

論文の内容の要旨

論文題目 Si 中に埋め込んだ化合物半導体量子ドットの作製と輻射再結合に関する研究

氏名 定 昌史

目的

シリコンベース発光素子，とくにシリコンレーザの実現は半導体工学における究極目標の一つである。シリコンは他の化合物半導体と比べて圧倒的の多量に存在し，毒性が無いことから環境負荷が小さくて済む。さらに，電気的特性に優れ，既存の確立した微細加工技術が流用できることから，材料間汚染の心配が無いオプトエレクトロニック素子の実現が期待される。しかしながら，シリコンは間接遷移型半導体であるため発光効率が著しく低いという障害を抱えている。その障害を乗り越えるべく，これまで様々な試みがなされてきた。とくにここ数年は微結晶 Si を中心に高い量子効率をもつシリコンベース発光ダイオード (LED) やゲイン観測の報告など，発光素子実用化への研究成果が次々と報告されている。

本研究では，III 族として Ga, In を，V 族として As, Sb を用い，シリコンベース発光素子実現を最終目標として，Si 中の III-V 族化合物半導体量子ドットの電子状態の計算を行うとともに，MBE 装置を用いた試料の作製を行い，Si 中に埋め込んだ III-V 族化合物半導体量子ドットからの輻射再結合過程について研究を行った。これは，かつて試みられたシリコン上の化合物半導体厚膜形成とは異なり，シリコン中に埋め込んだ化合物半導体量子ドットを輻射再結合中心として積極的に活用する全く新しいアプローチである。

結果

Si 上の InSb 量子ドット成長過程

Si 上への化合物半導体量子ドットの成長についてはこれまであまり研究例が無い。そこで Si との格子定数の差が最も大きくドット形成が容易に起こると予想される InSb をモデルシステムとして，Si 上の InSb ドット成長過程について系統的研究を行った。その結果，図 1 に示すように InAs/GaAs, Ge/Si と比較してかなり低い成長温度 200°C で最大密度 $1 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ が得られることがわかった。また，成長温度 300°C で V/III 比を変化させた結果，III-V 族化合物半導体成長条件として通常用いられる V 族過剰条件と異なり，Sb/In=1 のときにサ

イズ最小，密度最大となることがわかった．このときの値はそれぞれ，密度が $1 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ ，ドット高さ 5nm，ベースサイズ 40nm であった．STM も併せた観察結果からドットはベースが $\langle 110 \rangle$ 方向に配向した構造をしていることがわかった．実際，Si(001) 4°off 微傾斜基板を用いることで $\langle 110 \rangle$ 方向に配列したドット列の成長が可能でありドット位置制御への足がかりを得ている．なお，III 族導入後に作製した Ge/Si 量子構造からも極めてシャープな発光スペクトルが観測され，ドーピング，メモリ効果は杞憂であることがわかった．IV 族 MBE に III-V 族，IV 族は共存できるという意味において，MBE を用いた試料作製における材料選択の幅が一気に広がったことを意味している．

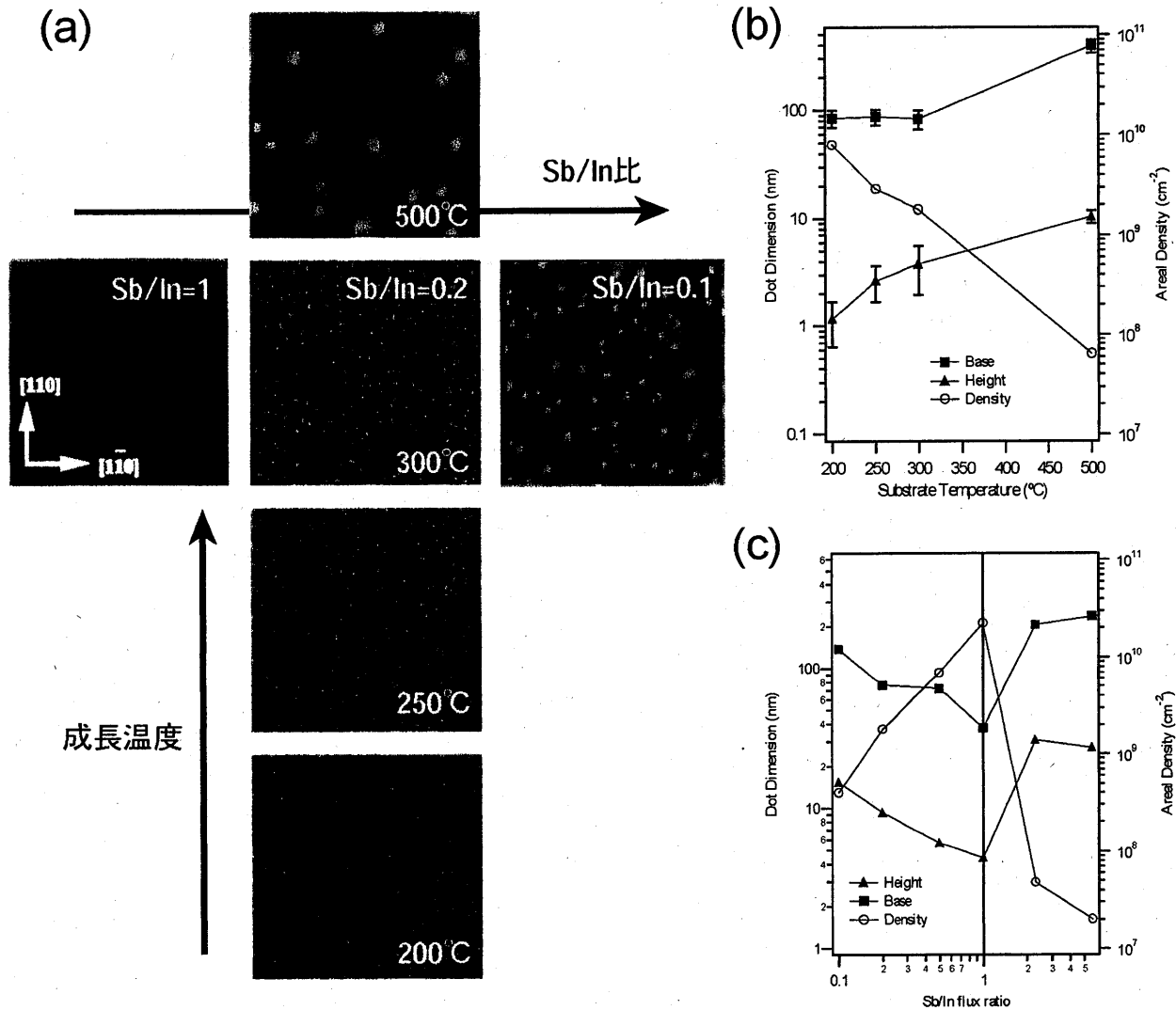


図 1 (a) Si 上に成長させた InSb の AFM 像 ($5 \times 5 \mu\text{m}$)．成長温度および Sb/In 比を変化させている．(b) InSb ドットサイズおよび密度の成長温度依存性．(c) InSb ドットサイズおよび密度の Sb/In 比依存性．

Si中に埋め込んだ化合物半導体量子ドットの輻射再結合

Si中にInAs, InSb, GaSb量子ドットを埋め込んだ構造をそれぞれ作製し、低温における蛍光測定を行った。その結果、いずれの試料からも、Siサブギャップである0.8-1.1eVにブロードな発光ピークを観測したが、とくにGaSb/Si量子ドットにおいて、従来の間接遷移型半導体を遥かに凌駕する強度の蛍光を得た。蛍光寿命はInAs/Si, InSb/Si量子ドットにおいてサブ μ s, GaSb/Si量子ドットにおいてはサブmsと非常に長く、歪の影響を考慮した理論予測に従って間接遷移による輻射再結合であることを裏付ける。図2(b)に示すように温度上昇に従い発光ピークは200meV近くのストークスシフトを示しつつ、室温まで生き残った。これはGaSb/Si界面の不均一によるポテンシャル揺らぎによって、再結合中心がエネルギー的に分布しており、温度上昇に伴ってよりエネルギーの低い結合中心へキャリアが緩和していくためと考えられる。さらに、蛍光強度は励起光強度にほぼ比例し、バンド端由来の発光であることがわかるとともに、強励起に伴うピークシフトが観測されないことからドナー・アクセプタ間の発光で無いことも示された。

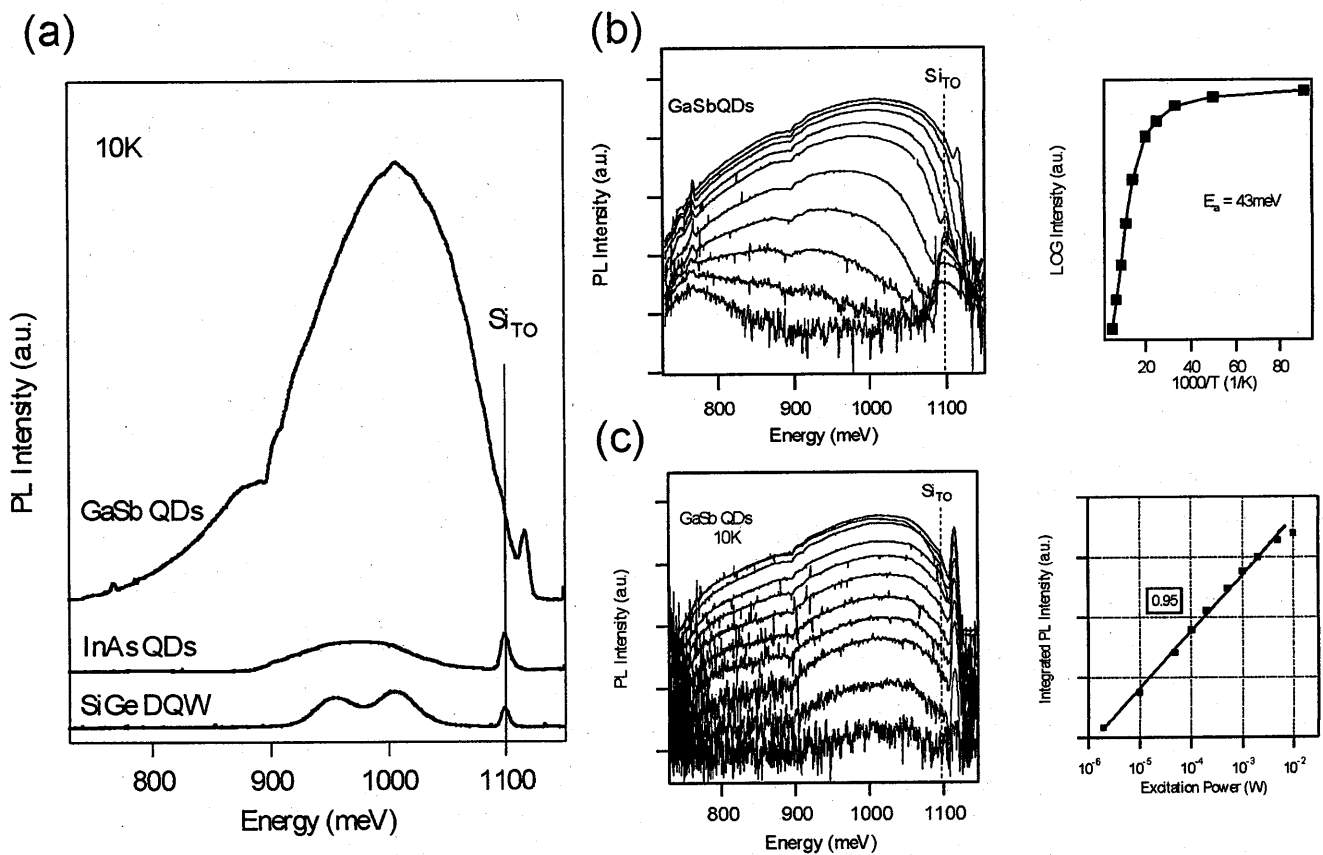


図2 (a) Si中に埋め込んだGaSb量子ドットからの低温におけるPLスペクトル。(b) GaSb/Si量子ドットのPLスペクトル温度依存性。(c) GaSb/Si量子ドットのPLスペクトル励起強度依存性。

Si中に埋め込んだGaSb量子ドット高輝度発光ダイオードの作製

Si上GaSb量子ドットの作製に当たっては、過剰Sbの表面偏析に伴いキャップSi層が自動的にn形にドーピングされる。このため、p形基板を用いるだけで活性層にGaSb量子ドットを含むp-n接合の形成が可能となる。GaSb量子ドットをp-n接合に埋め込んだLEDは低温において極めて強い蛍光強度を有し、図3に示すように通常の赤外線カメラで直接像を捉えることが可能である。校正済みLDとの比較から見積もられる外部量子効率(η_{ext})は0.3%とシリコンベースLEDにおける記録的な値を叩き出した。温度上昇とともに発光ピークは低エネ

ルギー側にシフトし発光強度は減少するものの、図 4 (a), (b) に示すように室温でも動作する。さらに、室温におけるパルス応答速度は立ち上がり、立下りとも 6ns/3dB を記録した (図 4 (c) 参照)。

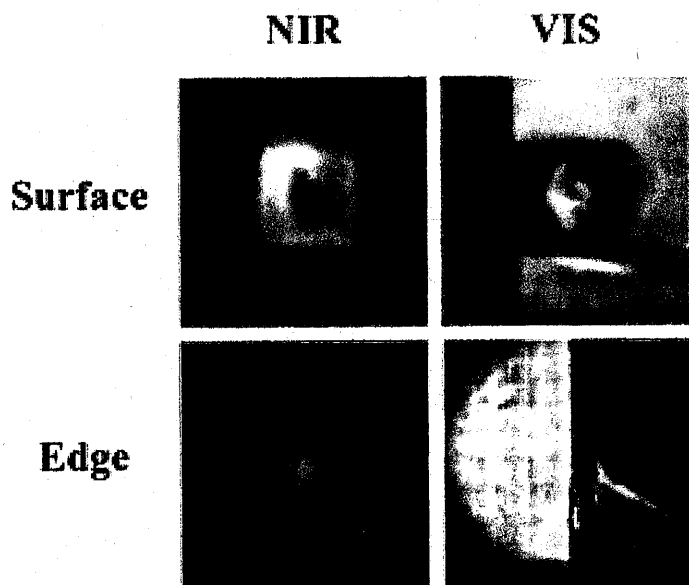


図 3 赤外カメラで撮影した GaSb/Si QD EL 像 (左列)。上段が表面出射像，下段が端面出射像を表す。右列は対応する可視像。

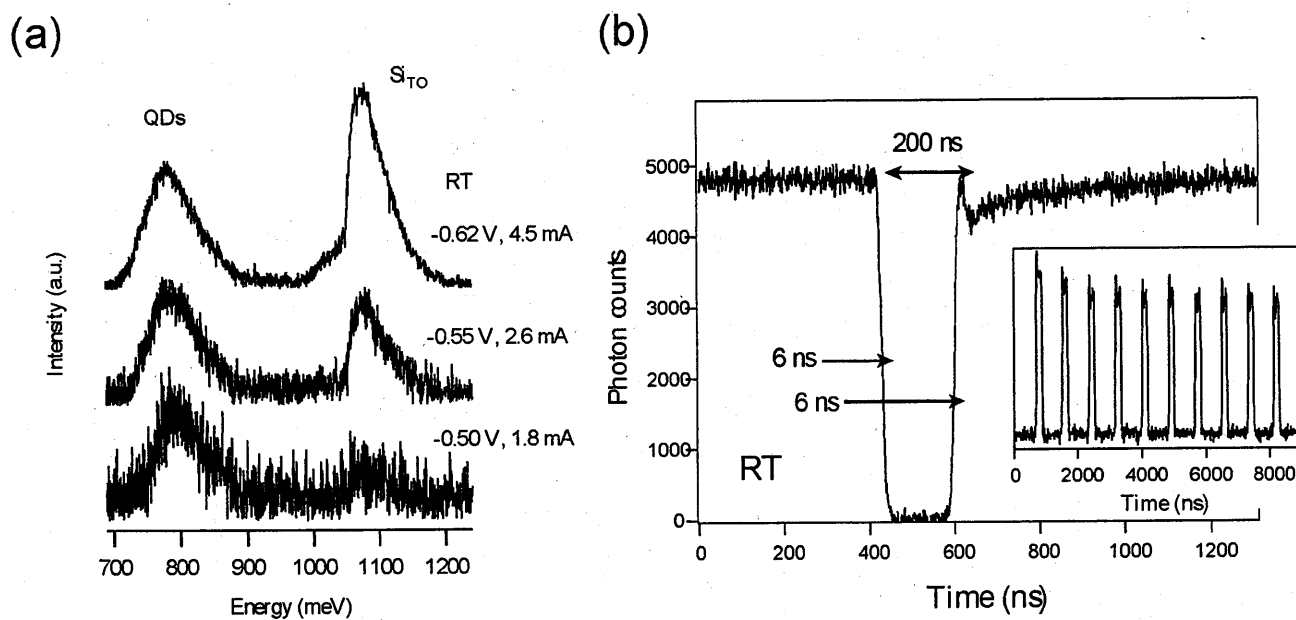


図 4 (a) GaSb/Si LED の室温における EL スペクトル。(b) 単一パルスに対する時間応答。挿入図はパルス列に対する応答を示したものの。

Si 中 GaSb 量子ドット構造における光増幅特性の観測と検証

図 5 (a) 挿入図に示すポンプ・プローブ配置を用いて、Si 中に GaSb 量子ドットを埋め込んだ構造において、低温下で光励起、電流励起の双方において光増幅特性を観測した。とくに、シリコンベース構造における電流励起による光増幅作用の観測は我々の報告が初めてである。さらに、SOI 基板を用いることで光閉じ込めによる増幅率増大を狙い、5K において増幅率 17dBcm^{-1} を得た。増幅率はポンプ電流強度だけでなく、プローブ側の電流強度にも依存する。このことは、観測される増幅が単に屈折率の変化によるものではないことを示している。また、増幅率は温度上昇とともに単調に減少し、20K で吸収へと転じた。光増幅作用は GaSb/Si 界面に強く局在した電子が Γ 点に存在確率を持ち、そこで起きる直接遷移によるものと考えられる。これと対応するように、低温における蛍光寿命は 2 つの寿命成分を持つのに対しその内の早い寿命成分は増幅が吸収へと転じる 25K で消失する。

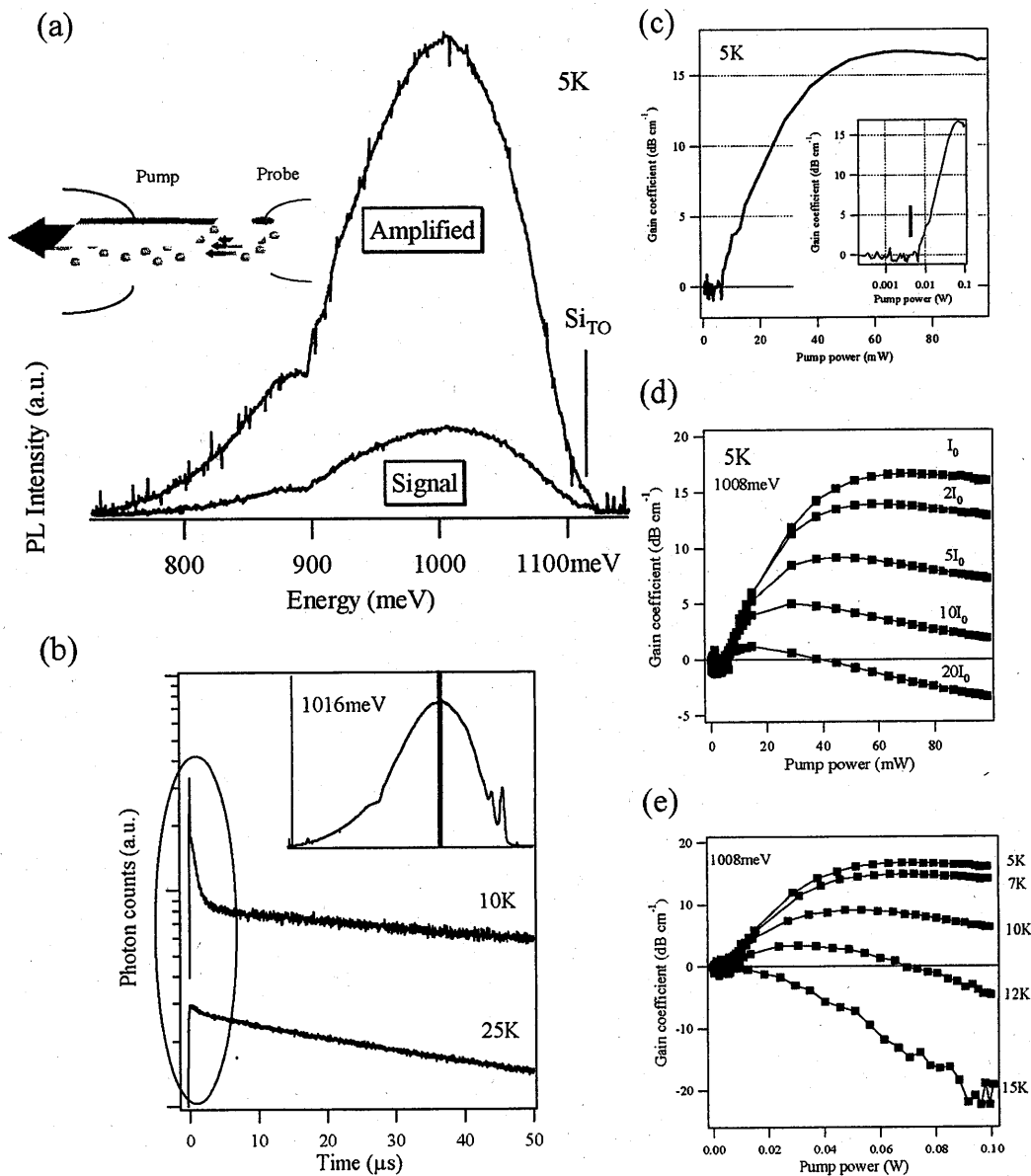


図 5 (a) 電流注入による単一パス光増幅実験。挿入図は実験に用いたポンプ・プローブ配置。(b) 10K, 25K における蛍光寿命。(c) 増幅率のポンプ電流依存性。(d) 増幅率のプローブ電流依存性。(e) 増幅率の温度依存性。

Si 中化合物半導体量子ドットの成長後熱処理による影響

デバイス応用に向けて熱処理が蛍光特性に与える影響を調べることは重要である。InAs, InSb, GaSb とも 600°C 以下の熱処理では結晶性の回復に伴う蛍光強度の増大が観測されるのに対し、それ以上の温度では転位の導入および化合物半導体量子ドットの解離に伴って蛍光強度の大幅な減少とスペクトル変化が観測された。さらに 800°C 以上の熱処理では解離した III 族元素が活性化し III 族ドーパ Si の蛍光スペクトルへと変化する。興味深いことに In ドープ Si の PL スペクトルは InAs/Si, InSb/Si 量子ドットと同じく Si サブギャップにブロードなピークを示すが、励起光強度依存性が異なることで区別できる。この In δ ドープ Si は 1μm 帯において強い吸収を示し光電流検出が可能である (図 6 (c) 参照)。

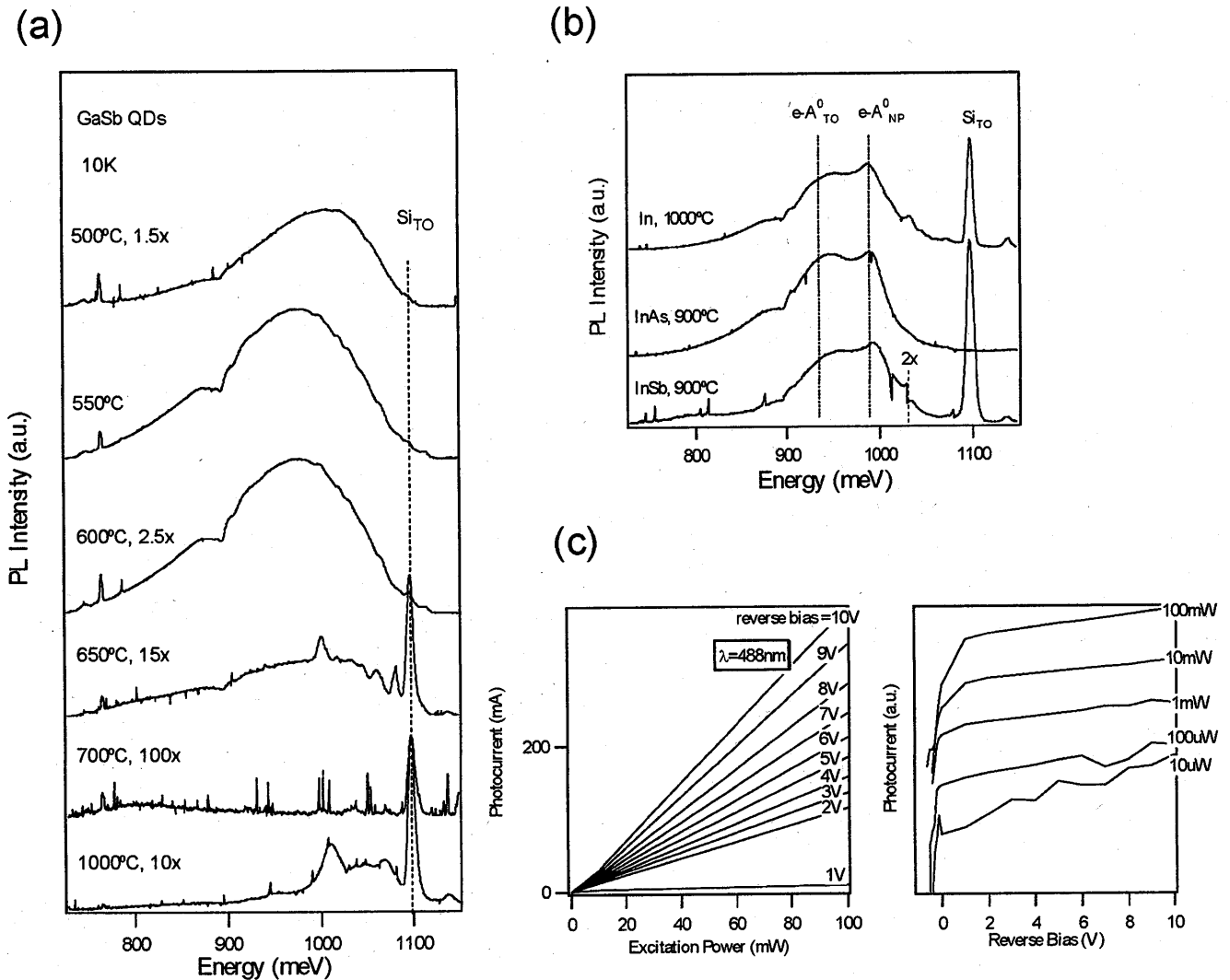


図 6 (a) GaSb/Si 量子ドットの熱処理に伴う蛍光変化. (b) In ドープ Si および InAs/Si 量子ドット, InSb/Si 量子ドットの成長後熱処理による蛍光比較. (c) In ドープ Si (1000°C アニール) の光電流検出.

まとめ

以上, シリコン中に埋め込んだ化合物半導体量子ドット構造を用いてシリコンベース発光素子の実現可能性を調べた. シリコンと化合物半導体のバンド接続は歪の影響によりいずれも Type-II 接続となるため化合物半

導体の直接遷移の恩恵に与ることは出来ない。しかしながら、ドットへの閉じ込めと、極性／無極性界面で生じるポテンシャルトラップにより強く束縛された電子・正孔対は散逸を免れ、GaSb/Si 量子ドットにおいて従来の間接遷移構造をはるかに上回る蛍光強度を与えた。GaSb 量子ドット LED は低温で量子効率 0.3%を示し、室温まで動作する。さらに、界面に局在した電子・正孔対の直接遷移成分に起因すると思われる電流注入による光増幅作用の観測は、現時点においてシリコンレーザ実現への最短距離に位置している。今後は導波構造および共振器構造形成の作製に加え GaSb 量子ドットの積層化を通じた量子効率向上をはかり、Si 系で初のレーザ発振を目指したい。