

## 半導体イントラセンター・フォトリクスの開拓

### Development of semiconductor intra-center photonics

課題番号：18H05212

藤原 康文 (FUJIWARA, YASUFUMI)

大阪大学・工学研究科・教授



#### 研究の概要

本研究では、「希土類添加半導体」を新しい光機能材料として位置づけ、ナノ構造を用いたフォトン場制御により、「電流励起発光」という新たな原理に基づく希土類イオン特有の発光機能を究極的に進化させ、更なる高輝度化を実現する。また、究極機能発現の学理を探求するとともに、その機能を実デバイス動作として実証する。

研究分野：電子材料学、物性物理学、半導体光デバイス工学

キーワード：半導体、薄膜、光物性、光デバイス

#### 1. 研究開始当初の背景

我々の身の回りは半導体から生じる様々な光で満ち溢れている。これらの光は半導体の伝導帯と価電子帯の間で生じるインターバンド遷移に起因するため、周辺環境に依存した発光波長の「ふらつき」等、宿命的な課題を抱えている。

研究代表者は希土類蛍光体と半導体のハイブリッド材料である Eu 添加 GaN (GaN:Eu) を用いた赤色発光ダイオード (LED) を発明している。この赤色発光は Eu<sup>3+</sup> イオンの 4f 殻内遷移により生じるため、発光線幅が極端に狭く、発光波長が周辺温度に対して変化しないという、これまでの半導体発光では考えられなかった特徴を有している。

#### 2. 研究の目的

本研究提案では、Eu イオン周辺局所構造と、それが置かれるフォトン場の両方を極限まで制御することにより、究極的な Eu 発光機能を実現する。また、究極機能発現の学理を探求するとともに、GaN:Eu LED の更なる高輝度化を目指す。

#### 3. 研究の方法

本研究では、GaN へ添加された Eu を主たる研究対象とし、Eu 特有の発光機能の究極を追求する。

**【課題1】光励起下でのフォトン場制御による Eu 発光機能の開拓：**フォトン操作を可能とするナノ構造を設計し、作製する。光励起下において究極的な Eu 発光機能の発現を目指すとともに、Eu イオンとフォトン場との

相互作用など、内包する物理を解明する。

**【課題2】電流励起下でのフォトン場制御による Eu 発光機能の開拓：**光励起下で得られた究極的な Eu 発光機能を電流注入下で実現する。フォトン操作を可能とする最適なナノ構造を LED 構造へ組み込む構造作製プロセスを確立し、赤色 LED の高輝度化を実証する。

**【課題3】フルカラー化への展開と集積化：**青色を呈する Tm、緑色を呈する Er や Tb へ展開し、希土類添加窒化物半導体を基盤とした LED のフルカラー化と集積化を目指す。

#### 4. これまでの成果

**【課題1】光励起下でのフォトン場制御による Eu 発光機能の開拓：**(1) Ag ナノ粒子を用いた局在表面プラズモンとのカップリングにより、Eu 発光遷移確率が 1.3 倍増大し、最大で 3.4 倍の Eu 発光増強を実現した。(2) ZrO<sub>2</sub> (78 nm)/SiO<sub>2</sub> (105 nm) (10 周期) 分布型ブラッグ反射鏡 (DBR) と、Al<sub>0.18</sub>In<sub>0.82</sub>N (52 nm)/GaN (85 nm) (42 周期) DBR からなる GaN:Eu マイクロ光共振器を作製し、室温で 12.9 倍の Eu 発光増強を実現した。(3) Al<sub>0.82</sub>In<sub>0.18</sub>N (600 nm) 上に Eu 添加 GaN (200 nm) を成長した試料より、直径 1.57 μm のマイクロディスクを作製し、11.7 倍の Eu 発光増強を実現した。これは、Purcell 効果による自然放出レートの増大、および周回モードによる水平方向への光取り出しの増大に起因している。

(4) 有限領域時間差分(FDTD)法によるシミュレーションに基づき、六角形孔を有する L3 シフト型フォトニック結晶ナノ光共振器構造を作製し、Eu 発光とカップリングした共振ピークを明瞭に観測した。格子定数 205 nm、六角形孔の外接円半径 59.00 nm の試料(共振器 Q 値:3,100)において、34 倍の Eu 発光増強を実現した(図1)。

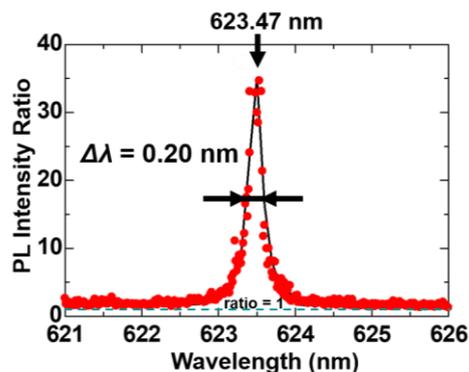


図1 2次元フォトニック結晶ナノ光共振器における Eu 発光の増強

【課題2】電流励起下でのフォトン場制御による Eu 発光機能の開拓：(1) Ag ナノ粒子による局在表面プラズモンを利用した GaN:Eu プラズモニック LED を作製し、2.1 倍の Eu 発光増強を実現した。(2) ZrO<sub>2</sub> (84 nm)/SiO<sub>2</sub> (115 nm) (12 周期) DBR と Al<sub>0.18</sub>In<sub>0.82</sub>N (52 nm)/GaN (85 nm) (28 周期) DBR からなるマイクロ光共振器を有する GaN:Eu 赤色 LED を作製した。試料表面に対して垂直方向からの発光観測により、11 倍の Eu 発光増強を実現した。これは、Purcell 効果による自然放出レートの増大に加え、受光面への光取り出し効率が増大したことに起因している。

【課題3】フルカラー化への展開と集積化：

(1) GaN からの青色発光の観測を目的に、有機 Tm 原料 (Tm(*i*-PrCp)<sub>3</sub>) を新たに合成し、Tm 添加 GaN を作製した。光励起下では、805 nm 近傍に Tm<sup>3+</sup>イオンの 4f 殻内遷移に起因する発光のみが観測された。また、LED 構造を作製することにより、電流注入下で波長超安定・狭帯域 Tm 赤外発光を実現した。Al を少量置換した Tm 添加 Al<sub>0.24</sub>Ga<sub>0.76</sub>N において、805 nm 発光に加えて、465 nm 近傍と 480 nm 近傍に Tm<sup>3+</sup>イオンに起因する青色発光が観測された。

## 5. 今後の計画

【課題1】光励起下でのフォトン場制御による Eu 発光機能の開拓：マイクロディスク型マイクロ光共振器と2次元フォトニック結晶ナノ光共振器に着目し、構造の最適化、究極

的な Eu 発光機能の観測、およびその発現メカニズムの理解に取り組む。

【課題2】電流励起下でのフォトン場制御による Eu 発光機能の開拓：ダブル DBR マイクロ光共振器 LED の作製プロセスを最適化し、共振器 Q 値と Eu 発光増強率との相関を通じて、フォトン場制御の有効性を実証する。また、マイクロディスク型マイクロ光共振器 LED や 2次元フォトニック結晶ナノ光共振器 LED の作製可能性を明らかにする。

【課題3】フルカラー化への展開と集積化：Tm<sup>3+</sup>イオンに起因する青色発光に加え、Er<sup>3+</sup>イオンや Tb<sup>3+</sup>イオンに起因する緑色発光の実現、ならびにそれらの集積化に取り組む。

## 6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

- T. Inaba, J. Tatebayashi, K. Shiomi, D. Timmerman, S. Ichikawa, and Y. Fujiwara: "GaN:Eu, O-based resonant-cavity light emitting diodes with conductive AlInN/GaN distributed Bragg reflectors," ACS Applied Electronic Materials (2020). <印刷中>
- D. Timmerman, B. Mitchell, S. Ichikawa, J. Tatebayashi, M. Ashida, and Y. Fujiwara: "Excitation efficiency and limitations of the luminescence of Eu<sup>3+</sup> ions in GaN," Physical Review Applied **13**, pp. 014044/1-6 (2020).
- J. Tatebayashi, T. Yamada, T. Inaba, D. Timmerman, S. Ichikawa, and Y. Fujiwara: "Localized-surface-plasmon-enhanced GaN:Eu-based red light-emitting diodes utilizing silver nanoparticles," Applied Physics Express **12**, pp. 095003/1-5 (2019).
- B. Mitchell, R. Wei, J. Takatsu, D. Timmerman, T. Gregorkiewicz, W. Zhu, S. Ichikawa, J. Tatebayashi, Y. Fujiwara, and V. Dierolf: "Color-tunability in GaN LEDs based on atomic emission manipulation under current injection," ACS Photonics **6**, pp. 1153-1161 (2019).
- A. Lesage, D. Timmerman, T. Inaba, T. Gregorkiewicz, and Y. Fujiwara: "Enhanced light extraction efficiency of Eu-related emission from a nano-patterned GaN layer grown by MOCVD," Scientific Reports **9**, pp. 4231/1-6 (2019).
- 藤原康文：平成30年度日本学術振興会光電相互変換第125委員会業績賞「半導体イントラセンター・フォトニクスの開拓」(2019年3月8日)。

## 7. ホームページ等

<http://www.mat.eng.osaka-u.ac.jp/mse6/>