

光波長域 3 次元フォトニクス結晶実現へ向けて

——自然放出光の完全制御のために——

野 田 進

光波長域において 3 次元フォトニクス結晶の実現を目指して現在試みられている方法を紹介する。まず最初にフォトニクス結晶の狙い、特に自然放出光の完全制御に関して述べた後、光の全伝搬方向にフォトニックバンドギャップを形成するために必要な構造的条件について説明する。続いて、光波長域でフォトニクス結晶実現を目指して現在なされている例を 2 件紹介し、3 次元結晶を実現するための指針を示す。

1. フォトニクス結晶とその狙い

フォトニクス結晶は、その内部に 3 次元の周期的屈折率分布をもつ新しい光材料である¹⁾。ちょうど固体結晶において、原子核により構成される周期的なポテンシャル分布によってバンドギャップが形成されるのと同様の原理で、光子のエネルギーに対してフォトニックバンドギャップが形成される。その結果、フォトニックバンドギャップに相当するフォトンエネルギーをもつ光は結晶中を伝搬し得ないことになる。その意味では、フォトニクス結晶は 3 次元の光フィルターに相当するものであると考えることも可能である。しかしながら、フォトニクス結晶の狙いは単なるフィルターではなく、フォトニクス結晶中に発光体（半導体量子構造等）を埋め込み、発光体の存在する場を通常真空場から全く異なった場とし、発光現象そのものを場の方から制御しようとするところにある。ここにフォトニクス結晶の新しい物理および産業応用が開けることになる。

では、フォトニクス結晶に発光体（特に半導体発光体）を埋め込むことの効果について考えてみる。今、発光体の発光波長がちょうどフォトニックバンドギャップに相当す

る波長範囲にあったとする。この発光体が真空場中におかれるときは、通常のフォトルミネセンス(PL)、エレクトロルミネセンス(EL)のように、光励起、電流励起により、あるスペクトル広がりをもった発光現象が見られることになる。ここで、この発光体をフォトニクス結晶中に埋め込み、発光体の場を、真空場からフォトニクス結晶場に変化させたとする。この場合、フォトニクス結晶は、発光体から発せられる光を受け入れる状態をもたないため、発光体の発光そのものが禁止されることになる。もっといえば、励起された電子は、発光過程によって基底状態に緩和することはできなくなり、発光寿命が真空場の寿命から大幅に延びる。その結果、励起された電子は非発光過程で消失するまで、その状態を維持しようとするわけである。フォトニクス結晶がフィルターと違う最大の点は、フィルターは発せられた光を制御しようとするもので、フォトニクス結晶は上記のように電子の発光遷移そのものを根本的に制御しようとするところにあるのである。

さて、ここで、フォトニクス結晶の屈折率分布に何らかの乱れ（いわゆる欠陥）を導入すると、通常固体結晶の場合にバンドギャップ中に準位が形成されるのと同じように、フォトニクス結晶中に光の伝搬可能な準位が形成されることになる。この準位のエネルギー幅は、欠陥の導入程度に依存するが、あまり大きな欠陥を導入しない場合は、そのエネルギー幅は非常に狭くなる。ここで、この欠陥に起因するエネルギー準位が発光体の発光スペクトル内にくるように設計すれば、発光体の励起状態にある電子は、今まで発光緩和ができなかったのが、新たな緩和過程を見いだして、すべてこの準位に結合する光を放出し、基底状態へと緩和することになる。したがって、発光スペクトル幅の非常に狭い高効率な発光現象が期待されることになる。つまり、超効率単一波長発光ダイオードという非常に興味

京都大学工学研究科電子物性工学専攻（〒606-01 京都市左京区吉田本町）
E-mail: snoda@kuee.kyoto-u.ac.jp

深いデバイスができるわけである。これをさらに一歩進めれば、真の意味での無閾値レーザーの実現が期待されることになる。また、指向性においても、欠陥の導入の仕方により、希望する方向のみに非常に急峻な発光パターンを描かせることが可能となる。このようにフォトニクス結晶を用いることにより、光を究極的に制御した新しい光デバイスへの展開が期待できることになる。

さて、3次元フォトニクス結晶は、このように物理的、工学的に非常に興味深い材料であるにもかかわらず、これまで光の波長域 ($\lambda < 100 \mu\text{m}$) では未だ実現されておらず、マイクロ波～ミリ波の領域にとどまっているのが現状である。これは、フォトニクス結晶実現のためには半波長程度の極微細3次元プロセス技術が要求され、バンドギャップ波長が短くなればなるほど、プロセス技術が大幅に困難になるためである。もちろんマイクロ波やミリ波の領域であっても、様々な興味深い応用が考えられるが、上記の発光現象のフォトニクス結晶場による制御という点では、光波長域における3次元フォトニクス結晶の実現が不可欠である。分布帰還型半導体レーザーがフォトニクス結晶の一種であるといわれることがよくあるが、これは回折格子を設けた方向以外の他のすべての方向に非常に多くの許容状態をもつため、上述の自然放出光の完全制御という点からすれば、フォトニクス結晶とは根本的に異なるものといわざるを得ない。2次元構造の場合は、1次元構造に比べると光の制御の次元が1次元上がるため、その効果は相当上がることが期待されるが、それでも残り一方向に許容状態が存在することを考えると、自然放出の完全制御という観点からは、不十分といわざるを得ない。したがって、フォトニクス結晶分野における現在の最大の課題は、いかに3次元結晶を実現させるかということにある。本稿では、光波長域において3次元フォトニクス結晶実現のためにどのような試みが現在なされているかについて紹介し、その実現のための指針を示す。

2. 3次元フォトニクス結晶実現に必要な構造的条件

媒質中に単に3次元周期的屈折率分布を設ければ、必ず光の全伝搬方向にフォトニックバンドギャップが形成され、3次元フォトニクス結晶が実現できるかというところではない。当初は、フォトニックバンドギャップが形成される構造を見いだすため、様々な試行錯誤がマイクロ波領域において繰り返された。これは、固体結晶における電子波がスカラー波であるのに対し、光はベクトル波であるため、光の全伝搬方向にバンドギャップが形成される条件はかなり厳しくなるためと考えられる。例えば、(対称)面

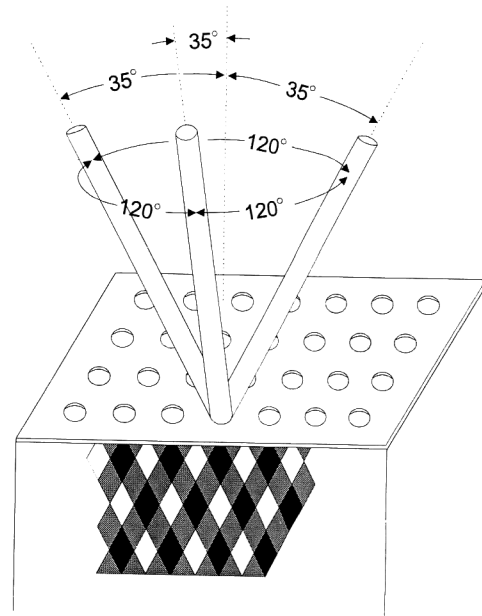


図1 最も初期にマイクロ波の全伝搬方向にフォトニックバンドギャップをもつことが示された構造。六方構造に並べられた各格子点において3方向から穴を開けることにより実現される。

心立方構造では、固体結晶の場合では電子波の全伝搬方向にバンドギャップが形成されるのに対し、フォトニクス結晶では、ブリルアンゾーンのW点において縮退がみられ、その方向に伝搬する光に対しては許容状態が存在し、完全なバンドギャップが形成されないことになる²⁾。この面心立方構造では、第一ブリルアンゾーンの形状が最も球状に近く、すべての方向に伝搬する光に対するバンドギャップが重なりやすいと考えられるにもかかわらずである。様々な試行錯誤の結果、まず最初に、全方向にフォトニックバンドギャップが形成されることが見いだされたのは、面心立方構造の対称性を崩した図1に示す構造であった¹⁾。これは、図に示されるように、誘電体 ($\epsilon_r = 12$) に3方向からドリルで穴を開けたものである。ここに、それぞれの穴は垂直軸から35.26°の角度で、互いに120°ずつの角度差をもった軸に沿って開けられている。この構造に対するブリルアンゾーンは基本的には面心立方構造に相当するが、その作製法からわかるように理想的な面心立方構造に非対称を導入した構造となっており、どちらかというダイヤモンド構造に近い構造となっている。理論計算においてもダイヤモンド構造の場合、確かに全方向にフォトニックバンドギャップが形成されることが示されている²⁾。

上記のように、完全なフォトニックバンドギャップが形成されるためには、その構造として面心立方構造の対称性を崩したものや、ダイヤモンド構造等をとる必要があることがわかる。また、十分大きなバンドギャップを形成する

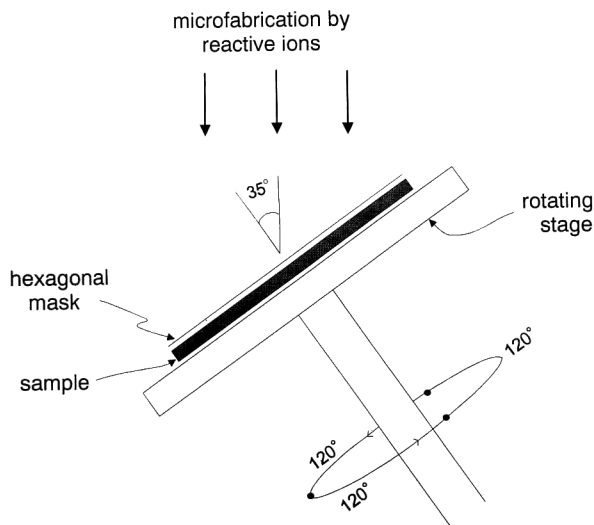


図2 図1の構造を光領域で作製するための半導体ドライエッチング装置の概略。

ためには、屈折率の大きな(n_1)媒質中に、屈折率の小さな(n_2)格子点を形成する必要があり、 n_1 と n_2 の差は最低でも2倍以上ある必要がある。さらに、自然放出光の制御という点や、将来的な光デバイス応用という観点から考えると以下のような要求を満たす必要がある。

- (1) 材料は半導体がベースになっていること。
- (2) 発光体を結晶中に埋め込むことが容易であること。
- (3) 屈折率の乱れ(欠陥)の導入が容易であること。
- (4) 電気を流すことが可能であること。

3. 光波長域3次元フォトニクス結晶の実現方法

前項の議論を踏まえ、現在までに試みられている光波長域でのフォトニクス結晶実現方法を以下に示す。これらは現在考えられる方法の中で最も可能性の高い方法であるといえる。

3.1 半導体3方向ドライエッチング法による作製

この方法は、図1において示したドリルを用いて誘電体に3方向の穴を開ける方法をスケールダウンし、半導体の異方性エッチング技術を用いて作製しようとするものであり、CaltechとUCLAのグループにより提案され、研究が進められている^{3,4)}。

この構造の実現のためのプロセスの概略を以下に示す。材料はGaAs系半導体を用い、空気と半導体層により結晶を構成する。基本的にはアスペクト比の非常に高いドライエッチングを3回繰り返すもので、そのプロセスに耐えるべく、まずドライエッチングマスクの作製に工夫がなされる。エッチングマスクは3層からなっており、上から35 nm厚のAu、40 nm厚のCr、さらに300 nm厚のSiO₂から構成

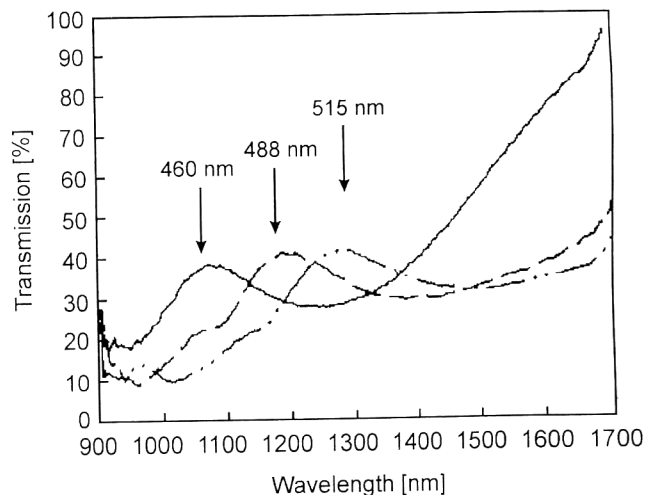


図3 3方向半導体ドライエッチングにより作製されたフォトニクス結晶の光透過特性。

されている。これらは、電子ビームリソグラフィ技術により、図1に示したような六方構造にパターンニングされる。ここでAuはArイオンミリングにより、Crはウェットエッチングにより、SiO₂はC₂F₆反応性イオンエッチングによりそれぞれエッチングされる。このドライエッチングマスクを用い、図2に示した装置により、GaAs層を化学反応援用型イオンビームエッチング(CAIBE)法によりエッチングする。エッチングガスとしては、Arイオンビームに援用されたCl₂ガスを用いている。作製される結晶構造は、図1に示す非対称面心立方構造で、基板に垂直方向がフォトニクス結晶の(111)面となる。エッチングは[110]に等価な方向に、回転ステージを120°ずつ回転しながらエッチングを繰り返すことになる。

現在のところ、格子間隔が500 nm程度で、面心立方の基本格子厚さ程度(ドライエッチングのアスペクト比2~3程度)に相当する結晶の作製に成功している。図3に[111]方向における近赤外域における光透過特性結果を示す。図において、透過光強度が減少している波長領域が存在し、その領域が格子間隔を変えることで変化していることから、バンドギャップ領域が形成されつつあることがわかる。今のところ、その減衰割合は小さいが、これは、エッチングとともに穴の大きさが変化していること、面内にわたって十分均一なものできていないこと等に起因する。

この作製方法における課題は、上記に示したドライエッチングの均一性の向上に加え、(a)この方法ではドライエッチングにより一気に構造を作製してしまうため、任意の屈折率の乱れ(欠陥)をどのように導入するか、(b)また発光層の導入をどのようにするか、(c)ドライエッチングにおけるダメージをどのようにするか、等が存在する。今後、

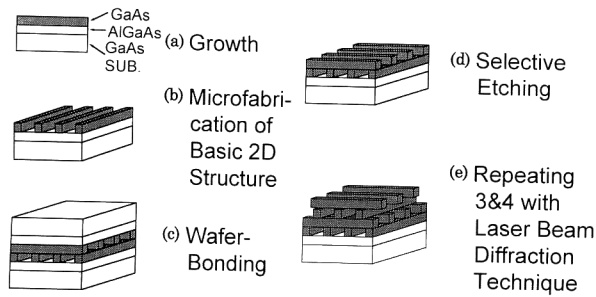


図4 レーザービーム回折パターン観察半導体ウエハー融着法によるフォトニクス結晶作製法。

ドライエッチング技術の進展等、これらの点が改善されるものと期待される。

3.2 レーザービーム回折パターン観察半導体ウエハー融着法による作製

この方法は、半導体の2次元基本構造をウエハー融着法を用いて3次元的に積層することにより結晶を得ようとするものであり、筆者らが提案し研究を進めている方法である^{5,6)}。積層の際、高精度の位置合わせが要求されるが、レーザービーム回折パターン観察を行い、数十nm程度の精度での位置合わせを達成することが可能である。

図4にその作製手順を示す。材料系としてはAlGaAs/GaAs半導体を用いることが想定されているが、他の材料系、例えばInGaAsP/InPを用いることも可能である。(a)まず半導体基板上にフォトニクス結晶の材料となる半導体薄膜層(ハッチ部GaAs層)を成長する。同図におけるAlGaAs層は以後のプロセスにおける選択エッチングストップ層として用いる。(b)2次元基本構造(図ではストライプ構造)を電子ビーム露光(あるいは光露光)およびドライエッチングプロセスにより形成する。(c)2次元基本構造を施したウエハーを2枚、90°角度をずらして重ね合わせ、水素雰囲気中で加熱することによりウエハー融着を行う。(d)不要部である一方の基板とAlGaAsエッチングストップ層を順次、選択エッチング技術を用いて除去する。(e)(d)で得たウエハーを2つに分割し、上記(c),(d)のプロセスを繰り返すことにより3次元フォトニクス結晶を得ることができる。結晶の層厚はプロセスの繰り返しごとに倍々が増えていくことになる。十分なフォトニックバンドを得るためには、上述のプロセスを2~3回程度(積層数にして8~16層)繰り返せばよいと考えられる。

以上により得られる結晶構造は、直行するストライプ構造を2層積層したものが面心立方構造の{001}面を形成し、結果として非対称面心立方構造が得られる。前項でも述べたように、得られる構造は面心立方構造に非対称性が

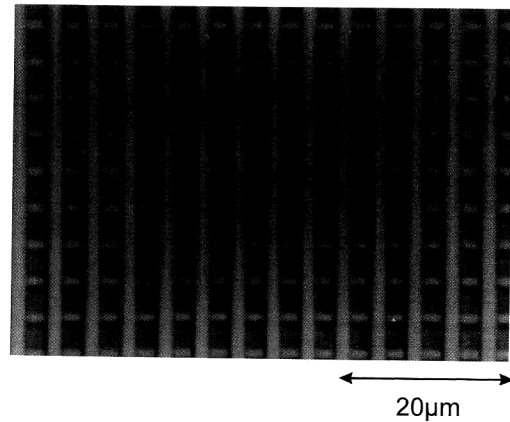


図5 図4(d)まで作製したウエハーのノルマルスキー顕微鏡写真。

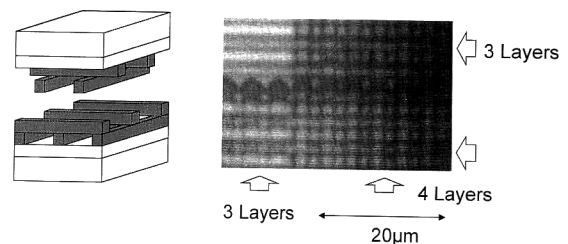


図6 図4(e)に相当する1周期のフォトニクス結晶の赤外透過写真。

導入されているため、この構造は光の全伝搬方向に対してフォトニックバンドギャップが形成される⁷⁾。

さて、上記のプロセスに従ってフォトニクス結晶の実現が可能かどうかを検討した結果を以下に述べる。2次元基本構造のストライプパターンとしては、幅 $1\mu\text{m}$ 、周期 $4\mu\text{m}$ のものを用いた。光露光と反応性イオンエッチング(RIE)により、上記のストライプパターンを形成し、図4(d)まで終了したウエハーの表面写真を図5に示す。同図より、左右に走るストライプ上に、上下に走るストライプが均一に融着されていることがわかる。この融着されたストライプは超音波洗浄に耐えるほど安定であった。次に、これら2層積層ストライプ同士をさらに融着したウエハーの赤外透過写真を図6に示す。同図から、ストライプ層の4層の積層が達成できていることがわかる。これは、ちょうど図4(e)に相当し、1周期のフォトニクス結晶が実現できていることを示しており、ほぼ、この方法によりフォトニクス結晶の実現が可能であると考えられる。

さて、上記のプロセスにおいて最も重要なのは、図4(e)に示された構造からわかるように、1層隔てて平行するストライプ層は半周期ずつ互いにその位置をずらさなければならないことである。そのために筆者らは図7に示すようなレーザー光回折パターン観察に基づく位置合わせ装置を

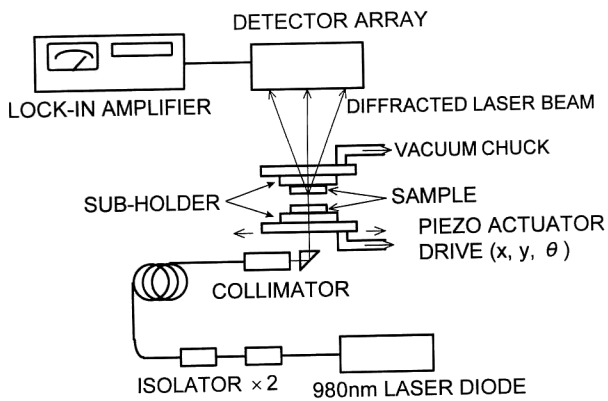


図7 レーザービーム回折パターン観察法による精密位置合わせ装置の概略。

最近開発した⁸⁾。各層ごとに形成されたストライブは基本的に回折格子に相当する。したがって位置合わせは図8(a)に示すように2枚の平行な回折格子にレーザー光を垂直入射し、両者の相対位置に対して、その回折パターン(図8(b)参照)の強度変化を観察することにより位置合わせすることができる。このとき簡単な解析から、ちょうど位置が半周期ずれたとき、 ± 1 次の回折スポット強度が最弱になることがわかる(厳密には、回折格子間の距離、回折格子間の多重反射の影響により様子は若干異なる)。したがって、図4(e)の4層の積層時の水平、垂直2層ごとの位置合わせには、それぞれの方向の ± 1 次の回折スポットが最弱になる位置を探しながら行うことになる。8層、16層積層時の位置合わせの場合は、2次の回折スポットを利用し、その強度が最大になる点を探して位置合わせすることが可能である。図7の装置は、波長980nmの半導体レーザー光を2個のアイソレーターを介して試料に導くようになっており、試料はサブホルダーを介して装置本体に真空吸着されるようになっている。一方の試料は、50nmの精度をもつピエゾ素子で精密移動できるようになっている。試料により回折された光は受光器アレイで受光され、ロックイン手法で回折スポットの強度変化を検知する。位置合わせ後、サブホルダーごと試料を本体から取り出し、加熱炉にて水素雰囲気中で融着する。図9に、こうして位置合わせ後に融着された2組のストライブの電子顕微鏡写真を示す。同図から、2組のストライブが正確に半周期ずれて融着一体化されていることがわかる。現在のところ、位置合わせ精度はピエゾ素子の精度で決まっており、ほぼ50nm程度の誤差で位置合わせ可能であるのではないかと考えている。この程度の誤差があるとき、仮にフォトリソバンドギャップ波長が $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ ($\hbar\omega = 0.8 \text{ eV}$)である結晶(ストライブ周期: $0.62 \mu\text{m}$, 幅: $0.16 \mu\text{m}$)を作製したとき、フ

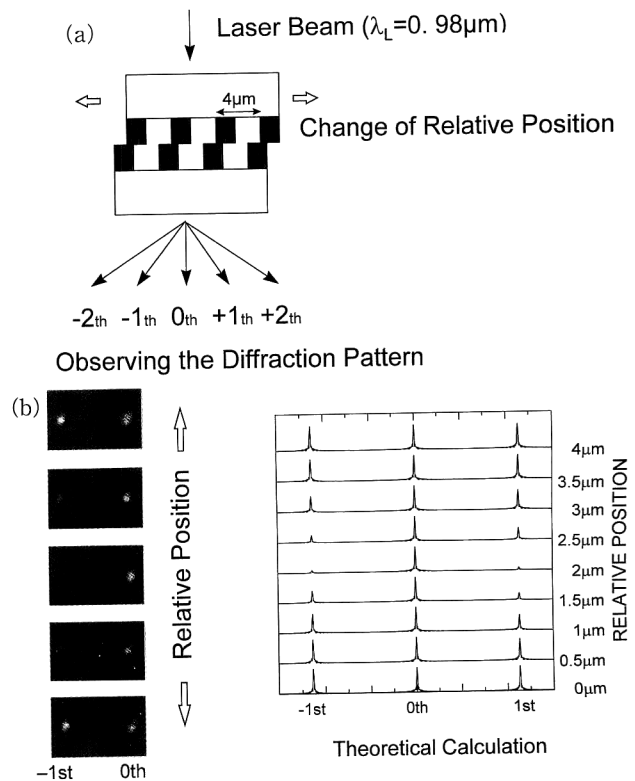


図8 (a) 位置合わせの原理。(b) 2枚の回折格子の相対位置に対する回折パターンの変化。0次および-1次の回折パターンの変化の実験結果およびその変化の理論計算結果が示されている。

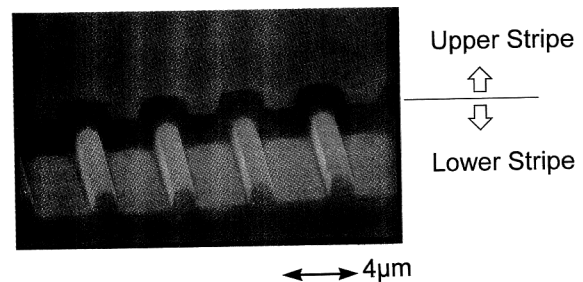


図9 2枚の平行するウエハーの位置合わせ、ウエハー融着結果。位置合わせ精度はピエゾ素子の精度50nmで決まっていと考えられる。

ォトニックバンドギャップの大きさにどのような影響があるかを大ざっぱに計算したところ、バンドギャップはゆらぎのない場合の50~60%程度になることがわかった⁹⁾。この程度のバンドギャップの縮小があっても、最終的に得られるバンドギャップ幅は、エネルギーにして90 meV程度となるため、室温エネルギー26 meVと比べて十分大きく、自然放出光制御にとっては問題がないと考えられる。

次に、このようなウエハー融着法により、発光体を埋め込んだときに実際に光デバイスとして動作しうるかを検証するため、図10(a)に示すように空気/半導体層からなる回折格子をウエハー融着法により活性層に近接して、そのレ

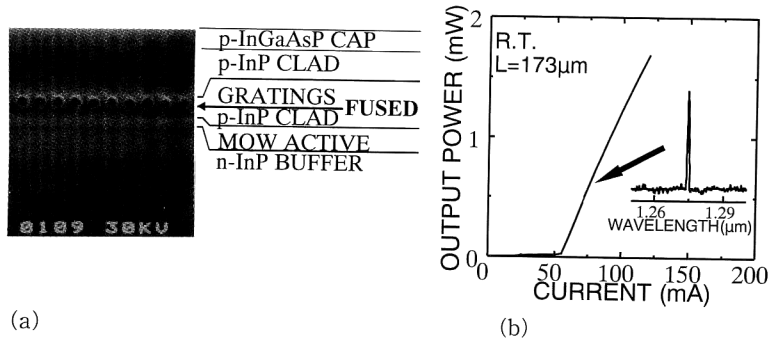


図10 (a) 発光層の挿入の可否を調べるために、活性層の近傍にウエハー融着により回折格子を形成し、その効果を調べた分布帰還型レーザーの断面写真と、(b) その特性。

レーザーとしての特性を評価した。その結果、図10(b)に示すように、閾値電流53 mA (電流密度1.3 kA/cm²)と良好なレーザー特性が得られることが判明し¹⁰⁾、図5によるフォトニクス結晶に発光層をウエハー融着により挿入しても発光体の発光現象そのものが劣化することがないことがわかり、この方法で発光体を埋め込むことができる可能性が示唆された。

その他、この方法は積層により結晶作製を行っているので、欠陥の導入も容易であり、また他の任意の形状のフォトニクス結晶構造の作製も容易であると考えられる。エレクトロニクスへの応用を考えた場合、非常に有効な方法ではないかと考えられる。今後、8~16層の構造に対する光学特性を評価するとともに、寸法の縮小化を行い、1.55 μm領域にバンドギャップをもつ結晶の実現および発光層の埋め込みを行っていきたいと思う。

本稿では、まずフォトニクス結晶の狙いに関して、通常の光フィルターとの違いを念頭において説明した。フィルターは発光体から発せられた光を外部から制御するものであるが、フォトニクス結晶は発光体の発光そのものを根本から制御することを狙うものである。すなわち発光体の場を真空場から根本的に変化させることにより、電子の遷移そのものから発光現象を制御することを狙ったものである。このような完全な発光制御のためには、光領域での3次元フォトニクス結晶が必要であり、全伝搬方向に対するフォトニックバンドギャップ形成のためには、非対称面心立方構造、ダイヤモンド構造等の構造が有効であることを説明した。続いて、現在、光波長域で試みられている2種類の3次元フォトニクス結晶実現方法：(a) 3方向半導体ドライエッチングによる方法、(b) レーザービーム回折パターン観察半導体ウエハー融着法による方法、を説明した。これらの方法あるいはその融合により、ここ数年で、おそらく光領域でのフォトニクス結晶が世に現れてくるものと期待する。

ご討論いただいた佐々木昭夫教授(現在、大阪電通大)、

本学学生山本宗継、チュチナン・アロンカーン、今田昌宏氏に感謝する。

文 献

- 1) 例えば、E. Yablonovitch: "Photonic band-gap structure," J. Opt. Soc. Am. B, **10** (1993) 283-295.
- 2) 例えば、K. M. Ho, C. T. Chan and C. M. Soukoulis: "Photonic gaps for electromagnetic waves in periodic dielectric structures: Discovery of the diamond structure," *Photonic Band Gaps and Localization*, ed. C.M. Soukoulis (Plenum Press, New York, 1993) pp. 235-245.
- 3) C. C. Cheng and A. Scherer: "Fabrication of photonic band-gap crystals," J. Vac. Sci. Technol. B, **13** (1995) 2696-2700.
- 4) C. C. Cheng, A. Scherer, V. Arbet-Engels and E. Yablonovitch: "3-D photonic crystals operating at optical wavelengths," *Quantum Electronics and Laser Science Conference, vol. 10, 1996, OSA Technical Digest Series* (Optical Society of America, Washington, D.C., 1996) pp. 35-36.
- 5) S. Noda, N. Yamamoto and A. Sasaki: "New realization method for three-dimensional photonic crystal in optical wavelength region," Jpn. J. Appl. Phys., **35** (1996) L909-L912.
- 6) N. Yamamoto, S. Noda and A. Sasaki: "New realization method for three-dimensional photonic crystal in optical wavelength region: Experimental consideration," Jpn. J. Appl. Phys., **36** (1997) 1907-1911.
- 7) E. Ozbay, A. Abeyta, G. Tuttle, M. Tringides, R. Biswas, C. T. Chan, C. M. Soukoulis and K. M. Ho: Phys. Rev. B, **50** (1994) 1946.
- 8) N. Yamamoto and S. Noda: "50 nm-scale alignment and wafer fusion with laser beam diffraction observation technique for realizing three-dimensional photonic crystals" (unpublished).
- 9) チュチナン・アロンカーン, 山本宗継, 野田 進: "フォトニック結晶作製過程に生じる構造ゆらぎのバンドギャップに与える影響", 1997年秋季応用物理学会, 講演番号2 pW 5.
- 10) M. Imada, S. Noda, A. Sasaki, H. Kobayashi and G. Sasaki: "Distributed feedback surface-emitting laser with air/semiconductor gratings embedded by mass-transport assisted wafer fusion technique," IEEE Photonics Technol. Lett., **9** (1997) 419-421.

(1997年9月2日受理)