 71(1989).

- M. Hata, T. Isu, A. Watanabe and Y. Katayama, "Distributions of growth rates on patterned surfaces measured by scanning microprobe reflection high - energy electron diffraction," *Journal of Vacuum Science & Technology B* 8, 692 (1990).
- T. Hashizume, Q. K. Xue, A. Ichimiya and T. Sakurai, "Determination of the surface structures of the GaAs(001)-(2×4) As-rich phase," *Physical Review B* 51, 4200 (1995).
- H. H. Farrell and C. J. Palmstrφm, "Reflection high energy electron diffraction characteristic absences in GaAs(100) (2×4)–As: A tool for determining the surface stoichiometry," *Journal of Vacuum Science & Technology B* 8, 903 (1990).
- J. G. LePage, M. Alouani, Donald L. Dorsey, J. W. Wilkins and P. E. Blochl, "Ab initio calculation of binding and diffusion of a Ga adatom on the GaAs (001)-c(4×4) surface," *Physical Review B* 58, 1499 (1998).

52

第4章 分子線エピタキシー法を用いたフォトニック結晶レーザ の作製

4.1 はじめに

3 章では、フォトニック結晶構造上に MBE で直接結晶成長させることによってフォ トニック結晶構造を基板内部に埋め込むことに成功し、分子線の照射方向や基板温度 によって埋め込まれる空孔の立体形状を制御可能であることも見出した。本章では、 MBE 空孔埋め込み法を用いてフォトニック結晶レーザを作製し、その特性を評価する。 また、3 次元結合波解析[1-3]による数値計算の結果から実験で得られた結果を考察す る。

4.2 節では作製プロセスについて述べる。4.3 節では MBE 空孔埋め込み法を用いて 作製したデバイスの特性を評価する。4.4 節では実験結果について 3 次元結合波解析 を用いて考察し、最後に 4.5 節で本章のまとめを述べる。

4.2 作製プロセス

埋め込み成長過程の模式図を図 4.1 に示す。まず、n-GaAs、n-AlGaAs、undope の InGaAs/GaAs 3 層量子井戸、p-GaAs からなる基板の再表面 p-GaAs 層(厚さ 270 nm) に格子定数 285 nm、空気充填率 25%、孔深さ 250 nm の真円正方格子フォトニック結 晶を電子線リソグラフィーとドライエッチングにより形成した(図 4.1 (a))。次に成長 の前処理として、有機溶媒による洗浄と酸素プラズマ処理により、表面に残留した有 機物を除去した。その後、3.3.1 節の検討結果から、表面の酸化膜を除去するために濃 硫酸に 5 min 間浸漬した後、純水で 5 min 間リンスした。表面処理後、MBE 内に搬送 し、3.3.2 節の結果の通り As 雰囲気下(As の照射圧:およそ 1×10-5 mbar)で 550℃ に加熱し、サーマルクリーニングにより表面酸化膜を除去した。続く、p-AlGaAs クラ ッド層の成長は、以下の二段階で行った。まず、図 4.2 に示すように、RHEED で[110]方 向の回折パターンが観察される方向(各分子線が概ね[110]方向に照射される条件)に 基板を固定して AlGaAs を 200 nm(フォトニック結晶が完全に埋め込まれる膜厚)成 長した。これは、空孔を非対称な形状に埋め込むためである。続いて、基板を回転し ながら AlGaAs をさらに 800 nm 成長した(AlGaAs 層の合計 1 μ m)。これは、基板の表 面を平坦にするためである。最後に、GaAs 層を 100 nm 成長した。このときの AlGaAs の成長条件は、基板温度 480℃、V-III 比は 20、AlGaAs の成長速度は 0.65 ML/s、Al 組成は 0.4 とした。また、GaAs の成長条件は、基板温度 480℃、V-III 比は 33、成長 速度は 0.39 ML/s である。ドーパントは Be を用い、ドーピング密度は、5×10¹⁸ cm⁻³ 程度とした。成長後の断面 SEM 像を図 4.3 に示す。図 4.2 のように分子線の照射方向 を固定することによって、[110]方向に非対称な形状に埋め込まれる。これは、3.4.2 節で述べたように、分子線の照射方向を反映した結果である。



図 4.1 埋め込み成長過程の模式図 (a)フォトニック結晶構造の形成、(b)クラッド層の成長、(c)コンタクト層の成長



図 4.3 成長後の断面 SEM 像 (a) [110]方向、(b)[110]方向 MBE から取り出した後、図 4.4 のように研磨、絶縁膜の堆積、p 側および n 側両面 への電極の蒸着を行うことにより、フォトニック結晶レーザは完成となる。ここで、p 側の電極は直径 50 µm の円形電極、n 側電極は出力光を遮らないように図 4.5 のよう な窓状の電極(1辺 600 µm、幅 50 µm)を採用している。



図 4.4 成長後のデバイス作製手順



図 4.5 n 側窓電極の形状

4.3 特性評価

4.3.1 発振特性

まず、電流-電圧特性を評価したところ、フォトニック結晶の有無にかかわらず、図 4.6 のように立ち上がり電圧は2V以上と、融着法で作製したもの(1V程度)よりも高 い値であった。また、フォトニック結晶領域では、さらに特性が悪くなっており、エ ッチングによるダメージや、フォトニック結晶構造があることによる転位の発生等が 疑われる。



次に、繰り返し周波数1kHz、パルス幅 500 ns の条件で電流-光出力特性を測定した ところ、図 4.7 のように発振閾値は 15 mA (電流密度: 764 A/cm²)程度、スロープ効 率は 0.47 W/A であった。100 mA を超えた付近から出力の飽和が見られるが、この原 因としては、多モード発振や、熱の発生などが考えられる。



図 4.7 電流-光出力特性

また、25 mA におけるスペクトルを測定したところ、図 4.8 のように発振閾値付近で はサイドモード抑圧比(side-mode suppression ratio: SMSR)が 50 dB 程度であり、単 一波長で発振していることがわかった。また、スペクトルの半値全幅はおよそ 0.15 nm であった。



図 4.8 発振スペクトル

続いて、25 mA における遠視野像の観察結果を図 4.9、ビーム断面の強度を図 4.10 に示す。融着法で作製したフォトニック結晶レーザでは、真円正方格子フォトニック 結晶を用いると、出射効率は 0.2 W/A 程度であり[4]、ドーナツ状の強度分布を持つビ ームが出射される[5]ことが知られているが、この試料では埋め込み前の空気孔形状が 円形なのにもかかわらず、出射効率は 0.47 W/A と 2 倍以上の値であり、ビーム形状は ドーナツ状ではなく拡がり角 1.3°の単峰の強度分布をもつビームが得られているこ とがわかる。また、偏光子を用いて観察した結果、偏光の向きが主に[110]方向に向い ていることが分かった。このビーム形状や偏光についての考察は 4.4 節で述べる。



4.3.2 集光特性

続いて、出射されたビームの集光特性を明らかにするためにM²を測定した。M²は、 レーザ光が理想的なガウシアンビームにどれだけ近いかを示す指標であり[6]、ビーム 伝搬比とも呼ばれる。放射対称のレーザ光の伝搬特性は次の3つのビームパラメータ で記述される。

1. ビームウエスト位置: Z₀

- 2. ビームウエスト直径: W₀
- 3. 遠視野拡がり角: *Θ*

これら3つの値を用いて光路上の任意の点でのビーム幅W(z)は下記方程式で表される。

$$W(z) = W_0 + (z - Z_0) \cdot \Theta^2$$
(4.1)

また、M²は次式で求められる。

$$M^2 = \frac{n\pi}{4\lambda_0} W_0 \Theta \tag{4.2}$$

ここで、 λ_0 は真空中でのレーザ波長、n は媒質の屈折率である(ここではn = 1を仮定する)。理想的なガウシアンビームであれば M^2 は1となる。このことから、最小ビーム径は

$$d_0 = \frac{4\lambda}{\pi\Theta} \tag{4.3}$$

と表せる。実際のレーザにおいては、ビーム径は $d = M^2 d_0$ となり、 M^2 の値が大きくなるほど集光性が低下する。

M²測定の概念図を図 4.11 に示す。図内の添え字の1はレンズ透過前、2はレンズ透 過後を表す。レーザから焦点距離程度の位置に設置した平凸レンズによって、出射ビ ームを平行光にした後に平凸レンズで平行光を集光し、測定位置を変えながら集光点 近傍から遠視野までのビーム幅W(z)を測定する。実際の測定には Spiricon 社の M²-200s を用いた。測定系は図 4.12 のようになっており、一対のミラーを移動させて CCD カ メラまでの光路長を変化させることによって、装置側のレンズの焦点距離付近にでき るビームウエストを測定する。そして、測定結果を非線形最小二乗法によりビーム伝搬方程式(式(4.1))にフィッティングして、 W_{02} 、 Z_{02} 、 θ_2 の値を求め、 M^2 の値を算出する。



W₀:')エスト幅 Z₀:ウエスト位置 Θ:広がり角

図 4.11 M²測定の概念図



図 4.12 M²測定系の模式図

図 4.13 に集光点近傍のビームウエストの測定結果を示す。ここで、デバイスの方向 を x 方向が [110]方向、y 方向が[110]方向となるように合わせた。このときのM²の値 は x 方向で 1.509、y 方向で 1.264 となった。ここで、偏光子を入れてビームの強度分 布を見ると図 4.14 のようになった。ここで、y 偏光の強度分布測定時には OD1.0 の ND フィルタを用いていることに注意する。y 方向の偏光子を入れた場合の強度分布は 単峰になっているのに対して、x 方向の偏光子を入れた場合の強度はピークを 2 つも つ強度分布になっていることがわかる。図 4.9 の近視野像の結果と併せて考えると、 この 2 つのピークにおいて、x 偏光成分は図 4.15 のように光軸に対して逆向きの電界 成分をそれぞれもっているために光軸上では打ち消しあいの干渉を起こし、集光され てもピークを 2 つもつ強度分布になると考えられる。



図 4.13 集光点近傍のビームウエスト







図 4.14 ビームの強度分布 (a) 偏光子なし、(b) x 偏光、(c) y 偏光



図 4.15 得られたビームのx 偏光の成分の強度分布と電界の向き
 (a)ビーム断面における電界の向き、(b)集光の様子

ここで、x 偏光成分はy 方向に拡がりをもつため、y 偏光の偏光子を入れてx 偏光成 分を取り除くことによって M^2 が改善すると考えられる。そこで、y 偏光の偏光子を通 したときの M^2 を測定したところ、ビームウエストは図 4.16 のようになり、 M^2 はx 方 向で 1.469、y 方向で 1.103 となり、y 方向の M^2 が特に改善することを確認した。



図 4.16 y 方向の偏光子を挿入したときの集光点近傍のビームウエスト

4.4 3次元結合波解析による考察

前節では MBE 空孔埋め込み法により作製したフォトニック結晶レーザの特性を評価した結果を述べた。本節では、3次元結合波解析[1-3]を用いて数値計算を行い、実験結果と照らし合わせて考察する。

3 章の結果から、MBE 空孔埋め込み法により埋め込まれた後の空孔は分子線の照射 方向に傾いた紡錘形になっている。これを、図 4.17 のように円錐としてモデル化し、 円錐の傾きが変化したときのレーザの特性を 3 次元結合波解析によって計算する。格 子定数は 295 nm、円錐の半径は 74.4 nm、円錐の高さは 250 nm、共振器長は 50 μm、 傾きの方向はフォトニック結晶の Γ-X 方向とした。出射効率は、全エネルギーに対す る面上方に放射されるエネルギーの割合である。図 4.18 に円錐の頂点のシフト量 *s* を 変化したときの出射されるビームの出射効率、強度分布および偏光の計算結果を示す。 *s* が大きくなるにつれて出射効率が上がり、ビーム形状はドーナツ状から単峰に変化 し、偏光は直線偏光に近くなっていくことがわかる。



図 4.17 埋め込み後の空孔形状のモデル化



図 4.18 円錐の傾きと出射されるビームの出射効率、強度分布、偏光

これは、円錐に傾きがない場合では図 4.19 (a)のようにユニットセルにおける誘電率 分布が電界の分布に対して対称であるため、全方向の電界成分が均等に回折されビー ムの中心では打ち消しあいの干渉を起こしてドーナツ形状のビームになるのに対して、 円錐に傾きがある場合では図 4.19 (b)のようにユニットセルにおける誘電率分布が電 界の分布に対して非対称となり、傾きと直交する方向の電界成分では回折される強度 に差があり打ち消しあいの干渉は起こさず、単峰かつ直線偏光のビームに近づくと考 えられる。

ここで、前節の実験結果に最も近いと考えられる*s* = r の場合、出射効率は 0.44 と 傾きがない場合(0.18)の約 2.4 倍であり、遠視野像は図 4.20 のようになる。これら の結果は、4.3 節の実験結果(図 4.7、4.9)とよく一致する。

以上の考察から、埋め込み前のフォトニック結晶が真円正方格子であるにも関わら ず、ドーナツ状のビームではなく、単峰の直線偏光に近いビームが出射され、スロー プ効率も融着のものよりも大きかったのは、MBE での成長時に非対称な形状に埋め込 まれたからであり、MBE 空孔埋め込み法の特徴である空孔の立体形状の制御によりレ ーザの特性が変化することを示す結果となった。

66



図 4.19 円錐の傾きの有無による回折される電界の違い (a)傾きなし、(b)傾きあり



4.5 まとめ

本章では、MBE 空孔埋め込み法を用いてフォトニック結晶レーザを作製し、その特性を評価した。また、3次元結合波解析による数値計算の結果から実験で得られた結果を考察した。

4.2節では、まず作製プロセスについて述べた。4.3節では作製したデバイスの電流 -電圧特性、電流-光出力特性およびスペクトルを測定し、単一モードでの発振を確認 した。遠視野像の観察により、出射ビームが単峰の強度分布をもち、直線偏光に近い ビームであることを示した。さらに、集光特性も評価し、M²が 1.2~1.5 程度と比較的 良好な集光性を示すことを確認し、偏光子を用いることによってM²が改善することも 分かった。4.4節では 3次元結合波解析での数値計算を行い、空孔の立体形状とレー ザ特性の関係を明らかにし、実験結果と照らし合わせた結果、MBE 空孔埋め込み法に よって空孔の立体形状を制御したことによって、真円正方格子フォトニック結晶を用 いた場合でも融着法と比較して 2 倍以上高いスロープ効率と単峰かつ直線偏光に近い ビームの出射を実現したことを示した。
参考文献

- C. Peng, Y. Liang, K. Sakai, S. Iwahashi and S. Noda, "Coupled-wave analysis for photonic-crystal surface-emitting lasers on air holes with arbitrary sidewalls," *Optics Express* 19 24672 (2011).
- Y. Liang, C. Peng, K. Sakai, S. Iwahashi and S. Noda, "Three-dimensional coupled-wave analysis for square-lattice photonic crystal surface emitting lasers with transverse-electric polarization: A general approach," *Physical Review B* 84 195119 (2011).
- Y. Liang, C. Peng, K. Sakai, S. Iwahashi and S. Noda, "Three-dimensional coupled-wave analysis for square-lattice photonic crystal surface emitting lasers with transverse-electric polarization: finite-size effects," *Optics Express* 20 15945 (2012).
- E. Miyai, K. Sakai, T. Okano, W. Kunishi, D. Ohnishi and S. Noda, "Lasers producing tailored beams," *Nature* 441 946 (2006).
- 5. 柏木淳一,國師渡,大西大,宮井英次,酒井恭輔,黒坂剛孝,大塚晃嗣,野田進,「2 次元フォトニック結晶面発光レーザの単一横モード高出力動作」 2007 年秋季第 68 回応用物理学会学術講演会 7p-R-7 (2007).
- T. Taira, "Concept for Measuring Laser Beam-Quality Parameters," *The Review of Laser Engineering* 26 723 (1998).

第5章 原子状水素を用いた表面処理の導入

5.1 はじめに

4章では、MBE 空孔埋め込み法によって作製したフォトニック結晶レーザの特性を 評価し、3次元結合波解析の結果を交えつつ MBE 空孔埋め込み法の特徴である埋め込 み後の空孔立体形状の制御によって出射効率やビームの形状および偏光が変化するこ とを示した。しかしながら、電流-電圧特性の結果(図 4.4)を見ると、立ち上がり電 圧が 2V 以上と高く、成長界面や再成長層の結晶の欠陥や転位による影響が考えられ る。そこで、本章では、MBE 空孔埋め込み法の最適化を進めるべく、原子状水素を用 いた表面処理について検討する。

5.2節では原子状水素導入の目的と原子状水素の生成方法について説明する。5.3節では原子状水素処理の有無によるフォトニック結晶構造上の成長層への影響を調査する。5.4節では本章のまとめを述べる。

5.2 原子状水素導入の目的と原子状水素の生成方法

3.3 節で述べたように、サーマルクリーニング時にフォトニック結晶構造を維持す るためには 550℃以下で実施する必要がある。しかしながら、通常のサーマルクリー ニングでは酸化膜除去に基板温度は 570℃~600℃程度が必要と報告されており[1-3]、 550℃では酸化膜が十分に除去されない可能性がある。これに対して、原子状水素によ る処理によって、低温条件下でも酸化膜や有機物が除去される効果や GaAs 基板表面 が平坦化される効果があることが報告されている[4-6]。これらの効果は原子状水素の 還元作用や表面の余剰な Ga 原子を取り除く作用によるものである。この原子状水素 を利用することによって低温でも成長前の基板表面の状態が改善し、成長界面や再成 長層の結晶の欠陥や転位が減少することが期待される。そこで、MBE に新たに原子状 水素ガスソースを導入し、その効果について検証する。

原子状水素源として、Dr. Eberl MBE-Komponenten 社の HABS40 を導入した。図 5.1 に原子状水素源の構成の模式図を示す。水素ボンベから供給される水素ガスは、純化 器(SAES Getters 社 MC1-904F)を通り、MBEの成長室へと導入される。このとき、 リークバルブによって水素の流量を調節できる。ここで、水素ガスを成長室へ導入す る際に、1800℃~2000℃程度に加熱したフィラメントチューブを通し、熱分解により 原子状水素を生成する。このとき HABS40 は図 5.2 のように従来の水素ガス流路にフ ィラメントを配置した方式ではなく、フィラメントによって熱したタングステンの細 長いチューブに水素を流すことによって 80%を超える高い熱分解率と、1×10¹⁵ atoms/(cm²·s)以上の原子状水素の流束密度を実現可能である。



図 5.1 原子状水素源の構成の模式図



図 5.2 原子状示系源 HABS40 のフィクメントの模式図 (Dr. Eberl MBE-Komponenten 社ホームページより引用: http://www.mbe-komponenten.de/products/mbe-components/gas-sources/habs.php)

5.3 原子状水素による成長前表面処理の検討

本節では、前節で説明した原子状水素源を用いて成長前の基板に表面処理を施し、 原子状水素の照射の有無がフォトニック結晶構造上への成長に与える影響を調査する。 原子状水素はわずかながらも GaAs をエッチングする効果があるため[6]、原子状水素 の照射によってフォトニック結晶構造が変化する可能性がある。そこでまず、原子状 水素の照射によってフォトニック結晶構造が変化しないか調べるために、フォトニッ ク結晶構造(格子定数 285 nm、空気充填率 25%、孔深さ 250 nm の真円正方格子フォ トニック結晶)を形成した基板に対して、従来通り硫酸処理後に原子状水素を照射せ ずにサーマルクリーニングを行った試料と、原子状水素を照射しながらサーマルクリ ーニングを行った試料を用意し、フォトニック結晶構造の断面を SEM で観察した。 その結果を図 5.3 に示す。なお、サーマルクリーニング時の基板温度は 500℃、時間 は 20 分間、As の照射圧は 1×10⁻⁵ mbar 程度とし、原子状水素を照射する際の HABS40 のフィラメント温度は 1800℃、水素の照射圧は 1×10⁻⁶ mbar 程度とした。



図 5.3 サーマルクリーニング後の断面 SEM 像 (a)原子状水素照射なし、(b)原子状水素照射あり

図 5.3 を見ると、原子状水素の照射の有無によってフォトニック結晶構造は変化し ないことがわかる。次に、それぞれの試料のサーマルクリーニング後の RHEED パタ ーンを図 5.4 に示す。原子状水素を照射していない試料ではスポッティーなパターン になっており、表面が平坦ではないと推測される。原子状水素を照射した試料では c(4×4) のパターンが明確に表れていることから、酸化膜が除去されて表面も c(4×4) の表面再構成が形成された状態になっていると判断できる。RHEED 像から、原子状 水素の照射の有無によって表面状態が変化することがわかる。





図 5.4 サーマルクリーニング後の RHEED パターン (a)原子状水素照射なし、(b)原子状水素照射あり

続いて、原子状水素による表面処理によってフォトニック結晶構造上への成長にど のような影響があるか調べるために、以下の試料を作製した。

試料 1:原子状水素を照射せずにサーマルクリーニングを行った後、基板を回転 させながら AlGaAs を 1 µm、GaAs を 50 nm 成長した試料

試料 2:原子状水素を照射してサーマルクリーニングを行った後、基板を回転させながら AlGaAs を 1 µm、GaAs を 50 nm 成長した試料

なお、サーマルクリーニング温度は 500℃、成長温度は 480℃、AlGaAs の Al 組成 は 0.4 程度、成長レートは 0.56 ML/s、GaAs の成長レートは、0.34 ML/s であった。成 長中に原子状水素は照射していない。成長後の断面 SEM 像を図 5.4 に示す。試料1で は空孔の形状が歪になっているのに対して、試料2は滑らかに空孔が埋め込まれてい る。これは、成長直前の表面状態によって再成長層の成長の様子が異なっていること を示唆する結果である。なお、同様の条件で作製した試料である図 5.4 (a)と図 3.21 (c) とで埋め込み後の形状が異なるのは、何らかの原因で成長前の表面状態がわずかに異 なっているためであると考えられる。図 5.4 (a)と図 5.5 (b)については、同じ基板から 切り出したものを同日に成長したものであるため、比較対象としては適当であると判 断した。参考に、図 3.21 (c)の試料のサーマルクリーニング後の RHEED パターンを図 5.6 に示す。図 3.21 (c)の試料のほうがスポット状の輝点が縦に長いように見えるので、 図 5.4 (a)の試料と図 3.21 (c)の試料とでは、図 3.21 (c)の試料のほうが表面は平坦に近 い可能性がある。再現性に関しては今後の課題である。





図 5.5 成長後の断面 SEM 像 (a)原子状水素照射なし、(b)原子状水素照射あり



図 5.6 図 3.21 (c)の試料のサーマルクリーニング後の RHEED パターン(参考)

試料1と試料2について、再成長層の結晶を詳細に評価するために、断面を透過型 電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM)で観察した。TEM は薄膜化した 試料に電子線を照射し、電子線の透過波、あるいは結晶格子の周期性に起因する回折 波を結像させることによって試料を観察できるものである。TEM での観察は[110]方向 に劈開した断面で行った。まず明視野での観察結果を図 5.7 に示す。明視野とは、電 子線の透過波のみを結像したものであり、電子線の透過率の違いが像の明暗として表 現される。均質な結晶では明視野像のコントラストは現れないが、転位などが存在す ると、その部分は電子線の透過率が低くなるためコントラストが現れる。図 5.7 を見 ると、原子状水素照射をしていない試料1(図 5.7 (a))では転位由来と思われる無数 のコントラスト(転位線)が無数にある一方、原子状水素の照射による表面処理を施 した試料2(図 5.7 (b))では転位線の数が圧倒的に少なくなっている。これらの結果 から、原子状水素による表面処理によって転位の発生を抑制できると考えられる。



図 5.7 成長後の断面 TEM 像(明視野) (a)原子状水素照射なし、(b)原子状水素照射あり

次に、二波回折条件下で観察した。二波回折とは、詳しい解説は専門書[7]に譲るが、 入射する電子線に対して試料を傾けることによって、電子線の透過波と結晶中の特定 の方向の格子面に起因する回折波の二波を結像させる手法である。転位のずれの方向 と量を表すバーガースベクトルbと上記の回折波を生じさせる回折ベクトルgが垂直 のときに転位のコントラストが消失することを利用して、転位線に対するバーガース ベクトルの方向を調べることによって転位の種類を推測することができる。例えば、 転位線とバーガースベクトルの方向が垂直の場合は刃状転位と推測され、転位線とバ ーガースベクトルの方向が平行であるときはらせん転位と推測される。

試料1の電子線回折図形と二波回折像を図 5.8 に、試料2の電子線回折図形と二波回折像を図 5.9 に示す。



図 5.8 試料1(水素照射なし)の断面 TEM 像(二波回折像) (a) g=īī1のときの電子線回折図形 (b) g=īī1のときの二波回折像 (a) g=002のときの電子線回折図形 (b) g=002のときの二波回折像



図 5.9 試料2(水素照射あり)の断面 TEM 像(二波回折像) (a) g=11のときの電子線回折図形(b) g=11のときの二波回折像 (a) g=002のときの電子線回折図形(b) g=002のときの二波回折像

まず試料1について、図5.8 (b)の青い矢印で示した転位線は、図5.8 (d)では消失し ているため、そのバーガースベクトルは[001]に垂直であり、転位線はバーガースベク トルに対してほぼ垂直であるため、刃状転位と推測される。続いて、試料2について、 図5.9 (d)の緑の矢印で示した転位線は、図5.8 (b)では消失しているため、そのバーガ ースベクトルは[ĪĪ1]に垂直であり、転位線はバーガースベクトルに対してほぼ垂直で あるため、刃状転位と推測される。これらの結果から、今回の成長条件では原子状水 素の照射の有無に関わらず、刃状転位が支配的であることがわかる。また、原子状水 素の照射によって転位や欠陥の数はかなり減少するものの、空孔上部から転位が発生 していることから、孔が塞がる部分に歪が生じていると考えられる。GaAs と Al_{0.4}Ga_{0.6}As の格子定数差は 0.06%程度[8]であることから刃状転位の原因としては考 えづらく、平面ではなくフォトニック結晶構造上に成長していることによって歪が生 じているものと考えられる。

5.4 まとめ

本章では、MBE 空孔埋め込み法の最適化のために、原子状水素を用いた表面処理に ついて検討した。5.2 節では原子状水素導入の目的を述べ、原子状水素の生成方法に ついて説明した。5.3 節ではまず、サーマルクリーニング時の原子状水素の照射によ ってフォトニック結晶構造の形状に変化がないことを確認し、RHEED パターンから 原子状水素を照射することによって表面状態が改善することを確認した。その後、原 子状水素による表面処理の有無が再成長層に与える影響を調べるために、原子状水素 による表面処理を施さずに成長した試料と原子状水素による表面処理を施してから成 長した試料を断面 SEM や断面 TEM によって比較し、原子状水素による表面処理によ って再成長層の転位・欠陥がかなり減少することを確認した。

参考文献

- J. P. Contour, J. Massies, A. Salètes and P. Staib, "X-Ray Photoelectron Spectroscopy Study of GaAs (001) Surface Thermocleaning Prior to Molecular Beam Epitaxy" *Applied Physics A* 4, 984 (1985)
- S. Ingrey, W. M. Lau and N. S. McIntyre, "An x-ray photoelectron spectroscopy study on ozone treated GaAs surfaces," *Journal of Vacuum Science and Technology A* 4, 984 (1986).
- A. J. SpringThorpe, S. J. Ingrey, B. Emmerstorfer, P. Mandeville and W. T. Moore, "Measurement of GaAs surface oxide desorption temperatures," *Applied Physics Letters* 50, 77 (1987).
- S. Sugata, A. Takamori, N. Takado, K. Asakawa, E. Miyauchi and H. Hashimoto, "GaAs cleaning with a hydrogen radical beam gun in an ultrahigh-vacuum system," *Journal of Vacuum Science and Technology B* 6, 1087 (1988).
- T. M. Burke, E. H. Linfield, D. A. Ritchie, M. Pepper, J. H. Burroughes, "Hydrogen radical surface cleaning of GaAs for MBE regrowth," *Journal of Crystal Growth* 175-176 416(1997).
- K. Yamaguchi, Z. Qin, H. Nagano, M. Kobayashi, A. Yoshikawa and K. Takahashi, "Atomically Flat GaAs(001) Surfaces Obtained by High-Temperature Treatment with Atomic Hydrogen Irradiation," *Japanese Journal of Applied Physics* 36, L1367 (1997).
- 7. 坂 公恭:「結晶電子顕微鏡学―材料研究者のための―」 内田老鶴圃 (1997).
- Z. R. Wasilewski, M. M. Dion, D. J. Lockwood, P. Poole, R. W. Streater and A. J. SpringThorpe, "Composition of AlGaAs,", *Journal of Applied Physics* 81, 1683 (1997).

第6章 空孔の立体形状の検討と新規機能の提案

6.1 はじめに

本研究では、前章までに MBE によるフォトニック結晶レーザの作製について述べ てきた。その結果、MBE による空孔の埋め込み法を開発し、単一モードでのレーザ発 振に成功し、原子状水素によるデバイス特性改善の可能性も示した。ここで、MBE 空 孔埋め込み法の一番の特長としては、空孔の立体形状を制御し得るという点である。 今後の展開を見据えて、空孔の立体形状についての理解を深めることは非常に重要で ある。

そこで本章では、空孔の立体形状という新たな自由度を生かして、フォトニック結 晶レーザに新規機能を付与することを検討する。6.2 節では、空孔の立体形状の設計 による偏光制御可能性について提案する。6.3 節では、円偏光の出射を可能とするフ ォトニック結晶の空孔形状について検討する。最後に6.4 節で本章のまとめを述べる。

6.2 空孔立体形状の設計による偏光制御可能性

本節では、空孔の立体形状の設計による偏光制御可能性について検討する。

これまでに、フォトニック結晶の空孔の形状や格子点の配列による出射ビームの強 度分布や偏光の制御がなされてきた[1-3]。しかしながら、これらの報告で実現されて きた偏光状態は、ビーム面内であらゆる方向の電界の位相が揃った状態であり、円偏 光のように電界の方向で位相が異なる偏光状態や、ラゲール・ガウシアンビームのよ うなビーム面内に位相の分布があるビームは実現されていない。もし電界の方向や強 度だけではなく位相を自在に調節することができれば、円偏光やラゲール・ガウシア ンビームといったビームを実現することができ、より自在な偏光制御が可能になると 考えられる。そこで、従来のフォトニック結晶レーザの設計を見直し、位相という新 しい自由度をフォトニック結晶レーザに付与することを目指して、議論を進めていく。

まず、従来の偏光制御手法について簡単に述べる。図 6.1 にフォトニック結晶の Γ₂ 点近傍のバンド図の例を示す。周波数の低いモードからモード A、モード B、モード C、モード D と呼称する。図 6.2 にそれぞれのモードのユニットセルにおける電界分

83

布をベクトル表記したものを示す。真円格子点の場合は Γ₂ 点においてモード C とモード D が縮退する。ここでモード A に注目すると、格子点の周りを回るように電界が分布している。



図 6.1 Γ₂ 点近傍のバンド図



図 6.2 各モードのユニットセルにおける電界分布 (a)モードA、(b)モードB、(c)モードC、(d)モードD

このとき空孔が真円の場合は、誘電率の分布と電界の分布がともに4回回転対称性を もち、面内の全ての方向の電界が対称に回折されるため、図 6.3 (a)のように遠視野で は打ち消しあいの干渉を起こし、ビームの中心が暗部となるドーナツ状の強度分布を もち光軸の周囲で周回方向の電界をもった方位偏光と呼ばれる偏光状態になる。一方 で空孔形状が正三角形の場合は、電界の分布が4回回転対称性をもつのに対して、誘 電率分布の対称性が崩れ、図 6.3 (b)のように回折される電界の強度が非対称になり、 遠視野での打ち消しあいの干渉は起こらず、単峰の強度分布をもち特定の方向の電界 成分を強くもつ直線偏光に近い偏光状態になる。



(a)真円、(b)正三角形

以上のように、従来の偏光制御では主に空孔の面内形状に着目しておりフォトニック 結晶を「面」として捉えている。このとき、空孔形状は面垂直方向に一様として考え られており、空孔のどの高さにおいても回折される電界の方向は変わらない。しかし、 空孔の立体形状が制御可能となれば面垂直方向に対しての自由度が上がる。面垂直方 向はビームの出射方向であるため、図 6.4 のように面垂直方向によって回折される電 界成分の方向が異なれば互いに光路差が生まれ、その結果位相差が生じることとなる。



図 6.4 空孔の立体形状による位相差の制御の概念図

以上の定性的な考察から、空孔の立体形状を工夫することによって各方向の電界成 分に位相差をもった偏光状態の実現可能性があることがわかった。次節では3次元結 合波解析を用いてより具体的な空孔形状と偏光状態について検討する。

6.3 円偏光の出射を実現する空孔立体形状の提案

前節では、フォトニック結晶の空孔の立体形状によって各方向の電界に位相差をつけられる可能性があることを述べた。本節では、そのような効果をもった具体的な空孔の立体形状について検討を進めていく。ここで、各方向の電界成分に位相差がある 偏光状態としては、円偏光が挙げられる。円偏光は振動方向が90°異なる電界成分の 位相差がπ/2 ずれているような偏光状態であり、電界の振幅の軌跡を描くと円になる ことから円偏光と呼ばれている。以下では、円偏光を出射可能な空孔形状について3 次元結合波解析をもちいて検討する。

前節で述べたように、モードAでは空孔を中心に周りを回るように電界が分布している。ここで、各方向の電界を適切な光路差をつけつつ個別に回折させる形状として 螺旋形状を考えた。これは図 6.5 のように面垂直方向(z 軸)に対する各断面(xy 平 面)において空孔の重心からシフトさせることによって各層で別々の方向の電界を取り出し、なおかつ高さが 1 波長のときに丁度螺旋を 1 周させることによって方向が 90°異なる電界成分の位相差を π/2 とすることを狙ったものである。



図 6.5 螺旋形状による円偏光出射の提案

空孔形状を螺旋形状として、格子定数 a を 295 nm、フォトニック結晶層の厚さ h を h=a=295 nm、フィリングファクターを 20%、螺旋の半径を 0.05a としたときのモー ドAの遠視野像、偏光特性および 1/4 波長板透過後の偏光特性を 3 次元結合波解析に よって計算した結果を図 6.6 と図 6.7 に示す。偏光特性は楕円形に近く、螺旋が反時 計回りのときは右回り楕円偏光に近い偏光状態であるのに対して、螺旋が時計回りの ときは左回り楕円偏光のようになっていることがわかる。



図 6.6 空孔が反時計回りの螺旋形状の場合の遠視野像および偏光特性



図 6.7 空孔が時計回りの螺旋形状の場合の遠視野像および偏光特性

ここで、偏光特性の楕円率は 0.611 であり、完全な円偏光にはなっていない。その 原因としては、フォトニック結晶層の積層方向の電界強度分布が図 6.8 のように均一 でないために、螺旋の下部で回折される電界成分と上部で回折される電界の強度が等 しくなっていないためであると考えられる。



図 6.8 フォトニック結晶レーザの積層方向の電界強度分布

そこで、図 6.9 のようにフォトニック結晶層で電界強度が一定であると仮定し、このときの偏光特性を計算すると、図 6.10 に示すように楕円率が 0.985 と円偏光に近い特性となることがわかった。



図 6.9 計算で仮定したフォトニック結晶レーザの積層方向の電界強度分布



図 6.10 フォトニック結晶層で電界が一定であると仮定した場合の 遠視野像と偏光特性の計算結果(空孔は反時計回りの螺旋形状) (a)遠視野像、(b)偏光特性、(c)1/4 波長板挿入時の偏光特性

このことから、フォトニック結晶層での電界が一定でないことが楕円率の低下を招い ていると言えるため、フォトニック結晶層内での電界強度分布を考慮して、回折の強 さを補正するような空孔形状にすることが有効であると考えられる。すなわち、回折 される電界強度のバランスをとるために、電界の強い活性層に近い側の回折を弱める ことを狙って、活性層に近づくにつれて空気充填率を小さくした構造にすればよいと 考えられる。そこで、活性層から遠い側の空気充填率を 20%、近い側の空気充填率を 5%となるように空気充填率が高さ方向で変化するような構造にしたところ、図 6.11、 6.12 に示すように楕円率は 0.903 となり、楕円率が向上した。

90



図 6.11 高さ方向で空気充填率を調整した空孔の遠視野像および偏光特性 (反時計回りの螺旋形状)



図 6.12 高さ方向で空気充填率を調整した空孔の遠視野像および偏光特性 (時計回りの螺旋形状)

続いて、より円偏光に近い特性を得るために、空孔の上下の空気充填率の差を変化 させて楕円率が高い空孔形状を探索したところ、図 6.13 のように空孔下面(活性層か ら遠い側)の空気充填率が 10%、上面(活性層に近い側)の空気充填率を 4%とする ことによって 0.989 という高い楕円率を得られることがわかった。また、このときの ストークスパラメータと偏光度を計算すると表 6.1 のようになり、ほぼ円偏光に近い 偏光状態となることがわかった。ここで、ストークスパラメータ S₀、S₁、S₂、S₃ はそ れぞれ全強度、0°方向と 90°方向の強度差、45°方向と-45°方向の強度差、右回り 円偏光と左回り円偏光の強度差であり、偏光度 DOP は

$$DOP = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0} \tag{6.1}$$

で定義される。



図 6.11 空孔の上面と下面の空気充填率の差と楕円率の関係 (下面の空気充填率は 10%に固定)

表 6.1 下面の空気充填率が 10%、上面の空気充填率が 4%のときの ストークスパラメータ

S 0	S1	S2	S 3	偏光度
1.000	0.011	0.000	0.999	0.999

このように、空孔形状を螺旋形状にし、なおかつ積層方向の電界強度分布を考慮し て空気充填率を調整することにより、円偏光に近い状態のレーザ光を生成できること がわかった。

6.4 まとめ

本章では、空孔の立体形状を利用した偏光の制御について検討した。6.2 節では、 まず従来の偏光制御手法を説明した後に、フォトニック結晶の面垂直方向に対して空 孔の形状を変化させることによって各方向の電界成分に位相差をつけられる可能性が あることを指摘した。6.3 節では、各方向の電界に位相差がある偏光状態である円偏 光を出射するための空孔立体形状について3次元結合波解析を用いて検討した。その 結果、空孔断面の直径を適切に変化させた螺旋形状とすることによって、円偏光に近 い偏光状態を生成し得ることを見出した。

参考文献

- E. Miyai, K. Sakai, T. Okano, W. Kunishi, D. Ohnishi and S. Noda, "Lasers producing tailored beams," *Nature* 441, 946 (2006).
- S. Iwahashi, Y. Kurosaka, K. Sakai, K. Kitamura, N. Takayama and S. Noda, "Higher-order vector beams produced by photonic-crystal lasers," *Optics Express* 19, 11963 (2011).
- K. Kitamura, M. Nishimoto, K. Sakai and S. Noda, "Needle-like focus generation by radially polarized halo beams emitted by photonic-crystal ring-cavity laser," *Applied Physics Letters* 101, 221103 (2012).

第7章 結論

7.1 本研究の成果

フォトニック結晶レーザは、フォトニック結晶のバンド端における2次元共振作用 を利用した半導体レーザであり、大面積化による高出力化のみならずビームパター ン・偏光の制御やビーム出射方向の制御といった機能をもつ。本研究では、空孔の立 体形状を制御可能な新たな作製法を構築するとともに、空孔の立体形状に着目した新 規機能を実現し得る空孔形状を提案した。

まず、分子線エピタキシー法(MBE)を用いたフォトニック結晶レーザの作製法の 開発に着手し、分子線の照射方向や成長中の基板温度によって埋め込まれる空孔の立 体形状が異なることを示した。続いて、開発した手法(MBE 空孔埋め込み法)を用い てフォトニック結晶レーザを作製し、単一モードでの発振に成功し、単峰かつ直線偏 光に近い出射ビームとウエハ融着法に比べて高いスロープ効率を得た。得られた結果 について3次元結合波理論による数値計算結果と照らし合わせ、空孔の立体形状を制 御したことによって、上記のレーザ特性を得られたことを示した。さらに、MBE 空孔 埋め込み法の最適化を目指して原子状水素による表面処理を提案し、成長前に原子状 水素を照射することによって再成長層の転位が減少することを明らかにした。加えて、 上記の新しい作製法の開発と並行して空孔の立体形状を活かした新規機能の創出に取 り組み、空孔を螺旋形状にすることによって、フォトニック結晶レーザで従来実現さ れていなかった偏光状態である円偏光を直接出射し得ることを示した。

以上のように、空孔の立体形状を制御可能な手法を開発し、デバイス作製に適用す るとともに、空孔立体形状の工夫によって円偏光状態を生成し得ることを示した。以 下に本研究で得られた成果の詳細を記す。

フォトニック結晶レーザの基礎と従来の作製法および新しい作製法の提案(第2章)

フォトニック結晶の発振原理と従来の作製法について説明し、本研究の主題である 分子線エピタキシー法によるフォトニック結晶レーザの作製法を新たに提案した。

まず、フォトニック結晶レーザの発振原理の概略について説明した後に、フォトニ

ック結晶レーザの従来の作製法について説明し、従来の作製法において空孔の立体形 状の制御がなし得ていないことを述べた。続いて、分子線エピタキシー法(MBE)に よる作製法を提案し、分子線の照射方向を変えることによって成長後の空孔の立体形 状を制御できる可能性があることを述べた。

分子線エピタキシー法によるフォトニック結晶構造の埋め込み手法の開発(第3章)

MBE を用いて 2 次元フォトニック結晶構造を基板内部に埋め込むことが可能であるか検証し、空孔の立体形状の制御可能性についても検討した。

まず MBE による結晶成長の基礎について述べた。次に、結晶成長前の基板表面処 理について検討し、硫酸に浸漬することによってフォトニック結晶構造を損なうこと なく基板表面の酸化膜を除去でき、良好な成長が可能となることを示した。さらに、 成長前のサーマルクリーニング温度について検討し、600℃ではマイグレーションによ ってフォトニック結晶構造が損なわれてしまうため、550℃以下でサーマルクリーニン グを実施する必要があることを見出した。続いて、MBE による埋め込み成長過程を詳 細に評価しながら、分子線の照射方向に沿って成長が進む様子を示し、フォトニック 結晶構造を基板内部に埋め込むことが可能であることを示した。また、第2章で提案 した通り、分子線の照射方向によって空孔形状が変化することを実証した。さらに、 サーマルクリーニング温度や成長温度についても調査し、低温での成長によってさら に大きく空孔を埋め込むことが可能であることを示した。

分子線エピタキシー法を用いたフォトニック結晶レーザの作製(第4章)

第3章で開発した MBE 空孔埋め込み法を用いてフォトニック結晶レーザを作製し、 その特性を評価した。また、3次元結合波解析による数値計算の結果から実験で得ら れた結果を考察した。

まず作製プロセスについて述べた後に、作製したデバイスの電流-電圧特性、電流-光出力特性およびスペクトルを測定し、単一モードでの発振を確認し、真円正方格子 フォトニック結晶構造をもつ融着法で作製したデバイスと比べて2倍以上高いスロー プ効率を得た。遠視野像の観察により、出射ビームが単峰の強度分布をもち、直線偏 光に近いビームであることを示した。さらに、集光特性も評価し、ビーム品質の指標 であるM²が 1.2~1.5 程度と比較的良好な集光性を示すことを確認し、偏光子を用いる ことによってM²が改善することも分かった。さらに、3 次元結合波理論を用いた数値 計算を行い、空孔の立体形状とレーザ特性の関係を明らかにし、実験結果と照らし合 わせた結果、MBE 空孔埋め込み法によって空孔の立体形状を制御したことによって、 真円正方格子フォトニック結晶を用いた場合でも融着法と比較して2倍以上高いスロ ープ効率と単峰かつ直線偏光に近いビームの出射を実現したことを示した。

原子状水素を用いた表面処理の導入(第5章)

MBE 空孔埋め込み法の最適化のために、原子状水素を用いた表面処理について検討 した。まず、原子状水素導入の目的を述べ、原子状水素の生成方法について説明した。 続いて、サーマルクリーニング時の原子状水素の照射によってフォトニック結晶構造 の形状に変化がないことを確認し、RHEED パターンから原子状水素を照射すること によって表面状態が改善することを確認した。その後、原子状水素による表面処理の 有無が再成長層に与える影響を調べるために、原子状水素による表面処理を施さずに 成長した試料と原子状水素による表面処理を施してから成長した試料を断面 SEM や 断面 TEM によって比較し、原子状水素による表面処理によって再成長層の転位が大 幅に減少することを確認した。

空孔の立体形状の検討と新規機能の提案(第6章)

空孔の立体形状を利用した偏光の制御について検討した。まず従来の偏光制御手法 を説明し、従来の設計では電界に位相差をもつ偏光状態を生成することができないこ とを述べ、フォトニック結晶の面垂直方向に対して空孔の形状を変化させることによ って各方向の電界成分に位相差をつけられる可能性があることを指摘した。続いて、 各方向の電界に位相差がある偏光状態である円偏光を出射するための空孔立体形状に ついて3次元結合波解析を用いて検討した。その結果、空孔断面の直径を適切に変化 させた螺旋形状とすることによって、円偏光に近い偏光状態を生成し得ることを見出 した。

7.2 今後の展望

・単一モード・室温連続発振での10W級高出力半導体レーザの実現

本研究では、空孔の立体形状をある程度制御可能な手法を開発し、実際にフォトニ ック結晶レーザを作製し、単一モードでの発振を確認した。一方で、現時点で MBE 空孔埋め込み法の最適化は達成されているとは言えず、電流-電圧特性の立ち上がり電 圧および立ち上がり後の抵抗値がウエハ融着法や MOCVD で作製したものよりも高く なっている。その原因として、成長前の酸化膜除去が不十分であることや、成長した 結晶の品質が良くないことなどが考えられる。本論文ではその課題に対して、原子状 水素を用いた表面処理を検討し、再成長層の欠陥が減少することを確認した。しかし、 本手法の最適化はまだ十分とは言えないため、今後も成長前の表面処理や成長条件の 改善に着目した探索研究を進める必要がある。例えば、MBE 搬入前の処理として、有 機溶剤による洗浄と硫酸による酸化膜除去を施しているが、硫酸を純水でリンスする 際の酸化膜の形成は避けられない。そこで、図 7.1 のように表面パッシベーションの 効果がある硫化アンモニウム等による処理[1-3]を検討することによって、成長界面の 清浄度がさらに向上する可能性がある。



図 7.1 硫化アンモニウムによる表面パッシベーションの模式図 (文献1より引用)

また、本研究においては真円正方格子フォトニック結晶構造を用いたが、エッチン グ時の空孔形状や格子構造の検討の余地はまだまだあり、理論面と実験面の双方向か らデバイス構造の最適化を進めることが望まれる。

こういった課題をクリアすることによって、単一モード・室温連続発振で十 W 級の 出力を達成できるものと期待される。

・円偏光を直接出射するフォトニック結晶レーザの実現

本研究では、面内での空孔形状による偏光の制御のみが考慮されている従来法では、 面上方に回折される際に各方向の電界成分は同一の位相となるため、実現し得る偏光 状態は限定されていることを指摘した。そこで、より自在な偏光状態の実現を目指し て、位相の調整法について検討した結果、垂直方向によって回折される電界成分を変 えることができれば、出射方向に関して各電界成分に空間的なズレが生じ、位相を調 整することができるのではないかとの考えに至った3次元結合波理論による計算を行 い、空孔を適切な螺旋形状にすれば、フォトニック結晶レーザから右回りと左回りの 円偏光ビームをそれぞれ直接出射できる可能性があることを示した。しかしながら、 空孔を螺旋形状にすることは難しいと考えられるため、今後も空孔形状の検討を進め て実現がより簡単な空孔形状を探索することが重要であると考えられる。修士課程 2 年の前川享平氏との共同研究のなかで、図 7.2 に示すような傾いた三角柱状の空孔形 状にすることによって、円偏光を実現可能であることが数値計算で示されており螺旋 形状に比べて作製が容易な空孔形状が見出されつつある。

99



図 7.2 斜め三角孔を有するフォトニック結晶による円偏光の生成 (a)斜め三角孔を有するフォトニック結晶構造の模式図、 (b)偏光特性、(c)1/4 波長板透過後の偏光特性(x 軸が進相軸)

円偏光を出射するフォトニック結晶レーザが実現できれば、スピントロニクスやセンシングへの応用が期待される。

・より自在な偏光状態制御の実現

本研究では位相に差がある偏光状態として、円偏光の実現可能性について議論した が、ラゲール・ガウシアンビームのようにビーム面内に位相分布があるビームについ ても今後議論する余地があると期待される。もし、所望の偏光状態を生成可能な設計 手法が開発されれば、半導体レーザによる偏光多重通信やセンシングの応用が加速す るものと期待される。

7.3 結び

本研究で得られた知見が、フォトニック結晶レーザに関する研究の発展に貢献し、 ひいては人々の生活を支える光技術の発展に寄与することを願いつつ本論文の結びと する。

参考文献

- Y. Nannichi, J. F. Fan, H. Oigawa and A. Koma, "A Model to Explain the Effective Passivation of the GaAs Surface by (NH₄)₂S_x Treatment," *Japanese Journal of Applied Physics* 27, L2367 (1988).
- M. S. Carpenter, M. r. Melloch, B. A. Cowans, Z. Dardas and W. N. Delgass, "Investigation of Ammonium Sulfide Surface Treatments on GaAs," *Journal of Vacuum Science & Technology B* 7, 845 (1989).
- M. R. Melloch, "Molecular Beam Epitaxy Regrowth by Use of Ammonium Sulfide Chemical Treatment," *Applied Physics Letters* 56, 1064 (1990).

謝辞

本研究は、京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 野田進教授の御指導のもと で、ここに博士論文としてまとめるに至ったものです。先生には日々のミーティング や研究会等を通じて数多くの貴重な御意見をいただきました。また、日々の研究生活 において数々の激励の言葉を賜りました。先生の御指導なしに本研究は遂行しえなか ったものと確信しております。野田研究室での6年の間に、数々の貴重な経験をさせ ていただけたことは、筆者の人生において重要な意味をもつことと感じております。 ここに深甚なる謝意を表明いたします。

京都大学大学院工学研究科 光・電子理工学教育研究センター 藤田静雄教授には、 本博士論文の執筆にあたりご指導をいただきました。先生の鋭いご指摘は、本論文を 執筆する上で、たいへん参考になりました。心より感謝いたします。

京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 川上養一教授には、本論文の執筆にあ たり、御指導いただきました。また、副指導教官として、的確な御意見、御議論をい ただきました。篤く御礼申し上げます。

京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 北野正雄教授には、副指導教官として 数々の貴重な御意見をいただきました。先生の深い見識に基づいた御指導は、本研究 を遂行する上で、貴重な糧となりました。深く感謝いたします。

京都大学大学院工学研究科 電気工学専攻 引原隆士教授には、研究へ取り組む姿 勢や筆者の進路についてご相談させていただきました。心より御礼申し上げます。

京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 浅野卓准教授には、研究を遂行するに あたり、多くの御討論、御助言、御指導をいただきました。先生の論理的で明瞭な御 意見は本研究を遂行する上で、大いなる光明でありました。心より感謝いたします。

京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 石崎賢司助教には、本研究に関して全 面的な御指導、御協力を頂きました。また、学会発表や投稿論文執筆に関しても多大 なるご尽力を賜りました。先生の御協力なしには本研究は成し得ませんでした。心よ り感謝申し上げます。

京都工芸繊維大学 大学戦略推進機構グローバルエクセレンス 北村恭子講師に は、筆者の研究室配属時から、研究者としての姿勢を御教示いただきました。また、

103

本研究においては試料作製や投稿論文執筆に関して多大なる御指導、御協力を頂きました。篤く御礼申し上げます。

京都大学大学院工学研究科 附属グローバルリーダーシップ大学院工学教育推進 センター 田中良典講師、京都大学 白眉センター Chaminda Menaka De Zoysa 助教 には、研究が円滑に行えるよう御協力を頂きました。この場をお借りして御礼申し上 げます。

野田研レーザ班の先生方や先輩、後輩諸氏とのグループミーティングや日々の議論 を経て本研究を博士論文としてまとめることができました。現 北海道大学 電子科 学研究所 酒井恭輔助教には、結合波理論の基礎について丁寧にご教示いただきまし た。感謝いたします。現 スイス連邦工科大学チューリッヒ校 梁永博士には、ミー ティングにおいて的確な御意見をいただきました。また、主に結合波理論の計算にお いて多大なる御協力をいただきました。感謝いたします。修士課程2年 前川享平氏 には、試料の測定に関して御協力をいただきました。また、円偏光を出射するフォト ニック結晶レーザの構造検討についても共同研究者として多大なる御尽力をいただき ました。心より感謝の意を表します。博士課程3年 John Gelleta 氏にはミーティング での議論の他、英文添削等でご協力いただきました。感謝いたします。研究員 初田 蘭子氏、研究員 北川均氏、現 北京大学信息科学技术学院 Chao Peng 准教授、現 ローム株式会社 岩橋清太博士、現 シャープ株式会社 信岡俊之氏、三菱電機株式 会社 河崎正人氏、現 株式会社野村総合研究所 徐亭亭氏、修士課程2年 安田大 貴氏、修士課程1年 中川翔太氏、修士課程1年 吉田昌宏氏とは、フォトニック結 晶レーザについて様々な議論を交わしました。感謝いたします。

博士課程3回生 川本洋輔氏とは、6年間苦楽を共にして過ごしてきました。氏と 互いに励まし合いながら研究生活を送ることができたことは、一生の思い出です。心 より感謝いたします。現 株式会社ディー・エヌ・エー 芝原達哉氏、現 パナソニ ック株式会社 瀨古口洋氏、現 中部電力株式会社 彦山和久氏とは、研究室の同期 として楽しい研究生活を送ることができました。感謝いたします。

現 大阪大学大学院工学研究科 マテリアル生産科学専攻 児島貴徳助教には、結 晶成長や MBE の操作について御指導を頂きました。また、私生活においても楽しい

104
時間を提供していただきました。心より感謝いたします。現 日本電気株式会社 中 村達也博士とは、研究の話からとりとめのない話まで楽しく言葉を交わしていただき ました。心より感謝いたします。博士課程2年 権平皓氏には、日々の生活の中で忌 憚なく親密に接していただきました。心より感謝いたします。

研究室秘書の新開桜子さん、井上ゆき子さん、廣瀬恵巳さんには、篤い御配慮のも とで研究環境を整えて頂きました。心より感謝いたします。

博士課程前後期連携教育プログラム同期の奥田貴史博士、丹羽弘樹氏、木村知玄氏 とは、輪講等を通じて互いに切磋琢磨して6年間の研究生活を過ごすことができまし た。深く感謝いたします。

東北大学 金属材料研究所 出浦桃子助教、広島大学大学院先端物質科学研究科 量子物質科学専攻 富永依里子助教、産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター 西永慈郎博士には、学会等でお会いするたびに激励のお言葉をいただきました。深く 感謝いたします。

筆者は、平成 27 年 4 月から平成 29 年 3 月まで、独立行政法人日本学術振興会から 特別研究員 (DC2) として援助を受けました。ここに謹んで感謝いたします。また、 平成 22 年度にグローバル COE の「国際ネットワークの構築のための若手研究者海外 派遣」の支援を受けて Vienna University of Technology と National University of Singapore を、平成 23 年度には日本学生支援機構による「留学生交流支援制度」の援 助により University of California, Berkeley をそれぞれ訪問しました。謹んで感謝いたし ます。

筆者が研究者を志すきっかけとなった祖父 梶山茂博士、父 西本清一京都大学名 誉教授をはじめとして、これまで筆者を惜しみなく援助してくれた家族に深く感謝し ます。最後に、去る 2015 年 11 月 23 日に他界した祖母 梶山和子の冥福を祈り、本論 文を捧げるとともに、これまで注いでくれた多大なる愛情に感謝の意を表して謝辞の 結びと致します。

105

研究業績

学術論文

- Kyoko Kitamura, Kyosuke Sakai, Naoki Takayama, <u>Masaya Nishimoto</u> and Susumu Noda, "Focusing properties of vector vortex beams emitted by photonic-crystal lasers," *Optics Letters* 37, 2421 (2012).
- Kyoko Kitamura, <u>Masaya Nishimoto</u>, Kyosuke Sakai and Susumu Noda, "Needle-like focus generation by radially polarized halo beams emitted by photonic-crystal ring-cavity laser," *Applied Physics Letters* 101, 221103 (2012).
- Masaya Nishimoto, Kenji Ishizaki, Kyohei Maekawa, Kyoko Kitamura and Susumu Noda, "Air-Hole Retained Growth by Molecular Beam Epitaxy for Fabricating GaAs-Based Photonic-Crystal Lasers," *Applied Physics Express* 6, 042002, (2013).
- Masaya Nishimoto, Kenji Ishizaki, Kyohei Maekawa, Yong Liang, Kyoko Kitamura and Susumu Noda, "Fabrication of Photonic-Crystal Lasers by MBE Air-Hole Retained Growth," *Applied Physics Express* 7, 092703, (2014).
- <u>Masaya Nishimoto</u> and Susumu Noda, "Effect of Atomic Hydrogen Irradiation for Regrowth on GaAs-based Photonic Crystal Structure," in preparation.
- Masaya Nishimoto, Kyohei Maekawa and Susumu Noda, "Air-Hole Shape Design for Generation of Circular-Polarized Beam from Photonic-Crystal Surface-Emitting Lasers," in preparation.

国際学会

- Kyoko Kitamura, <u>Masaya Nishimoto</u>, Kyosuke Sakai and Susumu Noda, "Photonic-crystal ring-cavity lasers emitting a beam with needle-like focus characteristics," *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO '12)*, CTu1N.3, San Jose McEnery Convention Center, San Jose, California, USA, May (2012).
- <u>Masaya Nishimoto</u>, Kenji Ishizaki, Kyohei Maekawa, Kyoko Kitamura and Susumu Noda, "Air-hole Retained Growth on Photonic-crystal Structures by MBE," *The 40th International Symposium on Compound Semiconductors*, MoPC-03-06, Kobe Convention

Center, Kobe, Japan, May (2013).

 <u>Masaya Nishimoto</u>, Kyohei Maekawa, Kenji Ishizaki, Kyoko Kitamura and Susumu Noda, "Development of MBE Air-Hole Retained Growth Technique for Fabrication of Photonic-Crystal Lasers," *Collaborative Conference on Crystal Growth 2015*, B04, Hong Kong, China, December (2015) (Invited).

国内学会

- 北村恭子,酒井恭輔,黒坂剛孝,岩橋清太,西本昌哉,野田進"径偏光・狭リング 形状ビームを出射するフォトニック結晶レーザ II-発振および集光特性の評価-,"
 2010 年秋季 第 71 回応用物理学会学術講演会,16p-J-17,長崎大学,2010 年 9 月
- 北村恭子,西本昌哉,酒井恭輔,岩橋清太,黒坂剛孝,野田進"径偏光・狭リング 形状ビームを出射するフォトニック結晶レーザ -発振特性の改善に向けた検討 -,"2011年春季 第58回応用物理学関係連合講演会,26a-KA-5,神奈川工科大学, 2011年3月26日
- 西本昌哉,北村恭子,酒井恭輔,岩橋清太,野田進"径偏光・狭リング形状ビームを出射するフォトニック結晶レーザ IV -発振特性の改善に向けた解析-,"2011 年秋季 第72回応用物理学会学術講演会,1a-ZR-5,山形大学,2011年9月
- 4. 北村恭子, 西本昌哉, 酒井恭輔, 岩橋清太, 野田進 "径偏光・狭リング形状ビームを出射するフォトニック結晶レーザ V 発振特性の改善に向けた格子点形状の検討-," 2011 年秋季 第72 回応用物理学会学術講演会, 1p-ZR-7, 山形大学, 2011年9月
- 北村恭子,西本昌哉,野田進"フォトニック結晶レーザによる新奇なビームの発生と集光特性,"第59回応用物理学関係連合講演会16a-E9-5,早稲田大学,2012年3月(招待講演)
- 梁永,石崎賢司, Chao Peng,北村恭子,田中良典,沖野剛士,西本昌哉,野田進 "Coupled-wave analysis for photonic-crystal surface-emitting lasers IX –Finite-size effects on modal properties-," 2012 年秋季 第73 回応用物理学会学術講演会, 13a-PA5-10,愛媛大学・松山大学, 2012 年 9 月

107

- 北村恭子,西本昌哉,酒井恭輔,野田進"フォトニック結晶レーザによる長焦点 深度・微小集光の生成,"電子情報通信学会 LQE 研究会, PN2011-77,大阪大学, 2012 年 12 月
- 8. 西本昌哉,前川享平,石崎賢司,北村恭子,野田進"分子線エピタキシー法によるフォトニック結晶レーザ構造の作製 一埋め込み成長時の空気孔形状変化-,"
 2013 年春季 第 60 回応用物理学会学術講演会,28p-C1-15,神奈川工科大学,2013年3月
- 9. 梁永,石崎賢司,沖野剛士,北村恭子,田中良典,西本昌哉,野田進
 "Coupled-wave analysis for photonic-crystal surface-emitting lasers (X)
 -Above-threshold analysis-," 2013 年春季 第 60 回応用物理学会学術講演会,
 29p-PA7-15,神奈川工科大学,2013 年 3 月
- <u>Masaya Nishimoto</u>, Kenji Ishizaki, Kyohei Maekawa, Kyoko Kitamura and Susumu Noda "Air-hole Retained Growth for Embedding Photonic-Crystal Structures by MBE," *32nd Electronic Materials Symposium*, We2-6, Laforet Biwako, Moriyama, Shiga, Japan, July (2013)
- 11. 西本昌哉, 石崎賢司, 前川享平, 梁永, 北村恭子, 野田進"分子線エピタキシー法 によるフォトニック結晶レーザ構造の作製 II," 2013 年秋季 第 74 回応用物理学会 秋季学術講演会, 17a-P14-5, 同志社大学, 2013 年 9 月
- 12. 西本昌哉,石崎賢司,前川享平,梁永,北村恭子,野田進"「講演奨励賞受賞記念 講演」 分子線エピタキシー法によるフォトニック結晶レーザ構造の作製 III -空 孔形状がレーザ特性に与える影響の検討-,"2014 年春季 第61 回応用物理学会学 術講演会,18a-E16-1,青山学院大学,2014年3月(招待講演)
- 13. 前川享平, 西本昌哉, 石崎賢司, 北村恭子, 野田進"分子線エピタキシー法による 空気/GaAs2次元フォトニック結晶構造の空孔埋め込み成長 -基板温度による空 孔形状制御の可能性-,"2014年春季 第61回応用物理学会学術講演会, 18p-PG6-4, 青山学院大学, 2014年3月
- 14. 西本昌哉, 石崎賢司, 前川享平, 梁永, 北村恭子, 野田進"フォトニック結晶レー ザにおける3次元空孔形状の影響の検討,"2014年秋季 第75回応用物理学会秋季

学術講演会,17p-PA2-1,北海道大学,2014年9月

- 15. <u>Masaya Nishimoto</u>, Kenji Ishizaki, Kyohei Maekawa, Yong Liang, Kyoko Kitamura and Susumu Noda "Fabrication of Photonic-Crystal Lasers by MBE Air-Hole Retained Growth," *33rd Electronic Materials Symposium*, Fr1-3, Laforet Shuzenji, Izu, Shizuoka, Japan, July (2014)
- 16. 前川享平, 西本昌哉, 石崎賢司, 北村恭子, 野田進 "円偏光ビームを出射するフォトニック結晶レーザ構造の検討," 2015 年春季 第62 回応用物理学会学術講演会, 12p-A10-12, 東海大学, 2015 年 3 月
- Masaya Nishimoto, Kyohei Maekawa, Kenji Ishizaki, Kyoko Kitamura and Susumu Noda "The Influence of Three-Dimensional Air-Hole Shapes on Characteristics of Photonic-Crystal Surface-Emitting Lasers," 34rd Electronic Materials Symposium, Th4-19, Laforet Biwako, Moriyama, Shiga, Japan, July (2015)
- 西本昌哉,前川享平,石崎賢司,北村恭子,野田進 "MBE 空孔埋め込み法における原子状水素表面処理に関する検討," 2015 年秋季 第76回応用物理学会学術講演会,15p-2C-1,名古屋国際会議場,2015 年9月
- 19. 前川享平, 西本昌哉, 石崎賢司, 北村恭子, 野田進"円偏光ビームを出射するフォトニック結晶レーザ構造の検討Ⅱ-斜めエッチング法を用いた新構造の提案 -,"2015 年秋季 第76 回応用物理学会学術講演会, 16a-2A-7, 名古屋国際会議場, 2015 年 9 月

受賞歴

- 1. 第35回応用物理学会講演奨励賞 (2013)
- 2. 第 33 回電子材料シンポジウム EMS 賞 (2014)