様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　７ 年　 ６ 月　 ５ 日現在

機関番号：１７６０１
研究種目：基盤研究(C)（一般）
研究期間：2022～2024
課題番号：２２Ｋ０４２４５

研究課題名（和文）有機金属気相成長法によって作製した新規広帯域 中赤外発光する量子構造の開発

研究課題名（英文）Novel broadband mid-infrared emitting quantum structures fabricated by metal organic vapor phase epitaxy

研究代表者
前田　幸治（Maeda, Koji）

宮崎大学・工学部・教授

研究者番号：５０２１９２６８

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、幅広い波長の赤外線を放出できる素子を作るのが目的です。まず、バンド構造計算の結果、室温で強い光を出すには最低の準位間より、より高エネルギーの準位間のデザインが重要だと判明した。次にその設計に基づき材料を作製したが、発光が予想より弱かった。そこで、計算では考慮していない保護層やバッファー層を工夫することで、強度を上げた。発光の詳細より、低温や弱い光では予測スペクトル形状と一致する傾向が見られたが、強い光では波長の相違や強度の低下があることが分かった。室温で広い波長域の発光は達成したが、温度上昇による発光強度の減少のため今後、欠陥の低減を目指す。

研究成果の学術的意義や社会的意義
室温で励起強度を変化させて発光強度やスペクトル形状まで計算し、その構造を実際に作製し計算と実験のスペクトルを比較したことは、学術的に意義がある。まだ、発光強度は強くないが計算上中赤外領域で広い発光波長範囲をもつtype II超格子が実現できる可能性を示せたことは、実現する上で意義がある結果となった。

研究成果の概要（英文）：The goal of this research is to create a device capable of emitting infrared light over a wide range of wavelengths. First, band structure calculations revealed that a design between higher energy levels was more important than between the lowest levels for strong light emission at room temperature. Next, materials were fabricated based on that design, but the luminescence was weaker than expected. Therefore, we improved the intensity by devising protective and buffer layers, which were not taken into account in the calculations. From the luminescence details, it was found that the emission tended to match the predicted spectral shape at low temperatures and in weak light, but that there were wavelength differences and a decrease in intensity in strong light. Although luminescence over a wide wavelength range was achieved at room temperature, due to the decrease in luminescence intensity with increasing temperature, we will aim to reduce defects in the future.

研究分野：半導体物性

キーワード：超格子　中赤外発光　フォトルミネッセンス　バンド構造計算　MOCVD　発光遷移　温度依存性　励起強度依存性

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

１．研究開始当初の背景

近年 1.6μm 以下の近赤外線の応用が進み、次世代の目標として 2μm 以上の波長域が注目を集めている。2-10μm の波長の中赤外線は医療、IoT を含む通信など幅広く用いられ、中でもセンシングでは、分光計測、生体イメージング、物質検出などに期待されている。分光計測、物質検出などにおいては、中赤外線を利用することが、非破壊で最も迅速かつ低コストの方法と言われている。この理由は、中赤外領域で各種官能基（C=O、C=N）の特徴的な吸収が、近赤外領域に比べて桁違いの吸収係数を持ち、しかもその官能基の周りの環境の情報まで得られるという特徴を持つからである。

このように期待されている波長帯だが、その利用が進まない理由に、適当な光源が少ないことが上げられる。最近量子カスケードレーザーが 2-4μm 領域までカバーし始めたが、単一波長光源で広帯域化は達成できていない。一方、広帯域の熱的な赤外光源は古くからあるが、エネルギー効率が悪く、不必要な波長域の遮蔽や断熱などのため装置も大きくなってしまい欠点が多い。また、検出の SN 比向上のための変調が難しい。そこで本研究課題では、広帯域で効率のよい光源の開発を行う。これは高効率で高周波変調も容易で、中赤外域でのトモグラフィー像なども期待でき、更に医学やヘルスケアへの応用が広がるデバイスとなる。

中赤外発光を得るには、InAs/GaAsSb 系タイプ II 型超格子を用いる。超格子（SL）は、材料、層厚、組成、層周期数、ドープ量などの構造パラメータを変化させることにより設計、製作の自由度が上がりバンドギャップを初めとする電子帯構造の制御が可能である。

２．研究の目的

本研究の目的は、波長幅 3μm を超える広帯域中赤外発光が有機金属気相成長法（MOVPE）を用いた超格子構造を用いて作製できることを確かめることである。そのためにまず第 1 に、前節でも触れた半導体量子構造のバンドギャップだけを利用した発光素子を改良するのではなく、より高次のミニバンド内の状態密度までを考慮して、広帯域化を目指す点である。一般的に SL を励起した場合、極低温や低励起状態では、まずバンドギャップ付近の発光が生じる。より高励起状態にすると、最低準位のバンドが電子に占有され、その温度に応じてより高い準位まで電子が占め、その準位からの再結合によりエネルギーの大きな発光も同時に見られるようになる。このように高い励起密度状態からの発光波長は主に SL の電子帯構造の状態密度と温度によって変化する。最適な SL 構造を設計、作製することにより複数の準位間からの発光が重なることで広帯域発光を得るというメカニズムに独自性がある。

第 2 に、MOVPE で SL を作製することである。量子カスケードレーザーを始め複雑な量子構造は通常分子線エピタキシー法(MBE)で作製される。将来の量産を考えると MOVPE の魅力は当然だが、サンプルの試作効率を考えても MOVPE を使うことは MBE より一桁程度実験を効率的に行える。モノレイヤーレベルで見ると MOVPE は設計通りのパラメータで構造を作製することは難しいが、我々の研究ではこれまでに MOVPE 法で、V 族ガス切り替え時の成長中断時間と組成の関係を、多数の膜厚を変えた試料の X 線回折結果から原料ガス残留量の時定数を決定し、推定する手法を確立している。この技術により 1 nm 以下の膜厚制御性や、厚膜の SL を成長するための歪制御を実現しているので、SL 構造の制御は可能である。

３．研究の方法

（１）試料作製

試料構造は、MOVPE システム（SV3001、EpiQuest、日本）を用いてエピタキシャル成長した。原料ガスとして、アルシン（AsH_3）、トリメチルインジウム（TMIn）、トリエチルガリウム（TEGa）、およびトリエチルアンチモン（TESb）を使用した。さらに、H_2 を TESb ガスと TMIn ガスを流す間で 1 秒間導入し、混合層の厚さを減少させた。

成長した試料の模式図を図 1 に示す。成長プロセスは、Te 添加 n-InAs（001）基板上に 510 °C で行った。まず AsH_3 を流し酸化層を 600 °C で除去した後、成長プロセスを開始した。5 組の InAs と GaAsSb SL に対して、510 °C の定温成長を維持した。最後に、30 nm 厚の InAs キャップ層を成長した。測定された InAs 層と GaAsSb 層の厚さはそれぞれ 2.8 nm と 20 nm であった。

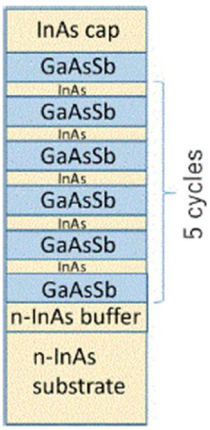

図 1 試料構造

（２）バンド計算

SL のバンド構造は、$\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{p}$ 摂動法を用いて計算された。自然放射スペクトルは、フェルミの黄金則を用いてバンド構造から理論的に導出された。計算には、InAs と GaAsSb の層厚さ（それぞれ 2.8 nm と 20 nm）、GaAsSb の

組成を $GaAs_{0.08}Sb_{0.92}$ に固定し、5 組のペア、試料温度範囲 20-300 K、および励起キャリア密度範囲 10^{21}-10^{24} m^{-3} を使用した。以降、これは 1E21-1E24 m^{-3} と表記する。

（3）PL 測定

PL 測定は、532 nm の波長で動作する連続波 Nd：YAG レーザーを使用して行った。レーザー光は、約 0.3 mm のスポットに集光した。入射光束密度は、ND フィルターを使用して 3.4 から 340 W/cm^2 に調整され、これは 2.4 から 240 mW の出力範囲に相当する。PL スペクトルは、JASCO CT-10 モノクロメータのステップスキャンモードで収集され、液体窒素冷却（77 K）の InSb 検出器で検出された。赤外光源 HPIR104（Thorlabs, Inc., USA）を、黒体として仮定して測定強度を校正した。測定経路における CO_2 の吸収は黒体との比として補正されているが、個々の測定時における CO_2 濃度の固有の変動により、4.1 から 4.3 μm の範囲内で小さな凹みとして影響が残った。

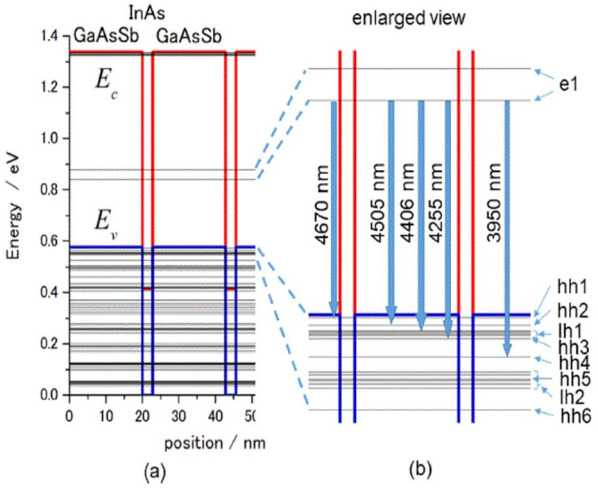

図 2　SL バンド構造（a）全体図、（b）バンドギャップ付近の詳細

4．研究成果

（1）バンド計算結果

20 KにおけるSLの計算されたエネルギーバンドの全体は図2(a)に示し、バルクInAsとGaAsSbの伝導帯と価電子帯も併せて示した。バンドギャップ付近の拡大図は図2bに示した。電子と正孔の量子化レベルは、量子井戸（QW）の数が5であるため、5つの準位に分裂した。しかし、図中では一部のレベルが互いに接近し縮退しているように描かれている。以降、各量子準位は「準位」と表記し、同じ量子数（n）を持つ準位の集合は「ミニバンド」と表記する。n=1の電子ミニバンド（e1）は、0.8393 eVと0.8783 eVの2つの準位のように見える。ホールの準位については、n=1の重いホールミニバンドhh1は、GaAsSbのバルクにおける価電子帯の頂に非常に近い位置にある。これは、GaAsSbのバリア層の厚さが20 nmと厚いためです。ホールミニバンドのエネルギーは、hh1、hh2、lh1、hh3、hh4の順となり、lh1はn=1のライトホールを表す。

図2bでは、e1の最低レベルから各ホールミニバンドの最高エネルギー位置への遷移の放出波長も同一図に示す。例えば、e1からhh1への遷移エネルギーは0.2656-0.3045 eVであり、これは4.670-4.071 nmに対応する。

（2）20KにおけるPLスペクトルと自然放出スペクトルの比較

キャリア濃度を 1 E22から1E24 m^{-3}まで仮定して20 Kにおいて、計算されたバンド構造より、自然放出スペクトルを計算した。また、励起強度を2.4 mWから240 mWまで変化させた実験で得られたPLスペクトルも同時に示した。縦方向は3E24の２つのピークが、24 mWの4100 nmのピークと、4500 nmのショルダーと一致するように描いた。（4250 nm付近のPL測定値の凹みは、CO_2の吸収でサンプルの発光形状で無いので、注意）その結果、キャリア濃度3E22から１E24 m^{-3}の範囲で実験と計算のピークの励起強度依存性の傾向が一致した。これより、励起強度上昇することにより中赤外領域での高次の準位間の発光が発光波長を3500 nm付近まで急激に広帯域化するのに寄与していることを明らかにした。この結果は、今後、発光の広帯域化が計算により予想可能にであることを示した。具体的

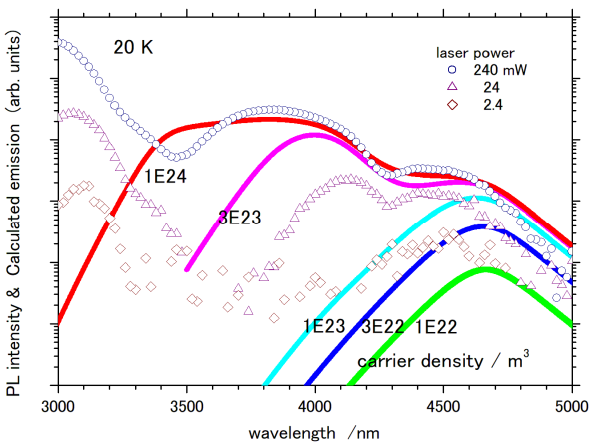

図３　20 K における計算された自然放出線スペクトルと、PL 測定結果

には4100-4600 nmには、e1-hh1の最低の準位、3600-4100 nmには、次に高いe1-hh2のバンド、3200-4000 nmにはe1-lh1のバンドが存在し、励起強度を上げることにより、より高次の準位からの発光が見られることが明らかになった。

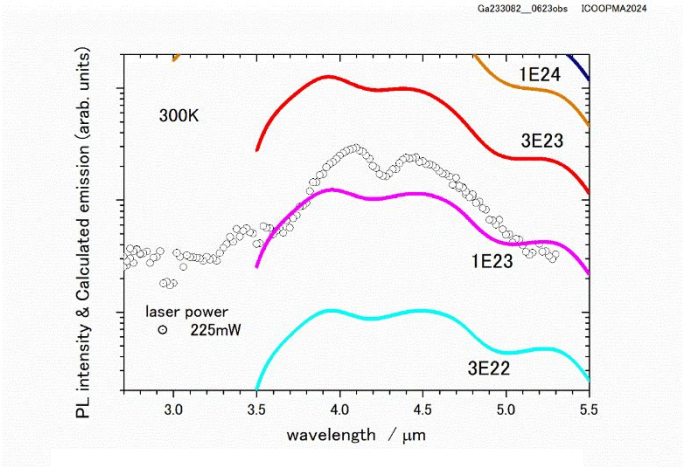

図４　300 K における計算された自然放出線スペクトルと、PL 測定結果

（３）300 KにおけるPLスペクトルと自然放出スペクトルの比較

300 Kで同様にキャリア濃度を3E22から1E24 m^{-3}を仮定した自然放出線と、225 mWのPLスペクトルを重ねて図4に描いた。温度による消光のためPL強度が弱くなり、225 mWでしかPLが得られなかったので、キャリア濃度依存性の計算結果と合わせることできなかったが、PLスペクトル形状と計算結果はほぼ一致していることがわかった。

100から300Kへの消光を、欠陥からの熱活性化過程と考えてPLの強度依存性から活性化エネルギーを求めると、約25 meVと求められた。このエネルギーは室温の熱エネルギーに近いので、室温でも赤外発光することが確かめられた。この欠陥の具体的な構造は、まだよくわかっていない。

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計4件（うち査読付論文　2件／うち国際共著　0件／うちオープンアクセス　2件）

１．著者名 Hombu Koki、Hikita Kenshiro、Fujisawa Takeshi、Maeda Koji、Arai Masakazu	４．巻 221
２．論文標題 Metal Organic Vapor‐Phase Epitaxy Growth of Multilayer Stacked InAsSb/InAsP Superlattices on GaAs and InAs Substrate	５．発行年 2024年
３．雑誌名 physica status solidi (a)	６．最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/pssa.202300824	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

１．著者名 前田 幸治，大濱 寛士，岩切 優人，荒井 昌和，藤澤 剛	４．巻 51
２．論文標題 MOVPE法で作製したGaSb層厚を変化させたInAs/GaSb超格子の中赤外発光過程	５．発行年 2022年
３．雑誌名 宮崎大学工学部紀要	６．最初と最後の頁 35-40
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 Maeda Koji、Fujisawa Takeshi、Arai Masakazu	４．巻 36
２．論文標題 Excitation intensity and temperature dependence of photoluminescence in mid-infrared region for lattice-matched InAs/GaAsSb superlattice grown by metalorganic vapor-phase epitaxy	５．発行年 2025年
３．雑誌名 Journal of Materials Science: Materials in Electronics	６．最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10854-024-14142-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

１．著者名 Yatabe Tatsuhiko、Taketa Nana、Arai Masakazu、Maeda Kouji、Ikari Tetsuo、Fukuyama Atsuhiko	４．巻 -
２．論文標題 Optical Transition Energy of InAs/GaSb Type-II Superlattice Investigated by Using Photoluminescence and Photoreflectance Spectroscopy	５．発行年 2023年
３．雑誌名 28th Microoptics Conference, MOC 2023	６．最初と最後の頁 1～2
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.23919/MOC58607.2023.10302909	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

〔学会発表〕　計11件（うち招待講演　0件／うち国際学会　5件）

１．発表者名
Yatabe T., Taketa N., Arai M., Maeda K., Ikari T., Fukuyama A.

２．発表標題
Optical Transition Energy of InAs/GaSb Type-II Superlattice Investigated by Using Photoluminescence and Photoreflectance Spectroscopy

３．学会等名
28th Microoptics Conference, MOC 2023（国際学会）

４．発表年
2024年

１．発表者名
小佐治 大輔、荒井 昌和、藤澤 剛、前田 幸治

２．発表標題
MOVPE法で作製した格子整合系 InAs/GaAsSb超格子の中赤外発光の温度依存性

３．学会等名
2023年第84回応用物理学会

４．発表年
2023年

１．発表者名
前田 幸治、藤澤 剛、荒井 昌和

２．発表標題
MOVPE法で作製した格子整合 InAs/GaAsSb超格子の中赤外領域にお ける発光の励起強度依存性

３．学会等名
2023年第84回応用物理学会

４．発表年
2023年

１．発表者名
Masakazu ARAI, Koji MAEDA, Yuto IWAKIRI and Takeshi FUJISAWA

２．発表標題
Temperature Dependence of Mid-infrared Emission Process of InAs/GaSb Superlattices Grown by MOVPE

３．学会等名
CLEO-PR 2022（国際学会）

４．発表年
2022年

１．発表者名
Masakazu Arai, Yuto Iwakiri, Takeshi Fujisawa, and Koji Maeda

２．発表標題
Wide Wavelength Range Emission from InAs/GaSb Type-II Superlattice Grown by MOVPE

３．学会等名
28th International Semicondutor Laser Conference（国際学会）

４．発表年
2022年

１．発表者名
岩切 優人，荒井 昌和 ，藤澤 剛 ，前田 幸治

２．発表標題
MOVPE法で作製したInAs/GaSb超格子の中赤外領域における広域発光

３．学会等名
第83回応用物理学会秋季学術講演会

４．発表年
2022年

１．発表者名
奥田大晴，荒井昌和，藤澤剛，鈴木秀俊，前田幸治

２．発表標題
有機金属気相成長法によって作製されたInAs/GaAsSb 超格子のAs組成比による発光の変化

３．学会等名
2025年第72回応用物理学会春季学術講演会

４．発表年
2025年

１．発表者名
Masakazu ARAI, Koji MAEDA, Yuto IWAKIRI and Takeshi FUJISAWA

２．発表標題
Temperature Dependence of Mid-infrared Emission Process of InAs/GaSb Superlattices Grown by MOVPE

３．学会等名
15th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics（国際学会）

４．発表年
2022年

１．発表者名 Masakazu Arai, Yuto Iwakiri, Takeshi Fujisawa, and Koji Maeda
２．発表標題 Wide Wavelength Range Emission from InAs/GaSb Type-II Superlattice Grown by MOVPE
３．学会等名 28th International Semicondutor Laser Conference（国際学会）
４．発表年 2022年

１．発表者名 荒井昌和，中川翔太，本部好記，岩切優人， 藤澤剛，前田幸治
２．発表標題 有機金属気相成長法による中赤外デバイス用超格子の作製
３．学会等名 第51回結晶成長国内会議　JCCG-51
４．発表年 2022年

１．発表者名 小佐治大輔，岩切優人，荒井昌和，藤澤剛，前田幸治
２．発表標題 MOVPE法で作製したInAs/GaSb超格子の中赤外発光の温度依存性
３．学会等名 2022年応用物理学会九州支部学術講演会
４．発表年 2022年

〔図書〕　計0件

〔出願〕　計1件

産業財産権の名称	発明者	権利者
発光素子	前田幸治、荒井昌和、藤澤剛	同左
産業財産権の種類、番号	**出願年**	**国内・外国の別**
特許、特願2022-134276	2022年	国内

〔取得〕　計0件

〔その他〕

―

６．研究組織

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
研究分担者	藤澤　剛 (Fujisawa Takeshi) (70557660)	法政大学・理工学部・教授 (32675)	
研究分担者	荒井　昌和 (Arai Masakazu) (90522003)	宮崎大学・工学部・教授 (17601)	

７．科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕　計0件

８．本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関