

機関番号 : 33924

研究種目 : 基盤研究 (B)

研究期間 : 2008~2010

課題番号 : 20360163

研究課題名 (和文) 量子ドットと量子細線を結合させた素子構造の形成法開拓と光伝導機能探索

研究課題名 (英文) New ways of forming combined quantum wire/dot structures and investigation of their photoconductive functions

研究代表者

榊 裕之 (SAKAKI HIROYUKI)

豊田工業大学・工学部・教授

研究者番号 : 90013226

研究成果の概要 (和文) : 量子細線型の伝導路の近くに量子ドットや局在準位を配した構造を作る手法を開発し、この構造に光を照射すると、ドット等が正孔や電子を捕縛するため、細線の電気伝導度が顕著に増減し、光検出機能を示すことを実証した。なお、ドットの形成には、格子不整合基板上的自己形成手法と液滴エピタキシーを用い、細線形成には、①微傾斜 GaAs 基板上の多段の原子ステップを用いる手法、②自己形成 InAs ドットの多重積層法、③リソグラフィ法の三手法を用いた。

研究成果の概要 (英文) : New ways are developed to form nanostructures in which one or more quantum dots (QDs) are placed near a channel consisting of a single or plural quantum wires. When the structures are illuminated to generate carriers, electrons or holes are captured by QDs and affect the channel conductance, bringing forth the photoconductive functions. To form these structures, QDs were made by employing self assembly techniques, while wire structures are made by such methods as (1) the formation of multi-atomic steps on a vicinal GaAs substrate, (2) the stacking of multiple QDs, and (3) lithography.

交付決定額

(金額単位 : 円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
2009 年度	3,900,000	1,170,000	5,070,000
2010 年度	4,300,000	1,290,000	5,590,000
年度			
年度			
総計	13,000,000	3,900,000	16,900,000

研究分野 : 工学

科研費の分科・細目 : 電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード : 量子デバイス・スピンドデバイス・量子ナノ構造

1. 研究開始当初の背景

量子ドットや量子細線の素子応用の研究は、本研究代表者によって開始され、まず、ドットや細線を面状に並べた面状超格子素子 (1976)、量子細線を伝導路とする FET (1980)、量子ドットや細線を発光層とするレーザ (1982 : 荒川と共同) の提案と解析がなされた。当初、10nm 級のドットや細線は、実現が困難であったが、様々な形成法が開発されたため、実験的研究も進み、電子工学への応用に留まらず、医療や生体計測への応用

などにも展開を見せている。

素子応用は発展しているが、代表例としては、メモリや光検出器への展開がある。例えば、本研究者は、GaAs/AlGaAs 系ヘテロ構造 FET の伝導路とゲートの間に、InAs 量子ドットを埋め込んだ素子を考案・試作した。この素子では、ドット内に蓄積される電荷をゲート電圧で増減でき、伝導路内の 2 次元電子数やコンダクタンスの変化をもたらすため、メモリ機能を示す (1996)。また、この素子に光を照射すれば、正孔がドットに蓄積され、伝

導路のコンダクタンスが持続的に増すため、光検出機能も持つ(1997)。この素子概念は、内外の関心を集め、近年は、Shieldsらによって単一光子の検出に応用されるなどの展開も見せている。

本グループは、この種の光検出器の動作機構を吟味し、検出感度や感光波長特性など、性能の向上の取組みを進めてきた。まず、素子に用いた InAs ドットを GaSb ドットに代えると、電子の蓄積が回避され、正孔のみが捕捉でき、蓄積できる正孔の数も多くできることを実証した(2007)。さらに、ドット近傍に置く伝導路を薄膜型から細線型に代えれば、ドットの荷電状態の検出特性が向上することに着目し、量子細線の形成法の研究も進めてきた。特に、(111)B 面の近傍の GaAs 表面では、条件により周期 20nm 程の多段原子ステップができ、これに InGaAs の薄膜を堆積すると、量子細線型の伝導路となることも示している(2006)。

本研究の開始時点では、上に述べたように、量子ドットと量子細線のそれぞれを形成する技術の開発が進んできたものの、両者を一つの構造の中に作り込む際の問題点の認識と検討が十分でなかった。また、そうした構造の潜在的な可能性を探索し、素子に活用する試みは、殆どない状況にあった。このため、ドットと細線とを隣接配置する手法の開拓とともに、得られた構造の物性と素子機能の解明が待たれていた。本研究は、こうした状況で開始された。

2. 研究の目的

本研究で、まず、正孔や電子の捕獲に適した量子ドットや局在準位を含む層を形成する技術と、局所的なポテンシャルに敏感な 1 次元的な電子伝導特性を持つ量子細線を含む層を形成する技術を拡大する。さらに、両者の層をわずかな隔たりを持たせて隣接させた構造を形成する手法を探索し、物性計測や素子応用に耐えるドット・細線複合構造の形成技術を確認することを目指す。また、得られた複合構造に光を照射し、電子または正孔をドットや局在準位に蓄積させた時、隣接量子細線内の電子伝導特性がどう変化するかを調べ、光検出素子としての応用可能性を明らかにすることを目的としている。

3. 研究の方法

本研究では、まず、(I) 量子ドットならびに量子細線を複合化させた構造の形成に有効な手法を開発した。特に、(I-A) ドットの形成に関し、分子線エピタキシ(MBE)装置を用いて、格子不整合基板上的自己形成手法と液滴エピタキシの高度化を図った。また、(I-B) 細線の形成に関し、MBE法を拡張、①微傾斜 GaAs 基板上的多段の原子ステップ

を用いる形成法と②自己形成 InAs ドットを多重積層化して細線とする二手法を調べ、併せて、③微細光リソグラフィ法も適用し、(I-C) それらの手法の併用により、複合構造の形成法を開発した。

続いて、(II) 得られた複合構造の電子伝導特性を広い温度範囲で調べるとともに、試料に光を照射し、電子または正孔を量子ドットや局在準位に捕縛させ、その結果、隣接量子細線内の電子伝導特性がどう変化するかを詳しく計測することにより、光検出素子としての潜在的な可能性を明らかにすることを試みた。

4. 研究成果

本研究では、量子細線型の伝導路の近くに量子ドットや局在準位を配した構造を作る三手法を開発し、作られた試料の伝導特性を光照射の前後で調べ、新知見を得た。特に、①微傾斜 GaAs 基板上的多段の原子ステップを用いる手法、②自己形成 InAs ドットの多重積層法、および③リソグラフィ法により作られた細線を含む構造において、光照射で作られた正孔や電子が、ドットや局在準位によって捕縛された時、細線の電気伝導度が顕著に増減することを示し、この効果を活用した光検出器の可能性を明らかにした。以下に、得られた主要成果を報告する。なお、ドットの形成には、格子不整合基板上的自己形成手法と液滴エピタキシを用いたが、これらの研究で得られた新知見も、末尾に記す。

4.1 オフ基板上的原子ステップを用いた量子細線列の形成と光伝導特性

まず、図 1 (a) に示す断面構造を持つヘテロ構造を成長することで、量子細線列の形成を試み、その光伝導特性の評価を試みた。この素子の作成には、(111) 面から [-10-1] 方向に 8.5 度傾けた面方位を持つ GaAs を基板に用いた。この面に分子線エピタキシ法で GaAs を成長すると、周期が 20nm 程で、高さが 2~3nm 程の多段原子ステップを自己形成できる(図 1(c))。このステップ上に、厚み 3nm 程の InGaAs 膜(In 組成 30%)を堆積したところ、周期が 40nm 程のドット列(図 1(b))が生じることが判明した。このドット列を 3nm の GaAs 層で被覆し、さらに Si ドナーを導入した AlGaAs 層(Al 組成 33%)を堆積した。このウェーファでは、HEMT と同様、AlGaAs 中の Si ドナーから電子が供給され、ヘテロ界面の下側に伝導層(チャンネル)が形成されるが、多段原子ステップが電子の伝導に影響を及ぼすことが期待される。このウェーファに通常のプロセスを施し、電流がステップと平行に流れる FET と垂直に流れる FET を作り、伝導特性を調べた。図 2 に示すように、ゲート電圧の低い領域では、電流はステ

ップに沿う方向にのみ流れ、垂直方向には絶縁性を示し、この素子が、多重量子細線として機能することが判明した。

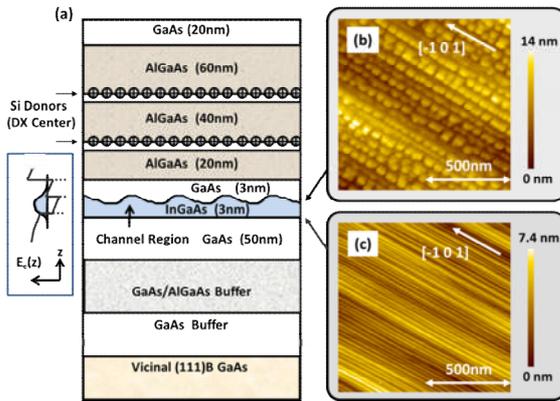


図 1：多段原子ステップを含む伝導素子の断面構造 (a)。微傾斜 GaAs 面上の多段原子ステップの AFM 像 (c)。InGaAs 層を堆積した表面に現れるドット列の AFM 像 (b)。

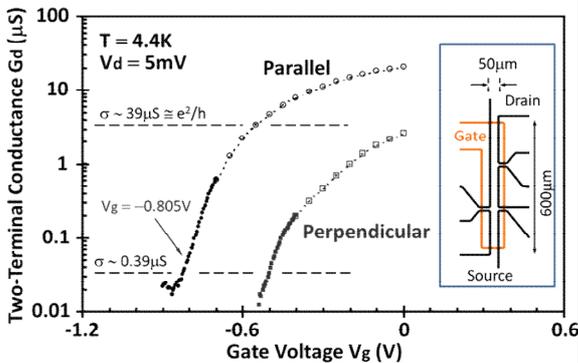


図 2：電流路がステップに対し平行な素子と垂直な素子のコンダクタンスのゲート電圧依存性。

次に、この素子に対する光照射効果を調べた。図 3 に示すように、ステップと並行に電流を流す素子では、光照射後に、ゲート電圧で約 200mV 分ほど特性が左にシフトしており、持続性の光伝導効果が生じることが見てとれる。この光伝導現象は、通常の HEMT 素子の場合と同様に、AlGaAs 層内に導入した Si 原子が作る深い準位 (DX 準位) に束縛された電子が、光照射によって浅い準位に移る過程によるものと思われる。なお、本素子では、DX 準位から供給された電子が、準 1 次元的チャネルに供給されることで、コンダクタンスを増やしており、光照射に対し HEMT とは異なる特異な応答を示すことも期待される。

そこで、試作素子のゲート電圧を光照射前の閾値より低く設定した条件下で、光照射時間の関数として、チャネルのコンダクタンスの変化を調べた。図 4 に示すように、時間の経過とともに、コンダクタンスは特異な増加を示している。光照射前は、絶縁的であったチャネルは、照射に伴い、コンダクタンスの

急激な上昇を示し、その後には、ほぼ線形的な増加に転じ、最終的には飽和傾向を見せる。特に、急激なコンダクタンスの増加は、電子の数と共に、移動度 (透過率) も急増していることを示唆しており、フェルミエネルギーの増大に伴って散乱頻度が急減する 1 次元系に固有の性質を反映している可能性がある。

なお、本素子では、光照射効果に伴う荷電状態の変化を起こす仕組みとして、局在準位 (DX 準位) を用いたが、これは、GaAs (111) 面を用いたために、通常の自己形成法 (SK 法) による量子ドットの形成が困難となったことによる。但し、4.4 項で述べるように、液滴エピタキシ法を用いると、この課題が解決するとの見通しを得たことを付記しておく。

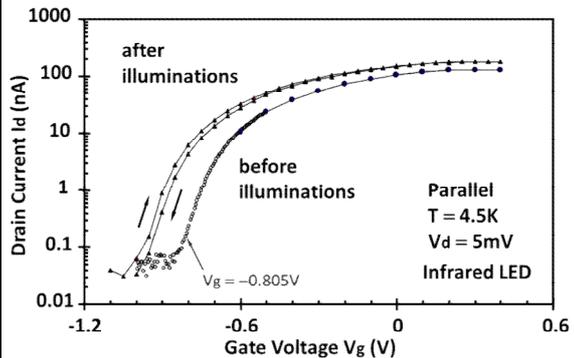


図 3：電流路がステップと平行な素子のドレイン電流-ゲート電圧特性への光照射効果。

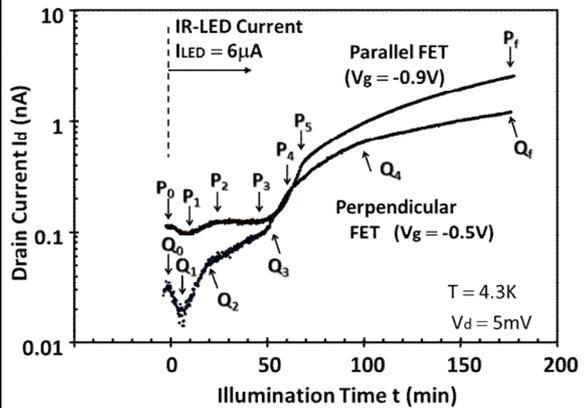


図 4：種類の試料に弱い光を照射した時のドレイン電流の増大の様子。

4.2 電子捕縛型量子ドットを用いた負の光伝導素子の設計・試作と評価

GaAs/n-AlGaAs 系の逆 HEMT 素子の伝導路とゲート間に InAs ドットを埋めこんだ素子では、光照射に伴って正孔がドットに捕縛され、チャネルの電子数が増加するため、持続的な光伝導特性が実現する。この特性とは逆に、光照射によって、量子ドットが電子を捕縛するような素子を作れば、単一光子の検出の際に、有利な状況ができる。例えば、図 5 の黒丸の部分、量子ドットが電子を捕らえ、斥

カポテンシャルを及ぼしている箇所であるとしよう。図 5(a)に示す面状伝導路では、斥力のある箇所を電子が迂回するために、コンダクタンスの減少分が小さくなる。他方、線状伝導路では、図 5(b)のように、コンダクタンスの減少をより効率よく起こすことができる。特に、図 5(c)に示すように、一本の量子細線の伝導を、一個の量子ドットの斥力で抑制できる状況が、最も都合がよい。

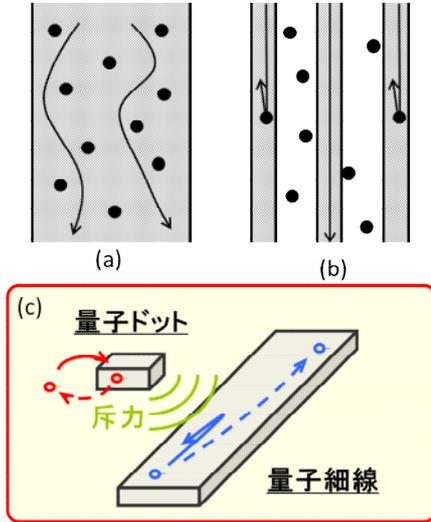


図 5：面状伝導路 (a) と線状伝導路 (b) の比較。黒丸で示す斥力ポテンシャルに対し、線状伝導路では、電流の切断がより容易になる。量子細線一本の伝導を単一のドットの斥力で制御する状況 (c) が望ましい。

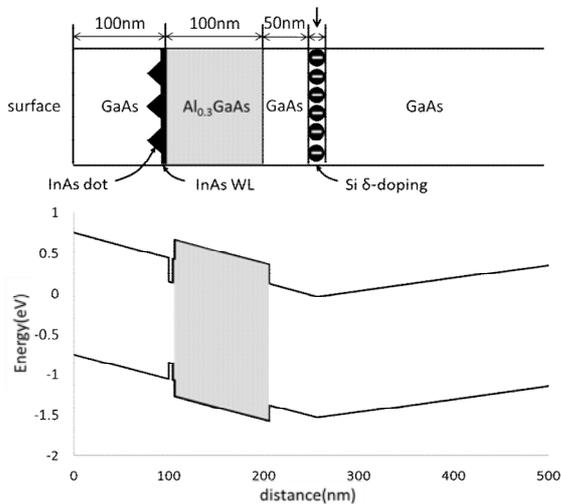


図 6：試作素子の構造とバンドプロファイル。

以上の考察に基づき、図 6 に示す構造の素子を実験的に設計し、試作した。光照射で生じた電子は、電界の作用で、表面から内部に流れるが、途中に挿入した AlGaAs 障壁層の作用で、流れが止められ、その周辺に埋め込んだドットに流入することが期待される。また、ドット内に電子・正孔対が作られた場合でも、電界

の作用で、正孔が表面方向に抜け出すことが予測される。この結果、ドットは負に帯電し、チャンネルの電子数を減らすため、抵抗は増大することが予測される。この素子に赤外光を照射した時の伝導度の計測結果を図 7 に示す。ゲートに加える電圧が $-0.5V$ の場合、表面の空乏層の電界が効き、予測通りに、電流の減少が観測されている。他方、バイアス電圧を $-1V$ にした場合は、コンダクタンスの変化が極めて小さく、微増する傾向も見える。これは、空乏層の電界が弱まり、正孔の脱出が抑制されるためと思われる。

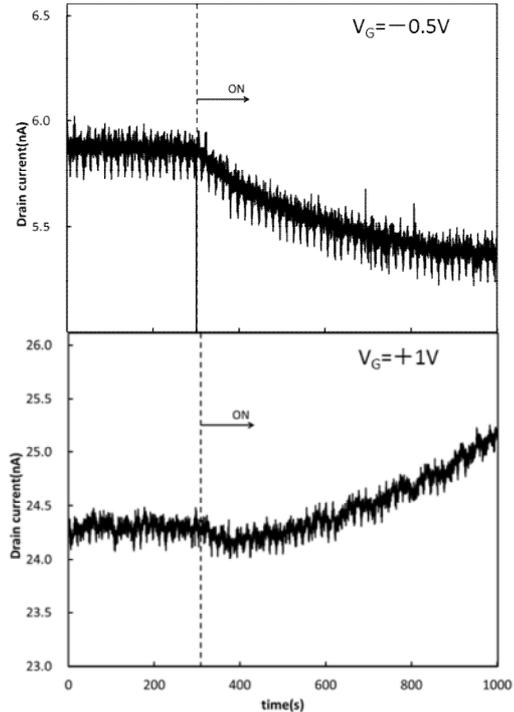


図 7：素子の光応答のゲート電圧依存性。

4.3 InAs 系ドットの多重積層化による細線構造の形成と光伝導特性

直径 20nm 程の InAs 量子ドットを多重に積み上げることにより、円柱状の細線型伝導路を形成することができる (図 8 の断面図の電子顕微鏡像を参照)。この細線の両端に n 型電極を設け、中間部にアクセプタ不純物を導入すると、中央に三角型の障壁が形成されるため、印加電圧の低い状況では、電流を抑制することができる (図 9)。

この素子に、光を照射し、電子・正孔を流入させると、中間部に正孔が集まり、蓄積に応じて障壁が下がる。このため、伝導度が増し、光を検出することができる。図 10 に、試作素子の電流・電圧特性の計測結果を示すが、光照射によって特性が敏感に変化しており、光検出が可能であることを示している。

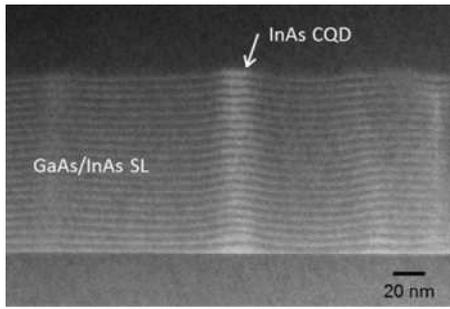


図 8 : InAs 量子ドットの積層化による細線構造の形成例。

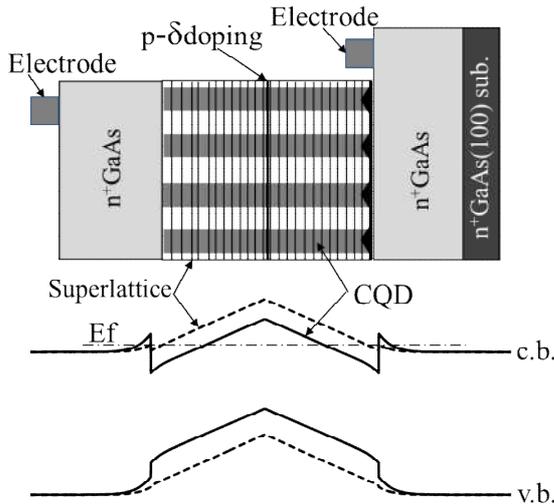


図 9 : 積層ドット細線を用いた素子構造。

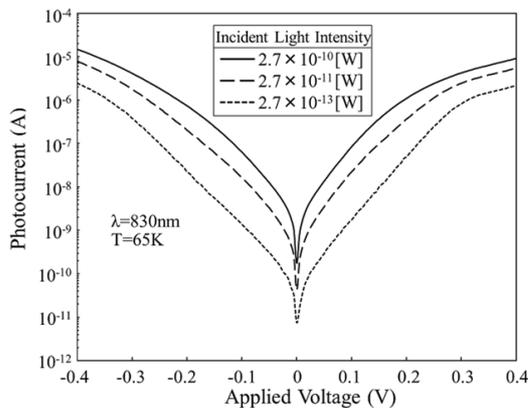


図 10 : 試作素子の光応答の特性例。

4.4 量子ドット関連構造形成法の高度化とドットの間隔・組成などの制御

以上に述べた結果から、量子ドットや局在準位を量子細線に隣接させた構造は、ユニークな光伝導特性を持つことが示され、構造のさらなる改善を進めれば、優れた光検出素子となる可能性のあることが明らかとなった。そこで、本研究では、素子特性の改善に資するナノ構造形成の基盤技術の高度化も進めた。以下に、その代表例をひとつ紹介する。

自己形成法 (SK 法) で作られる InAs ドットについて、通常のドット間隔が、 $0.1 \mu\text{m}$ (=100nm) 程であるのに対し、成長条件を工夫することで、その間隔を $100 \mu\text{m}$ まで、系統的に広げる技術を開拓した。図 11 は、ドット密度のを幅広く制御した 4 種の試料の AFM 像および CCD 蛍光顕微鏡像である。なお、ドット間隔が $1 \mu\text{m}$ を越すと、光学顕微鏡の視野内のドットが一個または数個になるため、線状の蛍光スペクトルが観察されるようになる。

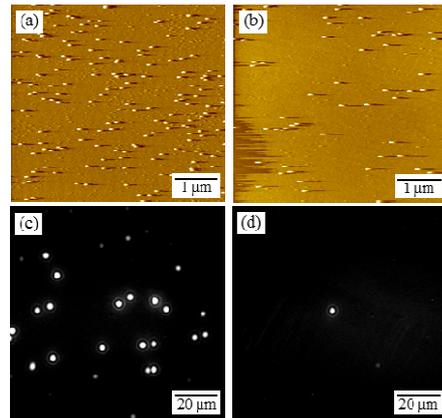


図 11 : InAs 堆積量 1.6ML (a) と 1.55ML (b) で得られた InAs 量子ドットの AFM 像および 1.5ML (c) と 1.4ML (d) の CCD 蛍光顕微鏡像。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 20 件)

- [1] M. Ohmori, P. Vitushinskiy, H. Sakaki, Diffusion process of excitons in the wetting layer and their trapping by quantum dots in sparsely spaced InAs quantum dot systems, Appl. Phys. Lett. Vol. 98, 133109, 2011 査読有
- [2] T. Noda, T. Mano, H. Sakaki, Anisotropic diffusion of In atoms from an In droplet and formation of elliptically shaped InAs quantum dot clusters on (100) GaAs, Crystal Growth & Design, Vol. 11, 3, pp. 726-728, 2011 査読有
- [3] Li GD, Jiang C, Zhu QS, H. Sakaki, Anisotropic transport of two-dimensional electron gas modulated by embedded elongated GaSb/GaAs quantum dots, Appl. Phys. Lett. Vol. 98, 3, 032103, 2011 査読有
- [4] T. Kawazu, H. Sakaki, Temperature dependence of magneto-capacitance in n-AlGaAs/GaAs selectively doped heterojunction with InGaAs quantum dots, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 49, 9, 090205, 2010 査読有
- [5] Li GD, Yin H, Zhu QS, H. Sakaki, Jiang C., Short range scattering mechanism of

type-II GaSb/GaAs quantum dots on the transport properties of two-dimensional electron gas, J. Appl. Phys. Vol.108, 4, 043702, 2010 査読有

[6]Y. Akiyama, T. Kawazu, T. Noda, H. Sakaki, Anisotropic transport of electrons in a novel FET channel with chains of InGaAs nano-islands embedded along quasi-periodic multi-atomic steps on vicinal (111)B GaAs, AIP Conf. Proc. Vol.1199, pp.265-266, 2010 査読有

[7]T. Kawazu, H. Sakaki, Electron scatterings in selectively doped n-AlGaAs/GaAs heterojunctions with high density self-assembled InAlAs antidots, Appl. Phys. Lett. Vol.93, pp.132116-1-3, 2008 査読有

[8]M. Ohmori, T. Kawazu, K. Torii, T. Takahashi, H. Sakaki, Formation of ultra-low density ($\leq 10^4 \text{ cm}^{-2}$) self-organized InAs quantum dots on GaAs by a modified molecular beam epitaxy method, Appl. Phys. Exp. Vol.1, pp.061202-1-3, 2008 査読有

[9]T. Kawazu, H. Sakaki, Magneto-capacitance study of an n-AlGaAs/GaAs heterojunction supporting a sizable dc current, Physica Status Solidi, (c) 5, No. 9, pp.2879-2881, 2008 査読有

[10]T. Kawazu, H. Sakaki, Magnetocapacitance measurement of selectively doped n-AlGaAs/GaAs heterojunction with InGaAs quantum dots, Jpn. J. Appl. Phys. Part 1, Vol. 47, (5), pt. 1, pp.3763-3765, 2008 査読有

[学会発表] (計 37 件)

[1]T. Kawazu, H. Sakaki, Effects of interface grading on electronic states and optical transitions in GaSb type-II quantum dots in GaAs, 2010 International Conference on SOLID STATE DEVICES AND MATERIALS (SSDM2010), Tokyo, Japan, 2010. 9. 23

[2]P. Vitushinskiy, M. Ohmori, H. Sakaki, Charge-sensitive tunneling diode towards single-photon detection, The International Conference on Nanophotonics 2010, Tsukuba, Japan, 2010. 6. 1

[3]M. Ohmori, P. Vitushinskiy, H. Sakaki, Photoluminescence spectra and carrier capture processes in sparsely-spaced InAs quantum dot systems, The 37th International Symposium on Compound Semiconductors, Takamatsu, Japan, 2010. 5. 31

[4]秋山芳広、川津琢也、野田武司、榊裕之、自己形成 InGaAs ドット列における異方的な持続性光電流, 2010 年秋季 第 71 回応用物理学会学術講演会長崎大学, 2010. 9. 16

[5]伊賀健一郎、山附太香史、大森雅登、秋山芳広、榊裕之、GaSb 量子ドット入り GaAsFET 素子の光照射効果: 過渡応答, 2010 年秋季 第 71 回応用物理学会学術講演会, 長崎大学, 2010. 9. 16

[6]秋山芳広、川津琢也、野田武司、榊裕之、微傾斜(111)B 面上の InGaAs 結合ドット列を介する異方的電子伝導の温度依存性 2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会, 富山大学, 2009. 9. 8

[7]高橋一真、黒田知宏、大森雅登、榊裕之、InAs 量子ドット系における光励起キャリアの発光再結合と濡れ層での拡散過程, 2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会, 富山大学, 2009. 9. 8

[8]Y. Akiyama, T. Kawazu, T. Noda, H. Sakaki, Anisotropic transport of electrons in a novel FET channel with chains of InGaAs nano-islands embedded along quasi-periodic multi-atomic steps on vicinal (111)B GaAs, 29th International Conference on the Physics of Semiconductors, Rio de Janeiro, Brazil, 2008. 7. 29

[図書] (計 1 件)

榊裕之, 青文出版社股份有限公司, 奈米技的全貌與未来發展, 2009, 213 項

6. 研究組織

(1) 研究代表者

榊 裕之 (SAKAKI HIROYUKI)
豊田工業大学・工学部・教授
研究者番号: 90013226

(2) 研究分担者

大森 雅登 (OHMORI MASATO)
豊田工業大学・工学部・助教
研究者番号: 70454444
Pavel Vitushinskiy
豊田工業大学・工学部・PD 研究員
研究者番号: 30545330
秋山 芳広 (AKIYAMA YOSHIHIRO)
豊田工業大学・工学部・PD 研究員
研究者番号: 60469773

(3) 連携研究者

野田 武司 (NODA TAKESHI)
独立行政法人物質・材料研究機構
量子ドットセンター・主幹研究員
研究者番号: 90251462
川津 琢也 (KAWAZU TAKUYA)
独立行政法人物質・材料研究機構
量子ドットセンター・主任研究員
研究者番号: 00444076