

真空連続プロセスによる量子構造形成の現状と展望

浅川 潔・南部 芳宏・河本 滋

量子細線・量子ドット（以後量子井戸を含め単に量子構造と総称する）の形成技術は、自己組織的エピタキシャル成長の進展がめざましく、本特集でも最近の動向が紹介されている。一方、超高真空下でリソグラフィー・ドライエッチング・埋込み再成長を行う連続プロセスによる方法も、所望の場所に構造を形成できる特長を有するものとして注目されている。本稿では筆者らの成果を中心に、最近の進展と今後の展望を述べる。図1は代表的な光デバイスへの応用としての超低閾値面発光レーザー（VCSEL）を念頭に置いた量子ドット形成の課題である。ナノリソグラフィー、埋込み成長界面の非発光特性の抑制、光学遷移のボトルネックなど、量子ドット特有の課題は多いが、ドットの最適密度やサイズゆらぎの素子特性に及ぼす影響なども、量子構造形成の出発点として把握しておかねばならない課題である。最初に次節で筆者らの最近の解析結果を紹介する。

1. 量子構造の最適密度とサイズゆらぎの影響

浅田ら¹⁾の行った単一の量子井戸・量子細線・量子ドット構造の利得計算をもとに、VCSELの活性層に設けられた量子構造集合体の体積密度とレーザーの閾値電流の関係を求めた²⁾。詳細は文献2)に譲るが、体積密度を volumetric ratio ζ で表すと、いずれの場合も閾値は特定の ζ で最小となる。量子ドットでは $\zeta=0.01$ で閾値は量子井戸の場合の1/10まで低下する。計算は、一対の高反射多層膜（DBR）間に存在するドット層を単層（厚み方向の積層密度は0.1）としているため、面内密度は0.1となる。これは、ドットが10 nmの立方体であるとする、ドット間隔が面内にほぼ20 nmでよいことを意味する。一方量子細線では、 $\zeta=0.07$ で閾値が最小（量子井戸の1/4にとどまる）となり、単層での細線では面内間隔は4.3 nm となってドットよりも形成が困難となる。このような細線では2層以上の積層構造

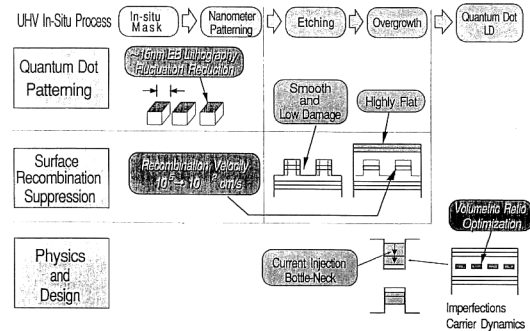


図1 真空連続プロセスによる量子ドット作製の諸課題。

が必要である。サイズゆらぎ（文献2)では δ で示す）については、ドットが優位性を保つためにはゆらぎは5%以下に抑制する必要があることが判明している。これらの解析結果は、デバイス応用を念頭においた量子構造形成の目標として重要な指針をもたらすものであり、大変有用である。

2. 電子ビームによるナノリソグラフィー

埋込み成長を伴う真空連続プロセスでは、有機レジストに代って成長温度に耐えるマスク材、例えばGaAs表面の光酸化マスク³⁾、InAs・InGaAs エピマスク^{4,5)} などが必要である。これらの材料では“その場”電子ビーム描画によるパターニングは確認されているが、ビームの不安定性・振動等の影響により、10 nm レベルのスムーズなパターンは得られていない。これに対しパターニングは従来の有機レジストによる電子ビームを用い、その後のエッチング/埋込み成長を真空連続で行う方法も検討されつつある⁶⁾。この場合最小のパターン寸法はビームおよびレジストの解像度で決まり、前節で述べた最適面密度の下でのドットに対しては30~40 nmにとどまっている。最近、高解像度の電子ビームレジストも開発されていることから、今後の展開が待たれる。

3. エッチング/成長界面の非発光再結合の評価

真空連続プロセスで量子ドットを作製する場合、一般

In-situ processing for quantum nanostructure (1996年5月30日受理)

Kiyoshi ASAKAWA, Yoshihiro NAMBU, Shigeru KOHMOTO
日本電気(株)光エレクトロニクス研究所(〒305 つくば市御幸が丘 34)

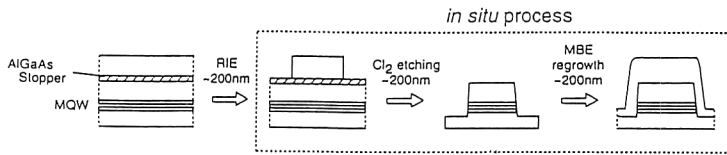
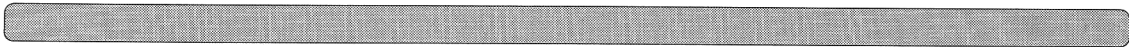


図2 メサエッチング/埋込み再成長の試料作製方法.

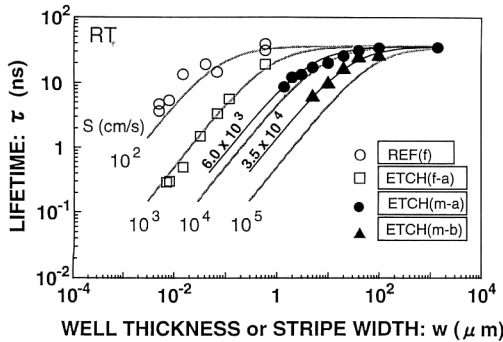


図3 キャリヤー寿命の細線幅依存性に関する測定結果と非発光再結合速度の評価.

的には図1に示したようにあらかじめ形成した量子井戸からドット部分を残して周囲をエッチング(メサエッチング)で除去した後、ドット障壁層で埋め込む。この方法では、多くの場合エッチング/埋込み成長の際、側壁界面に非発光再結合層が誘起されてキャリヤー寿命が低下し、ドットの発光特性が低下する。したがって、これを抑制することが本連続プロセスの最重要課題のひとつとなる。特性劣化の要因はエッチングによる側壁近傍結晶の損傷や凹凸、反応生成物の残留などメサエッチングに特有の要因のほか、真空中または大気下での試料輸送中の雰囲気による側壁表面の汚染などの要因が考えられる。本節では、このような非発光再結合速度の代表的実験例を紹介し、現状の連続プロセスがどこまで量子ドット形成に有望であるかを概観する。

図2は、非発光再結合を極力抑制するために図1の連続プロセスの一部を改良した試料作製方法である⁶⁾。本方法は従来の描画・ドライエッチで転写されたGaAsパターンをマスクにして、真空中で塩素ガスエッチと再成長を連続して行うもので、エッチング表面が大気に触れない利点がある。こうして得られた試料のキャリヤー寿命の測定結果を図3に示す。図において●および▲は、図2の方法で作製した細線状(幅 W)メサエッチパターンのキャリヤー寿命(τ)を、細線幅 W に対してプロットしたものである。ここに τ は時間分解フォトルミネセンス測定から求めた。図中曲線群で示すよう

に、 τ は W に依存しない結晶固有の成分以外に、 W に依存するプロセス固有の成分からなり、後者から非発光再結合速度(S)が求まる。図から塩素ガスによるメサエッチングに対する S として $6 \times 10^3 \sim 3.5 \times 10^4$ cm/sが得られている。この値は、連続成長したGaAs系量子井戸(同図の○)に対する $S(1 \times 10^2$ cm/s)や、同量子井戸の片面のみ塩素ガスエッチングを施した試料(同図の□)に対する $S(1 \times 10^3$ cm/s)には、1~2桁劣るものの、プラズマエッチングや大気露呈後の S に比べると1桁以上改善されており、従来プロセスに対する真空連続プロセスの優位性は実証されているといえる。

本稿で紹介した真空連続プロセスによる非発光再結合速度は、最小細線幅が $1 \mu\text{m}$ の場合であるが、量子ドット(10 nmレベル)に必要なと思われる再結合速度の値に、あと1~1.5桁に迫ったといえる。10 nmレベルの高密度なパターン描画も一方で重要な課題であるが、他方、上述の非発光再結合の抑制も更なる進展を期待したい。量子ドット作製が一筋縄ではいかないことは、今日最も有望視されている自己組織的成長法がまだサイズゆらぎの抑制に苦戦を強いられていることから伺い知れる。近年技術的進歩の著しいナノプローブを取り入れたパターニングと自己組織的成長の融合による真空連続プロセスも、今後の検討課題のひとつであるように思われる。

文 献

- 1) M. Asada, Y. Miyamoto and Y. Suematsu: IEEE J. Quantum Electron., **QE-22** (1986) 1915-1921.
- 2) Y. Nambu and K. Asakawa: Appl. Phys. Lett., **67** (1995) 1509-1511.
- 3) M. Taneya, Y. Sugimoto, H. Hidaka and K. Akita: J. Appl. Phys., **67** (1990) 4297-4303.
- 4) Y. Kadoya, H. Noge, H. Kano, H. Sakaki, N. Ikoma and N. Nishiyama: Appl. Phys. Lett., **61** (1992) 1658-1660.
- 5) S. Kohmoto, Y. Sugimoto, N. Takado and K. Asakawa: Appl. Phys. Lett., **65** (1994) 627-629.
- 6) S. Kohmoto, Y. Nambu, T. Ishikawa and K. Asakawa: Proc. Int. Conf. on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication (1996).