

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 1 日現在

機関番号：16101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13956

研究課題名(和文)高指数面基板上的副格子交換エピタキシーによる半導体多層膜結合共振器の研究

研究課題名(英文)Sublattice reversal epitaxy on high-index substrates for semiconductor coupled multilayer cavity

研究代表者

北田 貴弘 (Kitada, Takahiro)

徳島大学・大学院理工学研究部(連携)・特任教授

研究者番号：90283738

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：代表的なIII-V族化合物半導体であるガリウムヒ素薄膜の高指数(113)B面基板上へのエピタキシャル成長において、IV族元素であるゲルマニウムを中間層として挿入することにより、その上下で副格子の配列を交換して成長する副格子交換エピタキシーを実現した。この技術を利用することで、上下の共振器層で二次非線形感受率の符号が異なる分極反転型の半導体多層膜結合共振器をエピタキシャル成長だけで高品質に作製できることも実証した。未開拓周波数領域の電磁波であるテラヘルツ波を簡易に発生する新奇発光素子を実現させるうえで重要となる作製技術の開発に成功した。

研究成果の概要(英文)：Sublattice reversal in III-V compound semiconductors was successfully demonstrated by GaAs/Ge/GaAs system grown on high-index (113)B GaAs substrates by molecular beam epitaxy. A thin layer of Ge was introduced as a group IV material to realize sublattice reversal epitaxy of GaAs on the (113)B substrate. Using the sublattice reversal by the GaAs/Ge/GaAs on (113)B, we also successfully grew a unique coupled cavity structure comprising of two GaAs cavity layers and three GaAs/AlAs distributed Bragg reflector multilayers, in which the second-order nonlinear susceptibility of the top side cavity is inverted from that of the bottom side cavity. Novel terahertz emitting devices with good performance are expected by the inverted coupled cavity structure based on the sublattice reversal technology on high-index substrates.

研究分野：半導体工学、結晶工学、光エレクトロニクス

キーワード：電子・電気材料 薄膜・量子構造 半導体非線形光学材料 微小光共振器 テラヘルツ波発生

### 1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ電磁波を利用した分光分析、イメージング、無線通信等は環境、医療、安全、情報通信等様々な分野で期待されている。その普及には、小型で高性能の光源素子が必須である。量子カスケードレーザや共鳴トンネルダイオードは、半導体技術を活用した代表的な光源素子であるが、各々は、室温動作が困難、高周波化には限界があるといった問題を抱える。

我々は、化合物半導体多層膜で構成する結合共振器を利用した新しいタイプの面型テラヘルツ波発生素子を提案した。2つの微小光共振器をブラッグ反射多層膜 (DBR 膜) で結合した GaAs/AlAs 結合共振器には、2つの共振器モードが形成される。モード周波数差は数テラヘルツの領域にあり、結合する DBR 膜の積層数で制御できる。本構造を高指数面基板上で作製すると、二次非線形光学効果で生じる差周波発生によりテラヘルツ波を得ることが可能になる。2つのモード光の内部電場強度が著しく増強されるため、2つの共振器層には巨大な非線形分極が生じる。その分極方向は、非線形感受率が同じである場合には互いに逆向きとなる。2つの共振器層間の距離はテラヘルツ波の半波長よりも短いため、発生したテラヘルツ波の打ち消し合いが顕著になってしまう。結合する DBR 膜の中央を境として感受率の符号を逆向きにすることができれば、取り出し効率を1桁以上高めることができると予測される。符号を逆向きにするには、結晶構造を空間反転しなければならない。実現する手法の一つとして、エピウエハの直接接合がある。しかし、2枚のエピウエハを個別に用意するため、2つの共振器の等価性を確保する (2つのエピウエハで各層の厚さを厳密に一致させる) ことが難しい。等価でない場合には2つの共振器の結合が弱く、テラヘルツ波の発生効率が著しく劣化する。また、ウエハ接合で形成した結合共振器を素子化する場合、片方の基板を機械研磨と選択エッチングによって完全に除去するといった工程も必要になる。

### 2. 研究の目的

閃亜鉛鉱型の結晶構造をとる GaAs 系へテロ薄膜のエピタキシャル成長の途中で、結晶構造を空間反転させる技術を高指数面 GaAs 基板上で実現する。IV 族元素である Ge を中間層として挿入し、その上下で副格子の配列を交換する手法を用いる。この手法は、副格子交換エピタキシーと呼ばれ、(001)や(111)といった低指数面基板上の GaAs 薄膜で実績がある。(1)高指数面上の GaAs/Ge/GaAs 構造による副格子交換エピタキシー技術を確立し、(2)上下の共振器層で二次非線形感受率の符号が異なる分極反転型の GaAs/AlAs 結合共振器薄膜をエピタキシャル成長のみで形成することを目的とした。

### 3. 研究の方法

(1) 閃亜鉛鉱型の半導体薄膜を使い、垂直入射の条件で二次非線形光学効果を利用するには、反転対称性の破れた方位の基板結晶でなければならない。非線形分極の大きさはその結晶方位に強く依存し、(113)面は高品質の GaAs/AlAs エピタキシャル薄膜を得やすく、分極も比較的大きい。本研究では、(113)面をターゲットとして選んだ。IV 族元素の Ge を使って GaAs の副格子の配列を交換するには、まず、As (または Ga) で表面を終端し、次に偶数層の Ge を堆積する。その後、終端した原子と同じ As (または Ga) の結晶面から始まるようにして GaAs の成長を行うと実現できる。図 1 は、(113)B 基板上で2層の Ge の堆積により理想的に副格子の配列が交換した場合の模式図である。現有の固体ソース分子線エピタキシー (MBE) 装置に蒸発源として高純度の Ge を導入し、GaAs/Ge/GaAs 構造を成長した。反射高速電子線回折によるその場観察で成長時の表面再構成をモニターすることで、副格子の配列交換が行われているかどうかを推定した。成長後、フォトリソグラフィによりパターンニングし、硫酸系の異方性エッチャントを使ってメサ形状に加工した。メサ断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察することで、副格子の配列交換を検証した。また、GaAs/Ge/GaAs 界面の走査透過型電子顕微鏡 (STEM) 観察を行ってその結晶品質を評価するとともに、特性 x 線検出による超高分解能元素マップにより副格子の配列交換を原子スケールでも検証した。

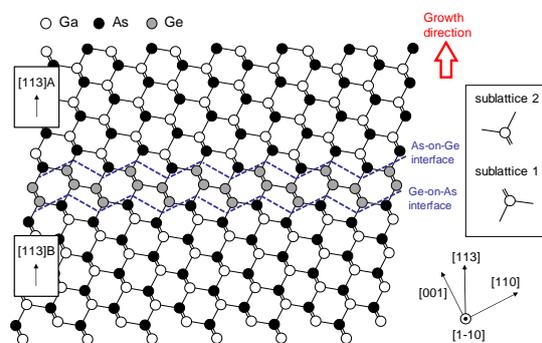


図 1. (113)B 基板上の GaAs/Ge/GaAs による理想的な副格子交換エピタキシーの模式図

(2) 確立した副格子交換エピタキシー技術を用いて、分極反転型の結合共振器薄膜を作製した。3つの DBR 膜は GaAs と AlAs で構成し、共振器層はともに厚さが半波長の GaAs で、波長 1.5  $\mu\text{m}$  近傍に2つの共振器モードが現れる構造とした。副格子の配列を交換するための Ge は、2つの共振器を結合する DBR 膜の中央に位置する GaAs 層に挿入した。試料の断面 SEM 観察により構造的品質を評価した。垂直入射の条件で光学反射率のスペクトル計測を行い、その実験結果を伝達マトリックス法で得られるシミュレーション結果と比較することで光学的品質を評価した。

#### 4. 研究成果

(1) MBE 法で成長した GaAs/Ge/GaAs 構造及びその成長シーケンスを図 2 に示す。バッファ層として GaAs 500 nm を基板温度 600°C で成長した後、As シャッターを閉じて温度を 450°C に下げてから Ge 3 nm または 7 nm を成長した。Ge 成長後、As シャッターを開けて基板温度を 600°C に戻して GaAs 800 nm を成長した。GaAs 及び Ge の成長速度は各々  $\sim 1 \mu\text{m/h}$ ,  $\sim 0.03 \mu\text{m/h}$  で、GaAs 成長時の  $\text{As}_4$  分子線圧は  $\sim 1 \times 10^{-5}$  Torr である。

(113)B 基板上の GaAs/Ge(3 nm)/GaAs 構造について、異方性エッチャントを使ってメサ形状に加工した断面の SEM 像を図 3 に示す。参照としてエピ膜のない (113)A 基板及び (113)B 基板をメサ加工した場合の断面図も示している。図はすべて [33-2] 方向に沿ったストライプパターンについてその断面を観察したものである。硫酸系の異方性エッチャントで GaAs 層をエッチングしているが、このエッチャントでは Ge 層がエッチングされない。Ge 層をアンモニア系のエッチャントで除去した後、再度、硫酸系の異方性エッチャントで基板側の GaAs もエッチングした。図 3 をみると、Ge 層より下では、参照の (113)B 基板の結果と同じく順メサの構造がみられるのに対して、Ge 層より上では (113)A 基板と同じ逆メサの構造がみられている。Ge の挿入により副格子の配列交換が実現できていることを示している。(113)B GaAs 基板上では、Ge 層の厚さが 3 nm の試料だけでなく、7 nm の場合にも全く同様の結果が得られた。一方、(113)A GaAs 基板上に同じ構造を同じシーケンスで成長した場合、Ge 層の上下でともに逆メサの形状であった。(113)A 基板の場合、本成長シーケンスでは Ge 層による副格子の配列交換が起こらないこともわかった。

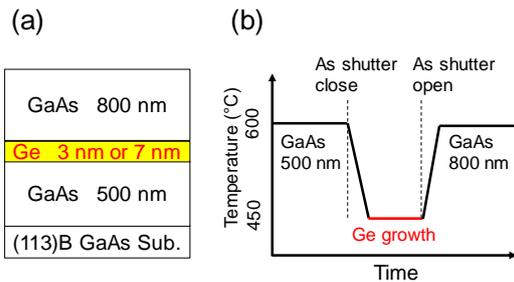


図 2. (a) 成長した GaAs/Ge/GaAs 構造及び (b) その成長シーケンス

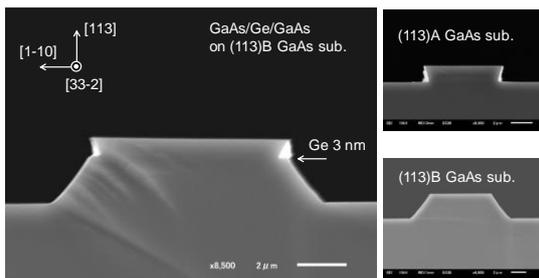


図 3. (113)B 基板上の GaAs/Ge(3 nm)/GaAs 構造の異方性エッチングによるメサ形状

(113)B 基板上に成長した GaAs/Ge/GaAs 構造の断面 STEM 像(明視野像)を図 4 に示す。界面近傍で欠陥等もみられず、比較的良好なヘテロ界面が形成されている。図 5 は、原子分解能 EDX(エネルギー分散型 x 線分析)による GaAs/Ge/GaAs 界面近傍における元素マップである。Ge 層を境として、Ga 原子と As 原子の配列が入れ替わっていることを明瞭に確認できる。Ge 成長後の実際のステップ構造を考えると、その後の GaAs の成長初期にはアンチフェーズドメイン (APD) が生じていると思われる。APD が As-As 界面によって自己消滅することでウエハ全面にわたって副格子の配列交換が実現できていると考えられるが、メカニズムの詳細については今後の検討課題である。

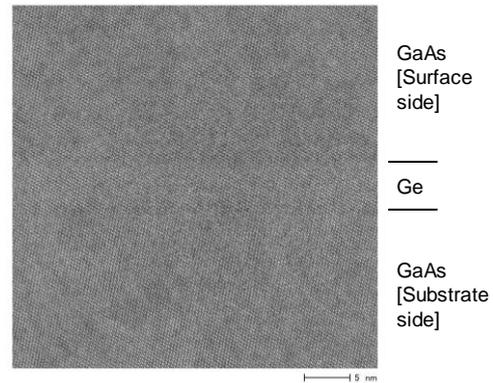


図 4. (113)B 基板上 GaAs/Ge/GaAs 構造断面の明視野 STEM 像

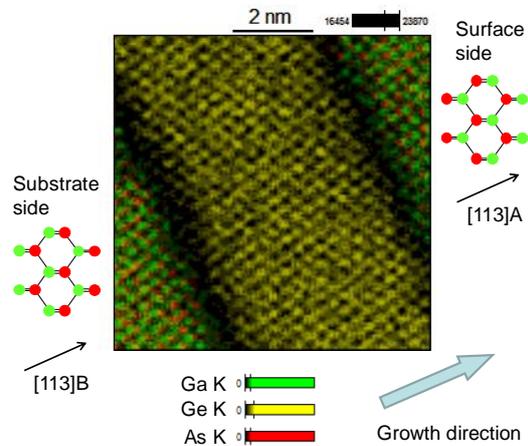


図 5. 原子分解能 EDX による元素マップ

(2) (113)B GaAs 基板上の GaAs/Ge/GaAs 構造による副格子交換エピタキシー技術を使って、分極反転型の GaAs/AlAs 多層膜結合共振器を MBE 成長した。GaAs  $\lambda/2$  共振器層の厚さは 222 nm で、上部、中央部、下部の GaAs/AlAs (111 nm/222 nm)  $\lambda/4$  DBR 膜の積層数は、各々 13, 13.5, 17 である。中央部 DBR 膜の真ん中に位置する GaAs 層に厚さ 3 nm の Ge 層を挿入することで、表面側の上部共振器と基板側の下部共振器で二次非線形感受率の符号が反転する構造とした。挿入の際に用いた GaAs/Ge/GaAs の成長シーケンスは

図2に示す通りである。図6は成長した結合共振器薄膜の断面SEM像である。Ge層上下の構造全体にわたってスムーズなGaAs/AlAs界面が得られていることがわかる。

垂直入射の条件で計測した光学反射率スペクトルを図7に示す。図中の黒線は実験値で、赤線は伝達マトリックス法で求めたシミュレーション値である。2つの共振器モードによる反射率ディップがストップバンド中央に明瞭にみられる。モード波長は1492 nmと1514 nmで、その周波数差は2.9 THzであった。実験のスペクトルはシミュレーションでほぼ再現できていることから、比較的良好な分極反転型の結合共振器が形成できたといえる。当初に予定していた超短パルスレーザー光を用いた時間領域分光法によるテラヘルツ波計測とその特性評価にまでは至らなかった。今後の課題として取り組みたい。

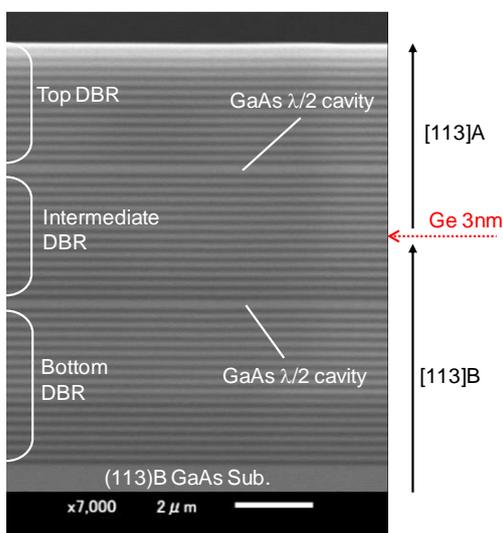


図6. GaAs/Ge/GaAs 構造による分極反転型 GaAs/AlAs 結合共振器薄膜の断面 SEM 像

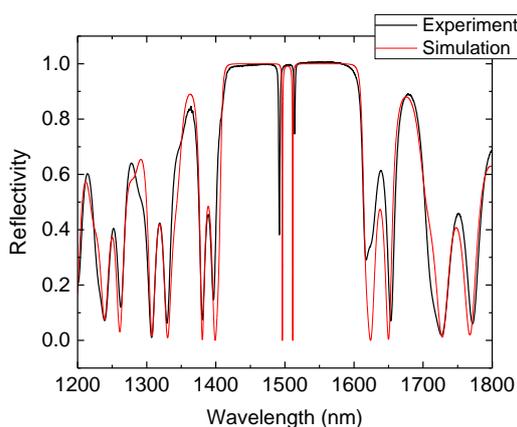


図7. 結合共振器の反射率スペクトル (黒線は実験値、赤線はシミュレーション値)

## 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)

[学会発表] (計3件)

- ① X. M. Lu, Y. Minami, and T. Kitada, “Sublattice reversal in GaAs/Ge/GaAs (113)B heterostructures grown by MBE”, The 44th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2017), 2017年5月14日～18日, ベルリン (ドイツ)
- ② 盧 翔孟, 南 康夫, 北田 貴弘, “(113)B GaAs 基板上の副格子交換による GaAs/AlAs 多層膜結合共振器”, 2017年度 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017年3月14日～17日, パシフィコ横浜 (神奈川県横浜市)
- ③ 盧 翔孟, 太田 寛人, 熊谷 直人, 北田 貴弘, 井須 俊郎, “MBEによる GaAs/Ge/GaAs (113)B ヘテロ構造における副格子交換”, 2016年度 第77回応用物理学会秋季学術講演会, 2016年9月13日～16日, 朱鷺メッセ (新潟県新潟市)

[その他]

学会発表②は第64回応用物理学会春季学術講演会の注目講演の1つに選定された。

ホームページ等:

<http://www.frc.tokushima-u.ac.jp/frc-nano/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

北田 貴弘 (KITADA, Takahiro)  
徳島大学・大学院理工学研究部 (連携)・  
特任教授  
研究者番号: 90283738

### (2) 研究分担者

盧 翔孟 (LU, Xiangmeng)  
徳島大学・大学院理工学研究部 (連携)・  
特任助教  
研究者番号: 80708800

南 康夫 (MINAMI, Yasuo)  
徳島大学・大学院理工学研究部 (連携)・  
特任准教授  
研究者番号: 60578368  
(平成28年12月2日より追加)

熊谷 直人 (KUMAGAI, Naoto)  
国立研究開発法人産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・主任研究員  
研究者番号: 40732152

井須 俊郎 (ISU, Toshiro)  
徳島大学・大学院ソシオテクノサイエンス研究部・特任教授  
研究者番号: 00379546  
(平成28年4月21日より削除)