

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 23 日現在

機関番号：33924

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25870885

研究課題名(和文)量子ドット積層技術による半導体ナノワイヤ構造の形成と物性解明

研究課題名(英文)Growth and characterization of semiconductor nanowire structures formed by closely stacked self-assembled quantum dots

研究代表者

大森 雅登(OHMORI, Masato)

豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・研究員

研究者番号：70454444

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文): 本研究では、量子ドット積層型ナノワイヤの分子線エピタキシー法による形成法の確立と構造評価およびその電気伝導特性の解明を行った。ナノワイヤはInAs種量子ドット上に短周期のAlGaAs/GaAs/InAs超格子を数十層積層させることで形成される。この微細電流路応用を考え材料組成比の構成を詳しく調べた結果、Al、In、Gaがそれぞれ約19、29、52%のときオーミックかつ周辺リーク電流の少ない電流路が形成されることが分かった。さらに単一ナノワイヤ素子に対して電気伝導特性を評価した結果、1次元量子伝導の可能性を示唆する結果が得られた。本成果により光検出器などの高性能化が図れると期待される。

研究成果の概要(英文): Transport properties and structural characteristics of a single semiconductor nanowire grown by molecular beam epitaxy were investigated. The nanowires were formed by depositing an AlGaAs/GaAs/InAs short-period superlattice onto self-assembled InAs quantum dots on GaAs. It is found that the nanowire current channels showed good ohmic conduction when the compositions of Al, In and Ga were about 19, 29 and 52%, respectively. In addition, the measurements of the conductance of nanowires as a function of temperature imply Luttinger-liquid behavior. These results suggest that our nanowire has potential applications in optoelectronics devices.

研究分野：半導体ナノ構造デバイス

キーワード：ナノワイヤ ナノ細線 量子ドット コラムナ量子ドット 分子線エピタキシー

1. 研究開始当初の背景

半導体ナノワイヤは直径数十から数百ナノメートル、長さ数マイクロメートルの針状結晶であり (C. M. Lieber ら、2001)、太陽電池やトランジスタ、発光ダイオード、光検出器など様々な電子デバイス新材料として期待が高まっている。特に最近では1本のナノワイヤを用いた単電子トランジスタや単一光子光源などの極限デバイスへの応用も進められている。しかし、この針状ナノワイヤは表面準位によるフェルミレベルのピンニングや表面欠陥、金属電極の複雑な形成プロセスなどの問題があり、デバイス応用の大きな障壁となっている。

一方、InAs 自己形成量子ドットを 10 原子層程度の GaAs をスペーサ層として数十層積層することで形成できる柱状のナノ構造が新しいナノワイヤとして注目されている。この構造はウエハー中に埋め込まれているため、表面が及ぼす問題とは無関係でプロセスも従来の技術が適用できるなど、デバイス応用上様々な利点が期待されている。我々はこれまで、この量子ドット積層型ナノワイヤを微細電流路として動作させるため AlGaAs 系材料をスペーサ層に用いた構造 (図 1、図 2) を提案し、その形成手法や構造評価および電気伝導特性に関する基礎的研究を進めてきた。さらに、これを応用した新構造光検出器を考案・試作も行い、従来にない超高感度化の研究も進めている。

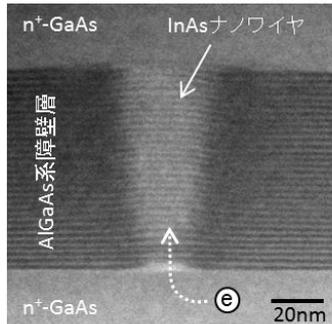


図 1 . 量子ドット積層型ナノワイヤの断面 TEM 像。基板と表面の GaAs 間において、電流はエネルギー的に低いナノワイヤに集中して流れる。

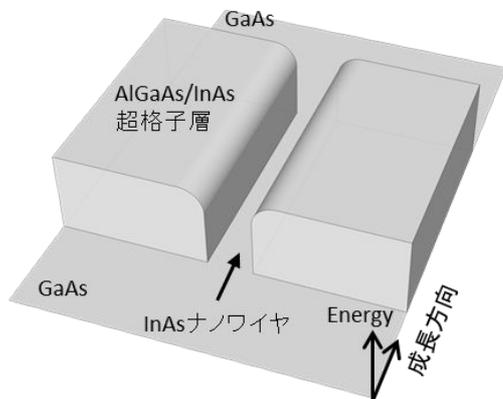


図 2 . AlGaAs/InAs ナノワイヤの理想的な伝導バンド構造。

2. 研究の目的

本研究では、新しいナノワイヤ構造に関する我々のこれまでの研究をさらに発展させ、光・電子デバイスの基幹材料として新たな可能性を探索するため、より高度な結晶成長技術の確立とその詳細な物性解明を目的としている。特にナノ電流路としての利用に主眼を置き、その電気伝導特性の解明を目指す。具体的には以下の 3 課題に焦点を絞り段階的に明らかにすることで、超高感度光検出器などの光・電子デバイスへの応用展開を検討する。

- (1) AlGaAs 障壁材料中に埋め込んだ InAs ナノワイヤの各種成長条件による構造制御
- (2) ナノワイヤ中の電子・正孔のエネルギー状態の解明
- (3) 電気測定によるナノワイヤ中のキャリア輸送特性の解明

3. 研究の方法

本研究における試料の結晶成長はすべて分子線エピタキシー (MBE) 法にて行った。ナノワイヤは InAs 量子ドット上に短周期の AlGaAs/InAs 超格子を積層することで形成される。我々のこれまでの研究で、超格子の AlGaAs 層と InAs 層の間に薄い GaAs 層を挟むことで In のマイグレーションが活性化され、形状や組成比が改善されることが分かっている。この技術に加え、ナノワイヤの構造に影響を与える基板温度や材料組成比、超格子の各層厚などをパラメータとし、最適条件の導出を行った。また、作製した試料は透過型電子顕微鏡 (TEM) とエネルギー分散型 X 線分光法 (EDX) を用いてナノワイヤの形状と材料組成比の分析を行った。

電気伝導特性評価用の素子は、ナノワイヤ層を n 型電極層で挟んだ n-i-n ダイオード構造の試料を MBE 法にて作製し、フォトリソグラフィと真空蒸着によりメサ加工とオーミック電極を形成することで作製した。メサのサイズは 10 μ m の正方形とした。特に単一ナノワイヤに対する電気伝導特性を測定するために、InAs 量子ドットの超低密度化技術 (引用文献) を用いて、10 μ m 角に 1 個程度の密度でナノワイヤを形成させた。この単一ナノワイヤ素子に対して電流電圧特性を測定した。

4. 研究成果

(1) ナノワイヤの材料組成比分析

本研究の量子ドット積層型ナノワイヤは複数の材料と層の重ね合わせによりそれらが互いに混ざり合って構成されている。したがって、ナノワイヤのエネルギーバンド構造を解析するためには材料組成比を正確に分析することが極めて重要となってくる。ナノワイヤは直径約 20nm の三次元構造であるため、試料厚さを 100nm 程度に薄片化して観測する通常の TEM や EDX では、試料の厚さ方向の周辺媒質の組成情報も同時に観測

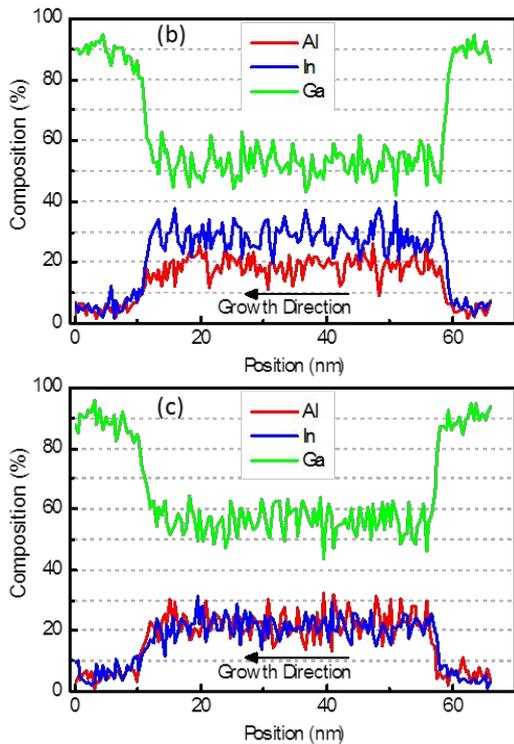
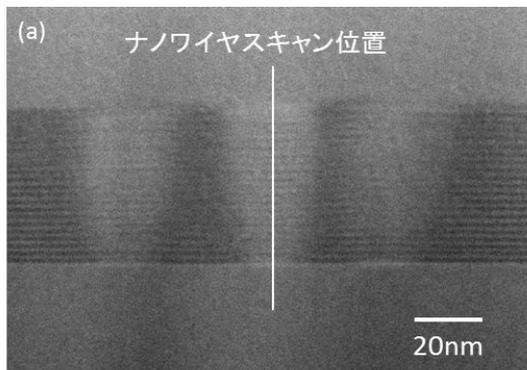


図3 . ナノワイヤ試料のTEM 観察結果 (a) とナノワイヤ部分 (b) と超格子部分 (c) のEDX 分析結果。

してしまうため、ナノワイヤのみの正確な組成を観測することは難しい。そこで、試料厚さ方向がほぼナノワイヤのみとなるように厚さ 50nm に均一に薄片化し、さらに TEM の組成コントラストから薄片中にナノワイヤがすべて埋まっているものを選択することによって、周辺媒質の影響をできるだけ排除した計測を行った。

ナノワイヤ試料は GaAs バッファ層上に InAs 種量子ドットを堆積量 1.6ML で形成後、 $Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ 5ML、GaAs 2ML、InAs 1ML の超格子を 20 周期成長させることで形成した。種量子ドット成長時の基板温度は 510 であり、超格子成長時は 530 とした。超格子の GaAs 層と InAs 堆積後にそれぞれ 60 秒と 5 秒の成長中断を入れてある。図3 に厚さ 50nm に薄片化したナノワイヤ試料の TEM 像と EDX 測定結果を示す。図から、超格子部分の Al、In、Ga の平均組成はそれぞれ 22、22、56% となっている。成長時の厚さから換

算した組成比と多少異なるが、これは成長レート of 誤差等によるものと考えられる。これと比較してナノワイヤ部分の Al、In、Ga の平均組成はそれぞれ 19、29、52% となっており、超格子部分と比べ Al が 3%、Ga が 4% 減少した分 In 組成比が増加していることが分かった。このナノワイヤ中の In 組成比は、GaAs/InAs 材料系のナノワイヤ (引用文献) の約 30% と比較してほぼ同等な値となっており、Al を追加しても GaAs スペースを導入することと成長条件を最適化することで良質なナノワイヤを形成できることを示した。

本成果で、世界で初めて Al を含む量子ドット積層型ナノワイヤの系統的な形成手と正確な組成比分析手法を確立することに成功した。これにより、今までにない革新的デバイスの要素技術として大きく発展することが期待される。我々は現在、この技術を活かした超高感度赤外イメージセンサへの展開を進めている。

(2) 単一ナノワイヤの電流電圧特性

ナノワイヤ中の Al 組成比が電気伝導特性に及ぼす影響を調べるために、(1) の試料と成長条件が同等で超格子の AlGaAs 層の厚さだけが 6ML (Sample A)、5ML (Sample B)、4ML (Sample C) と異なる三種類の試料を作製した。(1) の成果から、Sample A、B、C それぞれのナノワイヤ中の Al 組成比は、20、19、17% と推察される。単一のナノワイヤ素子を作製するために、低密度量子ドット形成技術を用い、さらにナノワイヤ構造を n-i-n ダイオードの i 層に埋め込み、10 μ m 角のメサ状に加工することで電気伝導測定用の素子を作製した。図4 にその顕微鏡像を示す。図4 (b) は He-Ne レーザーを励起光源とした蛍光顕微鏡像で、メサ中の白点はナノワイヤからの発光を表しており、メサ中に一個のナノワイヤしか含まれていない様子が分かる。

図5 に Al 組成の異なる三種類の単一ナノワイヤダイオード素子の試料温度 35K に

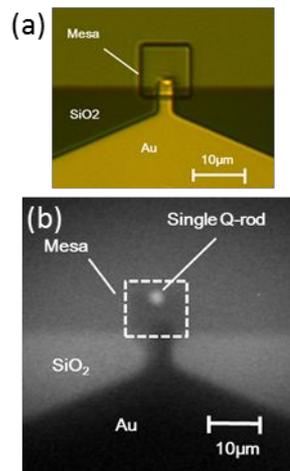


図4 . 単一ナノワイヤダイオードの顕微鏡画像(a)と蛍光顕微鏡像(b)。

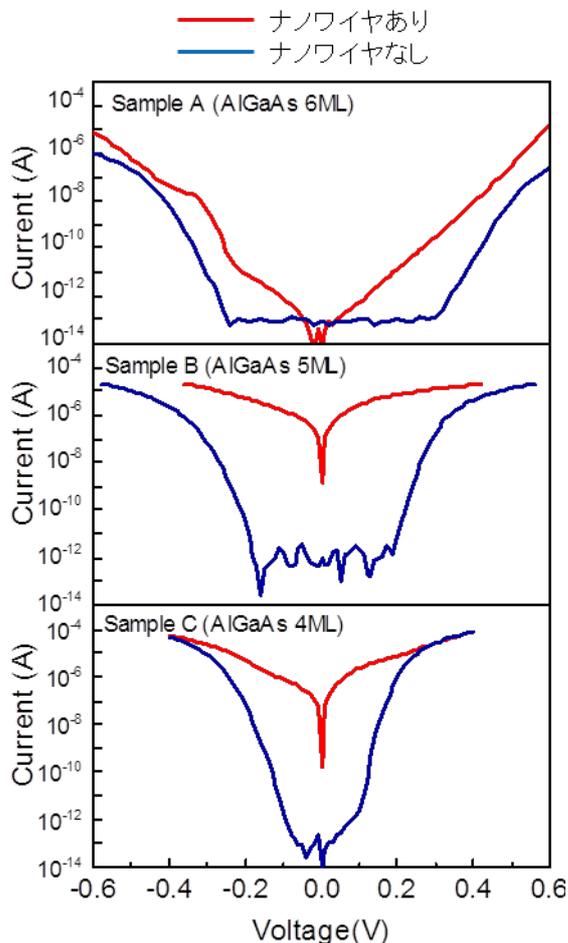


図5．各単一ナノワイヤダイオード素子の電流電圧特性。赤線がナノワイヤを含む素子で青線は含まない超格子のみの参照用の素子。

ける電流電圧特性を示す。Sample BとCはほぼ線形な特性なのに対し、Sample Aは非線形な特性となっている。これは、Al組成が高いためにナノワイヤ中の伝導体バンド端が電極層のGaAsより高くなっているためと考えられる。Sample Aの電流電圧特性を数値計算により解析した結果、高さ180meV、幅13nm程度の障壁が存在することが分かった。このことから、超格子の各AlGaAs層の厚さが厚かったため、他の層と混ざりにくく薄いAlGaAs層が各層に残ったためと考えられる。また、ナノワイヤ周辺の障壁層の高さを図5の青線から解析した結果、Sample A、B、Cでそれぞれ200、150、120meVであり、AlGaAs層を薄くすると障壁高さが低くなっていくことが分かる。したがって、周辺障壁に流れる電流を抑制し、かつオーミックなナノワイヤを得るために、適切なAlGaAs層の厚さを選択する必要があることが分かった。本成果では、これまでの針状ナノワイヤとは異なる全く新しい構造のナノワイヤを開発し、オーミックな微細電流路として動作することを実証できた。さらに、単一のナノワイヤ素子を特殊なプロセスを用いずに容易に作製できることも示した。今後はこれを活

用したトランジスタや光検出器、発光素子等への展開が期待できる。

(3) 単一ナノワイヤの電気伝導度とその温度依存性

量子ドット積層型ナノワイヤの電気物性を評価するため、コンダクタンスの温度依存性を測定した。カーボンナノチューブによる報告(引用文献)から、量子1次元系でのバリスティック伝導ではコンダクタンスが温度低下により減少することが知られている。図6に6個の単一ナノワイヤ素子のコンダクタンスの温度依存性の測定結果を示す。それぞれのコンダクタンスの値が異なるのは、ナノワイヤのサイズばらつきや両電極層との接続の状態、オーミック電極のばらつきなどによるものと考えられる。100K付近から温度上昇に伴って急激にコンダクタンスが増加しているのは、ナノワイヤの周辺障壁である超格子層を電子が熱的に超えて流れ出すためである。このリーク電流がほとんど流れない100K以下では、温度低下に伴ってコンダクタンスが減少している様子が分かる。これらの特性は温度の0.2~0.38乗に比例しており、カーボンナノチューブの結果と近い値となっている。したがって、本研究で作製したナノワイヤにおいても1次元量子化伝導が示唆され、極めて興味深い結果が得られた。

今後は、より長いナノワイヤを作製し、コンダクタンスの長さ依存性や磁場依存性などを計測し、より詳細な物性を解明していく。

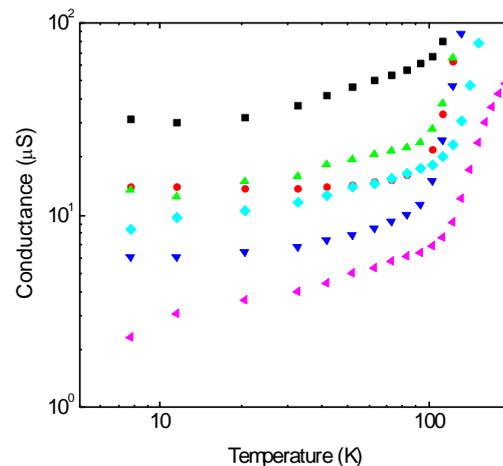


図6．単一ナノワイヤ素子6個に対するコンダクタンスの温度依存性。

<引用文献>

- M. Ohmori, T. Kawazu, K. Torii, T. Takahashi, and H. Sakaki, "Formation of Ultra-Low Density ($\leq 10^4$ /cm²) Self-Organized InAs Quantum Dots on GaAs by a Modified Molecular Beam Epitaxy Method", *Appl. Phys. Express* **1**, 061202 (2008).
- L. H. Li, G. Patriarche, M. Rossetti,

and A. Fiore, "Growth and characterization of InAs columnar quantum dots on GaAs substrate", *J. Appl. Phys.* **102**, 033502 (2007).

M. Bockrath, D. H. Cobden, J. Lu, A. G. Rinzler, R. E. Smalley, L. Balents, and P. L. McEuen, "Luttinger-liquid behavior in carbon nanotubes", *Nature* **397**, 598 (1999).

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2件)

M. Ohmori, P. Vitushinskiy, T. Kojima, and H. Sakaki, "Formation of InAs/AlGaAs/GaAs Nanowire Structures by Self-Organized Rod Growth on InAs Quantum Dots and Their Transport Properties", *Appl. Phys. Express* **6**, No.4, 045003 (2013).査読有り
DOI: 10.7567/APEX.6.045003

M. Ohmori, Y. Kobayashi, P. Vitushinskiy, S. Nakamura, T. Kojima, and H. Sakaki, "Triangular-barrier nanowire photodiodes: their fabrication and detector characteristics", *Appl. Phys. Lett.* **104**, No.8, Issue 8, 081120 (2014).査読有り
DOI: 10.1063/1.4867242

〔学会発表〕(計 5件)

中村翔, 大森雅登, Vitushinskiy Pavel, 榊裕之, "量子ドット構造を用いた三角障壁フォトダイオードの光検出特性", 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学(京都府), 2013年9月16日.

小嶋友也, 大森雅登, Vitushinskiy Pavel, 榊裕之, "InAs/AlGaAs量子ロッド構造の電流電圧特性", 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学(京都府), 2013年9月18日.

H. Sakaki, M. Ohmori, T. Noda, T. Kawazu, and T. Mano, "Recent Progress in Self-Organized Growth of Quantum Dot and Wire Structures and Their Advanced Device Applications", Trends in Nanotechnology Japan 2014 (TNTJapan2014), Tokyo, Japan, January 29-31, (2014).

T. Kojima, M. Ohmori, P. Vitushinskiy, H. Sakaki, "Transport of Electrons in Self-assembled GaInAs Quantum Rod Structures", The 41st International Symposium on Compound Semiconductors, Montpellier, (France), May 11-15, (2014).

大森雅登, 杉村和哉, 小嶋友也, 加戸作成, 野田武司, Pavel Vitushinskiy, 岩田直高, 榊裕之, "三角障壁フォトランジスタによる高感度赤外光検出", 第62

回応用物理学会春季学術講演会, 東海大学(神奈川県), 2015年3月13日.

6 . 研究組織

(1)研究代表者

大森 雅登 (OHMORI Masato)
豊田工業大学・工学研究科・研究員
研究者番号: 70454444