

「プロセスインテグレーションによる
機能発現ナノシステムの創製」
平成 21 年度採択研究代表者

平成 21 年度 実績報告

寒川 誠二

東北大学 流体科学研究所 教授

バイオテンプレート極限加工による 3 次元量子構造の制御と新機能発現

§ 1. 研究実施の概要

本年度はバイオテンプレートと中性粒子ビームエッチング技術の融合により形成できた無欠陥・均一・高密度・間隔制御・量子シリコンナノディスクアレイ構造の太陽電池への応用を目指して電気的・光学的特性評価を行った。また、AlGaAs/GaAs 量子井戸構造を用いた量子ナノディスク構造の形成に関する初期的な検討も行った。以下に平成 21 年度の成果を示す。

- 1) シリコン酸化膜 (NBO、熱酸化膜) 上へのフェリティン 2 次元配置メカニズムを解析し、2 次元配置のためには表面に高密度ダングリングボンドが存在し、表面電位が負であるとともに親水性を示すことが重要であることが分かった。
- 2) シリコン量子ナノディスクアレイ構造において光吸収特性および PL 測定を行い、ディスク膜厚を制御することでバンドギャップを 2.2eV から 1.4eV まで制御でき、またバンドギャップに対応する PL が観察された。
- 3) AlGaAs/GaAs 単層量子井戸構造での高精度エッチングを実現し、PL の観察から化合物半導体においても中性粒子ビームにより超低損傷エッチングが可能であることを実証した。

§ 2. 研究実施体制

(1) 「寒川」グループ

- ① 研究分担グループ長：寒川 誠二（東北大学、教授）
- ② 研究項目
高均一高密度・無損傷 3 次元ナノディスク構造の形成技術の開発

(2) 「伊藤」グループ

① 研究分担グループ長：伊藤 公平（慶應義塾大学、教授）

② 研究項目

ナノディスク構造の結晶欠陥・電子状態の解明と表面処理技術の開発

(3)「村山」グループ

① 研究分担グループ長：村山 明宏（北海道大学、教授）

② 研究項目

量子ナノディスク・ナノディスクアレイの光発光特性および量子ドットレーザーの試作評価

(4)「岡田」グループ

① 研究分担グループ長：岡田 至崇（東京大学、准教授）

② 研究項目

量子ナノディスク・ナノディスクアレイの光電変換物性および量子ドット太陽電池の試作評価

§ 3. 研究実施内容

（文中に番号がある場合は(4-1)に対応する）

バイオテンプレート極限加工を用いてシリコンおよび化合物半導体基板に無欠陥・均一・高密度・間隔制御ナノディスク構造を形成し、量子ドット太陽電池および量子ドットレーザーへ応用することを目的に研究を開始した。

まず、本年度は既に製造方法が確立されている2次元シリコンナノディスクアレイ構造における電氣的・光学的特性を明らかにし、オールシリコンでのタンデム型量子ドット太陽電池への可能性を検討した。

1) シリコン上への大面積2次元フェリチン鉄コアマスク形成状態の最適化(寒川、山下)

シリコン上へのフェリチン2次元結晶化に関して、そのメカニズムと最適な表面状態を検討した。シリコン表面に中性酸素ビームにより形成したシリコン酸化膜上で特異的にフェリチン2次元結晶が大面積に実現できるメカニズムを明らかにした。中性粒子ビームによる酸化膜は表面にダングリングボンドが多量に存在し、その結果 OH 基および O⁻基が存在し、親水性とともに負電位を持っていることが分かった。このことから、図1に示すように、親水性によるフェリチン溶液が基板上に広がろうとする水平方向の力と基板表面の弱い負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基板表面でより自由に動けるために大面積2次元結晶が可能となったと考えられる。この知見をもとにフェリチン2次元配置の大口径化および化合物半導体表面への適用を行う。

静電反発力を利用した2次元結晶化の様子

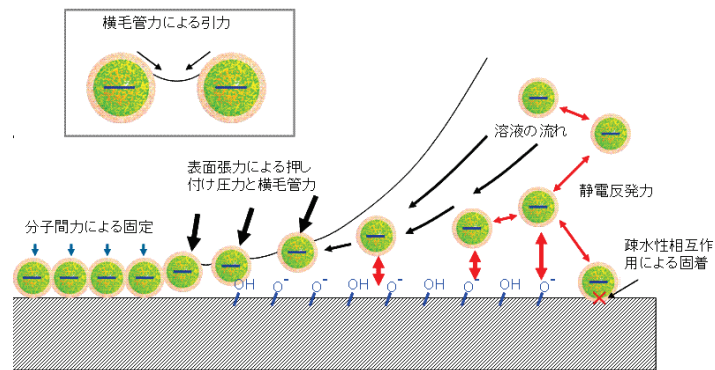


図1シリコン基板上でのフェリチン2次元結晶形成メカニズム

2) 2次元シリコンナノディスクアレイによる光学的測定と積層構造(寒川、岡田)

既に形成方法が確立された無欠陥・均一・高密度シリコンナノディスク構造における光学的特性をUV-Visを用いて測定した。ディスク膜厚を2nm～12nmに変化させた。図2に光吸収特性を示す。10⁵ cm⁻¹以上の吸収係数が得られ、高効率光吸収が実現できていることが分かった。さらにその実測値をTauc Plotすることでバンドギャップを算出すると、図3に示すように膜厚により2.2eV～1.4eVに変化していることがわかった。¹⁾このことは、ナノディスクは強い電子閉じ込め効果を持つと共に、膜厚によりバンドギャップが制御できることを示している。さらに、タンデム型量子ドット太陽電池の試作に向けて中性粒子ビームによるシリコン酸化膜を中間層にもつ積層構造の検討を行い、中間層シリコン酸化膜を通して量子閉じ込め効果を維持しながらトンネル電流が流れることが分かった。これらの検討から、3次元シリコンナノディスクアレイ構造によるタンデム型量子ドット太陽電池の可能性を実証した。

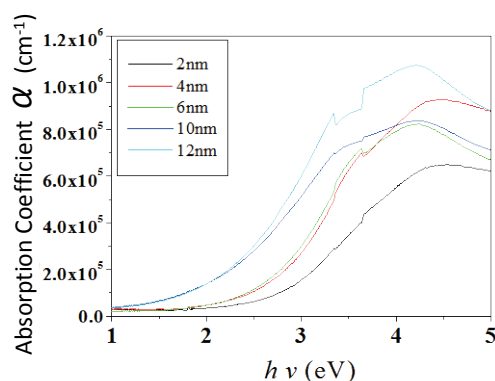


図2 2次元シリコンナノディスクアレイの光吸収特性

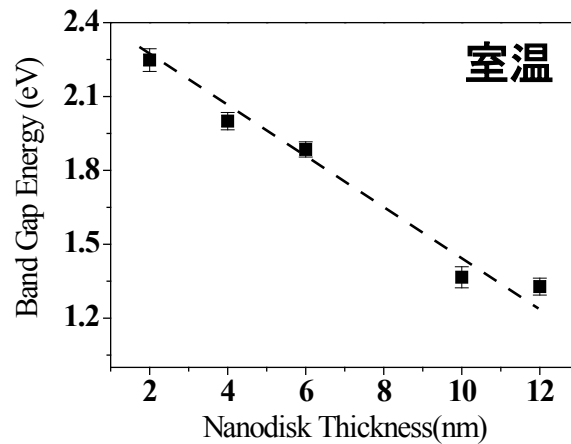


図3 2次元シリコンナノディスクアレイにおける膜厚制御によるバンドギャップの変化。

3)化合物半導体材料へのバイオテンプレート極限加工の適用とPL評価(寒川、大野、村山、伊藤、岡田)

量子ドットレーザーや量子ドット太陽電池を目指して GaAs/AlGaAs 量子井戸構造へのバイオテンプレート極限加工の適用を行った。GaAs/AlGaAs 構造の超低損傷・中性粒子ビームエッチングの検討を行い、Ar/Cl 中性粒子ビームを用いることで GaAs および AlGaAs のエッチング速度を同等にすることが可能となり、表面凹凸のない垂直加工が実現できた。図4に同条件における GaAs 加工側壁の TEM 像を示す。表面まで結晶格子が確認でき、欠陥が殆ど入っていないことが分かった。

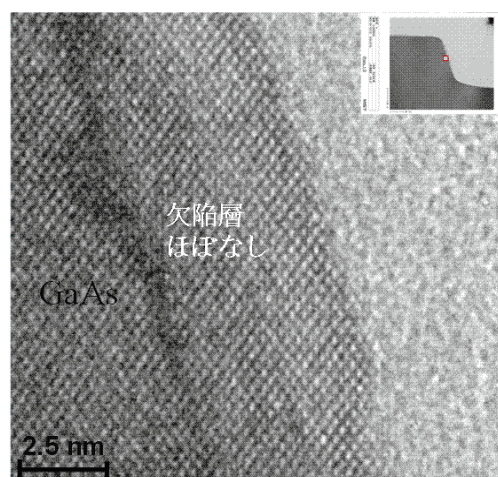


図4 Ar/Cl 中性粒子ビームによる無損傷 GaAs エッチング

更に同エッチング条件にてライン・スペースパターンを形成し、その後水素ラジカル処理による表面ダングリングボンドパッシベーションを行った後、PL の観察を行った。その結果、図5に示すように従来のプラズマエッチングにおける PL に比べ寸法による PL 強度の劣化が圧倒的に少ないことが分かった。この結果は図4の TEM 像にも対応しており、中性粒子ビーム加工では損傷が圧倒的に少ないことを示している。今後、AlGaAs/GaAs エッチング表面パッシベーション技術の最適化と再エピタキシャル成長の最適化を行い、高効率量子ドットレーザー製造プロセスの確立を目指す。また、量子ドット太陽電池を目指した InGaAs の成長に関する検討も開始した。²⁾

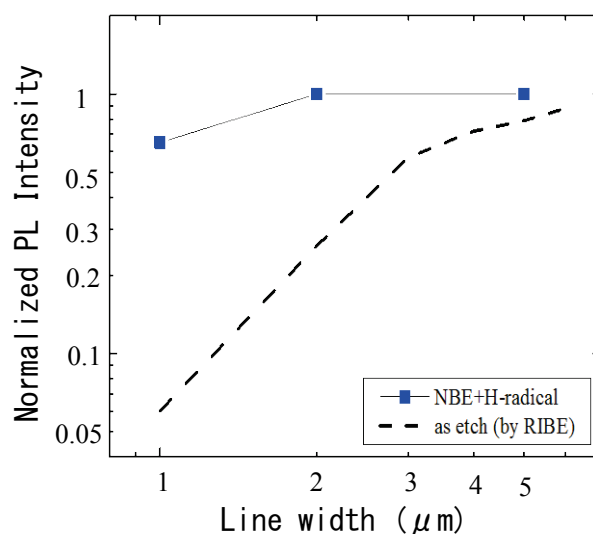


図5 GaAs/AlGaAs 量子構造の中性粒子ビームエッチング後およびプラズマエッチング後の PL 寸法依存性。

§ 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

1. Chi-Hsien Huang, Makoto Igarashi, Sumumu Horita, Masaki Takeguchi, Yukiharu Uraoka, Takashi Fuyuki, Ichiro Yamashita, Seiji Samukawa

A new structure of nanodisk (stacked nanodisk) fabricated by bio-template and defect-free neutral beam etching

Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 49 (2010)pp. 04DL16.

2. Yasushi Shoji, Ryuji Oshima, Ayami Takata, and Yoshitaka Okada

Structural properties of multi-stacked self-organized InGaAs quantum dots grown on

GaAs (311)B substrate

Journal of Crystal Growth, Vol. 312 (2010) pp. 226.