

論文の内容の要旨

論文題目 光通信デバイスに向けた多重積層 InAs 量子ドットの作製と評価

氏名 高田 彩未

本研究では、光通信デバイスの高性能化が期待される自己組織化量子ドットの高密度化、高品質化に向けて、分子線エピタキシー（MBE）法による自己組織化成長メカニズムの解明と制御技術の確立を目指した。

量子ドットの光デバイスへの応用は低消費電力化や温度特性無依存化の点で優れているが、未だ出力光強度に課題を残している。そこで量子ドットの高密度化が必要となる。この目的に対しては量子ドットの成長方向への多重積層化が最も有効な手段であるが、材料の格子定数差を利用して形成される自己組織化量子ドットでは、格子歪みの蓄積が生じるため、従来方法での多重積層化は難しい。

そこで、歪み補償法の導入により量子ドットの多重積層化による高密度化を達成するための研究を行った。歪み補償法とは、量子ドットの埋め込み層に基板よりも格子定数の小さい材料を用い、系全体の歪みを制御する技術である。本研究では 2 つの材料系について取り扱った。一つは 1.3 μm 帯発光を目指した GaAs(001)基板上 InAs/GaNAs 量子ドット、次は 1.55 μm 帯発光の InP(311)B 基板上 InAs/InGaAlAs 量子ドットであり、いずれも重要な光通信波長帯である。GaAs 上 InAs 量子ドットの多重積層についてはあまり研究例がないが、この材料系での多重積層化技術の確立は極めて重要である。また、InP 上の多重積層化技術は確立してはいるものの、その材料特性は未だよく調べられていない。量子ドットデバイスの可能性を明らかにすべく、その光デバイス応用に向けた特性評価は必須である。本研究では GaAs 系材料の多重積層化および結晶高品質化技術の検討とその評価、InP 系では試料の作製とその光学特性評価について調べ、歪み補償技術を用いた高密度量子ドットの性能について明らかにした。

まず、GaAs 基板上への多重積層 InAs 量子ドットの MBE 成長を行った。本研究では歪み補償中間層として GaNAs 希釈窒化物材料を導入した。GaNAs は少量の窒素原子の添加により GaAs よりも小さい任意の格子定数に制御が可能である。またバンドオフセットの観点からも GaAs より小さいバンドギャップを有する GaNAs を障壁層として用いることで発光の長波長化も期待できることなど利点が多い。本研究では 40 nm 厚の $\text{GaN}_{0.005}\text{As}_{0.995}$ 中間層を用いて GaAs 基板上では初めてとなる 50 層にわたる高均一な多重積層を達成した。このとき室温での PL 測定における発光波長は、GaAs を中間層とした場合に比べて約 84 nm 長波長化し、1191 nm のピーク発光が得られた。しかし、理想的なシングルピークの発光でないことから、量子ドットの基底準位からの発光が効率的に行われておらず、結晶品質の改善が必要であることがわかった。

次に多重積層 InAs/GaNAs 量子ドットの結晶品質改善を行うため、本研究では As 分子線種に注目した。GaAs の結晶成長において、As₂ と As₄ では成長機構が異なることが知られているが、InAs 量子ドットおよび GaNAs 結晶成長時についてはまだ十分に理解されていない。ここでは、まず As₂ および As₄ 分子線を用いて多重積層 InAs/GaNAs 量子ドットを作製し、As 分子線種が InAs 量子ドット成長過程に与える影響について調べた。まず As₂ および As₄ を用いて InAs 量子ドット積層試料を作製したところ、As₄ 試料に比べ As₂ 試料ではサイズ均一性が高く、かつ高密度な量子ドットが得られた。この違いの起源を調べるため、InAs の堆積量を 0 ~ 2.15 ML の範囲で変化させ、量子ドットの形成過程を観察した。その結果、As₂、As₄ 試料では異なる成長過程をたどっていることが明らかになった。As₂ 試料では量子ドットが形成初期から高密度かつ高均一な形状を維持したまま量子ドットサイズが大きくなり、サイズ飽和に達する。一方、As₄ 試料では、量子ドット形成初期には低密度でサイズ均一性の低い量子ドットが形成され、その後、密度および均一性が向上し、サイズ飽和に達することがわかった。また InAs 堆積前の GaNAs 表面の平坦性やモフォロジーも異っていることから、InAs 量子ドットの異なる形成過程の原因は As 分子線種による効果だけでなく、量子ドット成長直前の GaNAs 表面形成にも大きく影響していることが考えられる。次に As 分子線種が GaNAs 結晶に与える影響について調査した。As₂ 分子線を用いることによって、薄膜の平坦性は数原子層程度に抑えられた。また、As₄ 分子線に比べて安定して窒素が取り込まれる As ビーム圧幅が広く、成長条件のウィンドウが広がることが分かった。さらに As 分子線種による成長モードの違いがあることを明らかにした。As₂ 分子線を用いた場合には 2 次元核モード成長が促進され、このとき形成される表面上のステップ密度の高い表面構造が、量子ドットの形成過程に大きく影響を与えていることが考えられる。また、広いビーム圧範囲で安定した窒素の取り込みが見られたのも、これら的高密度なステップ端から窒素が安定して取り込まれた結果であることが考えられる。また、光学特性においては、発光強度は As₂ 試料が As₄ 試料に比べ 2 倍の改善が見られ、発光ピークの温度依存性から見積もられるポテンシャル揺らぎも As₄ 試料の 90.9 meV から As₂ 試料の 78.1 meV に改善された。以上の結果を基に従来の As₄ 分子線に替え As₂ 分子線を用いることにより、GaAs 基板上 InAs/GaNAs 量子ドットの高品質化を行った。

以上の結果を基に、GaAs 基板上 InAs/GaNAs 多重積層量子ドットの成長条件最適化を行い、As₂ 分子線を用いて試料の作製を行った。さらにこれらの積層数を変化させた量子ドット試料における光学利得の評価を行った。試料は堆積量 1.7 ML の InAs 量子ドットと 30 nm 厚の GaNAs 歪み補償層を用いた 10, 30, 50 層試料であり、各量子ドット層 1 シート分の面内密度は $4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ である。評価法は光励起による Variable Stripe-Length 法を用い、デバイス構造に依存しない、結晶そのものの利得を見積もることが可能である。その結果、層数が増加するとともに光学利得はほぼ線形的に増大し、50 層積層時では 34.2 cm^{-1} の光学利得係数が得られた。測定条件としては、励起強度は約 700 W/cm^2 であり、通常のデバイス動作時の電流注入量に比べ少ないキャリア注入ではあるが、無積層の GaAs 上 InAs 量子ドット

トの光学利得係数よりも大きな値が得られる結果となった。これは高品質な量子ドットの多重積層化ができている結果であり、また歪み補償技術を用いることで、GaAs 基板上 InAs/GaNAs 量子ドットの光学利得特性はさらなる増大が可能であることを示している。

次に歪み補償法を用いた高密度量子ドットのデバイス化に向けて、デバイス技術の確立された 1.55 μm 発光の InP(311)B 基板上 InAs/InGaAlAs 多重積層量子ドットを用いて、導波路構造試料の評価を行った。試料は MBE 法により InP(311)B 基板上に堆積量 4 ML の InAs 量子ドットと 20 nm 厚の AlGaInAs 歪み補償層により 5, 10, 15, 20 層試料を作製し、これらを用いてレーザ構造を作製した。L-I 特性評価から内部損失と内部微分量子効率を見積もったところ、積層数の増加に伴いそれぞれ増大し、20 層積層時にはそれぞれ 26.1 cm^{-1} , 28.5% であった。内部微分効率の増大は量子ドット密度増加による利得増大の結果と考えられる。一方、内部損失の増大は閉じ込め構造による電場の浸み出し、および量子ドットによる屈折率の揺らぎが原因と考えられ、今後閉じ込め構造の評価および検討が必要である。

以上より、歪み補償法による量子ドットの高密度化はデバイス特性においても利得増大に有効であることを明らかにした。また閉じ込め構造の最適化により、さらなる高効率化を達成できることが予想される。