自己形成的に分子線エピタキシャル成長した InAs/GaAs 多重積層量子ドットからのエキシトン発光*

小池 一步^{*1}・矢野 満明^{*1}

(受理1999年2月12日, 掲載決定1999年7月3日)

Exciton Localization at the Vertically Stacked InAs/GaAs Quantum
Dots Grown by Self-Assembled Molecular-Beam Epitaxy

Kazuto KOIKE^{*1} and Mitsuaki YANO^{*1}

^{*1}(New Materials Research Center, Osaka Institute of Technology, 5-16-1 Ohmiya, Asahi-ku, 535-8585 Osaka)

(Received February 12, 1999, Accepted July 3, 1999)

This paper describes temperature effect on the exciton localization at vertically stacked InAs quantum dots (QDs). These QDs were grown on (100)-oriented GaAs by using the self-assembling growth mode in molecular beam epitaxy. Thermal quenching energy for the emission from the excitons localized at 5-stacked QDs was found to be ~ 8.5 meV, which was 3.5 times larger than the value for those at single-layered QDs. However, the QD size on upper layers of the stacked structure was revealed to become larger with the number of the stacking periods. By employing a size-controlled growth for the upper QDs, the thermal quenching energy was increased to ~ 13 meV. It is also shown that a post-annealing for the size-controlled QDs is effective to increase both the thermal quenching energy and the thermionic energy of the excitons. These effects are probably attributed to the reduction of nonradiative recombination centers and the improvement of dot-array uniformity in the stacked QD structure.

1. 序 論

近年, 格子不整合系ヘテロエピタキシャル成長の分野で, Stranski-Krastanow (S-K) モードの成長を利用して, 三次元島構造を得る研究が盛んに行われている¹⁻⁵⁾. この方法で自己形成的に成長させた島構造は, 電子を三次元的な微小空間に閉じ込める量子ドットとして利用でき, 量子効果デバイスへの応用が可能と期待されている. 特に(100)GaAs 基板上の InAs や InGaAs について検討が進んでおり, 低しきい値電流密度で発振するレーザ⁶⁾や遠赤外線領域の光検知器⁷⁾等の光デバイスに適用した例も既に報告されている. しかしながら, 自己形成的に得られる S-K 量子ドットはサイズや密度が成長条件

によって大きく変動し, サイズの制御された高密度アレイを均一に成長させることが難しいという欠点がある^{1,3)}. この欠点を克服する手段として, (311) B 面の GaAs 基板を用いる方法⁸⁾や, 自己形成量子ドットを多重に近接積層する方法^{7,9)}が提案されている. 今回我々は後者に注目し, (100)GaAs 基板上に InAs 量子ドットを多重に積層した構造を分子線エピタキシー (MBE) 法で成長させ, 積層条件や成長後のアニールによって, ドットからのエキシトン発光がどのように変化するか調べた.

2. 実験と結果

2.1 GaAs 上の自己形成 InAs 量子ドット

一般仕様の固体ソース MBE 装置を用いて, 620°C に保った GaAs の(100)面上に厚さ 300 nm の GaAs パッパ層を成長し, その後に基板温度を 520°C に下げて

* 平成10年11月9日 日本真空協会関西支部第3回研究例会で講演

^{*1} 大阪工業大学新材料研究センター (〒535-8585 大阪市旭区大宮 5-16-1)

Fig. 1 Change of the specular-spot intensity in RHEED during the InAs growth on GaAs. The arrow shows the onset of S-K transition. Insets show the reconstruction in RHEED just before, (a), and after, (b), the InAs growth.

InAs 量子ドットを成長した。InAs 層の成長は As_4/In ビーム強度比を50として0.1分子層 (ML)/sの速さで行い、反射高エネルギー電子線回折 (RHEED) を用いてドットの形成過程をその場観察した。試料を大気中に取り出した後、直ちに表面モロロジーを原子間力顕微鏡 (AFM) で観察してドットのサイズや密度を調べた。更に、同一成長条件で量子ドットをGaAs中に埋め込んだ試料を作製し、2.5 mW Ar⁺ レーザの514.5 nm線を励起光源としたフォトルミネッセンス (PL) の測定を行ってエキシトン発光の特性を調べた。

Fig. 1 は、2.4 ML の InAs 層を成長中に $[0\bar{1}1]$ 入射の RHEED で観測された、(00)パルクスポットにおける回折強度の時間変化である。挿入図はこのときの RHEED 像で、(a) は InAs の成長前、(b) は成長後を示している。成長前の RHEED 像は平坦な GaAs 表面を示すストリークであるが、成長後は凹凸のある InAs 表面を示すスポットライクに変化している。このことは、2.4 ML の InAs 層が成長する間に、S-K 転移に基づく三次元島 (量子ドット) が形成されたことを意味する。また、回折強度の増加が InAs 成長開始後1.8 MLの時点で始まっていることから、S-K 転移の臨界膜厚は約1.8 MLであったと見積もられる^{2,7)}。成長後の試料表面には、**Fig. 2** の(a)に示す高さ分布を持つドット (平均高さ3.5 nm 平均幅30 nm) が $5.1 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ の密度で観測された。InAs 膜厚が2.0 ML の場合には、同図(b)のように平均高さ2.5 nm 平均幅25 nm のドットが密度 $2.5 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ で観測され、InAs 膜厚とともにドットの

Fig. 2 Height distributions of QDs. The amount of the deposited InAs was 2.0 ML, (a), and 2.4 ML, (b).

Fig. 3 Photoluminescence spectra measured at 18 K from the QDs by 2.0 ML, (a), and 2.4 ML, (b), InAs depositions.

サイズと密度が増加し、かつ、サイズの分布も広くなることが判った。同様な InAs 膜厚とドットのサイズや密度の関係が、他の研究機関からも報告されている¹⁾。

つぎに、量子ドットからの PL 特性を調べるため、InAs ドットに連続して25 nm の GaAs 層を同一温度で成長し、単層の埋め込み構造を作製した。**Fig. 3** の(a) (b)は、InAs 膜厚をそれぞれ2.0 ML, 2.4 MLとした試料から、18 Kで観測された PL スペクトルである。InAs 膜厚が2.0 MLの試料からは、1.38 eVに中心値を持つ半値幅70 meVのブロードなピークと、1.44 eVに中心値を持つシャープなピークが観測された。InAs 膜厚が2.4 MLの試料からは、1.22 eVに中心値を持つ半値幅80 meVのブロードなピークのみが観測された。いずれのスペクトルにおいても、発光ピークのエネルギーはバルク InAs のバンドギャップ (0.41 eV) よりも大きく、かつ GaAs のバンドギャップ (1.52 eV) よりも小さい。そこで、ブロードな発光ピークは、サイズに揺ら

Fig. 4 Wavelength-integrated PL intensities as a function of temperature for the QDs by 2.0 ML, (a), and 2.4 ML, (b), InAs depositions.

ぎのある量子ドットにおける電子と正孔の再結合発光と考えられる^{9,10}。一方、2.0 MLの試料において観測された1.44 eVのピークは、平均膜厚が1.8 MLのウェット層が形成する二次元量子井戸からの再結合発光である¹¹。ウェット層の発光は、ドットの密度とサイズが小さい2.0 MLの試料だけから観測された。これは、ドット一つあたりへ収容できるキャリア数に制限があるので、ドットのサブバンドから0.06 eVしか離れていないウェット層へ励起キャリアが溢れたためであると解釈した。

Fig. 4の(a)(b)は、ドットに由来する発光ピークについて、積分発光強度の測定温度依存性を、18 Kにおける値で規格化して示したものである。InAs膜厚が2.0 MLの試料では、約30 K以上で積分発光強度が急速に低下している。2.4 MLの試料では100 K付近まで強い発光強度が保たれているが、それ以上の温度では同様に急激な減衰が見られる。このように二つの領域に区分できる温度依存性は他の研究機関でも観測されており、低温領域で観測される一定強度の強力な発光はドットに局在するエキシトンに由来し、高温領域での減衰はバリア層に熱励起したエキシトンの非輻射性再結合に原因すると考えられている。積分発光強度が減少し始める温度は、エキシトン発光の熱的クエンチングエネルギー E_q と呼ばれ、エキシトンがドットから移動するのに必要な活性化エネルギーとともに増減する値である。この値の物理的な意味は薄い、エキシトンからの発光が保たれる温度を表す指標として、多くの研究機関から報告されている^{9,10,12,13}。Fig. 4における E_q の値は、InAs膜厚が2.0 MLと2.4 MLのそれぞれについて2.5 meVと8.5 meVとなっており、他の研究機関から報告されている

値^{9,10,12,13}と同レベルである。我々の二つの試料で E_q に大きな差が現れた理由は、ドットサイズの大きい後者のほうがサブバンドのエネルギーレベルが低いため、エキシトンの閉じ込めポテンシャルが深くなっていることによると考えられる¹⁰。

実際、Fig. 4の(a)(b)に示した高温部の発光減衰特性からエキシトン移動の活性化エネルギー E_a を求めると、それぞれ0.06 eVと0.14 eVとなっており、 E_q の値とともに増大していた。特に2.0 MLの場合は、 E_a の値が、PLから求めたウェット層とドットの発光エネルギー差に等しくなっている。言い換えれば、発光のエネルギー $E_{ex}=1.38$ eVと $E_a=0.06$ eVの合計はウェット層の障壁高さ1.44 eVと合致している。このことから、温度上昇時に、ほとんどのエキシトンはドットからウェット層へ移動していると考えられる¹⁰。一方2.4 MLの試料では、 $E_{ex}=1.22$ eVと $E_a=0.14$ eVの合計は1.36 eVと、前者より若干小さくなっている。これは、2.4 MLの試料におけるウェット層が厚くて障壁高さが低くなった（ウェット層からの発光エネルギーについては 1.4 ± 0.1 eVの間でいろいろな値が報告されている^{10,11}）ためとも考えられるが、ドットサイズが大きいため格子欠陥が発生しやすく、非輻射性再結合中心へのエキシトン移動が活性化エネルギーを低下させている可能性もある。

さて、Fig. 4の結果から、InAs膜厚を更に増加してドットサイズを大きくすれば、より深い閉じ込めポテンシャルを実現できると考えられる。そこで2.4 MLよりも厚いInAsを成長させてみた。ところが、この場合は確かにドットのサイズ分布はFig. 2の(a)よりも大きい方にシフトしたが、くわえてドット密度が増加し、かつ、飛び抜けて肥大化した巨大ドットも混在するようになった。例えばInAs膜厚が3.0 MLの場合には、高さ10 nm以上に肥大化した $4 \times 10^9/\text{cm}^2$ の巨大ドットが、高さ $5 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$ の範囲に分布する $1.1 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ の通常サイズドットと混在して観測された。巨大ドットの平均幅は80 nm程度に達し、高密度に生成した通常サイズのドットが複数個合体して形成されたと推定される^{1,3,12}。このように異常成長した巨大ドット中には転位や欠陥が含まれやすく、かつ格子緩和が進行して障壁層とのヘテロ界面で結晶性が低下する。このため、測定温度の上昇とともに非輻射性再結合が支配的になって、発光効率が急速に低下することが知られている¹²。実際我々の実験においても、巨大ドットを含む試料からの発光には、高温領域における急速な強度減衰とは別にゆっくりした強度低下が既に18 Kから始まっており、 E_a の値は大幅に低下していた。巨大ドットにはサブバンド間隔が熱エネルギーに近づく欠点もあり、量子ドットとし

て望ましくない。また、デバイス加工の観点からも巨大ドットと通常サイズドットの混在は不都合である。

2.2 自己形成 InAs 量子ドットの多重積層成長

前節で述べたように、InAs 膜厚が2.0 MLと2.4 MLの試料には、前者ではドットのサイズ揺らぎは少ないが閉じ込めポテンシャルが浅いため E_q と E_a が小さく、後者のポテンシャルは比較的深いサイズ揺らぎのため PL 半値幅が若干大きくなる、という欠点があった。我々は、サイズ揺らぎを押さえつつ深いポテンシャルを実現する方法として、量子ドットのシートを縦方向（成長方向）に近接して繰り返し積み重ねる、多重積層構造に注目した。この方法を用いれば縦方向に配列したドットが得られ^{7,8)}、埋め込む中間層の厚さで上下のドット間の結合度合いを調節したり、各シートのドット高さを揃えたりすることができる可能性がある。

このような利点に注目して、今回我々は、5枚の InAs ドットシートを GaAs 中に多重積層した構造を作製した。各シートにおける InAs 膜厚は、単層構造でサイズ揺らぎが比較的小さかった2.0 MLに設定した。ドットシートを埋め込む GaAs 中間層の膜厚は3.0 nmに統一し、第一層の InAs ドットシート以降はすべて520°Cで成長した。この条件下では、各シートにおける平均的なサイズの InAs ドットは中間層成長後にほぼ頂上まで GaAs 中に埋め込まれ、柱状に整列したドットの幅はそのままに、5重に積み重なった積層ドットが形成されると期待した。しかし実際にこの構造を作製してみると、最表面の InAs ドットが Fig. 2 の(a)に示したサイズよりも遥かに大きくなることが判った。Fig. 5 の(a)に第1, 3, 5層目のドットシートにおける高さ分布を示す。第5層目のシートでは、平均高さ5.5 nm 平均幅33 nm のドットが $5.9 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ の密度で発生しており、第1層目よりもサイズ・密度ともに増大している。

この現象を詳しく調べるため、Fig. 1と同様な方法で、多重積層構造を成長中に RHEED バルクスポットの強度変化を調べた。Fig. 6 の(a)は5層の積層時に観測された強度変化である。図中に、 As_4 照射下での In セルと Ga セルのシャッターシーケンスを示した。各層の In 照射時に RHEED 強度が上昇していることから、InAs ドットが多重に成長されていることが判る。また、中間層の GaAs 成長後に強度が元のレベルに低下しているのは、ドットが埋め込まれて表面が平坦になったためである。この図から、強度低下に要する GaAs 膜厚が第2層目以降で徐々に増加していることが読み取れ、これは積層数とともにドットサイズが増大する Fig. 5 の(a)に示した結果と矛盾しない。

Fig. 6 の(b)は、同図(a)の各層における InAs 成長時

Fig. 5 Height distributions of 5-stacked QDs by the InAs growth without, (a), and with, (b), size-control.

の RHEED 強度変化を同一スケールに重ねて示したもので、横軸を InAs の膜厚に換算してある。各層における InAs の成長膜厚は2.0 MLである。第1層目の InAs シートでは約1.8 MLで S-K 転移の臨界膜厚に達しており、前節で述べた単層膜の結果と一致している。しかしながら、第2層目以降では S-K 転移の臨界膜厚が大幅に減少し、第5層目では約0.5 MLとなっている。この結果は、積層数とともにドットサイズが肥大化する原因が、S-K 転移の臨界膜厚の減少にあったことを示している。第2層目以降のシートで臨界膜厚が薄くなる現象は他の研究機関からも報告されており、その理由として、ドット直上の GaAs 表面では InAs に対する歪が局部的に緩和されて In 原子が集中しやすいこと¹⁴⁾、あるいはドット成長時に常に In がドット直上表面へ偏析すること¹⁵⁾、が考えられている。今回の実験結果がいずれの機構に基づくものか明確ではないが、サイズが積層数とともに肥大化する現象は高品質な量子ドットの作製にとって必ずしも望ましくない。

そこで、我々は第2層目の臨界膜厚が第1層目よりも約0.8 ML小さくなっていることに注目し、第2層目以降の InAs 膜厚を2.0 MLから1.2 MLに減じて多重積層構造を成長した。このとき観測された RHEED の強度変化を Fig. 6 の(c)に示す。第2層目以降の S-K 転移の臨界膜厚は約1.0 MLで安定しており、シート間の変動がほとんど無くなっていることが判る。Fig. 5 中の(b)は、この手法を用いた場合の第5層目のシートにおけるドットの高さ分布を示している（図が複雑になるのを避けるため第3層目は省略した）。ドット密度は第1層目とほぼ同じ $3.1 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ で、平均高さ2~2.5 nm 平均幅25 nm となっており、積層数増加に伴うサイズの肥大化が抑制されたことが判る。ただし厳密には、第5層目のドットの平均高さが第1層目よりも若干減少しているので、このときのサイズ制御が最適であったとは言えな

Fig. 6 Change of the specular-spot intensity in RHEED during the 5-stacked InAs/GaAs growth without size-control (a), during the InAs QD growth of each period without, (b), and with, (c), size-control.

い.

2.3 多重積層ドットのフォトルミネッセンス特性

前節で述べた多重積層ドットの PL 特性を調べるため、5 層のドットシートを積層した後、更に同一基板温度で 25 nm の GaAs 層を成長して、埋め込み構造を作製した。Fig. 7 にすべてのドットシートの InAs 膜厚を 2.0 ML に保った「制御無し」と、第 2 層目以降を 1.2 ML に減じた「制御有り」の PL スペクトルを示す。「制御無し」では約 1.13 eV に半値幅 27 meV のピークが、「制御有り」では約 1.23 eV に半値幅 63 meV のピークが観測されている。前節に述べた単層構造と比較すると、両者の発光エネルギーはともに低エネルギー側にシフトしている。これは、積層ドット間の縦方向結合によってドットの高さが実効的に増加し、サブバンドのエネルギーが低下した結果と考えられる⁸⁾。特に「制御無し」で発光ピークエネルギーが大きくシフトしているのは、上層部に積層されたドットが肥大化しているためである。この試料の PL 半値幅は、同じ 2.0 ML の単層構造における値 (70 meV) と比較すると遥かに狭くなって改善されている。しかし、この効果は「制御有り」の試料ではそれほど明確に現れておらず、第 2 層目以降の InAs や GaAs 中間層の膜厚最適化が不十分であったと考えられる。

つぎに我々は、単層構造の場合と同様に、積分発光強度の温度依存性を調べた。Fig. 8 に「制御無し」と「制御有り」の特性を比較して示す。両者ともに、単層構造

Fig. 7 Photoluminescence spectra measured at 18 K from 5-stacked QDs by the InAs growth with, (a), and without, (b), size-control.

の場合よりも高温まで強いエキシトン発光を保持している。特に「制御有り」におけるエキシトンの熱的クエンチングエネルギーは $E_q = 13$ meV と大きく、単層構造の約 4 倍に達している。Fig. 8 の高温部における温度依存性から求めたエキシトンの移動に要する活性化エネルギー E_a は、「制御有り」の (a) で $E_a = 0.22$ eV、「制御無し」の (b) で $E_a = 0.20$ eV であった。いずれの値も Fig. 4 に示した 2.0 ML 単層試料の $E_a = 0.06$ eV に比較して遥かに大きくなっており、発光ピークエネルギーの低減分を活性化エネルギーの増加分が補っている。しかし厳密には、「制御有り」の場合には発光エネルギー $E_{ex} = 1.23$ eV と活性化エネルギー $E_a = 0.22$ eV の和が 1.45 eV とな

Fig. 8 Wavelength-integrated PL intensities as a function of temperature for 5-stacked QDs by the InAs growth with, (a), and without, (b), size-control.

って、2.1節で述べたウェット層の障壁高さ1.44 eV にほぼ一致するのに対し、「制御無し」では $E_{ex}=1.13$ eV と $E_a=0.20$ eV でその合計1.33 eV は障壁層の高さよりかなり小さい。

我々はこの結果がドット形状の差異によってもたらされたと解釈した。Fig. 9 の (a) (b) は、各層のドットサイズの違いのみを考慮して描いた「制御有り」と「制御無し」の模式的断面図である（「制御無し」では積層数とともに密度も増加するが、この模式図では省略した）。両者とも第2層目以降の成長時に S-K 転移膜厚が減少していたので、他の報告⁷⁾と同様、ドットは縦方向に整列していると予想される。この場合、「制御有り」では最も密度の増加した第5層目のドットでも平均32 nm 程度離れて形成されている。そのため、「制御有り」の構造においては面内ドット間の結合が弱く、三次元的なエキシトンの閉じ込めに優れているといえよう。この場合にはエキシトンが格子欠陥を含むドットに移動することが少なく、非輻射的再結合による活性化エネルギーの低下が起こりにくいと考えられる。

一方「制御無し」では、積層数の増加に伴い徐々にドットサイズと密度が増加する。第5層目に現れたような大きなドットは格子欠陥を含みやすくなっており、このことが活性化エネルギーを低下させた主要な原因の一つであろう。また、上層ほど近接してドットが形成されているため、第1層目のシートにおけるドット間距離は平均して38 nm であったのが、第5層目では約8 nm に減少する。このドット間距離は電子のトンネリングが可能ほど短いので、「制御無し」の試料は、積層量子ドットとしての特性と、これが面内方向で緩く結合した二次元量子井戸としての特性を併せ持った、擬二次元的な構

Fig. 9 Schematic cross-sections of 5-stacked QDs by the InAs growth with, (a), and without, (b), size-control.

造となる。エキシトンが面内でも移動できるこのような場合には三次元的な閉じ込めが小さく、非輻射的再結合中心へのエキシトン移動が大きく寄与して、更に活性化エネルギーが低下すると考えられる。

2.4 多重積層構造のアニール効果

既に複数の研究機関から、GaAs 中に埋め込んだ自己形成 InAs 量子ドットを成長後に急速アニールすれば、構造や発光特性に大きな影響が現れることが報告されている¹⁶⁻¹⁸⁾。例えば、700°C~750°Cのアニールは格子欠陥などによる再結合中心を減少させ、発光効率を改善すると報告されている¹⁶⁾。一方、アニール温度が700°Cに達すると、GaAs 障壁層と InAs ドットとの間で相互拡散が顕著になり、ドットサイズが肥大して混晶化するという報告もある¹⁷⁾。このような背景から、我々は多重積層ドットについてもアニールによる特性変化の可能性があると考え、550°C~750°Cの急速アニールを加えた。アニールにはハロゲンランプ加熱のランプアニール (RTA) を使い、窒素雰囲気下で所定温度・1分間の急速アニールを、As 抜けを抑制するために試料表面へ他の GaAs 基板を重ねて実施した。

Fig. 10の (a) (b) (c) は、前節で述べた「制御無し」と「制御有り」の試料について、積分発光強度 (as grown の値で規格化)、発光エネルギー、エキシトン移動の活性化エネルギー、のアニールによる変化の様子を示している（すべての結果は18 K での測定値で、520°Cのプロットは as grown の値である）。(a) の積分発光強度に閑

Fig. 10 Anneal-temperature dependence of wavelength-integrated PL intensity, (a), PL peak energy, (b), and activation energy, (c), of the 5-stacked QDs grown by the InAs growth with and without size-control.

しては、「制御無し」の試料で630°Cまでのアニールでほとんど変化がなく、それ以上で徐々に増加する傾向が見られた。「制御有り」の試料では、570°C前後のアニールによって発光強度が増加し、更に温度を上昇させると一旦減少してから630°C以上で再び増加に転じた。(b)の発光エネルギーに関しては、「制御無し」の場合は630°C以下のアニールで若干の上昇が観測され、650°C以上ではこの上昇が加速された。「制御有り」の場合は630°C以下のアニールで一旦減少し、650°C以上になると「制御無し」と同様な上昇に転じた。(c)の活性化エネルギーに関しては、「制御無し」の試料では650°Cまではゆっくりと減少し、それ以上で急激に低下した。一方「制御有り」の試料では、570°C付近で大幅に増加して0.28 eV 近くに達した後、急激に減少して650°C以上では「制御無し」に一致した。

アニール温度が600°Cを超えた領域から徐々に「制御有り」の試料が「制御無し」の特性に近づき、650°C以上で両者とも発光エネルギーの上昇と活性化エネルギー

の減少が顕著になったのは、In と Ga の相互拡散に伴う混晶化が始まったためと考えられる。混晶化はドットのパンドギャップの増大とサイズの肥大化を引き起こす。パンドギャップエネルギーの増大は発光エネルギーを上昇させ、サイズの肥大化はエキシトンの面内移動度を高めて活性化エネルギーを低下させる。ドットサイズの肥大化は発光エネルギーの低下も生じる。しかし自己形成量子ドットについては、混晶化はサブバンドのエネルギー低下に寄与の少ない面内方向へ異方的に進行するという報告がある^{16,17)}。このような場合には、混晶化によって発光エネルギーの上昇と、これに伴う活性化エネルギーの低下が期待できるであろう。実際 Fig. 10 の (b) から判るように、この温度領域における発光エネルギーの増加分は、同図(c)に示された活性化エネルギーの減少分の半分以下である。これは、構造の擬二次元性が高まって非輻射性再結合の寄与が大きくなったことを意味し、混晶化が面内方向に進んだ結果と考えられる。なお、ここには示していないが、アニール温度700°Cから750°Cの間で発光エネルギーが不連続的に大きく上昇し、同時に発光強度が一桁以上低下することを確認している。これはドットが完全に二次元量子井戸に転換した結果であり、逆に言えば、この温度までは「制御」の有無に関わらず、多重積層構造は不完全ながらドットとしての特性を残していると考えて良い。

より低温の、570°C付近におけるアニールに注目すると、その効果は「制御有り」のドットについて顕著で、積分発光強度や活性化エネルギーが大幅に増大している。このような振る舞いは、ドットのゼロ次元性が大幅に改善されたことを示すものである。このときの発光ピークの半値幅を調べたところ、「制御無し」ではアニールの前後で変化がほとんど観測されなかったのに対し、「制御有り」ではアニール前に63 meV であった半値幅が50 meV に減少していた。この結果は、570°C付近のアニールで結晶性が改善されたことのみならず、ドットがエネルギー的に安定な構造に再配列してサイズの均一性も改善されたことを示唆する。結晶性の改善は GaAs 障壁層中やドットとの界面にあった再結合中心を低減して発光強度を増大させ、再配列はエネルギー的に不安定な微小ドットを合体・消滅して半値幅の減少を促したと考えられる。

「制御無し」の試料で観測されたアニールに対する振る舞いは通常の二次元量子井戸のそれに近く、この試料では、肥大化したドットが面内で結合して擬似的二次元量子井戸構造を形成していると考えられる。同様なアニールの実験が InGaAs/GaAs 単一量子井戸構造と InAs/GaAs 量子ドットの単層構造を比較してなされており¹⁶⁾,

850°Cまでの急速アニールで量子井戸構造からの発光特性はほとんど変化しなかったが、量子ドット構造からの発光特性は大きく変化したと報告されている。この結果は、二次元量子井戸に近い「制御無し」の構造がアニールによる影響を受けにくいという、我々の結果と一致している。

なお、「制御有り」の試料に570°C前後のアニールを施した場合、活性化エネルギーと発光エネルギーの和は1.5 eV程度となる。この値はほとんどGaAs障壁層のバンドギャップに一致するので、エキシトンがInAsのウェット層を経由せずに移動していることを示唆する。2.1節で述べたように、2.0 MLのInAs層が形成するウェット層の平均厚さは1.8 ML（これは1.0 MLの島と2.0 MLの島が混在していることを意味する）であるが、このように薄い層は570°Cのアニールで混晶化して連続膜としての特性を消失している可能性が高い。ドットを囲む障壁層のうち、エネルギーの最も低いウェット層が消失したことが E_a の増大をもたらし、エキシトンの閉じ込めを強くしたと考えられる。このとき観測された熱的クエンチングエネルギーは $E_q=15$ meVという大きな値であり、高品質な多重積層構造を得るためには、ドットサイズを制御した成長とポストアニールの組み合わせが有効であると結論される。また、今回のように成長時のサイズ制御が充分とはいえない場合でも、アニールによって発光ピークの半値幅を狭く改善できることが判った。

3. 結 論

今回我々はMBE法によりGaAs中に5層のInAs量子ドットシートを近接積層し、PLを測定した。その結果、多重積層構造を用いれば、より深いポテンシャル中にキャリアが閉じ込められることを確認した。またRHEED及びAFMの測定により、積層数の増加に伴ってドットサイズが肥大化することを見いだした。第2層以降のInAs膜厚を制限してドットの肥大化を抑制したところ、多重積層構造におけるエキシトン閉じ込めを更に大きくすることができた。我々はこの試料に570°C・1分間の急速アニールを施し、18 K~175 Kの範囲で積分発光強度が保持される、強い閉じ込めを実現した。しかしながら発光ピークの半値幅は約50 meVといまだ広く、より急峻な発光スペクトルを持ち、かつ三次元閉じ

込めの強い量子構造を得るためには、成長条件やアニール条件を更に最適化することが必要である。

〔文 献〕

- 1) D. Leonard, K. Pond and P. M. Petroff: *Phys. Rev.*, **B50** (1994) 11687.
- 2) M. Yano, K. Koike, M. Inoue, T. Saitoh and K. Yoh: *MRS Proc.*, Vol. **488** (1997) 193.
- 3) A. Madhukar, Q. Xie, P. Chen and A. Konkar: *Appl. Phys. Lett.*, **64** (1994) 2727.
- 4) H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama and H. Ishikawa: *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997) 193.
- 5) J. Phillips, K. Kamath, X. Zhou, N. Chervela and P. Bhattacharya: *J. Vac. Sci. Technol.*, **B16** (1998) 1343.
- 6) R. Nozel, J. Temmyo and T. Tamamura: *Nature*, **369** (1994) 131.
- 7) Y. Nakata, Y. Sugiyama, T. Futatsugi and N. Yokoyama: *J. Crystal Growth*, **175/176** (1997) 713.
- 8) G. S. Solomon, J. A. Trezza, A. F. Marshall and J. S. Harris, Jr.: *J. Vac. Sci. Technol.*, **B14** (1996) 2208.
- 9) D. I. Lubyshv, P. P. Gonzalez-Borrero, M. Marega, Jr., E. Petitprez, N. La. Scala, Jr. and P. Basmaji: *Appl. Phys. Lett.*, **68** (1996) 205.
- 10) Z. Y. Xu, Z. D. Lu, Z. L. Yuan, X. P. Yang, B. Z. Zheng, J. Z. Xu, W. K. Ge, Y. Wang, J. Wang and L. L. Chang: *Superlattices and Microstructures*, Vol. **23**, No. 2 (1998) 381.
- 11) F. Heinrichsdorff, M.-H. Mao, N. Kirstaedter, A. Krost, D. Bimberg, A. O. Kosogov and P. Werner: *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997) 22.
- 12) D. Leonard, S. Fafard, K. Pond, Y. H. Zhang, J. L. Merz and P. M. Petroff: *J. Vac. Sci. Technol.*, **B12** (1994) 2516.
- 13) Ming-Chin Chen, Hao-Hsiung Lin and Chih-Wei Shie: *J. Appl. Phys.*, **83** (1997) 3061.
- 14) P. Chen, Q. Xie, A. Madhukar, Li. Chen and A. Konkar: *J. Vac. Sci. Technol.*, **B12** (1994) 2568.
- 15) G. S. Solomon, J. A. Trezza, A. F. Marshall and J. S. Harris, Jr.: *Phys. Rev. Lett.*, **76** (1995) 952.
- 16) S. J. Xu, X. C. Wang, S. J. Chua, C. H. Wang, W. J. Fan, J. Jiang and X. G. Xie: *Appl. Phys. Lett.*, **25** (1998) 3335.
- 17) A. O. Kosogov, P. Werner, U. Gösele, N. N. Ledentsov, Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, N. A. Bert and Zh. Alferov: *Appl. Phys. Lett.*, **69** (1996) 3072.
- 18) S. Malik, C. Roberts, R. Murray and M. Pate: *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997) 1987.