Sb 原子による表面・界面改質効果を利用した InAs 量子ドットの自己形成制御

山口浩一, 菅藤 徹, 太田雅彦

電気通信大学電気通信学部電子工学科 ☎ 182-8585 東京都調布市調布ヶ丘 1-5-1

(2006 年 8 月 3 日受理)

Self-formation Control of InAs Quantum Dots using Surface and Interface Modification Effects by Sb Atoms

Koichi YAMAGUCHI, Toru KANTO and Masahiko OHTA

Department of Electronic Engineering, The University of Electro-Communications
1-5-1 Chofugaoka, Chofu, Tokyo 182-8585

(Received August 3, 2006)

We demonstrated a fabrication method for high-density and high-uniformity InAs quantum dots (QDs) on Sb-terminated GaAs(001) buffer layers using molecular beam epitaxy (MBE) of Stranski-Krastanov (SK) mode. The high-density formation of QDs is caused by the initial formation of 2-dimensional wire structures and small islands, which are induced by a surface exchange reaction of Sb atoms and As atoms. The surface segregation of Sb atoms also suppresses coalescence between neighboring QDs. In addition, the non-radiative recombination process is effectively suppressed by developed Sb-termination conditions. Furthermore, we found a new in-plane self-arrangement of high-density InAs QDs on the GaAsSb/GaAs(001) buffer layers.

1. は じ め に

Stranski-Krastanov (SK) 成長モードを基礎とする半導体量子ドットの自己形成法^{1~5)}についてはすでに 15 年以上もの基礎的な研究が進められ, SK 成長条件の検討だけでなく, 量子ドット成長前後のバッファ層や埋め込み層の検討, そして積層成長などの検討も含め多くの量子ドット成長に関する報告がなされている。こうした量子ドットの自己形成に関する基礎研究の成果を土台として, 現在では量子ドットレーザ⁶⁾, 単一光子発生器⁷⁾や単電子系デバイス⁸⁾などの量子ドットを用いた様々なデバイスの試作開発が活発に進められている。今後さらに自己形成量子ドットの作製制御技術を発展させ, 量子ドットデバイスの実用化および多くの新奇量子ドットデバイスの応用開発を推進するには, SK 成長における種々の新しい材料系の開拓や通常の SK 成長法の形成制御範囲を超える新たな手法の導入が必要であると考えられ

る。

量子ドットレーザなどへの応用の場合, 光通信波長帯の発光波長を有することに加え, 量子ドットの高均一化と高密度化⁹⁾そして高い結晶性の全てを満たす必要があるが, 通常の SK 成長モードによる量子ドットの自己形成では, 高均一・高密度・高結晶性を満足する成長条件の確立は難しい。後でも述べるが, その具体例として, 量子ドットの高均一化において重要なマイグレーションの促進条件ではドット密度は低下し, またサイズ制限効果による高均一化では, 成長量のわずかな増加によってドット同士のコアレッセンスが増加し, その結果転位密度も増加するために成長量の精密な制御が必要となる。さらにドットの高密度形成においてはドットの不均一性の問題だけでなく, ドット間の近接によるコアレッセンスの促進, そして高密度化に伴う歪量の増大が埋め込み成長や積層成長における転位発生の問題などを生じる。このように通常の SK 成長における成長条件の検討だけでは高密度・高均一・高結晶性を達成することは容易ではない。

E-mail: kyama@ee.uec.ac.jp

最近我々は GaAs バッファ層上に Sb 原子を含む下地層を導入し、SK 成長における表面・界面改質効果を図ることにより、従来の InAs/GaAs 系の SK 成長条件による量子ドット構造の制御範囲を拡張し、従来法では困難であった量子ドットの高密度化と高均一化を比較的容易に実現できることに成功した¹⁰⁾。通常、Si 基板上の Ge のヘテロ成長などにおける Sb 原子の導入では、3 次元ドット化の抑制や界面ラフネスを抑制したサーファクタント効果として働くことがよく知られている¹¹⁾。しかし、本研究における Sb 原子の表面改質効果は、従来法とは異なる Sb 原子の導入方法や導入量の精密な制御によって量子ドット構造を大幅に変化させることが可能であることを示すものであり、そうした量子ドットの高密度化とその光学特性について 3 節で述べる。

また量子ドットの基板面内における配列制御もデバイス応用上の重要な技術の 1 つである。量子ドットの面内配列方法として、リソグラフィーやエッチングなどによるパターン加工基板を用いた選択成長¹²⁾の他に、高指数面基板を用いた方法¹³⁾や量子ドットの積層成長における歪の異方性を利用した自己配列形成法^{14, 15)}についての報告がなされている。しかし、通常の (001) 面基板上でしかも単層の量子ドット成長における面内自己配列形成の報告はほとんどない。本研究では、通常の GaAs (001) 層上に GaAsSb バッファ層を導入することにより、単層の InAs 量子ドット成長においても面内に 2 次元的な自己配列が起こることを初めて見出した¹⁶⁾。詳細なメカニズムについては現在も検討中ではあるが、その面内自己配列形成について 4 節で紹介する。

2. MBE 成長条件と試料構造

Fig. 1 は分子線エピタキシ (MBE) 成長により作製した 2 種類のサンプル構造である。Fig. 1 (a) は 3 節で述べる InAs 量子ドットの高密度化のための基本構造で、GaAs (001) 基板上に 590℃ で GaAs バッファ層を成長した後、500℃ で Sb₄ を照射することによって GaAs 表面の Sb 終端化処理を行った。この時の Sb₄ 照射時間に対する反射高速電子線回折 (RHEED) の鏡面反射ビーム強度の変化を Fig. 2 に示す。Sb₄ 照射によって鏡面反射ビーム強度は低下するが、極小値を示した後強度は回復し、その後緩やかに低下する様子が観測された¹⁷⁾。Sb₄ 照射前に観測された GaAs 表面の c(4×4) の RHEED 像は、鏡面反射ビーム強度が極小値を示した付近から (1×3) 構造に変化し、Sb 終端化による新たな表面構造が形成されたことを示している。ここでは Sb₄ 照射による鏡面反射ビーム強度の極小値までの時間を T_{min} とし、この倍数で Sb 照射量を表した。こうして作製した Sb

Fig. 1. Schematic diagrams of sample structures. Sb-terminated GaAs buffer layers (a) and GaAsSb/GaAs buffer layer (b) were prepared prior to the InAs QD growth.

Fig. 2. RHEED specular-beam intensity as a function of Sb₄ irradiation time. The substrate temperature was 500 °C. The RHEED pattern changed from c(4×4) to (1×3) during the Sb₄ irradiation. The time at minimum intensity was denoted as T_{min}.

終端化 GaAs (001) 表面上に InAs 量子ドットの SK 成長を行った。基板温度は 500℃, InAs 成長速度は 0.035 分子層 (ML)/s, InAs 成長量は 2~4 ML とした。

Fig. 1 (b) は 4 節で述べる InAs 量子ドットの面内自己配列用の試料構造で、GaAs バッファ層の成長後、GaAsSb 層を 450℃ で 10 ML 成長した。このときの As₄ に対する Sb₄ の入射フラックス比は 0.08 から 0.13 とし、フラックス比 0.13 で成長した GaAsSb 層の Sb 組成は X 線回折実験より約 0.26 であった。GaAsSb バッファ層を成長した後続けて GaAs 層を 2 ML 成長し、その後 500℃ で InAs 量子ドットの SK 成長を行った。この時の InAs 成長速度は 0.035 ML/s, InAs 成長量は 2~4 ML とした。フォトルミネッセンス (PL) 測定用の試料では (a), (b) 両試料共に 460℃ で GaAs 層 (100 nm) による埋め込み成長を行った。

3. 高密度 InAs 量子ドットの自己形成

Fig. 3 (a) は、通常の GaAs (001) バッファ層上に低成長速度 (0.035 ML/s), 低 As 圧 (4×10^{-5} Pa) の条件において InAs 量子ドットを形成したときの原子間力顕微鏡 (AFM) 像である。このような条件では安定な {110} ファセット面が形成され、ドットサイズが自己制限され

Fig. 3. AFM images of InAs QDs, grown respectively under two different growth conditions: (a) low growth rate of 0.035 ML/s and low arsenic pressure of 4×10^{-5} Pa, (b) high growth rate of 0.17 ML/s and arsenic pressure of 8×10^{-5} Pa.

た均一性の高いドット構造を得ることができるが¹⁸⁾, ドット密度は $3 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ 程度と十分ではない。高いドット密度の形成は、一般に低い基板温度, 高い成長速度, 高い As 圧の条件において得られやすいが, この場合はドットの均一性が悪くなるだけでなく, ドット密度の増加によって近接したドット同士がコアレスセンス(合体)を起こし, 転位を発生しやすくなる。Fig. 1 (b) は主に成長速度を 0.17 ML/s に増加させた場合の InAs 量子ドットの AFM 像で, ドット密度は約 $7 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ と増加しているが, コアレッセンスによる巨大なドットも比較的多く観察される。

このように量子ドットの高密度形成においてはコアレスセンスによる転位を内蔵した巨大ドットの形成を抑制する必要がある。そこで, コアレッセンスの抑制のために量子ドット成長表面の表面エネルギーの低下が必要であると考え, Sb の導入について検討を進めてきた。Si 上の Ge 成長などで知られているように Sb の導入はサーファクタントとして働き, むしろ 3 次元成長を抑制する効果がある¹¹⁾。最近では, GaAs 上の InGaAs ドットの成長においても Sb を導入することによりドット密度が低下するサーファクタント効果が報告されている¹⁹⁾。しかし, 本研究においては従来の Sb 導入法とは異なり, Fig. 1 (a) のようにドット形成前の下地 GaAs 層表面上に Sb 原子を 1~2 原子層程度導入するもので, この Sb 層上に InAs 成長を行うと, 表面 Sb 原子の一部が As 原子と交換反応を起こし²⁰⁾, 表面偏析した Sb 原子を通して InAs 量子ドットを自己形成させるものである。つま

Fig. 4. AFM image (a) and plan-view TEM image (b) of high-density InAs QDs grown on Sb-terminated GaAs(001) buffer layer.

り, 通常の Sb サーファクタント効果の場合には, 成長表面上に過剰に浮き上がった Sb 表面層が成長表面のエネルギーを大きく低下させるのに対し, 本手法の場合は表面偏析した一部の Sb 原子が表面エネルギーをある程度低下させ, さらに GaAs 中もしくは InAs 中に取り込まれた Sb 原子が格子定数の大きい GaSb や InSb として歪エネルギーを増大させる働きもあり, これらの表面・界面の改質効果を利用する点に特徴がある。

Fig. 4 (a) は典型的な Sb 終端 GaAs (001) 層上の InAs 量子ドットの AFM 像である。InAs 成長条件は Fig. 3 (a) と同じ条件であるが, Sb 層を導入することにより InAs 量子ドット密度は $1 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ と極めて高くなることがわかった。しかも高密度にもかかわらずコアレスセンスによる巨大なドットの形成は極めて少ない。Fig. 4 (b) は同試料の平面の透過型電子顕微鏡 (TEM) 像であるが, コアレッセンスによる転位の形跡はほとんど観察されていない。このコアレスセンスの抑制効果は, 上述したように InAs ドット表面やその周辺に表面偏析した Sb 原子による表面エネルギーの低下が要因であると考えられる。また Sb 導入によるドットの高密度化のメカニズムを考察するために, InAs の 3 次元化前の 2 次元成長層について調べた。

Fig. 5 は GaAs (001) 層上 (a) および Sb/GaAs (001) 層上 (b), (c) の InAs 2 次元成長層の AFM 像で, InAs 成長量は全て 1.4 ML である。Sb/GaAs 層上では高さ 1~3 ML の微小な 2 次元島や $[1\bar{1}0]$ 方向に沿った細線構造が観察されやすく, 特に Sb 照射量が多くなると ($T_{\min} \times 20$ (c)), 多数の細線構造が明瞭に観察される。このような 2 次元細線構造は GaAs(001) 層上の Sb 系化合

Fig. 5. AFM images of 2D InAs layers with 1.4 ML in coverage, grown on GaAs buffer layer (a) and on Sb/GaAs buffer layer (b, c). The Sb irradiation time were $T_{\min} \times 1$ (b) and $T_{\min} \times 20$ (c), respectively.

物半導体 (GaSb, AlSb, InSb) のヘテロ成長の初期過程で観察される ribbon-like 構造²¹⁾と類似していることがわかった。また GaSb 上の InAs 成長における断面 STM 観察結果から得られた Sb-As 表面交換反応における活性化エネルギー²²⁾と本実験の成長パラメータを用いたカイネティックモデル解析²⁰⁾を行った結果, GaSb 表面層上から InAs を 1 ML 成長すると約 65 % の Sb 原子が表面偏析することがわかった。したがって, この表面偏析した Sb 原子が InAs 成長中に取り込まれ, 上述した Sb 系成長に特有な細線構造や微小な 2 次元島構造が多く形成されたものと考えられる。このような 2 次元成長表面では, 優先的な 3 次元核形成サイトとして働くステップ端の密度が非常に高く, またこのような表面構造では表面マイグレーションも抑制されやすいため, ドットが高密度に自己形成されたものと考えられる。

Fig. 6 は, 通常の GaAs 層上および Sb/GaAs 層上への InAs 成長における 2 次元成長層の面内格子間隔を RHEED 像より測定したものである。GaAs 層上での InAs の 2 次元成長層は下地 GaAs 層に面内格子整合しているが, Sb 照射量 $T_{\min} \times 4$ の Sb/GaAs 層上の 2 次元成長層は, GaAs の面内格子間隔よりも約 2 % 広がった表面構造を示すことがわかった。Fig. 5 で示したように, Sb/

Fig. 6. In-plane lattice spacing of InAs surface layer as a function of InAs growth time. The InAs was grown on GaAs and Sb/GaAs buffer layers. The Sb irradiation time was $T_{\min} \times 4$.

GaAs 層上では微小な 2 次元島や細線構造が形成されているために, それらの 2 次元島端部での僅かな表面格子緩和も考えられるが, 上述したように偏析した Sb 原子が InAs の 2 次元成長時に取り込まれ, InAsSb 化による格子定数の増大を反映しているものと解釈される。また表面偏析した Sb 原子は表面エネルギーを低下させるが, Sb 原子を取り込んだ InAsSb 層では歪エネルギーを増大させるために, Fig. 5 で述べたように高密度のステップ端において高密度の 3 次元ドット化を引き起こし, さらにドット形成の際に表面偏析した Sb 原子は, Fig. 4 で示したようにドット間のコアレスセンスを抑制する働きを示したものと考えている。

以上, 本手法の高密度化における Sb 原子の役割について述べたが, つぎに Sb 原子が InAs 量子ドットの発光特性に与える影響について述べる。一般には量子ドット密度が高くなると高い発光強度が期待されるが, ドット密度の増大による歪量の増大に伴って埋め込み成長の際に転位が発生しやすく, 室温付近において発光強度は急激に低下し, ドット密度の増加による発光強度の増加が得られ難い。本手法においては, さらに Sb 層の形成条件によっても発光強度が大きく影響を受けることがわかった。

Fig. 7 は Sb/GaAs 層上の高密度 InAs 量子ドット (4.0 ML) からの正規化 PL 積分強度の温度依存性で, 非発光性再結合寿命時間 $\tau_{nr} = (3 kT/m^*)^{1/2} \{N_t \sigma \exp(-E_t/kT)\}$ における非発光性再結合センターの密度と捕獲断面積の積 $N_t \sigma$ を fitting parameter としたときの計算結果も同時に示す。ここでは非発光センターの捕獲準位における熱的活性化エネルギー $E_t = 250$ meV, 発光性再結合寿命時間 $\tau_{nr} = 1$ ns とした。Sb 照射量を $T_{\min} \times 20$ (a) に増加すると, 室温での PL 強度は急激に減少し, $N_t \sigma = 25 \times 10^9$ cm⁻¹ で fitting されるのに対し, Sb 照射量の少ない $T_{\min} \times 1.2$ (b) では, 室温での PL 強度の低下は抑制され,

Fig. 7. Temperature dependences of normalized PL integral intensity of high-density InAs QDs grown on Sb/GaAs buffer layers. The Sb irradiation time were $T_{\min} \times 20$ (a) and $T_{\min} \times 1$ (b), respectively. The Sb-termination of (c) was prepared by simultaneous irradiation of Sb and As for $T_{\min} \times 1$. Solid lines are calculated data, which were obtained from radiative and non-radiative recombination times of τ_{nr} (1 ns) and $\tau_{\text{nr}} = (3 \text{ kT}/m^*)^{1/2} \{N_t \sigma \exp(-E_t/kT)\}$. Here activation energy of non-radiative center E_t was 250 meV, and $N_t \sigma$ was fitting parameter.

$N_t \sigma$ の値は $8 \times 10^9 \text{ cm}^{-1}$ に減少した²³⁾。Sb 照射量が多くなると Sb 原子の取り込みも増え、歪エネルギーの増大を伴うために転位の発生を引き起こしやすく、結晶性が低下したものと考えられる。また Sb 照射量が少なすぎるとドット密度が減少するため、比較的高密度で高い結晶性を保つには Sb 照射量は $T_{\min} \times 1$ 程度が良好であることがわかった。

さらに Sb 照射法について検討した結果、 $T_{\min} \times 1$ までを Sb₄ と As₄ を同時に照射することにより、Fig. 7 (c) に示すように $N_t \sigma$ の値をさらに低減 ($3.5 \times 10^9 \text{ cm}^{-1}$) できることがわかった。この Sb₄ と As₄ の同時照射を長時間続けた場合は、Fig. 2 で示したような $T_{\min}$ を過ぎて RHEED 強度が回復した後の強度低下はほとんど見られず、強度の飽和傾向が観測されたことから、Sb 原子の過剰吸着などが抑制され、より安定で結晶性の高い表面 Sb 終端化構造が形成されたものと考えられる。この Sb₄ と As₄ の同時照射法により、室温での発光強度がさらに増大し、面内ドット密度の増加に伴う発光強度の増大を実現することができた。

Fig. 8 には Sb₄ と As₄ の同時照射法による Sb/GaAs 層上の高密度 InAs 量子ドットからの典型的な PL スペクトルを示す。12 K でのピーク波長は 1180 nm で、室温では 1280 nm と光通信波長帯 (1.3 μm 帯) にも適している。この発光波長は GaAs 層上の高均一 InAs 量子ドットのものと近い値を示し、また Sb/GaAs 層のドット構造 (サイズやファセット面) についてもほとんど差が見られないことから、InAs 量子ドット内に残留した Sb

Fig. 8. Low-temperature (12 K) PL spectrum of InAs QDs grown on Sb/GaAs buffer layer. The Sb-termination was prepared by simultaneous irradiation of Sb and As for $T_{\min} \times 1$.

原子は僅かな量で、量子ドット構造にはそれほど影響を及ぼしていないことがわかった。この PL スペクトルの半値幅は 30 meV と高密度ドットでは比較的狭い値を示しており、高均一で比較的均一性が高く、良質な量子ドットの自己形成を実現することができた。

4. 高密度 InAs 量子ドットの面内自己配列形成

つぎに、Fig. 1 (b) に示すように GaAs(001) 基板上に GaAs(2 ML)/GaAsSb(10 ML)/GaAs(200 nm) パッファ層を成長し、その上に InAs 量子ドットの SK 成長を行い、量子ドットの高密度化とドットの形成位置について検討を進めた。

Fig. 9 は、GaAsSb 層の成長時の As₄ に対する Sb₄ の供給比を 0(a), 0.08(b), 0.14(c) と変化させた時の InAs 量子ドットの AFM 像である。ドット密度は Sb 供給比に強く依存し、Sb 供給比が高くなるほど増加している。3 節でも述べたように Sb と As の表面交換反応が起こりやすいために GaAsSb 層成長における Sb 原子がその上の GaAs 2 分子層中や表面上に偏析していくことが容易に予想され、InAs 量子ドット成長の直前の高い表面 Sb 濃度によってドットの高密度化が起きたものと考えられる。そこで、Sb-As 表面交換反応のカイネティックモデル²⁰⁾を用いて GaAs(2 ML)/GaAsSb(10 ML) パッファ層中の Sb 組成分布の解析を行った。その典型的な計算結果を **Fig. 10** (a) に示すが、Sb 供給比 0.14 の場合で、Sb-As 表面交換反応の活性化エネルギーには ref.20 の値を使用した。GaAsSb 層の成長初期から 10 ML の成長において Sb 組成は徐々に増加し、Sb 組成 0.26 に達した後、その上の GaAs 層(2 ML)中にも Sb 原子が取り込まれ、表面には Sb 組成 0.59 の高濃度の Sb 表面偏析が起きている様子がわかる。こうして GaAsSb 層の Sb 供給比を変化させた時の Sb 表面組成を計算し、この Sb 表面組成と実際の InAs 量子ドット密度との関係を Fig. 10 (b)

Fig. 9. AFM images of InAs QDs grown on GaAs/GaAsSb/GaAs buffer layers. The supply ratio of Sb_4/As_4 during the GaAsSb growth were 0 (a), 0.08 (b) and 0.14 (c), respectively.

に示す。Sb 表面組成の計算値が 0.6 付近までは Sb 組成の増加とともにドット密度は増加し、それ以上の Sb 組成ではドット密度は約 $1 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ で飽和する傾向にあることがわかった。このように GaAsSb バッファ層を用いた場合にも表面偏析した Sb 表面原子による InAs 量子ドットの高密度化が可能であるが、ここで注目すべき点は、Sb 供給比 0.14 の場合 (Fig. 9 (c)) において、部分的ではあるが高密度 InAs 量子ドットの面内に配列している領域が観察される点である。通常の GaAs (001) 基板で、しかも単層の InAs 量子ドット成長では面内自己配列はほとんど見られないため、大変興味深い現象である。そこで、この GaAsSb バッファ層上の InAs 量子ドットの成長過程について調べた。

Fig. 11 は GaAs (2 ML)/GaAsSb (10 ML, Sb 供給比 0.14) バッファ層表面およびその上に InAs を成長させたときの AFM 像である。GaAsSb バッファ層表面 (a) では、 $[1\bar{1}0]$ ステップ密度が高く、 $[1\bar{1}0]$ 方向に伸びたテラス構造が観察されるが、その上に InAs を 1.45 ML 成長すると (b), InAs の 2 次元成長島構造において $[010]$ ステップの形成も比較的多く形成されることがわかつ

Fig. 10. Calculated profile (a) of Sb composition for the growth of GaAs (2 ML)/GaAsSb (10 ML) layer. The supply ratio of Sb_4/As_4 during the GaAsSb growth was 0.14. A kinetic model of surface exchange reaction between Sb atoms and As atoms [ref. 20] was used in this calculation. (b) shows a relationship between InAs QD density and calculated Sb surface composition. The QD density was measured by AFM observation.

た。この $[010]$ ステップ構造の形成メカニズムについてはまだ明らかではないが、GaAsSb バッファ層内の歪の異方性との関連性が考えられる。InAs 成長量が 1.61 ML (c) ではドットがステップ端部付近に形成され始め、特に $[010]$ ステップ端に沿ったドット鎖 (dot chain) 状の形成も観察される。このときドット近傍にナノサイズの穴 (nanohole) も多数観察され、さらにドット鎖の近傍には nanohole が連結されたような溝 (nanogroove) の形成も見られる。この nanohole や nanogroove の深さは約 2~3 nm 以下で、GaAsSb バッファ層内に形成されている。これはドット形成によってドット周辺の下地表面層には圧縮歪がかかることから、特に Sb 組成の高い領域では、ドットが形成されると歪エネルギーがさらに高くなり、不安定になった GaAsSb 層の脱離によって nanohole が自己形成されたものと考えられる²⁴⁾。こうした nanohole の自己形成は、InAs 量子ドット上の GaAs 埋め込み成長層においても観察されている。さらに InAs 成長量を増すと (1.75 ML (d), 2.0 ML (e)) ドット密度は増加するが、ドット密度の粗密領域が見られ、ドット密度の高い領域では nanohole 密度も高くなっていることがわかる。このドット密度の高い領域において、ドットの 2 次元的な面内配列構造が形成され始めることがわか

Fig. 11. AFM images of GaAsSb surface (a) and InAs grown surfaces: InAs coverage were 1.45 ML(b), 1.61 ML (c), 1.75 ML (d) and 2.0 ML (e), respectively. Cross-sectional profiles in (c) reveal nanohole and nanogroove, respectively. The supply ratio of Sb_4/As_4 during the GaAsSb growth was 0.14.

った。

Fig. 12 は、成長量が 2.8 ML の場合の InAs 量子ドットが面内配列した領域を拡大した AFM 像 (a) と高速フーリエ変換 (FFT) 像 (b) を示す。ドット密度は約 $1 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ で、比較的サイズの揃った InAs 量子ドットが $\langle 010 \rangle$ 方向に沿った正方格子状に面内配列している様子がわかる。このように $\langle 010 \rangle$ 方向に沿った面内配列構造は、Fig. 11 (c) で述べた $[010]$ ステップ端に沿ったドット鎖の形成を発端としているものと考えられる。しかし、Fig. 11 にも示したように $[1\bar{1}0]$ ステップ端も多く存在するために $[1\bar{1}0]$ ステップ端に沿ったドット列も形成され、また比較的ランダムに形成された領域も同時に存在するために、 $\langle 010 \rangle$ 方向に沿った面内配列構造の広がりは阻止され、面内配列構造は部分的に形成されたものと考えられる。したがって、 $[010]$ 方向に沿った正方格子状の面内配列構造を基板面上の広域に自己

Fig. 12. An AFM image (a) and a FFT image (b) of in-plane arranged InAs QDs grown on GaAsSb buffer layer. InAs coverage was 2.8 ML. The supply ratio of Sb_4/As_4 during the GaAsSb growth was 0.14. High-density InAs QDs revealed square lattice pattern and aligned along $[010]$ directions.

Fig. 13. $(1\bar{1}0)$ cross-sectional TEM image of in-plane arranged InAs QDs on the GaAsSb/GaAs buffer layer, which were embedded in the GaAs capping layer.

Fig. 14. Low temperature (12 K) PL spectrum of in-plane arranged InAs QDs grown on the GaAsSb/GaAs buffer layer. PL peak wavelength was 1105 nm, and PL FWHM was 30 meV.

形成させるには、 $[010]$ ステップ構造を広い領域にわたって精密に形成制御することが重要である。

Fig. 13 は部分的に面内配列した高密度 InAs ドットを GaAs で埋め込み成長した試料の $(1\bar{1}0)$ 断面における高分解 TEM 像である。ドット近傍に見られた nanohole は GaAs 埋め込み成長によって完全に埋め戻され、GaAsSb パッファ層内および InAs ドット内における転位

の発生はほとんど観察されなかった。この試料の PL スペクトルを Fig. 14 に示す。この場合の InAs ドットの高さが低い (4~5 nm) ために 12 K でのピーク波長は約 1105 nm と短波長側に現れるが, PL 半値幅は 30 meV と比較的狭く均一性の高いことを示しており, さらに発光強度も高いことから良好な結晶性であることがわかった。以上の GaAs(001) 基板上への単一の InAs 量子ドット層における面内自己配列現象についてはまだ確認されたばかりで不明な点も多いが, 今後はメカニズムの詳細な解明と精密な配列制御の確立が望まれる。

5. お わ り に

本稿では, SK 成長モードをベースとした GaAs(001) 基板上への InAs 量子ドットの自己形成において, Sb 原子の導入によるドットの高密度形成および面内自己配列形成について紹介した。特に光通信波長帯 InAs 量子ドットの高密度・高均一化が比較的容易に達成できる点では, デバイス応用上興味深い。こうした異種原子の導入による表面・界面の改質効果については, 原子レベルでの機構解明が今後の重要な課題であり, 基礎的な成長機構の理解を基にさらなる量子ドット構造の精密な形成制御を開拓し, 様々な量子ドット構造への応用展開が広がることを期待したい。

本研究の一部は, 電気通信大学 21 世紀 COE プログラムの支援を受けて行われた。

文 献

- 1) L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse and G. L. Roux: Appl. Phys. Lett. **47**, 1099 (1985).
- 2) D.J. Eaglesham and M. Cerullo: Phys. Rev. Lett. **64**, 1943 (1990).
- 3) Y.W. Mo, D.E. Savage, B.S. Swartzentruber and M.G. Legally: Phys. Rev. Lett. **65**, 1020 (1990).
- 4) C.W. Snyder, B.G. Orr, D. Kessler and L.M. Sander: Phys. Rev. Lett. **66**, 3032 (1991).
- 5) M. Tabuchi, S. Noda and A. Sasaki: "Science & Technologies of Mesoscopic Structures", ed. by S. Namba, C. Hamaguchi and A. Ando (Springer Verlag, Tokyo, 1992) p. 379.
- 6) Y. Arakawa and H. Sakaki: Appl. Phys. Lett. **40**, 939 (1982).
- 7) P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff, L. Zhang, E. Hu and A. Imamoglu: Science **290**, 2282 (2000).
- 8) K. Yano, T. Ishi, T. Hashimoto, T. Kobayashi, F. Murai and K. Seki: IEEE International Electron Device Meeting, Technical Digest (1993) p. 541.
- 9) M. Ishida, N. Hattori, T. Akiyama, K. Otsubo, Y. Nakata, H. Ebe, M. Sugawara and Y. Arakawa: Appl. Phys. Lett. **85**, 4145 (2004).
- 10) K. Yamaguchi and T. Kanto: J. Cryst. Growth **275**, e2269 (2005).
- 11) B. Voigtlander and A. Zinner: Surf. Sci. **351**, L233 (1996).
- 12) Y. Nakamura, O.G. Schmidt, N.Y. Jin-Phillipp, S. Kiravittaya, C. Muller, K. Eberl, H. Grabelding and H. Schweizer: J. Cryst. Growth **242**, 339 (2002).
- 13) K. Akahane, T. Kawamura, K. Okino, H. Koyama, S. Lan, Y. Okada, M. Kawabe and M. Tosa: Appl. Phys. Lett. **73**, 3411 (1998).
- 14) G. Springholz, V. Holy, M. Pinczolis and G. Bauer: Science **282**, 734 (1998).
- 15) G.S. Solomon: Appl. Phys. Lett. **84**, 2073 (2004).
- 16) T. Kanto and K. Yamaguchi: Int. Symposium on Quantum Dots and Photonic Crystals 2005 (QDPC 2005) Mar. 7-8, Tokyo, P-10 (2005) p. 31.
- 17) T. Miura, T. Nakai and K. Yamaguchi: Appl. Surf. Sci. **237**, 242 (2004).
- 18) K. Yamaguchi, K. Yujobo and T. Kaizu: Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L1245 (2000).
- 19) T. Matsuura, T. Miyamoto, T. Kageyama, M. Ohta, Y. Matsui, T. Furuhashi and F. Koyama: Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L605 (2004).
- 20) T. Nakai and K. Yamaguchi: Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 3803 (2005).
- 21) B.R. Bennett, B.V. Shanabrook, P.M. Thibado, L.J. Whitman and R. Magno: J. Cryst. Growth **175/176**, 888 (1997).
- 22) R. Magri and A. Zunger: Phys. Rev. B **64**, 81305 (2001).
- 23) M. Ohta, T. Kanto and K. Yamaguchi: Jpn. J. Appl. Phys. **45**, 3427 (2006).
- 24) T. Satoh and K. Yamaguchi: Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 2672 (2005).