

等電子トラップを利用した単一光子発生素子の作製

(研究課題番号 17560004)

平成 17 年度～平成 18 年度科学研究費補助金

(基盤研究(C)) 研究成果報告書

平成 19 年 3 月

研究代表者 矢口裕之

埼玉大学大学院理工学研究科助教授

<はしがき>

単一光子発生素子は、量子暗号等、量子情報技術の分野で重要な役割を果たすデバイスと考えられている、そこで、本研究では、単一光子発生素子への応用を目指して、窒素原子や窒素原子対によって形成される等電子トラップが、励起子を束縛する効果に着目して、窒素原子対を基本的な単位構造とする半導体量子ナノ構造を作製し、特異な光物性を発現させ、その物理的な解明を行なうことを目的とした。具体的には、原子層ドーピング技術を用いて窒素原子を局所的にドーピングすると同時に、電子線リソグラフィを用いた微細加工技術によって、特定の配列をした単一の窒素原子対からの発光を観測できるような構造を作製した。母体となる半導体材料にはガリウム砒素およびガリウム燐を用いて、これに極低濃度の窒素原子をドーピングした。特定の配列をした窒素原子対を得るために、窒素原子のドーピング濃度、成長温度や原料の供給比などの最適化を行った。このような構造についての検討の結果、直径 $1\mu\text{m}$ の範囲内に特定の配列をした窒素原子対が一つだけ存在するような構造を作製することに成功するとともに、顕微フォトルミネッセンス測定によって線幅が $50\mu\text{eV}$ 以下の鋭い発光を得ることに成功した。この結果は、等電子トラップを用いた単一光子発生素子を実現する可能性が十分に高いことを示すものである。また、互いに偏光方向が直交し、わずかにエネルギーの異なる2つの発光線も観測されたことから新規デバイスへの応用も期待される。さらに、素子への応用の上で不可欠となる発光効率を向上させる方法に関して検討を行い、ガリウム砒素・窒素系の混晶半導体において、極低温下でレーザー光を照射することによって発光効率を向上させる独自の方法を確立するとともに、この現象が局所的な構造変化と関連していることを顕微ラマン散乱分光によるその場観察によって明らかにした。

研究組織

研究代表者：矢口裕之（埼玉大学大学院理工学研究科助教授）

研究分担者：吉田貞史（埼玉大学大学院理工学研究科教授）

研究分担者：土方泰斗（埼玉大学大学院理工学研究科助教授）

交付決定額（配分額）（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
平成17年度	2,000,000	0	2,000,000
平成18年度	1,500,000	0	1,500,000
総計	3,500,000	0	3,500,000

研究発表

(1) 学会誌等

“Photo-induced improvement of radiative efficiency and structural changes in GaAsN alloys”

H. Yaguchi, T. Morioke, T. Aoki, H. Shimizu, Y. Hijikata, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, N. Usami, D. Aoki, and K. Onabe

Physica Status Solidi (c) Vol. 3, No. 6, pp. 1907-1910 (2006).

“Micro-photoluminescence study of nitrogen delta-doped GaAs grown by metalorganic vapor phase epitaxy”

Y. Endo, K. Tanioka, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, W. Ono, F. Nakajima, R. Katayama, K. Onabe

Journal of Crystal Growth Vol. 298, pp. 73-75 (2007).

“Micro-Raman study on the improvement of luminescence efficiency of GaAsN alloys”

K. Tanioka, Y. Endo, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, K. Onabe

Journal of Crystal Growth Vol. 298, pp.131-134 (2007).

“Photoluminescence Study of Isoelectronic Traps in Dilute GaAsN alloys”

H. Yaguchi, T. Aoki, T. Morioke, Y. Hijikata, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, D. Aoki, and K. Onabe

Physica Status Solidi (c) (to be published)

(2) 口頭発表

国際会議

“Photo-induced improvement of radiative efficiency and structural changes in GaAsN alloys”

H. Yaguchi, T. Morioke, T. Aoki, H. Shimizu, Y. Hijikata, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, N. Usami, D. Aoki, and K. Onabe

6th International Conference on Nitride Semiconductors (Mo-P-097) (Bremen, Germany) 2005. 8.

“Micro Raman study on the improvement of luminescence efficiency of GaAsN alloys”

K. Tanioka, Y. Endo, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, N. Yoshita, H. Akiyama, and K. Onabe

13th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (Tu-P.53) (Miyazaki) 2006. 5. 23

“Micro-photoluminescence study of nitrogen delta-doped GaAs grown by metalorganic vapor phase epitaxy”

Y. Endo, K. Tanioka, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, W. Ono, F. Nakajima, R. Katayama, and K. Onabe

13th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (Tu-P.96) (Miyazaki) 2006. 5. 23

“Micro-photoluminescence study on nitrogen atomic-layer doping in GaAs”

H. Yaguchi

Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures, p. 51 (Bonassola, Italy) 2006. 9.20

Photoluminescence Study of Isoelectronic Traps in Dilute GaAsN alloys

H. Yaguchi, T. Aoki, T. Morioke, Y. Hijikata, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, D. Aoki, and K. Onabe

International Workshop on Nitride Semiconductors 2006 (IWN2006) MoP2-71, (Kyoto) 2006. 10. 23

国内会議

「ラマン分光を用いた GaAsN 混晶の光照射による構造変化の評価」
矢口裕之, 清水博史, 森桶利和, 青木貴嗣, 土方泰斗, 吉田貞史, 宇佐美德隆,
吉田正裕, 秋山英文, 青木大一郎, 尾鍋研太郎
第 66 回応用物理学会学術講演会 (9p-ZA-18) (徳島) 2005. 9. 9

「ラマン分光を用いた GaAsN 混晶の発光効率向上に関する研究」
谷岡健太郎, 遠藤雄太, 土方泰斗, 矢口裕之, 吉田貞史, 青木大一郎,
尾鍋研太郎
第 53 回応用物理学関係連合講演会 (24a-P-7) (東京) 2006. 3. 24

“Micro-photoluminescence study of nitrogen atomic-layer doped GaAs”
Y. Endo, K. Tanioka, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H.
Akiyama,
W. Ono, F. Nakajima, R. Katayama, and K. Onabe
25th Electronic Materials Symposium (I4) pp. 238-239 (Izu-no-kuni) 2006.
7. 6

「窒素をδドーピングした GaAs における等電子トラップの顕微フォトルミネッセンス測定」
遠藤雄太, 谷岡健太郎, 土方泰斗, 矢口裕之, 吉田貞史, 吉田正裕, 秋山英文,
中島史博, 片山竜二, 尾鍋研太郎
第 67 回応用物理学会学術講演会 (29p-B-11) p. 293 (滋賀) 2006. 8. 29

「窒素をデルタドーピングした GaAs における等電子トラップからの発光」
遠藤雄太, 土方泰斗, 矢口裕之, 吉田貞史, 吉田正裕, 秋山英文, 中島史博,
片山竜二, 尾鍋研太郎
第 54 回応用物理学連合学術講演会 (29p-Q-14) p. 358 (相模原) 2007. 3. 29

1. 本研究の背景および目的

GaP への窒素原子の添加によって形成される等電子トラップは電気陰性度の大きい窒素原子への電子の局在をもたらすことから、本来は間接遷移型半導体である GaP の発光効率を大きく向上させる。このような発光効率の向上のおかげで、現在広く用いられている黄緑色発光ダイオードが実現している。このような等電子トラップによる発光においては鋭い発光線が見られるのが特徴である。一方、我々は、GaP だけでなく、GaAs への窒素原子の添加によっても鋭い発光線が見られるような等電子トラップが形成されることを確認してきた。等電子トラップにおいては窒素原子あるいは窒素原子対が電子を束縛するのに十分な閉じ込めポテンシャルを形成するために、原子あるいは原子対そのものが一種の量子ドット構造になっていると考えることができる。しかもこの等電子トラップによる発光は、前述したように鋭いスペクトルとなる。本研究では、これらの点に着目して、窒素原子および窒素原子対を基本的な単位構造とした半導体量子ナノ構造を作製し、特異な光物性を発現させ、物理的解明を行うことを目的とした。とくに、原子層ドーピング技術を用いて窒素原子を局所的に配列したり、窒素原子対間距離を制御して配列した半導体量子ナノ構造を作製し、個々の等電子トラップに特有な物性だけでなく、等電子トラップ間相互作用に起因する新たな物性が引き出されることも期待している。最終的な目標とは、量子暗号通信の実現に重要な役割を果たすと考えられる単一光子発生を制御するような新規素子の作製を念頭においた。

等電子トラップである窒素原子ないしは窒素原子対を活用して単一光子発生素子を作製しようとする発想は今までに提案のないものであった。GaP:N や

どの可能性を有し、従来報告されてきた単一光子発生素子よりも多くの優位性を持つものと期待される。また、本研究で目指しているような並列制御可能な電流注入型の単一光子発生素子の実現できれば、量子暗号通信技術にとって重要な役割を果たすことが期待される。このような背景に基づいて、本研究を実施した。

具体的な研究の内容としては、GaAsに窒素を原子層ドーピングした構造を作製し、単一光子発生の可能性の検討を行ない、さらに、その発光特性の評価を行った。これに加えて、デバイス応用の際に、重要となる発光効率の向上を目指して、GaAsN混晶などで課題となっている発光効率が低いことの原因の解明を試みた。とくに我々が独自に見出した光照射による発光効率向上という現象を通して、発光効率が向上する機構についての検討を行った。

2. 窒素を原子層ドーピングしたGaAsの発光特性に関する研究

2.1 序

量子情報技術の分野では単一光子源が重要な役割を果たすため、その研究開発が進められている。特に量子ドットを用いた単一光子源についていくつかの報告があるが、すでに述べたように、半導体中の等電子トラップを利用することもアプローチの一つである。単一光子源を実現するためには単一の等電子トラップを利用する必要がある。そこで、本研究では窒素を原子層ドーピングしたGaAsの顕微フォトルミネッセンス(PL)測定を行うことで、種類と個数の制限された等電子トラップからの発光の観測を試み、さらにその特性について検討した。

2.2 実験

本研究で用いた試料は、GaAs(001)基板上に有機金属気相エピタキシー(MOVPE)法によって窒素を原子層ドーピングした GaAs 層である。原料にはトリメチルガリウム(TMG)、ターシャリブチルアルシン(TBA)、ジメチルヒドラジン(DMHy)を用いた。成長温度は 600 から 630℃の範囲で行なった。窒素原料である DMHy の供給量を 250 から 4000 $\mu\text{mol}/\text{min}$ の範囲で変えることで窒素濃度の異なる試料を作製した。顕微 PL 測定(空間分解能 約 1 μm)はレーザーダイオード励起固体(DPSS)レーザー(波長 532 nm)を励起光源として用いて、温度 4 K で行った。等電子トラップからの鋭い発光を観測するために、弱励起条件で測定を行なった。また宇宙線などの影響を除去するために、測定は 2 回行なった。

2.3 結果および考察

図 1 に、窒素濃度の異なる試料から得られた PL スペクトルを示す。窒素濃度が減少するとともに、鋭い発光線の数も減少していく様子がわかる。低窒素濃度の場合には、PL スペクトルにおいて観測される鋭い発光はすべて、これまでに報告されてきた窒素原子対による等電子トラップからの発光として同定できる。一方、高窒素濃度の場合には、窒素原子対による等電子トラップからの発光とは同定できないような鋭い発光が数多く見られる、これらの発光は 3 個以上の窒素原子によって形成された等電子トラップからのものであるものと考えられる。また、窒素濃度が減少するにしたがって、発光が高エネルギー側へシフト

していく傾向が見られる。これは窒素原子間の距離が増加していくことに対応している。

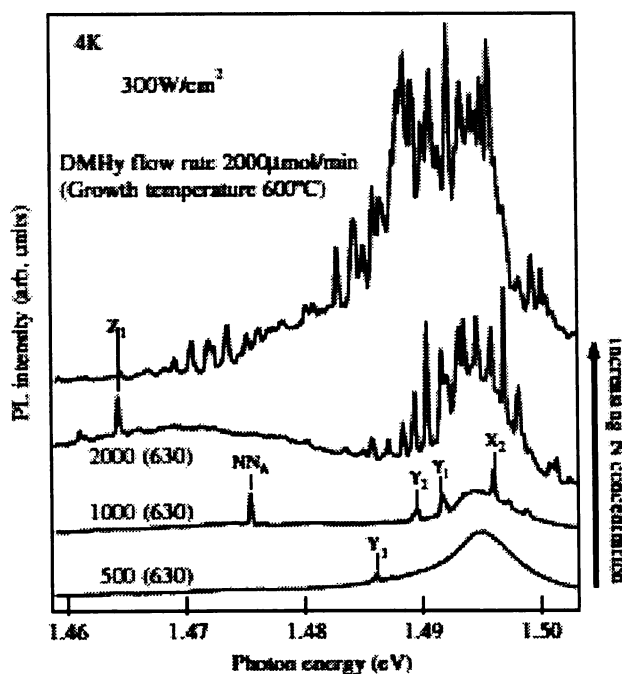


図1 異なる窒素濃度で原子層ドーピングされたGaAsの顕微PLスペクトル

図2(a)に、低窒素濃度で原子層ドーピングされたGaAsについて異なる位置で測定した顕微PLスペクトルを示す。鋭い発光線に着目すると、それぞれのスペクトルが異なっている様子がわかる、とくに、GaAsの自由励起子(FE)および束縛励起子(BE)による発光はどのスペクトルにおいても見られるのに対して、窒素による等電子トラップからの発光は測定位置によって見えたり、見えなかったりする。例えば、上から2番目のPLスペクトルではY₄とラベルされた発光が観測されているが、それ以外のスペクトルでは全く見られない。また、NN_Aとラ

ベルされた発光は上から3番目のスペクトル以外では見られない。これとは対照的に、図2(b)に示すように、高窒素濃度で原子層ドーピングされたGaAsでは異なる位置で測定しても、ほぼ同様のスペクトルが得られた。また、ここでは結果を示さないが、低窒素濃度(0.099%)で一様にドーピングされたGaAsにおいても、異なる位置で測定しても、いつも同様のPLスペクトルとなった。つまり、これらの結果は、孤立したごく少数の等電子トラップからの鋭い発光線を観測するためには、低窒素濃度かつ原子層ドーピングという条件が必要不可欠であることを示している。

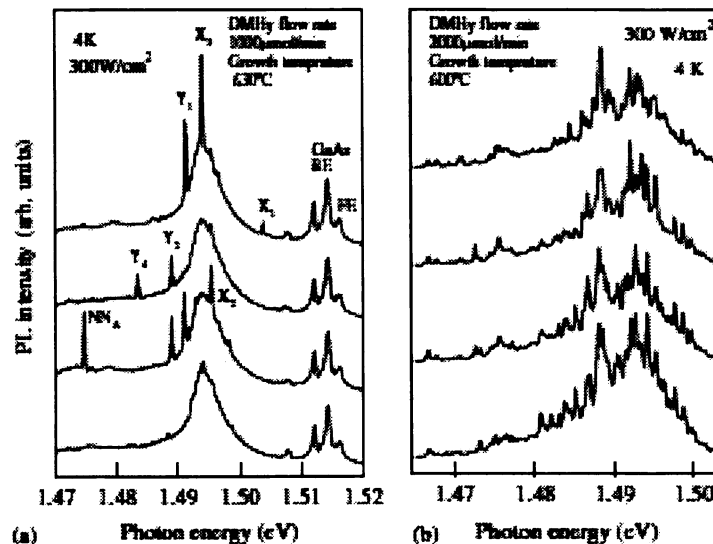


図2 異なる位置で測定した顕微PLスペクトル(a)が低窒素濃度、(b)が高窒素濃度に対応。

図3(a)はDMHy流量2000 $\mu\text{mol/min}$ 、成長温度630°Cで作製した試料から得られたPL強度の等高線図である。横軸が発光エネルギーを、縦軸が測定位置を示し

ている。高エネルギー側では数多くの鋭い発光線が見られるのに対して、低エネルギー側では鋭い発光線の数が少ない、このことは窒素原子間距離の平均値が NN_A の原子間距離である 1.264 nm よりもずっと大きいことを意味している。図 3 (b)に、 NN_A と同定される 1.4741 eV の発光強度の測定位置依存性を示す。発光強度の極大は $2\text{ }\mu\text{m}$ という位置にあり、それ以外の位置では、バックグラウンド程度の強度となっている。さらに、図 3 (c)には、 $2\text{ }\mu\text{m}$ という位置で測定した顕微PLスペクトルを示してある。このように、図 3 で示したPLの結果は、 NN_A という窒素原子対が唯一つ、約 $1\text{ }\mu\text{m}$ の直径の中に存在していることを示している。ただし、同時に図 3 (c)に示したように、 NN_A 以外の余計な発光も観測されている。これらは単一光子発生にとって障害となるが、多層膜バンドパスフィルターを用いることで取り除くことができる。実際に、本研究で窒素による等電子トラップを単一光子発生素子に応用しようと考えた理由の一つは、発光エネルギーがきちんと定まっていて、バンドパスフィルターの設計が用意であるためである。今後は、このような点について研究を進める予定である。

さらに、単一の等電子トラップから得られる発光の特性を詳細に調べた結果、半値幅が $50\text{ }\mu\text{eV}$ 以下の鋭い2つの発光線が、 $200\text{ }\mu\text{eV}$ のエネルギー差で並んでいることがわかった。この2つの発光線の偏光は完全な直線偏光であり、また互いに直交していた。これらの実験結果についても今後、検討を進める予定である。

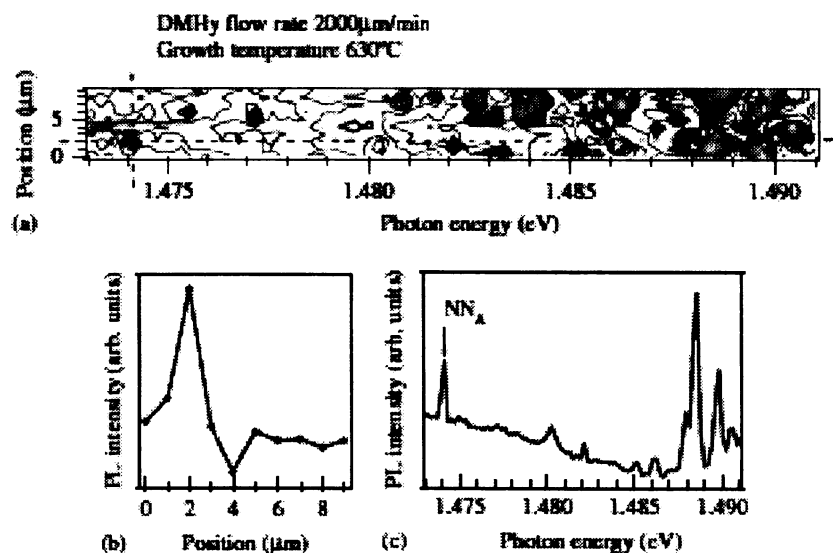


図 3 (a) DMHy流量2000 $\mu\text{mol}/\text{min}$ 、成長温度630 $^{\circ}\text{C}$ で作製した試料から得られたPL強度の等高線図 (b) 1.4741 eVの発光強度の測定位置依存性 (c) 位置2 μm で測定した顕微PLスペクトル

2.4 まとめ

等電子トラップを単一光子発生素子へ応用する可能性について検討するために、異なる窒素濃度で原子層ドーピングされたGaAsの顕微PLスペクトルを測定した。低窒素濃度で原子層ドーピングされた試料において、単一の等電子トラップからの発光を観測することに成功した。この結果は、等電子トラップを利用した単一光子発生素子の実現の可能性が高いことを示している。

3. 光照射による発光効率向上の機構についての検討

3.1 序

InGaAsNは、窒素をわずかに含むIII-V-N混晶半導体の一つであり、優れた特性を持つ、光ファイバー通信用半導体レーザーへの応用が期待される材料である。しかし、非混和性が強いために、窒素を混入させることは容易ではない。窒素を混入させるために、温度を下げた結晶成長が行なわれているが、そのために結晶欠陥も導入され、発光効率の低下を招いている。本研究で行なっている窒素ドーピングもその例外ではなく、発光効率を向上させるための検討は重要である。通常は、III-V-N混晶半導体の発光効率を向上させる手段として、成長後に熱処理するという方法がとられているが、我々は全く独自に、光照射によって発光効率が向上するという現象を見出した。本研究では、この現象を通して、GaAsN混晶の発光効率向上の機構を解明することを目指した。

3.2 実験

試料には、MOVPE法でGaAs(001)基板上に成長したGaAsN混晶を用いた。顕微PL測定で励起光源で用いるDPSSレーザーを、光照射用の光源として兼ねた。光パワー密度は10から 6×10^5 W/cm²であった。また、光照射によって生じる構造変化をとらえるために、顕微ラマン散乱測定も行なった。いずれの実験も4.2 Kで行なった。

3.3 結果および考察

図4に、光照射によってGaAsN混晶のPL強度が増加した例を示す。どちらのPLスペクトルも同一の励起条件で測定したものである。破線が光照射する前の、

実線が64 kW/cm²というパワー密度で光照射した後のPLスペクトルを示す。光照射後のPL強度は照射前と比較して約5倍になっている。

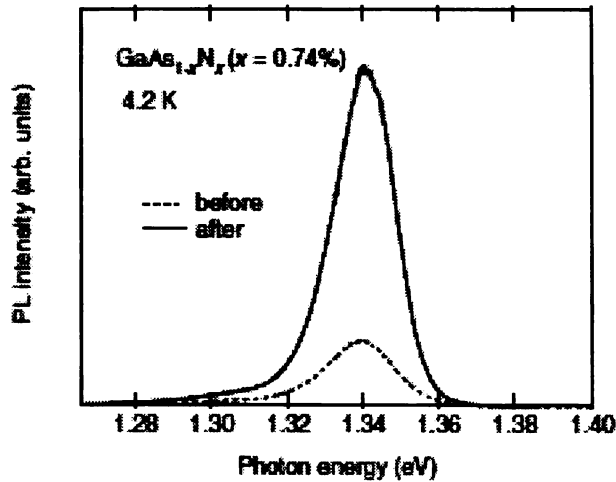


図4 光照射前後のGaAsN混晶のPLスペクトル

図5は、光照射している際のPL強度の時間変化の励起パワー密度依存性を示している。励起パワー密度を増加させるにしたがって、PL強度がより早く増加し、より短い時間で飽和している様子がわかる。図中に示した実線は

$$I(t) = I(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + I(\infty) \left\{1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)\right\}$$

という関数でフィッティングした結果、得られたものである。これらのフィッティングはPL強度の時間変化をよく再現している。フィッティングから求められる時定数 τ は励起パワー密度によって異なり、2秒から270秒の範囲で変化している。発光効率は非発光生結合中心の密度に依存することから、PL強度が照射時間に対して指数関数的に増加しているということは、非発光再結合中心の密

度が照射時間に対して指数関数的に減少しているということを意味している。言い換えれば、非発光再結合中心の密度のレート方程式が $dn/dt=-n/\tau$ と表されることになる。

図5はこの時定数 τ の励起パワー密度依存性を示している。図中の実線で示すように時定数 τ は励起パワー密度にほぼ反比例していることがわかる。

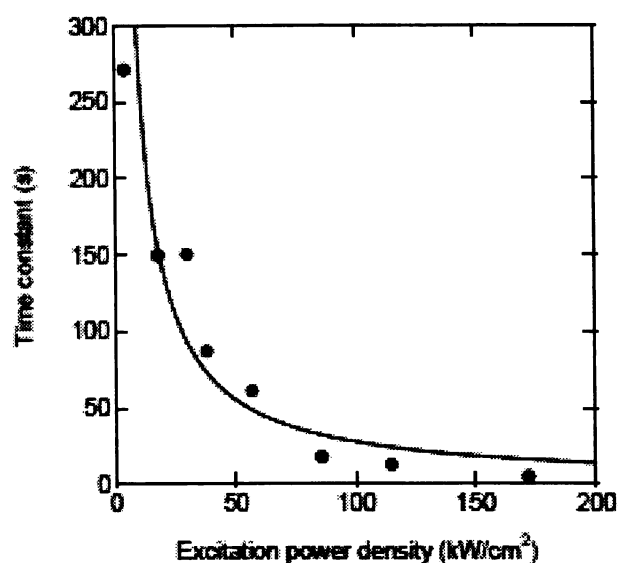


図5 光照射による発光効率向上の時定数の励起パワー密度依存性

さらに、発光効率向上の窒素濃度依存性について調べた結果を図6に示す。この図では照射前後のPL強度の比をプロットしてある。PL強度の比は、窒素濃度増加に伴って1%程度までは急激に増加する。このことは非発光再結合中心が1つの窒素原子によって形成されるというより、むしろ複数の窒素原子が集まること、例えばクラスターなどによって形成されることを示している。窒素濃度が1%を越えると強度比は再び減少に転じるが、これは光照射によっても修

復できない非発光再結合中心、例えば転位などが窒素濃度増加とともに増えるためだと考えられる。

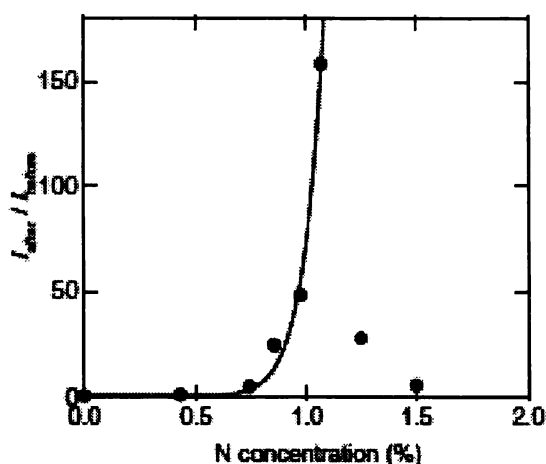


図6 発光効率向上の窒素濃度依存性

光照射によって何らかの構造変化が起きているのではないかと考え、光を照射しながら、ラマンスペクトルの時間変化を調べた。その結果GaAs-like LO フォノンによるラマン散乱のピーク強度が照射時間とともに増加していく様子が観測された。その結果を図7に示す。ラマンピーク強度は最初は急速に増加し、その後飽和する傾向にある。図中に示した実線は、先程のPL強度の時間変化を解析するときに用いたのと同じ関数でフィッティングした結果である。フィッティングの結果からは時定数は7.5秒であると求まった、ラマンピーク強度の増加は、フォノンの結晶内での伝播を妨げる何らかの構造欠陥が減少したために生じたと考えられる。この現象が数秒のオーダーで起きるということを考え合わせると、光照射によってもたらされる構造変化は、時間を要する長距離拡散

のようなものではなく、局所的な原子配置の変化のようなものであると推測される。

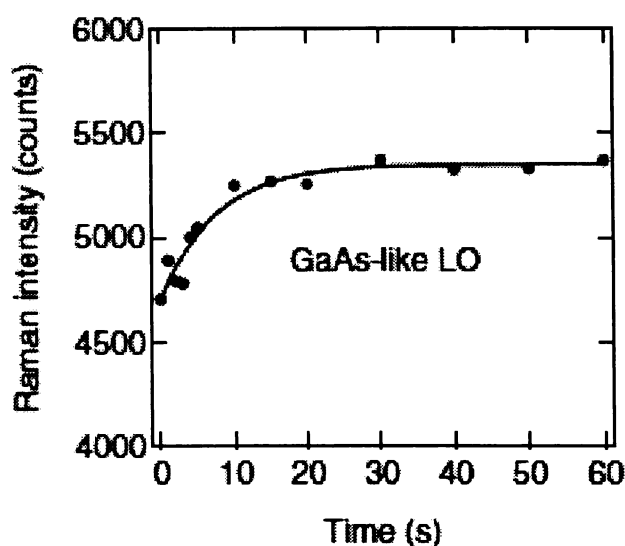


図7 GaAs-like LOフォノンによるラマン
散乱ピーク強度の光照射に伴う時間変化

3.4 まとめ

光照射による発光効率の向上という現象の機構解明に向けて、励起パワー密度や窒素濃度に対してどのような依存性を示すかを検討した。その結果、励起パワー密度を増加させると発光効率向上の速度が増加すること、窒素濃度が増加すると発光効率向上の程度が増加することがわかった。また、ラマン測定の結果、光照射によって、ラマン散乱強度が増加するような構造変化が生じていることがわかった。この現象が数秒程度で起きることから、光照射によって生じる構造変化は、局所的な原子配置の変化などであり、これが非発光再結合中心の減少につながっているものと考えられる。

本研究に関する論文

“Photo-induced improvement of radiative efficiency and structural changes in GaAsN alloys”

H. Yaguchi, T. Morioke, T. Aoki, H. Shimizu, Y. Hijikata, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, N. Usami, D. Aoki, and K. Onabe
Physica Status Solidi (c) Vol. 3, No. 6, pp. 1907-1910 (2006).

“Micro-photoluminescence study of nitrogen delta-doped GaAs grown by metalorganic vapor phase epitaxy”

Y. Endo, K. Tanioka, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, W. Ono, F. Nakajima, R. Katayama, K. Onabe
Journal of Crystal Growth Vol. 298, pp. 73-75 (2007).

“Micro-Raman study on the improvement of luminescence efficiency of GaAsN alloys”

K. Tanioka, Y. Endo, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, K. Onabe
Journal of Crystal Growth Vol. 298, pp.131-134 (2007).

“Photoluminescence Study of Isoelectronic Traps in Dilute GaAsN alloys”

H. Yaguchi, T. Aoki, T. Morioke, Y. Hijikata, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, D. Aoki, and K. Onabe
Physica Status Solidi (c) (to be published)

本研究に関する口頭発表

国際会議

“Photo-induced improvement of radiative efficiency and structural changes in GaAsN alloys”

H. Yaguchi, T. Morioke, T. Aoki, H. Shimizu, Y. Hijikata, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, N. Usami, D. Aoki, and K. Onabe

6th International Conference on Nitride Semiconductors (Mo-P-097) (Bremen, Germany) 2005. 8.

“Micro Raman study on the improvement of luminescence efficiency of GaAsN alloys”

K. Tanioka, Y. Endo, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, N. Yoshita, H. Akiyama, and K. Onabe

13th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (Tu-P.53) (Miyazaki) 2006. 5. 23

“Micro-photoluminescence study of nitrogen delta-doped GaAs grown by metalorganic vapor phase epitaxy”

Y. Endo, K. Tanioka, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, W. Ono, F. Nakajima, R. Katayama, and K. Onabe

13th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (Tu-P.96) (Miyazaki) 2006. 5. 23

“Micro-photoluminescence study on nitrogen atomic-layer doping in GaAs”

H. Yaguchi

Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures, p. 51 (Bonassola, Italy) 2006. 9.20

Photoluminescence Study of Isoelectronic Traps in Dilute GaAsN alloys

H. Yaguchi, T. Aoki, T. Morioke, Y. Hijikata, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, D. Aoki, and K. Onabe

International Workshop on Nitride Semiconductors 2006 (IWN2006) MoP2-71, (Kyoto) 2006. 10. 23

Photo-induced improvement of radiative efficiency and structural changes in GaAsN alloys

H. Yaguchi¹, T. Morioke¹, T. Aoki¹, H. Shimizu¹, Y. Hijikata¹, S. Yoshida¹,
M. Yoshita², H. Akiyama², N. Usami³, D. Aoki⁴, and K. Onabe⁴

¹Department of Electrical and Electronic Systems, Saitama University, Japan

²Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, Japan

³Institute for Materials Research, Tohoku University, Japan

⁴Department of Applied Physics, The University of Tokyo, Japan

InGaAsN is expected as a material for long-wavelength laser diodes with superior characteristic used in the optical fiber communications. Owing to its extreme immiscibility, however, it is necessary to lower the growth temperature for incorporating nitrogen atoms, and thus the radiative efficiency is low. In order to improve the luminescence properties of InGaAsN, thermal annealing after the growth is often carried out. We previously reported the novel phenomenon that photoexcitation at low temperatures improves the radiative efficiency of GaAsN alloys and that the improvement is irreversible [1]. In the present paper, we have investigated the excitation power density and nitrogen concentration dependence of the changes in the radiative efficiency of GaAsN alloys to examine the mechanism of the photo-induced improvement. Photo-induced structural changes have been also studied using micro Raman scattering spectroscopy.

The samples used in this study were GaAsN alloys grown on GaAs (001) substrates by low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy. Micro photoluminescence (PL) measurements were performed using a DPSS laser ($\lambda = 532$ nm) focused to ~ 1.3 μm in diameter as the excitation source at 4 K. The excitation power density was changed from 10 to 10^4 W/cm². The PL was detected with a 30-cm monochromator and an intensified charge coupled device camera.

Firstly, the excitation power density dependence of the temporal change of PL integrated intensity $I(t)$ was studied, which is approximately expressed as $I(t) = I(0) \exp(-t/\tau) + I(\infty) (1 - \exp(-t/\tau))$. With increasing excitation power density, the PL intensity increases more rapidly. The time constant τ ranged from 2 to 270 s, and the product of the time constant τ and excitation power density was found to be nearly constant.

Secondly, we studied the nitrogen concentration dependence of the improvement in the radiative efficiency of GaAsN alloys. The measure of the improvement $(I(\infty) - I(0))/I(0)$ was found to superlinearly increase with increasing nitrogen concentration x up to $\sim 1\%$. This suggests that the nonradiative recombination centers repaired by photoexcitation are complexes formed not by a single nitrogen atom but by gathering of several nitrogen atoms. When the nitrogen concentration exceeded $\sim 1\%$, the measure of the improvement $(I(\infty) - I(0))/I(0)$ rather decreased. This decrease may be due to structural defects which cannot be repaired by photoexcitation, for example, misfit dislocations in GaAsN alloys.

In order to investigate the photo-induced structural changes using micro Raman scattering spectroscopy, laser irradiation in the form of a line whose width and length were ~ 1.3 μm and $30\mu\text{m}$, respectively, was performed at 4 K for the part of the sample. Micro Raman scattering measurements were carried out at room temperature using an Ar⁺ laser ($\lambda = 488$ nm) as the light source. Mapping measurements at intervals of 500 nm revealed the difference between the laser-irradiated and un-irradiated regions. The Ga-As LO phonon peak in the laser-irradiated region was found to shift by ~ 1 cm⁻¹ to higher wavenumber side compared with that in the un-irradiated region. This clearly indicates that the photo-induced structural changes which involve the changes of the strain field in the laser-irradiated region. Since this phenomenon is in a time scale of a few seconds, the photo-induced structural changes correspond not to long range inter-diffusion but to local changes in atomic configuration which involve changes in the bond-length and consequently lead to the decrease in the density of nonradiative recombination centers or deep levels.

[1] H. Yaguchi, T. Morioke, T. Aoki, Y. Hijikata, S. Yoshida, H. Akiyama, N. Usami, D. Aoki, and K. Onabe, Phys. Stat. Sol. (c) **0**, 2782 (2003).

E-mail: yaguchi@opt.ees.saitama-u.ac.jp

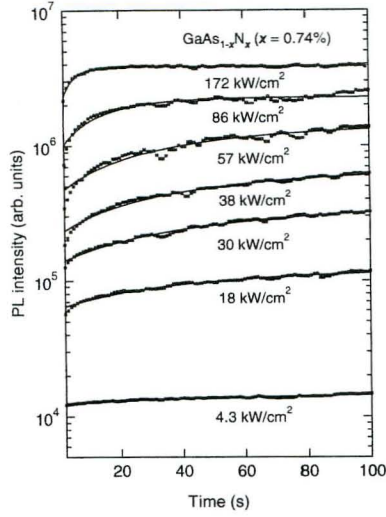


Fig. 1 Excitation power density dependence of the temporal change of PL intensity. With increasing excitation power density, the PL intensity increases more rapidly.

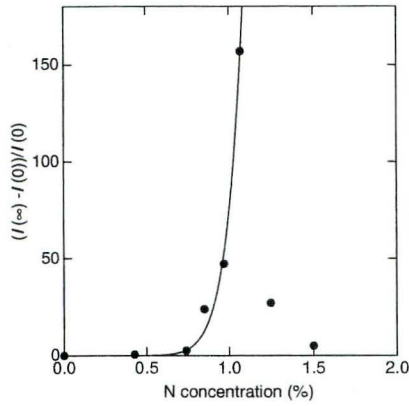


Fig. 3 Nitrogen concentration dependence of the measure of the improvement, $(I(\infty) - I(0))/I(0)$, which superlinearly increases with increasing nitrogen concentration up to $\sim 1\%$.

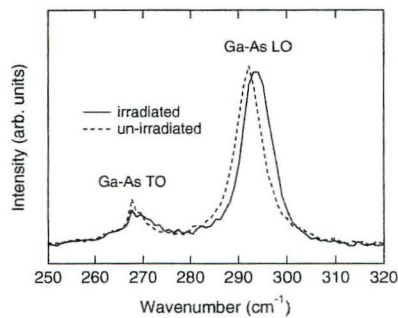


Fig. 5 Raman spectra obtained from the laser-irradiated and un-irradiated regions. The Ga-As LO phonon peak in the laser-irradiated region shifts to higher wavenumber side.

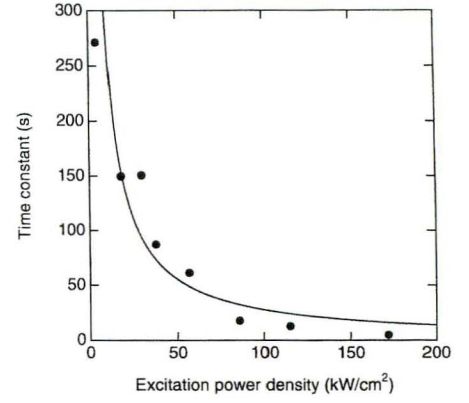


Fig. 2 Excitation power dependence of the time constant of the photo-induced improvement. The time constant is found to almost inversely proportional to the excitation power density.

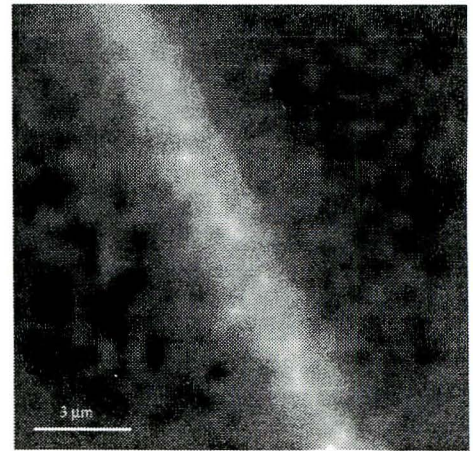


Fig. 4 Mapping of Ga-As LO phonon peak position in the vicinity of the laser-irradiated region. Brighter pixels correspond to higher wavenumbers. The laser-irradiated region is clearly observed in the form of a line

Micro Raman study on the improvement of luminescence efficiency of GaAsN alloys

K. Tanioka¹, Y. Endo¹, Y. Hijikata¹, H. Yaguchi¹, S. Yoshida¹,
M. Yoshita², H. Akiyama², and K. Onabe³

¹Department of Electrical and Electronic Systems, Saitama University,
Saitama 338-8570, Japan

²Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, Kashiwa, Chiba 227-8581, Japan

³Department of Advanced Materials Science, The University of Tokyo,
Kashiwa, Chiba 277-8581, Japan
E-mail: tanioka@opt.ees.saitama-u.ac.jp

InGaAsN is expected as a material for long-wavelength laser diodes with superior characteristics used in the optical fiber communications. Owing to its extreme immiscibility, however, it is necessary to lower the growth temperature for incorporating nitrogen atoms, and thus the radiative efficiency becomes low. In order to improve the luminescence properties of InGaAsN, thermal annealing after the growth is often carried out [1, 2]. We previously reported the novel phenomenon that photoexcitation at low temperatures improves the radiative efficiency of GaAsN alloys and that the improvement is irreversible [3]. In the present paper, we have investigated the relation between the changes in the radiative efficiency and structural changes of GaAsN alloys using micro Raman scattering spectroscopy.

The samples used in this study were GaAsN alloys grown on GaAs (001) substrates by low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy [4]. Trimethylgallium, arsine and 1, 1-dimethylhydrazine were used as the Ga, As and N sources, respectively. The nitrogen concentration in GaAsN alloys was determined using X-ray diffraction. In order to investigate the photo-induced structural changes, we have carried out micro Raman scattering measurements for GaAsN alloys at 4.2 K.

The 632.8 nm line of a He-Ne laser was used as the light source. An intensified charge-coupled device camera was used as the detector. Laser irradiation with a power density of $\sim 100 \text{ kW/cm}^2$ was intermittently performed to improve the luminescence efficiency of GaAsN alloys. Micro Raman scattering measurements were carried out between the

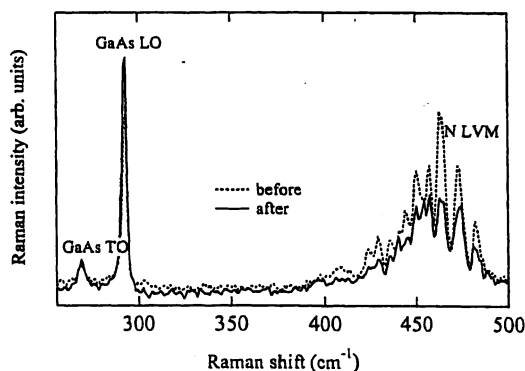


Fig. 1 Raman spectra before and after strong photoexcitation.

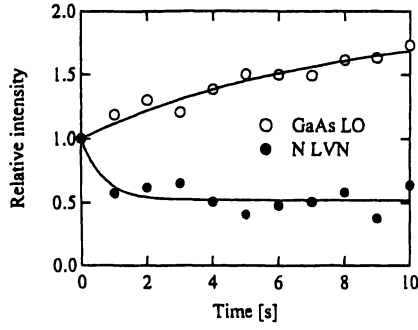


Fig. 2 Raman intensity of GaAs-like LO mode and nitrogen LVM phonons as a function of photoexcitation time.

photoexcitations at the laser-irradiated position using a weak laser light to avoid the photoexcitation effect.

Figure 1 shows a typical Raman spectra obtained from GaAsN before and after strong photoexcitation of 10 s. GaAs-like longitudinal optical (LO) mode phonon, transverse optical (TO) mode phonon, and nitrogen localized vibration mode (LVM) peaks are observed at 293 cm^{-1} , 269 cm^{-1} , and $\sim 470\text{ cm}^{-1}$, respectively. After the photoexcitation, GaAs LO mode phonon peak intensity is found to increase while the nitrogen LVM peak intensity decreases.

Figure 2 shows the intensity of GaAs-like LO mode phonon and N LVM peaks as a function of photoexcitation time. The GaAs-like LO mode phonon peak intensity increases with time. On the contrary, the N LVM peak intensity decreases at the early stage. This change can be fitted by the following expression [3]:

$$I(t) = I(0)\exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + I(\infty)\left\{1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)\right\},$$

as shown by solid curves in the figure. The time constants τ for the GaAs-like LO mode and N LVM phonons are estimated to be 7.6 s and 0.7 s, respectively. The increase in GaAs-like LO peak intensity indicates that the structural defects disturbing the phonon propagation are eliminated by photoexcitation. Since this phenomenon is in a time scale of several seconds, the photo-induced structural changes correspond not to long range inter-diffusion but to local changes in atomic configuration leading to the elimination of nonradiative recombination centers. The decrease in N LVM peak intensity also suggests the local structural changes around nitrogen atoms.

This study was partially supported by Grant-in-Aid for Scientific Research (C) (No. 17560004), Japan Society for the Promotion of Science. This work was performed using facilities of the Institute for Solid State Physics, the University of Tokyo.

- [1] H. P. Xin, K. L. Kavanagh, M. Kondow, and C. W. Tu, *J. Crsytal Growth* 201/202, 419 (1999).
- [2] T. Kitatani, K. Nakahara, M. Kondow, K. Uomi, and T. Tanaka, *J. Crystal Growth* 209, 345 (2000).
- [3] H. Yaguchi, T. Morioke, T. Aoki, Y. Hijikata, S. Yoshida, H. Akiyama, N. Usami, D. Aoki, and K. Onabe, *Phys. Stat. Sol. (c)* 0, 2782 (2003).
- [4] K. Onabe, D. Aoki, J. Wu, H. Yaguchi, and Y. Shiraki, *Phys. Stat. Sol. (a)* 176, 231 (1999).

Micro-photoluminescence study of nitrogen δ -doped GaAs grown by metalorganic vapor phase epitaxy

Y. Endo¹, K. Tanioka¹, Y. Hijikata¹, H. Yaguchi¹, S. Yoshida¹,
M. Yoshita², H. Akiyama², W. Ono³, F. Nakajima³, R. Katayama³, and K. Onabe³

¹Department of Electrical and Electronic Systems, Saitama University,
Saitama 338-8570, Japan

²Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, Kashiwa, Chiba 277-8581, Japan

³Department of Advanced Materials Science, The University of Tokyo, Kashiwa,
Chiba 277-8583 Japan

E-mail: endo@opt.ees.saitama-u.ac.jp

III-V-N alloys are promising materials for novel optoelectronic device applications because they have unique electronic and optical properties, such as large band gap bowing. In the dilute impurity region, nitrogen atoms which substitute for group V atoms form isoelectronic traps and bind excitons. Sharp luminescence lines are observed (GaP:N [1] and GaAs:N [2-3]) as one of the features of the isoelectronic traps. The energy of luminescence lines due to isoelectronic traps is dependent on the number of related nitrogen atoms and the distance between nitrogen atoms, and the sharp luminescence lines due to nitrogen pairs have been identified in several reports [1-3]. In order to identify the luminescence lines due to isoelectronic traps, it is necessary to reduce varieties of isoelectronic traps. Delta (δ)-doping is useful for reducing the varieties of isoelectronic traps because the nitrogen atoms are limited spatially [3]. In this paper, furthermore, we have measured sharp luminescence lines from a limited number of isoelectronic traps in δ -doped GaAs using micro photoluminescence (PL) to investigate the origin of sharp luminescence lines.

Samples used in this study were nitrogen δ -doped GaAs layers grown on semi-insulating undoped GaAs (001) substrates by low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy using trimethylgallium (TMG), tertiarybutylarsine (TBA), and dimethylhydrazine (DMHy) as the sources. The growth temperature and growth rate were 630°C and 0.6 $\mu\text{m}/\text{h}$, respectively. To perform the nitrogen δ -doping into GaAs, only TMG flow was stopped and DMHy was

supplied for five seconds. The flow rate of DMHy was changed from 250 to 4000 $\mu\text{mol}/\text{min}$ to obtain various nitrogen concentrations. We measured micro-PL spectra at 3.8 K using a diode-pumped solid-state (DPSS) laser (532nm) as the excitation source. The spatial resolution of the micro-PL measurement system was less than 1 μm .

Figure 1 shows the micro-PL spectra for N δ -doped GaAs with different nitrogen concentrations. For a sample with higher nitrogen concentration, as shown in Fig. 1 (a), a large number of sharp lines are closely packed below

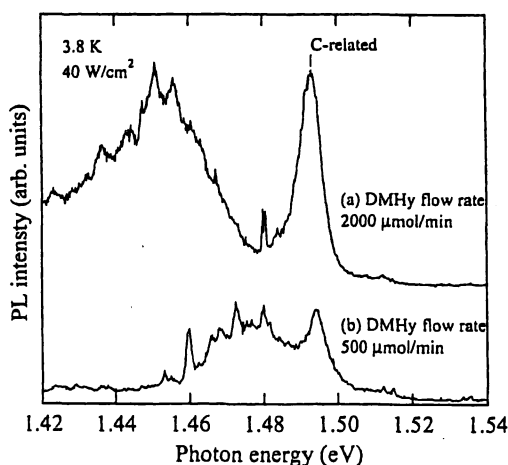


Fig. 1 Micro PL spectra of N δ -doped GaAs with different N concentrations.

1.48eV, which is considered as the precursor state of the alloy. On the other hand, sharp peaks are clearly observed at 1.460, 1.473 and 1.480 eV for a sample with lower nitrogen concentration (Fig. 1 (b)). The energy differences between these peaks and those observed for nitrogen pairs [3] suggest that the sharp peaks seen in Fig.1 (b) are due to isoelectronic traps formed by three or more nitrogen atoms.

Figure 2 shows the excitation power dependence of micro-PL spectra at the same position. Under strong excitation, GaAs free-exciton (FE) peak is dominantly observed. With decreasing excitation power, a sharp peak is observed at 1.476 eV, which is attributed to NN_A [3], along with GaAs FE and bound-exciton (BE) peaks. Under the excitation of 40 W/cm², FE, BE and NN_A peaks almost disappear and other sharp lines become remarkable, for example at 1.460 eV.

Figure 3 shows the micro-PL spectra at different positions on a sample. These four spectra are individually different. For example, the peak at 1.468 eV, which is the highest in (a), is weak in (b) and (d), and is not seen in (c). The highest peak in (d) (1.473 eV) is not clearly seen in (a), (b) and (c). Similar results were obtained from a GaAsN (N~0.8%) epilayer by using near-field photoluminescence [4]. In contrast, almost the same micro-PL spectra were obtained at different positions for a uniformly doped sample. These results show that the combination of the δ -doping and micro-PL measurement enable us to observe sharp luminescence lines from a limited number of isoelectronic traps and suggest the prospect of detecting emission from a single isoelectronic trap.

This study was partially supported by Grant-in-Aid for Scientific Research (C) (No. 17560004), Japan Society for the Promotion of Science.

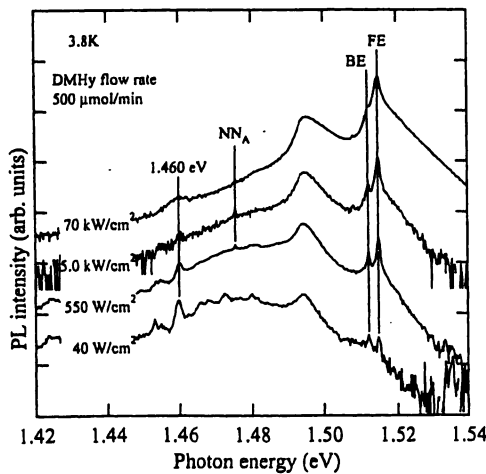


Fig. 2 Excitation power dependence of micro PL spectra at the same position.

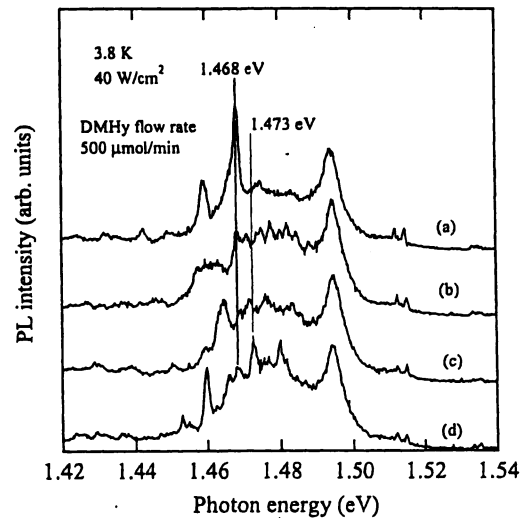


Fig. 3 Micro PL spectra at different positions.

- [1] D. G. Thomas and J. J. Hopfield, Phys. Rev. **150**, 680 (1966).
- [2] R. Schwabe, W. Seifert, F. Bugge, R. Bindemann, V. F. Agekyan and S. V. Pogarev, Solid State Communications **55**, 167 (1985).
- [3] T. Makimoto, H. Saito and N. Kobayashi, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 1694 (1997).
- [4] K. Matsuda, T. Saiki, M. Takahashi and S. Takagishi, Appl. Phys. Lett. **78**, 1508 (2001).

Micro-Photoluminescence Study on Nitrogen Atomic-Layer Doping in GaAs

H. Yaguchi

Department of Electrical and Electronic Systems, Saitama University, Saitama 33-8570, Japan

Email address: yaguchil@opt.ees.saitama-u.ac.jp

We have measured micro photoluminescence (PL) spectra of nitrogen atomic-layer-doped GaAs with various concentrations. In nitrogen atomic-layer-doped GaAs with low concentrations, the micro PL study shows that there are no more than a few isoelectronic traps within a diameter of $\sim 1\ \mu\text{m}$. This indicates a good prospect for applications of isoelectronic traps to single photon emitting devices.

III-V-N alloys are promising materials for optoelectronic device applications because of their unique properties, such as large band gap bowing and isoelectronic traps. In the dilute impurity region, nitrogen atoms which substitute for group V atoms act as isoelectronic traps. Sharp luminescence lines are observed [1-3] as one of the features of the isoelectronic traps. If the luminescence can be obtained from a single isoelectronic trap, it is a prospective candidate for single photon emitting devices, which is expected to play a key role in the field of quantum information technology, such as quantum cryptography. Compared with the single photon emitting device using a quantum dot [4], utilizing a single isoelectronic trap is advantageous to the design of multiple layer mirrors or filters because one can obtain luminescence with specific energies from isoelectronic traps. In this paper, we have measured micro photoluminescence (PL) of nitrogen atomic-layer-doped (N-ALD) GaAs to examine the prospect for applications to single photon emitting devices. The purpose of this work is to observe a sharp PL line from a limited number of isoelectronic traps, ideally speaking, from a single isoelectronic trap.

Samples used in this study were N-ALD GaAs layers grown on semi-insulating GaAs (001) substrates by low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy using trimethylgallium (TMG), tertiarybutylarsine (TBA), and dimethylhydrazine (DMHy) as the sources. We measured micro PL spectra at 4 K using a diode-pumped solid-state laser (532nm) as the excitation source. The spatial resolution of the micro-PL measurement system used in this study was $\sim 1\ \mu\text{m}$. Luminescence was detected with an intensified charge-coupled device.

Figure 1 (a) shows a contour plot of the PL intensity of N-ALD GaAs with a DMHy flow rate of 2000 $\mu\text{mol/min}$ grown at 630°C. A lot of sharp PL lines are seen at higher energies. On the other hand, there are a few sharp PL lines including NN_A at lower energies, which indicates that the average separation between nitrogen atoms forming isoelectronic traps are much larger than 1.264nm of NN_A [3]. Figure 1 (b) shows the PL intensity at

1.4741 eV designated as NN_A as a function of position. The maximum is located at a position of 2 μm . In addition, we show the micro PL spectrum at a position of 2 μm in Fig. 1 (c). As can be seen from this figure, a sharp PL line is observed at 1.4741 eV (NN_A). Thus, these results demonstrate that a single NN_A pair is located only at a position within a diameter of $\sim 1 \mu\text{m}$. Further experiments are necessary to investigate the quality of a single photon obtained from a single isoelectronic trap for the near future.

In conclusion, we have successfully observed sharp PL lines due to a limited number of isoelectronic traps within a diameter of 1 μm for N-ALD GaAs with low nitrogen concentrations. This result shows a good prospect for the single photon emitter utilizing a single isoelectronic trap.

This study was partially supported by Grant-in-Aid for Scientific Research (C) (No. 17560004), Japan Society for the Promotion of Science.

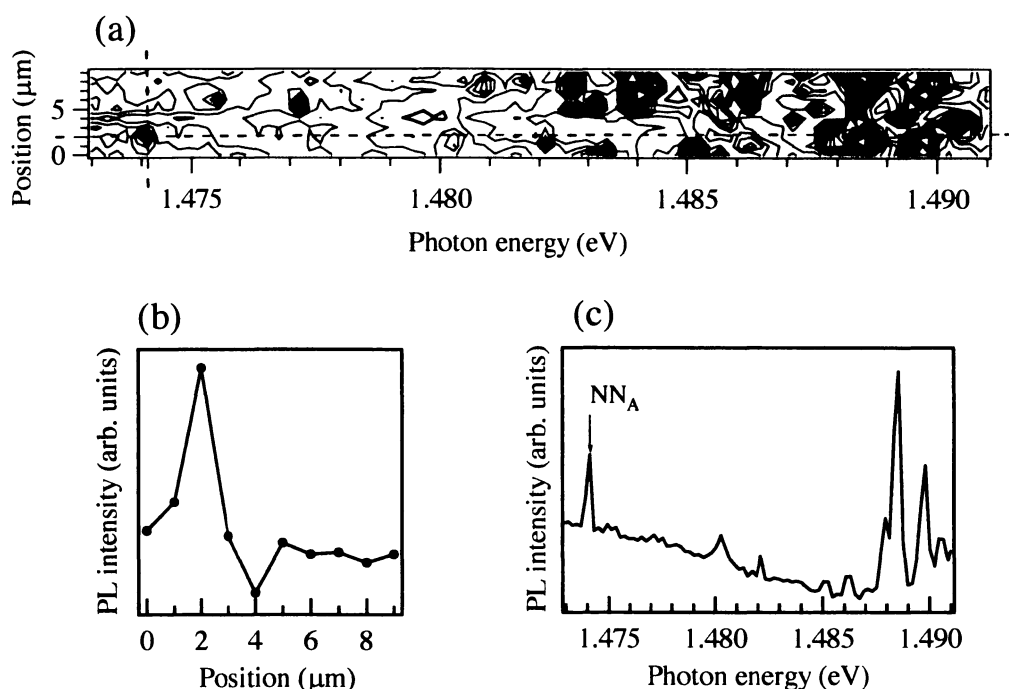


Figure 1

(a) Contour plot of the micro PL intensity of N-ALD GaAs, (b) PL intensity due to NN_A as a function of position, (c) Micro PL spectrum at a position of 2 μm .

References

- [1] D. G. Thomas and J. J. Hopfield, Phys. Rev. **150**, 680 (1966).
- [2] R. Schwabe, W. Seifert, F. Bugge, R. Bindemann, V. F. Agekyan and S. V. Pogarev, Solid State Communications **55**, 167 (1985).
- [3] T. Makimoto, H. Saito and N. Kobayashi, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 1694 (1997).
- [4] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale and Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **86**, 1502 (2001).

Photoluminescence Study of Isoelectronic Traps in Dilute GaAsN Alloys

Hiroyuki Yaguchi^a, Takashi Aoki^a, Toshikazu Morioke^a, Yasuto Hijikata^a, Sadafumi Yoshida^a,
Masahiro Yoshita^b, Hidefumi Akiyama^b, Daiichiro Aoki^c, and Kentaro Onabe^c

^a Department of Electrical and Electronic Systems, Saitama University, Saitama 338-8570, Japan

^b Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, Kashiwa, Chiba 227-8581, Japan

^c Department of Applied Physics, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan
yaguchi@opt.ees.saitama-u.ac.jp

III-V-N alloys have been expected to be promising materials for optoelectronic device applications because of their unique properties, such as large band gap bowing, isoelectronic traps, and so on. In dilute GaPN alloys, isoelectronic traps due to nitrogen pairs [1] have been extensively investigated because they play an important role in increasing luminescence efficiency. In contrast, a limited number of papers have reported isoelectronic traps in dilute GaAsN alloys [2,3]. In this study, we have measured photoluminescence (PL) spectra to clarify the character of the isoelectronic traps in dilute GaAsN alloys.

Figure 1 shows a PL spectrum of GaAs_{1-x}N_x ($x=0.1\%$) at 5 K. Several sharp lines can be seen at the lower energy side of GaAs bandgap, indicating that isoelectronic traps due to nitrogen are located within the bandgap. The emissions observed at 1.4776, 1.4634, 1.4598, 1.4505, and 1.4299 eV are identified as isoelectronic traps due to nitrogen pairs and labeled NN_A, NN_C, NN_E, NN_D, and NN_B, respectively [3]. In addition to the nitrogen pair-related lines, other emissions are also observed at 1.4415, 1.4274, 1.4236, 1.4143, and 1.3938 eV, as shown in Fig. 1. Compared with the energies of these emissions and nitrogen pair-related emissions, it is found that the energy differences are always 36 meV. This value corresponds to the longitudinal optical (LO) phonon energy at the Γ point of GaAs. Therefore, the isoelectronic traps due to nitrogen pairs in dilute GaAsN alloys are Γ -point-like, which is quite different from the fact that the isoelectronic traps due to nitrogen pairs in dilute GaPN alloys are X-point-like.

Figure 2 shows the temperature dependence of the peak energy of luminescence due to nitrogen pairs. For comparison, the temperature dependence of the E_0 gap of GaAs is also shown by solid curves. As can be seen from this figure, the peak energies of the nitrogen pair-related emissions show almost the same temperature dependence of the E_0 gap of GaAs, which also indicates that the isoelectronic traps due to nitrogen pairs in dilute GaAsN alloys are Γ -point-like.

Acknowledgments

This work was partly supported by Grant-in-Aid for Scientific Research (C) (No. 17560004), Japan Society for the Promotion of Science.

References

- [1] D. G. Thomas and J. J. Hopfield, Phys. Rev. **150**, 680 (1966).
- [2] X. Liu, M. E. Pistol, and L. Samuelson, Phys. Rev. B **42**, 7504 (1990).
- [3] H. Saito, T. Makimoto, N. Kobayashi, J. Crystal. Growth. **170**, 372 (1997).
- [4] K. Onabe, D. Aoki, J. Wu, H. Yaguchi, and Y. Shiraki, Phys. Stat. Sol. (a) **176**, 231 (1999).

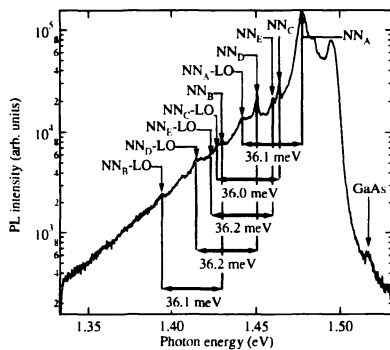


Fig. 1 PL spectrum of GaAs_{1-x}N_x ($x=0.1\%$) at 5 K.

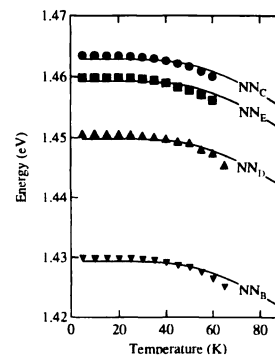


Fig. 2 Peak energy of emissions due to nitrogen pairs.

国内会議

「ラマン分光を用いた GaAsN 混晶の光照射による構造変化の評価」

矢口裕之, 清水博史, 森桶利和, 青木貴嗣, 土方泰斗, 吉田貞史, 宇佐美德隆,
吉田正裕, 秋山英文, 青木大一郎, 尾鍋研太郎

第 66 回応用物理学会学術講演会 (9p-ZA-18) (徳島) 2005. 9. 9

「ラマン分光を用いた GaAsN 混晶の発光効率向上に関する研究」

谷岡健太郎, 遠藤雄太, 土方泰斗, 矢口裕之, 吉田貞史, 青木大一郎,
尾鍋研太郎

第 53 回応用物理学関係連合講演会 (24a-P-7) (東京) 2006. 3. 24

“Micro-photoluminescence study of nitrogen atomic-layer doped GaAs”

Y. Endo, K. Tanioka, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama,
W. Ono, F. Nakajima, R. Katayama, and K. Onabe

25th Electronic Materials Symposium (I4) pp. 238-239 (Izu-no-kuni) 2006. 7. 6

「窒素を δ ドープした GaAs における等電子トラップの顕微フォトルミネッセ
ンス測定」

遠藤雄太, 谷岡健太郎, 土方泰斗, 矢口裕之, 吉田貞史, 吉田正裕, 秋山英文,
中島史博, 片山竜二, 尾鍋研太郎

第 67 回応用物理学会学術講演会 (29p-B-11) p. 293 (滋賀) 2006. 8. 29

「窒素をデルタドープした GaAs における等電子トラップからの発光」

遠藤雄太, 土方泰斗, 矢口裕之, 吉田貞史, 吉田正裕, 秋山英文, 中島史博,
片山竜二, 尾鍋研太郎

第 54 回応用物理学連合学術講演会(29p-Q-14) p. 358 (相模原) 2007. 3. 29

ラマン分光を用いた GaAsN 混晶の光照射による構造変化の評価

Raman Spectroscopy of Photo-Induced Structural Changes in GaAsN Alloys

埼玉大工¹, 東北大金研², 東大物性研³, 東大工⁴

○矢口裕之¹, 清水博史¹, 森桶利和¹, 青木貴嗣¹, 土方泰斗¹, 吉田貞史¹,
宇佐美德隆², 吉田正裕³, 秋山英文³, 青木大一郎⁴, 尾鍋研太郎⁴

Saitama University¹, IMR, Tohoku University², ISSP³, Dept. Applied Physics⁴,
University of Tokyo

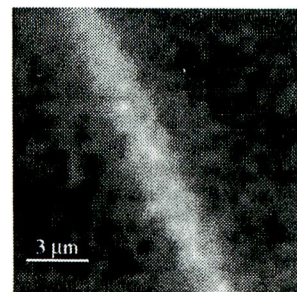
H. Yaguchi¹, H. Shimizu¹, T. Morioke¹, T. Aoki¹, Y. Hijikata¹, S. Yoshida¹, N. Usami²,
M. Yoshita³, H. Akiyama³, D. Aoki⁴, K. Onabe⁴

E-mail: yaguchi@opt.ees.saitama-u.ac.jp

[はじめに] GaAsN を中心とする混晶は温度特性に優れた光通信用半導体レーザ材料への応用が期待されている。混晶中の窒素濃度を増加させると発光効率が低下するため、その改善策として成長後に熱処理が行われている。一方、我々は低温でのレーザ照射によって GaAsN 混晶の発光効率が向上することを明らかにし[1], そのメカニズムについて検討してきた[2]。本研究では GaAsN 混晶が光照射によってどのような構造変化を生じるのかをラマン分光を用いて評価し、発光効率向上との関連について検討した。

[実験] 試料には有機金属気相エピタキシーによって GaAs(001)上に成長した GaAsN 混晶を用いた。温度 4 K において波長 532 nm, ビーム直径 1.3 μm , パワー密度 10 kW/cm^2 のレーザ光を走査して線状に照射した。その際、光照射によって発光強度が約 5 倍増加することを確認した。この試料に対して室温でラマン分光マッピング測定を行い、レーザ照射領域にどのような変化が生じているかを調べた。

[結果] GaAs LO フォノンのピーク位置を明暗で表した像を右図に示す。明るい像として観察されているレーザ照射領域では未照射領域と比べ約 1 cm^{-1} 高波数側へのシフトが生じており、光照射によって明らかに構造変化が起きていることがわかる。本研究の一部は科学研究費補助金基盤研究(C)のサポートによって行われた。



GaAs LO フォノンピーク位置を明暗で表したマッピングの結果

[1] H. Yaguchi *et al.*, Phys. Stat. Sol. (c) 0, 2782 (2003).

[2] 森桶他 2004 年秋季応物 3p-W-7.

ラマン分光を用いた GaAsN 混晶の発光効率向上に関する研究

Study on the improvement of luminescence efficiency of GaAsN alloys using Raman spectroscopy

埼玉大工¹, 東大工²

○谷岡健太郎¹, 遠藤雄太¹, 土方泰斗¹, 矢口裕之¹, 吉田貞史¹, 青木大一郎², 尾鍋研太郎²

Saitama University¹, University of Tokyo²

K. Tanioka¹, Y. Endo¹, Y. Hijikata¹, H. Yaguchi¹, S. Yoshida¹, D. Aoki², K. Onabe²

E-mail: tanioka@opt.ees.saitama-u.ac.jp

【はじめに】 GaAsN を中心とする混晶半導体は温度特性に優れた光通信用半導体レーザ材料として期待されている。混晶に窒素を添加するためには低温での成長が必要となるが、その結果、発光効率が低下するのでその改善策として成長後に熱処理が行われている。一方、我々はレーザ照射によって GaAsN 混晶の発光効率が向上することを見出した。また、レーザ照射によってどのような構造変化が生じるのかをラマン分光を用いて評価し、発光効率向上との関連について検討してきた[1]。本研究では発光効率向上のメカニズムを明らかにするために、さらにレーザ照射にともなうラマンスペクトルの変化を詳細に解析した。

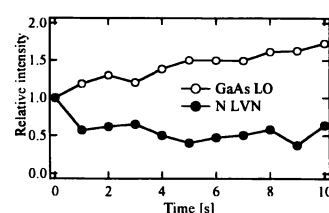


図1 ラマンピーク強度の時間変化

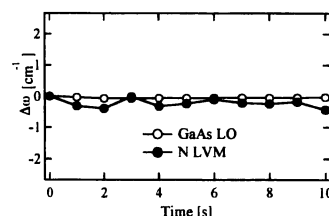


図2 ラマンピーク位置の時間変化

【実験】 試料には有機金属気相エピタキシー法

によって GaAs(001)上に成長した GaAsN 混晶を用いた。温度 3.3 Kにおいて He-Ne レーザ(波長 632.8 nm)を光源としてラマン分光測定を行った。その際、発光効率が向上しない程度のパワー密度のレーザ光でラマン測定を行い、発光効率が向上するようなパワー密度で1秒間レーザ照射を行い、これを繰り返すことによってラマンスペクトルの時間変化を調べた。

【結果】 図1に示すように GaAs LO フォノンによるラマンピーク強度は時間変化とともに増加していき、窒素原子による局在振動モードのピーク強度は時間変化とともに減少していくことがわかった。一方、図2に示すように GaAs LO フォノン、窒素原子による局在振動モードフォノンのピーク位置はほとんど変化しないことがわかった。

本研究の一部は科学研究費補助金基盤研究(C)のサポートによって行われた。

[1] 矢口他:第66回応用物理学関係連合講演会講演予稿集 9p-ZA-18

窒素を δ ドーピングした GaAs における等電子トラップの 顕微フォトルミネッセンス測定

Micro photoluminescence study of isoelectronic traps in nitrogen δ -doped GaAs

埼玉大工¹、東大物性研²、東大創域³

○遠藤雄太¹、谷岡健太郎¹、土方泰斗¹、矢口裕之¹、吉田貞史¹、吉田正裕²、
秋山英文²、中島史博³、片山竜二³、尾鍋研太郎³

Saitama University¹, ISSP², The University of Tokyo³

○Y. Endo¹, K. Tanioka¹, Y. Hijikata¹, H. Yaguchi¹, S. Yoshida¹, M. Yoshita²,
H. Akiyama², F. Nakajima³, R. Katayama³, K. Onabe³

E-mail: endo@opt.ees.saitama-u.ac.jp

【はじめに】量子情報技術の分野では単一光子源が重要な役割を果たすため、その研究開発が進められている。特に量子ドットを用いた単一光子源についていくつかの報告[1]があるが、半導体中の等電子トラップを利用することもアプローチの一つである。単一光子源を実現するためには単一の等電子トラップを利用する必要がある。そこで、本研究では窒素を δ ドーピングした GaAs の顕微フォトルミネッセンス(PL)測定を行うことで、種類と個数の制限された等電子トラップからの発光の観測を試みた。

【実験】試料は MOVPE 法によって作製した。DMHy の供給量を変えることで窒素濃度の異なる試料を作製した。顕微 PL 測定(空間分解能 $\sim 1\mu\text{m}$)は DPSS レーザー(波長 532nm)を用い、温度 4K で行った。

【結果】図に示すように測定位置によって PL スペクトルが異なっている。1.4741eV の鋭い発光に着目し、測定場所を $1\mu\text{m}$ ずつ移動してその分布を調べた(挿入図)。1.4741eV の鋭い発光は $10\mu\text{m}$ の範囲内の一つの位置(a)のみに現れることから、単一の等電子トラップからの発光を観測していると考えられる。本研究の一部は科学研究費補助金基盤研究(C)のサポートによって行われた。

[1] T. Miyazawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, L620 (2005)

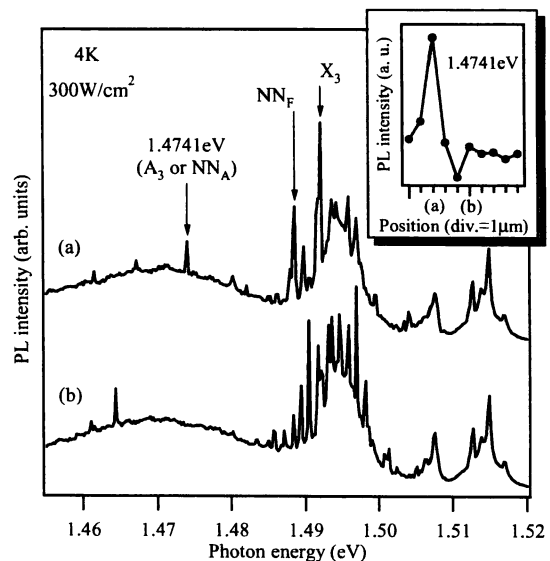


図 異なる位置でのPLスペクトル.

窒素をデルタドープした GaAs における等電子トラップからの発光

Photoluminescence from isoelectronic traps in nitrogen δ -doped GaAs

埼玉大院理工¹, 東大物性研², 東大新領域³

○ 遠藤雄太¹, 土方泰斗¹, 矢口裕之¹, 吉田貞史¹, 吉田正裕²,
○ 秋山英文², 中島史博³, 片山竜二³, 尾鍋研太郎³

Saitama University¹, ISSP², The University of Tokyo³

○ Y. Endo¹, Y. Hijikata¹, H. Yaguchi¹, S. Yoshida¹, M. Yoshita²,
H. Akiyama², F. Nakajima³, R. Katayama³, K. Onabe³
E-mail: endo@opt.ees.saitama-u.ac.jp

【はじめに】量子情報技術の分野で重要な役割を果たす単一光子源への応用のために、我々は半導体中の単一の等電子トラップからの発光を利用するというアプローチで研究を行なっている[1]。今回は、局在した等電子トラップからの発光の諸特性を研究した結果について報告する。

【実験】試料は有機金属気相エピタキシー法によって作製した。GaAs の成長中断時にジメチルヒドラジンを供給して、窒素を δ ドープした。空間分解能 $\sim 1\text{mm}$ の顕微フォトルミネッセンス(PL)測定によって局在した等電子トラップの発光特性を調べた。

【結果】顕微 PL を用いたマッピング測定を行なうと、局在した等電子トラップによる半値全幅 $\sim 200\text{meV}$ の鋭い発光が特定の位置から観測される。測定位置によって観測される発光のエネルギーが異なることから、発光には異なる種類の等電子トラップが関与していることがわかる。いずれの発光においてもエネルギー差 $\sim 1\text{meV}$ の2つのピークが同時に観測される。この2つの鋭い発光は同一の等電子トラップによると考えられる。例として 1.4886eV と 1.4898eV の発光が観測された PL スペクトルを図に示す。本研究の一部は科学研究費補助金基盤研究(C)のサポートによって行われた。

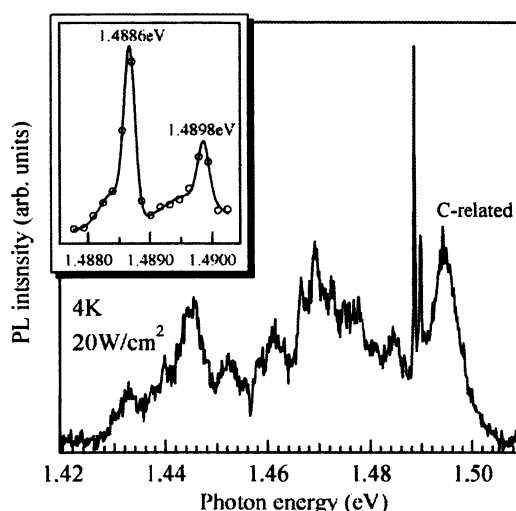


Fig. PL spectrum of nitrogen δ -doped GaAs.

[1] 遠藤 他：2006 年秋季 第 67 回応用物理学学会学術講演会 29p-B-11