

Memoirs of the Osaka Institute
of Technology, Series A
Vol.49, No.1(2004) pp.21~32

SiをドーピングしたInAs/AlSb量子井戸構造の サブバンド間遷移と界面評価 *

中井 正人・中島 洋二・古川 雅志・佐々 誠彦・井上 正崇
Diane C. LARRABEE**・Junichiro KONO**・Jianzhong LI***・Cun Z. NING***

工学研究科 電気電子工学専攻
〈2004年5月28日受理〉

Intersubband Transition and Interface Evaluation
in Si-doped InAs/AlSb Quantum Well Structures

by

Masato NAKAI, Youji NAKAJIMA, Masashi FURUKAWA,
Shigehiko SASA, Masataka INOUE,

Diane C. LARRABEE, Junichiro KONO, Jianzhong LI, Cun Z. NING

Major in Electrical and Electronics Engineering, Graduate Course of Engineering.
(Manuscript received May 28, 2004)

* 第51回応用物理学関係連合講演会にて口頭発表
(2004年3月30日, 東京工科大学)

** Department of Electrical and Computer Engineering, Rice Quantum institute, and Center for
Nanoscale Science and Technology, Rice University, Houston, Texas

*** NASA Ames Research Center, Moffett Field, California

Abstract

We investigated intersubband transitions (ISBTs) in narrow InAs/AlSb multiple quantum wells (MQWs) for the development of a compact light source operating in the terahertz region. To observe strong ISBTs in the near infrared region, heavy silicon doping was made in each InAs quantum well. For 20 periods of MQWs with well width, d , ranging from 5 nm down to 1.8 nm, the ISBT signal decreased as the well width decreased and disappeared for $d < 2.7$ nm. By increasing the MQW period to 60, the ISBT was observed for $d = 2.1$ nm. The peak energy was 670 meV at 77K. This is the highest energy value ever observed for ISBTs in InAs/AlSb MQWs.

1 研究背景と目的

近年、テラヘルツ波と呼ばれる電磁波が注目を浴びている。このテラヘルツ波は図1に示すようにちょうど電波と光波の中間領域である100 GHz ~ 10 THzの領域を指し、現在研究開発が遅れている未開拓の領域である。このテラヘルツ波は半導体、プラスチック、ゴム、セラミック、紙、繊維、骨、脂肪などを透過可能であり、直進性をそなえる。また、水には吸収されるという特徴も持つ。さらに、従来赤外領域に多数存在することが知られていた、物

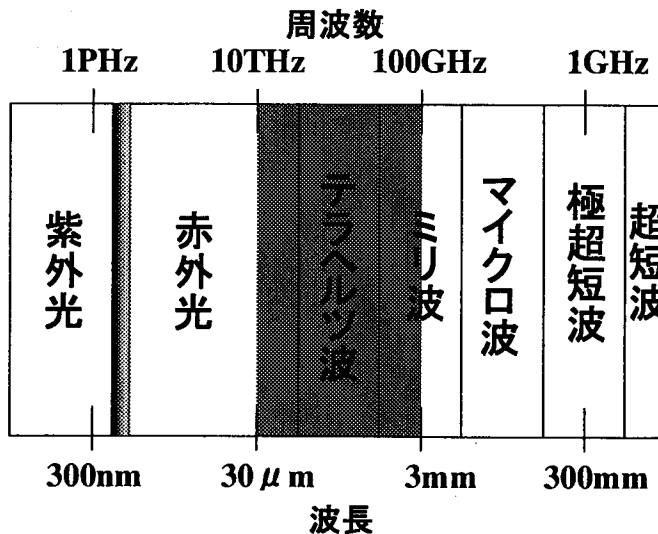


図1 テラヘルツ領域

質を特定可能な指紋スペクトルと呼ばれる吸収スペクトルが、このテラヘルツ領域にも存在することが明らかになってきた。このような性質を利用すると様々な応用への可能性が広がる。例えば、透過性と指紋スペクトルを組み合わせると封筒や鞆の中の化学物質を特定することができる。これは紙などを透過できない赤外光では不可能であった封筒の中に入った麻薬などの禁止薬物の検査に応用¹⁾できる。また、東芝ケンブリッジ研究所は癌組織と正常組織のテラヘルツ波に対する吸収に差があることを利用した癌の早期診断が可能であると発表²⁾した。さらに、白人に多い皮膚癌はテラヘルツイメージングにより良性か悪性かの早期診断が可能であると、X. C. Zhangら³⁾によって報告されている。

こういったテラヘルツ波は様々な方面からその発生方法が研究されている。まず自由電子レーザー⁴⁾やp型Geレーザー⁵⁻⁷⁾が挙げられる。これらはともに広帯域可変テラヘルツ光源であるが、それぞれ装置が非常に大型であったり動作に液体ヘリウムが必要であったりする。このため、これらの方法はもっぱら研究用途に使用されている。現在盛んに研究されているのは、フェムト秒レーザーパルスを半導体や光スイッチに当ててキャリアを励起し、発生させる方法⁸⁾である。また、川瀬らは非線形光学効果を用いたテラヘルツ波パラメトリック光源^{9, 10)}を開発し、出力こそ弱いもののおよそ0.5 THz ~ 2.5 THzのテラヘルツ波を周波数可変で発生させることに成功している。

我々は前述の方法には無い新しい方法でのテラヘルツ波発生を目標として、ライス大学およびNASAとの共同研究を行っている。我々の方法は近赤外半導体レーザーを励起用光源としてテラヘルツ波を発生させるもので、半導体量子井戸内のサブバンド間遷移 (Intersubband Transition: ISBT) を利用する。InAs, AlSb, GaSbという3種類のIII-V族化合物半導体を用いて図2に示すような結合量子井戸構造を作製すると、図のようなサブバンドが形成される。図

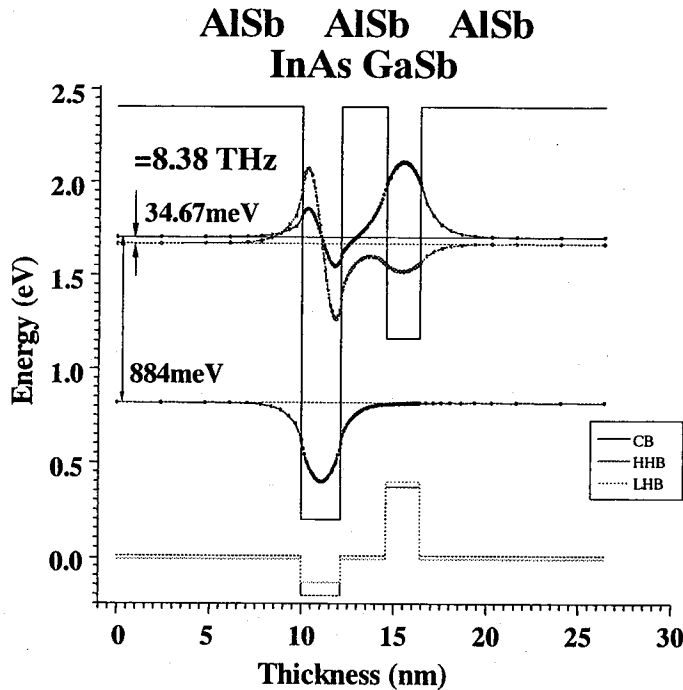


図2 テラヘルツ波発生のためのInAs/AlSb/GaSb結合量子井戸構造

のようにこの系はタイプIIのヘテロ構造を有し、伝導帯の不連続がInAs/AlSbで2 eV以上あり、サブバンド間遷移を利用するには理想的な材料系である。近赤外レーザを励起光源としてInAs/AlSb量子井戸内に形成されたサブバンド間で電子を吸収させ、それがGaSb/AlSb量子井戸によって形成されたサブバンドへと遷移する際にテラヘルツ波が発生する。このため、まずInAs/AlSb量子井戸に着目し、884 meVという高い吸収エネルギーを観測するための研究¹¹⁻¹³⁾を行ってきた。

従来、ノンドープInAs/AlSb多重量子井戸 (Multiple Quantum Wells: MQWs) 構造においてAlSb障壁層の膜厚を10 nmに固定し、InAs井戸層の膜厚を変化させた時のISBTの膜厚依存性を調べてきた。その結果、InAs井戸幅が異なる試料においてそれぞれ図3のようなISBTが観測¹³⁾

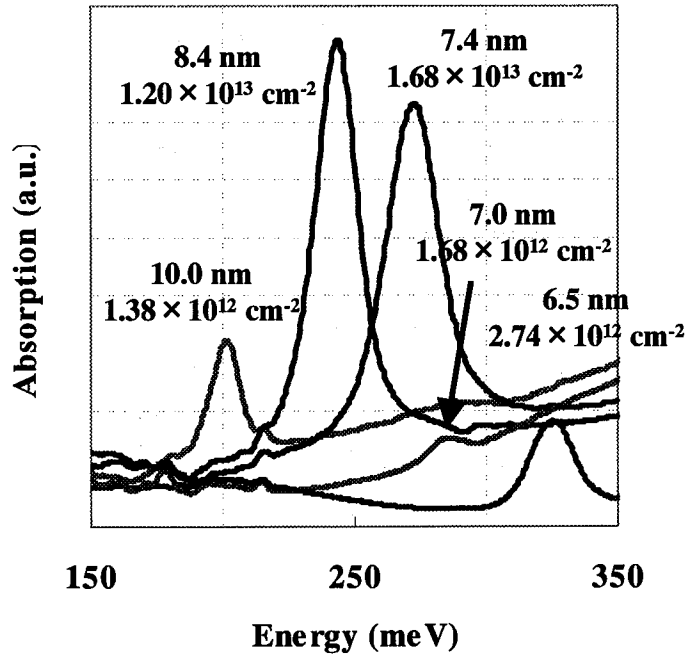


図3 ノンドープInAs/AlSb MQWsのISBT測定結果
数値はそれぞれ(上) InAs井戸層膜厚(下) 20周期全体のキャリア濃度

できた。さらにこの結果から、キャリア濃度が高い試料ほど吸収エネルギーの強度も大きくなることが分かった。これはISBT積分強度が次式のように示される¹⁴⁾ ことから説明できる。

$$I \propto \sigma \cdot N \cdot f / m^* \quad (1)$$

ここで I はISBT積分強度、 σ は井戸一層当たりの2次元キャリア濃度、 N は井戸数、 m^* は井戸層の有効質量、 f は振動子強度である。この式からISBT積分強度は井戸一層当たりの2次元キャリア濃度に比例することが分かる。また、InAs井戸幅がより薄い試料ではISBTが観測されなかった。これは(1)式からISBT積分強度が有効質量に反比例していることから説明できる。すなわち、InAs井戸幅が薄くなり吸収エネルギーが大きくなると、有効質量も増大するためISBT積分強度がそれに比例して小さくなるのである。そこで、InAs井戸幅の薄い試料で高エネルギーのISBTを観測するために、新たにInAs井戸層にSiをドーブし、高濃度の試料を作製することでISBT積分強度の増大を狙った。

2 実験方法と結果

我々は分子線エピタキシー (Molecular Beam Epitaxy: MBE) 装置を用いてInAs/AlSb量子井戸を20周期重ねたMQWsをGaAs (100) 基板上に作製し、それをフーリエ変換赤外分光法 (Fo

InAs	10 nm
Si doped InAs/AlSb MQWs	d nm/10 nm
AlGaSb	200 nm
GaSb/AlSb	6/6 nm × 15
AlSb	1000 nm
GaSb	300 nm
AlSb	100 nm
AlAs	10 nm
GaAs	300 nm
GaAs (100)	sub.

図4 作製したSiドープInAs/AlSb MQWs

表1 作製した試料のInAs層膜厚と1周期当たりの濃度

InAs thickness (nm)	sheet doping density per period (cm^{-2})	MQWs period	observation of ISBT
5.0	2.15E+12	20	○
4.0	3.11E+12		○
3.0	2.96E+12		○
2.7	5.99E+12		○
2.1	1.43E+13		×
1.8	1.07E+13		×

urier Transform Infrared spectroscopy : FTIR) により測定することでISBTを観測した。

図4に示すように、GaAs (100) 基板上に多くのバッファ層を介してInAs層にSiを変調ドープしたInAs/AlSb MQWsを20周期作製した。AlSb層の膜厚は10 nmに固定し、表1のようにInAs井戸幅と1周期当たりのキャリア濃度を変えた試料を作製した。これらの試料をFTIRによって吸収測定した結果は図5に示した。

図5のように、20周期のInAs/AlSb MQWsでは、InAs井戸幅が2.7 nmの試料において吸収エネ

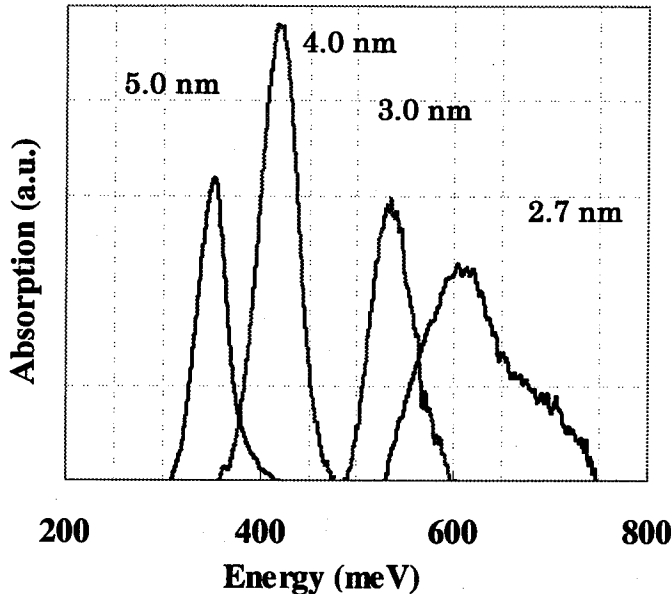


図5 20周期試料のISBT測定結果とInAs井戸層膜厚

ルギーの最大値620 meVという結果が77Kで得られた。それより膜厚の薄い試料においては吸収が得られなかった。

InAs井戸幅が2.7 nmの試料においてそのピークがややブロードであったこと、さらに結晶成長中の反射高エネルギー電子線回折 (Reflection High Energy Electron Diffraction: RHEED) パターンによる観察などからAlSbからInAsに切り換える際の界面に何か問題があるのではないかと判断し、ヘテロ界面の評価を行った。この界面にはInSb-likeと呼ばれるものとAlAs-likeと呼ばれるものとの2種類の界面が選択できる。これまでの研究成果¹⁵⁾として結晶性が一番良い結果となったのは、AlSbからInAsに切り換える際の界面とInAsからAlSbに切り換える際の界面共にInSb-likeとして1ML挿入したものであった。これまで界面の評価には前述のRHEEDパターンやフォトルミネッセンス (Photo Luminescence: PL) 法を利用していたが、それぞれRHEEDパターンが悪く評価しづらい場合があったり、膜厚が異なると比較できなかったりという欠点があった。従って、今回はX線回折 (X-Ray Diffraction: XRD) 法による評価も取り入れてヘテロ界面をさらに詳しく評価した。他の研究機関では、両側の界面をInSb-likeとした場合のXRDピークはAlSbバッファ層のピークとInAs/AlSb MQWsによる0次のサテライトピークが重なるという結果^{16, 17)}が報告されている。我々も両側の界面を共にInSb-likeとしたシミュレーションを行った所、ピークが重なることを確認した。また、片側の界面をAlAs-likeとしたものと両側の界面をAlAs-likeとしたものそれぞれのシミュレーションも行った結

果、図6のようにInAs/AlSb MQWsによるサテライトピークが全体的に右側へシフトしていくことも分かった。

このシミュレーション結果を利用して、実際にAlSbからInAsに切り換える際の界面が異なる試料を作製し、評価を行った。試料は上記と同様に、MBE装置を用いてGaAs (100) 基板に多くのバッファ層を介した後にノンドープのInAs/AlSb MQWsを20周期作製した。ここで、バッファ層の構造が図4のままであると、XRD測定した際にAlGaSbバッファやGaSbバッファ等によるピークがAlSbバッファのピークの近くに現れてしまい、界面の評価ができなくなる。そこで、図4の構造においてGaSb層を50nm、GaSb/AlSb超格子を3周期、AlGaSbを40nmとした試料を作製した。多重量子井戸部分の膜厚はInAs/AlSbをそれぞれ6 ML/18 MLとし、界面の構造はAlSbからInAsに切り換える際の界面をInSbとAlAsの2種類として作製した。これらの試料をXRD測定した結果を図7に示した。

それぞれのピークは上側が測定結果で下側がシミュレーションの結果である。この図より、界面が共にInSb-likeの場合はAlSbバッファ層のピークとInAs/AlSb MQWsによる0次のサテライトピークが重なっていることが確認できた。また、片側の界面をAlAs-likeとした場合においてもInAs/AlSb MQWsによるサテライトピークが全体的に右にシフトしていることが確認できた。すなわち、設計どおりの界面が形成されていることが確認できたといえる。

以上の点をふまえ、我々はさらに高い吸収エネルギーを観測するためのアプローチを検討した。その方法としては、(1)式におけるキャリア濃度の更なる増加、もしくは井戸数を増やすことが挙げられる。しかし、キャリア濃度の増加はすでに限界に達しつつある。そこで、今度は後者の量子井戸の周期数を増やしてISBT積分強度をかせぐという方法をとった。試料構造は前述の20周期の場合と同じ構造であるが、InAs/AlSb量子井戸の周期は60とした。InAs井戸幅は2.1 nmとした。Siはできるだけ高濃度になるようにInAs層内にドーブし、1周期当たりのキャリア濃度は $9.21 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ とした。この試料をFTIRにより測定した結果は図8のようになった。

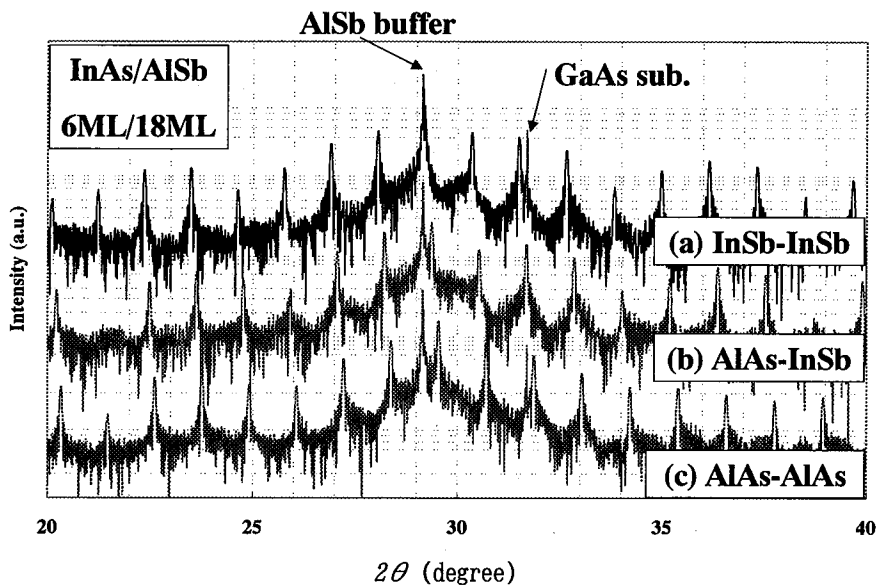


図6 界面を変えてシミュレーションした場合のXRDスペクトルの変化
 (a) 界面が両方InSbの場合, (b) 片方がAlAsの場合, (c) 両方AlAsの場合

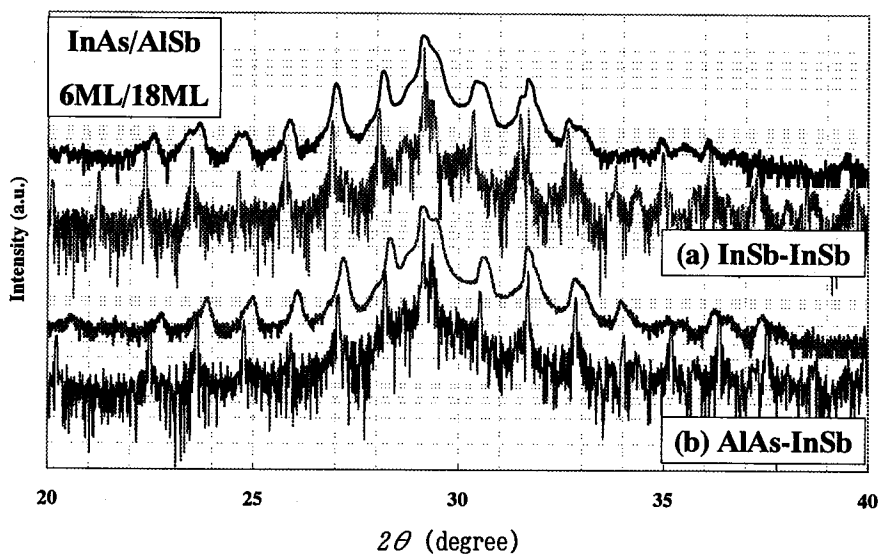


図7 (a) 界面を両方InSbとした場合, (b) 片方をAlAsとした場合のXRD測定結果 (上側)
 とシミュレーション結果 (下側) との比較

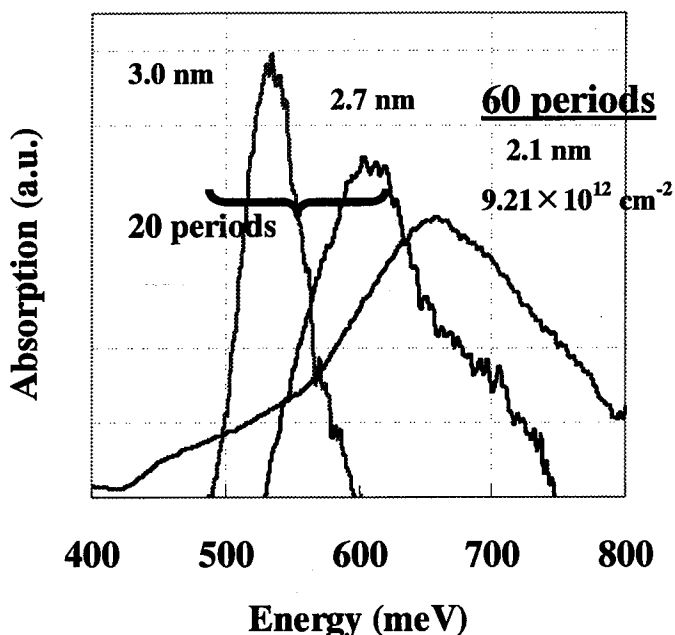


図8 60周期試料のISBT結果と20周期試料との比較（数値はInAs井戸層膜厚）

20周期の試料のISBT測定結果と比べると吸収エネルギーの半値幅はより大きくなった。この原因は高濃度にドーピングすることによって生じた移動度の低下とラフネス散乱に起因するものである¹⁴⁾と考えられる。しかし図のように、77Kにおいて約670 meVというピークエネルギーを持ったISBTを得ることができた。このピークエネルギー値はこの時点でのInAs/AlSb量子井戸構造系¹⁸⁾で最大の値となった。

3 まとめ

我々はInAs/AlSb/GaSb結合量子井戸構造におけるサブバンド間遷移を利用したテラヘルツ発光を目指して研究を行ってきた。その実現のためには、InAs井戸幅が薄い量子井戸構造で高エネルギーのISBTが不可欠である。従来ISBTを観測するためMBE装置を用いてGaAs (100)基板上にInAs/AlSb MQWsを作製し、FTIRによる測定を行ってきたが、ノンドープの試料においてはInAs井戸幅が薄くなるにつれISBTの観測が困難となっていた。

そこで、InAs層にSiをドーピングすることによってキャリア濃度を高くし、ノンドープの試料よりもさらにInAs井戸幅の薄い試料においてISBTの観測を試みた。また、界面が設計どおりに作製されているかどうか、より詳細な評価を新たにXRD測定とそのシミュレーションを用いて行った。

その結果、界面が設計どおりに作製されていることを確認し、量子井戸の周期が20周期の試料において約620 meVのISBTを観測することが出来た。さらに周期数を増やすことで、60周期の試料においては約670 meVというさらに高いピークエネルギーを持ったISBTを得ることができた。このISBTの値、約670 meVは、この時点でのInAs/AlSb量子井戸構造系では最大値となるトップデータであり、サブバンド間遷移を利用した新たなテラヘルツ発光に向けて前進したといえる。

図, 表の説明

- 図1 テラヘルツ領域
- 図2 テラヘルツ波発生のためのInAs/AlSb/GaSb結合量子井戸構造
- 図3 ノンドープInAs/AlSb MQWsのISBT測定結果. 数値はそれぞれ (上) InAs井戸層膜厚 (下) 20周期全体のキャリア濃度
- 図4 作製したSiドーブInAs/AlSb MQWs
- 図5 20周期試料のISBT測定結果とInAs井戸層膜厚
- 図6 界面を変えてシミュレーションした場合のXRDスペクトルの変化. (a) 界面が両方InSbの場合, (b) 片方がAlAsの場合, (c) 両方AlAsの場合
- 図7 (a) 界面を両方InSbとした場合, (b) 片方をAlAsとした場合のXRD測定結果 (上側) とシミュレーション結果 (下側) との比較
- 図8 60周期試料のISBT結果と20周期試料との比較 (数値はInAs井戸層膜厚)
- 表1 作製した試料のInAs層膜厚と1周期当たりの濃度

参考文献

- 1) K. Kawase, Y. Ogawa, and Y. Watanabe, *Optics Express*, 11 (2003) 2549
- 2) R. M. Woodward, B. E. Cole, V. P. Wallace, D. D. Arnone, R. J. Pye, E. H. Linfield, and M. Pepper, *Phys. Med. Biol.* 47 (2002) 3853
- 3) X. C. Zhang, *Proc. 26th Intel. conf. on Infrared and millim. Waves*, (2001) in print
- 4) D. H. Levy et al., *Free Electron Lasers and Other Advanced Sources of Light*, National Academy Press, (1994) 24
- 5) S. Komiyama, *Phys. Rev. Lett.* 48 (1982) 271
- 6) N. Hiromoto, I. Hosako, and M. Fujiwara, *Appl. Phys. Lett.* 74 (1999) 3432
- 7) E. Brundermann, A. M. Linhart, H. P. Roser, O. D. Dubon, W. L. Hansen, and E. E. Haller, *Appl. Phys. Lett.* 68 (1996) 1359
- 8) 阪井清美, 谷正彦, *応用物理*, 70 (2001) 149
- 9) K. Kawase, S. Ariyoshi, C. Otani, H. Minamide, K. Imai, J. Shikata, and H. Ito,

RIKEN Review. 47 (2002) 48

- 10) K. Kawase, J. Shikata and H. Ito, *J. Phys. D : Appl. Phys.* 34 (2001) R1
- 11) J. Li, K. Kolokolov, C. Z. Ning, D. C. Larrabee, G. A. Khodaparast, J. Kono, K. Ueda, Y. Nakajima, S. Sasa, and M. Inoue, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 744 (2003) M9.2.1
- 12) D. C. Larrabee, G. A. Khodaparast, J. Kono, K. Ueda, Y. Nakajima, M. Nakai, S. Sasa, M. Inoue, K. I. Kolokolov, J. Li, and C. Z. Ning, *Appl. Phys. Lett.* 83 (2003) 3936
- 13) 中島洋二 他, 2003年春季応物予稿集 28p-ZD-16
- 14) See, for example, *Intersubband transitions in Quantum Wells: Physics and device applications I & II*, edited by H. C. Liu and F. Capasso (Academic, New York, 2000).
- 15) 上田勝彦 他, 2002年秋季応物予稿集 25p-ZC-9
- 16) K. Ohtani, A. Sato, Y. Ohno, F. Matsukura, and H. Ohno, *Applied Surface Science*, 159-160 (2000) 313
- 17) A. Sato, K. Ohtani, R. Terauchi, Y. Ohno, F. Matsukura, and H. Ohno, *J. Crystal. Growth*. 201-202 (1999) 861
- 18) K. Ohtani, N. Matsumoto, H. Sakuma, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* 82 (2003) 37