

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. 研究実施体制

### (1) 「3 次元ナノディスク構造形成」グループ

① 研究代表者:寒川誠二(東北大学流体科学研究所、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) 「量子ドットデバイス開発用バンド構造解析制御」サブグループ

① 主たる共同研究者:海津 利行 (神戸大学研究基盤センター、助教)

② 研究項目

・バイオテンプレート極限加工により形成した高均一高密度・無損傷 3 次元ナノディスク構造におけるバンド構造の解析と制御

### (3) 「量子ナノディスク構造特性解析」グループ

① 主たる共同研究者:伊藤公平 (慶應義塾大学 理工学部 物理情報工学科 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

### (4) 「量子ナノディスクレーザー」グループ

① 主たる共同研究者:村山明宏 (北海道大学情報科学研究科、教授) (主たる共同研究者)

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

## § 2. 研究実施の概要

ボトムアッププロセスのバイオテンプレート技術とトップダウンプロセスである中性粒子ビームエッチング技術を組み合わせたバイオテンプレート極限加工を用いて初めて実現できるシリコンおよび化合物半導体の無欠陥・均一・高密度・間隔制御ナノディスク構造を形成し、高効率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進めた。

Si 量子ドット太陽電池の応用に関しては、ギャップ埋め込み層の埋め込み状態を改善するために前年度までのスパッタ SiC からアルミナの原子層堆積法や中性粒子ビーム酸化膜に変更するなど、様々なギャップ層材料の選択と埋め込み手法を検討し、太陽電池の試作を主に行った。特に原子層堆積法(ALD)によってアルミナを埋め込み材料として適用した場合、これまでで最高の光電流[4.8mA/cm<sup>2</sup>]を取り出すことに成功した。現在は、整流特性の改善を目的にギャップ埋め込み層に低温堆積膜アモルファスシリコンを用い上部 n 層の真空一貫成膜を検討し、太陽電池の試作を進めている。

また、上記 Si 量子ドット太陽電池と並行してより実用的なアモルファスシリコン太陽電池プロセスを用いて作製できる Ge 量子ドットの太陽電池応用についても研究を行った。本年度は、Ge 量子ドット作製プロセス最適化を行い、フェリチン鉄コアの密度に対応した  $7 \times 10^{11}$  [cm<sup>-2</sup>] の高密度な Ge 量子ドットの作製に成功している。また、 $\alpha$ -Ge 量子ドットの光学吸収特性からバンドギャップがサイズ（円盤厚さ）によって変化する量子効果を確認している。現在は 3 次元積層構造への展開と太陽電池試作に向けた研究を行っている。

一方、化合物半導体量子ドットのレーザー応用では、GaAs 表面の酸化膜状態を制御することでサイズが均一な  $1 \times 10^{11}$  [cm<sup>-2</sup>] の高密度ナノピラー作製に成功した。さらに GaAs/AlGaAs 構造におけるフォトルミネッセンスでは、量子井戸構造と遜色のない狭線幅（30 meV）で高強度の発光を確認しており、更に電流注入における高強度 EL の発光も確認できている。現在はレーザー発振に向け、デバイス構造の最適化を行っているところである。

また、基板に依存しないフェリチン配置の目的で、PEG コートによる表面制御を行った。PEG の厚さ、PEG の分子量を最適化することで Si、Ge、化合物など、材料基板に依存しない高密度フェリチン配置が可能となった。現在は、フェリチンのパターンニングなどの検討を行っている。

また、領域内共同研究として、藤岡チームとの共同で GaN への中性粒子ビームによる無損傷エッチング、山元チームとの共同で dendrimer-金属錯体を用いた物質変換技術に関する研究も実施した。

### § 3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

##### 論文詳細情報(国際)

1. Makoto Igarashi, Weiguo Hu, Mohammad M Rahman, Noritaka Usami and Seiji Samukawa, Generation of High Photocurrent in Three-Dimensional Silicon Quantum Dot Superlattice Fabricated by Combining Bio-Template and Neutral Beam Etching for Quantum Dot Solar Cells, *Nanoscale Research Letters*, Vol. 8 (2013) pp. 228-1 (pp)
2. Takayuki Kiba, Yoshiya Mizushima, Makoto Igarashi, Chi-Hsien Huang, Seiji Samukawa, and Akihiro Murayama, Temperature dependence of time-resolved photoluminescence in closely packed alignment of Si nanodisks with SiC barriers, *Nanoscale Research Letters*, Vol. 8 (2013) pp. 223-1 (pp)
3. Weiguo Hu, Makoto Igarashi, Ming-Yi Lee, Yiming Li, and Seiji Samukawa, Realistic quantum design of silicon quantum dot intermediate band solar cell, *Nanotechnology*, Vol. 24 (2013) pp. 265401 (8pp)
4. Yosuke Tamura, Toshiyuki Kaizu, Takayuki Kiba, Makoto Igarashi, Rikako Tsukamoto, Akio Higo, Weiguo Hu, Cedric Thomas, Mohd Erman Fauzi, Takuya Hoshii, Ichiro Yamashita, Yoshitaka Okada, Akihiro Murayama and Seiji Samukawa, Quantum size effects in GaAs nanodisks fabricated using a combination of the bio-template technique and neutral beam etching, *Nanotechnology*, Vol. 24 (2013) pp. 285301 (6pp)
5. Chi-Hsien Huang, Ching-Yuan Su, Takeru Okada, Lain-Jong Li, Kuan-I Ho, Pei-Wen Li, Inn-Hao Chen, Chien Chou, Chao-Sung Lai, and Seiji Samukawa, Ultra-low-edge-defect graphene nanoribbons patterned by neutral beam, *Carbon*, Vol. 61 (2013) pp. 229-235
6. Takayuki Kiba, Kenta Suzuki, Hao Li, Makoto Igarashi, Seiji Samukawa, and Akihiro Murayama, Surface/interface-related optical properties in Si nanodisks fabricated by neutral-beam etching using bio-templates, *Journal of Crystal Growth*, Vol. 378 (2013) pp. 493-496
7. Jian Ping Zhao, Lee Chen, Merritt Funk, Radha Sundararajan, Toshihisa Nozawa, and Seiji Samukawa, Effect of electron energy distribution functions on plasma generated vacuum ultraviolet in a diffusion plasma excited by a microwave surface wave, *Applied Physics*

- Letters, Vol. 103 (2013) pp. 032103 (4pp)
8. Takuji Uesugi, Takeru Okada, Akira Wada, Keisuke Kato, Atsushi Yasuda, Shinichi Maeda, and Seiji Samukawa, Novel ArF photoresist polymer to suppress the formation of roughness in plasma etching processes, *Journal of Vacuum Science and Technology A*, Vol. 31 (2013) pp. 061301 (6pp)
  9. Yoshiyuki Kikuchi, Akira Wada, Takuya Kurotori, Miku Sakamoto, Toshihisa Nozawa, and Seiji Samukawa, Non-Porous Ultra-Low-k SiOCH ( $k=2.3$ ) for Damage Free Integration and Cu Diffusion Barrier, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 46 (2013) pp. 395203 (7pp)
  10. Tomohiro Kubota, Hiroto Ohtake, Ryosuke Araki, Yuuki Yanagisawa, Takuya Iwasaki, Kohei Ono, Kazuhiro Miwa, and Seiji Samukawa, Prediction of etching-shape anomaly due to distortion of ion sheath around a large-scale three-dimensional structure by means of on-wafer monitoring technique and computer simulation, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 46 (2013) pp. 415203 (7pp)
  11. Kazuhiro Miwa, Yuki Nishimori, Shinji Ueki, Masakazu Sugiyama, Tomohiro Kubota, and Seiji Samukawa, Low-damage silicon etching using a neutral beam, *Journal of Vacuum Science and Technology B*, Vol. 31 (2013) pp. 051207 (6pp)
  12. Weiguo Hu, Mohammad Maksudur Rahman, Ming-Yi Lee, Yiming Li, and Seiji Samukawa, Simulation study of type-II Ge/Si quantum dot for solar cell applications, *Journal of Applied Physics*, Vol. 114 (2013) pp. 124509 (4pp)
  13. Yoshiyuki Kikuchi, Akira Wada, Takuya Kurotori, Masanori Nakano, Kumi Y. Inoue, Tomokazu Matsue, Toshihisa Nozawa, and Seiji Samukawa, Conductive amorphous hydrocarbon film for Bio-sensor formed by low temperature neutral beam enhanced chemical vapor deposition, *Carbon*, Vol. 67 (2013) pp. 635-642
  14. Rikako Tsukamoto, Maia Godonoga, Ryota Matsuyama, Makoto Igarashi, Jonathan Gardiner Heddle, Seiji Samukawa, and Ichiro Yamashita, Effect of PEGylation on Controllably Spaced Adsorption of Ferritin Molecules, *Langmuir*, Vol. 29 (2013) pp. 12737-12743
  15. Chi-Hsien Huang, Ching-Yuan Su, Chao-Sung Lai, Yen-Cheng Li, and Seiji Samukawa, Ultra-low-damage radical treatment for the highly controllable oxidation of large-scale graphene sheets, *Carbon*, in press.
  16. M. Otsuka, T. Matsuoka, L. S. Vlasenko, M. P. Vlasenko, and K. M. Itoh, "Identification of Photo-Induced Spin-Triplet Recombination Centers

Situated at Si Surfaces and Si/SiO<sub>2</sub> Interfaces, ” Appl. Phys. Lett., vol. 103, pp. 111601, 2013 (DOI: 10.1063/1.4820824)

17. K. Uto, K. Yamamoto, N. Kishimoto, M. Muraoka, T. Aoyagi, and I. Yamashita, "Direct Evidence of Spatially Selective Iron Mineralization Using an Immobilized Ferritin Protein Cage", J. Nanosci. Nanotechnol. 13, 1-9 (2013), doi:10.1166/jnn.2013.8575
  18. M. Fukuta, N. Zettsu, I. Yamashita, Y. Uraoka, and H. Watanabe, "The adsorption mechanism of titanium-binding ferritin to amphoteric oxide", Colloid and Surfaces B: Biointerfaces. 102 435-440 (2013)
- [proceedings (査読審査の入るものに限る)]
19. Keisuke Kato, Atsushi Yasuda, Shin-ichi Maeda, Takuji Uesugi, Takeru Okada, Akira Wada, Seiji Samukawa, Novel ArF resist polymer to suppress the roughness formation in plasma etching processes , SPIE Advanced Lithography 2013, 8682-62 (San Jose, 2013/02/26).
  20. Weiguo Hu, Mohammad Maksudur Rahman, Takeru Okada, Akio Higo, Yiming Li, and Seiji Samukawa, Simulation of Type-II Ge/Si Quantum Dot Solar Cells, 16th International Workshop on Computational Electronics, F6 (Nara, 2013/06/06).
  21. Yoshiyuki Kikuchi, Akira Wada, and Seiji Samukawa, Extremely Non-Porous Ultra-Low-K SiOCH (k=2.3) with Sufficient Modulus (>10 GPa), High Cu Diffusion Barrier and High Tolerance for Integration Process Formed by Large-Radius Neutral-Beam Enhanced CVD, 2013 IEEE International Interconnect Technology Conference, 5-2 (Kyoto, 2013/06/14).
  22. Weiguo Hu, Mohd Erman Fauzi, Makoto Igarashi, Akio Higo, Ming-Yi Lee, Yiming Li, Noritaka Usami, and Seiji Samukawa, Type-II Ge/Si Quantum Dot superlattice for Intermediate-band Solar Cell Applications , 39th IEEE Photovoltaic Specialists Conference, 281 (Tampa, 2013/06/18).
  23. Mohammad Maksudur Rahman, Makoto Igarashi, Weiguo Hu, Mohd Erman Syazwan, Yusuke Hoshi, Noritaka Usami, and Seiji Samukawa, High Photo-Current Generation in a Three-Dimensional Silicon Quantum Dot Superlattice Fabricated by Combination of Bio-Template and Neutral Beam Etching for Quantum Dot Solar Cell, 39th IEEE Photovoltaic Specialists Conference, 689 (Tampa, 2013/06/20).
  24. Akira Wada, Koki Igarashi, Takeru Okada, Seiji Samukawa, Damage-less Graphene Etching by Oxygen Neutral Beam for Graphene Nanoribbon Fabrication, The 13th IEEE International Conference on

Nanotechnology, ThC1.8 (Beijing, 2013/08/08).

25. Yosuke Tamura, Akio Higo, Takayuki Kiba, Wang Yunpeng, Makoto Igarashi, Cedric Thomas, Weiguo Hu, Mohd Erman Fauzi, Akihiro Murayama, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Seiji Samukawa, Photoluminescence of High-density and Sub-20-nm GaAs Nanodisks Fabricated with a Neutral Beam Etching Process and MOVPE Regrowth for High Performance QDs Devices, The 13th IEEE International Conference on Nanotechnology, (Beijing, 2013/08/05).
26. Yosuke Tamura, Akio Higo, Takayuki Kiba, Wang Yunpeng, Cedric Thomas, Takeru Okada, Weiguo Hu, Akihiro Murayama, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Seiji Samukawa, High Density and High Aspect Ratio GaAs/AlGaAs Nanopillar array Fabricated by Fusion of Bio-Template and Neutral Beam Etching, 2013 International Conference on Solid State Devices and Materials, K-2-5 (Fukuoka, 2013/09/25).
27. Takeru Okada, Ching-Yuan Su, Chi-Hsien Huang, Kouki Igarashi, Akira Wada, Lain-Jong Li, Kuan-I Ho, Pei-Wen Li, Inn-Hao Chen, Chao-Sung Lai, and Seiji Samukawa, Ultra-low Damage Fabrication of Graphene Nanoribbons by Neutral Beam Etching, 2013 International Conference on Solid State Devices and Materials, C-4-3 (Fukuoka, 2013/09/26).
28. Yoshiyuki Kikuchi and Seiji Samukawa, Ultra Low-k Non-Porous SiOCH Film ( $k < 2.2$ ) Formed by Ultra Precise Molecular Control in Polymerization Synthesis by Using Large-Radius Neutral-Beam-Enhanced CVD, 2013 International Conference on Solid State Devices and Materials, G-6-4 (Fukuoka, 2013/09/27).
29. Mohammad Maksudur Rahman, Makoto Igarashi, Weiguo Hu, Mohd Erman Syazwan, Yusuke Hoshi, Noritaka Usami, and Seiji Samukawa, Effects of Miniband in Three-Dimensional Silicon Quantum Dot Superlattice Structure Fabricated by Top-Down Process Using Bio-Template and Neutral Beam Etching for High Efficiency Quantum Dot Solar Cell , 28th European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition, 1 AV 3.39 (Paris, 2013/09/30).

### (3-2) 知財出願

- ① 平成 25 年度特許出願件数(国内 6 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 12件)