フォトニックバンドギャップを利用した発光制御技術

富士田 誠之, 野田 進

京都大学大学院 工学研究科電子工学専攻 (〒615-8510 京都市西京区京都大学桂)

Light Emission Control by Photonic Bandgap

Masayuki FUJITA and Susumu NODA

Department of Electronic Science and Engineering, Kyoto University, Kyotodaigaku-katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8510

(Received April 19, 2006)

We discuss an ultimate light-emission control method by using a two-dimensional photonic bandgap. Calculations predict that a spontaneous emission coupled to the slab modes, which is strongly confined within the slab plane, is inhibited. The saved energy efficiently becomes a spontaneous emission that is coupled to the vertical modes. Controlling the spontaneous emission is experimentally demonstrated by measuring time-resolved photoluminescence spectra from GaInAsP quantum-well samples. The suppression of non-radiative processes that compete the spontaneous emission is achieved by the introduction of InAs quantum dots, which can confine carriers in three dimensions. An artificial point-defect cavity introduced in the photonic crystal can lead to a cavity-mode emission at an extremely low excitation density. Our results demonstrate the realization of an ideal two-dimensional photonic-bandgap environment, and open up possibilities for various applications of photonic crystals using spontaneous-emission phenomena.

Key Words: Photonic crystal, Photonic bandgap, Light emission, Spontaneous emission control

1. はじめに

あらゆる発光の源は真空場の揺らぎから生じる自然放出である。一方で、自然放出は各種フォトニックデバイスの性能を制限している基本的な要因でもある。例えば、発光ダイオードでは素子から外部に取り出されない自然放出は損失になる。同様にレーザーでは、レーザーモードに結合しない自然放出は損失や雑音になる。また、太陽電池では、自然放出は変換効率を減少させる。さらに量子情報システムでは、原子系の自然放出による減衰はシステムの劣化をもたらす。このように自然放出がフォトニックデバイスの性能制限要因となっているのは、物質から発生する自然放出が通常は制御されていない状態にあるためである。それゆえ、発光現象を根本から制御できる自然放出の制御は究極的な発光制御技術として、光量子エレクトロニクスの重要課題として取り組まれてきた。自然放出は光の状態密度で決定されるため、誘電体界面等の境界条件で自然放出が変化しうることが古くから議論されてきた。特に周期的な誘電率(屈折率)分布をもつフォトニック結晶¹⁾は、その設計により光の状態密度を自在に変化させることができるため、自然放出制御の可能性がある新しいフォトニックナノ構造として、近年広く注目を集めている。フォトニック結晶の概念提唱の当初から、発光可能な材料であっても、その

材料が3次元周期構造をもつ3次元フォトニック結晶に導入されると、取りうる光の状態が完全に零になる完全フォトニックバンドギャップ効果によって自然放出が完全に抑えられる、という示唆があった²⁾。これまでこの概念に基づき、3次元フォトニック結晶を用いた自然放出制御を目指した研究がなされてきた³⁾。しかし、2次元的な周期構造をもつ2次元フォトニック結晶でも、周期構造の存在しない方向は全反射で光を閉じこめるスラブ構造⁴⁻⁹⁾を用いれば自然放出制御が可能になると期待される。この解説論文では特に最近大きな進展が見られた2次元フォトニック結晶による自然放出制御^{10,11)}に関して述べる。まず、スラブ中の自然放出が、フォトニックバンドギャップによっていかに抑制され、発光体に投入されたエネルギーがどのように分配されるかについて述べる。次に量子井戸を用いた自然放出制御の実証結果を示し、電磁界解析から得られた計算と定量的に比較する。また問題となる自然放出に競合する非発光過程が量子ドット等の量子ナノ構造で克服されうること示す。最後に自然放出と非発光過程が抑制された理想的な2次元フォトニックバンドギャップ環境に新たな共振発光モードを導入した場合に関して述べる。

2. 2次元フォトリック結晶スラブにおける 自然放出現象

Fig. 1 (a)に示されるスラブに埋め込まれた発光体からの自然放出に関して、理論的に考えてみる。発光体が $P_{in}(t)$ のレートで励起されたとき、発光体中に蓄積されるエネルギー U は次の微分方程式に従って変化する。

$$\frac{dU}{dt} = P_{in}(t) - R_{spont}U \quad (1)$$

ここでは全てのエネルギーは R_{spont} で表される自然放出レートの発生で消費されると仮定する。式(1)のエネルギー U は発光体の伝導帯と価電子帯間のエネルギー差と励起されたキャリア数の積に相当する。光と物質の弱結合状態では、自然放出レートはフェルミの黄金律で与えられ、存在する光学モードの数で決定される¹²⁾。スラブ中の光学モードは垂直方向に対して全反射条件が満たされることによって2次元平面内に閉じこめられる「スラブモード」と全反射条件が満たされず、スラブから放射される「垂直モード」に分類される。よって、 R_{spont} は次式のように表現できる。

$$R_{spont} = R_{slab} + R_v \quad (2)$$

ここで、 R_{slab} と R_v はそれぞれスラブモードと垂直モードに結合する自然放出レートを表す。発光体がディラックのデルタ関数で表現されるような十分短いパルスで励起されたとき、エネルギー U は次式で時間的に減衰する。

$$U(t) = U_0 \exp(-R_{spont}t) \quad (3)$$

このエネルギー変化に従い、スラブモードに結合する自然放出 S_{slab} と垂直モードに結合する自然放出 S_v は次式のように発生する。

$$S_{slab} = R_{slab}U(t) \quad (4)$$

$$S_v = R_vU(t) \quad (5)$$

低い屈折率のクラッドに囲まれた高い屈折率の半導体スラブにおいては、光はスラブに強く閉じこめられ、 $R_{slab} \gg R_v$ といった条件が満たされるはずである。これはスラブモードの数 N_{slab} が垂直モードの数 N_v よりはるかに多いことを意味している。この場合、発光体中に蓄積したエネルギーは主にスラブモードに結合する自然放出に分配さ

れ、次の式が満たされる。

$$\int_0^\infty S_{slab}(t)dt \approx U_0 \quad (6)$$

しかしながら、Fig. 1 (b)に示されるように2次元フォトリック結晶がスラブに導入され、フォトリックバンドギャップ効果が現れると、 $R_{slab} (>> R_v)$ が抑制され、状況は劇的に変わる。この場合、式(2)から示されるように全体の自然放出レートはかなり減少する。さらに、 S_{slab} が劇的に小さくなることで、発光体中に蓄積されたエネルギーは残りの自然放出モードである垂直モードに分配されるようになる。結果、次式が満たされる。

$$\int_0^\infty S_v(t)dt \approx U_0 \quad (7)$$

この場合、 $S_v/(S_v + S_{slab})$ で表現される垂直モードへの発光効率は、 $S_{slab} \sim 0$ となるため、フォトリック結晶がない場合と比較して劇的に増大するはずである。

上記の自然放出レートと垂直放射モードの発光効率に関する予想を定量的に見積もるために、3次元有限時間差分(FDTD)法^{13,14)}によってTE偏波の光(電界ベクトルがスラブ面内のみに向く)に対して数値解析した。ここでは3章で述べる実験で用いた構造と同じになるように厚さ $0.6a$ (a : 格子定数)、屈折率3.27、円孔半径 $0.29a$ の2次元三角格子フォトリック結晶スラブの屈折率分布をモデル化した。まず、Fig. 2に断面の電界分布の計算例を示す。ここではエネルギーを与えるダイポールモーメントをスラブの中心の一点に置いて、全放射パワーの和が一定になるような条件で単一周波数にて連続的に励振した。Fig. 2 (a)に示すように発光周波数がフォトリックバンドギャップの外では、 $R_{slab} \gg R_v$ が満たされ、垂直方向への放射が弱く、ほとんどのエネルギーがスラブモードに分配される

Fig. 2 Examples of calculated cross-sectional electric-field distributions across a 2D PC slab for two different frequencies. A dipole moment is placed at one point in the slab and is continuously excited such that the total power emitted in all directions is constant. (a) Outside the photonic bandgap (PBG) (normalized frequency 0.20). (b) Inside the PBG (normalized frequency 0.30).

Fig. 1 Schematic of (a) normal slab without photonic crystal (PC) and (b) 2D PC slab.

結果が得られた。しかしながら、Fig. 2 (b)に示すように発光周波数がフォトニックバンドギャップ帯に入ると、垂直方向への放射が、 R_v の値は小さいにも関わらず顕著に増大する。これはスラブモードが抑制されて、エネルギーが垂直モードに分配された結果を示している。さらに、後に述べる量子井戸やランダムに数多く分布する量子ドット発光体での実験と比較するため、ダイポールモーメントの位置と面内の偏光方向を様々に変えた。Fig. 3にそれらの結果を平均化して得られた規格化周波数に対する自然放出レートおよび垂直モードの発光効率の変化と、対応するフォトニックバンド図を計算した結果を示す。Fig. 3に示すようにフォトニックバンドギャップの周波数帯では、フォトニックバンドギャップのない場合と比較して、自然放出レートが約1/15に抑制される。同時に、垂直モードへの発光効率も発光の抑制に対応する形で15倍程度増大する。以上より、2次元フォトニック結晶スラブを用いることでかなりの自然放出制御効果が期待できることがわかった。また、この現象は、2次元フォトニックバンドギャップによって節約された元々は不要な発光となるスラブモードへの光エネルギーが、有用な発光となる垂直モードに再分配された、という見方もできる。

3. 2次元フォトニックバンドギャップによる 自然放出制御の実証

2節で述べた理論を実証するために、Fig. 4に示すような量子井戸発光層を含むGaInAsP二次元フォトニック結晶スラブを半導体結晶成長、電子ビーム描画、HI/Xeプラズマエッチング¹⁵⁾、塩酸化学エッチングといった手法で作製した。ここでは幅広い規格化周波数 a/λ (λ : 波長)の範囲での特性を調べるため、格子定数 a が300 nmから500 nmまで10 nm間隔で異なるフォトニック結晶を同じウエハ上に作製した。それによって、フォトニックバンドギャップの中心波長を1130 nmから1650 nmまで変化させることができる。これら作製したフォトニック結晶を、中心波長980 nm、パルス幅2 ps、繰り返し周波数2 MHzのチタンサファイアパルスレーザーで光励起し、時間分解能0.3 nsの光電子増倍管を含むシステムにて時間相関単一光子計数法¹⁶⁾で時間分解フォトルミネッセンスを測定した。こ

Fig. 3 (a) Calculated spontaneous emission rate as a function of frequency, normalized by that of the reference, a flat slab (refractive index 3.27) on a substrate (refractive index 3.13). (b) Normalized emission efficiency in the vertical modes as a function of frequency. (c) Photonic-band diagram. The solid lines show the dispersion relation of the 2D slab modes. The frequency region between 0.267 and 0.330 corresponds to the 2D PBG region. 'Leaky' refers to the region in which the total internal reflection condition is not satisfied and light is emitted outside the PC.

では全発光波長を含むように受光したため、実験結果は平均的な全発光レートを表す。また、GaInAsマルチチャネル検出器を含むシステムにて垂直モードの発光効率に相当する時間積分スペクトルを測定した。ここでは、TE偏波の自然放出以外の再結合過程をできるだけ抑制する

Fig. 4 Scanning electron micrograph and electric bandgap energy diagram of GaInAsP quantum well (QW) 2D PC slab samples.

ために測定温度を4 Kとし、照射エネルギー密度を $0.25 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ と小さくした。

Fig. 5に量子井戸からの発光波長がフォトニック結晶のフォトニックバンドギャップに入る場合と、入らない場合についての測定結果を示す。Fig. 5 (a)に示すように、量子井戸からの発光波長がフォトニックバンドギャップに入る場合は、フォトニック結晶がない場合や発光波長がフォトニックバンドギャップに入らない場合と比較して、 $1/R_{\text{spont}}$ に相当する発光寿命 τ は増大した。また、発光波長がフォトニックバンドギャップに入る場合の垂直方向への発光効率も、フォトニック結晶がない場合や発光波長がフォトニックバンドギャップに入らない場合と比較して増大した。以上の結果は、2節で述べた2次元フォ

トニック結晶による自然放出制御の基本原則を説明した結果と定性的に良く一致し、確かにフォトニックバンドギャップにより、スラブモードによる発光が抑制され、節約されたエネルギーが垂直モードへ分配されることで発光効率が增大する、といった自然放出制御効果が明確に実証された。

ここで、Fig. 5の結果を定量的に評価してみる。Fig. 5から、フォトニックバンドギャップ効果により、フォトニックバンドギャップがない場合と比較して、発光レートは約1/5、発光効率は約4倍になっていることがわかる。これらの値はFig. 3から予想される理論計算結果と有意な差がある。ここで、自然放出以外のエネルギー損失過程である非発光過程を考えてみる。実験で作製されたFig. 4のフォトニック結晶では、孔の縁の部分で量子井戸発光層が露出している。このような場合、発光層と外部の界面にて、表面再結合と呼ばれる非発光再結合過程が生じる。そのエネルギー損失レート R_{nr} は、露出された発光層の表面積 S に対する発光層全体の体積 V の割合に比例し、比例係数を表面再結合速度 v_s として、 $R_{\text{nr}} = (S/V)v_s$ と表現できる。つまり、実際に作製されたフォトニック結晶では自然放出と表面再結合による非発光過程を合わせた $R_{\text{T}} = R_{\text{spont}} + R_{\text{nr}}$ のレートでエネルギーが緩和するはずである。このとき、垂直モードの発光効率も $R_{\text{v}}/R_{\text{T}}$ と修正される。以上より表面再結合速度 v_s をパラメータとして、実験結果をFig. 6のようにフィッティングした。ここでは、実験で観測された量子井戸からの発光スペクトルの不均一広がりも考慮している。表面再結合速度 $v_s = 1.2 \times 10^3 \text{ cm/s}$ において、実験値と計算値の良好一致をみた。この表面再結合速度はGaInAsP量子井戸の室温における典型的な値¹⁷⁾の約1/10であり、4 Kまでの冷却効果を考えると妥当といえる。

4. 量子ナノ構造による非発光過程の抑制と共振モードの導入

自然放出と競合する表面再結合をさらに抑制する方法として、3次元的なキャリアの閉じこめが可能な量子ナノ構造¹⁸⁾であるInAs量子ドット¹⁹⁾を発光層として導入することを試みた。厚さ200 nmのGaAsスラブの厚み中心に分子線エピタキシャル装置によって自己形成させたInAs量子ドットをもつFig. 7に示すような構造を3節と同様のプロセスで作製した。Fig. 8 (a)に3節と同様の方法で評価した時間分解フォトルミネッセンスの例を示す。ここでは、フォトニック結晶の格子定数 a を320 nmとすることで、フォトニックバンドギャップ波長帯が1000~1250 nmとなり、大きさのばらつきや高次エネルギー準位等の影響で広い波長範囲に分布する量子ドットからの発光スペクトルの全体が、フォトニックバンドギャップに含まれるようにした。フォトニック結晶の発光寿命はフォトニック結晶なしの約15倍となり、すなわち、発光レートがフォトニックバンドギャップによって約1/15に抑制された。これはFig. 5 (a)と同様にフォトニックバンドギャップによって、スラブモードが抑制されたためである。また垂直

Fig. 5 Photoluminescence (PL) results of GaInAsP QW 2D PC slab at 4 K. The incident excitation condition was $0.25 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ per pulse. (a) Time-resolved PL. When the spectrum lies within the PBG region, the emission lifetime τ increases relative to that observed when the spectrum lies outside the PBG region (and compared with that of reference without a PC structure). (b) Time-integrated emission spectra. Here, a reduction in the area of the QW in the air-hole region of the PC is accounted for by considering the emission efficiency. The gray cross-hatching denotes the PBG region. An increase in the light-emission efficiency in the vertical modes is clearly observed in the PBG region.

Fig. 6 Plots of (a) emission-decay rate and (b) emission efficiency in vertical modes as a function of the normalized frequency. The solid lines represent theoretically fitted results for a range of values of v_s . The results have been normalized by those for the reference sample without PC. The closest correspondence between the experimental and theoretical results is obtained for $v_s = 1.2 \times 10^3$ cm/s.

モードの発光効率の増大もFig. 8 (b)に示すようにフォトニック結晶で観察された。これはFig. 5 (b)同様にスラブモードの抑制によって節約されたエネルギーが垂直モードへ分配されたためである。これらの結果は非発光過程がほぼ無視された場合の、Fig. 3に示す解析結果に一致する。さらには温度を170 Kまで上昇させた場合も発光寿命の増大、垂直モードの効率増大といった自然放出制御効果が観測された。一方、量子井戸を用いた場合は温度を上昇させると非発光過程が支配的になるため70 K以上では自然放出制御効果が観察できなかった。これらの結果は、量子ドットがフォトニック結晶における自然放出制御に有効であることを明確に示している。

さらに、意図した発光波長やパターン等で、より高効率な発光を得るためにはフォトニック結晶中へ共振器を導入し、新たに生じる共振モードの発光チャネルを活用すれば良い。ここで、共振モードの発光効率 η_c は

$$\eta_c = R_c / (R_c + R_{\text{slab}} + R_v + R_{\text{nr}}) \quad (8)$$

で定義できる。フォトニックバンドギャップと量子ナノ構造が導入された状況では、4節で述べたように R_{slab} と R_{nr} が抑制される。よって、(8)式から共振モードにおける高効率な発光が期待される。Fig. 9の挿入図に示すようなフォトニック結晶中の孔を3個埋め、端の部分 $0.1a$ ほどシフトさせた点欠陥⁷⁾を、量子ドットをもつ2次元フォト

Fig. 7 (a) Schematic of the 2D PC slab incorporating InAs quantum dots (QDs). (b) Atomic force micrograph of the fabricated QDs. Here, we observed the sample without capping by a GaAs layer, although the fabrication conditions are the same as for the PC samples.

Fig. 8 PL results of the 2D PC slab and the reference without PC containing QDs at 4 K. The incident excitation condition was $3.9 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ per pulse. (a) Time-resolved PL measurements. (b) Time-integrated emission spectra. A reduction in the number of QDs in the air-hole region of the PC is accounted for by considering the emission efficiency.

ニック結晶中に導入した。FDTD解析から点欠陥中に強く光が局在し、共振モードとして働くことが予想された。Fig. 9に示すように $0.1 \text{ W}/\text{cm}^2$ 以下の非常に弱い光励起パワーでも共振モードピークが観察された。この結果は、スラブモードと非発光過程によって消費されるエネルギーが抑制され、非常に高効率な共振モードでの発光が得られる可能性を示唆している。

Fig. 9 PL of an artificial defect cavity containing QD within 2D PC slab ($a = 300$ nm) at 130 K. The sample was pumped by continuous-wave laser at the wavelength of 850 nm. An inset is FDTD simulation of light-energy distribution for a cavity mode.

5. おわりに

以上、フォトニック結晶を利用した究極的な発光制御技術～フォトニックバンドギャップによる自然放出の制御～に関して述べてきた。2次元フォトニック結晶スラブによって、不要な発光を禁止し、投入されたエネルギーを必要な発光に利用するという、フォトニック結晶を利用した自然放出制御の最も直接的かつ基本となる原理が実証された。この原理を応用することにより、発光ダイオードのみならず、レーザーや有機発光素子など、発光素子全般の高効率化に寄与し、ディスプレイ、照明、情報、通信など、発光素子が応用される様々な分野の発展に貢献できるものと期待される。さらには不要な再発光を抑えることは、太陽電池や光検出器など、発光とは逆の現象を用いた素子の高性能化にもつながるなど、様々な展開が可能となると考えられる。さらに自然放出に競合する非発光過程が量子ナノ構造の導入で抑制され、点

欠陥共振器の導入で意図した共振モードにおける高効率発光が得られる可能性を示された。これは理想的な2次元フォトニックバンドギャップ環境が実現されたことを意味し、今後、光と物質の強結合状態等の物理的に興味深い現象の解明などにもつながるものと期待している。

謝 辞

本研究は京都大学 浅野 卓講師，大学院生 高橋 重樹，田中 良典，鴻池 一暁，山口 真，Wolfgang Stumpf，中西 純弥，杉山 和道各氏との共同研究の成果である。本研究の一部はJST-CREST，文部科学省科学研究費およびITプロジェクト，日本学術振興会特別研究員制度に援助頂いた。

参考文献

- 1) 野田 進：応用物理 **74** (2005) 147.
- 2) E. Yablonovitch: Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 2059.
- 3) S. Ogawa, M. Imada, S. Yoshimoto, M. Okano, and S. Noda: Science **305** (2004) 227.
- 4) S. Fan, P. R. Villeneuve, and J. D. Joannopoulos: Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 3294.
- 5) O. J. Painter, R. K. Lee, A. Scherer, A. Yariv, J. D. O'Brien, P. D. Dapkus, and I. Kim: Science **284** (1999) 1819.
- 6) S. Noda, A. Chutinan, and M. Imada: Nature **407** (2000) 608.
- 7) Y. Akahane, T. Asano, B. S. Song, and S. Noda: Nature **425** (2003) 944.
- 8) T. Baba, D. Sano, K. Nozaki, K. Inoshita, Y. Kuroki, and F. Koyama: Appl. Phys. Lett. **85** (2004) 3989.
- 9) S. Iwamoto, J. Tatebayashi, T. Fukuda, T. Nakaoka, S. Ishida, and Y. Arakawa: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 2579.
- 10) M. Fujita, S. Takahashi, Y. Tanaka, T. Asano, and S. Noda: Science **308** (2005) 1296.
- 11) M. Fujita, S. Takahashi, T. Asano, Y. Tanaka, K. Kounoike, M. Yamaguchi, J. Nakanishi, W. Stumpf, and S. Noda: J. Opt. A **8** (2006) S131.
- 12) R. Loudon: *The Quantum Theory of Light* (Oxford Univ. Press, New York, 2000).
- 13) Y. Xu, J. S. Vučković, R. K. Lee, O. J. Painter, A. Scherer, and A. Yariv: J. Opt. Soc. Am. B **16** (1999) 465.
- 14) J. K. Hwang, H. Y. Ryu, and Y. H. Lee: Phys. Rev. B. **60** (1999) 4688.
- 15) M. Fujita, A. Sugitatsu, T. Uesugi, and S. Noda: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) L1400.
- 16) D. O'Connor and D. Phillips: *Time-Correlated Single Photon Counting* (Academic Press, London, 1985).
- 17) T. Baba, K. Inoshita, H. Tanaka, J. Yonekura, M. Ariga, A. Matsutani, T. Miyamoto, F. Koyama, and K. Iga: J. Lightwave Technol. **17** (1999) 2113.
- 18) Y. Arakawa and H. Sakaki: Appl. Phys. Lett. **40** (1982) 939.
- 19) 佐々木 昭夫：応用物理 **65** (1996) 1149.