

識別番号	P 1 0	2005 年度完了学内共同研究
研究課題	光通信波長域 GaN/AlN サブバンド間遷移半導体の研究	
研究代表者	岸野克巳（理工学部・電気電子工学科）	
共同研究者	江馬一弘（物理学科）、菊池昭彦（電気電子工学科）	
Summary	Optical communication wavelength intersubband transition (1 μ m range in wavelength) was realized by RF-MBE grown GaN/AlN multiple quantum well (MQW) crystals. The dynamics of the GaN/AlN ISBT was investigated by use of pump-probe technique. It was found that relaxation consisted of ultra-fast (~ 140 fs) and slower (~ 1.3 ps) components. The third order susceptibility was also estimated. We also estimated ISBT and free carrier absorption coefficient of GaN/AlN ISBT crystal. All optical modulation using ISBT resonant light (wavelength of 1.55 μ m) and induced by UV interband transition (IBT) resonant light (325 or 213 nm) was demonstrated in a GaN/AlN MQW waveguide device. The modulation was selectively occurred only for p-polarized ISBT resonant light in accordance with ISBT characteristics.	

1. 本研究の目的および背景

2003 年度から 2005 年度の 3 年間の上智大学学内共同研究によって得られた研究成果について報告する。

窒化物半導体の量子井戸構造に形成される量子準位間の遷移（Intersubband Transition: ISBT）は、LOフォノンを介するピコ(10^{-12})秒からフェムト(10^{-15})秒レベルの超高速電子緩和特性を有し、次世代の大容量光通信等への応用が期待されている技術である。しかしながら光通信波長域（波長 1.55 μ m 帯）において ISBT 現象を実現するためには原子層レベルの極限の半導体超薄膜結晶成長技術が要求されるため、共同研究を開始した 2003 年当時において、光通信波長帯（1.3 $\sim$ 1.7 μ m）での ISBT 吸収の観測は、世界的にも、我々を含むわずかな機関から報告されているに過ぎなかった。材料系は InGaAs/AlAsSb[1], ZnSe/BeTe[2], GaN/AlN 系量子井戸（QW）[3-7]等である。これらの材料系の中で、GaN/AlN 多重量子井戸（MQW）は、理論的に最も高速な吸収回復時間を示すことが期待され、超高速光スイッチへの応用の観点から魅力的な材料系として注目されていた。

電気・電子工学科の岸野研究室では分子線エピタキシー（RF-MBE 法）を用いた高品質 GaN/AlN 多重量子井戸結晶を用いて、光通信波長域における世界最高レベルの ISBT 吸収現象の観測に成功し、そのデバイス応用の可能性を探索していた。一方、物理学科の江馬研究室は、超高速光物性や非線形光学現象の研究において非常に高いレベルを有していた。このような背景のもと、本共同研究では GaN/AlN 系 ISBT の超高速現象の測定や非線形光学物性の評価、結晶成長技術の高度化による ISBT 特性の向上、さらに ISBT を用いた次世代超高速光通信デバイス応用の基礎技術の開発を目指して共同研究を実施するに至った。

2. 研究の方法・内容と共同研究員の役割分担

本研究では、岸野および菊池が RF-MBE 法を用いた GaN/AlN 超格子結晶の成長と高品質化、X 線回折測定による結晶構造解析、ISBT 吸収スペクトル測定、デバイス構造の作製と評価などを担当し、江馬が超短パルスレーザを用いた超高速吸収緩和現象の観測と評価、非線形高価物性の評価、GaN/AlN 系 ISBT 現象の物理的メカニズムの解明などを担当した。

3. 研究の成果

3. 1 GaN/AlN 量子井戸におけるサブバンド間遷移の緩和過程と非線形性

GaN/AlN多重量子井戸結晶の成長には、RFプラズマで励起した窒素ガスと金属Ga、Al、及びSiを原料とする分子線エピタキシー (RF-MBE) 装置を用いた。基板結晶には(0001)面サファイアを用い、成長室に搬送後、基板表面を初期窒化し、基板温度 800℃においてAlNバッファ層を 150nm成長し、続けてGaN井戸層(厚さ約 1.0nm)とAlN障壁層(厚さ約 2.8nm)をc軸方向に 292 周期積層した多重量子井戸構造を成長した。試料構造を図 1 に示す。GaN量子井戸の第一準位にキャリア(電子)を生じさせるために、ここではAlN障壁層にSiをドーピングする変調ドーピング法を用いた。ホール測定によって室温におけるGaN井戸層のキャリア密度は、約 $2 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ と見積もられた。

ISBT は量子井戸に垂直な電場成分のみが寄与する遷移であるため、ISBT 吸収はp偏波光においてのみ観測される。ここでは、試料表面に対してブリュースター角(約 67 度)でp偏波光を入射する配置で光吸収測定を行った。得られた吸収スペクトルを図 2 に示す。pおよびs偏波の両方において波長 310 nm における明瞭な吸収ピークが観測された。これは、GaN/AlN 多重量子井戸のバンド間遷移 (Interband Transition: IBT) 吸収である。また、p偏波光において、 $1.63 \mu\text{m}$ における吸収ピークが観測された。この吸収はs偏光では観測されず ISBT 吸収であると考えられる。半値幅は 170meV であり、広い吸収幅の起源は伝導帯バンドの非放物性や量子井戸界面の揺らぎによる不均一広がりであると考えられる。

次に、ISBTの緩和過程と非線形性を調べるためにフェムト秒レーザを用いたポンププローブ法で測定を行った。励起光源にはTi:Al₂O₃ (Mira) の再生増幅 (RegA) 光と赤外用光パラメトリック増幅器 (Optical Parametric Amplifier: OPA) を用いた。図 3 に縮退型ポンププローブ (波長約 $1.55 \mu\text{m}$) の結果を示す。p偏光に対してのみ明瞭な吸収緩和が観測され、ISBT現象に起因するものであることが確認された装置の時間分解能は $\sim 100 \text{ fs}$ である。緩和

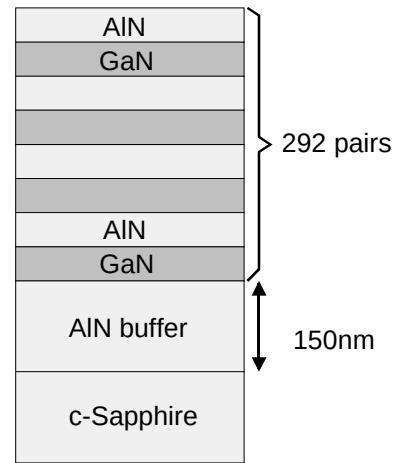


図 1. GaN/AlN-MQW 試料の構造図

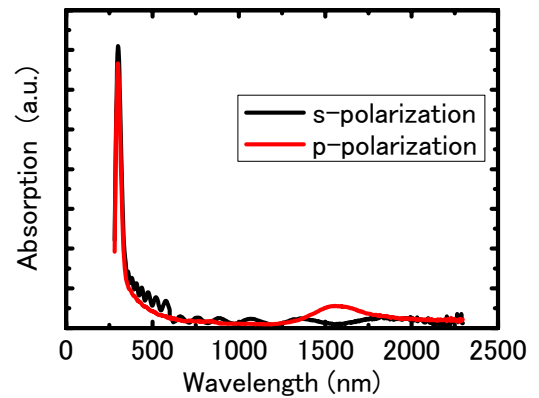


図 2. ブリュースター角配置における GaN/AlN-MQW の吸収スペクトル

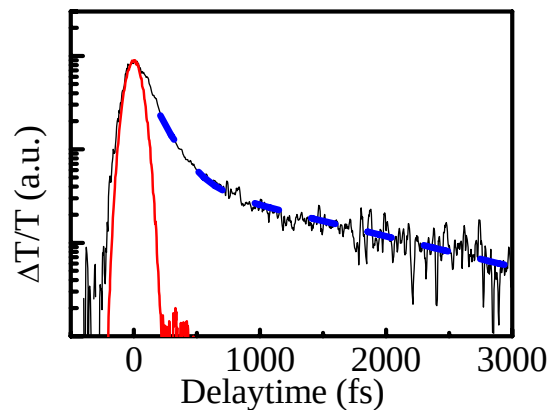


図 3. 縮退ポンププローブ信号の遅延時間依存性 (実線はp偏光プローブ光、赤線は自己相関法によるパルス波形、青鎖線は2つの指数関数によるフィッティング)

曲線を 2 成分の指数関数でフィッティングした結果、速い成分は ~ 140 fs、遅い成分は ~ 1.3 psと見積もられた。

また、 $640\sim 885$ meV の非常に広い領域における非縮退ポンププローブ測定の実験も行い、縮退測定の結果とあわせて考察することにより、GaN/AlN-MQW において観測された超高速緩和成分 (~ 140 fs) と遅い緩和成分 (~ 1.3 ps)は、それぞれ LO フォノンによるサブバンド間散乱時間、hot-phonon 効果を含む電子冷却時間であることを明らかにした。

遅延時間 ~ 0 fsにおける信号強度のポンプ光強度依存性から 3 次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ と吸収飽和強度 I_s を見積もり、GaN/AlN系ISBTの非線形性の大きさについても調べた。本研究では縮退 ($1.55\ \mu\text{m}$) 以外に、非縮退[A-a] (ポンプ $1.65\ \mu\text{m}$ 、プローブ $1.55\ \mu\text{m}$) と非縮退[B-a] (ポンプ $1.55\ \mu\text{m}$ 、プローブ $1.65\ \mu\text{m}$) においても非線形性を見積もった。結果を表 1 にまとめる。本測定はブリュースター配置で行ったため、入射電場とISBT双極子モーメントの相互作用が理想の場合 (導波路型) に比べてかなり小さく見積もられる。導波路型における理想の場合では、吸収は $\alpha_0\sim 4.1\times 10^4\ \text{cm}^{-1}$ 、吸収飽和強度は $I_s\sim 6.4\ \text{GW/cm}^2$ 、3 次非線形感受率は $|\chi^{(3)}|\sim 2.2\times 10^{-16}\ \text{m}^2/\text{V}^2$ と見積もられた。表 1 には、導波路型構造を適用した場合に換算した I_s および $|\chi^{(3)}|$ の値も同時に示す。

表 1. ブリュースター角配置と導波路型での吸収飽和強度と 3 次の感受率

	ブリュースター	ブリュースター	導波路型	導波路型
試料 : EP768	I_s (GW/cm ²)	$ \chi^{(3)} $ (m ² /V ²)	I_s (GW/cm ²)	$ \chi^{(3)} $ (m ² /V ²)
縮退	40	5.5×10^{-18}	6.4	2.3×10^{-18}
非縮退[A-a]	70	3.1×10^{-18}	11	1.2×10^{-18}
非縮退[B-a]	200	1.4×10^{-18}	32	5.6×10^{-18}

3. 2 ISBT 吸収係数のキャリア濃度依存性

RF-MBE法によって成長したGaN/AlN多重量子井戸結晶の表面にSiO₂リブ導波路を作製し、ファイバー測定系で吸収測定を行なうことにより、低キャリア濃度 ($n=10^{18}\sim 10^{19}\text{cm}^{-3}$) における自由キャリア吸収係数とISBT吸収係数を測定した。一方、高キャリア濃度 ($n=10^{19}\sim 10^{21}\text{cm}^{-3}$) の試料に対してはブリュースター角入射法や端面入射法を適用することによってISBT吸収を測定した。一般に、サファイア基板上に成長したGaN結晶中には多くの貫通転位が含まれる。ここではAlN多重中間層技術[8,9]を用いて結晶中の貫通転位を低減した。

自由キャリア吸収係数のキャリア濃度依存性を図 4 に、ISBT吸収係数を図 5 に示す。いずれの場合においてもキャリア濃度の増加に伴う吸収係数の増加が確認された。キャリア濃度は、ホール測定によって得られた値から、キャリアがGaN井戸層にのみ存在すると仮定して算出した。自由キャリア吸収係数は、キャリア濃度 $1\times 10^{19}\ \text{cm}^{-3}$

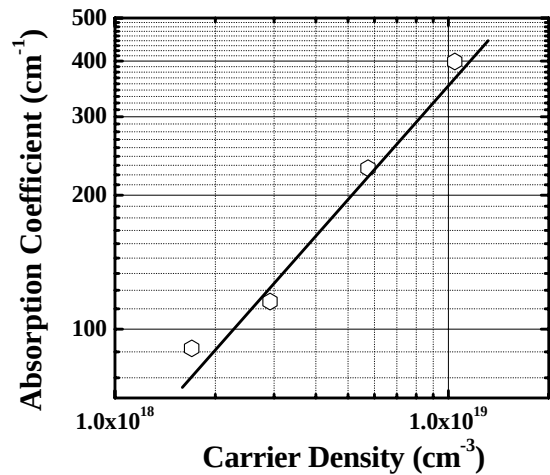


図 4. 自由キャリア吸収係数のキャリア濃度依存性

の時に約 400 cm^{-1} と見積もられ、GaAs系で報告されている値に比べて数倍大きな値となった。ISBT吸収係数は、複数の測定法で得られたISBT吸収係数はキャリア濃度に対してほぼ線形に増加し、系統的な依存性を有することが確認された。図中の破線はISBT吸収スペクトルの理論値であり、ピーク波長を $1.55\mu\text{m}$ 、半値全幅を 100meV と仮定して計算した。理論計算値は実験値の傾向と良い一致を示した。絶対値が異なる理由は、実験で得られたISBT吸収の半値全幅が 100meV より広い、ピーク波長が $1.55\mu\text{m}$ に一致していないことなどが考えられる。本実験によって、キャリア濃度 $1 \times 10^{18} \sim 4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ の広い範囲でISBT吸収係数を見積もることができた。[10]

これらのパラメータは ISBT デバイスを設計するための基礎データであり、GaN/AlN 系 ISBT を用いた光制御スイッチなどへ向けた展開が期待される。

3. 3 SiO₂リブ導波路型GaN/AlN系ISBT光変調デバイスの作製と評価

図6に作製したGaN/AlN MQWをコア層するSiO₂リブ導波路デバイス構造を示す。基板には(0001)面サファイア基板を用い、高温AlNバッファ層(200 nm)を成長した後、アンドープGaN/AlN MQWを90周期成長した。GaN井戸層厚とAlN障壁層厚は、それぞれ1.82 nmおよび2.93 nmである。このMQW層の上に、厚さ1 μm 、幅15 μm 、長さ1500 μm のSiO₂を装着し、マルチモードSiO₂リブ導波路を作製した。導波シミュレーションによる解析の結果、GaN井戸層への光閉じ込め係数は約27%と見積もられた。

IBT共鳴光を用いたISBT誘起実験の測定系を図7に示す。ISBT共鳴光には波長可変レーザの1550 nm光を用いた。IBT共鳴光源には、波長325 nmのHe-Cdレーザと波長213 nm、パルス幅3.5 nsのNd:YAGレーザを用いた。ISBT共鳴光は、グラントムソンプリズムと $\lambda/2$ 板により偏光を制御し、それを光ファイバー端面からの直接結合により導波路に入射した。一方IBT共鳴光は、機械式チョッパーで強度変調を与えた後、シリンドリカルレンズで幅30 μm 、長さ3000 μm に集光し、導波路上に照射した。導波路からの出射光はマルチモードファイバで受け、

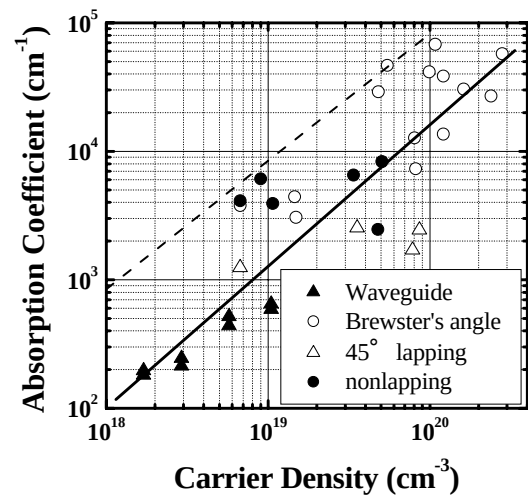


図5. ISBT 吸収係数のキャリア濃度依存性

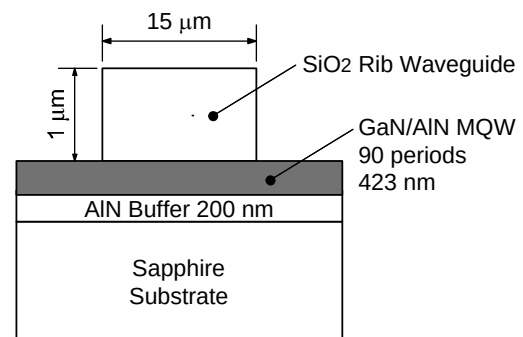


図6. SiO₂リブ導波路デバイス構造

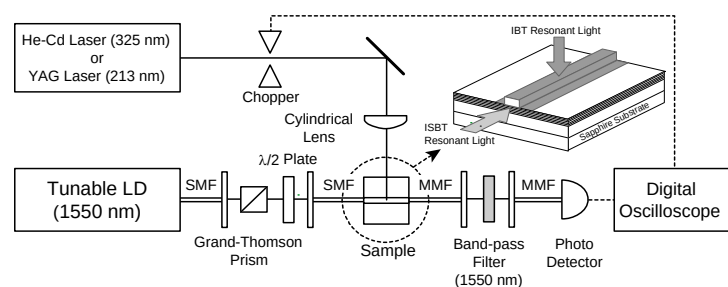


図7. IBT 共鳴光による ISBT 吸収誘起測定系

立ち上がり時間 3 ns の InGaAs ディテクタで受光し、デジタルオシロスコープで観測した。IBT 共鳴光による ISBT 誘起の検証を行った。図 8 は、チョッパーにより 250 Hz で変調した IBT 共鳴光を照射した時の ISBT 透過光(1.55 μm)強度の時間変化である。IBT 共鳴光非照射時（破線）には、ISBT 透過光強度に変化は観られず、IBT 共鳴光照射時（実線）では IBT 共鳴光に与えた変調が ISBT 透過光強度変化に現れた。

また、本デバイスの応答特性を評価するためにパルス幅約 5ns の Nd:YAG レーザ光入射時の、ISBT 透過光強度の時間変化を測定した。波形を double exponential 関数でフィッティングを行うと、速い緩和時間 $\tau_1=5$ ns、遅い緩和時間 $\tau_2=660$ ns と見積もれた。速い緩和成分は通常 の 自然放出、遅い緩和成分は欠陥準位等に起因した緩和過程であると予想される。

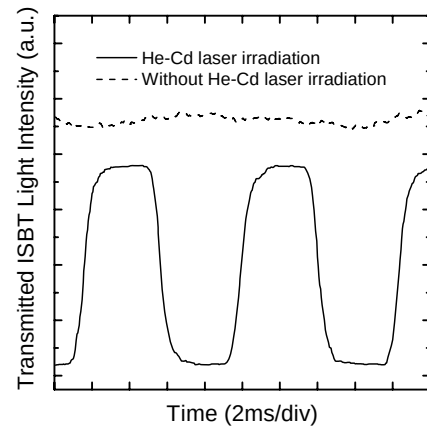


図 8. IBT 共鳴光により励起された ISBT 吸収による 1.55 μm 光の変調実験

4. 研究成果のまとめ

本学内共同研究では、電気電子工学科岸野研究室と物理学科江馬研究室の相互協力により GaN/AlN 多重量子井戸結晶の量子準位間遷移 (ISBT) の学術側面と応用的側面に対する多くの研究成果が得られた。紙面の都合上全ての成果を述べることはできなかったが、主たる成果を以下に簡単にまとめる。

超高速キャリア緩和過程に関する超高速ポンププローブ法を用い、GaN/AlN 超格子結晶における ISBT 吸収緩和時間の測定に成功し、約 140fsec 程度の超高速緩和を確認した。これは、GaN/AlN 系 ISBT の超高速光デバイス応用の可能性を検証する成果であった。また、ピコ秒領域の遅い緩和成分が同時に存在していることを見出した。レーザ光強度を変化させることにより光通信波長帯での ISBT 吸収の飽和強度と三次の感受率を見積もった。飽和強度は 4.3 GW/cm²、三次の感受率は $2.2 \times 10^{-16} \text{ m}^2/\text{V}^2$ と見積もられ、これは超高速緩和に起因する妥当な値であった。

窒化物系 ISBT を利用した次世代超高速光デバイスの実現に向けて、分子線エピタキシー法によりサファイア基板上に成長した GaN/AlN 超格子結晶に SiO₂ ストライプを付加したリブ導波路構造を用いて ISBT 吸収の偏波依存性を観測した。また、キャリア濃度 $1 \times 10^{18} \sim 3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ という広い範囲において、光通信波長帯である 1.55 μm 付近での ISBT 吸収係数のキャリア濃度依存性を測定した。GaN/AlN 系 ISBT を利用した光デバイスを設計する上で重要なパラメータである自由キャリア吸収係数のキャリア濃度依存性も測定した。

ISBT の光デバイス応用として、GaN/AlN-MQW のバンド間遷移 (Interband Transition: IBT) 光によって量子井戸の第一準位にキャリアを励起して ISBT 機能を発現させるタイプのデバイス構造を提案し、その動作を検証した。このデバイスは、紫外光の on/off によって ISBT 波長である赤外光 (例えば光通信波長帯である波長 1.55 μm の光) の吸収を制御することができる。本デバイス構造を用いることによって、空間的に超高速 ISBT デバイスを光によってランダムアクセスで活性化でき、高性能なマトリックス光スイッチへの応用などが考えられる。本研究では、アンドープ GaN/AlN MQW 導波路デバイスを作製し、IBT 緩和時間やサ

ブバンド間吸収の IBT 励起強度依存性を調べた。

本学内共同研究によって、GaN/AlN 多重量子井戸における光通信波長域 ISBT に関する多くの知見が得られた。

5. 今後の課題と展開

岸野研究室と江馬研究室の窒化物系 ISBT に関する共同研究は現在も継続中であり、導波路構造における超高速緩和現象の観測と光通信波長光の高速変調の検証がデバイス応用に向けた課題である。

また、直径約 100nm、長さ 1 μ m 程度の貫通転位を含まない柱状 GaN 結晶（ナノコラム）中に GaN/AlN 超格子結晶を内在し、ISBT 吸収を観察することに成功した。この技術を用いて高品質 ISBT 結晶を実現することができれば、超高速受光素子や量子カスケードレーザなどへの新しい展開が期待される。

参考文献

- [1] T. Mozume, H. Yoshida, A. Neogi and M. Kubo, “1.45 μ m intersubband absorption in InGaAs/AlAsSb grown by molecular beam epitaxy” Jpn. J. Appl. Phys., vol. 38, Pt.1, No.2B, pp.1286-1289, Feb. 1999.
- [2] R. Akimoto, Y. Kinpara, K. Akita, F. Sasaki and S. Kobayashi, “Short-wavelength intersubband transitions down to 1.6 μ m in ZnSe/BeTe type-2 superlattices”, Appl. Phys. Lett., vol.78, no.5, pp.580-582, Jan. 2001.
- [3] C. Gmachl, H. M. Ng, S. -N. G. Chu and A. Y. Cho, “Intersubband absorption at $\lambda \sim 1.55$ μ m in well and modulation-doped GaN/AlGaIn multiple quantum wells with superlattice barriers”, Appl. Phys. Lett., vol.77, no.23, pp.3722-3724, Dec. 2000.
- [4] C. Gmachl, H. M. Ng and A. Y. Cho, “Intersubband absorption in degenerately doped GaN/Al_xGa_{1-x}N coupled double quantum wells”, Appl. Phys. Lett., vol.79, no.11, pp.1590-1592, Sep. 2001.
- [5] J. D. Heber, C. Gmachl, H. M. Ng and A. Y. Cho, “Comparative study of ultrafast intersubband electron scattering times at ~ 1.55 μ m wavelength in GaN/AlGaIn heterostructures”, Appl. Phys. Lett., vol.81, no.7, pp.1237-1239, Aug. 2002.
- [6] Norio Iizuka, Kei Kaneko and Nobuo Suzuki, “Near-infrared intersubband absorption in GaN/AlN quantum wells grown by molecular beam epitaxy”, Appl. Phys. Lett., vol.81, no.10, pp.1803-1805, Sep. 2002.
- [7] Katsumi Kishino, Akihiko Kikuchi, Hidekazu Kanazawa and Tetsuo Tachibana, “Intersubband transition in (GaN)_m/(AlN)_n superlattices in the wavelength range from 1.08 to 1.61 μ m”, Appl. Phys. Lett., vol.81, no.7, pp.1234-1236, Aug. 2002.
- [8] Daisuke Sugihara, Akihiko Kikuchi, Kazuhide Kusakabe, Shinichi Nakamura, Yousuke Toyoura, Takayuki Yamada and Katsumi Kishino, "High-quality GaN on AlN multiple intermediate layer with migration enhanced epitaxy by RF-molecular beam epitaxy", Jpn. J. Appl. Phys., 39, 3A/B, pp. L197-L199, 2000.
- [9] Akihiko Kikuchi, Takayuki Yamada, Daisuke Sugihara, Kazuhide Kusakabe, Shinichi Nakamura, Yousuke Toyoura, and Katsumi Kishino, "Improvement of crystal quality of RF-plasma assisted molecular beam epitaxy grown Ga-polarity GaN by high-temperature grown AlN multiple intermediate layers", Jpn. J. Appl. Phys., 39, 4B, pp. L330-L333, 2000.
- [10] 石井 洋平, 森田 高行, 松井 聡, Petter Holmström, 菊池 昭彦, 岸野 克巳, “GaN/AlN 超格子における ISBT 吸収係数のキャリア濃度依存性”, pp.29-33, 電子情報通信学会, 愛媛, 2003.