

# MOVPE 法で作製した InAs/GaAsSb 超格子の 中赤外域の光学特性の周期厚依存性

井上 裕貴<sup>a)</sup>・若城 玲亮<sup>a)</sup>・永濱 龍也<sup>b)</sup>・高橋 翔<sup>b)</sup>・荒井 昌和<sup>c)</sup>・前田 幸治<sup>d)</sup>

## Thickness of Period Dependence in Optical Characterization in Mid-Infrared Region in InAs / GaAsSb Superlattice Grown by MOVPE

Yuki INOUE, Ryosuke WAKAKI, Tatsuya NAGAHAMA, Kakeru TAKAHASHI,  
Masakazu ARAI, Kouji MAEDA

### Abstract

The lattice matched InAs / GaAsSb superlattices (SLs) with periodical layer thicknesses of 5-9 nm were fabricated on n-InAs substrates by metal organic vapor epitaxy (MOVPE) toward mid-infrared opto devices. The SLs had good lattice matching to the substrate. These SLs were successfully demonstrated a photoluminescence peak centered at 3.3 to 5  $\mu\text{m}$  depended on layer thickness. The emission wavelength could be controlled by the layer thickness of SLs. The SLs with clad layer emitted in the mid-infrared region at room temperature.

**Keywords:** MOVPE, InAs/GaAsSb, Superlattice, Mid-Infrared, Photoluminescence

### 1. はじめに

波長 2~10  $\mu\text{m}$  の中赤外波長領域は分子特有の吸収遷移を持ち、赤外吸収分光法による分子構造の解析などに利用されてきた。特定の物質のみに選択的に光を吸収させることができるので、大気分析や医療分野での呼気中のガス成分の検出などの微量物質の瞬時測定や連続的監視への応用が期待されている<sup>1)</sup>。

しかし、中赤外域で発振可能なレーザーの種類が限られており、応用側の求める波長での高出力の狭帯域光源がないことが多い<sup>2)</sup>。そこで中赤外の光学素子として、InAs/GaAsSb 超格子が注目されている。この材料は暗電流が低いことに加え<sup>3)</sup>、超格子の周期厚を 10 nm 程度まで薄くすることでミニバンドを形成し、母材よりも狭いバンドギャップでさえ得ることができるといった利点を持つ。

この研究では、量産性に優れた有機金属気相成長(MOVPE)法を用いて、中赤外領域の高性能なレーザーや受光素子の実現を目標としている。本研究では n-InAs 基板上に長周期を変化させて成長させたいいくつかの InAs/GaAsSb のタイプ II 型超格子について、格子不整合度を X 線回折法(XRD)で、発光特性をフォトルミネッセンス(PL)法を用いて評価を行った。

### 2. 実験

#### 2.1 試料作製条件

試料は、MOVPE 法を用いて、n-InAs 基板上に AlGaAsSb クラッド層 500 nm を成長後に InAs と GaAs<sub>x</sub>Sb<sub>1-x</sub> を 30 組積層した試料とクラッド層のない 2 種類用いた。超格子の周期厚は 5~9 nm になるように制御した。Fig.1 にクラッド層ありの InAs/GaAs<sub>x</sub>Sb<sub>1-x</sub> 超格子試料の構造図を示す。GaAsSb 層は AsH<sub>3</sub> を 0.2 sccm 加えて供給することで成膜した。As 組成は X 線回折法(XRD)より  $x=0.055$  と見積もった。

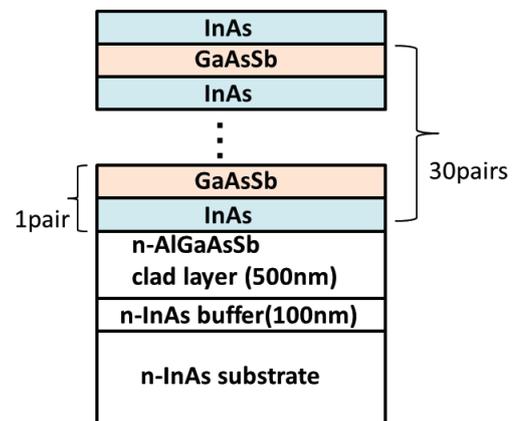


Fig.1 Structure of the superlattice sample with clad layer

a) 工学専攻大学院生  
b) 電子物理工学科学生  
c) 電子物理工学科准教授  
d) 電子物理工学科教授

### 2.2 実験方法

光学特性評価はPL測定にて行った。本研究で用いたPL測定装置の概略図をFig.2に示す。光源はNd:YAGレーザー(波長532 nm)を用いた。レーザーから放出された光は周波数210 Hz前後に設定したチョッパーで断続され、レーザー径を絞るための集光レンズを通し、試料に照射される。試料はクライオスタット(岩谷瓦斯、冷凍機：D105、コンプレッサ：CA112)内に設置されており、温度は20 Kから300 Kまで変化させた。クライオスタットの窓部はCaF<sub>2</sub>を使用した。PL発光は、2つの平凸レンズ(CaF<sub>2</sub>、焦点距離f=7.5, 10 cm)で集光されて分光器(CT-10、f=10 cm)へ入射させた。ブレイズ波長3 μm, 150本の回折格子を用いた。分光器の入出射スリット幅はともに1 mm、もしくは3 mmに開き測定した。分光器の後にはレーザーからの散乱光や高次回折光を除くための高次数カットフィルタが設置されている。赤外光は、液体窒素冷却InSb検出器で検出した。

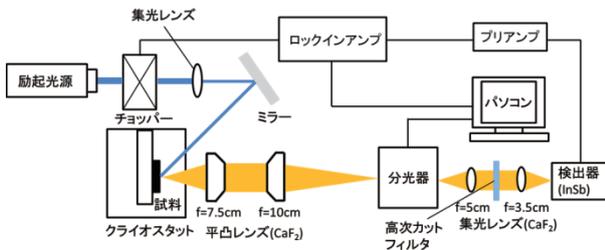


Fig.2 Schematic drawing of mid-infrared PL experimental apparatus

### 3. 結果と考察

#### 3.1 格子不整合度

Fig. 3に周期厚7 nmのクラッド層ありのInAs/GaAsSb超格子試料のXRD測定結果を示す。強度が一番高いピークがInAs基板、InAsピークの低角側にあるものが超格子(GaAsSb層)からのピーク、AlGaAsSbクラッド層のピークは両ピークに埋まっていると思われる。グラフの高角

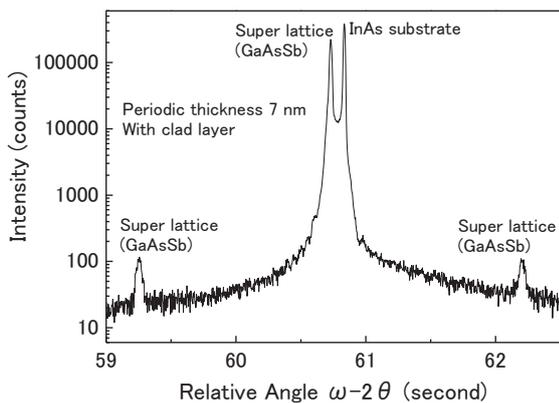


Fig.3 XRD measurement result of the superlattice of 7 nm periodic thickness with a clad layer

側と低角側に2個ある強度の低いピークは超格子(GaAsSb)のサテライトピークである。

ブラッグの条件  $2d \sin \theta = n\lambda$  から本研究で作製、評価した全試料の基板と超格子の格子不整合度を求めた結果、1つの試料を除き0.4%以内で格子整合していた。

#### 3.2 クラッド層あり超格子試料の周期厚依存性

Fig.4に22~25 Kにおける周期厚5~9 nmのクラッド層ありのInAs/GaAsSb超格子試料のPLスペクトルを示す。0.25~0.38 eV(3.3~4.9 μm)の間でPLピークが見られた。また、周期厚が厚くなるにつれてピークが低エネルギー側へ移動する傾向が見られた。

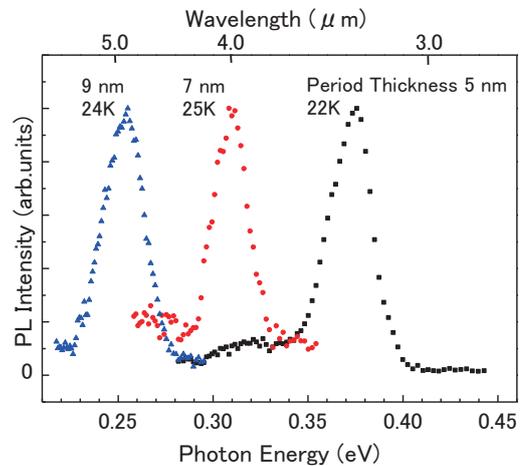


Fig.4 PL spectra (22 to 25 K) of the superlattice samples with periodic thickness of 5 to 9 nm with a clad layer

Fig.5に各周期厚のPL測定によるピークエネルギーと有限の単一量子井戸内ポテンシャルの計算値の比較結果を示す。ただし伝導帯と価電子帯の重なりは140 meVとした<sup>4)</sup>。両者の傾向と値が類似していることから試料のPLは超格子由来の発光であると考えられる。今後さらに超格子のミニバンドからの発光波長の計算値と比較してみる必要がある。また、超格子の周期厚を変えることによって発光エネルギーを制御できることが認められた。

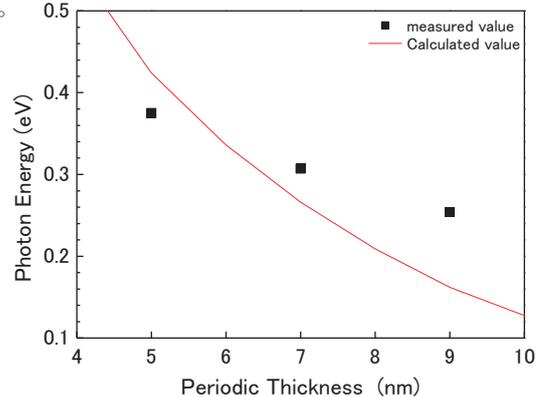


Fig.5 Comparison of PL peak energy between observed value and calculated value in finite quantum well potential model

超格子試料の PL スペクトルの 25~300 K における PL 温度依存性を示す。約 0.29 eV(4.2  $\mu$ m)に見られる凹みは CO<sub>2</sub>の吸収によるものだと考えられる。ピーク強度は温度上昇に伴い上昇後、減少し複雑な動きが見られ、90 K 以上では単調に減少した。また、発光は 300 K まで見られた。室温での発光が見られたので、常温での発光受光素子への応用が期待できる。

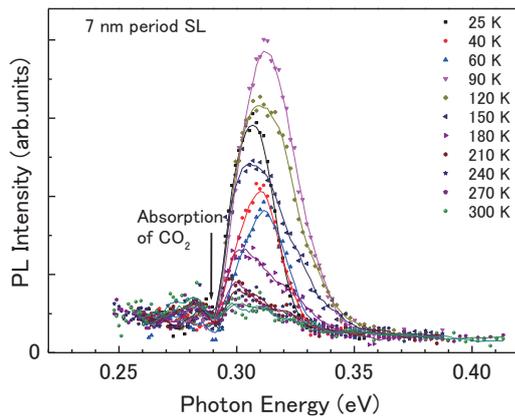


Fig.6 PL spectra at 25 to 300 K observed from the superlattice with periodic thickness of 7 nm with clad layer

### 3.4 PL ピークエネルギーの温度依存性

Fig.7 に周期厚 5~9 nm のクラッド層あり InAs/GaAsSb 超格子試料の PL ピークエネルギーの 22~300 K における

温度依存性と、比較のための InAs バルクの Varshni 式によるバンドギャップの変化を y 軸方向に平行移動したものを示す。ピークエネルギーはどの試料も 22~90 K にかけて増加した。いわゆる S シェイプと呼ばれている変化<sup>5)</sup>が見られた。これは超格子の発光メカニズムが複数

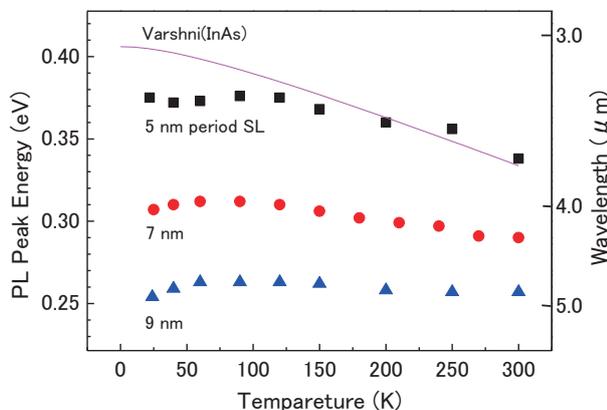


Fig.7 Temperature dependence of PL peak energy of superlattice sample with clad layer

あるためだと考えられている。低温側で Varshni の曲線より低いエネルギー値で発光した原因として、組成や層厚幅の不均一によりミニバンドより低いエネルギーに電子が局在化し、その電子から発光が見られたからと考えられる。90 K 以上では熱により局在化が解け、ミニバンドに電子が存在し、Varshni 式に近い温度変化が見られたと考えられる。

### 3.5 超格子試料のクラッド層有無の比較

Fig.8 に周期厚 9 nm のクラッド層ありとなしの超格子の PL ピークエネルギーの 22~300 K における温度依存性の比較を示す。ピークエネルギーの温度依存はどちらも S シェイプを示しており、両試料で似たような挙動が見られた。クラッド層ありの試料の方がわずかに(約 0.01 eV)高エネルギー側で発光が見られた。

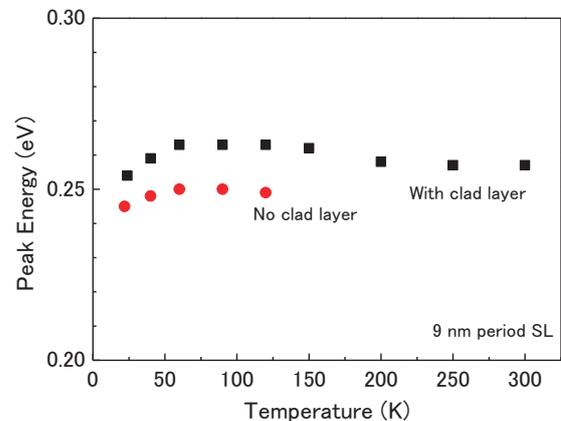


Fig.8 Temperature dependence of PL peak energy observed from periodic thickness 9 nm superlattice sample with and without clad layer

Fig.9 に同じく周期厚 9 nm のクラッド層ありとなしの超格子の PL ピーク強度の 22~300 K における温度依存性の比較を示す。クラッド層ありの試料は 24~60 K にかけて減少し、60~150 K にかけて増加後、150 K 以上

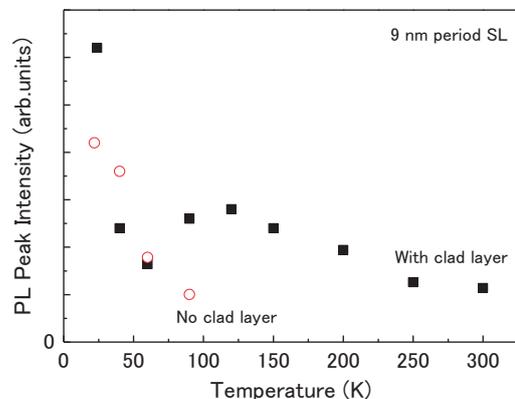


Fig.9 Temperature dependence of PL peak intensity observed from superlattice with periodic thickness 9 nm with and without clad layer

では上昇するにしたがって強度が単調減少した。また、クラッド層ありの超格子試料は室温まで発光したが、クラッド層なしの試料は90 Kまでしか発光しなかった。

Fig.8 と9 より、これらの発光は InAs のバンドギャップ(0.414 eV)より小さいので明らかに超格子からの発光と思われるが、クラッド層の有無で発光エネルギーにわずかな差が出た原因として、クラッド層によって超格子に掛かる応力が異なったことなどが考えられる。

また、クラッド層ありの試料のみが室温まで発光した原因として、クラッド層を挿入したことにより、InAs 基板より大きな屈折率差( $\Delta n=0.039$ )が生じ、励起光、PL 光ともに反射が増加する影響と、クラッド層のバンドギャップが大きいのでキャリアが基板側へ拡散することを抑える効果により、クラッド層ありの試料の方が発光強度が強くなったためだと考えられる。

90 K 以下での低温での温度上昇に伴う急激な PL 強度の減少は、局在化した電子が熱的に励起されて減少することを示していると思われるが、まだ詳細は分かっていない。

#### 4. 結論

MOVPE 法を用いて、中赤外領域でのレーザーや受光素子の実現を目的とし、n-InAs 基板上に格子整合した InAs/GaAsSb 超格子を作製し、光学的評価を行った。

PL 測定による評価では約 0.25~0.38 eV (3.3~4.9  $\mu\text{m}$ ) で室温まで発光が見られた。また、周期厚を変化させたことで発光波長が計算値と類似の変化することから、PL は超格子からの発光であり、発光波長を制御できることが確認できた。超格子層の下地のクラッド層の有無の比較では、クラッド層ありの試料では室温まで発光が見られた。理由としてクラッド層と超格子層の屈折率の差による反射率の増加や、キャリアの基板への拡散が抑えられたことが考えられる。

#### 参考文献

- 1) 山口滋、佐藤淳一、和家功一、光学/応用物理学会分科会日本光学会 光学, 36, 5 号, p264 (2007).
- 2) 粟津邦男, 日本光学会, 44, 2, p49 (2015).
- 3) 有方卓、京野考史、秋田勝史、町長賢一、稲田博史、猪口康博, SEI テクニカルレビュー・189, p84 (2016).
- 4) I. Vurgaftman, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan :Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys, J. Appl. Phys. 89, 5815-5875 (2001).
- 5) E.H. Steenbergen, J.A.Massengale, G.Ariyawansa, Y.-H.Zhang :Evidence of carrier localization in photoluminescence spectroscopy studies of mid-

wavelength infrared InAs/InAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> type-II superlattices, Journal of Luminescence, 178, 451-456 (2016).