

論文の内容の要旨

論文題目 Scanning Probe Spectroscopy on GaAs with Near-Surface InAs Quantum Dots
(表面近傍に InAs 量子ドットを有する GaAs における
走査プローブスペクトロスコピー)

氏名 山本 洋

近年、半導体微細加工プロセス技術や結晶成長技術の発展・熟成に伴い、ナノメートルオーダーの極微細構造を、人工的に、あるいは自己組織的に、容易に形成することが可能となった。今後、更に極微細化が進む中、作製した半導体量子構造の特性評価を局所的に行う計測手法を開発することが必要とされている。

本研究の目的は、走査プローブ顕微鏡を用いて、量子ドット構造の電子的・光学的特性をナノメートルオーダーで測定することにある。試料として、InAs 量子ドット被覆 GaAs および埋め込み InAs 量子ドット構造について実験を行った。そこで我々は、走査トンネル顕微鏡(Scanning Tunneling Microscope; STM)と光学的手法を複合的に組み合わせることにより、従来のプローブ顕微鏡では測定困難である試料内部の情報を、従来の光計測より高空間分解能で測定を行った。またもう一つの計測手法として、今まで主として半導体 MOS 構造の局所的なキャリア分布計測に用いられていた走査容量顕微鏡(Scanning Capacitance Microscope; SCM)を、半導体量子構造に適用した。

InAs 量子ドットが表面に存在する系における表面近傍のバンド曲がりやフェルミ準位のピンニング等について知見を得ることを目的として、光照射 STM を用い、局所的な光変調の測定を行った。また光誘起電流の起源を探索するために、電流の直接波形の測定を行った。

試料は n 型 GaAs 上に成長膜厚 1.7ML の InAs を MBE 法により成長を行った。実験は、通常の STM のトポ像を取り込むと同時に、トンネル電流信号上の光変調成分をロックインアンプで検出して、レーザ光による変調度を画像化した。トンネル電流の時間波形測定は、デジタルオシロスコープにより取得した。

試料電圧+2V、トンネル電流 0.15nA、変調周波数 900Hz、レーザ光強度 18mW の条件で、トポ像と光誘起電流像とを同時に測定した（図 1）。トポ像と比較した結果、光誘起電流は、周囲のぬれ層（Wetting Layer ; WL）領域より InAs 量子ドット領域の方が小さいことが分かった。

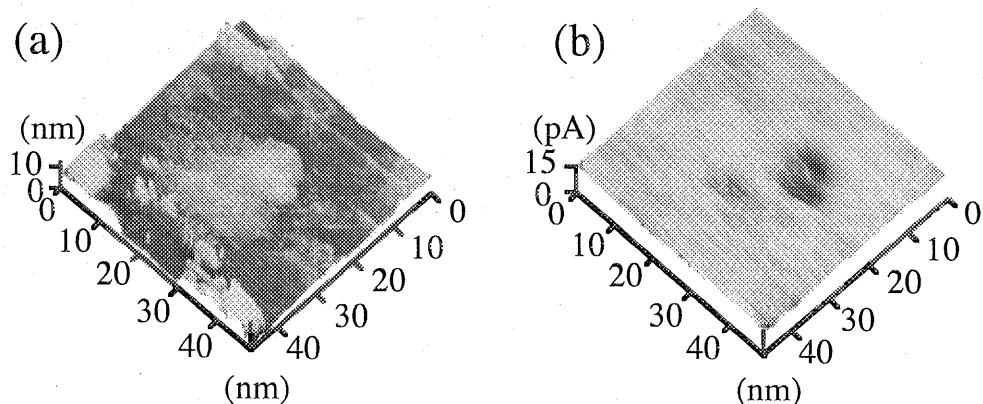


図1 InAs量子ドット被覆GaAs表面の(a)トポ像、(b)光誘起電流像、試料バイアス+2.0V、トンネル電流0.15nA。画像(a)と(b)は同時に得られた。光の変調周波数は900Hz。

InAs 量子ドット領域と WL 領域の上に探針を置き、光の変調周波数を変えながら、光誘起電流の直接時間波形測定を行った結果、光変調周波数 900Hzにおいて、光が照射された直後と照射終了直後に、スパイク状の過渡電流が明瞭に観測された。これは以下のメカニズムに起因することを明らかにした。

n 型 GaAs のような試料では、光照射によって生成されたフォトキャリアは、半導体表面近傍に存在する空乏層の内部電場により分離され、内部電場を打ち消す方向に、つまり電子は試料内部に、正孔は表面に移動し、フラットバンド状態になるまで過渡電流が流れる。その結果として光誘起電流は、スパイク状の過渡電流となる。光照射終了時には、表面に蓄積していた正孔が放電する形となり、逆向きの過渡電流が流れる。スパイク状の変調電流はいずれの周波数領域においても観測されたが、変調周波数が低くなるにつれ、他の過程（熱膨張や STM のフィードバックによる影響等）による電流が顕著になることを確認した。

上記の結果および光変調電流の試料電圧依存性等を調べた結果から、スパイク状の過渡電流の大きさは表面空乏化の度合いに対応していると結論付けた。従って、光誘起電流像におけるコントラストは表面空乏化の差異を反映していると考えられ、表面空乏化は WL 領域よりも InAs 量子ドット領域の方が抑制されていることを明らかにした。

次に我々は、InAs 量子ドット被覆 GaAs 表面の電子的特性を調べる手段として、SCM を利用することを提案した。更に、局所的なキャパシタンスバイアス電圧特性(C-V)とコンダクタンスバイアス電圧特性(G-V)の測定も行った。試料は、光照射 STM で使用したものと同一の試料である。SCM

は導電性探針を用いたコンタクト型の原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscope; AFM)とキャパシタンスブリッジとで構成され、探針-試料間のキャパシタンス成分と同時にコンダクタンス成分も取得した。

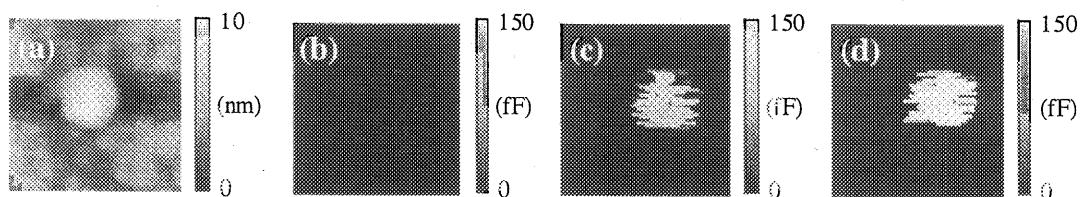


図2 InAs量子ドット被覆GaAs表面の(a)トポ像と(b)-(d)キャパシタンス像。走査領域は $200\times200\text{nm}$ 。試料バイアスはそれぞれ(b)0.0V, (c)-0.5V, (d)-1.0V。画像(a)と(b)は同時に測定を行った。キャパシタンス像は、浮遊容量成分(1.04pF)を差し引いて示している。

図2に見られるように、負の試料バイアス電圧を印加するにつれ、キャパシタンス像でのドットとWLとの間のコントラストが明瞭になってくることが観察された。更にキャパシタンスの試料バイアス電圧依存性を確かめるために、G-V、C-V測定を行った。

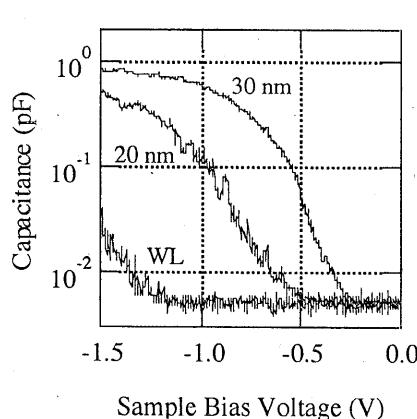


図3 ドット上とWL上とで測定したC-V特性。トポ像から得られたドット半径はそれぞれ20nm,30nm。

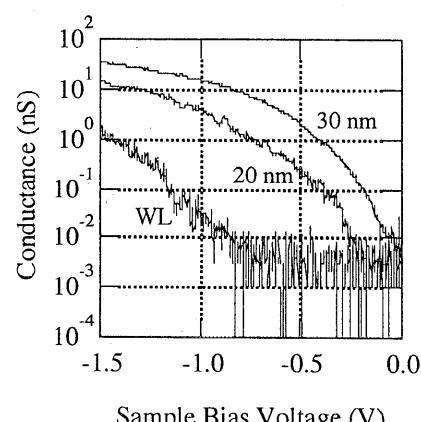


図4 サイズが異なるドット上とWL上とで測定したG-V特性。いずれも図3と同時に得られた。

量子ドット上とWL上で測定されたC-V特性(図3)から、負の試料バイアス電圧が大きくなるにつれて量子ドットとWLとのキャパシタンスの差も大きくなっていくことを確認した。このキャパシタンス差は、GaAsとInAsとのバンドオフセットにより表面空乏がInAs量子ドット領域の方がWL

領域よりも低減されていることによる。これは、光照射 STM の結果からも確かめられている。

量子ドット上、WL 上で得られた G-V カーブ（図 4）から、以下のことが明らかとなった。導電性の探針を WL 上に置いた場合、フラットバンド条件を達成するためには、通常のマクロなショットキーダイオードの条件（ $\sim -0.7V$ ）よりも大きな負の試料バイアスを印加しなければならない。今回の試料は、大気に曝されているため、WL 領域は表面が酸化され、表面フェルミ準位が GaAs のミッドギャップに強くピンニングされていると予想される。その結果、探針の接触領域より外側の強いピンニングの影響を受けるため、マクロなショットキー条件より更に電圧を印加する必要が生じると考えた。一方、量子ドット上では、コンダクタンスはより低い負バイアス電圧で立ち上がりが観測された。その理由として、AFM 探針を量子ドット上に置いた場合、ドットと探針とのコンタクトが良好なため、ドット自体が電極の役割を果たし、バイアス電圧が GaAs と InAs 量子ドット間に有効に印加できることが挙げられる。また、GaAs-InAs 界面のポテンシャルがドット領域で低減されていることも一因である。

ここで、GaAs と InAs のバンドオフセットをショットキー障壁高さとして取り扱い、熱電子放出方程式に対して、実験で得られたコンダクタンスの値でフィッティングを行い、障壁高さ Φ_B の値を見積もった。その結果、得られた Φ_B は、ドットサイズが小さくなるに従って、ショットキー障壁 Φ_B が大きくなることが分かった（表 1）。これは、量子ドットのサイズが小さくなるにつれて、周囲の強くピンニングされている WL の影響を受けて、ドット直下の GaAs の内部ポテンシャルが持ち上げられ、その領域を介した電子輸送が遮られるためと考えた。その結果として G-V 特性でのコンダクタンスの立ち上がりは、大きな値になっている。

表1 フィッティングで得られた障壁高さ Φ_B .

ドット半径 (nm)	Φ_B (eV)
30	0.48
20	0.57

上記の結果から、InAs 量子ドットが最表面に存在する場合には、ドット自体が電極として働くことが分かった。従って、单一量子ドットに電子が帶電する効果を SCM を用いて検出するために、量子ドットを埋め込んだ構造の試料を作成し、帶電効果による埋め込み領域全体の空乏層変化をキャパシタンスで検出するという手段を取ることとした。

試料は、 n^+ 型 GaAs(001)基板上にアンドープの GaAs を 10nm 成長した後、InAs を 1.7ML 成長し、

5nm のアンドープ GaAs でキャップを行った。今回の実験では、二種類の SCM を使用した。一番目は、先に使用した SCM と同様の構成である。二番目の SCM は探針-試料間のキャパシタンス成分とコンダクタンス成分の測定に二位相ロックインアンプを使用した（印加した交流電圧は 10mV_{rms} 、変調周波数は 100kHz）。

キャパシタンスブリッジを用いた SCM の実験結果では、負の試料バイアスを印加すると、コンダクタンスが増加する領域が見られたが、同時に同領域で測定したキャパシタンス像には、対応する変化は見られなかった。これは、キャパシタンスブリッジの装置的制限（変調電圧の振幅が大きく、変調周波数が 1kHz 固定）による。そこで、この制限を克服するために、二位相ロックインアンプを使用した SCM を用いて実験を行った。

直流試料バイアスは -1.5V におけるトポ像、コンダクタンス像、キャパシタンス像を同時に取得した。コンダクタンス像において、電流がより流れている領域を InAs 量子ドットが埋め込まれている領域であると同定し、キャパシタンス像とコンダクタンス像との対応から、キャパシタンスの値は WL 上よりドット上の方が小さいことが分かった。このキャパシタンス差から、表面空乏化は量子ドットが埋め込まれている領域の方が、WL 領域より大きいことが分かる。

この結果の一つの解釈としては、量子ドットに電子が帯電したことによって、表面空乏が広くなつたことが考えられる。しかしながら、ドットに電子が帯電した場合のキャパシタンスの変化を見積ると、今回の実験で得られた値より非常に大きな値となった。また、コンダクタンスの増大が見られた領域で C-V、G-V 計測を行うと、再現性よく明瞭なピークが観測された。これは、ドットの量子準位に関係したピークであると期待されるが、今後装置系の改良を含め、さらに検討を加える必要がある。

本研究において、我々は、光照射 STM と SCM を用いて、InAs 量子ドット被覆 GaAs および埋め込み InAs 量子ドット構造について高空間分解能の測定を行った。その結果、InAs 量子ドットが表面近傍に存在する系における表面電子状態（表面バンド曲がりやドットの帯電効果等）を明らかにした。また、これらの手法が量子構造の研究に有用であることを示した。