高周波スパッタリングによる CdS 系2次元フォトニック結晶の作製と発光特性の評価

正会員 花 泉 修 (群馬大学) 非会員 古 賀 丈 浩 (群馬大学) 非会員 長 谷 川 祐 造 (群馬大学)

Fabrication of CdS Two-dimensional Photonic Crystals Using rf Sputtering and Assessment of Their Emission Properties

Member Osamu Hanaizumi (Gunma University),
Non Member Takehiro Koga (Gunma University) and
Non Member Yuzo Hasegawa (Gunma University)

KEYWORDS : photonic crystal, CdS, rf sputtering, photoluminescence, enhancement of emission, photonic bandgap

1. まえがき

発光材料で構成された3次元フォトニック結晶はフォトニックバンドギャップ効果により自然放出光による損失のないレーザ実現の可能性を持っており、フォトニック結晶の提唱¹⁾²⁾以来、応用デバイスとしての研究対象の一つにあげられている。また、フォトニック結晶はフォトニックバンドギャップ以外にも大きな異方性や高い分散性を有しており、伝搬域において例えば偏波制御性を持った発光素子の形成といった応用も可能である。2次元フォトニック結晶と組合せた化合物半導体によるレーザ発振はすでに報告されている^{3)~6)}、3次元構造においてはCdSや色素を3次元周期構造の空隙部分に取り入れる基礎的な実験が行われている段階である⁷⁾⁸⁾。自己クローニング法⁹⁾¹⁰⁾は高周波 (rf) バイアススパッタリングに基づく自己整形を利用した3次元フォトニック結晶の作製方法であり、非常に簡便であるため最も工業化に適した方法の一つである。従って、化合物半導体デバイスで多用されるエピタキシャル成長を伴わず、発光材料を自己クローニングのプロセスや材料系と組合せるための技術確立することは極めて有用なことである。

我々は既に、TEA法¹¹⁾と呼ばれる溶液含浸法と自己クローニング法を組合わせて2次元及び3次元のCdS系フォトニック結晶を形成している¹²⁾。しかしながら、作製プロセスを簡便にするためにはスパッタリングのみで形成することが有利であり、このためのプロセス技術の開発を行っている。我々は、バイアススパッタリングによる自己クローニング効果のみでCdS系(例えば、CdS/SiO₂) 3次元フォトニック結晶を形成することを目指しているが、本研究では、その第一段階として、二重干渉露光と高周波スパッタリングにより2次元のCdS系フォトニック結晶を形成し、フォトルミネッセンススペクトルの評価を行ったので報告する。

2. 作製

作製プロセスを以下に示す。

(1) 周期的レジストパターンの形成

溶融石英基板上にフォトレジスト(東京応化, THMR-iP3500)をスピンコートする。厚さはおよそ1 μ mで、屈折率はカタログ値で $n=1.68$ である。このサンプルに対して図1に示す系により二重干渉露光を行う。光源は波長 $\lambda=325$ nm、ビーム直径1mmのHe-Cdレーザ(金門電気, IK3251R-F)を使用した。レーザ光はビームエキスパンダで40倍に拡大された後、ハーフミラーで二等分され、それぞれがミラーによって角度を調節され、サンプルに照射される。1回目の露光で1次元の周期構造が形成され、サンプルを回転させて2回目の露光を重ねて行うことにより2次元の周期構造が形成される。回転角が90°なら正方格子、60°なら三角格子が形成される。今回は三角格子を形成した。1回目の露光で形成される1次元周期構造の周期 D は

$$D = \frac{\lambda}{2n\sin\theta} \quad \dots\dots\dots(1)$$

で与えられる。ここで、 λ は真空中の波長で、ここでは $\lambda=325$ nm、 n はレジストの屈折率で、ここでは $n=1.68$ 、 θ はレジスト中における光線の角度である。三角格子の格子間隔 A は

図1 二重干渉露光の実験系
Fig. 1 Set-up for double-interference exposure.

$$\Lambda = \frac{2D}{\sqrt{3}} \dots (2)$$

で与えられる。

この方法で形成されたレジストパターンの原子間力顕微鏡 (AFM) (セイコーインスツルメンツ, Nanopics1000) 像を図 2 (a), (b)に示す。2 回の干渉露光で三角格子を形成しているためレジストパターンの一つ一つの山は楕円形になっているが、配列は三角格子状になっていることが分かる。山の高さはおよそ100nm,

(a) 鳥瞰図
(a) Bird's-eye view

(b) 平面図
(b) Top view

図 2 二重干渉露光で形成したレジストパターン表面の AFM 像
Fig. 2 AFM images of the surface of the resist pattern formed using double-interference exposure.

図 3 CdS 系 2 次元フォトニック結晶表面の AFM 像
Fig. 3 AFM image of the surface of the 2D CdS photonic crystal.

格子間隔は $\Lambda=610\text{nm}$ と測定された。

(2) rf スパッタリングによる CdS 層の形成

最終的にはレジストをマスクにしたエッチングにより石英基板に周期構造を形成することを狙っているが、今回は第一段階としてパターニングしたレジストの上に rf スパッタリング装置 (エイコーエンジニアリング, ES-350) により CdS 層を 304nm 形成した。成膜条件は、ベース圧力: $2.7 \times 10^{-5} \text{Pa}$, 導入 Ar 圧力: 1 Pa, rf パワー: 80W, 基板バイアス印加なし, 基板加熱なし, である。CdS 層表面の AFM 像を図 3 に示す。基板バイアス印加などの積層の最適化を行っていないためにレジストパターンに比べると多少滑らかさが失われているが、振幅 50nm 程度の三角格子状の凹凸パターンが保存されており、2 次元フォトニック結晶が形成されていることが確認された。

3. 評価

干渉露光と同じ $\lambda=325\text{nm}$ の He-Cd レーザで励起した時の、膜面に垂直な方向のフォトルミネッセンス (PL) スペクトルを図 4 に示す。黒線は平坦な基板上に積層した CdS 膜の PL スペクトル

図 4 膜面に垂直な方向の PL スペクトルの測定値。黒線は平坦な CdS 膜, 赤線は CdS 2 次元フォトニック結晶からの発光に対応する。
Fig. 4 Measured PL spectra normal to the surface of the film. Black (Red) line corresponds to emission from the flat CdS film (the CdS photonic crystal).

ルである。今回の実験の目的のために、あえて発光スペクトルがブロードになるようなスパッタ条件を選んで成膜した。赤線は2次元フォトニック結晶からのPLスペクトルであり、波長525nm近傍にピークを持ち、少なくとも380~500nmの範囲の成分が抑圧されていることが分かった。ピークの半値全幅(FWHM)は48nmであった。面内の共振波長が525nm近傍に存在し、これに対応する成分が他の波長成分に対して増強されて観測された結果であると考えている。

4. まとめ

電子ビーム露光やエピタキシャル成長を伴わず、二重干渉露光とrfスパッタリングのみという非常に簡便なプロセスにより、CdS系2次元フォトニック結晶を形成した。作製されたフォトニック結晶の面内のパターンは三角格子で、格子間隔は610nmである。膜面に垂直な方向のPLスペクトルは525nm近傍にピークを持ち、FWHMが48nmに狭窄化されていることが分かった。今後は、rfスパッタリングにおける基板バイアスを最適化し、自己クローニングによるCdS系3次元フォトニック結晶の作製と発光特性の評価を行う予定である。

本研究は照明学会研究・教育助成(特定研究)の援助を受けた。また、本研究は一部、科研費特定領域研究(A)及び基盤研究(A)、総務省情報通信ブレークスルー基礎研究21、国際コミュニケーション基金、旭硝子財団、カシオ科学振興財団の援助を受けた。

参 考 文 献

- (1) E. Yablonovitch: Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics, Phys. Rev. Lett., 58-20, pp.2059-2062 (1987).
- (2) S. John: Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices, Phys. Rev. Lett., 58-23, pp.2486-2489 (1987).
- (3) M. Meier, A. Mekis, A. Dodabalapur, A. Timko, R. E. Slusher, J. D. Joannopoulos and O. Nalamasu: Laser action from two-dimensional distributed feedback in photonic crystals, Appl. Phys. Lett., 74-1, pp.7-9 (1999).
- (4) M. Imada, S. Noda, A. Chutinan and T. Tokuda: Coherent two-dimensional lasing action in surface-emitting laser with triangular-lattice photonic crystal structure, Appl. Phys. Lett., 74-3, pp.316-318 (1999).
- (5) O. Painter, R. K. Lee, A. Scherer, A. Yariv, J. D. O'Brian, P. D. Dapkus and I. Kim: Two-dimensional photonic band-gap defect mode laser, Science, 284, pp.1819-1821 (1999).
- (6) D.-J. Shin, S.-H. Kim, J.-K. Hwang, H.-Y. Ryu, H.-G. Park, D.-S. Song and Y.-H. Lee: Far- and near-field investigations on the lasing modes in two-dimensional photonic crystal slab lasers, IEEE J. Quantum Electron., 38-7, pp.857-866 (2002).
- (7) S. G. Romanov, A. V. Fokin, N. P. Johnson and R. M. De La Rue: Visible wavelength 3-dimensional photonic crystals from opal, CPT'98, Pc10-1, pp.209-210 (1998).
- (8) K. Yoshino, S. B. Lee, S. Tatsuura, Y. Kawagishi, M. Ozeki and A. A. Zakhidov: Observation of inhibited

spontaneous emission and stimulated emission of rhodamine 6G in polymer replica of synthetic opal, Appl. Phys. Lett., 73-24, pp.3506-3508 (1998).

- (9) S. Kawakami: Fabrication of submicrometre 3D periodic structures composed of Si/SiO₂, Electron. Lett., 33-14, pp.1260-1261 (1997).
- (10) 川上彰二郎, 花泉修, 佐藤尚, 大寺康夫, 川嶋貴之, 安田納章, 竹井良彦, 三浦健太: 自己クローニングによる3次元フォトニック結晶の作製と応用, 信学論(C), J-80-I-10, pp.773-581 (1998).
- (11) H. Hu and P. K. Nair: Chemical deposition of photosensitive CdS thin films on polyester foils, J. Crystal Growth, 152, pp.150-157 (1995).
- (12) O. Hanaizumi, M. Saito, Y. Ohtera, S. Kawakami, S. Yano, Y. Segawa, E. Kuramochi, T. Tamamura, S. Oku and A. Ozawa: Introducing CdS into two- and three-dimensional photonic crystals, Optical and Quantum Electronics, 34-1/3, pp.71-77 (2002).

(受付日2002年9月2日/採録日2002年11月1日)

花泉 修 (正会員)

群馬大学工学部電気電子工学科

昭和36年2月11日生まれ。昭和58年3月東北大学工学部通信工学科卒業。昭和63年3月同大学院博士後期課程単位満了。昭61~63日本学術振興会特別研究員。昭和63年東北大学電気通信研究所助手。平成8年同助教授。平成12年群馬大学工学部助教授。現在に至る。光通信用デバイスの研究に従事。最近ではフォトニック結晶と機能材料の融合技術の研究に取り組んでいる。工学博士。電子情報通信学会、応用物理学会、IEEE LEOS、OSA 各会員。

古賀 丈浩 (非会員)

平成14年3月群馬大学工学部電気電子工学科卒業。現在、同大学院工学研究科博士前期課程電気電子工学専攻在学中。フォトニック結晶の作製と評価の研究に従事。応用物理学会会員。

長谷川 祐造 (非会員)

平成14年3月群馬大学工学部電気電子工学科卒業。在学中、フォトニック結晶の作製と評価の研究に従事。現在、(株)インタープロジェクトに勤務。