

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 4 日現在

機関番号：11101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560354

研究課題名(和文) 高効率光デバイスの実現に向けた低欠陥量子ドットの特性解明に関する研究

研究課題名(英文) Study of the property of low-defect-density quantum dots for the purpose of developing high efficiency optical devices.

研究代表者

岡本 浩 (Okamoto, Hiroshi)

弘前大学・理工学研究科・教授

研究者番号：00513342

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円、(間接経費) 720,000円

研究成果の概要(和文)：量子ドットは各種半導体デバイスの性能を画期的に向上させる可能性がある。これまでに研究代表者らは独自開発技術であるBiサーファクタント成長により、優れた光学特性を有するIn(Ga)As量子ドットが得られることを報告してきた。本研究ではこれらの特性が得られるメカニズムの解明に向け、DLTS法(Deep Level Transient Spectroscopy)を主体とした評価を行った。その結果、量子ドット特有の捕獲キャリアの放出による信号の観察に成功するとともに、上記量子ドット試料中には点欠陥や転位等に起因するトラップが非常に少ないことが確認できた。

研究成果の概要(英文)：Quantum dots (QDs) have a potential to improve the performance of various semiconductor devices. We have reported a novel growth method for In(Ga)As QDs using bismuth (Bi) as a surfactant, and their superior optical qualities. For the purpose of clarifying the mechanism of appearing the excellent quality, we have evaluated the QDs mainly using DLTS (Deep Level Transient Spectroscopy) method. We have successfully observed the unique DLTS signals, which are caused by the emission of captured carriers, and revealed that the densities of traps caused by point defects or dislocations are very low in the QD samples.

研究分野：電気電子工学

科研費の分科・細目：電子・電気材料工学

キーワード：量子ドット サーファクタント DLTS

1. 研究開始当初の背景

(1) 量子ドット構造における欠陥と評価研究

量子ドットは光通信用レーザや光増幅器、並びに太陽電池の性能を画期的に向上させる可能性があるため、国内外で精力的な研究が行われているが、基板との格子定数差によって欠陥が導入されやすいという問題点がある。実用的な素子の実現のために多くの研究機関が均一で高密度な量子ドットを得るという課題に取り組んでいるが、その一方、素子の効率向上のために必要な欠陥低減に関する研究は評価手法が確立されていないこともあり、大きな進捗が得られていない。

また、量子ドットレーザの弱点である高速変調特性や、量子ドット太陽電池で課題とされる内部のキャリア輸送特性の理解に関してはドットのキャリア捕獲と放出の特性を調べていくことが必要であり、この評価もまた多角的な観点から取り組んでいくべき重要な課題である。

ここで上記量子ドットの欠陥評価に向けた手法としては光学的手法と電気的手法が試みられている。光学的手法としては、試料に励起光を照射して特有の発光を検出するフォトルミネッセンス (PL) 測定が一般的であり、その発光強度から欠陥密度の相対的比較が行われる他、PL 強度の温度依存性が欠陥密度の指標に用いられることがある。後者の電気的手法による欠陥評価手法としては、半導体バルク中の欠陥評価手法として一般的な DLTS 法 (Deep Level Transient Spectroscopy; 深い準位の過渡応答スペクトル法) を用いた検討結果が数機関から報告されているが、DLTS 信号が量子ドット自体へのキャリアの出入りによるものか、欠陥によるものか判然としない場合と、欠陥による信号が量子ドットのキャリア放出に埋もれて検出されない場合が多い。この原因は評価対象とした量子ドットサンプルの欠陥密度が高いことによる。

(2) 代表者らの研究開始当初までの研究

代表者らは有機金属気相成長法による GaAs 基板上的 In(Ga)As 量子ドット成長においてトリメチルビスマス (TMBi) を添加するという独自の手法を開拓し、優れた光学特性を得ることに成功するとともに、ビスマスが一種のサーファクタントとして働いており (以下、この手法を Bi サーファクタント成長と呼ぶ) Sb などのサーファクタントのように界面に残存しない (新たな欠陥を導入しない) こと、小さなサイズで長波のドットが得られる (欠陥が導入されにくい) ことなどを明らかにし、製造方法に関する特許権を取得している。ここで上記「小さなサイズのドット」は中間バンド型量子ドット太陽電池において望まれる特質 (Tomic et al. APL 2008) でもあり、超高効率太陽電池の実現に向けた有用な技術となることが期待される。

さらに上記の優れた光学特性を生かし、連

携研究者らとともに単一量子ドットのからの発光起源の同定、量子暗号通信用の単一光子発生や光遅延素子の基本動作実験に成功、フォトニック結晶との結合状態における特徴的な物理現象を見出すなどの成果をあげている。

また、欠陥評価に関しては、PL 評価の結果などから世界最高水準の低欠陥量子ドットが得られていることを確認している一方、欠陥の電気的特性評価に関しては DLTS 評価装置を構築し、その評価技術の改良を進めている。

2. 研究の目的

上記の通り、研究代表者の独自開発技術による Bi サーファクタント成長 In(Ga)As 量子ドットは低欠陥で優れた光学特性を有することに加え、小さなサイズで長波の発光が得られるという特性をもつ。これらの特性が得られる原因とそのメカニズムの解明に向け、本研究では上記量子ドットに残存する欠陥、並びに成長条件や構造に依存して増加する欠陥、同量子ドットからのキャリア放出の特性を電気的特性評価法と光学的特性評価法によって調べ、デバイス応用に向けた指針を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

Bi サーファクタント成長による低欠陥量子ドットについて、1) 量子ドットまたはその周辺に残存し、成長方法や試料構造にも依存する欠陥の評価、2) 同ドットからのキャリア放出特性の評価、を光学的评价法 (各種 PL 測定)、電気的评价法 (各種 DLTS 測定) を用い、それぞれの基本的性質とサンプル間の相対的な差異を明らかにし、次に詳細な特性を各種測定手法の組合せによって明らかにしていく。本研究においては特に後者の電気的评价法のうち、DLTS 法による評価を柱とする。

具体的な検討内容を以下に示す。

(1) Bi サーファクタント成長 In(Ga)As 量子ドットの光学的特性評価

種々の成長条件による量子ドットサンプルについて各種 PL 測定を行うことにより、欠陥の発生と成長条件やドット構造との関連を明らかにする。

(2) Bi サーファクタント成長 In(Ga)As 量子ドットの電気的特性評価

量子ドットを含む pn 接合またはショットキー接合を形成し、電流-電圧特性 ($I-V$)、容量-電圧特性 ($C-V$) DLTS 評価を行う。 $I-V$ 、 $C-V$ 測定は上記接合の特性評価に用いる他、 $C-V$ 測定は周波数依存性評価により量子ドットの応答の観察ができる。DLTS 測定においては得られるスペクトルに量子ドットからのキャリア放出による信号と欠陥による信号が含まれる。これらの信号の分離や信号の起源の同定のためには測定時に試料に印加するバ

イアス電圧を変化させるバイアス電圧依存性評価を主体とするが、この評価だけでは前記他機関からの報告のように、DLTS 信号が量子ドット自体へのキャリアの出入りによるものか、欠陥によるものか判然としない可能性がある。このような状況が発生した場合に備え、本研究では電流 DLTS (上記 DLTS 法は接合容量の過渡応答を測定するのに対し、電流 DLTS 法は電流の過渡応答を測定する) 並びに光 DLTS (電圧パルスの代わりに試料に光パルス照射してキャリアを誘起する手法を用いる) 評価装置を新たに構築する。

なお、本研究に用いる DLTS 装置は代表者の研究室においてキャパシタンスメータと A-D (アナログ-デジタル) D-A (デジタル-アナログ) コンバータからなるデータ収集ユニットを組合せて構成し、計測制御とデータ処理のプログラミングも独自に行ったものであり、随時改良を加えている。そのため本研究では特性が未解明な上記量子ドット試料の測定に加え、これまでに研究室内である程度の知見が得られている Ge-MIS (Metal Insulator Semiconductor) 構造サンプルの評価を通じ、装置と測定技術の改良も平行して進める。

(3) Bi サーファクタントを用いた Ge ナノドットの作製

この項目は研究期間開始後に新たに計画に追加したものである。当初計画では代表者が NTT (連携研究者の所属会社) の成長装置を用いてすでに作製した In(Ga)As 量子ドット試料を用い、さらに試料の追加が必要となる場合には同装置を用いて追加作製する予定であったが、震災の影響や同社の社内事情により新たな成長ができない状況となった。そこで研究の発展性を維持するため、Bi サーファクタントを用いる他のホスト材料系からなるドット試料についても平行して検討を開始し、弘前大学の高真空蒸着装置を用いて Bi サーファクタントを用いた Ge ナノドットの作製と評価を行うこととした。

4. 研究成果

(1) Bi サーファクタント成長 In(Ga)As 量子ドットの成長特性と光学的特性

Bi サーファクタント成長による In(Ga)As 低欠陥量子ドットにおける特徴的な成長特性について新たな知見が得られた。

量子ドット成長過程の成長中断中における Ripening (ドットが自発的に周囲から原料を取り込んで拡大する現象) が一般的な成長に比べ急速に進行していることが見いだされ、この原因が結晶表面における Bi の存在によることを明らかにした (図 1)。また、異なる成長中断条件における量子ドットの Ripening と PL 特性の関係を示し、Ripening によるドットの均一性向上と PL 半値幅が対応していることを示した (図 2)。さらに前者のメカニズムは Bi の添加による In の表面拡

散速度の増大と考えると Bi の添加で発光効率が向上する点についても説明が可能であることを述べた。この結果は同量子ドットにおいて優れた光学特性が得られていることの解明を進める上で意義のあるものと考えられる。

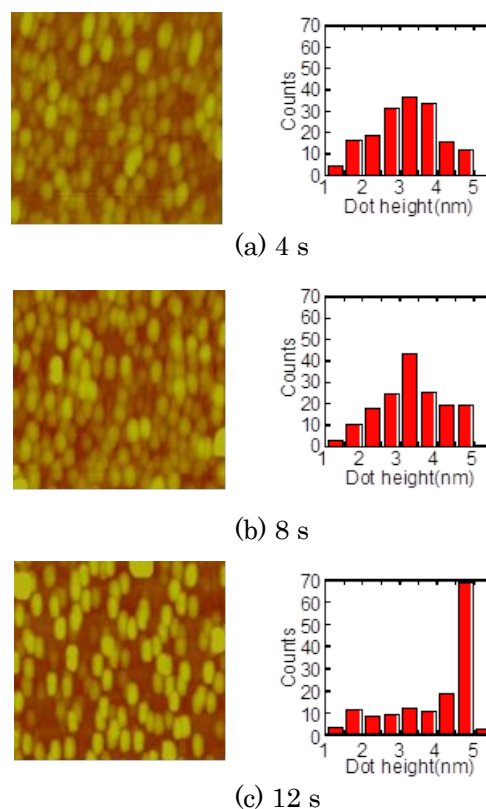


図 1: ドットサイズ分布の成長中断時間依存性
左列は薄いカバ層成長後の AFM 像 ($0.5 \times 0.5 \mu\text{m}^2$) 右列は直径のヒストグラム

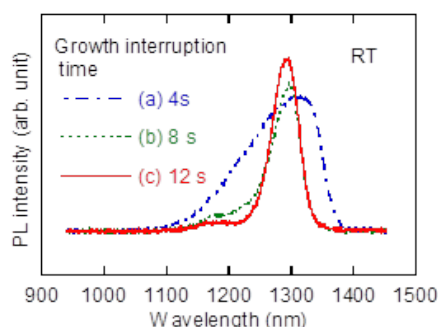
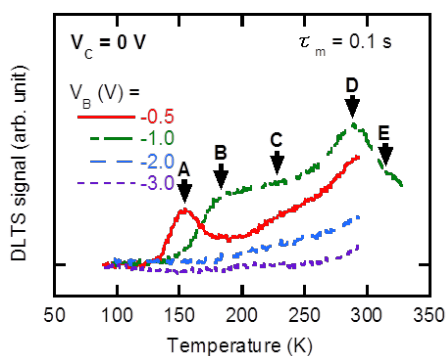


図 2: 図 1 (a), (b), (c) に対応する室温 PL スペクトル

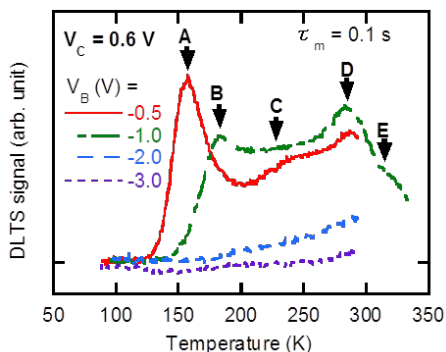
(2) Bi サーファクタント成長 In(Ga)As 量子ドットの電気的特性

歪補償層を介して積層した同量子ドット構造について、キャリア注入と放出の特性を C-V 特性並びに DLTS 法によって評価した。その結果、C-V 特性には大きな周波数依存性と、容量にピークが現れるという特徴的な特性が得られ、DLTS においては大きなパルス幅依存性があり、キャリアの捕獲に長い時間

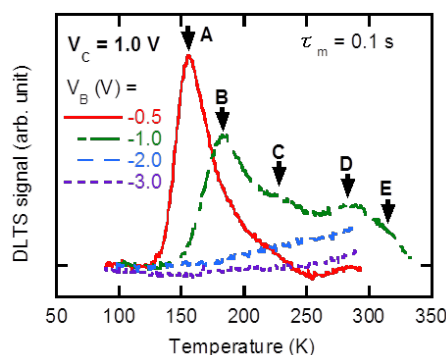
を要していることがわかった。そこでこの捕獲過程を DLTS 測定で観察する新たな手法を試み、その観察に成功した。以上の評価はレーザストライプ構造の試料を用いた行ったが、量子ドット構造中の欠陥評価に使用するには試料構造や特性が不十分だったため、DLTS 測定に適したメサ構造の試料作成条件の検討を行い、量子ドットのキャリア注入と放出の特性や欠陥に関する評価を行った。DLTS 測定の結果、複数のピークが重畳した信号が観察され、これらの DLTS 信号についてバイアス電圧依存性評価(逆方向の静的バイアス $V_B = -0.5 \sim -3.0$ V)を行ったところ、 V_B の絶対値が大きくなると(観測する空乏層幅が大きくなると)DLTS 信号の強度が減衰し、 $V_B = -3$ V では消滅するという、通常の半導体バルク中トラップとは正反対の特徴ある依存性が観察された(図3)。この依存性は、バイアス電圧が捕獲パルスバイアス V_C から V_B に切り替わった直後に量子ドットに捕獲されたキャリアがトンネルによって放出されるという機構を考えると説明ができる(図4)。また、観測する空乏層幅が最大の $V_B = -3$ V の条件において微小な信号しか残らないということは、量子ドットやその周辺において点欠陥や転位等に起因するトラップが非常に少ないことを示している。以上の通り、DLTS 法による上記量子ドットのキャリア捕獲・放出特性並びに欠陥の評価手法と測定結果の解釈において有意な結果が得られた。またこの間、DLTS 装置と測定手法に関しては Ge-MIS 構造の評価を通じて改良を進めた。電流・光 DLTS 評価法に関してシステム構築を進め、同 DLTS スペクトルの測定が可能となったため、研究期間終了後も評価を継続して進めていく。



(a) 捕獲バイアス電圧 $V_C = 0$ V

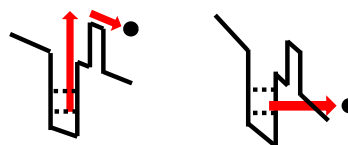


(b) 捕獲バイアス電圧 $V_C = 0.6$ V



(c) 捕獲バイアス電圧 $V_C = 1.0$ V

図 3 : 歪補償層を有する 10 層量子ドット試料の PL スペクトル。3 種類の捕獲バイアス電圧 V_C 条件における静的バイアス電圧 V_B 依存性を示す。



(a) V_B が小さいとき (b) V_B が大きいとき

図 4 : 量子ドットからの捕獲キャリアの放出課程の模式図。

(3) Bi サーファクタントを用いた Ge ナノドットの作製と評価

Bi サーファクタントを用いて Si 基板、石英基板、並びにポリマ基板上に Ge ナノドットを形成する独自技術を新たに開発し、低温で高密度なナノドットが形成できる目途が立った。評価には主として AFM (原子間力顕微鏡) を用いた。ドット形成のための装置としては弘前大学設置の高真空蒸着装置を用い、Bi を抵抗加熱蒸着、Ge を EB (電子ビーム) 蒸着する実験により、この材料系と装置構成において新たな Bi サーファクタントの効果を実証できた。この知見を研究期間終了後は新たなテーマに引き継ぎ、その形成条件の検討とデバイス応用に向けた研究を行っていく。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 3 件)

H. Okamoto, T. Tawara, T. Tateno, H. Gotoh, H. Kamada, and T. Sogawa; "Distinctive Feature of Ripening During Growth Interruption of InGaAs Quantum Dot Epitaxy Using Bi as a Surfactant", Jpn. J. Appl. Phys. vol. 50, pp. 06GH07-1-06GH07-4, 2011.

DOI: 10.1143/JJAP.50.06GH07

岡本浩、成田英史、佐藤真哉、岩崎拓郎、小野俊郎、王谷洋平、福田幸夫; 「ECR プラズマ法によって作製した Ge-MIS 構造における界面近傍トラップの DLTS 評価」、電気学会論文誌 C, Vol. 133, No. 8, pp. 1481-1484, 2013.

DOI: 10.1541/ieejieiss.133.1481
H. Okamoto, S. Suzuki, H. Narita, T. Tawara, K. Tateno, and H. Gotoh; "Deep level transient spectroscopy characterization of In(Ga)As-quantum dots fabricated using Bi as a surfactant", Jpn. J. Appl. Phys. vol. 53, pp. 06JG11-1-06JG11-5, 2014.
DOI: 10.7567/JJAP.53.06JG11

〔学会発表〕(計 9件)

鈴木聡一郎、佐藤真哉、岩崎拓郎、俵毅彦、館野功太、後藤秀樹、寒川哲臣、岡本浩、「In(Ga)As 積層量子ドット構造におけるキャリア注入/放出特性の DLTS 評価」; 電子情報通信学会技術研究報告 vol.111, no.176, CPM2011-57, pp. 7-10 (2011年8月, 弘前大学)

鈴木聡一郎、佐藤真哉、岩崎拓郎、俵毅彦、館野功太、後藤秀樹、寒川哲臣、岡本浩 ; 「In(Ga)As 積層量子ドット構造の DLTS 評価」, 平成 23 年度電気関係学会東北支部連合大会講演論文集 2F19, p. 230, (2011年8月, 東北学院大学)

岡本浩, 成田英史, 佐藤真哉, 岩崎拓郎, 小野俊郎, 王谷洋平, 福田幸夫; 「ECR プラズマ法によって作製した Ge-MIS 構造における界面近傍トラップの DLTS 評価」平成 24 年電気学会電子・情報・システム部門大会講演論文集、MC6-8, pp.1276-1279 (2012年9月, 弘前大学).

成田英史, 佐藤真哉, 岩崎拓郎, 小野俊郎, 王谷洋平, 福田幸夫, 岡本浩; 「DLTS 法による ECR プラズマ法 GeNx/Ge の界面近傍トラップに対する熱処理効果の評価」, 第 73 回応用物理学会学術講演会 11a-PB1-6 (2012年9月, 愛媛大学・松山大学)

鈴木聡一郎, 岡本浩, 館野功太, 俵毅彦, 後藤秀樹, 寒川哲臣; 「Bi サーフアクトを用いた In(Ga)As 量子ドットの DLTS 評価」, 第 60 回 応用物理学関係連合講演会 29a-PB7-4 (2013年3月, 神奈川工科大学)

成田英史, 岩崎拓郎, 福田幸夫, 王谷洋平, 小野俊郎, 岡本浩; 「DLTS 法による ECR プラズマ法 GeNx/Ge の界面近傍トラップに対する熱処理効果の評価」, 第 74 回応用物理学会学術講演会 18p-P9-6 (2013年9月, 同志社大学)

H. Okamoto, S. Suzuki, H. Narita, T. Tawara, K. Tateno, and H.Gotoh, "DLTS Characterization of In(Ga)As-quantum Dots Fabricated using Bi as a Surfactant", 26th Int. Microprocesses and Nanotechnology Conf. (MNC 2013), 8D-9-2, (Sapporo, Japan, Nov. 2013).

岡本浩, 林一稀, 小林弓華, 俵毅彦, 館野功太, 章国強, 後藤秀樹; 「Bi サーフアクトを用いた Ge ナノドットの低

温形成」, 第 60 回 応用物理学関係連合講演会 18p-F6-7 (2014年3月, 青山学院大学)

成田英史, 福田幸夫, 王谷洋平, 梁池昂生, 花田毅広, 石崎博基, 岡本浩; 「ALD 法による Al ジャーマネイト絶縁層を用いた Ge-MIS 構造における界面近傍トラップの DLTS 評価」, 第 60 回 応用物理学関係連合講演会 19p-PG2-6 (2014年3月, 青山学院大学)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕
出願状況 (計 0件)

取得状況 (計 0件)

〔その他〕

ホームページ等
<http://www.eit.hirosaki-u.ac.jp/~okamoto/home/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡本 浩 (OKAMOTO, Hiroshi)
弘前大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号: 00513342

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

俵 毅彦 (TAKEHIKO, Tawara)
NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員 (応募時: 研究主任)
研究者番号: 40393798