

## 原 著

## InAs/InGaAsP 量子ドットの発光現象の解析

佐藤 里枝, 山口 萌花, 佐藤麻未子, 竹内 悠, 今井 元  
日本女子大学理学研究科 数理・物性構造科学専攻

(2013年10月 8 日受理)

**要 旨** 我々は, InAs/InGaAsP/InP 量子ドット構造半導体について, フォトルミネッセンス測定より得られる発光スペクトルを用いて解析を行ってきた。これまでに, ドットのサイズばらつきによって量子ドットのエネルギー準位が幅を持ち, バルクのバンドフィリングのような現象が起きているのではないかと推定してきた。今回は新たに同じ材料で薄い InAs ドット層を 12 層近接積層したコラムナ量子ドットについて同様の測定を行った。測定・解析結果より, 従来の量子ドットとは異なる振る舞いを示したため両試料の結果について検討を行った。

また, 我々は温度に対する PL ピークシフトについて測定を行った。そこで量子準位の温度依存性を解析し, PL ピークの温度依存性を検討した。

**キーワード** : InAs/InGaAsP/InP 量子ドット構造半導体, InAs/InGaAsP/InP コラムナ量子ドット構造半導体, フォトルミネッセンス

## 1. はじめに

量子構造を用いた半導体は様々なデバイスの性能を向上させるとして, 近年研究が盛んに行われている。光通信システムでは伝送の中継器として半導体光増幅器 (Semiconductor Optical Amplifier, SOA) が必要となるが, 量子ドットはこの SOA の性能向上が期待されている。また, 光通信では信号光の偏波方向が一樣ではないため, SOA の出力も偏波に依存せず常に一定であることが求められる。そこで, 本研究室では量子ドット構造半導体の偏波依存性について研究を行っている。その第一歩として本研究では量子ドット構造半導体の発光現象について解析を行った。

これまでに, InAs/InGaAsP/InP 量子ドット構造半導体の PL スペクトルを解析することでバルクのバンドフィリングのような現象が起きているのではないかと推定を行ってきた。そこで今回新たに同材料のコラムナ量子ドットでの測定結果と比較することで, 量子ドット, コラムナ量子ドット両試料の発光現象を明らかにすること

を目的としている。

## 2. 試 料

本研究では測定に 5 種類の量子ドット構造半導体 (Quantum Dot, QD) と 4 種類のコラムナ量子ドット構造半導体 (Columnar Quantum Dot, CQD) を用いた。試料の構造を図 1 に示す。両試料共, 基板には InP を, ドット層には InAs を用いている。表 1 (i) に示すように, QD では InGaAsP スペース層の厚さが 20nm ~ 40nm 程度となっており, ドット層とスペース層が 7 層重なった積層構造をしている。標準的なドットの大きさは 30nm ×

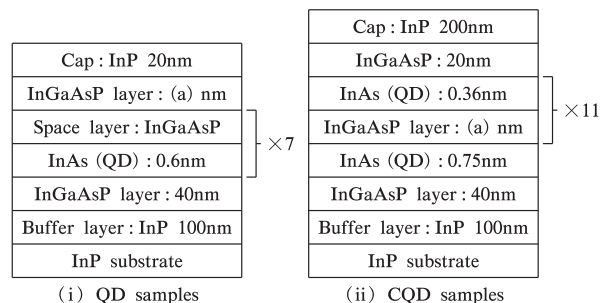


Fig. 1. Schematic structures of samples

Table 1. Parameters of samples

(i) QD samples				(ii) CQD samples		
	(a)	Spacer	$\Delta a/a$		(a)	$\Delta a/a$
Sample #1	20nm	40nm	0%	Sample #C1	0.84nm	2.0%
Sample #2	20nm	20nm	0.4%	Sample #C2	0.75nm	1.6%
Sample #3	20nm	20nm	0.8%	Sample #C3		1.2%
Sample #4	20nm	20nm	0.6%	Sample #C4		1.4%
Sample #5	10nm	30nm	0.4%			

40nm×6nm の薄いお皿型をしているが、ドットの成長方法が自己組織的なものであるために、ドットのサイズには±数10%程度のばらつきがあるとされている。

一方 CQD では表 1 (ii) に示すように InGaAsP バリア層の厚さが 1 nm 以下と非常に薄く、ドット層とバリア層が12層積層した構造になっている。バリア層の厚さが非常に薄いため、積層した12層のドットはそれぞれが電子的に強く結合し、大きな1つのドットと考えることが出来る。この結合したドットをコラムナ量子ドットと呼ぶ。コラムナ量子ドットの標準サイズは 10nm×20nm×14nm であり、QD と同様の成長方法のために、QD と同程度のサイズばらつきがあると考えられる。

試料の断面模式図を図 2 に示す。

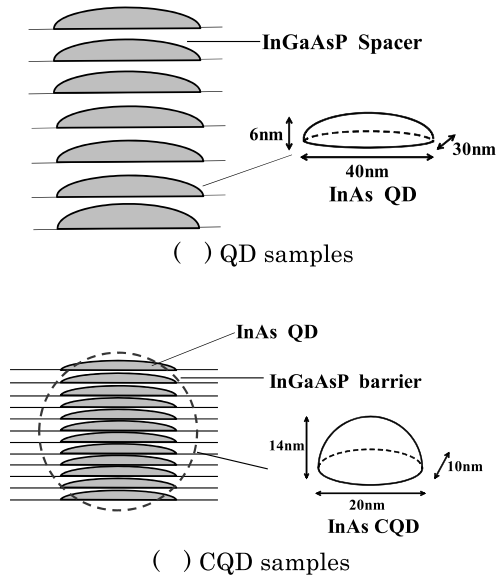


Fig. 2. Pattern diagrams of samples

各層の厚みと InGaAsP 層の引っ張り歪量を表 1 に示す。

$\Delta a/a$  は基板 InP と InGaAsP バリア層の格子不整合の割合である。 $\Delta a$  は基板 InP の格子定数と InGaAsP バリア層の格子定数の差を、 $a$  は InP の格子定数を表している。QD では  $\Delta a/a$  の値が 0% ~ 0.8% であるのに対し、CQD では 1.2% ~ 2.0% とやや大きい値になっている。

### 3. フォトルミネッセンス (PL) 測定

本研究では図 3 のような測定系を用い、フォトルミネッセンス (PL) 測定を行った。励起光には YAG レーザ (CrystaLaser, IRCL-1W-1064) を用いた。レーザの波長は 1,064nm, パワーは 1W である。レーザを 90° 回転させることで励起光の偏波方向を p 偏光と s 偏光に変化させて測定を行った。試料に対し、励起光の入射角を 30° から 70° まで変化させて測定し、それぞれの入射角、偏光方向ごとに試料内に吸収される光の総量を求めた。

回折格子型分光器 (Jobin Yvon, Triax 320) によって PL 光を分光, PbS 受光器で受光し, PL 発光スペクトルを観測した。励起光の強度を変化させる際にはレーザと試料の間に吸収型 ND フィルタ (50%, 10%) を設置し測定を行った。試料の温度はペルチェ素子を用い制御した。

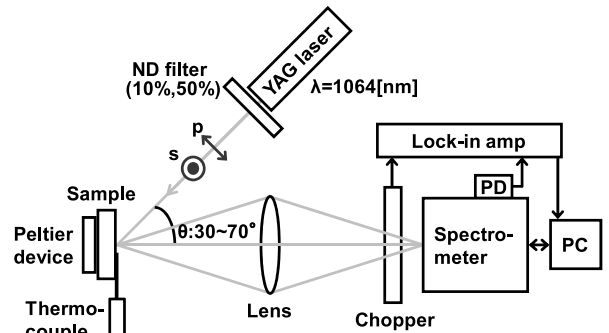
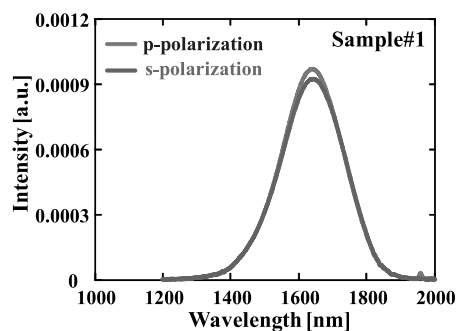


Fig. 3. Experimental set-up

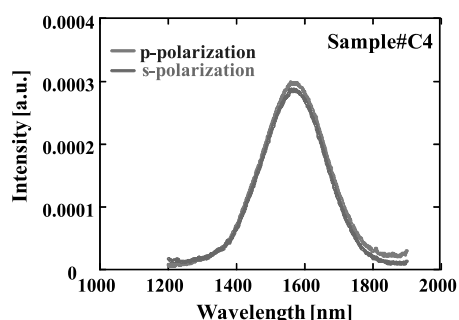
### 4. 結果と解析

#### 4.1 発光スペクトル

図 4 に測定によって得られた発光スペクトルを示す。(i) は QD のスペクトル, (ii) は CQD のスペクトルである。これより、両試料共スペクトルは単峰性を持つということがわかる。また、CQD のほうが QD よりも発光波長が短波長である。これは CQD の圧縮歪みが QD よりも大きいため、 $E_g$  が広がり発光波長が短波長になったと考えられる。



( ) for QD samples

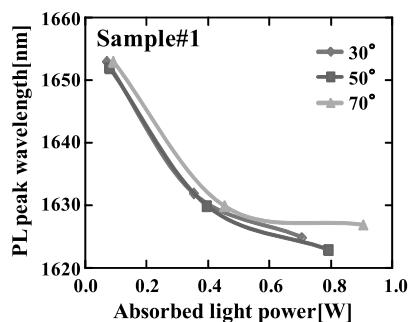


( ) for CQD samples

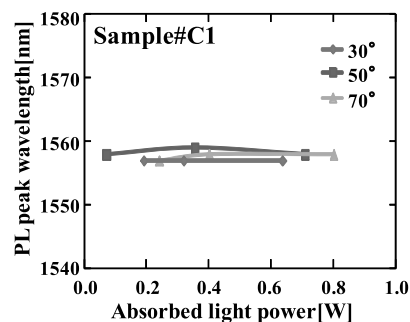
Fig. 4. PL spectra of QD (i) and CQD (ii)

#### 4.2 吸収パワーと PL ピークの関係

図5は試料温度 (30°C)・入射角を一定にし、励起光強度を変化させたときの PL ピーク波長と試料に吸収さ



(a) for QD



(b) for CQD

Fig. 5. PL peak wavelength versus absorbed light power.

れる光のパワー (以下吸収パワー) の関係である。(a) は QD の結果を, (b) は CQD の結果をそれぞれ表す。この結果より, QD では吸収パワーが増加するに従って PL ピークは短波長にシフトしていることが確認できる。一方 CQD では, 励起光の変化に対し PL ピークに変化が見られなかった。

QD では, 図2に示したように薄いお皿型のドットが, 7層重なった積層構造をしている。ドットの縦方向のサイズが6 nm と薄いため, 波動関数の染み出しが多くなると考えられる。また, 7層積層されているため, 縦方向に染み出した波動関数がそれぞれカップリングすると考えた。

これまでの研究により, QD ではサイズばらつきによって異なる量子準位が結合し広がると報告されている。したがって縦方向の波動関数のカップリングによってそれぞれの準位が帯となり, バルクのバンドフィリングのような現象を引き起こすのではないかと推定した。一方で CQD は, 非常に薄いバリア層とドット層が12層積層された結果, 電子的に強く結合し, これらのドットをひとつのドットと考えることができる。その結果体積の大きな一つのドットとなるために, コラムナドットではバンドフィリングの傾向が見られないのではないかと推定した。

図6に QD のスペーサ層の厚さと, 吸収パワーを変化させたときの PL ピークの短波長シフトの傾きとの関係を示す。この結果からスペーサ層の厚さが薄いほど, より短波長シフトしているということがわかる。これはスペーサ層が薄いほど縦方向のカップリングが起きやすくなるため, バンドフィリングの傾向が顕著に表れていると考えることが出来る。

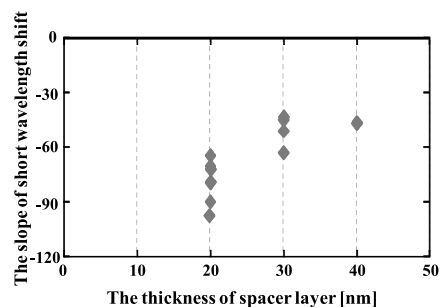


Fig. 6. The relationship between the slope of short wavelength shift and the thickness of spacer layer.

#### 4.3 温度とピーク波長の関係

試料の温度上昇と PL ピークシフトの関係を確認するために, 温度を上昇させたときの PL ピークとの関係を調べた。このとき, 励起光強度は一定で測定を行った。図7は p 偏光で励起したときの試料温度と PL ピークの

関係を示したものである。図中の破線は、ドット層に用いられる InAs のバンドギャップエネルギー ( $E_g$ ) の温度依存性を示した傾向線である。この結果から QD, CQD 両試料共に温度上昇に従い PL ピークは長波長にシフトしているということがわかる。この傾向は s 偏光励起でも同様であった。また、QD では InAs の  $E_g$  の温度依存性とほぼ同じ傾きで PL ピークが長波長にシフトしているのに対し、CQD では InAs の  $E_g$  の温度依存性よりもやや緩やかに長波長シフトしているのが確認できる。このことから、CQD のほうが温度依存性が小さいと考えられる。

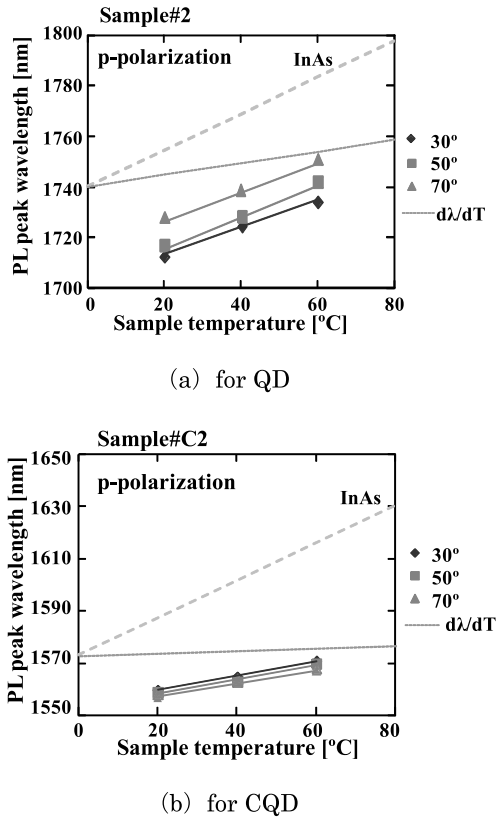


Fig. 7. PL peak wavelength versus sample temperature.

この結果を解析するにあたり、QD, CQD の量子準位の計算を行った。本研究では20℃から60℃まで40℃温度上昇させているため、 $E_g$  の温度変化を表す式 (1) を用い40℃温度変化させた場合の  $E_g$  を算出した。この  $E_g$  を用いて、QD, CQD の量子準位を求め、温度上昇前と温度上昇後でどの程度量子準位が変化するかを確かめた。表2に計算結果を表す。

$$\frac{dE_g}{dT} = -a \times 10^{-4} \text{ [eV/K]} \quad (1)$$

$a$ : 温度変化係数

Table 2. difference between before temperature change and after temperature change.

(a) for QD		(b) for CQD	
	$\Delta E$		$\Delta E$
$E_{e1}$	$-2.97 \times 10^{-1} \text{ meV}$	$E_{e1}$	$-4.29 \times 10^{-2} \text{ meV}$
$E_{hh1}$	$-1.43 \times 10^{-2} \text{ meV}$	$E_{hh1}$	$-1.18 \times 10^{-3} \text{ meV}$
$E_{lh1}$	$-3.04 \times 10^{-1} \text{ meV}$	$E_{lh1}$	$-4.44 \times 10^{-2} \text{ meV}$

表2より QD と CQD で温度変化による量子準位の変化 ( $\Delta E$ ) を比較すると、CQD のほうが  $\Delta E$  の値が約一桁小さいことがわかった。この計算結果より、QD, CQD の温度上昇による波長のシフトを図7の点線  $d\lambda/dT$  として示す。この結果は CQD の温度依存性が小さいことを表している。したがって我々は、CQD では温度上昇に対し量子準位の変化が小さいため、PL ピークは QD よりも緩やかに長波長シフトするのではないかと推定した。

## 5. ま と め

InAs/InGaAsP/InP 量子ドット構造半導体とコラムナ量子ドット構造半導体について、PL 測定によって得られる発光スペクトルの解析を行い、両試料の比較・検討を行った。

発光スペクトルを比較したところ、両試料共スペクトルは単峰性を持つということが確認された。また、CQD のほうが発光波長が短波長であるということがわかった。これは CQD にかかる圧縮歪みが大きいため、 $E_g$  が広がったためではないかと考えた。

吸収パワーと PL ピークの関係では、QD は吸収パワーの増加に従い PL ピークは短波長シフトし、CQD では PL ピークに変化が見られなかった。このことから QD の縦方向で波動関数がカップリングし、通常では離散的な値をとる量子準位が幅を持ち、バルクのバンドフィリングのような現象が起きるのではないかと推定した。

温度と PL ピークの関係から、CQD では温度上昇による長波長シフトが緩やかであった。これは CQD では温度上昇による量子準位の変化が小さく、温度依存性が小さいからであると考えられる。

## 謝 辞

本研究において多大な助言を頂きました東京大学荒川泰彦教授に深く感謝いたします。そして、試料を提供くださった (株) 富士通研究所の皆様にも心より感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) 福田綾子, 本村麻子, 桐原夏紀, 斉藤ゆう子, 江崎美由紀, 今井 元: 日本女子大学紀要, 理学部, 第20号, pp.1-5 (2012)

- 2) 江崎美由紀, 本村麻子, 桐原夏紀, 齊藤ゆう子, 今井 元 :  
日本女子大学紀要, 理学部, 第19号, pp.13-18 (2011)
- 3) 本村麻子, 今井 元 : 日本女子大学紀要, 理学部, 第15号,  
pp.9-12 (2007)
- 4) S. Okumura, N. Yasuoka, K. Kawaguchi, Y. Tanaka, M. Ekawa:  
Journal of Crystal Growth **340**, 87-91 (2012)
- 5) 河口研一, 江川 満, 秋山知之, 植竹理人, 安岡奈美, 江部広  
治, 菅原 充, 荒川泰彦 : 日本結晶成長学会誌, **Vol.33**, No.2.  
pp.83-87 (2006)

---

## Analysis of Photoluminescence Phenomenon of InAs/InGaAsP Quantum Dots Structures

Rie Sato, Moeka Yamaguchi, Mamiko Sato, Haruka Takeuchi and Hajime Imai  
The Graduate School of Science, Division of Mathematical and Material Structure Science,  
Japan Women's University

(Received October 8, 2013)

**Abstract:** We measured the photoluminescence (PL) spectra of InAs/InGaAsP/InP quantum dots structures (QD) and InAs/InGaAsP/InP columnar quantum dots structures (CQD). We compared the measurement results QD and CQD, and examined photoluminescence phenomena for each structure. We compared relations of a shift of the PL peak wavelength to the excitation light power between QD and CQD. For QD, as the excitation light power increased, PL peak shifted to shorter wavelength. For CQD, on the other hand, PL peak did little change. We considered that electron wavefunction coupled in growth direction of QD, because the separation of growth direction between QDs are very small. As the result, we estimated that the quantum level varied due to size variation to broaden each quantum level, and phenomena like the bandfilling arose.

We also compared the dependence of the temperature on PL peak wavelength with QD and CQD. We confirmed that CQD have the smaller temperature dependence than QD.

