

本論文は、Si ベース構造における輻射再結合の質的転換を目標に、Si 結晶中に III-V 族化合物半導体量子ドットを導入する試みとこれら新規量子ドットの輻射再結合に関する分光学的研究について記述しており、全体は 5 章からなる。

第 1 章では研究の背景と目的について記述している。まず、Si における輻射再結合を制御する研究の系譜を概観する中で、バンド物理に立脚した過去の一連の研究が、同族元素からなるヘテロ構造を前提としているため、物性の制御にはおのずから限界があることを指摘している。実際、現在までに最も有力視されてきたポテンシャル制御による方法でも、シリコン同族元素特有の間接遷移の呪縛から逃れることは極めて難しい。そこで論文提出者は、Si 中に族、結晶系、格子定数の異なる化合物半導体量子ドットを埋め込んだ族横断型の新しいヘテロ構造を提案し、これによれば輻射再結合の質的転換がはかれることを予測した。このヘテロ系におけるバンド接続は、歪の影響により化合物半導体中に正孔のみが閉じ込めを受ける Type-II 接続となるが、ヘテロ界面に生じる自発分極に起因した比較的強い局在ポテンシャルの影響でシリコン中の間接バレー電子の波動関数が変調を受け、これによりシリコンおよび同族元素のみでは達成不能な輻射再結合が実現できる点に特徴がある。ドット界面における電子と正孔の強い局在は、界面自体が非輻射再結合中心として存在しない限り散逸を抑制する効果があり高い発光効率が得られること、ならびに III-V 族半導体の直接バンドが利用できる可能性が指摘されている。

第 2 章では、III-V 族半導体量子ドットの形態を制御する目的で、Si(001)基板上に III-V 族化合物半導体量子ドットをエピタキシャル成長し、成長パラメータにしたがうカイネティクスおよび表面モフォロジー変化を調べた結果について述べている。格子歪の弾性的緩和を駆動力として自発的に発生する III-V 族半導体の 3 次元島（量子ドット）のサイズ、密度、相関距離は、ほぼ成長温度、V/III 比、フラックスにより制御できることを示した。また、InSb および GaSb に関して、化合物半導体基板上への III-V 族化合物半導体成長に比べて Si 上では、より低温で量子ドット成長が発生することを明らかにした。量子ドットの最大面密度は 10^{10}cm^{-2} のオーダーであり Ge/Si、InA/GaAs などの代表的な量子ドットとほぼ同等の値が得られている。GaSb の場合、サイズ分布は数 10nm および 100nm オーダにピークをもつ双峰となることを示した。一方、面内では量子ドットはランダムに無相関に分布するため位置の制御性は低い。微傾斜基板を用いると $\langle 110 \rangle$ 方向に配列したドット列が形成できる可能性も指摘している。

第 3 章では、Si 中に埋め込んだ III-V 族化合物半導体量子ドットのバンド接続およびバンド不連続量に関する理論的評価について述べている。まず、Si 中に埋め込んだ III-V 族化合物半導体量子ドット近傍の歪分布とそれに伴う変形ポテンシャルシフトの計算を行っているが、局所歪とドット形状による静水圧成分の増大を考慮した点に特徴がある。その結果、GaAs、GaSb、InAs、InSb のいずれのケースにおいても、圧縮歪の影響によってバンド接続は、正孔のみが III-V 族化合物半導体量子ドット中に閉じ込められる Type-II 型となり、局所歪に起因するバンド湾曲が電子をヘテロ界面に引きつける方向に働くことがわかった。さらに Si と III-V 族化合物半導体のヘテロ界面で生じる界面ダイポールの大きさを強束縛近似を用いて評価し、界面近傍に格子間隔程度の到達距離を持つ深いポテンシャルが形成され

ることを見出した。このポテンシャルは界面原子の種類にしたがって符号を変えるが、Si 中の電子に対し Si/V 族原子界面では引力ポテンシャルが、Si/III 族原子界面では斥力ポテンシャルがそれぞれ形成されることを示した。これらふたつのポテンシャルの影響で Si バンド端に励起された電子は界面にひきつけられ、そこで強く局在することになるが、これが本章の結論となっている。

第 4 章では、実際に作製した Si 中の III-V 族化合物半導体量子ドットにおける近バンド端輻射再結合の分光学的研究の結果が記述されている。InAs, InSb, GaSb 量子ドットを Si に埋め込んだ構造からは、Si サブギャップ領域の 0.8-1.1eV に不均一にひろがった幅広い蛍光バンドが観測されたが、蛍光強度の観点からは Si 中 GaSb 量子ドットから蛍光が最も強く、蛍光スペクトルの温度依存性、励起強度依存性および蛍光寿命を詳細に調べることで、予測どおりに GaSb 量子ドットにおける輻射再結合がヘテロ界面に強く局在した低散逸の電子・正孔対によるものという結論を得た。さらに GaSb 量子ドットを活性領域にもつ p-n 接合において、記録的な外部量子効率 (0.3%) の電流注入蛍光を観測している。電流注入蛍光は室温まで観測され、実験に使用した 発振器のバンド幅で制限される周波数帯域をもつことが示されている。一方、In ベースの化合物半導体量子ドットでは、Si 中で活性化した In が正孔の深い束縛中心をつくるため、In ベース量子ドットが予想どおりには再結合中心としては機能しないことを指摘している。同様に、熱処理した Si 中の GaSb 量子ドットは 650°C 以上の熱処理で解離しはじめ、量子ドットとして機能しなくなった後は、Ga アクセプタの蛍光スペクトルに移行することが示されている。さらに本章では、GaSb の禁止帯にしみ出した Si 中間接バレーの電子の波動関数が GaSb の直接バンド端と混合する効果に着目して、ポンプ・プローブ法によりバンド端遷移ではじめて Si 中での光増幅の観測を試みている。その結果、光励起、電流励起の双方において光増幅(>10dB/cm)を検証し、SOI 基板を用いたスラブ導波路で増幅度が向上する結果を得ている。蛍光寿命の温度変化および励起強度依存性の結果から反転分布形成を検証している。実際、弱励起では間接遷移特有の長い寿命が観測される一方、励起密度の上昇にともなって誘導遷移に起因すると考えられる特徴的な速い減衰成分がパルス励起直後に現れることが示されている。

最終章である第 5 章では全体の総括と研究の展望について述べている。

以上、本論文は Si 中に埋め込んだ III-V 族化合物半導体量子ドット構造の作製にはじまり、理論予測にもとづいた新しい原理による輻射再結合過程の制御と、高効率蛍光はもとより低温環境下ではあるもののシリコン系材料ではじめての近バンド間遷移による光増幅を光・電流励起双方の条件で検証しており、学術的な価値は極めて高いと評価できる。なお、本論文は深津晋、川本清、菅原由隆、石田和外、安原望らとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって試料の作製、評価および理論計算を行った。したがって本審査委員会は博士 (学術) の学位を授与するにふさわしいものと認定する。