

分子線エピタキシーによる GaAs-AlAs 超薄膜ヘテロ構造における 単原子スケールの界面凹凸とその平坦化

One Atomic Layer GaAs-AlAs Heterointerface Fluctuations and Their Suppression by
Insertion of Smoothing Period in Molecular Beam Epitaxy

田中雅明*・榎 裕之*・吉野淳二*
Masaaki TANAKA, Hiroyuki SAKAKI and Junji YOSHINO

1. はじめに

電子のドブロイ波長と同程度の厚みをもつ半導体超薄膜ヘテロ構造の物性とデバイス応用に関する研究は、近年の分子線エピタキシー (MBE) や有機金属気相成長法 (MOCVD) の発達とともに非常に盛んになってきている。そのような超薄膜ヘテロ構造の性質は、電子とヘテロ界面との量子力学的相互作用によっているため、ヘテロ界面の平坦性・急峻性というものが非常に重要な要素となる¹⁾。膜厚の制御性が最もすぐれているといわれる MBE 法によって作製された GaAs-AlAs 系のヘテロ界面には ± 1 原子層程度のゆらぎがあるといわれている。ヘテロ界面における 1 原子層程度のゆらぎは、透過型電子顕微鏡による直接観察²⁾、および量子井戸構造 (QW) からのフォトルミネセンス半値幅の広がり³⁾によってすでに示されている。一方、最近 MBE 成長中に反射高エネルギー電子線回折 (RHEED) の強度変化を観察することによって、従来に比べて膜厚の制御性、界面の急峻性・平坦性がすぐれた結晶成長ができるという期待がもたれている⁴⁾⁻⁶⁾。著者らは、MBE 成長中に RHEED の強度のふるまいを観察しながら、数十 Å 程度の周期をもつ実用上重要な QW を作製し、その界面の凹凸を原子層レベルで平坦化する方法を見いだした。またそのような平坦な界面をもつ QW からのルミネセンスは、従来に比べて著しくシャープになることを示す⁷⁾⁸⁾。

2. サンプルの作製方法

Cr ドープ半絶縁性 GaAs 基板 (001) 表面上に $(\text{GaAs})_n - (\text{AlAs})_m$ 多重量子井戸 (MQW) の成長を行った。 n, m はそれぞれ GaAs 1 ウェル当りの層数、AlAs 1 バリア当りの層数である。 $m=18$ としてバリア幅 $L_b=50.9 \text{ \AA}$ とし、 n は 14 層以上としてウェル幅 L_w を 40 \AA から 150 \AA まで変えたサンプルを作製した。成長速度は GaAs, AlAs 共に $0.2-0.3 \mu\text{m/hr}$ 、基板温度は 560°C 、フラックス比 $\text{As}_4/\text{Ga}=2\sim 3$ とし、GaAs パッファ層を 3000 \AA 成

長したうえで MQW を 5 周期作製した。RHEED の観察は、通常の (001) -2×4 表面における、電子線の入射方向 [100] または [110] としたときの鏡面反射ビームをレンズで集光して光ファイバーに通し、光電子増倍管に入れてモニタした。一般に MBE 成長中に、III 族セルのシャッターを開けた直後に RHEED 強度の振動現象が観察され、その振動の 1 周期が 1 原子層の成長に正確に対応していることがわかっている。しかしその振動は成長を続けるうちに減衰し、セルのシャッターを閉じて成長を止めると RHEED 強度は次第に回復する⁴⁾。この現象を QW 成長中のヘテロ界面形成の際にどのように応用すれば平坦な界面が得られるかという観点に立って、以下に示す 4 種類の方法でヘテロ界面を形成して QW を成長した。

type I … RHEED 振動の強度の極大で Ga シャッターを閉じ、RHEED 強度が十分回復するまで成長を中断して (90 s)、Al シャッターを開けて次の層を成長させる。AlAs 上に GaAs を成長させる際も同様にする。

type II … RHEED 振動の極小で III 族シャッターを閉じ、RHEED 強度が充分回復するまで成長を中断して (90 s)、次の層を成長する。

type III … ヘテロ界面形成の際に、RHEED 振動の極大でシャッターを閉じ、成長中断時間を 5 秒以下とする。

type IV … ヘテロ界面形成の際に、RHEED 振動の極小でシャッターを閉じ、成長中断時間を 5 秒以下とする。

以上の成長における RHEED 強度のふるまいを Fig. 1 に示す。

3. フォトルミネセンスによる評価

type I ~ IV のサンプルについて、77 K におけるフォトルミネセンス (PL) 測定を行った。励起光は 5145 \AA の Ar レーザを用い、励起強度は $10 \text{ W} \sim 100 \text{ W/cm}^2$ である。Fig. 2(a)~(c) は、 $n=18$ or 19 の QW からの典型的な PL スペクトルを示す。

type I の QW については、Fig. 3(a) に示すような半

* 東京大学生産技術研究所 第 3 部

研究速報

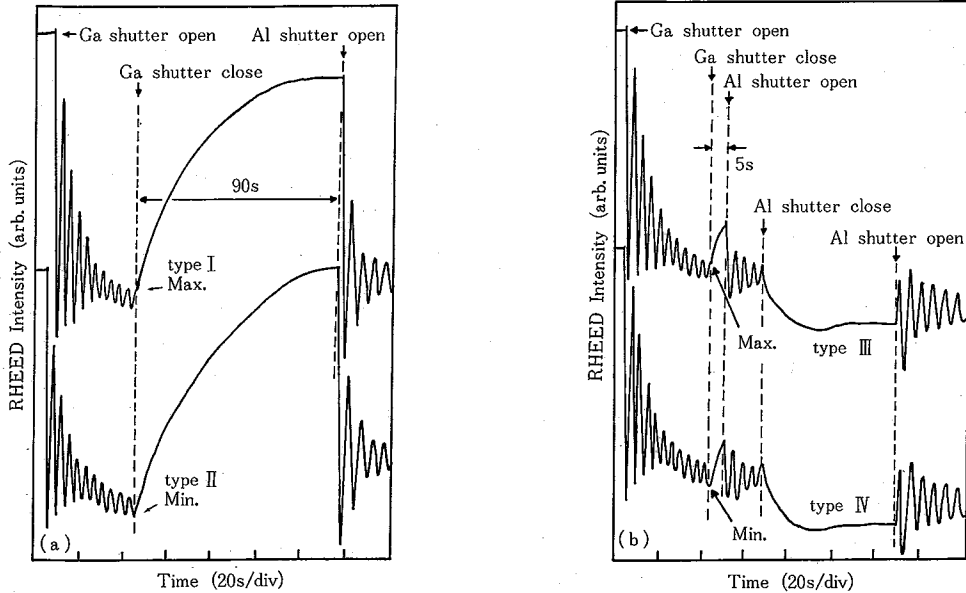


Fig.1 Intensity of the specular beam in the RHEED patterns measured as a function of time during the formation of GaAs-AlAs heterointerfaces in the growth process of four different quantum wells (type I-IV). The RHEED was taken from an (001)-2x4 reconstructed surface, [100] azimuth. As described in the text, type I and type II quantum wells (QWs) were prepared with the growth interruption of 90s prior to the interface formation (a), whereas type III and type IV QWs were made with the interruption of 5s (b). The closing of Ga beam was synchronized with the RHEED oscillations in such a way that the intensity was maximum for type I and type III QWs, whereas it was minimum for type II and type IV QWs. For details, see the text.

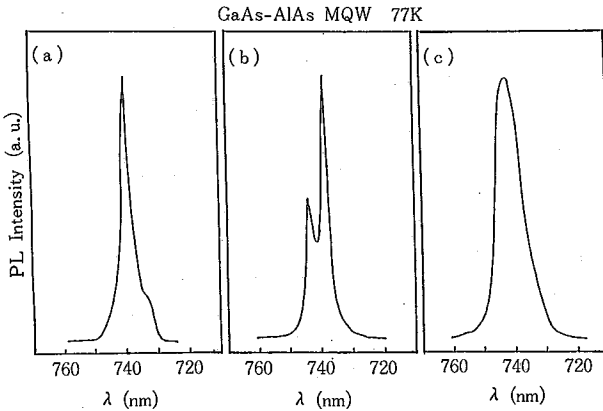


Fig.2 Photoluminescence spectra of GaAs-AlAs MQW structures with $L_b=L_z=50.9$ Å or 53.7 Å measured at 77K. (a) and (b) show the spectra for type I and type II QWs, whereas (c) shows the spectrum seen in type III and type IV QWs.

値幅 20 Å ~ 30 Å 程度の非常に鋭い発光がみられた。また、サンプルの別の場所では Fig. 3(b) に示すようなウェル幅 L_z の 1 原子層の違いに対応するピークの分離が

みられた。type II の QW においても type I と同様の結果が得られた。

一般に、QW からの PL スペクトルは GaAs-AlAs ヘテロ界面に存在する 1 原子程度の凹凸の大きさが QW 中の 2 次元エキシトンのボア半径と同程度からそれ以下である場合にはブロードになる。これは、発光に参与する QW 中のエキシトンがウェル幅 L_z として n 層と $n+1$ 層の間の値を連続的に感じるために、 L_z のゆらぎに対応した量子単位のゆらぎが PL スペクトルに反映されると考えられるからである。それに対して成長表面上で原子の migration が十分起きた後に形成されたヘテロ界面は、凹凸 (atomic step) 密度が非常に少なく、そのサイズはエキシトンのボア半径よりはるかに大きいと考えられる。その場合には、QW 中のエキシトンは L_z として 1 原子の整数倍の大きさを離散的に感じることであり、PL スペクトルは 1 本のシャープなピークか、1 原子層の違いに対応するピークの分離がみられる。したがって、RHEED 振動の“位相”にかかわらず、界面形成の際に成長中断時間の長い QW は非常にフラットな界面を有することがわかる。

一方, type III, IV の QW からの PL スペクトルは Fig. 3(c) に示すような半値幅 80 Å 程度のブロードなピークになった。これは成長中断時間が短いために、凹凸密度が大きく、1 原子層程度のヘテロ界面のゆらぎが存在することを反映している。

以上の実験事実は、前述の成長条件では RHEED 振動の位相にかかわらず、成長中断時間を十分におこなければ、単原子層レベルで平坦な界面は得られないことを示している。

77 K における QW の PQ 半値幅 $\Delta\lambda$ とウェル幅 L_z の関係をプロットしたのが Fig. 3 である。従来の方で成長した QW の PL 半値幅は $\Delta h\nu \propto \Delta L_z / L_z^2$ で説明されるブロードニングがおり、type III, IV の QW もこの範ちゅうに入る。しかし type I, II の QW については L_z の狭い領域で半値幅が 20 Å ~ 30 Å 程度 (4 meV ~ 7 meV) となり、良好なヘテロ界面が得られていることがわかる。

他のデータとの比較のために³⁾⁹⁾横軸を発光波長として 77 K および 4.2 K における PL 半値幅をプロットし

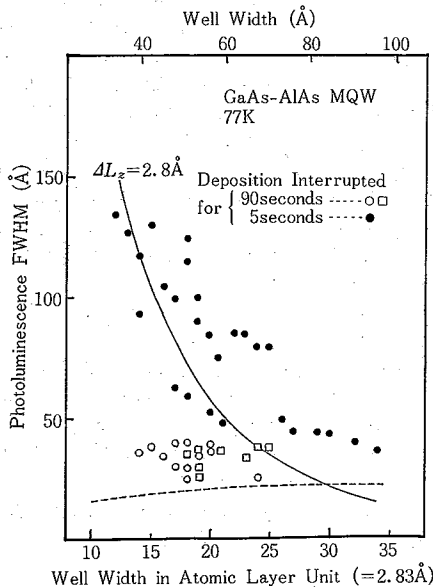


Fig.3 Full width at half maximum (FWHM) of the photoluminescence spectrum from GaAs-AlAs quantum wells as a function of well width. The solid line is calculated by assuming one monolayer fluctuation of the well width. The broken line denotes the calculated broadening 0.7kT due to the thermal energy of carriers at 77K. The filled circles are the experimental data of type III and IV QWs, whereas open circles and open squares are those of type I and type II QWs, respectively.

たのが Fig. 4 である。著者らの作製した QW の半値幅は、界面において 1 原子層の凹凸を仮定して計算される値よりもはるかに狭く、特に L_z が狭い領域においては過去に発表されたいかなる値よりもすぐれたものである。

4. 光吸収スペクトルによる評価

QW からの PL 半値幅によって界面の評価を行ってきたが、一般に PL 半値幅が界面の凹凸を直接反映しているかどうかは問題が残る。というのは、2次元エキシトンは QW 中を動いてエネルギーの低い所(すなわち凹凸のある中で L_z の大きい所)で発光消滅する可能性があるからである。そこでこのような過程の影響を受けない光吸収スペクトルの測定をして PL と比較をする必要がある。著者らは、前述の方法によって平坦な界面をもつ GaAs-AlAs QW を 2 種類 ($L_z=50.9 \text{ \AA}$, 150 \AA , $L_b=50.9 \text{ \AA}$) 作製した。QW 層の厚さは $0.5 \mu\text{m}$ として、光吸収スペクトルは 77 K において、QW の下に成長した N-AlGaAs/GaAs 単一ヘテロ接合における光伝導を用いて測定し、PL スペクトルと比較した。Fig. 5(a), (b) は 2 種類の QW から 77 K における PL と吸収スペクトルを示す。PL のピークの位置およびスペクトルの形状が、光吸収スペクトルにおける electron-heavy hole exciton のピーク位置および形状によく一致している。これは 77 K におけるルミネセンスは exciton 発光が支配的であることを示している。Fig. 5 の (a-1), (a-

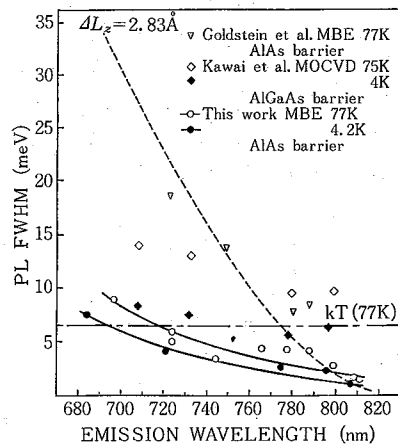


Fig.4 Full width at half maximum (FWHM) of the photoluminescence spectrum from GaAs-AlAs quantum wells as a function of emission wavelength. The broken line denotes the calculated broadening by assuming one monolayer fluctuation of the well width at 77K. Some other published data are also shown in this figure.

研究 速 報

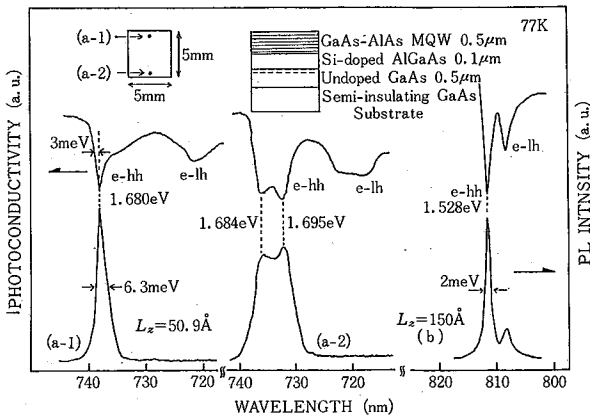


Fig.5 Absorption and photoluminescence spectra measured at 77K on two GaAs-AlAs MQWs with $L_z = 50.9\text{\AA}$ (a) and 150\AA (b). The spectra (a-1) and (a-2) are taken from the same wafer but at different sites.

2)は、 $L_z = 50.9\text{\AA}$ の同じサンプルの異なる2カ所から測ったスペクトルである。(a-1)において、PL半値全幅は6.3meVであり、界面において1原子層程度の凹凸を仮定した場所の広がり(~20meV)に比べるとはるかに小さいばかりでなく、吸収スペクトルにおける低エネルギー側の半値半幅3meVと一致している。この吸収スペクトルの半値幅は、従来の値よりもはるかに狭いものである¹⁰⁾。(a-2)においてはPLと吸収の両方において、ウェル幅 L_z の1原子層の違いに相当するピークの分離がみられる。これはQWの界面は平坦であるが、エキシトンの半径よりはるかに大きなatomic stepが存在することを示している。以上に述べたようなPLと光吸収スペクトルの良い一致は、著者らの作製したQWではエキシトンが発光消滅する前にQW中を移動するような過程はPLスペクトルに現れていないということを示す。したがって、PLスペクトルは、界面の凹凸を正確に反映しているということが明らかになった。

5. 結 論

MBE成長中におけるRHEED強度変化を観察することによって、GaAs-AlAsヘテロ界面を形成する方法と、QWからのフォトルミネセンス半値幅との関係を調べた。その結果、RHEED振動の位相にかかわらず、10原子層程度以上の成長後には、表面に1原子層程度の凹凸が生じる。しかし、数十秒程度の成長中断によって凹凸が除かれて、原子層レベルで平坦な界面が得られ、QWからのフォトルミネセンス半値幅は著しく狭くなる。77K、4.2KにおけるPL半値幅は、 L_z が小さい領域($L_z \leq 70\text{\AA}$)において、過去のデータより狭いものが得られた。また、吸収スペクトルとPLスペクトルが良く一致することから、PL半値幅はQWの界面の凹凸を正確に反映していることが明らかになった。

(1985年9月3日受理)

参 考 文 献

- 1) H. Sakaki: Proc. Int. Symp. Foundations of Quantum Mechanics, Tokyo, 1983 (Phys. Soc. Jpn. Tokyo 1984) p94
- 2) T. Furuta, H. Sakaki, H. Ichinose, Y. Ishida, M. Sone and M. Onoe: Jpn. J. Appl. Phys. **23** (1984) L265
- 3) L. Goldstein, Y. Horikoshi, S. Tarucha and H. Okamoto: Jpn. J. Appl. Phys. **22** (1983) L1489
- 4) J. H. Neave, B. A. Joyce, P. J. Dobson and N. Norton: Appl. Phys. **A-31** (1983) 1
- 5) N. Sano, H. Kato, M. Nakayama, S. Chika and H. Terauchi: Jpn. J. Appl. Phys. **23** (1984) L640
- 6) T. Sakamoto, H. Funabashi, K. Ohta, T. Nakagawa, N. J. Kawai and T. Kojima: Jpn. J. Appl. Phys. **23** (1984) L657
- 7) H. Sakaki, M. Tanaka and J. Yoshino: Jpn. J. Appl. Phys. **24** (1985) L417
- 8) M. Tanaka, H. Sakaki, J. Yoshino and T. Furuta: Proc. of Int. Conf. on Modulated Semiconductor Structures 2nd Conf. Kyoto (1985) to be published.
- 9) H. Kawai, K. Kaneko and N. Watanabe: J. Appl. Phys. **56** (1984) 463
- 10) H. Iwamura, Y. Horikoshi and H. Okamoto: Jpn. J. Appl. Phys. **23** (1984) L795

