

令和 2 年 9 月 11 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06342

研究課題名(和文) ナノ液滴成長法によるSiO₂/Si基板上へのInGaN量子ドットの自己形成研究課題名(英文) Self-formation of InGaN quantum dots on SiO₂/Si substrates by nano-droplet growth

研究代表者

山口 浩一 (Yamaguchi, Koichi)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・教授

研究者番号：40191225

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：半導体量子ドットのデバイス応用の自由度を高めるために、従来にはないガラス基板上へのⅢ-Ⅴ族半導体(InAs, InGaAs(N))量子ドットの作製法の確立を目指した。分子線堆積法により、ガラス基板上への高密度のInAs量子ドットの自己形成法を開発した。SiO_x上ではⅤ族分子の吸着係数が低く、核形成密度が低く、ナノメートルサイズの結晶粒もⅢ族過剰になりやすいが、As₂分子線の照射により核形成密度が上昇することが分かった。さらにInAs成長の前にSb₄分子線を照射することにより、超高密度のInAs量子ドットの形成に成功し、その発光も確認することが出来た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子ドットは、高機能・高性能の光電子デバイスへの応用が期待されているが、従来の量子ドットの自己形成による作製では、半導体の単結晶基板上に限られていた。本研究では、ガラス基板上への量子ドットの自己形成法の基礎を開発したことにより、基板材料と量子ドット材料との組み合わせの自由度が拡張され、量子ドットのデバイス応用展開に大きく貢献する成果と言える。従来の量子ドットの自己形成法は、エピタキシャル成長を基礎とした結晶成長プロセスの理解と制御により確立されてきたが、本研究におけるガラス基板上への量子ドットの作製法は、結晶成長における核形成の制御において新たな展開を拓く革新的なものと位置づけられる。

研究成果の概要(英文)：In order to increase the degree of freedom in the application of semiconductor quantum dots to devices, we aimed to establish a fabrication method for III-V semiconductor (InAs, InGaAs(N)) quantum dots on glass substrates. We have developed a self-assembly method for high density InAs quantum dots on a glass substrate by the molecular beam deposition method. Because of low adsorption coefficient of V-group molecules on SiO_x, the nucleation density was low, and nanometer-sized crystal grains had excess III-group atoms. However, the nucleation density increased by irradiation with As₂ molecular beam. In addition, by irradiating Sb₄ molecular beam before InAs growth, we succeeded in self-formation of ultra-high density InAs quantum dots and confirmed their photoluminescence.

研究分野：半導体工学

キーワード：分子線堆積法 量子ドット ガラス基板 インジウム砒素 アンチモン フォトルミネッセンス 自己形成

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

人工原子とも呼ばれる量子ドットは、高機能・高性能の光電子デバイスへの応用が期待されている。研究開発当初までは、量子ドットの作製法として、半導体基板上にエピタキシャル成長させる自己組織化(自己形成)法または化学溶液中で作製するコロイダル量子ドットの作製が主流であった。後者では量子ドットを有機溶媒に分散し、スピンコーティングなどで様々な基板上に塗布させ、比較的容易に作製することができるが、有薄膜中の量子ドットの制御や結晶性に問題があった。一方、前者では半導体単結晶基板上へのエピタキシャル成長によって作製されるため、結晶性は高く量子ドットの構造制御も比較的容易であるが、基板材料と量子ドット材料との組み合わせの自由度が狭く、デバイス応用にも限界があった。そこで、量子ドットのデバイス応用のさらなる展開には、自己形成量子ドットを様々な基板上へ作製できる手法の開発が望まれていた。

2. 研究の目的

本研究では、半導体量子ドットのデバイス応用の自由度を高めるために、従来にはない SiO₂/Si 基板上およびガラス基板上への III 族半導体 (InAs, InGaAs(N)) 量子ドットの作製法の確立を目指した。分子線堆積(MBD)法により、ガラス基板上への高密度の量子ドットの自己形成法を開発し、その発光を確認することを目的とした。

3. 研究の方法

当初は、非晶質の SiO₂ 膜上へナノメートルサイズの Ga, In 液滴 (ナノ液滴) を堆積させた後、ナノ液滴内に As 原子 (および N 原子) を溶解させ、InGaAs(N)系単結晶核を成長させる手法について検討したが、III 族過剰となりやすく良質な結晶粒 (量子ドット) の成長が困難であった。そこで、III 族原料と V 族原料を分子線にして同時に供給する手法について検討を進めた。基板には、Si 基板および GaAs 基板上に高周波マグネトロンスパッタリングによる SiO_x 膜 (200 nm 厚) を堆積し、その後、As 分子線照射下で 590 °C での熱処理を程化した後、基板温度を 430 °C から 460 °C に降温して In 分子線と As 分子線の同時照射による InAs の成長を行った。最終年度で試みたガラス (熔融石英) 基板上への InAs 成長の場合は、InAs 成長前に Sb 分子線照射を施した。InAs 成長後は、原子間力顕微鏡(AFM)によるドット構造の観察、フォトルミネッセンス(PL)測定による発光スペクトルの観測を行った。

4. 研究成果

図 1 には、ガラス基板上へ InAs 量子ドットを成長した後の原子間力顕微鏡(AFM)像を示す。(a)は InAs 成長前にガラス基板表面に As₂ 分子線照射を行ったもので、(b)は InAs 成長前にガラス基板表面に Sb₄ 分子線照射を行ったものである。(b)では InAs 量子ドット密度が急増し (密度 $4.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)、Sb 照射によって InAs 初期核の形成が促進されることが明らかになった。これは、ガラス表面を吸着係数の高い Sb 原子で終端することにより、In 原子の固定化が起こりやすくなり、In 原子同士のクラスター化あるいは In-rich の核形成が抑制され、その後の In 分子線と As₂ 分子線の同時照射による良質な InAs 核形成およびナノ粒子成長が促進されたものと理解される。

図2には、ガラス基板上に SiO_x 膜を蒸着した後に As 照射を行ってから InAs 成長を行った試料と Sb 照射を行ってから InAs 成長を行った試料のそれぞれの 15 K でのフォトルミネッセンス(PL)スペクトルを示す。As 照射後の InAs 量子ドットからの発光はほとんど確認されなかったが、Sb 照射後の InAs 量子ドットからは、1350 nm 付近にピークをもつ比較的に強い発光が観測された。しかも Sb 照射試料では、InAs 成長量の増加と共に PL ピーク波長が長波化することも確認され、InAs 量子ドットのサイズとの関係も確認された。以上のように、ガラス基板上への Sb 照射は InAs 量子ドットの自己形成に有効であることが明らかになり、量子ドットのデバイス応用の展開に期待が持たれる。

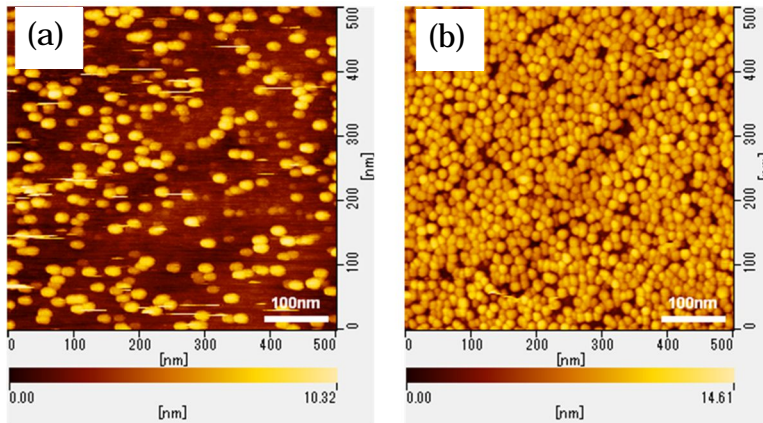


図1
ガラス基板上の InAs 量子ドットの AFM 像 (a)成長前 As 照射、(b)成長前 Sb 照射)

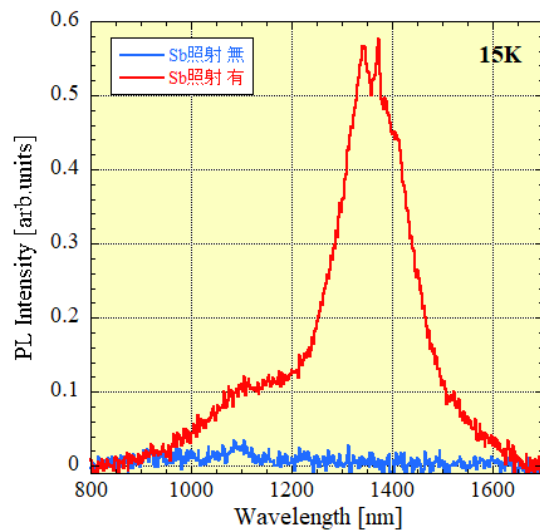


図2
ガラス基板上の InAs 量子ドットの PL スペクトル (a)成長前 As 照射、(b)成長前 Sb 照射)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 A. Makaino, K. Sakamoto, T. Sogabe, S. Kobayashi and K. Yamaguchi	4. 巻 11
2. 論文標題 Self-Formation of InAs Quantum Dots on SiO _x /Semiconductor Substrates by Molecular Beam Deposition	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 085501 1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/APEX.11.085501	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Akinori Makaino, Yuta Tanaka, and Koichi Yamaguchi	4. 巻 58
2. 論文標題 Molecular beam deposition of high-density InAs quantum dots on SiO _x films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SDDF07 1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab0def	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 K. Yamaguchi, A. Makaino, K. Sakamoto and T. Sogabe
2. 発表標題 Self-Formation of InAs Quantum Dots on Oxide/Semiconductor Substrates by Molecular Beam Deposition
3. 学会等名 Compound Semiconductor Week 2018 (CSW-2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 A. Makaino, Y. Tanaka and K. Yamaguchi
2. 発表標題 Fabrication of InAs Quantum Dots on SiO _x Films by Molecular Beam Deposition
3. 学会等名 The 31st International Microprocesses and Nanotechnology Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山口浩一
2. 発表標題 酸化膜上への - 族半導体量子ドットの成長
3. 学会等名 第14回量子ナノ材料セミナー
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 馬飼野彰宜, 坂本克好, 曾我部東馬, 山口浩一
2. 発表標題 分子線堆積法によるSiO _x /半導体基板上へのInAs量子ドットの自己形成(2)
3. 学会等名 2018年(平成30年)第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐々木一夢, 馬飼野彰宜, 坂本克好, 山口浩一
2. 発表標題 分子線堆積法によるSiO _x 膜上へのInAs量子ドットの自己形成(3)
3. 学会等名 2019年(平成31年)第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 ウイクラマナヤカ・ラシミ・プラビーン, 馬飼野彰宜, 坂本克好, 山口浩一
2. 発表標題 分子線堆積法によるSiO ₂ /半導体上へのInAs量子ドットの自己形成
3. 学会等名 2018年(平成30年)第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Tanaka, K. Sasaki, A. Makaino and K. Yamaguchi
2. 発表標題 Enhancement of Photoluminescence of InAs Quantum Dots grown on SiO _x Films by Molecular Beam Deposition
3. 学会等名 The 7th Int. Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 K. Yamaguchi (分担)	4. 発行年 2019年
2. 出版社 John Wiley & Sons Ltd.	5. 総ページ数 480
3. 書名 Molecular Beam Epitaxy	

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 量子ドットシート、これを用いた光電子デバイス、及び量子ドットシートの作製方法	発明者 山口浩一、馬飼野彰 宜	権利者 国立大学法人電 気通信大学
産業財産権の種類、番号 特許、2018-122024	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

電気通信大学 山口浩一研究室 http://www.crystal.ee.uec.ac.jp/

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考