

氏名(本籍)	おおしまりゅうじ (山形県) 大島隆治		
学位の種類	博士(工学)		
学位記番号	博甲第4248号		
学位授与年月日	平成19年3月23日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	数理物質科学研究科		
学位論文題目	希釈窒化物混晶半導体量子ドットの作製とデバイス応用に関する研究		
主査	筑波大学教授	工学博士	重川秀実
副査	筑波大学教授	工学博士	村上浩一
副査	筑波大学助教授	工学博士	岡田至崇
副査	筑波大学助教授	工学博士	佐々木正洋

論文の内容の要旨

本論文では、Ⅲ-V-N系化合物混晶半導体を用いて、高密度の長波長帯自己組織化量子ドット構造をGaAs(001)基板上に作製する技術の確立、及び太陽電池等のデバイス応用の検討に関する研究論文である。試料の作製には、原子状水素援用RF分子線エピタキシー法を独自に開発した。

GaInNAsの作製において、窒素はGaAs結晶への非混和性が高く、固溶度が低いといった問題がある。本論文ではRFプラズマによって活性度の高い窒素、原子状の窒素を発生させる方法を用いているが、窒素原子のクラスター化、また相分離等が生じやすく、結晶成長過程の精密な制御が必要である。GaInNAs材料系は4元混晶であることから、GaAs近傍での格子定数の制御において自由度があり、さらに巨大なバンドギャップボーイングを持つことから、より大きな長波長発光化が期待できる。しかしながら、GaInNAsは研究初期から量子井戸を中心に研究が行われており、量子ドットへの適応例は少ない。

本論文では、まずGaAs(001)基板上にGaInNAs量子ドットを作製し、その結晶性、及び量子ドット形成のメカニズムに関する評価を行った。結晶成長中の原子状水素の照射は、GaAsをはじめとするⅢ-V族化合物半導体の供給原子の表面拡散長の増大や基板ステップの不活性化などに効果があることが知られているが、今回、GaInNAs量子ドットにおいても水素流量が量子ドットの成長過程、発光特性に強く影響することを明らかにした。また、結晶成長中に0.6sccm程度の適量の原子状水素フラックスの照射を行うことで、高品質でかつ高密度なGaInNAs自己組織化量子ドット群の作製を達成した。さらに、最適な水素流量条件を用いて作製したGaInNAs量子ドットにおいて、窒素流量及びアニール処理を検討することにより、光ファイバ通信分野で必要とされる1.3 μ m帯での室温発光に成功した。

次に、GaNAs材料を用い、多重積層量子ドット構造の作製を試みた。GaNAsの格子定数は、少量の窒素の添加によって、GaAsよりも小さくすることが可能であり、量子ドット部で残留する圧縮歪みとは逆の引張り歪みを発生させることが可能と考えた。GaNAs膜を積層量子ドット間の中間層として用いることで、一周期毎に平均歪みを一旦ゼロに戻しながら成長ができることから、原理的には無限数の積層量子ドット構造が作製できると考えた。本論文では、GaNAs歪み補償中間層は、積層量子ドット試料の残留歪みを制御できる有効な手段であることをXRD、AFM、断面STEM測定の結果より明らかにし、GaAs基板上の自

己組織化量子ドットでは困難とされた多重積層技術を確立した。さらに、30層以上の高品質な多重積層量子ドット構造の作製を達成し、 10^{12}cm^{-2} 台という従来の成長方法では非常に困難であった超高密度の多重積層量子ドット構造を実現した。このとき、量子ドットからのPL発光波長はGaNA_s障壁層とのバンドオフセットの影響から長波長発光化が得られることを示した。

最後に、以上で得られたGaNA_sを用いた多重積層InAs量子ドットの作製技術を、デバイスへ応用するため、量子ドット型太陽電池の検討を行った。GaAs基板を用いて量子ドット超格子型太陽電池を試作し、量子効率測定及びPL測定から、量子ドットの光吸収を明確に確認できた。このとき、量子効率の逆バイアス依存性、並びに暗電流特性等のデバイス諸特性を調べた結果、量子ドット部での発光再結合による損失まだ大きく、素子構造の最適化が必要であることがわかった。次に、GaAs基板上に作製した3層積層InGaAs量子ドット試料の電子的特性を導電性SPM法により評価した。積層量子ドット試料の電気特性は、上下の量子ドットの量子準位に強く影響し、今後、積層量子ドット間のトンネル効果を用いた更なる量子ドットの寄与による光キャリアの収集の改善には、バンド構造の精密な設計などのバンドエンジニアリングの必要性が示唆されることを示した。

以上の結果から、Ⅲ-V-N系化合物混晶半導体は、自己組織化量子ドットの光デバイス応用に必要とされる、長波長発光、高密度、高均一化を達成し得る有用な材料であることを示した。本研究で確立したGaAs基板上への量子ドットの多重積層化技術により、安価なGaAs基板上への様々な新機能素子の作製が今後期待される。

審 査 の 結 果 の 要 旨

量子ドットのもつエネルギースペクトルの離散性と狭い線幅は、デバイス応用の観点から大変重要であり、半導体レーザー、超高速光スイッチ、太陽電池、量子コンピュータ素子などへの応用が検討されている。本論文は、Ⅲ-V-N化合物混晶半導体GaInNA_s材料を用いた長波長帯自己組織化量子ドットの作製技術及びデバイス応用に関するオリジナリティーの高い研究である。

本研究の特筆すべき結果として、(1)GaAs(001)基板上へのGaInNA_s自己組織化量子ドットの作製を行い、MBE成長時に供給する水素流量と窒素流量、また成長後のアニール処理の最適化により光ファイバ通信で必要とされる1.3 μm 帯の室温発光を達成したこと、(2)GaAs(001)基板上のInAs自己組織化量子ドットにおいて、GaNA_sによる歪み補償効果を研究し、多重積層化技術の開発に成功したこと、そして(3)歪み補償成長法により、20周期以上積層させた量子ドット型太陽電池を世界で初めて作製し、量子ドットによる光電変換を得ることに成功した、などが挙げられる。さらに、高真空中での低温導電性プローブ評価法が、量子ドットの電子輸送過程を評価するための有効な手段であることを示し、量子ドット内の電子状態の縮退には、円形対称に優れた形状が必要であることを明らかにした。

論文審査では、大変興味深い上記研究成果に対し、特にGaInNA_s自己組織化量子ドットの形成メカニズムと窒素の効果、GaNA_sによる歪み補償効果とInAs自己組織化量子ドットの多重積層化メカニズム、量子ドット型太陽電池に要求される量子ドットの特性とデバイス構造等に関して、踏み込んだ議論を行った。

よって、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。