

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「新たな光機能や光物性の発現・利活用
を基軸とする次世代フォトンクス^①の基盤技術」
研究課題「深紫外領域半導体レーザーの実現と
超高濃度不純物・分極半導体の研究」

研究終了報告書

研究期間 2016年10月～2022年3月
(1年追加支援により、2023年3月まで延長)

研究代表者: 岩谷 素顕
(名城大学理工学部, 教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究課題では、窒化物半導体材料による AlGaIn 系材料による未踏波長領域の紫外レーザを実現することを目的として研究を進めた。さらに窒化物半導体材料が有する極めて大きな分極半導体を活用することを検討し、新たなる学理の構築をあわせて目指してきた。

半導体レーザは物理的には発振現象を用いており、光学的利得を得、それを正帰還させることによって実現される。光学利得は高濃度なキャリア注入によりキャリアの反転分布状態にすることによって現れる誘導放出現象により得られる。正帰還は良好な光共振器を形成することによって実現される。一般的な半導体レーザでは、活性層よりもバンドギャップが大きく且つ屈折率が小さい p 型・n 型クラッド層で活性層をはさむ半導体層構造を結晶成長する。そして、端面に高反射率ミラーを形成することにより良好な光共振器を得ている。また、p 型結晶や n 型結晶は不純物ドーピングにより実現されており、反転分布状態に必要なキャリアが注入されている。

深紫外半導体レーザでは、これらの手法をそのまま適用することはできない。深紫外領域光である波長 300 nm のエネルギーは 4.1 eV となる。深紫外半導体レーザの活性層およびクラッド層には、バンドギャップエネルギーが上記 4.1 eV 以上の材料を用いることが必須となる。従来の電子物性学では、バンドギャップエネルギーが 3~4 eV 以上の材料は絶縁体に属するとされレーザ発振が可能な高電流密度動作と光閉じ込めが可能な十分な膜厚の両立は不可能だと考えられてきたからである。

このような背景から、上記の要求を満たすためには、①低い励起キャリア密度で光学利得が得られる高品質な半導体結晶を得ること、および②pn 接合を形成し数 kA cm^{-2} を超える高電流密度動作の実現と膜厚数百 nm のクラッド層を同時に実現する半導体層構造が必要であると考え研究を推進した。研究チームとしては、高品質 AlN の作製を三重大学の研究グループを中心に、高品質 AlGaIn 結晶の作製技術を名城大学/三重大学のグループが、理論的な解明とシミュレーションの確立を名城大学/三重大学/九州大学の研究グループがそれぞれ担当に検討を行い、未踏波長領域の紫外半導体レーザを実現することを目的に研究を進めた。

得られた結果の概要としては、

- ① サファイア基板の上にスパッタ法で作製した AlN を Face to face 法で高温熱処理することによって世界で最高品質レベルの AlN テンプレートを得た(三重大学)
- ② スパッタ AlN テンプレート上に自然核発生によって発生した AlN 核を活用することによって 3 次元的な特異構造が形成され、それを活用することによって低しきい値パワー密度でレーザ発振が可能な高品質 AlGaIn 結晶作製技術を確認した(名城大学/三重大学)
- ③ 分極ドーピングと呼ばれる方法を活用することによってレーザ発振に必要な不可欠な良好な光共振器の形成と大電流密度動作を同時に実現できる半導体積層技術を開発した(名城大学)
- ④ 分極ドーピングの物理に関して詳細に検討し、デバイスの作製に必要な不可欠なデバイスシミュレータの開発を進めた(名城大学/九州大学、およびポーランド高圧物理学研究所との国際連携研究)

上記のブレークスルーによって、世界初の発振波長 298 nm の UV-B 領域(波長:280~315nm)半導体レーザの室温パルス発振を実現した[Applied Physics Express 13, 055505 (2020)]. さらに④で検討したデバイスシミュレータによる半導体積層構造の最適化および屈折率導波型構造を適用することによって 85mA という可視領域の半導体レーザとほぼ同程度のしきい値電流密度を持つデバイス動作の実証にも成功している。現状は、ウシオ電機、日本製鋼所、西進商事などと連携することによって UV-B 領域の半導体レーザを社会実装するのに必要なデバイス性能を実証することを目標に研究を推進している。

(2) 顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. 世界初の UV-B 領域(波長:280~315nm) 半導体レーザーの室温動作を実証

“Room-temperature operation of AlGa_{0.55}N ultraviolet-B laser diode at 298 nm on lattice-relaxed Al_{0.6}Ga_{0.4}N/AlN/sapphire”, Kosuke Sato, Shinji Yasue, Kazuki Yamada, Shunya Tanaka, Tomoya Omori, Sayaka Ishizuka, Shohei Teramura, Yuya Ogino, Sho Iwayama, Hideto Miyake, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki, Applied Physics Express **13**, 031004 (2020).

概要:世界初の発振波長 298 nm の UV-B 領域(波長:280~315nm) 半導体レーザーの室温動作を実証した。本成果は高品質 AlGa_{0.55}N 結晶作製技術および分極ドーピング法によるレーザー発振に必要な良好な光共振器の形成と大電流密度動作を同時に実現できる半導体積層技術という2つのブレークスルーにより達成した。本成果は **Applied Physics Express** の **Spotlights**, **第43回応用物理学会優秀論文賞**や**第36回日本結晶成長学会論文賞**に相次いで選出されるなど学術的に高く評価されている。また、本成果は名城大学、三重大学、名城大学・三重大学・旭化成・JSTの4者からプレスリリースを行い、読売新聞・中日新聞・朝日新聞などの5紙に掲載された。

2. 分極ドーピング法により、深紫外領域の半導体レーザーとして分極ドーピング法を用いたp型 AlGa_{0.55}N クラッド層が良好な光共振器の形成と大電流密度動作が可能であるということをはじめて実証した

“Light confinement and high current density in UVB laser diode structure using Al composition-graded p-AlGa_{0.55}N cladding layer”, Kosuke Sato, Shinji Yasue, Yuya Ogino, Shunya Tanaka, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki, Applied Physics Letters **114**, 191103 (2019).

概要:深紫外領域の半導体レーザーとして分極ドーピング法を用いた p 型 AlGa_{0.55}N クラッド層が良好な光共振器の形成と大電流密度動作が可能であるということをはじめて実証した。Applied Physics Letters の **Editor's pick** に選ばれている。

3. 低いしきい値でレーザー発振可能な格子緩和した AlGa_{0.55}N 層の実現

“Ultraviolet-B band lasers fabricated on highly relaxed thick Al_{0.55}Ga_{0.45}N films grown on various types of AlN wafers” Yuta Kawase, Syunya Ikeda, Yusuke Sakuragi, Shinji Yasue, Sho Iwayama, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki, Hideto Miyake, Japanese Journal of Applied Physics **58**, SC1052 (2019).

概要:深紫外領域の半導体レーザーを実現する目には、低い励起パワー密度でレーザー発振が可能な AlGa_{0.55}N を実現することが必要であった。本研究では、自然核発生による3次元成長を用いることによって AlGa_{0.55}N 中の転位密度の低減、さらには光励起レーザーのしきい値がおおよそ 1/7 に低減することを実証した。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1. しきい値電流密度が 85mA で深紫外領域の半導体レーザーが室温動作可能なことを実証

“Low-threshold-current (~ 85 mA) of AlGa_{0.55}N-based UV-B laser diode with refractive-index waveguide structure”, Shunya Tanaka, Yuya Ogino, Kazuki Yamada, Reo Ogura, Shohei Teramura, Moe Shimokawa, Sayaka Ishizuka, Sho Iwayama, Kosuke Sato, Hideto Miyake, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Applied Physics Express **14**, 094009 (2021).

概要:深紫外領域半導体レーザーを社会実装するためにはレーザー発振のしきい値電流を低減し室温連続発振を実現することが重要である。本研究課題では独特な方法で良好なリッジ

導波型の屈折率導波型構造を有する UV-B 領域の半導体レーザーを作製した。得られた結果としてしきい値電流が 85mA と通常の青色半導体レーザーと同等の値を得ることに成功し実用化が可能なレベルに到達しつつあることを実証した。 [Applied Physics Express の Spotlights](#) に選ばれた。また、本論文は 9 月 3 日に掲載されたが、約 1 ヶ月足らずで [5,446 件のダウンロード数](#) (10 月 14 日時点) となっており、多くの研究者から注目を集めている。

2. AlGa_N 系材料による電子線励起の紫外レーザー発振

Takafumi Hayashi, Yuta Kawase, Noriaki Nagata, Takashi Senga, Sho Iwayama, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki, Takahiro Matsumoto, "Demonstration of electron beam laser excitation in the UV range using a GaN/AlGa_N multiquantum well active layer" *Scientific Reports* 7, 2944 (2017).

概要: ハイパワー紫外レーザーを実現するためには電流注入だけでなく他の手法の開拓も重要な課題である。電子線励起はハイパワーレーザーを実現する上で有用な方法であると考えられるが、AlGa_N 系による電子線励起レーザーの報告例はなかった。本研究では電子線源の開発から構造の最適化を進め世界で初めて電子線励起による AlGa_N 系レーザーを実現した。また、さらに最近では発振波長の短波長化もあわせて達成した。

3. 2021 年 8 月時点までに [41 件の特許出願](#) を行った。

概要: 本研究課題では、2021 年 8 月時点までで 41 件の特許出願を行った。内容は、分極ドーピングを用いた AlGa_N 系レーザー (特願 2016-242891, 窒化物半導体 AlGa_N 系紫外半導体レーザー, 岩谷素顕, 竹内哲也, 上山智, 赤崎勇, 川瀬雄太, 安田俊樹, 学校法人名城大学) など本研究成果を実用化する上で必要な技術である。

< 代表的な論文 >

1. "Room-temperature operation of AlGa_N ultraviolet-B laser diode at 298 nm on lattice-relaxed Al_{0.6}Ga_{0.4}N/AlN/sapphire", Kosuke Sato, Shinji Yasue, Kazuki Yamada, Shunya Tanaka, Tomoya Omori, Sayaka Ishizuka, Shohei Teramura, Yuya Ogino, Sho Iwayama, Hideto Miyake, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki, *Applied Physics Express* **13**, 031004 (2020).

概要: 世界初の発振波長 298 nm の UV-B 領域 (波長: 280~315nm) 半導体レーザーの室温動作を実証した。本成果は高品質 AlGa_N 結晶作製技術および分極ドーピング法によるレーザー発振に必要な不可欠な良好な光共振器の形成と大電流密度動作を同時に実現できる半導体積層技術という 2 つのブレークスルーにより達成した。本成果は [Applied Physics Express の Spotlights](#), [第 43 回応用物理学会優秀論文賞](#) や [第 36 回日本結晶成長学会論文賞](#) に相次いで選出されるなど学術的に高く評価されている。

2. "Effects of Mg dopant in Al-composition-graded Al_xGa_{1-x}N (0.45 ≤ x) on vertical electrical conductivity of ultrawide bandgap AlGa_N p-n junction" Kosuke Sato, Kazuki Yamada, Konrad Sakowski, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Yoshihiro Kangawa, Pawel Kempisty, Stanislaw Krukowski, Jacek Piechota, Isamu Akasaki, *Appl. Phys. Express* **14**, 096503 (2021).

概要: 本論文では、分極ドーピングを用いた AlGa_N 中の Mg 不純物の効果を実験かつ理論的に検証した。さらに実用化において大きな貢献が可能なデバイスシミュレータに関しても開発を進め、得られた結果を報告している。これらの研究は、名城大学が実験的な検証、九州大学およびポーランド高圧物理学研究所が理論的な検証を行う国際共同研究として実施した。

- AlGaIn-based UV-B laser diode with a wavelength of 290 nm on 1 μm periodic concavo-convex pattern AlN on a sapphire substrate, Shunya Tanaka, Shohei Teramura, Moe Shimokawa, Kazuki Yamada, Tomoya Omori, Sho Iwayama, Kosuke Sato, Hideto Miyake, Motoaki Iwaya, Tetsuya Takeuchi, Satoshi Kamiyama, Isamu Akasaki, Applied Physics Express **14**, 055505 (2021).

概要：本論文では 1 μm 周期のナノメートルの凹凸を形成した AlN テンプレート上に AlGaIn を埋め込むことによって高品質 AlGaIn を実現しその上に AlGaIn 系レーザを実現した内容である。Applied Physics Express の Spotlights に選ばれてる。

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

①「名城大学」グループ

研究代表者：岩谷素顕（名城大学理工学部 教授）

研究項目

- ・UV-B 半導体レーザの作製および評価
- ・AlGaIn 結晶の高品質化とその上に作製したレーザ特性の評価
- ・キャリア注入方法の検討
- ・デバイス作製技術の検討
- ・作製した AlGaIn 結晶及びデバイスの結晶学的評価・電気的特性評価

②「三重大学」グループ

研究代表者：三宅秀人（三重大学地域イノベーション学科 教授）

研究項目

- ・AlN テンプレートの高品質化
- ・AlGaIn 結晶の高品質化
- ・結晶成長メカニズムの解析

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

本研究課題のターゲットである紫外レーザは、医療・産業分野への応用が広く、産業界との連携を強力に推進する必要がある。

名城大学の研究グループは紫外レーザに関する共同研究を平成 29 年度から開始し旭化成株式会社と連携を進めている。同社は、アメリカのクリスタル IS 社を買収することによって AlN 基板の作製技術を持っていることや、応用分野でありメディカル事業なども行っており、実用化にむけ素早く対応可能な体制を持っていることから同社との共同研究を開始した。平成 29 年度から研究員 1 名を受け入れ、平成 30 年度からは社会人博士課程学生 1 名を常駐の形で受け入れながら連携しながら研究する体制を整えている。さらに、令和 3 年からは NEDO 先導研究実施に向けてウシオ電機株式会社から研究員を 1 名受け入れ、(株)日本製鋼所および西進商事(株)と共同研究をスタートさせた。

その他、本研究グループでは光デバイスに関する国内外の研究者との連携を積極的に行っている。具体的には青紫色面発光レーザの実用化に向けスタンレー電気株式会社、可視光レーザに向けウシオ電機株式会社、量子殻を用いた新しいレーザに向けた技術開発において小糸製作所株式会社などであり、これらの企業からも研究員を受け入れており、新規の光デバイス創製に向けた企業ネットワークが構築されつつある。また、国内外の大学との連携も進めており、阪大、東北大、名古屋大など多くの研究機関と研究員や学生の派遣などを進めている。海外と

の連携も進めており、ベルリン工科大の Kneissl 教授のもとへ学生を1か月程度派遣するなど紫外発光デバイスに向けた国際共同研究なども積極的に進めている。さらに、九大・寒川教授、ポーランド高圧物理学研究所のグループと連携することによって、分極半導体の物理に関して詳細に解析し、Applied Physics Express に共同論文を公開、さらに共著論文を投稿予定となっている。

一方、三重大学の研究グループも国際連携を進めており、ドイツ ベルリン工科大の Kneissl 教授、イタリア パドバ大、ドイツ フランホーファー研究所、中国 科学アカデミーをはじめとした国際ネットワークを構築しつつある。また、紫外 LED の実用化に向けた取り組みも進めており、阪大や東北大、東大など多くの研究機関との連携を強化した。

さらに、以下に示す海外研究者の招へいおよび海外派遣を積極的に実施した。

- 平成 29 年度に、若手研究者 (Xiaotong Liu 博士, Xiaojuan Sun 准教授の 2 名) を Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences から受け入れ、Xiaotong Liu 博士については平成 30 年度も継続して雇用し、AlGaN の MOVPE 法による結晶成長に取り組んだ。
- 若手研究者 (Konrad Sakowski 博士, Institute of High Pressure Physics, Polish Academy of Sciences, Poland) を九州大学の寒川研究室に短期招聘 (60 日間) し、組成傾斜 AlGaN 層 (分極ドープ層) を持つ構造のデバイスシミュレーションに関する共同研究を行い、翌年 1 年間を通して長期招聘を行い分極ドープングによるデバイス物理の解析を行った。さらに本共同研究は継続され、現在も連携している。その成果としては Applied Physics Express や日本結晶成長学会誌に学術論文を各 1 編・計 2 件掲載、またもう 1 編を執筆中であり強い連携が構築された。
- 若手研究者 (稲富悠也, 九州大学 DC1) を Alberto Pimpinelli 教授 (Rice University, USA) および Theodore L. Einstein 教授 (University of Maryland, USA) の下に短期 (48 日間) 派遣し、窒化物半導体のステップフロー成長における不純物取込みに関する海外共同研究を行った (平成 30 年度)。
- 若手研究者 (稲富悠也, 九州大学 DC2) を Olivier Pierre-Louis 教授 (Université Claude Bernard Lyon 1/CNRS) の下に短期 (34 日間) 派遣し、結晶成長中の原子ステップの安定性・不安定性に関する理論モデルの構築に関する海外共同研究を行なった (令和元年度)。
- AlGaN の熱伝導率の AlN モル分率依存性をスウェーデンのリンチョピン大学の Bo Monemar 教授、Plamen P. Paskov 博士、ルンド大学の Vanya Darakchieva 教授らと連携して測定および理論的に検証し Physical Review Materials に公開した (PHYSICAL REVIEW MATERIALS 6, 104602 (2022))
- ノルウェーのオスロ大学の Andrej Kuznetsov 教授と Norway-East Asia Research Training and Education in Advanced Materials という国際共同研究を立ち上げ、人的交流を進める予定である。本国際共同研究には韓国、香港、ノルウェー等の研究機関との連携を予定している。
- フランスの Université Paris Saclay, CNRS の Ekaterine Chikoidze 博士、ポーランドの Institute of Physics, Polish Academy of Sciences の Henryk Teisseyre 博士と連携し、2022 年の European Materials Society Symposium Fall meeting において Ultra wide band gap Semiconductors for Energy and Electronics (UWBG2E) のセッションを立ち上げ国際的な連携が可能なプラットフォームを構築した。