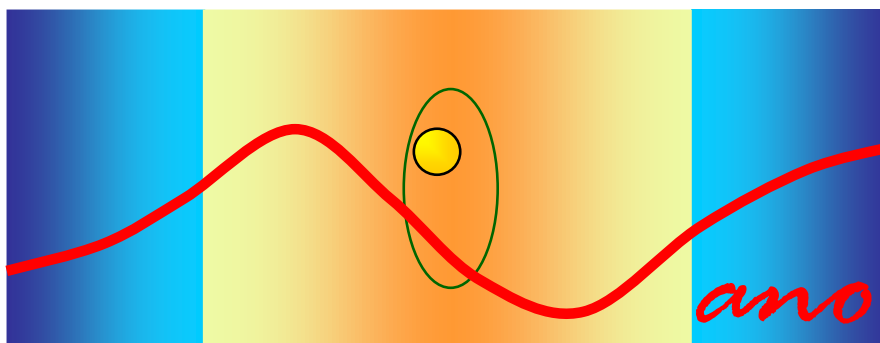




徳島大学大学院社会産業理工学研究部  
理工学域寄附講座系

ナノマテリアルテクノロジー分野  
日亜寄附講座

第3期  
(平成28年度～令和2年度)  
成果報告書



令和3年3月

## 1. まえがき

2016年4月よりスタートしました日亜寄附講座の第3期の5年間の終了しました。第1期(2006年4月から2011年3月)の5年間では、ナノ半導体研究を推進するための様々な研究設備の導入と実験室の整備を行い、国際的に見ても決して見劣りのしない充実した研究環境を持つ研究室を立ち上げました。これらの研究設備を活用した新しい研究成果が生まれ、論文や国際会議での発表も少なからず行いました。第2期(2011年4月から2016年3月)も引き続き、フロンティア研究センターの中核を担う講座として、それまでの研究成果を引き継ぎ、その成果を基にして民間財団からの助成金や科学研究費補助金の採択を受けるなど、外部からの評価も頂きながら研究活動を続けてきました。この間、2012年度末には森田健特任講師が千葉大学准教授として転出し、2013年度より盧翔孟特任助教が着任しました。さらに2014年1月には熊谷直人特任講師を迎えて、研究テーマも広げました。2014年12月にはかねてより建設中のフロンティア研究センター棟が完成し、1月から3月にかけて研究室・実験室の移設を行いました。移設の機会を利用して測定系の改良を行い、新たな測定系への発展可能な形で構築を進めました。日亜寄附講座の創設から発展にご尽力されました井須俊郎教授が2016年3月に定年退職を迎えられました。10年間の長きにわたりご指導ご鞭撻を賜りましたことをこの場を借りてお礼申し上げます。また2016年3月に熊谷直人特任講師が産業技術総合研究所主任研究員として転出されました。第3期目の初年度にあたる2016年8月には南康夫特任准教授を迎え、高強度超短パルスレーザー光を使ったテラヘルツ光物性の研究にも取り組んでいます。フロンティア研究センターは、2018年3月をもって終了となりましたが、4月以降も大学院社会産業理工学研究部に所属する寄附講座として活動を継続し、2019年3月に設置されましたポストLEDホトニクス研究所を兼任しております。なお、盧翔孟特任助教は2019年10月にシャープ株式会社へ転出されました。

本寄附講座の第3期5年間の活動の報告として本冊子をまとめ、ご支援いただきました皆様方に感謝いたしたく存じます。寄附講座は第3期をもって終了となりますが、3期15年間にわたる活動が大学のみならず広く社会への貢献につながることを祈念しております。あらためて寄附講座の15年間の活動を支えていただきました皆様方に深くお礼申し上げます。

2021年3月

北田 貴弘

## 2. 構成員

### (第3期)

特任教授	北田 貴弘	(H18年4月～R3年3月)
特任准教授	南 康夫	(H28年8月～R3年3月)
特任助教	盧 翔孟	(H25年4月～R1年10月)
技術補佐員	砂川 香	(H21年6月～H28年12月)
技術補佐員	加藤 真樹	(H29年4月～R3年3月)

### (第1期・2期)

特任教授	井須 俊郎	(H18年4月～H28年3月)
特任講師	森田 健	(H18年10月～H25年3月)
特任講師	熊谷 直人	(H26年1月～H28年3月)
技術補佐員	井上 舞	(H18年5月～H20年4月)
技術補佐員	廣内 千恵	(H20年5月～H21年6月)
共同研究員	中河 義典 (日亜化学工業)	(H18年5月～H26年3月)

#### 4. 対外関係

##### 【科学研究費補助金】

平成 26 年度採択 科学研究費補助金・基盤研究(C)・H26 年度～H28 年度

研究代表者 森田健 (千葉大)、 研究分担者 北田貴弘

「高強度テラヘルツパルスを利用した半導体中電子スピンの超高速自由制御」

平成 27 年度採択 科学研究費補助金・挑戦的萌芽研究・H27 年度～H28 年度

研究代表者 北田貴弘

「高指数面基板上の副格子交換エピタキシーによる半導体多層膜結合共振器の研究」

平成 28 年度採択 科学研究費補助金・基盤研究(B)・H28 年度～H30 年度

研究代表者 武田淳 (横浜国大)、 研究分担者 南康夫

「超広帯域シングルショット分光：限界駆動下における非線形光学応答の可視化と制御」

平成 28 年度採択 科学研究費補助金・基盤研究(B)・H28 年度～H30 年度

研究代表者 北田貴弘、研究分担者 南康夫、盧翔孟、熊谷直人 (産総研)、森田健 (千葉大)

「テラヘルツ LED の研究」

平成 28 年度採択 科学研究費補助金・基盤研究(C)・H28 年度～H30 年度

研究代表者 熊谷直人 (産総研)、 研究分担者 北田貴弘、南康夫、盧翔孟

「超高速キャリア緩和を有する InAs 量子ドットのテラヘルツ波検出素子への応用」

2019 年度採択 科学研究費補助金・基盤研究(B)・H31(R1)年度～R3 年度(予定)

研究代表者 北田貴弘

「副格子交換エピタキシーによるテラヘルツ LED の研究」

2019 年度採択 科学研究費補助金・基盤研究(C)・H31(R1)年度～R3 年度(予定)

研究代表者 南 康夫

「テラヘルツパルスを用いた超高速実空間イオン制御に関する研究」

2019 年度採択 科学研究費補助金・基盤研究(C)・H31(R1)年度～R3 年度(予定)

研究代表者 和田 修 (神戸大学)、 研究分担者 北田 貴弘

「量子ドット超格子を用いた光導電型テラヘルツ発生・検出の実現」

##### 【共同研究】

千葉大学	森田 健	准教授
産業技術総合研究所	熊谷 直人	主任研究員
愛媛大学	下村 哲	教授
神戸大学	和田 修	客員教授
神戸大学	小島 磨	准教授

**【学内プロジェクト事業】**

「LED ライフイノベーション総合プラットフォーム推進事業」

半導体多層膜結合共振器によるテラヘルツ LED 素子の開発を担当。

**【学内協力講座】**

システム創生工学専攻／光応用工学科 光科学／光工学基礎研究室（原口研究室）

エコシステム専攻 物質循環工学研究室（橋本研究室）

**【JST 地域産学官共同研究拠点整備事業】**

徳島県の地域産学官共同研究拠点整備事業の LED 部門の設備運用に関して、継続して設備担当者として拠点事業の支援を行った。

**【受賞等】**

2018年度支部学術講演会発表奨励賞

「GaAs/AlGaAs結合共振器による二波長面発光レーザの時間分解スペクトル測定」

小楠洸太郎, 南康夫, 盧翔孟, 熊谷直人, 森田健, 北田貴弘

2018年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会 Fa-5, 2018年8月.

## 7. 2016年度(平成28年度)の研究成果

## 7. 1. 研究課題

本寄附講座は、高度情報化社会を支える基盤技術としての先端的なナノテクノロジーを基幹にした「モノ作り」技術の研究と教育を担うため、平成18年4月に、フロンティア研究センターナノマテリアルテクノロジー分野として設置された。第1期の設立当初より、ナノスケールの半導体量子構造の作製、半導体量子ナノ構造の特徴的光学応答特性の探求、高効率・超高速な非線形光学応答を使った高機能デバイスへの応用という課題を掲げ、「ナノ半導体」の物性と光・電子デバイスに関する一貫した技術研究を総合的に推進してきた。第2期も先端技術に基づくモノ作りの理念を継続し、研究課題として掲げているのは、「半導体ナノ構造による新機能デバイスの創製」である。具体的なデバイスとして、「通信波長帯超高速全光スイッチ・波長変換素子」、「テラヘルツ光発生素子」、「半導体量子ドットによる新規テラヘルツ波検出素子」を掲げて研究を進めてきた。研究実施の手段としては、これまで同様に分子線エピタキシー法による半導体量子ナノ構造の結晶成長、超短パルスレーザなどを用いた非線形光学応答測定、半導体ナノ構造素子の特性評価を実施している。

今年度は主にテラヘルツ光発生素子に関する研究課題に取り組んだ。半導体多層膜で構成する結合共振器構造に現れる二つの共振器モードのテラヘルツ帯差周波発生を原理とする素子で、**p-n** 接合への電流注入により室温動作する面発光型の素子であることから「テラヘルツLED」と呼んでいる。素子の実現にあたり、結合共振器への電流注入で二波長発振するエピタキシャル膜構造及びデバイスプロセス技術を確認することを重点課題とした。素子の二波長発振特性の詳細を明らかにするとともに、素子から生じるテラヘルツ波を検出する計測技術の立ち上げにも取り組んだ。テラヘルツ波発生を高効率にするには、分極反転型の結合共振器構造とする必要があることがこれまでの研究でわかっている。これまでは、2つのエピタキシャルウエハの接合により実現していたが、これを結晶成長だけで実現できる高指数面上の副格子交換エピタキシーという新しい成長技術の開発も研究課題とした。そのほか、結合共振器を使ったエンタグルフoton発生という新しい量子光素子を新たな研究課題として取り上げ、取り組むための準備検討を進めることとした。

また、千葉大学の森田准教授が中心となって進めている「高強度テラヘルツパルスを利用した半導体中電子スピンの超高速自由制御」という研究課題では高品質半導体量子井戸薄膜の作製という役割を担っており、産総研の熊谷主任研究員が中心となって進めている「超高速キャリア緩和を有する **InAs** 量子ドットのテラヘルツ波検出素子への応用」という研究課題では、量子ドットの結晶成長とその特性評価を担当している。

## 7. 2. 研究成果の概要

2つの共振器層の3つのブラッグ反射多層膜(DBR膜)で構成する半導体多層膜結合共振器構造を用いたテラヘルツ光発生素子「テラヘルツLED」の研究開発を実施している。この課題は基盤研究(B)「テラヘルツLEDの研究」としてH28年度より科学研究費補助金を受けて結合共振器の作製、電流注入型面発光素子の試作とその特性評価を進めている。また、後術する分極反転のための新しいエピタキシー成長技術の研究に関しては挑戦的萌芽研究「高指数面基板上の副格子交換エピタキシーによる半導体多層膜結合共振器の研究」としてH27年度より科学研究費補助金を受けている。

前年度までの研究成果で、二波長発振のための広帯域利得スペクトルをもつ活性層材料としてInAs量子ドットを取り入れた結合共振器構造では、電流注入による赤外レーザー発振が困難であること、また、厚さの異なる2種類の量子井戸を活性層とした結合共振器構造をエピタキシャル成長だけで作製した場合、室温で二波長レーザー発振が可能であることを示した。本年度は、まず、この分極制御していない素子の二波長発振の詳細な特性を評価した。二波長発振を実現するには、2つの共振器層の厚さが極めてよく一致させる必要があること、InGaAs歪多重量子井戸のIn組成、厚さ及び周期数を適度なものとすることで発光効率が高められることがわかった。また、マイケルソン干渉計により二波長レーザー光の時間的コヒーレンスについても評価した。得られたインターフェログラムから、モード差周波で得られるテラヘルツ波は比較的に高いコヒーレンスをもつことが予測された。上記の結果を踏まえ、2種類の量子井戸を活性層とする結合共振器構造を2つのエピウエハの直接接合により作製し、電流注入型の素子を試作した。本素子は、電流注入による赤外二波長発振とそのテラヘルツ帯差周波発生を実現し得る構造になっている。試作した素子の室温赤外発光特性を評価したところ、電流注入による室温レーザー発振は実現できているが、2つの共振器の厚さがよく一致している場合でも長波長側のモードのみで発振していた。共振器モード波長が量子井戸の発光ピーク波長よりも短波長側にあり、長波長側モードの利得が短波長側よりも大きくなっていたためである。クライオスタットを使って素子を冷却し、素子温度によりモード波長と量子井戸波長の関係を調整すると二波長発振が実現できることが確かめられた。また、二次非線形効果による差周波発生でテラヘルツ波を得る際に重要となる二波長光の偏光特性についても評価を行い、素子から生じるテラヘルツ波の偏光特性を予測した。

素子から生じるテラヘルツ波の検出に関しては、2つの計測手法で取り組んでいる。一つはフーリエ赤外分光装置とGe光伝導検出器を用いる手法で、千葉大の森田准教授と共同で研究を進めている。本年度は赤外二波長光のスペクトル検出とロックインアンプを使ったテラヘルツ波の高感度検出ができるように光学系を整えた。もう一つの手法は、素子から生じる二波長レーザー光を利用したテラヘルツ波のコヒーレント検出である。素子から生じる二波長レーザー光の強度はその差周波で時間的ビートを打ち、その位相は二次非線形光学効果で生じるテラヘルツ波と同期している。二波長光による強度ビートを、低温成長半導体薄膜を用いた光アンテナ素子のゲート光とし、素子から生じるテラヘルツ波をアン



テナ素子に照射した際に生じる電流を検出する。この電流を、ゲート光とテラヘルツ波の間の時間遅延の関数として計測すると、振動した振る舞いが得られる。これをフーリエ変換することでほぼ発生するテラヘルツ波にほぼ一致するスペクトルが得られる。二波長レーザー光のスペクトル幅に対して、どのような振動電流が得られるかをシミュレーションするとともに実際に計測するための光学系を整備した。現在開発中の素子は波長 920 nm 付近で二波長レーザー光を生じる。この波長帯で高感度に動作する低温成長光伝導アンテナ素子は市販されていないため自作した。分子線エピタキシー (MBE) 装置により低温成長の InGaAs 多重量子井戸を結晶成長し、リフトオフプロセスによる電極形成とウエットエッチングによるメサ加工でアンテナ素子を試作した。試作したアンテナ素子の光伝導特性を計測したところ、アンドープの高抵抗 GaAs 基板上に作製した場合、波長 920 nm でわずかに励起される光キャリアの伝導が低温成長 InGaAs 量子井戸層を流れる伝導よりも支配的で問題になることがわかった。GaAs 基板にレーザー光が侵入しないようにする DBR 膜構造を設けた薄膜構造を設計し、結晶成長と素子プロセスによりアンテナ素子を試作した。GaAs 基板を流れる光電流は大幅に抑えられ、低温成長 InGaAs 量子井戸層を流れる光電流成分が明瞭となった。この素子をコヒーレント検出系に組み入れ、電流中注入でテラヘルツ LED 素子から生じるテラヘルツ波の観測を試みる予定である。

結合共振器を使ってテラヘルツ光発生素子を実現するには、上下の共振器層で異なる符号の二次非線形感受率とすることが望ましい。これまでは、2つのエピウエハの直接接合により実現してきたが、エピタキシャル成長だけで符号反転を実現する技術を開発した。閃亜鉛鉱型の結晶構造をとる GaAs 系ヘテロ薄膜のエピタキシャル成長の途中で、IV 族元素である Ge を中間層として挿入することで副格子の配列を交換する手法が、高指数(113)B GaAs 基板上で実現できることを見出した。(113)B 基板上に GaAs/Ge/GaAs 構造を MBE 成長した後、フォトリソグラフィによりパターンニングし、硫酸系の異方性エッチャントを使ってメサ形状に加工した。メサ断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) により観察すると、Ge 層の上下で結晶方位が 180 度反転していることができた。また、GaAs/Ge/GaAs 界面を走査透過型電子顕微鏡 (STEM) により観察するとともに、特性 x 線検出により原子分解能の元素マッピングを行った。界面近傍の STEM 像には欠陥等もみられず、良好なヘテロ界面が形成されていた。界面の元素マップをみると、Ge 層を境として、Ga 原子と As 原子の配列が入れ替わっている様子が明瞭にみられた。さらに、(113)B GaAs 基板上の GaAs/Ge/GaAs による副格子交換エピタキシー技術を使って、分極反転型の GaAs/AlAs 多層膜結合共振器を MBE 成長した。成長した結合共振器の断面 SEM 観察から、Ge 層上下の構造全体にわたってスムーズな GaAs/AlAs 界面が得られていることがわかった。垂直入射の条件で光学反射率スペクトルを測定すると、2つの共振器モードによる反射率ディップが明瞭にみられた。実験のスペクトルはシミュレーションでほぼ再現できていることから、良好な結合共振器が形成できていると思われる。今後、超短パルスレーザー光を用いた時間領域分光法によるテラヘルツ波計測により本手法の有効性を明らかにしていきたい。

## 8. 2017年度(平成29年度)の研究成果

## 8. 1. 研究課題

本寄附講座は、高度情報化社会を支える基盤技術としての先端的なナノテクノロジーを基幹にした「モノ作り」技術の研究と教育を担うため、平成18年4月に、フロンティア研究センターナノマテリアルテクノロジー分野として設置された。第1期の設立当初より、ナノスケールの半導体量子構造の作製、半導体量子ナノ構造の特徴的光学応答特性の探求、高効率・超高速な非線形光学応答を使った高機能デバイスへの応用という課題を掲げ、「ナノ半導体」の物性と光・電子デバイスに関する一貫した技術研究を総合的に推進してきた。第2期も先端技術に基づくモノ作りの理念を継続し、研究課題として掲げているのは、「半導体ナノ構造による新機能デバイスの創製」である。具体的なデバイスとして、「通信波長帯超高速全光スイッチ・波長変換素子」、「テラヘルツ光発生素子」、「半導体量子ドットによる新規テラヘルツ波検出素子」を掲げて研究を進めてきた。研究実施の手段としては、これまで同様に分子線エピタキシー法による半導体量子ナノ構造の結晶成長、超短パルスレーザなどを用いた非線形光学応答測定、半導体ナノ構造素子の特性評価を実施している。

近年は主にテラヘルツ光発生素子に関する研究課題に取り組んでいる。半導体多層膜で構成する結合共振器構造に現れる二つの共振器モードのテラヘルツ帯差周波発生を原理とする素子で、 $p-n$  接合への電流注入により室温動作する面発光型の素子であることから「テラヘルツLED」と呼んでいる。素子の実現にあたり、結合共振器への電流注入で二波長発振するエピタキシャル膜構造及びデバイスプロセス技術を確認することを重点課題としている。本年度はまず、素子の室温での赤外二波長発振を実現することを目標とし、その詳細な特性を明らかにすることを研究課題とした。さらに、昨年度に構築した測定系を使って、素子への電流注入で生じるテラヘルツ波をスペクトル計測することにも取り組んだ。テラヘルツ波発生を高効率にするには、分極反転型の結合共振器構造とする必要があり、これまでは、2つのエピタキシャルウエハの接合により実現していた。昨年度、高指数(113)B GaAs 基板上の副格子交換エピタキシーという新しい成長技術を開発し、分極反転型の結合共振器構造をエピタキシャル成長だけで実現することに成功した。副格子の配列交換を周期的に行うことができると、結合共振器を使ったもつれ光子対生成ダイオードという革新的な量子光素子への応用が期待できる。本年は、(113)A GaAs 基板上で副格子の配列交換を実現させる手法を見出すことに注力した。

また、千葉大学の森田准教授が中心となって進めている研究課題「高強度テラヘルツパルスを利用した半導体中電子スピンの超高速自由制御」では、高品質半導体量子井戸薄膜の作製を担っており、産総研の熊谷主任研究員が中心となって進めている研究課題「超高速キャリア緩和を有する InAs 量子ドットのテラヘルツ波検出素子への応用」では、量子ドットの結晶成長とその特性評価を担当している。

## 8. 2. 研究成果の概要

2つの共振器層の3つのブラッグ反射多層膜(DBR膜)で構成する半導体多層膜結合共振器構造を用いたテラヘルツ光発生素子「テラヘルツLED」の研究開発を実施している。この課題は基盤研究(B)「テラヘルツLEDの研究」としてH28年度より科学研究費補助金を受けて結合共振器の作製、電流注入型面発光素子の試作とその特性評価を進めている。

昨年、2つのエピウエハの直接接合により作製した結合共振器薄膜を使って電流注入型の面発光素子を試作したところ、室温でレーザ発振するものの長波側モードによる単一波長での発振であった。これは、共振器モード波長が量子井戸の発光ピーク波長よりも短波長側にあり、長波側モードの利得が短波側よりも大きくなっていったためである。実際、クライオスタットを使って素子を冷却し、素子温度によりモード波長と量子井戸波長の関係を調整すると二波長発振が実現できた。上記の結果を踏まえて本年度は、膜構造を精密に調整した結合共振器薄膜を使って素子を試作した。結合共振器薄膜は、(001)および(113)B エピウエハを直接接合することにより作製した。昨年度と同様に(001)側の共振器層には発光媒質として厚さの異なる2種類のInGaAs多重量子井戸を挿入し、差周波発生の役割を担う(113)B側の共振器層はGaAsとした。2つの共振器層の厚さを精密に制御し、かつ量子井戸の発光波長を共振器モード波長によく一致させることで、パルス電流注入により波長920nm近傍で室温二波長レーザ発振する素子を得ることができた。二波長発振の強度比は、電流注入条件や素子温度に強く依存していた。スペクトル形状から見て、電流注入に伴う素子発熱に起因していると思われる。出力される二波長レーザ光を非線形光学結晶であるBBO(Beta Barium Borate)結晶に照射すると、各モードの第二高調波発生(SHG)信号に加えて和周波発生(SFG)信号が明瞭にスペクトル計測された。テラヘルツ帯の差周波を得るには必須の二波長同時発振であることを意味する。ただし、相対的な強度関係から、時間的重なりが完全に一致していないことが予測された。実際、ストリークカメラを使って二波長レーザ光の時間分解スペクトル測定を行うと、パルス電流注入初期では短波側モードのレーザ発振が支配的で、時間の経過とともに長波側モードが支配的となっていく様子が見られた。これらの振る舞いは電流注入条件や素子温度に依存することもわかった。上述の発振特性は、素子の放熱対策と温度制御により十分改善できると考えている。

素子から生じるテラヘルツ波の検出に関しては、2つの計測手法で取り組んでいる。一つはフーリエ赤外分光装置とGe光伝導検出器を用いる手法で、千葉大の森田准教授と共同で研究を進めている。もう一つの手法は、素子から生じる二波長レーザ光を利用したテラヘルツ波のコヒーレント検出である。素子から生じる二波長レーザ光の強度はその差周波で時間的ビートを打ち、その位相は二次非線形光学効果で生じるテラヘルツ波と同期している。二波長光による強度ビートを、光伝導アンテナ素子のゲート光として、テラヘルツ波を照射した際に生じる電流を検出する。この電流を、ゲート光とテラヘルツ波の間の時間遅延の関数として計測すると、振動した振る舞いが得られる。これをフーリエ変換することでほぼ発生するテラヘルツ波にほぼ一致するスペクトルが得られる。昨年度に構築した2つの測定系を使って素子から出力されるテラヘルツ波の計測を試みたが、明瞭なスペ

クトル信号が得られなかった。現状の素子で良好な二波長発振を得るには、マイクロ秒以下のパルス電流で駆動しなければならず、また二波長レーザ光の出力ピーク強度もミリワット程度である。明瞭なテラヘルツ帯の差周波信号を得るには、二波長レーザ光の出力強度を高めるための素子構造の改良が必要で、また、ロックイン検出する際の変調方法やテラヘルツ信号の集光系等といった測定手法の見直しも必要と考えている

結合共振器を使ってテラヘルツ光発生素子を実現するには、上下の共振器層で異なる符号の二次非線形感受率とすることが望ましい。閃亜鉛鉱型の結晶構造をとる GaAs 系ヘテロ薄膜で有限の二次非線形感受率を得るには、反転対称性の破れた面方位の基板を用いる必要がある、薄膜の途中でその符号を反転するには、結晶構造を 180 度反転させなければならない。高指数(113)B 基板上的 GaAs 薄膜の分子線エピタキシー (MBE) 成長の途中で、IV 族である Ge を中間層として挿入することで副格子の配列交換がおこり、Ge 層を境に GaAs の成長表面が(113)A 面となる、すなわち、結晶構造が 180 度反転することを昨年度に見出した。さらに、GaAs/Ge/GaAs 構造を導入することでエピタキシャル成長だけで分極反転型の結合共振器薄膜を(113)B 基板上に作製できることも示した。この分極反転技術は、従来に行ってきた 2 枚のエピタキシャルウエハの貼り合わせによる手法よりも簡便で画期的である。一方、全く同じ構造を同じシーケンスで(113)A 基板に MBE 成長した場合には、副格子の配列交換はおこらない。これは、Ge (113)面上に GaAs を MBE 成長すると必ず(113)A 面が現れることを意味しており、As-As 界面の形成によるアンチフェーズドメインである(113)B ドメインの自己消滅で説明できる。本年は、AlAs 層の途中で Ge 層を挿入した場合の副格子交換について調べた。(113)A 及び(113)B GaAs 基板上に GaAs/AlAs/Ge/AlAs/GaAs 構造を MBE 成長した後、フォトリソグラフィによりパターンニングし、硫酸系の異方性エッチャントを使ってメサ形状に加工した。メサ断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) により観察すると、(113)B 基板上では Ge 層の上下で結晶方位が反転せず、(113)A 基板上では反転することが確認できた。これは、GaAs に Ge 層を挿入する場合とは全く逆で、Ge (113)面上に AlAs を MBE 成長すると(113)B 面が現れることを意味する。Al-Al 界面による(113)A ドメインの自己消滅が生じているものと予測される。GaAs/Ge/GaAs 構造と AlAs/Ge/AlAs 構造を使い分けることで、二次非線形分極が周期的に反転した構造の作製が可能になる。周期的分極反転構造を取り入れた結合共振器は、量子もつれ光子対を高効率に生成する機能的薄膜として期待できる。

## 9. 2018年度(平成30年度)の研究成果

## 9. 1. 研究課題

本寄附講座は、高度情報化社会を支える基盤技術としての先端的なナノテクノロジーを基幹にした「モノ作り」技術の研究と教育を担うため、平成18年4月に、フロンティア研究センターナノマテリアルテクノロジー分野として設置された。第1期の設立当初より、ナノスケールの半導体量子構造の作製、半導体量子ナノ構造の特徴的光学応答特性の探求、高効率・超高速な非線形光学応答を使った高機能デバイスへの応用という課題を掲げ、「ナノ半導体」の物性と光・電子デバイスに関する一貫した技術研究を総合的に推進してきた。第2期も先端技術に基づくモノ作りの理念を継続し、研究課題として掲げているのは、「半導体ナノ構造による新機能デバイスの創製」である。具体的なデバイスとして、「通信波長帯超高速全光スイッチ・波長変換素子」、「テラヘルツ光発生素子」、「半導体量子ドットによる新規テラヘルツ波検出素子」を掲げて研究を進めてきた。研究実施の手段としては、これまで同様に分子線エピタキシー法による半導体量子ナノ構造の結晶成長、超短パルスレーザなどを用いた非線形光学応答測定、半導体ナノ構造素子の特性評価を実施している。

近年は主にテラヘルツ光発生素子に関する研究課題に取り組んでいる。半導体多層膜で構成する結合共振器構造に現れる二つの共振器モードのテラヘルツ帯差周波発生を原理とする素子で、p-n 接合への電流注入により室温動作する面発光型の素子であることから「テラヘルツLED」と呼んでいる。素子の実現にあたり、結合共振器への電流注入で二波長発振するエピタキシャル膜構造及びデバイスプロセス技術を確認することを重点課題としている。昨年度、素子の室温での赤外二波長発振に成功し、時間分解測定による二波長発振の同時性の検証等の詳細な素子特性評価を実施した。本年度は、素子特性の向上とテラヘルツ分光計測のための要素技術の構築を課題とした。まず、安定的な二波長発振が期待できる多積層量子ドット活性層について検討した。また、二波長発振の偏波制御と分極反転を同時に実現することが可能な結合共振器薄膜を(113)B ウエハ同士の張り合わせにより作製し、電流注入型の面発光素子を試作した。電流注入で生じるテラヘルツ光をスペクトル計測することを目的として、新たに小型テラヘルツフーリエ分光装置を構築した。テラヘルツ光のコヒーレント検出に利用できるブラッグ反射多層膜(DBR膜)上の低温成長InGaAs薄膜の光伝導特性を評価し、また、フェムト秒レーザ光を使った時間領域分光測定でテラヘルツ光の検出特性を評価した。

また、千葉大学の森田准教授が中心となって進めている研究課題「高強度テラヘルツパルスを利用した半導体中電子スピンの超高速自由制御」では、高品質半導体量子井戸薄膜の作製を担っており、産総研の熊谷主任研究員が中心となって進めている研究課題「超高速キャリア緩和を有するInAs量子ドットのテラヘルツ波検出素子への応用」では、量子ドットの結晶成長とその特性評価を担当している。

## 9. 2. 研究成果の概要

2つの共振器層と3つのブラッグ反射多層膜(DBR膜)で構成する半導体多層膜結合共振器を使って、赤外二波長発振とその差周波発生(DFG)を同一素子内で行ってテラヘルツ光を得る「テラヘルツLED」の研究開発を実施している。この課題は基盤研究(B)「テラヘルツLEDの研究」としてH28年度から本年度(H30)まで科学研究費補助金を受けた。昨年度は、パルス電流注入により波長920nm近傍で室温二波長発振する素子を得ることに成功した。二波長発振の実現には、2つの共振器層の厚さを厳密に制御し、かつ量子井戸の発光波長を共振器モード波長によく一致させる必要があることがわかった。BBO(Beta Barium Borate)結晶を使った和周波発生(SFG)信号測定とストリークカメラを使った時間分解スペクトル測定により二波長発振の同時性も確かめられたが、その時間的重なりは完全には一致していなかった。

活性層には量子井戸を用いてきたが、その利得帯域は狭いため、二つの共振モードに等しく利得を与えることは難しい。また、電子状態の性質から、一方のモードへ選択的にキャリアを引き込んでしまう可能性がある。一方、量子ドット集合体は、サイズ不均一により適度に広い利得帯域をもつが、個々の電子状態は離散的であるため、より安定的な二波長発振が期待できる。これまでに9層のInAs量子ドットを埋め込んだ結合共振器を使って電流注入型の面発光素子を試作したが、利得不足のために室温レーザ発振には至らなかった。本年度は、45層の量子ドットを埋め込んだ結合共振器を作製し、光励起によるレーザ発振を確認した。(001)と(113)Bウエハ基板に分子線エピタキシー(MBE)成長した多層膜を使って結合共振器を作製した。45層の量子ドットは、光学的厚さを8波長とした(001)側の共振器に埋め込んだ。各々のエピウエハは意図的な膜厚傾斜をつけることで、2つの共振器層の差異が光学特性に及ぼす影響を評価できるようにした。2つのエピウエハは、常温表面活性化法により直接接合し、機械研磨と選択ウエットエッチングにより(001)側のGaAs基板を完全に除去した。波長915nmの半導体レーザ(マルチモード、パルス駆動)を励起光源として発光特性を評価したところ、(001)側の共振器が(113)B側よりも相対的に薄い箇所では短波側モードのみが発振し、厚い場合には長波側モードのみ発振した。量子ドットを使った系で室温レーザ発振が確認できたが、二波長発振を実現するにはこの系でも2つの共振器層厚をよく一致させる必要があることがわかった。

2つの共振器層で二次非線形感受率の符号が反転した分極反転型の結合共振器を用いると、DFGの効率を最も高めることができる。分極反転型の構造は、2つの(113)Bエピウエハを直接接合することで実現できる。また、光学利得を与える量子構造を(113)B面上に形成した場合、振動子強度の異方性によって二波長レーザ発振の偏波制御が期待できる。実際に、2つの(113)Bエピウエハを直接接合して結合共振器を作製し、これを使って電流注入型の面発光素子を試作した。共振器層の光学的厚さはいずれも3/2波長とし、2種類の厚さの異なるInGaAs歪多重量子井戸(MQW)を一方の共振器層にのみ挿入した。メサ加工、電極形成等のプロセスを施して試作した素子は、パルス電流注入で室温レーザ発振した。しかし、今回は2つの共振器層厚の若干のずれにより、長波側モードの発振しか得られな



かった。偏波特性を調べたところ、DFGには有利となる[33-2]方向に偏波した直線偏光とほぼ見なせる結果であった。

テラヘルツ光に対応するマイケルソン干渉計と冷却型のGe光伝導検出器を使って小型のフーリエ分光測定系を構築し、素子への電流注入で生じるテラヘルツ光のスペクトル計測を試みた。プローブ針を使った電流注入ではフーリエ分光測定を安定的に行うことが難しいため、自作の試料ホルダに素子をマウントした。素子プロセスを施したウエハを2 mm角のサイズにカットし、二波長発振特性に優れる素子を含むチップをSi高抵抗基板に光学接着剤でサブマウントした。ワイヤボンディングで配線した後、背面側にSi半球レンズを機械的に固定することでテラヘルツ光を計測できるようにした。ビームスプリッタとして高抵抗のGaAs基板あるいはSi基板を用いたマイケルソン干渉計を自作した。試料から生じるテラヘルツ光は、テラヘルツ光にも対応する平凸レンズを使って平行光とし、ビームスプリッタで2つの光路に分けた。各々の光路に配置したAuミラーで反射させ、合流して生じる干渉信号を液体ヘリウム冷却のGe光伝導検出器を使ってロックイン検出した。一方の光路長を機械的な遅延ステージを使って掃引することでインターフェログラムを取得し、これをフーリエ変換することでスペクトルを得た。干渉計はボックス内に収め、窒素雰囲気中での測定ができるようにした。なお、室温動作で高感度の焦電型検出器を新規に導入し、これを使ってもスペクトル計測できるようにした。光チョッパによる変調、あるいは自作パルス電流電源による変調でのロックイン検出でフーリエ分光測定を行ったが、いずれの場合にもDFGによる明瞭なテラヘルツ信号スペクトルを得ることはできなかった。現状素子のDFGによるテラヘルツ信号強度は、観測に十分でないことを示している。DFG信号の観測には二波長光の出力と発振の同時性を高めることが必要で、これには素子の放熱対策と温度制御が重要と考えている。また、共振器層の一致性も大きな影響を与えるため、これを緻密に制御する作製技術の開発も重要である。

テラヘルツLED素子から生じるテラヘルツ光は、時間的コヒーレンシーに優れており、二波長レーザ光の強度ビートと完全に同期している。この二波長ビートをゲート光とする光伝導スイッチを検出に用いれば、テラヘルツ光の振幅と位相の情報を同時に得るコヒーレント検出が可能になる。現在開発中の素子は、波長920 nm近傍で二波長レーザ光を生じる。一般的な低温成長GaAs(LT-GaAs)による光伝導スイッチでは、そのバンドギャップ波長(870 nm)から920 nm近傍のゲート光を用いることは困難である。これまでにDBR膜上のLT-InGaAs MQW薄膜を使って光伝導スイッチ素子の作製を試みている。本年度は、LT-InGaAs MQW薄膜の光伝導特性と試作素子のテラヘルツ光検出特性を評価した。DBR膜上にLT-InGaAs MQWを成長することで、920 nmのゲート光はGaAs基板には侵入せず、試料表面とDBR膜による多重反射で効率よく吸収されるようにしている。ホール素子を作製し、暗条件での伝導特性を評価した。シート抵抗は36.7 M $\Omega$ /sqと比較的高い値が得られ、移動度は $\sim 10$  cm<sup>2</sup>/Vs程度であった。ホール素子の両端に電圧を印加して室温で光電流スペクトルを測定すると、波長920 nm付近で光電流の明瞭なピークを見ることができた。ダイポールアンテナ型の光伝導スイッチを作製し、フェムト秒パルスレーザ装置を用いた時間領

域分光法でテラヘルツ光の検出特性を評価した。電極間ギャップは  $5\ \mu\text{m}$  で、ウエットエッチングによるメサ加工を施すことで暗電流を抑制した。OPO から装置から生じる波長  $1505\ \text{nm}$  のポンプ光（繰り返し周波数は  $80\ \text{MHz}$ ）を高指数(113)B GaAs 基板に照射することでテラヘルツ光を発生させ、作製した素子を使って検出した。今回は、波長  $810\ \text{nm}$  のパルス光を検出のゲート光としている。すべての測定は室温、大気雰囲気中で行った。得られたテラヘルツ光の時間波形とその高速フーリエ変換 (FFT) によるパワースペクトルから、明瞭にテラヘルツ光を検出できていることがわかった。市販の LT-GaAs による光伝導スイッチの測定結果と比較すると、検出の周波数帯域がやや広がっていた。素子に用いた LT-InGaAs MQW 薄膜で超高速のキャリア緩和が実現できていることを示している。

## 10. 2019年度(令和元年度)の研究成果

## 10. 1. 研究課題

本寄附講座は、高度情報化社会を支える基盤技術としての先端的なナノテクノロジーを基幹にした「モノ作り」技術の研究と教育を担うため、平成18年4月に、フロンティア研究センターナノマテリアルテクノロジー分野として設置された。第1期の設立当初より、ナノスケールの半導体量子構造の作製、半導体量子ナノ構造の特徴的光学応答特性の探求、高効率・超高速な非線形光学応答を使った高機能デバイスへの応用という課題を掲げ、「ナノ半導体」の物性と光・電子デバイスに関する一貫した技術研究を総合的に推進してきた。第2期以降も先端技術に基づくモノ作りの理念を継続し、研究課題として掲げているのは、「半導体ナノ構造による新機能デバイスの創製」である。具体的なデバイスとして、「通信波長帯超高速全光スイッチ・波長変換素子」、「テラヘルツ光発生素子」、「半導体量子ドットによる新規テラヘルツ波検出素子」を掲げて研究を進めてきた。研究実施の手段としては、これまで同様に分子線エピタキシー法による半導体量子構造の結晶成長、超短パルスレーザ等を用いた非線形光学応答測定、半導体ナノ構造素子の特性評価を実施している。

近年は、半導体結合共振器を使ったテラヘルツ光発生素子の研究を精力的に取り組んでいる。半導体多層膜で構成する結合共振器構造に現れる二つの共振器モードのテラヘルツ帯差周波発生を原理とする素子で、p-n接合への電流注入により室温動作する面発光型の素子であることから「テラヘルツLED」と呼んでいる。素子の実現にあたり、結合共振器への電流注入で二波長発振するエピタキシャル膜構造及びデバイスプロセス技術を確認することを重点課題としている。これまでに、素子の室温での赤外二波長発振に成功し、時間分解測定による二波長発振の同時性の検証もできたが、分光計測によるテラヘルツ波の検出には至っていない。本年度は、素子の薄膜構造及び電流注入のための素子プロセスを見直すことで素子特性の改善を目指し、テラヘルツ分光計測を高精度に行うための要素技術の向上を課題とした。

結晶内の二次非線形光学効果で生じる波長変換光を高効率に取り出す一つの手法に、周期分極反転構造を用いた疑似位相整合法がある。分極反転は、二次の非線形感受率の符号を反転させることで実現できる。化合物半導体薄膜を使った面発光型の素子を考えると、反転対称性が破れる方位の基板結晶を使って薄膜を形成し、かつ、周期的にその方位が180度空間反転している必要がある。最近、寄附講座で見出したGe薄膜を使った高指数GaAs基板上での副格子交換エピタキシー成長技術を発展させ、エピ成長だけで周期分極反転構造を得ることを目指すとともに、これを使った新しい機能をもつ面発光型の非線形光素子の創出を課題とした。

積層した半導体量子ドットを光伝導アンテナ(PCA)型のテラヘルツ発生及び検出素子に応用する研究も進めている。寄附講座では、歪緩和障壁層に量子ドットを埋め込むことで超高速のキャリア緩和が実現できることを見出している。産総研の熊谷主任研究員との共同研究で、量子ドットの面内光伝導特性の評価及びPCA素子の作製とその特性評価を実施した。また、電子状態を制御した高品質量子ドット超格子を使ったPCA素子に関する共同研究を神戸大学の和田先生の研究グループと取り組み始めた。

## 10. 2. 研究成果の概要

2つの共振器層と3つのブラッグ反射多層膜(DBR膜)で構成する半導体多層膜結合共振器を使って、赤外二波長発振とその差周波発生(DFG)を同一素子内で行ってテラヘルツ光を得る「テラヘルツLED」の研究開発を実施している。この課題は、H28年度からH30年度まで基盤研究(B)「テラヘルツLEDの研究」として、H31年度からは3年間の予定で基盤研究(B)「副格子交換エピタキシーによるテラヘルツLEDの研究」として科学研究費補助金を受けている。これまでに、パルス電流注入により波長920nm近傍で室温二波長発振する素子を得ることに成功した。二波長発振の実現には、2つの共振器層の厚さを厳密に制御し、かつ量子井戸の発光波長を共振器モード波長によく一致させる必要があることがわかった。BBO(Beta Barium Borate)結晶を使った和周波発生信号測定とストリークカメラを使った時間分解スペクトル測定により二波長発振の同時性も確かめられたが、その時間的重なりは完全には一致していなかった。また、自作の小型テラヘルツフーリエ分光装置を使って、電流注入で生じるテラヘルツ光のスペクトル計測を試みたが、明瞭に検出することはできなかった。

これまでの研究で、素子実現を困難とする2つの問題点が明らかとなった。ひとつは、結合共振器薄膜をウエハ接合で形成することによるものである。テラヘルツ光を高効率に取り出すには上下の共振器層で異なる感受率とする必要があり、従来の素子は2つのエピウエハの直接接合により結合共振器薄膜を得ていた。この場合、2つの共振器の厚さを厳密に制御することが難しくなる。現在、Ge薄膜を使った高指数(113)B基板上の副格子交換エピタキシー成長技術を使って本問題を解決しようとしている。この成長技術を使えば、テラヘルツ光の取り出し効率を最大限に高める分極反転型の結合共振器薄膜を一度のエピ成長だけで得ることができる。最近、寄附講座で見出した高指数面上の副格子交換エピタキシー成長技術に関する研究成果については後述する。もう一つの問題点は、素子の放熱特性の悪さにある。これまでの素子は、テラヘルツ光を素子の下部から取り出すことを目論んで、半絶縁基板を用いて上部の共振器に電流注入を行う構造としていた。放熱特性が悪いため、パルス幅の増大とともに出力強度が下がり、連続発振動作ができない。また、ストリークカメラを使った時間分解スペクトル測定では、素子発熱により時間経過とともに長波側モードの強度が強くなる現象がみられた。出力強度を高め、安定的にテラヘルツ光を得るには素子の放熱特性を向上させる必要がある。そこで本年度の研究では、n型基板を用いて下部共振器に電流注入を行う構造を試作した。素子は、導電性のあるn型基板上に形成されるため放熱特性の改善が見込める。ただし、赤外二波長レーザー光、差周波発生によるテラヘルツ光ともに素子上部から取り出すことになる。素子の試作には、これまでに実績のある(001)と(113)Bエピウエハの直接接合で形成した結合共振器薄膜を使った。下部共振層に電流注入を行う構造とするには、二段階のメサエッチングが必要で、一段階目で剥き出しとなった表面に上部p電極をリフトオフプロセスで形成し、裏面にn電極を設けた。電流注入による発光特性を評価したところ、2つの問題点が明らかとなった。一つは、p電極の接触抵抗の素子間でのばらつきである。これは、一段階目のDBR膜のエッチング

の均一性に起因していた。もうひとつの問題は、一段階目のメサと p 電極の隙間で生じる光学損失である。メサはウェットエッチングで形成するが、その際、横方向エッチングによるサイズ縮小を厳密に考慮しておく必要がわかった。現在、マスクパターンを改良して素子プロセスを再実施しているところである。

素子への電流注入で生じるテラヘルツ光のスペクトル検出を目指し、新たに取り扱い容易なパルス駆動電源を自作した。高速 CMOS 2 入力 NAND シュミットトリガーゲートを使って、サブマイクロ秒のパルスをバースト的に発生する発振回路を作製し、npn バイポーラトランジスタを使ったエミッタ接地の増幅回路により 500 mA 程度まで素子をパルス電流駆動できるようにした。パルス幅およびパルスディレイ値は、ダイオードと可変抵抗により独立に変化できるようにし、また、バースト周期は~5 Hz と~250 Hz の2つの値を切り替えられるようにした。テラヘルツ光強度は、ロックインアンプを使って高精度に検出しようとしているが、変調周波数は用いる検出器の応答特性によって決めなければならない。千葉大の森田先生の協力で利用している冷却型の Ge 光伝導検出器は、液体ヘリウムによる冷却が必要ではあるが比較的応答特性がよく、~1 kHz まで変調周波数を上げることができる。一方、寄附講座に導入した安価で取り扱い容易な焦電型検出器は、非冷却で動作はするが応答特性が悪く、~5 Hz で変調しなければならない。どちらの検出器でも対応できるように、パルス駆動電源のバースト周期を2つの値で簡単に切り替えることができるようにした。また、駆動電流は、ポテンショメータのダイヤルにより調整できるが、パルスモータでダイヤル調整することで汎用 PC での制御を可能にした。昨年度、テラヘルツ光に対応するマイケルソン干渉計を使って小型のテラヘルツフーリエ分光装置を自作した。本装置について、ヒータ線加熱による熱輻射スペクトルを詳細に計測することで装置の感度特性を明らかにするとともに、素子の差周波発生が計測するインターフェログラムにどのように反映されるかをシミュレートした。プランクの輻射公式を使って熱輻射のスペクトルを考え、差周波発生によるテラヘルツスペクトルの形状は二波長レーザ発振のスペクトルで決定づけられるとすると、差周波発生によるテラヘルツ光強度が熱輻射強度の 20%程度あれば十分にスペクトル検出できると予測できた。

III-V 族化合物半導体の副格子交換エピタキシーは、IV 族元素である Ge あるいは Si 極薄膜を挿入することで、III 族原子と V 族原子が入れ替わってエピタキシャル成長する手法であり、(001)や(111)の低指数面基板上での報告例がある。近年、寄附講座では面直入射で大きな二次非線形光学効果が得られる高指数(113)面上で副格子交換エピタキシー成長に成功した。固体ソースの分子線エピタキシー (MBE) 法により GaAs/Ge/GaAs 構造を(113)B および(113)A GaAs 基板上に成長した。Ge 層の厚さは 3 nm または 7 nm に設定した。成長後、硫酸系の異方性エッチャントによりメサ形状に加工し、断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察することで副格子の配列交換を確認した。[33-2]方向に沿ったストライプパターンについて断面 SEM 観察を行うと、(113)B 基板上に成長した場合には Ge 層より下の GaAs 層は順メサの構造がみられるのに対し、Ge 層より上では逆メサの構造がみられた。Ge 層を境に

副格子の配列交換が生じていることを意味する。この結果は、Ge層の厚さが3 nm、7 nmのいずれの場合でも全く同じであり、ウエハ全面で均一に副格子の配列交換が生じていることが確認できた。走査型透過電子顕微鏡 (STEM) で GaAs/Ge/GaAs 界面を観察すると、界面近傍で欠陥等はみられず、良好なヘテロ界面が形成されていることがわかった。原子分解能 EDX (エネルギー分散型 X 線分析) で元素マップを行うと、Ge層を境に Ga 原子と As 原子の配列が入れ替わっていることを明瞭に観察することができた。一方、(113)A 基板上の GaAs/Ge/GaAs 構造について異方性エッチングによるメサ形状の断面観察を行うと、Ge層上下の GaAs はともに逆メサの形状であった。(113)A 基板の場合、本成長シーケンスでは副格子の配列交換が起こらないことがわかった。

次に AlAs/Ge/AlAs 構造について同様の実験を行うと興味深い結果が得られた。厚さ 3 nm の Ge 層の両側に 5 nm の AlAs 挿入した試料を MBE 法により作製し、異方性エッチャントによるメサ形状の断面 SEM 観察を行った。[33-2]方向に沿ったストライプパターンを使ってメサを形成したが、側壁に AlAs が現れると横方向へのエッチングが極端に進んでメサ形状による面方位の判定が困難であった。このため、AlAs 層までをエッチングした後、2 度目のリソグラフィで側壁を保護してから下部の GaAs をエッチングした。(113)B 基板に成長した試料では、Ge 層の上下でともに順メサの構造がみられたのに対し、(113)A 基板上の試料では、Ge 層より上では順メサ、下では逆メサの構造がみられた。すなわち、AlAs/Ge/AlAs 構造の場合、(113)B 基板上では副格子の配列交換が起こらず、(113)A 基板上では起こる。上述した GaAs/Ge/GaAs 構造とは全く逆の結果である。これまでの結果をまとめると、GaAs 基板結晶が(113)A 面、(113)B 面のいずれであっても、GaAs/Ge/GaAs 構造を成長すると常に(113)A 面が現れ、AlAs/Ge/AlAs 構造では(113)B 面が現れることを示している。下地によらないこの振る舞いは、アンチフェーズドメイン (APD) の自己消滅モデルを使うと以下のように説明できる。最初に GaAs-on-Ge を考える。Ge 堆積後に成長する GaAs の初期には、APD となる(113)B 面と(113)A 面のドメインが混在する。その境界が基板の結晶方位から傾いた(111)B 面上の As-As 結合で構成される場合、成長が進むにつれて(113)B 面のドメインが自己消滅する。一方、AlAs-on-Ge の場合、(111)A 面上の Al-Al 結合でドメイン境界を構成していると考えれば、成長に伴って(113)A ドメインが自己消滅する。(113)面は、(11n)面の中で最もステップ密度の高い面であるため、ドメイン自体が極めて小さく、極薄い GaAs あるいは AlAs の成長で APD は消滅していると考えられる。

副格子交換による結晶方位の空間反転は、二次非線形感受率の符号反転をもたらす。GaAs/Ge/GaAs 構造と AlAs/Ge/AlAs 構造を交互に利用すると、エピ成長だけで周期分極反転構造を作製することが可能になる。実際、(113)B GaAs 基板上に GaAs/Ge/GaAs 構造を成長した後に AlAs/Ge/AlAs 構造を成長すると、結晶方位が下から順に(113)B, (113)A, (113)B となるが、試料の異方性エッチングによるメサ形状の断面 SEM 観察により確認できた。3つの DBR 膜と2つの共振器層で構成する半導体結合共振器の2つの共振モードを利用すれば、二次の非線形光学過程であるパラメトリック下方変換 (PDC) により1つの光子から量子的にもつれた光子対を生成することができると考えられる。その変換効率は、疑似位

相整合条件を満たすような周期分極反転構造を取り入れることで飛躍的に高められるため、量子もつれ光子対を高効率に生成する面発光デバイスに応用できる。寄附講座で見出した高指数面上の副格子交換エピタキシー成長技術を使うことで、新たな機能を提供する光半導体材料の開拓が期待される。

寄附講座では、格子歪が緩和した InGaAs 薄膜上に InAs 量子ドットを自己形成させ、これを下地と同じく歪緩和した InGaAs 薄膜で埋め込む成長技術を培ってきた。この歪緩和 InGaAs 障壁層に埋め込んだ InAs 量子ドット集合体は、光通信帯である波長 1.5  $\mu\text{m}$  近傍に共鳴準位を持ち、格子歪緩和で生じる欠陥準位のため超高速のキャリア緩和が実現できる。フェムト秒のパルスレーザー光によるポンプ・プローブ法を用いて、波長 1.5  $\mu\text{m}$  で光励起したキャリアの寿命を測定すると、18 ps の非常に短い値が得られ、さらに Er を添加した量子ドット試料では、キャリア寿命が 1.6 ps と極めて高速な応答を示すことがわかった。この歪緩和 InGaAs 障壁層に埋め込んだ InAs 量子ドットを DBR 膜で構成する微小光共振器に導入した超高速動作の面型光カーゲートスイッチ素子を実証した。一方、半導体の超高速光伝導特性を活かした光伝導アンテナ (PCA) 素子がテラヘルツ光の発生・検出によく用いられるようになった。PCA 素子は室温動作が可能で、フェムト秒パルスレーザー光照射による広帯域テラヘルツパルスの発生と光ゲートサンプリングによるそのコヒーレント検出が広く普及している。しかし、ホトニクス分野で多用される光通信帯の長波長 (1.3 $\mu\text{m}$  あるいは 1.5  $\mu\text{m}$ ) で動作する PCA 素子は、発生・検出の両面でその性能が不十分であり、用いる半導体材料の見直しが喫緊の課題である。寄附講座で開発してきた歪 InGaAs 障壁層中の自己形成 InAs 量子ドット集合体は、光通信帯の波長域で超高速の応答を示し、また、1.5  $\mu\text{m}$  の CW レーザ光照射で生じる光電流値から見積もったキャリア移動度が 462  $\text{cm}^2/\text{Vs}$  と比較的大きな値であるため、新たな PCA 材料として有望である。

量子ドットの PCA 素子への応用を考えた場合、その面内光伝導特性は重要である。ここでは、Er を添加していない量子ドット試料について面内光電流スペクトルの温度依存性を評価した。厚さが 20 nm の歪緩和 InGaAs 層をスペーサとして 20 層の InAs 量子ドットを積層した構造を MBE 法により作製し、電極間距離が 4 mm である 2 つのオーミック電極を金属蒸着により設けた。電極間に 5 V 程度のバイアスを印加し、ハロゲンランプを分光して照射した時に生じる光電流をロックイン検出してスペクトルを得た。試料は、クライオスタットで冷却し、4-292 K でスペクトルの温度依存性を測定した。すべての温度領域で、波長 1.4  $\mu\text{m}$  付近にピーク構造をもつ極めてブロードな光電流スペクトルが得られた。光電流強度は、温度の上昇とともに増加する傾向がみられた。159 K 以上の高温領域で、1.2-1.6  $\mu\text{m}$  の各波長における光電流強度の活性化エネルギーは 48-62 meV で、その値は長波長であるほど大きな活性化エネルギーを示した。サイズの大きな量子ドットを励起するほど、光伝導に寄与するための障壁が大きいことを意味する。一方、159 K 以下の低温領域では、活性化エネルギーの波長依存性は、ほとんど見られなかった。この温度領域での光電流の起源は、オージェ過程によるものと推察される。



Er を添加した積層量子ドットを使って PCA 素子を試作し、波長  $1.5 \mu\text{m}$  のフェムト秒パルスレーザ光照射で生じるテラヘルツ光のゲートサンプリングによる検出を試みた。上述した試料と同じく、厚さが  $20 \text{ nm}$  の歪緩和 InGaAs 層をスペーサとして 20 層の InAs 量子ドットを積層した構造である。各々の InAs 量子ドット層を形成する際に Er を照射して直接添加を行った。ホトリソグラフィと Ti/Au 金属薄膜の蒸着によるリフトオフプロセスでダイポール型のアンテナ構造を形成し、ウエットエッチングによるメサ加工を施すことで暗電流を抑制した。PCA 素子の電極間ギャップは  $5 \mu\text{m}$  である。電極間に  $5 \text{ V}$  の直流電圧を印加し、OPO 装置から生じる波長  $1.5 \mu\text{m}$  のポンプ光（繰り返し周波数は  $80 \text{ MHz}$ ）を照射することでテラヘルツ光パルスが発生させた。検出には、市販の低温成長 GaAs による PCA 素子を用いた。サンプリング検出に用いるゲート光パルスは、OPO 装置に入射する  $0.8 \mu\text{m}$  パルス光を分岐して得た。時間領域分光のためのゲート光に対するポンプ光の時間遅延は、機械式ステージを使ったポンプ光路長の掃引で導入し、ポンプ光路に光チョッパを挿入することで検出素子に生じる光電流をロックイン検出した。微弱ではあったが、テラヘルツ光の時間波形を明瞭に得ることができた。そのフーリエスペクトルから、試作素子で発生したテラヘルツ光の周波数帯域は  $2.5 \text{ THz}$  程度であった。積層量子ドットの薄膜構造を見直すことで素子特性の改善が見込めると考えている。

歪緩和層のない高品質な InAs 量子ドット超格子に対して、その薄膜構造により電子状態を高精度に制御することができれば、光励起キャリアのミニバンド間遷移による短寿命化と高量子効率の同時実現する方法を得る可能性がある。神戸大学の和田先生のグループとの共同研究で、高品質量子ドット超格子を用いた PCA 素子の試作に取り組んだ。高品質量子ドット超格子は、神戸大学の MBE 装置で結晶成長したもので、厚さ  $50 \text{ nm}$  の GaAs 層をスペーサ層として 2 分子層の InAs の堆積で形成された自己形成量子ドットを 20 層積層した構造である。上述した PCA 素子と全く同じプロセスを適用することで、ダイポール型の PCA 素子を試作した。メサ加工を施した試作 PCA 素子の暗電流は、市販の低温成長 GaAs 薄膜による PCA 素子と遜色がないほど小さな値であった。今後、試作した PCA 素子のテラヘルツ光発生、検出特性を評価するとともに、PCA 素子プロセスで同時に作製されたホール素子を使って面内光伝導特性を評価する予定である。

## 11. 2020年度(令和2年度)の研究成果

## 11. 1. 研究課題

本寄附講座は、高度情報化社会を支える基盤技術としての先端的なナノテクノロジーを基幹にした「モノ作り」技術の研究と教育を担うため、平成18年4月に、フロンティア研究センターナノマテリアルテクノロジー分野として設置された。第1期の設立当初より、ナノスケールの半導体量子構造の作製、半導体量子ナノ構造の特徴的光学応答特性の探求、高効率・超高速な非線形光学応答を使った高機能デバイスへの応用という課題を掲げ、「ナノ半導体」の物性と光・電子デバイスに関する一貫した技術研究を総合的に推進してきた。第2期以降も先端技術に基づくモノ作りの理念を継続し、研究課題として掲げているのは、「半導体ナノ構造による新機能デバイスの創製」である。具体的なデバイスとして、「通信波長帯超高速全光スイッチ・波長変換素子」、「テラヘルツ光発生素子」、「半導体量子ドットによる新規テラヘルツ波検出素子」を掲げて研究を進めてきた。研究実施の手段としては、これまで同様に分子線エピタキシー法による半導体量子ナノ構造の結晶成長、超短パルスレーザなどを用いた非線形光学応答測定、半導体ナノ構造素子の特性評価を実施している。

近年は、半導体結合共振器を使ったテラヘルツ光発生素子の研究を精力的に取り組んでいる。半導体多層膜で構成する結合共振器構造に現れる二つの共振器モードのテラヘルツ帯差周波発生を原理とする素子で、p-n接合への電流注入により室温動作する面発光型の素子であることから「テラヘルツLED」と呼んでいる。素子の実現にあたり、結合共振器への電流注入で二波長発振するエピタキシャル膜構造及びデバイスプロセス技術を確立することを重点課題としている。これまでに、素子の室温での赤外二波長発振に成功し、時間分解測定による二波長発振の同時性の検証もできたが、分光計測によるテラヘルツ波の検出には至っていない。本年度は、素子の放熱特性の大幅な改善が期待できる基板側共振層へ電流注入を行う素子について、プロセス改善による素子特性の向上を課題とした。

積層した半導体量子ドットを光伝導アンテナ(PCA)型のテラヘルツ発生及び検出素子に応用する研究も進めている。寄附講座では、歪緩和障壁層に量子ドットを埋め込むことで超高速のキャリア緩和が実現できることを見出している。これまでに、産総研の熊谷主任研究員との共同研究で、量子ドットの面内光伝導特性の評価及びPCA素子の作製とその特性評価を実施してきた。また、昨年度より、電子状態を制御した高品質量子ドット超格子を使ったPCA素子に関する共同研究を神戸大学の和田先生の研究グループと取り組み始めた。今年度は、量子ドット超格子の光学特性、光伝導特性の詳細を明らかにするとともに、試作したPCA素子の通信波長帯レーザ照射下での伝導特性、テラヘルツ発生特性を明らかにすることを課題とした。