博士（工　学）　松　村　直　樹

学 位 論 文 題 名

Lattice deformation and Ga diffusion concerning InAs self-assembled quantum dots on GaAs (100)

(CaAs (100)基板上のInAs自己集合量子ドットにおける格子歪とCa拡散)

学位論文内容の要旨

数ナノメータスケールの半導体量子ドットは、既存デバイスの高性能化だけでなく新たな高機能素子を実現できる可能性があり、広く研究が行われている。特にInAs/GaAsなど格子不整合系ヘテロ成長の初期に出現する島状成長を利用した自己集合量子ドットは、高品質な結晶が簡便に得られることもあり、90年代半ばより通信用レーザなど実用的な半導体光デバイスへの応用に向けて研究・開発が活発化してきている。しかし、その形成機構に関しては、成長の初期段階では，基板の格子定数に合うように層状に成長し、ある一定の供給量を超えたところから，自然にドット構造が作られるという現象論的な理解はあるものの、原子レベルでの実験的検証に乏しいのが現状である。実用に供する高性能・高機能な量子ドットデバイスに向けては、形成機構を究明し、形状・組成などその構造特性を自在に制御していく必要がある。

本研究の目的は、InAs自己集合量子ドットにおいて重要な役割を持つInAsドットの格子歪（GaAs原子列からの格子変位）が成長条件によってどのように変化するのかを原子レベルで明らかにすることで自己集合量子ドットの成長機構に対する知見を得るとともに、所望の構造特性，光学特性を有する量子ドットデバイスの作製のための指針を得ることである。

本論文は全六章から構成されている。

第一章では、序論としてInAs自己集合量子ドット研究に関する現状と、作製における問題点について紹介し、本研究の目的と意義について言及する。

第二章では、自己集合量子ドットの作製原理であるStranski-Krastanow成長と作製手法である分子線エピタキシー法について言及する。

第三章では、格子変位を原子レベルで評価するためのイオンチャネリング法について説明し、チャネリング現象を実際に観測する手段としてRutherford後方散乱(RBS)法と粒子励起X線分光(PIXE)法の原理について説明する。また、RBS法とPIXE法を用いて、従来成長速度から推定するしかなかった数分子層のInAs供給量を実測する方法を明らかにしている。

第四章では、InAs自己集合量子ドットにおけるGaAs基板からの格子変位がInAs供給量に対してどのように変化するのかを調べた結果について述べている。その結果、InAsドットの格子変位は、ドットの平均直径と正の相

関を持ち、InAs 供給量に対して強い依存性を持つことがわかった。特にドットが形成される 1.5 分子層 (ML) 付近でドットサイズは大きく、かつ大きく変位しているが、それから若干供給量が増えた 1.8ML 付近でドットサイズは急激に小さくなり、かつ格子変位も同様に小さくなることで、GaAs 原子列に対して整列しようしていることがわかった。ドットの格子変位が小さくなることで周辺格子の変位も小さくなっているが、Ga のみがそれに反して、格子変位が大きくなっている。このことから、Ga は InAs へ拡散することで GaAs 基板から変位しているために大きく変位していると考えられる。そこで、InAs/GaAs 選択性の非常に強い濃塩酸による化学エッチングと RBS を用いて InAs ドットに Ga が拡散していることを明らかにし、それが Ga の原子変位と関連していることを明らかにした。拡散も格子変位同様に InAs 供給量に依存し、特にドットが形成される最小の供給量では拡散はほとんど起こっていないのに対し、ドットのサイズが急激に小さくなった段階で拡散が起こっていることを明らかにした。この結果から、自己集合成長には、1. 拡散の起こっていない層状成長、2. 拡散の起こっていない島状成長、3. 拡散の起こっている島状成長、の 3 つのモードがあることを明らかにした。

第五章では、InAs 自己集合量子ドットの格子変位が InAs 供給後から GaAs キャップ層を成長させるまでの成長中断時間に対してどのように変化するのかを調べた。その結果、Ga 拡散は、成長中断 0-30 秒では抑制され、30-90 秒で促進され、以降飽和することを明らかにした。また InAs ドットの格子変位は、0-30 秒で急激に大きくなり、60-90 秒で緩やかに増加、そしてそれ以降では飽和することを明らかにした。このことから、0-30 秒では成長中断後に GaAs キャップ層から拡散し、30-90 秒では成長中断中に下地の GaAs から拡散が起こり、90 秒以降では拡散が飽和していることを明らかにした。そして、格子変位の振る舞いとの比較から、0-30 秒での拡散中、ドットの格子変位は大きくなっていることから、格子変位の増大によって拡散が抑制されていると解釈された。

第六章は結論であり、本研究で得られた結果をまとめ、本研究の意義を総括した。本研究によって得られた結果は以下の通りである。1. ドットサイズが大きいほど格子変位も大きくなる、2. 格子変位が大きくなることで InAs ドットへの Ga 拡散は抑制される、3. 格子変位が小さくなることで InAs ドットへの Ga 拡散は促進される。

本研究によって得られたこれらの結果は、InAs 自己集合量子ドットの組成が歪によって変化し、歪は InAs 供給量および成長中断時間に依存することを意味する。所望の構造・組成・光学特性を持つ量子ドットデバイス作製のための指針を与えるものとして意義がある。

学位論文審査の要旨

主　査　　教　授　　武　藤　俊　一

副　査　　教　授　　山　谷　和　彦

副　査　　教　授　　末　宗　幾　夫

学　位　論　文　題　名

Lattice deformation and Ga diffusion concerning InAs self-assembled quantum dots on GaAs (100)

(CaAs (100)基板上のInAs自己集合量子ドットにおける格子歪とCa拡散)

半導体の量子閉じ込め構造は、薄膜を別の２層で挟んだサンドイッチ構造、いわゆる量子井戸構造において様々な学術的知見が得られ、またレーザーやトランジスタなどの応用にも結びついた。究極の閉じ込め構造といえる量子ドットについては、潜在的なポテンシャルの高さは予測されながら、作製の困難さ、作製に伴う損傷の問題から研究が遅れていたものである。しかし近年、異なる格子定数を持った半導体を積層することによる歪みヘテロ接合での半導体の自己集合特性を用いて良好な光学的性質を有する量子ドットの形成が可能となった。数多くの研究報告がなされ、またレーザー応用を目指した開発も活発に行われている。しかしながら、その形成の原子レベルのメカニズムに関しては、理論的提案は数多くあるものの、実験的評価が十分とは言えない段階にある。

本論文では分子線結晶成長法により作製されたInAs/GaAs自己集合量子ドットについて、原子レベルの歪みに極めて敏感なイオンチャネリングという実験手法を用い、構造を評価したものである。その結果、各元素の詳細な振る舞いが明らかになると共に、Gaの拡散が明らかとなった。拡散の実証は、英国インペリアルカレッジと同時期であるが世界初のことである。更に詳細な検討の結果、Gaの拡散は、量子ドットの大きさに依存すること、量子ドットの歪みが拡散の引き金になっていると解釈できることが明らかとなった。拡散は量子ドットレーザーの発振波長を決める重要な要素でもあり、その制御に対する指針を示したものともいえる。

本論文は全六章から構成されている。

第一章では、序論としてInAs自己集合量子ドット研究に関する現状と、作製における問題点について紹介し、本研究の目的と意義について言及する。

第二章では、自己集合量子ドットの作製原理であるStranski-Krastanow成長と作製手法である分子線エピタキシー法について言及する。

第三章では、格子変位を原子レベルで評価するためのイオンチャネリング法について

説明し、チャネリング現象を実際に観測する手段としてRutherford後方散乱(RBS) 法と粒子励起X 線分光(PIXE) 法の原理について説明する。また、RBS 法とPIXE 法を用いて、従来成長速度から推定するしかなかった数分子層のInAs 供給量を実測する方法を明らかにしている。

第四章では、InAs 自己集合量子ドットにおけるGaAs 基板からの格子変位がInAs 供給量に対してどのように変化するのかについて調べている。その結果、InAs ドットの格子変位は、InAs 供給量に強く依存することがわかった。特にドットが形成される1.5分子層(ML) 付近でドットサイズは大きく、かつ大きく変位しているが、それから若干供給量が増えた1.8ML 付近でドットサイズは急激に小さくなり、かつ格子変位も同様に小さくなりGaAs 原子列に整列しようとすることがわかった。ドットの格子変位が小さくなることで周辺格子の変位も小さくなっているが、Gaの格子変位のみが逆に大きくなっている。このことから、Ga はInAs へ拡散することでGaAs 基板から大きく変位していると考えられた。そこで、濃塩酸による化学エッチングとRBS を用いてInAs ドットにGa が拡散していることを確認した。拡散もInAs 供給量に強く依存し、ドットが形成される最小の供給量では拡散はほとんど起こっていないのに対し、ドットのサイズが小さくなった段階で拡散が起こっていることを明らかにした。大きなInAsドットではInAs本来の格子定数に近く、歪みが小さい。逆に、小さなドットではInAsが大きく歪んでいることから、歪みが拡散を促進していることが示唆された。

第五章では、InAs 自己集合量子ドットの格子変位がInAs 成長後、GaAsキャップ層を成長させるまでの成長中断時間に対してどのように変化するのかを調べた。その結果、Ga 拡散は、成長中断0-30 秒では中断時間の増加とともに抑制されることがわかった。0-30 秒での拡散中、ドットの格子変位は中断時間とともに大きくなっていることから、格子変位の増大に従って、すなわち、InAsが本来の格子定数に戻るに従って、拡散が抑制されていると解釈された。

第六章は結論であり、本研究で得られた結果をまとめた。

これを要するに、著者は自己集合量子ドットの原子レベルでの歪みを明らかにし、量子ドットでの原子拡散を実測し、更に拡散と歪みの関係を明らかにしたものである。この知見は半導体工学、応用物理学の発展に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。