



# HOKKAIDO UNIVERSITY

|                     |                                                                                               |
|---------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title               | III-V族化合物半導体結晶の微細構造制御および量子構造の形成と応用に関する研究                                                      |
| Author(s)           | 中田, 義昭                                                                                        |
| Degree Grantor      | 北海道大学                                                                                         |
| Degree Name         | 博士(工学)                                                                                        |
| Dissertation Number | 乙第6918号                                                                                       |
| Issue Date          | 2014-03-25                                                                                    |
| DOI                 | <a href="https://doi.org/10.14943/doctoral.r6918">https://doi.org/10.14943/doctoral.r6918</a> |
| Doc URL             | <a href="https://hdl.handle.net/2115/55314">https://hdl.handle.net/2115/55314</a>             |
| Type                | doctoral thesis                                                                               |
| File Information    | Yoshiaki_Nakata.pdf                                                                           |



学 位 論 文

III-V 族化合物半導体結晶の微細構造制御および  
量子構造の形成と応用に関する研究

中田 義昭

# 目 次

|                                                                     |    |
|---------------------------------------------------------------------|----|
| 第1章 序論 .....                                                        | 1  |
| 1-1 はじめに.....                                                       | 1  |
| 1-2 微細量子構造の実現に向けた従来の研究と課題.....                                      | 2  |
| 1-3 本研究の目的.....                                                     | 7  |
| 1-4 本論文の構成.....                                                     | 8  |
| 第1章の参考文献                                                            |    |
| 第2章 InP 基板上の混晶半導体とヘテロ構造の形成.....                                     | 15 |
| 2-1 はじめに.....                                                       | 15 |
| 2-2 InGaAs/InAlAs ヘテロ構造の作製と二次元電子ガス特性.....                           | 19 |
| 2-3 GaAsSb 混晶の成長.....                                               | 25 |
| 2-4 GaAsSb/InAlAs ヘテロ構造の作製.....                                     | 31 |
| 2-5 InGaAs/AlAsSb ヘテロ構造の作製.....                                     | 36 |
| 2-6 まとめ.....                                                        | 43 |
| 第2章の参考文献                                                            |    |
| 第3章 InP 基板上の混晶半導体の規則化～原子配置制御と物性評価.....                              | 50 |
| 3-1 はじめに.....                                                       | 50 |
| 3-2 (110)InP 基板上に成長した InGaAs 混晶の規則化.....                            | 53 |
| 3-3 成長条件による規則化の変化.....                                              | 58 |
| 3-4 表面ステップ構造による規則化の変化.....                                          | 61 |
| 3-5 規則化のメカニズム.....                                                  | 68 |
| 3-6 規則化した InGaAs 混晶の電気的特性（電子移動度）.....                               | 70 |
| 3-7 表面ステップを利用した原子配置制御と規則混晶の形成.....                                  | 75 |
| 3-8 規則混晶 (InAs) <sub>1</sub> /(GaAs) <sub>1</sub> LM-MSL の電子移動..... | 83 |
| 3-9 まとめ.....                                                        | 86 |
| 第3章の参考文献                                                            |    |
| 第4章 InP 基板上の表面ステップを利用した面内原子配列制御と<br>量子構造の形成.....                    | 92 |
| 4-1 はじめに.....                                                       | 92 |
| 4-2 (110) InP 基板上の InGaAs-InAlAs の表面ステップ構造と<br>その制御.....            | 94 |

|     |                                              |     |
|-----|----------------------------------------------|-----|
| 4-3 | ステップフロー成長を利用した InGaAs/InAlAs 面内超格子の作製.....   | 97  |
| 4-4 | (110)InP 基板上の InAs/GaAs 歪面内超格子の作製.....       | 107 |
| 4-5 | まとめ.....                                     | 116 |
|     | 第4章の参考文献                                     |     |
| 第5章 | GaAs 基板上の InAs/GaAs 歪量子ドットの構造制御と光物性.....     | 119 |
| 5-1 | はじめに.....                                    | 119 |
| 5-2 | GaAs 上に成長した InAs 島状結晶と量子ドット構造.....           | 122 |
| 5-3 | InAs 量子ドットの積層成長.....                         | 129 |
| 5-4 | InAs 量子ドットの近接積層と超近接積層による構造制御.....            | 134 |
| 5-5 | まとめ.....                                     | 149 |
|     | 第5章の参考文献                                     |     |
| 第6章 | GaAs 基板上の歪量子ドットの波長制御とレーザ応用.....              | 157 |
| 6-1 | はじめに.....                                    | 157 |
| 6-2 | 成長速度制御による InAs 量子ドットの発光波長制御.....             | 158 |
| 6-3 | 歪制御による InAs 量子ドットの発光波長制御.....                | 161 |
| 6-4 | 通信波長帯 (1.3 $\mu$ m) InAs 量子ドットの作製とレーザ応用..... | 164 |
| 6-5 | まとめ.....                                     | 165 |
|     | 第6章の参考文献                                     |     |
| 第7章 | 本論文のまとめと結論.....                              | 169 |

謝辞

本研究に関する発表論文

# 第 1 章 序論

## 1-1 はじめに

III-V 族化合物半導体は、Si では到達し得ない特性や機能の実現を目指した研究開発が進められてきた。それは単に Si に対する III-V 族半導体材料のバルク物性の優位性のみを起点にしたものではない。GaAs/N-AlGaAs などの選択ドープ構造を用いた高電子移動度トランジスタ (High electron mobility transistor: 以下 **HEMT**) [1.1.1-3] や量子井戸構造を活性層に用いた半導体レーザ (量子井戸レーザ [1.1.4, 5]) などに見られるように、異なる半導体層を原子層レベルで急峻に接合させたヘテロ構造や高精度に層厚が制御された極薄の量子井戸構造を形成し、そこに現れる量子効果など特異な物性を利用して新しい機能や優れた特性を実現することにより進展してきた。III-V 族化合物半導体は、多様な材料系から結晶格子とエネルギーバンドを混晶組成により制御して、キャリアを閉じ込め、目的とする特性に結びつけることにあると特徴づけることができる。そのため、混晶材料は極めて重要な位置づけとなるが、その微細構造を含め広くは調べられていない。また、近年活発化しつつあるキャリア閉じ込めの次元を高めた量子細線や量子ドットの作製においては、従来のリソグラフィとエッチングによる加工ではダメージが導入されてしまい十分なキャリア閉じ込めができるまでには至っていない。そのため、成長プロセスのみによる構造形成が望まれるが、従来の成長技術では、構造制御が可能となるのは成長方向のみであった。何らかの機構を取り入れ、横方向への構造制御を可能とする成長技術が必要となる。

本研究は、これら課題を踏まえ高性能な半導体レーザや超高速素子あるいは新たな機能を有する半導体素子の開発に貢献することを目的に以下の検討を行っている。まず材料の多様性の観点で、新たに **Sb-As** を含む III-V-V 混晶の制御技術を開発し、**InGaAs** 混晶や **InAlAs** 混晶とのヘテロ構造を形成し、バンドアライメントと界面特性など基礎特性を明らかにする。また混晶中の原子配置に注目し、通常副格子中で不規則に配置する構成原子の規則化とそれに伴う物性変化 (電子移動度の増大) を実験的に明らかにする。さらに、キャリア閉じ込めの次元を高めた量子細線や量子ドットを成長プロセスのみで形成する手法を検討し、成長した結晶の構造とその物性を評価することによりその有効性を示す。

本章では、この研究の背景と従来からの技術上の課題、これに対する本研究の目的を示し、本論文の構成を示す。

## 1-2 微細量子構造の実現に向けた従来の研究と課題

1970年代からのコンピュータと通信技術を中心とした情報化は、それまで科学分野など特定の領域に限られたものから身近な社会へと大きく拡大した。現在ではインターネットやモバイル通信など情報通信技術 (Information and Communication Technology : 以下 ICT) により、利便性の高い種々サービスが社会全域、我々個人にまで提供されるようになった。こうした情報化を支えているのがシリコンに代表される半導体エレクトロニクスであり、本研究の対象である III-V 族化合物半導体も特に通信技術分野において大きな貢献を果たしてきている。

シリコン半導体と化合物半導体のこの四半世紀の進展を見てみると、「微細化」がキーワードとして挙げられる。しかし、「微細」の中身は大きく異なっている。数十億もの素子を配置する大規模集積回路 (Very Large Scale Integration : VLSI) に代表されるシリコン先端電子デバイスは、超微細加工を可能とする材料技術の進展により成し遂げられてきている。そのスケールはマイクロからナノへと縮小され、最近ではトランジスタの最小配線ピッチ (ハーフピッチ) とゲート長は共に 10 nm にまで迫っている。この微細化により大容量化と同時に高速化と低消費電力化が実現されている。すなわち、現在の Si-VLSI の高い性能は、回路を構成する素子と配線サイズを微細化することにより実現されてきた。ただし、こうしたシリコンの微細化のトレンドはいわゆる「物理的限界」、「技術的限界」、「経済的限界」に近づきつつあり、微細化による高性能化というより、チップ内にプロセッサやメモリを集約させ、チップに機能性を持たせるシステム・オン・チップ (System on Chip : SoC) や、パッケージレベルで機能を集約させるシステム・イン・パッケージ (System in Package : SiP) に移行しつつある。

一方、III-V 族化合物半導体では、主に単体デバイスとして Si では到達しえない性能や機能の実現を目指した開発が進められてきた。それは単に Si に対する III-V 族半導体材料のバルク物性の優位性のみを起点にしたものではない。異なる半導体層を接合させたヘテロ構造や極薄の量子井戸構造を原子層オーダーの高い精度で形成し、そこに現れる量子効果など特異な物性を利用することにより、新しい機能や優れた特性を実現してきた。すなわち III-V 族化合物半導体デバイスの優れた性能や機能は、素子サイズの微細化ではなく、目標とする機能を実現するために必要となる素子内部の微細領域での構造形成により実現されてきた。以下では、III-V 族化合物半導体の進展とこれに係る微細構造形成技術およびその課題について示す。

2つの異なる半導体を接合させた半導体ヘテロ構造では、バルク材料にはな

い特異な特性と機能（効果）が現れる。GaAs と AlGaAs との選択ドープ構造においては、高い移動度をもつ電子（2次元電子ガス：2-dimensional electron gas: 以下 2DEG）が界面近傍に形成され、この特性は高速性・低雑音性に優れた高電子移動度トランジスタ（High electron mobility transistor: 以下 HEMT）[1.2.1-3] の実現に結びついた。これは電波望遠鏡による高精度の天体観測を容易にただけでなく、衛星放送をより身近に普及させるとともに、携帯電話やカーナビゲーションの受信機として、また自動車用ミリ波レーダなどで用いられる高周波デバイスとして現在の ICT の基盤技術を支えている。また、量子井戸を活性層に用いた半導体レーザ（量子井戸レーザ [1.2.4,5]）は、ステップ状の状態密度とキャリアと光の閉じ込めにより高効率化を実現し、高出力で低消費電力の光の信号源として、現在の大容量の光ネットワークを支える必要不可欠な半導体デバイスになっている。さらに、光・電子融合など新しい光エレクトロニクスの可能性を切り開きつつあるとともに、1970 年代から 80 年代にかけて研究された量子井戸シュタルク効果 [1.2.6,7] や共鳴トンネル効果 [1.2.8,9] などの新現象は、電界型光変調器 [1.2.10-12] や最近注目されているテラヘルツ領域の発振源 [1.2.13-15] に利用されるなど先進的なデバイスへの応用が進められている。

これら研究開発の起点になっているのは、1970 年 Esaki らの異なる薄い半導体層を積層した超格子 [1.2.16] により、これまでにない新しい機能が出現するとされる論文である。以降、超格子の周期や組成を変化させ、人工的に新しい結晶を形成するといった **band engineering** という考えが生み出されている。

こうした超格子あるいはその部分的な構造となる半導体ヘテロ構造の特異な特性はバンド構造に依存しており、そのバンド構造は、基本的には図 1.2.1 に

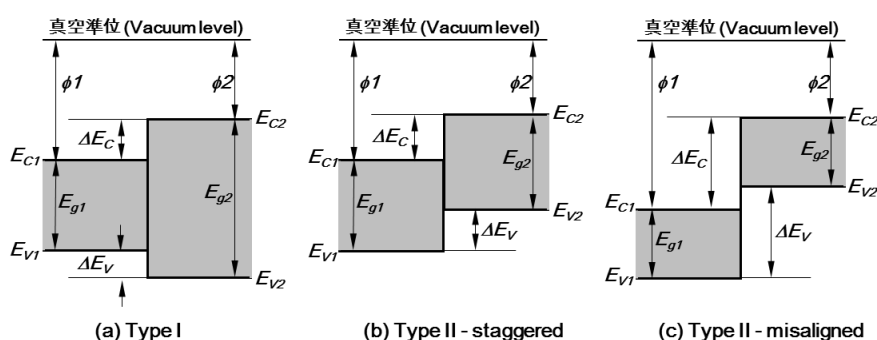


図 1.2.1. III-V 族化合物半導体ヘテロ界面における 2 つのタイプ (Type I, Type II) のバンド構造とバンド不連続 ( $\Delta E_C$ ,  $\Delta E_V$ )。網掛け部がバンドギャップ ( $E_{g1}$ ,  $E_{g2}$ ) を、また  $\phi_1$ ,  $\phi_2$  は電子親和力 (真空準位 (Vacuum level) から伝導帯の底までのエネルギー) を示す。Type II にはバンドギャップに重なりがある横ずれ型 (staggered) と重なりのない分離型 (misaligned) がある。

示すように3つに大別されている[1.2.17]。電子にとって、 $\phi_i (i=1, 2)$  で表記した真空準位 (Vacuum level) から伝導帯の底までのエネルギーである電子親和力が大きく、したがって伝導帯の底のエネルギーが低い方が井戸となり電子はそこに蓄積する。逆に電子親和力が小さく、伝導帯の底が高い方が障壁になる。また、正孔に対しては、電子親和力とバンドギャップの和が小さく、したがって価電子帯の上端のエネルギーが高い方が、井戸となり正孔は蓄積し、逆に電子親和力とバンドギャップの和が大きく、価電子帯上端のエネルギーが低い方が正孔にとっての障壁となる。図 1.2.1.(a) に示すタイプ I のヘテロ構造では電子と正孔が同一空間内に閉じ込められることになり、伝導帯どうしあるいは価電子帯どうしの相互作用が重要となる。また、(b), (c) に示すタイプ II は、隣り合う層の伝導帯－価電子帯間での重なるの有無による分類であるが、いずれの場合でも電子と正孔は隣り合う層内に別々に分離して閉じ込められることになり、伝導帯と価電子帯の相互作用が重要となる。

一方、電子あるいは正孔にとっての障壁の高さは図に示す2つの半導体のヘテロ界面での伝導帯、価電子帯におけるエネルギーバンドの不連続の大きさ  $\Delta E_c$ ,  $\Delta E_v$  であり、これらは、接合時のキャリア移動に伴うバンドの傾斜を無視すれば、電子親和力とバンドギャップの差によって決まる。ヘテロ構造によって現れる特異な物性や効果は、これらのパラメータに強く依存しており、図 1.2.1 に示したタイプと伝導帯、価電子帯における不連続値 ( $\Delta E_c$ ,  $\Delta E_v$ ) によって特徴づけることができ、これが基本的な設計パラメータとなる。

III-V 族化合物半導体では、上記のように超格子の周期や組成を変化させ、新しい結晶を人工的に合成するといったことが特徴となる。そのため、混晶材料は極めて重要な位置づけとなるが、これまでに検討されてきた材料は、GaAs/AlGaAs や InGaAs/InAlAs など限られた材料であり、その他の材料についてはあまり調べられていない。特に、InP に格子整合した混晶材料は、高速デバイスや光デバイスへの応用上重要であるが、InGaAs/InAlAs 以外にはほとんど調べられていない。InP に格子整合した混晶材料には GaAsSb と AlAsSb がある。これら混晶は、InGaAs や InAlAs とのヘテロ構造により、Type II 型のバンド構造や価電子帯あるいは伝導帯の一方のみに大きな障壁をもつエネルギー構造など多様なエネルギー構造を形成できる可能性がある[1.2.18]。既存デバイスを高性能化するだけでなく、新たな機能(効果)を付加した新しいデバイスに結びつく可能性がある。

一方、こうした混晶のエネルギーバンド構造やキャリアの輸送特性などは、混晶の平均組成のみにより一意に決まるのではなく、構成原子の配置や配列など混晶の微細な構造により変化する。特に、構成原子がその副格子中で規則的に配

列した規則混晶 (ordered alloy) においては、平均組成のみを制御して成長した混晶 (random alloy) とは異なる物性を示すことが実験、理論の双方において報告されている。特に、高速デバイスへの応用上重要となる電子の輸送特性に関しては、構成原子が副格子中で規則的に配列した規則混晶においては、原子配置の不規則性に伴う合金散乱が抑制され、高い電子移動度が得られることが予測されている。こうした規則混晶の形成方法として、これまで、分子線結晶成長法 (Molecular Beam Epitaxy: 以下 **MBE**) や有機金属化学気相成長法 (Metal-Organic Chemical Vapor Deposition: 以下 **MOCVD**) により、単分子層相当量を交互に基板面へ供給することによる形成が試みられてきた[1.2.19-25]。得られた結晶の X 線回折 (X-Ray Diffraction: 以下 **XRD**) や透過型電子線回折 (Transmission Electron Diffraction: 以下 **TED**) では、構造形成を示す回折像が得られ、部分的な形成は確認されているものの、予測されているような電子移動度の増大についてはこれまでに報告されていない。一方、特定の条件下で構成原子が規則的に配列する規則構造形成 (以下、規則化) が III-V 族化合物半導体混晶においても確認されてきている。こうした規則化のメカニズムを解明し、規則化の度合いを高めることにより、予測されているような高い移動度など通常混晶とは大きく異なる物性が実現できる可能性がある。

さらに新たな展開として、量子細線や量子ドットなどこれまでの積層方向に加え、これと直交する面内 (横) 方向での構造形成を必要とする量子構造への期待が高まりつつある。図 1.2.2 に示すように、キャリアの閉じ込め次元を高めた量子細線構造や量子ドット構造では、状態密度が変化し、キャリアは特定のエネルギーに集中ようになる。こうした、先鋭的な状態密度の実現によ

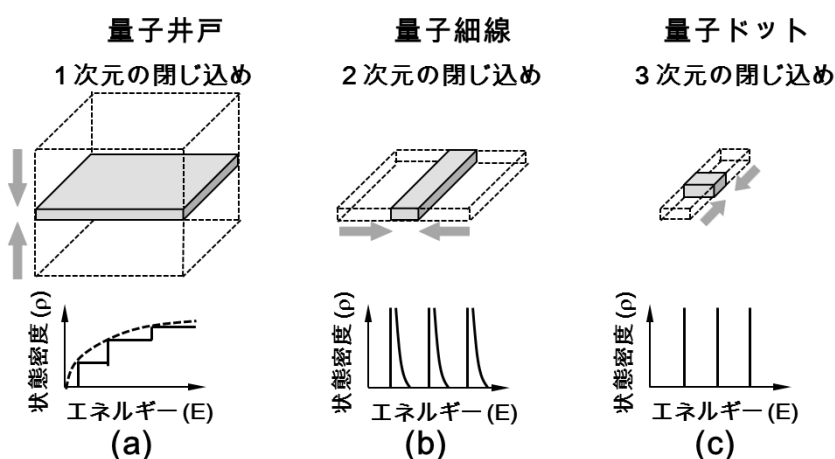


図 1.2.2. キャリア閉じ込めの次元の異なる (a) 量子井戸構造 (1次元の閉じ込め), (b) 量子細線構造 (2次元の閉じ込め), (c) 量子ドット構造 (箱) (3次元の閉じ込め) の模式図とその状態密度。

っては、既存デバイスの大幅な性能改善や新たな物性の出現が期待されている [1.2.26]。特に 3 次元的な閉じ込め構造となる量子ドット構造では、(c) に示すように、孤立した原子の状態と同様にその状態密度は完全に離散的となる。この量子ドットの離散的な状態密度を利用することによって、これまでの量子井戸レーザの性能を大幅に上回る量子ドットレーザ [1.2.27, 28] や高温動作を可能とする赤外線受光デバイス [1.2.29-31]、波長多重を利用した高密度の光メモリ [1.2.32, 33]、少数の電子で動作するトランジスタ [1.2.34, 35] や絶対に盗聴が不可能とされる量子暗合通信に必要な単一光子光源 [1.2.36-38]、量子を制御、操作する量子情報デバイス [1.2.39-41] などが提案され、実用的な素子の開発に向けて研究が活発化してきている。特に、量子ドットを活性層に用いた半導体レーザに関しては、1982 年に理論的に温度特性の改善 [1.2.27, 28] が示されて以来、しきい値電流の低減 [1.2.42]、変調帯域の拡大 [1.2.43] などの性能改善が解析的に示されており、状態密度の先鋭化（離散化）を実現する量子構造とその作製技術の開発は、この分野の主要な課題と大きな興味の一つになってきている。

一方、成長技術に関しては Esaki らの発表 [1.2.16] 以降、ヘテロ構造や超格子構造の形成に向けて、MBE や MOCVD などの薄膜形成技術への関心が高まり、制御精度も急速に進展してきた。1980 年代には、ヘテロ界面の組成遷移領域は 1 分子層オーダーで急峻に、また膜厚制御性も 1 分子層オーダーで制御可能であることが確認されている。しかし、キャリアの閉じ込め次元を高めた量子構造の作製においては、それまでの成長方向のみの制御性の向上により実現することは不可能である。そのため、1 次元方向の制御は MBE や MOCVD など成長技術により形成し、それ以外の閉じ込め次元を高める手段として加工や再成長を利用した手法が用いられてきた。量子井戸を成長後、電子線など荷電ビームを用いたリソグラフィによりパターニングを行い、エッチングにより面内に微細形状を加工する手法である [1.2.44-47]。この他に、パターニングした基板上への選択成長による手法や [1.2.48-50] やエッチングにより加工した基板の溝部、あるいは凸部への異方性成長を利用した手法 [1.2.51-53]、微傾斜基板上でのステップフロー成長を利用した面内超格子形成 [1.2.54, 55] やキンクへの成長 [1.2.56]、QW 成長した結晶を劈開、再成長により T 字型の閉じ込め構造を形成する手法 [1.2.57-59]、QW 上に歪源となる層を形成し、これを微小サイズに加工しこの歪により QW 内に局所的な閉じ込め構造を形成する stressor による手法 [1.2.60]、予め III 族材料のみを基板に供給して形成した液滴を利用して微結晶を成長する液滴エピタキシー [1.2.61] などが報告されてきている。しかし、これらの手法により作製された構造においては、その特性を十分に引き出せるまでには至っていなかった。例えば、リソグラフィとエッチングによ

る加工を用いた手法では、加工時に損傷や不純物などの欠陥が導入されてしまい、この欠陥準位を介したキャリアの消滅などにより十分なキャリア閉じ込めと蓄積ができていないものと考えられる。また、微細加工の深刻な問題として、(1) サイズを十分に小さくできない、(2) 高密度の形成が難しい、また (3) サイズの揺らぎが大きいなどがあり、目的とする状態密度が実現されず、性能が引き出しきれていないものと考えられる。先鋭化した状態密度を実現し、優位となる性能に結び付けていくには、形成する量子構造のサイズをエキシトンの Bohr 半径以下に(GaAs で~13 nm) 高精細に制御する必要がある。また、半導体レーザで量子ドットが利得媒体として機能するためには活性層内に高密度に形成されている必要がある。さらに量子効果を利用して予測されている高い性能を実現するためには、そのサイズは、量子井戸構造での厚さと同様に分子層レベルで均一に形成されている必要がある[1.2.46]。しかし、これまでにこれらすべてを満足する構造を実現する形成手法はなかった。材料原子の相互作用などより特定の微細構造を自己形成するなど何らかの機構を取り入れ、ナノスケールで横方向への構造制御を可能とする成長技術が必要されている。

### 1-3 本研究の目的

前節に本研究に係る背景として、III-V 族化合物半導体の進展とこれに係る微細構造形成技術とその課題について示した。本研究は、これら課題を踏まえ MBE 成長を基盤とした材料技術により高性能なレーザや超高速デバイスなど既存デバイスを凌駕する高性能な半導体デバイスや新規の機能デバイスの開発に貢献することを目的に検討を行っている。まず材料の多様性の観点では、高速デバイスや光デバイスへの応用上重要となる InP に格子整合した材料系に注目した。この InP に格子整合した混晶材料には GaAsSb と AlAsSb があるがこれまでほとんど調べられていない。GaAsSb 混晶のバンドギャップは、InGaAs 混晶と大きく変わらないものの、電子親和力の違いにより InGaAs 混晶とのヘテロ接合によりバンド不連続値が数百 meV 程度ある Type II (staggered) 型のバンド構造になる可能性がある[1.3.1, 2]。この構造では電子と正孔を空間的に分離して蓄積できる他、構成する InGaAs や GaAsSb 混晶のバンドギャップ以下での発光も可能になる[1.3.3-5]。また、InGaAs や InAlAs とのヘテロ構造では、価電子帯あるいは伝導帯の一方のみに大きな障壁をもつエネルギー構造など多様なエネルギー構造を形成できる可能性がある[1.3.6]。既存デバイスを高性能化するだけでなく、新たな機能(効果)を付加した新しいデバイスに結びつく可能性がある。本研究では、Sb-As を含む III-V-V 混晶の組成制御手法を検討し、InP に格子整合した GaAsSb, AlAsSb

混晶を成長するとともに InGaAs 混晶や InAlAs 混晶とのヘテロ構造におけるバンド不連続など基礎特性を明らかにする。

混晶中の原子配置制御については、新たな手法として、特定の条件下で構成原子が規則的に配列する規則構造形成（以下、規則化）について注目した。高速デバイスへの応用として重要な InGaAs 混晶においても、 $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  MSL と同じ原子配置となる CuAu-I 型の規則構造が確認されている[1.3.7]。規則化のための条件抽出を行い、メカニズムを解明することにより規則化の度合いが高い規則混晶が形成され、予測されている優れた物性を実現できる可能性がある。本研究では、高速デバイスとして重要な InGaAs 混晶の規則化のための最適な条件抽出を行い、メカニズムについて検討する。また、人為的に制御した形成手法の検討として、微傾斜基板上に形成される表面ステップを利用して、ステップ端を基点に供給原子を配列させる規則混晶形成についても検討する。これらにより、InGaAs 混晶の規則化とそれに伴う物性変化（電子移動度の増大）を実験的に明らかにする。

また、キャリア閉じ込めの次元を高めた量子細線や量子ドットを成長プロセスのみで構造制御する手法を示し、成長した結晶の構造とその物性を示すことによりその有効性を明らかにする。量子細線の形成に向けては、(110) InP 微傾斜基板上でのステップ形成に注目した。この基板上では、ステップが等間隔に配列する step ordering が比較的低い温度から起こるとともに揺らぎの小さい直線的なステップ端が形成される。これらはステップフロー成長を利用した面内超格子の形成には優位な点である。本研究では、(110) InP 微傾斜基板上へ InGaAs-InAlAs 面内超格子, InAs/GaAs 面内歪超格子を形成し、その構造特性を示すことにより量子細線形成への適応可能性を示す。また、量子ドット形成においては、1990 年代の初頭より活発に研究され始めた格子不整合系結晶の初期に現れる成長島を利用した自己形成手法 [1.3.8] に注目した。これを用いて形成した量子ドットはこれまでの形成手法の多くの問題を克服する有望な手法である。本研究では、この手法の大きな課題である均一性制御と波長制御手法を示し、形成される量子ドットの半導体レーザへの適応可能性を明らかにする。

## 1-4 本論文の構成

本論文は 7 章から構成されており、以下各章ごとにまとめて示す。

第 1 章は序論であり、III-V 族化合物半導体の歴史的背景と新しい素子開発に向けた材料技術に関する課題を述べる。

第 2 章では、素子への応用上重要な InP に格子整合した混晶材料に注目し、

代表的な InGaAs/InAlAs ヘテロ構造に加え、新たに開発した GaAsSb, AlAsSb 混晶と、それらを用いたヘテロ構造に関して述べる。InGaAs/InAlAs に関しては、選択ドープ構造を成長し、シートキャリア濃度について調べた。これまで主流であった GaAs/AlGaAs 系に比べ伝導帯端のエネルギー差が大きく、シートキャリア濃度を 4 倍も高く生成できることを確認し、高電子移動度トランジスタ (HEMT) 応用への優位性を示した。また、2 種類の V 族原子を含み V 族原子の組成制御が必要となる GaAsSb, AlAsSb 混晶の成長技術を開発し、InGaAs 混晶や InAlAs 混晶とのヘテロ接合により Type II 型や価電子帯側、あるいは伝導帯側にのみ大きな障壁を持つ特異なバンドアライメントを形成できることを示した。

第 3 章では、InP に格子整合した InGaAs 混晶に注目し、In と Ga の規則的な配列制御とそれに伴う物性変化について述べる。規則化の手法として、まず、特定な成長条件下で現れる自己形成手法を用いた。(110) InP 基板上では InAs と GaAs が単分子層ごとに交互に積層した CuAu-I 型と呼ばれる規則構造が形成できることを透過電子顕微鏡観察 (TEM) により明らかにした。規則化と成長条件及び成長中の表面ステップ構造との関係より、この規則化に成長表面に形成される 2 分子層の表面ステップが重要な役割を果たしていることを明らかにした。次に、規則化手法として、微傾斜基板上でのステップフロー成長を用いて、InAs と GaAs を交互に供給することにより人為的に構成原子を配列させる手法について示し、TEM, X線回折によりステップ周期に一致した横変調周期を持つ単分子層超格子が形成されていることを明らかにした。これら InGaAs 規則混晶からは、通常の不規則混晶より 1.6 倍も高い電子移動度が得られることを示した。合金散乱が抑制されたと思われる。

第 4 章では、成長面内 (横方向) での原子配置制御について述べる。成長には、微傾斜基板上でのステップフロー成長を利用し、面内に周期構造を有する面内超格子を形成した。基板には、(110)InP 微傾斜基板を用い、0.5 分子層の InGaAs と InAlAs, を交互に成長した。得られた結晶を TEM により評価した結果、表面のステップ周期に一致した InGaAs/InAlAs 面内超格子が形成できていることを確認した。また、格子定数が大きく異なる InAs と GaAs を同様に交互に成長して InAs/GaAs 歪面内超格子を形成した。TEM, エネルギー分散型 X 線分光 (EDX), フォトルミネッセンス (PL) での評価により既報告の面内超格子では、最も組成差が大きな面内超格子が実現できていることを確認し、成長のみによる量子細線形成に向けての有効性を明らかにした。

第 5 章では、究極的なキャリア閉じ込め構造である量子ドットの成長制御について述べる。成長には格子不整合系ヘテロ結晶の成長初期に現れる島状成長 (Stranski-Krastanow 型成長) を用いた。まず基本的な成長形態について整

理した上で、GaAs 上の InAs 量子ドットの形成について、基本的な構造特性と成長パラメータとの関係を明らかにした。次に高性能レーザなどの素子応用上重要な積層成長について検討した。積層成長では、積層とともに量子ドットが大きくなる問題が指摘されていた。初期層に類似した量子ドット層の単純繰り返し積層には中間層をある程度厚くする必要がある ( $> 30 \text{ nm}$ ) こと、また中間層を薄くした場合、積層方向に量子ドットの配列性が現れることを見出した。この積層方向への配列性を積極的に利用して量子ドット高さを積層数により制御する近接積層を提案し、積層数に応じて高さ（発光波長）が変化することを検証した。また近接積層では、構造揺らぎに起因した不均一幅が大幅に低減できることを明らかにした。さらに、GaAs 中間層を 3 分子程度にまで薄くして、InAs 供給量を精細に制御して積層することにより円柱形状（コラムナ形状）の量子ドットを形成した。これを用いた量子ドットレーザにおいて、既報告値より 1 桁程度低いしきい値を得た。また、積層数により偏波制御が可能であることも確認し、レーザ、光増幅器などへの適用可能性を示した。

第 6 章では、量子ドットの代表的な応用デバイスである半導体レーザへの適用に向けた構造制御、特に波長制御について述べる。まず発光波長と成長速度との関係を検討し、毎秒 0.01 分子層以下の低速成長により発光波長を通信波長域である  $1.3 \mu\text{m}$  域にまで長波長化できることを明らかにした。ただし、密度は 1 桁程度低減してしまい ( $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ )、このままではレーザ応用には適さない。そこで、周辺構造として量子ドット直上に形成する InGaAs 歪層について検討した。InGaAs 混晶の組成と厚さにより、 $0.1 \mu\text{m}$  程度の長波化が得られることを確認した。低速成長との併用により  $1.3 \mu\text{m}$  域で発光する量子ドットを高密度 ( $3\text{--}5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ) に形成できることを確認した。最後に、この量子ドットを用いてレーザを試作、 $5.4 \text{ mA}$  の低しきい値で室温連続発振することを確認し、実用的な通信用レーザへの適用可能性を示した。

第 7 章は、これらまとめとして、前章までに得られた結果を要約して述べる。

## 第 1 章の参考文献

### ■ 1-1 節

- [1.1.1] R. Dingle, H. L. Stormer, A. C. Gossard, W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett., 33, p. 655 (1978).
- [1.1.2] T. Mimura, S. Hiyamizu, T. Fujii, K. Nanbu, Jpn. J. Appl. Phys., 19, L225 (1980).
- [1.1.3] S. Hiyamizu, T. Mimura, T. Fujii, K. Nanbu, Appl. Phys. Lett., 37, 805 (1980).
- [1.1.4] Van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann, W. A. Nordland, Jr., Appl. Phys. Lett., 26, p. 463 (1975).
- [1.1.5] N. Holonyak, Jr., R. M. Kolbas, R. D. Dupuis, P. D. Dapkus, IEEE J. Quantum Electron., p. 170 (1980).

### ■ 1-2 節

- [1.2.1] R. Dingle, H. L. Stormer, A. C. Gossard, W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett., 33, p. 655 (1978).
- [1.2.2] T. Mimura, S. Hiyamizu, T. Fujii, K. Nanbu, Jpn. J. Appl. Phys., 19, L225 (1980).
- [1.2.3] S. Hiyamizu, T. Mimura, T. Fujii, K. Nanbu, Appl. Phys. Lett., 37, 805 (1980).
- [1.2.4] Van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann, W. A. Nordland, Jr., Appl. Phys. Lett., 26, p. 463 (1975).
- [1.2.5] N. Holonyak, Jr., R. M. Kolbas, R. D. Dupuis, P. D. Dapkus, IEEE J. Quantum Electron., p. 170 (1980).
- [1.2.6] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, C. A. Burrus, Phys. Rev. Lett., p. 2173 (1984)
- [1.2.7] J. S. Weiner, D. A. B. Miller, D. S. Chelma, T. C. Damen, C. A. Burrus, T. H. Wood, A. C. Gossard, W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett., 47, p. 1148 (1985).
- [1.2.8] R. Tsu, L. Esaki, Appl. Phys. Lett., 22, p. 562 (1973).
- [1.2.9] L. L. Chang, L. Esaki, R. Tsu, Appl. Phys. Lett., p. 593 (1974).
- [1.2.10] T. H. Wood, C. A. Burrus, D. A. B. Miller, D. S. Chelma, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett., 44, p. 16 (1984).
- [1.2.11] T. H. Wood, C. A. Burrus, R. S. Tucker, J. S. Weiner, D. A. B. Miller, D. S. Chelma, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, Electron. Lett., 21, p. 694 (1985).
- [1.2.12] D. A. B. Miller, D. S. Chelma, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, C. A. Burrus, Appl. Phys. Lett., 45, p. 13 (1984).
- [1.2.13] E. R. Brown, J. R. Soderstrom, C. D. Parker, L. J. Mahoney, K. M. Molbar, Appl. Phys. Lett., 58, p. 2291 (1991).
- [1.2.14] M. Asada, S. Suzuki, N. Kishimoto, Jpn. J. Appl. Phys., 47, p. 4375 (2008).

- [1.2.15] S. Suzuki, M. Asada, A. Teranish, H. Sugiyama, H. Yokoyama, Appl. Phys. Lett., 97, p. 242102 (2010).
- [1.2.16] L. Esaki, R. Tsu, IBM J. Res. Develop., p. 61 (1970).
- [1.2.17] L. Esaki, IEEE J. Quantum Electron. QE-22, p. 1611 (1986).
- [1.2.18] T. Tanoue, H. Sakaki, Appl. Phys. Lett., 41, p. 67 (1982).
- [1.2.19] T. Fukui, H. Saito, Jpn. J. Appl. Phys., 23, p. L521 (1984).
- [1.2.20] T. Fukui, J. Cryst. Growth, 93, p. 301 (1988).
- [1.2.21] H. Toyoshima, T. Anan, K. Nishi, T. Ichihashi, A. Okamoto, J. Appl. Phys., 68, p. 1282 (1990).
- [1.2.22] P. M. Petroff, A. C. Gossard, W. Weigmann, A. Savage, J. Cryst. Growth 44, p. 5 (1978).
- [1.2.23] N. Sana, H. Kato, M. Nakayama, S. Chika, H. Terauchi, Jpn. J. Appl. Phys., 23, p. L640 (1984).
- [1.2.24] R. Katsumi, H. Ohno, T. Takama, H. Hasegawa, Inst. Phys. Conf. Ser. No. 79, p.391, Paper presented at Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Karuizawa, Japan (1985).
- [1.2.25] K. Nishi, T. Anan, Y. Ide, K. Onabe, J. Crystal Growth 95, p. 202 (1989).
- [1.2.26] H. Sakaki, Jpn. J. Appl. Phys., 19, p. L735 (1980).
- [1.2.27] Y. Arakawa, H. Sakaki, Appl. Phys. Lett., 40, p. 939 (1982).
- [1.2.28] Y. Arakawa, A. Yariv, IEEE J. Quantum Electron., QE-22, p. 1887 (1986).
- [1.2.29] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. P. Kotthaus, P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett., 73, p. 2252 (1994).
- [1.2.30] V. Ryzhii, M. Ershov, I. Khmyrova, M. Ryzhii, T. Iizuka, Physica B 227, p. 17 (1996)
- [1.2.31] N. Horiguchi, T. Futatsugi, Y. Nakata, N. Yokoyama, T. Mankad, P. M. Petroff, Jpn. J. Appl. Phys., 38, p. 2259 (1999).
- [1.2.32] S. Muto, Jpn. J. Appl. Phys., 34, p. L210 (1995).
- [1.2.33] K. Imamura, Y. Sugiyama, Y. Nakata, S. Muto, N. Yokoyama, Jpn. J. Appl. Phys., 34, P. L1445 (1995).
- [1.2.34] R. C. Ashori, Nature, 379, p. 413 (1996).
- [1.2.35] R. J. Schoelkopf, P. Wahlgren, A. A. Kozhevnikov, P. Delsing, D. E. Prober, Science, 280, p. 1238 (1998).
- [1.2.36] R. M. Thompson, R. M. Stevenson, A. J. Shields, I. Farrer, C. J. Lobo, D. A. Ritchie, M. L. Leadbeater, M. Pepper, Phys. Rev., B64, p. 201302, (2001).
- [1.2.37] K. Takemoto, Y. Sakuma, S. Hirose, T. Usuki, N. Yokoyama, T. Miyazawa, M. Takatsu, Y. Arakawa, Jpn. J. Appl. Phys., 43, p. L993 (200).

- [1.2.38] K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, K. Wakui, S. Hirose, T. Usuki, M. Takatsu, N. Yokoyama, K. Yoshino, A. Tomita, S. Yorozu, Y. Sakuma, Y. Arakawa, Appl. Phys. Express, 3, p.92802 (2010).
- [1.2.39] A. Barenco, D. Deutsu, A. Ekert, Phys. Rev. Lett., 74, p. 4083 (1995).
- [1.2.40] T. Osterkamp, T. Fujisawa, W. G. van der Wiel, K. Ishibashi, R. V. Hijman, S. Tarucha, L. P. Kouwenhoven, Nature, 395, p. 873 (1998).
- [1.2.41] 樽茶清吾, 科学, 68, p. 710 (1998).
- [1.2.42] M. Asada, Y. Miyamoto, Y. Suematsu, IEEE J. Quantum Electron., QE-22, p. 1915 (1986).
- [1.2.43] Y. Arakawa, K. Vahara, A. Yariv, Surf. Sci., 174, p. 155 (1986).
- [1.2.44] P. M. Petroff, A. C. Gossard, R. A. Logan, W. Wiedmann, Appl. Phys. Lett., 41, p. 635 (1982).
- [1.2.45] M. A. Reed, R. T. Bate, K. Bradshaw, W. M. Duncan, W. R. Frenseley, J. W. Lee, H. D. Shih, J. Vac. Sci. Technol. B4, p. 358 (1986).
- [1.2.46] Y. Miyamoto, M. Cao, Y. Shingai, K. Furuya, Y. Suematsu, K. G. Ravikumar, S. Arai, Jpn. J. Appl. Phys., 26, p. L225 (1987).
- [1.2.47] D. Gershoni, H. Temkin, G. J. Dolan, J. Dunsmuir, S. N. G. Chu, M. B. Panish, Appl. Phys. Lett., 53, p. 995 (1998).
- [1.2.48] T. Fukui, S. Ando, Y. Fukai, Appl. Phys. Lett., 57, p. 1029 (1990).
- [1.2.49] T. Fukui, S. Ando, Y. Tokura, T. Toriyama, Appl. Phys. Lett., 58, p. 2018 (1991).
- [1.2.50] S. Tsukamoto, Y. Nagamune, M. Nishioka, Y. Arakawa, Appl. Phys. Lett., 63, p. 355 (1993).
- [1.2.51] E. Kapon, S. Simhony, R. Bhat, D. M. Hwang, Appl. Phys. Lett., 55, p. 2715 (1989).
- [1.2.52] E. Kapon, K. Kash, E. M. Olausen, D. M. Hwang, E. Colas, Appl. Phys. Lett., 60, p. 477 (1992).
- [1.2.53] A. Madhukar, K. C. Rajkumar, P. Chen, Appl. Phys. Lett., 62, p. 1547 (1993).
- [1.2.54] P. M. Petroff, A. C. Gossard, R. A. Logan, W. Wiedmann, Appl. Phys. Lett., 45, p. 620 (1984).
- [1.2.55] T. Fukui, H. Saito, Appl. Phys. Lett., 50, p. 824 (1987).
- [1.2.56] O. Brandt, L. Tapfer, K. Poog, R. Bierwolf, M. Hohenstein, F. Phillipp, H. Lage, A. Heberle, Phys. Rev., B 44, p. 8043 (1991).
- [1.2.57] L. Pfeiffer, K. W. West, H. L. Stormer, J. P. Eisenstein, K. W. Baldwin, D. Gershoni, J. Spector, Appl. Phys. Lett., 56, p. 1697 (1990).
- [1.2.58] D. Gershoni, J. S. Weiner, S. N. G. Chu, G. A. Baraff, J. M. Vandenberg, L. N. Pfeiffer, K. West, R. A. Logan, T. Tanbun-EK, Phys. Rev. Lett., 65, p. 1631 (1990).

- [1.2.59] L. Pfeiffer, H. L. Störmer, K. W. Baldwin, K. W. West, A. R. Goni, A. Pinczuk, R. C. Ashoori, M. M. Dignam, W. Wegscheider, *J. Cryst. Growth*, 127, p. 849 (1993).
- [1.2.60] K. Kash, B. P. Van der Gaag, D. D. Mahoney, A. S. Gozdz, L. T. Florez, J. P. Harbison, *Phys. Rev. Lett.*, 67, p. 1326 (1991).
- [1.2.61] N. Koguchi, K. Ishige, S. Takahashi, *J. Vac. Sci. Technol.*, B 11, p. 787 (1993).

### ■ 1-3 節

- [1.3.1] G. A. Sai-Halasz, R. Tsu, L. Esaki, *Appl. Phys. Lett.*, 30, p. 651 (1977).
- [1.3.2] H. Sakaki, L. L. Chang, *Appl. Phys. Lett.*, 31, p. 211 (1977).
- [1.3.3] G. A. Sai-Halasz, L. L. Chang, J. M. Welter, C. A. Chang, *Slid State Com.*, 27, p. 935 (1978).
- [1.3.4] H. Kroemer, G. Griffiths, *Electron Dev. Lett.*, EDL-4, p. 20 (1983).
- [1.3.5] E. J. Caine, S. Subbana, H. Kroemer, J. L. Merz, A. Y. Cho, *Appl. Phys. Lett.*, p. 1123 (1984).
- [1.3.6] T. Tanoue, H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.*, 41, p. 67 (1982).
- [1.3.7] T. S. Kuan, W. I. Wang, E. L. Wilkie, *Appl. Phys. Lett.*, 51, p. 51 (1987).
- [1.3.8] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Debaars, P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.*, 63, p. 3203 (1993).

## 第2章 InP 基板上の混晶半導体とヘテロ構造の形成

### 2-1 はじめに

InP に格子整合した InGaAs 混晶は、表 2.1.1 [2.1.1]に示すように、それまで主に用いられてきた GaAs に比べて、室温での電子移動度が  $13,800 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  [2.1.2]と高く、2倍以上も高い電子の飽和速度 ( $2.95 \times 10^7 \text{ cm/s}$  [2.1.5]) が報告されている。そのため、高電子移動度トランジスタ (High Electron Mobility Transistor: **HEMT**) やヘテロ接合バイポーラトランジスタ (Heterojunction Bipolar Transistor: 以下 **HBT** [2.1.15-17]) など高速・高周波デバイスの有力な材料候補である。また、バンドギャップは室温で  $0.76 \text{ eV}$  [2.1.4] であり、これは中・長距離用の光通信の波長 ( $\sim 1.55 \mu\text{m}$ ) に対応しており、通信用の受・発光デバイスや光変調器、光増幅器などの光デバイス材料としても重要である。

表 2.1.1. InP に格子整合した InGaAs 混晶及び InAlAs 混晶 とのヘテロ構造の物性パラメータ [2.1.1].

|                                                        | InGaAs/InAlGaAs    |                           | GaAs/AlGaAs          |                                      |
|--------------------------------------------------------|--------------------|---------------------------|----------------------|--------------------------------------|
| Electron mobility at RT ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ )    | 13,800             | (InGaAs) [2.1.2]          | 8,300                | (GaAs) [2.1.10]                      |
| Electron effective mass, $m^*/m_0$                     | 0.041              | (InGaAs) [2.1.3]          | 0.067                | (GaAs) [2.1.11]                      |
|                                                        | 0.075              | (InAlAs) [2.1.4]          | 0.078                | (AlAs) [2.1.11]                      |
| Electron saturation velocity at RT ( $\text{cm/s}$ )   | $2.95 \times 10^7$ | (InGaAs) [2.1.5]          | $1.3 \times 10^7$    | (GaAs) [2.1.5]                       |
| Satellite valley separation (eV)                       | 0.55               | (InGaAs) [2.1.6] (Γ-L)    | 0.28                 | (GaAs) [2.1.11] (Γ-L)                |
| Conduction band offset (eV)                            | 0.52               | (InGaAs-InAlAs) [2.1.7]   | 0.3                  | (GaAs-AlGaAs) ( $x=0.4$ ) [2.1.12]   |
| Direct band gap at 300K (eV)                           | 0.76               | (InGaAs) [2.1.4]          | 1.424                | (GaAs) [2.1.11]                      |
|                                                        | 1.46               | (InAlAs) [2.1.4]          | 1.985                | (AlGaAs) [2.1.11] ( $x=0.45$ )       |
| Maximum doping concentration ( $\text{cm}^{-3}$ )      | $5 \times 10^{19}$ | (InGaAs: Si) [2.1.8]      | $1.1 \times 10^{19}$ | (GaAs: Si) [2.1.13]                  |
| Carrier increase by PPC, 9 % $\Delta N_s/N_s$ , at 77K |                    | (InGaAs/N-InAlAs) [2.1.9] | 9 %                  | (GaAs/N-AlGaAs) ( $x=0.3$ ) [2.1.14] |

図 2.1.1 に III-V 族化合物半導体の格子定数とバンドギャップの関係を示す。デバイスへの応用上重要な InP に格子整合する InGaAs とヘテロ接合が可能な材料は、青い四角(■)で示した InGaAs, InAlAs の他に、赤の四角(■)で示す GaSb と GaAs との混晶である GaAsSb と AlSb と AlAs の混晶である AlAsSb 混晶があるが、これら混晶についてはほとんど調べられていない。GaAsSb 混晶のバンドギャップは、InGaAs 混晶と大きく変わらないものの、電子親和力の違

いにより InGaAs 混晶とのヘテロ接合によりバンド不連続値が数百 meV 程度ある **Type II** (staggered) のバンド構造になることが予測されている [2.1.18, 19]。電子と正孔を空間的に分離して蓄積できる他、構成する InGaAs や GaAsSb 混晶のバンドギャップ以下での発光も可能になる [2.1.20-22]。また、価電子帯、伝導帯の一方のみに大きな障壁をもつエネルギー構造など多様なエネルギー構造を形成できる可能性がある [2.1.23]。既存デバイスを高性能化するだけでなく、新たな機能（効果）を付加した新しいデバイスに結びつく可能性がある。

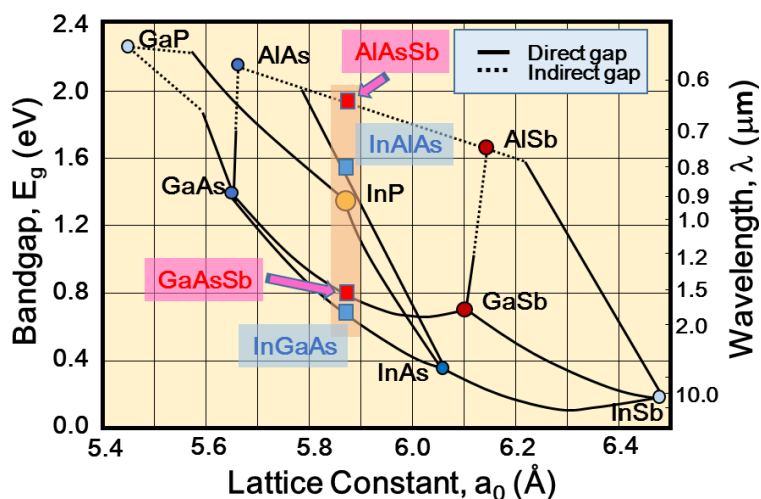


図 2.1.1. III-V 族化合物半導体の格子定数とバンドギャップ (300K). 右の縦軸は対応する波長。

本章では、上で示したようにデバイスへの応用上重要な InP に格子整合した混晶に注目し、代表的な InGaAs/InAlAs ヘテロ構造に加え、新たに分子線結晶成長 (Molecular Beam Epitaxy : 以下 **MBE**) 法を用いて GaAsSb 混晶と AlAsSb 混晶の成長技術を開発し、これらを用いたヘテロ構造の形成とバンド不連続について検討した結果を述べる。

2-2 節では、InGaAs/InAlAs ヘテロ構造に関して、選択ドープ構造を **MBE** により成長し、**HEMT** 応用において重要な指標である **2DEG** 特性について示し、その優位性を明らかにする。これまで主流であった GaAs/AlGaAs 系では、伝導帯の不連続がバンドギャップの差の 60% 程度 [2.1.24] とそれほど大きくなく、また電子供給層である AlGaAs へのドーピング濃度をあまり高くできない ( $\sim 2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ ) ため、**HEMT** の電流駆動能力に直接結びつく **2DEG** 濃度を高くできない ( $\sim 1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  [2.1.25-29]) といった課題がある。これに対し、InGaAs/InAlAs では、先に示した InGaAs の高い電子移動度に加え、電子供給層である InAlAs への高濃度ドープが可能であり ( $\sim 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  [2.1.30, 31])、また、電子供給層である InAlAs と電子走行層である InGaAs の

伝導帯の不連続が 0.53 eV [2.1.7, 2.1.32]と大きいと、GaAs/AlGaAs 系に比べ高い濃度で **2DEG** を形成できる可能性がある。しかし、**HEMT** の電流駆動能力に直接結びつく InGaAs/N-InAlAs 選択ドーピング構造の **2DEG** 濃度( $N_s$ )については、Onabe らの報告 [2.2.33] の他にはほとんど報告されてない。ここでは生成される **2DEG** 濃度を自己無撞着な計算により求めるとともに、単一ヘテロ接合の InGaAs/N-InAlAs 選択ドーピング構造を **MBE** により形成し、電子供給層へのドーピング濃度 ( $N_d$ ) に対する **2DEG** 濃度 ( $N_s$ )と移動度 ( $\mu$ ) の関係を示す。電子供給層へのドーピング濃度 ( $N_d$ )を高めるにしたがい、**2DEG** 濃度 ( $N_s$ )は単調に増加し、電子供給層である InAlAs へのドーピング濃度 ( $N_d$ ) が  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ において、GaAs/AlGaAs に比べ 4 倍近い高い **2DEG** 濃度 ( $N_s = 3.7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ) を実現できる[2.1.34]ことを示し、**HEMT** 応用における優位性を明らかにする。

2-3 節では、InP に格子整合した GaAsSb の **MBE** 成長とその結晶特性に関して述べる。Sb を含む GaAsSb や AlAsSb 混晶の成長においては以下が課題となる。

1. 混合不安定性：Sb を含む GaAsSb や AlAsSb では、同種原子どうしの凝集傾向を示すクラスタリング・パラメタが大きく [2.1.35]、隣接原子間といった短距離オーダーでみた場合、クラスタ（組成分布）を形成しやすいとされている。また、InP に格子整合する組成は、熱力学的には相分離などを伴う混和性ギャップ内 (miscibility gap：バイノードル曲線内) にあり [2.1.36]、**MBE** 法により格子整合する組成を均一に成長できるか。
2. **MBE** 法での V 族 (As, Sb) の組成制御：これまでの AlGaAs 混晶や InGaAs 混晶などは  $\text{III}_x\text{-III}_{(1-x)}\text{-V}$  族の混晶であり、混晶組成は III 族原子の組成を制御した。Ga や Al などの III 族金属の蒸気圧は低く、また基板への付着率がほぼ 100%で一定となるため、III 族原子の分子線強度を狙いとする組成に対応させて相対的に合わせ込むことにより、その組成制御は比較的容易であった。As, Sb の蒸気圧は高く、また付着率は III 族のように 100% 一定とはならない。付着率が異なる As, Sb を **MBE** 法でどう制御しての基板へ取り込むか。制御のために利用できるなんらかの機構があるか。
3. ドーピング：デバイス化にはドーピングが必要となる。GaSb 成長では、通常 N 型のドーパントとして通常 Te もしくは Se が用いられており [2.1.37]、GaAs や InGaAs などへの N 型のドーパントとして用いる Si は、GaSb では V 族の Sb サイトに取り込まれ、アクセプタとなることが報告されている [2.1.38, 39]。Te は蒸気圧が高く **MBE** 法では扱い難い材料である。GaAs と GaSb の比がほぼ 1:1 となる InP に格子整合した GaAsSb 混晶の場合、蒸気圧が低く制御性が高い Si が N 型ドーパントとして使えるか。また制御する手

法があるか。

2-3 節ではこれら課題に対する検討として、**MBE** 法による **GaAsSb** 混晶の成長に向けて、**V** 族である **As-Sb** の組成制御方法について述べ、ミシビリティギャップ内にある **InP** に格子整合した結晶が形成できることを示す。また基礎的な結晶特性として、**X** 線回折 (**X-ray diffraction** : 以下 **XRD**)、フォトルミネッセンス (**Photoluminescence** : 以下 **PL**) による組成揺らぎ (混晶揺らぎ) など結晶性について検討するとともに、ノンドープでの残留キャリア濃度と移動度など電気的特性と主要な成長条件である **V/III** 比、および成長温度との関係 [2.1.40] について示す。また、**GaSb** では **V** 族サイトに入りアクセプタとして働く **Si** の **GaAsSb** へのドーピングについて検討した結果を示す。**GaAsSb** 成長においては、**Si** は両極性不純物となり、成長温度が低い場合には **III** 族サイトに取り込まれドナーとなり **N** 型伝導を示すが、高温成長では **V** 族サイトに取り込まれアクセプタになり **P** 型伝導を示すこと [2.1.41] を明らかにする。

こうした **GaAsSb** 混晶や **AlAsSb** 混晶と **InGaAs**, **InAlAs** 混晶とのヘテロ構造では **Type II** 型のバンド構造の他、伝導帯側のみに大きな障壁をもつ構造や逆に価電子帯側のみに大きな障壁をもつ構造が形成できる可能性がある。**InGaAs/GaAsSb** ヘテロ構造は、組成条件を選ぶことにより図 2.1.1 (b) に示した **Type II (staggered)** 型のバンド構造となることが予想される [2.1.21, 22]。この構造では、(1) **InGaAs** 側に電子を、また **GaAsSb** 側に正孔をそれぞれ空間的に分離して蓄積することが可能となる。また、(2) 層厚や積層周期を調整することにより、隣接層間への波動関数のしみ出しにより、隣接層間でのバンド間遷移が可能となる。これにより、構成する **InGaAs** 混晶あるいは **GaAsSb** 混晶のバンドギャップのいずれよりも実効的なバンドギャップを小さくできるなどの特徴がある。(1) を利用することによっては、電子-正孔分離型のアバランシェ・フォトダイオードが提案されている [2.2.23]。電子と正孔のイオン化率を異なる層のバンドギャップにより別々に制御できるため、イオン化率比を大きくすることができ、雑音特性が大幅に改善される可能性がある。また、(2) を利用することによっては、近赤外域から  $3\text{ }\mu\text{m}$  を超える中赤外域にまで対応する発光・受光デバイスへの応用の可能性がある。これまでに、著者を含む研究グループにおいて、この **InP** に格子整合した **InGaAs/GaAsSb** ヘテロ構造を **MBE** により形成し、界面の急峻性をオージェ電子分光 (**Auger Electron Spectroscopy** : 以下 **AES**) 法により評価する [2.1.42] とともに単一障壁構造のダイオードを製作し **thermionic emission** 電流の温度依存性を測定することにより伝導帯不連続値などエネルギーバンド構造を明らかにしてきた [2.1.43]。

2-4 節では、**GaAsSb/InAlAs** 量子井戸 (**Quantum Well**: 以下 **QW**) 構造を

**MBE** により成長し、**PL** 発光エネルギーの井戸幅依存性よりバンド端不連続値を評価した結果を述べる。また、ヘテロ界面の揺らぎを **PL** の発光半値幅 (Full Width at Half Maximum: 以下 **FWHM**) および量子井戸構造の断面の透過電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscopy: 以下 **TEM**) により評価した結果を示す。GaAsSb/InAlAs ヘテロ構造のエネルギーバンド構造が Type I 型であり、伝導帯の不連続 ( $\Delta E_c$ )、価電子帯の不連続 ( $\Delta E_v$ ) はそれぞれ 0.01 eV, 0.78 eV となり、価電子帯側のみに大きなポテンシャル障壁をもつ構造になっていることを示す。また、その界面揺らぎは GaAs/AlGaAs や InGaAs/InAlAs ヘテロ構造と同様に、単分子層厚さ程度の揺らぎの平坦性のいい界面が形成できていることを明らかにする[2.1.44]。

2-5 節では InGaAs/AlAsSb ヘテロ構造について述べる。InGaAs/AlAsSb QW 構造を **MBE** により形成し、AlAsSb 混晶のバンドギャップを評価するとともにヘテロ構造のエネルギーバンドの不連続を評価した。120K での電気反射率 (Electro-Reflectance: 以下 **ER**) 測定により、AlAsSb の $\Gamma$ 点での直接遷移バンドギャップが  $2.45 \pm 0.03$  eV になること、また InGaAs/AlAsSb QW 構造からの PL 発光エネルギーの井戸幅依存性より、このヘテロ構造が Type II 型のバンド構造となり、伝導帯、価電子帯の不連続値 ( $\Delta E_c$ ,  $\Delta E_v$ ) がそれぞれ  $1.74 \pm 0.04$  eV,  $0.07 \pm 0.02$  eV になることを明らかにする。また、InGaAs/AlAsSb QW の断面の **TEM** 観察より、分子層レベルで平坦な界面が形成できていることを示す[2.1.45]。さらにこのヘテロ構造の応用として、AlAsSb /InGaAs /AlAsSb かななる共鳴トンネルバリア (Resonant Tunneling Barrier: 以下 **RTB**) を作製し、I-V 特性におけるピーク/バレー比 ( $J_p/J_v$ ) がこれまでで最も大きな 15 に達すること[2.1.46] を示し、このヘテロ構造の優位性を明らかにする。

最後に 2-6 節では本章で得られた結果を要約して示す。

## 2-2 InGaAs/InAlAs ヘテロ構造の作製と二次元電子ガス特性

前節で示したように、InGaAs/InAlAs ヘテロ構造では伝導帯の不連続値,  $\Delta E_c$  が GaAs/AlGaAs に比べて大きいことから、高い **2DEG** 濃度が期待される。本節では、InP に格子整合した InGaAs/N-InAlAs 選択ドーピング構造を **MBE** により成長し、形成される **2DEG** の濃度と移動度について検討した結果 [2.2.1] を示す。

電子供給層である InAlAs 混晶への N 型ドーパントには Si を用い、Si のドーピング濃度を変えて成長した InGaAs/N-InAlAs 選択ドーピング構造の、**2DEG** 濃度,  $N_s$  と移動度,  $\mu$  をホール (Hall) 測定およびシュブニコフ・ドハース (Shubnikov-de Haas: 以下 **SdH**) 効果を測定することにより評価した。また、

得られた **2DEG** 濃度,  $N_s$  は自己無撞着に計算した値と比較した。

まず、この選択ドープ構造における **2DEG** の電子状態と濃度を計算により求めた。計算は以下に示すシュレディンガー方程式とポアソン方程式を同時に解くことにより行った。

$$-(\hbar^2/2m^*) \cdot d^2\psi(x)/dx^2 + V(x) \cdot \psi(x) = E_i \cdot \psi(x) \quad (i = 0, 1, 2, 3, \dots) \quad (2.1)$$

$$d^2V(x)/dx^2 = -q/\epsilon \{N_d - n(x) - \sum_{i=0}^{i_{max}} N_s(i) \psi^2(x)\} \quad (2.2)$$

ここで、 $N_d$ は イオン化したドナー濃度、 $N_s$ は **2DEG** 濃度、 $n(x)$ は N-InAlAs 中の電子濃度、 $V(x)$ はポテンシャルエネルギーである。計算に用いた構造は、電子供給層である N-InAlAs 層と電子走行層である InGaAs 層とが接する構造(電子供給層と電子走行層との間にスペーサ層が無い構造)で、電子供給層へのドーピング濃度,  $N_d$  は、 $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} - 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  の範囲で変化させた。シュレディンガー方程式は、有効質量近似を用いて解き、また InGaAs と InAlAs とのヘテロ界面では以下に示す境界条件を用いた。すなわち、2つの領域の境界で、波動関数  $\psi_i(x)$ とその導関数である  $\psi_i'(x)/m_i$  が連続となる[2.2.2])とした。

$$\psi_1(x) = \psi_2(x) \quad (2.3)$$

$$1/m_1^* \cdot d\psi_1(x)/dx = 1/m_2^* \cdot d\psi_2(x)/dx \quad (2.4)$$

InP に格子整合した InGaAs の電子の有効質量 ( $m_1^*$ ) と InAlAs の電子の有効質量 ( $m_2^*$ ) は、それぞれ  $m_1^* = 0.042m_0$  [2.2.3],  $m_2^* = 0.075m_0$  [2.2.4] ( $m_0$  は真空中の電子の有効質量)を用いた。また、このヘテロ構造のように2つの領域で有効質量に大きな差がある場合には境界条件が重要となる。ここでは、有効質量の非放物線性 (nonparabolicity)を考慮して、 $m^* = m_1^*(1+2\alpha E)$  [2.2.5]として状態密度の計算を行っている。ここで、 $E$  は各々の **2DEG** サブバンドの底からの電子のエネルギーで、また $\alpha$ は非放物線パラメータで、バンドギャップを  $E_g$  として、 $\alpha = (1 - m_1^*/m_0)^2/E_g$  [2.2.6] で表される。

また、InAlAs 電子供給層でのキャリア移動に伴う伝導帯のバンド傾斜を計算するため、電子のフェルミディラック分布を用いた。この際、Si のドナーレベルは伝導帯端から 10 meV と仮定している。図 2.2.1 に計算によって求めた伝導帯のエネルギーダイアグラムと **2DEG** 分布を示す。このヘテロ接合の伝導帯端の不連続値は 0.53 eV [2.2.7]とそれまで主に用いられてきた GaAs/N-AlGaAs ヘテロ構造の値 (0.2 – 0.3 eV) に比べて 2 倍程度に大きいため、 $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  のドーピング濃度に対して、計算される **2DEG** 濃度は  $3.7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  と非常に

高い値に達している。この値は、GaAs/N-AlGaAs の場合の約 4 倍の値である。また、界面近傍に形成されるサブバンドのうち、基底準位 ( $E(0) = -140.6 \text{ meV}$ )、第 1 励起準位 ( $E(1) = -38.9 \text{ meV}$ )、第 2 励起準位 ( $E(2) = -6.4 \text{ meV}$ ) の 3 つのサブバンドが **2DEG** に占められることがわかる。また、このような高濃度の **2DEG** が形成される状態においても、InAlAs 側のポテンシャル障壁（伝導帯端）は、フェルミ準位より  $0.2 \text{ eV}$  も高い位置にある。

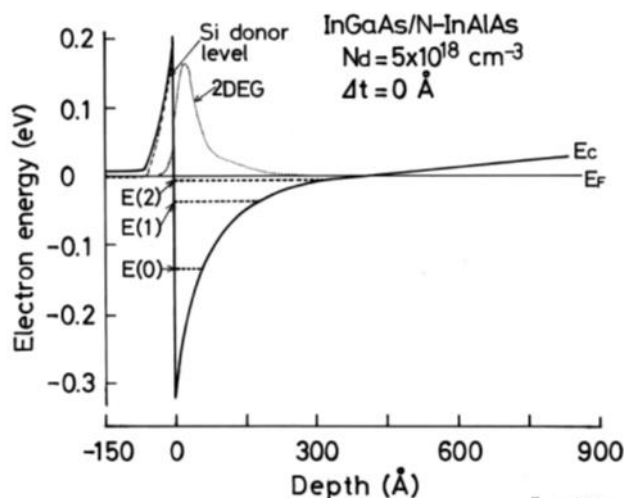


図 2.2.1.  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{N-In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  ヘテロ構造 (InAlAs へ Si のドーピング濃度,  $N_d = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , InGaAs 電子走行層と N-InAlAs 電子供給層との間のスペーサ層厚,  $\Delta t = 0 \text{ nm}$ ) のバンドダイヤグラムと自己無撞着に計算した電子の空間分布 ( $\sum \psi_i^2$ ,  $\psi_i$  は 1 番目のサブバンドの波動関数). 電子エネルギーはフェルミレベル ( $E_F$ ) を基準 (0) とした. サブバンドの  $E(0)$ ,  $E(1)$  および  $E(2)$  は、それぞれ  $-140.6 \text{ meV}$ ,  $-38.9 \text{ meV}$ ,  $-6.4 \text{ meV}$  である [2.2.1]. Copyright (1987). The Japan Society of Applied Physics.

図 2.2.2 に成長した  $\text{InGaAs}/\text{N-InAlAs}$  選択ドーピング構造の断面構造を模式的に示す。層構造は、表面側より Si ドープ InGaAs コンタクト層（厚さ  $10 \text{ nm}$ ,  $N_d = 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ）、Si ドープ InAlAs 電子供給層（厚さ  $200 \sim 25 \text{ nm}$ ,  $N_d = 1 \times 10^{17} \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ）、ノンドープ InGaAs 電子走行層（厚さ  $500 \text{ nm}$ ）により構成している。InAlAs 電子供給層へのドーピング濃度は、 $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  まで変化させ、形成される **2DEG** 濃度を高くするため、InGaAs 電子走行層との間にアンドープのスペーサ層は挿入しない構造とした。また、InAlAs 電子供給層での伝導（電子走行層

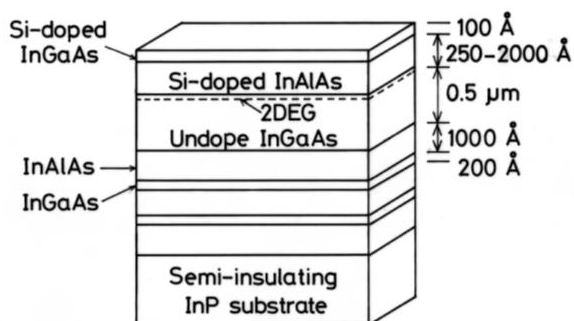


図 2.2.2.  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{N-In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  選択ドーピング構造の断面の模式図 [2.2.1]. Copyright (1987). The Japan Society of Applied Physics.

との並列伝導)の影響を考慮して、InAlAs 電子供給層の厚さは、ドーピング濃度に応じて変えている。なお、基板直上には 340 nm のバッファ層を成長しており、これは図に示すように 2 層の InGaAs 層 (厚さ 20 nm) を 3 層の InAlAs 層 (厚さ 100 nm) で挟んだ構造となっている。基板には半絶縁性の (001) InP 基板を用い、通常の MBE により、成長温度 470°C、成長速度 1.2  $\mu\text{m/h}$  にて成長した。

それぞれの試料の 2DEG 濃度を 4.2K での **SdH** 効果を測定することにより評価した。図 2.2.3 に InAlAs 電子供給へのドーピング濃度,  $N_{\text{Si}}$ , を  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$

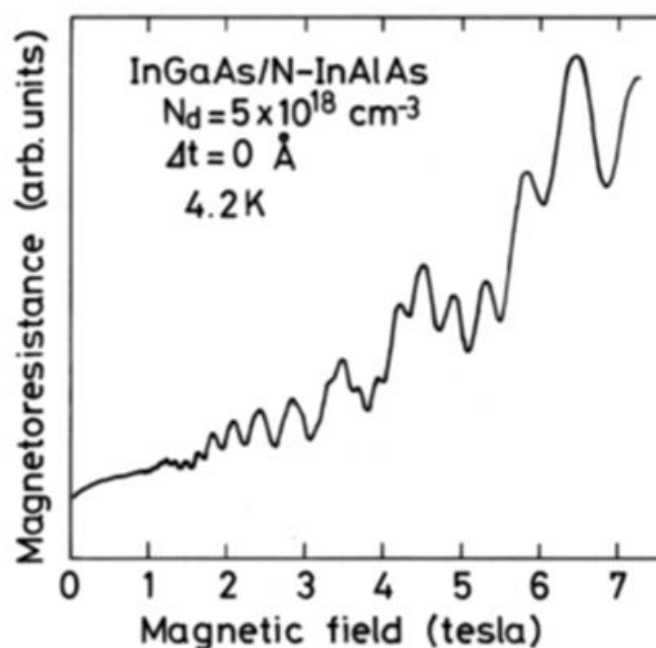


図 2.2.3. 低温 (4.2K) にて測定した  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{N-In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  選択ドープ構造 (InAlAs へ Si のドーピング濃度,  $N_{\text{d}} = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , InGaAs 電子走行層と N-InAlAs 電子供給層との間のスペース層厚,  $\Delta t = 0 \text{ nm}$ ) のシュブニコフ・ドハース振動. 3 種類の振動周期が観測されており、3 つのサブバンドに電子が蓄積していることを示している [2.2.1].

Copyright (1987). The Japan Society of Applied Physics.

とした試料の測定結果を示す。磁気抵抗は、磁場に対して振動を示すが、図に見られるように異なる 3 種類の振動成分を含んでいる。これは、電子が振動周期に対応した 3 つのサブバンド ( $E(0)$ ,  $E(1)$ ,  $E(2)$ ) を占有していることを示している。各サブバンドの 2DEG 濃度は、**SdH** 振動の周期から以下の式によって求めることができる。

$$N_s = (e/\pi\hbar) \cdot (1/\Delta(1/B)) \quad (2.5)$$

ここで、 $\hbar$  はプランク定数で、 $e$  は電子の電荷、また  $\Delta(1/B)$  は磁場の逆数に対する抵抗の振動周期である。上式より求めた各サブバンドの 2DEG 濃度は、各々

$N_s(0) = 2.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 、 $N_s(1) = 7.8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 、 $N_s(2) = 1.4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ であった。図 2.2.4 に **SdH** 測定によって得られた結果を計算によって求めた値とともに示す。図中の丸のプロットが実験により得られた値を示しており、白丸( $\circ$ )は磁気抵抗の振動に対応する各サブバンドの **2DEG** 濃度 ( $N_s(0)$ ,  $N_s(1)$ ,  $N_s(2)$ )を

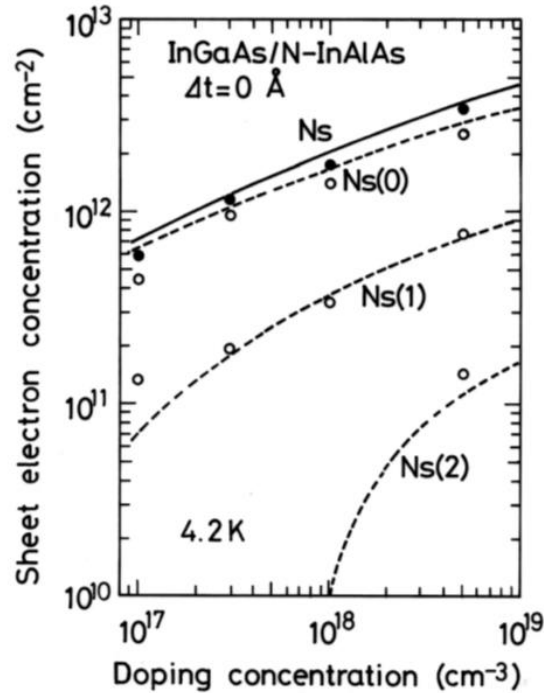


図 2.2.4. 成長した  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{N-In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  選択ドーピング構造のシュブニコフ・ドハース測定 (4.2K) により得られた基底準位 ( $E(0)$ ), 第 1 励起準位 ( $E(1)$ ), および第 2 励起準位 ( $E(2)$ ) の **2DEG** 濃度の N-InAlAs 層への Si のドーピング濃度依存性. 測定された値 (黒丸( $\bullet$ )); 全 **2DEG** 濃度,  $N_s$ , 白丸( $\circ$ ); 各サブバンドの **2DEG** 濃度,  $N_s(i)$ ,  $i = 0, 1, 2$  は, 自己無撞着に計算した **2DEG** 濃度 (実線;  $N_s$ , 破線;  $N_s(i)$ ) によく一致している [2.2.1]. Copyright (1987). The Japan Society of Applied Physics.

示し、黒丸( $\bullet$ )は全 **2DEG** 濃度 ( $N_s = N_s(0) + N_s(1) + N_s(2)$ ) を示している。また、破線は各サブバンドでの **2DEG** 濃度の計算値、実線は全 **2DEG** 濃度の計算値を示しているが、得られた実験結果は、全 **2DEG** 濃度だけでなく、各サブバンドを占める **2DEG** 濃度とも非常に良い一致を示している。**2DEG** 濃度は、Si ドーピング濃度,  $N_d$  の増加とともに増加し、 $N_d = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  では  $3.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  に達している。また、計算結果からもわかるようにドーピング濃度が高くなると励起準位にも電子が占有されるようになり、ドーピング濃度,  $N_d > 4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  では、 $N_s(2)$  が  $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  を超えるようになり、**SdH** 測定においても明瞭に観測されるようになる。こうした単一のヘテロ構造により形成された選択ドーピング構造において、3 番目のサブバンド (第 2 励起準位) にまで電子が分布していることが観測されたのは、GaAs/N-AlGaAs 系、InGaAs/N-InAlAs 系などでこれが初めてである。

図 2.2.5 に 77K および室温でのホール測定によって得られた 2DEG 濃度と移動度の関係を、代表的な GaAs/N-AlGaAs 選択ドープ構造の値 [2.2.9-11] とともに示す。この図においては、右側で電子濃度が高く、また上側で移動度が高くなるため、右上ほど電気伝導度が高くなり、素子応用上優位な方向となる。

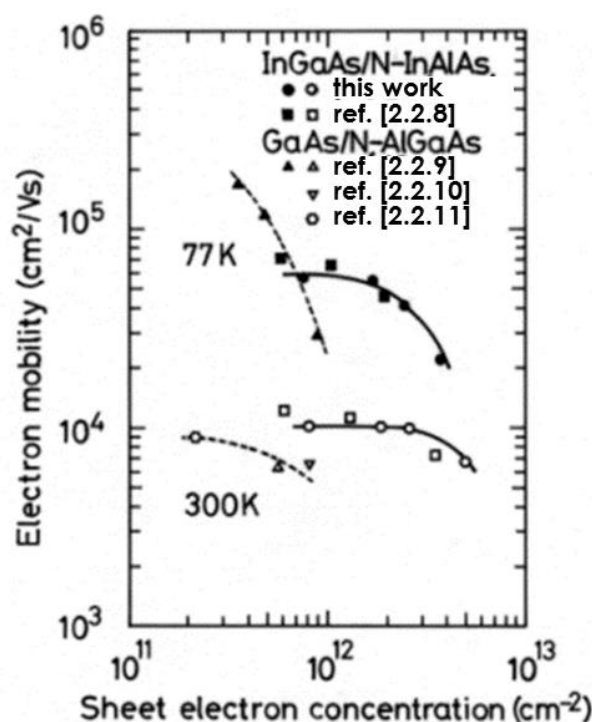


図 2.2.5.  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{N-In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  選択ドープ構造の 2DEG 移動度 (77K (●) および 300K (○)) の 2DEG 濃度,  $N_s$  依存性。■ 及び □ は, Onabe らにより報告されている値 [2.2.8]。また, 比較のため、これまでの GaAs/N-AlGaAs 選択ドープ構造において報告されている値も併せて示す (△, ▲, ▼, 及び ○; 破線) [2.2.1]。Copyright (1987). The Japan Society of Applied Physics.

表 2.2.1. 成長した  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{N-In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  選択ドープ構造のホール測定により得られた 77K と 300K の 2DEG 移動度と濃度, および 4.2K での シュブニコフ・ドハース測定により得られた 2DEG 濃度 [2.2.1]。Copyright (1987). The Japan Society of Applied Physics.

| $N_d$<br>( $\text{cm}^{-3}$ ) | Hall                          |        |                        |                      | SdH                    |                      |                      |                      |
|-------------------------------|-------------------------------|--------|------------------------|----------------------|------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
|                               | $\mu (\text{cm}^2/\text{Vs})$ |        | $N_s (\text{cm}^{-2})$ |                      | $N_s (\text{cm}^{-2})$ |                      |                      |                      |
|                               | 300K                          | 77K    | 300K                   | 77K                  | $N_s$                  | $N_s(0)$             | $N_s(1)$             | $N_s(2)$             |
| $1 \times 10^{17}$            | 10,000                        | 57,000 | $8.1 \times 10^{11}$   | $7.5 \times 10^{11}$ | $6.0 \times 10^{11}$   | $4.6 \times 10^{11}$ | $1.4 \times 10^{11}$ | —                    |
| $3 \times 10^{17}$            | 10,000                        | 55,000 | $1.9 \times 10^{12}$   | $1.7 \times 10^{12}$ | $1.2 \times 10^{12}$   | $9.7 \times 10^{11}$ | $1.9 \times 10^{11}$ | —                    |
| $1 \times 10^{18}$            | 9,900                         | 41,000 | $2.6 \times 10^{12}$   | $2.4 \times 10^{12}$ | $1.7 \times 10^{12}$   | $1.4 \times 10^{12}$ | $3.4 \times 10^{11}$ | —                    |
| $5 \times 10^{18}$            | 6,700                         | 22,000 | $5.0 \times 10^{12}$   | $3.7 \times 10^{12}$ | $3.5 \times 10^{12}$   | $2.5 \times 10^{12}$ | $7.8 \times 10^{11}$ | $1.4 \times 10^{11}$ |

InGaAs 系の場合、高い **2DEG** 濃度,  $N_s$  (室温で  $5.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ , 77K で  $3.7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ) においても移動度の低下は少なく、高い値を保っている (室温で  $6,700 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ , 77K で  $22,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ )。また、同じ移動度で比較すると、InGaAs 系の **2DEG** 濃度,  $N_s$  は GaAs 系の値に比べて 4 倍程度大きくなっている。特に 300K においては、**2DEG** 濃度と移動度のいずれにおいても GaAs 系の値を上回っており、優れた特性を有していることは明らかである。これら測定結果を表 2.1. にまとめて示す。

以上、InGaAs/N-InAlAs 選択ドープ構造における **2DEG** 濃度について、理論計算および実験により検討した。これまでの GaAs/N-AlGaAs 選択ドープ構造との比較において、伝導帯不連続が大きくなり **2DEG** 濃度が大幅に改善することを示した。また、**2DEG** 濃度の増加に対する移動度の低下が少なく、特に室温領域では高い移動度を保ったまま **2DEG** 濃度を高くできることを示し、この材料系を用いた選択ドープ構造の優位性を明らかにした。

## 2-3 GaAsSb 混晶の成長

InP に格子整合した GaAsSb 混晶は、図 2.1.2 に示したようにバンドギャップが 0.8 eV 付近にあり、波長 1.5  $\mu\text{m}$  帯の通信用の光デバイス材料として期待される。また、InGaAs 混晶や InAlAs 混晶とのヘテロ接合により、**Type II 型** [2.3.1, 2] など多様なエネルギー構造が形成できる可能性がある [2.3.3]。そのため、新しい機能を有するデバイスとしても期待される。しかし、**MBE** [2.3.2, 4-7] や **MOCVD** [2.3.8, 9] で数例の報告があるものの V 族である As-Sb の組成制御方法や結晶特性と成長条件との関係などに関する報告はほとんどない。

本節では、GaAsSb 及び AlAsSb 混晶の **MBE** 成長に関して、V 族 (As-Sb) の組成制御方法について述べ、混和性ギャップ内にある InP に格子整合した組成の結晶が形成できることを示す。また基礎的な結晶特性として、X 線回折 (X-ray diffraction : 以下 **XRD**)、フォトルミネッセンス (Photoluminescence : 以下 **PL**) による組成揺らぎ (混晶揺らぎ) など結晶性について検討するとともに、ノンドープでの残留キャリア濃度と移動度など電氣的な特性と成長条件 (V/III 比、成長温度) との関係 [2.3.10] について示す。また、GaSb では V 族サイトに入りアクセプタとして働く Si の GaAsSb へのドーピングについて検討した結果を示す。GaAsSb 成長においては、Si は両極性不純物となり、成長温度が低い場合には III 族サイトに取り込まれドナーとなり N 型伝導を示すが、高温成長では V 族サイトに取り込まれアクセプタになり P 型伝導を示すこと [2.3.11] を明らかにする。

### (1) GaAsSb, AlAsSb 混晶の As-Sb 制御と結晶特性

MBE 成長には以下の条件を用いた。Ga, As<sub>4</sub>, Sb<sub>4</sub> の金属ソースによる通常の MBE 法を用いた。V 族分子線のクラッキングはしていない。成長温度はパイロメータによりモニタし、470°C から 590°C の範囲で変えた。成長速度は約 1.3 μm/h で、V/III 比は、 $(J_{As4} + J_{Sb4})/J_{Ga(Al)}$  ( $J_{As4}$ ,  $J_{Sb4}$ ,  $J_{Ga(Al)}$  は基板位置でイオンゲージにより測定した Ga, Al, Sb, As の分子線強度) により算出し、4 から 10 の範囲で変えた。また、GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> の組成は、(004) 近傍の XRD ロッキングカーブ測定により Vegard 則を仮定して求めた。

図 2.3.1 に成長温度 500°C で、As 圧を一定として成長した GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> および AlAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> の Sb 組成, x と Ga また Al に対する Sb<sub>4</sub> の分子線強度比 (Sb<sub>4</sub>/Ga, Sb<sub>4</sub>/Al) との関係を示す。組成, x は、分子線強度比  $\langle \text{Sb}_4/\text{Ga} \rangle$  または  $\langle \text{Sb}_4/\text{Al} \rangle$  の増加に対して直線的大きくなっている。これは、この成長温度では Sb が As より優先的に結晶中に取り込まれることを示している。Sb の昇華温度は As よりも高く、また、Sb の昇華エネルギー (sublimation energy: 49.4 kcal/mole) が As (sublimation energy: 36.6 kcal/mole) に比

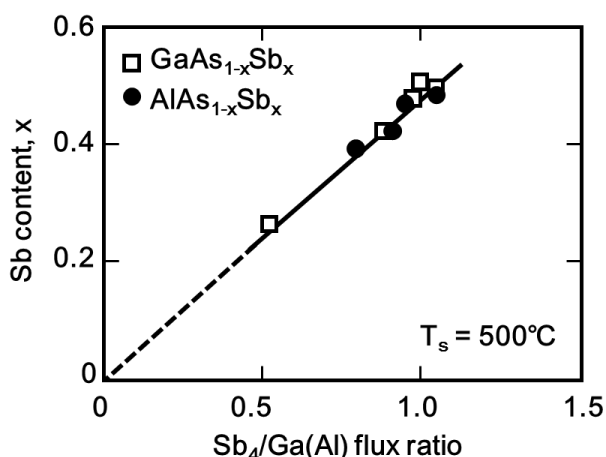


図 2.3.1. Sb<sub>4</sub>/Ga(Al) ビームフラックス比に対する GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> および AlAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> の Sb 組成, x の変化。Sb 組成, x は XRD により結晶層の格子定数を測定、ベガード則を仮定して求めている。成長温度一定 (500°C) 下では、Sb<sub>4</sub>/Ga ビームフラックス比に対して Sb 組成, x は直線的に変化している。

べて大きく、基板表面での滞在時間が As より長いためと考えられる。したがって、GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>, AlAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> の組成制御は III 族の分子線強度に対する Sb の分子強度比 ( $J_{Sb4}/J_{Ga}$ ,  $J_{Sb4}/J_{Al}$ ) により制御できることになる。

図 2.3.2 に GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> の Sb 組成, x の成長温度依存性を示す。As の分子線強度は一定としている。図に見られるように 560°C 以下の温度領域では、組成に大きな変化はなくほぼ一定となるが、それ以上の温度で Sb 組成が減少している。Sb の再蒸発によるものと考えられる。これら成長温度と III 族の分子線強度に対する Sb の分子強度比とを制御することにより、少なくとも XRD で評価される平均的な Sb 組成, x は、混和性ギャップ (600°C で 0.3~0.7) 内にある組成域においても成長可能であることがわかる。

成長した GaAsSb 混晶の光学特性を 4.2K での PL により評価した。図 2.3.3

に PL の半値幅 (full width at half maximum: 以下 **FWHM**) と発光ピーク強度の V/III 比依存性を示す。成長温度は 500°C とし、InP との格子整合条件である Sb 組成,  $x$  が 0.5 になるよう  $J_{Sb}/J_{Ga}$  を一定とし、As 圧を変えることにより V/III 比を変えた。PL-FWHM は、V/III 比を減少させるにともない狭くなり、

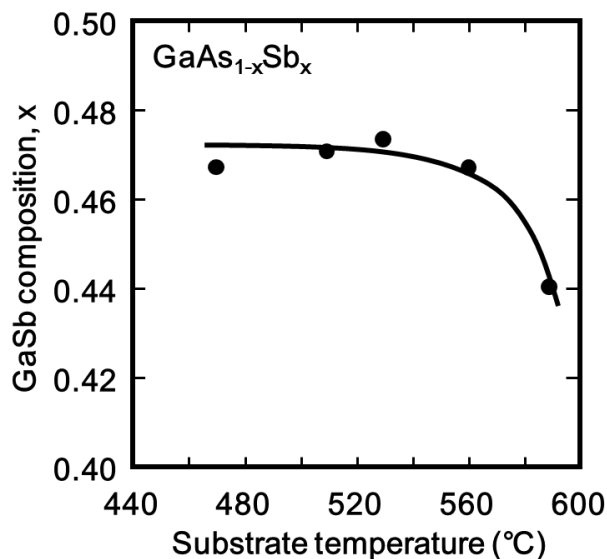


図 2.3.2.  $GaAs_{1-x}Sb_x$  の Sb 組成,  $x$  の成長温度による変化. Ga, As, Sb の分子線強度はすべて一定で成長している. 560°C より高温側で Sb 組成が減少する [2.3.10].

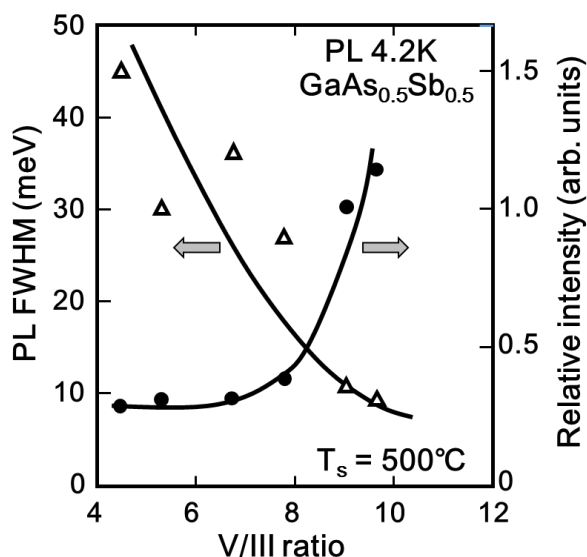


図 2.3.3.  $GaAsSb$  からの PL 半値幅 (FWHM) と発光強度の V/III 比依存性. 成長温度は, 500°C 一定. As 圧を変えることにより V/III 比を変化させた. V/III 比を減少させるにともない FWHM は狭くなり, 発光強度は強くなる傾向を示した [2.3.10].

特に 8 以下で 10 meV 以下の狭い **FWHM** となる。また発光強度はこれにともない単調に強くなる傾向を示した。高 **V/III** 比側での **PL** 特性の低下は、格子間などに As が過剰に取り込まれたことによるものと考えられる。

図 2.3.4 に **PL** の **FWHM** と発光強度の成長温度依存性を示す。**V/III** 比は 8 で一定とした。発光強度は成長温度に対し大きな変化は見られない。一方、

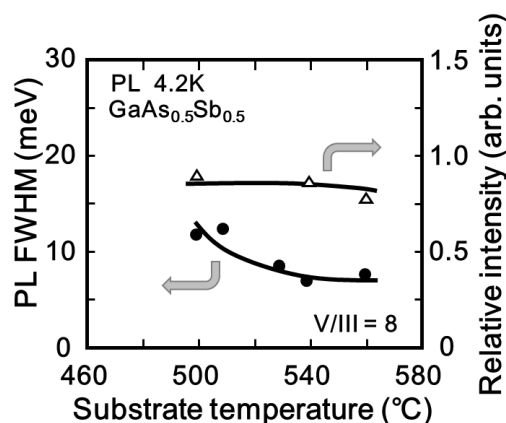


図 2.3.4. **PL** 半値幅 (**FWHM**) と発光強度の成長温度依存性。発光強度は成長温度に対する変化は小さい。**FWHM** は成長温度を高めるにしたがい狭くなる [2.3.10].

**FWHM** は成長温度を高めるにしたがい、徐々に減少する傾向にあり、540°C の成長温度において 7.2 meV と既報告の中で最も狭い **FWHM** (7.6 meV) [2.3.6] と同等の値が得られた。組成揺らぎの少ない結晶が形成できていることを示している。

図 2.3.5 に 4.2K の **PL** スペクトルを示す。0.78 eV 付近にバンド端発光と考えられるシャープな主ピークが観測されている。また、この主ピークより

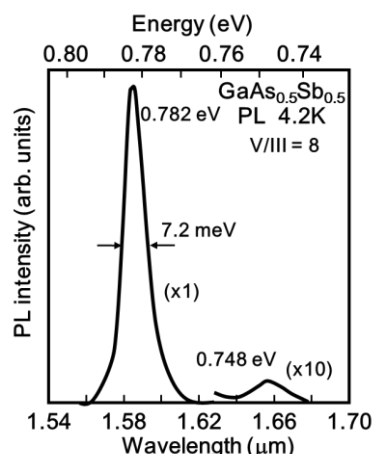


図 2.3.5. 540°C で成長した **GaAsSb** の 4.2K の **PL** スペクトル。1.586 μm (0.782 eV) にバンド端からの発光が観測されている。半値幅は 7.2 meV である [2.3.10].

34 meV 低エネルギー側に弱いブロードな発光も観測されている。同様の発光は、他機関からも報告されており、GaSbに見られるような残留不純物準位を介した発光 [2.3.12]と考えられる。

図 2.3.6 に V/III 比 8 で成長した GaAsSb 混晶の残留キャリア濃度と移動度の成長温度依存性を示す。キャリアの移動度と濃度の評価にはホール測定を用いた。GaAsSb は成長温度が 470℃から 530℃の範囲ではノンドープで n 型となり、540℃以上の成長温度では高抵抗を示した。この結果は、ノンドープで p 型

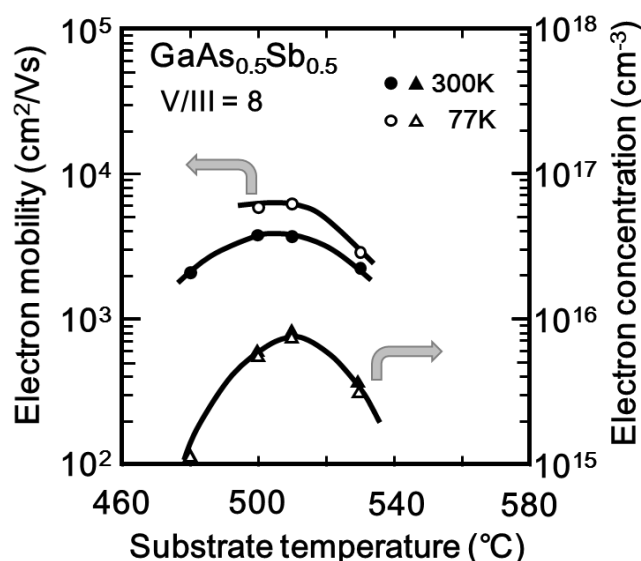


図 2.3.6. GaAsSb 混晶の残留キャリア濃度と移動度の成長温度依存性. 最も高い移動度は, 300K で  $3,800 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (電子濃度は  $8.3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ), また 77K で  $6,200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (電子濃度は  $8.0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) であった [2.3.10].

となるこれまでの報告 [2.3.6, 7, 9]と異なる。この原因については明らかでない。GaSb の成長においては、Ga が V 族サイトに入る「Ga のアンチサイト」がアクセプタなることが報告されている [2.3.9]。今回用いた条件では、アクセプ起因となる Ga のアンチサイトが減ったためとも考えられる。電子移動度と濃度とも成長温度 510℃で最大となった。最も高い移動度は、300K で  $3,800 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (電子濃度は  $8.3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ )、また 77K で  $6,200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (電子濃度は  $8.0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) であった。これら実験により、基本的な結晶の組成制御条件と特性との関係が明らかにした。

## (2) GaAsSb への Si ドーピング

次に GaAsSb への Si ドーピングに関して示す。GaAs や InGaAs などの As 系結晶では、IV 族原子である Si は III 族サイトに入りドナーとなるが、GaSb など Sb 系結晶では Si は V 族サイトに入りアクセプタになることが報告されて

いる[2.3.13, 14]。GaAsSb へのドーピングに関しては、これまで Sn ドープにより N 型伝導を示し[2.3.15]、Si ドープにより P 型伝導を示す[2.3.7, 16]ことが報告されている。ここでは GaAs と GaSb の比がほぼ 1:1 となる InP に格子整合した GaAsSb 混晶への Si ドーピングについて、特に成長温度との関係について検討した結果を示す。

成長は、Si のドーピング濃度を  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  となるよう設定し、V/III 比 8 一定下で成長温度のみを  $440^\circ\text{C}$  から  $560^\circ\text{C}$  の範囲で変化させた。図 2.3.7 に Si ドープ GaAsSb のキャリア濃度と移動度の成長温度依存性を示す。キャリア濃度と移動度はホール測定により評価している。高温側においては、これまでの報告と同様に Si は V 族サイトに入り P 型伝導を示すが、成長温度を下げるにしたがってキャリア濃度は低下し、 $500^\circ\text{C} \sim 520^\circ\text{C}$  の温度領域において、 $2 \times$

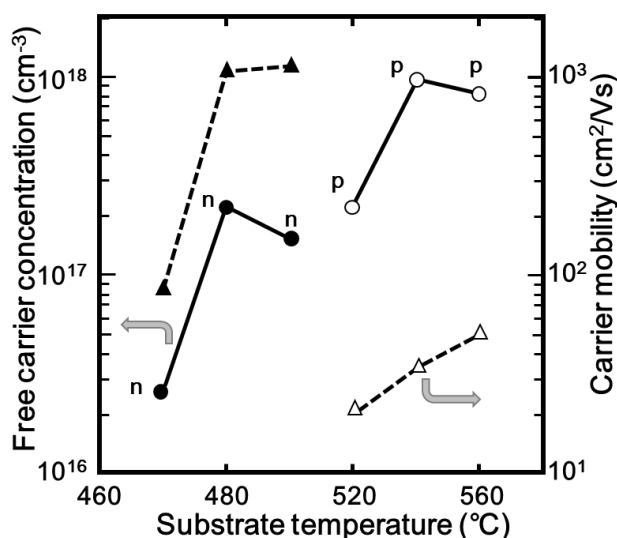


図 2.3.7. SiドープGaAsSbのキャリア濃度と移動度の成長温度依存性. 高温側においては, Siは V族サイトに入り P型伝導を示すが, 成長温度を下げるにしたがってキャリア濃度は低下し,  $500^\circ\text{C} \sim 520^\circ\text{C}$  の温度領域において N型伝導へと反転している [2.3.11].

$10^{17} \text{ cm}^{-3}$  の P 型伝導から  $\sim 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  の N 型伝導へと変化し、低温領域では GaAs などの As 系結晶と同様に Si が III 族サイトにも取り込まれていることがわかる。今後、成長条件、特に V/III 比 (As 圧) などの最適化により、さらに活性化率を高めた N 型伝導を形成できる可能性がある。

以上、GaAsSb の MBE 成長における V 族の組成制御について示すとともに、XRD で測定される平均的な組成評価においては、混和性ギャップ内においても成長可能であることを示した。また、GaAsSb 混晶の基本的な結晶特性について示し、通常 As 系結晶で N 型ドーパントとして用いられる IV 族原子の Si が GaAsSb 混晶では両極性となり、これが成長温度で制御できることを示した。

## 2-4 GaAsSb/InAlAs ヘテロ構造の作製

前節で示した GaAsSb や AlAsSb 混晶は、InGaAs や InAlAs 混晶とのヘテロ接合により **Type II** 型のバンド構造の他、伝導帯側にのみ大きな障壁をもつ構造や逆に価電子帯側にのみ大きな障壁をもつ構造が形成できる可能性がある。これまでに、著者を含めた研究グループにおいて、この InP に格子整合した InGaAs/GaAsSb ヘテロ構造を **MBE** により形成し、界面の急峻性をオージェ電子分光 (Auger Electron Spectroscopy: 以下 **AES**) 法により評価する [2.4.1] とともに単一障壁構造のダイオードを作製し thermionic emission 電流の温度依存性を測定することによりこのヘテロ構造の伝導帯不連続などエネルギーバンド構造を明らかにしてきた [2.4.2]。InGaAs/GaAsSb ヘテロ構造においては、界面の組成揺らぎ (組成遷移領域) がこれまでの GaAs/AlGaAs や InGaAs/InAlAs と同等 (2~3 分子層以下) であること、エネルギーバンド構造は図 2.4.1 に示すように **Type II** 型であり、室温での伝導帯の不連続,  $\Delta E_c$  が  $0.47 \pm 0.02$  eV になること、またバンドギャップの重なりに相当する InGaAs の伝導帯下端と GaAsSb の価電子帯上端間のエネルギー,  $E_s$  が  $0.25 \pm 0.03$  eV になることを明らかにしてきている。

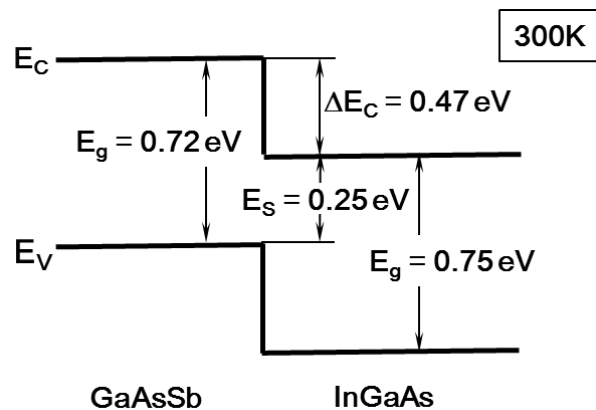


図2.4.1. InGaAs/GaAsSb のバンド構造 [2.4.2]. バンド構造は **Type II** 型であり、室温での伝導帯の不連続,  $\Delta E_c$  は  $0.47 \pm 0.02$  eV. バンドギャップの重なりに相当する InGaAs の伝導帯下端と GaAsSb の価電子帯上端との間のエネルギー,  $E_s$  は  $0.25 \pm 0.03$  eV.

本節では InP に格子整合した GaAsSb 混晶と InAlAs 混晶とのヘテロ構造について示す。GaAsSb/InAlAs 量子井戸 (Quantum Well: 以下 **QW**) 構造を **MBE** により形成し、GaAsSb 量子井戸からの **PL** 発光エネルギーを測定することによりこのヘテロ構造のバンド不連続値について示す。また、GaAsSb 量子井戸からの **PL** 発光スペクトルの半値幅および断面の **TEM** 観察によりこのヘテロ界面における構造揺らぎ (井戸幅の揺らぎ) について示す [2.4.3]。

図 2.4.2 に成長した GaAsSb/InAlAs **QW** 構造の模式的を示す。試料は (a), (b) の 2 種類を成長した。試料 (a) は、厚さの異なる 4 つの GaAsSb **QW** を 50 nm の InAlAs 層で挟んだ構造で、**QW** の厚さは 0.9 nm (3 分子層 (Mon-Layer: 以下 ML), 1.8 nm (6 ML), 4.4 nm (15 ML) および 10.3 nm (35 ML) である。ま

た、試料 (b) も同じく 4 つの GaAsSb QW を 50 nm の InAlAs で挟んだ構造で、QW 厚さは 0.6 nm (2 ML), 1.5 nm (5 ML), 2.9 nm (10 ML) および 5.9 nm (20 ML) である。(b) の試料では、さらに 100 nm の GaAsSb 厚膜をバルク特性の評価のために成長した。なお、いずれの試料においても 700 nm の厚さの InAlAs をバッファ層として基板の直上に成長している。それぞれの試料の層厚は、別に成長した GaAsSb, InAlAs 厚膜より求めた成長速度をもとに成長時間

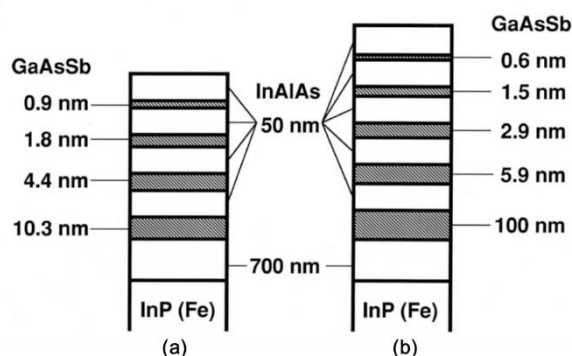


図 2.4.2. GaAsSb/InAlAs QW構造の模式図 (a), (b). 試料 (a) は、厚さの異なる 4 つの GaAsSb QW を 50 nm の InAlAs 層で挟んだ構造. QW の厚さは 0.9 nm (3 ML), 1.8 nm (6 ML), 4.4 nm (15 ML) および 10.3 nm (35 ML). 試料 (b) は 4 つの GaAsSb QW を 50 nm の InAlAs で挟んだ構造. QW の厚さは 0.6 nm (2 ML), 1.5 nm (5 ML), 2.9 nm (10 ML) および 5.9 nm (20 ML). また (b) の試料では、バルク特性の評価のために 100 nm の GaAsSb 厚膜を成長している [2.4.3].

により設定した。用いた成長速度は GaAsSb が  $0.5 \mu\text{m/h}$  で、InAlAs が  $1.2 \mu\text{m/h}$  である。成長温度は InAlAs からの In の再蒸発を考慮してすべて  $500^\circ\text{C}$  で成長し、パイロメータによりモニタした。蒸発源には、In, Ga, Al, As<sub>4</sub>, Sb<sub>4</sub> の金属ソースを用い、V 族のクラッキングは行っていない。V/III 比は GaAsSb 成長には 7 を用い、また InAlAs 成長には 9 を用いた。GaAsSb 成長時と InAlAs 成長時で As 圧が異なるが、2 本の As セルを準備し、ヘテロ界面で As 分子線強度を成長中断することなく変えている。得られた結晶の InP 基板との格子不整,  $\Delta a/a$  ( $\Delta a = a_{\text{epi}} - a_{\text{sub}}$ ) は X 線回折 (X-ray Diffraction: 以下 **XRD**) により測定し、GaAsSb, InAlAs それぞれ  $+1.8 \times 10^{-3}$ ,  $-2.1 \times 10^{-3}$  であった。PL 測定は 4.2 K の温度で行い、励起には波長 647.1 nm の Kr<sup>+</sup> レーザを用いた。また、界面は (110) 断面を **TEM** 観察により評価した。

(a), (b) 2 つの試料から得られた 4.2 K での PL スペクトルを図 2.4.3 (a), (b) に示す。形成した QW の数に対応して試料 (a) からは 4 つ発光が得られた。これら発光は短波長側より、それぞれ 0.9 nm 厚さ, 1.8 nm 厚さ, 4.4 nm 厚さ, 10.3 nm 厚さの GaAsSb-QW からの発光に対応している。同様に試料 (b) においても形成した QW の数に対応して 5 つの発光が得られており、これらは短波長側

より、0.6 nm 厚さ、1.5 nm 厚さ、2.9 nm 厚さ、5.9 nm 厚さ、100 nm 厚さの GaAsSb-QW からの発光に対応している。QW の厚さに対応して発光ピークはシフトしており、特に厚さ 0.6 nm (2 ML) の QW からの発光が明瞭に観測されていることは、大きな揺らぎのない比較的良好なヘテロ界面が形成されていることを示唆している。なお、GaAsSb のバルク特性確認のために形成した厚さ

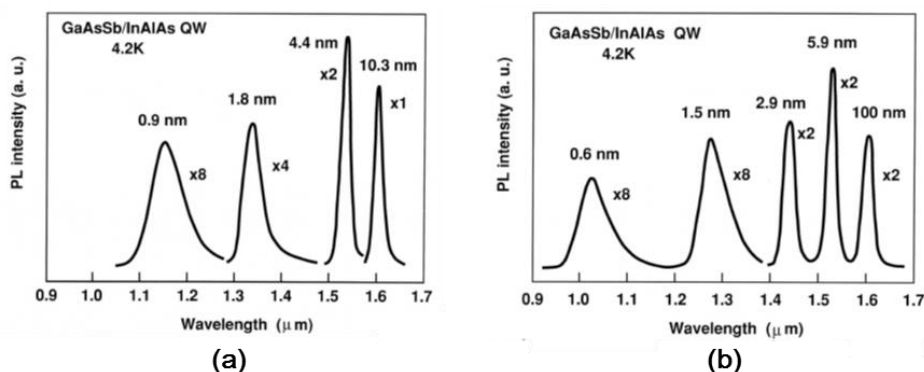


図 2.4.3. 試料(a), (b) から得られた4.2KでのPLスペクトル. 形成したQWの数に対応して試料(a)からは4つ発光が得られ, 短波長側より, 0.9 nm厚さ, 1.8 nm厚さ, 4.4 nm厚さ, 10.3 nm厚さのGaAsSb-QWからの発光に対応している. 試料(b)からはQWの数に対応して5つの発光が得られており, 短波長側より, 0.6 nm厚さ, 1.5 nm厚さ, 2.9 nm厚さ, 5.9 nm厚さ, 100 nm厚さのGaAsSb-QWからの発光に対応している [2.4.3].

100 nm の GaAsSb 層からは、波長 1.606 μm (0.772 eV) に 9.8 meV の発光半値幅 (FWHM)で、また条件確認用に成長した別試料の InAlAs (1 μm 厚さ)からは、波長 0.794 μm (1.563 eV) に 19.8 meV の FWHM で、それぞれ PL 発光が観測されている。

図 2.4.4 に PL 発光エネルギーの GaAsSb-QW 厚さ依存性を示す。2つの実線は、GaAsSb/InAlAs ヘテロ構造の価電子帯の不連続,  $\Delta E_v$ , をパラメータに、QW の基底準位間の遷移エネルギーを計算した値である。計算は 1 次元の有限ポテンシャルモデルを用い、電子、正孔の有効質量には以下の値を用いた。GaAsSb の電子および正孔の有効質量は、GaAs ( $0.067m_0$  (電子),  $0.5m_0$ (正孔)) と GaSb ( $0.043m_0$ (電子),  $0.5m_0$ (正孔))のそれぞれの値を Vegard 則を仮定して組成に応じて内挿して、 $0.055m_0$  (電子) と  $0.5m_0$  (正孔) の値を用いた。また、InAlAs の電子と正孔の有効質量には、Olego らの報告を基に  $0.075m_0$  (電子) [2.4.4]を、また Wagner らの報告を基に  $0.8m_0$  (正孔) [2.4.5]を用いた。図に見られるように得られた発光エネルギーは価電子帯の不連続,  $\Delta E_v$ を 0.78 eV とした場合によく一致している。GaAsSb, InAlAs からはそれぞれ 0.772 eV (1.606 μm), 1.563 eV (0.794 μm) に発光ピークが観測されている。これをバンド間遷移による発光とすると、このヘテロ構造のバンド構造は、図 2.4.5 に示すように

Type I 型のバンド構造となり、価電子帯の不連続,  $\Delta E_v$  が 0.78 eV と正孔に対して大きな障壁を形成するのに対し、伝導帯の不連続,  $\Delta E_c$ , は 10 meV と電子に対してはかなり小さな障壁になっていることを示している。

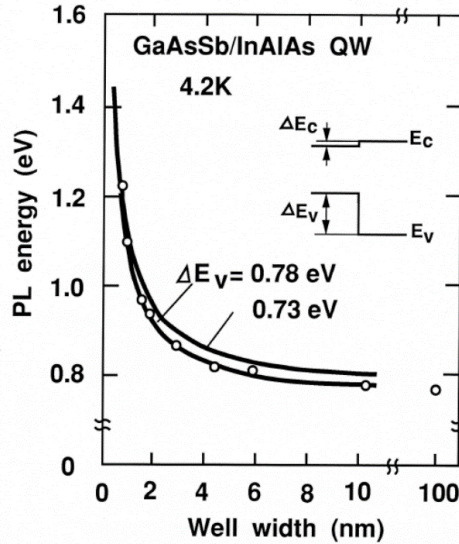


図 2.4.4. PL 発光エネルギーの GaAsSb-QW の厚さ依存性. 2 つの実線は, GaAsSb/InAlAs ヘテロ構造の価電子帯の不連続,  $\Delta E_v$ , を 0.78 eV, 0.73 eV として計算した値. 価電子帯の不連続,  $\Delta E_v$  が 0.78 eV の場合に実験値とよく一致している [2.4.3].

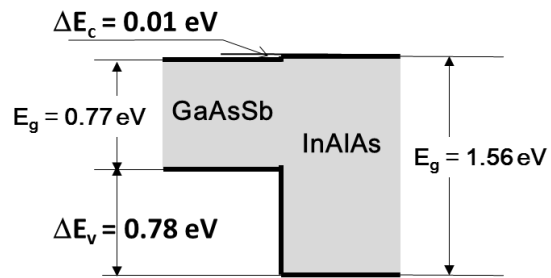


図 2.4.5. GaAsSb/InAlAs ヘテロ構造のバンド構造. Type I 型のバンド構造となり, 価電子帯の不連続,  $\Delta E_v$  が 0.78 eV と正孔に対して大きな障壁を形成するのに対し, 伝導帯の不連続,  $\Delta E_c$ , は 0.01 eV と電子に対しては小さな障壁になっている [2.4.3].

図 2.4.6 に GaAsSb QW から得られた PL 半値幅 (FWHM) の井戸幅依存性を示す。破線は 100 nm の厚さの GaAsSb から得られた FWHM (9.8 meV) を示している。また、実線は成長した GaAsSb QW の厚さに 1 分子層 (1ML) の厚さ揺らぎがある場合のエネルギー揺らぎ ( $\Delta E = (dE/dL_z)\Delta L_z$ ,  $\Delta L_z$  は 1ML の厚さ, 0.3 nm) を計算した値を示している。井戸幅が狭い場合、発光スペクトルの広がり、主に井戸の厚さ揺らぎに起因していることが知られている [2.4.6, 7]。試料 (a), (b) の狭い井戸 (< 3 nm) から得られた発光スペクトルの FWHM は、上記計算値と非常によく一致しており、井戸幅の揺らぎは 1 ML 程度とこれまでの InGaAs/InAlAs QW と同等のヘテロ界面 [2.4.8] が形成できていることを示している。なお、井戸幅が広い領域での FWHM の広がり、GaAsSb 混晶の組成揺らぎ等によると考えらえる。

図 2.4.7 に、試料 (b) の (110) 断面の TEM 像を示す。設計した厚さにほぼ一致した平坦性良い GaAsSb のコントラストが明瞭に観察されており、GaAsSb/InAlAs QW 構造が良好に形成できていることがわかる。また、0.6 nm (2ML) といった薄い GaAsSb 層からもその構造形成を示す明瞭なコントラスト

が観測されており、数分子層に及ぶような大きな乱れがないことがわかる。図 2.4.8 に、5.9 nm 厚さの GaAsSb QW 構造の TEM 高倍像を示す。下側の GaAsSb/InAlAs 界面は TEM 試料作製時の損傷によりコントラストが不鮮明で

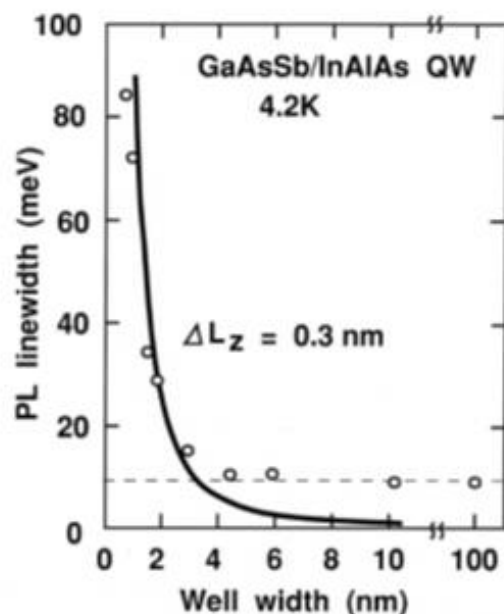


図 2.4.6. GaAsSb QW から得られた PL 半値幅 (FWHM) の井戸幅依存性. 破線は 100 nm の厚さの GaAsSb から得られた FWHM (9.8 meV). 実線は GaAsSb QW の厚さに 1 ML 相当の厚さ揺らぎがある場合のエネルギー揺らぎ ( $\Delta E = (\Delta E / \Delta L_z) \Delta L_z$ ,  $\Delta L_z$  は 1 ML の厚さ, 0.3 nm) を計算した値. 狭い井戸 (< 3 nm) から得られた発光スペクトルの FWHM は, 上記計算値とよく一致しており, 井戸幅の揺らぎは 1 ML 程度であることを示している[2.4.3].

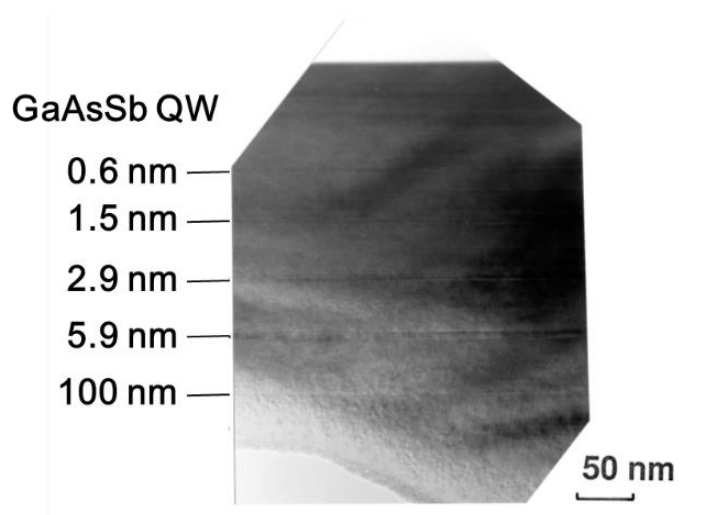


図 2.4.7. 試料 (b) の (110) 断面の TEM 像 [2.4.3].

あるが、上側の InAlAs/GaAsSb 界面は 1 ML 程度の揺らぎの平坦性の良いコントラストとなっている。井戸幅の厚さ揺らぎは、先に示した PL での評価に一致して概ね 1 ML 程度と考えられる。

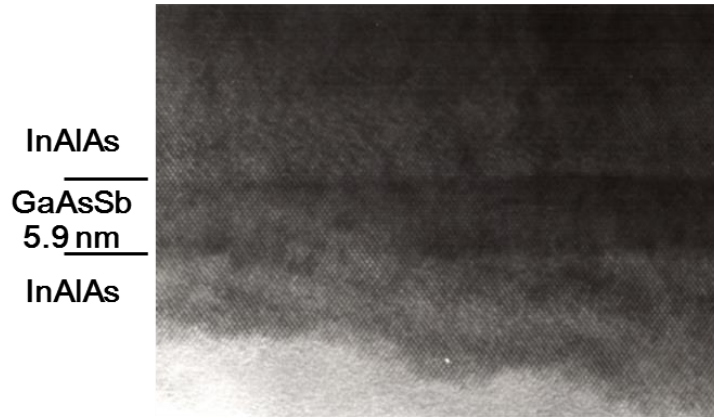


図 2.4.8. 試料 (b) の厚さ 5.9 nm の GaAsSb QW の (110) 断面の TEM 像 [2.4.3].

以上、InP に格子整合した GaAsSb/InAlAs QW を MBE により成長し、そのバンド構造と界面の平坦性 (井戸の厚さ揺らぎ) を PL と TEM により評価した。価電子帯の不連続,  $\Delta E_v$ , 及び伝導帯の不連続,  $\Delta E_c$  は、それぞれ 0.78 eV, 0.01 eV であり、価電子帯側のみに大きなポテンシャル障壁をもつ **Type I** 構造になることを確認した。また、その界面での揺らぎはこれまでの InGaAs/InAlAs ヘテロ構造と同じく、1 ML 程度であることを確認した。

## 2-5 InGaAs/AlAsSb ヘテロ構造の作製

本節では、InP に格子整合した InGaAs/AlAsSb 量子井戸 (QW) 構造を MBE により作製し、AlAsSb のバンドギャップを評価するとともにこのヘテロ構造のバンド不連続を評価した結果 [2.5.1] について示す。AlAsSb の  $\Gamma$  点での直接遷移バンドギャップは、電気反射率測定 (Electroreflectance: 以下 **ER**) により評価し、120K において  $2.45 \pm 0.03$  eV の値を得た。また、InGaAs/AlAsSb QW 構造からの PL 発光エネルギーの井戸幅依存性より、このヘテロ接合が **Type II** (staggered) 型のバンド構造となり、伝導

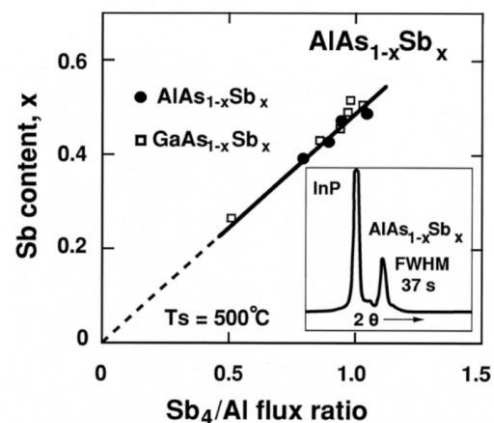


図 2.5.1.  $\text{AlAs}_{1-y}\text{Sb}_y$  の Sb 組成,  $x$  と Al に対する  $\text{Sb}_4$  の分子線強度比 ( $\text{Sb}_4/\text{Al}$ ) との関係.

帯帯、価電子帯の不連続 ( $\Delta E_C, \Delta E_V$ ) がそれぞれ  $1.74 \pm 0.04$  eV、 $0.07 \pm 0.02$  eV になることを明らかにした。また、InGaAs/AlAsSb QW 構造の断面の **TEM** 観察より、このヘテロ界面が分子層レベルで平坦に形成できていること確認した。さらに、このヘテロ構造を用いて二重障壁構造の AlAsSb/InGaAs/AlAsSb 共鳴トンネルバリア (Resonant Tunneling Barrier: 以下 **RTB**) を作製し、負性抵抗のピーク電流とバレー電流の比 ( $J_p/J_v$ ) が 300K で 15 に達する高い値を得た [2.5.2]。

InGaAs/AlAsSb QW は、InP 基板の (001) 面上に **MBE** により成長した。ソース材料には Ga, In, Al, As, Sb の金属ソースを用い、V 族分子線はクラッキングせず As<sub>4</sub>, Sb<sub>4</sub> 分子線を照射している。AlAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> の Sb 組成, x は、2.3 節で示した GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> の場合と同様に Sb<sub>4</sub> に対する Al の分子線強度比により制御した。図 2.5.1 に AlAs<sub>1-y</sub>Sb<sub>y</sub> の Sb 組成, x と Al に対する Sb<sub>4</sub> の分子線強度比 (Sb<sub>4</sub>/Al) との関係を示す。Sb 組成は Sb<sub>4</sub>/Al 分子線強度比に対して直線的に大きくなっている。成長温度は InGaAs からの In の再蒸発を考慮してすべて 500°C で成長し、パイロメータによりモニタした。成長速度は、InGaAs が 0.7  $\mu\text{m/h}$ 、AlAsSb が 0.7  $\mu\text{m/h}$  とした。それぞれの混晶の InP との格子不整 ( $\Delta a/a$ ) は、XRD により評価し、InGaAs, AlAsSb はそれぞれ  $-5.0 \times 10^{-4}$ 、 $-7.5 \times 10^{-4}$  であった。なお、図 2.5.1 の挿入図に示すように、AlAsSb 混晶の **XRD** ロッキングカーブの半値幅は 37s であった。InGaAs の半値幅 (30s) あり、非混和性に伴う組成揺らぎは少ないものと考えられる。

図 2.5.2 に 120K で測定した AlAsSb の ER スペクトル (実線) を示す。試料は、InP 基板上に AlAsSb を約 1 $\mu\text{m}$  の厚さ成長し、酸化防止のため表面に InGaAs

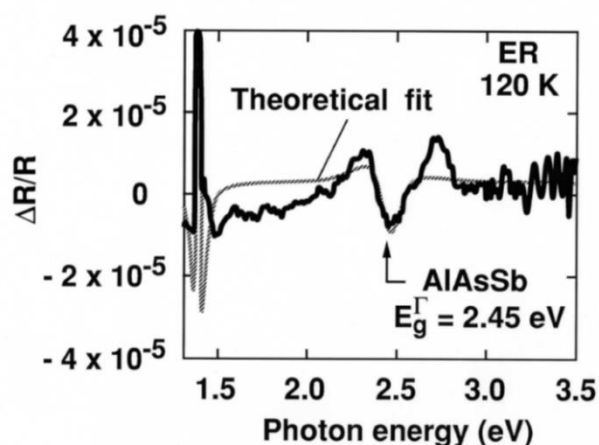


図 2.5.2. 120Kで測定したAlAsSbのERスペクトル(実線). 2つの吸収変調が観測されており、低エネルギー側はInPのバンドギャップに対応し、高エネルギー側はAlAsSbの $\Gamma$ 点での直接遷移バンドギャップに対応している。理論曲線への最小自乗近似によるフィッティングにより、InPのバンドギャップは1.39 eV、またAlAsSbの直接遷移バンドギャップは2.45 eV [2.5.1]。

を 5 nm 成長している。測定には電界変調に電子線を用いる **EBER** 法 [2.5.3]を用いた。2つの吸収変調が観測されている。低エネルギー側は InP のバンドギャップに対応した吸収変調であり、また高エネルギー側は AlAsSb の $\Gamma$ 点における直接遷移バンドギャップに対応した変調である。破線で示すように得られたスペクトルの理論曲線への最小自乗近似によるフィッティングにより、InP のバンドギャップとして 1.39 eV、また AlAsSb の直接遷移バンドギャップとして 2.45 eV が得られた。得られた InP のバンドギャップ値 (1.39 eV) は、以下に示す Varshni のバンドギャップの温度依存性を示す式 [2.5.4] により算出される値：1.402 eV (120K) とほぼ一致している。また、AlAsSb においては得られた値：2.45 eV は、以下に示す Vechen の非線形性を考慮した式により算出される値：2.47 eV (120K) にほぼ一致している。

InP バンドギャップの温度依存性 (Varshni の式) [2.5.5]:

$$E_g(T) = E_g(0) - \alpha T^2/(\beta + T)$$

ここで、 $E_g(0)$ は絶対 0 度での InP のバンドギャップで、1.421 eV を用いた。また、 $\alpha, \beta$ は InP の温度係数および特性温度で、それぞれ  $3.63 \times 10^{-4}$ , 162 [2.5.4, 5, 6]を用いた。

AlAsSb 混晶のバンドギャップの組成依存性 (Vechen の式) [2.5.7]:

$$E_g^{\Gamma} \text{AlAsSb} (y) = y E_g^{\Gamma} \text{AlSb} + (1-y) E_g^{\Gamma} \text{AlAs} + y(y-1) C_{\text{AlAsSb}}$$

ここで、 $E_g^{\Gamma} \text{AlAsSb}$ ,  $E_g^{\Gamma} \text{AlSb}$ ,  $E_g^{\Gamma} \text{AlAs}$  は、それぞれ AlAsSb 混晶, AlSb, AlAs の $\Gamma$ 点での直接遷移バンドギャップで、120K での温度を考慮して、 $E_g^{\Gamma} \text{AlSb}$  に 2.37 eV、 $E_g^{\Gamma} \text{AlAs}$  に 3.01 eV を用いた (AlSb, AlAs の 300K でのバンドギャップは、それぞれ 2.30 eV, 2.95 eV, また温度係数、特性温度は AlSb で 4.97, 213 を使い、AlAs で 6.0, 408 を用いて [2.5.6] Varshni の式により算出した)。また  $C_{\text{AlAsSb}}$  は AlAsSb の bowing パラメータで、1.06 [2.5.8]を用いた。なお、 $\text{AlAs}_{(1-y)}\text{Sb}_y$  の InP に格子整合した組成は、Vegard 則を仮定して  $y = 0.44$  とした。図 2.5.3 に上式により算出される AlAsSb 混晶のバンドギャップの組成変化と **EBER** により測定した値を示す。上記パラメータを用いて算出される値にほぼ一致

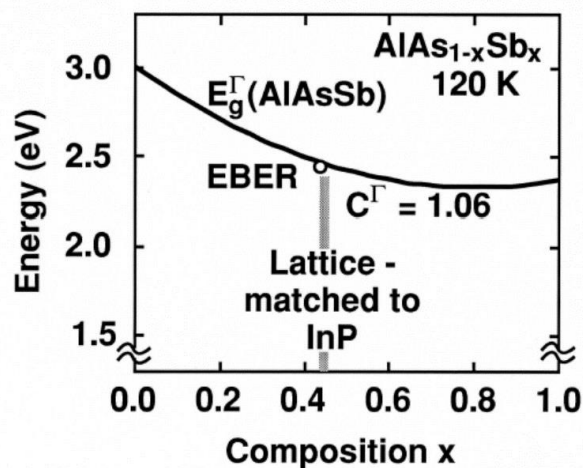


図 2.5.3.  $\text{AlAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  混晶のバンドギャップの組成,  $x$  に対する変化 (計算値) と EBER 測定により得られた InP に格子整合した AlAsSb のバンドギャップ (○プロット) [2.5.1].

した測定値が得られている。

次に InGaAs/AlAsSb ヘテロ構造について示す。図 2.5.4 に 4.1 nm 厚さの InGaAs を AlAsSb で挟んだ構造の (100) 断面の TEM 高分解能像を示す。基板は図中下側にあり、成長は上に向かって行っている。図に見られるように組成コントラストが明瞭に現れており、ヘテロ界面が鮮明に観察できる。数分子層に及ぶような大きな乱れはなく、平坦的な良好なヘテロ界面が形成されている。特

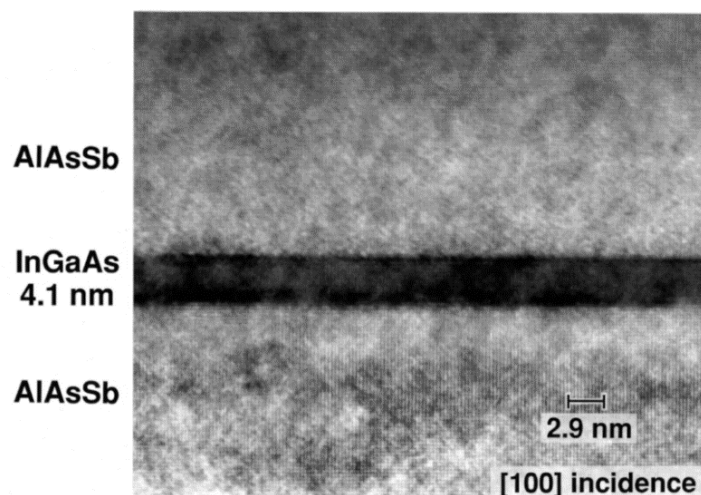


図 2.5.4. AlAsSb/InGaAs (4.1 nm) QW の (100) 断面の TEM 高分解能像. [2.5.1].

に AlAsSb/InGaAs から成る上側の界面は直線的で、1 ML 程度の揺らぎしか観察されていない。一方、InGaAs/AlAsSb から成る下側の界面では、上側界面に比べ凹凸の度合いがやや増しており、Sb 原子の拡散などを伴った界面揺らぎが生じているものと推察される。

図 2.5.5 に成長した InGaAs/AlAsSb QW 構造と 4.2K での PL 測定により得られたスペクトルを示す。試料は InGaAs 井戸幅を 2.1 nm から 20 nm まで変えて、(a), (c), (e) の 3 種類の試料を作製している。試料 (a) は、600 nm 厚さの InGaAs をバッファ層に用い、井戸幅が 2.1 nm, 4.1 nm, 5.9 nm の 3 つの InGaAs QW を 50 nm 厚さの AlAsSb 層を介して積層している。この試料から得られた PL スペクトルは (b) に示すように、4 つの発光が観測されている。発光ピーク波長 (発光エネルギー) は、1.008  $\mu\text{m}$  (1.230 eV), 1.272  $\mu\text{m}$  (0.975 eV), 1.424  $\mu\text{m}$  (0.871 eV), 及び 1.553  $\mu\text{m}$  (0.798 eV) であり、短波長側の発光よりそれぞれ 2.1 nm 厚さの InGaAs QW, 4.1 nm 厚さの InGaAs QW, 5.9 nm 厚さの InGaAs QW 及び InGaAs バッファ層のからの発光に対応している。また試料 (c) 及び (e) は、それぞれ 10 nm 厚さの InGaAs QW と 20 nm 厚さの InGaAs QW を 600 nm 厚さの InAlAs バッファ層を用いて成長している。(d), (f) に見られるように、10 nm 厚さの QW からは 1.570  $\mu\text{m}$  (0.790 eV) に、また 20 nm

厚さの QW からは  $1.636 \mu\text{m}$  ( $0.758 \text{ eV}$ ) に発光ピークが観測されている。一方、試料(a) の InGaAs バッファ層からは  $1.553 \mu\text{m}$  ( $0.798 \text{ eV}$ ) に発光ピーク観察され、また  $1 \mu\text{m}$  厚さのモニタ用に別途成長した InGaAs 混晶 (単膜) からは (f) の挿入図に示すように  $1.552 \mu\text{m}$  ( $0.799 \text{ eV}$ ) にシャープな発光ピークが観測されている。これに対し、試料 (e) の  $20 \text{ nm}$  厚さの InGaAs QW からの発光は、 $1.636 \mu\text{m}$  ( $0.758 \text{ eV}$ ) は、InGaAs 混晶の発光より低いエネルギーでの発光となっている。このことは、(f) の挿入図に示すように InGaAs/AlAsSb ヘテロ構造が、Type II 型 (staggered) のバンド構造になっていることを示している。

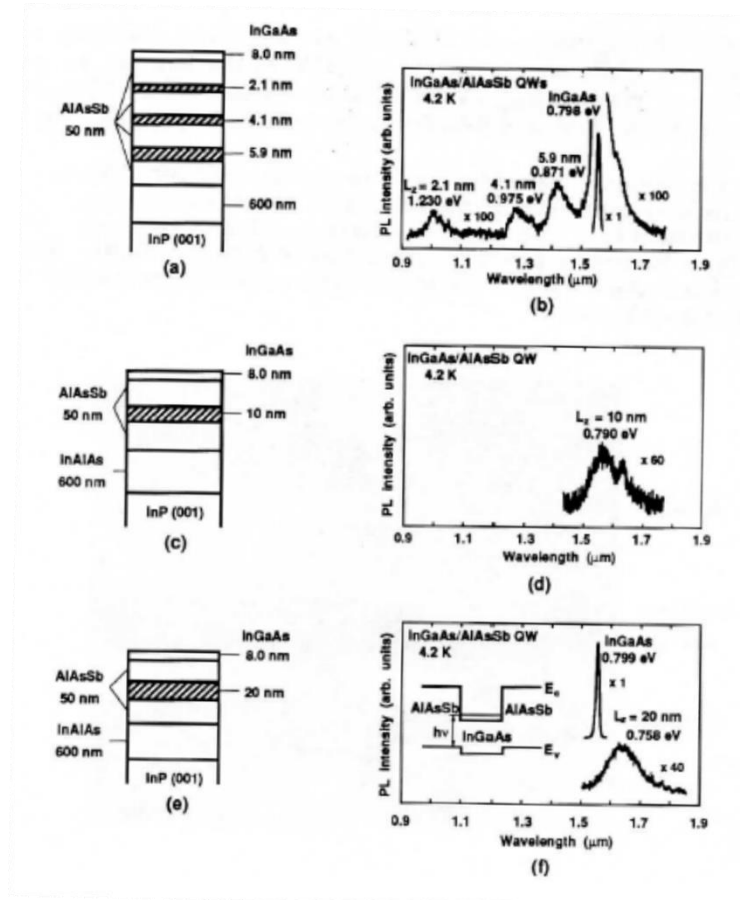


図 2.5.5. 成長した InGaAs/AlAsSb QW 構造 (a), (c), (e) と 4.2 K の PL スペクトル (b), (d), (f).  $20 \text{ nm}$  の QW (e) からは InGaAs 混晶の発光 ( $0.799 \text{ eV}$ ) より低いエネルギーの発光 ( $0.758 \text{ eV}$ ) が得られている。(f) の挿入図に示すように、Type II 型 (staggered) のバンド構造になっていることを示している [2.5.1].

図 2.5.6 に先に示した InGaAs/AlAsSb QW 試料(a), (c), (e) から得られた PL ピークエネルギーの井戸幅依存性を示す。実線は、InGaAs QW の伝導帯の基底準位と AlAsSb の価電子帯上端の間での遷移エネルギーを伝導帯の不連続値、 $\Delta E_c$  をパラメータに計算した値である。計算には有効質量近似を用い、伝導帯側での非放物線性 (nonparabolicity) を考慮した。InGaAs 中の電子の有効質量は

0.040 $m_0$  [2.5.9] を、また AlAsSb には 0.125 $m_0$  を用いた。この値は、 $\Gamma$ 点での AlAs の有効質量 (0.15 $m_0$ ) と AlSb 中での有効質量 (0.12 $m_0$ )において、Vegard を仮定して組成比に対応したバンドギャップを基に算出した。同図に示される

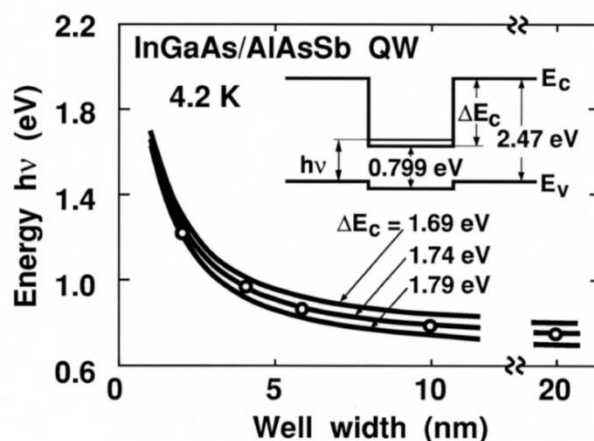


図 2.5.6. PLピークエネルギーの井戸幅依存性. 実線は、InGaAs QWの伝導帯の基底準位とAlAsSbの価電子带上端の間での遷移エネルギーを伝導帯の不連続値、 $\Delta E_c$ をパラメータに計算した値. 測定された発光エネルギーは、伝導帯の不連続、 $\Delta E_c$ を 1.74 eV として計算した値によく一致している [2.5.1].

ように、得られた値は、伝導帯の不連続、 $\Delta E_c$ を 1.74 eV として計算した値によく一致している。1  $\mu\text{m}$  厚さの InGaAs 混晶からは 4.2 Kにおいて、0.799 eV に発光ピークが観測されている。また、AlAsSb では、120 K での EBER 測定により、直接遷移バンドギャップとして 2.45 eV が得られている。バンドギャップの温度依存性を考慮すると (AlAs, AlSb の温度係数、特性温度を基に Vegard 則を仮定して AlAsSb の値を算出、これを用いて Varshni の式により 4.2 K でのバンドギャップを算出) 4.2 K においては 2.47 eV となる。これらの値を用いるとこのヘテロ構造のバンド構造は、図 2.5.7 に示すように伝導帯の不連続、 $\Delta E_c$ が 1.74 eV、価電子帯の不連続、 $\Delta E_v$ が 0.07 eV の Type II 型 (staggered) のバンド構造となる。

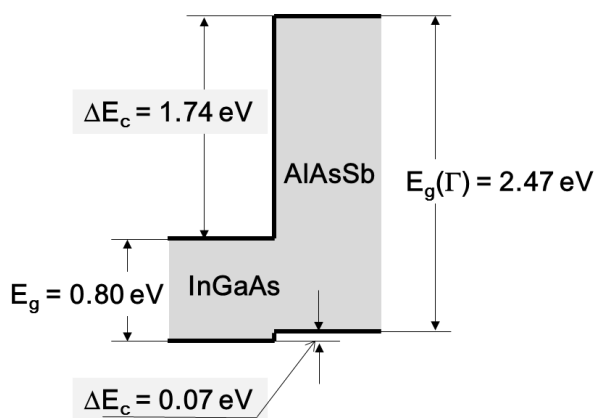


図 2.5.7. InGaAs/AlAsSb ヘテロ構造のバンド構造. 伝導帯の不連続、 $\Delta E_c$ が 1.74 eV, 価電子帯の不連続、 $\Delta E_v$ が 0.07 eV の Type II 型 (staggered) のバンド構造となる [2.5.1].

上に示した伝導帯側に大きな障壁をもつこの InGaAs/AlAsSb ヘテロ構造を用いて共鳴トンネルバリア構造 (Resonant Tunneling Barrier: **RTB**) を作製し、その最も重要な特性となる負性抵抗のピーク電流とバレー電流の比 ( $J_p/J_v$ ) を評価した。図 2.5.8 (a) に **RTB** 構造のバンドダイアグラムを示す。**RTB** 構造は、厚さ 4.4 nm の InGaAs 層を 2.9 nm の 2 つの AlAsSb バリア層で挟んだ構造である。(001) InP 基板上に成長温度 500°C にて成長している。上端と下端に

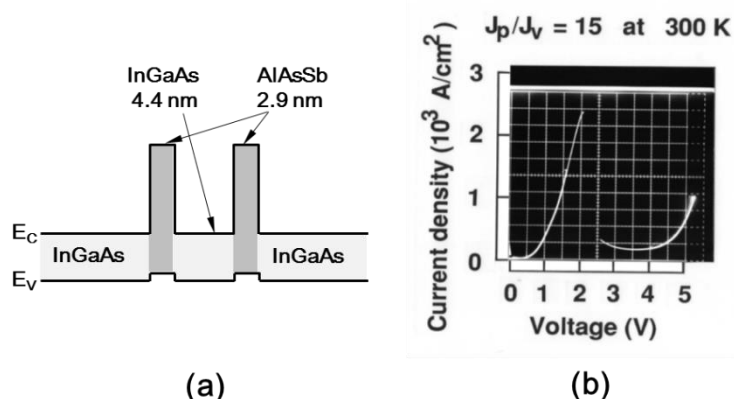


図 2.5.8. (a) 成長した InGaAs/AlAsSb RTB のバンド構造と (b) 300K で得られた I-V 特性. 負性抵抗のピーク電流密度/バレー電流密度の比 ( $J_p/J_v$  比) は 15 に達している [2.5.1].

は Si ドープによる n-InGaAs のコンタクト層を介して Cr/Au 電極をノンアロイで形成している。同図 (b) に 300K で得られた I-V 特性を示す。負性抵抗のピーク電流密度/バレー電流密度の比 ( $J_p/J_v$  比) は 15 と非常に高い値が得られた。これまで格子整合した材料系では、 $J_p/J_v$  が 300K で 10 を超える報告はない。また、この値は、これまで最高であった歪系 InGaAs/AlAs [2.5.10] と同等の値であり、**RTB** 材料としての有効性を示す結果である。最近、**RTB** を用いたテラヘルツ発振器が報告されている。この材料により更なる性能向上が期待される。

以上、InP に格子整合した InGaAs/InAlAs **QW** 構造を作製し、AlAsSb のバンドギャップを測定するとともに InGaAs/AlAsSb ヘテロ構造のバンド構造を評価した。AlAsSb の  $\Gamma$  点での直接遷移バンドギャップは ER 測定により、120K において 2.45 eV であることを明らかにした。また、InGaAs/AlAsSb **QW** からの **PL** ピークエネルギーの井戸幅依存性より、このヘテロ構造が **Type II** 型 (staggered) のバンド構造となり、伝導帯、価電子帯の不連続 ( $\Delta E_c, \Delta E_v$ ) がそれぞれ 1.74 eV、0.07 eV と伝導帯側のみ高い障壁を持つことを明らかにした。また、InGaAs/AlAsSb **QW** の断面の高分解能 **TEM** 観察より、分子層レベルで平坦な界面が形成できていることを確認した。さらに、AlAsSb (2.9 nm)/InGaAs (4.4 nm)/AlAsSb (2.9 nm) からなる **RTB** 構造を作製し、300K での負性抵抗に

において  $J_p/J_v$  が 15 に達する高い値を得た。これは格子整合系では最も高い値であり、**RTB** 材料としての有効性を示した。

## 2-6 まとめ

本章では、デバイスへの応用上重要な **InP** に格子整合した混晶に注目し、代表的な **InGaAs/InAlAs** ヘテロ構造に加え、新たに **MBE** 法を用いて **GaAsSb** 混晶と **AlAsSb** 混晶の成長技術を開発し、これらを用いたヘテロ構造の形成とバンド不連続について示した。

2-2 節では、**InGaAs/InAlAs** ヘテロ構造に関して、選択ドープ構造を **MBE** により成長し、**HEMT** 応用において重要な指標である **2DEG** 特性について、理論計算および実験により検討した。**InGaAs/N-InAlAs** 選択ドープ構造では、これまでの **GaAs/N-AlGaAs** 選択ドープ構造に比べて、伝導帯の不連続が大きくなり約 4 倍も高い **2DEG** 濃度が形成できることを示した。また、**2DEG** 濃度の増加に対する移動度の低下が少なく、特に室温領域では高い移動度を保ったまま **2DEG** 濃度を高くできることを実験的に示し、この材料系を用いた選択ドープ構造の優位性を明らかにした。

2-3 節では、**InP** に格子整合した **GaAsSb** の **MBE** 成長とその結晶特性について示した。**GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>** 混晶や **AlAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>** 混晶の組成,  $x$  は、III 族 (**Ga**, **Al**) の分子線強度( $J_{Ga}$ ,  $J_{Al}$ ) に対する V 族である **Sb** の分子強度 ( $J_{Sb4}$ ) の比 ( $J_{Sb4}/J_{Ga}$ ,  $J_{Sb4}/J_{Al}$ ) により制御でき、混和性ギャップ内にある **InP** に格子整合する組成域も制御可能であることを示した。また、**GaAsSb** 混晶の結晶特性について、ノンドープで N 型となり残留キャリア濃度  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$  オーダーであること、低温での **PL** 半値幅が 7.2 meV と混晶揺らぎの少ない結晶が形成できることを示した。さらに、N 型ドーパントとして用いられる **Si** が **GaAsSb** 混晶では両極性となり、これが成長温度で制御できることを示した。

2-4 節では、**GaAsSb/InAlAs** ヘテロ構造について示した。**GaAsSb/InAlAs** 量子井戸 (Quantum Well: 以下 **QW**) 構造を **MBE** により成長し、**PL** 発光エネルギーの井戸幅依存性より、このヘテロ構造が **Type I** 型であり、伝導帯の不連続 ( $\Delta E_c$ )、価電子帯の不連続 ( $\Delta E_v$ ) がそれぞれ 0.01 eV, 0.78 eV となり、価電子帯側のみに大きな障壁をもつ構造になっていることを示した。また、ヘテロ界面の揺らぎを **PL** の発光半値幅、および断面の **TEM** 観察により評価し、界面揺らぎがこれまでの **GaAs/AlGaAs** や **InGaAs/InAlAs** ヘテロ構造と同程度に平坦性のいい界面が形成できていることを示した。

2-5 節では **InGaAs/AlAsSb** ヘテロ構造について示した。**InGaAs/InAlAs QW** 構造を作製し、**AlAsSb** のバンドギャップを測定するとともに **InGaAs/AlAsSb** ヘ

テロ構造のバンド構造を評価した。AlAsSb の $\Gamma$ 点での直接遷移バンドギャップは **ER** 測定により、120K において 2.45 eV であることを明らかにした。また、InGaAs/AlAsSb QW からの **PL** ピークエネルギーの井戸幅依存性より、このヘテロ構造が **Type II** 型 (staggered) のバンド構造となり、伝導帯、価電子帯の不連続 ( $\Delta E_c$ ,  $\Delta E_v$ ) がそれぞれ 1.74 eV、0.07 eV と伝導帯側のみに高い障壁を持つことを示した。また、InGaAs/AlAsSb QW の断面の高分解能 **TEM** 観察より、分子層レベルで平坦な界面が形成できていることを確認した。さらに、AlAsSb (2.9 nm)/InGaAs (4.4 nm)/AlAsSb (2.9 nm) からなる **RTB** 構造を作製し、300K での負性抵抗において  $J_p/J_v$  が 15 に達する高い値を得た。これは格子整合系では最も高い値であり、**RTB** 材料としての有効性を示した。

本章にて明らかにした InP に格子整合した InGaAs, InAlAs, GaAsSb, AlAsSb の混晶のバンドダイアグラムを図 2.6.1 にまとめて示す。

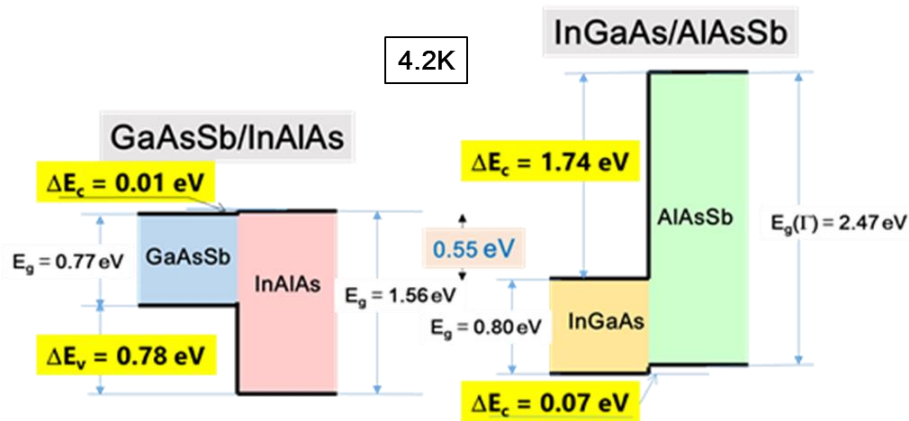


図 2.6.1.本章にて明らかにしたInPに格子整合したInGaAs, InAlAs, GaAsSb, AlAsSbの混晶のバンドダイアグラム.

## 第2章の参考文献

### ■ 2-1 節

- [2.1.1] S. Hiyamizu, T. Fujii, S. Muto, T. Inata, Y. Nakata, Y. Sugiyama, S. Sasa, J. Cryst. Growth, 81, p. 349 (1987).
- [2.1.2] J. D. Oliver, Jr., L. F. Eastman, J. Electron. Mater., **9**, p. 693 (1980).
- [2.1.3] T. P. Pearsall, R. Bisaro, P. Merenda, H. Laurencin, R. Ansel, J. C. Portal, C. Houlbert, M. Quillec, Proc. 7th Intern. Symp. on GaAs and Related Compounds, St Louis, MO, 1978, Inst. Phys. Conf. Ser. **45**, Ed. C. M. Wolfe (Inst. Phys., London-Bristol) p. 94 (1979)
- [2.1.4] D. Olego, T. Y. Chang, E. Silberg, E. A. Caridi, A. Pinczuk, Appl. Phys. Lett., **41**, p. 476 (1982).
- [2.1.5] S. Bandy, C. Nishimoto, S. Hyder, C. Hooper, Appl. Phys. Lett, **38**, p. 817 (1981).
- [2.1.6] K. Y. Chang, A. Y. Cho, S. B. Christman, T. P. Pearsall, J. E. Rowe, Appl. Phys. Lett., **40**, p. 423 (1982).
- [2.1.7] D. F. Welch, G. W. Wicks, L. F. Eastman, J. Appl. Phys., **55**, p. 3176 (1984).
- [2.1.8] T. Fujii, T. Inata, K. Ishii, S. Hiyamizu, Electron. Lett., **22**, p. 191 (1986).
- [2.1.9] K. H. Hsieh, H. Ohno, G. Wicks, L. F. Eastman, Electron. Lett., **19**, p. 160 (1983).
- [2.1.10] A. R. Calawa, Appl. Phys. Lett., **38**, p. 701 (1981).
- [2.1.11] H. C. Casey, Jr., M. B. Panish, Heterostructure Lasers, Part A (Academic Press, New York), p. 192 (1978).
- [2.1.12] T. W. Hickmott, P. M. Solomon, R. Fischer, H. Morkoc, J. Appl. Phys., **57**, p. 2844 (1985).
- [2.1.13] M. Heiblum, W. I. Wang, L. E. Osterling, V. Deline, J. Appl. Phys., **54**, p. 6751 (1983).
- [2.1.14] S. Hiyamizu, J. saito, K. Nanbu, T. Ishikawa, Jpn. J. Appl. Phys., **22**, p. L609 (1983).
- [2.1.15] H. Kroemer, Proc. IRE, vol. 45, No. 11, p. 1535 (1957).
- [2.1.16] H. Kroemer, Proc. IEEE, vol. 70, No. 1, p. 13, (1982).
- [2.1.17] M. Konagai, K. Takahashi, J. Appl. Phys., **46**, p. 2120 (1975).
- [2.1.18] G. A. Sai-Halasz, R. Tsu, L. Esaki, Appl. Phys. Lett., **30**, p. 651 (1977).
- [2.1.19] H. Sakaki, L. L. Chang, Appl. Phys. Lett., **31**, p. 211 (1977).
- [2.1.20] G. A. Sai-Halasz, L. L. Chang, J. M. Welter, C. A. Chang, Solid State Com., **27**, p. 935 (1978).
- [2.1.21] H. Kroemer, G. Griffiths, Electron Dev. Lett., EDL-4, p. 20 (1983).

- [2.1.22] E. J. Caine, S. Subbana, H. Kroemer, J. L. Merz, A. Y. Cho, Appl. Phys. Lett., p. 1123 (1984).
- [2.1.23] T. Tanoue, H. Sakaki, Appl. Phys. Lett., 41, p. 67 (1982).
- [2.1.24] R. C. Miller, D. A. Kleinman, A. C. Gossard, Phys. Rev, B29, p. 7085 (1984).
- [2.1.25] S. Hiyamizu, S. Sasa, T. Ishikawa, K. Kondo, H. Ishikawa, Jpn. J. Appl. Phys., 24, p. L431 (1985).
- [2.1.26] T. Baba, T. Mizutani, M. Ogawa, J. Appl. Phys., 59, p. 526 (1986).
- [2.1.27] S. Hiyamizu, J. Saito, K. Nanbu, T. Ishikawa, Jpn. J. Appl. Phys., 22, p. L609 (1983).
- [2.1.28] J. Saito, K. Nanbu, T. Ishikawa, S. Hiyamizu, Jpn. J. Appl. Phys., 22, p. L79 (1983).
- [2.1.29] S. Hiyamizu, T. Mimura, J. Cryst. Growth, 56, p. 455 (1982).
- [2.1.30] K. Y. Chen, A. Y. Cho, K. Y. Cheng, T. P. Pearsall, P. O'connor, P. A. Garbinski, IEEE Electron. Dev. Lett., EDL-3, p. 152 (1982).
- [2.1.31] K. Y. Cheng, A. Y. Cho, J. Appl. Phys., 53, p. 4411 (1982).
- [2.1.32] Y. Sugiyama, T. Inata, T. Fujii, Y. Nakata, S. Muto, S. Hiyamizu, Jpn. J. Appl. Phys., 25, p. L648 (1986).
- [2.1.33] K. Onabe, Y. Tashiro, Y. Ide, Surf. Sci., 174, p. 401 (1986).
- [2.1.34] Y. Nakata, S. Sasa, Y. Sugiyama, T. Fujii, S. Hiyamizu, Jpn. J. Appl. Phys., 26, p. L59 (1987).
- [2.1.35] K. Kakimoto, T. Katoda, Jpn. J. Appl. Phys., 24, p. 1022 (1985).
- [2.1.36] K. Onabe, Jpn. J. Appl. Phys, 21, p. L323 (1982).
- [2.1.37] W. A. Sunder, R. L. Barns, T. Y. Kometani, J. M. Parsey, W. A. Laudise, J. Cryst. Growth, 78, p. 9 (1986).
- [2.1.38] T. M. Rossi, D. A. Collins, D. H. Chow, T. C. McGill, Appl. Phys. Lett., 57, p. 2256 (1990).
- [2.1.39] B. Tadayon, C. S. Kyono, M. Fatemi, S. Tadayon, J. Mittereder, J. Vac. Sci. Technol., B13, p. 1 (1995).
- [2.1.40] Y. Nakata, Y. Sugiyama, O. Ueda, S. Sasa, T. Fujii, E. Miyauchi, J. Cryst. Growth, 99, p. 311 (1990).
- [2.1.41] A. Sandhu, T. Fujii, Y. Nakata, S. Sugiyama, E. Miyauchi, Electron. Lett., 24, p. 451 (1988).
- [2.1.42] T. Fujii, Y. Nakata, Y. Sugiyama, Y. Toda, E. Miyauchi, Electron. Lett., 24, p. 1210 (1988).
- [2.1.43] Y. Sugiyama, T. Fujii, Y. Nakata, S. Muto, E. Miyauchi, J. Cryst. Growth, 95, p. 363 (1989).

- [2.1.44] Y. Nakata, Y. Sugiyama, O. Ueda, S. Sasa, T. Fujii, E. Miyauchi, J. Cryst. Growth, 99, p. 311 (1990).
- [2.1.45] Y. Nakata, Y. Sugiyama, T. Inata, O. Ueda, S. Sasa, S. Muto, T. Fujii, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 198, 1990 Mat. Res. Soc, p. 289 (1991).
- [2.1.46] T. Inata, S. Muto, Y. Nakata, T. Fujii, Jpn. J. Appl. Phys., 29, p. L1382 (1990).

## ■ 2-2 節

- [2.2.1] Y. Nakata, S. Sasa, Y. Sugiyama, T. Fujii, S. Hiyamizu, Jpn. J. Appl. Phys., 26, P. L59 (1987).
- [2.2.2] G. Bastard, Phys. Rev. B, 24, p. 5693 (1981).
- [2.2.3] T. P. Pearsall, R. Bisaro, P. Merenda, H. Laurencin, R. Ansel, J. C. Portal, C. Houlbert, M. Quillec, Proc. 7th Intern. Symp. on GaAs and Related Compounds, St Louis, MO, 1978, Inst. Phys. Conf. Ser. 45, Ed. C. M. Wolfe (Inst. Phys., London-Bristol) p. 94 (1979)
- [2.2.4] D. Olego, T. Y. Chang, E. Silberg, E. A. Caridi, A. Pinczuk, Appl. Phys. Lett., 41, p. 476 (1982).
- [2.2.5] D. F. Welch, G. W. Wicks, L. F. Eastman, J. Appl. Phys., 55, p. 3176 (1984).
- [2.2.6] C.K. Williams, T. H. Glisson, M. A. Littlejohn, J. R. Hauser, IEEE Electron. Dev. Lett., EDL-4, p. 161 (1983).
- [2.2.7] Y. Sugiyama, T. Inata, T. Fujii, Y. Nakata, S. Muto, S. Hiyamizu, Jpn. J. Appl. Phys., 25, p. L648 (1986).
- [2.2.8] K. Onabe, Y. Tashiro, Y. Ide, Surf. Sci., 174, p. 401 (1986).
- [2.2.9] S. Hiyamizu, J. Saito, K. Nanbu, T. Ishikawa, Jpn. J. Appl. Phys., 22, p. L609 (1983).
- [2.2.10] S. Hiyamizu, J. Saito, K. Kondo, T. Yamamoto, T. Ishikawa, S. Sasa, J. Vac. Sci. Technol. B 2, p. 585 (1985)
- [2.2.11] M. Heiblen, E. E. Mendez, F. Stern, Appl. Phys. Lett., 44, p. 1064 (1984).

## ■ 2-3 節

- [2.3.1] G. A. Sai-Halasz, R. Tsu, L. Esaki, Appl. Phys. Lett., 30, p. 651 (1977).
- [2.3.2] H. Sakaki, L. L. Chang, Appl. Phys. Lett., 31, p. 211 (1977).
- [2.3.3] T. Tanoue, H. Sakaki, Appl. Phys. Lett., 41, p. 67 (1982).
- [2.3.4] C. A. Chang, R. Rudeke, L. L. Chang, G. A. Sai-Halasz, Appl. Phys. Lett., 31, p. 759 (1977).
- [2.3.5] T. Waho, S. Ogawa, S. Murayama, Jpn. J. Appl. Phys. 16, p.1875 (1977).
- [2.3.6] J. Klem, D. Huang, H. Morkoç, Y. E. Ihm, N. Ohtsuka, Appl. Phys. Lett., 50, p.

1364 (1987).

[2.3.7] T. D. McLean, T. M. Kerr, D. I. Westwood, J. D. Grange, I. J. Murgatroyd, Proc. 11th Intern. Symp. on GaAs and Related Compounds, Biarritz, 1984. Inst. Phys. Conf. Ser., 74, p. 145 (1985).

[2.3.8] M. J. Cherng, G. B. Stringfellow, R. M. Cohen, Appl. Phys. Lett., 44, p. 677 (1984).

[2.3.9] M. J. Cherng, Y. T. Cherng, H. R. Jen, P. Harper, R. M. Cohen, G. B. Stringfellow, J. Electron. Mater., 15, p. 79 (1986).

[2.3.10] Y. Nakata, T. Fujii, A. Sandhu, Y. Sugiyama, E. Miyauchi, J. Cryst. Growth, 91, p. 655 (1988).

[2.3.11] A. Sandhu, T. Fujii, Y. Nakata, S. Sugiyama, E. Miyauchi, Electron. Lett., 24, p. 451 (1988).

[2.3.12] C. Benoit á la Guillaume, P. Lavallard, Phys. Rev. B5, p. 4900 (1972).

[2.3.13] T. M. Rossi, D. A. Collins, D. H. Chow, T. C. McGill, Appl. Phys. Lett., 57, p. 2256 (1990).

[2.3.14] B. Tadayon, C. S. Kyono, M. Fatemi, S. Tadayon, J. Mittereder, J. Vac. Sci. Technol., B13, p. 1 (1995).

[2.3.15] C. A. Chang, R. Ludeke, L. L. Chang, L. Esaki, Appl. Phys. Lett., 31, p. 759 (1977).

[2.3.16] J. Klem, D. Huang, H. Morkoç, Y. E. Ihm, N. Ohtsuka, Proc., SPIE, 796, p. 18 (1987).

## ■ 2-4 節

[2.4.1] T. Fujii, Y. Nakata, Y. Sugiyama, Y. Toda, E. Miyauchi, Electron. Lett., 24, p. 1210 (1988).

[2.4.2] Y. Sugiyama, T. Fujii, Y. Nakata, S. Muto, E. Miyauchi, J. Cryst. Growth, 95, p. 363 (1989).

[2.4.3] Y. Nakata, Y. Sugiyama, O. Ueda, S. Sasa, T. Fujii, E. Miyauchi, J. Cryst. Growth, 99, p. 311 (1990).

[2.4.4] D. Olego, T. Y. Chang, E. Silberg, E. A. Caridi, A. Pinczuk, Appl. Phys. Lett., 41, p. 476 (1982).

[2.4.5] J. Wagner, W. Stoltz, K. Ploog, Phys. Rev. B12 p. 4214 (1985).

[2.4.6] D. F. Welch, G. W. Wicks, L. F. Eastman, Appl. Phys. Lett., 46, p. 991 (1985).

[2.4.7] J. Singh, K. K. Bajaj, J. Appl. Phys., 57, p. 5433 (1985).

[2.4.8] T. Fujii, Y. Nakata, S. Muto, S. Hiyamizu, Jpn. J. Appl. Phys., 25, p. L598 (1986).

## ■ 2-5 節

- [2.5.1] Y. Nakata, Y. Sugiyama, T. Inata, O. Ueda, S. Sasa, S. Muto, T. Fujii, Mat. Res. Symp. Proc. Vol. 198, p. 289 (1990).
- [2.5.2] T. Inata, S. Muto, Y. Nakata, T. Fujii, Jpn. J. Appl. Phys., 29, p. L1382 (1990).
- [2.5.3] M. H. Herman, I. D. Ward, S. E. Butirill, Jr, G. L. Francke, Mat. Res. Symp. Proc., Vol. 144 (1989).
- [2.5.4] W. J. Turner, W. E. Reese, Radiative Recombination in Semiconductors (Dunod, Paris 1965), p. 59 (1965).
- [2.5.5] Varshni, Phycica, 34, p.249 (1967).
- [2.5.6] 永井治夫、安達定雄、福井孝志 「III-V 族半導体混晶」 コロナ社, p. 59 (1988).
- [2.5.7] J. A. Van Vechten, T. K. Bergstresser, Phys. Rev. B, 1, p. 3351 (1970).
- [2.5.8] G. B. Stringfellow, J. Electron. Mat. 10, p. 919 (1981).
- [2.5.9] D. Olego, T. Y. Chang, E. Silberg, E. A. Caridi, A. Pinczuk, Appl. Phys. Lett., **41**, p. 476 (1982).
- [2.5.10] T. Inata, S. Muto, Y. Nakata, S. Sasa, T. Fujii, S. Hiyamizu, Jpn. J. Appl. Phys., 26, p. L1332 (1987).

## 第3章 InP 基板上の混晶半導体の規則化～原子配置制御

### と物性評価

#### 3-1 はじめに

前章において、InGa(Al)As 混晶や Ga(Al)AsSb 混晶など InP 基板に格子整合した混晶を用いることにより、Type II 型のバンド構造の他、伝導帯あるいは価電子帯のみに大きな障壁を形成するなど多様なバンド構造が形成できることを示した。こうした混晶のエネルギーバンド構造やキャリアの輸送特性などは、混晶の平均組成のみにより一意に決まるのではなく、構成原子の配置や配列など混晶の微細な構造により変化する。特に、構成原子がその副格子中で規則的に配列した規則混晶 (ordered alloy) においては、平均組成のみを制御して成長した混晶 (random alloy) とは異なる物性を示すことが実験、理論の双方において報告されている。理論的な検討においては、構成原子の規則的な配列により、原子間のボンド長と角度が変化し、それに伴う電子構造の変調により、バンドギャップが変化するとされている[3.1.1-3]。実験的にも、GaAs の (001) 面上に単分子層ごとに交互に積層した (GaAs)<sub>1</sub>(AlAs)<sub>1</sub> 単分子層超格子 (Mono-layer superlattice: 以下 **MSL**) において、平均組成が同じ通常の Al<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As 混晶に比べ大きなエネルギーギャップになることが報告されている[3.1.4-6]。また、格子不整合のある InAs と GaAs を単分子層ごとに交互に積層した(InAs)<sub>1</sub>(GaAs)<sub>1</sub> **MSL** [3.1.7-9]や GaAs と GaP を交互に積層した (GaAs)<sub>1</sub>(GaP)<sub>1</sub> **MSL** [3.1.10]においても、同じ平均組成を有する通常の混晶 (random alloy) に比べエネルギーギャップが小さくなることが報告されている。また、高速デバイスへの応用上重要となる電子の移動度に関しても、構成原子が副格子中で規則的に配列した規則混晶においては、原子配置の不規則性に伴う合金散乱が抑制され、高い電子移動度が得られることが予測されている。Yao は、通常の In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As 混晶中では、光学フォノン散乱とイオン化不純物散乱の他に合金散乱 [3.1.12-14] があり、特に 100K 以下での電子移動度この合金散乱により支配されている。In と Ga が規則的に配置した(InAs)<sub>1</sub>(GaAs)<sub>1</sub> **MSL** では、この合金散乱が抑制され、通常の In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As 混晶に比べ 1 桁程度高い電子移動度になるとしている [3.1.11]。同様に選択ドープ構造の 2 次元電子ガス (Two Dimensional Electron Gas (以下 **2DEG**)) 移動度についても検討されている[3.1.15-17]。Walukiewicz らは、InGaAs 混晶を電子走行層とする InGaAs/N-InAlAs 選択ドープ (Selectively doped 以下 **SD**) 構造の **2DEG** の散乱移動度を示し、低温領域での移動度は、合金散乱が支配的であり、この合金散乱の抑制により低温域での移動度が大幅

に改善できることを示している[3.1.16]。Takeda らも同様に理論検討を基に、 $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  **MSL** を電子走行層とする **SD** 構造の **2DEG** 移動度を示し、 $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  **MSL** の規則的な原子配置により合金散乱が抑制され、低温領域(4.2K)において、通常の  $\text{InGaAs}/\text{N-InAlAs}$  **SD** 構造に比べて1桁程度高い移動度となることを示されている [3.1.17]。

こうした規則混晶の形成方法として、これまで、分子線結晶成長法 (Molecular Beam Epitaxy: 以下 **MBE**) や有機金属化学気相成長法 (Metal-Organic Chemical Vapor Deposition: 以下 **MOCVD**)により、単分子層相当量を交互に基板面へ供給することによる形成が試みられてきた[3.1.7-9, 18-21]。得られた結晶の X 線回折 (X-Ray Diffraction: 以下 **XRD**) や透過型電子線回折 (Transmission Electron Diffraction: 以下 **TED**) では、構造形成を示す結晶回折像が得られ、部分的な形成は確認されているものの、予測されているような電子移動度の増大についてはこれまでに報告されていない。

一方、金属合金においては、特定条件下で構成原子が規則的に配列する規則構造形成 (以下、規則化) が知られている[3.1.22]。本章の対象となる III-V 族化合物半導体と同じ面心立方格子 (Face-Centered Cubic: 以下 **FCC**) の2元合金において、図 3.1.1 に示すような **CuAu-I** 型、**CuPt** 型、および **Chalcopyrite** 型などの規則構造が確認されており、通常の合金 (random alloy)とは異なる電気

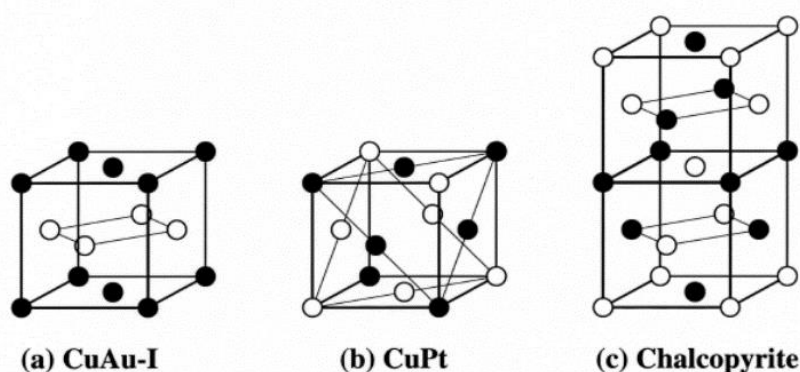


図 3.1.1. FCC構造2元合金中に確認されている規則構造.  
(a) CuAu-I型, (b) CuPt型, (c) Chalcopyrite型.

抵抗や比熱など、物性変化も確認されている。III-V 族化合物半導体混晶においても、これまでに  $\text{InGaAs}$  混晶や  $\text{InGaP}$  混晶などで、同様の規則構造が **TEM** 観察などにより確認されてきている。表 3.1.1 に、III-V 族化合物半導体混晶中に確認された規則構造と成長方法をまとめて示す [3.1.23-41]。こうした規則化は多くの場合、成長層全体に一様に広がっているのではなく局所的に留まっており、その程度は成長方法や成長温度、V/III 比などの成長条件に強く依存する傾向が見られている。特に、 $\text{GaAs}$  基板上に **MOCVD** 法を用いて成長した  $\text{InGaP}$

混晶においては、規則化によるバンドギャップ変調が複数報告されており [3.1.24, 26, 28, 29]、結晶学的な興味だけでなく応用的な観点においても興味深い。こうした規則化のメカニズムを解明し、規則化の度合いを高めることにより、予測されているような高い移動度など通常混晶とは大きく異なる物性の実現できる可能性がある。

そこで本章では、高速素子、光素子材料として重要な InP に格子整合した

表 3.1.1. III-V族化合物半導体混晶中に確認された規則構造.

| Material | Growth method | Substrate orientation | Ordered structures    | Reference    |
|----------|---------------|-----------------------|-----------------------|--------------|
| AlGaAs   | MOCVD         | (110) GaAs            | CuAu-I                | [3.1.23]     |
| InGaP    | MOCVD         | (001) GaAs            | CuPt                  | [3.1.24-29]  |
| InGaAs   | LPE           | (001) InP             | Famatinaité           | [3.1.30]     |
|          | MBE           | (110) InP             | CuAu-I                | [3.1.31]     |
|          | MOCVD         | (001) InP             | CuPt                  | [3.1.32-34]  |
| InAlAs   | GS-MBE        | (001) InP             | New Struc.            | [3.1.35, 36] |
|          | MBE           | (001) InP             | CuPt                  | [3.1.37]     |
| GaAsSb   | MOCVD         | (001) InP             | CuAu-I + Calcopryrite | [3.1.38, 39] |
|          | MBE           | (001) GaAs            | CuPt                  | [3.1.40]     |
|          | MBE           | (110) InP             | CuAu-I                | [3.1.41]     |

InGaAs 規則混晶の形成について、(1) 特定条件下で自己形成的に起こる規則化について検討した結果を述べる。また、(2) 人為的に制御した形成手法の検討として、微傾斜基板上に形成される表面ステップを利用して、ステップ端を基点に供給原子を配列させる規則混晶形成について検討した結果を述べる。

特定条件下で起こる InGaAs の規則化として、(110) InP 基板上に形成される **CuAu-I** 型の規則構造に注目した。この構造は、(001) 面上に成長した  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  **MSL** と同じ原子配置となる。3-2 節では、(110) InP 基板上への InGaAs 混晶の **MBE** 成長について述べ、成長した InGaAs 混晶中に形成される規則構造を **TEM** 観察、**XRD** 測定により評価し、その基本的な構造と形態を明らかにする [3.1.42-45]。3-3 節ではこの規則化と **MBE** 成長条件との関係を実験的に示す。また、3-4 節では成長条件により変化する表面のステップ構造を反射型高速電子線回折 (Refraction High Energy Electron Diffraction: 以下 **RHEED**) および原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscopy: 以下 **AFM**) により評価し [3.1.46]、これら表面ステップ構造と規則化との関係を示す。3-5 節では、これら結果を基に規則化のメカニズムについて考察する [3.1.47]。3-6 節では規則化した InGaAs 混晶を電子走行層に用いた InGaAs/N-InAlAs SD 構造を形成し、通常の InGaAs 混晶に比べ 1.6 倍も高い **2DEG** 移動度が得られることを示

す[3.1.43, 44]。また、3-7 節では InAs と GaAs を単分子層ごとに交互に成長する人為的な形成手法の検討として、(110) 面上に形成される表面ステップ構造とステップが等間隔に配列したステップオーダリングについて示し、ステップ端を基点に成長するステップフロー成長を利用した規則混晶の形成について示す。**TEM** 観察、**XRD** 測定によりステップを基点に横方向に周期的な変調構造を有する MSL の構造形成を明らかにする[3.1.48]。さらに、3-8 節ではこの規則混晶の 2DEG 移動度について示し、形成手法としての有効性を示す[3.1.48]。最後に 3-9 節では本章で得られた結果を要約して示す。

## 3-2 (110) InP 基板上に成長した InGaAs 混晶の規則化

### (1) (110) InP 基板上への InGaAs 混晶の MBE 成長

(110) InP 基板上に MBE 成長した InGaAs 混晶中に、(001) 面上に成長した  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  MSL と同じ原子配置となる CuAu-I 型の規則構造が確認されている[3.2.1]。しかし、規則化のメカニズムや規則化と成長条件との関係については、ほとんど明らかにされていない。また、(110) 基板上への成長においては、異常成長による特異なファセット形成や[3.2.2-6]や多段の巨大ステップの形成[3.2.7, 8]などにより平坦に成長しにくいことも報告されている。そこで、(110) 面上への **MBE** 成長について、まず初期的な検討を行った[3.2.9, 10]。

図 3.2.1 は、(110) InP 基板上に成長した InGaAs 混晶 (厚さ :  $1.5\ \mu\text{m}$ ) の光学顕微鏡像である。成長温度は  $440^\circ\text{C}$ 、**V/III** 比は 60 で成長している。基板には、(110) 面から (a) [00-1] 方向へ  $0.5^\circ$  傾斜、(b) [00-1] 方向へ  $3^\circ$  傾斜、(c) [001] 方向へ  $3^\circ$  傾斜させた基板を 1 つの基板ホルダにセットし、同時に成長している。成長表面のモロロジは、基板面の傾斜方位と傾斜角により大きく変化している。基板の傾斜角が小さい場合、図 3.2.1. (a) に示すように凹凸のあるラフ

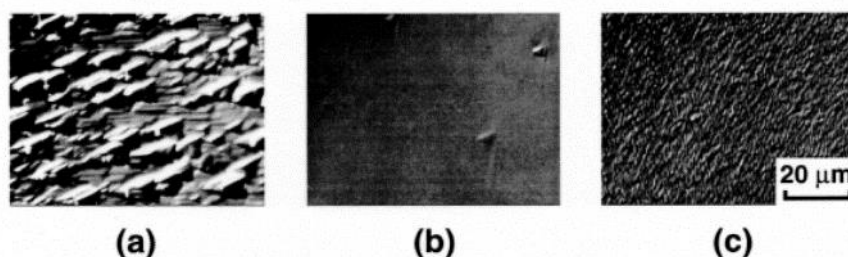


図 3.2.1. (110)InP 基板上に MBE 成長した InGaAs 表面の光学顕微鏡像. 基板には, (a) [00-1] 方向へ  $0.5^\circ$  傾斜させた基板, (b) [00-1] 方向へ  $3.0^\circ$  傾斜させた基板, (c) [001] 方向へ  $3.0^\circ$  傾斜させた基板を用いた [3.2.9, 10]. Copyright (1991). The Japan Society of Applied Physics.

な表面になる。凸部の形状は、 $[001]$  方向に向く二等辺三角形を底面とした錘状の形状であり、特定のファセットが形成されていると思われる。図 3.2.2. (a) は、InGaAs 混晶を  $(110)$  面から  $[00\bar{1}]$  方向へ  $0.5^\circ$  傾斜させた基板上に成長している際の RHEED 像である。電子線は、 $[-110]$  方向から入射させて観測している。図 3.2.2. (b) に模式的に示すように、 $[111]$  方向に伸びるストリークが得ら

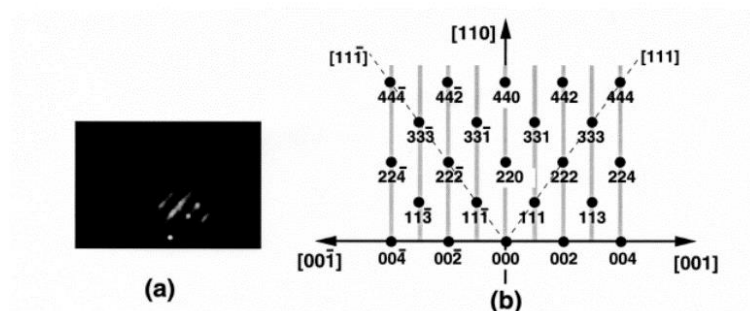


図 3.2.2.  $(110)$ InP 基板上に InGaAs を MBE 成長している際の (a) RHEED 像と (b) 逆格子像. RHEED 観察においては電子線は  $[1\bar{1}0]$  方向から入射させている。

れており、 $(111)$  面からなる微小なファセットが形成されていることを示している。同様のファセット形成は、 $(110)$  GaAs 基板上への GaAs や AlGaAs 成長においても報告されており [3.2.2-6]、 $(110)$  面上への成長において現れる特有のファセットと考えられる。一方、基板面の傾斜方向を  $[00\bar{1}]$  方向に、傾斜角を大きく ( $3^\circ$  以上に) することにより、 $(111)$  面からなる特有のファセット形成は抑制される傾向にある。図 3.2.1. (b) は、 $[00\bar{1}]$  方向に  $3^\circ$  傾斜させた基板上に成長した場合の表面モホロジである。同図 (a) に見られたようなファセットの形成は抑制され、 $(001)$  基板面上への成長と同じような平坦性の良い表面形状が得られている。これに対し、基板の傾斜方向を  $[001]$  方向にした場合、傾斜角を大きく ( $3^\circ$  以上に) しても同図 (c) に見られるように平坦性の良い表面は得られなかった。基板面を  $(110)$  面から  $[00\bar{1}]$  方向に傾斜させることにより現れる表面ステップの種類 (III 族終端 :  $[001]$  方向への傾斜基板、V 族終端 :  $[00\bar{1}]$  方向への傾斜基板) とそのステップ密度が異常なファセット形成の原因になっていると考えられる。

以下では、異常なファセット形成が起きにくい  $(110)$  面から  $[00\bar{1}]$  方向へ傾斜させた基板上に成長した InGaAs 混晶の規則化について評価した結果を述べる。

## (2) $(110)$ InP 基板上に MBE 成長した InGaAs 混晶の規則構造

$(110)$  InP 基板上に成長した InGaAs 混晶中に形成される規則構造を TEM 観

察により調べた[3.2.9-11]。InGaAs 混晶の成長は、異常成長が起こりにくい(110) 面から [00-1] 方向に傾斜させた InP 基板を用い、通常の MBE 法により行った。

図 3.2.3. (a) - (c) は、(110) 面から [00-1] 方向に  $5^\circ$  傾斜させた基板上に成長した InGaAs 混晶の (a) (110) 平面試料、(b) (-110) 断面試料 および (c) (001) 断面試料から得られた TED 像である。いずれの TED 像からも 220, 111, 002 等の基本回折に加え、通常混晶では禁制となる 001, 110, 112 等に回折スポット

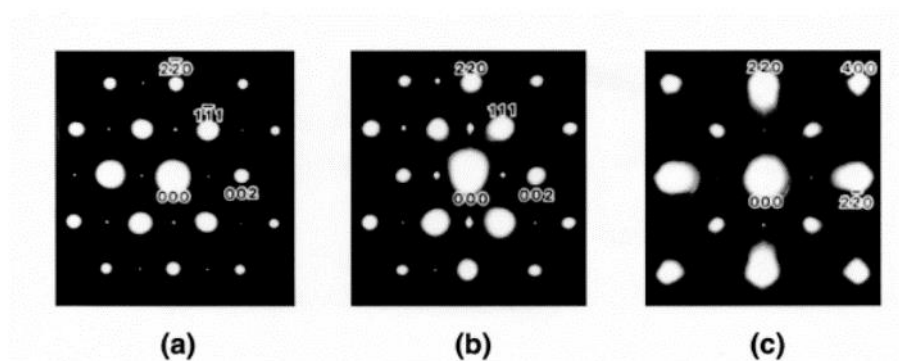


図 3.2.3. (110)面から [00-1] 方向に  $5^\circ$  傾斜させた InP 基板上に MBE 成長した InGaAs の (a) (110) 平面, (b) (-110) 断面, (c) (001) 断面の TED 像 [3.2.11].

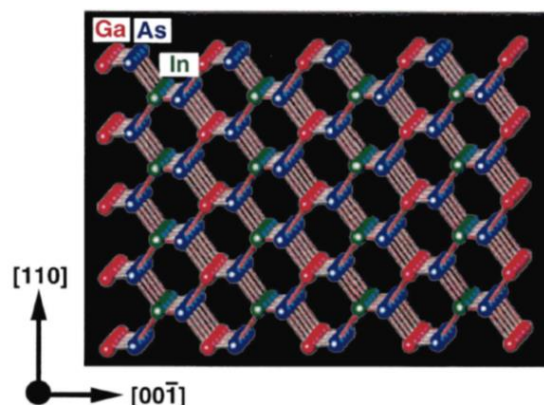


図 3.2.4. (110)InP 基板上に成長した InGaAs 混晶中に形成された CuAu-I 型の規則構造の原子配列. 赤 (●) は Ga 原子, 緑 (●) は In 原子, 青 (●) は As 原子.

が現れ、「超構造」が形成されていることを示している。観測されている超構造の形成を示す回折スポット（以下 超構造スポット）のミラー指数 ( $h, k, l$ ) は、いずれも（奇数, 奇数, 偶数）または（偶数, 偶数, 奇数）であり、各ユニットセルにおいて、GaAs が優先的に (0, 0, 0) と (1/2, 1/2, 0) のサイトを、また InAs が (1/2, 0, 1/2) と (0, 1/2, 1/2) のサイトを占める **CuAu-I** 型の規則構造に対応している[3.2.12, 13]。完全に規則化した場合には、図 3.2.4 に示すように [110]

方向と  $[-110]$  方向に InAs 面と GaAs 面が交互に並び、また  $[001]$  方向には In 面—As 面—Ga 面—As 面が単原子層ごとに交互に配列する構造となり、 $(001)$  基板上に成長した  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  MSL と同じ原子配列となる。

図 3.2.5 は  $(-110)$  断面の高分解能 (High Resolution: 以下 **HR**) TEM 像である。X1—X3 および Y1—Y3 の矢印で示すように明るい輝点列 (格子点) とやや暗い輝点列からなる 002 および 220 格子縞が明瞭にみられ、図 3.2.4 に示す

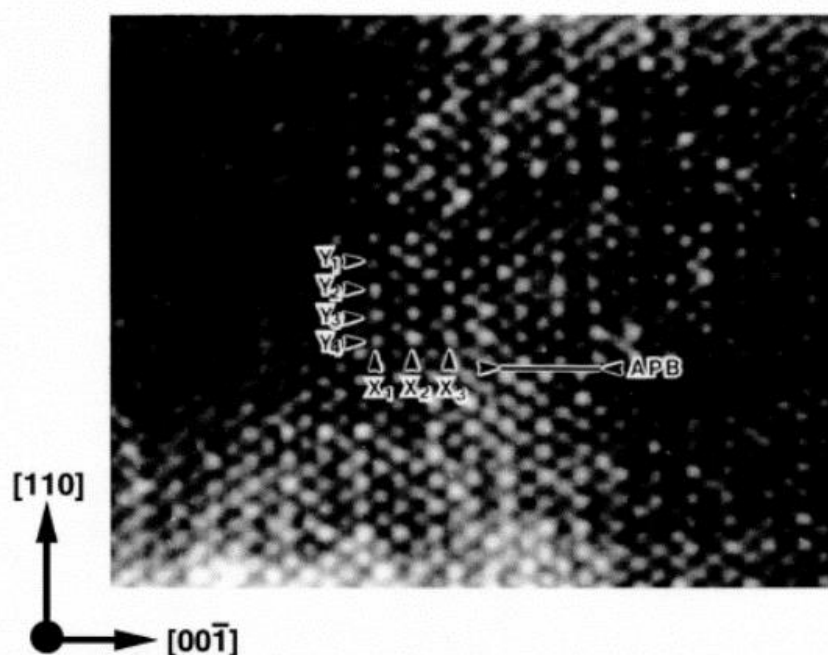


図 3.2.5.  $(110)$  面から  $[00-1]$  方向に  $5^\circ$  傾斜させた InP 基板上に MBE 成長した InGaAs 混晶から得られた  $(-110)$  断面の HR-TEM 像 [3.2.11].

CuAu-I 型の規則構造が形成されていることを示している。ただし、こうした格子縞が明瞭に観察できる領域は部分的であり、規則化した領域と規則化していない領域が混在している。また、図 3.2.5 に “APB” で示した線は、明るい輝点列とやや暗い輝点列が反転している境界を示したもので、Kuan らが報告している位相反転境界 (Anti-Phase Boundary: 以下 **APB** [3.2.12, 13]) と考えられる。なお、**HR-TEM** 像の輝点について、最適焦点条件下で、試料厚さ (8 nm - 25 nm の範囲) 依存性についてマルチスライス法によりシミュレーションしたところ、上記範囲において、In-As 原子対の方が Ga-As 原子対よりも明るい輝点として現れることがわかっている [3.2.14]。したがって、図 3.2.5 の “APB” は、InAs 層が 2 層積層した構造に対応している。

次に、どの程度の領域で規則化しているかを調べるため、低倍率での暗視野 (Dark Field: 以下 **DF**) 像の観察を行った。DF の観察には、110 超構造スポン

ットを用いて結像させている。したがって、規則化した領域は明るいコントラストで現れ、規則化していない領域は暗いコントラストで現れることになる。図 3.2.6 に、(a) (110) 断面 と (b) (001) 断面の **TEM-DF** 像を示す。いずれの像においても薄層状の明るい領域と暗い領域が観察されており、規則化が結晶全体

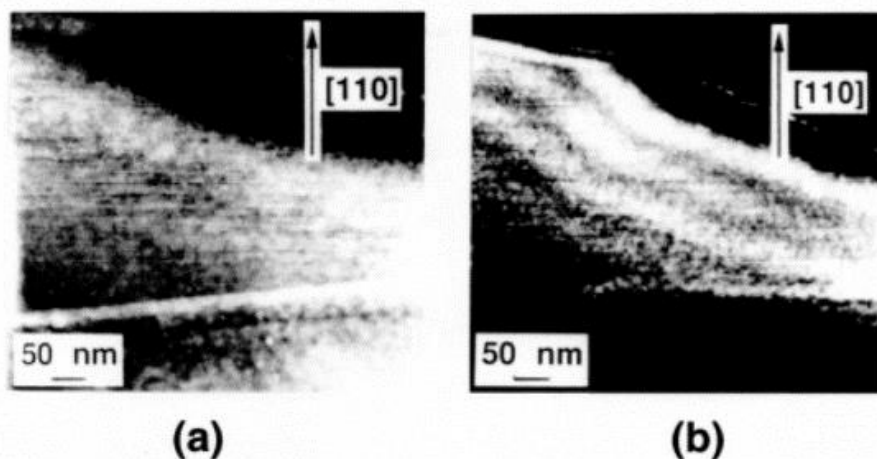


図 3.2.6. (110)面から $[00\bar{1}]$ 方向に $5^\circ$ 傾斜させた InP 基板上に MBE 成長した InGaAs の (a)  $(\bar{1}10)$  断面, (b) (001) 断面の TEM-DF 像 [3.2.10, 11].

に均一に起こっているのではなく、薄層状の領域（ドメイン）を形成していることがわかる。図 3.2.7 に上記 **TEM-DF** 像から推測される構造を模式的に示す。規則化した薄層状のドメインは、(110) 面に平行ではなく、基板の傾斜方向 ( $[00\bar{1}]$  方向) と反対の方向 ( $[001]$  方向) に僅かに ( $1-2^\circ$ ) 上方に傾いている。また、ドメイン形状は、厚さが 10 nm 程度あり、面内での拡がりは数 100 nm を超え

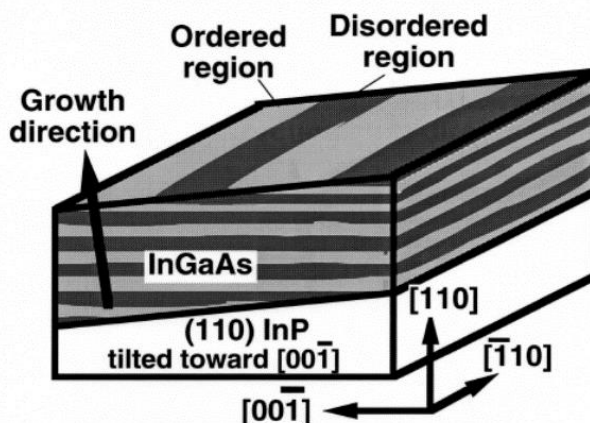


図 3.2.7. 規則化した InGaAs の構造模式図. 規則化した薄層状のドメイン (ordered region) が (110) 面から  $[001]$  方向に僅かに傾いて形成されている [3.2.10].

ているように観測される。なお、図 3.2.6. (b) の (001)断面像において、薄層状ドメインの厚さが (110) 断面において観察されるドメインの厚さより薄く観察されるのは、薄層状ドメインが [001] 方向に傾いており、そのため (001) 方向から観察した場合 ((001) プロジェクションにおいて)、規則化した ordered 領域と秩序化していない disordered 領域とが重なって観測されるためと考えられる。

### 3-3 成長条件による規則化の変化

前節で示した規則化が、成長条件によりどう変化するかを調べることは、規則化のメカニズムを解明し、規則化の度合いをより高めるために重要である。ここでは規則化と MBE 成長条件、特に成長温度と基板の傾斜角をパラメータに調べた結果について述べる。

#### (1) 成長温度による規則化の変化

成長温度の規則化に与える影響を調べるため、異なる温度で成長した InGaAs の規則化の度合いを TEM および TED により評価した [3.3.1, 2]。基板には (110) 面から [00-1]方向へ 5° 傾斜させた InP 基板を用いた。V 族ビーム強度と III 族ビーム強度の比 (V/III 比) は約 60 一定とし、成長温度を 360°C から 450°C まで変えて InGaAs 混晶を成長した。成長した表面モホロジはいずれも平坦性のよい表面が得られ、図 3.2.1. (a), (c) のような異常なファセット形成はほとんど確認されていない。

図 3.3.1. (a) - (d) に、成長温度を変えて成長した InGaAs 混晶から得られた (110) 平面試料の TED 像を示す。この試料作製においては、成長膜厚を一定とし、基板を選択エッチングにより作製している。そのため、規則化の度合いは、直接的に超構造スポットの強度に反映されている。規則化の度合いを示す超構造スポット強度は、(a) 360°C で成長した試料で極めて微弱であるが、成長温度を高めるにしたがい強くなり、(d) 450°C で成長した試料で最も強くなっている。上記の成長温度範囲においては、成長温度が高くなるにしたがい、規則化の度合いが大きくなることを示している。図 3.3.2 は、3° 傾斜させた基板上に V/III 比を約 45 として成長温度を 380°C から 495°C まで変えて成長した InGaAs 混晶から得られた XRD の強度曲線 (ロッキングカーブ) である。測定は、110 超構造回折点の近傍を  $\theta$  - 2 $\theta$  スキャンしている。110 超構造回折の強度は、成長温度が 450°C 以下では、上記結果と同じく成長温度を高くするにしたがい強くなるが、さらに高温側 (450°C 以上の領域) では弱くなっている。表面モホロジはいずれも良好であり、異常なファセット形成や As 不足などによる結晶そのものの劣化はないものと考えられる。規則化に適する成長温度があることを示してい

る。同様の成長温度に対する規則化の変化は、(001) GaAs 基板上に成長した InGaP 混晶 [3.3.3-5] や (001) InP 基板上に成長した InAlAs 混晶 [3.3.6] の規則化においても報告されており、これらは成長温度によって変化する表面の再配列構造との関係を指摘している。本実験での InP (110) 基板上の InGaAs 混晶中に形成される **CuAu-I** 型の規則化においても、基板表面に被着した原子の表面移動度、およびこれに関係して形成される成長表面の構造が規則化に影響しているものと考えられる。

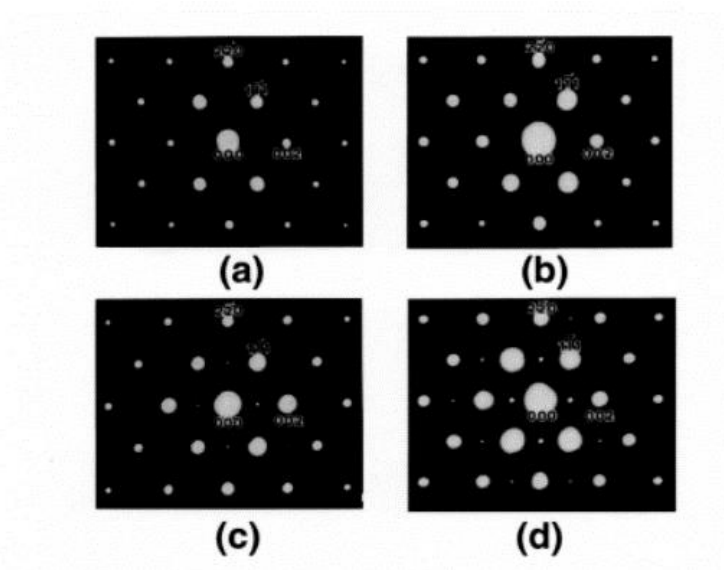


図 3.3.1. (110)面から[00-1]方向に5°傾斜させた InP 基板上に成長温度を変えてMBE成長した InGaAs の(110)平面 TED 像. (a) 360°C, (b) 420°C, (c) 450°C で成長 [3.3.1].

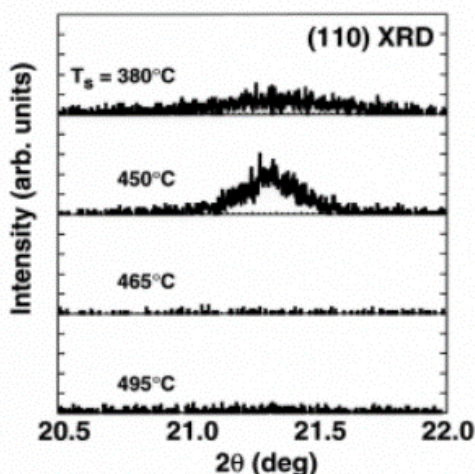


図 3.3.2. (110)面から [00-1]方向に5°傾斜させた InP 基板上に成長温度を380°Cから495°Cまで変えて成長した InGaAs から得られた 110 超構造スポットの XRD 強度.

## (2) 基板の傾斜角による規則化の変化

(001) GaAs 上に成長した InGaP 混晶中に形成される **CuPt** 型の規則化においては、基板の傾斜角の違いにより、規則化の度合や規則化した領域（ドメイン）の形状が変化することが報告されている [3.3.7, 8]。そこで、傾斜角の異なる (110) InP 基板上に InGaAs 混晶を成長し、規則化の度合について **TED** および **TEM** 観察により評価した [3.3.2]。

図 3.3.3 (a) - (d) は、傾斜角が異なる基板の上に成長した InGaAs 混晶から得られた (-110) 断面の **TED** 像である。基板の傾斜角は  $3^\circ$  から  $10^\circ$  の範囲で変えた。成長温度、**V/III** 比は、異常なファセット形成が起こらない条件とし、それぞれ  $410^\circ\text{C}$  および 60 を用いた。1 つの基板ホルダに傾斜角の異なる基板をセ

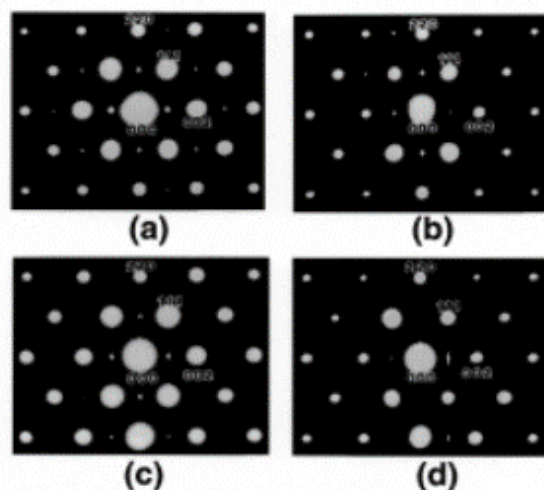


図 3.3.3. (110)面から [00-1]方向に  $\alpha^\circ$  傾斜させた InP 基板上に成長した InGaAs の (-110) 断面の **TED** 像. (a)  $\alpha = 3^\circ$ , (b)  $\alpha = 5^\circ$ , (c)  $\alpha = 8^\circ$ , (d)  $\alpha = 10^\circ$ .

ットし、同時に成長を行っている。002, 111, 220 等の基本回折スポットの強度に対する、110, 001, 221 等の超構造回折の強度は、 $3^\circ$  と  $5^\circ$  傾斜させた基板上に成長した試料で最も強く、基板の傾斜角が大きい ( $8^\circ$  および  $10^\circ$ ) 基板上に成長した試料では弱くなっている。また、 $8^\circ$  および  $10^\circ$  傾斜させた基板上の試料では、超構造回折のスポット形状が成長方向に伸びており、規則化したドメインの形状が薄層化していることを示している。図 3.3.4. (a) - (d) は、超構造スポットを用いて結像させた (-110) 断面の **TEM-DF** 像である。規則化したドメインを示す明るいコントラストは、基板の傾斜角が大きくなるにしたがって薄くなるとともに、横への広がりも狭くなる傾向にある。また規則化したドメインの占有率も基板の傾斜角を大きくするにしたがって小さくなっているように見える。基板の傾斜角を変えることにより変化する表面のステップ密度とその構造が規則化に関係しているものと考えられる。

一方、(001) GaAs 基板上に成長した InGaP 混晶の **CuPt** 型の規則化においては、基板の傾斜角を大きくすることにより、ドメインの生成角（薄層ドメインと基板面との角度）が大きくなることが報告されている[3.3.8]。本実験では、そうした基板の傾斜角に対するドメインの生成角の変化は確認できなかった。(110) InP 基板上の **CuAu-I** 型の規則化の形成機構が上記とは異なっていることを示唆している。

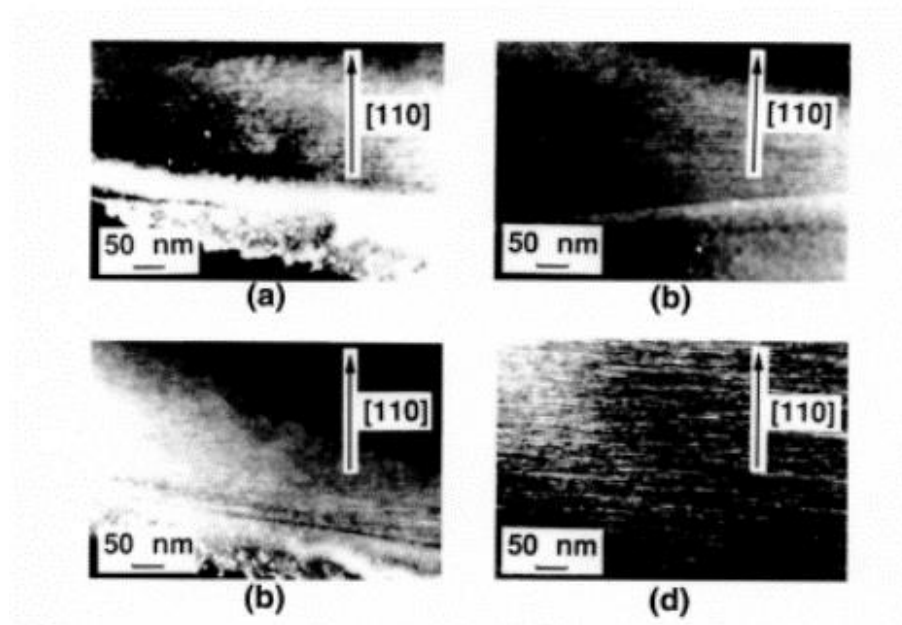


図 3.3.4. (110)面から [001]方向に  $\alpha^\circ$  傾斜させた InP 基板上に成長した InGaAs の (-110)断面の TEM-DF 像. (a)  $\alpha = 3^\circ$ , (b)  $\alpha = 5^\circ$ , (c)  $\alpha = 8^\circ$ , (d)  $\alpha = 10^\circ$ .

### 3-4 表面ステップ構造による規則化の変化

(001) GaAs 基板上に成長した InGaP 混晶中に形成される **CuPt** 型の規則構造や (001) InP 上に成長した InAlAs 混晶中に形成される 3 倍周期の規則構造の形成には、成長条件によって変化する表面の再配列構造が関係していることが指摘されている[3.4.1-4]。(110) InP 基板上に成長した InGaAs の **CuAu-I** 型の規則化においても、前節で示したように成長条件（成長温度や基板の傾斜角）によって変化しており、成長ダイナミクスに関係した表面構造が規則化に関係していると考えられる。しかし、(110)面においては、表面の再配列構造は 1x1 (buckling) 構造が確認されているのみであり、(001) 面のように表面の再配列構造は変化しない。したがって、(110) 基板上での規則化に表面の再配列構造が影響している可能性は低いと考えられる。一方、(110) 微傾斜基板上への成長においては、巨大ステップの形成 [3.4.5, 6] や多分子層ステップの形成 [3.4.7-11]

など表面のステップ構造が成長条件により多様に変化することが報告されている。そこで、本説では表面ステップ構造[3.4.12-15]と規則化との関係について調べた結果について以下に示す。

### (1) InGaAs 成長時の表面ステップ構造

(110) InP 微傾斜基板上へ InGaAs 混晶を MBE 成長する際に現れる表面のステップ構造を RHEED により調べた。図 3.4.1. (a) - (c) は、(110) 面から [00-1] 方向に 5° 傾斜させた InP 基板上に InGaAs 混晶を成長している際に得られた RHEED 像である。電子線は、基板の傾斜方向と直交（表面ステップ端に平行）する [-110] 方向から 25 kV の加速電圧で入射させている。同図に示すように、成長温度を変えることにより 3 種類の像が得られ、異なる表面構造が形成されていることがわかる。(a) の像は (110) 面上への成長において通常みら

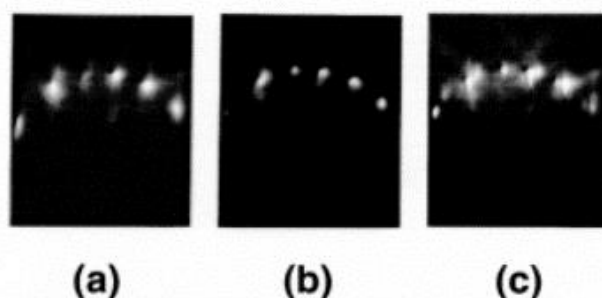


図 3.4.1. (110)面から [00-1] 方向に 5° 傾斜させた InP 基板上に InGaAs を成長している際の RHEED 像. 成長温度は (a) 410°C, (b) 420°C, (c) 440°C [3.4.13, 15].

れる 1x1 構造を反映した像である。これに対し、(b) と (c) に示す像においては、1x1 の基本回折(ストリーク)の横に分離した回折斑点が Laue ゾーンに沿って付加的に現れている。分離した回折斑点の間隔は、(b) と (c) で異なっており、それぞれ基本回折の間隔の 1/8 と 1/4 になっている。

微傾斜基板上へ成長においては、特定条件下で等間隔のステップが形成される（以下 step ordering）。この場合、図 3.4.2. (a) に示すように、表面には式 (3.1) で表される等間隔のステップ（等幅のテラス）が形成され、

$$W = Na \quad (3.1)$$

(W はテラス幅、a は基板の原子配列の間隔)

基板の傾斜方向には傾斜角 ( $\alpha$ ) によって、式 (3.2) で決まる長周期構造が形成されることになる。

$$L = W/\cos \alpha \quad (3.2)$$

(L は周期、W は平均テラス幅、 $\alpha$  は基板の傾斜角)

このときの逆格子ロッド（表面回折ロッド）は、テラスの形状効果（テラスが小さいために基本ロッドが幅をもつ）と周期,  $L$  の表面長周期構造とにより、図 3.4.2. (b) に示すよう長周期に応じて逆格子ロッドが形成されることになる。電子線をステップ端に平行に入射させた場合の Ewald 球との関係は、図 3.4.2. (c) に示すようになり、分離した回折斑点が Ewald 球（0 次の Laue ゾーン）

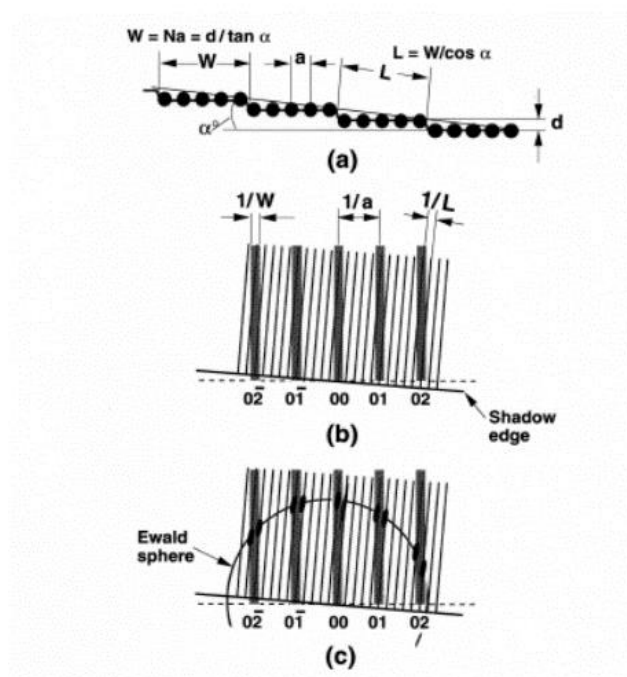


図 3.4.2. 等間隔ステップが形成された (step ordering が起こった) 場合の (a) 表面格子と (b) 表面逆格子ロッド, (c) 表面回折位置.

に沿って得られる。

また、step ordering 起こっている場合の平均テラス幅（平均ステップ間隔）、 $W$  は、

$$W = Na = nd / \tan \alpha \quad (3.3)$$

（ $a$  は基板の原子配列の間隔、 $N$  はテラス上の原子列の数、

$nd$  はステップ高さで、 $n$  は分子層数で、 $d$  は単分子層高さ、

また  $\alpha$  は基板の傾斜角度）

で表される。したがって、(110)面から  $5^\circ$  傾斜させた InP 基板上に単分子層の step ordering が起こった場合の平均テラス幅,  $W$  は、

$$W = d_{220} / \tan 5^\circ = 2.372 \text{ (nm)} \quad (3.4)$$

（ここで、 $d_{220}$  は (110) 面の単分子層の高さ、 $a$  は InP

に格子整合した InGaAs の格子定数 (0.58686 nm)

として、 $d_{220} = a / (2^2 + 2^2)^{1/2} = 0.2075 \text{ (nm)}$ )

となり、基板の傾斜方向へ

$$L = W/\cos 5^\circ = 2.381 \text{ (nm)} \quad (3.5)$$

の長周期構造が形成されることになる。また、基板の傾斜方向への基板原子配列の間隔は、

$$a = d_{001} = a/(0+0+1^2)^{1/2} = 0.5869 \text{ (nm)} \quad (3.6)$$

であるから、基板の原子配列の間隔に対して約 4 倍の長周期構造が形成され、基本の回折ロッドの間隔に対して約 1/4 の間隔で分離した回折斑点が得られることになる。また、 $n$  分子層相当の高さのステップによる **step ordering** が起こった場合には、平均テラス幅、 $W_n$  は、

$$W_n = nd_{220}/\tan 5^\circ = nW \quad (3.7)$$

になり、基板の傾斜方向へは

$$L_n = W_n/\cos 5^\circ = nW/\cos 5^\circ = nL \quad (3.8)$$

の長周期構造が形成されることになり、基本の回折ロッドの間隔に対して、約  $1/4n$  の間隔で分離した回折斑点が現れることになる。

図 3.4.2. (b), (c) に示した **RHEED** 像において、分離した回折斑点の間隔は、基本ロッドの間隔に対してそれぞれ約 1/8 と 1/4 であり、これらは 2 分子層と単分子層のステップによる **step ordering** が起こった場合の間隔にほぼ一致しており、図 3.4.3. (b), (c) に示すような 2 分子層および単分子層の **step ordering** が起こっているものと考えられる。図 3.4.4. (a) - (c) は、(110)面から [00-1] 方向へ  $3^\circ, 5^\circ$  および  $8^\circ$  傾斜させた基板上に InGaAs を成長している際に得られ

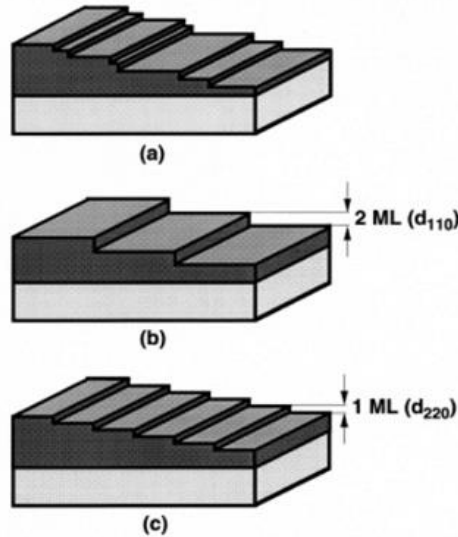


図 3.4.3. (110)面から [00-1] 方向に傾斜させた基板上に InGaAs を MBE 成長している際に形成される表面ステップ構造の模式図. (a) 表面ステップがランダムに形成されている, (b) 2 分子層のステップが等間隔に形成されている, (c) 単分子層のステップが等間隔に形成されている.

た **RHEED** 像である。分離した回折斑点の間隔は、基本ロッドの間隔に対しそれぞれ  $1/6.5$ ,  $1/4$ ,  $1/2.5$  となっており、表面には平均のステップ間隔がそれぞれ  $3.9\text{ nm}$ ,  $2.3\text{ nm}$ ,  $1.5\text{ nm}$  の単分子層の **step ordering** が起こっていることを示している。一方、図 3.4.1. (a) に示した像においては、基本の回折ロッド以外に回折斑点は現れていない。図 3.4.3. (a) に示すように表面ステップはランダムに形成されているものと考えられる。

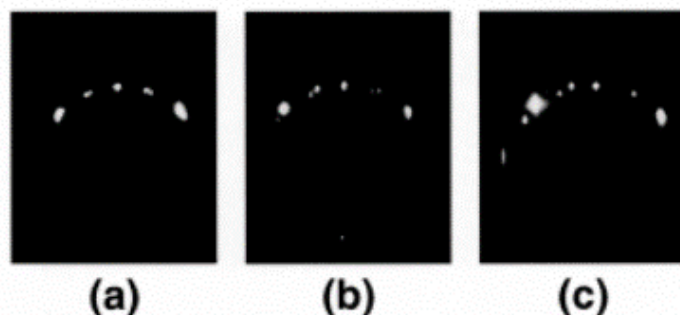


図 3.4.4. (110) 面から [00-1] 方向に傾斜させた InP 基板上に InGaAs を成長している際の RHEED 像. 基板の傾斜角は (a)  $3^\circ$ , (b)  $5^\circ$ , (c)  $8^\circ$  [3.4.13].

以上のように、(110) 面から [00-1] 方向に傾斜させた InP 基板上への InGaAs 混晶の成長においては、成長条件によりランダムなステップ形成と単分子層の **step ordering** の他、2 分子層の **step ordering** が起こることがわかった。

## (2) InGaAs 成長時の表面ステップ構造と成長条件

InGaAs 成長時の表面ステップ構造が成長条件（成長温度、As 圧）によりどう変化するか RHEED を用いて調べた。基板には [00-1] 方向に  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板を用い、 $0.18\text{ mm/h}$  の成長速度で成長した。図 3.4.5 に形成された表面ステップ構造と成長条件との関係を示す。表面被着原子の移動度が小さくなる低温あるいは高 As 圧の条件下で表面ステップはランダムとなり、被着原子の移動度が大きくなる高温域あるいは低 As 圧の条件下では **step ordering** が起こっている。ただし、単分子層の **step ordering**、2 分子層の **step ordering** の関係は、平均テラス幅が広く、被着原子のより長い表面移動度が必要となる 2 分子層の **step ordering** 方が、単分子層の **step ordering** が起こる条件より表面移動度が小さくなる低温、高 As 圧側で起こっている。通常 (001) 面上への成長においては、多段ステップの形成 (step bunching) は、表面被着原子の移動度がより大きくなる高温、低 As 圧の条件において確認されている。(110) 面上での単分子層–2 分子層の **step-ordering** の遷移は (001) 面上と逆の傾向にあり、単に表面被着原子の移動度に律則されているのではないことが推察される。

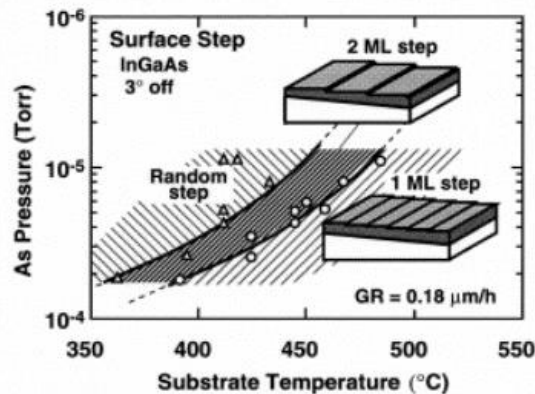


図 3.4.5. (110)面から [00-1]方向に 3° 傾斜させた InP 基板上に InGaAs を成長している際の表面ステップ構造と成長条件の関係. ステップ間隔が長くなる 2 分子層の step ordering が低温あるいは高 As 圧側で形成されている [3.4.14].

図 3.4.6 (a), (b) に、単分子層の step ordering から 2 分子層の step ordering へ遷移する成長条件 ((a) 成長温度、(b) As 圧) の基板傾斜角による変化を示す。基板の傾斜角を大きくする（平均テラス幅を狭くする）と、遷移する成長温度は高くなり、また As 圧は低くなる傾向にある。これは、被着原子の表面移動度とは逆の傾向にある。この基板上での step ordering が、被着原子の表面移動度に律速されているのではなく、基板の傾斜角により変わるステップ密度に応じた As 原子の取り込み、あるいはステップ端での As 原子に関係した再配列構造の形成等が、この面上での step ordering に重要な役割を果たしていると考えられる。

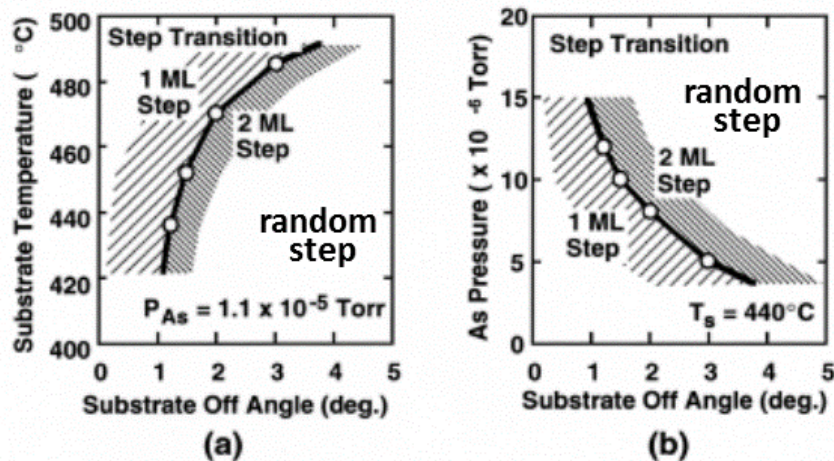


図 3.4.6. 単分子層の step ordering – 2 分子層の step ordering の遷移する成長条件 ((a) 成長温度、(b) As 圧) の基板傾斜角依存性. 基板の傾斜角を大きくする（平均テラス幅を狭くする）と、遷移する成長温度は高くなり、また As 圧は低くなる傾向にある。被着原子の表面移動度とは逆の傾向を示している。

上記のように InP (110) 傾斜基板上への InGaAs の成長においては、ランダムなステップ形成と単分子層の **step ordering** に加え 2 分子層の **step ordering** が起こり、単に表面被着原子の表面移動度に律則されているのではなく、基板の傾斜角（ステップ密度）により適する成長温度と As 圧があることがわかった。

### (3) 表面ステップ構造による規則化の変化

前項では成長時の表面ステップが、基板の傾斜角と成長条件により、単分子層の **step ordering**、2 分子層の **step ordering** およびランダムなステップに変化することを示した。本節では、こうした表面ステップ構造と規則化との関係について調べるため、表面ステップ構造を制御して InGaAs 混晶を成長し、その規則化の度合いを **TED**、**XRD** により評価した。

図 3.4.7 は、単分子層の **step ordering** (a)、2 分子層の **step ordering** (b)、およびランダムなステップ (c) を形成して成長した InGaAs 混晶の (-110) 断面の **TED** 像である。基板には [00-1] 方向に  $5^\circ$  傾斜させた InP 基板を用い、V/III 比を 19 に固定して、成長温度を  $440^\circ\text{C}$  (a)、 $420^\circ\text{C}$  (b)、 $410^\circ\text{C}$  (c) に変え

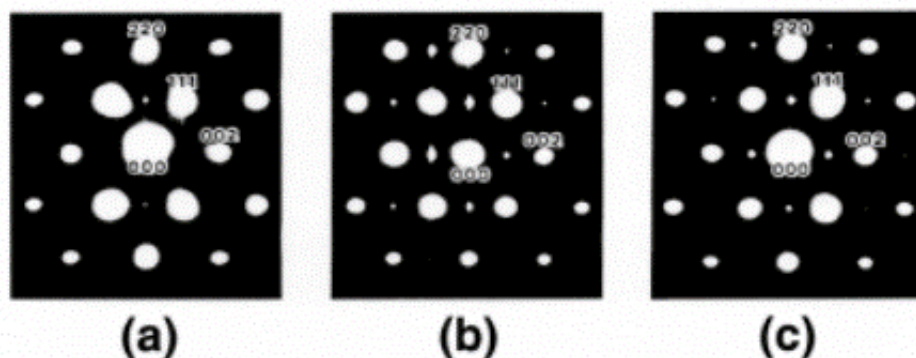


図 3.4.7. (110)面から[00-1]方向へ $5^\circ$ 傾斜させたInP基板上に、表面ステップ構造を制御して成長したInGaAsから得られた(-110)断面のTED像。表面ステップの構造は(a)単分子層のステップ, (b)2分子層のステップ, (c)ランダムなステップ[3.4.15]。

ることにより表面ステップ構造を制御した。規則化の度合いを示す 110 超構造スポットの強度は、2 分子層の **step ordering** を形成しながら成長した場合に最も強くなり、逆に単分子層の **step ordering** を形成しながら成長した場合に最も弱くなっている。図 3.4.8 は、同様に  $3^\circ$  傾斜させた基板上にステップを制御（単分子層の **step ordering** (a)、2 分子層の **step ordering** (b)、およびランダムなステップ (c)）して成長した InGaAs 混晶から得られた 110 超構造回折近傍の  $\theta-2\theta$  スキャンによる **XRD** 強度（ロッキングカーブ）である。110 超

構造回折の強度は、2 分子層の **step ordering (b)** を形成しながら成長した場合に最も強く、以下、ランダムなステップ (c)、単分子層の **step ordering (b)** の順に弱くなっている。成長時の表面ステップ構造の違いにより、規則化の度合いは明瞭に変化しており、表面ステップ構造、特に 2 分子層のステップが規則構造の形成に関係していることが推察される。

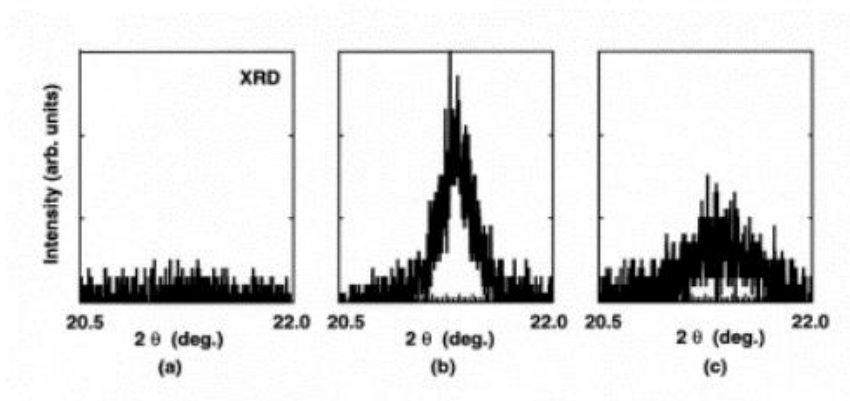


図 3.4.8. (110)面から[00-1]方向へ5°傾斜させたInP基板上に表面ステップ構造を制御して成長したInGaAsから得られたXRD. 表面ステップ構造は(a)単分子層ステップ,(b)2分子層ステップ,(c)ランダムなステップ.

### 3-5 規則化のメカニズム

前節までに、InP (110) 傾斜基板の上に **MBE** 成長した InGaAs 混晶中に形成される規則構造を明らかにするとともに、これら規則化が成長条件によりどう変化するかについて示した。ここでは、前節までの結果をもとに規則化のメカニズムについて考察する [ ]。

これまで、GaAs (001) 基板上あるいは InP (001)基板上に成長した InGaP や InAlAs において確認されている規則化には、成長時の表面再配列構造が関与していることが指摘されている[3.5.1-4]。これに対し、(110) 表面においては、III 族原子と V 族原子が上下方向に微移動した **buckling** 構造しか報告されていない。そのため、成長条件を大きく変えても (001) 表面での再配列構造（例えば、1x1, 2x4, 4x2 等）のように変化せず、表面での III 族-V 族の原子数比も (001)面の様に変化することではなく、結晶内部と同じ 1:1 となっている。したがって、(110) 面上への成長においては、規則構造形成に表面の再配列構造が関与している可能性は少ない。また、(001) 基板上の **CuPt** 型や **TP** 型の規則構造が面内で III 族原子の配置が定まる面内規則構造 (**in-plane ordering**) であるのに対し、(110) 基板上に形成される **CuAu-I** 型の規則構造は、成長方向に向か

って InAs 面と GaAs 面の交互積層構造 (**layer ordering**) であり、その構造形成には **in-plane ordering** のように表面第 1 層の構造のみが関与するのではなく、少なくとも表面層を含め上下 2 分子層以上が関与しているものと考えられる。前節までに示した結果は、(110) 基板上での **CuAu-I** 型の規則化に 2 分子層の表面ステップが強く関与していることを示唆していた。

前節までに示した成長条件とステップ形成との関係、成長条件と規則化との関係より、3-3 節で示した規則化の成長温度による変化は、高温側では単分子層ステップが優位に形成されるため規則化の度合いは弱く、それより低温側では 2 分子層ステップが優位に形成されるため規則化が強くなり、さらに低い成長温度では表面ステップがランダムになり、2 分子層ステップと単分子層ステップが不規則に混在しているため、規則化の度合いは上記中間になる、と表面ステップ構造による変化により説明できる。また、規則化の基板の傾斜角に対する依存性 (3-3 節) についても同様に、用いた成長条件 (成長温度、V/III 比) では、 $3^\circ$  傾斜させた基板上では 2 分子層の表面ステップが優位に形成され、規則化が強く現れるが、高傾斜角の基板上では表面ステップがランダムに形成されてしまうため、規則化が弱くなってしまった、とステップ形成の基板傾斜角による変化により説明できる。

以上のように、2 分子層の表面ステップが InGaAs 混晶の規則化に重要な役割を果たしていると考えられ[3.5.5]、図 3.5.1 に示す **A** または **B** の過程により、成長ダイナミクスに絡んで規則化が起こっているものと考えられる。すなわち、” **A**: 2 分子層のステップに  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  の単分子層超格子が直接的に形成されていく”、または “**B**: 供給にしたがって InGaAs 混晶が成長した

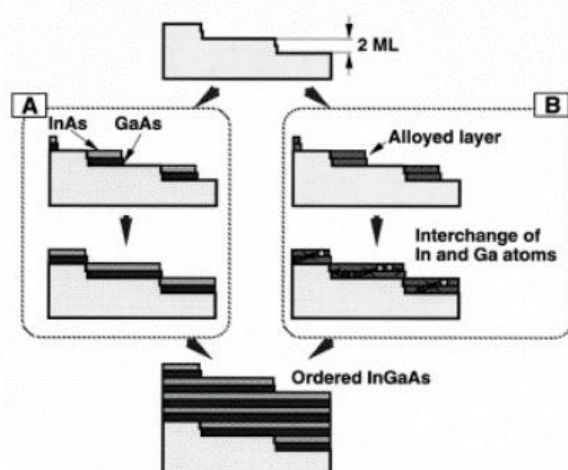


図 3.5.1. (110) InP 微傾斜基板上の InGaAs の CuAu-I 型規則構造の形成モデル. A: 2 分子層のステップに  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL が直接形成されていく. B: InGaAs 混晶が成長した後, In と Ga が置換する [3.5.5].

後、In 原子と Ga 原子が置換することにより規則構造が形成されていく”である。これまでのところ、これらを検証する実験や理論的な検討はなく、また In と Ga 原子の配置（どちら側が基板側でどちらが表面側か）を決める要因もあきらかではない。今後、理論、実験両面からさらに検討する必要がある。

### 3-6 規則化した InGaAs 混晶の電気的特性（電子移動度）

3-1 節に示したように、In 原子と Ga 原子が副格子中で規則的に配列した InGaAs 規則混晶では合金散乱がなくなり、特に低温域で電子移動度が増大することが予測されている[3.6.1-7]。本節では、前節で示した **CuAu-I** 型の規則構造が形成された InGaAs 混晶の電子移動度について示す[3.6.8, 9]。

#### (1) 試料構造

規則化した InGaAs 混晶の電子移動度を調べるため、規則化した InGaAs 混晶を電子走行層とする選択ドーピング（Selectively-Doped: 以下 **SD**）構造を成長し、その 2 次元電子ガス（2-Dimensional Electron Gas: 以下 **2DEG**）移動度を調べた。図 3.6.1 に成長した試料の断面構造を模式的に示す。（110）面から [00-1] 方向に 3°または 5°傾斜させた InP 基板上に 600 nm の InAlAs バッファ層、600 nm の InGaAs 電子走行層、10 nm の InAlAs スペース層、N 型のドーパントである Si を  $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$  ドープした 90 nm の N-InAlAs 電

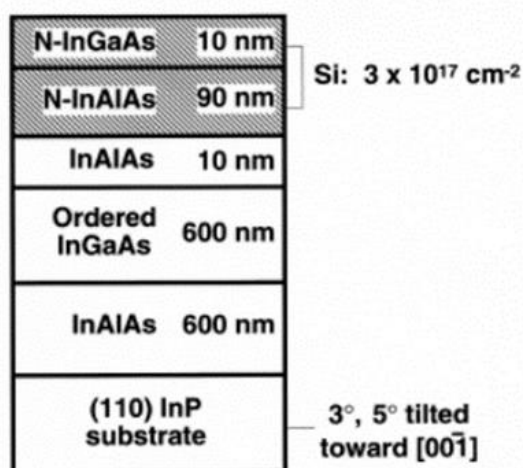


図 3.6.1. (110)面から[00-1]方向に傾斜させたInP基板上に成長した InGaAs/N-InAlAs SD構造の模式図 [3.6.8]. Copyright (1991). The Japan Society of Applied Physics.

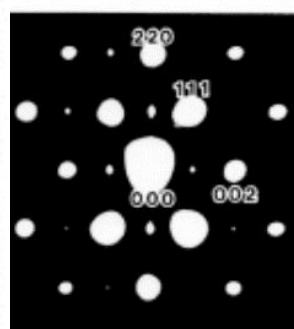


図 3.6.2. (110)面から[00-1]方向へ5°傾斜させたInP基板上に成長したInGaAs.N-InAlAs SD構造のInGaAs電子走行層から得られた(-110)断面のTED像 [3.6.8]. Copyright (1991). The Japan Society of Applied Physics.

子供給層、および 10 nm の N-InGaAs コンタクト層を成長した。成長は通常の MBE 法により行い、成長温度は約 440°C 一定で、V/III 比および成長速度は、それぞれ 20 と 0.5  $\mu\text{m}/\text{h}$  とした。図 3.6.2 は成長した SD 構造の InGaAs 電子走行層から得られた (-110) 断面の TED 像である。001, 110, 112 等の CuAu-I 型の規則構造の形成を示す超構造回折が明瞭に現れており、規則構造が形成されていることが確認できる。2DEG 移動度は、図 3.6.3 に示すホールバー（長さ 100 mm、幅 50 mm）を基板の傾斜方向である [001] 方向とこれに直交しステップ端と平行となる [-110] 方向との 2 方向に作製し、ホール測定により評価した。

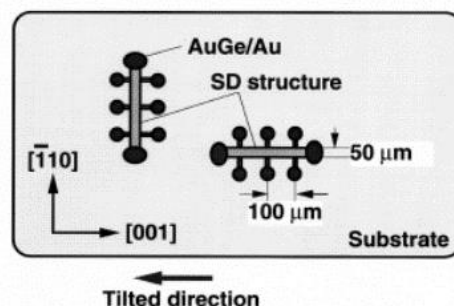


図 3.6.3. 測定に用いたホールバー。

## (2) 2DEG 移動度の測定温度依存性

図 3.6.4 に 3° (▲のプロット) および 5° 傾斜 (●と■のプロット) させた基板上に成長した InGaAs/N-InAlAs SD 構造の 2DEG 移動度 ( $\mu$ ) と面濃度 ( $N_s$ ) の温度依存性を示す。室温付近の 2DEG 移動度は、[-110] と [001] 方向とで

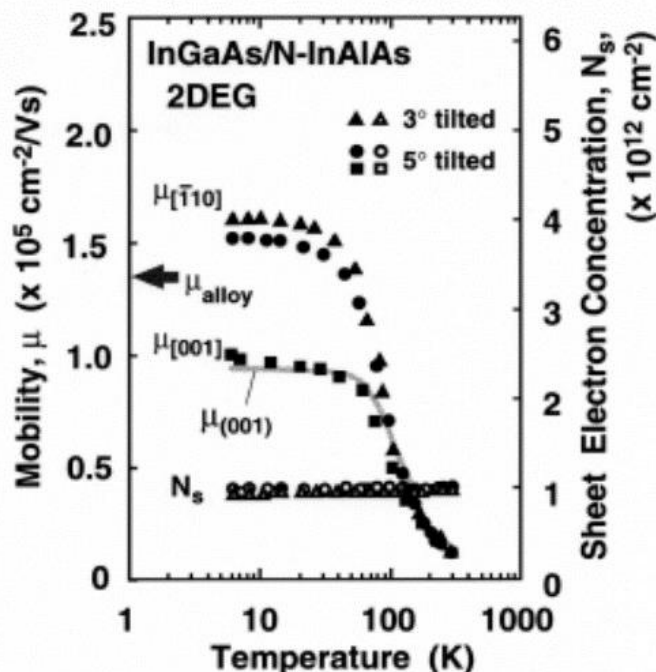


図 3.6.4. (110)面から[00-1]方向へ3°及び5°傾斜させたInP基板上に成長した InGaAs/N-InAlAs SD構造の2DEG移動度と面濃度の測定温度依存性[3.6.9].

ほぼ同じ移動度であるが、100K 以下の低温度領域において、顕著な異方性を示している。[001] 方向の移動度（5°傾斜基板上、図中■のプロット）は、通常の(001)基板上の InGaAs 混晶と同じく、約  $100,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  で温度に対し飽和している。これに対し、[-110] 方向の移動度は、5°傾斜させた基板上（図中●のプロット）で  $153,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  に、また 3°傾斜させた基板上（図中▲のプロット）で  $161,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  に達している。(001) InP 基板上に成長した通常の InGaAs 混晶を電子走行層に用いた SD 構造から得られた 2DEG 移動度（実験値：図中の破線）は、10K 以下の低温域でも約  $100,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  である。また、同構造において、これまでに報告されている最も高い移動度は、図中矢印で示した  $115,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  [3.6.10]である。規則化した InGaAs で、特に [-110] 方向で得られた値は、これら通常の InGaAs 混晶の移動度を大幅に上回る値であり、予測されているように規則化により合金散乱が抑制されたことによると考えられる。

一方、低温域での [-110] 方向と [001] 方向の移動度の異方性は、以下に示すように規則化したドメインの形状に関係していると考えられる。図 3.6.5 は、3-2 節で示した TEM-DF 像から予想される構造の模式図である。規則化した領域は、(110) 面から  $1 \sim 2^\circ$  傾いた薄層状のドメインを形成している。そのため、2DEG が形成される界面付近（図では表面）は、規則化した領域（**Ordered region**）と規則化していない混晶領域（**Disordered region**）が [-110] 方向に平行な縞模様状に形成されていることになる。電子が [001] 方向（図中の矢印の **a** の方向）に走行する場合、**Disordered region** を横切ることになり合金散乱を受けることになる。これに対して、[-110] 方向（図中の矢印の **b** 方向）に電子が走行する場合、電子は **Ordered region** と **Disordered region** とを並列に走行する並列伝導になり、この2領域での移動度が平均として測定される。そのため [001]方向では合金散乱の影響を受けやすく、[-110]方向ではその影響を受け

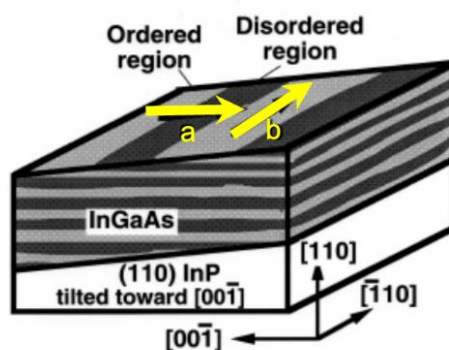


図 3.6.5. 規則化した InGaAs の構造と電子の走行方向 [3.6.9].

にくい方向となる。なお、 $[-110]$ 方向において、**Ordered region** と **Disordered region** 並列伝導において、この2領域でのキャリア分布が同じであったとすると、**Ordered region** の電子移動度はさらに高いことが予想される( $220,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  程度と推測される)。

### (3) 2DEG 移動度の規則化の度合いによる変化

規則化の度合いと移動度との関係を調べるため、異なる傾斜角の基板上に同一の成長条件で **InGaAs/N-InAlAs SD** 構造を成長し、規則化の度合いを変化させ、その **2DEG** 移動度を評価した。

成長には 3-3 節で示した条件を用いた。したがって、図 3.3.3 および図 3.3.4 に示したように、規則化の度合いは基板の傾斜角が大きくなるほど弱くなり、規則化したドメインは小さくなる傾向となる。図 3.6.6 に、 $[-110]$  方向の **2DEG** 移動度 (77K と室温) の基板傾斜角に対する変化を示す。室温での **2DEG** 移動度が基板の傾斜角に対してほとんど変化しないのに対して、77K での移動度は、基板の傾斜角を大きくするにしたがい小さくなる傾向にある。基板の傾斜角を変えることにより変化した規則化の度合いとドメインのサイズが、合金散乱の

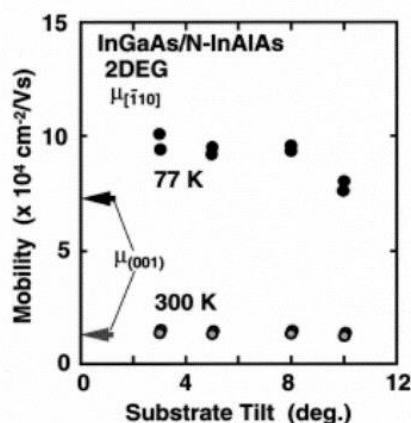


図 3.6.6. (110)面から $[00-1]$ 方向へ $3^\circ$  から  $10^\circ$ 傾斜させたInP基板上に成長した**InGaAs/N-InAlAs SD**構造の**2DEG**移動度.

抑制に影響を及ぼし、低温での移動度を変化させているものと考えられる。

以上のように、**CuAu-I** 型に規則化した **InGaAs** 混晶を電子走行層に用いた **SD** 構造において、合金散乱が抑制されたことによると考えられる高い **2DEG** 移動度が得られた。しかし、その移動度は図 3.1.3 に示した予測されている値 ( $8 \times 10^5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  [3.6.7]) までは至っていない。これは、規則化の不完全性によるものと考えられる。ただし、**2DEG** 移動度は、規則化の度合いを高めることにより増大しており、規則化の度合いをさらに高めることにより、合金散乱を抑制し、さらに高い移動度が得られるものと考えられる。

#### (4) 規則化した InGaAs 混晶の光学特性

(001) GaAs 上に MOCVD 成長した InGaP 混晶中に確認されている CuPt 型の規則混晶では、規則化により PL 発光波長が長波長側へシフトすることが報告されている[3.6.11-14]。また、(001) InP 基板上へ InAs と GaAs を単分子層ごとに交互に成長した MSL においても、PL 発光波長が長波長側へシフトする(2K での PL において、29 meV 低エネルギー側にシフトする)ことが報告されている[3.6.15,16]。ここでは、CuAu-I 型に規則化した InGaAs 混晶の PL 特性について示す。

図 3.6.7 は、(110) 面から [00-1] 方向への傾斜角を  $3^\circ \sim 10^\circ$  の範囲で変えて MBE 成長した InGaAs 混晶から得られた 4.2K での PL スペクトルである。成長は、3-4 節で示した方法により成長しており、したがって、規則化の度合いは、 $3^\circ$  および  $5^\circ$  傾斜させた基板上で強く、傾斜角が大きくなるにともな

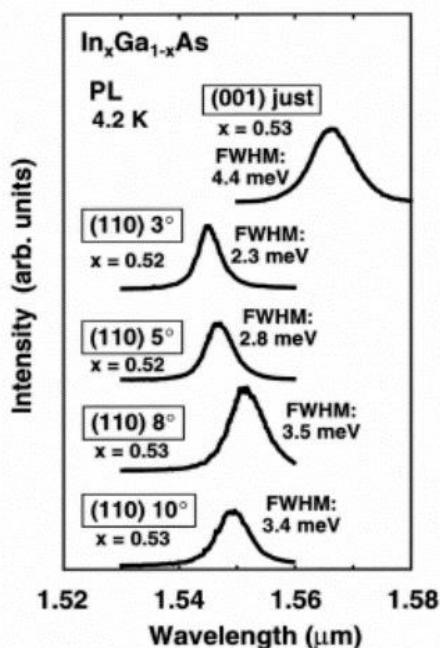


図 3.6.7. (110)面から[00-1]方向へ $3^\circ$ から $10^\circ$ 傾斜させたInP基板上に成長したInGaAsから得られた4.2KのPLスペクトル[3.6.9].

い弱くなっている。測定された PL の発光波長は、 $1.545 \mu\text{m}$  (0.803 eV) ((a)  $3^\circ$  傾斜基板)、 $1.547 \mu\text{m}$  (0.802 eV) ((b)  $5^\circ$  傾斜基板)、 $1.552 \mu\text{m}$  (0.799 eV) ((c)  $8^\circ$  傾斜基板)、および  $1.549 \mu\text{m}$  (0.801 eV) ((d)  $10^\circ$  傾斜基板)であり、また (001) 基板上に成長した通常の InGaAs 混晶の発光波長は  $1.567 \mu\text{m}$  (0.791 eV) であった。通常の InGaAs 混晶 との間に発光波長の僅かな差異は認められるものの、これまでに報告されているような大きな差異とはなっていない。XRD 測定により得られた回折ピークより、Vegard 則を仮定して求めた InAs の平均組成は、それぞれ 0.52, 0.52, 0.53, 0.53 であり、また (001) 面上に成長した InGaAs

の InAs 組成は 0.53 であった。上記発光波長の差異は、平均組成の違いに起因しているものと考えられる。一方、(001) 面上の InGaAs 混晶の発光半値幅が 4.4 meV であるのに対して、(110) 基板上に成長した InGaAs 混晶の半値幅は 3 meV と狭くなっている。基板の傾斜角が小さく、規則化の度合いが強くなる  $3^\circ$  傾斜基板では 2.3 meV と狭まり半値幅が得られている。PL の発光半値幅を広げる要因の一つに、組成揺らぎがあるが、この組成揺らぎが規則化により抑制されている可能性もある。

### 3-7 表面ステップを利用した原子配置制御と規則混晶の形成

前節までに InP (110) 微傾斜基板上への InGaAs 混晶の成長に中に形成される CuAu-I 型の規則構造の形成について示し、通常のランダム混晶に比べ、特に低温域では合金散乱が抑制されたと思われる高い移動度が得られることを示した。また、3-4 節では、この (110) InP 上には、成長条件を選ぶことにより、単分子の **step ordering** と 2 分子層の **step ordering** が起こることを示し、InGaAs 混晶の規則化には、これら表面ステップ構造のうち、2 分子層の **step ordering** が重要であることを示した。一方、こうした **step ordering** では、基板上に供給された原子はステップ端に取り込まれ、ステップ端から成長が進むステップフローになっている。図 3.7.1 はステップフロー成長を模式的に示した図である。2 次元あるいは 3 次元的な成長島を形成せず、基板に供給された被着

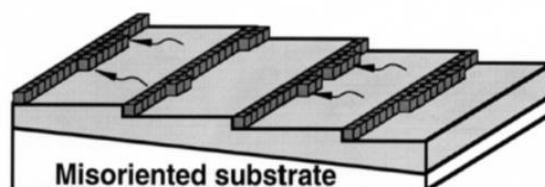


図 3.7.1. 微傾斜基板上のステップフロー成長の模式図. 供給した原子がステップ端に取り込まれることにより成長が進行する。

原子はステップ端から取り込まれていく。そのため、ステップ端を基点にして原子の配列を制御することも可能となる。図 3.7.2 に (a) 平坦基板上と (b) 微傾斜基板上に単分子の InAs と GaAs を交互に成長した場合に形成される構造を模式的に示す。平坦基板面上への成長においては、被着原子の表面移動度に応じて 2 次元の成長島を形成しながら成長が進む。そのため、広い範囲での MSL は形成されにくいことになる。これに対し、微傾斜基板上でのステップフロー成長では、2 次元の成長島等を形成することなく、各ステップ上には MSL が形成されることになる。

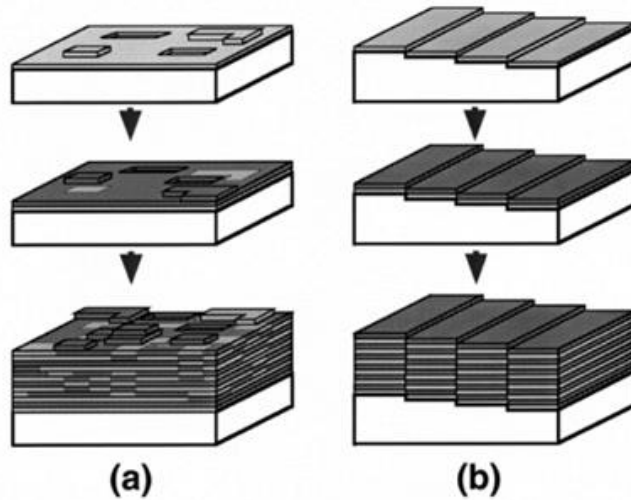


図 3.7.2. 平坦基板上 (a)と微傾斜基板上(b)へMSL を成長した場合に予想される構造の模式図. 平坦基板上では, 2次元島の形成により MSL形成が阻害される. 微傾斜基板上では, ステップフロー成長により供給組成に一致した組成構造が形成されるため, テラス上にMSLが形成できる. ただし隣り合うテラス間で組成構造は反転する.

本節では、(110) InP 傾斜基板上の **step ordering** を維持しながら単分子層相当の InAs と GaAs を交互に成長することにより形成した規則混晶 [3.7.1]について示す。

### (1) 成長方法

成長は通常の **MBE** により行った。InGaAs バッファ層の成長により、単分子層の **step ordering** を起こし、これを維持しながら単分子層相当の InAs と GaAs を交互に繰り返し成長した。シャッタの開閉シーケンスを図 3.7.3 に示す。As は連続供給とし、III 族・V 族の交互供給は行っていない。理想的に成長された場合の構造を図 3.7.4. (a) に模式的に示す。各ステップ端で組成位相が反転した変調型の **MSL** が形成されることになる。基板には、(110) 面から [00-1] 方向に  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板（平均テラス長 4 nm）を用いた。図 3.7.4.(b)に示すように、面内 [001]方向に 4 nm 間隔で GaAs と InAs の逆位相境界 (APB)が交互に入ることになり、同方向に 8 nm の長周期構造が形成されることになる。以下この構造を、横方向への変調周期構造を有する **MSL** として、laterally modulated monolayer superlattice (**LM-MSL**)と呼ぶ。InAs と GaAs の成長速度は、それぞれ 0.16  $\mu\text{m}/\text{h}$ ,

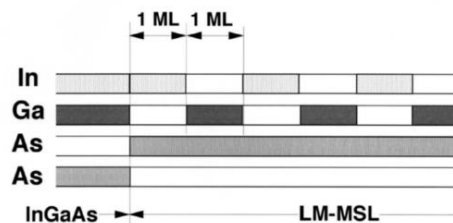


図 3.7.3. (InAs)<sub>1</sub>/(GaAs)<sub>1</sub> LM-MSL 成長のシーケンス [3.7.1]. As は連続供給し, 単分子層相当の In と Ga を交互に繰り返し供給した.

0.14  $\mu\text{m/h}$  で、単分子層をそれぞれ 4.8 秒, 5.2 秒かけて成長している。成長温度は 440°C で、As 圧は InGaAs バッファ層成長時には  $1 \times 10^{-5}$  Torr を、また InAs と GaAs の交互成長 (MSL 成長) 時には  $5 \times 10^{-6}$  Torr 用いた。As 圧の切換えは、それぞれの As 圧に設定した 2 本の As セルを用いてセルシャッターの開閉により界面で急峻に変化させた。これら成長条件は、単分子層の **step ordering** が

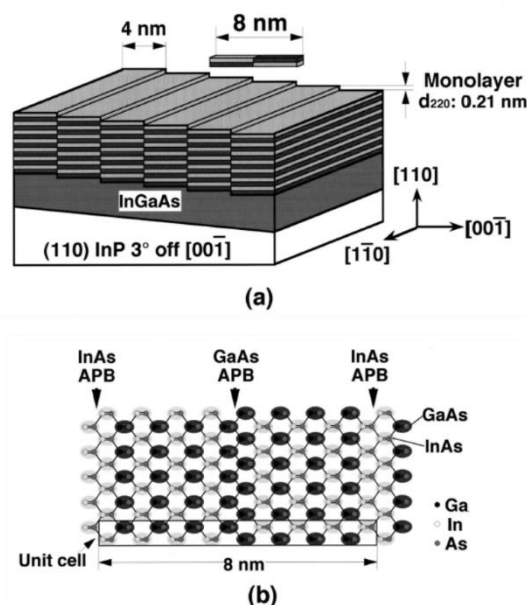


図3.7.4. (110)面から[00-1]方向に3°傾斜させたInP基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSLの構造模式図(a)と原子配置(b)[3.7.1]. ステップ端にInAsとGaAsの2種類のAPBが導入される. 横方向にステップ間隔の2倍の長周期構造が形成される(CuAu-II型構造に類似した構造).

起こる条件により決定した。図 3.7.5. (a) – (c) に成長時の RHEED 像を示す。電子線はステップ端に平行な  $[1-10]$  方向から入射させて観察している。InGaAs バッファ層成長時 (a) に観られる単分子層の **step ordering** を示す分裂した回折斑点は、InAs (b) と GaAs (c)の交互成長時においても維持されており、単分子層の **step ordering** が継続的に形成されていることを確認している。

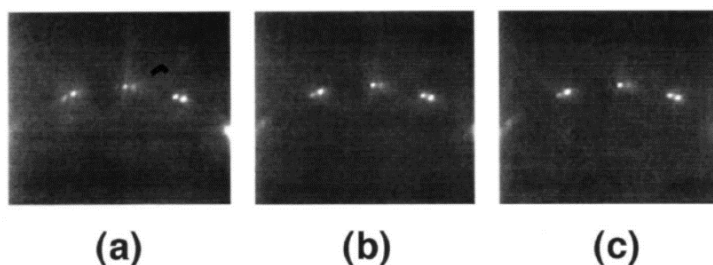


図3.7.5. (110)面から[00-1]方向に3°傾斜させたInP基板上に成長している際のRHEED像. (a) InGaAs/バッファ層成長時, および単分子層の (b) InAsと (c) GaAsの交互成長時. いずれの像からもstep ordering示す回折斑点が観測されている.

## (2) 構造評価

得られた構造を XRD, TEM により評価した。まず、220 基本回折を XRD により結晶性と平均組成について評価した。測定は、 $2\theta$  を InP のブラッグ角 ( $43.58^\circ$ ) に固定し、 $\theta$  のみを変化させた ( $\theta$ -scan)。図 3.7.6 に得られた強度曲線 (rocking curve) を示す。成長した結晶の回折ピークは InP 基板から高角側 +398 arcsec にあった。二軸性の歪 (bi-axial strain) に格子変形を考慮して、

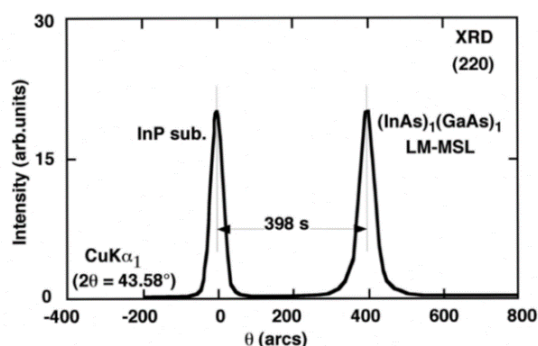


図3.7.6. (110)面から[00-1]方向に3°傾斜させたInP基板上に成長した (InAs)<sub>1</sub>(GaAs)<sub>1</sub> LM-MSL から得られた (220) 近傍のXRD.

Vegard 則を仮定して求めた InAs の組成は、0.497 ( $\Delta a/a = -2.4 \times 10^{-3}$ )であった。意図した平均組成が得られていることがわかる。また、成長した結晶の回折ピークの半値幅は 41 arcsec であり、InP 基板 (37 arcsec) とほぼ同等であった。格子や組成の大きな乱れはないと考えられる。

次に TED により、長周期構造の形成に起因する超構造回折について調べた。図 3.7.7. (a) に(1-10)断面試料から得られた TED 像を示す。基本回折以外に (b) に示す CuAu-I 型の超構造回折位置を中心に[001]方向に分裂した回折斑点が得られている ( $h, k, l \pm 1/13$ ), ( $h, k, l$ )は(even, even, odd)または (odd, odd, even)

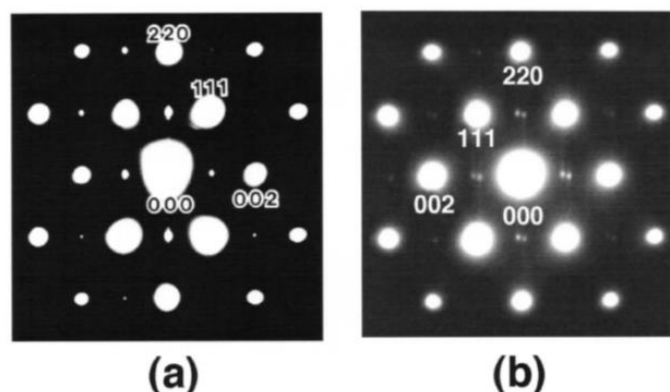


図3.7.7. (110)面から[00-1]方向に5°傾斜させたInP基板上に成長した (a) 規則したInGaAs混晶の (-110)断面のTED像と(b) 3°傾斜させた基板上に成長した (InAs)<sub>1</sub>/(GaAs)<sub>1</sub> LM-MSL の(1-10)断面のTED像 [3.7.1].

で **CuAu-I** 型の超構造回折位置)。単純な **CuAu-I** 型の規則構造とは異なり、[001] 方向に **CuAu-II** 型の長周期構造が形成されていることがわかる。

ここで、**LM-MSL** の回折強度について検討する。**LM-MSL** 構造は図 3.7.8.(a), (b)に示すように、**CuAu-I** 型の小単位格子が  $z$  軸方向に  $M$  個連なり、逆位相境界を介して **GaAs** と **InAs** の位置が入れ替わり、さらに  $M$  個連なる構造となっている。この構造では、(c)に示すように **CuAu-I** 型構造の散乱因子を持つ小単位格子からなる領域  $I$  と **GaAs** と **InAs** の位置が入れ替わった小単位格子からなる領域  $II$  とからなり、領域  $I$  と領域  $II$  との間では組成位相が  $(h+l)/2$  だけずれている。こうした構造の構造因子、 $F_{LM-MSL}$  は、領域  $I$  の **CuAu-I** 型の小単位格子の散乱因子を  $f_I$  とすると、

$$F_{LM-MSL} = F_I + F_{II} \quad (3.9)$$

$$= f_I \frac{\exp[2\pi i Ml] - 1}{\exp[2\pi i l] - 1} \{1 + \exp[\pi i \{h + (2M + l)l\}]\} \quad (3.10)$$

となり（詳細は付録 1, 2 を参照）、また Laue の回折関数、 $|G_{LM-MSL}|^2$  は、

$$|G_{LM-MSL}|^2 = \frac{\sin^2 N_1 \pi h}{\sin^2 \pi h} \frac{\sin^2 N_2 \pi k}{\sin^2 \pi k} \frac{\sin^2 N_3 \pi 2Ml}{\sin^2 \pi 2Ml} \quad (3.11)$$

であるから、実際に得られる回折強度は、

$$|F_{LM-MSL}|^2 |G_{LM-MSL}|^2 \quad (3.12)$$

$$= \frac{\sin^2 N_1 \pi h}{\sin^2 \pi h} \frac{\sin^2 N_2 \pi k}{\sin^2 \pi k} \frac{\sin^2 N_3 \pi 2Ml}{\sin^2 \pi 2Ml} \frac{\sin^2 \pi Ml}{\sin^2 \pi l} \cos^2 \frac{\pi}{2} (h + (2 + l) l) \quad (3.13)$$

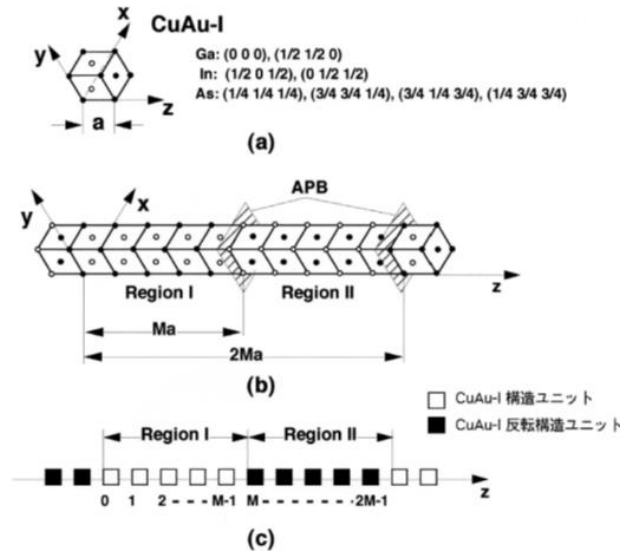


図3.7.8. (a) CuAu-I 型に規則化したInGaAs と (b)  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSL構造の原子配置および (c) 構造模式図。

に比例することになる。図 3.7.9. (a), (b) は、 $(11l)$ と $(22l)$ 上での  $l$  に対する変化を計算した例 ( $M=5$  で計算) である。 $(11l)$  では、 $(110)$  の強度は 0 となり、その近傍  $(11\pm 1/2M)$ ,  $(11\pm 3/2M)$ ,  $(11\pm 5/2M) \cdots$  に長周期構造に起因した付加的

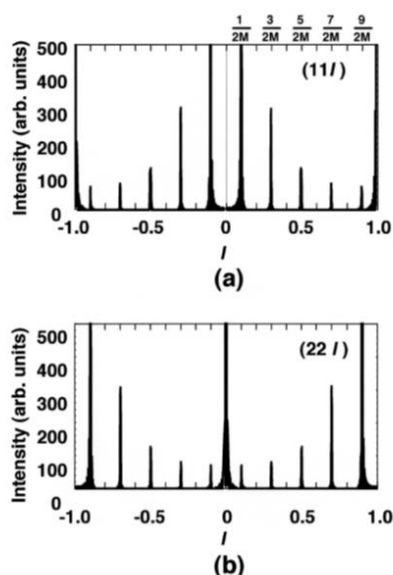


図3.7.9.  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSLの回折強度の計算値. (a)  $11l$ , (b)  $22l$ . 計算では  $M=5$  を仮定.

に分裂した回折斑点が現れることになる。しかし、高次になるにしたがいその強度は弱くなるため、実際に観察されるのは低次の $(11\pm 1/2M)$ の回折斑点のみと考えられる。一方、(b)に見られるように  $(22l)$  上では、基本回折近傍には付加的な回折はない。したがって、図 3.7.10 に模式的に示すように、 $(h, k, l\pm 1/2M)$  で、 $(h, k, l)$ は(even, even, odd)または (odd, odd, even) の CuAu-I 型の超構造回折位置を中心に回折斑点对が現れることになる。

成長に使用した基板の傾斜角は  $3^\circ$  であるから、その平均テラス長は、4.0 nm となる。この場合、CuAu-I 型の小単位格子 ( $a = 0.58686$  nm)は、1つのテラス上に平均的に 6.8 個並ぶ ( $M = 6.8$ ) ことになる。したがって、回折斑点は、 $(h, k, l\pm 1/13.6)$  (ここで、 $(h, k, l)$  は (even, even, odd) または (odd, odd, even)の CuAu-I 型超構造回折位置) に回折斑点が現れることになる。

図 3.7.7.(a)に示した $(-110)$ 断面試料から得られた TED 像では  $(h, k, l\pm 1/13.5)$  付近に明瞭な回折斑点对が

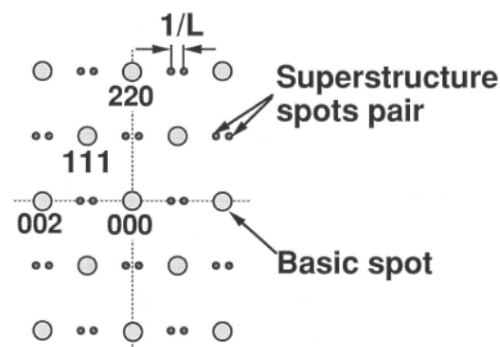


図3.7.10.  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSL構造の $(-110)$ 断面から得られる回折斑点の位置.

現れており、図 3.7.4 に示した長周期構造が基本的には形成できていることを示している。

一方、図 3.7.7.(a)に示した **TED** 像に見られるように分離した回折斑点对は、[001]方向に完全に一致して分離しているのではなく、成長方向に傾いた軸上に配置している。これら回折の位置をより詳細に調べるため、**XRD** 測定を行った。図 3.7.11.(a) は(110)近傍の XRD 強度曲線 (rocking curve)である。測定は(b)に示すように  $2\theta$ をブラッグ角付近に固定して $\theta$ のみをスキャンすることにより測

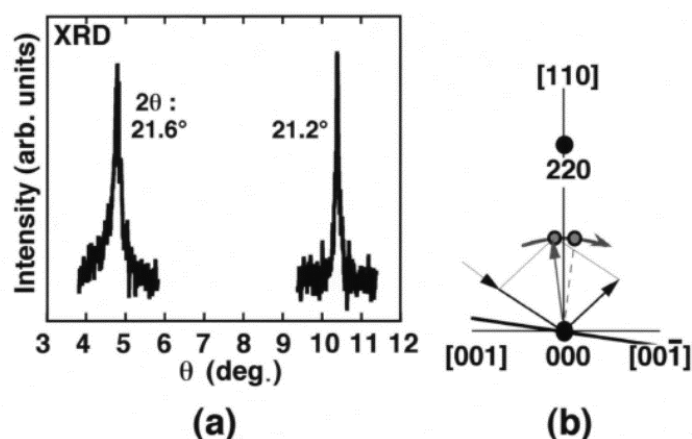


図3.7.11. (110)面から[00-1]方向に3°傾斜させたInP基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSLから得られた (a) (110)近傍のXRDと(b) 逆格子上のスキャン位置[3.7.1].

定した。回折強度は  $(2\theta, \theta)$ が $(21.60^\circ, 4.77^\circ)$ ,  $(21.20^\circ, 10.40^\circ)$ のとき最大となった。これら回折位置は図 3.7.12.(a)に示すようにそれぞれ  $(1.01, 1.01, 0.07)$ と  $(0.99, 0.99, -0.07)$ に対応し、[00 $\bar{1}$ ]軸に対して $-10.4^\circ$ 傾いた軸上にある。こうした回折斑点对の傾きは、(b)に示すように長周期構造が傾いていることに起因している。

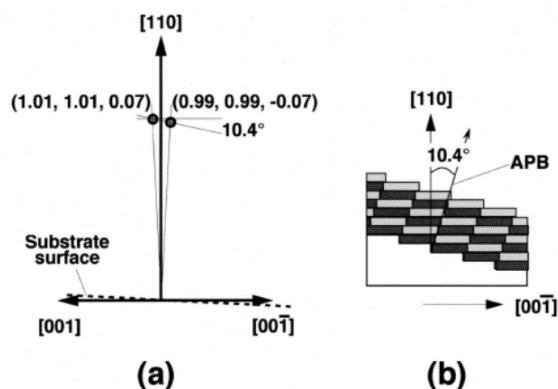


図3.7.12. XRDにより求めた (a) 回折斑点の位置 (逆格子)と (b) 実格子の模式図.

微傾斜基板上でのステップフロー成長においては、サイクルあたりの供給量の違いにより形成される構造が変化する。図 3.7.13 に(InAs)<sub>1</sub>/(GaAs)<sub>1</sub> LM-MSL 成長においてサイクルあたりの成長量が増えたときの形成構造の変化を模式的に示す。サイクルあたりの InAs の供給量を M (ML), GaAs の供給量を N (ML)

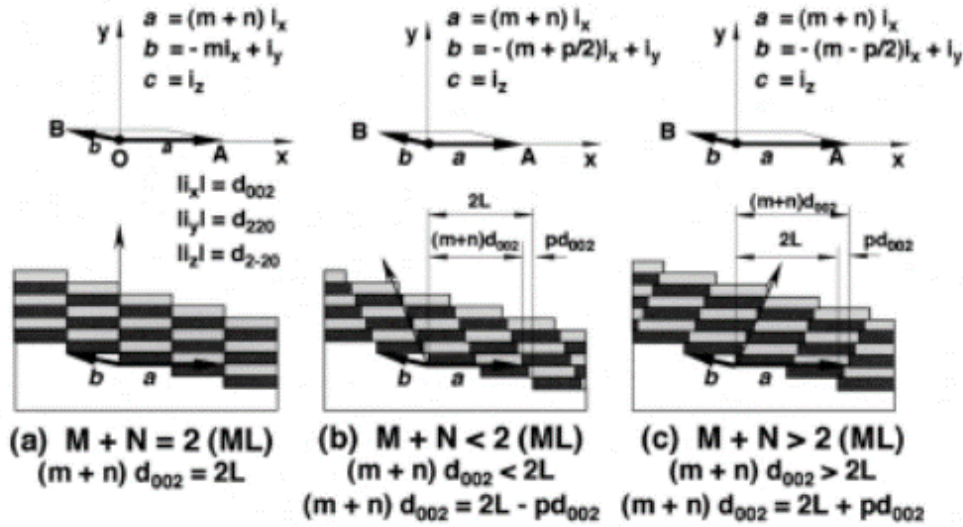


図3.7.13. サイクルあたりの供給量 (M+N) の変化による構造変化(実格子). (a) (M+N) が 2 ML 相当の場合, (b) (M+N) が 2 ML 相当より不足している場合, (c) (M+N) が 2 ML 相当より過剰な場合.

として、M+N が 2 ML に一致している場合、(a)に示すように横方向周期, (m+n) は基板の平均テラス長, L の 2 倍に一致 ((m+n) = 2L) し、APB は[110]方向に形成される。一方、サイクルあたりの供給量 (M+N) が 2 ML に対して過不足がある場合、(b), (c)に示すように横方向周期, (m+n) は基板の平均テラス長の 2 倍より過不足のある分,  $p \cdot d_{002}$  ( $p$  分子列の幅の分) だけ短く (または長く) なり、APB は平均的に[110]方向から傾いて形成される。こうした場合、逆格子は図 3.7.14. (a) - (c)に示すようになり、x 軸に対して傾いて現れることになる。この傾き角  $\theta$  は、サイクルあたりの過不足量,  $p$  また基板の傾斜角  $\alpha$  として、

$$\tan \theta = \frac{1}{2} \frac{p}{\tan \alpha} \quad (3.14)$$

となり、傾き  $\theta$  は、サイクルあたりの供給量の 2ML に対する過不足量,  $p$  と基板の傾斜角,  $\alpha$  に決まることになる。先に XRD 測定により示した回折斑点対の傾きは[00]軸に対して-10.4°傾いていた。成長に用いた基板の傾斜角,  $\alpha$  は3°であるから、式 (3.14) より、サイクルあたりの供給量は平均 0.019 ML (0.95%) 程度過剰供給であったことを示している。

以上示したように、形成される構造はサイクルあたりの供給量の僅かなずれや

基板の傾斜角により敏感に変化するもの、面内長周期構造を有する規則混晶が形成できていることがわかった。

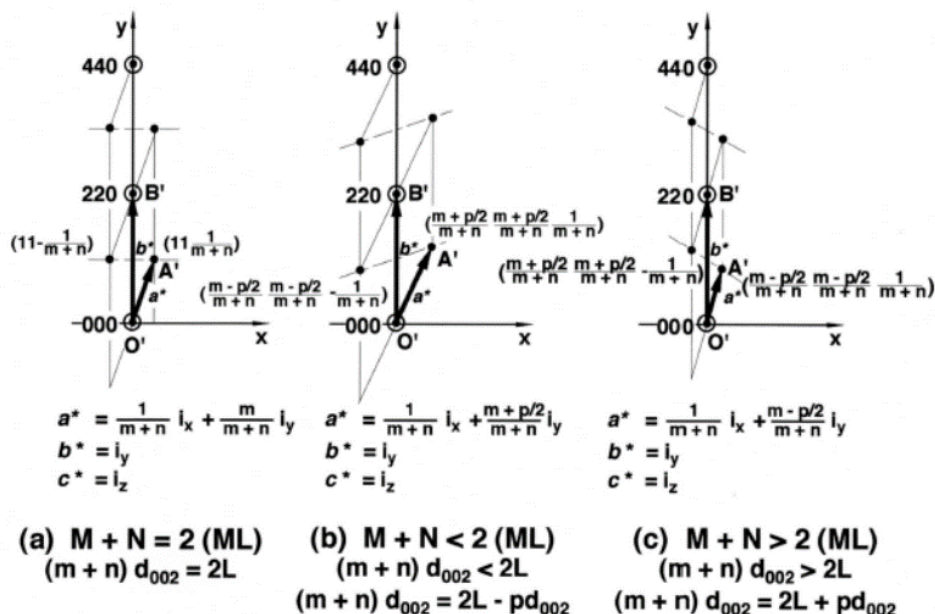


図3.7.14. サイクル当たりの供給量 (M+N) の変化による構造変化 (逆格子). (a) (M+N) が 2 ML 相当の場合, (b) (M+N) が 2 ML 相当より不足している場合, (c) (M+N) が 2 ML 相当より過剰な場合.

### 3-8 規則混晶 $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$ LM-MSL の電子移動度

本節では、前節に示した(110) InP 微傾斜基板上にステップフロー成長を利用して形成した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSL の電子移動度を評価した結果について示す。

として MSL を電子走行層にした選択ドープ構造を成長し、その 2DEG 移動度をホール測定により評価した。図 3.8.1 に成長した試料の断面構造をに示す。600 nm 厚さの InAlAs バッファ層状に 50 nm 厚さの  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSL を電子走行層として成長し、10 nm 厚さの InAlAs スペーサ、90 nm 厚さの Si ドープ ( $\text{Si}: 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ) の InGaAs 電子供給層、及び 10 nm 厚さの Si ドープ ( $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ) の InGaAs コンタクト層を成長し

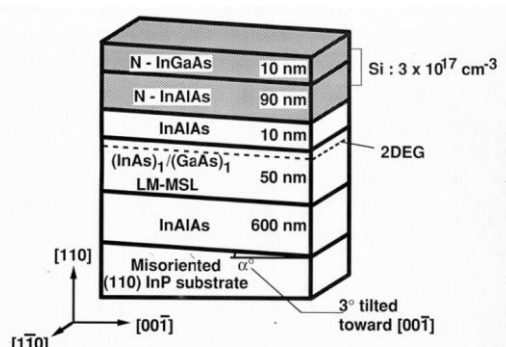


図 3.8.1. (110)面から[00-1]方向に3°傾斜させたInP基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSLを電子走行層としたSD構造の模式図.

た。すべての層の成長においては **RHEED** でモニタし、単分子層の **step ordering** が維持されていることを確認している。ホール測定は、ステップに平行な  $[1\bar{1}0]$  方向とステップに直交する  $[001]$  方向にエッチングによりホールバーを作製し、上記 2 つ方向の **2DEG** 移動度を測定した。

**2DEG** 移動度とシート電子濃度の測定温度依存性を図 3.8.2 に示す。また、表 3.8.1 に、この構造より得られた **2DEG** 移動度と電子濃度を 3-6 節で示した

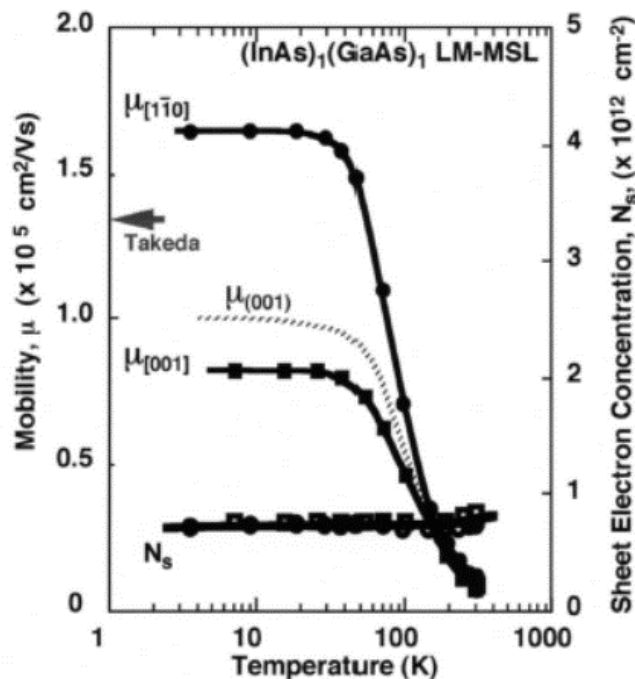


図3.8.2. (110)面から $[00\bar{1}]$ 方向に $3^\circ$ 傾斜させたInP基板上に成長した $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSLを電子走行層とするSD構造から得られた2DEG移動度と面濃度の測定温度依存性 [3.7.1].

表3.8.1. (110)面から $[00\bar{1}]$ 方向に $3^\circ$ 傾斜させたInP基板上に成長した $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSLを電子走行層としたSD構造の2DEG移動度 ( $[-110]$ 方向,  $[001]$ 方向)と規則化したInGaAsの2DEG移動度.

|                                                                          |                                            | 300 K  | 77 K    | 4.2 K   |
|--------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------|--------|---------|---------|
| $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$<br>LM-MSL<br>(on $3^\circ$ tilted sub.) | $\mu_{[-110]}$ ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ ) | 12,000 | 110,200 | 165,500 |
|                                                                          | $\mu_{[001]}$ ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ )  | 9,600  | 63,900  | 83,400  |
|                                                                          | Ratio<br>( $\mu_{[-110]}/\mu_{[001]}$ )    | 1.3    | 1.7     | 2.0     |
| Ordered<br>InGaAs<br>(on $5^\circ$ tilted sub.)                          | $\mu_{[-110]}$ ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ ) | 12,800 | 96,600  | 152,900 |
|                                                                          | $\mu_{[001]}$ ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ )  | 12,700 | 70,100  | 100,500 |
|                                                                          | Ratio<br>( $\mu_{[-110]}/\mu_{[001]}$ )    | 1.0    | 1.4     | 1.5     |

**CuAu-I** 型の規則構造から得られたものと合わせて示す。移動度は異方的であった。ステップに平行な  $[1\cdot10]$  方向の移動度は、ステップに直交する  $[001]$  方向の移動度に比べ、特に低温領域において、大きな移動度を示した。図中の破線は、通常の  $(001)$  基板上に成長した  $\text{InGaAs}/\text{N-InAlAs}$  選択ドープ構造から得られている **2DEG** 移動度と電子濃度である。 $[1\cdot10]$  方向の移動度は、 $165,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  にまで達しており、破線で示した通常の混晶の移動度 ( $110,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  [3.8.1]) を大きく上回っている。こ一方、 $[001]$  方向の移動度はむしろ通常混晶の移動度より低い値となっている。これは、以下のように考えられる。図 3.8.3 は予想される構造を模式的に示したものである。ステップ端の形状は、**AFM** で観察され

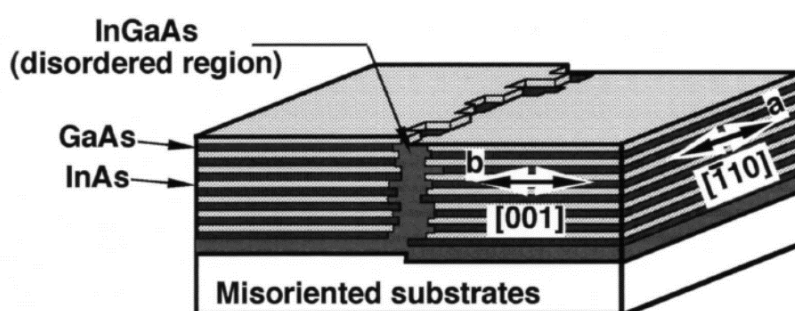


図3.8.3.  $(110)\text{InP}$ 微傾斜基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSLの予想される構造の模式図.

たようにやや「うねり」を伴っている。これにより、部分的な **disordering** が起こり、ステップ端の **APB** 近傍では規則化に乱れが生じていることが予想される。 $[001]$  方向では、電子はこれらを横切って走行することになり、これら不規則領域の散乱を受けることになる。一方、ステップ端に平行な  $[1\cdot10]$  方向では、これら散乱のない規則領域と散乱されやすい不規則領域の 2 領域の並列伝導となり、これらの平均として測定されることにより高い移動度となっているものと考えられる。

$[1\cdot10]$  方向の移動度は、理論的に予測されている合金散乱が完全に抑制された場合の移動度 ( $1 \times 10^6 \text{ cm}^2/\text{Vs}^{72})$  に比べ低い。これは、規則化がまだ完全ではなく、**disordered** 領域がまだ  $[1\cdot10]$  方向にも残っていることが考えられる。また **TED** に見られるように超構造回折は  $[110]$  成長方向にストリークを伴っている。これは横方向（成長方向と直交する方向）にも **APB** が形成されおり、この影響を受けている可能性もある。成長条件の更なる最適化などにより、これらの **disordering** を抑制することができれば、電子散乱は抑制され、さらに高い移動度が得られるものと考えられる。

### 3-9 まとめ

本章では、高速素子、光素子材料と重要な InP に格子整合した InGaAs 混晶に注目し、In と Ga 原子の規則化とその電気的特性、光学的特性について示した。In と Ga 原子が副格子中で規則的に配列した規則化した InGaAs 混晶では、通常の InGaAs 混晶とは異なる応用上優れた特性が期待できることを述べ、その形成方法として (110) 基板上に成長した InGaAs 混晶中の規則化を利用することを提案した。そこで、まず (110) 基板上への MBE 成長について調べ、平坦成長するためには [00-1] 方向に傾斜させた基板が有効であることを示した。次に、上記基板上に成長した InGaAs 混晶中に  $(\text{InAs})_1(\text{GaAs})_1$  MSL と同じ原子配置となる CuAu-I 型の規則構造が形成されることを TEM 観察により示した。規則化は完全ではなく、(110) 面から僅かに傾いた薄層状のドメインを形成していることを明らかにした。また、規則化と成長条件との関係、成長条件と成長表面に形成されるステップ構造との関係より、CuAu-I 型の規則化には、成長時に形成されるステップ構造、特に 2 分子層からなる多段ステップが重要な役割を果たしていることを示し、これに基づくモデルを提案した。また、規則化した InGaAs 混晶を電子走行層に用いた InGaAs/N-InAlAs SD 構造を作製し、規則化した InGaAs 混晶の 2DEG 移動度について示した。室温付近においては通常の InGaAs 混晶との間に差異は認められないものの、100K 以下の低温領域において、合金散乱が抑制されたことによると考えられる通常の InGaAs 混晶の移動度 ( $100,000 \text{ cm}^2/\text{Vs} - 115,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ) を大きく上回る高い移動度 (20K 以下で  $165,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ) が得られることを示した。また、規則化した InGaAs 混晶の PL 発光特性において、発光波長の大きな差異は確認されなかったものの、その半値幅において、規則化の度合いが増すにしたがい狭くなることを確認した。

また、規則化手法として、微傾斜基板上でのステップフロー成長を用いて、InAs と GaAs を交互に供給するといった人為的に構成原子を配列させる手法について示し、TEM, XRD によりステップ周期に対応した横変調周期を持つ単分子層超格子 (LM-MSL) が形成されていることを明らかにした。これら InGaAs 規則混晶からは、通常の不規則混晶より 1.6 倍も高い、合金散乱が抑制されたと思われる高い電子移動度が得られることを示した。

今後、規則化のメカニズムをより鮮明にし、規則化の度合いを高めることにより更なる移動度の増大や光学特性の変化が期待でき、高速素子、光素子の有力な材料候補になると考えられる。

## 第3章の参考文献

### ■ 3-1 節

- [3.1.1] A. Taguchi, T. Ohno, Phys. Rev., B36, p. 1696 (1987).
- [3.1.2] J. E. Bernard, S. H. Wei, D. M. Wood, A. Zunger, Appl. Phys. Lett., 52, p. 311 (1988).
- [3.1.3] S. H. Wei, A. Zunger, Phys. Rev., B39, p. 3279 (1989).
- [3.1.4] A. C. Gossard, P. M. Petroff, W. Weigmann, R. Dingle, A. Savage, Appl. Phys. Lett., 29, p. 323 (1976).
- [3.1.5] J. P. van der Ziel, A. C. Gossard, J. Appl. Phys., 48, p. 3018 (1977).
- [3.1.6] A. C. Gossard, Thin Solid Films, 57, p. 13 (1979).
- [3.1.7] T. Fukui, H. Saito, Jpn. J. Appl. Phys., 23, p. L521 (1984).
- [3.1.8] T. Fukui, J. Cryst. Growth, 93, p. 301 (1988).
- [3.1.9] H. Toyoshima, T. Anan, K. Nishi, T. Ichihashi, A. Okamoto, J. Appl. Phys., 68, p. 1282 (1990).
- [3.1.10] M. Ozeki, K. Kodama, Y. Sakuma, N. Ohtsuka, T. Takanohashi, J. Vac. Sci. Technol., B8, p. 741 (1990).
- [3.1.11] T. Yao, Jpn. J. Appl. Phys., 22, p. L680 (1983).
- [3.1.12] J. J. Tietjen, L. R. Wesberg, Appl. Phys. Lett., 7, p. 261 (1965).
- [3.1.13] M. Glicksman, R. E. Enstrom, S. A. Mittleman, J. R. Appert, Phys. Rev., B9, p. 1621 (1974).
- [3.1.14] J. W. Harris, J. R. Hauser, J. Appl. Phys., 47, p. 292 (1976).
- [3.1.15] G. Bastard, Appl. Phys. Lett., 43, p. 591 (1983).
- [3.1.16] W. Walukiewicz, H. E. Ruda, J. Lagowski, H. C. Gatos, Phys. Rev., B30, p. 4571 (1984).
- [3.1.17] Y. Takeda, A. Sasaki, Jpn. J. Appl. Phys., 24, p. 1307 (1985).
- [3.1.18] P. M. Petroff, A. C. Gossard, W. Weigmann, A. Savage, J. Cryst. Growth 44, p. 5 (1978).
- [3.1.19] N. Sana, H. Kato, M. Nakayama, S. Chika, H. Terauchi, Jpn. J. Appl. Phys., 23, p. L640 (1984).
- [3.1.20] R. Katsumi, H. Ohno, T. Takama, H. Hasegawa, Inst. Phys. Conf. Ser. No. 79, p.391, Paper presented at Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Karuizawa, Japan (1985).
- [3.1.21] K. Nishi, T. Anan, Y. Ide, K. Onabe, J. Crystal Growth 95, p. 202 (1989).
- [3.1.22] A. G. Khachaturyan, Phys. Status Solidi (b), 60, p. 9 (1973).
- [3.1.23] T. S. Kuan, T. F. Kuech, W. I. Wang, E. L. Wilkie, Phys. Rev. Lett., 54, p. 201

- (1985).
- [3.1.24] A. Gmyo, K. Kobayashi, S. Kawata, I. Hino, T. Suzuki, *J. Cryst. Growth* 77, p. 367 (1986).
- [3.1.25] O. Ueda, M. Takikawa, J. Komeno, I. Umebu, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 23, p. L1824 (1987).
- [3.1.26] A. Gomyo, T. Suzuki, K. Kobayashi, I. Hino, *Appl. Phys. Lett.*, 50, p. 673 (1987).
- [3.1.27] P. Bellon, J. P. Chevalier, G. P. Martin, E. Dupont-Nivet, C. Thiebaut, J. P. Andre, *Appl. Phys. Lett.*, 52, p. 567 (1988).
- [3.1.28] S. McKerman, B. C. DeCooman, C. B. Carter, D. P. Bour, J. R. Shealy, *J. Mat. Res.*, 3 p. 406 (1988).
- [3.1.29] A. Gomyo, T. Suzuki, T. Iijima, *Phys. Rev. Lett.*, 60 p. 2645 (1988).
- [3.1.30] H. Nakayama, H. Fujita, *Inst. Phys. Conf. Ser. No. 79*, p. 289, Paper presented at Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Karuizawa, Japan (1985).
- [3.1.31] T. S. Kuan, W. I. Wang, E. L. Wilkie, *Appl. Phys. Lett.*, 51, p. 51 (1987).
- [3.1.32] M. A. Shahid, S. Mahajan, D. E. Laughlin, H. M. Cox, *Phys. Rev. Lett.*, 24, p.2567 (1987).
- [3.1.33] D. J. Arent, M. Bode, K. A. Gertness, S. R. Kurtz, M. Olson, *Appl. Phys. Lett.*, 65, p. 1806 (1993).
- [3.1.34] T. Y. Seon, A. G. Norman, G. R. Booker, A. G. Cullis, *J. Appl. Phys.*, 75, p. 7852 (1994).
- [3.1.35] A. Gomyo, K. Makita, I. Hino, T. Suzuki, *Phys. Rev. Lett.*, 72, p. 673 (1994).
- [3.1.36] A. Gomyo, K. Makita, I. Hino, T. Suzuki, *J. Cryst. Growth*, 150, p. 533 (1995).
- [3.1.37] O. Ueda, T. Fujii, Y. Nakata, H. Yamada, *J. Cryst. Growth*, 95, p. 38 (1989).
- [3.1.38] H. R. Jen, M. J. Chering, G. B. Stringfellow, *Appl. Phys. Lett.*, 48, p. 1603 (1986).
- [3.1.39] H. R. Jen, M. J. Chering, M. J. Jou, Stringfellow, *Inst. Phys. Conf. Ser. No. 83*, p.159, Paper presented at Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Las Vegas, Nevada (1986).
- [3.1.40] Y. E. Ihm, N. Otsuka, J. Klem, H. Morkoc, *Appl. Phys. Lett.*, 51, p. 2013 (1987).
- [3.1.41] O. Ueda, Y. Nakata, S. Muto, *Proc. of the 7<sup>th</sup> Int. Conf. on Indium Phosphide and Related Materials*, Sapporo, Japan, p. 253 (1996).
- [3.1.42] O. Ueda, Y. Nakata, T. Fujii, *Appl. Phys. Lett.*, 58, p. 705 (1991).
- [3.1.43] Y. Nakata, O. Ueda, T. Fujii, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 30, p. L249 (1991).
- [3.1.44] Y. Nakata, O. Ueda, T. Fujii, *J. Cryst. Growth*, 115, p.504 (1991).
- [3.1.45] O. Ueda, Y. Nakata, T. Nakamura, T. Fujii, *J. Cryst. Growth*, 115, p. 375 (1991).
- [3.1.46] Y. Nakata, O. Ueda, M. Muto, in *Conf. Proc., Seventh International Conference*

on Indium Phosphide and Related Materials, p. 165, Hokkaido, Japan ; 9-13 May (1995).

[3.1.47] O. Ueda, Y. Nakata, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 523 (1995).

[3.1.48] Y. Nakata, O. Ueda, T. Inata, S. Nakamura, S. Sasa, M. Muto, Inst. Phys. Conf. Ser. No 129, p. 435, paper presented at Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Karuizawa, Japan (1992).

### ■ 3-2 節

[3.2.1] T. S. Kuan, W. I. Wang, E. L. Wilkie, Appl. Phys. Lett., p. 51 (1987).

[3.2.2] J. M. Ballingall, C. E. C. Wood, Appl. Phys. Lett., p. 41 (1982).

[3.2.3] W. I. Wang, J. Vac. Sci. Technol., B1, p.630 (1983).

[3.2.4] L. P. Allen, E. R. Weber, J. Washburn, Y. C. Pao, Appl. Phys. Lett., 51, p. 670 (1987).

[3.2.5] L. T. P. Allen, E. R. Weber, J. Washburn, Y. C. Pao, A. G. Elliot, J. Cryst. Growth, 87, p. 193 (1988).

[3.2.6] R. Notzel, L. Daweritz, N. N. Ledentsov, K. Ploog, Appl. Phys. Lett., 60, p. 1615 (1991).

[3.2.7] M. Sato, K. Kaehashi, H. Asahi, S. Hasegawa, H. Nakashima, Sup. and Microstruc., 7, p. 279 (1990).

[3.2.8] S. Hasegawa, M. Sato, K. Maehashi, H. Asahi, H. Nakashima, J. Cryst. Growth, 111, p. 371 (1991).

[3.2.9] Y. Nakata, O. Ueda, T. Fujii, Jpn. J. Appl. Phys., 30, p. L249 (1991).

[3.2.10] Y. Nakata, O. Ueda, T. Fujii, J. Cryst. Growth, 115, p.504 (1991).

[3.2.11] O. Ueda, Y. Nakata, T. Fujii, Appl. Phys. Lett., 58, p. 705 (1991).

[3.2.12] T. S. Kuan, T. F. Kuech, W. I. Wang, E. L. Wilkie, Phys. Rev. Lett., 54, p. 201 (1985).

[3.2.13] T. S. Kuan, W. I. Wang, E. L. Wilkie, Appl. Phys. Lett., 51, p. 51 (1987).

[3.2.14] O. Ueda, Y. Nakata, T. Nakamura, T. Fujii, J. Cryst. Growth, 115, p. 375 (1991).

### ■ 3-3 節

[3.3.1] O. Ueda, Y. Nakata, T. Nakamura, T. Fujii, J. Cryst. Growth, 115, p. 375 (1991).

[3.3.2] O. Ueda, Y. Nakata, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 523 (1995).

[3.3.3] A. Gomyo, T. Suzuki, T. Iijima, Phys. Rev. Lett., 60 p. 2645 (1988).

[3.3.4] M. Kondow, H. Kitabayashi, S. Minagawa, Y. Inoue, T. Nishino, Y. Hamakawa, Appl. Phys. Lett., 53, p. 2053 (1988).

[3.3.5] M. Kondow, H. Kitabayashi, S. Minagawa, Inst. Phys. Conf. Ser. No. 106, p.93,

paper presented at Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Karuizawa, Japan (1989).

[3.3.6] A. Gomyo, K. Makita, I. Hino, T. Suzuki, Phys. Rev. Lett., 72, p. 673 (1994).

[3.3.7] A. Gomyo, T. Suzuki, K. Kobayashi, S. Kawata, H. Hotta, I. Hino, Extended Abstract (The 38<sup>th</sup> Spring Meeting, 1991); The Japan Society of Applied Physics and Related Societies 30a-ZG-5, p. 288 (1991).

[3.3.8] A. Gomyo, T. Suzuki, K. Kobayashi, Y. Ueno, I. Hino, Extended Abstract (The 51<sup>th</sup> Autumn Meeting, Morioka, 1990); The Japan Society of Applied Physics 27a-SX-13, p. 269 (1990).

### ■ 3-4 節

[3.4.1] A. Gomyo, K. Makita, I. Hino, T. Suzuki, Phys. Rev. Lett., 72, p. 673 (1994).

[3.4.2] A. Gomyo, K. Makita, I. Hino, T. Suzuki, J. Cryst. Growth, 150, p. 533 (1995).

[3.4.3] I. J. Murgatroyd, A. G. Norman, G. R. Booker, J. Appl. Phys., 67, p. 2310 (1990).

[3.4.4] S. Froyen, A. Zunger, Phys. Rev. Lett., 66, p. 2132 (1991).

[3.4.5] M. Sato, K. Kaehashi, H. Asahi, S. Hasegawa, H. Nakashima, Sup. and Microstruc., 7, p. 279 (1990).

[3.4.6] S. Hasegawa, M. Sato, K. Maehashi, H. Asahi, H. Nakashima, J. Cryst. Growth, 111, p. 371 (1991).

[3.4.7] J. M. Ballingall, C. E. C. Wood, Appl. Phys. Lett., p. 41 (1982).

[3.4.8] W. I. Wang, J. Vac. Sci. Technol., B1, p.630 (1983).

[3.4.9] L. P. Allen, E. R. Weber, J. Washburn, Y. C. Pao, Appl. Phys. Lett., 51, p. 670 (1987).

[3.4.10] L. T. P. Allen, E. R. Weber, J. Washburn, Y. C. Pao, A. G. Elliot, J. Cryst. Growth, 87, p. 193 (1988).

[3.4.11] R. Notzel, L. Daweritz, N. N. Ledentsov, K. Ploog, Appl. Phys. Lett., 60, p. 1615 (1991).

[3.4.12] Y. Nakata, O. Ueda, M. Muto, in Conf. Proc., Seventh International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, p. 165, Hokkaido, Japan ; 9-13 May (1995).

[3.4.13] Y. Nakata, O. Ueda, T. Inata, S. Nakamura, S. Sasa, M. Muto, Inst. Phys. Conf. Ser. No 129, p. 435, paper presented at Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Karuizawa, Japan (1992).

[3.4.14] Y. Nakata, O. Ueda, A. Tackeuchi, S. Nakamura, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 341 (1995).

[3.4.15] O. Ueda, Y. Nakata, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 523 (1995).

### ■ 3-5 節

- [3.5.1] A. Gomyo, K. Makita, I. Hino, T. Suzuki, Phys. Rev. Lett., 72, p. 673 (1994).
- [3.5.2] A. Gomyo, K. Makita, I. Hino, T. Suzuki, J. Cryst. Growth, 150, p. 533 (1995).
- [3.5.3] I. J. Murgatroyd, A. G. Norman, G. R. Booker, J. Appl. Phys., 67, p. 2310 (1990).
- [3.5.4] S. Froyen, A. Zunger, Phys. Rev. Lett., 66, p. 2132 (1991).
- [3.5.5] O. Ueda, Y. Nakata, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 523 (1995).

### ■ 3-6 節

- [3.6.1] T. Yao, Jpn. J. Appl. Phys., 22, p. L680 (1983).
- [3.6.2] J. J. Tietjen, L. R. Wesberg, Appl. Phys. Lett., 7, p. 261 (1965).
- [3.6.3] M. Glicksman, R. E. Enstrom, S. A. Mittleman, J. R. Appert, Phys. Rev., B9, p. 1621 (1974).
- [3.6.4] J. W. Harris, J. R. Hauser, J. Appl. Phys., 47, p. 292 (1976).
- [3.6.5] G. Bastard, Appl. Phys. Lett., 43, p. 591 (1983).
- [3.6.6] W. Walukiewicz, H. E. Ruda, J. Lagowski, H. C. Gatos, Phys. Rev., B30, p. 4571 (1984).
- [3.6.7] Y. Takeda, A. Sasaki, Jpn. J. Appl. Phys., 24, p. 1307 (1985).
- [3.6.8] Y. Nakata, O. Ueda, T. Fujii, Jpn. J. Appl. Phys., 30, p. L249 (1991).
- [3.6.9] Y. Nakata, O. Ueda, T. Fujii, J. Cryst. Growth, 115, p. 504 (1991).
- [3.6.10] K. Onabe, Y. Tashiro, Y. Ide, Surf. Sci., 174, p. 401 (1986).
- [3.6.11] A. Gomyo, K. Kobayashi, S. Kawata, I. Hino, T. Suzuki, J. Cryst. Growth 77, p. 367 (1986).
- [3.6.12] A. Gomyo, T. Suzuki, K. Kobayashi, I. Hino, Appl. Phys. Lett., 50, p. 673 (1987).
- [3.6.13] S. McKerman, B. C. DeCooman, C. B. Carter, D. P. Bour, J. R. Shealy, J. Mat. Res., 3 p. 406 (1988).
- [3.6.14] A. Gomyo, T. Suzuki, T. Iijima, Phys. Rev. Lett., 60 p. 2645 (1988).
- [3.6.15] T. Fukui, H. Saito, Jpn. J. Appl. Phys., 23, p. L521 (1984).
- [3.6.16] T. Fukui, J. Cryst. Growth, 93, p. 301 (1988).

### ■ 3-7 節

- [3.7.1] Y. Nakata, O. Ueda, T. Inata, S. Nakamura, M. Miyauchi, S. Sasa, S. Muto, in Inst. Phys. Conf. Ser., No 129, Chapter 6, p. 435, paper presented at Int. Symp. GaAs and Related Compounds, Karuizawa, Japan (1992).

### ■ 3-8 節

- [3.8.1] K. Onabe, Y. Tashiro, Y. Ide, Surf. Sci., 174, p. 401 (1986).

## 第 4 章 InP 基板上の表面ステップを利用した面内原子配 列制御と量子構造の形成

### 4-1 はじめに

前章では、(110) InP 基板上への InGaAs の MBE 成長における規則化について示した。規則化は成長時の表面ステップ構造に強く依存しており、これを制御することにより顕著に規則化した構造を形成することができた。一方、傾斜基板上の表面ステップ配列 (step ordering) を利用することによって、構成原子を面内でステップ端を基点に配列制御できることを示し、これにより横方向に平均のステップ間隔に対応した周期構造をもつ LM-MSL が形成できることを示した。こうしたステップフロー成長では、図 4.1.1 に示すように供給した材料原子が、テラス上に 2 次元島を形成することなくステップ端に取り込まれることにより成長が進行する。そのため、テラス上には供給 phase に一致した組成 phase を持つ結晶が形成されることになる。そのため、異種材料を 1 分子

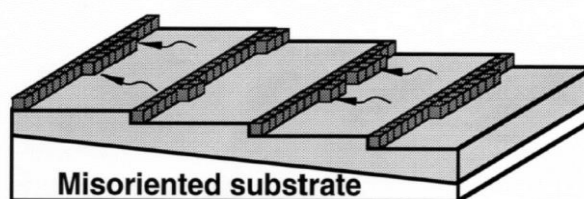


図 4.1.1. 微傾斜基板上のステップフロー成長の模式図. 供給した原子がステップ端に取り込まれることにより成長が進行する.

層以下 (分数原子層) で交互に繰り返し供給することによって、図 4.1.2 に示すような面内 1 次元方向に組成変調のある構造を形成することが可能となる。これはこれまでの積層技術と組み合わせることによりナノスケールの量子細線列を加工プロセスなし直接形成できることになる。こうした形成手法は、Petroff らにより提案され [4.1.1]、すでに (001) GaAs 微傾斜基板上で GaAs/Al(Ga)As から成る面内周期構造 (面内超格子 : In-plane superlattice : 以下 IPSL) の形成が MBE [4.1.2-7] や MOCVD [4.1.8-11] により試みられてきている。特に被着原子の表面移動が大きいとされる MOCVD においては、Fukui らによりステップ形成やその形状と成長条件との関係や被着原子のステップ端への取り込み機構など物理的な機構も含め幅広く調べられてきた [4.1.9]。TEM や XRD などによりステップ間隔に一致した横方向周期構造の形

成が確認されてきている。しかし、形成された構造の変調組成差は供給組成に対してかなり小さく、0.1~0.2 程度 [4.1.5, 12-14] であるとされている。ステップフロー成長により **IPSL** など面内周期構造を形成する場合、(1) ステップの周期性、(2) ステップ端の直線性、(3) 成長原子の **mixing** の抑制 (変調組成

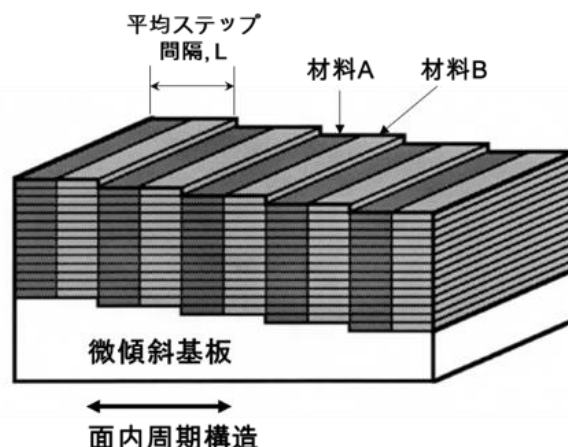


図 4.1.2. 微傾斜基板上でのステップフロー成長を利用して、A, B の2種類の材料を0.5分子層ずつ交互に成長することにより形成される面内超格子 (IPSL)の構造模式図.

差)が重要となる。特に、実用的な素子応用に向けては従来の超格子のように変調組成差を十分に大きくすることが必要となる。(110)InP 微傾斜基板上への InGaAs 成長では、比較的低い温度から **step ordering** が起こるとともに揺らぎの小さいステップ端が形成されていることも AFM により確認されており、面内周期構造の形成に優位であると考えられる。

本章では、(110) InP 微傾斜基板上のステップ形成を調べるとともにこの基板上でのステップフロー成長を利用した面内周期構造の形成について示す。以下 4-2 節では、この基板上の表面ステップ構造について **RHEED**, **AFM** により評価した結果を示す [4.1.15]。4-3 節では面内周期構造の形成として、(InAs)<sub>1</sub>/(GaAs)<sub>1</sub> MSL から成る InGaAs 規則混晶と (InAs)<sub>1</sub>/(AlAs)<sub>1</sub> MSL からなる InAlAs 規則混晶とによる **IPSL** 形成とその構造 [4.1.16, 17] について示す。さらに、4-4 節では格子定数が大きく異なる InAs と GaAs を同様に交互に成長して InAs /GaAs 歪面内超格子 (in-plane strained superlattice: 以下 **IPSSL**) を形成し、**TEM**, エネルギー分散型 X 線分光 (**EDX**), フォトルミネセンス (**PL**) により評価し、既報告の面内超格子では、最も変調組成差が大きな面内超格子が実現できていることを示す [4.1.18, 19]。最後に 4-5 節では本章で得られた結果を要約して示す。

## 4-2 (110) InP 基板上の InGaAs-InAlAs の表面ステップ構造と

### その制御

ステップフロー成長を利用して、面内周期構造を形成する場合、ステップ構造の制御が重要となる。前章で示したように (110) 面から [00-1] 方向に傾斜させた InP 基板上への InGaAs を成長においては、成長条件により単分子層および 2 分子層の **step ordering** が起こる。本節では、(110) InP 微傾斜基板上への成長において形成される表面ステップ構造と成長条件との関係[4.2.1, 2]について示す。

#### (1) (110) InP 基板上に形成される表面ステップ構造

図 4.2.1 は  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板上 (単分子層のステップが形成された場合の平均間隔は 4 nm) に InGaAs を成長している際の **RHEED** 像である。電子線は、ステップに平行な [1-10] 方向から入射させて観察している。(a), (b)に見られるように成長条件を変えることにより、分離間隔の異なる分離した回折斑点が現れてくる。この分離した回折斑点の間隔は、基本回折に間隔に対して  $1/13.5$ ,  $1/27$  であり、それぞれ (a) 単分子層の **step ordering** と (b) 2 分子層の

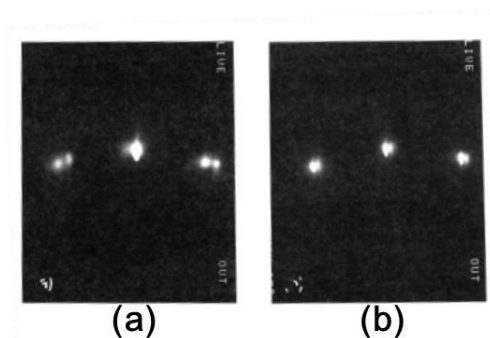


図 4.2.1. (110)面から[00-1]方向へ $3^\circ$ 傾斜させたInP基板上に InGaAsを成長している際のRHEED像 [4.2.2]. 成長条件の違いにより, 分離間隔の異なる回折斑点が現れる. 分離間隔より, (a) 単分子層のstep ordering, (b) 2 分子層の step ordering が起こっている.

**step ordering** が起こっていることを示している。図 4.2.2 に、この単分子層、2 分子層の **step ordering** と成長条件 (成長温度, As 圧) の関係を示す。成長条件を変えることにより、単分子層、2 分子層の **step ordering** が起こるが、平均テラス長が長くなる 2 分子層のステップは、表面被着原子の移動度が小さくなる低温、高 As 圧側で形成されている。図 4.2.3 に基板の傾斜角を変えた場合の **step ordering** と (a) 成長温度および (b) As 圧の関係を示す。基板の傾斜角を小さくして平均テラス長を長くするにしたい **step ordering** が起こる条件は、被着原子の表面移動度が小さくなる低温、高 As 圧側へと変化している。この面

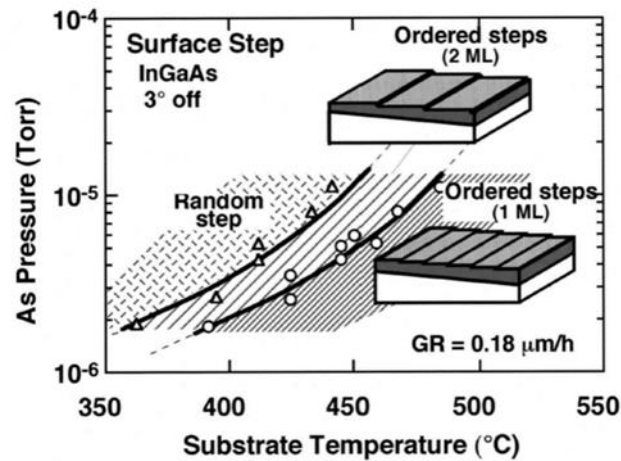


図 4.2.2. (110)面から [00-1] 方向へ3°傾斜させた InP 基板上に InGaAs を成長している際の表面ステップ構造と成長条件の関係[4.2.2]. この面上では、単分子層のstep orderingに加え、2分子のstep orderingが形成される。

上での **step ordering** が、(001)面上への成長のように表面被着原子の移動祖だけに支配されているのではなく、As の取り込みやなど他の要因がステップ形成に重要な役割をはたしているものと考えられる。

(110)面上での **step ordering** は以下のように考えることができる。図 4.2.4 はこの基板面上に形成されるステップを模式的に示した図である。(110)表面は III 族原子-V 族原子の共有面であり、表面では III 族, V 族原子が僅かに上下にずれることにより安定化する buckling 構造(再配列構造)となっていることが知られている。しかし、ステップ端の As 原子は buckling できないため、ステップ

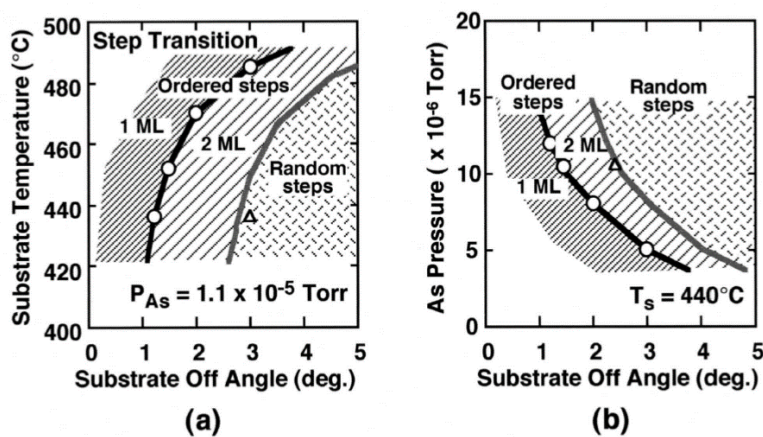


図 4.2.3. 単分子層のstep ordering – 2分子層のstep ordering の遷移する成長条件領域の基板傾斜角に変化. (a) 成長温度による変化, (b) As 圧による変化. 基板の傾斜角を小さくして平均テラス長を長くするにしたがい step ordering が起こる条件は、被着原子の表面移動度が小さくなる低温、高As圧側へと変化する。

端には As の活性なボンドが生成されていると考えられる。表面に飛来した III 族原子は、図 4.2.5 に示すように、このステップ端のみに生成された活性な As と結合することによりステップの成長が進むものと考えられる。この際、ステップ端の As と結合した III 族原子は隣接する As との結合がないと下層と 1 本の結合ボンドとしか結合していないため、かなり不安定な状態になる。ステップが安定して III 族の供給律速で成長していくためには As の供給が重要であることが予想される。一方、基板の傾斜角を小さくして、平均テラス長を長くした場合、

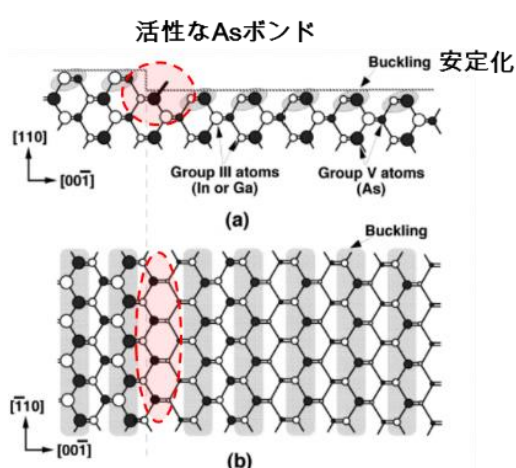


図 4.2.4. (110)面から[00-1]方向に傾斜させた基板上的単分子層ステップの模式図。(a)断面,(b)平面。ステップ端のV族原子は、buckling による表面安定化できず、ステップ端には活性なV族のボンドが形成されている。

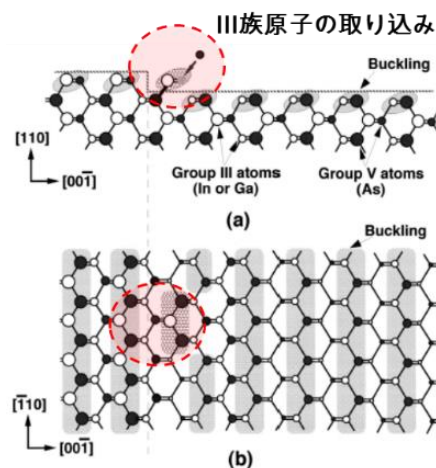


図 4.2.5. (110)面から[00-1]方向に傾斜させた基板上的単分子層ステップへのIII族原子の取り込みの模式図。(a)断面,(b)平面。ステップ端のAsと結合したIII族原子は隣接するAsとの結合がないと下層と1本の結合ボンドとでしか結合していないため、不安定な状態にある。ステップが成長していくためにはAsの供給が重要となる。

ステップ端の成長速度は速くなる。そのため、基板の傾斜角が小さいほど、より多くの As を取り込む必要があり、図 4.2.3 に示したような依存性が生じたものと考えられる。こうした成長形態は、(001)面上とは大きく異なっている。(001)面上の **step ordering** が主に被着した III 族原子の表面移動度に律速されているのに対し、(110)面上では被着原子の表面移動度というより、むしろ As の取り込み律速になっていることになる。

## (2) ステップの形状

(110)面上に形成されるステップの形状を **AFM** により観察した。図 4.2.6.(a), (b)は、(110)面から[00-1]方向へ  $1.2^\circ$  傾斜させた InP 基板上（単分子層ステップが形成された場合の平均テラス長は 9.9 nm）に、(a) 単分子層、(b) 2 分子層の

**step ordering** が起こる条件で成長した InGaAs の表面の **AFM** 像である。[1-10] 方向に沿ったステップが 10 nm (a)と 20 nm(b)の等間隔に形成されていることがわかる。また、ステップ端の揺らぎ（うねり）は小さく、直線的なステップ端が形成されている。こうした直線的で等間隔ステップは面内周期構造の形成には優位であると考えられる。

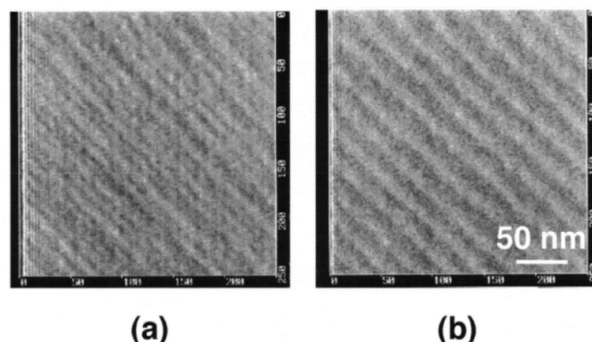


図 4.2.6. (110) 面から [00-1] 方向に  $1.2^\circ$  傾斜させた InP 基板上に成長した InGaAs 表面の AFM 像 [4.2.1]. (a) 単分子層ステップ, (b) 2 分子層ステップが形成された表面.

### 4-3 ステップフロー成長を利用した InGaAs/InAlAs 面内超格子の作製

ここでは、前節で示した(110) InP 基板上のステップを利用することにより図 4.1.2 に示した面内周期構造 (in-plane superlattice: 以下 **IPSL**) を InGaAs/InAlAs により形成した[4.3.1-3] 結果について示す。

#### (1) InAlAs 成長時の表面ステップ構造

InGaAs/InAlAs IPSL を成長する上で、InAlAs 成長においても表面ステップは InGaAs と同様に **step ordering** を維持する必要がある。また、量子細線形成に向けては、成長方向へのキャリア閉じ込め構造を形成する必要があり、**IPSL** の下地層として用いる InAlAs の表面ステップ構造は重要である。そこで、まず InAlAs 成長時のステップ構造について調べた。図 4.3.1 は、(110)面から[00-1]方向へ  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板上に

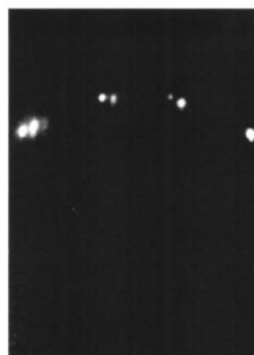


図 4.3.1. (110) 面から [00-1] 方向へ  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板上に InAlAs を成長させている際の RHEED 像. InGaAs 成長と同様に、単分子層のステップが形成されている。

InAlAs を成長している際の **RHEED** 像である。成長温度, As 圧, 成長速度は、それぞれ  $450^{\circ}\text{C}$ ,  $5 \times 10^{-6}$  Torr,  $0.19 \mu\text{m/h}$  であり、InGaAs 成長において単分子層の **step ordering** が起こる成長条件領域にて成長している。InGaAs と同様に分裂した回折斑点が明瞭に現れており、単分子層の **step ordering** が起こっていることがわかる。図 4.3.2 に InAlAs 成長時の表面ステップ構造と成長条件との関係を InGaAs とともに示す。InAlAs の **step ordering** は InGaAs の場合より

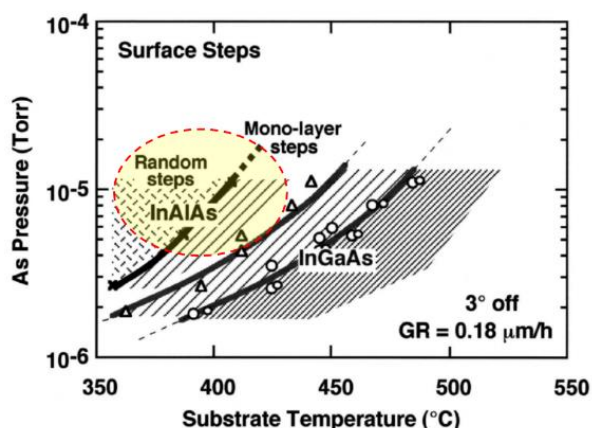


図 4.3.2. (110) 面から [00-1] 方向に  $3^{\circ}$  傾斜させた InP 基板上に InAlAs を成長している際の表面ステップ構造と成長条件の関係。InAlAs の単分子層ステップは、InGaAs より低温、高 As 圧側で形成される。

低温、高 As 圧側で起こりだし、また InGaAs に見られたような 2 分子層の **step ordering** は観察されなかった。InGaAs 成長において形成される 2 分子層ステップの形成に必要なステップ端での再配列構造等が InAlAs では形成されない可能性がある。一方、InAlAs の単分子層のステップは高温、低 As 圧の広い条件域まで維持されており、InGaAs 成長時の単分子層の **step ordering** が起こる成長条件域においても明瞭に **step ordering** が観測された。図 4.3.3. (a) は

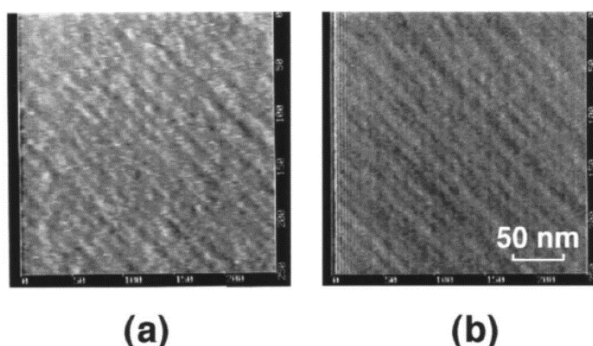


図 4.3.3. (110) 面から [00-1] 方向へ  $1.2^{\circ}$  傾斜させた InP 基板上に成長した (a) InAlAs と (b) InGaAs 表面の AFM 像。InAlAs においても InGaAs と同様に間隔の揃った直線的な表面ステップが形成されている。

(110)面から[00-1]方向に  $1.2^\circ$  傾斜させた InP 基板上に成長した InAlAs の AFM 像である。(b)に示す InGaAs と同様に比較的直線性の良いステップ端が形成されている。以上 InAlAs 成長時においても InGaAs と同様に単分子層の **step ordering** が形成でき、InGaAs/InAlAs IPSL の形成が可能であることが確認できた。

## (2) InGaAs/InAlAs IPSL の成長

(110)面から[00-1]方向に  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板上に、単分子層の **step ordering** を利用して、InGaAs-InAlAs IPSL を成長した。ただし、混晶組成での供給では、材料原子の表面移動度の違いによりテラス上で相分離する可能性があるため、AlAs-GaAs-InAs の供給とした [4.3.1]。図 4.3.4 に成長シーケンスを示す。InGaAs バッファ層成長後、0.5 分子層相当の AlAs と GaAs、および単分子層相当の InAs を交互に繰り返し成長した。図 4.3.5 に理想的に成長された場合の構造を模式的に示す。4 nm 幅のテラス上には、2 nm 幅の  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL が横並びとなった IPSL が形成されることになる。成長はソース材料に金属材料である In, Ga, Al および As を用いた通常の MBE で行い、As 分子線のクラッキングは行わず  $\text{As}_4$  分子線を用いた。GaAs, AlAs, InAs の成長速度は  $0.15 \mu\text{m/h}$  で、0.5 分子層厚の成長を約 2.5 秒かけて成長することになる。成長温度は  $440^\circ\text{C}$  で、As 圧は InGaAs 成長には  $3.5 \times 10^{-6}$  Torr を、また IPSL (AlAs-GaAs-InAs)成長時には  $1.8 \times 10^{-6}$  Torr を用いた。InGaAs バッファ層と IPSL 層の界面では、それぞれの As 圧

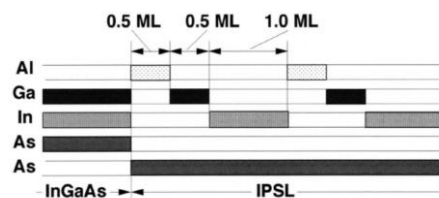


図 4.3.4. InGaAs/InAlAs IPSLの成長シーケンス[4.3.1]. 0.5分子層 (ML) 相当の AlAs と GaAs、および 1 分子 (ML) 層相当の InAs を交互に繰り返し成長。  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL から成る IPSL が形成されることになる。

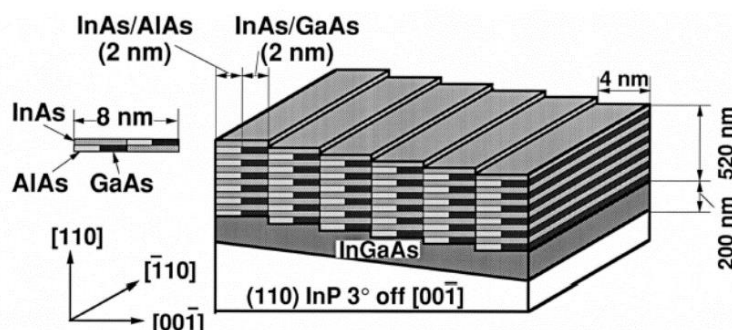


図 4.3.5. 理想的に成長された場合の構造模式図[4.3.1]. 1 つのテラス上には、  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL が横並びとなって IPSL が形成される。

に設定した2本のAsセルを用い、界面では成長中断なしにAs圧を急峻に変化させている。図4.3.6 (a) – (d) にInGaAs バッファ層及びIPSL (AlAs-0.5 分子層, GaAs-0.5 分子層, InAs-1 分子層) 成長時のRHEED 像を示す。IPSL 成長時においても、単分子層の **step ordering** が維持されていることが確認できる。

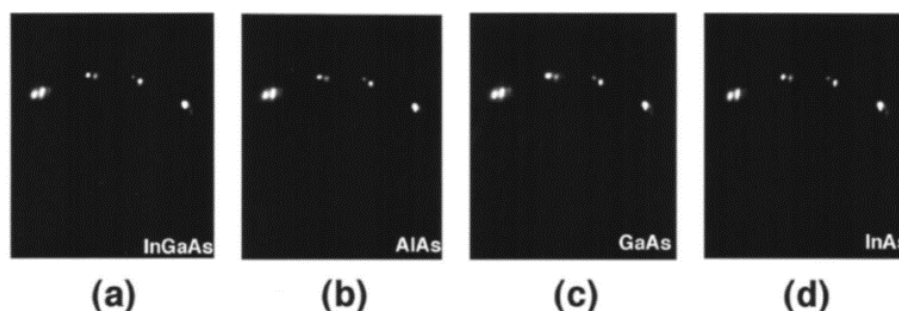


図 4.3.6. (110) 面から [00-1] 方向へ  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板上に InGaAs および MSL からなる IPSL を成長している際の RHEED 像. (a) InGaAs の連続成長時, および (b) AlAs (0.5 分子層), (c) GaAs (0.5 分子層), (d) InAs (1 分子層) の交互成長時.

### (3) 構造評価

形成した IPSL を XRD, TEM により評価した。

まず、220 回折を XRD により調べた。試料は、(110) 面から [00-1] 方向に  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板上 (平均テラス長 4 nm) に 200 nm の InGaAs バッファ層上に 620 nm の IPSL を成長している。測定は、 $2\theta$  を InP のブラッグ角 ( $43.58^\circ$ ) に固定し、 $\theta$  スキャンを行った。図 4.3.7 に XRD 強度を示す。IPSL の回折ピークは、InP 基板から高角側  $0.069^\circ$  にあった。二軸性の歪による格子変形を考慮して Vegard 則を仮定して求めた InAs の組成は 0.50 であり、図 4.3.5 に示した平均組成が得られていることがわかる。また回折ピークの半値幅は 34 arcsec. であり、InP 基板 (24 arcsec) に比べそれほど大きくない。格子や組成の大きな乱れはないものと考えられる。

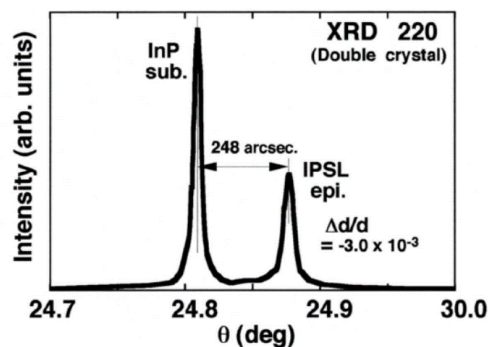


図 4.3.7. (110) 面から [00-1] 方向へ  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板上に成長した InGaAs/InAlAs IPSL から得られた 220 の XRD 強度.

図 4.3.8 に (-110) 断面 (a) および (001) 断面 (b) の TED 像を示す[4.3.1, 3]。 (a) に示した (-110) 断面像において、基本回折以外に分離間隔の異なる 2 種類の超構造回折斑点对が現れている。超構造回折斑点对はいずれも [001] 方向に分離している。1 つは、002, 220, 111, ... といった基本回折位置を中心に

分離した回折斑点对であり、 $\{h, k, l \neq 1/6, 5\}$  ( $h, k, l$  はすべて偶数か奇数である) で表される位置に現れている。また、もう 1 つは 001, 110, 112,  $\dots$  といった CuAu-I 型の規則構造の超構造回折位置を中心に分離した回折斑点对であり、 $\{h,$

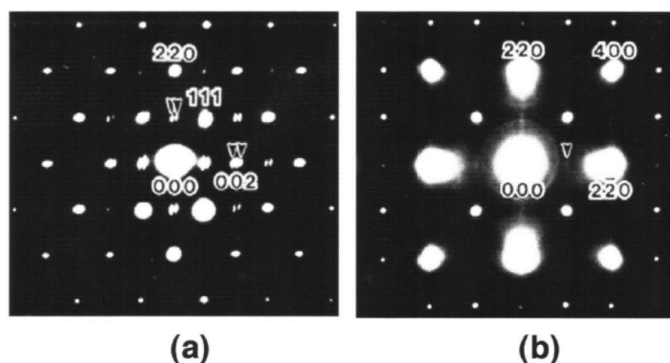


図 4.3.8. (110) 面から [00-1] 方向へ 3° 傾斜させた InP 基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL から成る IPSL の (a) (-110) 断面と (b) (001) 断面の TED 像 [4.3.3].

$k, l \neq 1/13\}$  ( $h, k, l$  は (even, even, odd) または (odd, odd, even) である) で表される位置に現れている。一方、(b) に示した (001) 断面像においては、分離した回折斑点对はなく、 $(h, k, l)$  が (even, even, odd) または (odd, odd, even) といった CuAu-I 型の規則構造の超構造回折位置に単一の回折斑点のみが現れている。

ここで、図 4.3.5 に示した MSL-MSL からなる IPSL の構造因子について示

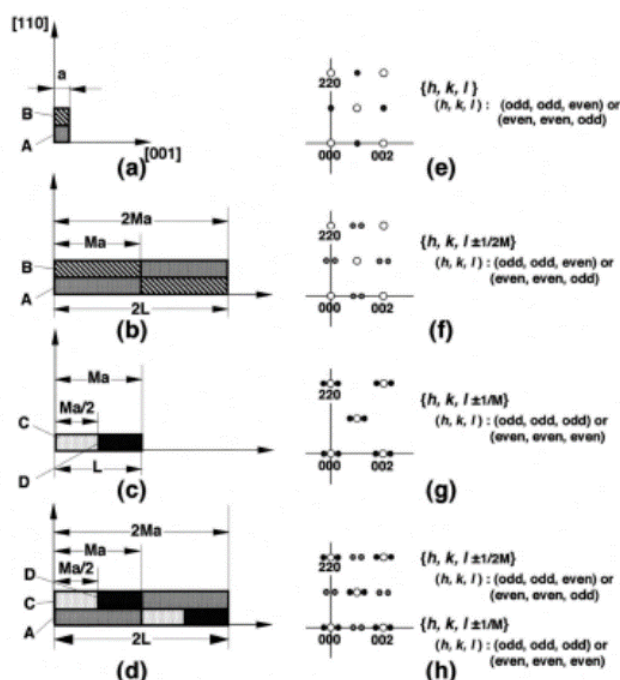


図 4.3.9. 結晶構造の模式図と逆格子. (a), (e) CuAu-I 型の規則構造 (MSL), (b), (f) LM-MSL 構造, (c), (g) 通常の IPSL 構造, (d), (h) MSL から成る IPSL 構造.

す。図 4.3.9 は、異なる材料 A (InAs), B (GaAs) で構成される (a) CuAu-I 型の規則構造 (MSL), (b) LM-MSL, および材料 C (GaAs), D (AlAs) で構成される (c) IPSL, と A (InAs)-C (AlAs), A (InAs)-D (GaAs) で構成される (d) MSL からなる IPSL の構造を模式的に示した実格子である。またこれら構造に対応する逆格子を (e)–(h) に示す。第 3 章にも示したように、CuAu-I 型の規則構造 (MSL) では、(e) に示すように  $110, 001, 221 \cdots$  といた  $(h, k, l)$  が  $(even, eve, odd)$  または  $(odd, odd, even)$  に付加的に超構造回折が現れた。この構造が  $[001]$  方向に M 連なり、逆位相境界を介してさらに M 連なった構造が (b) に示す LM-MSL となる。この構造では、上記超構造回折位置を中心に分離した回折斑点对が  $(h, k, l \neq 1/2M)$  ( $(h, k, l)$  は  $(even, eve, odd)$  または  $(odd, odd, even)$ ) に現れた。一方、(c) に示すように  $[001]$  方向に周期 M の長周期構造となる IPSL では、基本回折を中心に分離した回折斑点对が  $(h, k, l \neq 1/M)$  ( $(h, k, l)$  は  $(even, eve, even)$  または  $(odd, odd, odd)$ ) に現れる。(d) に示す MSL からなる IPSL では、(b) に示す LM-MSL 構造において、材料 B が (c) に示す材料 C, D で構成される IPSL に置き換わった構造である。したがって、回折は (f) と (g) の合成となり、(h) に示すように、基本回折を中心とした回折斑点对が  $(h, k, l \neq 1/M)$  ( $(h, k, l)$  は  $(even, eve, even)$  または  $(odd, odd, odd)$ ) に現れ、さらに CuAu-I 型規則構造の超構造回折位置を中心とした回折斑点对が  $(h, k, l \neq 1/2M)$  ( $(h, k, l)$  は  $(even, eve, odd)$  または  $(odd, odd, even)$ ) に現れることになる。図 4.3.10 に、図 4.3.9 (h) に示した MSL –MSL からなる IPSL 構造の単位格子と原子配置を模式的に示す。MSL から成る IPSL 構造は、InAs-GaAs から成る CuAu-I 型の規則構造 (MSL) の小単位格子が  $M/2$  個連なり、材料構成の異なる InAs-AlAs から成る MSL が  $M/2$  個連なる領域 I と逆位相境界を介して位相が反転した領域 II とから成る。図 4.3.11 に

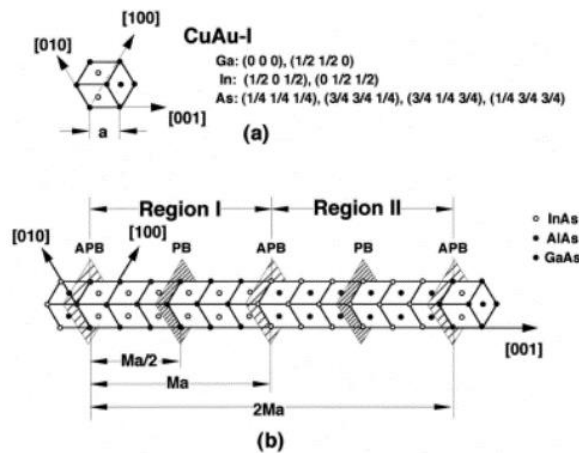


図 4.3.10. (a) CuAu-I 型に規則化した InGaAs  $((\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL) と (b)  $((\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $((\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL とから成る IPSL 構造の原子配置の模式図。

この原子配置を基にした回折強度の計算例を示す。計算では周期,  $M$  は 6 としている。(a) に示す  $(11l)$  上では、 $(110)$  の強度は 0 となり、その近傍  $(110 \mp 1/2M)$  の強度が強くなっており、この位置に回折斑点対が現れることになる。また (b) に示す  $(22l)$  上では、 $(220)$  の基本回折に加え  $(220 \mp 1/M)$  の強度が強くなっており、この位置に回折斑点対が現れることになる。したがって、図 4.3.12 (a) に示す位置に回折が現れることになり、TED 観察を行った  $(-110)$  断面においては (b) に示す位置に回折スポットが観察されることになる。成長に用いた基板の傾斜角は  $3^\circ$  で、その平均テラス長は 4 nm となる。この場合、テラス上には小単位格子 ( $a = 0.58686$  nm) は、平均的に 6.8 ( $M=6.8$ ) 連なって形成される。したがって、回折斑点は、 $(h, k, l \mp 1/13.6)$  ( $(h, k, l)$  は  $(even, eve, odd)$  または  $(odd, odd, even)$  で

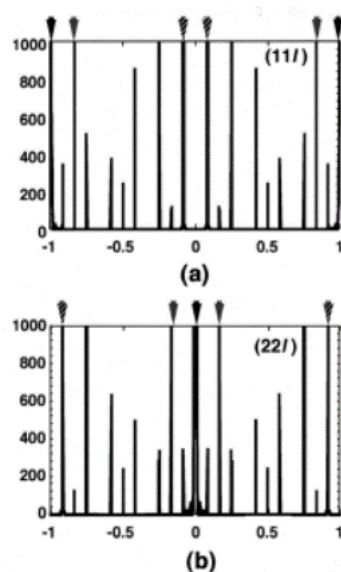


図 4.3.11.  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL とから成る IP SL 構造の回折強度の計算値. (a)  $(11l)$  軸上, (b)  $(22l)$  軸上の回折強度. 図 4.3.9 (d) に示す構造において,  $M = 6$  として計算.

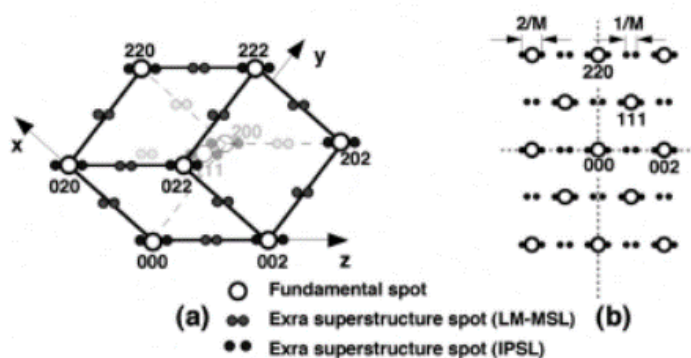


図 4.3.12.  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL とから成る IP SL 構造の (a) 逆格子と (b)  $(-110)$  断面から観察される回折斑点の位置.

**CuAu-I** 型規則構造の超構造回折位置と  $(h, k, l \mp 1/6.8)$  ( $(h, k, l)$  は  $(even, eve, even)$  または  $(odd, odd, odd)$  で基本回折位置) に現れることになる。図 4.3.8 に示した  $(-110)$  断面の TED では、**CuAu-I** 型の超構造回折位置近傍で  $(h, k, l \mp 13.5)$  付近に、また基本回折位置近傍で  $(h, k, l \mp 6.5)$  付近に回折斑点対が得られており、図 4.3.5 に示した MSL からなる IP SL 構造が形成できているものと考えられる。

図 4.3.13 は  $(110)$  近傍 (a)、 $(220)$  近傍 (b) を測定した XRD 強度である。測定

は  $2\theta$  をそれぞれのブラッグ角に固定して  $\theta$  のみをスキャンしている。(110), (220) 近傍に明瞭に対となった回折が得られている。(110) 近傍では、(2q, q) が  $(21.11^\circ, 10.61^\circ)$ ,  $(21.86^\circ, 16.77^\circ)$  のとき回折強度が最大となっている。これら回折位置は図 4.3.14 に模式的に示すようにそれぞれ  $(1.02, 1.021, 0.07)$ ,  $(0.98, 0.98, -0.07)$

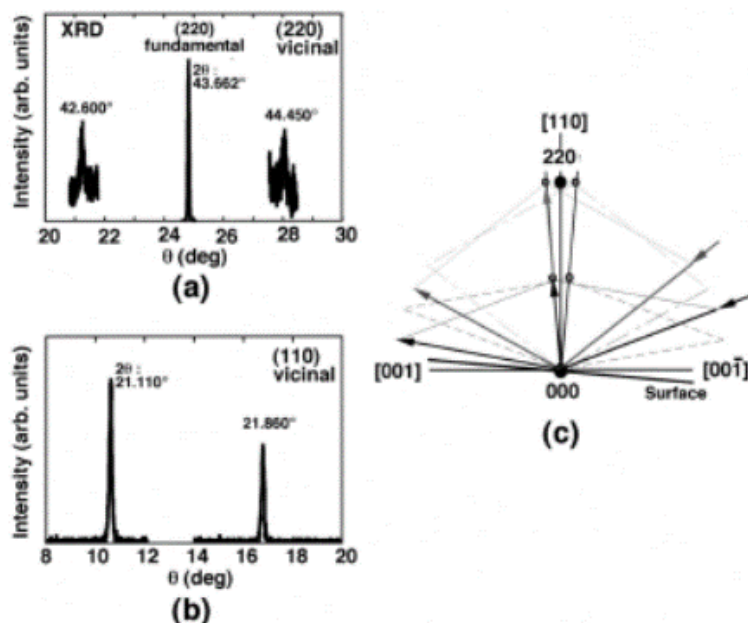


図 4.3.13. (110) 面から  $[00-1]$  方向へ  $3^\circ$  傾斜させた InP 基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL から成る IPSL から得られた (a) 220 近傍と (b) 110 近傍の XRD 強度、および (c) 測定方法。

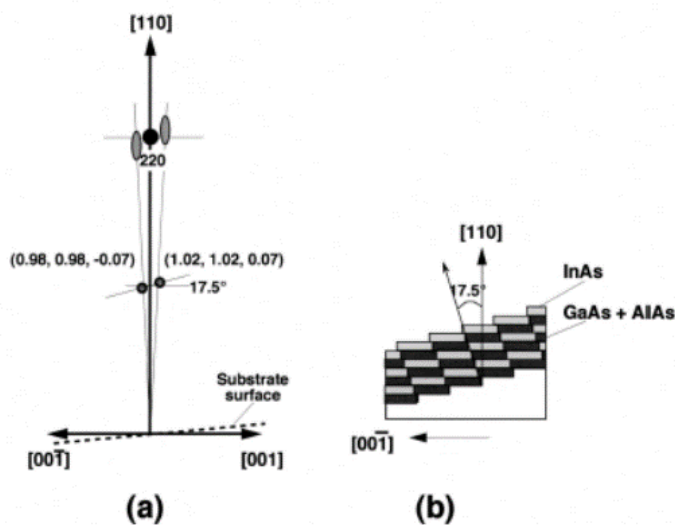


図 4.3.14. XRD 測定により得られた (a) 回折斑点の位置 (逆格子) と (b) 実格子の傾き。

に対応し、 $[00\bar{1}]$  軸に対して $-17.5^\circ$ 傾いた軸上にある。 $(\text{InAs})$ と $(\text{GaAs}+\text{AlAs})$ とから成る構造が図 4.3.14 (b)に示すように傾いていることを示しており、サイクル当たりの供給量が 2 ML 相当に対して平均的に 0.033 ML 相当 (1.65%)過剰であったことを示している。一方、 $(220)$ 近傍の回折斑点对は、 $(110)$ 近傍に比べ弱く回折ピークが不明瞭であった。 $\text{GaAs-AlAs}$  の組成揺らぎが生じていることを示唆している。

形成した IPSL の形態を調べるため TEM 観察を行った。図 4.3.15 に $(-110)$ 断面の暗視野 (DF) 像を示す。 $\text{InGaAs}$  バッファ層との界面に対してほぼ垂直方向

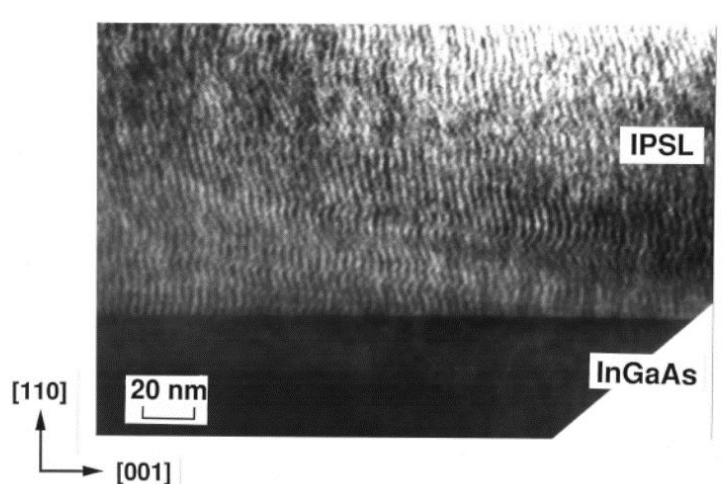


図 4.3.15.  $(110)$  面から  $[00\bar{1}]$  方向へ $3^\circ$ 傾斜させた  $\text{InP}$  基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL から成る IPSL から得られた $(-110)$ 断面のTEM-DF像[4.3.1].

に伸びる周期的な界面コントラストが得られている。このコントラストの明るい領域が  $\text{InAlAs}$  に、また暗い領域が  $\text{InGaAs}$  に対応している。 $\text{InGaAs}/\text{InAlAs}$  のコントラスト (横方向) 周期は概ね 4 nm であり、これは基板の傾斜角から予想される平均テラス長にほぼ一致している。ただし、成長方向 (上方向) に向けてはコントラストにうねりがあり、途切れ、枝別れ等も観察され、周期性が乱れた部分が観察されるほか、コントラストが薄れ混晶化を示唆する領域も観察されている。これは、成長時の成長速度の僅かな変化やステップ端の揺らぎや間隔の乱れに起因しているものと考えられる。図 4.3.16 に $(110)$ 平面の TED 像を示す。図 4.3.12 に示した位置に一致した回折斑点が $[00\bar{1}]$  軸上に分離して明瞭に現れている。形成された周期の方向が、基板の傾斜方向に一致して形成されており、また回折斑点の形状 (円形) よりその周期性も高いことが予想される。図 4.2.17 に TEM-DF 像を示す。 $[-110]$ 方向に沿って直線性の良い  $\text{InGaAs}/\text{InAlAs}$  界面コントラストが得られている。こうした像は、基板面に平行な数 nm から数十 nm の限られた領域の構造を反映した像である。断面構造において観察さ

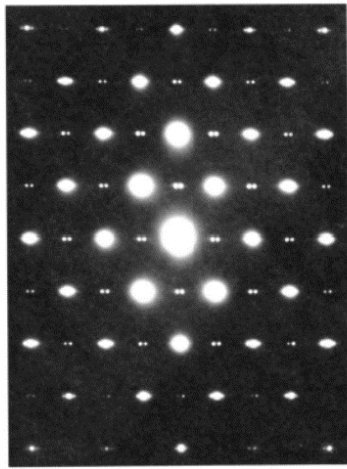


図 4.3.16. (110) 面から [00-1] 方向へ 3° 傾斜させた InP 基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL から成る IPSL から得られた (110) 平面の TED 像 [4.3.3].

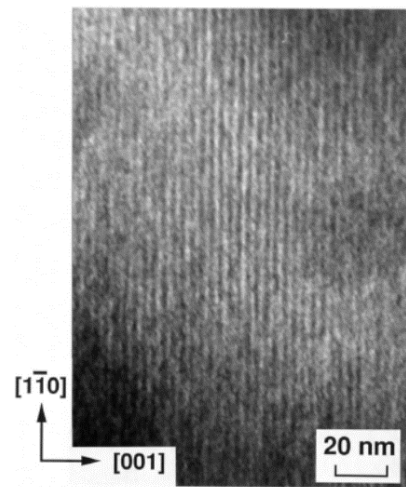


図 4.3.17. (110) 面から [00-1] 方向へ 3° 傾斜させた InP 基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL から成る IPSL から得られた (110) 平面の TEM-DF 像.

れたうねり等の乱れは、こうした薄い領域ではあまり顕著な乱れとはならないことを示唆している。

### (3) PL 特性

形成した IPSL の PL 特性を調べた。図 4.3.18 に形成した IPSL から得られた 4.2K の PL スペクトルを示す。比較のため前章で示した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSL および通常の積層型の InGaAs (2 nm)/InAlAs (2 nm) 超格子、IPSL と同じ平均組成の  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.25}\text{Al}_{0.25}\text{As}$  4 元混晶から得られたスペクトルも併せて示

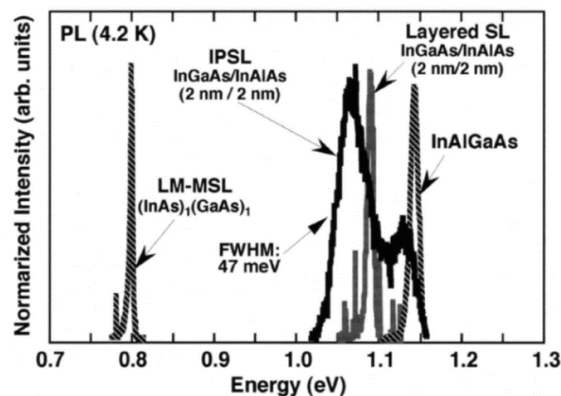


図 4.3.18. (110) 面から [00-1] 方向へ 3° 傾斜させた InP 基板上に成長した  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  MSL と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  MSL から成る IPSL の 4.2K での PL スペクトル。比較のため  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  LM-MSL, および通常の積層型の InGaAs (2 nm)/InAlAs (2 nm) 超格子、IPSL と同じ平均組成の  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.25}\text{Al}_{0.25}\text{As}$  4 元混晶から得られたスペクトルも併せて示す [4.3.1].

す。**IPSL** からは2つのピークが得られている。主ピークは 1.06 eV にあり、これは井戸となる  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  **LM-MSL** より 260 meV も高エネルギー側にある。またこのピークは完全に混晶化した場合に対応する  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.25}\text{Al}_{0.25}\text{As}$  4 元混晶よりも 90 meV 程度低エネルギー側であり、 $\text{InGaAs}$  (2 nm)/ $\text{InAlAs}$  (2 nm) 超格子のピークに近い。 $\text{InGaAs}$ ,  $\text{InAlAs}$  がそれぞれ 2 nm 程度の幅を持つ **IPSL** 構造が形成できていることを示している。一方、主ピークより高エネルギー側にある副ピーク (1.13 eV) は、 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.25}\text{Al}_{0.25}\text{As}$  4 元混晶に近い値であり、混晶化している領域、あるいは  $\text{GaAs}$  と  $\text{AlAs}$  が相互に混じり合い組成変調度 (組成差) が小さい領域が混在していることを示している。**IPSL** の主ピークの半値幅は、47 meV であった。これは、通常の積層型の超格子 (9 meV) に比べ 5 倍以上広い。断面 **TEM** では、 $\text{InGaAs}/\text{InAlAs}$  コントラストの揺らぎが観察されており、この広い PL 半値幅は主にこうした構造の不均一性を反映しているものと考えられる。

以上、(110)面から  $[00\cdot1]$  方向へ  $3^\circ$  傾斜させた  $\text{InP}$  基板上に、ステップフロー成長を利用して、0.5 分子の  $\text{GaAs}$  と  $\text{AlAs}$  および 1 分子層の  $\text{InAs}$  を交互に繰り返し成長することにより、 $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1$  **MSL** と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1$  **MSL** から成る **IPSL** を **MBE** により初めて成長した。成長した **IPSL** 構造を **TEM**, **XRD** により評価した。構造因子に基づく回折に一致した明瞭な回折が得られており、基本的な周期構造が形成できていることを確認した。これにより、成長のみによる量子細線形成に向け、こうした手法の可能性を示した。

#### 4-4 (110) $\text{InP}$ 基板上の $\text{InAs}/\text{GaAs}$ 歪面内超格子の作製

前節では、(110)面から  $[00\cdot1]$  方向に傾斜させた  $\text{InP}$  基板上でのステップフロー成長を利用することにより、 $\text{InGaAs}/\text{InAlAs}$  **IPSL** を成長し、基本的な面内周期構造が形成できることを示した。しかし、**TEM** 観察や **PL** 特性に見られたように、界面の揺らぎや組成の不均一があり、実デバイスへ応用できるほどの優れた特性ではなかった。一方、 $\text{InAs}/\text{GaAs}$  などの格子不整合系結晶を短周期で積層すると面内で組成変調がおこることが報告されている[4.4.1-3]。これまで

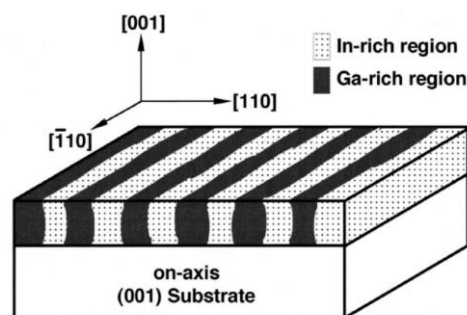


図 4.4.1. (001)  $\text{GaAs}$  基板上に形成した  $(\text{InP})_m(\text{GaP})_n$  短周期超格子や (001)  $\text{InP}$  基板上に成長した  $(\text{InAs})_m(\text{GaAs})_n$  短周期超格子において報告されている面内組成変調構造[4.4.1-3]の模式図。

に、(001) GaAs 基板上に成長した InP/GaP 超格子や(001) InP 基板上に成長した InAs/GaAs 超格子中に図 4.4.1 に示すような細線形状の面内組成変調が確認されている。こうした組成変調の発生機構は明らかにされていないが、歪に関係した何らかの機構が働いているものと考えられる。また、この構造では図 4.4.2 に示すように GaAs-InAs には 7%もの格子不整があり、基板面に対し垂直に形成される InAs-GaAs の界面についても興味ある。

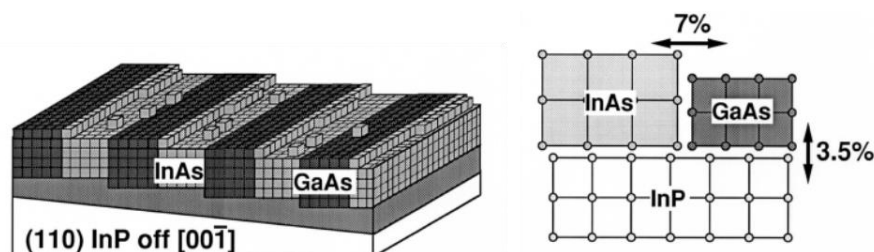


図 4.4.2. InAs/GaAs 面内超格子の模式図.

そこで、本節ではこれまでに示したステップフロー成長にこうした歪系結晶に働く自己形成的な機構を付加することにより制御性が向上することを期待して InAs/GaAs 面内歪超格子 (in-plane strained superlattice: 以下 IPSSL)の形成を試みた結果 [4.4.4, 5] について示す。

### (1) 成長方法

(110)面から[00-1]方向に傾斜させた InP 基板上に単分子層の **step ordering** を形成しながら、0.5 分子層の InAs と GaAs を交互に繰り返し成長した。図 4.4.3

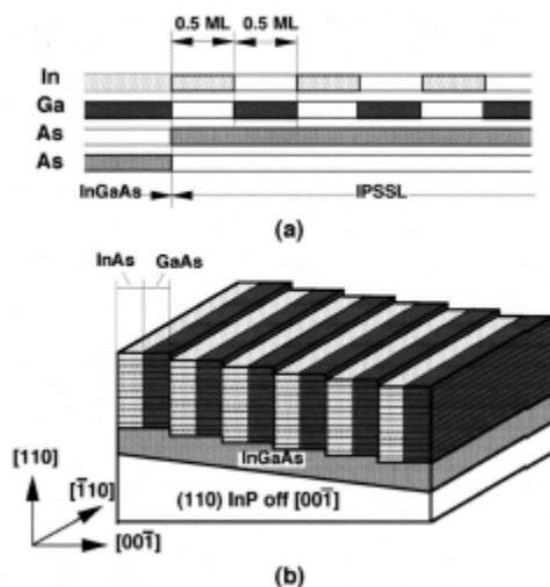


図 4.4.3. (a) InAs/GaAs IPSSLの成長シーケンスと (b) 理想的に成長した場合の構造の模式図[4.4.4].

(a)に成長シーケンスを示す。成長が理想的に行われた場合、(b)に示すように InAs と GaAs がテラス上に横並びになった InAs/GaAs IPSSL が形成されることになる。図 4.4.4 に(110)面から 3° 傾斜させた InP 基板上に 0.5 分子層の InAs

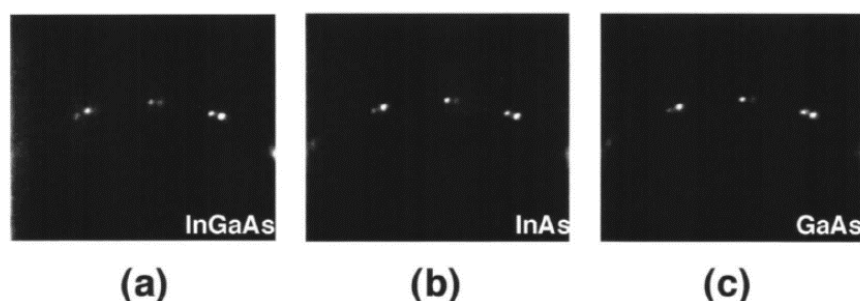


図 4.4.4. (110) 面から [00-1] 方向へ 3° 傾斜させた InP 基板上に InAs/GaAs IPSSL を成長している際の RHEED 像 [4.4.4]. (a) InGaAs の連続成長時、および 0.5 分子層の (b) InAs と (c) GaAs の交互成長時。

と GaAs を交互に繰り返し成長している際の RHEED 像を示す。100 nm 以上の厚さを成長した後においても InGaAs 成長時と同様に単分子層の **step ordering** を示す回折斑点が継続的に現れており、こうした格子不整合系においても **step ordering** が維持されることがわかる。成長条件は、単分子層の **step ordering** が起こる条件により決定した。成長速度は、InAs, GaAs がそれぞれ 95 nm/h, 83 nm/h を用い、0.5 分子層を 3.9 秒、4.5 秒かけて成長している。成長温度は 470°C で、As 圧は IPSSL (InAs-GaAs の交互成長) 成長時は  $4.3 \times 10^{-6}$  Torr を用い、InGaAs, InAlAs 成長時は  $1.0 \times 10^{-5}$  Torr を用いた。InGaAs バッファ層と IPSSL 層の界面では、それぞれの As 圧に設定した 2 本の As セルを用い、界面で As 圧を急峻に変化させた。

## (2) 構造評価

形成した IPSSL を XRD, TEM により評価した。

まず、220 基本回折を XRD により調べた。測定は、 $2\theta$  を InP のブラッグ角 ( $43.58^\circ$ ) に固定し、 $\theta$  スキャンを行った。図 4.4.5 に回折強度を示す。成長した IPSSL の回折ピークは InP 基板から高角側  $0.069^\circ$  にあった。二軸性の歪による格子変形を考慮して Vagard 則を仮定して求めた InAs の組成は 0.50 であり、平均的にほぼ意図する組成構造が形成できていることがわかる。また、IPSSL の回

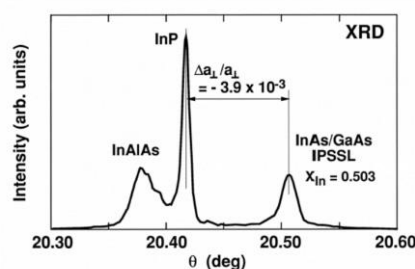


図 4.4.5. (110) 面から [00-1] 方向に 1.5° 傾斜させた InP 基板上に成長した InAs/GaAs IPSSL から得られた 220 の XRD 強度。

折ピークの半値幅は 34 arcsec であり、InP 基板 (24 arcsec) に比べそれほど大きくはない。格子や組成に大きな乱れはないものと考えられる。

次に、**TED** により超構造回折について調べた。図 4.4.6 に(110)面から[00-1]方向に 1.5° 傾斜させた InP 基板 (平均テラス長 8 nm) 上に成長した **IPSSL** から得られた(-110)断面の **TED** 像を示す。002, 220, 111, ... といった基本回折位置を中心に分離した回折斑点对が  $\{h, k, l \pm 1/13.5\}$  (ただし(h, k, l)すべて偶数かまたは奇数)で表される位置に現れている。また、前節でみ

られたような CuAu-I 型の超構造回折位置には回折斑点はなく、図 4.4.3 に示したような面内長周期構造が基板の傾斜方向である[001]方向に平均テラス長に一致して形成されていることがわかる。

図 4.4.7 (a)は、(110)面から[00-1]方向に 1.2° 傾斜させた基板 (平均テラス長 10 nm) 上に成長した **IPSSL** の(-110)断面の **TEM-DF** 像である。InGaAs バッファ層との界面に対してほぼ垂直方向に伸びる周期的な界面コントラストが現れており、横方向への周期構造が形成されていることがわかる。このコントラストの周期は概ね 10 nm であり、基板の傾斜角に対応した平均テラス長によく一致している。(b)は(110)平面の **TEM-DF** 像である。InAs-GaAs 界面が[-110]方向に形成されており、数ミクロンにも及ぶ広い範囲で直線的に形成されており、横方向に良好な超格子が形成されていることがわかる。

**IPSSL** の組成分布をエネルギー分散型 X 線分光法(Energy-Dispersive X-ray

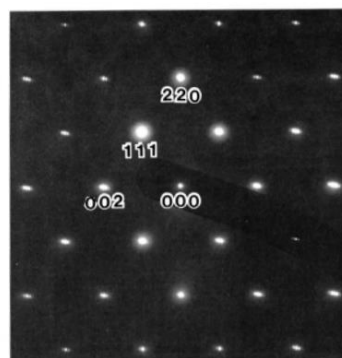


図 4.4.6. (110) 面から [00-1] 方向へ 3° 傾斜させた InP 基板上に成長した InAs/GaAs IPSSL の (-110) 断面の TED 像 [4.4.4].

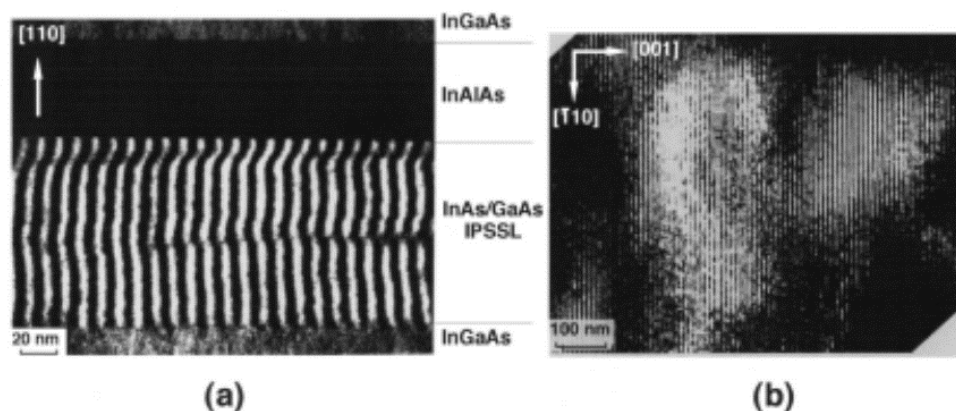


図 4.4.7. (110) 面から [00-1] 方向へ 1.2° 傾斜させた InP 基板上に成長した InAs/GaAs IPSSL の (a) (-110) 断面と (b) (110) 平面の TEM-DF 像 [4.4.4].

microanalysis: 以下 EDX)により調べた。この **EDX** は電界放出型の走査型 **TEM** (Field Emission type Scanning Transmission Microscopy: 以下 **FE-STEM**) に組み込まれており、電子線は直径 1 nm 程度にまで絞りこむことができる。そのため空間分解能は 1 – 2 nm 程度である。図 4.4.8 に (110) 面から [00-1] 方向に 1.2° 傾斜させた基板上に成長した **IPSSL** から得られた (1-10) 断面の **STEM** 像と像中の A-A' で示した白線に沿って測定した In と Ga の濃度プロファイルを示

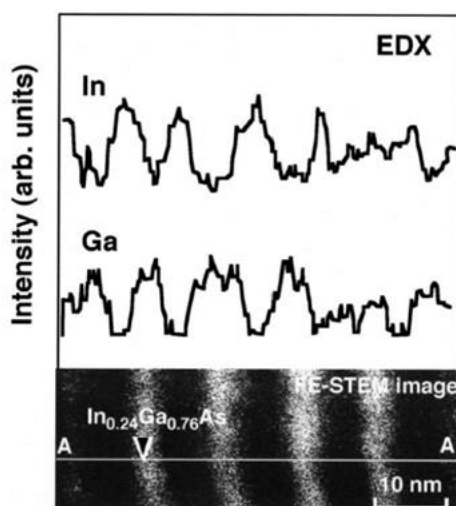


図 4.4.8. (110) 面から [00-1] 方向へ 1.2° 傾斜させた InP 基板上に成長した InAs/GaAs **IPSSL** の (-110) 断面試料を **FE-STEM** 装置に組み込んだ **EDX** ににより測定した In と Ga の濃度プロファイルと断面の **STEM** 像 [4.4.4].

す。像中の実線沿った In, Ga の濃度は、**STEM** 像のコントラスト周期に一致して相補的に変化しており、InAs-rich な領域と GaAs-rich な領域が形成できていることがわかる。像中の矢印で示した点での In, Ga, As の比は 12 : 38 : 50 であった。供給した InAs と GaAs が混じり合い、 $\text{In}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{InAs}$  の混晶が成長形成されていることを示している。

### (3) PL 特性

1.2° 傾斜させた基板上に成長した **IPSSL** を 77K での PL により評価した。図 4.4.9 に PL スペクトルを示す。試料の層構造を (b) に示す。InAs/GaAs **IPSSL** (厚さ 100 nm) と InP に格子整合した InGaAs (厚さ 200 nm) を InGaAs/InAlAs バッファ層上に成長している。**IPSSL** の成長方向への厚さは 100 nm であるため、成長方向でのキャリア閉じ込め効果 (量子化) はない。したがって、[001] 方向への幅が PL 発光エネルギーに寄与することになる。試料からは、0.81 eV と 0.77 eV に 2 つのピークが得られた。高エネルギー側の 0.81 eV は InGaAs からの発光、また低エネルギー側の発光は **IPSSL** からの発光と考えられる。**IPSSL**

の発光スペクトルの半値幅は 27 meV であった。これは InGaAs 混晶(18 meV)に比べやや広いものの、前節で示した InGaAs/InAlAs IPSSL (47 meV)に比べ半分程度にまで低減している。InGaAs/InAlAs IPSSL に比べ超格子のサイズ揺らぎや組成の揺らぎは、小さくなっていることが予想される。IPSSL の組成構造

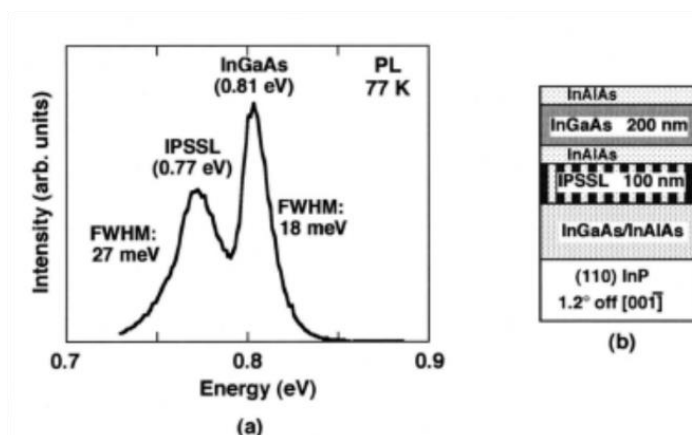


図 4.4.9. (a) (110) 面から [00-1] 方向へ 1.2° 傾斜させた InP 基板上に成長した InAs/GaAs IPSSL と InGaAs の PL スペクトルと (b) 測定試料の構造模式図 [4.4.4].

を評価するため、超格子 ( $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  (5 nm)/ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (5 nm)) の光学遷移エネルギーを計算した。超格子を構成する InAs と GaAs のうち割合,  $x$  が相互交じり合った場合を想定し、 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  (5 nm)/ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (5 nm) 超格子の光学遷移エネルギーを混合割合,  $x$  をパラメータに計算した。計算には、SP3\*s 強結合近似 (nearest-neighbor sp3\*s tight-binding approximation [4.4.6, 7]) を用いた。また、歪の効果も考慮して、Pollak らが示した strain Hamiltonian [4.4.8] を用いた。 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  /  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  の価電子帯の不連続,  $\Delta E_V$  については、これまでに報告されている  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ /GaAs ヘテロ構造の値,  $0.3\Delta E_g$  ( $\Delta E_g$  は  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  と  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  のバンドギャップの差で、 $\Delta E_g = E_g(\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}) - E_g(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As})$ ) [4.4.9] と  $0.4\Delta E_g$  [4.4.10] を基に、 $\Delta E_V = (0.3 \mp 0.1)\Delta E_g$  とした。なお、実験的には (001) InP 基板上に成長した  $\text{In}_{0.68}\text{Ga}_{0.37}\text{As}/\text{In}_{0.39}\text{Ga}_{0.61}\text{As}$  超格子においては、室温で 0.716 eV の光学遷移エネルギーが報告されている [4.4.11]。上記計算では、 $\Delta E_V = 0.2\Delta E_g$  を用いた場合が 0.718 eV、また  $\Delta E_V = 0.4\Delta E_g$  を用いた場合が 0.709 eV であり、報告されている実験値とよく一致した値となることを確認している。図 4.4.10 に  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  (5 nm)/ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (5 nm) 超格子の光学遷移エネルギーの混晶比,  $x$  依存性を示す。混晶比,  $x$  の増加により遷移エネルギーが単調に増加する傾向にある。PL 測定により得られた IPSSL の発光エネルギーは、0.77 eV であった。この値は、混晶比,  $x$  が  $0.26 \pm 0.02$  の場合に一致し、 $\text{In}_{0.74}\text{Ga}_{0.26}\text{As}$  と  $\text{In}_{0.26}\text{Ga}_{0.74}\text{As}$  から成る超格子により IPSSL が構成されていることを示している。この結果は、先に示した EDX による組成分析の結果と

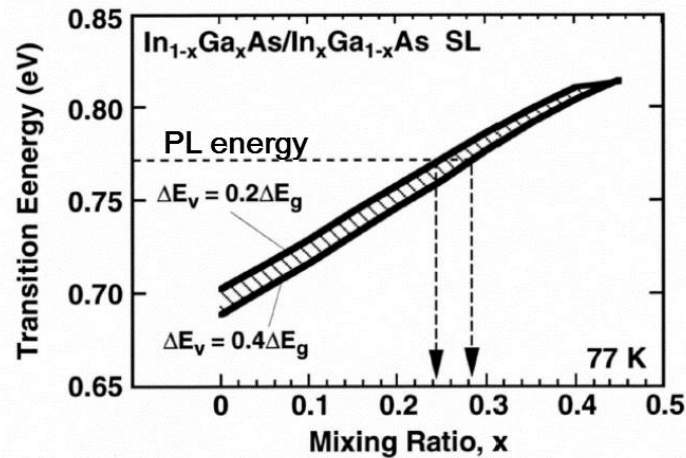


図 4.4.10.  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  (5 nm)/ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (5 nm) 超格子の光学遷移エネルギーの混晶比,  $x$  依存性(計算値) [4.4.4]. PL測定により得られたIPSSLの発光エネルギーは, 0.77 eVであり, 混晶比,  $x$  が  $0.26 \pm 0.02$  の場合に一致. 成長したIPSSLが  $\text{In}_{0.74}\text{Ga}_{0.26}\text{As}$  と  $\text{In}_{0.26}\text{Ga}_{0.74}\text{As}$  から成ることを示している.

非常によく一致している。したがって、平均的に 26% 程度の In と Ga が相互に混ざり合っていることになる。図 4.4.11 に示すように、この超格子の障壁領域と井戸領域の変調組成差は 0.48 に達しており、これまでの GaAs/AlAs や GaSb/AlSb から成る IPSL の変調組成差が 0.1~0.2 程度 [4.4.12-14] であった。面内超格子の変調組成の制御性が大きく向上していることを示している。

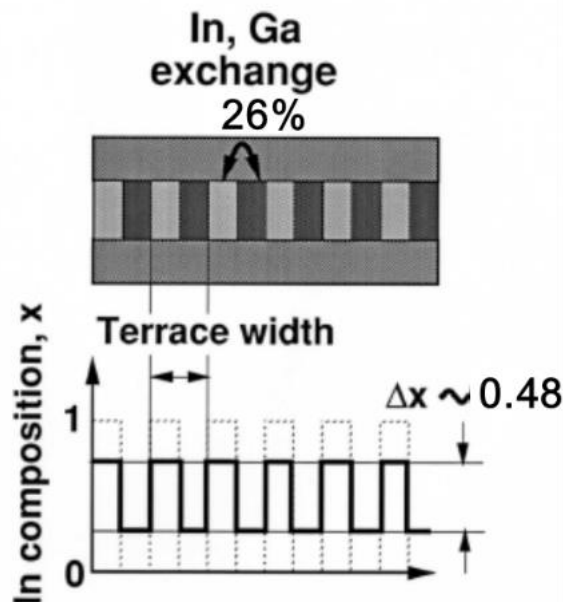


図 4.4.11. 形成されたInAs/GaAsIPSSLの組成構造の模式図. IPSSLは  $\text{In}_{0.74}\text{Ga}_{0.26}\text{As}$  と  $\text{In}_{0.26}\text{Ga}_{0.74}\text{As}$  で構成されており, 変調組成差,  $\Delta x$ , は 0.48 となる.

#### (4) 電気的特性 (移動度)

InAs/GaAs IPSSL の電子移動度を調べるため、InAs/GaAs IPSSL を電子走行層に用いた SD 構造を作製、その 2DEG 移動度をホール測定により評価した。InAs/GaAs IPSSL を電子走行層にした選択ドープ構造を成長し、その 2DEG 移動度を調べた。

図 4.4.12 に成長した SD 構造を模式的に示す。(110)面から[00-1]方向に  $1.2^\circ$  傾斜させた InP 基板上に 350 nm の InGaAs バッファ層, 100 nm の InAs/GaAs IPSSL 電子走行層, 10 nm の InAlAs スペーサ層, Si を  $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  ドープした 90 nm の N-InAlAs 電子供給層, N-InGaAs コンタクト層を成長した。2DEG 移動度は、ホールバー (測定長 100  $\mu\text{m}$ , 幅 50  $\mu\text{m}$ ) を基板の傾斜方向である [001] 方向 (ステップに直交する方向) とこれに垂直な [-110] 方向 (ステップに平行な方向) に形成し、ホール測定により評価した。図 4.4.13 に 2DEG 移動度 ( $\mu_{[001]}$ ,  $\mu_{[-110]}$ ) の温度依存性を示す。電子の面濃度,  $N_s$  はいずれの方向においても  $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  であり、測定温度に対してほとんど変化しない。一方、2DEG

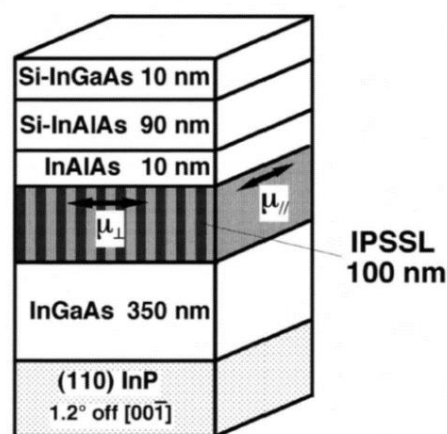


図 4.4.12. InAs/GaAs IPSSL を電子走行層に用いた SD 構造の模式図。

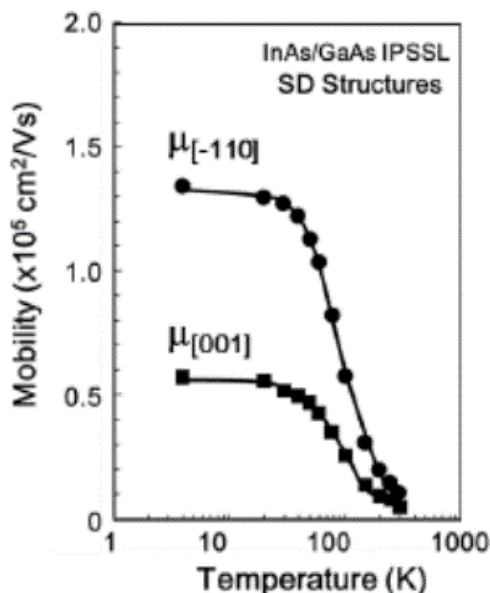


図 4.4.13. InAs/GaAs IPSSL を電子走行層に用いた SD 構造の電子移動度の測定温度依存性。IPSSL の界面に平行な方向, [-110] と垂直な方向, [001] 方向とで異方的な電子移動度があった。移動度の異方性 ( $\mu_{[-110]}/\mu_{[001]}$ ) は全測定温度領域で 2 以上の値が得られた。

移動度は、 $[-110]$ 方向と $[001]$ 方向との間で異方的であった。**IPSSL**のInAs/GaAs界面に沿った $[-110]$ 方向で移動度は高く、界面に直交する $[001]$ 方向で低い移動度を示した。両方向の間での移動度比 ( $\mu_{[-110]}/\mu_{[001]}$ )は、表 4.4.1 に示すように室温域においても2と高い値といっており、横方向への変調組成構造が異方的な伝導特性に現れているものと思われる。

表 4.4.1. InAs/GaAs IPSSLを電子走行層に用いたSD構造の電子移動度とIPSSLの界面に平行な方向, $[-110]$ と垂直な方向, $[001]$ 方向との移動度比( $\mu_{[-110]}/\mu_{[001]}$ ).

|                                           | 300 K  | 77 K   | 4 K     |
|-------------------------------------------|--------|--------|---------|
| $\mu_{//}$ ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ )    | 11,000 | 82,500 | 134,800 |
| $\mu_{\perp}$ ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ ) | 5,400  | 35,000 | 57,600  |
| Mobility Ratio<br>$\mu_{//}/\mu_{\perp}$  | 2.16   | 2.54   | 2.50    |

#### (5) IPSSL の厚層化、薄層化

**IPSSL** の構造安定性を確認するため、厚い **IPSSL** と薄い **IPSSL** を形成し **TEM** 観察を行った。図 4.4.14 (a) に $(110)$ 面から $[00\cdot1]$ 方向に  $1.5^\circ$  傾斜させたInP 基板上に InAs/GaAs **IPSSL** を 400 nm 厚さ成長した構造の $(-110)$ 断面の **TEM-DF** 像を示す。コントラストは途中うねりが出ている部分もあるが下側の界面直上付近と上側の界面直上付近で大きな差異は確認されず、層を厚くする

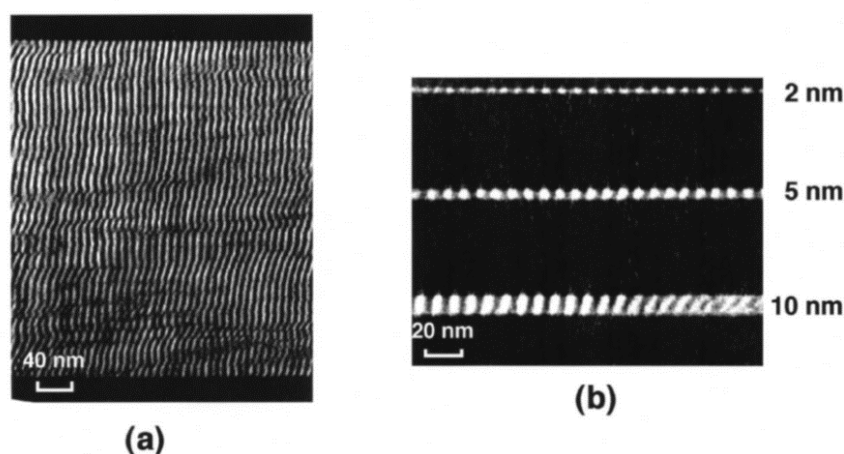


図 4.4.14.  $(110)$  面から  $[00\cdot1]$  方向へ  $1.5^\circ$  傾斜させた InP 基板上に成長した InAs/GaAs IPSSL の断面の TEM-DF 像. (a) 370 nm 厚さ成長した試料, (b) 10 nm, 5 nm, 2 nm 厚さ成長した試料. 2 nm 厚さにおいても組成変調構造が明瞭に観察される.

ことによる構造形成への影響は少ないと思われる。(b)は、IPSSL 層厚を 10 nm, 5 nm, 2 nm 成長した構造の **TEM-DF** 像である。2 nm の IPSSL においても明瞭なコントラストが観察されており、量子細線などへの応用に有効であることが確認できる。

以上、(110) InP 微傾斜基板上の単分子層の **step ordering** を利用して 7% の格子不整がある InAs/GaAs IPSSL を形成した。**TED, TEM** 観察により面内周期構造が形成されていることを確認した。**EDX, PL** 測定によりこの IPSSL の組成構造を評価した結果、変調組成差が 0.48 とこれまでの報告の中で最大の変調組成を持つ面内超格子が形成できていることを確認した。こうした面内超格子は、界面直上より形成されており、高密度の量子細線構造の直接形成に有効であると考えられる。

## 4-5 まとめ

本章では、成長面内（横方向）での原子配置制御について示した。基板には、(110)面から[00-1]方向に傾斜させた InP 基板を用いた。この基板上への成長においては、比較的低い温度領域から明瞭な **step ordering** が起きることを **RHEED** により確認するとともに直線的なステップが形成できることを **AFM** により確認した。この基板上での **step ordering** を利用して、0.5 分子層の GaAs と AlAs および 1 分子層の InAs を交互に繰り返し成長し、 $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_1\text{-MSL}$  と  $(\text{InAs})_1/(\text{AlAs})_1\text{-MSL}$  から成る面内超格子(**IPSL**)を成長した。**XRD, TEM** によりその構造を評価した結果、表面のステップ周期に一致した **IPSL** が形成できていることを確認した。ただし、混晶化した領域も部分的に形成されており、均一に制御できていないことも明らかとなった。また、格子定数が大きく異なる InAs と GaAs を同様に交互に成長して InAs/GaAs 歪面内超格子(**IPSSL**)を形成した。**TEM, EDX, PL** での評価により既報告の類似の面内超格子では、最も変調組成差が大きな面内超格子（変調組成差 0.48）が実現できていることを確認した。成長のみによる高密度の量子細線形成に向けて、本手法の有効性が明らかとなった。

## 第4章の参考文献

### ■ 4-1 節

- [4.1.1] P. M. Petroff, A. C. Gossard, W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett., 45, p. 620 (1984).
- [4.1.2] J. M. Gaines, P. M. Petroff, H. Kroemer, R. J. Simes, R. S. Geels, J. H. English, J. Vac. Sci. Technol., B 6, p. 1378 (1988).
- [4.1.3] M. Tsuchiya, J. M. Gaines, R. H. Yan, R. J. Simes, P. O. Holtz, L. A. Coldren, P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett., 62, p. 466 (1989).
- [4.1.4] S. A. Chalmers, A. C. Gossard, A. L. Weisenhorn, S. A. C. Gould, B. Drake, P. K. Hansma, Appl. Phys. Lett., 55, p. 2491 (1989).
- [4.1.5] S. A. Chalmers, H. Kroemer, A. C. Gossard, Appl. Phys. Lett., 57, p. 1751 (1990).
- [4.1.6] S. A. Chalmers, H. Weman, J. C. Yi, H. Kroemer, J. L. Merz, N. Dagli, Appl. Phys. Lett., 60, p. 1676 (1992).
- [4.1.7] K. C. Wong, M. Krishnamurthy, B. Brar, J. C. Yi, Appl. Phys. Lett., 63, p. 1211 (1993).
- [4.1.8] T. Fukui, H. Saito, Appl. Phys. Lett., 50, p. 824 (1987).
- [4.1.9] T. Fukui, H. Saito, J. Vac. Sci. Technol., B 6, p.1373 (1988).
- [4.1.10] T. Fukui, H. Saito, Y. Tokura, Appl. Phys. Lett., 55, p. 1958 (1989).
- [4.1.11] T. Fukui, H. Saito, Jpn. J. Appl. Phys., 29, p. L731 (1990).
- [4.1.12] M. S. Miller, H. Wemann, C. E. Pryor, M. Krishnamurthy, P. M. Petroff, H. Kroemer, J. L. Merz, Phys. Rev. Lett., 23, p. 3463 (1992).
- [4.1.13] H. Kanbe, A. Chavez-Pirson, H. Ando, T. Fukui, Appl. Phys. Lett., 58, p. 2969 (1991).
- [4.1.14] M. Kasu, H. Ando, H. Saito, T. Fukui, Appl. Phys. Lett., 59, p. 301 (1991).
- [4.1.15] Y. Nakata, O. Ueda, M. Muto, in Conf. Proc., Seventh International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, p. 165, Hokkaido, Japan ; 9-13 May (1995).
- [4.1.16] Y. Nakata, O. Ueda, A. Tackeuchi, S. Nakamura, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 341 (1995).
- [4.1.17] O. Ueda, Y. Nakata, A. Tackeuchi, S. Nakamura, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 346 (1995).
- [4.1.18] Y. Nakata, O. Ueda, Y. Nishikawa, S. Muto, N. Yokoyama, J. Cryst. Growth, 175/176, p. 168 (1997).
- [4.1.19] Y. Nishikawa, Y. Nakata, A. Tackeuchi, S. Muto, O. Wada, Jpn. J. Appl. Phys., 34, p. L915 (1995).

## ■ 4-2 節

[4.2.1] Y. Nakata, O. Ueda, M. Muto, in Conf. Proc., Seventh International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, p. 165, Hokkaido, Japan ; 9-13 May (1995).

[4.2.2] Y. Nakata, O. Ueda, A. Tackeuchi, S. Nakamura, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 341 (1995).

## ■ 4-3 節

[4.3.1] Y. Nakata, O. Ueda, A. Tackeuchi, S. Nakamura, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 341 (1995).

[4.3.2] Y. Nakata, O. Ueda, M. Muto, in Conf. Proc., Seventh International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, p. 165, Hokkaido, Japan ; 9-13 May (1995).

[4.3.3] O. Ueda, Y. Nakata, A. Tackeuchi, S. Nakamura, S. Muto, J. Cryst. Growth, 150, p. 346 (1995).

## ■ 4-4 節

[4.4.1] K. Hsieh, J. N. Baillargeon, K. Y. Cheng, Appl. Phys. Lett., 57, p. 2244 (1990).

[4.4.2] K. Y. Cheng, K. Hsieh, J. N. Baillargeon, Appl. Phys. Lett., 60, p. 2892 (1992).

[4.4.3] S. T. Chou, K. C. Hsieh, K. Y. Cheng, L. J. Chou, J. Vac. Sci. Technol. B 13, p. 650 (1995).

[4.4.4] Y. Nakata, O. Ueda, Y. Nishikawa, S. Muto, N. Yokoyama, J. Cryst. Growth, 175/176, p. 168 (1997).

[4.4.5] Y. Nishikawa, Y. Nakata, A. Tackeuchi, S. Muto, O. Wada, Jpn. J. Appl. Phys., 34, p. L915 (1995).

[4.4.6] J. C. Slater, G. F. Koster, Phys. Rev., 94, p.1498 (1954).

[4.4.7] P. Vogl, H. P. Hjalmarson, J. D. Dow, J. Phys. Chem. Solids., 44, p. 365 (1983).

[4.4.8] F. H. Pollak, M. Cardona, Phys. Rev., 172, p. 816 (1968).

[4.4.9] S. H. Pan, H. Shen, Z. Hang, F. H. Pollak, W. Zhuang, Q. Xu, A. P. Roth, R. A. Masut, C. Lacelle, D. Morris, Phys. Rev. B38, p. 3375 (1988).

[4.4.10] B. Jogai, P. W. Yu, Phys. Rev. B41, p. 12650 (1990).

[4.4.11] A. D. Smith, A. T. R. Briggs, K. Scarrot, X. Zou, U. Bangert, Appl. Phys. Lett., 65, p. 2311 (1994).

[4.4.12] M. S. Miller, H. Wemann, C. E. Pryor, M. Krishnamurthy, P. M. Petroff, H. Kroemer, J. L. Merz, Phys. Rev. Lett., 23, p. 3463 (1992).

[4.4.13] H. Kanbe, A. Chavez-Pirson, H. Ando, T. Fukui, Appl. Phys. Lett., 58, p. 2969 (1991).

[4.4.14] M. Kasu, H. Ando, H. Saito, T. Fukui, Appl. Phys. Lett., 59, p. 301 (1991).

## 第5章 GaAs 基板上の InAs/GaAs 歪量子ドットの 構造制御と光物性

### 5-1 はじめに

第2章で示したように成長方向にヘテロ構造を形成し、キャリアを面内で閉じ込めた量子井戸構造から、第4章で示したように成長方向と直交する面内(横)方向にも構造形成を行い、キャリアを面内の微小な領域に閉じ込めた量子細線 (Quantum wire: 以下 **QWir**) 構造や量子ドット (Quantum dot: 以下 **QD**) 構造では、図 5.1.1 に示すように状態密度が変化し、キャリアは特定のエネルギーに集中するようになる。こうしたキャリアの閉じ込め次元を高めた量子構造では、既存デバイスの大幅な性能改善や新たな物性の出現が期待されている [5.1.1]。特に3次元的な閉じ込め構造となる量子ドットでは、孤立した原子の

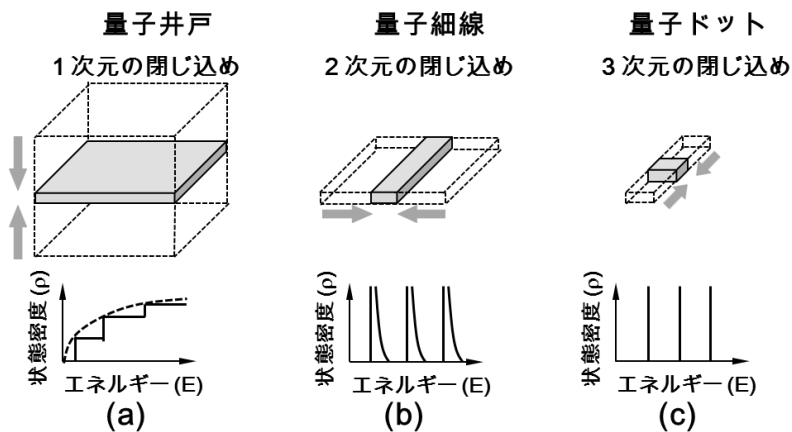


図 5.1.1. キャリア閉じ込めの次元異なる (a) 量子井戸 (1次元の閉じ込め), (b) 量子細線構造 (2次元の閉じ込め), (c) 量子ドット (箱) 構造 (3次元の閉じ込め) の模式図とその状態密度.

状態と同様にその状態密度は完全に離散的となる。この量子ドットの離散的な状態密度を利用することによっては、これまでの量子井戸レーザの性能を大幅に上回る量子ドットレーザ (**QD** レーザ) [5.1.2, 3] や高温動作を可能とする赤外線受光デバイス [5.1.4-6]、波長多重を利用した高密度の光メモリ [5.1.7, 8]、少数の電子で動作するトランジスタ [5.1.9, 10] や絶対に盗聴が不可能とされる量子暗合通信に必要な単一光子光源 [5.1.11-13]、量子を制御、操作する量子情報デバイス [5.1.14-16] などが提案され、実用的な素子の開発に向けて研究が活発化してきている。特に、量子ドットを活性層に用いた半導体レーザに関しては、1982年に理論的に温度特性の改善 [5.1.2, 3] が示されて以来、しきい値電流の低減 [5.1.17]、変調帯域の拡大 [5.1.18] などの性能改善が解析的に示されてお

り、状態密度の先鋭化（離散化）を実現する量子構造とその作製技術の開発は、この分野の主要な課題と大きな興味の一つになってきている。

キャリアの閉じ込め次元を高めた量子構造の作製においては、それまでの成長方向のみの制御性の向上により実現することは不可能である。そのため、1次元方向の制御は **MBE** や **MOCVD** など成長技術により形成し、それ以外の面内での閉じ込め次元を高める手段としては加工や再成長を利用した手法が用いられてきた。図 5.1.2 に代表的な加工による手法を模式的に示す。量子井戸を成長後、電子線など荷電ビームを用いたリソグラフィによりパターンニングを行い、エッチングにより面内に微細形状を加工する手法である [5.1.19-22]。この他に、パターンニングした基板上への選択成長による手法や [5.1.23-25] やエッチングにより加工した基板の溝部、あるいは凸部への異方性成長を利用した手法 [5.1.26-28]、第4章に示した微傾斜基板上でのステップフロー成長を利用した **IPSL** 形成 [5.1.29, 30] やキンクへの成長 [5.1.31]、**QW** 成長した結晶を劈開、再

(a) 量子井戸の形成 (b) リソグラフィ (c) エッチング

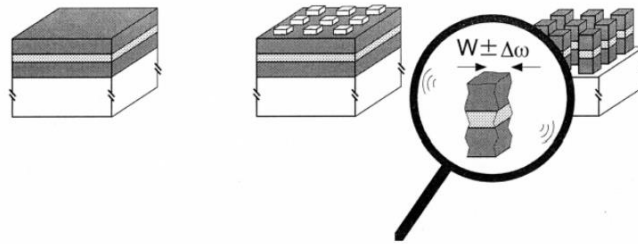


図 5.1.2. 量子ドット作製のため従来の加工法模式図. (a) MBEやMOCVDにより量子井戸を形成後、(b) リソグラフィと(c) エッチングにより加工して量子ドットを形成. 加工揺らぎが大きい.

成長により T 字型の閉じ込め構造を形成する手法 [5.1.32-34]、**QW** 上に歪源となる層を形成し、これを微小サイズに加工しこの歪により **QW** 内に局所的な閉じ込め構造を形成する **stressor** による手法 [5.1.35]、予め III 族材料のみを基板に供給して形成した液滴を利用して微結晶を成長する液滴エピタキシー [5.1.36] などが報告されてきている。しかし、これらの手法により作製された構造においては、その性能を十分に引き出せるまでには至っていなかった。例えば、リソグラフィとエッチングによる加工を用いた手法では、加工時に損傷や不純物が導入されてしまい、この欠陥準位を介したキャリアの消滅などにより十分なキャリア閉じ込めと蓄積ができていないものと考えられる。また、微細加工の深刻な問題として、(1) サイズを十分に小さくできない、(2) 高密度の形成が難しい、また (3) サイズの揺らぎが大きいなどがあり、目的とする状態密度が実現されず、性能が引き出しきれないものと考えられる。先鋭化した状態密度を実現し、優位な性能に結び付けていくには、形成する量子構造のサ

イズをエキシトンの Bohr 半径以下に(GaAs で $\sim 13$  nm) 高精細に制御する必要がある。また、半導体レーザで量子ドットが利得媒体として機能するためには活性層内に高密度に形成されている必要がある。さらに量子効果を利用して予測されている高い性能を実現するためには、そのサイズは、量子井戸構造での厚さと同様に分子層レベルで均一に形成されている必要がある[5.1.21]。しかし、これまでにこれらすべてを満足する構造を実現する形成手法はなかった。

1990 年代の初頭より活発に研究され始めた量子ドットの自己形成手法 [5.1.37] は、これまでの形成手法の多くの問題を克服する有望な手法である。この手法は、格子不整合系結晶の初期に現れる Stranski-Krastanow (以下 **S-K**) 型の島状成長[5.1.38]を利用している。典型例としては、GaAs 上に成長した InAs 成長島がある。7%もの格子不整合があるにも関わらず、転位などの欠陥を生成することなしに下地となる GaAs 上に圧縮歪を伴った状態で $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  といった高密度で形成される。典型的なサイズは、底面直径は $\sim 20$  nm で高さが 3-5 nm の円錐形状もしくはピラミッド形状となっている。GaAs-InAs では、エキシトン半径は 10 – 20 nm であるので、この成長島は 3 次元の量子閉じ込め効果を生むのに十分なサイズである。実際に、この手法で形成した量子ドットから、離散化したエネルギー準位からの輝線的なエキシトン発光が明瞭に観測されている [5.1.39, 40]。半導体レーザへの応用においても、これを活性層に用いたレーザ (**QD** レーザ) において、量子準位間の遷移により室温での連続発振が確認され[5.1.41-46]、発振しきい値も既に実用化されている量子井戸レーザに近づいてきている[5.1.47-51]。

形成手法として用いられている **S-K** 型の島状成長 [5.1.38]は、次節にも示すよう、下地層上に濡れ層 (wetting layer: 以下 **WL**) と呼ばれる層状結晶を伴った形態で形成される。薄膜成長の 3 形態のうちの 1 つで、1930 年代から広く知られていたものである。この形態となる GaAs 上に形成される In(Ga)As の島状成長についても、1980 年代にいくつかのグループにより **RHEED**, **TEM** 等により観測されている [5.1.52-57]。しかし、その目的は GaAs 上に形成する InGaAs 歪層の平坦成長であり、量子ドットの形成手法としては、広く注目されないままにきていた。GaAs 上に成長した InAs 成長島が量子ドットとして物性を示す可能性が示されたのは、Goldstein ら[5.1.58]、Tabuchi ら[5.1.59]の論文である。GaAs 上に形成された In(Ga)As の微細なクラスタ結晶を **TEM** により確認するとともにこのクラスタからの発光特性を明瞭に示している。また Leonard ら [5.1.37] は、**S-K** 型の InAs 成長島を量子ドット形成手法として、初めて制御して成長島を形成し、**TEM** によりその構造を明瞭に示すとともに量子ドットから発光特性としてその **PL** を示した。これ以降、この成長形態を利用した量子ドット形成手法としての研究が活発化してきている。**S-K** 型の

InAs 成長島が三次元的な閉じ込めが可能であり、量子ドットの特徴的な離散的なエネルギー状態を実現できることが、主にその発光特性を基に確認されてきた[5.1.37, 39, 60-62]。こうした **S-K** 型の量子ドットは、本章で扱う InAs だけでなく、InGaP [5.1.63, 64], CdSe [5.1.65], GaN [5.1.66, 67]でも報告されている。近い将来、この自己形成量子ドットは、材料の多様性も含め新たな材料として、半導体レーザ[5.1.2, 3]や光増幅器[5.1.68]など既存のデバイスの性能を大きく改善するとともに、将来の量子情報デバイスなど新たな機能をもったデバイス創生へと展開していくものと考えられる。

本章では、量子ドットの自己形成手法である **S-K** 型の島状成長を利用した InAs 量子ドットの形成について示す。5-2 節では InAs 成長島の基本的な構造特性と成長パラメータとの関係を明らかにする[5.1.69-72]。5-3 節では、この量子ドットを用いた高性能レーザの実現に向けて、積層成長について検討した結果を示す[5.1.69]。積層成長では、積層とともに量子ドットのサイズが大きくなる問題が指摘されていた [5.1.73]。初期層と同じサイズと密度で量子ドット層を単純に繰り返し積層するためには中間層をある程度厚くする必要がある(> 30 nm) こと[5.1.69]、また中間層を薄くした場合、積層方向に量子ドットの配列性が現れることを示す[5.1.69, 70]。5-4 節では、高性能の量子ドットレーザの実現に向けて大きな課題である均一性制御に関し、前節で示した積層方向への配列性を利用した形成手法について示す。量子ドットを薄い中間層を介して近接して積層する近接積層構造を提案し、積層数に応じてドットの実効的な高さ(発光波長)を制御できること、また均一性が大幅に改善できることを示す[5.1.69, 74-76]。さらに、中間層を 3 分子程度にまで薄くして、InAs 供給量を精細に制御して積層したコラムナ形状の量子ドットを形成し、これを用いた量子ドットレーザにおいて、発振しきい値が既報告値より 1 桁程度低減できることを示し[5.1.50, 51]、その優位性を明らかにする。最後に 5-5 節では本章で得られた結果を要約して示す。

## 5-2 GaAs 上に成長した InAs 島状結晶と量子ドット構造

### (1) 成長島形成のエネルギーモデル

薄膜形成はその形態をもとに次の 3 つに分類されている。(a) Frank-van der Merwe (F-M)型, (b) Stranski-Krastanow (S-K)型, (c) Volmer-Weber (V-W)型である。図 5.2.1 にこれら形態を模式的に示す。(a)の F-M 型は、下地上に層状に成長する形態で、前章までに示してきた QW など下地の結晶方位に一致して成長するエピタキシャル成長はこの分類に含まれる。(b)の V-W 型は下地に対して 3 次元的な島状成長する形態で、生成膜材料どうしの方が下地材料とより

結合しやすい場合に現れる。これは図 5.2.2 (a)に示すように、生成膜材料の原子間のポテンシャルを $\epsilon_{ff}$ とし、また生成膜材料の原子と下地材料の原子間のポテンシャルを $\epsilon_{fs}$ として、生成膜材料どうしの方が下地材料とより結合しやすい

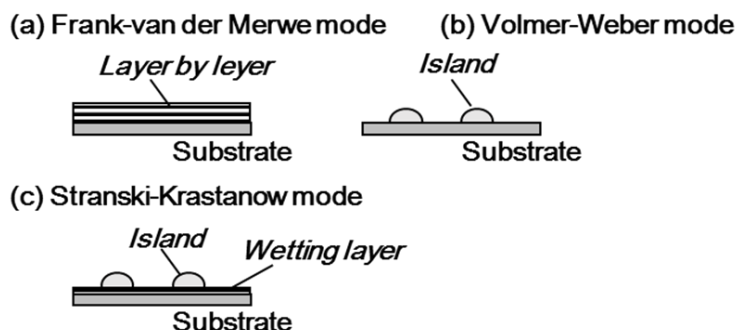


図 5.2.1. 薄膜成長の3つの形態的分類[5.2.3]. (a) Frank-van der Merwe (F-M): 下地上に層状に成長する形態. (b) Volmer-Weber (V-W): 下地上に島状に成長する形態. (c) Stranski-Krastanow (S-K): 下地上に層状に成長した後、島状成長へ移行する.

場合、すなわち  $\epsilon_{ff}$  が  $\epsilon_{fs}$  より大きい ( $W$  を  $\epsilon_{ff}$  に対する  $\epsilon_{fs}$  の比,  $W = \epsilon_{fs}/\epsilon_{ff}$  として、 $W < 1$ ) 場合、V-W 型の成長形態になり、生成膜材料どうしより下地材料と結合しやすい場合、すなわち  $\epsilon_{ff}$  が  $\epsilon_{fs}$  より小さく、 $W > 1$  の場合、F-M 型の成長形態になるとされている [5.2.1]。これら2つの形態に対し、S-K型はF-M型とV-W型の間間的な形態となっており、成長初期は層状に成長し、成長膜厚の増加により島状成長へと移行する形態である。このS-K型については、

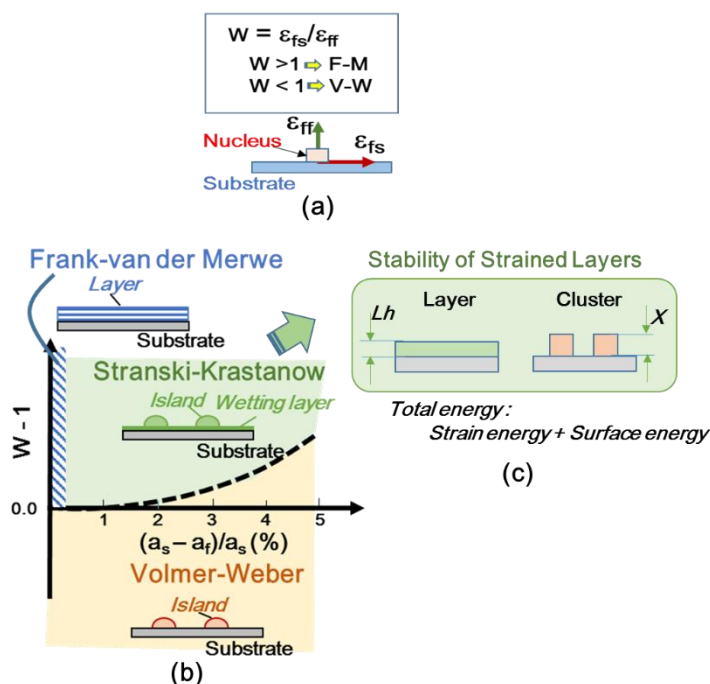


図 5.2.2. 薄膜の3つの形態と下地材料と生成膜材料のポテンシャル比及び格子不整合との関係.

図 5.2.2 (b)に示すように下地結晶との格子不整  $((a_s - a_f)/a_s)$ , ここで  $a_s$  は基板の格子定数で  $a_f$  は生成膜の格子定数) を取り入れた相図により説明されている [5.2.1]。格子不整があると、 $W > 1$  の場合であって格子不整の大きさに依存して V-M 型となる場合がある。これは、格子不整によって生じる、歪エネルギーが V-M 型の成長島形成の駆動力になっているとして理解できる。S-K 型の成長形態では、成長初期には層状に成長し、膜厚の増加により島状成長へと移行する。島状成長へ移行する前の層状部は、濡れ層：wetting layer と呼ばれ、この成長形態の特徴的な形態の一つになっている。また、S-K 型成長における層状成長から島状成長への移行に関しては、図 5.2.2 (c)に示すように、歪エネルギー (strain energy) と表面エネルギー (surface energy) との和を全系のエネルギー (total energy) として、この total energy が層状形態、島状形態でどちらが低くなるかで遷移形態が決まるとされている [5.2.2]。

## (2) GaAs 上への InAs 島状成長

GaAs 上に成長した InAs は図 5.2.3 (a)に模式的に示すように、成長初期において層状に成長し、1.5~2 ML 相当の成長により島状成長へと移行する。こうした成長形態の移行は RHEED によりその場観察が可能で、(b)に示すように層

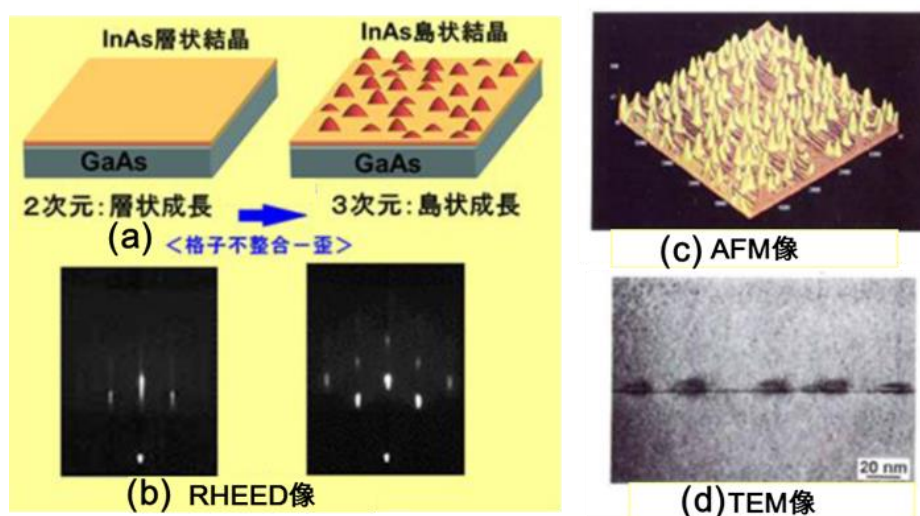


図 5.2.3. (a) GaAs 上に成長した InAs 成長島の模式図. 層状に成長した後、島状成長へと移行する. (b) 成長している際の RHEED 像. 層状成長時は、表面の平坦性を反映してストリーク像となるが、島状成長への移行とともに透過回折となりスポット像へと変化する. (c) InAs 成長島の AFM 像. (d) InAs 成長島を GaAs で埋め込んだ構造の断面の TEM 像.

状成長時の 2 次元平面からのストリーク像（左側の像）から、島状成長へ移行時には凸部の透過回折となりスポット像（右側の像）へと変化する。表面に形成された成長島の形状や密度は、(c) に示す AFM により観測が可能で、底面直径が ~20 nm、高さが 3~5 nm の成長島が  $\sim 6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  といった高密度で形成

されていることが確認できる。また埋め込んだ形状は (d)に示す断面の **TEM** 観察により評価することができる。この成長様式の特徴である濡れ層の上に成長島が形成されていることが確認できる。以下、**RHEED** により成長島の形成をその場観察した成長島形成のダイナミカルな形態を示し、次いで成長島の構造特性 (形状と密度)と成長条件との関係を **AFM**, **TEM** を用いて評価した結果を示す [5.2.3]。

図 5.2.4 に、GaAs 上へ InAs を成長している際の **RHEED** 像と回折強度の変化を成長シーケンスとともに示す。**RHEED** 像は、電子線を [110]方向から入射させて観察している。下地結晶となる GaAs 成長 (成長温度 600°C) においては、表面の平坦性を反映したストリーク像であり、表面構造は As 安定化を

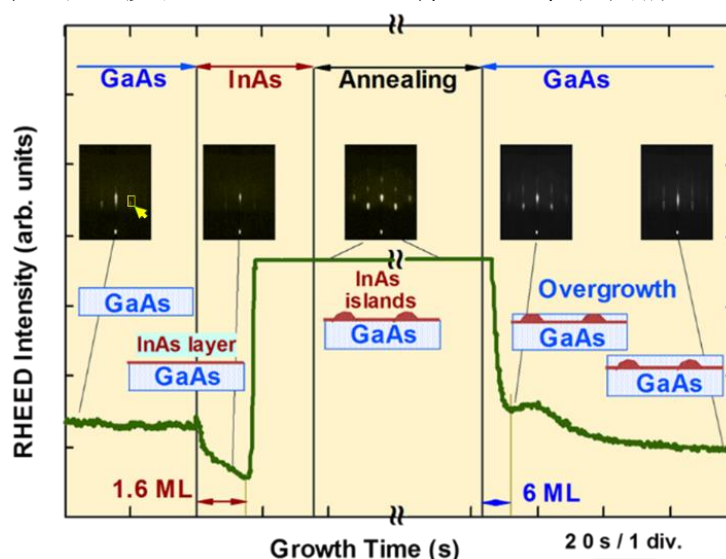


図5.2.4. InAs供給に伴うRHEED像と回折強度の変化 [5.2.3]. 回折強度の測定は左の像の矢印で示した位置 (透過回折スポットの現れる位置)で測定している. InAsの成長とともに回折強度は徐々に低下し, 島状成長へ移行するとともにスポット像へと変化し, 回折強度が急激に増大する.

示す  $(2 \times 4)$  となっている。As 照射を継続したまま成長を中断 (Ga の供給を停止) し、成長温度を InAs の成長に適した 500°C へ下げる過程では、As が表面に過剰付着し、表面構造は  $C(4 \times 4)$  へと変化する (左端の像)。In の供給を開始すると、表面の再配列構造を反映した分数次のストリークは消失し  $(1 \times 1)$  へと変化する。また、左端の像の矢印で示した回折強度も図に見られるように徐々に低下していく。表面を動き回る In により再配列構造が崩されるとともに In の非常に大きな表面移動度により表面回折が散乱されていることが予想される。InAs の成長量が 1.6 ML 相当に達した時点で、回折像はバルクの透過回折であるスポット像へと変化し、回折強度は急激に強くなり始める。層状成長から島状成長へ移行したことがわかる。また、成長島形成後 (anneal 後) に GaAs で埋め込み成長を行うと、GaAs の成長層厚の増加にしたがってストリーク像へ

と変化し、回折強度も低下していく。概ね 6 ML 相当の GaAs の成長により InAs 成長前の GaAs と同等の回折像が得られるようになる。6 ML 相当の GaAs 成長により InAs 成長島が埋め込まれ、成長表面が平坦に回復していることを示している。

次に InAs 成長島構造（形状、密度）の成長条件依存性について示す。

#### (i) 供給量に対する変化

InAs 供給量に対する InAs 成長島のサイズと密度の変化を **AFM** により評価した。図 5.2.5 に、成長温度 500°C、成長速度 0.1 ML/s の成長条件で、InAs の供給量を、(a)1.3 ML, (b)1.6 ML, (c) 2.1 ML, (d) 2.6 ML と変えて成長した表面の **AFM** 像を示す。走査エリアは  $0.5 \times 0.5 \mu\text{m}^2$  である。(a)に示のように InAs 成長量が 1.3 ML では、成長島はまだ形成されていない。下地の GaAs の表面

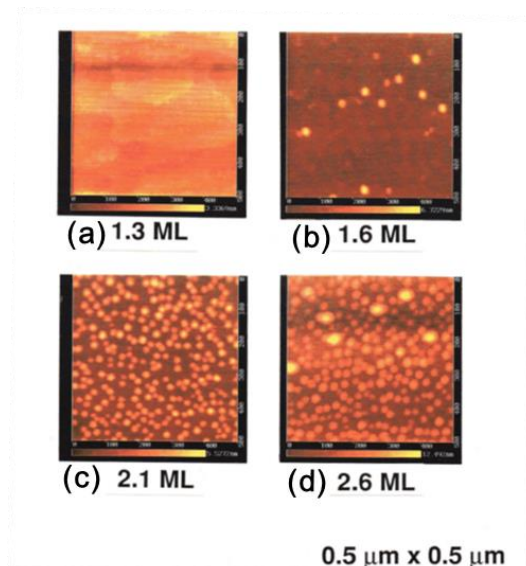


図 5.2.5. InAs 供給量を (a) 1.3 ML, (b) 1.6 ML, (c) 2.1 ML, (d) 2.6 ML とし  
て成長した際の AFM 像 [5.2.3]. (a) 1.3 ML の InAs 供給量では成長島の形  
成はなく、層状成長であることがわかる。(b) 1.6 ML の InAs 供給量で、成  
長島の形成が確認できる。ただし、密度は低い。InAs 供給量を増やすにし  
たがって密度が増加し、巨大な成長時も形成されだしている (d)。

ステップを反映して層状に成長していることがわかる。InAs 供給量が 1.6 ML に達すると (b) に見られるように成長島の形成が確認できる。これは図 5.2.4 に示した RHEED の結果とほぼ一致している。1.6 ML 供給で形成される成長島の密度はそれほど高くなく、 $6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  程度である。InAs 供給量をさらに増やしていくと成長島の密度は急激に増加し、(c) 2.1 ML の供給で、密度は  $\sim 1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  に達する。さらに供給量を増やし、(d) 2.6 ML の供給では、密度にそれほど大きな変化はなく、合体したと思われる直径が 2 倍以上の巨大な塊状の成長島 (Giant island) が形成されている。

図 5.2.6 に InAs 供給量に対する成長島のサイズ（底面の直径）と密度の変化

を示す。供給量が 1.6 ML までは層状成長となり成長島は形成されない。1.6 ML 以上の供給量で成長島が形成され始め、2 ML 程度までにその密度は急激に増加する。供給量が概ね 2 ML を超えると密度の増加はほぼ停止し、供給量

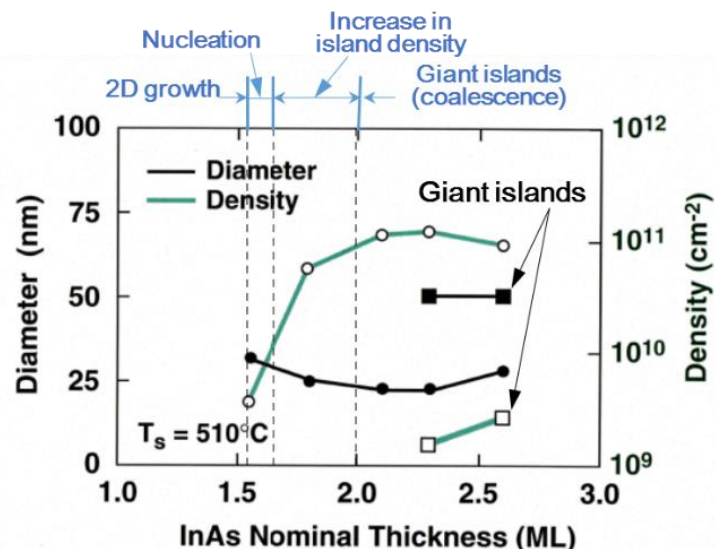


図 5.2.6. InAs 供給量に対する成長島のサイズ (底面の直径) と密度の変化 [5.2.3]. InAs 供給量にしたがって, 層状成長 (2D growth), 成長島の核形成 (Nucleation), 成長島の密度増加 (Increase in island density), 巨大成長島形成 (Giant islands (coalescence)) の 4 つのモードに移行する。

に対して密度は飽和傾向を示す ( $\sim 1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )。また、2.3 ML の供給では合体によると思われる塊状の巨大な成長島が確認され ( $\sim 3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ )、密度は供給量の増加にともなって増加する傾向を示している。上記のように、InAs 供給量に対して、成長形態は (1) 層状成長 (2D growth)、(2) 核形成 (Nucleation)、(3) 密度増加 (Increase in island density)、(4) 巨大な成長島形成 (Giant island) の 4 つのモードに大別することができる。

### (ii) 成長温度に対する変化

図 5.2.7 に成長島のサイズ (底面直径) と密度の成長温度依存性を AFM 像とともに示す。InAs の供給量は 2.1 ML 一定とした。成長温度を  $470^\circ\text{C}$  から  $560^\circ\text{C}$  へと高めることにより、成長島のサイズは 15 nm から 45 nm へと大きくなり、また密度は  $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  から  $8 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  へと大幅に減少する。こうした変化は、成長温度の変化にともなう In の表面移動度 (表面マイグレーション) の変化と一致した傾向をしており、成長島の形成が In の表面移動度律速になっていることを示唆している。

### (iii) 成長島の断面構造

図 5.2.8 は、2.5 ML の InAs を供給して成長した成長島を GaAs で埋め込んだ構造の (a) 平面と (b) (110) 断面の TEM 像である [5.2.4]。 (a) に示す平面像に見られるように、直径が 15 – 20 nm で高密度に形成された成長島と 30 – 40

nm の低密度に形成された巨大な成長島の 2 種類の成長島が観察される。巨大な成長島の一部からは干渉縞(モアレフリンジ)が観測されており、格子緩和が起こっていることを示唆している。(b)の断面像より、高密度の成長島の高さは

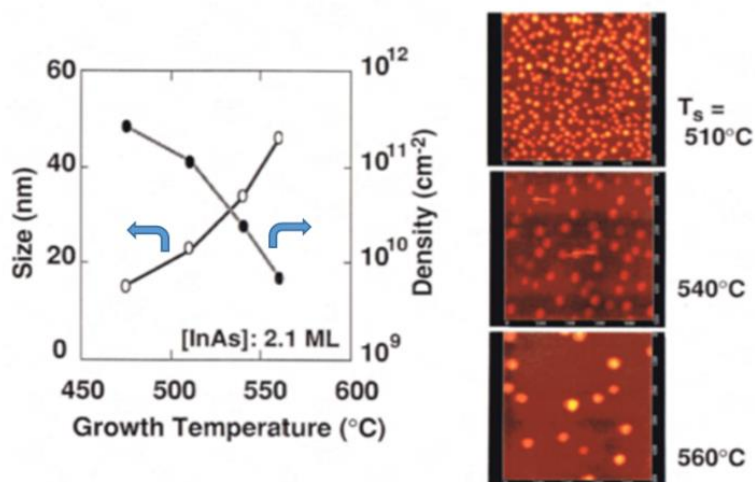
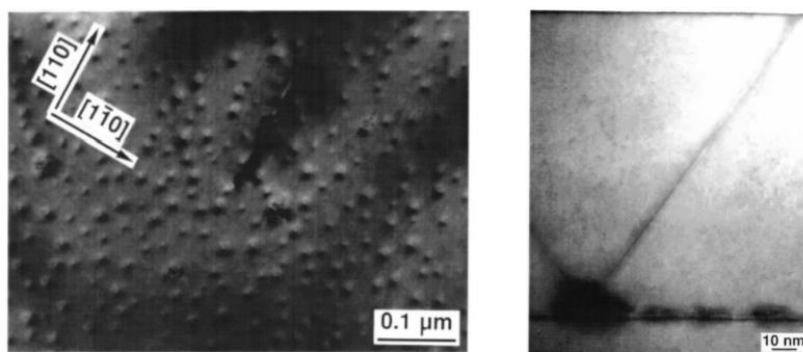


図 5.2.7. InAs成長島のサイズ(底面直径)と密度の成長温度依存性と510°C, 540°C, 560°Cで成長したInAs成長島のAFM像 [5.2.3]. InAs供給量は2.1 ML一定としている. 成長温度を470°Cから560°Cへ高めることにより, 底面直径は15 nmから45 nmへと拡大し, 密度は2桁近く低下している.

3–5 nm であり、巨大な成長島は 10 nm を超える高さとなっている。歪に起因した暗いコントラストが成長島の周辺に現れており、成長島の形成により埋め込み層である上層側の GaAs だけでなく、下地の GaAs 層の格子も歪んでいる（引っ張り歪を受けている）ことが判る。欠陥については、主に V 字状の転位と積層欠陥の 2 種類が観察されている。V 字状の転位は、(a) の平面像においては中央付近に見られるように巨大な成長島から直線状に伸びる欠陥として観



(a)

(b)

図 5.2.8. 2.5 ML の InAs を供給して成長した成長島を GaAs で埋め込んだ構造の (a) 平面 TEM 像と (b) (110) 断面の TEM 像 [5.2.3]. 直径が 20 nm 程度の小サイズの成長島と直径が 40–50 nm の巨大な成長島の 2 種類が観察される. 高さは小サイズの成長島は 3–5 nm で、巨大な成長島は 10 nm を超える. 歪のコントラストが上下の GaAs にも観察されており、InAs 成長島により GaAs 格子が歪んでいることがわかる.

察される。この欠陥は (b) の断面像に示すように、巨大な成長島の中央部から等価な{111}面上に伸び、V字状を呈している。表 5.2.1 に、供給量を 1.6 ML, 1.8 ML, 2.5 ML と変えて成長した成長島から観察された転位と積層欠陥の密度をまとめて示す。欠陥は、供給量を 2.5 ML まで増やし、巨大な成長島が形成された場合のみ確認されている。ただし、巨大な成長島すべてから欠陥が発生しているのではなく、欠陥密度は巨大な成長島の密度より 1 桁程度少ないことが確認[5.2.4]されている。

表 5.2.1. TEMにより評価したInAs成長島のサイズと密度及び観察された欠陥密度. 欠陥はInAs供給量を2.5 MLで成長した場合のみ観察されている。

| q<br>InAs<br>(ML) | Small island     |                                | Large island     |                                | Density of<br>dislocation<br>(cm <sup>-2</sup> ) | Density of<br>stacking fault<br>(cm <sup>-2</sup> ) |
|-------------------|------------------|--------------------------------|------------------|--------------------------------|--------------------------------------------------|-----------------------------------------------------|
|                   | Diameter<br>(nm) | Density<br>(cm <sup>-2</sup> ) | Diameter<br>(nm) | Density<br>(cm <sup>-2</sup> ) |                                                  |                                                     |
| 1.6               | 28               | $2.3 \times 10^{10}$           | --               | ~0                             | ~0                                               | ~0                                                  |
| 1.8               | 23               | $8.1 \times 10^{10}$           | --               | ~0                             | ~0                                               | ~0                                                  |
| 2.5               | 25               | $1.1 \times 10^{11}$           | 43               | $3 \times 10^9$                | $2.7 \times 10^8$                                | $6.7 \times 10^7$                                   |

以上、InAs 成長島の基本的な成長形態と構造、および主要な成長パラメータとの関係について示した。InAs を GaAs 上に成長することにより、(1) S-K 型の濡れ層を伴った成長島を形成すること、(2) 成長島のサイズと密度が供給量、成長温度に大きく変化すること、また (3) 供給量の制御により巨大な成長島の生成を抑制することにより欠陥フリーで成長島を形成できることを確認した。この成長島を GaAs で埋め込んだ構造の典型的なサイズは、底面直径が 15 - 20 nm、高さが 3 - 5 nm の円錐形であった。GaAs-InAs のエキシトン半径は 10 - 20 nm であり、この構造により量子ドットの離散的な状態密度の実現が十分可能であることを確認した。これら InAs 量子ドットをさらに精細に制御することにより、予測されている高性能な半導体レーザ (QD レーザ) など新規な量子ドットデバイスを実現できる可能性がある。

### 5 - 3 InAs 量子ドットの積層成長

前節で示したように GaAs 上に形成される S-K 型の InAs 量子ドットにより、QD レーザなど新規な QD デバイスを実現できる可能性がある。この量子ドットをレーザなどに応用する場合、利得媒質となる量子ドットの積層成長は極めて重要な技術となる。本節では、GaAs 中間層を介して繰り返し積層する量子ドットの積層成長について示す [5.3.1]。

図 5.3.1 は GaAs 中間層の厚さを (a) 10 nm, (b) 20 nm で積層した試料の

(110) 断面の **TEM** 像である。中間層厚の違いにより積層される量子ドットの形状に大きな差異が確認できる。GaAs 中間層の厚さを (a) 10 nm で積層した場合、積層した量子ドットは積層方向に配列して形成される。サイズは積層数

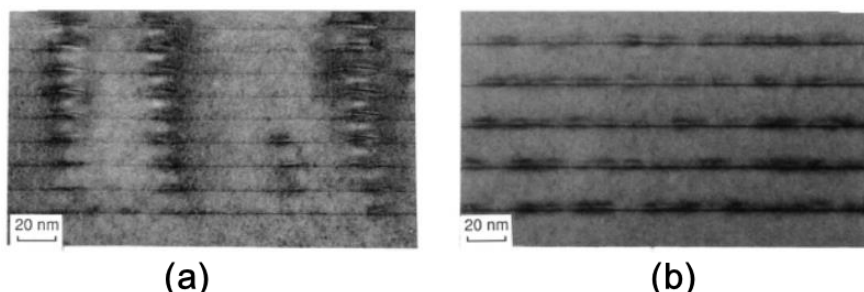


図 5.3.1. GaAs 中間層厚を (a) 10 nm, (b) 20 nm で積層した構造の断面の TEM 像 [5.3.1]. 10 nm の中間層で積層した場合、下層のドット位置に配列して形成される。上層では密度が減り、サイズが拡大している。20 nm の中間層で積層した場合、下層との相関がなくなり、1 層目と同じ密度とサイズで積層される。

の増加とともに大きくなり、また密度は著しく減少している。中間層の厚さは、量子ドットの高さの 2 倍以上の厚さであり、また埋め込み成長により表面が平坦化する 6 nm より充分厚くしても下層の量子ドットとの相関が生じていることがわかる。一方、中間層の厚さを (b) 20 nm にした場合には、下層との相関はほとんど見られず、初期層に類似したサイズと密度で繰り返し積層されている。(a) に示したような積層方向での量子ドットの配列形成は、Solomon らによっても確認されており [5.3.2]、量子ドットの積層成長における重要な課題の一つになっていた。こうした配列形成は、Xie らも指摘するように [5.3.3]、下層ドットにより GaAs 中間層が引っ張り歪を受け、これが伝搬し積層成長に影響を及ぼしているためと考えられる。量子ドットの上下に広がる歪については、図 5.2.8 に示した断面 TEM においても歪のコントラストとして観察されている。中間層に導入された歪の様子を図 5.3.2 に模式的に示す。(a) に示すように InAs ドット上の GaAs は局所的に引っ張り歪を受け、面内の格子は広がることになる。この歪は中間層を厚くするとともに抑制され、中間層厚が充分に厚い場合には、下層のからの歪を受けることなく第 1 層と同様に InAs ドットが形成されることになる。しかし、(b) に示すように中間層が薄く、歪が中間層上端（積層するドットの直下）にまで達している場合には、供給された In-As は、歪エネルギーがより小さくなる領域、すなわち下地の GaAs が引っ張り歪により面内格子が広がっている領域に取り込まれやすくなり、優先的に InAs ドットが形成されると考えられる。また、この領域では、下地となる GaAs の面内格子は引っ張り歪により広がっており、InAs ドット自体の歪は本来の GaAs 上に比べ緩和されると考えられる。そのため、サイズも大きくなると考えられる。一方、(c) に示すように中間層をより薄くした場合には、下層に形

成した全ての InAs ドットの歪が中間層の上端にまで達することになる。この場合、顕著に密度を低下させることなく下層の InAs ドットと相関を持たせて配列形成させることができると考えられる。

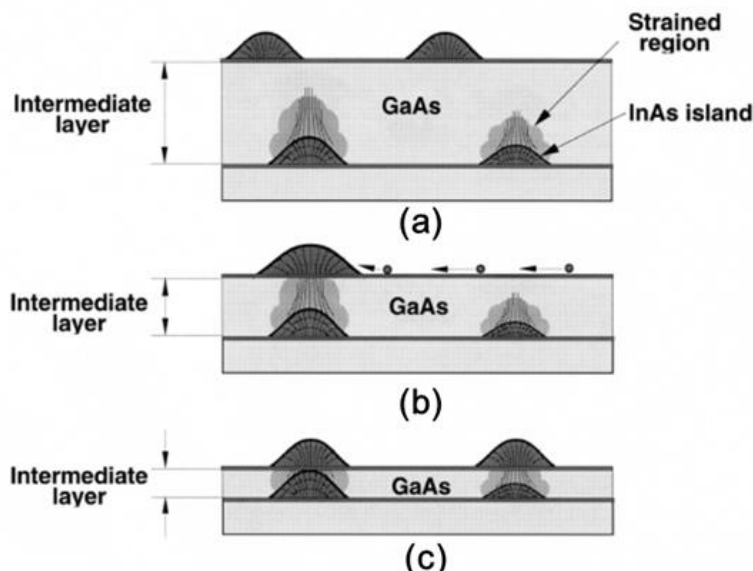


図 5.3.2. 下層のドットにより中間層に導入された歪分布の模式図. (a) 中間層が厚い場合, 上層のドットは下層ドットの歪を受けることなく 1 層目と同様の形態でドットが形成される, (b) 中間層が薄くなり, 歪が中間層上端 (積層するドットの直下) に達している場合, In-As は歪領域に取り込まれやすくなり, 優先的に InAs ドットが形成される, (c) 中間層がさらに薄くなった場合, 下層の全てのドットの歪が中間層の上端にまで達し, ドットが下層のドットに配列して形成される.

これを確認するため中間層の厚さを変えて積層し、量子ドットのサイズと密度の変化を調べた。図 5.3.3 (a) に試料構造を模式的に示す。中間層の厚さ,  $L$  を 3 nm から 100 nm の範囲で変えて 10 層の InAs ドット層を積層し、最上層のドットサイズと密度を AFM により評価した。InAs ドットの成長は、成長温度 500°C、成長速度 0.1 ML/s で 1.8 ML 相当の InAs を供給した。(b) にドットの底面直径の変化を示す。10 nm の中間層で積層した場合、ドットの底面直径は最も大きくなり、約 45 nm と第 1 層目 (24 nm) に比べ 2 倍程度にまで拡大する。中間層を厚くするにしたがって底面直径は小さくなり、20 nm 以上の中間層で積層することにより第 1 層目と同程度のサイズで積層されるようになることがわかる。(c) に示す密度の変化もサイズの変化に対応しており、10 nm の中間層で積層した場合に最も減少し、第 1 層目 (約  $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ) に対し、30%程度にまで低下する。中間層を厚くするにしたがって密度は第 1 層目の密度に近づき、概ね 30 nm 以上の中間層で積層することにより、第 1 層目と同じ密度で形成されるようになる。したがって、中間層に伝搬する歪による影響を抑制し、初期層と同じドット層の単純繰り返し積層のためには中間層を 20~30 nm 以上で積層する必要があることがわかる。一方、10 nm よりさらに薄くし

た場合、サイズと密度は第1層目のサイズと密度に近づいていく。これは図5.3.2(c)に示したように、中間層が薄くなることにより、下層ドットの歪が中間層表面に達している確率が増えるため、密度の低下は抑制され、そのためサ

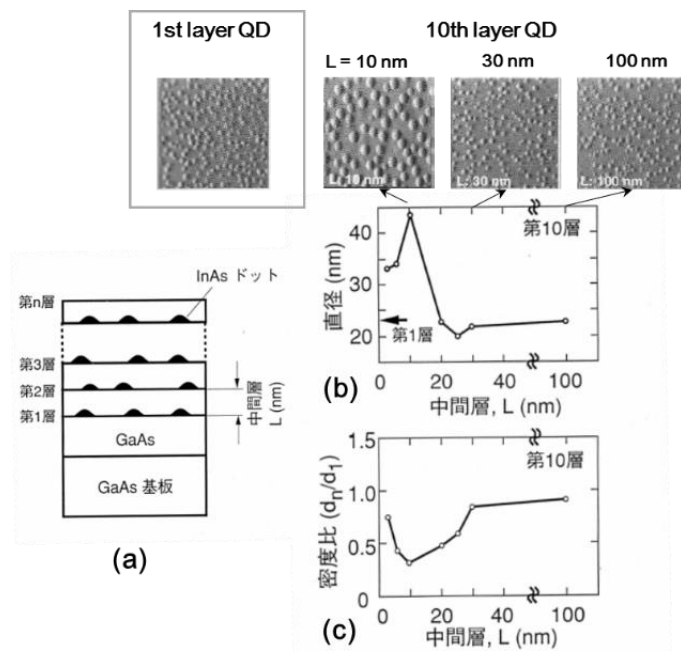


図 5.3.3. 積層したInAsドットのサイズと密度の中間層厚さ依存性 [5.3.1]. (a) 試料構造の模式図, GaAs中間層を介して10層のInAsドットを積層している. (b) 10層目のInAsドットのサイズ(底面直径)の中間層厚さによる変化. (c) 10層目のInAsドットの密度の中間層厚さによる変化. 密度は1層目の密度で規格化している. 上部の像は, 1層目および10nm, 20 nm, 100 nmの中間層で積層した10層目のInAsドットのAFM像.

イズの拡大も抑制されたものと考えられる。この中間層 10 nm 以下での積層では、成長方向にドットが配列して形成されていることが予想される。この配列形成を利用して、ドットの形状を制御できる可能性がある。これについては、5-4 節の近接積層にて述べる。図 5.3.4 に単層構造と 20 nm の GaAs 中間層を用いて 10 層積層した構造の 77K で PL を示す。積層構造からも同様のピークエネルギーと半値幅を持つスペクトルが得られており、20 nm 程度の中間層を用いて積層することにより、同程度のサイズ分布をもつドットが形成できていることが確認できる。

一方、InAs ドットからの発光はいずれも 1.2 eV 付近に現れており、半値幅は 90 meV と広い。これは、S-K 型の InAs 量子ドットの典型的な PL スペクトルで、図 5.3.5 に模式的に示すように、ドットサイズの不均一に起因している。測定に用いた励起用レーザーのスポット径は 100  $\mu\text{m}$  程度であるので、この中に  $10^6 \sim 10^7$  個のドットがあり、そのサイズのばらつきを反映していることになる。ただし、マイクロ PL など微小領域の少数のドットからの発光は、数 10  $\mu\text{eV}$  の半値幅であることが判っている。

こうした S-K 成長利用した InAs 量子ドットをそのまま半導体レーザに応用した場合、この広い発光スペクトル（エネルギー揺らぎ）は、光学利得を下げ、予測されているような高性能レーザは実現できない。低い利得は、基底状

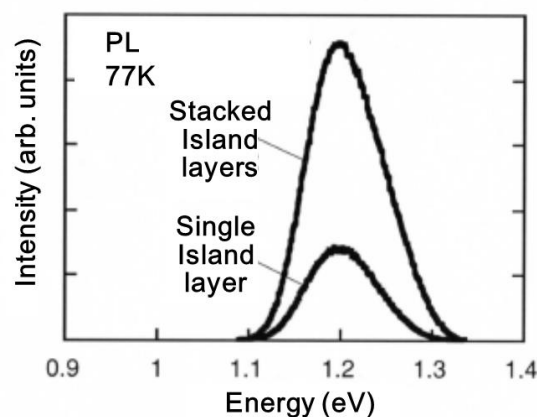


図 5.3.4. InAsドットの単層構造と20 nmのGaAs中間層を用いて10層積層した積層構造の77KのPLスペクトル[5.3.1]. 20 nmのGaAs中間層を用いて積層した構造からは、単層構造と同じピークエネルギーと半値幅を持つスペクトルが得られている。InAsドットからの発光はいずれも1.2 eV付近に現れており、半値幅は90 meVと広い。

態からの発振だけでなく高次の励起準位からの発振も誘発する[5.3.4, 5]。これはしきい値電流を大幅に増加させることになる。また、低い利得は、緩和振動周波数を下げ、変調帯域を抑制することになる。したがって、実用的な通信用半導体レーザは実現できない。半導体レーザへの応用に向けては、何らかの手

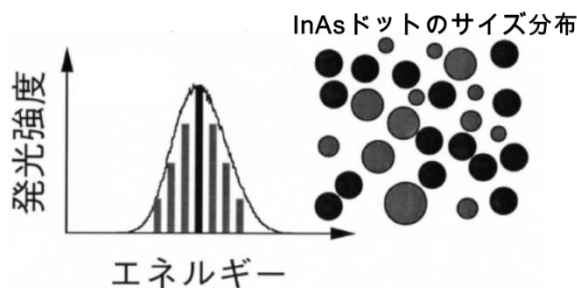


図 5.3.5. ドットのサイズ分布による発光スペクトルの拡がりの模式図。

法により構造を制御し、発光スペクトルの拡がり（サイズの不均一）を抑制しなければならない。一方、Mutoにより提案された多波長のホールバーニングメモリ[5.3.6, 7]などへの応用には、こうした発光スペクトルの拡がりを積極的に利用するため優位と考えられる。

以上、デバイス応用に向けて重要となる InAs ドットの積層成長について検討した。初期層に類似した量子ドット層の単純繰り返し積層には中間層をある程度厚くする必要がある(> 20~30 nm) こと、また中間層を薄くした場合、積層方向に量子ドットの配列性が現れることを明らかにした。これら InAs ドットの

積層成長には、下層の InAs ドットから中間層に伝搬する歪が重要であることを指摘した。

## 5-4 InAs 量子ドットの近接積層と超近接積層による構造制御

### (1) InAs ドットの近接積層

前節で示したような InAs ドットの広い発光スペクトルは、半導体レーザなど光デバイスへの応用に向けては大きな問題となる。何らかの方法によりサイズバラつきを抑制し、発光スペクトルを狭線化する必要がある。前節で示したように S-K 型の InAs ドットの形状は、図 5.4.1 (a) に模式的示すように、高さが 3-5 nm と横方向サイズ (~20 nm) に比べ小さい。(b) に一次元ポテンシ

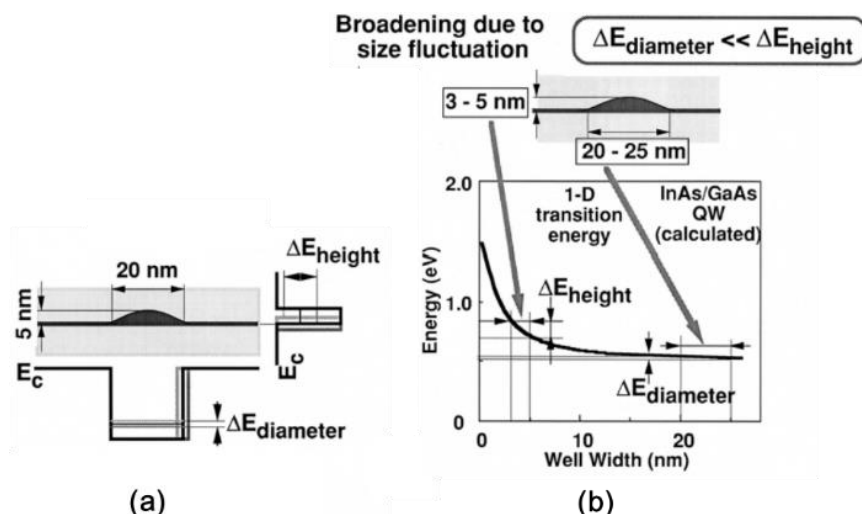


図 5.4.1. (a) InAs ドットの典型的な構造とサイズ揺らぎによるエネルギー揺らぎ. (b) 量子井戸幅の揺らぎに対するエネルギー揺らぎの模式図. 典型的なドットサイズでは高さの揺らぎが大きなエネルギー揺らぎになる.

ャルを用いて模式的に示すように、サイズ揺らぎによるエネルギー揺らぎは、そのサイズが小さいほど大きくなる。したがって、高さを高精細に制御する、もしくは高さを増大することにより発光スペクトルの広がり抑制され、狭線化できるものと思われる。前節で示した積層方向への量子ドットの配列形成は、最近いくつかの機関で報告[5.4.1-4]されている。積層方向に配列したドット間で波動関数が重なる程度まで GaAs 中間層を薄くすると配列形成したドットが電子的な結合状態になる。これは、これまでの QW を薄い障壁層で積層した超格子と同じである。この配列形成を利用することにより、図 5.4.2 に模式的に示すように、中間層厚さと繰り返しの積層数により、ドットの実効的な高さを制御し、発光スペクトルを狭線化できる可能性がある。さらに、高さを増大させることにより、発光波長を光通信の波長域 (1.3  $\mu\text{m}$ ) に制御できる可能性もある。本節では、数 nm の薄い GaAs 中間層を用いて InAs ドットを配列積

層し、ドットの実効的な高さの制御と発光スペクトルの狭線化（不均一幅の低減）について示す[5.4.5]。厚さを 2 nm にまで薄くした GaAs 中間層を用いてドットを近接して積層した構造において、積層数に応じて発光エネルギーが低エネルギー側にシフトすること、磁気 PL の反磁性シフトより、3 次元的なキャリア閉じ込め構造が形成されており、高さが拡大していること、また発光スペクトルの半値幅が 25 meV と通常の 1/3 以下にまで低減していることを示す[5.4.4-6]。

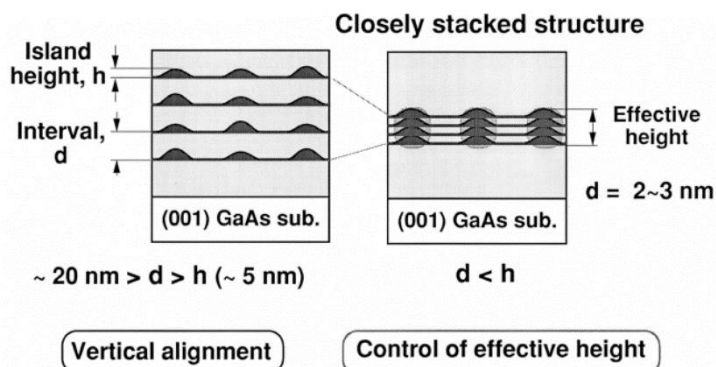


図 5.4.2. 薄い中間層を用いて積層したInAsドットの配列性を利用したドット形状(高さ)の制御方法. 超格子的な結合構造を形成することにより, 実効的な高さを中間層の厚さと積層数で制御する.

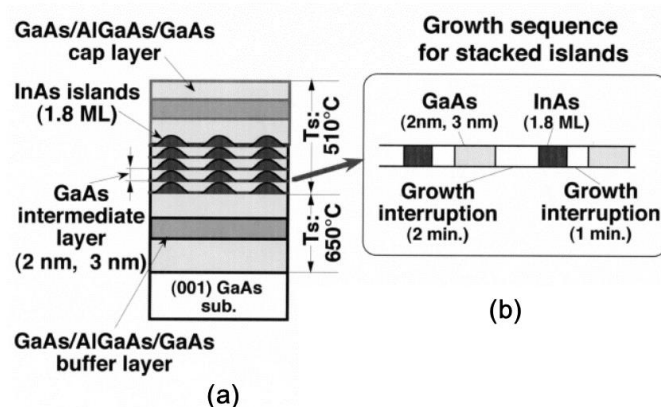


図 5.4.3. 近接積層したInAsドットの (a) 試料構造の模式図と (b) 成長シーケンス [5.4.4]. InAs 供給後に 1 分のポストアニールと中間層上端 (InAs ドット直下) で, ドット高さの均一化 (フラッシング) と平坦化のため 2 分間アニールを行っている.

図 5.4.3 (a), (b) に InAs ドットの近接積層構造とその成長シーケンスを示す。2 nm と 3 nm の GaAs 中間層を介して 1.8 ML の InAs を繰り返し成長している（全 5 層）。InAs 成長前には、成長表面の平坦性を回復させるため 2 分間の成長中断を、また InAs 供給後には 1 分間のポストアニールを行っている。

図 5.4.4 に上記シーケンスで成長している際の RHEED 像を示す。(a) GaAs 成長時のストリーク像が (b) InAs ドットの形成によりスポット像へと変化し、

(c) 3 nm の GaAs 中間層の成長後の成長中断 (アニール)の過程でストリーク像へと変換し、平坦的な表面になっていることがわかる。ただし、(a) にみられるような GaAs 表面の再配列構造 (2x の構造) を示す分数次の回折ストリーク

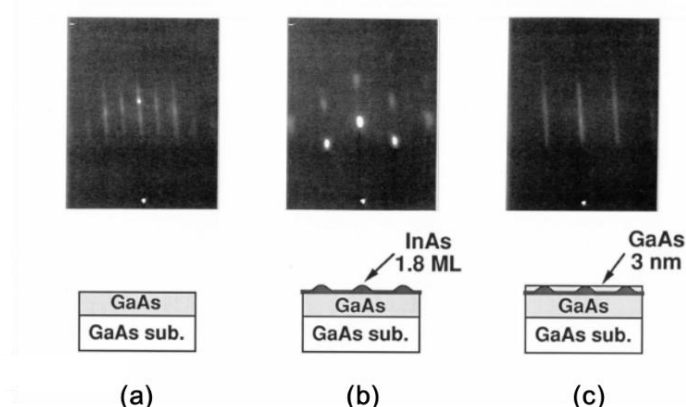


図 5.4.4. 3 nmのGaAs中間層によりInAsドットの埋め込み成長した際のRHEED像. (a) GaAs下地層, (b) 1層目のInAsドット形成後, (c) 3 nmのGaAs中間層上端.

は観察されておらず、図 5.2.4 に示した InAs の成長開始直後と同様に、InAs が表面に偏析していることを示唆している。

図 5.4.5 に InAs ドットを積層成長している際の **RHEED** 強度の変化を、第 1 層目の強度変化とともに示す。強度は挿入図の矢印で示す透過回折のスポット位置で観測している。InAs 成長前には、挿入図左の **RHEED** 像に示すよう

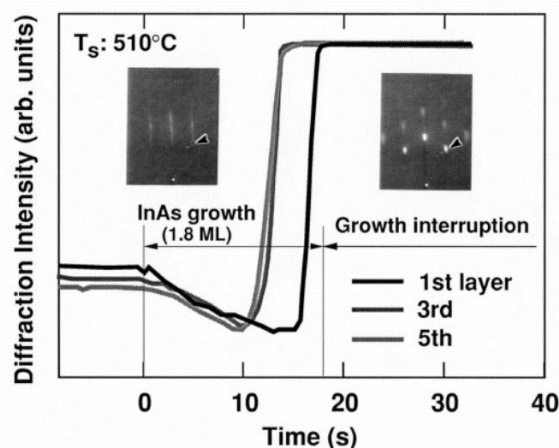


図 5.4.5. InAsドットを積層成長している際のRHEED強度の変化 [5.4.4, 5]. 回折強度は挿入図の像の矢印の位置 (透過回折スポット)の強度を観測. 1層目の層状成長から島状成長への移行 (臨界膜厚) は1.6 MLであるが3層目, 5層目では1.0 MLに減少している.

に GaAs 表面の平坦性を反映したストリーク像が得られている。前節で示した図 5.2.4 と同様に InAs の成長開始とともに回折強度は徐々に低下していき、3 次元的な島状成長の開始とともに **RHEED** 像はストリーク像から右に示すスポット状の透過回折像へと変換し、回折強度が急激に強くなる。第 1 層目の成長

においては、回折強度が急激に強くなるまでの時間（層状成長から島状成長へ移行する時間）は 16 秒であり、島状成長が開始するまでの層厚（臨界膜厚）は成長速度より 1.6 ML と見積もれる。一方、3 nm の GaAs 中間層を用いた積層成長（第 3 層目、第 5 層目）においては、同図に見られるように、1.0 ML の InAs 成長で成長島が形成され始めており、臨界膜厚が約 60% にまで低下している。これは前節でも示したように、下層の InAs ドットの歪による影響と考えられる。下層ドットによる歪が中間層の表面にまで伝搬し、この局所的な歪領域に In-As が優先的に取り込まれ、核形成を速めていると考えられる。また、形成された InAs ドットの GaAs による埋め込み成長の過程で、In 原子が少なからず拡散もしくは偏析する可能性がある。下層の InAs ドットから中間層中に偏析した In 原子が歪領域に優先的に堆積し、見かけ上臨界膜厚が小さく観測されている可能性もある。

2 – 3 nm の薄い GaAs 中間層を用いて近接積層した InAs ドットの形状と密度を AFM により調べた。図 5.4.6 (a) ~ (e) に、試料構造と近接積層した InAs ドットの第 1 層目から第 10 層目の AFM 像を示す。近接積層は 3 nm の GaAs

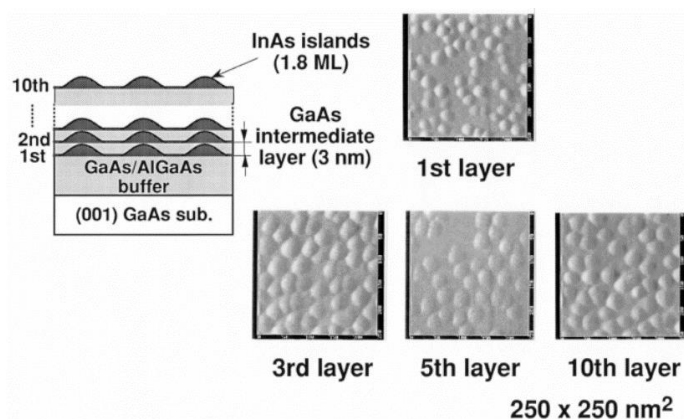


図 5.4.6. 3 nm の GaAs 中間層を用いて積層した InAs ドットの AFM 像. (a) 試料構造, (b) 1 層目の InAs ドットおよび (c) 3 層目, (d) 5 層目, (e) 10 層目の InAs ドット [5.4.4, 5].

中間層を用いた。AFM 観測は大気環境下で行っている。したがって、これら試料は同一の成長条件で成長した別の試料である。図に見られるように積層数の増加にしたがって、サイズはやや大きくなる傾向にある。図 5.4.7 に底面直径の積層数依存性を示す。第 1 層目において形成された InAs ドットの底面直径は 24 nm であった。積層数を増すにしたがって底面直径は大きくなり、10 層目においては 33 nm にまで拡大している。なお、10 層目の密度は、1 層目に対し 80% 程度となっており、被覆率はほぼ一定となっている。

この断面構造を TEM により観察した。図 5.4.8. (a) に、2 nm の GaAs 中間層を用いて 5 層積層した構造の (110) 断面の TEM 像を示す。積層した各 InAs ドット層においても濡れ層のコントラストが明瞭に観察されており、積層成長

した InAs ドットにおいても第 1 層と同様に濡れ層を伴った **S-K** 型の形態であるわかる。また、積層形成されたドットは、下層のドットの位置に一致して積層方向に配列形成されていることが明瞭に確認できる。この積層ドットは全体

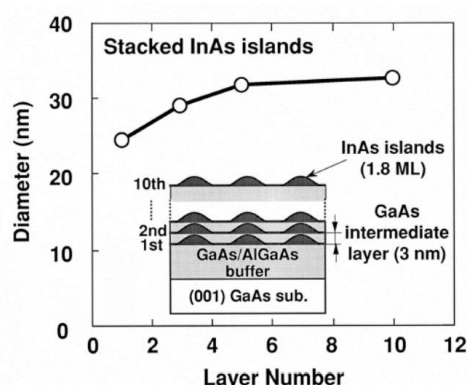


図 5.4.7. 3 nm の GaAs 中間層を用いて積層した InAs ドットのサイズの積層数による変化 [5.4.4, 5]. 積層数を増すにしたがいサイズは単調に大きくなる. 1 層目では InAs ドットのサイズ (底面直径) は 24 nm であったが 10 目では 33 nm に大きくなっている.

として底面直径が 22 nm で高さが 13 nm の円柱形状で、暗い逆円錐形状の歪のコントラストで覆われている。各層の InAs ドットの上下には 3・4 ML 程度の極薄の中間層があり、上下のドットは空間的に分離しているように観察され

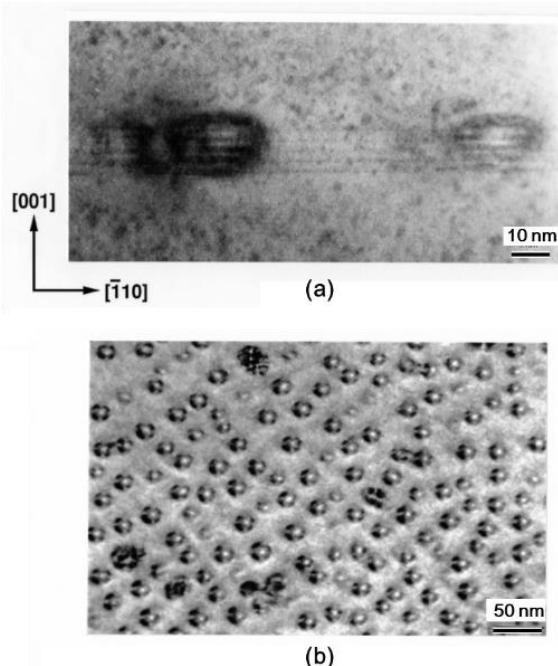


図 5.4.8. 2 nm の GaAs 中間層を用いて 5 層積層した構造の (a) (110) 断面の TEM 像と (b) (001) 平面の TEM 像 [5.4.4, 5]. (a) 積層した各 InAs ドット層において濡れ層 (WL) が形成されている. 全体として底面直径が 22 nm で高さが 13 nm の円柱形状で、暗い逆円錐形状の歪のコントラストで覆われている. (b) 密度は  $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  で、第 1 層目の InAs ドットの AFM 像により観測した密度とよく一致している.

る。このことは、InAs ドットの高さが、通常に成長した InAs ドットに比べ低く、また用いた GaAs 中間層 (2 nm) より低いことを示している。また、図 5.4.4 の RHEED 像に示したように、InAs 成長前には平坦な表面形成を示すストリーク回折が得られており、GaAs 中間層の上端はかなり平坦的であることがわかっている。これらを基に予測される成長形態を図 5.4.9 (a) – (d) に模式

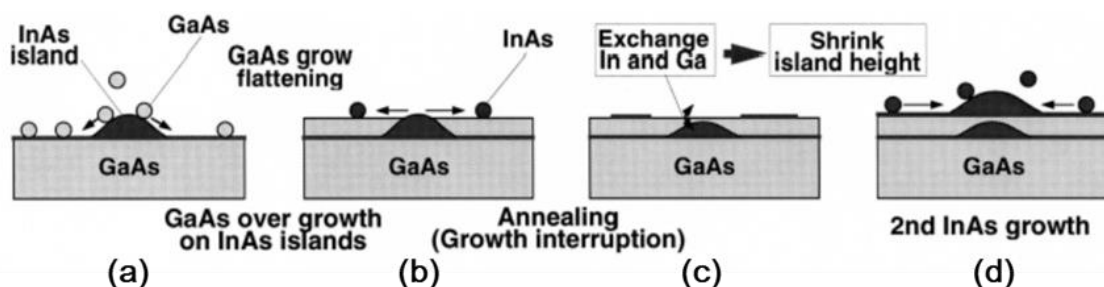


図 5.4.9. 積層成長において予測される成長形態の模式図 [5.4.4]. (a) 中間層成長初期. InAs ドット部を避けて成長が進む. (b), (c) 中間層上端でのアニールによりドット上端部が拡散して縮小する. (d) 中間層上端の InAs が積層する InAs ドットの一部として取り込まれていく.

的に示す。Chen らの報告 [5.4.8] にあるように、GaAs による InAs ドットの埋め込み成長では、InAs ドット部を避け (a), (b) に示すように成長が進む。(c) に示すように、2 層目の InAs ドットを形成する前の GaAs 中間層上端での成長中断 (アニール) により、中間層上端より突出していたドットの先端部は拡散もしくは歪エネルギーを低下させるために GaAs と置換され、(d) に示すように積層する InAs ドットの濡れ層の一部として取り込まれていくものと考えられる。

図 5.4.8. (b) に同試料の (001) 平面の TEM 像を示す。この像より観測される密度は  $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  であり、これは、第 1 層目の InAs ドットの AFM 像により観測した密度とよく一致している。また、この像より観察される横方向のサイズ揺らぎは、AFM で観測される第 1 層目のサイズ揺らぎに比べかなり抑制されているように見える。また、面内での配列性もでてるように見える。

この近接積層構造の発光特性を PL により評価した。図 5.4.10 は、InAs ドットの単層構造および 3 nm の GaAs 中間層で 3 層と 5 層積層した構造の 77K での PL スペクトルである。励起には、波長 514 nm の Ar+ レーザを用い、GaAs 障壁層を励起することにより観測している。単層構造の発光ピークは 1.2 eV 付近であるが、3 層の積層構造では 60 meV 低エネルギー側へシフトし 1.14 eV に、5 層の積層構造では 1.12 eV に発光ピークが得られている。また 10 層の積層構造では発光ピークは 1.06 eV [5.4.7] に観測されており、層数の増加にともなって発光ピークは低エネルギー側にシフトしている。同時に発光スペクトルの半値幅 (FWHM) は大幅に低減し、単層構造で 90 meV あった

FWHM は 5 層構造で 1/3 以下の 27 meV まで狭くなっている。積層方向で各層のドットが電子的な結合状態にあり、これにより高さの揺らぎが大幅に抑制されたものと考えられ、計算によっても確認されている[5.4.9]。なお、10 層

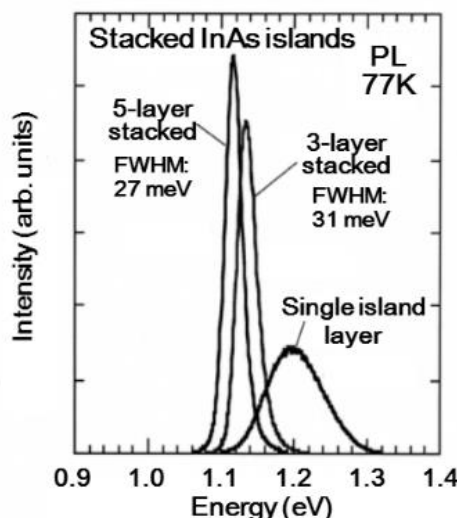
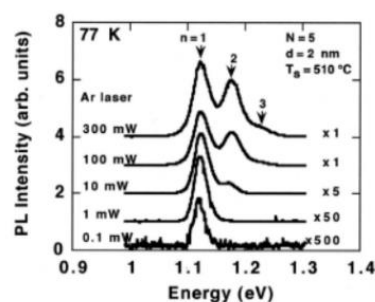


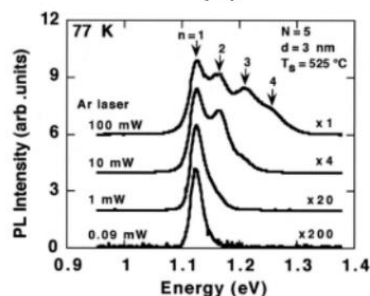
図 5.4.10. 3 nm の GaAs 中間層で 3 層と 5 層積層した構造から得られた 77 K の PL スペクトル [5.4.5]. 単層構造に比べ半値幅が 1/3 程度に狭くなっており、サイズの不均一性が大幅に抑制されている。

構造では FWHM は広がっており、発光強度も低下している[5.4.6]。これは、10 層の積層により歪が増大し、ミスフィット転位の発生しているためと考えられる。2 nm の GaAs 中間層を用いて 5 層積層した構造からは、FWHM が 21 meV とこれまでに報告されている InAs ドットからの PL 発光では最も狭い値が得られている[5.4.4-6, 9]。

図 5.4.11 に (a) 2 nm の GaAs 中間層と (b) 3 nm の GaAs 中間層を用いて 5 層積層した構造から得られた PL の励起光強度依存性を示す。励起光強度を増すにしたがい両試料とも高次の量子準位からの発光が明瞭に現れている。基底準位間の遷移と第 1 励起準位間の遷移のエネルギー差は、2 nm 中間層構造で 52 meV、また 3 nm 中間層で 44 meV であった。単層構造でのこのエネルギー差は 70 meV であ



(a)



(b)

図 5.4.11. (a) 2 nm の GaAs 中間層と (b) 3 nm の GaAs 中間層を用いて 5 層積層した構造から得られた PL の励起光強度依存性 [5.4.6]. Copyright (1997). The Japan Society of Applied Physics.

るので、近接積層構造では準位間隔が狭くなっている。積層に伴い底面直径が拡大し、横方向の閉じ込めが単層構造に比べ弱くなっているものと考えられる。

先に示した近接積層構造からの発光特性が 3 次元的なキャリア閉じ込めを反映した発光かを確認するため、磁気 PL 測定を行った[5.4.4, 7]。磁気 PL では、磁場の印加より磁場に対して垂直面内にキャリアを閉じ込め、これによる発光エネルギーのシフトを測定する。そのため、他の構造的な閉じ込めポテンシャルを評価できる。図 5.4.12.(a)に測定に用いた試料構造の模式図と印加する磁場の方向を示す。試料には、3 nm の GaAs 中間層を用いて 5 層積層した近接積層構造と比較のために  $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}/\text{GaAs}$  QW 構造を用いた。QW 構造は GaAs 基板上に MOCVD を用いて成長しており、井戸幅は 8 nm である。(b)

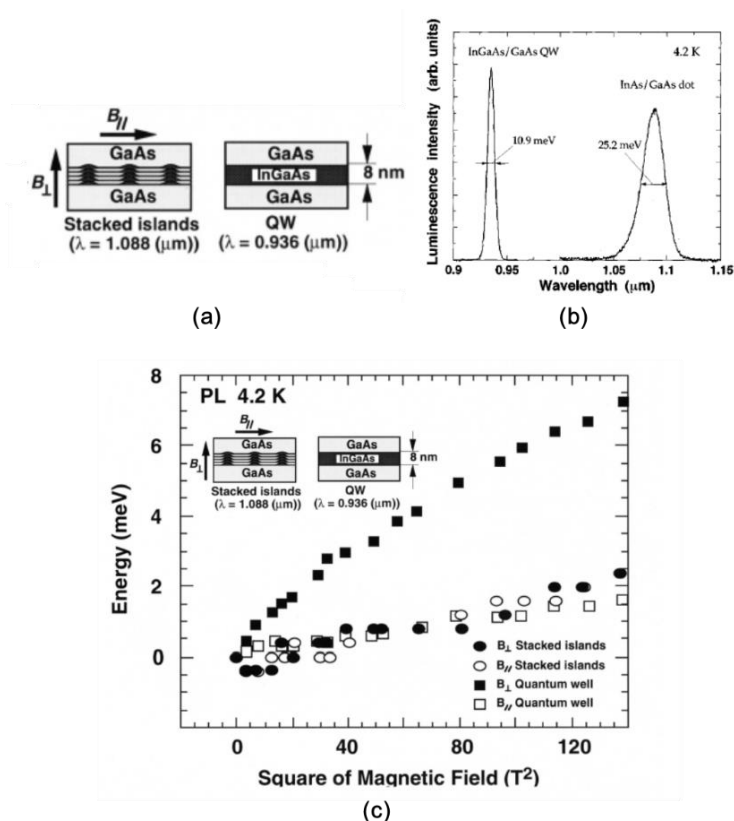


図 5.4.12. (a) 磁気PL測定に用いた試料の構造. 3 nmのGaAs中間層を用いて5層積層した近接積層構造と比較のために用いた  $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}$  (8 nm)/GaAs QW構造. (b) 磁場印加なしで測定した4.2KのPLスペクトル. (c) 試料面に平行及び垂直に磁場を印加して測定したPL発光エネルギーシフトの磁場依存性(反磁性シフト)[5.4.4, 5, 7].

に磁場印加なしで測定した 4.2K での PL スペクトルを示す。波長  $0.93 \text{ } \mu\text{m}$  に QW のシャープ発光と  $1.08 \text{ } \mu\text{m}$  に近接積層構造からの発光が明瞭に確認できる。(c) に試料面に平行及び垂直に磁場を印加して 4.2K で測定した反磁性シフトを示す。QW 構造では、垂直に印加した磁場 (■) に対して発光エネルギーシ

フトし、印加磁場最大の 11.8 T において 7.3 meV までシフトしている。また、試料面に平行の磁場 ( $\square$ ) に対してはほとんどエネルギーシフトが見られず、1.6 meV 程度である。これに対し近接積層した量子ドット試料では、磁場の方向 (垂直 ( $\bullet$ ), 平行 ( $\circ$ )) に対してもほとんど依存せず、最大でも 2.4 meV 程度のシフトに留まっている。QW 構造における磁場の印加方向に対する違いは、キャリア閉じ込めが試料面に垂直方向の 1 次元であることを示している。これは、試料面に垂直に磁場を印加した場合、井戸構造に対して面内 2 次元に対しても磁場による閉じ込めが付加され、これによりエネルギーが高エネルギー側にシフトする。一方、試料面に平行に磁場を印加した場合、磁場により垂直方向と横方向 1 次元の閉じ込めが生じるが、垂直方向には GaAs 障壁層により構造的な閉じ込めがあるので、磁場印加によっては面内 1 次元の閉じ込めが付加されることになり反磁性シフトは垂直方向磁場に比べて小さくなる。したがって、近接積層した量子ドットへの磁場印加において、印加磁場の方向に対して依存性がないこと、またシフト量が QW 以下であることは、近接積層した量子ドットが 3 次元的に、またほとんど等方的なポテンシャルにより閉じ込められていることを示している。また、試料面に平行に印加した磁場依存性において、QW と近接積層した量子ドットの反磁性シフト量がほとんど同じであることは、近接積層した量子ドットのエキシトンの波動関数の広がり、QW の厚さと同じ 8 nm 程度であることを示している。この波動関数の広がり、TEM により評価したドットサイズより小さい。また単層のドット高さ (3 - 5 nm) に比べて明らかに大きい。このことは、基底状態のエキシトンは、3 層程度までのドットに広がっていることになり、全体の積層構造内のある領域に局在していることを示唆している。こうした局在は、組成揺らぎや構造揺らぎなどに起因したものと考えられ、5 層の積層ドットの結合によりポテンシャルミニマムが形成され、これがバンド間遷移を支配しているものと考えられる。

以上、近接積層構造の素子応用への利点をまとめると、(1) 通常に成長した S-K 型の InAs 量子ドットに比べて発光半値幅を大幅に狭くできる。(2) 量子ドットのサイズ、特に高さを積層の繰り返し数で制御できる。したがって、発光波長や準位間隔、準位の縮退および光学遷移の振動子強度の重要な要因である電子と正孔の波動関数の重なりなどを制御できることになる。

## (2) InAs ドットの超近接積層(コラムナ形状ドット)

図 5.4.3 に示した成長シーケンスに示したように中間層上端でのアニール (成長中断) を用いた近接積層により発光スペクトスの半値幅を大幅に狭くし、サイズの不均一を抑制することには成功したが、発光効率は大幅に低下していた[5.4.10]。PL 発光強度は温度を高めるにしたがって弱くなり、室温では

ほとんど観測できないほど弱い発光となっていた。成長シーケンスとして、中間層上端で平坦性を高めること（ドットの高さを均一化する）を目的にアニールを行っているが、このアニールが発光強度に大きく影響していることがわかった。このアニールにより、多くの欠陥や不純物がドット直下となる中間層上端に導入され、非発光中心になり発光強度を低下させていると思われる。実際にこのアニールなしに成長すると発光強度は改善され、室温においても明瞭な PL スペクトラムが観測できるようになる。しかし、発光線幅は 50 - 60 meV と広がってしまう。アニール効果がなくなり積層ドットの高さの揺らぎと上下間のドットの障壁層厚さに不均一が生じているものと思われる。このことは計算によっても確認されている [5.4.9]。

そこで、上下間に配列して形成されるドットが直接接触するようドットの高さより薄い中間層を用いて積層することを試みた [5.4.11]。図 5.2.4 にも示したように、ドットの埋め込み成長においては、概ね 6 ML の GaAs の成長でドットは埋め込まれ、表面は平坦化する。そこで、これより薄い 3 ML 以下まで薄くした中間層を用いて積層を行った。こうした薄い中間層においても S-K 型の成長島が形成できることを確認した。図 5.4.13 に 1 層目の InAs ドット上に、10 ~ 3 ML の GaAs 中間層を介して 2 層目の InAs ドットを積層成長している際の RHEED 強度の変化を示す。成長は、第 1 層目に 1.8 ML の InAs 供給に

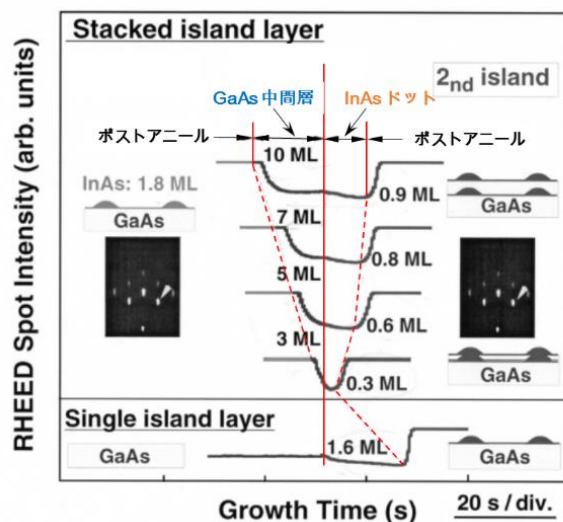


図 5.4.13. 10 ML から 3 ML の GaAs 中間層を介して 2 層目の InAs ドットを成長している際の RHEED 強度の変化 [5.4.4, 11]. GaAs 中間層の成長により RHEED 像はストリーク像へと変化し、回折強度は弱くなる。InAs 成長後、臨界膜厚に達するとスポット像へと変化し、回折強度は急激に強くなる。臨界膜厚は中間層の厚さに依存して変化している。

よりドットを成長し、GaAs 中間層厚を変えて InAs を成長した。GaAs 中間層上端では成長中断（アニール）することなく InAs を成長している。1 層目の InAs ドットのポストアニール後の GaAs 中間層の成長により回折像は、スポッ

ト像からストリーク像へと変化する。回折強度は図に見られるように弱くなり始める。GaAs 中間層の成長により表面は平坦化されていくことを示している。この後 2 層目の InAs の供給により、1 層目（最下部の強度変化）と同様にしばらく供給をした後に回折像はスポット像へと変化する。回折強度は急激に強くなる。3 ML や 5 ML といった薄い中間層を用いても層状成長から島状成長へ遷移する S-K 型の形態でドットが成長していることがわかる。ただし、層状成長から島状成長へ移行する臨界膜厚は中間層厚さを薄くするにしたがって臨界膜厚も薄くなっていることがわかる（中間層厚 10 ML で臨界膜厚 0.84 ML, 中間層厚 3 ML で臨界膜厚 0.26 ML）。図 5.4.14. (a) - (c) に 3 ML の GaAs 中間層を用いて InAs ドットを繰り返し積層した際の RHEED 強度の変化と 9 層目のドットの AFM 像を示す。1 層目のドット形成は 1.8 ML の InAs 供給により形

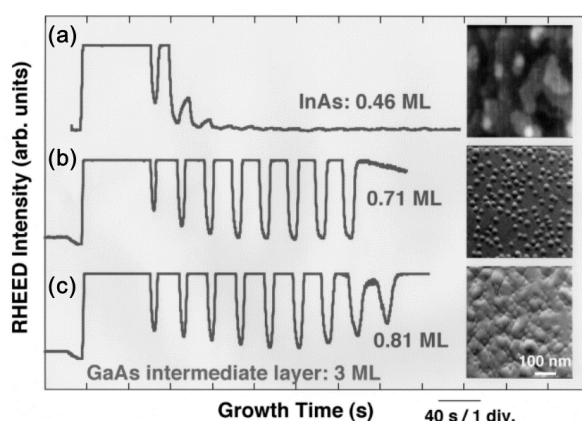


図 5.4.14. 3 ML の GaAs 中間層を用いて InAs ドットを繰り返し積層している際の RHEED 強度の変化と 9 層目の AFM 像。InAs の供給量は (a) 0.46 ML, (b) 0.71 ML, (c) 0.81 ML [5.4.4, 11]. 繰り返し積層のためには供給量を正確に制御する必要がある。

成、2 層目以降の InAs 供給量を (a) 0.5 ML, (b) 0.7 ML, (c) 0.8 ML に変えて積層している。(a) の回折強度変化に見られるように、供給量が 0.5 ML の場合、3 層目以降ではドット形成を示すスポット像は明瞭には得られず、InAs 成長に伴う回折強度の増加も観測されなくなる。右端の AFM 像にも見られるように 3 層目以降にはドットは形成されていないものと考えられる。一方、(c) に示すように 0.8 ML の InAs を供給した場合には、7 層目あたりから GaAs 中間層成長時の平坦化を示すストリーク像が崩れ始めるとともにスポット強度も弱くなり始めている。右に示した AFM 像からも 100 nm スケールの大きなうねりが生じており、これは InAs の供給過多により転移が発生していると思われる。これらに対して、(b) に示す 0.7 ML の InAs 供給では、GaAs 中間層成長に伴う平坦化と InAs 供給によるスポット強度の増加が積層にともなって継続的に繰り返されている。また右に示す AFM に見られるように 1 層目とほぼ同じ形状と密度のドットが形成できていることがわかる。3 ML の極薄の GaAs 中

間層を用いても繰り返し積層は可能となるが、InAs 供給量を 0.1ML オーダーで最適化する必要があることがわかる。

図 5.4.15. (a), (b) に(110)断面の低倍と高倍の TEM 像を示す。成長構造を (c) に模式的に示す。1.8 ML の InAs ドットを成長後、3 ML の GaAs 中間層を介して 0.7 ML の InAs ドットを 8 回繰り返し積層している。積層した InAs

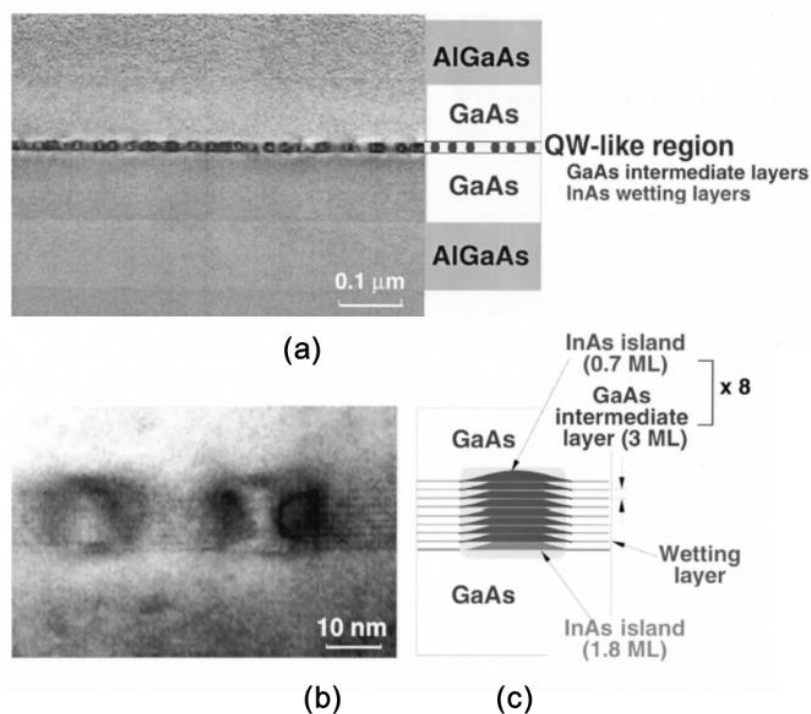


図 5.4.15. 1.8 ML の InAs 供給により 1 層目のドットを形成した後、3 ML の GaAs 中間層を用いて 0.7 ML の InAs 供給により 8 層積層した構造の(110)断面の TEM 像。(a) 低倍像. GaAs 中間層と WL との超格子からなる量子井戸的な層内にドットが形成されている。(b) 高倍像. 積層した各層のドットが上下で接触して全体として直径 17 nm、高さ 13 nm の円柱形状に観察される。転位、積層欠陥はほとんど観察されていない。(c) 積層構造の模式図 [5.4.4, 11].

ドットは 1 層目のドットの直上に配列して形成されており、各層には濡れ層 (WL) に対応したコントラストも明瞭に確認できる。RHEED 観察でも見られたように、こうした 3 ML といいた極薄の中間層を用いた積層成長においても S-K 型の形態で成長されていることがわかる。また、各層のドットは上下方向で互いに接触しているように見え、全体として直径約 17 nm、高さ約 13 nm の円柱形状を呈しているように観察される。また、低倍からわかるように、転位や積層欠陥はほとんど観察されていない。

図 5.4.16 に上記ドットから得られた室温の PL スペクトルを示す。この量子ドットの基底準位からの発光は 1.17  $\mu\text{m}$  にあり、またその短波側 1.10  $\mu\text{m}$  の発光は励起準位からの発光であることを励起光強度依存性より確認している。基底準位の発光半値幅は約 42 meV で、これは灰色のラインで示す単層の量子ド

ットからの発光 (FWHM = 100 meV) の半分以下にまで低減している。また、発光強度は、先に示した近接積層構造に比べ大幅に改善されており、室温での発光強度は 3 桁程度大きくなっている。中間層上端でのアニールプロセスを無くすことにより欠陥や不純物など非発光中心の導入が大幅に抑制されたためと

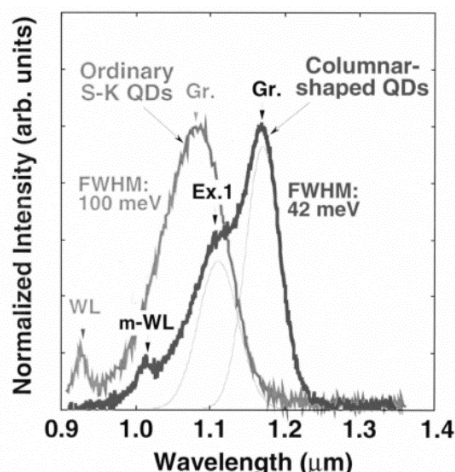


図 5.4.16. 1.8 ML の InAs 供給により 1 層目のドットを形成した後、3 ML の GaAs 中間層を用いて 0.7 ML の InAs 供給により 8 層積層した構造から得られた室温の PL スペクトル [5.4.4, 11]. 通常の単層構造 (灰色の線) に比べ、ピーク波長は 100 nm 程度長波長側へシフトし、FWHM は 1/2 以下に低減している。

考えられる。ただし、アニールを無くすことにより各層のドットの均一化 (フラッシング効果) が損なわれ、揺らぎが大きくなるため、発光スペクトルの半値幅も大きくなっている。なお、この積層ドットの WL からの発光は  $1.01 \mu\text{m}$  にあり、これは通常の単層構造の場合 ( $0.94 \mu\text{m}$ ) に比べて長波側にシフトしている。これは、WL の多層構造が超格子的に結合しているためと考えられる。

図 5.4.17 に 77 K および室温で測定した PL 発光波長の積層数依存性を示す。積層数を増加するにしたがい発光波長は長波側へとシフトする。積層数の増加により高さが増したためと考えられる。今後、各層での供給量の最適化を図り、積層数を増やすことにより通信用の波長帯域 ( $1.3 \mu\text{m}$ ) まで長波長化できる可能性がある。

この円柱形状の量子ドットを活性層に用いたレーザを作製し、その基本的な特性を調べた [5.4.10-12]。活性層に用いた円柱形状の量子ドットは、1 層目を 1.8 ML の

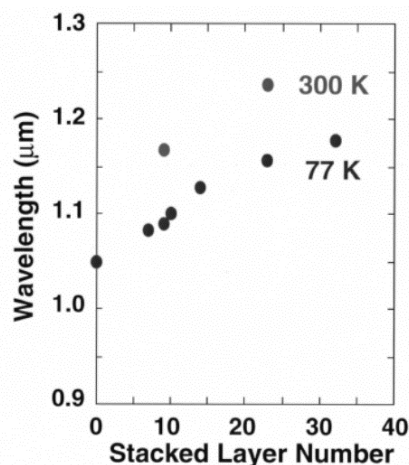


図 5.4.17. 77 K および 300 K の PL ピーク波長の積層数による変化 [5.4.4, 11]. 積層数の増加により単調に長波長化している。

InAs 供給により成長した後、3 ML の GaAs 中間層を用いて 0.7 ML の InAs 供給により 8 回繰り返し成長することにより形成した（全 9 層の積層構造）。活性層にはこの円柱形状の量子ドット層を 30 nm の GaAs スペースを介して 2 重に形成し、その上下を GaAs 層で挟みこんだ 分離閉じ込め (Separate Confinement Hetrostructure: 以下 SCH) 構造とした。活性層は 1.4  $\mu\text{m}$  厚の Si ドープの  $\text{n-Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  クラッド層上に形成し、1.4  $\mu\text{m}$  厚の Be ドープの  $\text{p-Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  クラッド層で挟んでいる。最上層には 0.4  $\mu\text{m}$  の Be ドープの GaAs コンタクト層を成長した。幅 3  $\mu\text{m}$ 、高さ 1.2  $\mu\text{m}$  のリッジ構造をウェットエ칭ングにより形成した。図 5.4.18 にこの量子ドットレーザから得られた光出力の注入電流依存性 (I-L 特性) を示す。端面は双方とも高反射(High refractive: 以下 HR) 膜でコーティングしている。室温連続発振において非常

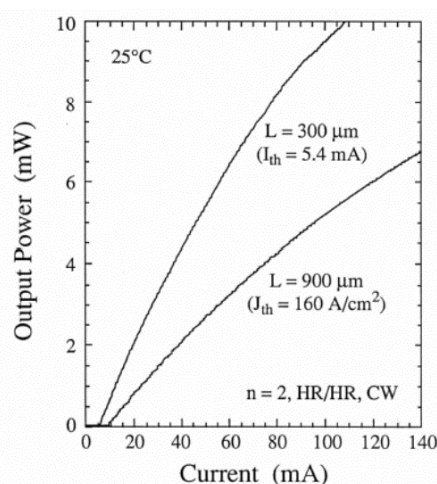


図 5.4.18. 1層目を1.8MLのInAs供給により成長した後、3 MLの GaAs中間層を用いて0.7 MLのInAs供給により8回繰り返し成長することにより形成した InAsドットを活性層に用いた量子ドットレーザの光出力の注入電流依存性 (I-L特性)[5.4.11, 12]. キャビティ長 300  $\mu\text{m}$ で、5.4 mAの低しきい値電流で連続発振している。

に低いしきい値が得られている。しきい値は、キャビティ長 300  $\mu\text{m}$  のレーザでしきい値電流は 5.4 mA で、またキャビティ長 900  $\mu\text{m}$  では 160 A/cm<sup>2</sup>のしきい値電流密度が得られた。これは、通常の InAs ドットを活性層に用いた場合[5.4.10]に比べ、1 桁以上も低い値である。なお、発振波長は 1.15  $\mu\text{m}$  であり、図 5.4.16 に示した PL ピーク波長 (1.17  $\mu\text{m}$ ) より、主に基底準位間での発振であることがわかる。また、70°Cの高温において 75 mW の光出力が得られる [5.4.12]など、今後、発光波長を通信波長域に制御することにより実用的な通信用レーザに適用できる可能性がある。さらに、積層数を調整することにより偏波無依存なことも確認しており [5.4.13]、半導体光増幅への応用可能性もある。

以上、S-K 型の InAs ドットの積層構造について示した。構造的な特徴を図 5.4.19 にまとめて示す。積層した量子ドットの構造は中間層の厚さに強く依存する。GaAs 中間層の厚さを  $t$  として、 $t > 20\text{--}30\text{ nm}$  では下層ドットとの相関

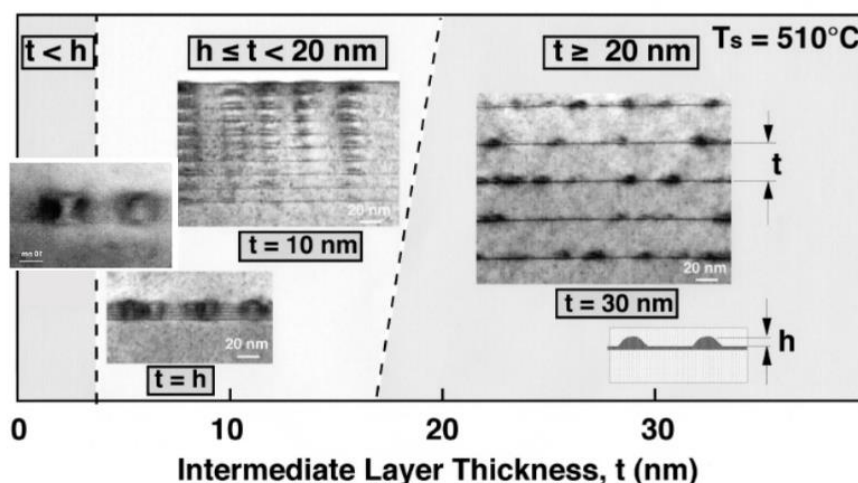


図 5.4.19. InAs ドットの積層構造における中間層厚さによる構造的変化 [5.4.4].

はほとんどなく、1 層目と同じサイズと密度で形成される。これはドットの個数を単純に増大させるなどの単純繰り返し積層に有効である。 $t < 20\text{ nm}$  では、上層のドットは下層のドットの歪により下層ドットと相関を持って形成されるようになる。上層のドットは下層のドットの位置に一致して積層方向に配列して形成される。この場合、上層部のドットのサイズは大きくなる傾向にある。また、ドットの高さを  $h$  として  $t \sim h$  では、上層に成長するドットのサイズの拡大は抑制され、類似したサイズのドットが近接して配列積層されることになる。この場合、隣接するドット間で波動関数は超格子のように重なり、実効的に一つのドットとして機能することになる。この場合、実効的にドットの高さが高くなりサイズ揺らぎは抑制される。通常の単層構造の S-K 型量子ドットに比べ大幅に狭い発光スペクトルとなる。さらに、中間層を薄くして、 $t < h$  としてもドットの積層が可能である。しかし、この場合には上層部に成長する InAs の供給量を 0.1 ML オーダーで正確に制御する必要がある。例えば、3 ML の GaAs 中間層で積層する場合には、InAs 供給量は 0.7 ML にする必要があることが実験的に確認されている。上下のドットは積層方向にほぼ接触して形成されるようになり、全体として円柱形状になる。こうした極薄の中間層を用いて積層した場合であっても、ドットは S-K 型の形態で形成されており、各層には WL が形成されている。

## 5-5 まとめ

本章では、究極的なキャリア閉じ込め構造である量子ドットの成長制御について示した。成長には格子不整合系ヘテロ結晶の成長初期に現れる島状成長（S-K 型成長）を用いた。まず基本的な成長形態について整理した上で、GaAs 上の InAs 量子ドットの形成について、基本的な構造特性と成長パラメータとの関係を明らかにした。次に高性能レーザなどの素子応用上重要な積層成長について検討した。従来、積層成長では、積層とともに量子ドットが大きくなる問題が指摘されていた。初期層に類似した量子ドット層の単純繰り返し積層には中間層をある程度厚くする必要がある（ $> 20 - 30 \text{ nm}$ ）こと、また中間層を薄くした場合、積層方向に量子ドットの配列性が現れることを見出した。この積層方向への配列性を利用して量子ドット高さを積層数により制御する近接積層を提案し、積層数に応じて高さが変化することを TEM 及び発光波長の積層数依存性を評価することにより検証した。また近接積層では、構造揺らぎに起因した不均一幅が大幅に低減できることを明らかにした。さらに、GaAs 中間層を 3 分子程度にまで薄くして、InAs 供給量を精細に制御して積層することにより円柱形状（コラムナ形状）の量子ドットを形成した。積層構造の結果を図 5.5.1 にまとめて示す[5.5.1]。GaAs 基板上に成長した S-K 型の InAs 自己形成

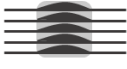
|                             | S-K QDs                                                                             | Closely stacked QDs                                                                 | Columnar-shaped QDs                                                                  |
|-----------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|
| Schematic structure         |  |  |  |
| PL FWHM                     | 90 meV                                                                              | 25 meV                                                                              | 40 meV                                                                               |
| PL efficiency               | Good                                                                                | Poor                                                                                | Good                                                                                 |
| In-plane coverage (Density) | 40%<br>$> 1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$                                         | 40%<br>$> 1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$                                         | 40%<br>$> 1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$                                          |
| Wavelength (300K)           | 1.1 $\mu\text{m}$                                                                   | 1.2 $\mu\text{m}$                                                                   | $> 1.2 \mu\text{m}$                                                                  |

図 5.5.1. 本章で検討した InAs ドットの構造的特徴と光学特性 [5.5.1].

ドットは、サイズ揺らぎが大きく、通常 80~100 meV 程度の広い発光スペクトルになる。量子ドットの形状は高さが 3-5 nm の低いドーム状であるため、この幅広い発光スペクトルは主に高さの揺らぎに起因している。積層技術として薄い中間層を用いて積層した近接積層構造や円柱形状に積層した超近接積層構造は、積層数により高さを制御できる。そのため、高さ揺らぎを抑制して発光スペクトルを狭くすることが可能となる。通常の単層構造では 80~100 meV

ある FWHM を近接積層構造により 25 meV まで低減することに成功した。さらに中間層厚をドットの高さより薄くして積層した円柱形状の量子ドットでは、構造揺らぎを抑制するとともに発光効率を大幅に改善した。また、これにより低しきい値で高温動作が可能な量子ドットレーザを実現した。

## 第5章の参考文献

### ■ 5-1 節

- [5.1.1] H. Sakaki, Jpn. J. Appl. Phys., 19, p. L735 (1980).
- [5.1.2] Y. Arakawa, H. Sakaki, Appl. Phys. Lett., 40, p. 939 (1982).
- [5.1.3] Y. Arakawa, A. Yariv, IEEE J. Quantum Electron., QE-22, p. 1887 (1986).
- [5.1.4] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. P. Kotthaus, P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett., 73, p. 2252 (1994).
- [5.1.5] V. Ryzhii, M. Ershov, I. Khmyrova, M. Ryzhii, T. Iizuka, Physica B 227, p. 17 (1996).
- [5.1.6] N. Horiguchi, T. Futatsugi, Y. Nakata, N. Yokoyama, T. Mankad, P. M. Petroff, Jpn. J. Appl. Phys., 38, p. 2259 (1999).
- [5.1.7] S. Muto, Jpn. J. Appl. Phys., 34, p. L210 (1995).
- [5.1.8] K. Imamura, Y. Sugiyama, Y. Nakata, S. Muto, N. Yokoyama, Jpn. J. Appl. Phys., 34, p. L1445 (1995).
- [5.1.9] R. C. Ashori, Nature, 379, p. 413 (1996).
- [5.1.10] R. J. Schoelkopf, P. Wahlgren, A. A. Kozhevnikov, P. Delsing, D. E. Prober, Science, 280, p. 1238 (1998).
- [5.1.11] R. M. Thompson, R. M. Stevenson, A. J. Shields, I. Farrer, C. J. Lobo, D. A. Ritchie, M. L. Leadbeater, M. Pepper, Phys. Rev., B64, p. 201302, (2001).
- [5.1.12] K. Takemoto, Y. Sakuma, S. Hirose, T. Usuki, N. Yokoyama, T. Miyazawa, M. Takatsu, Y. Arakawa, Jpn. J. Appl. Phys., 43, p. L993 (2000).
- [5.1.13] K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, K. Wakui, S. Hirose, T. Usuki, M. Takatsu, N. Yokoyama, K. Yoshino, A. Tomita, S. Yorozu, Y. Sakuma, Y. Arakawa, Appl. Phys. Express, 3, p. 92802 (2010).
- [5.1.14] A. Barenco, D. Deutsu, A. Ekert, Phys. Rev. Lett., 74, p. 4083 (1995).
- [5.1.15] T. Osterkamp, T. Fujisawa, W. G. van der Wiel, K. Ishibashi, R. V. Hijman, S. Tarucha, L. P. Kouwenhoven, Nature, 395, p. 873 (1998).
- [5.1.16] 樽茶清吾, 科学, 68, p. 710 (1998).
- [5.1.17] M. Asada, Y. Miyamoto, Y. Suematsu, IEEE J. Quantum Electron., QE-22, p. 1915 (1986).
- [5.1.18] Y. Arakawa, K. Vahara, A. Yariv, Surf. Sci., 174, p. 155 (1986).
- [5.1.19] P. M. Petroff, A. C. Gossard, R. A. Logan, W. Wiedmann, Appl. Phys. Lett., 41, p. 635 (1982).
- [5.1.20] M. A. Reed, R. T. Bate, K. Bradshaw, W. M. Duncan, W. R. Frenseley, J. W. Lee, H. D. Shih, J. Vac. Sci. Technol. B4, p. 358 (1986).

- [5.1.21] Y. Miyamoto, M. Cao, Y. Shingai, K. Furuya, Y. Suematsu, K. G. Ravikumar, S. Arai, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 26, p. L225 (1987).
- [5.1.22] D. Gershoni, H. Temkin, G. J. Dolan, J. Dunsmuir, S. N. G. Chu, M. B. Panish, *Appl. Phys. Lett.*, 53, p. 995 (1998).
- [5.1.23] T. Fukui, S. Ando, Y. Fukai, *Appl. Phys. Lett.*, 57, p. 1029 (1990).
- [5.1.24] T. Fukui, S. Ando, Y. Tokura, T. Toriyama, *Appl. Phys. Lett.*, 58, p. 2018 (1991).
- [5.1.25] S. Tsukamoto, Y. Nagamune, M. Nishioka, Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.*, 63, p. 355 (1993).
- [5.1.26] E. Kapon, S. Simhony, R. Bhat, D. M. Hwang, *Appl. Phys. Lett.*, 55, p. 2715 (1989).
- [5.1.27] E. Kapon, K. Kash, E. M. Olausen, D. M. Hwang, E. Colas, *Appl. Phys. Lett.*, 60, p. 477 (1992).
- [5.1.28] A. Madhukar, K. C. Rajkumar, P. Chen, *Appl. Phys. Lett.*, 62, p. 1547 (1993).
- [5.1.29] P. M. Petroff, A. C. Gossard, R. A. Logan, W. Wiedmann, *Appl. Phys. Lett.*, 45, p. 620 (1984).
- [5.1.30] T. Fukui, H. Saito, *Appl. Phys. Lett.*, 50, p. 824 (1987).
- [5.1.31] O. Brandt, L. Tapfer, K. Poog, R. Bierwolf, M. Hohenstein, F. Phillipp, H. Lage, A. Heberle, *Phys. Rev.*, B 44, p. 8043 (1991).
- [5.1.32] L. Pfeiffer, K. W. West, H. L. Stormer, J. P. Eisenstein, K. W. Baldwin, D. Gershoni, J. Spector, *Appl. Phys. Lett.*, 56, p. 1697 (1990).
- [5.1.33] D. Gershoni, J. S. Weiner, S. N. G. Chu, G. A. Baraff, J. M. Vandenberg, L. N. Pfeiffer, K. West, R. A. Logan, T. Tanbun-EK, *Phys. Rev. Lett.*, 65, p. 1631 (1990).
- [5.1.34] L. Pfeiffer, H. L. Störmer, K. W. Baldwin, K. W. West, A. R. Goni, A. Pinczuk, R. C. Ashoori, M. M. Dignam, W. Wegscheider, *J. Cryst. Growth*, 127, p. 849 (1993).
- [5.1.35] K. Kash, B. P. Van der Gaag, D. D. Mahoney, A. S. Gozdz, L. T. Florez, J. P. Harbison, *Phys. Rev. Lett.*, 67, p. 1326 (1991).
- [5.1.36] N. Koguchi, K. Ishige, S. Takahashi, *J. Vac. Sci. Technol.*, B 11, p. 787 (1993).
- [5.1.37] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Debaars, P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.*, 63, p. 3203 (1993).
- [5.1.38] I. N. Stranski, L. Krastanow, *Akad. Wiss. Wien Math.-Natur. IIb*, 146, p. 797 (1937).
- [5.1.39] J. Y. Marzin, J. M. Gerard, A. Izrael, D. Barroer, G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.*, 73, p. 716 (1994).
- [5.1.40] M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledentsov, J. Bohrer, D. Bimberg, S. S. Ruvimov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhunkov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, *Phys. Rev. Lett.*, p. 4033 (1995).

- [5.1.41] N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, S. S. Ruvimov, M. V. Maximov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich, *Electron. Lett.*, 30, p. 1416 (1994).
- [5.1.42] H. Shoji, K. Mukai, N. Ohtsuka, M. Sugawara, T. Uchida, H. Ishikawa, *IEEE Photon. Technol. Lett.*, 7, p. 1385 (1995).
- [5.1.43] A. Moritz, R. Wirth, A. Hangleiter, A. Kurtenbach, K. Eber, *Appl. Phys. Lett.*, 69, p. 212 (1996).
- [5.1.44] R. P. Mirin, A. C. Gossard, J. E. Bowers, *Electron. Lett.*, 32, p. 1732 (1996).
- [5.1.45] K. Kamath, P. Battacharya, T. Sosnowski, J. Phillips, *Electron. Lett.*, 30, p.1372 (1996).
- [5.1.46] H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 35, p. L903 (1996).
- [5.1.47] H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Electron. Lett.*, 32, p. 2023 (1996).
- [5.1.48] H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *IEEE Selected Topics in Quantum Electron.*, 3, p. 188 (1997).
- [5.1.49] H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Appl. Phys. Lett.*, 71, p. 193 (1997).
- [5.1.50] K. Mukai, Y. Nakata, H. Shoji, M. Sugawara, K. Ohtsubo, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Electron. Lett.*, 34, p. 1588 (1998).
- [5.1.51] Y. Nakata, Y. Sugiyama, K. Mukai, T. Futatsugi, H. Shoji, M. Sugawara, H. Ishikawa, N. Yokoyama, *Inst. Phys. Conf. Ser. No 162: Chapter 9, Paper presented at 25<sup>th</sup> Int. Symp. Compound Semiconductors, Nara, Japan (1998).*
- [5.1.52] W. J. Schaffer, M. D. Lind, S. P. Kowalczyk, R. W. Grant, *J. Vac. Sci. Technol. B1*, p.688 (1983).
- [5.1.53] B. F. Lewis, T. C. Lee, F. J. Grunthaner, A. Madhukar, R. Fernandez, J. Maserjian, *J. Vac. Sci. Technol. B2*, p.419 (1984).
- [5.1.54] F. Glas, C. Guill, P. Henoc, F. Houzay, *Inst. Phys. Conf. Ser.*, No 87, p. 87, (1987).
- [5.1.55] F. Houzay, C. Guille, J. M. Moisson, P. Henoc, F. Barth, *J. Cryst. Growth*, 81, p. 67 (1987).
- [5.1.56] P. R. Berger, K. Chang, P. Bhattacharya, J. Singh, K. K/ Bajaj, *Appl. Phys. Lett.*, 53, p. 684 (1988).
- [5.1.57] S. Guha, A. Madhukar, K. C. Rajkumar, *App. Phys. Lett.*, 57, p. 2110 (1990).
- [5.1.58] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, G. Le Roux, *Appl. Phys. Lett.*, 47, p. 1099 (1985).

- [5.1.59] M. Tabuchi, S. Noda, A. Sasaki, *Sci. & Tech. Mesoscopic Struc.*, p. 379 (1992).
- [5.1.60] K. Mukai, N. Ohtsuka, M. Sugawara, S. Yamazaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 33, p. L1710 (1994).
- [5.1.61] J. Oshinowo, M. Nishioka, S. Ishida, Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.*, 65, p. 1421 (1994).
- [5.1.62] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel, *Appl. Phys. Lett.*, 64, p. 196 (1994).
- [5.1.63] N. Carlsson, K. Georgsson, L. Montelius, L. Samuelson, W. Seifert, R. Wallenberg, *J. Cryst. Growth*, 156, p. 23 (1995).
- [5.1.64] C. M. Reaves, V. Bressler-Hill, S. Varma, W. H. Weinberg, S. P. Denbaars, *Surf. Sci.*, 326, p. 209 (1995).
- [5.1.65] M. Arita, A. Avramescu, K. Uesugi, I. Suemune, T. Numai, H. Machida, N. Shimoyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 36, p. 4097 (1997).
- [5.1.66] S. Tanaka, S. Iwai, Y. Aoyagi, *Appl. Phys. Lett.*, 69, p. 4096 (1996).
- [5.1.67] S. Tanaka, H. Hirayama, P. Ramvall, Y. Aoyagi, *Proc. of the 2<sup>nd</sup> Int. Conf. on Nitride Semiconductors*, p. 48 (1997).
- [5.1.68] M. Sugawara, H. Ebe, N. Hatori, M. Ishida, Y. Arakawa, T. Akiyama, Y. Nakata, *Phys. Rev. B* 69, p. 235332 (2004).
- [5.1.69] Y. Nakata, Y. Sugiyama, M. Sugawara, *Semiconductors and Semimetals* (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 2 (1999).
- [5.1.70] A. Tackeuchi, Y. Nakata, S. Muto, Y. Sugiyama, T. Inata, N. Yokoyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 34, p. L405 (1995).
- [5.1.71] A. Tackeuchi, Y. Nakata, S. Muto, Y. Sugiyama, T. Usuki, Y. Nishikawa, N. Yokoyama, O. Wada, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 34, p. L1439 (1995).
- [5.1.72] Y. Sugiyama, Y. Nakata, K. Imamura, S. Muto, N. Yokoyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 35, p. 1320 (1996).
- [5.1.73] G. S. Solomon, J.A. Trezza, A. F. Marshall, J. S. Harris Jr., *Phys. Rev. Lett.*, 76, p. 952 (1996).
- [5.1.74] Y. Nakata, Y. Sugiyama, T. Futatsugi, N. Yokoyama, *J. Cryst. Growth*, 175/176, p. 713 (1997).
- [5.1.75] Y. Sugiyama, Y. Nakata, T. Futatsugi, M. Sugawara, Y. Awano, N. Yokoyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 36, p. L158 (1997).
- [5.1.76] M. Sugawara, Y. Nakata, K. Mukai, H. Shoji, *Phys. Rev. B* 55, p. 13155 (1997).

## ■ 5-2 節

- [5.2.1] M. H. Grabow, G. H. Gilmer, *Surf. Sci.*, 194, p. 333 (1988).

[5.2.2] K. N. Tu, J. W. Mayer, C. Feldman, *Electronic Thin Film Science* (Macmillan Publishing Company), Chap. 7 (1992).

[5.2.3] Y. Nakata, Y. Sugiyama, M. Sugawara, *Semiconductors and Semimetals* (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 2 (1999).

[5.2.4] O. Ueda, Y. Nakata, S. Muto, *Proc. of the 10th Int. Conf. on Indium Phosphide and Related Materials*, p. (1998).

### ■ 5-3 節

[5.3.1] Y. Nakata, Y. Sugiyama, M. Sugawara, *Semiconductors and Semimetals* (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 2 (1999).

[5.3.2] G. S. Solomon, J.A. Trezza, A. F. Marshall, J. S. Harris Jr., *Phys. Rev. Lett.*, **76**, p. 952 (1996).

[5.3.3] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, N. P. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, p. 2542 (1995).

[5.3.4] H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, p. L903 (1996).

[5.3.5] H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Electron. Lett.*, **32**, p. 2023 (1996).

[5.3.6] S. Muto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, p. L210 (1995).

[5.3.7] K. Imamura, Y. Sugiyama, Y. Nakata, S. Muto, N. Yokoyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, p. L1445 (1995).

### ■ 5-4 節

[5.4.1] G. S. Solomon, J.A. Trezza, A. F. Marshall, J. S. Harris Jr., *Phys. Rev. Lett.*, **76**, p. 952 (1996).

[5.4.2] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, N. P. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, p. 2542 (1995).

[5.4.3] Y. Sugiyama, Y. Nakata, K. Imamura, S. Muto, N. Yokoyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, p. 1320 (1996).

[5.4.4] Y. Nakata, Y. Sugiyama, M. Sugawara, *Semiconductors and Semimetals* (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 2 (1999).

[5.4.5] Y. Nakata, Y. Sugiyama, T. Futatsugi, N. Yokoyama, *J. Cryst. Growth*, **175/176**, p. 713 (1997).

[5.4.6] Y. Sugiyama, Y. Nakata, T. Futatsugi, M. Sugawara, Y. Awano, N. Yokoyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, p. L158 (1997).

[5.4.7] M. Sugawara, Y. Nakata, K. Mukai, H. Shoji, *Phys. Rev.*, **B 55**, p. 13155 (1997).

[5.4.8] P. Chen, Q. Xie, A. Madhukar, Li Chen, A. Konkar, *J. Vac. Sci. Technol.*, **B 12**, p.

2568 (1994).

[5.4.9] A. Endoh, Y. Nakata, Y. Sugiyama, M. Takatsu, N. Yokoyama, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 38, p. 1085 (1999).

[5.4.10] H. Shouji, *Semiconductors and Semimetals* (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 6 (1999).

[5.4.11] Y. Nakata, Y. Sugiyama, K. Mukai, T. Futatsugi, H. Shoji, M. Sugawara, H. Ishikawa, N. Yokoyama, *Inst. Phys. Conf. Ser. No 162: Chapter 9*, Paper presented at 25<sup>th</sup> Int. Symp. Compound Semiconductors, Nara, Japan (1998).

[5.4.12] K. Mukai, Y. Nakata, H. Shoji, M. Sugawara, K. Ohtsubo, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Electron. Lett.*, 34, p. 1588 (1998).

[5.4.13] T. Kita, O. Wada, H. Ebe, Y. Nakata, M. Sugawara, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 41, p. L1143 (2002).

## ■ 5-5 節

[5.5.1] Y. Nakata, Y. Sugiyama, M. Sugawara, *Semiconductors and Semimetals* (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 2 (1999).

## 第6章 GaAs 基板上の歪量子ドットの波長制御とレーザ 応用

### 6-1 はじめに

前節に示したように S-K 型成長を利用した量子ドットは、高性能の半導体レーザを実現できる可能性がある。第6章では、通信用の半導体レーザへの応用に向けた構造制御、特に波長制御について示す。これまで、GaAs 上に形成される S-K 型の InAs 量子ドットを活性層に用いたレーザにおいて、室温での連続発振がいくつかのグループにより報告されてきている[6.1.1-6]。また、前章で示したように量子ドットの近接積層技術[6.1.7,8]により、レーザ応用にとって最重要課題の一つであったサイズの不均一性が大幅に改善され、発振しきい値などレーザの基本特性は QW レーザと同じレベルにまで近づきつつある [6.1.8-11]。しかし、動作波長は  $1.1 - 1.2 \mu\text{m}$  であり、通信用の波長域 ( $\sim 1.3 \mu\text{m}$ ) に対し短い動作波長となっている。実用的な通信用レーザに適用するためには、量子ドットのサイズ、組成、歪などの構造特性を制御して、動作波長を長波長化する必要がある。一方、発光波長の長波化に向けては、いくつかの手法が示されてきている。構成材料である In, Ga, As を交互に成長する方法が MBE [6.1.12, 13] や MOCVD [6.1.14] により報告されている。また、ドット形成時の成長速度を通常より 1 桁程度遅くして成長する方法 [6.1.15]、前章に示した近接積層による手法[6.1.16]、生成した InAs 成長島を InGaAs や InAlAs などの歪層で埋め込む手法[6.1.17] などが報告されている。しかし、こうした手法により  $1.3 \mu\text{m}$  域での発光が確認されたドットの形成密度は低く、半導体レーザとして室温で連続発振するまでには至っていない。量子ドットの発光波長の長波化と高密度化を同時に達成する必要がある。

本章では、量子ドットの代表的な応用デバイスの一つである半導体レーザ、特に波長域  $1.3 \mu\text{m}$  の光通信用の半導体レーザへの適用に向けた構造制御について示す[6.1.18-23]。6-2 節では発光波長と成長速度との関係を検討し、毎秒 0.01 分子層以下の低速成長により発光波長を通信波長域である  $1.3 \mu\text{m}$  域にまで長波長化できることを明らかにする。ただし、密度は前章に示したような通常に得られるドット密度に対し 1 桁程度低減してしまい ( $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ )、このままではレーザ応用には適さない。そこで、6-3 節では周辺構造として量子ドット直上に形成する埋め込み層として InGaAs 歪層の効果について検討した。InGaAs 混晶の組成と厚さにより、 $0.1 \mu\text{m}$  程度の長波化が得られることを示す。また、低速成長したドットの InGaAs 歪層での埋め込みにより  $1.3 \mu\text{m}$  域で発光する量子ドットを

高密度 ( $3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ) に形成できることを示す。また、6・4 節ではこの量子ドットを用いてレーザを試作し、5.4 mA の低しきい値で室温連続発振することを示し、実用的な通信用半導体レーザへの適用可能性を示す。最後に 6・5 節では本章で得られた結果を要約して示す。

## 6-2 成長速度制御による InAs 量子ドットの発光波長制御

ここでは、成長速度と形成される InAs ドットの構造、発光波長の関係について示す[6.2.1, 2]。

成長速度の変化に対するドットの構造および発光波長の変化を調べるため、以下の成長条件を用いて InAs ドットを成長し、その特性を評価した。InAs の成長速度はこれまでに用いてきた  $0.1 \mu\text{m/h}$  ( $0.1 \text{ ML/s}$ ) から約 2 桁低い  $0.002 \mu\text{m/h}$  ( $0.002 \text{ ML/s}$ ) の範囲で変えた。この際、V/III 比は 30 一定とするため、InAs の成長速度 (In の分子線強度) に応じて、As 圧を  $5 \times 10^{-6} \text{ Torr}$  から  $7 \times 10^{-7} \text{ Torr}$  まで変えた。ドット成長は前章と同じシーケンスを用い、InAs 供給後には 90 秒のアニール (ポストアニール) を行っている。InAs ドットは、GaAs (150 nm) / AlGaAs (100 nm) / GaAs (450 nm) のバッファ層上に成長し、またドット上部には GaAs (100 nm) / AlGaAs (100 nm) / GaAs (100 nm) を成長した。最表面にはドット形状を観測するため同一条件で再度ドットを成長した。InAs ドットの成長温度は  $510^\circ\text{C}$  で、バッファ層及びドット上部の埋め込み層は  $620^\circ\text{C}$  とした。最表面に形成した InAs ドットの形状と密度は AFM により評価した。また埋め込んだドットの構造は断面の TEM 観察により評価した。また、空間分解能が 1-2 nm の電界放出 (Field Emission : 以下 FE) 型の走査型透過電子顕微鏡 (Scanning Transmission Microscopy : 以下 STEM) に組み込んだエネルギー分散型 X 線分光 (Energy dispersive X-ray spectrometry: 以下 EDS) により断面の組成プロファイルを評価した。量子ドットの発光特性は、波長 641.7 nm の  $\text{Kr}^+$  レーザを用いて、障壁層の GaAs を励起することにより、室温での PL 測定により評価した。

図 6.2.1. (a) に InAs ドットの底面直径と密度の成長速度依存性を AFM 像とともに示す。成長島のサイズと密度は成長速度に依存して大きく変化している。成長速度を低くするにしたがい底面直径は単調に大きくなり、また密度はそれに伴って  $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  ( $0.1 \text{ ML/s}$ ) の高密度から  $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  ( $0.002 \text{ ML/s}$ ) の低密度へと大幅に減少している。図 6.2.1. (b) に、 $0.007 \text{ ML/s}$  の低速成長条件と  $0.1 \text{ ML/s}$  の高速成長条件で成長した際の InAs ドットの密度の供給量依存性を示す。前章でも示したように  $0.1 \text{ ML/s}$  といった高い成長速度で成長した場合には、供給量を増加させるのにしたがって急激にドット密度は増加した。こ

れに対し、低い成長速度で成長した場合には、供給量を 2.7 ML まで増やしても密度は  $1 \sim 2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  と大きく増加することはない。こうした成長速度によ

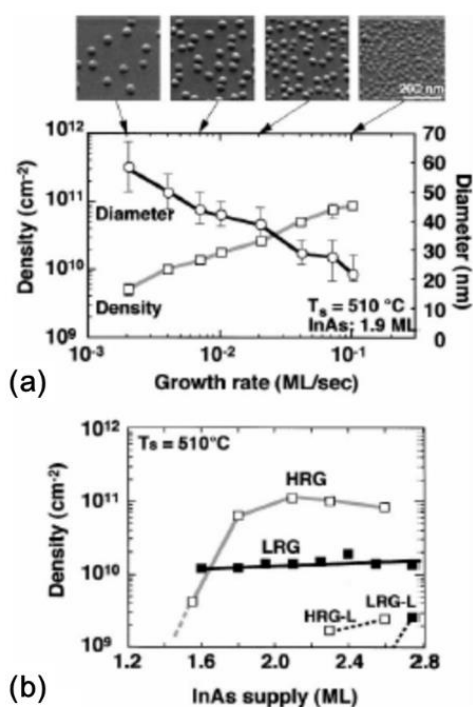


図 6.2.1. (a) InAsドットの底面直径と密度の成長速度依存性. 成長速度を低くするにしたがい底面直径は大きくなり、密度は低下する. (b) 低速成長(Low growth rate: LGR)と高速成長 (High growth rate: HGR)で成長した際のInAsドット密度のInAs供給量依存性. HGRでは密度が大きく変化するが、LGRではほとんど変化しない [6.2.1].

る変化は、定性的には以下のように考えられる。5-1 節で述べたように、S-K 型の成長は、表面エネルギーと歪エネルギーの和となる系の全体エネルギーを低くするよう形態を変える。特にドット形成においては、歪緩和により系全体に蓄積された歪を解放するために形成すると考えられる。したがって、核形成ー核成長のモード以降に表面に供給された InAs は、ドットのない層状表面上では歪エネルギーを増加させるため、歪緩和が起こっているドットに取り込まれた方が歪エネルギーを抑制できることになり、優先的に成長島へ取り込まれるものと考えられる。この過程で、十分に表面移動度が長い場合には、表面被着した InAs はドットまで到達し取り込まれていくことになる。一方、表面移動度が短い場合、層状に歪を増加させるより、核を形成し歪緩和した方がエネルギー的に有利となり、これが供給に伴う密度増加の原因と考えられる。低速成長では、表面被着原子の表面移動度は高いと考えられる。したがって、核生成後に供給された表面被着原子の多くはドットに取り込まれることになり、密度

を増やすことなくサイズを大きくしているものと考えられる。

図 6.2.2 に室温での PL ピーク波長と発光半値幅(FWHM)の成長速度依存性を示す。発光波長は成長速度の低下にともなって長波長側へシフトし、成長速度が 0.002 ML/s では波長は 1.3  $\mu\text{m}$  に達する。また、FWHM はこれに伴って

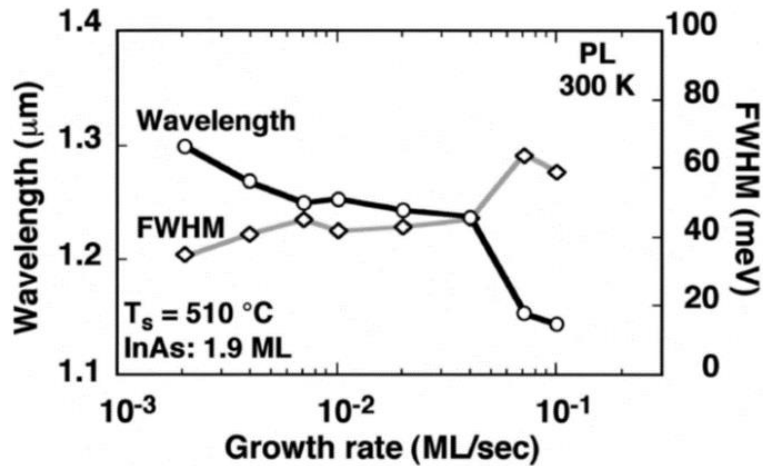


図 6.2.2. PL (300K) ピーク波長と発光半値幅(FWHM)の成長速度依存性 [6.2.1]. 成長速度を低くするにしたがって発光波長は長波化し FWHM は狭くなっていく。

狭くなり最小で 40 meV まで狭くなっている。この FWHM は主にドットのサイズ分布を反映しているが、低速成長によりドットのサイズ分布が抑制されていることを示している。図 6.2.1 に示したように低い成長速度で成長することによりドットのサイズ（特に高さ）が大きくなったことにより長波化し、また前章でも示したようにサイズの増加（高さの増加）によりサイズ揺らぎに対するエネルギー揺らぎが低減したためと考えられる。

図 6.2.3 に成長速度 0.007 ML/s で成長した InAs ドットの(110)断面の TEM

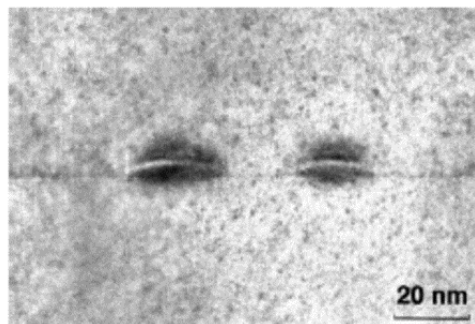


図 6.2.3. 0.007 ML/s の低成長速度で成長した InAs ドットの(110)断面の TEM 像 [6.2.1]. 底面直径は 20 nm で高さが 6 nm のドーム状の形状。

像を示す。底面直径は概ね 20 nm で、高さが 6 nm 程度となっている。前章に示した 0.1 ML/s の成長速度で成長した場合（底面直径 10 - 15 nm、高さ 3 - 5 nm）に比べて明らかにサイズの大きなドットが形成されていることがわかる。

ただし、先に示した最表面に形成したドットの AFM 観察では、この条件で成長したドットの底面直径は 50 nm で高さは 10 nm であった。このサイズの違いは、AFM の探針の形状効果だけでは説明できず、GaAs による埋め込み成長時に InAs ドットから In が拡散し、サイズが縮小しているものと考えられる。

以上、成長速度と形成される InAs ドットのサイズおよび発光波長の関係を示した。0.01 ML/s 以下の低い成長速度で成長することにより発光波長を通信波長域である 1.3  $\mu\text{m}$  域にまで長波長化できることを示した。ただし、密度は前章に示したような通常に得られる密度に対し 1 桁程度低減減少してしまい、 $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  であった。この密度では十分な利得は期待できずレーザ応用には適さない。

### 6-3 歪制御による InAs 量子ドットの発光波長制御

前節では通信波長域である 1.3  $\mu\text{m}$  への波長制御技術として、成長速度制御による効果を示した。成長速度を従来に比べ 1 桁以上低くすることにより、発光波長が目標とする 1.3  $\mu\text{m}$  に達することを明らかにした。しかし、面内密度は 1 桁程度低下してしまい、レーザ応用において密度が低く十分な利得が期待できない。そこで、発光波長を維持した状態での密度増加について検討した。

本節では、ドットそのものではなくその周辺構造について検討した[6.3.1, 2]結果を示す。ドットの周辺構造として、ドット直上に形成する歪緩和層 [6.3.3]について検討した。これにより、前節で示した低速成長との併用が可能となり、波長を維持しつつ高密度化できる可能性がある。

量子ドット直上の InGaAs 歪緩和層による長波長化について検討するため、InAs ドット直上に InAs 組成と厚さの異なる  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  層を成長し、PL によりその波長変化を調べた。図 6.3.1 (a), (b)にその結果を試料構造とともに示す。成長は 0.007 ML/s の成長速度で 1.9 ML の InAs 供給によりドットを成長

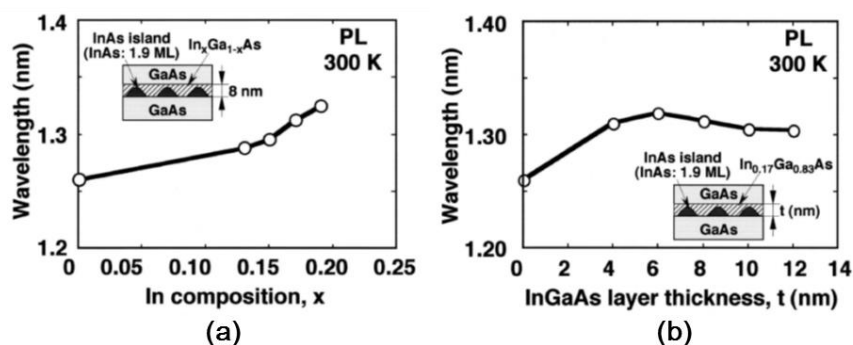


図 6.3.1. (a)  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  歪緩和層の組成,  $x$  に対する PL ピーク波長の変化 [6.3.1]. InGaAs 層の厚さは 8 nm. (b)  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}$  歪緩和層の厚さに対する PL ピーク波長の変化. InAs ドットは、0.007 ML/s の成長速度で 1.9 ML の InAs を供給して形成している。

した後、挿入図に示す  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  歪緩和層を成長した。(a)に PL ピーク波長の  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  歪緩和層の組成,  $x$  に対する変化を示す。歪緩和層の厚さは 8 nm に固定した。発光波長は組成の増加に伴い長波長化し、 $x = 0$  の GaAs 埋め込み時の波長  $1.26 \mu\text{m}$  が  $x = 0.2$  では  $1.33 \mu\text{m}$  と 70 nm 程度長波化する結果が得られた。(b) に歪緩和層の厚さ依存性を示す。歪緩和層の組成,  $x$  は 0.17 とした。発光波長は歪緩和層の厚さを厚くするにしたがい長波化する傾向が見られた(6 nm の層厚で 60 nm の長波化)。ただし、厚さを 6 nm より厚くしても波長はほとんど変化せず、飽和傾向が見られた。この厚さ 6 nm は概ねドットの高さと一致しており、歪緩和層によりドットが完全に覆われたためと考えられる。

図 6.3.2. (a) - (d)に FE-STM 像と EDS により測定した In の組成プロファイルを示す。InAs ドットは GaAs で埋め込んだ構造((a), (b))と 8 nm 厚さの  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}$  で埋め込んだ構造((c), (d))である。In の組成プロファイルの測定は、STM 像に示した白線に沿って測定しており、図中左側の成長表面側から右の基板側へと測定している。また、(b), (d)は、“Dot”と白字で表示し、形成され

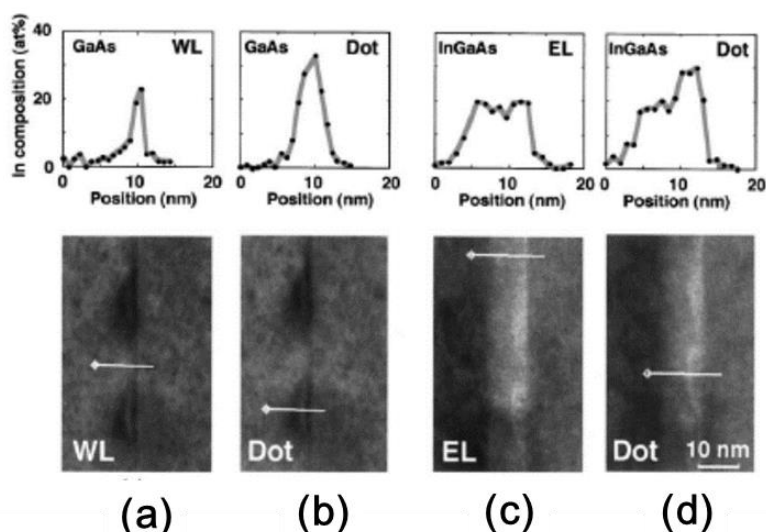


図 6.3.2. 低成長速度で成長したInAsドットをGaAsで埋め込んだ構造の(a)WL部と(b)ドット部のEDXにより評価したInの組成とSTEM像。8 nmの $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}$ で埋め込んだ構造の(c)ドット形成のないInGaAs層と(d)ドット部のInの組成とSTEM像[6.3.1].

た量子ドットのほぼ中央部を測定し、(a), (c)は “WL”および“EL”で表示し、量子ドットが形成されていない濡れ層部もしくは歪緩和層部を測定している。なお、測定に用いた TEM 試料の厚さはいずれもほぼ同じ厚さになっていることを干渉縞より確認している。そのため試料間で組成の相対比較が可能である。(d)に見られるように、InGaAs 歪緩和層で埋め込んだ場合においても、InAs ドットは歪緩和層の底部に形成されていることがわかる。また、(b)と(d)との比較においては、InGaAs 歪緩和層以外の InAs ドット部においては、In の組成プ

ロファイルに大きな違いは見られない。InGaAs 歪緩和層による埋め込みによりドットのサイズや組成構造に大きな変化がないことが判る。したがって、図 6.3.1 で見られた歪緩和層による長波長化は、Nishi ら[6.3.3]が指摘しているように InGaAs 歪緩和層により量子ドットの歪が緩和したことによる長波長化と考えられる。

上記結果をもとに、低い成長速度で形成した InAs ドットを InGaAs 歪緩和層も用いて埋め込んだ構造を成長した。図 6.3.3. (a), (b) に成長速度 0.007 ML/s で InAs 量子ドットを形成し、4 nm 厚さの In<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>As 歪緩和層で埋め込んだ単層構造の平面 TEM 像と 2 層構造の(110)断面の TEM 像を示す。室温での PL 発光波長は 1.31  $\mu\text{m}$  であった。InAs ドット密度は、 $2.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  であり、前節で示した低速成長のみによる成長に比べ、密度を 5 倍も高めること

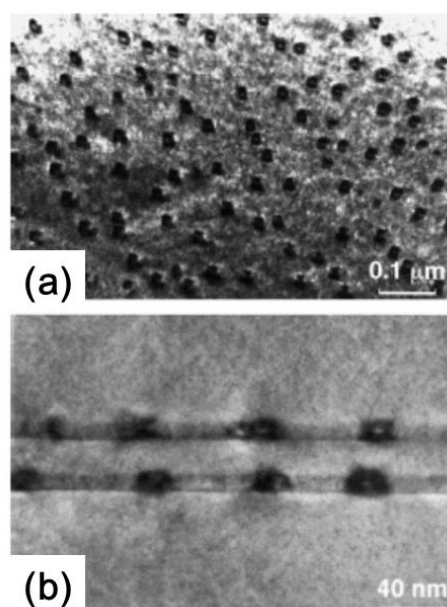


図 6.3.3. (a) 0.007 ML/s の成長速度で 1.9 ML の InAs 供給により成長した InAs ドット (単層構造) の平面 TEM 像. (b) 同上条件で 2 層積層した構造の (110) 断面の TEM 像. GaAs 中間層厚さは 26 nm [6.3.1].

に成功している。図 6.3.3.(b) は、このドット層を 2 層積層した試料の(110)断面の TEM 像である。上下のドットは 26 nm の中間層を介して成長している。InGaAs 歪緩和層を付加することにより、蓄積歪が増大しミスフィット転位などが新たに発生することが懸念されたが、同図にみられるように欠陥はほとんど観察されていない。また上下のドットの配置に相関性はなく、2 層目においても 1 層目と同じサイズと密度でドットが形成されており、レーザなどの活性層に必要とされる同一の量子ドット層が積層できていることがわかる。

以上、周辺構造として InAs ドットの直上に形成する埋め込み層として InGaAs 歪層の効果について検討した。InGaAs 混晶の組成と厚さにより、

0.1  $\mu\text{m}$  程度の長波化が得られることを示した。また、低速成長したドットを InGaAs 歪層で埋め込むことにより 1.3  $\mu\text{m}$  域で発光する量子ドットを  $3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  の高密度（低速成長のみの場合に比べて 5 倍の高密度）で形成できることを示した。

## 6-4 通信波長帯 (1.3 $\mu\text{m}$ ) InAs 量子ドットの作製とレーザ応用

本節では、前節で示した低速成長により形成した InAs ドットを InGaAs 歪緩和層で埋め込んだ構造を用いてレーザを試作した結果を示す[6.4.1-5]。

InAs ドットは、成長速度 0.007 ML/s にて 1.9 ML の InAs 供給により成長し、これを 4 nm 厚さの  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}$  歪緩和層で埋め込むことにより形成した。成長したレーザ構造を図 6.4.1 に示す。活性層構造は、上記ドット層を 26 nm 厚さの GaAs 中間層を介して 4 層積層し、その上下を GaAs 層で挟んだ分離閉じ込め (Separate Confinement Hetrostructure: 以下 SCH) 構造と

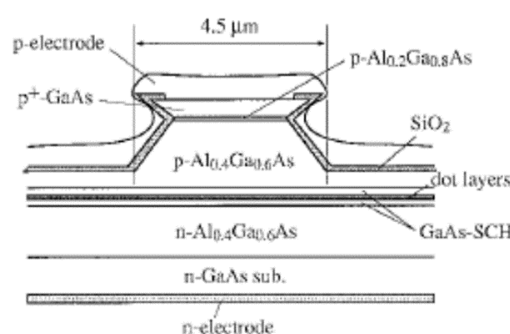


図 6.4.1. 試作した量子ドットレーザ構造の模式図 [6.4.3]. 活性層は、26 nm の GaAs 中間層を介して 4 層のドット層を積層した SCH 構造。

した。活性層は、n 型の GaAs 基板上に形成した 1.4  $\mu\text{m}$  厚さの Si ドープの  $\text{n-Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  クラッド層上に成長し、1.4  $\mu\text{m}$  厚さの Be ドープの  $\text{p-Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  クラッド層で挟んでいる。その上層には 20 nm 厚さの Be ドープの  $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$  層と 0.4  $\mu\text{m}$  厚さの Be ドープの GaAs コンタクト層を成長している。4.5  $\mu\text{m}$  幅、キャビティ長 300  $\mu\text{m}$  のリッジ構造をエッチングにより作製し、両端面は高反射(High refractive: 以下 HR)膜でコーティングした。図 6.4.2 に 25 $^{\circ}\text{C}$ での光出力の注入電流依存性 (I-L 特性)を示す。連続発振においてしきい値電流 ( $I_{th}$ ) は 5.4 mA とこの波長域で発振する量子ドットレーザでは最も低い値となった。発振波長は挿入図に示すように 1.31  $\mu\text{m}$  (電流 6 mA で測定)であった。PL の発光波長との比較により、量子ドットの基底準位間での発振と考えられる。

なお、この InAs ドットを更に積層した構造を活性層に搭載したレーザにおいて、高い温度特性が確認 (しきい値特性温度: 420K (20-50 $^{\circ}\text{C}$ ))されるとと

もに 8 GHz の変調帯域も確認されており [6.4.6-8]、今後実用的なレーザへの展開が期待される。

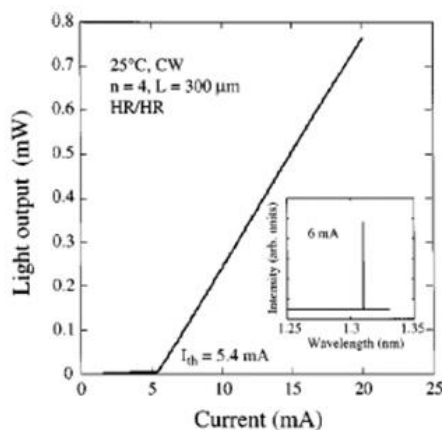


図 6.4.2. 試作した量子ドットレーザの25°Cでの光出力の注入電流依存性 (I-L 特性) [6.4.5]. キャビティ長は 300 μm. リッジ両端面はHRコート. 5.4 mA の低しきい値電流で連続発振. 発振波長は 1.31 μm.

以上、前節で示した低速成長により形成した InAs ドットを InGaAs 歪緩和層で埋め込んだ構造を用いてレーザを試作し、5.4 mA の低しきい値で室温連続発振することを確認した。実用的な通信用半導体レーザへの適用可能性を示した。

## 6-5 まとめ

第6章では、量子ドットの代表的な応用デバイスである半導体レーザへの適用に向けた構造制御、特に波長制御について示した。成長速度と形成される InAs ドットのサイズおよび発光波長の関係を示した。0.01 ML/s 以下の低い成長速度で成長することにより発光波長を通信波長域である 1.3 μm 域にまで長波長化できることを示した。ただし、密度は前章に示したような通常に得られる密度に対し1桁程度低減してしまい  $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  であった。この密度では十分な利得は期待できずレーザ応用には適さない。

そのため、周辺構造として量子ドット直上に形成する InGaAs 歪層について検討した。InGaAs 混晶の組成と厚さにより、0.1 μm 程度の長波化が得られることを確認した。これらの併用により 1.3 μm 域で発光する量子ドットを高密度 ( $3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ) に形成できることを確認した。また、この量子ドットを活性層に用いたレーザを試作し、5.4 mA の低いしきい値で室温連続発振することを確認し、実用的な通信用レーザへの適用可能性を示した。

## 第6章の参考文献

### ■ 6-1 節

- [6.1.1] N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, S. S. Ruvimov, M. V. Maximov, P.S.Kop'ev, Zh. I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich, *Electron. Lett.* 30, p. 1416 (1994).
- [6.1.2] H. Shoji, K. Mukai, N. Ohtsuka, M. Sugawara, T. Uchida, H. Ishikawa, *IEEE Photon. Technol. Lett.*, 12, p. 1385 (1995).
- [6.1.3] H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Electron. Lett.* 32, p. 2023 (1996).
- [6.1.4] K. Kamath, P. Bhattacharya, T. Sosnowski, T. Norris, J. Phillips, *Electron. Lett.*, 32, p. 1374 (1996).
- [6.1.5] D. Bimberg, N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, Zh. I. Alferov, P. S. Kop'ev, V. M. Ustinov, *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.*, 3, p. 196 (1997).
- [6.1.6] F. Heinrichsdorff, M.-H. Mao, N. Kirstaedter, A. Krost, D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.*, 71, p. 22 (1997).
- [6.1.7] Y. Nakata, Y. Sugiyama, T. Futatsugi, N. Yokoyama, *J. Cryst. Growth*, 175/176, p. 713 (1997).
- [6.1.8] Y. Nakata, Y. Sugiyama, K. Mukai, T. Futatsugi, H. Shoji, M. Sugawara, H. Ishikawa, N. Yokoyama, *Inst. Phys. Conf. Ser. No. 162*, Chapter 9, p. 427 (1999).
- [6.1.9] K. Mukai, Y. Nakata, H. Shoji, M. Sugawara, K. Otsubo, N. Yokoyama, H. Ishikawa, *Electron. Lett.*, 34, p. 1588 (1998).
- [6.1.10] G. T. Liu, A. Stintz, H. Li, K. J. Malloy, L. F. Lester, *Electron. Lett.*, 35, p. 1163 (1999).
- [6.1.11] K. Kamath, D. Klotzkin, and P. Bhattacharya, in *Proceedings of the IEEE Lasers and Electro-Optics Society Annual Meeting*, San Francisco, CA, p. 498 (1997).
- [6.1.12] R.P. Mirin, J.P. Ibbetson, J.E. Bowers, A.C. Gossard, *J. Cryst. Growth*, 175/176, p. 696 (1997).
- [6.1.13] D. L. Huffaker, D. G. Deppe, *Appl. Phys. Lett.*, 73, p. 520 (1998).
- [6.1.14] K. Mukai, N. Ohtsuka, M. Sugawara, S. Yamazaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 33, p. L1710 (1994).
- [6.1.15] R. Murray, D. Childs, S. Malik, P. Sivers, C. Roberts, J.-M. Hartmann, P. Stavrinou, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 38, p. 528 (1999).
- [6.1.16] J. M. Gerard, A. Lemaitre, B. Legrand, A. Ponchet, B. Gayral, V. Thierry-Mieg, *J. Cryst. Growth*, 201/202, p. 1109 (1999).
- [6.1.17] K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, *Appl. Phys. Lett.*, 74, p. 1111 (1999).

- [6.1.18] Y. Nakata, K. Mukai, M. Sugawara, K. Ohtsubo, H. Ishikawa, N. Yokoyama, J. Cryst. Growth, 208, p. 93 (2000).
- [6.1.19] M. Sugawara, K. Mukai, H. Ishikawa, Y. Nakata, Semicon ductors and Semimetals (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 8 (1999).
- [6.1.20] K. Mukai , Y. Nakata, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, IEEE Photon. Technol. Lett., 11, p. 1205 (1999).
- [6.1.21] K. Mukai , Y. Nakata, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, IEEE J. Quantum Electron., 36, p. 472 (2000).
- [6.1.22] K. Mukai , Y. Nakata, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, Appl. Phys. Lett., 76, p. 3349 (2000).
- [6.1.23] M. Sugawara, K. Mukai , Y. Nakata, K. Otsubo, H. Ishikawa, IEEE J. Select. Topics Quantum Electron., 6, p. 462 (2000).

## ■ 6-2 節

- [6.2.1] Y. Nakata, K. Mukai, M. Sugawara, K. Ohtsubo, H. Ishikawa, N. Yokoyama, J. Cryst. Growth, 208, p. 93 (2000).
- [6.2.2] M. Sugawara, K. Mukai, H. Ishikawa, Y. Nakata, Semiconductors and Semimetals (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 8 (1999).

## ■ 6-3 節

- [6.3.1] Y. Nakata, K. Mukai, M. Sugawara, K. Ohtsubo, H. Ishikawa, N. Yokoyama, J. Cryst. Growth, 208, p. 93 (2000).
- [6.3.2] M. Sugawara, K. Mukai, H. Ishikawa, Y. Nakata, Semiconductors and Semimetals (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 8 (1999).
- [6.3.3] K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, Appl. Phys. Lett., 74, p. 1111 (1999).

## ■ 6-4 節

- [6.4.1] Y. Nakata, K. Mukai, M. Sugawara, K. Ohtsubo, H. Ishikawa, N. Yokoyama, J. Cryst. Growth, 208, p. 93 (2000).
- [6.4.2] M. Sugawara, K. Mukai, H. Ishikawa, Y. Nakata, Semiconductors and Semimetals (Academic, New York), Vol. 60, Chap. 8 (1999).
- [6.4.3] K. Mukai, Y. Nakata, K. Ohtsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, IEEE Photn. Technol. Lett., 11, p. 1205 (1999).
- [6.4.4] K. Mukai, Y. Nakata, K. Ohtsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, Appl. Phys. Lett., 76, p. 3349 (2000).
- [6.4.5] K. Mukai, Y. Nakata, K. Ohtsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa,

IEEE J. Quantum Electron., 36, p. 472 (2000).

[6.4.6] M. Sugawar, K. Mukai, Y. Nakata, K. Ohtsubo, H. Ishikawa, IEEE J. Select. Topics in Quantum Electron., 6, p. 462 (2000).

[6.4.7] K. Otsubo, N. Hatori, M. Ishida, S. Okumura, T. Akiyama, Y. Nakata, H. Ebe, M. Sugawara, Y. Arakawa, Jpn. J. Appl. Phys., 43, p. L1124 (2004).

[6.4.8] M. Sugawara, N. Hatori, M. Ishida, H. Ebe, Y. Arakawa, T. Akiyama, K. Otsubo, T. Yamamoto, Y. Nakata, J. Phys. D: Appl. Phys., 38, p. 2126 (2005).

## 第7章 本論文のまとめと結論

III-V 族化合物半導体の大きな特徴の一つは、多様な材料系から格子とエネルギーバンドを混晶組成により制御してキャリアを閉じ込め、所望の特性を引き出していくことにある。そのため、混晶材料は極めて重要な位置づけとなるが、その微細構造を含め広くは調べられていない。また、近年活発化しつつあるキャリア閉じ込めの次元を高めた量子細線や量子ドットの作製においては、従来のリソグラフィとエッチングによる加工ではダメージが導入されてしまい十分なキャリア閉じ込めができるまでには至っていない。そのため、成長プロセスのみによる構造形成が望まれるが、従来の成長技術では、構造制御が可能となるのは成長方向のみであった。何らかの機構を取り入れ、横方向への成長制御を可能とする成長技術を開発する必要がある。

本論文は、これら課題を踏まえ高性能レーザや超高速素子など新しい半導体素子の開発に貢献することを目的に以下の検討を行いまとめたものである。まず材料の多様性の観点で、新たに **Sb-As** を含む **III-V-V** 混晶の制御技術を開発し、**InGaAs** 混晶や **InAlAs** 混晶とのヘテロ接合において、**Type II** 型バンド構造の他、伝導帯側のみあるいは価電子帯側のみに大きな不連続があるなど多様なバンド構造を形成できることを明らかにした。また、成長表面あるいは界面に現れる現象、機構を利用することにより、混晶の微細構造制御と量子構造形成の手法について検討した。**(110) InP** 微傾斜基板上に形成される表面ステップ構造とステップオーダリングを利用することによって、構成原子の規則的配列や面内周期構造の形成を実現し、それに伴う物性変化も実験的に明らかにした。さらに、**InAs/GaAs** の **S-K** 型の成長島を利用した量子ドット形成においては、歪伝搬に伴う配列形成を利用して均一性を大幅に改善し、これにより実用的な量子ドットレーザに向け大きく前進させた。

本論文は7章から構成されており、以下各章ごとにまとめて示す。

第1章は序論であり、III-V 族化合物半導体の歴史的背景と新しい素子開発に向けた材料技術に関する課題を示した。

第2章では、素子への応用上重要な **InP** に格子整合した混晶材料に注目し、代表的な **InGaAs/InAlAs** ヘテロ構造に加え、新たに開発した **GaAsSb**, **AlAsSb** 混晶に関して述べる。**InGaAs/InAlAs** に関しては、選択ドーピング構造を成長し、シートキャリア濃度について調べた。これまで主流であった **GaAs/AlGaAs** 系に比べ伝導帯端のエネルギー差が大きく、シートキャリア濃度を4倍も高く生成できることを確認し、高電子移動度トランジスタ (HEMT) 応用への優位性を示した。また、2種類のV族原子を含みV族原子の組成制御が必要となる **GaAsSb**, **AlAsSb** 混晶の成長技術を開発し、**InGaAs**

混晶や InAlAs 混晶とのヘテロ接合により Type II 型や価電子帯側、あるいは伝導帯側にのみ大きな障壁を持つ特異なバンド構造を形成できることを示した。

第3章では、InP に格子整合した InGaAs 混晶に注目し、In と Ga の規則的な配列制御とそれに伴う物性変化を実験的に示した。規則化の手法として、まず、特定な成長条件下で現れる規則化を用いた。(110) InP 基板上では InAs と GaAs が単分子層ごとに交互に積層した CuAu-I 型と呼ばれる規則構造が形成できることを透過電子顕微鏡観察 (TEM) により明らかにした。規則化と成長条件及び成長中の表面ステップ構造との関係より、この規則化に成長表面に形成される2分子層の表面ステップが重要な役割を果たしていることを明らかにした。次に、規則化手法として、微傾斜基板上でのステップフロー成長を用いて、InAs と GaAs を交互に供給することにより人為的に構成原子を配列させる手法について示し、TEM, X線回折によりステップ周期に一致した横変調周期を持つ単分子層超格子が形成されていることを明らかにした。これら InGaAs 規則混晶からは、通常の不規則混晶より 1.6 倍も高い電子移動度が得られることを示した。合金散乱が抑制されたと思われる。

第4章では、成長面内（横方向）での原子配置制御について述べる。成長には、微傾斜基板上でのステップフロー成長を利用し、面内に周期構有する面内超格子を形成した。基板には、(110)InP 微傾斜基板を用い、0.5 分子層の InGaAs と InAlAs, を交互に成長した。得られた結晶を TEM により評価した結果、表面のステップ周期に一致した InGaAs/InAlAs 面内超格子が形成できていることを確認した。また、格子定数が大きく異なる InAs と GaAs を同様に交互に成長して InAs /GaAs 歪面内超格子を形成した。TEM, エネルギー分散型 X 線分光 (EDX), フォトルミネッセンス (PL) での評価により既報告の面内超格子では、最も組成差が大きな面内超格子が実現できていることを確認し、成長のみによる量子細線形成に向けての有効性を明らかにした。

第5章では、究極的なキャリア閉じ込め構造である量子ドットの成長制御について述べる。成長には格子不整合系ヘテロ結晶の成長初期に現れる島状成長 (Stranski-Krastanow 型成長) を用いた。まず基本的な成長形態について整理した上で、GaAs 上の InAs 量子ドットの形成について、基本的な構造特性と成長パラメータとの関係を明らかにした。次に高性能レーザなどの素子応用上重要な積層成長について検討した。積層成長では、積層とともに量子ドットが大きくなる問題が指摘されていた。初期層に類似した量子ドット層の単純繰り返し積層には中間層をある程度厚くする必要がある (> 30 nm) こと、また中間層を薄くした場合、積層方向に量子ドットの配列性が現れることを見出した。この積層方向への配列性を積極的に利用して量子ドット高

さを積層数により制御する近接積層を提案し、積層数に応じて高さ（発光波長）が変化することを検証した。また近接積層では、構造揺らぎに起因した不均一幅が大幅に低減できることを明らかにした。さらに、GaAs 中間層を 3 分子程度にまで薄くして、InAs 供給量を精細に制御して積層することにより円柱形状（コラムナ形状）の量子ドットを形成した。これを用いた量子ドットレーザにおいて、既報告値より 1 桁程度低いしきい値を得た。また、積層数により偏波制御が可能であることも確認し、レーザ、光増幅器などへの適用可能性を示した。

第 6 章では、量子ドットの代表的な応用デバイスである半導体レーザへの適用に向けた構造制御、特に波長制御について述べる。まず発光波長と成長速度との関係を検討し、毎秒 0.01 分子層以下の低速成長により発光波長を通信波長域である  $1.3\ \mu\text{m}$  域にまで長波長化できることを明らかにした。ただし、密度は 1 桁程度低減してしまい ( $5 \times 10^9\ \text{cm}^{-2}$ )、このままではレーザ応用には適さない。そこで、周辺構造として量子ドット直上に形成する InGaAs 歪層について検討した。InGaAs 混晶の組成と厚さにより、 $0.1\ \mu\text{m}$  程度の長波化が得られることを確認した。これらの併用により  $1.3\ \mu\text{m}$  域で発光する量子ドットを高密度 ( $3\text{--}5 \times 10^{10}\ \text{cm}^{-2}$ ) に形成できることを確認した。最後に、この量子ドットを用いてレーザを試作、 $5.4\ \text{mA}$  の低しきい値で室温連続発振することを確認し、実用的な通信用レーザへの適用可能性を示した。

以上、成長表面や界面において、特定の条件下で現れる特異な機構を利用することにより分子層レベルでの微細な層構造制御を行うとともに、成長プロセスのみで横方向（面内）への構造制御を行い、量子細線構造、量子ドット構造を形成した。特に、量子ドットは、実用的な通信用量子ドットレーザとして展開されつつある。ただし、面内－横方向への制御精度は、従来の成長方向への制御精度までには至っていない。今後さらに成長ダイナミクスに関わる原子／分子レベルの挙動を制御機構として付加することにより、横方向への制御精度も成長方向と同等に高められるものと考えられる。

## 謝辞

本論文をまとめるにあたり、一方ならぬご指導とご鞭撻を頂きました北海道大学 武藤俊一教授に深く感謝いたします。また、副査をご快諾いただき、有益なご助言を頂きました北海道大学 石政勉教授、足立智教授に心より感謝いたします。

本研究を進めるにあたり、特に量子ドットの光デバイス応用に関しご指導いただいた東京大学 荒川泰彦教授、量子構造形成において有益なご助言を頂いた北海道大学 福井孝志教授に心より感謝いたします。また、量子構造形成とその応用に関し、有益なご討論とご助言をいただいた神戸大学 喜多隆教授、阿南工業高等専門学校 塚本史郎特別研究教授、電気通信大学 山口浩一教授、北海道大学 笹倉弘理助教に感謝いたします。

本論文は、筆者が株式会社 富士通研究所において行った研究をまとめたものであります。本研究の機会を与えて頂いた富士通研究所 フェロー横山直樹博士、同社 取締役 矢野映博士に深く感謝いたします。

また、本研究を行うにあたり深い理解を頂くとともに多くのご助言、ご指導をいただいた三杉隆彦博士（元富士通研究所取締役）、冷水佐壽博士（前富士通研究所一元大阪大学教授）、石川元博士（元富士通研究所常務取締役）、今井元博士（元富士通研究所 フォト・エレクトロニクス研究所長－現日本女子大学教授）、尾関雅志博士（元富士通研究所 半導体結晶研究部長－現宮崎大学教授）、中嶋一雄博士（元富士通研究所 半導体結晶研究部長－現京都大学客員教授）に深く感謝いたします。

さらに、筆者が本研究を行うに当たって、共同研究者としてご協力頂くとともに、有益なご討論とご助言を頂いた藤井俊夫博士、稲田嗣夫氏、上田修博士（現金沢工業大学教授）、佐々誠彦博士（現大阪工業大学教授）、竹内淳博士（現早稲田大学教授）、A. Sandhu 博士（現東京工業大学教授）、菅原充博士（現株式会社 QD レーザ社長兼東京大学客員教授）、小路元博士（現住友電工）、向井剛博士（現横浜国立大学教授）にはここに記して感謝の意を表します。

## 本研究に関する論文（講演）

### 1. 論文（学位論文関係）

- [1] T. Inata, S. Muto, **Y. Nakata**, T. Fujii, H. Ohnishi, S. Hiyamizu, 「Excellent negative differential resistance of InAlAs/InGaAs resonant tunneling barrier structures grown by MBE」 Jpn. J. Appl. Phys., **25**, p. L983 (1986).
- [2] T. Fujii, **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, S. Hiyamizu, 「MBE Growth of InGaAlAs lattice – matched to InP by pulsed molecular-beam method」 Jpn. J. Appl. Phys., **25**, p. L254 (1986).
- [3] Y. Sugiyama, T. Inata, T. Fujii, **Y. Nakata**, S. Muto, S. Hiyamizu, 「Conduction-band edge discontinuity of  $\text{In}_{0.52}\text{Ga}_{0.48}\text{As}/\text{In}_{0.52}(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x)\text{As}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) heterostructures」 Jpn. J. Appl. Phys., **25**, p. L648 (1986).
- [4] T. Fujii, **Y. Nakata**, S. Muto, S. Hiyamizu, 「InGaAlAs/InGaAs and InAlAs/InGaAlAs quantum-well structures grown by MBE using the pulsed molecular beam method」 Jpn. J. Appl. Phys., **25**, p. L598 (1986).
- [5] **Y. Nakata**, S. Sasa, Y. Sugiyama, T. Fujii, S. Hiyamizu, 「Extremely high 2DEG concentration in selectively doped  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{N-In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  heterostructures grown by」 Jpn. J. Appl. Phys., **26**, p. L59 (1987).
- [6] S. Hiyamizu, T. Fujii, S. Muto, T. Inata, **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, S. Sasa, 「MBE growth of InGaAs-InGaAlAs heterostructures for applications to high-speed devices」 J. Cryst. Growth, **81**, p. 349 (1987).
- [7] S. Muto, T. Inata, Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, T. Fujii, S. Hiyamizu, 「Negative differential resistance of  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  resonant tunneling barriers grown by MBE」 J. de Physique, **48**, p. 453 (1987).
- [8] A. Sandhu, **Y. Nakata**, S. Sasa, K. Kodama, S. Hiyamizu, 「Energy-band offset of  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}-\text{In}_{0.52}(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x)_{0.48}\text{As}$  heterostructures, determined by photoluminescence excitation spectroscopy of quasi-parabolic quantum wells grown by MBE」 Jpn. J. Appl. Phys., **26**, p. 1709 (1987).
- [9] T. Inata, S. Muto, **Y. Nakata**, S. Sasa, T. Fujii, S. Hiyamizu, 「A pseudomorphic  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{AlAs}$  resonant tunneling barrier with a peak-to-valley current ratio of 14 at room-temperature」 Jpn. J. Appl. Phys., **26**, p. L1332 (1987).
- [10] S. Muto, T. Inata, Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, T. Fujii, H. Ohnishi, S. Hiyamizu, 「Quantum well width dependence of negative differential resistance of  $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}/\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  resonant tunneling barriers grown by MBE」 Jpn. J. Appl. Phys., **26**, p. L220 (1987).
- [11] S. Muto, T. Inata, Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, T. Fujii, S. Hiyamizu, 「Negative

differential resistance by In<sub>0.53</sub>Ga<sub>0.47</sub>As/In<sub>0.52</sub>Al<sub>0.48</sub>As resonant tunneling barriers grown by MBE」 J. de Phys. Colloque, **48**, p. 453 (1987).

[12] Y. Nakata, T. Fujii, A. Sandhu, Y. Sugiyama, E. Miyauchi, 「Growth and characterization of GaAs<sub>0.5</sub>Sb<sub>0.5</sub> lattice-matched to InP by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth, **91**, p. 655 (1988).

[13] A. Sandhu, T. Fujii, Y. Nakata, Y. Sugiyama, E. Miyauchi, 「Electrical characterization of Si-doped GaAs<sub>0.5</sub>Sb<sub>0.5</sub> on InP grown by molecular-beam epitaxy」 Electron. Lett., **24**, p. 451 (1988).

[14] T. Fujii, Y. Nakata, Y. Sugiyama, Y. Toda, E. Miyauchi, 「Interface studies of MBE-grown GaInAs/GaAsSb heterostructures lattice-matched to InP by Auger electron spectroscopy」 Electron. Lett., **24**, p. 1210 (1988).

[15] Y. Sugiyama, T. Inata, S. Muto, Y. Nakata, S. Hiyamizu, 「Current-voltage characteristics of In<sub>0.53</sub>Ga<sub>0.47</sub>As/In<sub>0.52</sub>Al<sub>0.48</sub>As resonant tunneling barrier grown by molecular-beam epitaxy」 Appl. Phys. Lett., **52**, p. 314 (1988).

[16] A. Sandhu, Y. Nakata, S. Sasa, S. Hiyamizu, 「In<sub>0.53</sub>Ga<sub>0.47</sub>As-In<sub>0.52</sub>(Ga<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>)<sub>0.48</sub>As quasi-parabolic (multi-stepped) quantum wells grown by the pulsed molecular beam method」 Appl. Surf. Sci., **33-34**, p. 400 (1988).

[17] O. Ueda, T. Fujii, Y. Nakata, H. Yamada, I. Umebu, 「TEM investigation of modulated structures and ordered structures in InAlAs crystals grown on (001) InP substrates by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth, **95**, p. 38 (1989).

[18] Y. Sugiyama, T. Fujii, Y. Nakata, S. Muto, E. Miyauchi, 「Conduction-band edge discontinuity of InGaAs/GaAsSb heterostructures lattice-matched to InP grown by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth, **95**, p. 363 (1989).

[19] S. Sasa, Y. Nakata, Y. Sugiyama, T. Fujii, E. Miyauchi, 「Electronic-properties of two-dimensional electron-gas in pseudomorphic In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/N-In<sub>0.52</sub>Al<sub>0.48</sub>As heterostructures」 J. Cryst. Growth, **95**, p. 189 (1989).

[20] Y. Nakata, Y. Sugiyama, O. Ueda, S. Sasa, T. Fujii, E. Miyauchi, 「Characterization of GaAsSb/InAlAs quantum-well structures lattice-matched to InP grown by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth, **99**, p. 311 (1990).

[21] T. Inata, S. Muto, Y. Nakata, T. Fujii, 「Negative differential resistance of strain-free InGaAs/AlAsSb resonant tunneling barrier structures lattice-matched to InP」 Jpn. J. Appl. Phys., **29**, p. L1382 (1990).

[22] Y. Nakata, O. Ueda, T. Fujii, 「High two-dimensional electron gas mobility enhanced by ordering in InGaAs/N-InAlAs heterostructures grown on (110)-oriented InP substrates by molecular beam epitaxy」 Jpn. J. Appl. Phys., **30**, p. L249 (1991).

[23] Y. Nakata, O. Ueda, T. Fujii, 「Two-dimensional electron gas mobility in InGaAs/N-

- InAlAs heterostructures with ordered InGaAs grown on (110)-oriented InP substrates by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth, **115**, p. 504 (1991).
- [24] O. Ueda, **Y. Nakata**, T. Nakamura, T. Fujii, 「TEM investigation of CuAu-I type ordered structures in MBE-grown InGaAs crystals on (110) InP substrates」 J. Cryst. Growth, **115**, p. 375 (1991).
- [25] O. Ueda, **Y. Nakata**, T. Fujii, 「Study on microstructure of ordered InGaAs crystals grown on (110)InP substrates by transmission electron microscopy」 Appl. Phys. Lett., **58**, p. 705 (1991).
- [26] O. Ueda, **Y. Nakata**, T. Fujii, 「Evaluation of CuAu-I type ordered structures in MBE-grown InGaAs crystals by TEM」 J. Electron Microscopy, **40**, p. 254 (1991).
- [27] T. Inata, **Y. Nakata**, S. Muto, 「Optical control of GaAsSb/InGaAs staggered resonant tunneling barrier structures grown by MBE」 Semicon. Sci. Tech., **7**, p. B465 (1992).
- [28] O. Ueda, **Y. Nakata**, A. Takeuchi, S. Nakamura, S. Muto, 「Transmission electron microscopic evaluation of InGaAs/InAlAs in-plane superlattices grown on slightly misoriented (110)InP substrates by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth **150**, p. 346 (1995).
- [29] **Y. Nakata**, O. Ueda, A. Takeuchi, S. Nakamura, S. Muto, 「InGaAs/InAlAs in-plane superlattices grown on slightly misoriented (110) InP substrates by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth **150**, p. 341 (1995).
- [30] O. Ueda, **Y. Nakata**, S. Muto, 「Generation mechanism of CuAu-I type ordered structures in InGaAs crystals grown on (110) InP substrates by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth **150**, p. 523 (1995).
- [31] Y. Nishikawa, **Y. Nakata**, A. Takeuchi, S. Muto, O. Wada, 「Large lateral modulation in InAs/GaAs in-plane strained superlattice on slightly misoriented (110) InP substrate」 Jpn. J. Appl. Phys., **34**, p. L915 (1995).
- [32] K. Imamura, Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, N. Yokoyama, 「New optical memory structure using self-assembled InAs quantum dots」 Jpn. J. Appl. Phys., **34**, p. L1445 (1995).
- [33] A. Takeuchi, **Y. Nakata**, S. Muto, Y. Sugiyama, T. Inata, N. Yokoyama, 「Near-1.3- $\mu$ m high-intensity photoluminescence at room-temperature by InAs/GaAs multi-coupled quantum dots」 Jpn. J. Appl. Phys., **34**, p. L405 (1995).
- [34] A. Takeuchi, **Y. Nakata**, S. Muto, Y. Sugiyama, T. Usuki, Y. Nishikawa, N. Yokoyama, O. Wada, 「Time-resolved study of carrier transfer among InAs/GaAs multi-coupled quantum dots」 Jpn. J. Appl. Phys., **34**, p. L1439 (1995).
- [35] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, K. Imamura, S. Muto, N. Yokoyama, 「Stacked InAs self-

- assembled quantum dots on (001) GaAs grown by molecular beam epitaxy」 Jpn. J. Appl. Phys, **35**, p. 1320 (1996).
- [36] H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Self-formed InGaAs quantum dot lasers with multi-stacked dot layer」 Jpn. J. Appl. Phys, **35**, p. L903 (1996).
- [37] H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Room temperature CW operation at the ground state of self-formed quantum dot lasers with multi-stacked dot layer」 Electron. Lett, **32**, p. 2023 (1996).
- [38] **Y. Nakata**, O. Ueda, Y. Nishikawa, S. Muto, N. Yokoyama, 「InAs/GaAs in-plane strained superlattices grown on slightly misoriented (110) InP substrates by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth, **175-176**, p. 168 (1997).
- [39] **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, T. Futatsugi, N. Yokoyama, 「Self-assembled structures of closely stacked InAs islands grown on GaAs by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth, **175-176**, p. 713 (1997).
- [40] H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Lasing characteristics of self-formed quantum-dot lasers with multistacked dot layer」 IEEE. J. Select. Topics. Quantum Electron., **3**, p. 188 (1997).
- [41] M. Sugawara, **Y. Nakata**, K. Mukai, H. Shoji, 「Exciton diamagnetic shifts in self-formed closely stacked InAs/GaAs quantum dots」 Phys. Rev. B, **55**, p. 13155 (1997).
- [42] H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Temperature dependent lasing characteristics of multi-stacked quantum dot lasers」 Appl. Phys. Lett., **71**, p. 193 (1997).
- [43] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, T. Futatsugi, M. Sugawara, Y. Awano, N. Yokoyama, 「Narrow photoluminescence line width of closely stacked InAs self-assembled quantum dot structures」 Jpn. J. Appl. Phys, **36**, p. L158 (1997).
- [44] T. Haga, M. Kataoka, N. Matsumura, S. Muto, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Interdiffusion between InAs quantum dots and GaAs matrices」 Jpn. J. Appl. Phys., **36**, p. L1113 (1997).
- [45] N. Horiguchi, T. Futatsugi, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Electron transport properties through InAs self-assembled quantum dots in modulation doped structures」 Appl. Phys. Lett., **70**, p. 2294 (1997).
- [46] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, N. Horiguchi, T. Futatsugi, Y. Awano, N. Yokoyama, 「Observation of spectral hole burning in photocurrent of InAs self-assembled quantum dots embedded in pin diode」 Trans. Inst. Electron. Inform. Com. Eng. C-II, **J80C-II**, p. 306 (1997).
- [47] N. Horiguchi, T. Futatsugi, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Dynamic properties of InAs

self-assembled quantum dots evaluated by capacitance-voltage measurements」 Jpn. J. Appl. Phys., **36**, p. L1246 (1997).

[48] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, N. Horiguchi, T. Futatsugi, Y. Awano, N. Yokoyama, 「Observation of spectral hole burning in photocurrent spectrum of InAs self-assembled quantum dots embedded in PIN diode」 Electron. Lett., **33**, p. 1655 (1997).

[49] K. Mukai, **Y. Nakata**, H. Shoji, M. Sugawara, K. Ohtsubo, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Lasing with low threshold current and high output power from columnar-shaped InAs/GaAs quantum dots」 Electron. Lett., **34**, p. 1588 (1998).

[50] K. Shiramine, Y. Horisaki, D. Suzuki, S. Itoh, Y. Ebiko, S. Muto, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Threading dislocations in multilayer structure of InAs self-assembled quantum dots」 Jpn. J. Appl. Phys., **37**, p. 5493 (1998).

[51] Y. Ebiko, S. Muto, D. Suzuki, S. Itoh, K. Shiramine, T. Haga, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Island size scaling in InAs/GaAs self-assembled quantum dots」 Phys. Rev. Lett., **80**, p. 2650 (1998).

[52] H. Ishikawa, H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, M. Sugawara, M. Egawa, N. Otsuka, Y. Sugiyama, T. Futatsugi, N. Yokoyama, 「Self-organized quantum dots and quantum dot lasers」 J. Vac. Sci. Tech., **16**, p. 794 (1998).

[53] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, T. Futatsugi, N. Yokoyama, 「Characteristics of spectral-hole burning of InAs self-assembled quantum dots」 IEEE J. Select. Topics. Quantum. Electron., **4**, p. 880 (1998).

[54] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, N. Horiguchi, T. Futatsugi, Y. Awano, N. Yokoyama, 「Observation of spectral hole burning in photocurrent spectrum of InAs self-assembled quantum dots buried in pn-junction」 Physica E, **2**, p. 632 (1998).

[55] K. Mukai, **Y. Nakata**, K. Ohtsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「1.3- $\mu\text{m}$  CW lasing of InGaAs-GaAs quantum dots at room temperature with a threshold current of 8 mA」 IEEE Photn. Tech. Lett., **11**, p. 1205 (1999).

[56] A. Endoh, **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, M. Takatsu, N. Yokoyama, 「Effect of size fluctuations on the photoluminescence spectral linewidth of closely stacked InAs self-assembled quantum dot structures」 Jpn. J. Appl. Phys., **38**, p. 1085 (1999).

[57] N. Horiguchi, T. Futatsugi, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, T. Mankad, P. M. Petroff, 「Quantum dot infrared photodetector using modulation doped InAs self-assembled quantum dots」 Jpn. J. Appl. Phys., **38**, p. 2559 (1999).

[58] M. Sugawara, K. Mukai, **Y. Nakata**, 「Temperature characteristics of threshold currents of columnar-shaped self-assembled InGaAs/GaAs quantum-dot lasers: Influence of nonradiative recombination centers」 Appl. Phys. Lett., **75**, p. 656 (1999).

- [59] M. Sugawara, K. Mukai, **Y. Nakata**, 「Light emission spectra of columnar-shaped self-assembled InGaAs/GaAs quantum-dot lasers: Effect of homogeneous broadening of the optical gain on lasing characteristics」 Appl. Phys. Lett., **74**, p. 1561 (1999).
- [60] K. Shiramine, Y. Horisaki, D. Suzuki, S. Itoh, Y. Ebiko, S. Muto, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「TEM observation of threading dislocations in InAs self-assembled quantum dot structure」 J. Cryst. Growth, **205**, p. 461 (1999).
- [61] Y. Ebiko, S. Muto, D. Suzuki, S. Itoh, K. Shiramine, T. Haga, **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, N. Yokoyama, 「Volume distributions of InAs GaAs self-assembled quantum dots」 J. Cryst. Growth, **202**, p. 1150 (1999).
- [62] T. Ishigure, T. Haga, S. Muto, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Crystallographic properties of closely stacked InAs quantum dots investigated by ion channeling」 Jpn. J. Appl. Phys., **38**, p. 504 (1999).
- [63] H. Hatori, M. Sugawara, K. Mukai, **Y. Nakata**, H. Ishikawa, 「Room-temperature gain and differential gain characteristics of self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots for 1.1-1.3  $\mu\text{m}$  semiconductor lasers」 Appl. Phys. Lett., **77**, p. 773 (2000).
- [64] K. Mukai, **Y. Nakata**, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「High characteristic temperature of near-1.3- $\mu\text{m}$  InGaAs/GaAs quantum-dot lasers at room temperature」 Appl. Phys. Lett., **76**, p. 3349 (2000).
- [65] M. Sugawara, K. Mukai, **Y. Nakata**, K. Otsubo, H. Ishikawa, 「Performance and physics of quantum-dot lasers with self-assembled columnar-shaped and 1.3- $\mu\text{m}$  emitting InGaAs quantum dots」 IEEE. J. Select. Topics Quantum Electron., **6**, p. 462 (2000).
- [66] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, Y. Awano, N. Yokoyama, 「Hole burning spectroscopy of InAs self-assembled quantum dots for memory application」 Physica E, **7**, p. 503 (2000).
- [67] **Y. Nakata**, K. Mukai, M. Sugawara, K. Otsubo, H. Ishikawa, N. Yokoyama, 「Molecular beam epitaxial growth of InAs self-assembled quantum dots with light-emission at 1.3  $\mu\text{m}$ 」 J. Cryst. Growth, **208**, p. 93 (2000).
- [68] K. Mukai, **Y. Nakata**, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「1.3- $\mu\text{m}$  CW lasing characteristics of self-assembled InGaAs-GaAs quantum dots」 IEEE J. Quantum. Electron., **36**, p. 472 (2000).
- [69] T. Akiyama, H. Kuwatsuka, T. Simoyama, **Y. Nakata**, K. Mukai, M. Sugawara, O. Wada, H. Ishikawa, 「Application of spectral-hole burning in the inhomogeneously broadened gain of self-assembled quantum dots to a multiwavelength-channel nonlinear optical device」 IEEE Photo. Tech. Lett., **12**, p. 1301 (2000).
- [70] T. Akiyama, O. Wada, H. Kuwatsuka, T. Simoyama, **Y. Nakata**, K. Mukai, M.

- Sugawara, H. Ishikawa, 「Nonlinear processes responsible for nondegenerate four-wave mixing in quantum-dot optical amplifiers」 Appl. Phys. Lett., **77**, p. 1753 (2000).
- [71] M. Sugawara, K. Mukai, **Y. Nakata**, H. Ishikawa, A. Sakamoto, 「Effect of homogeneous broadening of optical gain on lasing spectra in self-assembled  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dot lasers」 Phys. Rev. B, **61**, p. 7595 (2000).
- [72] A. Tackeuchi, T. Kuroda, K. Mase, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Dynamics of carrier tunneling between vertically aligned double quantum dots」 Phys. Rev. B, **62**, p. 1568 (2000).
- [73] T. Akiyama, H. Kuwatsuka, T. Simoyama, **Y. Nakata**, K. Mukai, M. Sugawara, O. Wada, H. Ishikawa, 「Ultrafast nonlinear processes in quantum-dot optical amplifiers」 Optical and Quantum Electronics, **33**, p. 927 (2001).
- [74] N. Matsumura, T. Haga, S. Muto, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Lattice deformation and interdiffusion of InAs quantum dots on GaAs(100)」 J. Appl. Phys., **89**, p. 160 (2001).
- [75] T. Akiyama, H. Kuwatsuka, T. Simoyama, **Y. Nakata**, K. Mukai, M. Sugawara, O. Wada, H. Ishikawa, 「Nonlinear gain dynamics in quantum-dot optical amplifiers and its application to optical communication devices」 IEEE J. Quantum Electronics, **37**, p. 1059 (2001).
- [76] A. Tackeuchi, **Y. Nakata**, R. Sasou, K. Mase, T. Kuroda, N. Yokoyama, 「Observation of interdot tunneling process of spin-polarized electrons」 Physica E, **10**, p. 32 (2001).
- [77] T. Kita, O. Wada, H. Ebe, **Y. Nakata**, M. Sugawara, 「Polarization-independent photoluminescence from columnar InAs/GaAs self-assembled quantum dots」 Jpn. J. Appl. Phys., **41**, p. L1143 (2002).
- [78] N. Matsumura, T. Haga, S. Muto, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, K. Numata, K. Yabuta, 「Two modes of Ga diffusion into InAs self-assembled quantum dots suggested by ion channeling」 Physica E, **13**, p. 1168 (2002).
- [79] M. Sugawara, T. Akiyama, N. Hatori, **Y. Nakata**, H. Ebe, H. Ishikawa, 「Quantum-dot semiconductor optical amplifiers for high-bit-rate signal processing up to 160 Gb/s and a new scheme of 3R regenerators」 Measurement Sci. & Tech., **13**, p. 1683 (2002).
- [80] T. Akiyama, H. Kuwatsuka, N. Hatori, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, 「Symmetric highly efficient ( $\sim 0$  dB) wavelength conversion based on four-wave mixing in quantum dot optical amplifiers」 IEEE Photon. Tech. Lett., **14**, p. 1139 (2002).
- [81] T. Akiyama, N. Hatori, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, 「Pattern-effect-free semiconductor optical amplifier achieved using quantum dots」 Electron. Lett., **38**, p. 1139 (2002).

- [82] A. Tackeuchi, T. Kuroda, R. Sasou, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Antiferromagnetic coupling between semiconductor quantum dots」 *Physica B*, **314**, p. 25 (2002).
- [83] K. Shiramine, S. Muto, T. Shibayama, H. Takahashi, T. Kozak, S. Sato, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Size, density, and shape of InAs quantum dots in closely stacked multilayers grown by the Stranski-Krastanow mode」 *J. Vac. Sci. Tech.*, **21**, p. 2054 (2003).
- [84] J. Tatebayashi, N. Hatori, H. Kakuma, H. Ebe, H. Sudo, A. Kuramata, **Y. Nakata**, M. Sugawara, Y. Arakawa, 「Low threshold current operation of self-assembled InAs/GaAs quantum dot lasers by metal organic chemical vapour deposition」 *Electron. Lett.*, **39**, p. 1130 (2003).
- [85] P. Jayavel, H. Tanaka, K. Kou, T. Kita, O. Wada, H. Ebe, **Y. Nakata**, M. Sugawara, 「Strain effects on photoluminescence polarization of InAs/GaAs self-assembled quantum dots」 *Physica Status Solidi B: Basic Research*, **238**, p. 229 (2003).
- [86] N. Hatori, T. Akiyama, H. Kuwatsuka, K. Otsubo, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, 「Design of a wide-range arbitrary wavelength conversion module using four-wave mixing in a quantum dot semiconductor optical amplifier」 *Physica Status Solidi C*, **0**, p. 1333 (2003).
- [87] T. Akiyama, N. Hatori, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, 「Pattern-effect-free amplification and cross-grain modulation achieved by using ultrafast gain nonlinearity in quantum-dot semiconductor optical amplifiers」 *Physica Status Solidi B*, **238**, p. 301 (2003).
- [88] A. Tackeuchi, T. Kuroda, **Y. Nakata**, M. Murayama, T. Kitamura, N. Yokoyama, 「Electron spin flip by antiferromagnetic coupling between semiconductor quantum dots」 *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, p. 4278 (2003).
- [89] M. Ishida, N. Hatori, T. Akiyama, K. Otsubo, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, Y. Arakawa, 「Photon lifetime dependence of modulation efficiency and K factor in 1.3  $\mu\text{m}$  self-assembled InAs/GaAs quantum-dot lasers: Impact of capture time and maximum modal gain on modulation bandwidth」 *Appl. Phys. Lett.*, **85**, p. 4145 (2004).
- [90] M. Sugawara, H. Ebe, N. Hatori, M. Ishida, Y. Arakawa, T. Akiyama, K. Otsubo, **Y. Nakata**, 「Theory of optical signal amplification and processing by quantum-dot semiconductor optical amplifiers」 *Phys. Rev. B*, **23**, p. 235332 (2004).
- [91] P. Jayavel, H. Tanaka, T. Kita, O. Wada, H. Ebe, M. Sugawara, J. Tatebayashi, Y. Arakawa, **Y. Nakata**, T. Akiyama, 「Control of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  capping layer induced optical polarization in edge-emitting photoluminescence of InAs quantum dots」 *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43**, p. 1978 (2004).
- [92] P. Jayave, H. Tanaka, T. Kita, O. Wada, H. Ebe, M. Sugawara, J. Tatebayashi, Y.

- Arakawa, **Y. Nakata**, T. Akiyama, 「Control of optical polarization anisotropy in edge emitting luminescence of InAs/GaAs self-assembled quantum dots」 Appl. Phys. Lett., **84**, p. 1820 (2004).
- [93] H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, H. Z. Song, T. Miyazawa, **Y. Nakata**, 「Carrier tunneling in asymmetric coupled quantum dots」 Physica-E: Low-Dimensional Systems & Nanostructures, **21**, p. 511 (2004).
- [94] H. Z. Song, **Y. Nakata**, Y. Okada, T. Miyazawa, T. Ohshima, M. Takatsu, M. Kawabe, N. Yokoyama, 「Growth process of quantum dots precisely controlled by an AFM-assisted technique」 Physica E, **21**, p. 625 (2004).
- [95] H. Z. Song, M. Kawabe, Y. Okada, R. Yoshizaki, T. Usuki, **Y. Nakata**, T. Ohshima, N. Yokoyama, 「Scanning tunneling microscope study of capped quantum dots」 Appl. Phys. Lett., **85**, p. 2355 (2004).
- [96] K. Otsubo, N. Hatori, M. Ishida, S. Okumura, T. Akiyama, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, Y. Arakawa, 「Temperature-insensitive eye-opening under 10-Gb/s modulation of 1.3- $\mu\text{m}$  p-doped quantum-dot lasers without current adjustments」 Jpn. J. Appl. Phys., **43**, p. L1124 (2004).
- [97] H. Ebe, A. Uetake, T. Akiyama, K. Kawaguchi, M. Ekawa, A. Kuramata, **Y. Nakata**, M. Sugawara, Y. Arakawa, 「Internal strain of self-assembled  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  quantum dots calculated to realize transverse-magnetic-mode-sensitive interband optical transition at wavelengths of 1.5  $\mu\text{m}$  bands」 Jpn. J. Appl. Phys., **44**, p. 6812 (2005).
- [98] M. Sugawara, N. Hatori, M. Ishida, H. Ebe, Y. Arakawa, T. Akiyama, K. Otsubo, T. Yamamoto, **Y. Nakata**, 「Recent progress in self-assembled quantum-dot optical devices for optical telecommunication: temperature-insensitive 10 Gbs(-1) directly modulated lasers and 40Gbs(-1) signal-regenerative amplifiers」 J. Phys. D: Applied Physics, **38**, p. 2126 (2005).
- [99] P. Jayavel, T. Kita, O. Wada, H. Ebe, M. Sugawara, Y. Arakawa, **Y. Nakata**, T. Akiyama, 「Optical polarization properties of InAs/GaAs quantum dot semiconductor optical amplifier」 Jpn. J. Appl. Phys., **44**, p. 2528 (2005).
- [100] M. Sugawara, N. Hatori, H. Ebe, M. Ishida, Y. Arakawa, T. Akiyama, K. Otsubo, **Y. Nakata**, 「Modeling room-temperature lasing spectra of 1.3- $\mu\text{m}$  self-assembled InAs/GaAs quantum-dot lasers: Homogeneous broadening of optical gain under current injection」 J. Appl. Phys., **97**, p. 43523 (2005).
- [101] T. Kita, T. Mori, H. Seki, M. Matsushita, M. Kikuno, O. Wada, H. Ebe, M. Sugawara, Y. Arakawa, **Y. Nakata**, 「Extended wavelength emission to 1.3  $\mu\text{m}$  in nitrided InAs/GaAs self-assembled quantum dots」 J. Appl. Phys., **97**, p. 24306 (2005).

- [102] H. Z. Song, T. Usuki, S. Hirose, K. Takemoto, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, Y. Sakuma, 「Site-controlled photoluminescence at telecommunication wavelength from InAs/InP quantum dots」 Appl. Phys. Lett., **86**, p. 11311 (2005).
- [103] T. Kita, N. Tamura, O. Wada, M. Sugawara, **Y. Nakata**, H. Ebe, Y. Arakawa, 「Artificial control of optical gain polarization by stacking quantum dot layers」 Appl. Phys. Lett, **88**, p. 211106 (2006).
- [104] H. Z. Song, T. Usuki, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, H. Sasakura, S. Muto, 「Mechanism of quantum dot formation by postgrowth annealing of wetting layer」 Jpn. J. Appl. Phys., **45**, p. 3564 (2006).
- [105] A. Tackeuchi, T. Kuroda, K. Yamaguchi, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, T. Takagahara, 「Spin relaxation and antiferromagnetic coupling in semiconductor quantum dots」 Physica-E Low-Dimensional Systems & Nanostructures, **32**, p. 354 (2006).
- [106] H. Z. Song, T. Usuki, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, H. Sasakura, S. Muto, 「Formation of InAs/GaAs quantum dots from a subcritical InAs wetting layer: a reflection high-energy electron diffraction and theoretical study」 Phys. Rev. B, **73**, p. 11532 (2006).
- [107] D. Guimard, Y. Arakawa, M. Ishida, S. Tsukamoto, M. Nishioka, **Y. Nakata**, H. Sudo, T. Yamamoto, M. Sugawara, 「Ground state lasing at 1.34  $\mu\text{m}$  from InAs/GaAs quantum dots grown by antimony-mediated metal organic chemical vapor deposition」 Appl. Phys. Lett., **90**, p. 241110 (2007).
- [108] M. Ishida, N. Hatori, K. Otsubo, T. Yamamoto, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, Y. Arakawa, 「Low-driving-current temperature-stable 10 Gbit/s operation of p-doped 1.3  $\mu\text{m}$  quantum dot lasers between 20 and 90 degrees C」 Electron. Lett., **43**, p. 219 (2007).
- [109] K. Shiramine, S. Muto, T. Shibayama, N. Sakaguchi, H. Ichinose, T. Kozaki, S. Sato, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Tip artifact in atomic force microscopy observations of InAs quantum dots grown in Stranski-Krastanow mode」 J. Appl. Phys., **101**, p. 33527 (2007).
- [110] M. Ishida, M. Sugawara, T. Yamamoto, N. Hatori, H. Ebe, **Y. Nakata**, Y. Arakawa, 「Theoretical study on high-speed modulation of Fabry-Perot and distributed-feedback quantum-dot lasers: K-factor-limited bandwidth and 10 Gbit/s eye diagrams」 J. Appl. Phys., **101**, p. 13108 (2007).
- [111] D. Guimard, M. Ishida, N. Hatori, **Y. Nakata**, H. Sudo, T. Yamamoto, M. Sugawara, Y. Arakawa, 「CW lasing at 1.35  $\mu\text{m}$  from ten InAs-Sb : GaAs quantum-dot layers grown by metal-organic chemical vapor deposition」 IEEE Photon. Tech. Lett., **20**, p. 827 (2008).
- [112] X. M. Lu, Y. Izumi, M. Koyama, **Y. Nakata**, S. Adachi, S. Muto, 「Effect of growth

conditions on the size and density of self-assembled InAlAs/AlGaAs quantum dots grown on GaAs by molecular beam epitaxy」 J. Cryst. Growth, **322**, p. 6 (2011).

## 2. 論文 (その他)

- [1] A. Tackeuchi, H. Kitada, H. Arimoto, Y. Sugiyama, A. Endoh, **Y. Nakata**, T. Inata, S. Muto, 「Picosecond excitonic absorption recovery of 100 nm GaAs/AlGaAs narrow multiple quantum-well wires」 Appl. Phys. Lett., **59**, p. 1114 (1991).
- [2] A. Tackeuchi, H. Kitada, H. Arimoto, Y. Sugiyama, T. Inata, Y. Yamaguchi, **Y. Nakata**, S. Nakamura, S. Muto, 「Picosecond absorption recovery of 100 nm GaAs/AlGaAs MQW wires」 Surh. Sci., **267**, p. 267 (1992).
- [3] A. Tackeuchi, T. Inata, **Y. Nakata**, S. Nakamura, Y. Sugiyama, S. Muto, 「Picosecond signal recovery in type II tunneling bi-quantum well etalon」 Appl. Phys. Lett., **61**, p. 1892 (1992).
- [4] H. Kitada, H. Arimoto, A. Tackeuchi, Y. Yamaguchi, **Y. Nakata**, A. Endoh, S. Muto, 「Fabrication of sub-100 nm wires and dots in GaAs/AlGaAs multiquantum well using focused ion beam lithography」 Jpn. J. Appl. Phys., **31**, p. L990 (1992).
- [5] A. Tackeuchi, T. Inata, Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Nakamura, S. Muto, 「Fast recovery from excitonic absorption bleaching in type-II GaAs/AlGaAs/AlAs tunneling biquantum well」 Jpn. J. Appl. Phys., **31**, p. L669 (1992).
- [6] Y. Sugiyama, T. Inata, A. Tackeuchi, **Y. Nakata**, S. Nakamura, S. Muto, 「Study of tunneling time in tunneling bi-quantum-well and resonant tunneling barrier structures」 Microwave and Opt. Tech. Lett., **7**, p. 85 (1994).
- [7] T. Ota, M. Stopa, M. Rontani, T. Hatano, K. Yamada, S. Tarucha, H. Z. Song, **Y. Nakata**, T. Miyazawa, T. Ohshima, N. Yokoyama, 「Single-electron transport through an individual InAs SAQD embedded in a graded-dope semiconductor nano-pillar」 Superlattices and Microstructures, **34**, p.159 (2003).
- [8] T. Ota, T. Hatano, S. Tarucha, H. Z. Song, **Y. Nakata**, T. Miyazawa, T. Ohshima, N. Yokoyama, 「Transport properties of a single pair of coupled self-assembled InAs quantum dots」 Physica-E: Low-Dimensional Systems & Nanostructures, **19**, p. 210 (2003).
- [9] T. Ota, K. Ono, M. topa, T, Hatano, S. Tarucha, H. Z. Song, **Y. Nakata**, T. Miyazawa, T. Ohshim, N. Yokoyama, 「Single-dot spectroscopy via elastic single-electron tunneling through a pair of coupled quantum dots」 Phys. Rev. Lett., **93**, p. 66801 (2004).
- [10] T. Ota, T. Hatano, K. Ono, S. Tarucha, H. Z. Song, **Y. Nakata**, T. Miyazawa, T. Ohshima, N. Yokoyama, 「Single electron spectroscopy in a single pair of weakly coupled self-assembled InAs quantum dots」 Physica-E Low-Dimensional Systems &

Nanostructures, **22**, p. 510 (2004).

[11] T. Sato, T. Yamaguchi, W. Izumida, S. Tarucha, H. Z. Song, T. Miyazawa, **Y. Nakata**, T. Ohshima, N. Yokoyama, 「Single-electron transport through an individual InAs SAQD embedded in a graded-dope semiconductor nano-pillar」 Physica-E: Low-Dimensional Systems & Nanostructures, **21**, p. 506 (2004).

[12] T. Ota, M. Rontani, S. Tarucha, **Y. Nakata**, H. Z. Song, T. Miyazawa, T. Usuki, M. Takatsu, N. Yokoyama, 「Few-electron molecular states and their transitions in a single InAs quantum dot molecule」 Phys. Rev. Lett., **95**, p. 236801 (2005).

[13] S. Amaha, T. Hatano, S. Teraoka, A. Shibatomi, S. Tarucha, **Y. Nakata**, T. Miyazawa, T. Oshima, T. Usuki, N. Yokoyama, 「Laterally coupled self-assembled InAs quantum dots embedded in resonant tunnel diode with multigate electrodes」 Appl. Phys. Lett., **92**, p. 202109 (2008).

### 3. 講演 (学位論文関係)

[1] S. Hiyamizu, T. Fujii, S. Muto, T. Inata, **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, S. Sasa, 「MBE growth of InGaAs-InGaAlAs heterostructures for applications to high-speed devices」 Fourth International Conference on Molecular Beam Epitaxy York, UK ; 7-10 Sept. 1986.

[2] S. Muto, T. Inata, Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, T. Fujii, S. Hiyamizu, 「In<sub>0.53</sub>Ga<sub>0.47</sub>As-In<sub>0.52</sub>(Ga<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>)<sub>0.48</sub>As quasi-parabolic (multi-stepped) quantum wells grown by the pulsed molecular beam method」 Fourth International Conference on Solid Films and Surfaces Hamamatsu, Japan ; 23-27 Aug. 1987.

[3] A. Sandhu, **Y. Nakata**, S. Sasa, S. Hiyamizu, 「Negative differential resistance by In<sub>0.53</sub>Ga<sub>0.47</sub>As/In<sub>0.52</sub>Al<sub>0.48</sub>As resonant tunneling barriers grown by MBE」 3rd International Conference on Modulated Semiconductor Structures Montpellier, France ; 6-10 July 1987.

[4] S. Sasa, **Y. Nakata**, T. Fujii, S. Hiyamizu, 「High-field characteristics of two-dimensional electron gas in InGaAs/n-InAlAs heterostructures」 Gallium Arsenide and Related Compounds 1987. Proceedings of the Fourteenth International Symposium Heraklion, Crete, Greece ; 28 Sept.-1 Oct. 1987.

[5] S. Sasa, **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, T. Fujii, E. Miyauchi, 「Electronic properties of two-dimensional electron gas in pseudomorphic In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/N-In<sub>0.52</sub>Al<sub>0.48</sub>As heterostructures」 Molecular Beam Epitaxy 1988. Workbook of the Fifth International Conference. 1988 MBE-V Sapporo Sapporo, Japan ; 28 Aug.-1 Sept. 1988.

[6] Y. Sugiyama, T. Fujii, **Y. Nakata**, S. Muto, E. Miyauchi, 「Conduction-band edge discontinuity of InGaAs/GaAsSb heterostructures lattice-matched to InP grown by

- molecular beam epitaxy」 Molecular Beam Epitaxy 1988. Workbook of the Fifth International Conference. 1988 MBE-V Sapporo Sapporo, Japan ; 28 Aug.-1 Sept. 1988.
- [7] **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, O. Ueda, S. Sasa, T. Fujii, E. Miyauchi, 「Characterization of GaAsSb/InAlAs quantum-well structures lattice-matched to InP grown by molecular beam epitaxy」 Ninth International Conference on Crystal Growth: ICCG -9 Sendai, Japan ; 20-25 Aug. 1989.
- [8] T. Inata, S. Muto, **Y. Nakata**, T. Fujii, 「High peak-to-valley ratios of strain-free InGaAs/AlAsSb resonant tunneling barrier structures grown by MBE」 Gallium Arsenide and Related Compounds 1989. Proceedings of the Sixteenth International Symposium Karuizawa, Japan ; 25-29 Sept. 1989.
- [9] O. Ueda, **Y. Nakata**, T. Nakamura, T. Fujii, 「TEM evaluation of CuAu-I type ordered structures in MBE- grown InGaAs crystals on (110) InP substrates」 Defects in Materials Symposium Boston, MA, USA ; 26-29 Nov. 1990.
- [10] T. Inata, **Y. Nakata**, S. Muto, 「Optical control of GaAsSb/InGaAs staggered resonant tunnelling barrier structures grown by MBE」 Seventh International Conference on Hot Carriers in Semiconductors (HCIS-7) Nara, Japan ; 1-5 July 1991.
- [11] **Y. Nakata**, O. Ueda, T. Fujii, 「Two-dimensional electron gas mobility in InGaAs/N-InAlAs heterostructures with ordered InGaAs grown on (110)-oriented InP substrates by molecular beam epitaxy」 Vapour Growth and Epitaxy 1991. Seventh International Conference Nagoya, Japan ; 14-17 July 1991.
- [12] O. Ueda, **Y. Nakata**, T. Nakamura, T. Fujii, 「TEM investigation of CuAu-I type ordered structures in MBE-grown InGaAs crystals on (110) InP substrates」 Vapour Growth and Epitaxy 1991. Seventh International Conference Nagoya, Japan ; 14-17 July 1991.
- [13] **Y. Nakata**, O. Ueda, T. Inata, S. Nakamura, M. Yamaguchi, S. Sasa, S. Muto, 「(InAs)<sub>1</sub>/(GaAs)<sub>1</sub> laterally modulated monolayer superlattices grown on slightly misoriented (110) InP substrates by molecular beam epitaxy」 Gallium Arsenide and Related Compounds 1992. Proceedings of the Nineteenth International Symposium Karuizawa, Japan ; 28 Sept.-2 Oct. 1992.
- [14] O. Ueda, **Y. Nakata**, S. Muto, 「Transmission electron microscopic study of (InAs)<sub>1</sub>/(GaAs)<sub>1</sub> laterally modulated monolayer superlattice grown on slightly misoriented (110) InP substrates」 Gallium Arsenide and Related Compounds 1992. Proceedings of the Nineteenth International Symposium Karuizawa, Japan ; 28 Sept.-2 Oct. 1992.
- [15] **Y. Nakata**, O. Ueda, A. Tackeuchi, S. Nakamura, S. Muto, 「InGaAs/InAlAs in-plane superlattices grown on slightly misoriented (110) InP substrates by molecular

- beam epitaxy」 Molecular Beam Epitaxy 1994. Eighth International Conference on Molecular Beam Epitaxy Osaka, Japan ; 29 Aug.-2 Sept. 1994.
- [16] O. Ueda, ***Y. Nakata***, A. Takeuchi, S. Nakamura, S. Muto, 「Transmission electron microscopic evaluation of InGaAs/InAlAs in-plane superlattices grown on slightly misoriented (110)InP substrates by molecular beam epitaxy」 Molecular Beam Epitaxy 1994. Eighth International Conference on Molecular Beam Epitaxy Osaka, Japan ; 29 Aug.-2 Sept. 1994.
- [17] O. Ueda, ***Y. Nakata***, S. Muto, 「Generation mechanism of CuAu-I type ordered structures in InGaAs crystals grown on (110) InP substrates by molecular beam epitaxy」 Molecular Beam Epitaxy 1994. Eighth International Conference on Molecular Beam Epitaxy Osaka, Japan ; 29 Aug.-2 Sept. 1994.
- [18] ***Y. Nakata***, 「Growth and characterization of InGaAs/InAlAs in-plane superlattices on (110) InP」 Seventh International Conference on Indium Phosphide and Related Materials Hokkaido, Japan ; 9-13 May 1995.
- [19] O. Ueda, ***Y. Nakata***, S. Muto, 「TEM evaluation of ordered and modulated structures in GaAsSb crystals grown on (110)InP substrates by molecular beam epitaxy」 Seventh International Conference on Indium Phosphide and Related Materials Hokkaido, Japan ; 9-13 May 1995.
- [20] ***Y. Nakata***, O. Ueda, S. Muto, 「Surface step arrangements and configurations during molecular beam epitaxial growth on slightly misoriented (110) InP substrates」 Seventh International Conference on Indium Phosphide and Related Materials Hokkaido, Japan ; 9-13 May 1995.
- [21] O. Ueda, ***Y. Nakata***, S. Muto, 「TEM evaluation of ordered and modulated structures in MBE-grown InAlAs crystals on (110)InP」 18th International Conference on Defects in Semiconductors. ICDS-18 Sendai, Japan ; 23-28 July 1995.
- [22] Y. Sugiyama, ***Y. Nakata***, K. Imamura, S. Muto, N. Yokoyama, 「Stacked InAs self-assembled quantum dots on (001) GaAs grown by molecular beam epitaxy」 1995 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM '95) Osaka, Japan ; 21-24 Aug. 1995.
- [23] N. Horiguchi, T. Futatsugi, ***Y. Nakata***, N. Yokoyama, 「Electron transport properties in InAs self-assembled quantum dot HEMTs」 International Electron Devices Meeting Washington, DC, USA ; 10-13 Dec. 1995.
- [24] ***Y. Nakata***, O. Ueda, Y. Nishikawa, S. Muto, N. Yokoyama, 「InAs/GaAs in-plane strained superlattices grown on slightly misoriented (110) InP substrates by molecular beam epitaxy」 The Ninth International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Malibu, CA, USA ; 5-9 Aug. 1996.

- [25] **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, T. Futatsugi, N. Yokoyama, 「Self-assembled structures of closely stacked InAs islands grown on GaAs by molecular beam epitaxy」 The Ninth International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Malibu, CA, USA ; 5-9 Aug. 1996.
- [26] H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Room temperature lasing at lower-order subband of self-formed InGaAs quantum dot lasers with multi-stacked dot layer」 15th IEEE International Semiconductor Laser Conference Haifa, Israel ; 13-18 Oct. 1996.
- [27] N. Horiguchi, T. Futatsugi, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, 「Dynamic properties of InAs self-assembled quantum dots for spectral hole burning memory application」 International Electron Devices Meeting. San Francisco, CA, USA ; 8-11 Dec. 1996.
- [28] H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Application of narrow emission spectrum (25 meV) closely-stacked structure to quantum dot lasers」 OECC '97, 2nd Optoelectronics and Communications Conference Seoul, South Korea ; 8-11 July 1997.
- [29] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, N. Horiguchi, T. Futatsugi, Y. Awano, N. Yokoyama, 「Observation of spectral hole burning in photocurrent spectrum of InAs self-assembled quantum dots buried in pn-junction」 Eighth International Conference on Modulated Semiconductor Structures. MSS8 Santa Barbara, CA, USA ; 14-18 July 1997.
- [30] H. Ishikawa, H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, M. Sugawara, M. Egawa, N. Otsuka, Y. Sugiyama, T. Futatsugi, N. Yokoyama, 「Self-organized quantum dots and quantum dot lasers」 Eighth Canadian Semiconductor Technology Conference Ottawa, Ont., Canada ; 12-15 Aug. 1997.
- [31] H. Shoji, **Y. Nakata**, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Self-formed In(Ga)As quantum dot lasers」 LEOS '97. 10th Annual Meeting IEEE Lasers and Electro-Optics Society 1997 Annual Meeting San Francisco, CA, USA ; 10-13 Nov. 1997.
- [32] O. Ueda, **Y. Nakata**, S. Muto, 「TEM evaluation of defects in GaAs/InAs 3D-layer/GaAs heterostructures grown by molecular beam epitaxy」 1998 International Conference on Indium Phosphide and Related Materials Tsukuba, Japan ; 11-15 May 1998.
- [33] K. Mukai, **Y. Nakata**, H. Shoji, M. Sugawara, K. Ohtsubo, T. Futatsugi, Y. Sugiyama, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Low threshold CW lasing of closely-stacked self-organized InAs/GaAs quantum dots」 1998 International Conference on Indium Phosphide and Related Materials Tsukuba, Japan ; 11-15 May 1998.

- [34] A. Endoh, **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, M. Takatsu, N. Yokoyama, 「An effect of size fluctuation on photoluminescence peak width of closely stacked InAs self-assembled quantum dot structures」 1998 International Conference on Indium Phosphide and Related Materials Tsukuba, Japan ; 11-15 May 1998.
- [35] N. Horiguchi, T. Futatsugi, **Y. Nakata**, N. Yokoyama, T. Mankad, P. M. Petroff, 「Low threshold and high output power lasing of columnar-shaped self-assembled InAs-GaAs quantum dots」 1998 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM'98) Hiroshima, Japan ; 7-10 Sept. 1998.
- [36] K. Mukai, **Y. Nakata**, H. Shoji, M. Sugawara, K. Ohtsubo, Y. Sugiyama, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Low threshold and high output power lasing of columnar-shaped self-assembled InAs-GaAs quantum dots」 ISLC 1998 NARA. 1998 IEEE 16th International Semiconductor Laser Conference Nara, Japan ; 4-8 Oct. 1998.
- [37] **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, K. Mukai, T. Futatsugi, H. Shoji, M. Sugawara, H. Ishikawa, N. Yokoyama, 「Columnar-shaped InAs/GaAs self-assembled quantum dots grown by molecular beam epitaxy」 International Symposium on Compound Semiconductors Nara, Japan ; 12-16 Oct. 1998.
- [38] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, T. Futatsugi, N. Yokoyama, 「Spectral hole burning of InAs self-assembled quantum dots written by two different lasers」 International Electron Devices Meeting 1998. Technical Digest, San Francisco, CA, USA ; 6-9 Dec. 1998.
- [39] M. Sugawara, K. Mukai, **Y. Nakata**, 「Temperature characteristics of light emission spectra and threshold currents of columnar-shaped self-assembled InGaAs/GaAs quantum-dot lasers」 In-Plane Semiconductor Lasers III San Jose, CA, USA ; 27-29 Jan. 1999.
- [40] K. Mukai, **Y. Nakata**, K. Ohtsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「Low threshold (8 mA) 1.3- $\mu$ m CW lasing of InGaAs/InAs quantum dots at room temperature」 Technical Digest. Summaries of papers presented at the Conference on Lasers and Electro-Optics. Postconference Edition. CLEO '99. Conference on Lasers and Electro-Optics Baltimore, MD, USA ; 23-28 May 1999.
- [41] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, S. Muto, Y. Awano, N. Yokoyama, 「Hole burning spectroscopy of InAs self-assembled quantum dots for memory application」 Ninth International Conference on Modulated Semiconductor Structures. MSS9 Fukuoka, Japan ; 12-16 July 1999.
- [42] M. Sugawara, K. Mukai, **Y. Nakata**, H. Ishikawa, 「Performance of 1.3  $\mu$ m InGaAs/GaAs quantum-dot lasers and their physics」 LEOS 2000. 2000 IEEE Annual Meeting Conference Proceedings Rio Grande, Puerto Rico ; 13-16 Nov. 2000.

- [43] K. Mukai, **Y. Nakata**, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa, 「High characteristic temperature of near 1.3- $\mu$ m InGaAs/GaAs quantum-dot」 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2000). Technical Digest. Postconference Edition. TOPS Vol.39 San Francisco, CA, USA ; 7-12 May 2000.
- [44] M. Sugawara, N. Hatori, T. Akiyama, **Y. Nakata**, H. Ishikawa, 「Carrier dynamics in self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots and their application to optical devices」 CLEO/Pacific Rim 2001. 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics Chiba, Japan ; 15-19 July 2001.
- [45] M. Sugawara, N. Hatori, T. Akiyama, **Y. Nakata**, H. Ishikawa, 「Quantum-dot semiconductor optical amplifiers for high bit-rate signal processing over 40 G」 CLEO/Pacific Rim 2001. 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics Chiba, Japan ; 15-19 July 2001.
- [46] N. Hatori, M. Sugawara, T. Akiyama, **Y. Nakata**, 「Low frequency chirp self-assembled InGaAs/GaAs quantum dot lasers」 LEOS 2001. 14th Annual Meeting of the IEEE Lasers and Electro-Optics Society San Diego, CA, USA ; 12-13 Nov. 2001.
- [47] M. Sugawara, N. Hatori, T. Akiyama, **Y. Nakata**, 「Self-assembled quantum-dot lasers and semiconductor optical amplifiers」 2001 International Conference on Indium Phosphide and Related Materials. 13th IPRM Nara, Japan ; 14-18 May 2001.
- [48] M. Sugawara, N. Hatori, T. Akiyama, **Y. Nakata**, 「Optical gain in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots and its effect on optical devices」 2001 International Conference on Indium Phosphide and Related Materials. 13th IPRM Nara, Japan ; 14-18 May 2001.
- [49] T. Akiyama, H. Kuwatsuka, N. Hatori, **Y. Nakata**, M. Sugawara, 「Symmetric, detuning-insensitive four-wave-mixing wavelength conversion by quantum-dot optical amplifiers」 Opto-Electronics and Communications Conference Yokohama, Japan ; 8-12 July 2002.
- [50] T. Akiyama, N. Hatori, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, 「Wavelength conversion based on ultrafast (< 3 ps) cross-gain modulation in quantum-dot optical amplifiers」 ECOC 2002. 28th European Conference on Optical Communication Copenhagen, Denmark ; 8-12 Sept. 2002.
- [51] N. Hatori, T. Akiyama, H. Kuwatsuka, K. Otsubo, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, 「Design of a wide-range arbitrary wavelength conversion module using four-wave mixing in a quantum dot semiconductor optical amplifier」 2nd International Conference on Semiconductor Quantum Dots Tokyo, Japan ; 30 Sept.-3 Oct. 2002.
- [52] T. Akiyama, N. Hatori, **Y. Nakata**, H. Ebe, M. Sugawara, 「Pattern-effect-free amplification and cross-grain modulation achieved by using ultrafast gain nonlinearity

in quantum-dot semiconductor optical amplifiers」 2nd International Conference on Semiconductor Quantum Dots Tokyo, Japan ; 30 Sept.-3 Oct. 2002.

[53] M. Sugawara, T. Akiyama, N. Hatori, **Y. Nakata**, K. Otsubo, H. Ebe, 「Quantum-dot semiconductor optical amplifiers」 APOC 2002: Asia-Pacific Optical and Wireless Communications. Materials and Devices for Optical and Wireless Communications Shanghai, China ; 15-18 Oct. 2002.

[54] H. Z. Song, **Y. Nakata**, Y. Okada, T. Miyazawa, T. Ohshima, M. Takatsu, M. Kawabe, N. Yokoyama, 「Growth process of quantum dots precisely controlled by an AFM-assisted technique」 11th International Conference on Modulated Semiconductor Structures Nara, Japan ; 14-18 July 2003.

[55] M. Sugawara, T. Akiyama, N. Hatori, M. Ishida, H. Ebe, T. Yamamoto, **Y. Nakata**, Y. Arakawa, 「Recent progress of self-assembled quantum-dot optical devices for optical telecommunication: temperature-insensitive 10 Gb/s directly modulated lasers and 40 Gb/s signal-regenerative amplifiers」 OFCNFOEC 2006. 2006 Optical Fiber Communication Conference and National Fiber Optic Engineers Conference Anaheim, CA, USA ; 5-10 March 2006.

[56] Y. Tanaka, M. Ishida, Y. Maeda, T. Akiyama, T. Yamamoto, H. Song, M. Yamaguchi, **Y. Nakata**, K. Nishi, M. Sugawara, Y. Arakawa, 「High-speed and temperature-insensitive operation in 1.3- $\mu$ m InAs/GaAs high-density quantum dot lasers」 2009 Conference on Optical Fiber Communication - OFC 2009 San Diego, CA, USA ; 22-26 March 2009.

#### 4. 講演 (その他)

[1] A. Tackeuchi, H. Kitada, H. Arimoto, Y. Sugiyama, T. Inata, Y. Yamaguchi, **Y. Nakata**, S. Nakamura, S. Muto, 「Picosecond absorption recovery of 100 nm GaAs/AlGaAs MQW wires」 Fifth International Conference on Modulated Semiconductor Structures. MSS-5 Nara, Japan ; 8-12 July 1991.

[2] Y. Sugiyama, T. Inata, A. Tackeuchi, H. Arimoto, A. Endoh, H. Kitada, **Y. Nakata**, S. Nakamura, S. Muto, 「Time-resolved photoluminescence of MQW narrow wires fabricated with focused ion beam lithography」 Gallium Arsenide and Related Compounds 1992. Proceedings of the Nineteenth International Symposium Karuizawa, Japan ; 28 Sept.-2 Oct. 1992.

[3] A. Tackeuchi, T. Inata, **Y. Nakata**, S. Nakamura, Y. Sugiyama, S. Muto, 「Picosecond signal recovery of type II tunneling bi-quantum-well etalon in all-optical gate operation」 International Symposium Physical Concepts and Materials for Novel Optoelectronic Device Applications II Trieste, Italy ; 24-27 May 1993.

## 5. その他の出版物（査読なし論文および本）

- [1] **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, T. Inata, O. Ueda, S. Sasa, S. Muto, T. Fujii, 「InGaAs/AlAsSb heterostructures lattice-matched to InP grown by molecular beam epitaxy」 Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol. 198, 1990..
- [2] **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, K. Mukai, T. Futatsugi, H. Shoji, M. Sugawara, H. Ishikawa, N. Yokoyama, 「Columnar-shaped InAs/GaAs self-assembled quantum dots grown by molecular beam epitaxy」 Proceedings of International Symposium on Compound Semiconductors Nara, Japan ; 12-16 Oct. 1998.
- [3] K. Mukai, **Y. Nakata**, M. Sugawara, 「Quantum-dot lasers fabricated with self-assembled microcrystals」 FUJITSU SCIENTIFIC & TECHNICAL JOURNAL, Vol. 34, p. 223 (1998).
- [4] Y. Sugiyama, **Y. Nakata**, T. Futatsugi, 「Spectral hole burning memory using InAs self-assembled quantum dots」 FUJITSU SCIENTIFIC & TECHNICAL JOURNAL, Vol. 34, p. 182 (1998).
- [5] M. Sugawara, K. Mukai, H. Ishikawa, K. Otsubo, **Y. Nakata**, 「Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots; The latest news」 SEMICONDUCTORS AND SEMIMETALS, Vol. 60, Academic Press, 525 B STREET, SUITE 1900, SAN DIEGO, CA 92101-4495, SEMICONDUCTORS AND SEMIMETALS, (1999).
- [6] **Y. Nakata**, Y. Sugiyama, M. Sugawara, 「Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots; Chapter 2, Molecular beam epitaxial growth of self-assembled InAs/GaAs quantum dots」 SEMICONDUCTORS AND SEMIMETALS, Vol. 60, Academic Press, 525 B STREET, SUITE 1900, SAN DIEGO, CA 92101-4495, SEMICONDUCTORS AND SEMIMETALS, (1999).
- [7] M. Sugawara, K. Mukai, **Y. Nakata**, 「Progress in semiconductor quantum-dot lasers」 Oyo Buturi, Vol. 69, p. 1305 (2000).
- [8] N. Yokoyama, Y. Awano, M. Sugawara, **Y. Nakata**, T. Ohshima, 「Current status and future prospects of compound semiconductor nanotechnology」 Oyo Buturi, Vol. 71, p. 975 (2002).

## 受賞

- 平成 4 年 9 月 16 日 論文「High Two-Dimensional Electron Gas Mobility Enhanced by Ordering in InGaAs/N-InAlAs Heterostructures Grown on (110)-Oriented InP Substrates by Molecular Beam Epitaxy」により日本応用物理学会から「平成 4 年度応用物理学会賞 B 賞（奨励賞）」を受賞
- 平成 16 年 9 月 1 日 論文「Electron Spin Flip by Antiferromagnetic Coupling between Semiconductor Quantum Dots」により日本応用物理学会から「平成 16 年度応用物理学会論文賞（JJAP 論文賞）」を受賞（共同）
- 平成 20 年 4 月 15 日 光通信用量子ドットレーザの研究成果により、文部科学省から「平成 20 年度文部科学大臣表彰 科学技術賞」を受賞（共同）