

論文内容の要旨

論文題目「GaAs および InGaAsP 系単一量子細線の低温顕微発光分光」

(Microscopic photoluminescence spectroscopy of GaAs and InGaAsP single quantum wires at low temperature)

氏名 伊藤弘毅

半導体量子細線は20年以上も前から1次元状態密度の発散に基づくレーザー性能の劇的な向上や1次元励起子(電子と正孔のCoulomb相互作用による束縛状態)の結合エネルギーと振動子強度の極端な増大などの可能性が指摘されて興味を惹かれてきた。様々な作製法により多様な量子細線が実現されてきたものの、作製と試料評価上の困難がボトルネックとなり期待された性能向上や新奇物理の検証はまだ不十分である。本論文ではそれら1次元性の発現のための高品質な半導体量子細線の開発、即ち低温顕微発光分光を通じて量子細線系の電子状態を議論し、品質向上に資することを目的とする。特に品質と制御性に優れた2種類の量子細線を研究対象として選択し、発光測定を通じた評価・開発を行い、議論を展開するとともに今後のための指針を得た。曖昧さのない単一量子細線系を中心に測定を行った。

本論文は4つの部から構成される。第I部には量子細線の歴史と研究の意義を記した。以下、その各々について要旨を述べる。

第II部(第2、3章)には実験方法を記した。

第2章においては低温実験を行うために不可欠な顕微クライオスタット装置について述べた。当該装置においては内部の汚染発生の問題が広く認識されており、研究に先立ち解決する必要があるが、残留気体解析により原因を特定し、改善策を示した。またS/N比良い測定のための改造について記した。

第3章においては本論文で用いられた、発光(PL)及び発光励起(PLE)測定を行うための実験系についての技術的な事項についてまとめた。小型堅牢な顕微分光測定系を新たに開発することで、S/N比の良い効率的なPL評価とそのフィードバックによる高品質試料開発が可能となった。

第III部(第4、5、6章)にはGaAs系T型量子細線について記した。

第4章には作製法とこれまでの研究報告の詳細を記した。図1にT型量子細線(T-wire)の模式図を示した。これは分子線エピタキシ法によって2

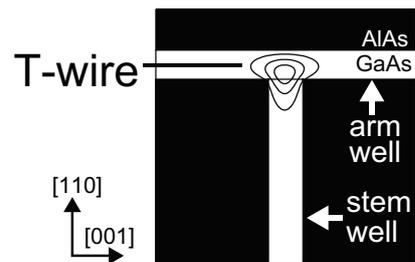


図1 T型量子細線構造の模式図

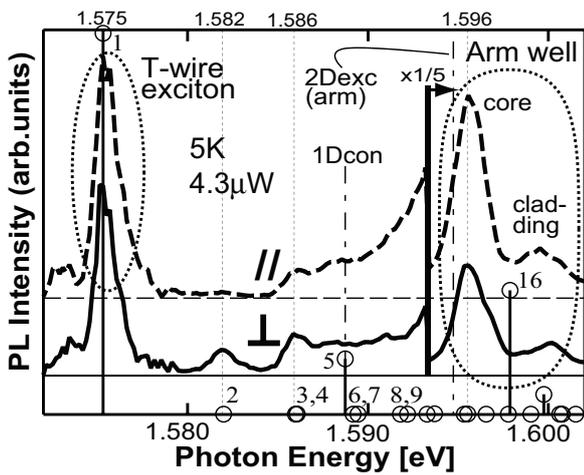


図2 14nm x 6nm T型量子細線の偏光依存発光励起スペクトル

と大差ないが、吸収の形状においてこの1次元性が観測されている。本研究ではさらに強い1次元性の実現を目指し、最も閉じ込めの強いAlAsバリアを持つ5nm x 5nm構造を設計した。

第5章では実際の試料構造とPL測定を通じた開発過程について述べた。構造揺らぎの影響が1次元性の検証を妨げるため高品質試料の開発が必須であり、PL評価を通じて結晶成長条件と設計の最適化を行った。図3はPLスペクトルを示すが、本研究の試料、過去報告された同様な構造のT型量子細線及び量子井戸のものである。試料開発を通じ、量子井戸構造(図中Stem well)及び量子細線のPL半値全幅は1.0meVないし1.5meVと過去のもの比べて約1桁の先鋭化を達成した。これはこの構造の量子井戸単体としても過去に類を見ない細さであった。このT型量子細線について空間分解PL測定を行ったところ、mmオーダーに渡って1原子層揺らぎに対応するPLピークシフトすら見られない優れた一様性を観測した。また40meVもの大きさに至る閉じ込めエネルギーを系統的に観測できた。

第6章ではその5nm x 5nm構造のPLEスペクトル測定結果について述べた。図4は異なるサイズのT型量子細線の5KにおけるPLEスペクトルを比較したものである。上が14nm x 6nmのもの(図2)、下が5nm x 5nmのもので、励起光の偏光の向きは等しい。5nm x 5nmのものについて、これまでは構造揺らぎに埋もれて観測が不可能であっ

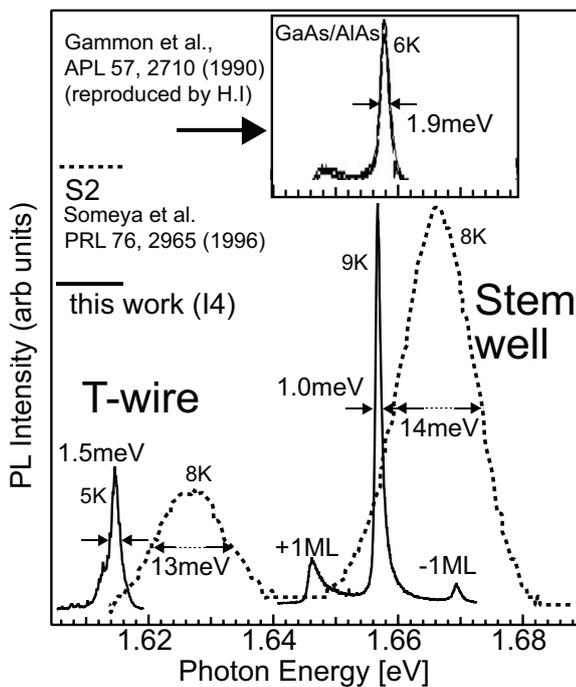


図3 5nm x 5nm T型量子細線の発光幅の尖鋭化

種類の量子井戸を交差させ交線部分に量子細線を形成させるもので、細線サイズは2つの量子井戸の厚みで特徴づけられる。柔軟なパラメータ制御と少ない構造揺らぎが特徴である。図2は過去報告された、14nm及び6nmの量子井戸から作られた14nm x 6nmと表される構造の5Kにおける偏光依存PLEスペクトル(光吸収スペクトルにはほぼ対応)である。偏光依存性から、最も低エネルギー側の大きな吸収ピークの起源が量子細線中励起子の基底状態、10meV程度高エネルギー側の連続的な吸収の起源が連続状態(束縛を断ち切った状態)と同定され、結合エネルギーが13.5meVと見積もられた。さてCoulomb相互作用が強く効いた1次元励起子は、結合エネルギーが大きく、吸収が基底状態で強い一方連続状態では弱く1次元状態密度の発散が見えない、という性質を持つ。14nm x 6nm構造では、結合エネルギーは量子井戸(~12meV)

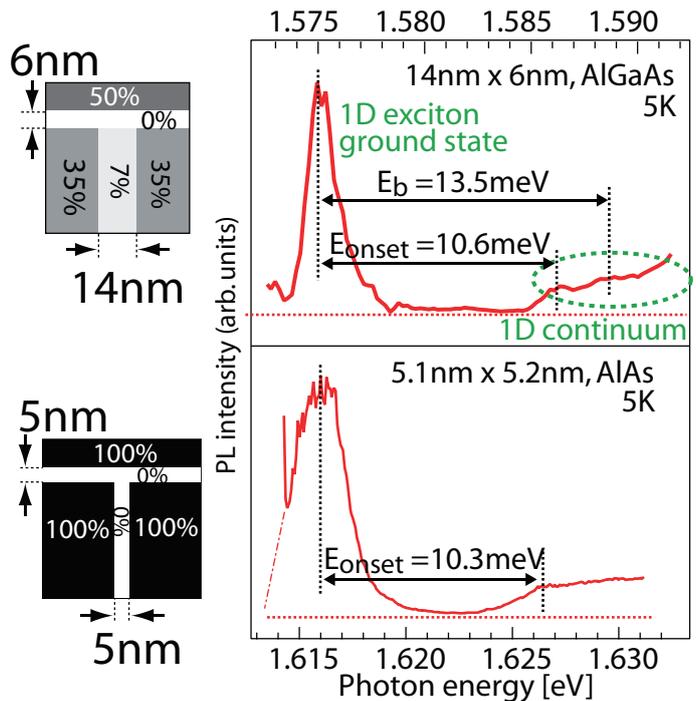


図4 14nm x 6nm及び5nm x 5nm T型量子細線の発光励起スペクトルの比較

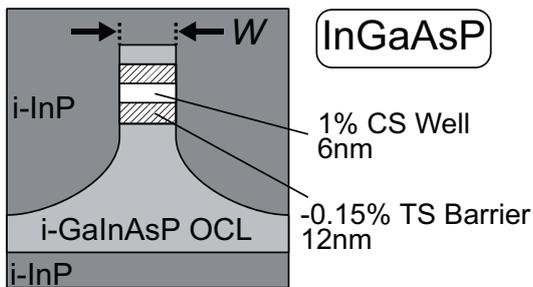


図5 ドライエッチングと埋め込み再成長法による量子細線の断面模式図

た励起子基底状態の吸収と連続状態の吸収を分離して観測することができたが、これは前章で述べた高品質試料開発によって初めて達成できたものである。図からわかるように、高エネルギー側の連続状態吸収に対する低エネルギー側の基底状態吸収は5nm x 5nm構造の方が大きく、吸収の観点で1次元性が增强したことがわかった。だが結合エネルギーは14nm x 6nm構造から殆ど増加していないことがわかった。また一連の測定を通じ、AlAsバリアは閉じ込めが強い一方で試料の歩留りを悪化させ、また系に局在状態の影響を与えることを発見した。特に後者は励起子の1次元性の議論にも影響を与えており、今後閉じ込めの強い量子細線作製のためにAlAsの材料科学的な理解と制御が不可欠であることがわかった。

第IV部(第7,8,9,10章)にはInGaAsP系ドライエッチングと埋め込み再成長法による量子細線について記した。第7章に開発指針と試料の作製方法を記した。図5に量子細線試料の断面模式図を示した。これは有機金属気相成長法による量子薄膜構造を制御性の高いドライエッチング技術によって切り出すことで作製され、細線幅は電子線リソグラフィ工程でほぼ自由に決められる。制御性に富むが、エッチング界面の揺らぎや損傷が性能上のボトルネックとなっており、これに阻まれ1次元性の検証が不十分であった。克服のためには曖昧さの無い単一量子細線系のPL測定とそのフィードバックが不可欠と考え、これを目指した。

第8章では多重量子細線のPLスペクトル測定結果について述べた。単一量子細線のPL測定報告はまだ無いが、

これは実験的な困難によるものである。そこで本研究ではまず発光量の大きい多重量子細線の測定を通じ、材料系や測定系への理解に努めた。幅47nmから24nmまでの量子細線の測定を行い、横方向量子閉じ込めや光閉じ込め層(OCL)の発光を観測した。PL評価を通じ、単一細線作製にあたっては薄膜構造からの再設計が必要であることがわかった。

第9章ではメタルマスクとしてCrを用いた単一量子細線のPLスペクトル測定結果について述べた。試料はPlumwongrotらが開発に成功したメタルリフトオフプロセスによって作製された。幅12nm程度の単一細線の存在があらかじめ走査型電子顕微鏡(SEM)により確かめられていたが、筆者らはこれのPL測定に初めて成功した。細線幅に応じた横方向量子化エネルギーシフトを観測できたが、空間的な一様性には進歩の余地を残していることがわかった。

第10章ではTiマスクを用いて作製された単一量子細線のPLスペクトル測定結果について述べた。Crマスク細線から得られた知見を適用し作製方法が改善された。20本の単一細線が作製され、その幅WがSEMにより評価されたが、39nmから6nmの細きに至るまでの幅が系統的に作製できたことがわかった。これらのPL空間分解測定を行ったところ、空間的な一様性に劇的な向上が見られた。図6は異なる細線幅WのPLスペクトルを規格化して並べたものである。一番上が最も幅が細く、下方ほど太くなり、一番下に量子薄膜構造のスペクトルを示した。系統的なエネルギーシフトが複数のピークに対して観測されたが、うち量子薄膜に収束する様子を見せる図中P2のピークの起源を量子細線内の基底

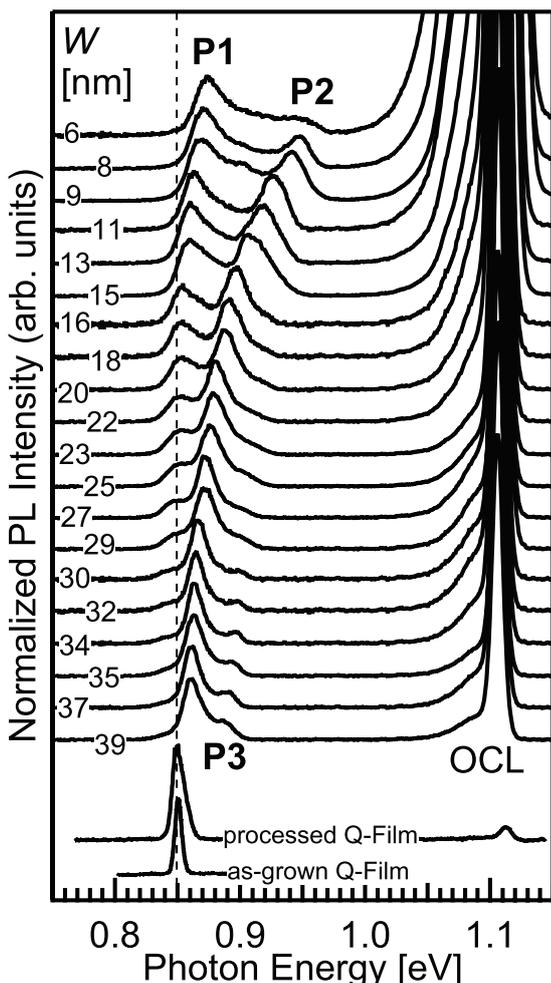


図6 様々な幅を持つTiマスク単一量子細線の4Kにおける発光スペクトル

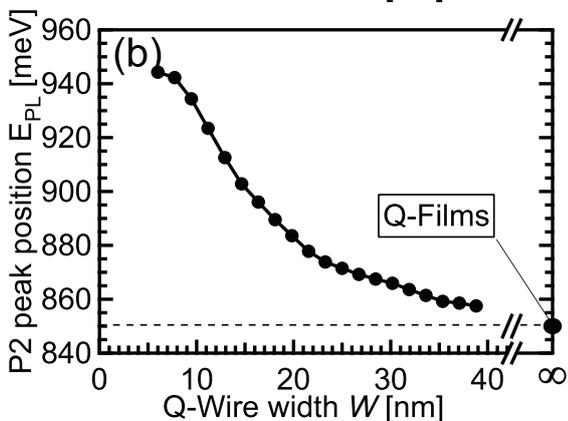
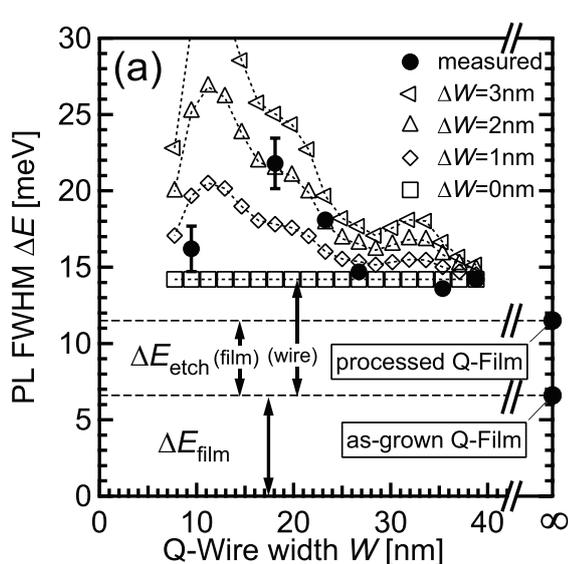


図7 量子細線の発光半値全幅とエッチング界面の揺らぎの関係

これに基づき PL 半値全幅を見積ったのが (a) の白ヌキ図形である。ここでの対応から PL 幅における不均一拡がりの寄与を見積もることができたが、それは 2nm 以下程度の W 揺らぎに対応するものであった。不均一拡がりの存在は昔から問題視されてきたが、本研究ではそれに加えて同程度の拡がりが Ti マスクを通じて導入されていることも明らかになった。図8は量子細線の PL 強度の W 依存性を示す。PL 強度は概ね W の自乗に従って減少しているが、これには W に比例した励起断面積の寄与があるため、それを考慮して PL 量子効率が概ね W に比例することがわかった。この振舞を以下のように理解した：エッチング界面には損傷などで非発光センタが生じるが、その界面におけるキャリアの存在確率は W が細くなるほど高くなるため、PL 量子効率も悪化する。

得られた知見を基に、今後の高品質量子細線のための試料設計や作製方法について提案を行った。各章で考察及びまとめを行ったが、第11章に改めてそれらをまとめた。

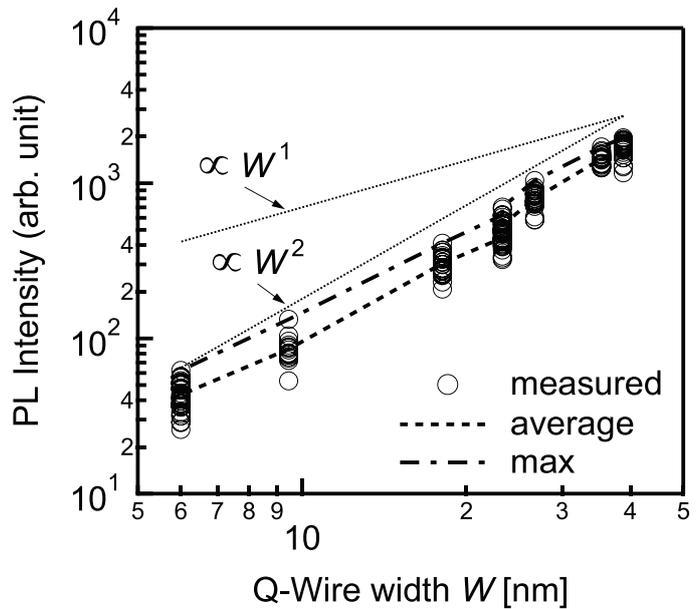


図8 量子細線の発光強度

サブバンド同士の再結合と同定した。これは Plumwongrot らによる数値計算と良く一致した。このシフト量が横方向量子化エネルギーであるが、その大きさは 6nm 細線について 90meV 以上に達した。図7に量子細線の PL 半値全幅とエッチング界面の揺らぎの関係について示した。これは、PL 幅の要因の分解と各々の定量評価のために行った。(a)に PL 半値全幅の実測値 (図中黒丸) と解析結果 (白ヌキ図形) を量子細線幅についてプロットし、(b)には P2 のピーク位置をプロットした。(b)からわかるように P2 のエネルギーは細線幅 W に依存するため、この微分に W の揺らぎ量を掛けることで不均一拡がりを与えられる。

得られた知見を基に、今後の高品質量子細線のための試料設計や作製方法について提案を行った。各章で考察及びまとめを行ったが、第11章に改めてそれらをまとめた。