

氏 名	金 日国
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学位記号番号	博理工甲第980号
学位授与年月日	平成27年3月24日
学位授与の条件	学位規則第4条第1項該当
学位論文題目	分子線エピタキシャル法による Er 原子層ドーピング GaAs の作製および評価
論文審査委員	委員長 教 授 矢口 裕之 委 員 教 授 内田 秀和 委 員 准教授 田井野 徹 委 員 准教授 土方 泰斗 委 員 教 授 酒井 政道

## 論文の内容の要旨

量子暗号通信や量子計算などの量子情報技術への応用に向けて、単一光子あるいは量子もつれ光子対の生成について研究開発が盛んに進められている。単一光子の生成に関しては、ダイヤモンド中の窒素-空孔によって形成される発光中心の利用、半導体量子ドットの利用、窒素ドーピング GaP、窒素ドーピング GaAs などについて研究が行われている。ところが、半導体量子ドットを利用する場合を除くといずれも波長の点から長距離光ファイバー通信には向いていない。これに対して、希土類元素の一つである Er を利用することによって長距離光ファイバー通信への応用が可能となると考えられる。そこで、本研究では単一光子発生源への応用を目的として、Er を用いた原子層ドーピング構造半導体の作製および評価を行った。

Er ドーピング GaAs の成長については、これまで、成長中に起こる表面偏析の影響で GaAs 中への Er の取り込み率が低いことが指摘されている。また、成長中の As/Ga 供給比 (V / III 比) を上げることによって、GaAs 中の In 原子の表面偏析が抑えられることが報告されている。そこで、まず分子線エピタキシャル (MBE) 成長において通常用いられる V / III 比を 8 から 20 まで上げて、ErGaAs 混晶を作製し、評価を行った。成長温度 570°C で Er セル温度を 1040、1100、1150、1200°C と変化させて、4 つの試料を作製した。X 線回折 (XRD)  $2\theta - \omega$  (004) スキャンの結果から ErGaAs(004) の XRD ピークが Er 濃度の増加と共に GaAs (004) ピークから次第に低角側にシフトしていくことがわかった。Er セル温度 1150°C で作製した試料について二次イオン質量分析を行った結果、Er 原子が ErGaAs エピタキシャル層中に一様に分布しており、表面偏析は見られなかった。また、ErGaAs エピタキシャル層中の Er 濃度は  $5.8 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  ( $x=2.7\%$ ) であることがわかった。さらに、XRD(115) 逆格子マッピング測定結果から ErGaAs エピタキシャル層が GaAs (001) 基板に対してコヒーレント成長していることがわかった。Er セル温度 1200°C で作製した場合、これまでに報告された中で最も高い Er 濃度  $8.1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  ( $x=3.7\%$ ) の ErGaAs 混晶を成長できた。XRD (115) 逆格子マッピング結果から ErGaAs エピタキシャル層の格子定数は 0.5660 nm と求められ、この結果を外挿して ErAs の格子定数を求めると 0.5922 nm となり、NaCl 構造の ErAs の格子定数 0.5743 nm よりも大きいことがわかった。ErGaAs エピタキシャル層の結晶構造を判別するために、XRD  $2\theta - \omega$  (111) と (222) スキャンを行い、低濃度 ErGaAs の結晶構造は閃亜鉛鉱構造であることを明らかにした。

次に、Er 一様ドーピング GaAs を作製し、Er 発光の Er セル温度依存性を評価した。Er セル温度依存性を調べるために、Er セル温度を 800°C から 1100°C まで変化させて試料を作製した。Er セル温度を 800°C から 850°C まで上げていくと Er からの発光が強くなったが、さらに温度を上げていくと Er からの発光が弱くなることがわかった。Er セル温度を上げていくと GaAs 中の Er 濃度が増加するために発光が強くなっていくが、Er 濃度が高すぎると GaAs の結晶性が低下して発光が弱くなったためであると考えられる。さらに、Er による発光スペクトルを室温においても観測することができた。

以上の結果をふまえて、成長温度 580°C で Er 原子層ドーピング GaAs を作製した。マクロ PL 測定では Er からの発光を確認できたが、顕微 PL 測定ではバックグラウンド発光しか見られなかった。Er による発光がバックグラウンド発光に埋もれてしまっている可能性があるため、バックグラウンド発光の原因について調べた結果、GaAs 基板中の欠陥による発光であることがわかった。そこで、GaAs 基板と Er ドーピング層の間に AlGaAs 障壁層を挟むことによってバックグラウンド発光を抑えることができた。さらに、SIMS 測定結果から Er 原子の吸着率はドーピング温度上昇と共に減少し、Er 原子が 400°C 以上の成長温度で GaAs キャップ層を成長すると、表面まで著しく偏析することがわかった。その偏析長は 500°C で 0.5  $\mu\text{m}$  であり、GaAs への取り込み率は  $10^3$  未満である。さらに、GaAs 最適成長温度の 580°C では、Er 原子の取り込み率は  $10^4$  になった。Er 原子の表面偏析を抑えるには、GaAs キャップ層の成長温度を 300°C まで下げなければならないことが明らかになった。

以上のように、本論文によって Er 原子層ドーピング GaAs の作製に関して、長距離光ファイバー通信に対応した単一光子源への応用に向けた十分な検討を行うことができた。

## 論文の審査結果の要旨

本学位論文審査委員会は、平成 27 年 2 月 16 日に論文発表会を開催し、論文内容の発表に続いて詳細な質疑を行い、論文内容を審査した。本学位論文による研究の概要は以下の通りである。

希土類元素ドーパド半導体は内殻 4f 遷移による特徴的な発光を有することから注目を集めている材料である。例えば Er ドーパド半導体の場合には、発光波長が光ファイバー通信波長帯に相当する  $1.54 \mu\text{m}$  である。しかも、内殻 4f 遷移による発光の波長は温度やドーパドする母体半導体材料によらず極めて安定している。このようなことから、光ファイバー通信用の新たな発光デバイス材料として期待されている。本研究ではこのような特徴をもつ Er ドーパド半導体の中でとくに Er ドーパド GaAs に着目し、量子暗号通信などへの適用が期待される単一光子発生素子への応用を目指して、分子線エピタキシャル法による Er 原子層ドーパド GaAs の作製およびその評価を行なった。

本学位論文の構成は以下のようにになっている。

第 1 章では本研究の背景と目的について述べている。とくに本研究で対象とする希土類元素および Er ドーパド半導体について詳述し、本研究の位置付けを明らかにしている。

第 2 章では、本研究において Er ドーパド GaAs の作製に用いた分子線エピタキシャル法および評価に用いた X 線回折法、二次イオン質量分析法、フォトルミネッセンス法の詳細について説明している。

第 3 章では分子線エピタキシャル法による ErGaAs 混晶の作製および評価について述べている。GaAs の分子線エピタキシャル成長において通常用いられている成長条件に対して、分子線エピタキシャル成長中の As 供給量を増やすことによって、これまでに報告された中で最も高い Er 組成 3.7% を有する ErGaAs 混晶の作製に成功している。また、Er 濃度の増加にともなって、ErGaAs 混晶からの X 線回折ピークが系統的にシフトしていく様子を初めて見出している。さらに、様々な X 線回折測定の結果に基づいて、得られた ErGaAs 混晶の結晶構造が閃亜鉛鉱構造であることを明らかにしている。

第 4 章では分子線エピタキシャル法による Er 一様ドーパド GaAs の作製および評価について述べている。第 3 章よりも Er 濃度の低い一様ドーパド GaAs を作製し、Er からの波長  $1.54 \mu\text{m}$  の発光が室温においても観測するに至っている。また、発光強度が作製条件に依存することを明らかにしている。

第 5 章では分子線エピタキシャル法による Er 原子層ドーパド GaAs の作製および評価について述べている。Er 濃度が一様ドーパドの場合と比べて相対的に低くなることから発光の観測が難しくなるとともに、GaAs 基板からの発光が妨げになるという問題点のあることを明らかにしている。その解決策として AlGaAs バリア層を挿入する方法を提案および実施し、GaAs 基板からの発光の低減に成功している。また、Er 原子層ドーパド GaAs の作製において問題となる、従来から定性的に指摘されていた Er 原子の表面偏析について、定量的な検討を行なっている。Er ドーピング温度や GaAs 成長温度などの条件を変えて実験を行なった結果、GaAs 成長に通常用いられる温度  $580^\circ\text{C}$  では Er 原子がほとんど表面偏析を起こして原子層ドーパド構造が作製できないこと、GaAs の成長温度を  $300^\circ\text{C}$  に下げることによって表面偏析が十分に抑制され、原子層ドーパド構造が実現できることを二次イオン質量分析の結果から明らかにしている。

第 6 章では本研究で得られた成果について総括している。

以上のように、本学位論文では、Er ドーパド GaAs の作製および作製した試料について詳細な評価を行っている。中でも、これまで報告された中で最も高い Er 組成を有する ErGaAs 混晶の作製に成功し、その格子定数や結晶構造を初めて明らかにしたことは本学位論文における重要な成果の一つである。また、従来から定性的に指摘されていた分子線エピタキシャル成長における Er 原子の表面偏析を初めて定量的に検討し

ている。さらに成長温度を 300℃まで下げることによって Er 原子の表面偏析を抑制し、原子層ドーピング構造の作製に成功している。これらの研究結果は Er 原子を用いた単一光子発生への応用につながる重要な成果である。本研究の成果は審査制度のある国際学術誌に 2 編の筆頭著者論文として発表が行われている。また国際会議での発表が 1 件、国内学会での発表が 1 件行われている。

以上のことから、本学位論文は博士（工学）の学位論文として十分に価値があるものと認め、合格と判定した。