

ナノ構造・共振器導入による希土類添加半導体の高輝度・多機能化

研究代表者

館林 潤 大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻 准教授

共同研究者

藤原康文 大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻 教授

市川修平 大阪大学大学院工学研究科電気電子情報通信工学専攻 助教



1. 研究の背景と達成目標

2015年9月の国連サミットで採択された「持続可能な開発目標」を受け、日本政府は『ソサエティー5.0』を提唱し、「仮想空間と現実空間を高度に融合させたシステム」実現に向けた取り組みが始まっている。この『ソサエティー5.0』が目指す「モノのインターネット時代」を支える科学技術として、半導体デバイスは生活の様々な場面で必要不可欠な科学技術として進化を遂げてきた。今後、持続可能で強靱な新しい社会への変革を目指し、超小型プロジェクトや網膜投影ディスプレイ、ウェアラブル生体センサー等「スマートデバイス」の実現、或いは経済・産業・安全保障を飛躍的に発展させうる「量子コンピュータ実現」に対する社会的要素が高まっており、様々な取り組みがなされている。本提案では、超スマート社会に資する次世代半導体光ナノデバイス実現に向け、「希土類添加半導体」と「ナノ構造・ナノ光共振器」を融合した次世代半導体ナノデバイス実現のための要素技術の確立を図る。

具体的な目標を下記に示す。

化合物半導体ナノワイヤ構造の形成技術開発:

GaN系ナノワイヤの結晶成長の確立(高アスペクト比の実現、少なくともアスペクト比10以上が望ましい)

希土類添加半導体ナノワイヤ構造への作製と光学評価:

希土類添加半導体ナノワイヤ中の欠陥に起因する発光の低減(結晶成長条件の最適化が必要)

量子構造を有する半導体ナノワイヤの形成・光学評価及び希土類元素・量子構造を有するナノ発光デバイスの特性評価(電流注入構造の実現):

電流注入デバイス構造に向けた埋込技術等プロセス技術確立およびデバイスのプロトタイプ実現

微小光共振器(フォトリソニック結晶・マイクロディスク等)を用いた希土類添加半導体の作製と光学評価:

顕微分光測定系の構築と低温希土類発光物理の探求

2. 主な研究成果と社会、学術へのインパクト

- ✓ GaN:Eu ナノワイヤ成長技術として高アスペクト比化(20以上)に成功。電流注入デバイス実現に向け GaN:Eu ナノワイヤ上 p 型 GaN シェル層形成技術の確立(図1(a))。更に、GaN:Eu を発光層とする発光ダイオード(LED)実現および室温赤色発光に成功(図1(b))。1ピクセルが1μm以下の極めて高精細かつ高色純度の次世代ディスプレイ実現に向け大きなインパクトのある成果である。
- ✓ GaN:Eu を発光層とする電流注入型マイクロディスク構造の実現、電流注入下で共振器モードの観測に成功。単

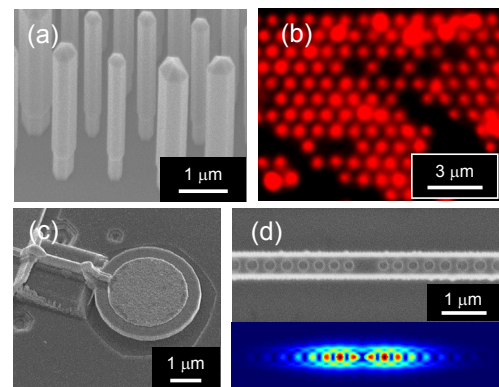


図1 成長後の GaN:Eu ナノワイヤ LED 構造の(a)SEM および(b)PDMS 膜に転写したナノワイヤの蛍光顕微鏡像、(c)電流注入型マイクロディスク構造の SEM 像、(d)GaAs:Er,O 系ナノビームフォトリソニック結晶共振器構造の SEM 像および電界強度分布

ナノ共振器構造への電極形成技術は今後のナノ光デバイス実現に向けて非常に重要な要素技術である。

- ✓ GaAs:Er を発光層とするナノビーム型フォトニック結晶の高 Q 値・低モード体積化に向けた設計・作製を行い、共振器モードとの結合に起因する発光増強の観測に成功(図1(c))。希土類添加半導体を用いた高効率且つ波長超安定な量子光源実現に向けた布石を引いた。
- ✓ n-ZnO/ZnO:Eu/Al₂O₃/p-GaN 構造を採用することにより ZnO:Eu 層を ZnO ナノワイヤ上に成膜する技術を確立し、膜成長と比して増強された Eu 発光を観測することに成功。今後、より安価で作製可能かつ環境負荷の低い ZnO を母体とした赤色発光ダイオード実現に向け有望な成果である。

3. 研究成果

希土類添加半導体とナノ共振器構造(ナノワイヤ・フォトニック結晶・マイクロディスク)を融合した光励起・電流注入光ナノデバイスのプロトタイプ実現を目指すとともに、ナノ構造・ナノ光共振器が希土類原子に与える詳細な発光メカニズムの探索を行った。以下に主な研究成果を列挙する。

高アスペクト比 GaN:Eu,O コアシェルナノワイヤの成長と電流注入による赤色 LED 実現

GaN:Eu を発光層とするナノワイヤ LED 構造(図2(a))の成長技術を確立した。成長条件の最適化によりアスペクト比が高い(~20)ナノワイヤの成長に成功した(高さ:>4μm)。また、GaN:Eu 発光層を p-GaN シェル層で覆った後、フレキシブル樹脂であるポリジメチルシロキサン(PDMS)で包埋、頭出しのためエッチバックプロセスを処置し電極形成を行う一連のプロセス技術を確立した。最後に作製したデバイスを室温にて電流注入動作させたところ、620 nm 付近にて Eu 発光に起因する明瞭な赤色発光が観測された(図2(b))。(発表実績[4,12,8,11-15,17])

電流注入型 GaN:Eu マイクロディスクの実現と共振器モードの観測

GaN:Eu を発光層とする架橋型電流注入マイクロディスク構造(図1(c))の実現のための成長・プロセス技術を確立するとともに、電極や架橋部・電極引き出し部などが共振器内の導波光に与える影響を詳細に数値計算することにより構造の最適化を行った。その結果、電流注入下において、マイクロディスク内の共振器モードである周回モードとの結合により Eu 発光を増強させることに成功した(図3赤矢印部分)。(発表実績[1,12])

GaAs:Er,O を発光層に有するナノビーム型フォトニック結晶構造の高 Q 値、低モード体積化に向けた設計と構造作製

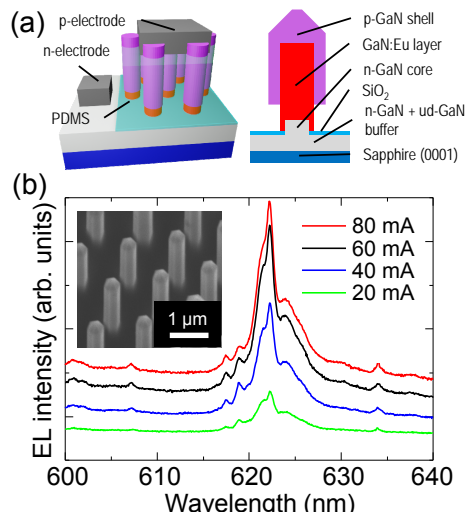


図2 (a)GaN:Eu ナノワイヤ LED 構造の模式図および(b)室温 EL スペクトルの注入電流依存性、挿入は PDMS 埋込・頭出しプロセス後の SEM 像

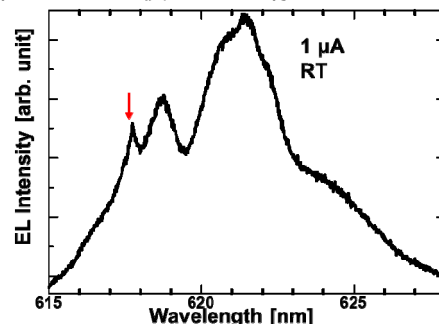


図3 GaN:Eu マイクロディスク構造の室温 EL スペクトル

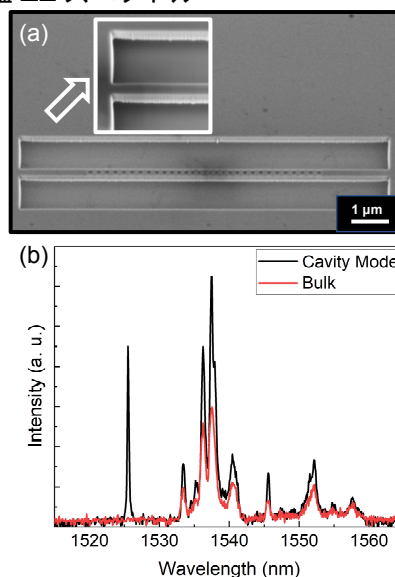


図4 (a)GaAs:Er,O を発光層に有するナノビーム型フォトニック結晶構造と(b)その低温 PL スペクトル

希土類添加半導体を発光層に有する波長超安定・高効率量子光源実現に向け、GaAs:Er,O を発光層とするナノビーム型 2 次元フォトリソニック結晶構造 (図4(a)) に注目した。円孔間隔や半径・位置などの諸パラメータを詳細に変えた数値計算を行うことにより、共振器構造の高共振器 Q 値および低モード体積化を図るべく最適化を行ったうえで、共振器構造の作製プロセスの確立を行った。その結果、極低温にて Er 発光と共振器モードの結合による Er 発光の増強を観測した (図4(b))。 (発表実績[2,7,10,15])

Eu 添加 ZnO を活性層に用いた赤色発光ダイオード構造の作製と Eu 発光特性評価

ポスト GaN として注目されている ZnO を新規母体材料として用いた Eu 添加 ZnO (ZnO:Eu) に着目し、従来困難であった p 型 ZnO に代わる材料として同じ結晶構造である p-GaN を用いたヘテロ構造を用いた LED 構造実現を目指した。ZnO 層でのキャリア再結合を促進すべく、Al₂O₃ を電子ブロック層として p/n 界面に挿入する n-ZnO/ZnO:Eu/Al₂O₃/p-GaN 構造を採用することにより (図5(a),(b)) ZnO:Eu 層を発光層に用いた LED 構造を実現し、逆方向バイアス電流注入下で Eu 発光の観測に成功した。 (発表実績[3,5,9,16])

4. 今後の展開

本研究では、従来のバンド間遷移とは異なる 4f 殻内遷移を希土類添加半導体とナノ共振器構造 (ナノワイヤ・フォトリソニック結晶・マイクロディスク) を融合した光ナノデバイス実現を目標とし、結晶成長技術や光学・構造評価技術、更にはナノデバイス構造プロセス技術やデバイス評価技術など一連の要素技術の確立を図ることが出来た。特に、**研究成果** については、フレキシブル樹脂に転写可能なナノワイヤの形状 (高アスペクト比・コアシェル型・各ナノワイヤが孤立) を維持しながら GaN:Eu 層含む p-n 構造を実現し Eu 発光を確認したことは今後の展開を踏まえても非常に大きなインパクトである。ナノワイヤの埋込層 (絶縁層) としてフレキシブル樹脂を用いており、将来フレキシブル化へも対応可能である。今後は、青や緑で発光する発光源としてナノワイヤに他の希土類元素である Tm や Tb 等を添加する成長技術の確立が必須である。さらに、ナノワイヤは両端面を反射鏡としてレーザー発振をさせることが可能であり、網膜投影ディスプレイ等の用途に向けて今回確立した高アスペクト比 GaN ナノワイヤ成長技術を用い

InGaN シェル層および GaN キャップ層を成長しレーザー動作を目指す。最終的には研究成果 や で築き上げたナノ構造への電極形成プロセス技術および他材料と組み合わせた電流注入デバイス作製技術なども活用し、RGB で発光するナノワイヤ光源 (LED・レーザー) を縦積層した超高精細フレキシブルディスプレイ実現 (図6) を目論む。また、研究成果 については、量子情報技術応用に向けて希土類原子一個からの発光を利用した波長超安定な単一光子源も引き続き研究を遂行していく。フォトリソニック結晶共振器構造から得られるパーセル効果により希土類元素の長い発光寿命が短寿命化すれば、より高効率な単一光子発生が実現できる。希土類元素を半導体に添加する性質上、他の半導体デバイスとの親和性も高く、半導体と量子技術が拓く未来社会に貢献することも可能である。

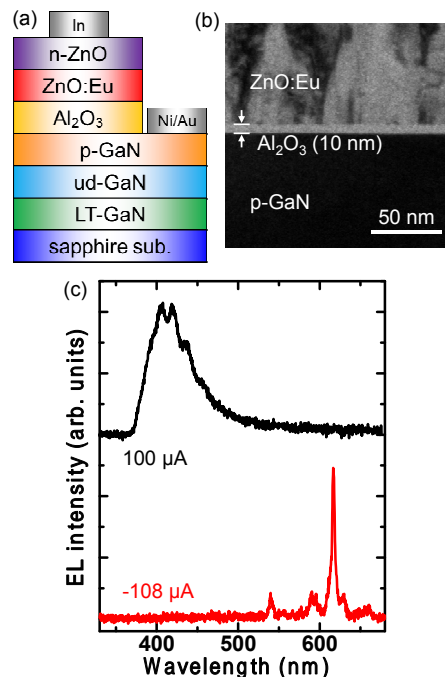


図5 (a)ZnO:Eu を発光層に有する LED 構造 および (b)ZnO:Eu/Al₂O₃/p-GaN 界面の断面 TEM 像 (c) ZnO:Eu LED 構造の順および逆方向バイアス電流注入下における室温 EL スペクトル

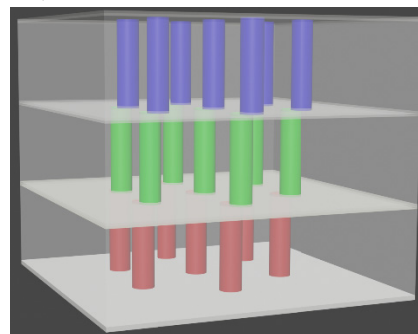


図6【将来展望】RGB で発光するナノワイヤ光源 (LED・レーザー) を縦積層

5. 発表実績

【査読付き論文】

- [1] D. Timmerman, Y. Matsude, Y. Sasaki, S. Ichikawa, **J. Tatebayashi**, and Y. Fujiwara: Physical Review Applied 14, pp. 064059/1-7 (2020).
- [2] 小川雅之、**館林潤**、藤岡夏輝、東諒磨、市川修平、近藤正彦、Dolf Timmerman、藤原康文: 材料 69 pp. 823-828 (2020).
- [3] **J. Tatebayashi**, M. Mishina, N. Nishiyama, D. Timmerman, S. Ichikawa, and Y. Fujiwara: Japanese Journal of Applied Physics 60 pp. SCCE05/1-5 (2021). (Spotlight に選出)
- [4] T. Otabara, **J. Tatebayashi**, S. Hasegawa, D. Timmerman, S. Ichikawa, M. Ichimiya, M. Ashida, and Y. Fujiwara: Japanese Journal of Applied Physics **61**, pp. SD1022/1/5 (2022).
- [5] **館林潤**、西山直登、Dolf Timmerman、市川修平、藤原康文: 材料 **71** pp. 811-818 (2022).
- [6] T. Otabara, **J. Tatebayashi**, T. Yoshimura, D. Timmerman, S. Ichikawa, and Y. Fujiwara: Japanese Journal of Applied Physics **62** pp. SG1018-1-5 (2023).
- [7] Z. Fang, **J. Tatebayashi**, D. Timmerman, H. Kajii, S. Ji, S. Iwamoto, M. Kondow, and Y. Fujiwara: submitted to Japanese Journal of Applied Physics (2023).
- [8] **J. Tatebayashi**, K. Nishimura, S. Ichikawa, S. Yamada, Y. Nakajima, K. Sato, K. Hamaya and Y. Fujiwara, in preparation for submission to ECS J. of Solid. State. Sci and Tech.

【学会発表(国際学会)】

- [9] **J. Tetabayashi**, S. Ichikawa, and Y. Fujiwara: [Invited Talk], 27th International Workshop on Active-Matrix Flatpanel Displays and Devices (AM-FPD20) -TFT Technologies and FPD Materials-, S3-3, on-line, September 1-4 (2020).
- [10] **J. Tatebayashi**, T. Nakajima, N. Nishiyama, D. Timmerman, S. Ichikawa, and Y. Fujiwara: International Conference on Nano-photonics and Nano-optoelectronics 2021 (ICNN2021), ICNN-7-01, on-line, April 19-21 (2021).
- [11] Z. Fang, R. Homi, M. Ogawa, Hirotake Kajii1, M. Kondow, **J. Tatebayashi**, and Y. Fujiwara: 31st International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-31), on-line, July 26-30 (2021).
- [12] T. Otabara, **J. Tatebayashi**, S. Hasegawa, S. Ichikawa, M. Ashida, and Y. Fujiwara: 34th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2021), 28B-3-2, on-line, October 26-29 (2021).
- [13] **J. Tatebayashi**: [Invited Talk] " 2022 ASEAN Joint Workshop, on-line, March 24 (2022).
- [14] T. Otabara, **J. Tatebayashi**, D. Timmerman, S. Ichikawa, M. Ichimiya, M. Ashida, and Y. Fujiwara: International Conference on Nano-photonics and Nano-optoelectronics 2022 (ICNN2022), ICNN2-02, Pacifico Yokohama Conference Center, Yokohama, Japan, April 18-22 (2022).
- [15] T. Otabara, **J. Tatebayashi**, T. Yoshimura, D. Timmerman, S. Ichikawa, and Y. Fujiwara: 35th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2022), 9D-4-1, Tokushima, Japan, November 8-11 (2022).
- [16] Z. Fang, **J. Tatebayashi**, H. Kajii, M. Kondow, and Y. Fujiwara: 35th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2022), 10P-3-2, Tokushima, Japan, November 8-11 (2022).

【学術講演(国内学会、招待講演のみ記載)】

- [17] **館林潤**、市川修平、藤原康文:【招待講演】第 68 回応用物理学会春季学術講演会、シンポジウム「晶癖の工学:多形・組織制御で拓く協創結晶科学」、16p-Z04-5、オンライン開催、3月16-19日(2021).
- [18] **館林潤**、藤原康文:【招待講演】第389回蛍光体同学会講演会、4、日本弘道会ビル、東京都千代田区、11月25日(2022).