

論文の内容の要旨

間接バンド端を基底状態にもつ2準位電子・正孔系における 輻射再結合過程の研究

氏 名 寺 田 陽 祐

シリコン(Si)ベースの光エミッタはオンチップ光電子融合を実現する上でのキーデバイスとして期待されている。しかしSiのエネルギーバンドは間接遷移型で輻射再結合速度が小さいため光エミッタには不向きである。この実現に向けて多くの研究が行われる中、系に新たな準位を導入する方法論が少なくない。例えば、 $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ / Si 歪量子井戸ではSiの準位に $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ 層(井戸層)由来の準位が加わる。光物性の観点からは発光準位だけが注目されがちであるが、Siのような輻射再結合速度の小さい系においては、他の準位との競合やキャリア移動が顕著となる。キャリア移動はフォノン散乱を伴う実空間、波数空間内での遷移にほかならないが、フォノン散乱は非常に速い過程(~ps)なので、断熱的なキャリア再分布の形で輻射再結合過程に影響を与える。一方、輻射再結合速度の小ささゆえに他の励起・緩和過程との競合をも考慮する必要がある。

本研究の目的は、電子格子相互作用で結合した複数準位をもつ電子あるいは正孔系におけるキャリアダイナミクスと輻射再結合過程の相関に関する知見を得ることである。本研究では基底・励起状態2準位系を対象に選んだ。間接遷移バンド端が基底状態となる $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ 系結晶を用いることで、キャリア再分布の影響をまず調べた(2準位間でのキャリア分配による励起強度に対する高次非線形性とフェルミ端・状態密度特異点共鳴の光学検出)。次に同じ2準位系を用いて、通常は分光によって観測できない非輻射再結合過程を発光準位のみで模倣した(2準位輻射再結合系を用いた非輻射再結合過程とその競合ダイナミクスの模倣)。最後に、近年注目を集めているゲルマニウム(Ge)光エミッタにおいても、間接遷移端と直線遷移端の2準位でのキャリア再分布が再結合過程に重大な影響を与えていることを調べた(Ge室温蛍光の直接・間接遷移発光の時間・空間分離とバレー間フォノン散乱による直接バレー励起の実証)。

1) 2準位間でのキャリア分配による励起強度に対する高次非線形性とフェルミ端・状態密度特異点共鳴の光学検出

フォトルミネッセンス(PL)測定法は、光励起されたキャリアが緩和する際に放出する光を計測する手法である。スペクトルを計測しバンド端近傍のエネルギー状態を調べるのが一般的だが、励起強度依存性を測定することで競合過程を推察することが可能である。具体的には放射光と励起光の強度を両対数軸上にプロットし、傾き m を算出することで、キャリア数密度に対し何次の過程(放射再結合過程は2次)が優勢なのかを推定する。一般則では3次までの過程の競合 $dn/dt = -An - Bn^2 - Cn^3 + G$ (1) を考えるため、 m が2を超えない法則をもつ。これは単一の再結合中心を前提にしているが、本研究では2つの再結合中心でのキャリア再分布の影響により m が2を超え得ることを見出した。

状態密度に不連続を内包する系(図 1-1)で、基底状態、励起状態のキャリア数を全キャリア数の関数として計算したところ、非線形な増大が得られた(図 1-2)。考察により、キャリアが形成するフェルミ分布の裾野と状態密度の不連続点が近いとき(この状態をフェルミ端・状態密度特異点共鳴と呼ぶことにする)に傾き m_{DOS} が大きくなることが分かった。PL 実験の観測で得られる m は、(1)式から得られる傾き m_{kin} と m_{DOS} の積 $m = m_{kin} m_{DOS}$ (2) で表される。 m_{kin} は2を超えないが、 m_{DOS} が大きな値を取り得るので、 m は2を超え得る。また、温度上昇によりフェルミ分布が広がると、励起キャリアの m_{DOS} が小さくなることも計算から得られた。

以上をふまえ、2準位とも光学活性な $Si_{1-x}Ge_x/Si$ 歪超格子(Strained Layer Superlattice, SLS)障壁量子井戸(Quantum Well, QW)を用いて、PL 強度の励起強度依存性を測定した。図 1-2 に結果を示す。励起状態に相当する SLS の発光から $m = 2.9 (> 2)$ が観測され、フェルミ端・状態密度特異点共鳴の光学的な検出が実証された。また、温度依存性の測定では温度が高いほど m が小さくなることが観測できた。実験結果とモデルの傾向は定性的に一致した。フェルミ端・状態密度特異点共鳴が起こる励起強度領域では、 m が大きくなり得る。

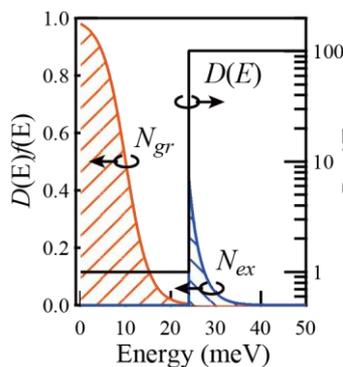


図 1-1 状態密度不連続の系

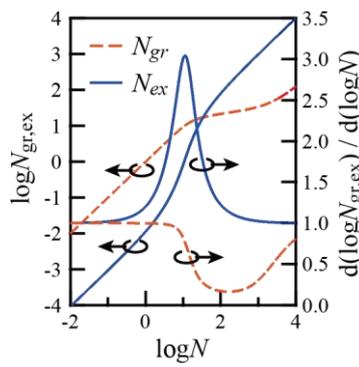


図 1-2 N_{ex} の計算結果

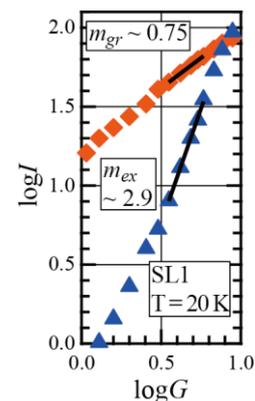


図 1-3 m の励起強度依存性の実験結果

2) 2準位放射再結合系を用いた非放射再結合過程とその競合ダイナミクスの模倣

Siをはじめとする間接遷移型半導体は放射再結合(Radiative Recombination, RR)レートが小さいため、非放射再結合(Nonradiative Recombination, NR)過程との競合が重要である。Shockley-Read-Hall 再結合などキャリア数密度に対し低次の NR 過程は弱励起下で支配的になる

ため根本的な除去が必要であるが、起源は不純物や結晶欠陥であり除去は困難である。また、NR過程であるため分光によって特性を評価することができない。本研究は1) で用いた発光2準位系 ($\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x / \text{Si SLS}$ 障壁 QW)を用いて、NR 中心へのキャリア移動を再現し、さらに発光の観測によって特性が評価可能であることを示す。

図 2-1 に励起状態の PL 発光の再結合寿命の温度依存性を示す。比較対象として、基底状態のみの系である $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x / \text{Si SLS}$ からの発光の再結合寿命も計測した。弱励起領域において励起強度の増大に伴い再結合寿命が増大した。RR および高次の NR では励起強度が高いほど再結合寿命が小さくなるため、低次の NR の再結合寿命の特性を模倣していると考えられる。また、基底状態のみの系である $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x / \text{Si SLS}$ と比較すると、弱励起領域では発光2準位系の方の再結合寿命が小さいことが分かる。再結合寿命の低下は励起状態(SLS)から基底状態(QW)へのキャリア移動を示唆する。一方、強励起領域では弱励起領域でみられた NR の特性が消失している。これは QW から SLS へのキャリア横溢により QW が NR 中心として機能しなくなったことを示唆している。以上のように推測したキャリア移動の機構は、スペクトルの時間発展の観測(図 2-2)によって直接観測可能である。

続いて温度依存性を調べたところ、 $T = 20\text{-}30\text{ K}$ より低温でも高温でも本系の NR としての機能が抑制された(図 2-3)。それぞれの温度領域で発光強度および発光寿命を解析することで、低温下では励起状態を構成する SLS 層のポテンシャル揺らぎが、高温下では基底状態からの励起状態からの逆移動の促進が、それぞれ NR の機能を抑制していたことが分かった。

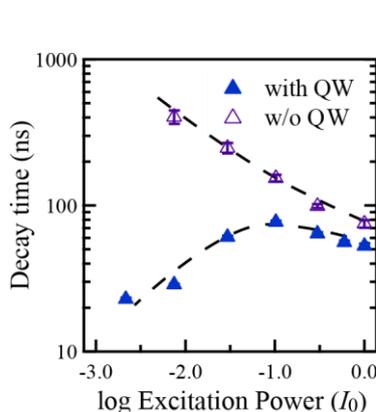


図 2-1 励起状態の寿命の励起強度依存性

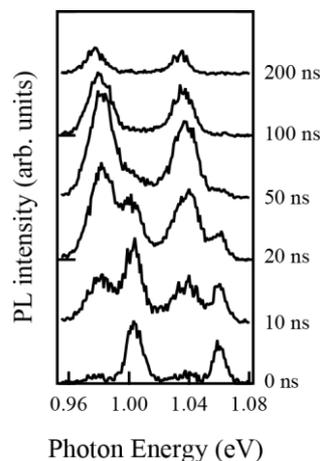


図 2-2 PL スペクトルの時間発展

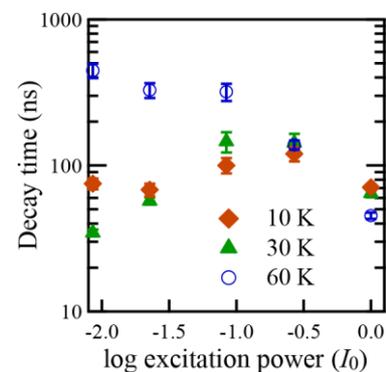


図 2-3 各温度における寿命の励起強度依存性

3) Ge 室温蛍光の直接・間接遷移発光の時間・空間分離とバレー間フォノン散乱による直接バレー励起の実証

近年、Ge が光エミッタ材料として注目を集めている。Ge は Si の同族元素であり CMOS をはじめとする Si 技術と親和性が高く、間接遷移型だが直接遷移端(Γ_c)のエネルギーが比較的近いエネルギーバンドをもつためである。デバイス化を前提としている以上、直接遷移発光の取り出しはエレクトロルミネッセンス(EL)で行われることが望ましいが、PL と異なり必ず間接遷移端(L_c)へキャリアが注入されるため、 L_c 端から Γ_c 端へのフォノン散乱の促進が必要となる(図 3-1)。直接遷移 EL 発光はすでに複数報告されているが、大半がスペクトル上での同定のみを根拠としてい

る。しかし、室温では直接遷移と間接遷移の発光ピークの重なりが大きくなり、また間接遷移発光が抑制され発光ピークが1つしか観測されない系が存在するため、別視点からの根拠の補強が必要である。本研究では、直接遷移が間接遷移と比較して非常に小さな時定数をもつことを利用して、時間軸上での直接遷移 EL と間接遷移 EL の分離を試みた。

まず Ge(100)基板の表面に Al 電極を2箇所蒸着した MSM ダイオードに 30 V の矩形パルスを印加し、EL の時間発展を観測した(図 3-2)。EL の蛍光減衰曲線から速い応答(~15 ns)および遅い応答(~300 ns)が得られた。そこで波長分散を測定したところ、速い応答の分布がスペクトル上での直接遷移の発光ピークと一致した。したがって速い応答は直接遷移によることが同定できた。

続いて、p-i-n ダイオードを用いて印加パルスの順方向・逆方向電圧の依存性を調べた。ダイオードの電流-電圧特性から、逆方向電圧によって電場の印加が期待される。実際に逆方向電圧により直接遷移・間接遷移の双方の時定数が小さくなった。また、逆方向電圧印加のもとでスペクトルの時間発展を観測されたところ、直接遷移と間接遷移の分離が強調された(図 3-3)。さらに直接遷移の発光ピークに Stark シフトと思われる低エネルギー側への移動が観測された。

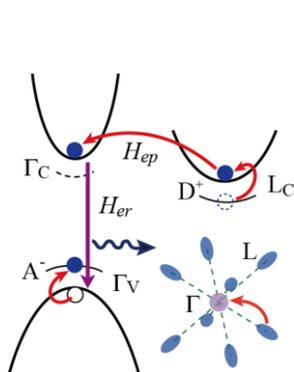


図 3-1 直接遷移 EL の際のフォノン散乱

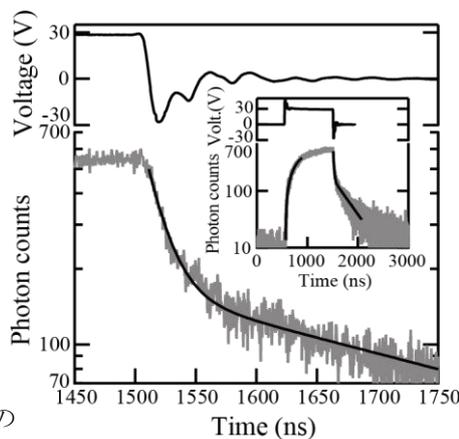


図 3-2 EL 発光ピークの時間発展

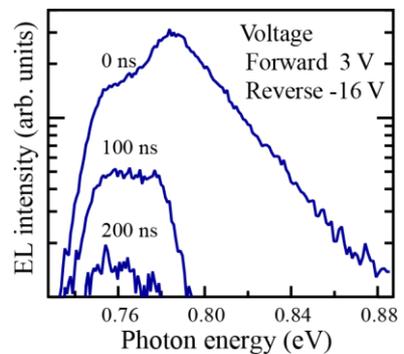


図 3-3 EL 発光スペクトルの時間発展

結論

間接バンド端が基底状態のフォノン結合 2 準位系において断熱的キャリア再分布が輻射再結合過程におよぼす影響について調べた。2 準位間でのキャリア分配による励起強度に対する高次非線形性の研究では、両対数軸上での励起状態の発光強度の傾きが大きくなる可能性を見いだすとともにフェルミ端・状態密度特異点のバリアレス共鳴が光学検出できることを示し、状態密度不連続を内包する系に普遍的な現象であることを指摘した。一方、2 準位系の輻射再結合系を用いて非輻射再結合過程とその競合ダイナミクスを模倣する試みは、NR 過程を可視化することで未踏の光物性の解明につながる可能性を内包している。以上の結果は Si, Ge に限定されず、励起状態の蛍光制御への道筋をつける内容である。また、Ge 室温蛍光の直接・間接遷移発光の時間・空間分離およびバレー間フォノン散乱による直接バレー励起の実証では、直接遷移 EL の寄与を時間ドメイン観測から同定する一方、波数空間においても断熱的 2 準系キャリア再分布が本質的に重要なこと、さらに Stark シフトを通じたキャリア再分布観測の可能性を示した。以上、キャリア再分布が内在する 2 準位系再結合の励起強度・温度・電場依存性を通じて、外場から励起状態がより強い影響を受けることがわかった。これらは基底状態に特化した物性描像に対する理解の深化に寄与するとともに未踏分野である励起状態の発光制御への発展可能性を示唆するものである。