

令和 2 年 6 月 2 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06352

研究課題名(和文)窒素デルタドーブによるGaAs基板上InAs量子ドット発光の1.5 μm帯長波長化

研究課題名(英文) Emission wavelength extension to 1.5 micrometer of InAs quantum dots grown on nitrogen-doped GaAs(001) surfaces

研究代表者

海津 利行 (Kaizu, Toshiyuki)

神戸大学・研究基盤センター・助教

研究者番号：00425571

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：GaAs基板上InAs量子ドットの長波長発光を目指し、量子ドット形成前のGaAs下地層への窒素ドーブとGaAsキャップ層埋め込み成長温度変化を組み合わせた量子ドットの発光波長制御手法について研究を行った。窒素ドーブによるGaAs下地層から量子ドット内へのGa混入の抑制にともなうas-grownの量子ドットサイズの減少とIn組成の増大、キャップ温度による埋め込み成長過程の量子ドット縮小の3つの効果が重畳して発光波長が決定されることを明らかにするとともに、従来の試料と比較して、高い発光強度での1.3 μm帯発光を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子ドットの発光波長を決定する主な要因であるas-grownの量子ドットサイズとIn組成、キャップ層埋め込み成長過程の量子ドット縮小についての詳細を明らかにすることによって、波長制御手法を確立するための知見を得るとともに、最適な窒素ドーブ条件とキャップ温度の組み合わせによって得られる高い発光強度を有する1.3 μm帯発光を光情報通信へ利用することによって、光周波数帯域の有効活用につながる。

研究成果の概要(英文)：I studied a method for extending the emission wavelength of InAs quantum dots (QDs) grown on nitrogen-doped GaAs surfaces by varying GaAs capping temperature. It was found that the QD emission wavelength was determined by the superposition of three factors: a decrease in the as-grown QD size and an increase in the In composition induced by the suppression of Ga incorporation from the underlying layer, and QD shrinkage during GaAs capping. By using the optimized nitridation conditions and capping temperature, the nitrogen-doped sample exhibited a 1.3 μm-emission with the intensity higher than that for undoped sample.

研究分野：ナノ構造材料

キーワード：量子ドット 窒素ドーブ キャップ成長温度 長波長発光 発光強度

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

コミュニケーションツールの多様化による光情報通信ネットワークの利用拡大にともなって、伝送の高速化・大容量化が重要である。それを可能にする次世代の光情報通信デバイスとして、量子ドットを用いたレーザダイオードや光増幅器が注目されている。これらのデバイスは、高速変調・応答に加えて温度無依存性、低消費電力などの特性が実証され、光ファイバの伝送損失や分散が小さい波長 1.5 μm 帯、1.3 μm 帯での動作が求められている。GaAs 基板上に作製した InAs 量子ドットは、一般的に 1.0~1.2 μm の発光を示すが、作製条件の最適化や歪緩和キャップ層を導入した量子ドット埋め込み手法によって 1.3 μm 帯発光が達成されている。一方、1.5 μm 帯発光については、InP 基板を用いて達成されているが、InP 基板は GaAs 基板に比べて価格が 2 倍以上高いことから、量子ドットデバイス普及のためにはより安価な GaAs 基板上の量子ドットの長波長発光が望まれており、様々な作製手法の研究が進められている。

2. 研究の目的

本研究では、GaAs 基板上 InAs 量子ドットにおける 1.5 μm 帯発光の実現を目指し、窒素デルタドープを用いた新しい量子ドット作製手法を提案する。従来の GaAs 基板上の InAs 量子ドット形成における発光波長の短波長シフトの主な要因として、GaAs 下地層から量子ドット内への Ga 混入による InGaAs 化および GaAs キャップ層埋め込み過程の In-Ga 相互拡散による量子ドット縮小が報告されており、これらを抑制することが長波長発光を実現するために重要である。これまで我々のグループでは、InAs 量子ドット形成前の GaAs 下地層への窒素デルタドープ、GaAs キャップ層埋め込み成長温度の低下によって、それぞれ下地層からの Ga 混入、埋め込み過程の In-Ga 相互拡散が抑制されることを明らかにし、それぞれの手法で 1.28 μm 発光を達成しており、これらの手法を組み合わせることによって、1.3 μm 帯を超えるさらなる長波長発光の実現を目指す。

3. 研究の方法

高周波(rf)プラズマソースを有する分子線エピタキシ装置を用いた GaAs 基板上への InAs 量子ドット自己形成において、GaAs バッファ層表面へ窒素ドープ(rf パワー 280 W、窒素流量 0.35 ccm)を行った後、その上へ InAs 量子ドット(成長量 2.0 分子層)を基板温度 480°C で自己形成し、GaAs キャップ層埋め込み成長を行った。まず、GaAs バッファ層表面への窒素デルタドープ条件を最適化した。窒素デルタドープによる長波長帯発光試料では、量子ドット形成表面の窒素濃度の局所的な揺らぎによる量子ドットサイズの不均一化ならびに発光に寄与する量子ドット密度の減少によって、従来の GaAs 上 InAs 量子ドットと比べて発光強度が約 2 桁低いことがこれまでに示されている。本研究では、窒素ドープ時の基板温度の検討や窒素供給シーケンスの断続供給の導入による窒素を GaAs 表面に均一にドープする手法を探索し、量子ドットのサイズ均一性および無輻射再結合中心の抑制の効果について考察する。次に、その最適条件で作製した量子ドットにおいて GaAs キャップ層埋め込み成長温度による発光波長などの発光特性の変化をフォトルミネセンス(PL)によって評価し、波長シフトのメカニズムを明らかにする。これらの知見をフィードバックして 1.3 μm 帯を超える長波長発光を実現する作製手法を確立する。

4. 研究成果

(1) 窒素ドープ条件の最適化

図 1 に様々な基板温度で窒素ドープ(窒化時間 200 s)を行った GaAs 上 InAs 量子ドットの室

温 PL スペクトルを示す。基板温度 500 °C 以下での窒素ドーパ試料では、GaAs 層から量子ドット内への Ga 混入の抑制によって、アンドープ試料と比較して、ピーク波長が長波長シフトする一方、スペクトル幅の増大と発光強度の低下が生じ、基板温度による発光特性の差はほとんど見られない。それに対して、基板温度 520 °C では、スペクトル幅が減少し、発光強度が増大していることから、量子ドットサイズの不均一化や無輻射再結合中心の生成の原因となる GaAs 表面における窒素濃度の局所的な揺らぎが抑制される一方で、GaAs 表面への窒素ドーパ量の減少により、アンドープ試料に対するピーク波長の長波長シフトが減少した。

図 2 に基板温度 480 °C の窒素ドーパにおいて、断続供給シーケンス(窒化時間 50 s+中断 120 s)を導入して、100 s、200 s 窒化を行った試料の室温 PL スペクトルを示す。連続供給、断続供給ともに窒化時間を長くすると、量子ドット内への Ga 混入の抑制効果が大きくなり、発光波長が長波長化している。窒化時間 100 s では、連続供給に対する断続供給の発光特性の変化はほとんど見られないが、窒化時間 200 s の断続供給では、連続供給とほぼ同じ長波長シフトを維持して、スペクトル幅の減少と発光強度の増大を達成できることが示された。図 1、図 2 の窒素ドーパ試料における PL ピーク波長と室温の PL 積分強度の関係を図 3 に示す。基板温度 520 °C での窒素ドーパや断続供給などによって、発光強度を維持しながら波長 1210 nm 程度までの発光波長の長波長化が可能であるが、それ以上の長波長シフトは著しい発光強度の低下をとともなうことが明らかになった。

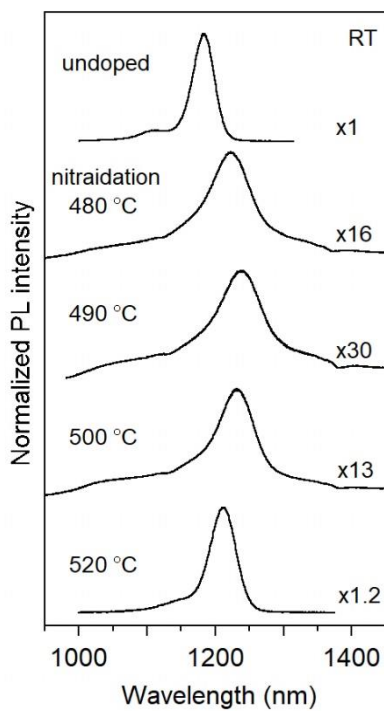


図 1 窒素ドーパ GaAs 上 InAs 量子ドットの室温 PL スペクトルの窒化温度依存性

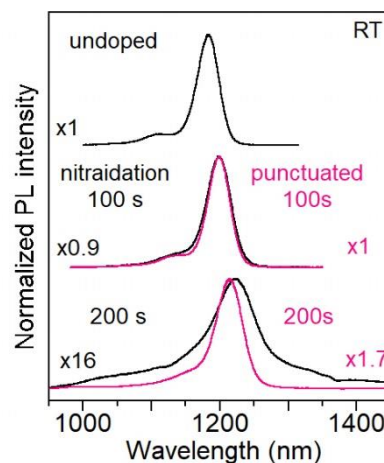


図 2 連続供給、断続供給窒化シーケンスにおける窒素ドーパ GaAs 上 InAs 量子ドットの室温 PL スペクトル

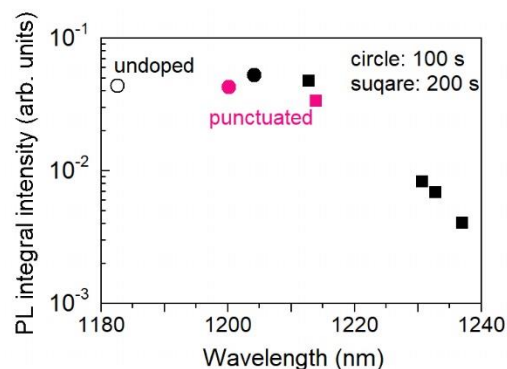


図 3 窒素ドーパ GaAs 上 InAs 量子ドットの PL ピーク波長と PL 積分強度の関係

(2) GaAs キャップ層埋め込み成長温度による窒素ドーブ GaAs 上 InAs 量子ドットの発光波長の変化

(1)の結果をもとに、窒素ドーブ GaAs 上 InAs 量子ドットのさらなる長波長発光に向けて、基板温度 480 °C で 100 s、200 s 窒化を行った試料および基板温度 520 °C で 200 s 窒化を行った試料において、GaAs キャップ層埋め込み成長温度による発光波長の変化について検討した。図 4 に 430 °C、480 °C キャップにおける室温 PL スペクトル、図 5 に(a)それぞれのキャップ温度におけるピーク波長と(b)両者の波長差を示す。すべての窒素ドーブ試料において、アンドープ試料と同様に、430 °C キャップで発光波長が長波長化していることから、キャップ層埋め込み成長過程における量子ドット縮小の抑制が示された。しかし、430 °C キャップでは、480 °C キャップと比較して、窒素ドーブ条件によるピーク波長の変化が小さくなっている。窒素ドーブ量の増加にともなって、GaAs 下地層から量子ドット内への Ga 混入が抑制されるため、キャップ層成長前(as-grown)の量子ドットサイズが減少する一方、量子ドットの In 組成が増大する。埋め込み成長過程における量子ドット縮小は、高いキャップ温度で、as-grown サイズが大きくなるほど顕著になるため、480 °C キャップでは、発光波長は as-grown サイズに依存せず、In 組成によって決定される。一方、430 °C キャップでは、埋め込み成長過程における量子ドット縮小が抑制されるため、as-grown サイズの減少と In 組成の増大の 2 つの効果のトレードオフによって、ピーク波長の変化が小さくなると考えられる。これらの結果、1.3 μm 帯を超える長波長発光の実現には至らなかったが、発光波長制御における 3 つの要素—as-grown サイズ、In 組成、埋め込み過程の量子ドット縮小—の詳細を明らかにするとともに、従来のアンドープ試料と比較して、高い発光強度での 1.3 μm 帯発光を達成した。

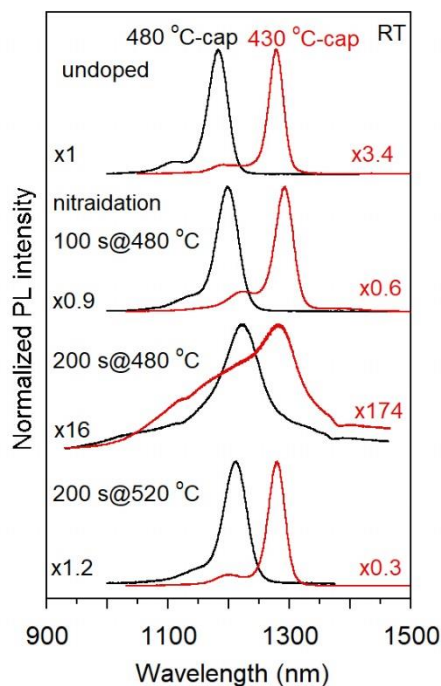


図 4 430 °C、480 °C キャップにおける窒素ドーブ GaAs 上 InAs 量子ドットの室温 PL スペクトル

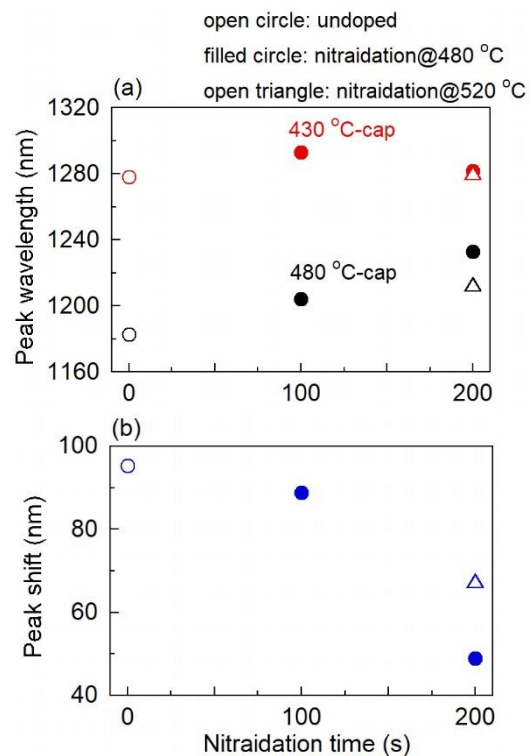


図 5 (a)430 °C、480 °C キャップにおける PL ピーク波長、(b)キャップ温度低下による PL ピーク波長シフト量

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kaizu Toshiyuki, Tajiri Yusuke, Kita Takashi	4. 巻 125
2. 論文標題 Wide-wavelength-range control of photoluminescence polarization in closely stacked InAs/GaAs quantum dots	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 234304 ~ 234304
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5096411	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Asahi Shigeo, Kaizu Toshiyuki, Kita Takashi	4. 巻 9
2. 論文標題 Adiabatic two-step photoexcitation effects in intermediate-band solar cells with quantum dot-in-well structure	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 7859 ~ 7859
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-019-44335-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kaizu Toshiyuki, Kakutani Tomoya, Akahane Kouichi, Kita Takashi	4. 巻 59
2. 論文標題 Polarization-insensitive fiber-to-fiber gain of semiconductor optical amplifier using closely stacked InAs/GaAs quantum dots	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 032002 ~ 032002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ab7060	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Asahi Shigeo, Teranishi Haruyuki, Kasaki Kazuki, Kaizu Toshiyuki, Kita Takashi	4. 巻 8
2. 論文標題 Two-step photon up-conversion solar cells	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 14962 ~ 14962
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/ncomms14962	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Watanabe Sho, Asahi Shigeo, Kada Tomoyuki, Hirao Kazuki, Kaizu Toshiyuki, Harada Yukihiro, Kita Takashi	4. 巻 110
2. 論文標題 Two-step photocurrent generation enhanced by miniband formation in InAs/GaAs quantum dot superlattice intermediate-band solar cells	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 193104 ~ 193104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4983288	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kada T., Asahi S., Kaizu T., Harada Y., Tamaki R., Okada Y., Kita T.	4. 巻 7
2. 論文標題 Efficient two-step photocarrier generation in bias-controlled InAs/GaAs quantum dot superlattice intermediate-band solar cells	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 5865-1 ~ 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-017-05494-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Plantenga R. C., Kortan V. R., Kaizu T., Harada Y., Kita T., Flatte M. E., Koenraad P. M.	4. 巻 96
2. 論文標題 Spatially resolved electronic structure of an isovalent nitrogen center in GaAs	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 155210-1 ~ 8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.96.155210	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Hirao Kazuki, Asahi Shigeo, Kaizu Toshiyuki, Kita Takashi	4. 巻 11
2. 論文標題 Two-step photocurrent generation enhanced by the fundamental-state miniband formation in intermediate-band solar cells using a highly homogeneous InAs/GaAs quantum-dot superlattice	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 012301 ~ 012301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/APEX.11.012301	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計10件(うち招待講演 0件/うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Kaizu Toshiyuki、Kita Takashi
2. 発表標題 One-dimensional electronic states in highly-stacked InAs/GaAs quantum dot superlattices
3. 学会等名 Compound Semiconductor Week 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kaizu Toshiyuki、Kakutani Tomoya、Kita Takashi
2. 発表標題 Polarization-insensitive optical gain of highly stacked InAs/GaAs quantum dot semiconductor optical amplifier
3. 学会等名 SmiconNano2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 海津 利行、角谷 智哉、喜多 隆
2. 発表標題 多重積層InAs/GaAs量子ドット光増幅器の偏波無依存光利得
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Uenishi Naoto、Kaizu Toshiyuki、Kita Takashi
2. 発表標題 Effects of GaAs-capping Temperature on The Emission Wavelength of InAs Quantum Dots Grown on Nitrogen-doped GaAs(001) Surfaces
3. 学会等名 The 20th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kaizu Toshiyuki、Koike Takaaki、Kita Takashi
2. 発表標題 Multiple stacking of capping temperature-controlled InAs/GaAs quantum dots with AlGaAs barrier layers for broadband emission
3. 学会等名 Compound Semiconductor Week 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 海津 利行、上西 奈緒人、喜多 隆
2. 発表標題 GaAsキャップ温度による窒素ドーピングGaAs(001)面上InAs量子ドットの 発光波長への影響
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kaizu Toshiyuki、Tajiri Yusuke、Kita Takashi
2. 発表標題 Broadband control of polarization characteristics in closely-stacked InAs/GaAs quantum dots
3. 学会等名 Compound Semiconductor Week 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kaizu Toshiyuki、Kita Takashi
2. 発表標題 One-dimensional miniband formation in InAs/GaAs Quantum Dot Superlattice
3. 学会等名 International Symposium on Novel Energy Nanomaterials, Catalysts and Surfaces for Future Earth (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 海津 利行、喜多 隆
2. 発表標題 近接積層InAs/GaAs量子ドットの 成長温度による電子状態の変化
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 海津 利行、小池 孝彰、喜多 隆
2. 発表標題 AlGaAs障壁層を挿入した 波長制御InAs/GaAs量子ドットの積層成長
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考