

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：15401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26820114

研究課題名(和文)希釈ビスマス半導体を用いた光通信帯光源が利用可能なテラヘルツ波発生検出素子の開発

研究課題名(英文)Development of terahertz-wave emitter and detector excited by optical light source with a wavelength at optical waveband region using dilute bismuthide semiconductors

研究代表者

富永 依里子(Tominaga, Yoriko)

広島大学・先端物質科学研究科・助教

研究者番号：40634936

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の最終目的は、低温成長希釈ビスマス(Bi)半導体を用いた、光通信帯光源が利用可能なテラヘルツ波発生検出用光伝導アンテナを実現することである。当該研究期間内には、現有の分子線エピタキシャル成長装置に当予算で購入したBiセルを導入し、装置環境を整えると同時に、低温成長希釈Bi半導体の比較対象となる低温成長InGaAsの結晶状態の成長温度依存性を明らかにし、低温成長Bi系半導体の成長条件最適化に向けた指針を得た。

研究成果の概要(英文)：The final goal of this study is realization of photoconductive antenna excited by optical light source with a wavelength at optical waveband region using dilute bismuthide (Bi-) semiconductors. In this study period, a Bi Knudsen cell was installed into a molecular beam epitaxial (MBE) growth machine in this researcher's group, and growth temperature dependence of crystalline state of low-temperature-grown (LTG) InGaAs was revealed for comparison of the case of LTG Bi-semiconductors. The results of this study provided guidelines for optimized MBE growth condition of LTG Bi-semiconductors.

研究分野：電子・電気材料工学

キーワード：低温成長GaAs系半導体 分子線エピタキシャル成長 X線回折法 透過型電子顕微鏡 ラザフォード後方散乱法 テラヘルツ電磁波 光伝導アンテナ

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ(THz)技術分野では、実用上の観点から、より低コストで省スペースな THz 時間領域分光(THz-TDS)システムの実現が求められている。THz-TDS に用いられる代表的な THz 波発生検出素子の一つが光伝導アンテナ(PCA)である。従来、PCA には低温成長 GaAs が用いられてきた。低温成長 GaAs は THz 波発生検出用 PCA に求められる高抵抗、短キャリア寿命、高移動度の 3 つの特性を併せ持つためである。従来、本 PCA の光源には GaAs の禁制帯幅に合わせて 0.8 μ m 帯レーザが使われてきた。この THz 波発生検出用 PCA に 1.5 μ m 帯光源が利用できるになると、THz-TDS において小型かつ比較的安価なファイバーレーザを光源とすることができる上、光ファイバー等の光通信技術を THz-TDS に適用することができ、前述のシステムを実現することが可能になる。そのためこれまでに、禁制帯幅が 1.5 μ m 帯に位置する InGaAs や GaAsSb、GaNAs などの低温成長 Narrow bandgap 半導体を THz 波用 PCA に適用するための研究が、様々な研究グループによって行われてきた。しかし Narrow bandgap 半導体では高抵抗と短キャリア寿命を同時に得るのが困難なため、1.5 μ m 帯光源が利用可能な PCA 用の決定的な半導体は現時点では得られていない。

低温成長 GaAs の場合、前述の 3 つの特性：高抵抗、短キャリア寿命、高移動度が得られるのは、低温成長によって GaAs 結晶内に取り込まれる過剰 As や生じる Ga 空孔、熱処理後の As 凝集体が禁制帯内に形成する欠陥準位等によるものであることがわかっている。これに対し、低温成長 Narrow bandgap 半導体で高抵抗と短キャリア寿命が同時に得られない理由は明らかにされていない。

2. 研究の目的

上記 1. で述べた低温成長 GaAs の禁制帯内に形成される過剰 As と Ga 空孔由来の欠陥準位は、それぞれ禁制帯のちょうど中間と価電子帯頂上から約 300meV 高エネルギーに位置すると報告されている。一方、研究代表者はこれまでに、代表的な希釈ビスマス(Bi)半導体混晶である GaAsBi に関して、Bi 原子由来の局在準位が GaAs(Bi)の禁制帯内の価電子帯頂上から 50-90meV 程度高エネルギーに位置することを明らかにしている。

そこで本研究では、この Bi 原子由来の局在準位に着目し、こうした欠陥・局在準位を積極的に利用した希釈 Bi 半導体からなる光通信帯光源が利用可能な THz 波発生検出用 PCA の実現を目的とした。

3. 研究の方法

成長には分子線エピタキシャル(MBE)成長法を用いた。また、得た試料の評価には X 線回折(XRD)法、ラザフォード後方散乱法

(RBS)、透過電子顕微鏡(TEM)観察を用いた。

4. 研究成果

本研究期間においては、研究代表者の所属する研究グループ現有の MBE 装置に固体ソースとして Bi 用クヌーセンセルを導入したが、装置環境を整えるのに時間を要した。そこで、これまで研究代表者のグループや国内外の多くのグループで THz 波発生検出用 PCA 用材料として最も盛んに研究されてきた低温成長 InGaAs にまず着目した。これは、GaAsBi が III-V-V 族半導体であるのに対し、InGaAs が III-III-V 族半導体であるため、結晶の状態や欠陥、局在準位等の各評価結果が InGaAs と GaAsBi で互いに比較対象になる可能性があると考えたためである。

図 1 に InP(001)基板上に成長した低温成長 $In_xGa_{1-x}As$ ($x=0.44, 0.45$)の XRD スペクトルを示す。220 以上で成長した試料では XRD が確認できるのに対し、200 で成長した試料からは確認できなかった。220 以上で成長した $In_xGa_{1-x}As$ は単結晶的、200 以下で成長したものは多結晶的な結晶状態にそれぞれなることがわかる。

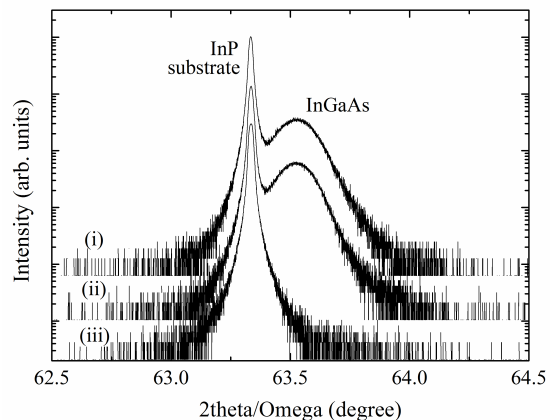


図 1 低温成長 $In_xGa_{1-x}As$ ($x=0.44, 0.45$)の XRD スペクトル。成長温度はそれぞれ(i) 240 , (ii) 220 , (iii) 200 .

図 1 の(i)と(ii)に示した XRD スペクトルの半値幅が InP 基板のものと比較して広いのは、結晶が In 組成による臨界膜厚の影響を受けているためと現時点では考察している。これは、InP 基板に対して格子整合させた低温成長 $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ では、InP 基板のものからわずかにずれた XRD スペクトルの半値幅が基板と同程度であったことから推測される。

図 2 に、図 1(ii)に示した低温成長 $In_{0.45}Ga_{0.55}As$ の RBS スペクトルを示す。結晶内への In 原子の取り込みが確認できるが、入射する He⁺イオンを結晶の[110]方向から入射した場合の In 原子の RBS 信号は[100]方向から入射した場合に比べて強度が大きい。そこで、この In 信号に対して[100]と[110]の両方向に対する RBS 角度スキャンを行った。どちらの方向に対してもディップカーブは確認できたが、図 2 が示した結果と同様、

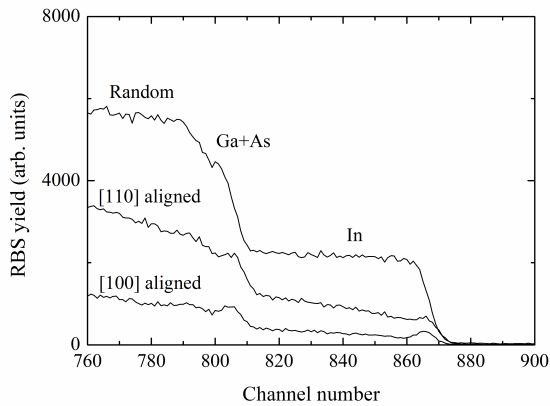


図 2 220 で成長した低温成長 $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ の RBS スペクトル.

[110]方向に He^+ イオンを入射して測定した場合のディップの方が浅かった。このディップカーブの深さから計算した結果、この低温成長 $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ に取り込まれている In 原子の約 40%が格子間に位置していることを示す結果となった。TEM 観察結果から、この低温成長 $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ は多量の欠陥・転位を含んでいることが明らかになった。RBS 角度スキャンから、結晶中の格子間に 40%もの In 原子が位置していると見積もられたのは、この多量の欠陥・転位による影響と考えられる。現在、TEM を用いて、この多量の欠陥や転移の種類に関する詳細な観察を進めている。

図 1(iii)に示した試料の RBS 時には、結晶軸をアラインすることができなかった。図 1 の XRD スペクトルが示す通り、200 で成長した $\text{In}_{0.44}\text{Ga}_{0.56}\text{As}$ は多結晶であることが RBS から確認できた。

次に、図 1(ii)に示した試料を窒素雰囲気中で 1 時間、400-600 で熱処理を施した後、断面 TEM 観察を行った。これは、低温成長 GaAs において高抵抗が得られるのは、低温成長後に GaAs を熱処理することで、結晶内の過剰 As が As 凝集体に変化することで得られるためである。TEM 観察の結果、現時点では熱処理した低温成長 $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ での As 凝集体の形成は確認できていない。本研究で用いた試料は全て Be をドーピングしており、既に他のグループが報告しているのと同様、Be をドーピングした低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ においては As 凝集体が形成されにくい傾向にあることを示唆する結果となった。

図 3 に、180 で成長した $\text{In}_{0.42}\text{Ga}_{0.58}\text{As}$ 試料の断面 TEM 像と、 $\text{In}_{0.42}\text{Ga}_{0.58}\text{As}$ 層と InP 基板それぞれの熱処理前後の電子線回折パターンを示す。図 3(b)が示すパターンはリング状であり、完全なハローパターンではないが、 $\text{In}_{0.42}\text{Ga}_{0.58}\text{As}$ 層の拡大像から、この層は熱処理前にはアモルファスであることが確認できた。一方 400 でアニール後はリング状のパターンがややスポッティになり(図 3(c))、600 でアニール後には単結晶の InP 基板の電子線回折パターンと類似のものに

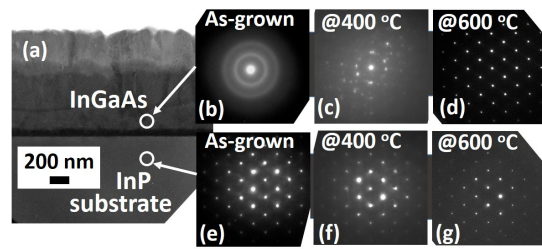


図 3 180 で堆積した $\text{In}_{0.42}\text{Ga}_{0.58}\text{As}$ の断面 TEM 像(a)と電子線回折パターン(b)-(g).

なった。これは、アモルファス $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ が、InP 基板上で熱処理によって結晶化することを示している。また、図 3(a)の暗視野像から、このアモルファス $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の上に柱状の $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ が成長していることがわかった。これまで、研究代表者の所属グループやドイツ・Fraunhofer 研究機構のグループが 180 以下で成長した $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ を用いた PCA の THz 波発生検出特性に関する報告を行っていることから、図 3 に示した熱処理前後の結晶状態の変化が PCA の特性の鍵となっている可能性があるとして現段階で考えている。

以上、本研究によって、低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ は、220 以下の成長温度領域で様々な結晶状態を示すことが明らかになった。こうした結晶の状態は低温成長 GaAs の場合とは現時点では異なっているようにみえる。低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ や低温成長 GaAs 系 III-V 族半導体混晶から成る PCA の THz 波発生検出機構は、低温成長 GaAs の場合とは異なっている可能性、あるいは低温成長 GaAs の場合の機構と同様になるように MBE 成長条件の最適化や最適材料の探索を行っていく必要があることを示す結果となった。今後は、これらの結晶状態を有する低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ を用いて PCA を作製し、その THz 波発生検出特性を明らかにすると共に、本研究の結果を踏まえ、低温成長希釈 Bi 半導体の成長条件最適化および基礎特性の解明、PCA の作製と評価を行う予定である。

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 件)

1. 富永依里子, 角屋豊, InP 基板上低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の結晶構造の成長温度およびアニール温度依存性, 材料, Vol. 64, No. 9, pp.696-700 (2015). 査読有り
<http://doi.org/10.2472/jsms.64.696>
2. Yoriko Tominaga, Yuki Tomiyasu, and Yutaka Kadoya, Crystal structure of low-temperature-grown $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ on an InP substrate, Journal of Crystal Growth, Vol. 425, pp.99-101 (2015). doi: 10.1016/j.jcrysgro.2015.02.077 査読有り

〔学会発表〕(計 14 件)

1. Yoriko Tominaga, Yutaka Kadoya, Hitoshi Morioka, and Osamu Ueda, (Invited) Growth temperature dependence of crystalline state of low-temperature-grown InGaAs on InP substrate, EMN Collaborative Conference on Crystal Growth (3CG2015), 16 December 2015, Hong Kong, China.
2. 廣瀬伸悟, 平山賢太郎, 富永依里子, 角屋豊, 格子整合度に着目した低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の結晶構造評価, 高知工科大学総合研究所ナノテク研シンポジウム 2015, 2015年11月14日, 高知工科大学.
3. 富永依里子, 廣瀬伸悟, 平山賢太郎, 角屋豊, InP 基板に格子整合した低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の結晶構造のアニール温度依存性, 第45回結晶成長国内会議(NCCG-45), 2015年10月20日, 北海道大学.
4. Yoriko Tominaga, Yutaka Kadoya, and Hitoshi Morioka, (Invited) Structural investigation of low-temperature-grown $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -What happens inside it?-, 5th International Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures (Semicon Nano2015), 10 September 2015, Hsinchu, Taiwan.
5. 富永依里子, 角屋豊, 森岡仁, 上田修, 低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の熱処理による結晶化, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 2015年9月14日, 名古屋国際会議場.
6. 廣瀬伸悟, 平山賢太郎, 富永依里子, 角屋豊, InP 基板に格子整合した低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の結晶構造, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 2015年9月14日, 名古屋国際会議場.
7. 廣瀬伸悟, 富永依里子, 角屋豊, 低温成長 InGaAs 内の In 原子位置の成長温度およびアニール温度両依存性, 第34回電子材料シンポジウム (EMS34th), 2015年7月16日, 滋賀県守山市.
8. 富永依里子, 角屋豊, 森岡仁, InP 基板上低温成長 InGaAs の結晶化, 第34回電子材料シンポジウム (EMS34th), 2015年7月16日, 滋賀県守山市.
9. 富永依里子, 角屋豊, (招待講演) InP 基板上低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の結晶構造 -低温成長によって何が起こるのか?-, 神戸大学工学部フォトリック材料学セミナー, 2015年6月19日, 神戸大学 六甲台第2キャンパス.
10. Yoriko Tominaga, Yutaka Kadoya, and Hitoshi Morioka, (Late News) Crystallization of Low-Temperature-Grown $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ on InP Substrate by Thermal Annealing, 57th Electronic Materials Conference (EMC2015), 24 June 2015, Columbus, OH, USA.
11. Yoriko Tominaga, and Yutaka Kadoya, Crystal Structure of Low-Temperature-

Grown $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$, CMOS Emerging Technology Research (CMOSETR2015), 22 May 2015, Vancouver, BC, Canada.

12. Yoriko Tominaga, and Yutaka Kadoya, High-Resolution X-Ray Reciprocal Space Mapping of Low-Temperature-Grown $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ on InP substrate, 2015 Material Research Society (MRS2015) Spring Meeting, 9 April 2015, San Francisco, CA, USA.

13. 富永依里子, 廣瀬伸悟, 角屋豊, 低温成長 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の結晶構造の成長温度依存性, 第62回応用物理学会春季学術講演会, 2015年3月13日, 東海大学.

14. 富永依里子, 角屋豊, (招待講演) InP 基板上低温成長 $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ の結晶構造とそのアニール温度依存性, レーザー学会学術講演会 第35回年次大会, 2015年1月11日, 東海大学 高輪校舎.

〔その他〕

ホームページ等

<http://home.hiroshima-u.ac.jp/hikari/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富永 依里子 (TOMINAGA YORIKO)

広島大学・大学院先端物質科学研究科・助教

研究者番号: 40634936