

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 23 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560359

研究課題名(和文)原子平坦GaAs(110)表面形成と表面原子ステップエッジダイナミクスの解明

研究課題名(英文)Formation of atomically flat GaAs(110) surfaces and step-edge dynamics of surface adatoms

研究代表者

吉田 正裕 (YOSHITA, Masahiro)

東京大学・物性研究所・研究員

研究者番号：30292759

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円、(間接経費) 1,230,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、成長中断アニール法を用いた原子平坦GaAs(110)表面の形成とその物理メカニズム解明を試みた。へき開GaAs(110)面に結晶成長し、その表面で成長中断アニールを行ったところ、特徴的な形状の原子ステップエッジをもつ原子平坦表面が形成された。その形状は導入する膜厚分布の結晶方位に強く依存しており、平坦化にはGaAs(110)表面での表面原子マイグレーションポテンシャルの異方性が大きく関与していることを示唆している。

また、成長中断アニール法により形成された原子平坦ヘテロ界面を有するGaAs(110)量子井戸の光学特性(発光、吸収)を定量計測するための導波路透過吸収計測系を構築した。

研究成果の概要(英文)：In this work, I investigated formation mechanisms of atomically flat surfaces on GaAs(110) by growth-interruption annealing. I performed growth-interrupt anneal on the epitaxial surfaces grown, by molecular-beam epitaxy, on the cleaved (110) edges of GaAs(001) wafers. After annealing, atomically flat surfaces accompanied with characteristic-shaped monatomic-layer step edges, which depend on the crystallographic direction of the introduced thickness distribution of the epitaxial layers, were formed. The results imply that the flat-surface formation during annealing is largely influenced by crystallographic anisotropy of migration potential of adatoms on GaAs(110).

In addition, I developed a waveguide-transmission spectroscopy method to be used for quantitative characterization of optical properties (emission, absorption, etc.) of the GaAs(110) quantum wells with atomically flat hetero-interfaces formed by the growth-interrupt annealing technique, has been developed.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：結晶工学 表面・界面物性 半導体材料 GaAs(110)面 原子平坦表面 量子井戸 量子細線

1. 研究開始当初の背景

半導体低次元構造（量子井戸、量子細線、量子ドットなど）を用いた量子ナノデバイスはその新奇性・高機能性が期待されており、その実現を目指した研究・開発が精力的に行われている。本研究代表者らは、T型量子細線と呼ばれる量子細線を半導体レーザー活性層に用いた量子細線レーザーについてその高品質化とレーザー発振の実現を試みてきている。T型量子細線は、分子線エピタキシー(MBE)装置を用い、GaAs(001)面上に第1成長としてSTEM量子井戸を結晶成長し、そのへき開(110)面上に、第2成長としてアーム量子井戸をMBE再成長することで作製される。しかし、このT型量子細線作製には、(110)面上で平坦性の良い結晶成長表面・界面を得るのが難しいという問題があった。

研究代表者らは、このGaAs(110)面の表面平坦化法として、“成長中断アニール法”を開発した。通常GaAs(110)面上へのMBE成長では、低い基板温度（～500℃）と高ヒ素圧が必要とされる。しかし、このような条件下では表面原子のマイグレーション距離は短く、表面平坦化の観点からは好ましくない。“成長中断アニール法”では、この困難を克服するためにMBE成長後に基板温度を600℃以上に上げ、数分間の成長中断を行う。基板温度を上げることで、表面原子のマイグレーションを促進し、表面平坦化を進める。この手法をT型量子細線作製に適用することで、従来よりも約1桁細い1.5meV以下の低温フォトルミネッセンス発光線幅を実現し、さらに、量子極限単一量子細線の光励起によるレーザー発振、T型量子細線20本からなる電流注入量子細線レーザーを実現してきた。

これまでは高品質量子細線の作製とそのレーザー発振の実現に注力して研究を推進してきた。しかし、成長中断アニール法におけるGaAs(110)表面での表面平坦化メカニズムの詳細やその物理機構を踏まえた成長中断アニール条件の最適化に関してはいまだ未解明のまま残されている。

2. 研究の目的

本研究では、このGaAs(110)面における原子平坦表面・ヘテロ界面制御技術の開発とその表面平坦化過程における物理メカニズムの解明を目的とする。GaAs(110)表面平坦化には、前述した成長中断アニール法を適用し、そのアニール条件の最適化を目指す。

具体的には、成長中断アニールで形成される特徴的な形状の原子ステップエッジやテラス構造を構造計測及び光学計測により調べ、熱力学の観点から表面平坦化を担う原子ステップエッジダイナミクスを解明する。

3. 研究の方法

(1) GaAs(110)表面の平坦化として、まず、(001)基板のへき開で形成されるへき開(110)面を用い、その面上へのMBE結晶成長と成長中断in-situアニール法による表面平坦化を試みた。(110)面は表面原子配列が異方的であり、それを反映して表面原子のマイグレーションも異方的となる。そこで、GaAs MBE結晶成長の際に、特定の結晶軸方向に膜厚分布を導入する。成長中断アニールで形成される原子ステップエッジの形状やテラスサイズを観測し、アニール条件依存性や導入した膜厚分布の結晶方位依存性から、この面における平坦化メカニズムの解明を試みる。

ここでのへき開(110)面へのMBE結晶成長とそれに引き続く成長中断アニールは、海外研究協力者に作製いただいた。

(2) (1)で得られた結果を基に、応用上より有用となるGaAs(110)基板上へのMBE結晶成長と成長中断アニール法による表面平坦化を試みた。ここでのMBE結晶成長は研究代表者が所属する研究室所有のMBE装置を使用し、研究協力者との協力のもと進めた。

(3) 結晶成長・成長中断アニールにより形成された表面原子ステップエッジの構造評価には原子間力顕微鏡(AFM)を使用し、その表面構造(ステップエッジ方位など)や表面ラフネスの大きさを定量的に評価した。

(4) 原子平坦ヘテロ界面を有する量子井戸構造を作製し、光学計測(発光、吸収)による原子平坦ヘテロ界面の評価を進める。この光学計測を進める上で必要となる有用な顕微吸収測定法を開発する。また、その吸収強度標準について検討を行う。

4. 研究成果

(1) へき開(110)面での成長中断アニールによる表面平坦化

へき開(110)面上へのMBE結晶成長とそれに続いて成長中断アニール法を実施した。MBE結晶成長時に基板回転を行わないことで、所望の結晶軸方位に膜厚空間分布を導入した。

図1に[1-10]方向に膜厚空間分布を導入した(110)結晶成長表面の成長中断アニール後の表面AFM像を示す(以下、膜厚が減少する方向を膜厚空間分布方向とする)。結晶成長膜厚は100nm、導入した膜厚分布は5原子層/mmである。成長中断アニールは、基板温度650℃にて10分間行っている。

GaAs(110)表面はその原子配列(挿入図)からも明らかなように直交する2つの結晶軸方向[001]方向と[1-10]方向とで原子配列に異方性がある。この原子配列の異方性を反映したステップエッジが形成されていることがわ

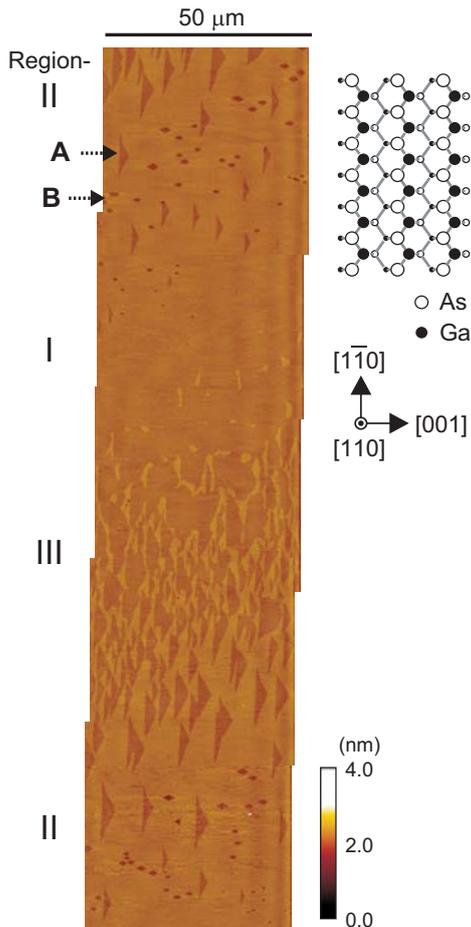


図1. へき開(110)面に結晶成長した 100nm厚 GaAs(110)層の成長中断アニール表面のAFM像. 膜厚空間分布は $[1-10]$ 方向に比率5ML/mmで導入されている.

かる。例えば、図中“**A**”で示す1原子層深さの三角形のピット構造は、この異方性を反映した特徴的な形状のステップエッジで構成されている。この結果は、成長中断アニール時の表面平坦化には、表面原子マイグレーションポテンシャルの異方性が反映していることを示唆している。

図1では比率5原子層/mmで膜厚空間分布が導入されており、これに対応するように表面構造も200 μm の周期で観測されている。一方、図1のRegion Iでは、約20 μm に亘り原子平坦領域が形成できている。ここから、成長中断アニール時の表面原子マイグレーション距離は約20 μm であると推測できる。この値は、膜厚分布周期200 μm に比べるとかなり小さい。もし表面原子のマイグレーション距離が十分大きければ、その範囲内にあるステップエッジと十分相互作用し、原子平坦領域が形成されると考えられる。しかし、今回の条件下では、マイグレーション距離が小さいため、その範囲内の局所領域では平衡となり、原子平坦表面が形成されるものの、試料表面全体で

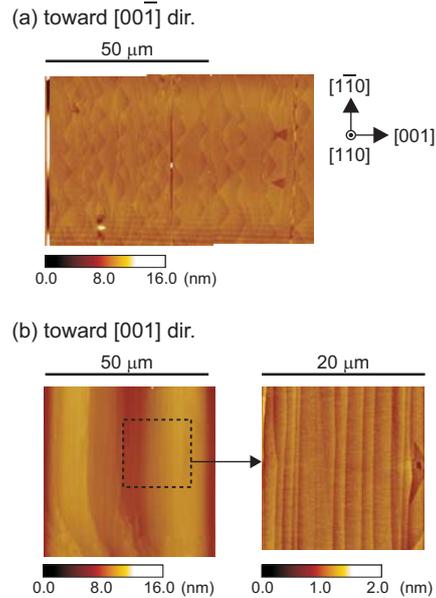


図2. 不完全へき開により偶発的に形成された多重へき開傷領域での成長中断アニール表面. 膜厚分布方向は、(a) $[00-1]$ 、(b) $[001]$ 方向.

は非平衡状態であると考えられる。そのため、そのアニール表面は図1のように局所的には表面被覆率に応じた表面構造が形成され、それが周期的に現れると考えられる。

逆に、導入する膜厚空間分布周期が表面原子のマイグレーション長よりも十分小さい場合には、ステップエッジ間での表面原子との相互作用が十分行われ、結晶軸方位に依存した安定化した特徴的なステップエッジのみからなる原子平坦表面の形成が期待できる。

図2にこのような条件に対応する表面での成長中断アニール後の表面AFM像を示す。ここでは、不完全へき開によって偶発的に導入された短周期の多段へき開傷領域を観察している。それぞれ(a) $[00-1]$ 方向、(b) $[001]$ 方向に膜厚空間分布が導入されていることに対応している。(110)面の原子配列とその安定性を反映し、(a)では三角形の波打ったステップエッジが、(b)では直線的なステップエッジが形成されている。テラス間隔がマイグレーション距離よりも小さい場合、上で期待したほぼ同一のステップエッジが並ぶ原子層テラスが形成されることが確認できた。特に(b)では、直線ステップエッジが1~2 μm 間隔でほぼ等間隔に並んでいる。このような原子平坦テラスを膜厚制御により形成できるようになれば、このような原子平坦(110)表面の応用範囲が広がる。

(2) GaAs(110)基板上へのMBE結晶成長とその表面平坦化

(1)で得られた知見を基に、GaAs(110)基板上へのMBE成長とその結晶成長表面での成長中断アニールを試みた。

GaAs MBE 成長では、通常、結晶成長前に表面酸化膜除去プロセスを行う（なお、(1)で行った MBE チャンバー中でのへき開表面ではこのプロセスは必要ない）。GaAs(110) 基板に表面酸化膜除去プロセスを行ったところ、多数 (>10 個/ μm^2) の面内方向数十 nm、深さ約 10nm サイズのピット構造がその表面に形成されてしまうことがわかった(図 3 (a))。 (110) 面では MBE 成長条件の許容範囲は狭く、このようなラフネスの大きな表面に結晶成長を行うと、数 μm サイズのファセット構造が形成されてしまい、成長中断アニール法による平坦化効果を活用できないという問題に直面した。

そこで、(110) 基板表面の酸化膜除去プロセスの改善をまず行うことにした。酸化膜除去に伴う表面ピット構造形成を抑える方法として、酸化膜除去前に金属 Ga を数原子層堆積させる方法を試みた[1-3]。図 3 (b)は 9 原子層の Ga を堆積した後に酸化膜除去を行った表面の AFM 像である。(a)で観測された深いピット構造はほとんど形成されず、代わりに原子層ステップが明瞭に観測できている。ピット構造の無い平坦性の高い酸化膜除去後表面を形成できるようになった。

今回、本研究期間中にどうにか平坦性の高い酸化膜除去後表面を形成できるようになり、(110) 基板に GaAs(110) 層を MBE 成長するところまで達成することができた。しかし、残念ながら成長中断アニール実験を実施するまで

には至らなかった。上述したように、すでに成長中断アニール実験の準備は整えられており、今後も引き続き、成長中断アニールによる原子平坦表面形成実験を実施し、原子平坦界面からなる量子構造の作製とその光学特性評価を進めていく。

(3) 量子井戸構造の顕微吸収測定法の開発

顕微吸収測定法として、半導体ナノ構造を光導波路内に配した試料を用いる導波路透過吸収測定法を新たに開発した。この測定法では、導波路内のナノ構造を局所励起し、その発光をプローブ光として導波路端面から放出される発光スペクトルを観測する。励起位置を変えた測定を行い、その強度を解析することで吸収スペクトルを算出する。図 4 に試料に T 型量子細線を用いた場合の測定結果を示す。量子細線中の 1 次元励起子吸収スペクトルを広い温度範囲 (4K~室温) で観測することに成功した。また、GaAs(001) 量子井戸試料にも適用し、2次元励起子吸収スペクトルの定量計測にも成功している。今後、成長中断アニール法で形成されたヘテロ界面を有する GaAs(110) 量子井戸の吸収測定へと適用する。

(4) 吸収強度の絶対定量標準の開発

量子井戸における 2 次元励起子の連続状態の光吸収量を定量的に評価し、吸収強度標準としての可能性について考察した。

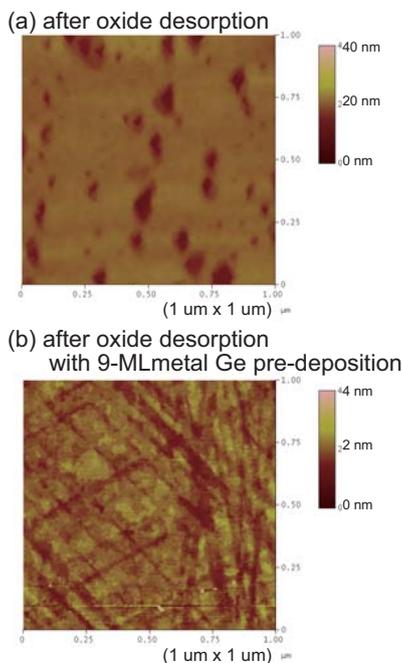


図 3. GaAs(110)酸化膜除去後表面 AFM 像 (a) 通常の酸化膜除去方法の場合 (b) 9-ML 金属 Ga をプレ堆積した場合

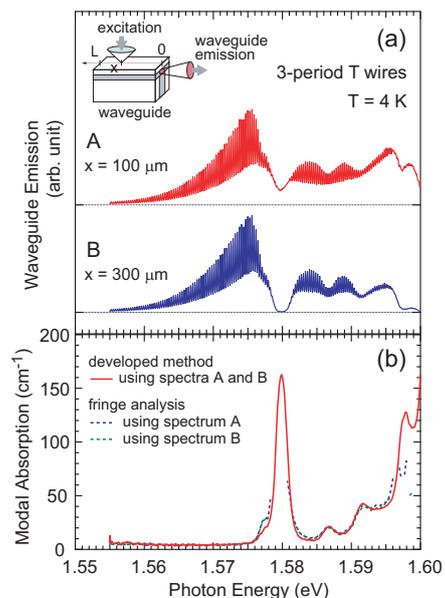


図 4. T 型量子細線の (a) 点励起時の導波路端面発光スペクトルと (b) スペクトル解析による 1 次元励起子吸収スペクトル (T=4K)

表 1. 単一量子井戸連続吸収端での吸光度.
FE は自由電子計算の場合 (発表論文②)

QW orientation	GaAs (001)	GaAs (110)	InP (001)
$\alpha(E_g)L$ (FE)	0.0041	0.0037 ^a , 0.0043 ^b	0.0038
$\alpha(E_g)L$ (ideal 2D)	0.0082	0.0074 ^a , 0.0085 ^b	0.0076
$\alpha(E_g)L$ ($E_b = 3.5E_b^{3d}$)	0.0070	0.0062 ^a , 0.0072 ^b	0.0065
$\alpha(E_g)L$ ($E_b = 3.0E_b^{3d}$)	0.0063	0.0057 ^a , 0.0066 ^b	0.0059
$\alpha(E_g)L$ ($E_b = 2.5E_b^{3d}$)	0.0059	0.0053 ^a , 0.0061 ^b	0.0055

^aFor light with its polarization along the [001] direction

^bAlong the $[\bar{1}10]$ direction.

2次元電子系における量子ホール抵抗やグラフェン光吸収では、その抵抗値や光吸収量が普遍定数である微細構造定数 α_f で与えられる。今回、半導体量子井戸の2次元励起子連続状態の光吸収においても、同様の関係性が成り立つことを理論考察と数値計算により明らかにした。

表 1 に GaAs(001), (110) 及び、InP(001) 量子井戸における連続吸収バンド端での吸光度の計算結果をまとめて示す。グラフェン光吸収の場合と同様に、量子井戸中の2次元電子正孔系の吸光度も概ね、 $\pi \alpha_f / n_b$ (ここで、 n_b は背景屈折率) で決定される。しかし、バンドミキシング効果と励起子クーロン相互作用効果によりわずかに補正する必要がある。例えば、GaAs(001) 量子井戸では、励起子束縛エネルギーの大きさ (または、量子井戸厚み) に依存し、その吸光度は量子井戸一層あたり 0.6~0.8% と見積もられた。同様に、GaAs(110) 量子井戸についても計算した。(110) 面では面内異方性があるため、入射光の偏光方向に応じてその値が異なる。今後、成長中絶アニールによる原子平坦ヘテロ界面を有する(110) 量子井戸の絶対定量吸収計測へ適用していく。

参考文献[1] Y. Asaoka, J. Cryst. Growth 251, 40 (2003). [2] J. h. Lee et al, Appl. Phys. Lett. 88, 252108 (2006). [3] J.-Q. Liu et al. Adv. Mat. Res. 341-342, 138 (2012).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 1 件)

① Toshimitsu Mochizuki, Changsu Kim, Masahiro Yoshita, Takahiro Nakamura, Hidefumi Akiyama, Loren N. Pfeiffer, Ken W. West, Mode Imaging and Loss Evaluation of Semiconductor Waveguides, Rev. Sci. Instrum. 85, 053109 (2014)
DOI:10.1063/1.4879335 (査読有)

② Masahiro Yoshita, Kenji Kamide, Hidekatsu Suzuura, and Hidefumi Akiyama, Applicability of continuum absorption in semiconductor quantum wells to absolute absorption-strength standards, Appl. Phys. Lett. 101, 032108 (2012).
DOI:10.1063/1.4737900 (査読有)

③ Toshimitsu Mochizuki, Masahiro Yoshita, Shun Maruyama, Changsu Kim, Keisuke Fukuda, Hidefumi Akiyama, Loren N. Pfeiffer, Ken W. West, Waveguide two-point differential-excitation method for quantitative absorption measurements of nanostructures, Jpn. J. Appl. Phys. 51, 106601 (2012).
DOI:10.1143/JJAP.51.106601 (査読有)

④ Masahiro Yoshita, Takayuki Okada, Hidefumi Akiyama, Makoto Okano, Toshiyuki Ihara, Loren N. Pfeiffer, and Ken W. West, Quantitative absorption spectra of quantum wires measured by analysis of attenuated internal emissions Appl. Phys. Lett. 100, 112101 (2012).
DOI:10.1063/1.3693401 (査読有)

[学会発表] (計 3 7 件)

① 鈴浦秀勝ほか, 2次元系のバンド間遷移による普遍的吸収係数, 日本物理学会 2013 年秋季大会(徳島大学 2013/9/28) 28aDB-5

② 福田圭介ほか, 励起子 Mott クロスオーバー領域における単一量子細線の高精度利得吸収スペクトル測定, 日本物理学会第 67 回 年次大会(関西学院大学 2012/3/27) 27aBL-11

③ 望月敏光ほか, GaAs 単一量子井戸の吸収スペクトルの定量計測, 日本物理学会 2011 年秋季大会(富山大学 2011/09/24) 24aRB-2

④ Shaoqiang Chen et al., Absolute strength of 1D exciton transitions in cleaved-edge-overgrown GaAs quantum wires, The 15th International Conference on Modulated Semiconductor structures (MSS-15) (Tallahassee, Florida, USA, July 27, 2011) We-P-83.

⑤ M. Yoshita et al., Microscopic study on carrier-density-dependent gain characteristics in cleaved-edge overgrown T-shaped quantum-wire lasers, The 15th International Conference on Modulated Semiconductor structures (MSS-15)

(Tallahassee, Florida, USA, July 27, 2011)
We-P-99.

⑥ Changsu Kim et al., Room Temperature Waveguide Mode Evaluation of the Semiconductor Quantum Well Laser by the Point Excitation Haki-Paoli Method, The Korean Physical Society (KPS-87) (Daejeon, South Korea, April 13-15, 2011) Ep-I-036.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉田 正裕 (YOSHITA, Masahiro)
東京大学・物性研究所・研究員
研究者番号：30292759

(2) 研究協力者

秋山 英文 (AKIYAMA, Hidefumi)
東京大学・物性研究所・准教授
研究者番号：40251491

金 昌秀 (KIM, Changsu)
東京大学・物性研究所・研究員

ローレン・ファイファー
(PFEIFFER, Loren)
Princeton University,
Electrical Engineering,
Senior Research Scholar