

学位論文題名

半導体自己集合量子ドットの結晶成長と構造評価

学位論文内容の要旨

半導体デバイスは、現在、微細化・集積化による性能の向上を続け、急速な進歩を遂げている。しかし、この進歩もいずれは限界に到達するといわれており、新しい原理で動作するデバイスの必要性が叫ばれている。半導体量子ドットは、この新しい原理で動作するデバイスを実現する可能性を秘めている。

本研究の対象は、分子線エピタキシー (MBE) の Stranski-Krastanow モード (S-K モード) で成長させた量子ドット、すなわち自己集合量子ドットである。S-K モードとは、基板にはじめに層状成長がおり、これが島状成長に移り変わるという、成長形態のことである。この島状成長によってできた島が自己集合量子ドットである。本研究で扱った GaAs 基板上的 InAs 成長は、S-K モードの典型例であるといえる。

量子ドットの形成は、臨界核によって特徴づけられる。臨界核は、自由エネルギーが極大になる大きさの島のことである。MBE における結晶成長は、基板に供給した材料の原子が基板に吸着して吸着原子となり、表面を走り回り、やがて結晶に取り込まれることでおこる。量子ドットの形成は、吸着原子どうしが偶然、衝突して臨界核が形成することによっておこる。臨界核は周囲の吸着原子を取り込むことで急速に大きくなる。臨界核は量子ドットができるときのいわば関所にあたる大きさである。本研究では、とくに、原子が何個集まると臨界核が形成されるのかということに着目した。このことは、S-K モードという奇態な成長形態を理解する上で重要である。

本論文は 8 つの章で構成されている。以下にその概要をのべる。

第 1 章では、半導体デバイスをめぐる状況についてのべたあと、量子ドットという概念について説明し、本研究で取り上げた自己集合量子ドットについて説明している。

第 2 章では、実験方法についてのべている。本研究では、MBE で結晶成長をおこない、透過型電子顕微鏡 (TEM) と原子間力顕微鏡 (AFM) で構造解析をおこなった。これらの方法について、本研究でおこなった実験に即して具体的に説明している。

第 3 章では、量子ドット多層構造の作製についてのべている。ここでいう多層構造とは、InAs 量子ドット層と GaAs の厚い (本研究では 70 nm) 中間層とを交互に積層させることによって、量子ドット層どうしを分離させた積層構造のことであり、量子ドットを利用したホールバーニングメモリに必要な、高面積密度構造の実現をめざして作製したものである。20 層の量子ドット層からなる多層構造において、すべての InAs 層で量子ドットの形成を確認した。これによってホールバーニングメモリに必要な構造を得られる見通しを得た。また、量子ドット

ト層から発生した貫通転位を観察した。この貫通転位は、In の供給量を減少させることによって発生を抑制できるので、メモリの実現の妨げにはならないことがわかった。

第4章では、第3章で観察した貫通転位の性質を明らかにするため、単層構造でくわしい観察をおこなった。格子緩和した InAs の大きな島から貫通転位が発生していた。この貫通転位はしばしば2本が対になって観察されたが、対でハーフループを形成しているわけではなく、2本の転位がそれぞれ独立した転位だった。転位は、はじめに(001)面の中で 60° 転位として発生し、{111}面にそって立ち上がることによって 30° 転位になったと説明された。

第5章では、量子ドットの形成機構を明らかにするため、量子ドットを温度をかえて成長させ、密度の変化を明らかにした。量子ドットの面積密度の Arrhenius プロットは直線的な傾向を示し、傾きから得られた活性化エネルギーは2.0 eV であった。この結果は、他の研究の結果とも一致し、2.0 eV という値はS-Kモードに共通の普遍的な値であることがわかった。この結果を理解するために、吸着原子という描像にもとづいて、臨界核を考慮したモデルをたて、島の密度を表す式を求めた。その式によって、密度の変化を支配する活性化エネルギーから、Inの吸着原子の表面拡散の活性化エネルギーは4.0 eV と求められた。この値は、従来の予想(~ 1 eV)とくらべ、大きすぎる値であった。予想との解離は、モデルが単純すぎることに帰せられた。

第6章では、量子ドット近接積層構造を作製した。この近接積層構造は、量子ドットをレーザダイオードの活性層として利用する、量子ドットレーザを実現させる可能性をもつ。近接積層構造は、InAs 量子ドット層と薄い(< 10 nm) GaAs 中間層とを交互に積層させたものである。断面 TEM 観察では、量子ドットが成長方向に積み重なったコラム(円柱)構造が観察された。量子ドットのサイズと面積密度の中間層厚に対する変化を求めた。サイズと密度の変化を、近接積層構造においてすでに知られている現象を考慮し、包括的に説明することができた。

第7章では、量子ドットの形成機構を明らかにするため、第5章で得られた量子ドットの面積密度の成長温度に対する変化についてさらに検討を加えている。吸着原子という描像にもとづいて導出された、島の密度を表す式を実験結果に適用した。この式は、臨界核サイズを考慮したモデルから導き出されたものである。ここで用いたモデルは、第5章のモデルでは無視した臨界核より小さい島のサイズ分布を考慮するなど、より精密なモデルである。第5章で求めた、Arrhenius プロットの傾きから得られた活性化エネルギー2.0 eV から、臨界核に含まれるIn原子の数は10以下と求められた。活性化エネルギーがS-Kモードに共通の普遍的な値であることから、臨界核に含まれる原子の数もまたS-Kモードに共通であると結論づけられた。以上のように、吸着原子という描像にもとづいて、S-Kモードによる量子ドットの形成に矛盾のない説明を与えることができた。

第8章では、全体を総括している。

最後に、本研究で新たに明らかになった結果のうち主なものは、以下のとおりである。(1) 量子ドットの密度の温度変化と臨界核とを関連させて議論することができた。(2) 量子ドットの密度の変化を支配する活性化エネルギーは2.0 eV であり、この値は、S-Kモードに共通する普遍的な値であり、成長条件に依存しない。(3) InAs 量子ドットの臨界核を構成する原子の数は10以下である。

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 石 政 勉

学位論文題名

半導体自己集合量子ドットの結晶成長と構造評価

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になり、数多くの研究報告がなされた。レーザー、光増幅器、量子計算など応用を目指した研究開発も行われている。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、提案は数多くあるものの、実験的検証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 InAs/GaAs 自己集合量子ドットを成長し、主として原子間力顕微鏡および透過電子顕微鏡により結晶構造を評価した。内容は大きく2つに分かれる。前半は、量子ドットのデバイス応用を目指した構造についての研究である。量子ドットの実効断面積を向上することを目指した積層構造については、主として透過電子顕微鏡による断面の原子像を観察することにより、光デバイスに特に障害となる転位の発生機構を議論した。また、量子ドットの発光波長の均一化を目指した近接積層構造については、得られた構造と従来の量子ドット形成機構の提案との比較を行った。後半では、より基礎的な研究として、量子ドットの面積密度の成長温度依存性を調べた。その結果、量子ドットの占有面積の温度依存性が、いわゆるアレニウス則に乗ることを初めて見出した。この結果は、著者らとは異なる研究グループの報告をも含めて、半導体材料の供給量、半導体材料、成長方法に依存しない、普遍性を持つことも明らかにした。アレニウス則から得られた活性化エネルギーの値は、単純な表面拡散理論と較べると不可解なものであったが、検討の結果、量子ドットの形成における臨界核の効果を考慮すると矛盾なく説明できることが分かった。得られた臨界核の大きさは10以下であり、従来報告された値と矛盾しないが、より精度の高い結論であると考えられる。

本論文は全8章から構成されている。

第1章では、半導体デバイスをめぐる状況について述べたあと、量子ドットという概念

について説明し、本研究で取り上げた自己集合量子ドットについて説明している。

第2章では、実験方法について述べている。本研究では、MBEで結晶成長を行い、透過型電子顕微鏡 (TEM) と原子間力顕微鏡 (AFM) で構造解析を行った。これらの方法について、本研究で行った実験に即して具体的に説明している。

第3章では、量子ドット多層構造の作製について述べている。20層の量子ドット層からなる多層構造において、すべての InAs 層で量子ドットの形成を確認した。また、量子ドット層から発生した貫通転位を観察した。この貫通転位は、In の供給量を減少させることによって発生を抑制できるので、メモリの実現の妨げにはならないことがわかった。

第4章では、第3章で観察した貫通転位の性質を明らかにするため、単層構造で詳しい観察を行った。

第5章では、量子ドット近接積層構造を作製した。この近接積層構造は、量子ドットをレーザダイオードの活性層として利用する、量子ドットレーザ等への応用の可能性をもつ。近接積層構造は、InAs 量子ドット層と薄い (<10 nm) GaAs 中間層とを交互に積層させたものである。断面 TEM 観察では、量子ドットが成長方向に積み重なったコラム (円柱) 構造が観察された。量子ドットのサイズと面積密度の中間層厚に対する変化を求めた。サイズと密度の変化を、近接積層構造においてすでに知られている現象を考慮し、包括的に説明することができた。

第6章では、量子ドットの形成機構を明らかにするため、量子ドットを温度をかえて成長させ、密度の変化を明らかにした。量子ドットの面積密度の Arrhenius プロットは直線的な傾向を示し、傾きから得られた活性化エネルギーは 2.0 eV であった。この結果は、他の研究の結果とも一致し、2.0 eV という値は S-K モードに共通の普遍的な値であることがわかった。

第7章では、量子ドットの形成機構を明らかにするため、第6章で得られた量子ドットの面積密度の成長温度に対する変化についてさらに検討を加えた。吸着原子という描像にもとづいて導出された、島の密度を表す式を実験結果に適用した。この式は、臨界核サイズを考慮したモデルから導き出されたものである。第6章で求めた、Arrhenius プロットの傾きから得られた活性化エネルギー 2.0 eV から、臨界核に含まれる In 原子の数は 10 以下と求められた。

第8章では、全体を総括している。

これを要するに、著者は自己集合的に形成される半導体量子ドットの成長温度依存性において、半導体材料の供給量、半導体材料、成長方法に依存しない、普遍的法則を見出し、量子ドットの形成機構に関する重要な知見を得た。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。