

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 25 日現在

機関番号：82108  
 研究種目：若手研究（B）  
 研究期間：2010～2011  
 課題番号：22710107  
 研究課題名（和文） GaAs（111）面上高対称性量子ドットの自己形成に関する研究  
 研究課題名（英文） Self-assembly of highly symmetric quantum dots on GaAs（111）  
 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・先端フォトニクス材料ユニット・主任研究員  
 研究者番号：60391215

研究成果の概要（和文）：発光の微細構造分裂幅の小さい量子ドットを実現する事を目的に、液滴エピタキシー法を用いた GaAs(111)A 面上の高対称量子ドット自己形成に関する研究を行った。液滴形成条件、結晶化条件、アニール条件の最適化により、密度・サイズ・形状の制御技術を確立した。作製した量子ドットの発光特性を顕微分光法により調べた所、対称性の向上により、ほぼすべての量子ドットで、極めて小さい微細構造分裂幅が実現されている事が明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：Great suppression of fine-structure splitting (FSS) is demonstrated in self-assembled GaAs quantum dots (QDs) grown on AlGaAs(111)A surface. Due to the three-fold rotational symmetry of the growth plane, highly symmetric excitons with significantly reduced FSS are achieved. Polarized photoluminescence spectra confirm excitonic transition with FSS smaller than  $20\mu\text{eV}$ , a substantial reduction from that of QDs grown on (100).

交付決定額

(金額単位：円)

|         | 直接経費      | 間接経費    | 合計        |
|---------|-----------|---------|-----------|
| 2010 年度 | 2,300,000 | 690,000 | 2,990,000 |
| 2011 年度 | 800,000   | 240,000 | 1,040,000 |
| 年度      |           |         |           |
| 年度      |           |         |           |
| 年度      |           |         |           |
| 総計      | 3,100,000 | 930,000 | 4,030,000 |

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：量子ドット・ガリウム砒素・もつれ合い光子・自己形成・量子情報・液滴

## 1. 研究開始当初の背景

量子性を利用した革新的な光・電子デバイスへの応用を目的として、自己形成半導体量子ドットに関する基礎及び応用研究は 1990 年代初頭から現在まで非常に活発に行われている。近年特に、原理的に盗聴不可能な量子情報通信デバイスの実現に必要なもつれ合い光子発生源の候補として量子ドットは

高い注目を集めている[1]。理想的な量子ドットでは、二励起子状態 (XX) から一励起子状態 (X) を経て無励起子状態 (0) への連続的な遷移の際に、偏光の異なる二つの経路で同一の発光エネルギーを持つ光子が放出される。これにより、偏光によりもつれ合った光子対が実現できる。ところが、現実の自己形成量子ドットに於いては、構造的な不完全性

が存在することにより、実効的な波動関数が異方的となり、一励起状態のエネルギーが分裂してしまう（ファイン・ストラクチャ・スプリッティング (FSS)）ことが明らかとなっている[2]。この場合、二つの経路の発光をエネルギーで区別することが可能となり、この FSS が大きい程、光子のもつれ合いの度合いが低下してしまう。FSS を引き起こす起源に関しては、現在までに、(1) 形状の異方性・(2) 歪みに起因するピエゾ電界効果・(3) 合金効果（三元混晶）等が指摘されている[3]。しかし、広く研究の行われている格子歪みを利用したストランスキ・クラスタノフ (SK) 様式では、(1) 量子ドット形成に歪みが必要不可欠、(2) InAs-GaAs 及び InAs-InP 系は混晶化しやすい、(3) 表面異方性の大きな(100)や(311)等の基板表面での量子ドット形成では形状異方性が大きい等の問題により、本質的に上記の問題の回避することは困難である。成長後のアニールなどにより、異方性の少ない量子ドットが可能なことも報告されているが、多数の量子ドットの中のごく少数のみが良好な特性を示すに過ぎず、応用上十分有効とはいえない。そのため、FSS の小さい高品質量子ドットを再現性よく均一に作製する手法の開発が望まれていた。

## 2. 研究の目的

我々はこれまで、液滴エピタキシー法と呼ばれる量子ドット自己形成手法の研究開発を行ってきた。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（図 1 参照）、格子整合・不整合系を問わず量子ドットが形成できる。これまで、主に(100)の表面を用いて実験を行い、種々の成長条件を精密に制御・最適化することによ

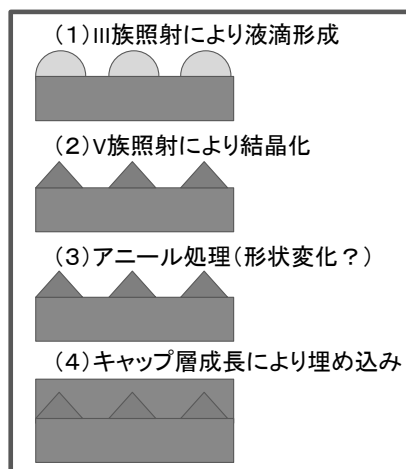


図 1 液滴エピタキシー法の模式図

り、非常に優れた特性を有する量子ドットが実現可能なことを報告してきた[4]。特に近年、アニール処理の最適化を実現したことにより、単一ドット発光に於いて、発光強度及び発光線幅の大幅な改善を実現した。しかし、その一方で、アニール処理の際に基板表面の異方性により量子ドットの形状異方性が促進され、FSS の値は大きくなってしまふことが分かってきた[5]。そこで我々は、液滴エピタキシー法ではガリウムやインジウムの液滴が形成可能であればどのような基板表面でも量子ドット形成が可能であることに着目し、二回対称性を示す従来の(100)表面ではなく、三回対称性を示す(111)基板表面を用いて、対称性の高い量子ドットを実現する事を目的に研究を行った。

## 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、量子ドットを作製した。作製した液滴及び量子ドットの形状は、原子間力顕微鏡及び走査型透過電子顕微鏡観察により、その形状評価を行った。光学特性評価は、量子ドットをキャップ層により埋め込んだのち、マクロ及びマイクロフォトルミネッセンス測定により行った。

## 4. 研究成果

初めに顕微フォトルミネッセンス測定を行うための、低密度量子ドットを再現性よく実現する事を目的に、GaAs (111)A 面上に於けるガリウム液滴形成過程の解明、及び、その最適化を行った。反射型高速電子線回折によるその場観察の結果、図 2 に示す様に、同表面状では、ガリウムを照射すると同時に、スペキュラービーム強度の減少が観察された。このことから、液滴がガリウム照射と同時に形成される事が分かった。これにより、量子ドット形成の際に、量子ドット下部の濡れ層

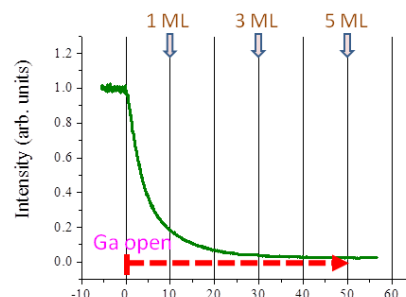


図 2 GaAs(111)A-2x2 表面にガリウムを照射した際のスペキュラービーム強度の変化

形成を抑制でき、さらに、液滴のサイズ・密度の緻密な制御を実現できる。図3に様々な条件で作製した、液滴の密度とサイズをプロットしたグラフを示す。基板温度、成長速度、成長量の3種類のパラメーターにより、従来は容易では無かった、小サイズで低密度の液滴が再現性よく実現出来る事が分かる。

図4に高密度及び低密度液滴のAFM像を示す。基板温度200°Cでは、 $10^{11}/\text{cm}^2$ を超える超高密度液滴が形成されるのに対して、基板温度400°Cで、僅か0.05原子層程度のガリウム

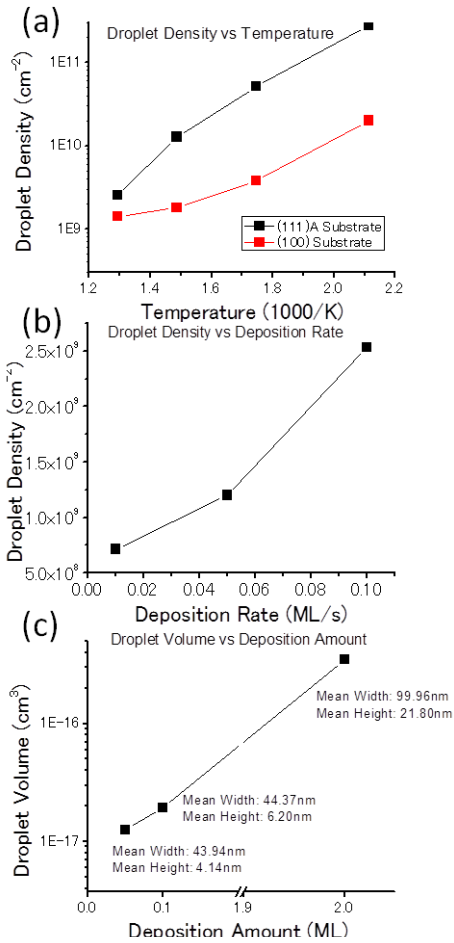


図3 GaAs(111)A面上に形成した液滴密度、サイズの(a)基板温度、(b)成長速度、(c)成長量依存性

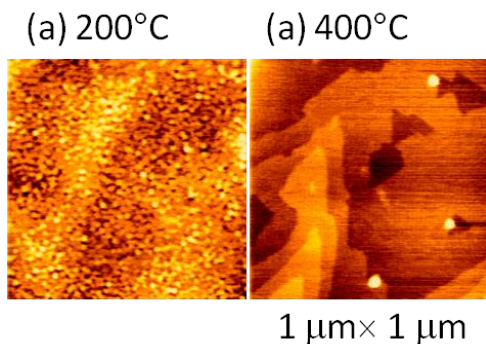


図4 GaAs(111)A面上に形成した高密度及び低密度液滴のAFM像

照射により、低密度・小サイズのガリウム液滴を再現性よく形成される。

続いて上記で作製した液滴の砒素照射による量子ドットへの結晶化の実験を行った。(111)A表面では、ガリウムの表面拡散長が非常に短いため、低強度の砒素照射でも、量子ドット形状が実現できる事が分かった。一方で、液滴サイズが大きい場合、鬚状結晶が形成され、それにより、キャップ層の品質が大

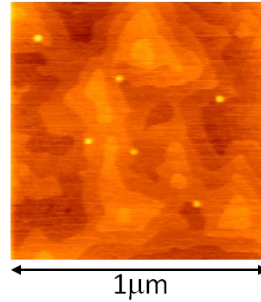


図5 AlGaAs(111)A面上に形成した量子ドットのAFM像

きく低下してしまう事も明らかとなった。この問題を解決するため、キャップ層成長前に、500°C程度の砒素中アニール過程を導入する手法を開発した。図5に示すように、アニールにより、鬚状の部分が崩れて、台形状の量子ドットへと変化する事が分かった。一方で、量子ドットの面内サイズには大きなサイズ変化は生じず、さらに、図6に示す様に、(111)面の表面对称性により、量子ドットの異方化も観察されなかった。これは、自己抑制的な機構が働いている事によると考

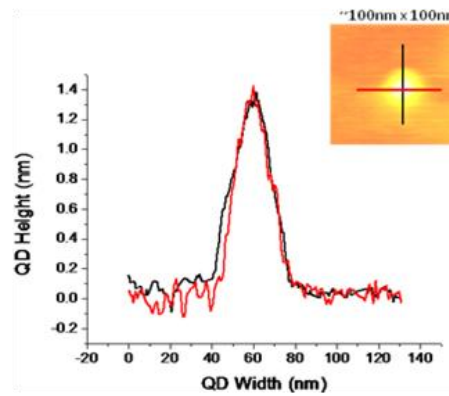


図6 量子ドットの断面形状

えられる。以上のように、(111)A面上でサイズ・密度を高度に制御した量子ドットの作製を達成した。

さらに、結晶化温度を変えることにより、より高度に結晶化後のナノ構造の形状を制御できる事も見いだした。これまで、200度で結晶化を行った後に、500°Cでアニールを行ってきたが、結晶化温度を上昇させると、量子ドットの形状が変化して、500°Cで砒素照射を行うと、図7のように、正三角形になることを明らかにした。これは、(111)A表面上の二種類のステップ端の特性の違いにより、高温になると一方のステップ端の成長が

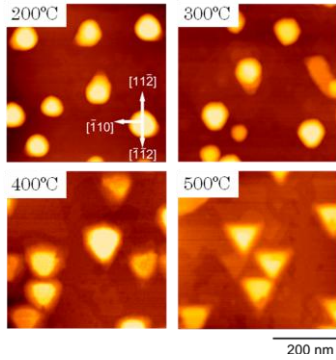


図7 結晶化温度を200-500°Cに変えた際の量子ドットの形状変化

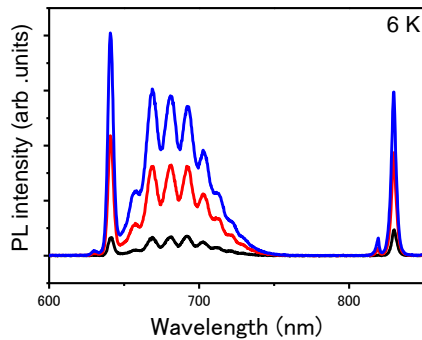


図8 量子ドットの低温発光スペクトル

支配的となる自己形成的な機構が働くことによる。

続いて、このようにして作製した量子ドットを AlGaAs によりキャップした後、発光特性の評価を行った。初めにマクロ測定による、量子ドット集団の低温の発光特性を図8に示す。非常に高強度の発光が観察され、量子ドットの品質が優れていることが示唆された。また、多くのピークを有する特徴的な発光線が観察された。このピークの起源を明らかにするため、有効質量近似を用いた、有限要素法により発光エネルギーを見積り、それを実験結果と比較した(図9)。量子ドットの底面サイズにはAFM観察により求めた値を用いた。その結果、これらの発光ピークは、量子ドットの高さを原子層単位で変化させた際のエネルギー変化と非常に良い一致をした。この結果から、高さが原子層単位で異なる量子ドットの集団の発光がスペクトルに反映している事が明らかとなった。これは、AFM及びTEMにより観察された台形状の形状とも一致する。

最後に、顕微分光法により、一個一個の量子ドットの発光特性を調べ、その光学異方性を調べた結果を図10に示す。従来の(100)面上の量子ドットでは、発光エネルギーの大きい、小サイズの量子ドットにおいては、比較的低い分裂幅であるのに対して、エネルギーの小さな大きな量子ドットでは非常に大

きな分裂を示していた。それに対して、今回

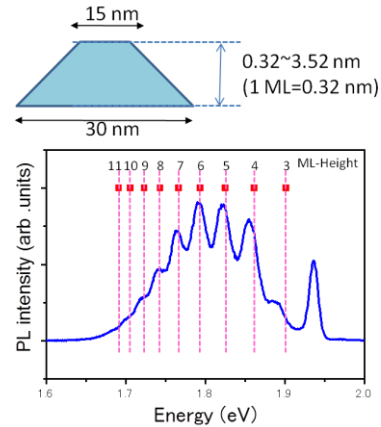


図9 有限要素法の計算に用いた量子ドットの形状と、計算により求められた発光エネルギーと発光スペクトルの比較。

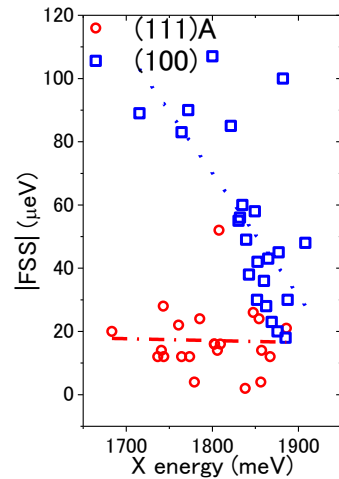


図10 一個の一個の量子ドットのエキシトン発光の直線偏光方向によるエネルギー変化のプロット。青い四角は(100)基板上に形成した従来の量子ドット、赤い丸は、今回形成した(111)A面上の量子ドット

形成した量子ドットでは、すべての波長域で小さい分裂幅が実現されている事が分かる。これは、(111)A面を用いたため、本質的に等方的な量子ドットが実現されたためと考えられる。なお、それでも依然として残る微小な分裂幅は、表面のステップの影響や量子ドット周辺の不純物による効果などに起因すると考えられる。このように、(111)A面を用いる事により、もつれ合い光子を発生させる上で非常に大きな利点を有する高品質な自己形成量子ドットを実現出来る事を明らかにした。

最後に、本研究課題を遂行するのにあたり得られた副次的な成果について、簡単に報告する。液滴エピタキシー法による量子ドットの高品質化・高均一化を達成して、電流注入による量子ドットレーザーの発振に成功した。また、量子構造をキャップ前にアニールする事により、あえて異方化し、量子ダッシュや量子細線を実現する技術も開発した。液滴の発生を制御する新しい手法に関しても、研究を行い、低密度で小サイズの液滴を再現性よく形成する技術を開発した。

[参考文献]

- [1] R. M. Stevenson et al., Nature **439**, 179 (2006).  
[2] R. Seguin et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 257402 (2005).  
[3] R. J. Young et al., Phys. Rev. **B 72**, 113305 (2005).  
[4] T. Mano et al., Nanotechnology **20**, 395601 (2009).  
[5] M. Abbarchi, T. Mano et al., Phys. Rev. **B 78**, 125321 (2008).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計12件)

- ① M. Jo, T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, Y. Sakuma, and K. Sakoda, 'Self-Limiting Growth of Hexagonal and Triangular Quantum Dots on (111)A', Crystal Growth & Design (査読有), Vol. 12, 2012, pp. 1411~1415.  
② Sallen, B. Urbaszek, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, T. Kuroda, T. Mano, 他, 'Dark-Bright Mixing of Interband Transitions in Symmetric Semiconductor Quantum Dots', Physical Review Letters (査読有) Vol. 107, 2011, pp. 166604-1~166604-50  
③ M. Jo, T. Mano, and K. Sakoda, 'Lasing in ultra-narrow emission from GaAs quantum dots coupled with a two-dimensional layer', Nanotechnology (査読有) Vol. 22, 2011, pp. 335201-1~335201-4.  
④ M. Jo, T. Mano, and K. Sakoda, 'Two-Step Formation of Gallium Droplets with High Controllability of Size and Density', Crystal Growth & Design (査読有), Vol. 11, 2011, pp. 4647~4681.  
⑤ M. Jo, J. G. Keizer, T. Mano, P. M. Koenraad, and K. Sakoda, 'Self-Assembly of GaAs Quantum Wires Grown on (311)A Substrates by Droplet', Applied Physics Express (査読有), Vol. 4, 2011, pp. 055501-1~055501-3.  
⑥ J. G. Keizer, M. Jo, T. Mano, T. Noda, K. Sakoda, and P. M. Koenraad, 'Structural atomic-scale analysis of GaAs/AlGaAs quantum wires and quantum dots grown by droplet epitaxy on a (311)A substrate', Applied Physics Letters (査読有), Vol. 98, 2011, pp. 193112-1~193112-3.  
⑦ M. Jo, D. Guotao, T. Mano, and K. Sakoda, 'Effects of low-temperature capping on the optical properties of GaAs/AlGaAs quantum wells', Nanoscale Research Letters (査読有), Vol. 6, 2011, pp. 76-1~76-4.

- ⑧ T. Mano, T. Noda, T. Kuroda, S. Sanguinetti, and K. Sakoda, 'Self-assembled GaAs quantum dots coupled with GaAs wetting layer grown on GaAs (311)A by droplet epitaxy', Physica Status Solidi C (査読有), Vol. 8, 2011, pp. 257~259.  
⑨ T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, B. McSkimming, A. Ohtake, K. Mitsuishi, and K. Sakoda, 'Self-Assembly of Symmetric GaAs Quantum Dots on (111)A Substrates: Suppression of Fine-Structure Splitting', Applied Physics Express(査読有), Vol. 3, 2010, pp. 065203-1~065203-3.  
⑩ M. Jo, T. Mano, and K. Sakoda, 'Unstrained GaAs Quantum Dashes Grown on GaAs(001) Substrates by Droplet Epitaxy', Applied Physics Express (査読有), Vol. 3, 2010, pp. 045502-1~045502-3.  
⑪ M. Jo, T. Mano, and K. Sakoda, 'Morphological control of GaAs quantum dots grown by droplet epitaxy using a thin AlGaAs capping layer', Journal of Applied Physics (査読有), Vol. 108, 2010, pp. 083505-1~083505-3.  
⑫ 間野高明, '液滴エピタキシーによる GaAs ナノ構造の自己形成', 応用物理 (査読有), 79 巻, 2010, pp. 0444-0447.

[学会発表] (計10件)

- ① 間野高明、野田武司、川津琢也, '液滴エピタキシー法による様々なナノ構造の自己形成' (招待講演), 第7回量子ナノ材料セミナー, 東京都目黒区東京大学先端研, 2011/9/21.  
② 定昌史、間野高明、迫田和彰, '液滴エピタキシーを用いた(111)A 面上三角形量子ドットの作製', 第72回応用物理学学術講演会, 山形県山形市山形大学, 2011/8/29~2011/9/02.  
③ 定昌史、間野高明、迫田和彰, '液滴エピタキシーを用いた(311)A 面上 GaAs 量子細線の作製', 第72回応用物理学学術講演会, 山形県山形市山形大学, 2011/8/29~2011/9/02.  
④ 定昌史、間野高明、迫田和彰, '液滴エピタキシーを用いた(111)A 面上三角形量子ドットの形成', 第30回電子材料シンポジウム, 滋賀県守山市ラフォーレ琵琶湖, 2011/6/29~2011/7/1.  
⑤ M. Jo, T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, and K. Sakoda, 'SELF-ASSEMBLY OF TRIANGULAR QUANTUM DOTS ON (111)A SUBSTRATES BY DROPLET EPITAXY', The 7th International Conference on Low Dimensional Structure, メキシコ Telchac, 2011/5/22~2011/5/27.  
⑥ T. Mano, M. Jo, T. Kuroda, M. Abbarchi,

and K. Sakoda, 'Recent Progress in Droplet Epitaxy' (招待講演), The 7th International Conference on Low Dimensional Structure, メキシコ Telchac, 2011/5/22~2011/5/27.

⑦ 定昌史、間野高明、迫田和彰, 'AlGaAs 薄膜キャップを用いた GaAs 量子ドットの形状制御', 第 71 回応用物理学会学術講演会, 日本長崎, 2010/09/14~2010/09/17.

⑧ 定昌史、間野高明、迫田和彰, '温 AlGaAs キャップ GaAs 量子井戸の熱処理による発光特性変化', 第 71 回応用物理学会学術講演会, 日本長崎, 2010/09/14~2010/09/17.

⑨ T. Mano, T. Kuroda, T. Noda, and K. Sakoda, 'Self-Assembly of GaAs Quantum Dots on (n11) (n=0, 1, 3) Substrates by Droplet Epitaxy' (招待講演), 8th International Workshop on Epitaxial Semiconductors on Patterned Substrates and Novel Index Surfaces, イタリアコモ市, 2010/06/14~2010/06/18.

⑩ T. Mano, T. Noda, S. Sanguinetti, and K. Sakoda, 'Self-Assembled GaAs Quantum Dots Coupled with GaAs Wetting Layer Grown by Droplet Epitaxy', The 37th International Symposium on Compound Semiconductors, 日本高松市, 2010/0531~2010/06/04.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.nims.go.jp/units/apm/index.html>

## 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 先端フ  
ォトニクス材料ユニット・主任研究員

研究者番号: 60391215

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし