

時間分解 X 線回折による MBE 成長中断中における

InAs 量子ドット構造の解析

Time-resolved X-ray diffraction study on modification of InAs quantum-dot structures during MBE growth interruption

山口 浩一^a, 海津 利行^b, 堀田 正憲^a, 佐藤 峻之^a, 高橋 正光^b, 水木 純一郎^b

Koichi Yamaguchi^a, Toshiyuki Kaizu^b, Masanori Horita^a, Takayuki Satoh^a, Masamitu Takahashi^b,
and Jun'ichiro Mizuki^b

電気通信大学^a, 日本原子力研究所^b

^aThe University of Electro-Communications, ^bJAERI

大型放射光施設 SPring-8 の BL11XU に設置された分子線エピタキシ(Molecular Beam Epitaxy: MBE)回折計を用いて、GaAs(001)面上に形成した InAs 量子ドットの MBE 成長中断過程におけるその場 X 線回折測定を行った。基板温度 470°Cでの成長中断中において、量子ドット内部への Ga 原子の取り込みによる In 組成の低下が観察された。成長中断中における量子ドットの形状変化は、Ga 原子の取り込みによるエネルギーバランスの変化によって引き起こされたものと考えられ、量子ドット構造の形成メカニズムおよび構造制御に関する有益な知見を得た。

Structural modification of InAs/GaAs(001) QDs during the growth interruption of molecular beam epitaxy (MBE) was studied by in-situ X-ray diffraction measurements. The experiments were performed with an X-ray diffractometer connected with MBE, which was placed at a synchrotron radiation facility, Spring-8. It was found that Ga atoms are incorporated into the InAs QD during the growth interruption. It suggests that the shape transition of the QD during the growth interruption is attributed to a change of the energy balance of the QD, due to the Ga incorporation. Obtained results gave some useful information concerning the QD formation mechanism and a control of the QD structure.

背景と研究目的

ドブロイ波長以下の微小領域にキャリアを 3 次元的に閉じ込める半導体量子ドット構造は、零次元電子系特有の物理的性質を有し、その特性を利用した量子ドットレーザー^{1,2)}や単電子デバイス³⁾などの新しい光電子デバイスの応用開

発が期待されている。量子ドットの作製方法としては、近年ストラ NSキー・クラスタノフ (Stranski-Krastanov: SK) 成長モードを用いた自己形成法が注目され、これまで様々な研究開発が進められてきた。しかし、各種デバイス設計に適応した量子ドットの自己形成制御にはまだ多く

の課題が残されている。中でも量子ドット形成後の成長中断過程においては、サイズの小さいドットから原子の離脱が起きて消滅し、サイズの大きいドットへ取り込まれるというオストワルド・ライピング現象の報告もなされているが^{4,5)}、その成長中断中における量子ドットの構造変化についてはまだ明らかになっていない。

SK成長した量子ドット構造の精密な制御のためには、成長中断中における量子ドットの構造変化に関する情報を得ることが重要であり、特に量子ドット内部の歪や組成の解析は必要不可欠である。

そこで本研究では、GaAs(001)面上にSK成長したInAs量子ドットの成長中断過程における構造変化のメカニズムの解明と構造制御を目的として、大型放射光施設SPring-8のBL11XUに設置されたMBE成長・X線回折測定システムを用い、成長中断中におけるInAs量子ドット構造のその場でのX線回折測定評価を行い、量子ドットのサイズ・歪・In組成変化の解析を初めて試みた。本研究成果は、量子ドットデバイスの実用化に向けた基礎研究として重要な知見を与えるものである。

実験

実験はBL11XUに設置されているMBE装置とX線回折計が一体化したMBE回折計⁶⁾を用いて行った。GaAs(001)面上にInAs量子ドットを基板温度470°C、成長量1.9分子層(ML)と2.7MLでSK成長した後、基板温度460°C以上で0~25分間成長中断した。その後、基板温度を室温まで下げて、試料をクエンチし、その場X線回折測定を行った。Fig.1にレイアウトを示す。波長1.24ÅのX線を試料表面に対して0.2°の角度で入射し、InAs量子ドットからの(220), (400), (200)

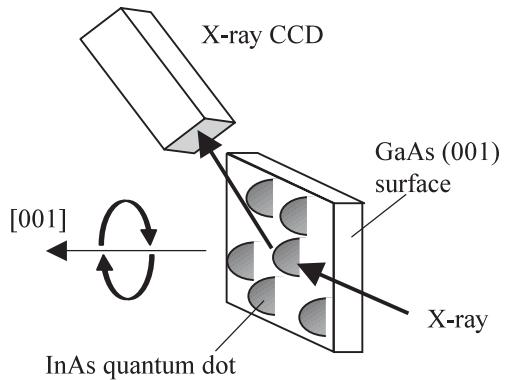


Fig.1 Schematic diagram of X-ray diffraction measurement.

のブレッギ回折点近傍のX線強度分布をX線CCDにより測定した。

結果および考察

Fig.2に、InAs成長量(a)1.9MLと(b)2.7MLにおけるInAs量子ドットの高さとIn組成の関係の成長中断時間依存性を示す。(a), (b)両方の条件において、成長中断時間が長くなるにつれて、InAs量子ドットのIn組成が次第に減少していることから、成長中断中に下地のGa原子が量子ドット内に混入しているものと考えられる。この量子ドット内へのGaの混入は(b)のサイズの大きいドットでより顕著に現れている。このとき、量子ドットのサイズは成長中断時間が長くなるにつれて次第に増大し、量子ドットの密度は減少する。特に、(a)の条件において、このような変化が顕著に観察されており、オストワルド・ライピング現象が起こっていることが示された。さらに、反射高速電子線回折(Reflection high-energy electron diffraction: RHEED)において、量子ドットの側壁面に{110}または{136}のファセット面(微小結晶面)が形成されていることを示すシェブロンパターンが成長中断中に次第に消滅し、量子ドットの形状変化が観察された。以上の結果から、成長中断中のInAs量子ドットの構造変化は、量子ドット内部へのGa原子の取

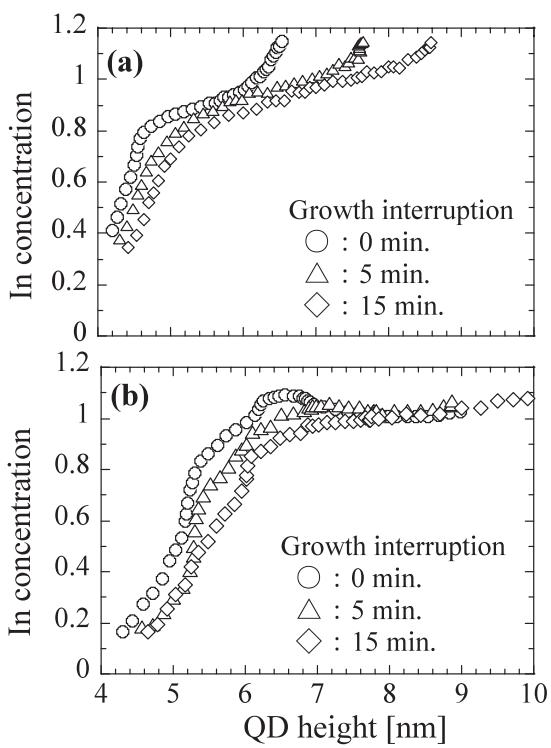


Fig.2. Relationships between QD height and In concentration of the QDs as a function of the growth interruption time at 470°C. (InAs coverage: 1.9 ML (a) and 2.7 ML (b))

り込みによってエネルギーバランスが変化し、3次元の島構造から2次元構造へと形状の遷移が起きたものと考えられる。

今後の課題

MBE成長中断過程におけるInAs量子ドットの構造変化のdriving forceとして、Gaの取り込み効果が働いていることの新しい知見は大変興味深い。今後はさらに同様の評価解析実験によってSK成長条件や成長中断条件との関係についても系統的に調べる必要がある。本実験で得られた量子ドットの熱的安定性に関する基本データは、量子ドットの構造制御の観点においても極めて重要であり、今後の研究の発展に期待が持たれる。

参考文献

- 1) Y.Arakawa and H.Sakaki, Appl. Phys. Lett. **40** 939

(1982).

- 2) M.Asada, Y.Miyamoto and Y.Suematsu, IEEE J. Quantum Electron. **22** 1915 (1986).
- 3) K.K.Likharev, Proc. IEEE **87** 606 (1999).
- 4) F.M.Ross, J.Tersoff and R.M.Tromp, Phys. Rev. Lett.. **80** 984 (1998).
- 5) O.Suekane, S.Hasegawa, M.Tanaka, T.Okui and H.Nakashima, Appl. Surf. Sci. **190** 218 (2002).
- 6) M.Takahasi, Y.Yoneda, H.Inoue, N.Yamamoto and J.Mizuki, Jpn. J. Appl. Phys. **41** 6247 (2002).

論文発表状況

- [1] T.Kaizu, M.Takahashi, M.Horita, T.Satoh, K.Yamaguchi and Jun'ichiro Mizuki, Int. Symposium on Quantum Dots and Photonic Crystals (ISQDPC) 2005 (ポスター発表)
- [2] M.Horita, T.Kaizu and K.Yamaguchi, Int. Symposium on Quantum Dots and Photonic Crystals (ISQDPC) 2005 (ポスター発表)
- [3] 海津利行, 高橋正光, 佐藤峻之, 堀田正憲, 山口浩一, 水木純一郎, 2005年(平成17年)春季第52回応用物理学関係連合講演会(口頭発表予定)

キーワード

- Stranski-Krastanov(SK)成長モード

基板の持つ原子配列にそって結晶が成長する成長様式の1つ。成長初期には平坦に2次元的に成長するが、成長膜厚がある臨界値を超える3次元的な島成長に変わる。