

# 自己形成量子ドットの光学的性質と高密度メモリへの可能性

Optical Properties of Quantum Dots and Their Application to High-Density Memory

アンドリュー J シールズ  
Andrew J. SHIELDS

リチャード A ホッグ  
Richard A. HOGG

クレア L フォーデン  
Clare L. FODEN

半導体量子ドットはその特異な性質から、低しきい値半導体レーザ、低消費電力エレクトロニクス、高密度光メモリなどの応用分野で注目されている。最近、量子ドットの作製技術の進歩により、これらの新デバイスの実現性が高まっている。

ここでは、自己形成法による量子ドットの作製とその光学的性質について述べる。特に、変調ドープ構造によって量子ドットが電子で充満されている場合を中心に述べる。このような量子ドットと結合した二次元電子伝導チャネルの電気抵抗は、光照射で双安定的に変化する。この現象は、量子ドットが、光で制御された伝導電子の散乱体として働くためであることを示した。

The unique properties of semiconductor quantum dots makes them attractive for a number of devices such as low-threshold diode lasers, low-power electronics, and high-density optical memory. Recent progress in the fabrication of quantum dots using self-organizing growth techniques has brought the realization of these devices a step nearer.

We present here an overview of the optical properties of quantum dots and their fabrication by self-organizing growth modes, concentrating on dot structures which have been remotely doped so as to be filled with electrons. The resistance of an electron gas coupled to a layer of quantum dots shows an optically switchable bistability which could be the basis of an optical memory. We show that the quantum dots act as optically controlled scattering centers for the electron gas.

## 1 まえがき

結晶格子定数の一致する半導体基板上に、1原子層ずつ結晶成長ができる薄膜成長法が発展し、ナノメートル(nm)以下の薄い半導体層を、障壁層と呼ばれる別の半導体層で挟み込む構造が作製できるようになっている。この構造で各層の半導体材料をうまく選ぶと、電子や正孔といったキャリアは中央の薄い層に閉じ込められ、そのエネルギー状態が大きく変化させられる。このような構造は“量子井戸”と呼ばれ、エネルギー状態密度がバンド端で増加するため、発光効率の増加を伴う。この性質は、今日、半導体発光ダイオードやレーザに広く利用されている。また、量子閉込めシュタルク効果と呼ばれる新しい電気光学効果も発見され、大容量光ファイバ通信用の電気光学変調素子を利用されている<sup>[1]</sup>。

量子井戸層では、キャリアは層の面内で自由に動く二次元系になっている。残る2方向に対しても閉込めを行ったゼロ次元状態では、量子的性質がより顕著になるのは明らかである。このすべての方向でキャリアの閉込めを行った究極の量子半導体状態が“量子ドット”である。量子ドットのエネルギースペクトルは完全に離散的となり、おのとの量子ドットは限られた数のキャリアしか保有できない。したがって量子ドットは原子の状態に似ており、少ない数の電子と正孔の相互作用を研究するのに理想的な系に

なっている。また、原子との類似性からも、量子ドットの光学特性は温度に対し安定であると期待される。

量子ドットは、半導体レーザの低しきい値化や光変調器の変調効率向上など、デバイス特性を改善すると予言されている。しかし単なる改良だけでなく、新しい機能ももたらす。もっとも興味深い応用として、データ記憶媒体がある。ここでビット情報の担い手は量子ドットの中に閉じ込められた電子あるいは正孔である。利点は、情報が1個あるいは数個の電子で記録されるので、非常に小さな電力で動作することにある。数多くの提案がなされているが、いずれもドットの中に電気回路で電荷を注入している。しかし、これは光照射によつても可能である<sup>[2]</sup>。波長選択や局所プローブを用いることにより、光書き込みであつても、ドット1個の電荷状態が情報1ビットに対応するという究極の記憶機能に近づく。そのような量子ドット記録は、1平方インチ当たりテラビット級(1兆ビット)の超高密度の記憶容量を達成すると思われる。

## 2 自己形成量子ドットの作製

量子ドットには多くの利点があるが、製作方法にまだ問題がある。初期の技術では、量子井戸を電子ビームリソグラフィーでエッチングするというものであった。しかしながら、エッチングプロセスは損傷を少なからず与える

ため、室温でも量子的挙動を発現させる程十分小さく作ることは困難である。もしも量子ドットが大きいと、ドットにおけるエネルギー準位(レベル)の間隔が熱エネルギー(25 meV)よりも小さくなり、電子は容易に準位間を移動して、ゼロ次元性が失われてしまうのである。

別な方法として、半導体基板上に異なる格子定数をもつ半導体を堆(たい)積し、ドットを自然成長させる方法がある。材料の組合せは数多くあるが、もっとも盛んに研究されているのがガリウム砒(ヒ)素(GaAs)基板上のインジウム砒素(InAs)である。InAsは成長初期には濡(ぬ)れ層と呼ばれる非常に薄い二次元膜を形成する。しかし、この膜の厚みが1.7原子層を超えるとInAs層は格子歪(ひずみ)を緩和しようと自発的に濡れ層上にドットを形成する。このため、“自己形成量子ドット”とも呼ばれる。図1(a)はGaAs上に530°Cで2原子層のInAs層を成長した構造の電子顕微鏡写真である。不規則に配列した島状のInAsが成長表面に形成されているのがわかる。

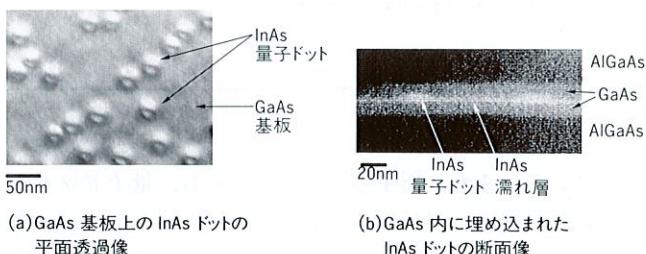


図1. 量子ドットの電子顕微鏡写真 (a)は不規則に配列した島状のInAsが、成長表面に形成されている。(b)は(a)で示した島の上に別のGaAs層を成長させ、GaAsの中にInAs量子ドットを形成した断面像を示す。

Electron microscopic images of quantum dots

これらの島の上に別のGaAs層を成長させると、GaAs格子の中にInAs量子ドットを形成することができる。図1(b)の断面像に示されているように、典型的なドットの寸法は、高さ8 nm、幅30 nmであり、室温でゼロ次元的挙動を現す程に十分小さい。また加工プロセスを伴わないので、安くて簡便な技術でもある。さらにドットの寸法や密度は、成長パラメータで制御できる。

自己形成量子ドットの品質は良くなりつつあるが、レーザや光変調素子のような応用には、いっそうの改良が求められている。特に、離散的な状態密度の利点を生かすには、多数の量子ドットが同じ発光波長をもつ必要がある。例えばレーザ応用では、少なくとも量子井戸の発光線幅(典型値は5 meV)より小さくなければ量子ドットを使う意味がない。残念ながら現状では、ドットの組成やサイズの揺らぎで発光線幅は20~40 meVに広がっており、レーザの

利得が低い。しかしながら、量子ドットの作製方法は急速に進歩しており、その均一性も改善されることは疑いない。

一方、光メモリのようなデバイスの場合、量子ドットの不均一性はかえって長所となりうる。もし、すべての量子ドットがわずかに異なる光学遷移エネルギーをもっているとすると、レーザの波長を選択することで、同じレーザスポット径内のおののおののドットに異なる情報を書き込んだり読み出したりできるであろう。この方法を使うと、さらに1,000倍もの記憶容量の増大を達成できる。

### 3 量子ドットの光学的性質

当社の研究の目的は、量子ドットへの過剰な電荷が、どのように光学的性質を変えて、どのような新しいデバイスに応用できるかを調べることにある。まずこの3章では、自己形成量子ドットの光物性と過剰電荷による効果を述べ、光学非線形素子の可能性に言及する。そして次の4章では、電界効果トランジスタのチャネル近傍に量子ドットを導入することで、新しい機能が発現することを述べる。

InAsはGaAsに比べて低いエネルギーにあるので、電子と正孔はともにInAsドットに捕獲される。図2(b)に模式的に示したように、電子と正孔には、原子の状態と同様に、いくつかの束縛準位が存在する。量子ドットのエネルギー準位を決定する有用な方法の一つに蛍光分光がある。これは、試料にレーザを照射して発光スペクトルを測定する方法である。レーザによって電子と正孔が生成され、発光再結合する前に非常にすばやく半導体中の最低エネルギー状態(基底状態)に緩和する。したがって、発光スペクトルのピークエネルギーは量子ドット中の電子と正孔とのエネルギー差に相当する。

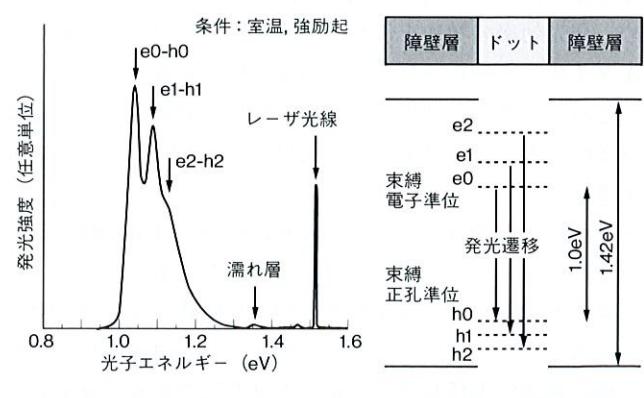


図2. InAs量子ドットの発光スペクトルと電子状態 原子に似た束縛電子状態が存在し、各準位間遷移が発光ピークに対応する。

Photoluminescence spectrum (a) and electric state (b) of InAs quantum dots

図2(a)は、GaAs層に埋め込まれたInAsドットの発光スペクトルを示している。観測されている多くのピークは、ドット内の異なる電子と正孔準位間の光学遷移に対応するが、なぜ高エネルギー側の発光ピークが観測できるかは、若干の説明を必要とする。

量子力学の教えるパウリの排他律によって、同じエネルギー状態を占める量子の上限は2個である。したがって、レーザ強度を上げて電子と正孔の数を増やしていくと、低エネルギー側の準位は容易に埋まってしまう。ところで、図2(a)の発光スペクトルは、強いレーザで励起したときのものである。このため量子ドットの基底状態だけでなく、高いエネルギー状態(励起状態)からの発光も見えていているのである。実際に、レーザ光の強さを弱めると、基底状態からの発光だけとなる。このような入射光強度に対する量子ドットの光学特性の変化は、電気光学素子や光学非線形素子への応用にとって魅力的な性質である。

以上述べた量子ドットの光学特性は、量子ドットやその近傍に不純物は存在せず、キャリアの生成は光照射によって初めてなされている。しかし、ドットの近くに不純物層を設けた構造(変調ドープ構造と呼ばれる)にすることで、電子をあらかじめ量子ドットに充満させることができる。このような構造での量子ドットの発光スペクトルには、興味をそそられる違いが見られる。弱いレーザ強度でも発光スペクトルに励起状態からのピークが観測されたのである<sup>③</sup>。これは量子ドットの基底状態に正孔がゆっくりと落ち込んでいくことを示唆している。量子ドットの半導体レーザ応用にとっては不利な効果となりそうである。

#### 4 量子ドット光メモリ

二次元の電子伝導チャネルと量子ドットとの相互作用効果について述べる。まず実験に用いた素子構造を図3に示す。基本的には変調ドープ量子井戸トランジスタと呼ばれ

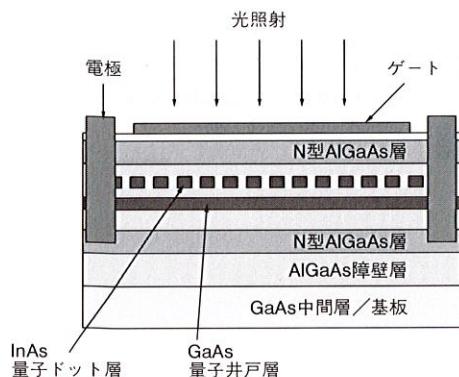


図3. 量子ドット光メモリ素子の模式構造 量子ドット層と量子井戸層(二次元電子伝導層)の距離は10 nmである。

Schematic structure of quantum dot transistor for optical memory effect

る構造であるが、GaAs量子井戸層とシリコン(Si)を不純物として添加したN型のアルミニウムガリウム砒素(AlGaAs)層との間に位置するAlGaAs障壁層中に、InAs量子ドット層を設けた構造になっている。この構造では、光照射だけでなくゲート電圧を変えることで量子ドットへの過剰電荷数を変化させることができる。二次元電子伝導チャネルは量子井戸に形成される。以下に述べるように、この構造は光メモリの基礎となる光誘起電気双安定性を発現する<sup>④</sup>。

量子ドットの禁制帯幅は、発光スペクトルから約1.02 eVであった。それゆえ、ドット内の電子の基底状態はGaAs量子井戸よりもかなり低くなっている。つまり、ドットは下から順に、ある励起準位まで占有されており、大きな負の値に帶電していると予測される。

図4は液体窒素温度(-196°C)において、二次元電子伝導チャネルの抵抗の光照射効果を、ゲート電圧が0 Vのときについて表したものである。光照射はチャネル抵抗の大きな低下を引き起こし、照射を止めても保持されていることがわかる。この素子はまだ最適化されていないが、抵抗の低い状態は数日間観測された。さらにこの光誘起スイッチ現象は、波長740 nmにおいて40 nW/cm<sup>2</sup>(nW=1億分の1 W)といった非常に低い光照射レベルでも観測されている。これは、このデバイスが非常に感度の高い光センサになっていることを意味している。また、このデバイスの抵抗は、ゲート電圧を正の値に振り、数秒の間1 μAのゲート電流が流れた後で0 Vに戻すと、元の高い値に復帰させることができた。

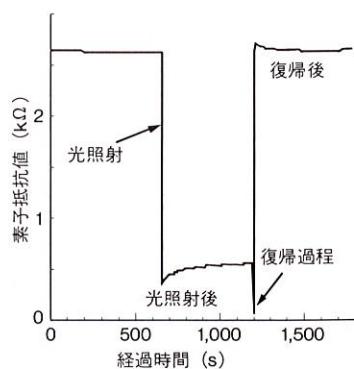


図4. 量子ドット光メモリ素子の電気抵抗変化 数秒間の光照射で抵抗値が大幅に減少し、その値が保持される。ゲート電極に数秒間+0.8 Vの電圧を印加すると復帰する。

Optical memory effect in resistance

以上のような抵抗の双安定性は、量子ドットと量子井戸との間で、光照射による電荷の再配分が起こっているためと考えられる。このことは、光照射の有無でのキャリア濃度の測定結果から示唆されている。すなわち、光励起され

た正孔は量子ドットに集まり、捕獲されていた過剰な電子と再結合してドットの電子密度を低下させる。また、同時に量子井戸中の電子密度のわずかな増加が観測された。

さらに、ドットの中の電子が光誘起によって減少すると二次元伝導チャネルの電子移動度が大きく増加することも観測した。図5に、これらの現象を模式的に表した。電子が量子ドットに捕獲されると、二次元電子チャネル層のドット近傍の電子が排除される。図5(a)では、二次元電子チャネルの海に浮かぶ大きな島として表現している。電流はこの島によって散乱されるので、電子移動度は低く、電気抵抗は大きい。光照射を行うと、ドットの負電荷は減少し、二次元電子伝導層の電子反発をやわらげる。すると電子移動度が増大する。海の絵で説明すると、島々が水没して電子の航海が容易になることに対応している。

今後、ドットを閉じ込めるための障壁層の最適化や、キャリアを電子から正孔に変えてみるなどの方法により室温動作の可能性を探る。また、波長を選択することによって特定のドットに情報の書き込みや読み出しができるかどうか検討する予定である。

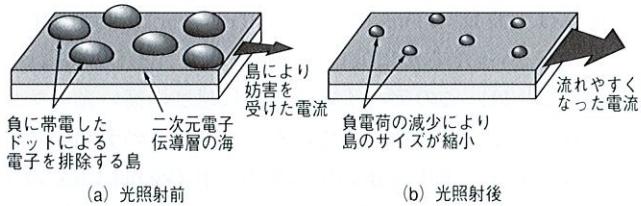


図5. 量子ドット光メモリ効果の動作機構 光照射前は、負に帶電したドットが作るポテンシャル(島)によって電子が散乱される。光照射により、ドット内の負電荷が消滅し、電子がスムーズに流れる。

Schematic operation mechanism of quantum dot optical memory

## 5 あとがき

量子ドット構造の魅力について、光メモリ効果を中心についていくつかの例について述べた。これらのデバイスの実用化は、自己形成技術のたゆまない進歩によって切り開かれるであろう。特に量子ドットメモリは、多くの解決されるべき技術課題が残っているものの、将来必要となる大記録容量を提供する可能性をもっていると信じる。最後に量子ド

ットの研究はまだ搖籃(らん)期にあることを付け加える。過去の量子井戸研究の経験を思い起こすと、これからも多くの応用コンセプトが創生される可能性は高い。

## 謝 辞

この研究にあたり、Mr. M P O'Sullivan, Dr. D A Ritchie, Mr. I Farrer, Mr. K Cooper の諸氏に実験で援助をお願いした。ここに感謝の意を表する。

### 和文翻訳

黒部 篤

研究開発センター 基礎研究所 研究主幹

江草 俊

東芝歐州研究所 ケンブリッジ研究所 副所長

## 文 献

- (1) J. Singh. Physics of Semiconductors and their Heterostructures. London, McGraw-Hill, 1993, 851 p.
- (2) Yusa G. ; Sakaki, H. Trapping of photogenerated carriers by InAs quantum dots and persistent photoconductivity in novel GaAs/n-AlGaAs field effect transistor structures. Appl. Phys. Lett., 70, 3, 1997, p.345-347.
- (3) M P O' Sullivan et al. "Optical state filling of remotely doped InAs/GaAs quantum dots". Proceedings of the 24th International Conference on the Physics of Semiconductors. August 1998, IUPAP Semiconductor Commission. 1998, p.345-347.
- (4) Shields A. J. et al. Optically-induced bistability in the mobility of a 2 DEG coupled to a layer of quantum dots. Appl. Phys. Lett., vol.74 in February 1999, to be published.

アンドリュー J シールズ Andrew J. SHIELDS, Ph.D.

東芝歐州研究所 ケンブリッジ研究所 研究員、理博。  
量子半導体構造の光物性解析に従事。  
Cambridge Research Lab.

リチャード A ホッグ Richard A. HOGG, Ph.D.

東芝歐州研究所 ケンブリッジ研究所 契約研究員、理博。  
量子半導体構造の光物性解析に従事。  
Cambridge Research Lab.

クレア L フォーデン Clare L. FODEN, Ph.D.

東芝歐州研究所 ケンブリッジ研究所 研究員、理博。  
量子半導体物理の理論解析に従事。  
Cambridge Research Lab.