

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2008～2009

課題番号：20760207

研究課題名（和文） 格子整合系 GaAs/AlGaAs 自己形成量子ドットレーザの開発

研究課題名（英文） Development of self-assembled quantum dot lasers in lattice-matched GaAs/AlGaAs system

研究代表者

間野 高明 (MANO TAKAAKI)

独立行政法人物質・材料研究機構・量子ドットセンター・主任研究員

研究者番号：60391215

研究成果の概要（和文）：高性能GaAs/AlGaAs系量子ドットレーザを実現する事を目的に、液滴エピタキシー法による量子ドット作製の高度化及びそのレーザ素子への応用に関する実験を行った。GaAs(311)A面を用いる手法を開発し、量子ドットの超高密度化・高均一化に成功した。また、アニール過程の最適化を行い、量子ドットの高品質化も実現した。これらの技術を組み合わせた結果、光励起に於いて室温レーザ発振を達成した。

研究成果の概要（英文）：We investigated and optimized droplet epitaxial quantum dot formation for their application to quantum dot lasers. We developed droplet epitaxy on GaAs (311)A surfaces and realized QDs with high density and high uniformity. Moreover, by optimizing the annealing processes, the optical qualities of QDs were improved drastically. As a result, optical pumped laser emission at room temperature was achieved.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2009年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

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：薄膜・量子構造・量子ドット・結晶成長・半導体レーザ

1. 研究開始当初の背景

1982年、1986年に東大及び東工大のグループにより、半導体を量子ドットなどの低次元構造にすると状態密度が先鋭化し、それをレーザに適用すると閾値電流、変調特性、スペクトル特性などが劇的に向上するという提案がされてから実用化に向けて様々な取り組みが行われている。レーザ発振には多数の量子ドット発光体が必要なため、一つ

一つナノ加工技術によって作るのではなく、自己形成的に多数の量子ドットを基板全面に作製する手法に注目が集まっている。特に、光ファイバー通信用レーザへの応用を目的とした近赤外領域で発光する In(Ga)As/GaAs 系や In(Ga)As/InP 系は、Stranski-Krastanov (S-K) 成長モードにより量子ドット構造が形成可能なことが報告されて以来非常に活発な研究が行われ、一部実用化にも非常に近い

段階に達している。一方で、赤色領域の発光は、Si系のディテクタによる超高感度の測定が可能なることから、量子ドットレーザの基礎物性の探索や、微弱な信号を取り扱う量子情報処理デバイスなどへの将来的な展開が期待される。また、同波長帯が生体中へ浸透しやすいことを利用した生体・医療方面の応用の可能性も提案されている。S-Kモードによるこの波長帯実現の試みとしてはInAlAs/AlGaAsやInP/GaInP等の格子不整合系での報告もあるが、前者はドット中に高濃度のアルミニウムを含むため成長時に酸素などの不純物を取り込まれることにより品質が劣化しやすい事が指摘されており、後者ではサイズ均一性の良い量子ドットの作製が困難である。そのため、高品質量子ドットレーザを実現するためのさらなる量子ドット作製技術の進展が望まれている。

我々のグループでは、1991年に化合物半導体の量子ドット作製法として、「液滴エピタキシー法」を提案しこれまで研究を行ってきた。この手法では、ガリウムなどの低融点のIII族元素のみを初めに照射して液滴を作ったのちに、そこに砒素などのV族元素を照射する事により結晶化して量子ドットを作製するという成長機構を用いているため、格子整合不整合を問わず化合物半導体全般に適用できるという利点を有している。これまで主に、赤色領域で発光するGaAs/AlGaAs系の研究を行ってきたが、当初は、液滴エピタキシー法に於いて不可避の低温プロセスなどにより高品質の量子ドットを作製する事は困難であった。しかし、近年申請者らの研究により成長機構の解析が進み、それらを基に、結晶化やアニールなどの成長条件などを一つずつ最適化する事によって、量子ドットの発光特性は劇的に改善され、デバイスに適用可能な品質が実現されつつある[7]。

2. 研究の目的

本研究では、我々がこれまで研究を進めてきた液滴エピタキシー法をさらに高度化し、高性能量子ドットレーザ実現のための指針を得ること目的に研究を行った。具体的には、以下の目標を立てて実験を行った。

- (1) 発光特性と液滴形成条件及びその結晶化条件の関係を明らかにし、狭半値幅で高強度の発光が得られる条件を探索する。
- (2) 光励起によるレーザ発振によりその効果を実証する。
- (3) 電流注入型レーザの作製・測定技術を立ち上げ、電流注入による発振を実現し、その詳細な特性評価を行う。それらの結果をさらに量子ドット作製へのフィードバックしさらなる特性改善を試みる。

3. 研究の方法

結晶成長実験は、当機構既設の固体ソース分子線エピタキシー装置を用いて行った。量子ドットの形成には、液滴エピタキシー法を用いた。液滴エピタキシー法では、図1に示すように、基板表面（今回の場合はAlGaAs）にガリウムのみを供給したさいに生じるガリウム液滴を、続いて照射する砒素分子線により結晶化して、量子ドットを作製する。

レーザ素子は、このように作製した量子ドットを含むコア層（200nm程度の厚さのAlGaAs）をアルミ組成の高いAlGaAsクラッド層により挟み込む構造を作製した（図2）。電流注入型素子を作製する際は、上下の層をそれぞれp型及びn型にドーピングしている。

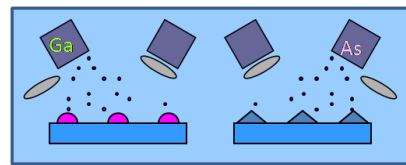


図1 液滴エピタキシー法の模式図

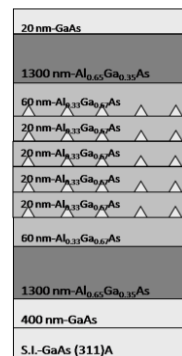


図2 量子ドットレーザ構造

量子ドットの構造評価は、原子間力顕微鏡、走査型透過型電子顕微鏡を用いて行った。

通常の発光特性評価は、532nmのグリーンレーザを用いたフォトルミネッセンス測定により行った。光励起レーザに関しては、パルスレーザをシリンドリカルレンズにより長形状に絞って試料表面に照射し、端面からの発光を測定する事により評価した。

4. 研究成果

これまでは主にGaAs(100)基板を用いていたため、量子ドット(液滴)の密度は、 $10^{10}/\text{cm}^2$ 程度が上限であった。また、同表面では、ガリウム原子の表面拡散長が長いため、結晶化に非常に強い強度の砒素分子線を用いる事が必要であり、その結果、量子ドットの均一性が著しく劣化するという大きな問題があった。今回、Ga極性面であるGaAs(311)A面を用いる方法を新たに開発し、液滴の超高密度化に成功した。図3、4に(100)及び(311)A面上に同条件で形成した際のガリウム液滴の原子間

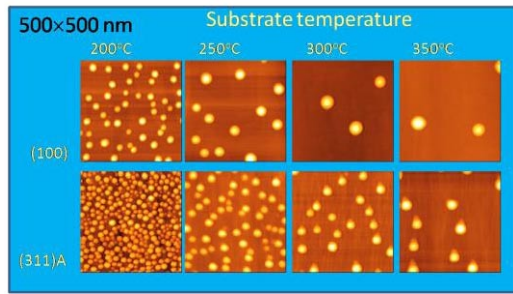


図3 (100)及び(311)A 面上に異なる温度で形成したガリウム液滴の原子間力顕微鏡像

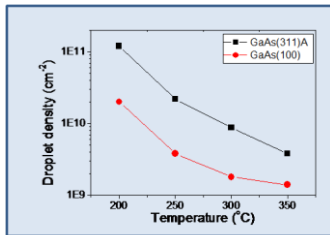


図4 (100)及び(311)A 面上に於けるガリウム液滴密度の温度依存性

力顕微鏡像、及び、液滴密度の温度依存性をプロットしたグラフを示す。図に示すように、同条件で形成した場合、(311)A面上では、一桁程度の液滴密度の増加することが観察された。10¹¹/cm²の密度は、原理的な密度の上限にも非常に近い。

次に、このようにして形成した高密度液滴の結晶化を試みた。その結果、弱い強度の砒素照射で結晶化してもピラミッド型量子ドットが形成可能であることを見いだした。これは、従来の(100)基板とは大きく異なる結果である(図5)。(100)面では、砒素分子線強度の低下にとともに、形状がリング状に変化するのに対して、(311)A面では、ドットの高さは減少するものの、すべての条件に於いて量

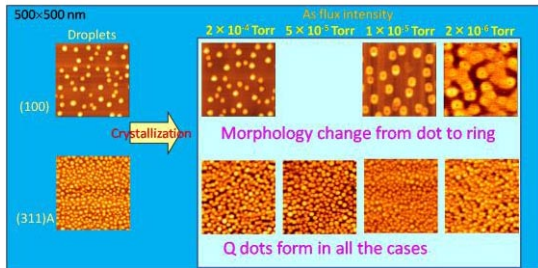


図5 (100)及び(311)A 面上に液滴に強度の異なる砒素分子線を照射した際の形状変化

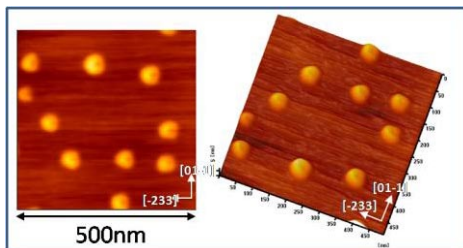


図6 弱い砒素強度で結晶化後の(311)A 面上の GaAs 量子ドットの原子間力顕微鏡像

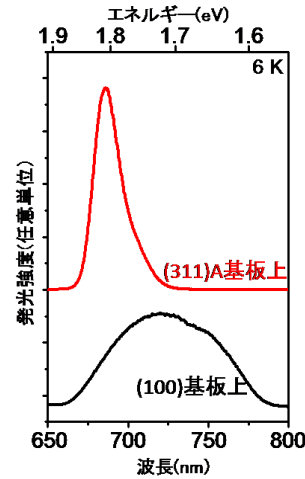


図7 GaAs(311)A 及び(100)表面に形成した量子ドットの低温に於ける発光スペクトル

子ドットが形成されている。高強度砒素照射による結晶化は、不規則な結晶化過程を生じさせ、量子ドットのサイズ不均一性を大幅に悪化させてしまう事が分かっている。そのため、低強度砒素のより結晶化可能な(311)A面では、均一性の大幅な向上が期待できる。また、結晶化後の構造の詳細な構造観察により、基板表面に於けるガリウムの拡散の抑制及び結晶方位の異方性により、形成機構は(100)面上の一重リング構造の形成と類似であるが実質的にピラミッド型の構造へ結晶化していることが明らかとなった。(図6)

図7に低温に於ける発光スペクトルを示す。参照のため、(100)基板上に形成した典型的量子ドット発光スペクトルも示す。量子ドットのサイズ均一性が大幅に向上したことにより、発光の半値幅を約1/3に低減されていることが明らかとなった。

量子ドット構造の最適化に関しては、結晶化後の量子ドットのアニールとキャップ層成長の見直しを試みた。初めにキャップ層成長前の量子ドットのアニールに対する構造安定性を調査した結果、400度までの温度領域では量子ドットの形状がほぼ保たれる事が明らかとなった。これにより量子ドットをおよび AlGaAsキャップ層の品質が大幅な向上を実現した。さらに500度程度の高温でアニールする事により、量子ドットの異方性を促進できる

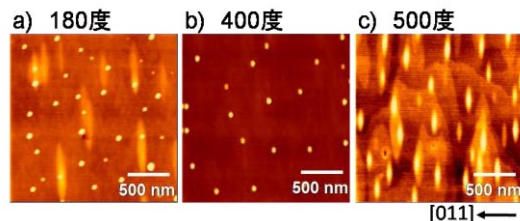


図8 GaAs(100)表面に形成した量子ドットをキャップ層成長前にアニール処理した際の形状変化

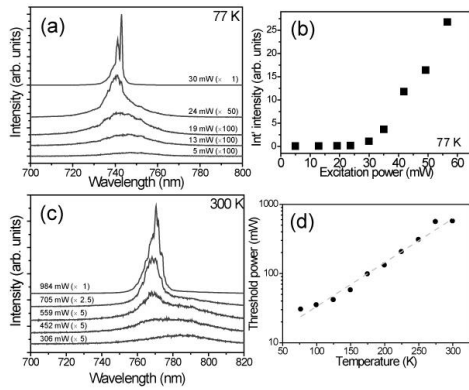


図9 GaAs(311)A 面上に形成した量子ドットレーザの光励起による発振特性。(低温及び室温)

ことも新たに見いだした。(図8)この時、発光強度もさらに増強される事が分かった。異方的な量子ドットは、直線偏光を必要とする通信デバイス応用などに非常に有用な技術である。

続いて、このように作製した量子ドットを用いて光励起によりレーザ発振を試みた。量子ドットが均一化したことにより、低温から室温までの温度域でレーザ発振が得られた(図9)。

これは、格子整合系のピラミッド型自己形成量子ドットとしては世界初の成果である。

レーザ発振の閾値の温度依存性から、レーザ素子の特性温度を求めたところ、68Kであった。この値は、未だ十分高い値とはいえないが、同波長帯で動作するInAlAs/AlGaAs量子ドットレーザに於いて報告されている値と比較すると同程度の値である。また、量子ドットの密度を上昇させた試料に於いては、サイズが小さくなることにより、高温域での発振特性はキャリアの熱活性化により悪化するものの、低温域では温度特性100K以上へと改善する様子が観察された。これらに関しては今後さらに研究を進める予定である。

GaAs/AlGaAs系量子ドットレーザの電流注入による発振を目指して、デバイス作製技術の確立および電流注入発光を実現した。参照用に作製した量子井戸レーザの室温発振には成功し、プロセス技術は確立された。しかし、量子ドットレーザに関しては、パルス電源の容量不足の問題により残念ながらレーザ発振には至らなかった。発光強度が非線形に増大する様子は観察された。今後導波路構造の最適化などを実現することにより、レーザ発振が得られると考えている。

また、量子ドットの高密度化を目的にその他の面方位基板上に於ける液滴エピタキシー法を試みた結果、(110)面上で、ステップ端に起因する配列効果を実現した(図10)。これは、レーザとはあまり関連しないが、配列量子ドットは量子情報デバイスなどへの応用が期待されることから、今後の発展が期待され

る。

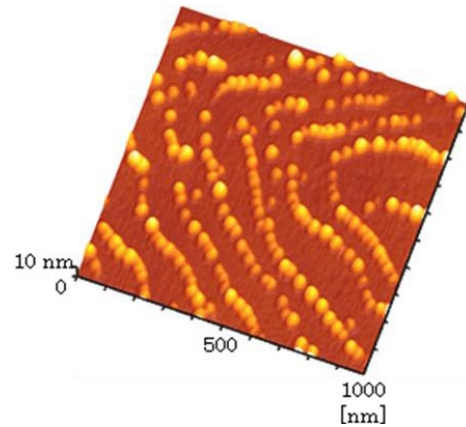


図10 GaAs(110)面上に形成した配列量子ドットの原子間力顕微鏡像

以上のように、格子整合系自己形成量子ドット作製法である液滴エピタキシー法の技術を大幅に向上し、高性能レーザデバイスを実現するための指針が得られた。格子整合系の特徴である量子ドットサイズや密度の制約が無いことを利用し、従来技術では実現不可能な高密度量子ドットの近接積層化等を行う事により今後のさらなる発展が期待される。また、異なる面方位を用いる事により、これまで困難であった配列量子ドットを液滴エピタキシー法による実現する事にも成功した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計4件)

- ① T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, C. A. Mastrandrea, A. Vinattieri, S. Sanguinetti, K. Sakoda, and M. Gurioli, Ultra-narrow emission from single GaAs self-assembled quantum dots grown by droplet epitaxy, *Nanotechnology*, 査読有、2009、20巻、395601-1-395601-5
- ② T. Mano, T. Kuroda, T. Noda, and K. Sakoda, Ordering of GaAs Quantum dots by droplet epitaxy, *Physics Status Solidi B*, 査読有、246巻、2009年、729-732
- ③ T. Mano, T. Kuroda, K. Mitsuishi, T. Noda, and K. Sakoda, High-density GaAs/AlGaAs quantum dots formed on GaAs (311)A substrates by droplet epitaxy, *Journal of Crystal Growth*, 査読有、311巻、2009、1828-1831
- ④ T. Mano, T. Kuroda, K. Mitsuishi, Y. Nakayama, T. Noda, and K. Sakoda, GaAs/AlGaAs quantum dot laser fabricated on GaAs (311)A substrate by droplet epitaxy, *Applied Physics Letters*, 査読有、93巻、2008、203110-1-203110-3

[学会発表] (計4件)

- ① 定昌史、間野高明、迫田和彰、液滴エピタキシ法を用いた GaAs(001) 基板上 GaAs 量子細線の形成、第 57 回応用物理学関係連合講演会、2010 年 3 月 17 日、東海大学
- ② 段国翰、間野高明、定昌史、迫田和彰、低温キャップ層成長が GaAs/AlGaAs 量子ナノ構造の光学特性に与える影響、第 57 回応用物理学関係連合講演会、2010 年 3 月 17 日、東海大学
- ③ T. Mano, T. Kuroda, B. Mckimming, A. Ohtake, K. Mitsuishi, M. Abbarchi, T. Noda, and K. Sakoda, Droplet epitaxy on GaAs (111)A, Semicon Nano 2009, 2009 年 8 月 11 日、徳島・阿南高専 (招待講演)
- ④ T. Mano, T. Kuroda, K. Mitsuishi, T. Noda, and K. Sakoda, High-density GaAs/AlGaAs quantum dots formed on GaAs (311)A substrates by droplet epitaxy, 15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, 2008 年 8 月 3~8 日、カナダ・バンクーバー・ブリティッシュコロンビア大学

[その他]

ホームページ

<http://www.nims.go.jp/nanophoto/qdr/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

間野 高明 (MANO TAKAAKI)
独立行政法人物質・材料研究機構・量子
ドットセンター・主任研究員
研究者番号：60391215

(2) 研究協力者

黒田 隆 (KURODA TAKASHI)
独立行政法人物質・材料研究機構・量子
ドットセンター・主幹研究員
研究者番号：00272659