

微小共振器中 Ge 量子ドットによる高効率発光素子

丸泉 琢也・徐 学俊

Highly Efficient Light Emitting Devices Based on Ge Quantum Dots in Optical Microcavities

Takuya MARUIZUMI and Xuejun XU

Room-temperature current-injected light emitting diodes, LEDs, with sharp emission peaks in the near infrared region for optical communication are demonstrated based on Ge self-assembled quantum dots embedded in optical microcavities, including photonic crystal cavities and microdisks. LED with modified L3 photonic crystal cavities showed sharp resonant peaks with Q-factor over 800 in the room temperature electroluminescence spectra around wavelength of 1.3 μm . Measurable output power on the level of pico-Watt is obtained under 3 mA injected current. To realize integration with other on-chip photonic elements, waveguide-coupled microdisk light emitting diodes were also fabricated. Light emission was successfully coupled from the microdisk to waveguide. Sharp resonant peaks with Q-factor over 5000 were realized. As a further step to enhance the light emission efficiency of Ge quantum dots, n-type delta-doping at Ge/Si interfaces is performed and up to 3 times enhancement of emission intensity is obtained due to extra supply of extrinsic electrons.

Key words: light emitting diode, Ge quantum dot, optical microcavity, waveguide-coupled LED

フォトリックネットワーク信号伝送技術と半導体信号処理技術のかけ橋となるシリコンフォトリックス研究が近年ますます盛んになってきているが、その中心となるシリコン系発光源の開発に関してはまだまだ研究段階にあり、高効率発光デバイスの開発が喫緊の課題となっている。シリコン CMOS 技術との融合を考えたとき、シリコン (Si)、ゲルマニウム (Ge) 等のIV族半導体を発光源材料として利用できれば理想的であるが、シリコン、ゲルマニウム等のIV族半導体結晶は、そもそも間接遷移型半導体のため、ガリウムヒ素などのIII-V族半導体に比べ発光強度が弱く、発光強度の改善に向けた努力が続けられ、Si ナノ結晶の利用¹⁾、量子井戸の利用²⁾、そしてひずみゲルマニウム³⁾の利用などのさまざまな試みがなされてきた。

われわれは、ゲルマニウム (Ge) 量子ドット (quantum dot; QD)⁴⁾ に注目し、これを発光源とし、フォトリック結晶やマイクロディスク等の微小共振器と組み合わせた通信波長帯、室温高効率発光を可能とするシリコン系発光デバイスの開発を進めてきた^{5,6)}。本稿では、Ge 量子ドットの

成長とその発光特性、フォトリック結晶 (photonic crystal; PhC) やマイクロディスク (microdisk; μDisk) などの微小光共振器と組み合わせた電流注入型発光デバイスの開発、そしてオンチップ実装を意識した導波路結合型発光デバイスの開発について報告する。

1. Ge 量子ドットの作製と評価

分子線エピタキシー結晶成長技術 (molecular beam epitaxy; MBE) を用い、シリコン基板上に数百 $^{\circ}\text{C}$ で成長したゲルマニウムは、SK 機構 (Stranski-Krastanov) により、数十 nm 寸法、高さ 10 nm 程度のドーム状/ピラミッド状のナノ構造を自己組織的に形成することはよく知られている。その電子状態は、図 1 に模式的に示す通り、Ge の価電子帯にホールが、Si の伝導帯に電子が局在するタイプ II 型のヘテロ構造を形成し、キャリア閉じ込め効果による発光効率の向上が期待できる。Ge のバンドギャップから期待される発光波長は、近赤外通信波長帯に位置するため、シリコン系発光デバイス材料として好適と考えられ

る。当初は、高品位な結晶成長が期待できるガスソース MBE により成長した Ge-QD を用いていたが、フォトルミネセンス (photoluminescence; PL) 発光は 40 K 程度の低温条件でしか観測することができなかった。ここ数年にわたる結晶成長条件の改善により、固体ソース MBE を用いても、室温で良好な発光が得られるまで改善されてきた。成長温度、Ge 膜照射量を変え、SOI 基板上 (silicon-on-insulator) 上で MBE 成長した Ge-QD の AFM (atomic force microscopy) 像を図2と図3に示す。成長温度を700°Cとすることで、ドットサイズの増大と面密度の増加が図られていることがわかる。ドット寸法は80~95 nm 径、高さ9.0~9.7 nm となっている。この条件で、20 nm の Si ス

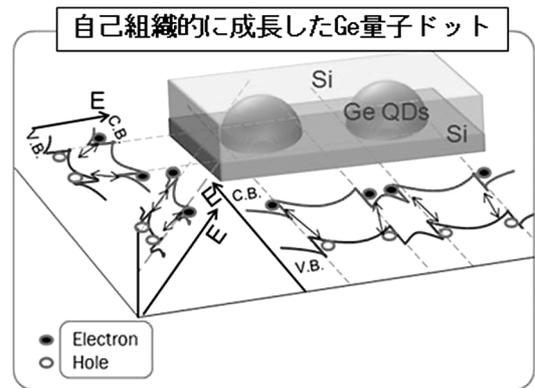


図1 Si基板上に自己組織的に成長したGe量子ドットとその電子構造。ホールがGeの価電子帯(V.B.)に、電子がSiの伝導帯(C.B.)に局在するタイプII型のヘテロ構造を形成する。

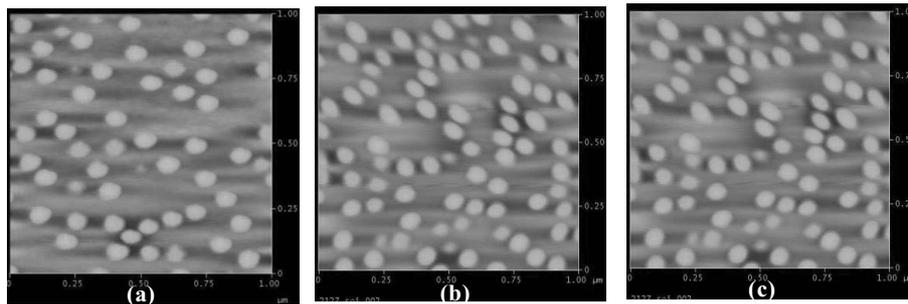


図2 異なるGe表面膜厚で、成長温度650°Cで作製したSOI基板上Ge-QDのAFM像。Ge照射量に対応する換算膜厚 t_{Ge} は、(a) 11 Å, (b) 12 Å, (c) 14 Å。

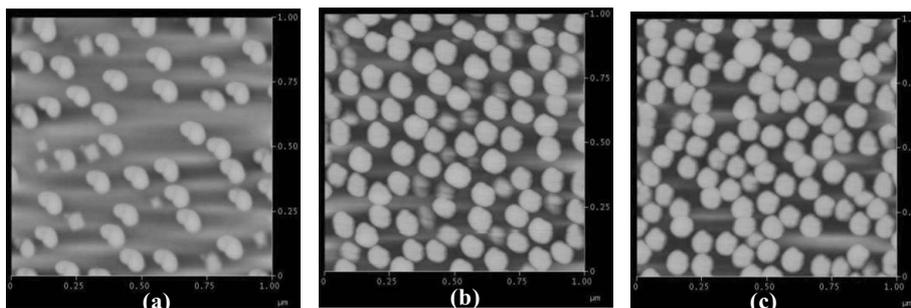


図3 異なるGe表面膜厚で、成長温度700°Cで作製したSOI基板上Ge-QDのAFM像。Ge膜厚照射量に対応する換算膜厚 t_{Ge} は、(a) 10 Å, (b) 11.54 Å, (c) 14 Å。

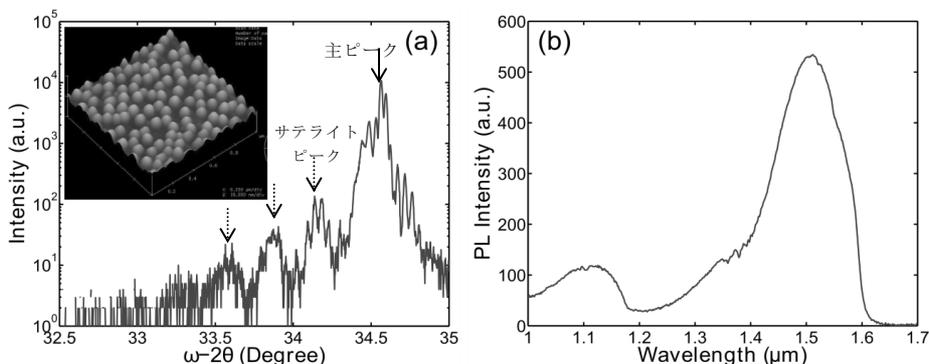


図4 SOI基板上に成長したGe-QD (3層) の特性。(a) XRD ロッキングカーブ、(b) 室温測定でのPLスペクトル。

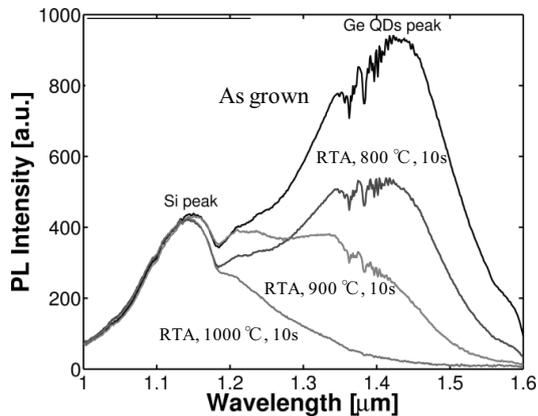


図5 Ge-QD/Si 3層構造の RTA 高温化に伴う PL スペクトルの変化.

ペーサー層を含め 3 層構造とした Ge-QD 試料の XRD ロッキングカーブと室温 PL スペクトルを図 4 に示す. Ge 由来のサテライトピークが観測されており, Ge-QD の結晶性のよさが確認できる. $1.5 \mu\text{m}$ の PL スペクトルは, Ge の間接バンドギャップに比べ短波長域にあるが, これは量子閉じ込め効果によるものではなく, Si スペーサー層と Ge-QD 間の原子交換効果 (インターミキシング) により Ge-QD のバンドギャップが増加したためである. 次に, 熱処理の発光スペクトルに及ぼす影響を調べた結果を図 5 に示す. $800^\circ\text{C} \rightarrow 900^\circ\text{C} \rightarrow 1000^\circ\text{C}$ とアニール温度を高温化することで, Ge 起因のピークがブルーシフトすることがただちにわかる. ドープント活性化をはじめとする RTA アニールでは, Ge-QD からの発光を通信波長帯 $1.5 \mu\text{m}$ 近辺に維持するためには, プロセス温度を 800°C 以下に抑えなければならないことがわかる.

2. 微小光共振器を用いた発光デバイスの開発

先に述べた Ge-QD は, 単体ではブロードな発光しか与えず, 通信波長帯の発光源としては直接利用できるレベル

にはない. そこで, 高 Q 値をもち, モード体積の小さい PhC や μDisk などの微小光共振器と組み合わせることで, パーセル効果⁷⁾により発光線幅の先鋭化と発光強度の増強を図ることとした. 本章では, これら微小共振器と Ge-QD を組み合わせた電流注入型発光デバイスについて最近の成果をまとめる.

2.1 PhC 微小共振器を用いた発光デバイス

当初は, SOI 基板上に縦方向に形成した p-i-n ダイオードの i 層に Ge-QD を組み込み, PhC 微小共振器として, 六方格子を利用したデバイスを作製し, 室温で電流注入による近赤外発光を実証できたが, デバイス構造の発光特性に与える影響が大きく, そのスペクトルはきわめてブロードであった⁶⁾. そこで, 基板横方向に p-i-n ダイオードを形成し, Ge-QD を組み込んだ i 層に L3 型 PhC 微小共振器を形成した発光デバイスを開発した^{8,9)}. 共振器構造を最適化した発光デバイスを図 6 に示す. 高ドープな領域となる p+, n+ 領域を PhC スラブ内に形成し, PhC 共振器領域はノンドープのまま利用する構成となっている. メタルコンタクト領域も PhC 共振器から離し, その影響を抑えるとともに, PhC 共振器周りにアイソレーショントレンチを形成し, 注入電流が Ge-QD を含む共振器部以外には流れないようにした. L3 型微小共振器の空孔周期 a は 400 nm , ホール半径 r は $0.28a$, そして Γ -K 方向にある共振器端の空孔は半径を $0.04a$ だけ縮小し, Q 値の最適化¹⁰⁾を進めた. 作製プロセスの詳細は原著⁹⁾を参照願いたい. 本デバイスは典型的なダイオード I-V 特性を示し, 逆バイアス時 (-5 V) でのリーク電流は 0.28 nA である. 順方向電流注入時の室温発光スペクトルを図 7 に示す. 発光開始の閾値電流は, $50 \mu\text{A}$ と従来デバイス⁸⁾に比べ 1 桁改善されている. $1.335 \mu\text{m}$ 位置の発光ピークは線幅 1.6 nm , Q 値 831 を示した. 微小共振器をもたない参照用ダイオードの発光特性に比べ, 微小共振器と組み合わせることで, 40

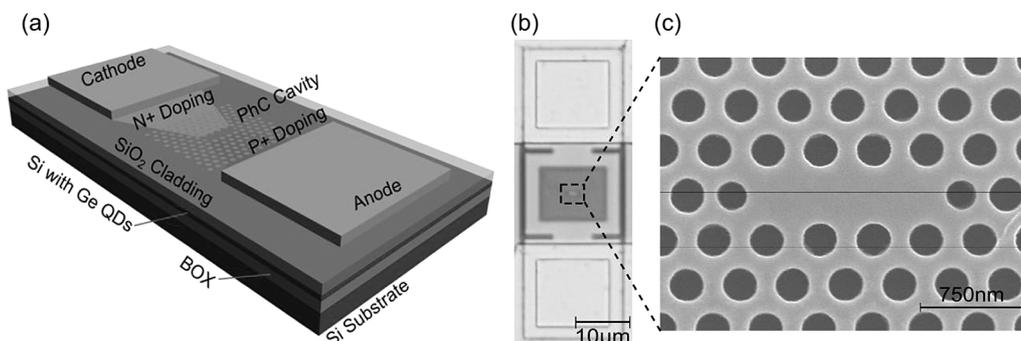


図6 横型 p-i-n ダイオード構造をもつ発光デバイス. (a) 素子の三次元モデル, (b) 作製デバイスの光学顕微鏡像. 上下電極に接しコの字にみえる領域は, リーク電流を抑制するアイソレーショントレンチである, (c) L3 共振器部の SEM 像.

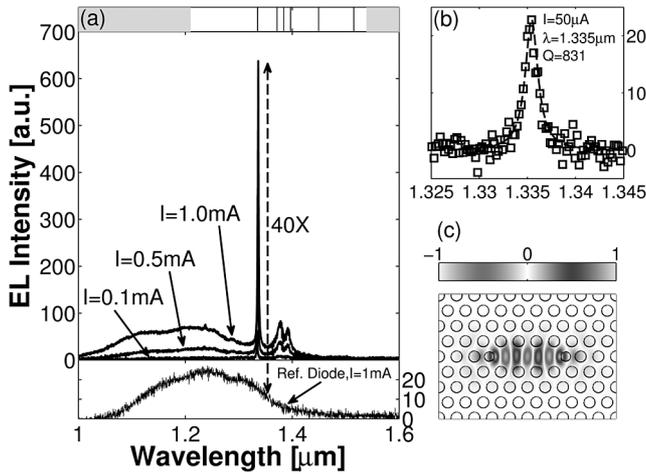


図7 L3型共振器をもつ横型p-i-nデバイスの特性. (a) 室温電流注入発光スペクトル, 図中上段にはFDTDシミュレーション結果を, 下段には共振器構造をもたない参照ダイオードからの発光を示す, (b) 1.335 μm 主発光ピークの拡大図, (c) 主ピーク電場成分のプロファイル.

倍以上の発光増強が図られていることがスペクトルから読み取れる. また, 同図 (a) 上部に示した FDTD (finite-difference time-domain) シミュレーション結果から, 主ピークは5次のモードであり, Q 値も実測値に近い774であった. 一方, 2次, 3次のピークは, これに比べブロードなピークとなっている. また, 実測のスペクトルでは, 基本ピーク, 1次ピークとも観測されていないが, これはSi/Ge間のインターミキシングによるものであり, 熱プロセスの改善により主ピーク位置も1.5 μm 領域にシフト可能であると考えている. 次に, 注入電流の変化に伴う発光の変化を調べてみたところ, ピーク位置はレッドシフトし, Q 値は自由キャリアー吸収の増加に伴い減少していた. このときの主ピーク強度ならびにスペクトル全域の積分強度の変化を図8 (a) に示したが, 参照用ダイオードの発光と比較して双方とも, 絶対量, 傾き (外部量子効率に対応) とともに増強されていることがわかる. 2 mAを超える電流領域では, 主ピークモードの強度は飽和し, その後, 減少している. 一方, ブロードなバックグラウンド強度が支配的となる全域の積分強度は, 増加し続けていることから, 高注入電流域では, キャリヤーはPhC共振器周辺の領域に拡散していると結論できる. シングルモードファイバーとパワーメーターを用い計測した本デバイスの発光強度の絶対値を図8 (b) に示すが, 3 mA時で6 pWと微弱である. 今後, 作製プロセスの最適化によるGe-QDの密度と均一性の向上, さらに発光層数を増やすことで向上が可能である.

2.2 μDisk 微小共振器を用いた発光デバイス

発光デバイスを導波路, 変調器, フォトディテクター等

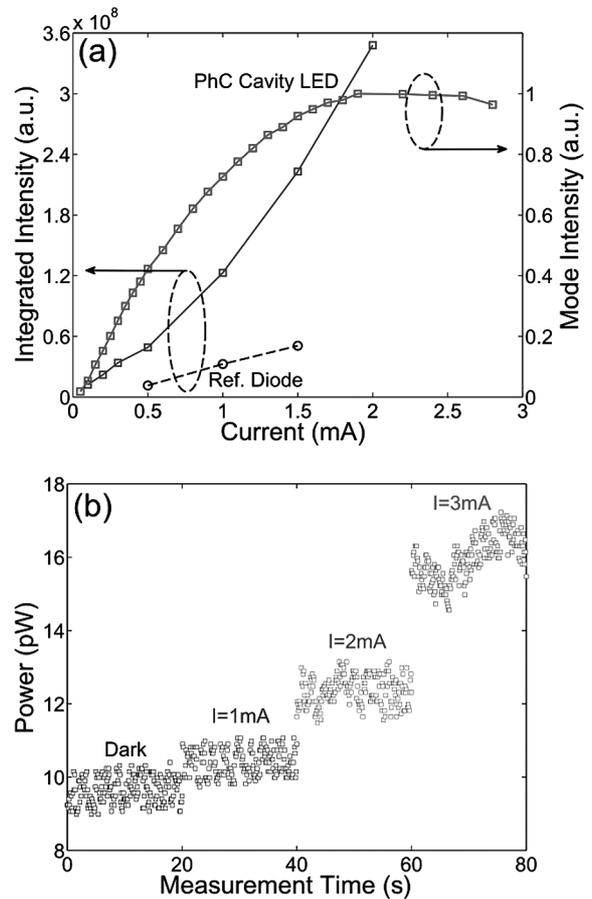


図8 注入電流変化に伴う発光特性の変化. (a) 主ピーク強度ならびに全スペクトル強度の電流値依存性, (b) パワーメーターで測定した発光強度の絶対値. 注入電流ゼロの場合のパワーメーター出力をDarkとしている.

の光学素子とオンチップで実装し, 例えば光スイッチなどの機能デバイスを実現するためには, まず, 導波路結合型の発光デバイスの開発が必要となる. 前節で述べたPhC微小共振器を用いる発光デバイスでは, 光の取り出し方向が基板面上方の自由空間であり, 基板面内に作製する導波路との結合には工夫が必要となる. 一方, 微小共振器として, μDisk 共振器を用いると, 周回方向の共振モードであるwhispering gallery mode (WGM) で発せられる光はディスク面内方向となるため, 導波路との結合が容易となる. そこで, 図9に示す導波路結合型 μDisk 発光デバイスを試作し, 評価を進めた¹¹⁾. SOI基板を用い, (Ge-QD/Si)ヘテロ構造を3層形成し, 発光層 (厚みは470 nm) としている. μDisk の半径は3 μm とし, 幅550 nm, 長さ600 μm のバス導波路との間隔は150 nmとした. μDisk の上部にn+領域, SOI基板にp+領域を設けた縦型p-i-nダイオード構造としている. バス導波路の両端にはグレーティングカップラーを設け, 導波路伝搬光の入出力に用いた. 導波路を伝搬する光の計測は, グレーティングカップ

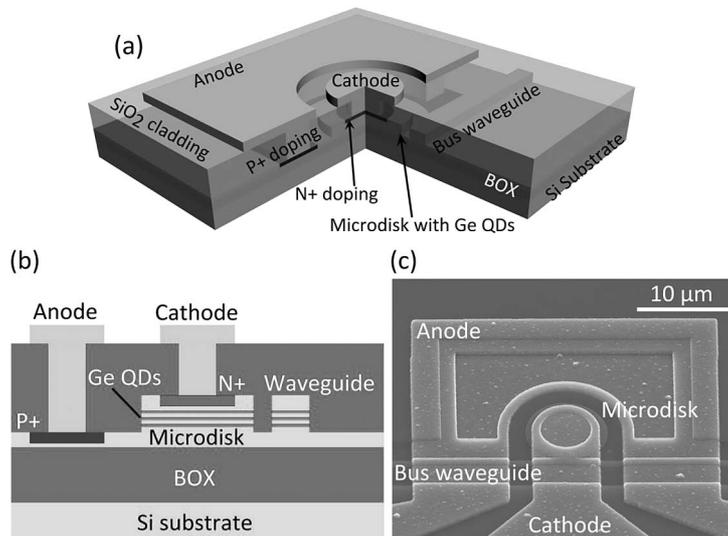


図9 導波路結合型 μ Disk 発光デバイス。 (a) 三次元モデル図, (b) デバイス構造断面の模式図, (c) デバイス構造 SEM 像。

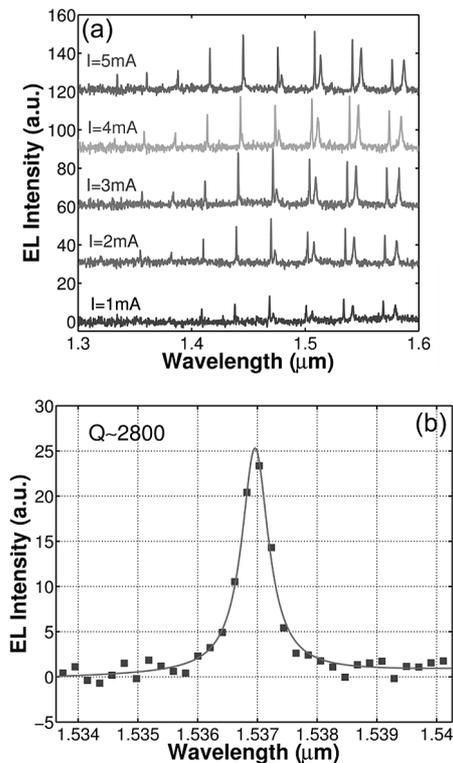


図10 導波路結合 μ Disk デバイスの室温電流注入発光の特性図。 (a) 発光強度の電流値依存性, (b) 3 mA 印加時の 1.537 μm 付近の共鳴ピーク拡大図とローレンツフィット曲線。

ラー直上に分光器対物レンズを配置することで行った。作製プロセスと実験の詳細は原著¹¹⁾を参照願いたい。

電流印加時の発光スペクトルの変化を図10(a)に示す。1.4~1.6 μm の範囲で、複数の共振ピークが観測されている。強度最大のピークは 1.55 μm 付近のものであり、グレーティングカップラーの分散特性に一致している。同

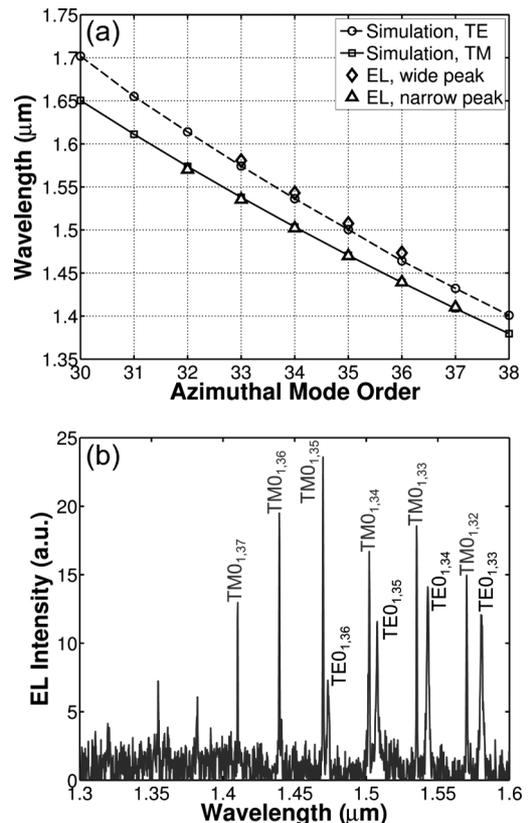


図11 導波路結合 μ Disk の発光ピーク帰属解析。 (a) 実測 EL ピークと FEM シミュレーション結果との対比, (b) 発光スペクトル (2 mA 印加時) の帰属結果。

図 (b) には 1.537 μm 位置でのピーク拡大図を示すが、半値幅 0.55 nm, Q 値 2800 のきわめて尖鋭な発光となっている。印加電流の増加に伴い、発光強度も増加している。 μ Disk の直上に分光器対物レンズを配置した場合、発光を観測することができなかったため、図10に示した EL 発光

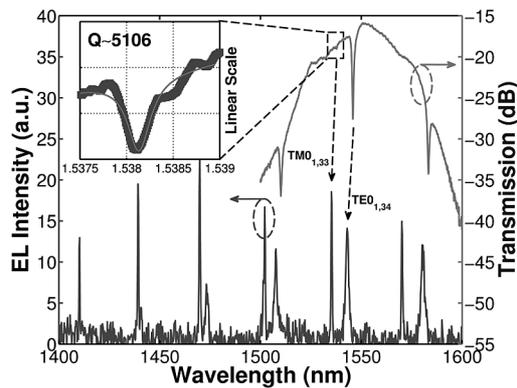


図 12 導波路結合型 μ Disk デバイスの発光スペクトルと透過スペクトルの比較図. 双方とも 2 mA 電流印加の条件下で測定.

は、 μ Disk に結合した導波路端に設置したグレーティングカップラーからのものといえる. 次に、有限要素法^{*1}を用いて行った WGM の共鳴ピークの帰属解析について述べる. 図 11 (a) には、周回モード次数を横軸とする共振波長の解析結果を、測定ピーク位置とあわせて示す. 計算値と実験値の一致がよいことがまずわかる. また、同一次数では、TE モードの波長は TM モードの波長よりも長波長であること、さらに、TE モードのスペクトル幅は TM モードに比べて幅広となっていることがわかる (図 11 (b)). 後者の理由については、周辺スラブへの漏れに起因していることもシミュレーションで確認できている. μ Disk と導波路との結合の詳細を確認する目的で、導波路の透過スペクトルを測定した (図 12). μ Disk の WGM 共振に対応したディップが透過度スペクトルで観測されている. 深いディップは EL 発光スペクトルの TE モードに対応し、浅いディップは TM モードに対応している. TE モードに比べ TM モードのディップが浅い理由は、入出力用のグレーティングカップラーが TE 偏光に対し結合効率が高くなるよう設計されているためである. TM モードのひとつ、1.538 μ m 近辺の透過ピークを拡大してみると、 Q 値 5160 ときわめて高い値をもっていることがわかる. 以上に述べた通り、発光スペクトルと透過スペクトルとの一致より、 μ Disk 発光デバイスからの発光がバス導波路に良好に結合していると結論できる.

2.3 さらに発光強度の増大に向けて

さて、以上に述べた Ge-QD と微小共振器とを組み合わせたデバイスの発光強度を上げる最も基本的なアプローチは、Ge-QD 材料そのものの発光効率を上げることである. 冒頭の章で、Ge-QD/Si ヘテロ界面はタイプ II 型のヘテロ

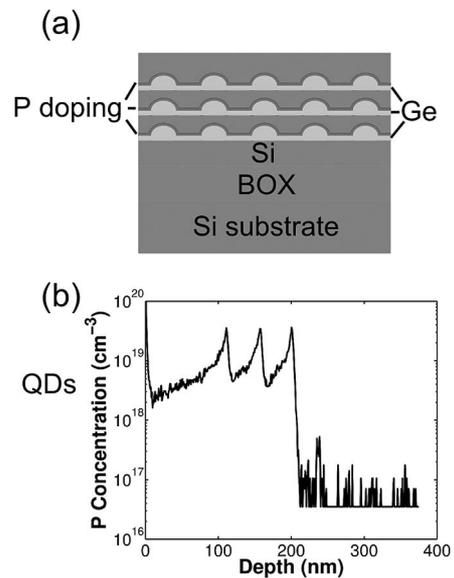


図 13 Ge 量子ドットへの P デルタドーピング. (a) 三層 Ge-QD/Si スペースャー層の模式図, (b) SIMS 分析による P 濃度プロファイル.

構造を形成し、キャリア閉じ込め効果により発光効率の向上が見込めると述べたが、そのバンドアライメントに注目してみると、伝導帯のバンドオフセットは価電子帯に比べて非常に小さいことが知られている¹²⁾. このため、Ge/Si 界面での電子の閉じ込め効果はホールに比べて小さい. そこで、外部から Ge/Si 界面に電子を供給できれば、発光性再結合プロセスの増加、引いては Ge-QD 発光の増加が期待できる. そこで、Ge-QD と Si スペースャー層間への、n 型ドーパント (P) の MBE 成長時のデルタドーピングを試みた. P ソースには、GaP 分解を利用した¹³⁾. 図 13 に SOI 基板上に形成した三層構造の P-デルタドーピング Ge-QD/Si ヘテロ構造模式図と、SIMS による P 濃度分布の評価結果を示す. 第 1 層目 Ge-QD を 600°C で成長した後、P 原子の表面偏析を抑えるために、基板温度を 500°C に下げ、P のデルタドーピング、Si スペースャー層形成、そして後続の Ge-QD の順に成長を行った. SIMS 分析の結果で示されている通り、Ge-QD 表面での P 濃度はおよそ $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ である. 図 14 (a) に、P デルタドーピングによる室温 PL 発光強度の増大を示す. ドーピングにより、約 3 倍の発光強度の増大が得られている. また、励起パワーによる発光強度の変化を同図 (b) に示したが、デルタドーピングにより、外部量子効率に対応する傾きも 2.2 倍と大きくなっていることがわかり、Ge-QD 表面への P デルタドーピングは発光強度の増大に向けて有用なアプロー

^{*1} M. Oxborrow: "Ex-house 2D finite-element simulation of the whispering-gallery modes of axisymmetric electromagnetic resonators," arXiv preprint quant-ph/0607156 (2006).

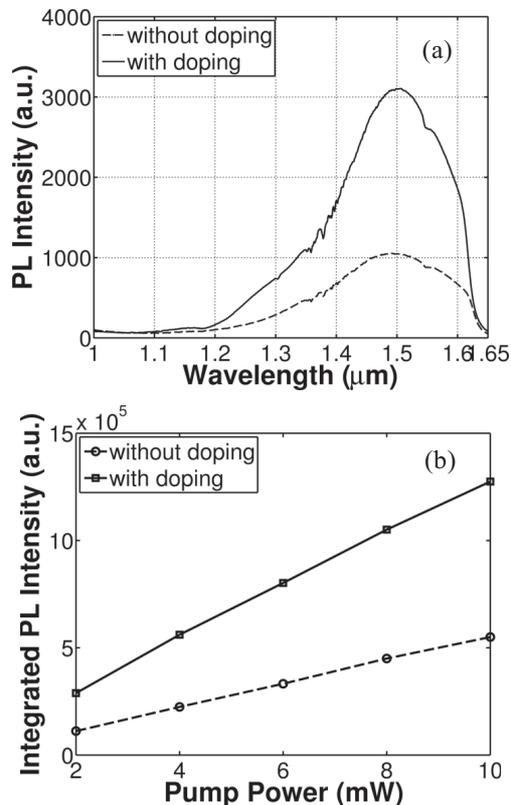


図14 Ge-QD表面へのPデルタドーピングによる室温PLスペクトルの変化。(a)ドーピング有無によるPLスペクトルの変化、(b)Pドーピングの有無によるPL強度・励起パワー依存性の変化。

チであることが示された。

シリコンフォトニクス研究で喫緊の課題となっている通信波長帯シリコン系発光デバイスの開発を目指し、ゲルマニウム量子ドットとPhC微小光共振器、 μ Disk共振器などと組み合わせた室温発光電流注入型発光デバイスを実証した。さらに μ Diskデバイスの系では、バス導波路と高効率に結合した発光デバイスの開発に成功した。発光出力の向上に向けてはさらなるプロセス改善等が必要とされるが、ひずみゲルマニウムなどの新材料の適用も視野に入れたCMOSコンパクトな光源の開発が、今後一層活発に行われていくものと考えられる。

本研究の一部は、総務省戦略的情報通信研究開発制度(SCOPE)、文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援

事業(平成21年~平成25年)、文部科学省科学研究費補助金(基盤研究(A)、課題番号21246003)の支援を受けて行われました。

文 献

- 1) L. Pavesi, L. Dal Negro, C. Mazzoleni, G. Franzò and F. Priolo: "Optical gain in silicon nanocrystals," *Nature*, **408** (2000) 440-444.
- 2) S. Saito, Y. Suwa, H. Arimoto, N. Sakuma, D. Hisamoto, H. Uchiyama, J. Yamamoto, T. Sakamizu, T. Mine, S. Kimura, T. Sugawara and M. Aoki: "Stimulated emission of near-infrared radiation by current injection into silicon (100) quantum well," *Appl. Phys. Lett.*, **95** (2009) 241101.
- 3) S. Cheng, J. Lu, G. Shambat, H. Yu, K. Saraswat, J. Vuckovic and Y. Nishi: "Room temperature 1.6 μ m electroluminescence from Ge light emitting diode on Si substrate," *Opt. Express*, **17** (2009) 10019-10024.
- 4) S. Fukatsu, H. Sunamura, Y. Shiraki and S. Komiyama: "Phononless radiative recombination of indirect excitons in a Si/Ge type-II quantum dot," *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997) 258-260.
- 5) J. S. Xia, Y. Ikegami, Y. Shiraki, N. Usami and Y. Nakata: "Strong resonant luminescence from Ge quantum dots in photonic crystal microcavity at room temperature," *Appl. Phys. Lett.*, **89** (2006) 201102.
- 6) T. Tsuboi, X. Xu, J. Xia, N. Usami, T. Maruizumi and Y. Shiraki: "Room-temperature electroluminescence from Ge quantum dots embedded in photonic crystal microcavities," *Appl. Phys. Express*, **5** (2012) 052101.
- 7) E. M. Purcell: "Spontaneous emission probabilities at radio frequencies," *Phys. Rev.*, **69** (1946) 674.
- 8) X. Xu, T. Tsuboi, T. Chiba, N. Usami, T. Maruizumi and Y. Shiraki: "Silicon-based current-injected light emitting diodes with Ge self-assembled quantum dots embedded in photonic crystal nanocavities," *Opt. Express*, **20** (2012) 14714-14721.
- 9) X. Xu, T. Chiba, T. Nakama, T. Maruizumi and Y. Shiraki: "High-quality-factor light-emitting diodes with modified photonic crystal nanocavities including Ge self-assembled quantum dots on silicon-on-insulator substrates," *Appl. Phys. Express*, **5** (2012) 102101.
- 10) Y. Akahane, T. Asano, B. Song and S. Noda: "High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal," *Nature*, **425** (2003) 944-947.
- 11) X. Xu, T. Maruizumi and Y. Shiraki: "Waveguide-integrated microdisk light-emitting diode and photodetector based on Ge quantum dots," *Opt. Express*, **22** (2014) 3902-3910.
- 12) M. Larsson, A. Elfving, P. O. Holtz, G. V. Hansson and W.-X. Ni: "Spatially direct and indirect transitions observed for Si/Ge quantum dots," *Appl. Phys. Lett.*, **82** (2003) 4785-4787.
- 13) G. Lippert, H. J. Osten, D. Krüger, P. Gaworzewski and K. Eberl: "Heavy phosphorus doping in molecular beam epitaxial grown silicon with a GaP decomposition source," *Appl. Phys. Lett.*, **66** (1995) 3197-3199.

(2014年3月18日受理)