

(第3号様式)(Form No. 3)

## 学位論文要旨 Dissertation Summary

氏名 (Name) 松田 晃賢

論文名: GaAsBi半導体ヘテロ構造ナノワイヤの分子線エピタキシャル成長と特性評価  
(Dissertation Title) Molecular beam epitaxial growth and characterization of GaAsBi heterostructure semiconductor nanowires

半導体ナノワイヤは、ナノ構造の次世代電子デバイス実現が期待され、大きな関心を集めている。ナノワイヤは、数100nm以下の直径を持つ一次元構造体でありながら、電荷輸送、発光媒質および光導波路として利用可能であることから、ナノエレクトロニクスおよびナノフォトニクスの実装に向けた革新的構成材料となり得る。III-V族化合物半導体をナノワイヤに導入すると、電子バンド構造を広い範囲で制御できる。発展したエピタキシャル成長技術を用い、所望の元素構成で組成制御された多層ナノワイヤを作製することができれば、詳細に設計された電子・光を操る機能を備えた材料実現を可能にする。さらに、ナノワイヤ構造が持つ特有の大きな表面对体積比により、III-V族化合物半導体とSiの格子定数と熱膨張係数の間の大きな不整合を克服することで、III-V族化合物半導体の優れた光機能をSiに統合することも可能である。例えば、近赤外線領域で、Si上でのIII-Vナノワイヤがレーザーやセンサー、太陽電池として優れた動作を示すことも既の実証されている。これらは、光ファイバー通信、画像認識、太陽光発電、医療応用などの分野においても、半導体ナノワイヤが革新的デバイスをもたらす可能性を示すものである。従来代表的なIII-V族半導体であるGaAsを用いた光デバイスは、オージェ過程による非輻射再結合の問題を有している。その中で、GaAsに少量のBiを添加すると、大きなスピン軌道分裂によるオージェ再結合を抑制するとともに、バンドギャップを大幅に減少させる。この特性から、希薄ビスマス混晶GaAsBiは、エネルギー効率に優れた近赤外域の新発光・受光材料として期待されている。一方、原子番号の大きく異なるBiをGaAsに導入することによって発生する大きな格子不整合は、高品質のGaAsBi成長を困難なものとしている。その中でGaAsBi ナノワイヤは、特徴的な成長機構および上述の表面体積比から、格子不整合や非混和性による成長の困難を克服できる可能性がある。薄膜と比較してナノワイヤヘテロ構造は結晶が破壊するまでの臨界膜厚が大きく、高品質なGaAs/GaAsBiヘテロ構造を実現する可能性がある。従来、Bi含有GaAsナノワイヤの成長に関する

報告は非常に限られている。本研究では、世界に先駆けてGaAsBiナノワイヤの分子線エピタキシャル成長に取り組み、その結晶成長を確立するとともに、その特性について明らかにした。得られた成果を以下に挙げる。

はじめに、Si(111)面方位基板上的GaAsBi/GaAsヘテロ構造ナノワイヤの歪み状態について検討した。Si(111)基板上で良好な側壁形状を持つGaAs/GaAsBiコア-シェルヘテロ構造ナノワイヤを準備し、その微小領域の歪みについて調べた。シンクロトロン放射光を用いたX線マイクロビーム回折を用い、GaAs/GaAsBiヘテロ界面の局所的な歪み状態を評価した。その結果、GaAsBiシェルは、垂直および横方向の格子定数がおおよそ合致する値を示した。そのGaAsBi格子定数から、Bi濃度が約1.3%であることを見出した。対照的に、内部GaAsコアは二軸の歪み変形を示し、GaAsBiシェルと同じ伸長した垂直格子定数を示した。これらの結果から、コア-シェル型ナノワイヤでは垂直方向の格子定数が合致するようにコヒーレント成長が進行することが判明した。

次に、Biによって引き起こされる構造変化に焦点を当て、Si(111)基板上のGaAs/GaAsBiコア-シェル多層ナノワイヤの成長メカニズムと特徴を調べた。上述のように、ある濃度までのBi導入ではナノワイヤの形状は直線的な構造が保持される。一方、結晶に取り込まれる許容量以上のBiを成長時に供給すると、成長表面にBiが残存し、ナノワイヤに劇的な構造変化を引き起こした。また、ナノワイヤ中に積層欠陥を発生させた。特徴的な構造変形は、六角形の断面形状を持つナノワイヤの核頂点を先鋭化させ、六角星状に変化させた。また、成長表面に残存したBi液滴は、気相-液相-固相成長の触媒として作用し、ナノワイヤ側壁に枝を発生させた。その枝の分岐方向は、 $\langle 112 \rangle$ 方向で、これはナノワイヤコアの中心から頂点への方向に対応する。また、GaAsホストへのBiの導入は、(112)B面で促進され、(112)A面ではその導入が抑制される。双晶を隔ててこれらの成長面が共存する領域では、双晶を界面とした急峻なGaAs/GaAsBi/GaAsヘテロ構造が形成されており、この部位は量子閉じ込め構造に応用できる可能性がある。これらの特徴的な、GaAsBi ナノワイヤの変形、歪み、および分岐を制御できれば、複雑な高次元構造を持つ機能性量子構造結晶が得られる可能性がある。また、GaAs/GaAsBi/GaAsコア-マルチシェルヘテロ構造ナノワイヤの双晶欠陥の存在によって引き起こされる特徴的なBi偏析とこれが形成する微細構造について調べた。GaAsBiシェルの双晶欠陥界面では、周辺部位と比較してBiが多く凝集する偏析が観察された。この現象は、単一原子層界面である双晶界面の周囲数原子層のみに局在し、水平方向に広がったBi凝集構造をナノワイヤ内に生成させた。この特徴的構造の起源は、大きな格子不整合によって引き起こされる歪みであることが示唆された。Bi元素は双晶欠陥界面を貫通することで、当初Biが存在しなかったGaAsコア内部までその存在が確認された。これより、成長中に双晶欠陥を介してBiが取り込まれる機構が存在することが示唆された。さらに双晶欠陥界面のBiは特異な構造変形を引き起こし、ナノワイヤ上に波形の複雑な側壁表面を生成させていると考えられた。

以上の取り組みから本研究では、GaAsBiナノワイヤの成長条件とその特異な構造特性について明らかにした。これを制御することで、複雑な高次元構造を持つ機能性量子構造結晶が得られる可能性を示した。