

GaAs 基板上レーザーの 1.3 μm を超える 長波長化の検討

宮 本 智 之

Wavelength Elongation of GaAs-Based Lasers beyond 1.3 μm

Tomoyuki MIYAMOTO

Long-wavelength vertical-cavity surface-emitting lasers on GaAs substrates are attractive light sources for optical communication systems. The lasers emitting at 1.3 μm on the GaAs have become almost practical devices using GaInNAs. The 1.5 μm lasers are also important for use in long-haul transmission systems. However, material for lasing beyond 1.3 μm on the GaAs has not been developed yet. This paper discusses about wavelength elongation of lasers on GaAs by fabricating 1.4 μm GaInNAs quantum well (QW) lasers and by forming quantum dots (QDs). The 1.4 μm lasing was succeeded by increasing N content in QW. Self-organized GaInNAs QDs were also investigated as a novel material for long-wavelength emission. The nitrogen introduction drastically influenced to the QD formation. The observed results promise long-wavelength (>1.3 μm) lasers on GaAs.

Key words: semiconductor laser, long-wavelength, GaInNAs, GaAs, quantum dot, vertical-cavity surface-emitting lasers (VCSEL)

光通信やデータリンクなどに用いる低コスト光源として、面発光レーザーが期待されている。すでに短距離の光 LAN では、波長 0.85 μm 帯面発光レーザーが実用化されている。この面発光レーザーを長距離通信へ応用するためには、波長 1.3~1.6 μm 帯のレーザー発振が必要である。0.85 μm 帯の GaAs 基板上面発光レーザーは、AlAs/GaAs 多層膜反射鏡を用いて製作が容易であることや、選択酸化 AlAs 電流狭窄構造による低消費電力、高速動作などの特長をもつ¹⁾。一方、従来の長波長材料の InP 系では、これらの特長の適用が困難である。このため、GaAs 系による長波長帯面発光レーザーの検討が活発になっている。

波長 1.3 μm 帯レーザーでは、GaAs 上 GaInAs に窒素を 1% 程度導入する GaInNAs 材料²⁾の検討が進んでいる。筆者らも、化学ビーム成長 (CBE) 法、有機金属気相成長 (MOCVD) 法などによる検討を行い³⁾、すぐれたレーザー特性を実現している⁴⁾。多くの研究機関が活発な研究開発を進めており、すでに実用レベルの面発光レーザーが

報告されている。

波長 1.3 μm 帯レーザーの進展により、次の目標として、より長距離の通信に利用可能な波長 1.5 μm 帯レーザーの GaAs 上への実現に期待が高まってきた。今回受賞対象となった論文は、GaAs 上で波長 1.3 μm 帯を超える発光材料の検討を行ったものである。具体的には、先述の GaInNAs をもとに、

1. GaInNAs 量子井戸の N 組成増加による長波長化とレーザー特性の評価
2. GaInAs 量子ドットへの N 添加によるドット形成特性の検討

を行った。なお、同様な目的でアンチモン (Sb) を添加した量子ドットも検討しており、最近の成果を合わせて報告する。

1. GaAs 基板上の長波長化手法

まず、GaAs 上レーザーの長波長化手法を簡単に示す

表1 GaAs 上での発光波長の決定要因

遷移エネルギー: $E = E_g + E_s + E_q$ (波長 $\lambda \propto 1/E$)
E_g (バンドギャップエネルギー)
・ GaAs 基板上では GaIn (N) As により E_g 縮小
In 組成 $\uparrow \rightarrow E_g \downarrow$
N 組成 $\uparrow \rightarrow E_g \downarrow$
E_s (変形ポテンシャルエネルギー)
・ 歪みが小さいほど E_s は小さい
In 組成 $\downarrow \rightarrow E_s \downarrow$
N 組成 $\uparrow \rightarrow E_s \downarrow$
E_q (量子化エネルギー)
量子構造大 $\rightarrow E_q \downarrow$
制限
・ 歪みが大きいほど構造大型化に制限 (臨界膜厚)
・ N が大きいほど結晶の高品質化が困難

注) 量子ドットは三次元構造による歪み緩和が可能。

(表1). 発光波長は活性層での電子遷移エネルギーにより決まる。これは、バンドギャップエネルギー (E_g)、結晶歪みによる変形ポテンシャルエネルギー (E_s)、および量子構造による量子化エネルギー (E_q) の和として表せる。発光波長を長波長にするためには、この電子遷移エネルギーの低減が必要である。

E_g は材料組成により変化する。従来の GaAs 上における E_g 低減手法は、GaInAs の In 組成増加に限られていた。一方で、In 組成増加により結晶歪みも増加する。 E_s は結晶歪みに比例して増加するため、電子遷移エネルギーの減少量は、In 組成増加による E_g の低減より小さくなる。また、結晶歪みにより良好な結晶品質を得ることのできる上限の膜厚 (臨界膜厚) も低下する。 E_q は膜厚が厚いほど小さくなるが、In 組成が大きい場合、臨界膜厚により厚さが制限されてしまう。以上のことから、GaInAs 量子井戸では、波長 $1.2 \mu\text{m}$ 程度 (In 組成 0.4 程度、井戸幅 8 nm 程度) が長波長化の限界となっている。

GaInNAs の場合、N 組成増加により E_g が縮小し、さらに In, N 組成の制御で無歪みになるので、 E_s や E_q が増加しないため長波長化が期待される。しかし、実際には N 組成を高めると結晶品質が低下するという重大な課題があるので、波長 $1.3 \mu\text{m}$ 用には、窒素をできるだけ減らした歪み GaInNAs 量子井戸として形成される。波長 $1.3 \mu\text{m}$ を超えるために、N 組成をさらに増加させると結晶品質の低下が生じる。このため、これまで $1.3 \mu\text{m}$ を超えるレーザーの長波長化はほとんど検討されていなかった。

別の長波長化手法として、量子ドットが期待される。量子ドットは三次元構造のために、歪み緩和により E_s が減少し、さらに臨界膜厚の制限が緩和される。このため、InAs 量子ドットサイズの大型化や、さらにドット層を覆うカバー層に GaInAs を用いることによる、歪み緩和を用いた長

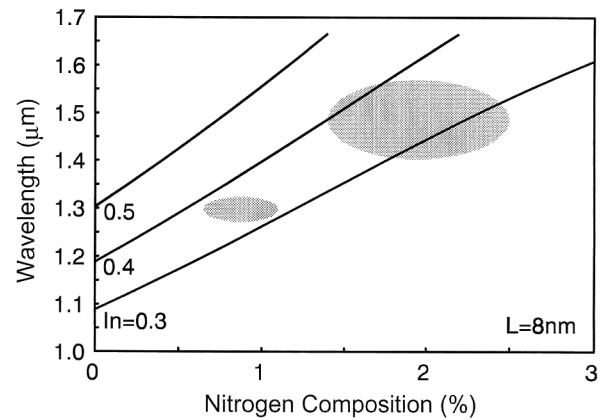


図1 GaInNAs/GaAs 量子井戸 (井戸幅 8 nm) の発光波長の N, In 依存性. 色つき部分は、 $1.3 \mu\text{m}$ および $1.5 \mu\text{m}$ 帯の発光を実現する組成範囲。

波長化が検討されている。ただし、GaInAs カバー層を用いる場合、ドット層の歪みは緩和されるものの、カバー層を含めた結晶歪みは増加してしまうため結晶品質の低下につながるため、波長 $1.3 \mu\text{m}$ を超えるレーザーの実現は容易でない。

以上を踏まえ、本研究では、GaInNAs 量子井戸における N 組成の増加による波長 $1.3 \mu\text{m}$ を超える長波長レーザーの製作と特性の検討、および GaInAs 量子ドットへの窒素導入による新しい量子ドットの製作についての検討を行った。

2. GaInNAs量子井戸の長波長化とレーザー特性の評価

図1は、GaInNAs 量子井戸の N, In 組成と発光波長の関係である。臨界膜厚のため、In 組成は 0.4 程度までに制限される。波長 $1.3 \mu\text{m}$ 帯用には 1% 程度の N 組成であるが、波長 $1.5 \mu\text{m}$ 帯用には 1.5% 以上の N 組成が必要となる。GaInNAs は、窒素を含むために結晶成長が難しく、波長 $1.3 \mu\text{m}$ においても結晶の発光特性が従来結晶に比べて劣る。したがって、 $1.3 \mu\text{m}$ を超える N 組成はいつもの結晶品質の低下につながるが、本研究では、そのような N 組成の大きな結晶のレーザー適用性を明らかにするため、結晶成長とレーザー特性を検討した。

図2は、CBE法により製作された GaInNAs 量子井戸のフォトルミネセンス (PL) の測定結果である。原料は、trimethylindium (TMIn), triethylgallium (TEGa), arsine (AsH_3), および rf 励起により生成した窒素ラジカルである。ラジカルと同時に生成する窒素イオンによる結晶ダメージ低減のため、rf セル内圧の最適化によるイオン生成抑制と、電界偏向イオントラップを用いた。井戸幅 7

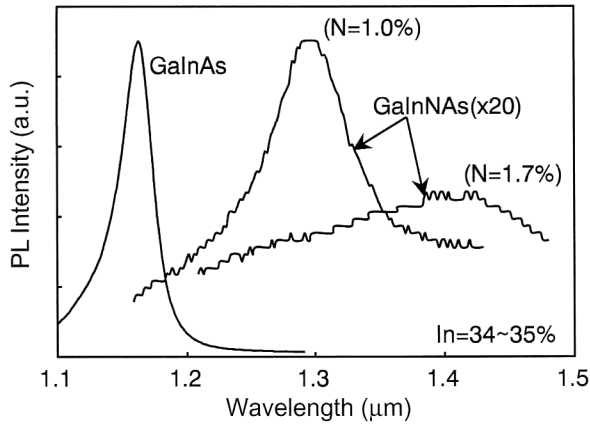


図2 CBE法により成長したGaInNAs量子井戸の室温PL.

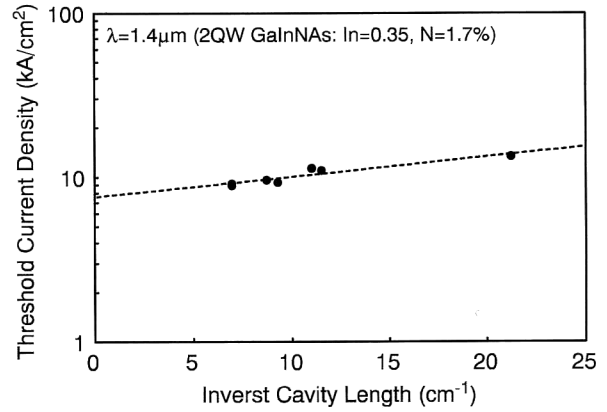


図4 波長1.4 μm GaInNAsレーザーの閾値特性.

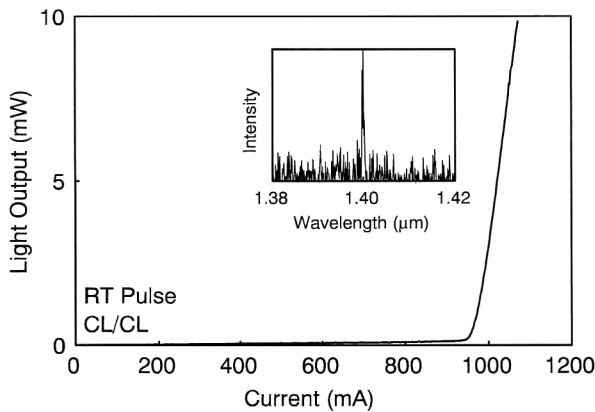


図3 波長1.4 μm GaInNAsレーザーの発振特性.

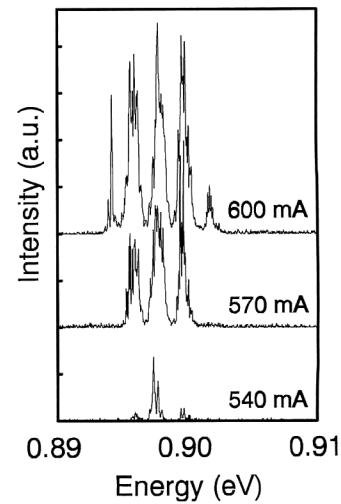


図5 波長1.4 μmレーザーの室温発振スペクトル.

nm, In組成0.35で, GaInAsの発光波長は1.17 μmである. 窒素1%では波長1.3 μmの発光が得られたが, GaInAsに比べ20分の1以下の発光強度である.

本研究では, 同じ成長条件でN組成を1.7%まで増加させた. この結果, 波長1.4 μmの発光が得られている. 発光波長は理論値に近く, 高N組成まで設計した構造が形成できることがわかった. ただし, 発光強度はさらに弱くなった. これはN組成増加による結晶の低下とともに, ラジカル生成条件の変化によりイオンが増大したことも影響している. いっそうの発光特性向上には, イオンダメージ低減のため, N組成に応じたrfセルの構成が必要である. また, N組成に応じた結晶成長条件(成長温度やV族/Ⅲ族供給比など)の最適化により, 発光強度増加が可能であると考えている.

今回は, 上記条件において微弱ながら発光が得られたため, レーザーウェハを成長し特性を評価した. $\text{Ga}_{0.66}\text{In}_{0.34}\text{N}_{0.017}\text{As}_{0.983}$ 二重量子井戸ウェハを, 幅7 μmのリッジ構造に加工した. 図3に, 電流-光出力特性と発振スペクトルを示す. 室温パルス駆動において波長1.4 μmの発振を

得た. この結果は, GaInNAsが波長1.4 μmまでのレーザーに用いることのできる材料であることを示す成果である. 図4に, 閾値電流密度の共振器長依存性を示す. 最低の閾値電流密度は8.9 kA/cm²と, 通常のレーザーの10倍以上高い⁵⁾. これは, おもに低い結晶品質に起因すると考えられる. なお, レーザーの特性温度は, 温度10~40°Cにおいて94 Kであり, 最大発振温度は40°Cであった. また, 波長の温度変化はGaInAsと同等であった.

このレーザーの発振スペクトルの詳細を評価した. 図5は室温発振スペクトルである. 注入電流を増加すると, 間隔2 meV(波長間隔約3 nm)の複数の発振ピークが現れた. この間隔は共振器長から見積もられる縦モード間隔(0.4 nm)より広く, 通常のレーザーで観測される縦マルチモード発振とは様子が異なる. また, 77 Kの発振スペクトルも, 通常のレーザーに比べて広いスペクトル幅になっていた.

この理由は明確ではないが, 類似の発振特性が, 量子ド

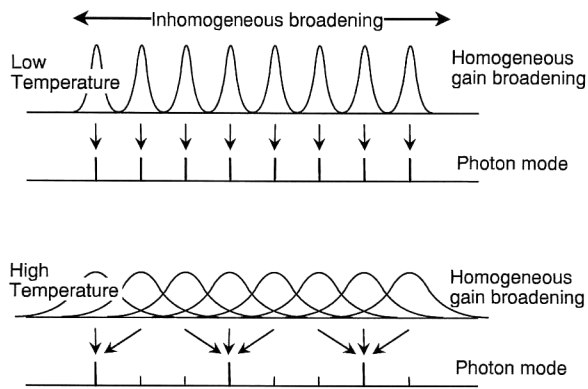


図6 量子ドットの利得の均一広がり、不均一広がりとレーザー発振モードの関係。

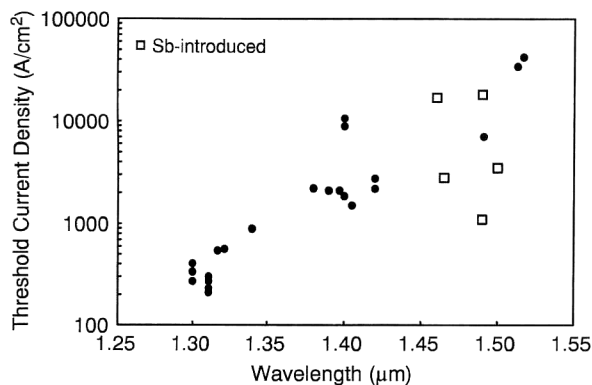


図7 GaInNAs量子井戸レーザーの報告例。

ットレーザーにおいて報告されている⁶⁾。菅原らによると、量子ドットレーザーでは、ドットサイズ不均一による利得の不均一広がり、電子緩和による均一広がりが発振スペクトルに影響する。図6にその概略を示す。低温では均一広がりが狭いため、各ドットは異なる縦モードに寄与し、不均一広がり幅程度の広い範囲で多数の発振が生じる。一方、室温では均一広がり幅が広がり、各ドットは近傍の発振モードへ寄与し、この結果、均一広がり幅程度の間隔の発振となる。

量子ドットと類似の特性が1.4 μm帯 GaInNAs量子井戸で観測されたことは、井戸内のドットのようなポテンシャル構造の存在を示唆する。高歪み結晶では、平坦な結晶成長が難しく三次元成長が起こりやすい。今回は、高N組成にしたことで三次元化が促進され、井戸の厚さ変調が生じた可能性がある。一方、N組成の増加による相分離(組成変調)も考えられる。高歪み GaInAsの三次元成長や、GaInNAsの組成変調は多数報告されており、今後、スペクトル特性との関係について詳細な検討が必要である。また、このような構造変調は、局所歪みによる結晶欠陥の発生や、利得特性の劣化などへの影響も大きいと考えられる

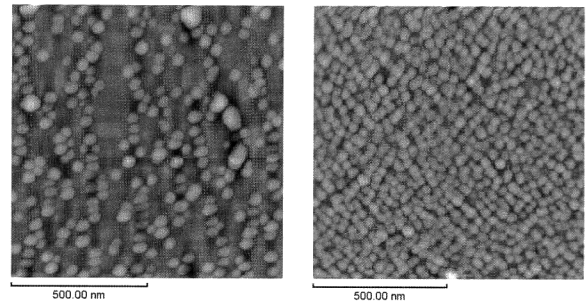


図8 GaInAs(左)とGaInNAs(右)の量子ドットAFM像。

ため、高N組成 GaInNAs量子井戸の発光の長波長化には、三次元成長あるいは組成変調を抑制することが重要と考えられる。

他の研究機関も含めた GaInNAs量子井戸レーザーの報告例を図7にまとめた。この結果からも、N組成増加に伴う長波長化により、閾値が急速に増加していることがわかる。ただし、Sb添加した GaInNAsによる特性向上が報告されている⁷⁾。これは、Sbの添加により三次元成長が抑制されたためと考えられている。さらに、いくつかの長波長のレーザーでは、量子井戸層と障壁層の間に中間層を挿入することで長波長の発振を実現している。中間層として GaAs障壁層よりもバンドギャップエネルギーの小さな Ga(In)NAsを挿入することで、量子化エネルギーを低減している。このため、井戸層のN組成が同じでも、数十nm長波長の発振が可能となる。井戸層のN組成を増加しないため、長波長化しても発振閾値の増加は小さい。

筆者らも引き続き、N組成の増加とともに、Sbの導入や中間層の適用などによる GaInNAs量子井戸レーザーの長波長化を行っている。今後、波長1.5 μm帯においても実用レベルのレーザー特性が実現できると考えている。

3. GaInNAsによる量子ドットの形成

続いて、もうひとつの長波長化手法である GaInNAs量子ドットの検討結果について述べる。

自己形成 GaInAs量子ドット構造は長波長材料として多数検討されているが、長波長化のためのサイズ拡大は発光効率低下やドット密度の低下の原因となっていた。したがって、量子ドットを用いる場合、小型のドットサイズを保ちながら長波長化する方法が必要である。

GaInNAsを用いると、バンドギャップエネルギーを低減できるため、サイズ大型化によらない長波長化が期待される。また、ドットの高密度化にも有効である⁸⁾。実際に GaInNAsドットを形成する場合、ドットの自己形成過程に窒素が影響を与えるため、その形成特性について詳細に

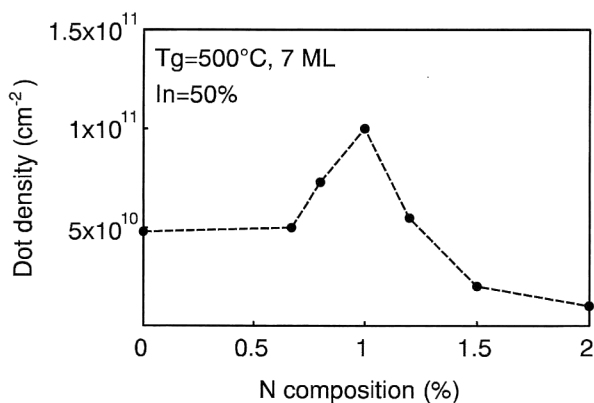


図9 ドット密度の窒素組成依存性.

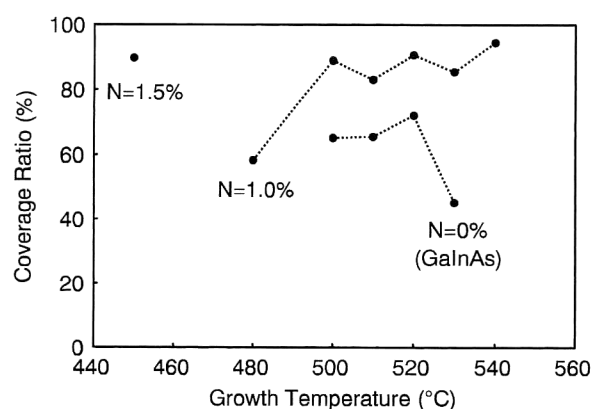


図10 ドットの表面被覆率の成長温度および窒素組成依存性.

検討を行った.

図8は、CBE法により形成したGaInAsおよびGaInAs量子ドットの原子間力顕微鏡(AFM)像である。成長温度530°C、In組成0.7で7分子層分の供給を行った。両者は窒素供給の有無のみ異なる。N組成は1%程度である。図からわかるように、窒素の導入により量子ドットの密度が高くなっている。また、この成長温度の場合、GaInAsではドットの結合によるサイズの不均一化がみられるが、GaInAsドットでは均一に保たれている。

図9は、窒素組成に対する量子ドット密度の変化である。この結果、1%程度までの窒素導入はドット密度を高める効果があることがわかった。一方、1%以上では急激に密度が低下している。

そこで、ドットが表面を覆っている割合(表面被覆率)を各組成に対して検討した(図10)。GaInAsは、530°Cより低い成長温度において被覆率60%程度であるが、530°Cではドットの結合のため被覆率が低減している。一方、N組成1%では、成長温度500~540°Cにおいて被覆率90%程度と、表面がドットによりほとんど覆われている。さら

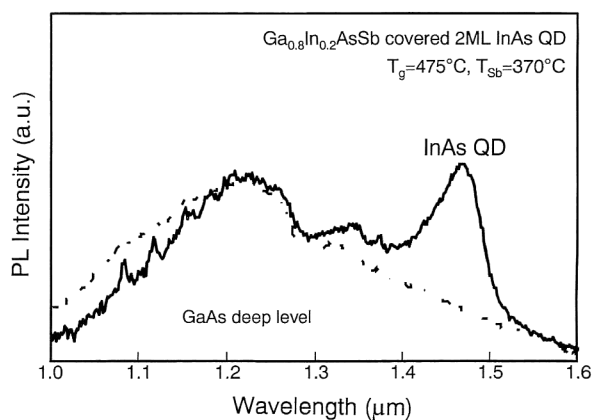


図11 GaInAsSbカバー層を用いたInAs量子ドットの発光特性。点線はGaAs基板のみを測定した場合の発光特性であり、波長1.0~1.4 μmの発光はGaAs基板の深い準位からの発光であることがわかる。

にN組成を高めた1.5%では、450°Cを除き、ドットの結合によって考えられる線状の表面パターンとなった。450°Cではドットが形成され、ドットサイズの縮小と高ドット密度($1.7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)が得られた。

これらの結果から、GaInAs量子ドットへの窒素添加は、適切な形成条件を選べば、ドットの高密度化に有効であることがわかった。ただし、ドットサイズは縮小化の傾向があり、また本研究の形成条件の範囲では、ドット形成が可能なN組成の限界は1.5%程度であった。このようなN組成の制限とドット微小化は、長波長化に対しては問題となる。実際に、GaInAsドットからのPLは、波長1.2 μm程度までにとどまっている。今後、長波長化のためには、組成と形状、ドット密度を独立に制御する形成条件の探索が必要である。一方で、窒素の導入は、高温でのドット形成やドット密度の増加が可能であり、GaInAs量子ドットの形成条件の制御因子として利用することが期待される。

4. GaInAs量子ドット構造へのSb添加

量子ドットへの窒素添加は、ドットサイズを小型に保ったままの長波長化を検討したものである。一方、ドットサイズの大型化による発光効率の劣化を抑制することも、長波長の実現に有効である。本研究では、このような目的から、ドット構造へのSb添加について検討を行っている。Sb添加の量子井戸への効果はすでに述べたが、同様な効果として、ドットを覆うカバー層へSbを添加することによる、欠陥発生の抑制を期待している。

図11は、InAs量子ドットを覆うGaInAsカバー層へSbを添加した構造のPL特性である。このドット構造から、波長1.48 μmでの発光を得た。なお、波長1.0~1.4

μm の発光は、GaAs の深い準位からの発光である。Sb を入れない場合は、ドットとカバー層の GaInAs の歪みが蓄積されるため発光効率が落ちるが、Sb を導入することで、発光効率の向上と発光波長の長波長化がともに実現された⁹⁾。発光波長の長波長化の理由は現在検討中であるが、Sb の導入によりドットの形状が変化したためと考えている。

現在、Sb 添加条件の詳細な検討を進めているが、本手法も GaAs 基板上の波長 $1.3\ \mu\text{m}$ を超える長波長化に有効な技術であると考えている。N の添加も組み合わせて、長波長レーザーに適した量子ドットの形成を目指している。

本研究では、GaAs 基板上面発光レーザーの波長 $1.3\ \mu\text{m}$ を超える長波長化のために、GaInNAs 材料を用いた量子井戸レーザーおよび量子ドットを検討した。波長 $1.4\ \mu\text{m}$ 量子井戸レーザーの実現から、窒素組成の増加による長波長レーザー実用化の見通しを得た。また、量子ドット形成への窒素添加の影響を明らかにした。量子井戸・量子ドットとも、特性上・製作上の利点・欠点があり、まだどちらが有利であるかは明確でない。どちらも、結晶成長条件に大きく依存しているため、最適な条件の探索や新しい原料の導入、また中間層のような新たな構造の導入などにより大きな進展が可能と考えている。今後、 $1.6\ \mu\text{m}$ までの長波長化とともに、既存レーザーと同等の特性が実現されると、面発光レーザーだけでなく、さまざまな半導体光デバイスへの応用も期待できるため、本分野のいっそうの活性化を期待している。

今回の光学論文賞受賞を大変感謝している。受賞対象論文の内容は本稿で概要を示したが、最終的な目標である GaAs 上 $1.5\ \mu\text{m}$ 帯面発光レーザーの実現にはもうしばらくの研究が必要であり、今回の受賞は大きな励みである。

なお、本研究は、小山二三夫教授との共同研究に基づいている。また、実際の実験を担当した学生の影山健生君、

牧野茂樹君、川口真生君、池永賀彦君、太田征孝君、松浦哲也君らの継続的な研究の成果である。さらに、伊賀健一名誉教授、小林功郎教授、植之原裕行助教授の激励とご支援に深く感謝する。

文 献

- 1) 伊賀健一, 小山二三夫: 面発光レーザー (共立出版, 1999).
- 2) M. Kondow, K. Uomi, A. Niwa, T. Kitatani, S. Watahiki and Y. Yazawa: "GaInNAs: A novel material for long-wavelength-range laser diodes with excellent high-temperature performance," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35** (1996) 1273-1275.
- 3) T. Miyamoto, T. Kageyama, S. Makino, D. Schlenker, F. Koyama and K. Iga: "CBE and MOCVD growth of GaInNAs," *J. Cryst. Growth*, **209** (2000) 339-344.
- 4) M. Kawaguchi, E. Gouardes, D. Schlenker, T. Kondo, T. Miyamoto, F. Koyama and K. Iga: "Low threshold current density operation of GaInNAs/GaAs quantum well lasers grown by metalorganic chemical vapour deposition," *Electron. Lett.*, **36** (2000) 1776-1777.
- 5) Y. Ikenaga, T. Miyamoto, S. Makino, T. Kageyama, M. Arai, F. Koyama and K. Iga: "1.4 μm GaInNAs/GaAs quantum well laser grown by chemical beam epitaxy," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41** (2002) 664-665.
- 6) M. Sugawara, K. Mukai and Y. Nakata: "Light emission spectra of columnar-shaped self-assembled InGaAs/GaAs quantum-dot lasers: Effect of homogeneous broadening of the optical gain on lasing characteristics," *Appl. Phys. Lett.*, **74** (1999) 1561-1563.
- 7) H. Shimizu, K. Kumada, S. Uchiyama and A. Kasukawa: "High performance CW 1.26 μm GaInNAsSb-SQW and 1.20 μm GaInAsSb-SQW ridge lasers," *Electron. Lett.*, **36** (2000) 1701-1703.
- 8) S. Makino, T. Miyamoto, T. Kageyama, Y. Ikenaga, F. Koyama and K. Iga: "Nitrogen composition and growth temperature dependence of growth characteristics for self-assembled GaInNAs/GaAs quantum dots by chemical beam epitaxy," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41** (2002) 953-957.
- 9) T. Matsuura, T. Miyamoto, T. Kageyama, M. Ohta, Y. Matsui and F. Koyama: "Elongation of emission wavelength of GaInAsSb-covered (Ga)InAs quantum dots grown by molecular beam epitaxy," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43** (2004) L82-L84.

(2004年5月27日受理)