

バイオテンプレート極限加工による 無損傷ナノ構造の作製と 高効率量子ドットデバイスへの展開

研究代表者

寒川 誠二

Seiji Samukawa

東北大学流体科学研究所 教授



はじめに

化合物半導体量子ドットレーザーは効率の良い低消費電力レーザー素子として、また超高速光スイッチとして飛躍的に高まる通信需要に応えユビキタス情報社会を支える技術として極めて重要であり、広く研究されてきた。また量子ドット太陽電池は、60%以上の変換効率が期待され、地球に優しい究極のグリーンテクノロジーとして注目を集めている。しかし、3次元・均一・高密度・配置制御サブ10nm量子ナノ構造を実現することは、現状のトップダウンプロセスおよびボトムアッププロセスでは困難を極めている。

そこで、本研究ではこれらの問題を解決するため、遺伝子情報で複製できる金属複合体(バイオコンジュゲート)を内包したタンパク質の自己組織化によるサブ10nmの超均一加工マスク作製と、そのマスクを用いた中性粒子ビームによるシリコンや化合物半導体の無欠陥エッチング技術による高密度・均一・間隔制御・量子ナノ構造作製により、従来の量子ドットレーザーより1桁以上高いレーザー光強度の量子ドットレーザーの実現、Shockley-Queisser効率を上回る30%以上の変換効率を実現できる量子ドット太陽電池の実現を目指して研究を進めている。

バイオテンプレート極限加工によるSi、GaAsの 高密度・均一量子ドット作製技術

図1に示すように鉄微粒子含有蛋白質であるフェリチンあるいはリステリアフェリチンの表面に親水性、疎水性、静電力を制御するペプチドを修飾することでシリコン、ガリウムヒ素などの基板表面に蛋白質を自己組織的に配置し、その蛋白質を熱処理で除去することで内包していた7nmあるいは4.5nm径で均一な鉄微粒子のみ残存させることができる。この鉄微粒子をマスクに高効率Si量子ドット太陽電池や量子ドットレーザーに使われる20nm~6.4nm径で2~8nm厚のSiやGaAsの3次元量子ナノ

円盤アレイ構造を無欠陥で等間隔に均一に高密度に作製することを試みている。

図2に3次元Si量子ナノ円盤構造作製プロセスと作製された3次元Si量子ナノ円盤構造を示す。10nmの均一で高密度な無欠陥量子ナノ円盤構造を中性粒子ビームで形成するために、まずテンプレートとして、タンパク質リステリアフェリチンに内包された4.5nm径鉄微粒子をタンパク質の自己組織化で規則正しく並ぶ性質を用いて周期配置し、それをマスクにSi/SiC積層構造を無欠陥加工する。高効率量子ドット太陽電池を実現するためには、量子ドット間の波動関数が3次的に結合してミニバン

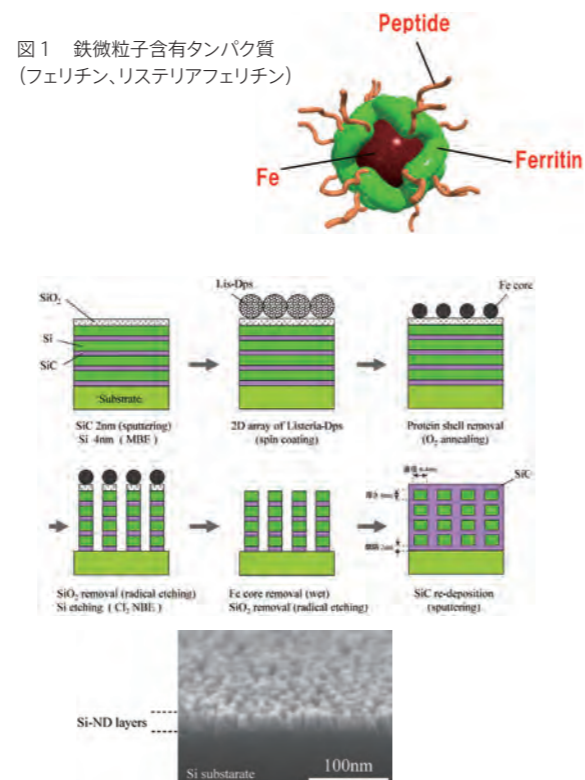


図2 3次元Si量子ナノ円盤構造作製プロセスと作製された3次元Si量子ナノ円盤構造

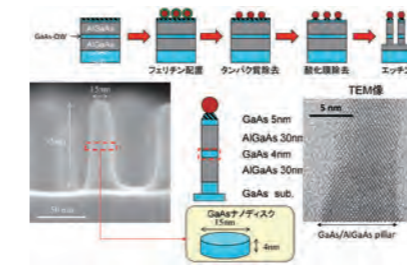


図3 3次元GaAs量子ナノ円盤構造作製フローと作製された3次元AlGaAs/GaAs/AlGaAs量子ナノ円盤構造

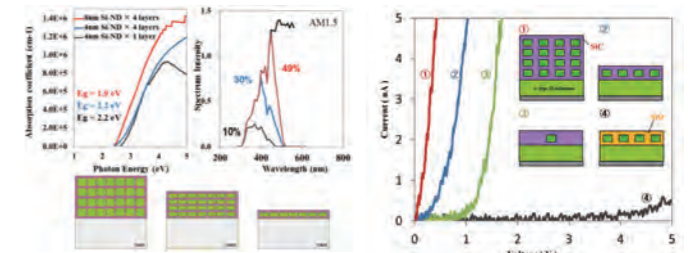


図4 4層Si量子ナノ円盤アレイ構造とSiC中間層を組み合わせた構造の吸収率及び電気的導電性

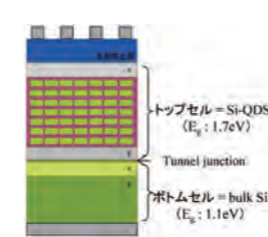


図5 試作するシリコン量子ドット太陽電池構造

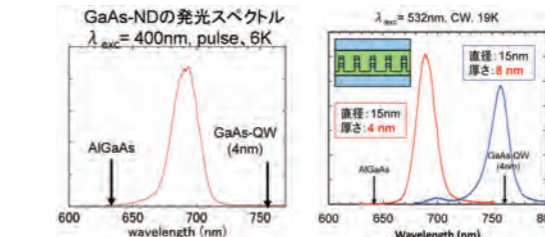


図6 AlGaAs/GaAs/AlGaAs積層3次元量子ナノ円盤構造におけるフォトルミネッセンス

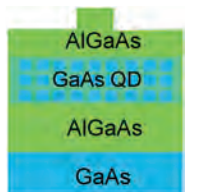


図7 試作する超高効率量子ドットレーザー構造

ドが形成される3次元量子ドット超格子構造を形成することが理想である。まず、最上層のSi表面に酸素中性粒子ビームを用いて極薄Si酸化膜を低温で形成する。この酸化膜は負の電位と高い親水性を持っており、親水性によりフェリチン溶液が酸化膜上に広がるようとする水平方向の力と、負の電位によるフェリチンとの反発力とのバランスでフェリチンが酸化膜上に自由に動けるため、基板上に最密充填配置される。熱処理で外周のフェリチンを除去後、周期的に高密度に配置された均一な鉄微粒子をマスクに塩素・中性粒子ビームによるエッチングを行ない、Si薄膜に無欠陥Siナノ円盤超格子構造を転写した。この時、6.4nm径Siナノ円盤構造が均一で高い周期性を持ち、面密度が $1.4 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ の高密度で2nmの等間隔に3次元配置した超格子構造を実現することができた。

一方、図3に3次元GaAs量子ナノ円盤構造作製フローと作製された3次元AlGaAs/GaAs/AlGaAs量子ナノ円盤構造を示す。量子ドットレーザーでは、量子ドット間の波動関数の結合を抑制してキャリアを量子ドット内に閉じ込めることで強い発光強度を実現する。そのため、量子ドット間隔を10nm以上で配置する必要がある。タンパク質フェリチン表面に分子量を制御したポリエチレングリコールを付加するとともに溶媒のイオン種やイオン強度を制御することで、フェリチン表面のデバイス長を制御してフェリチン間隔を30nm程度に配置することに成功した。フェリチンを除去後、高密度に配置された均一な7nm径鉄微粒子をマスクに塩素中性粒子ビームによるエッチングを行ない、AlGaAs/GaAs/AlGaAs量子ナノ円盤構造に均一・無欠陥GaAsナノ円盤構造を約20nm間隔で転写することに成功した。その後、原子状水素援用MBEを用いて

3次元AlGaAs/GaAs/AlGaAs量子ナノ円盤構造を平坦に埋め込むことにも成功している。

高効率シリコン量子ドット太陽電池の開発

この無欠陥3次元Si量子ナノ円盤アレイ構造は直径と厚さの2つのパラメータでサイズ制御でき、バンドギャップを1.3-2.2eVの間で高精度に広範囲に変化させることができる。また、2nm間隔で配置された4層Si量子ナノ円盤構造と4層SiC中間層を組み合わせることで、入射太陽光に対して垂直な量子ドット間ミニバンドが形成により吸収効率が極めて高く、バンドギャップ以上の入射太陽光の約50%程度を吸収できる(図4)。また、同時にキャリア導電性も垂直方向のミニバンド形成により大幅に向上した(図4)。このことは、初めて超高効率量子ドット太陽電池が実現できる理想的な構造が作製できたことを示している。今後、図5に示すシリコン量子ドット太陽電池の試作を行いシリコンPN接合太陽電池を超える変換効率を実現する。

高効率ガリウムヒ素量子ドットレーザーの開発

AlGaAs/GaAs/AlGaAs積層3次元量子ナノ円盤構造におけるフォトルミネッセンス(PL)を図6に示す。加工前の量子ナノ円盤構造のPLより高エネルギー側にシフトし、GaAs量子ナノ円盤構造の直径と厚さを変化させることでPLピーク波長を制御できることが観察され、世界で初めてトップダウン加工したGaAs量子ドットの発光を確認した。更に、計算と実験の融合により量子準位と発光強度を独立に高精度制御できるフレキシブルな構造であることが分かった。今後、図7に示すマルチ積層構造を実現し、超高効率量子ドットレーザーを実現する。