

単電子・単一光子 電子光融合デバイス

中岡 俊裕

1. 研究目的

現在、パソコンに代表される情報処理素子の性能向上に物理的な限界が近づいており、世界中でこれを打破するための取り組みが進められています。これに向けた重要な技術として、電流の最小単位である1個の電子「単電子」、光の最小単位である光子1つ「単一光子」を制御する技術が挙げられます。これらはそれぞれのエネルギーの最小単位であり、低消費電力技術、量子情報の担い手として重要です。本研究では、これらのそれぞれの制御技術をすすめ、さらに両者を融合することで生まれる新しい機能の実現を目指した。

2. 研究方法

a. 電流注入型単電子単一光子融合素子の概要と測定手法

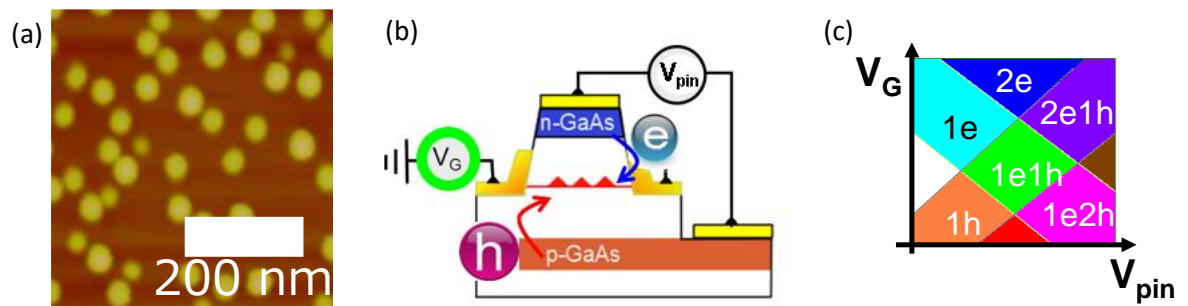


図1：(a)量子ドットのAFM写真。(b)単電子・単一光子 電子光融合素子の模式図。(c) バイアス電圧(V_{pin})、サイドゲート電圧 (V_G) による量子ドット内電子、ホール数の制御

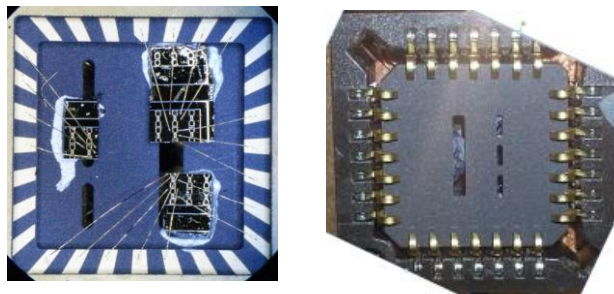


図2：空孔をもつ特注パッケージへの素子マウントと、裏面測定のためのフリップチップ型実装の様子。

単電子・単光子 電子光融合デバイスのキーとなるのが図 1(a)に示す自己形成 InAs 量子ドットである。大きさ 20nm 程度の半導体であり、量子閉じ込め効果のため、電子 1 つの制御が可能で、電子 1 つ、ホール 1 つの再結合により光子 1 つが生成する。素子の模式図を図 1(b)に示す。サイドゲートにより量子ドットの電子状態、電子、ホール数を制御し、n 層、p 層からそれぞれ電子、ホールを量子ドットに注入し電流注入発光を得る。図 1(c)に示すように V_G, V_{pin} の値によって様々な荷電状態からの発光を得ることができる。本素子はサイドゲートを持つため、素子表面は電極に覆われ、通常の光取り出しの効率は低い。これを解決するため新しい測定手法を開発した。図 2 に示すように、素子の特殊な穴付のパッケージにマウントし、空孔の部分に GaAs 基板を透過する波長のレーザー(波長 $1.55\mu\text{m}$)の入射し、その反射光強度をマッピングすることで、基板裏面からの観測を可能とした。真空に比べ基板のほうが屈折率が高いため、光取り出し効率の観点からも通常の手法よりも有利である。

b. 量子ドットへのプログラマブル配線に向けた抵抗変化メモリの概要と狙い

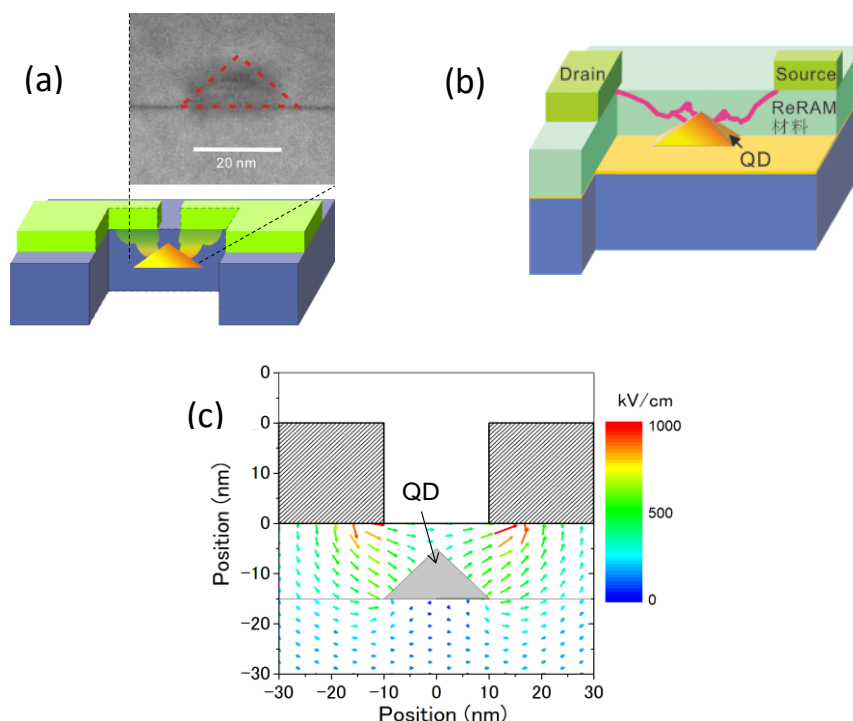


図 3 : (a)自己形成量子ドットの TEM 写真と金属拡散による電気コンタクトの模式図。(b)抵抗変化メモリ (ReRAM) の導電性フィラメントを用いた配線の模式図。(c)理論計算による電場分布

単電子、単一光子融合の担い手として非常に優れている自己形成 InAs 量子ドットであるが、歪起因により作成される場所はランダムで位置制御が難しい。このため、電氣的なコンタクトの歩留まりが極めて低いという欠点をもつ。この解決のため、金属拡散を用いた電気コンタクト [図 3(a)] と抵抗変化メモリ材料における導電性フィラメントをその配線に用いる研究 [図 3(b)] をおこない成功している^{*1)}。抵抗変化メモリにおいては電圧印加時に電場の方向に導電性のフィラメントが成長し、高抵抗状態から低抵抗状態へスイッチする。量子ドット近傍に電極を設置すれば、位置ずれが生じていてもこのフィラメントにより電気コンタクトをとれるというアイデアである。図 4 に示すように、量子ドット近傍の電極に電圧を印加すると矢印で示したように量子ドットに向かう方向に強い電場勾配が生じる。したがって導電性フィラメントは自発的に量子ドットに接続すると予想できる。

c. 単電子、光融合素子の集積化、高温動作に向けたナノコラムの研究

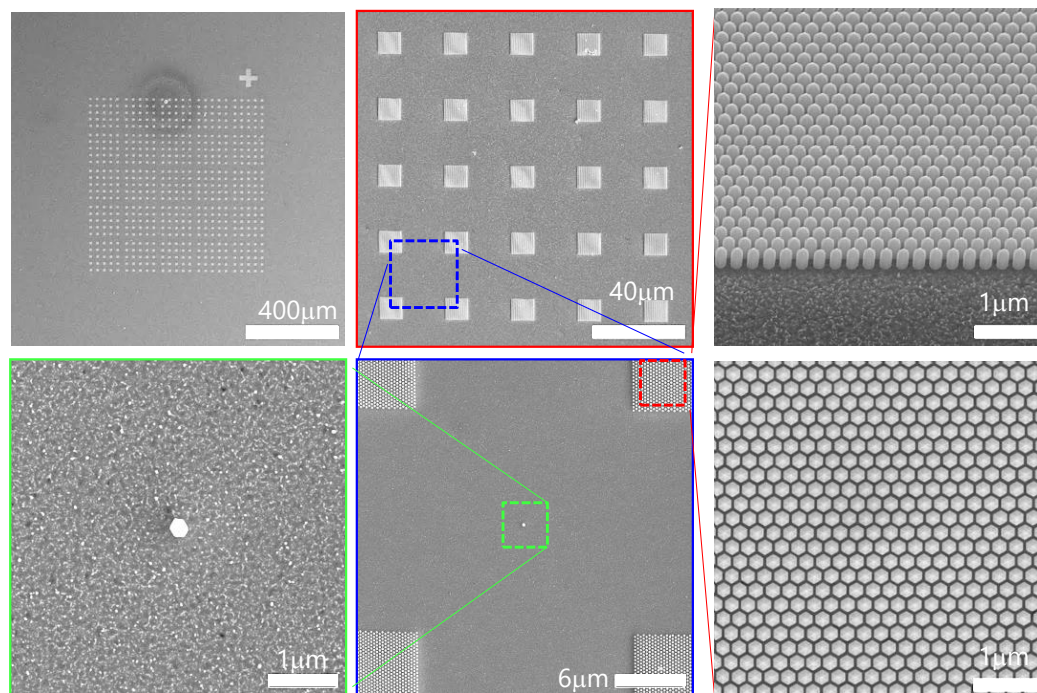


図 4 : 同一基板上に成長させた集積ナノコラムと単一ナノコラムの SEM 写真

単電子、光融合素子の集積化、高温動作に向けた新しい材料系として、上智大学グループが独自に提案したナノコラムを検討した。ディスプレイ等の応用に向け極めて活発に研究が進展し、特に他の材料系に比べて集積性($>10^{10}/\text{cm}^2$),位置制御性に優れている。単電子、光融合素子としての本研究では単一光子発生可能か否か、それらを集積できるか否かが重要である。このために、図3に示すように、同一基板上に単一ナノコラムと集積ナノコラムを同一成長条件により成膜し、評価を行った。

3. 研究成果

a. 電流注入型単電子単一光子融合素子の発光スペクトル

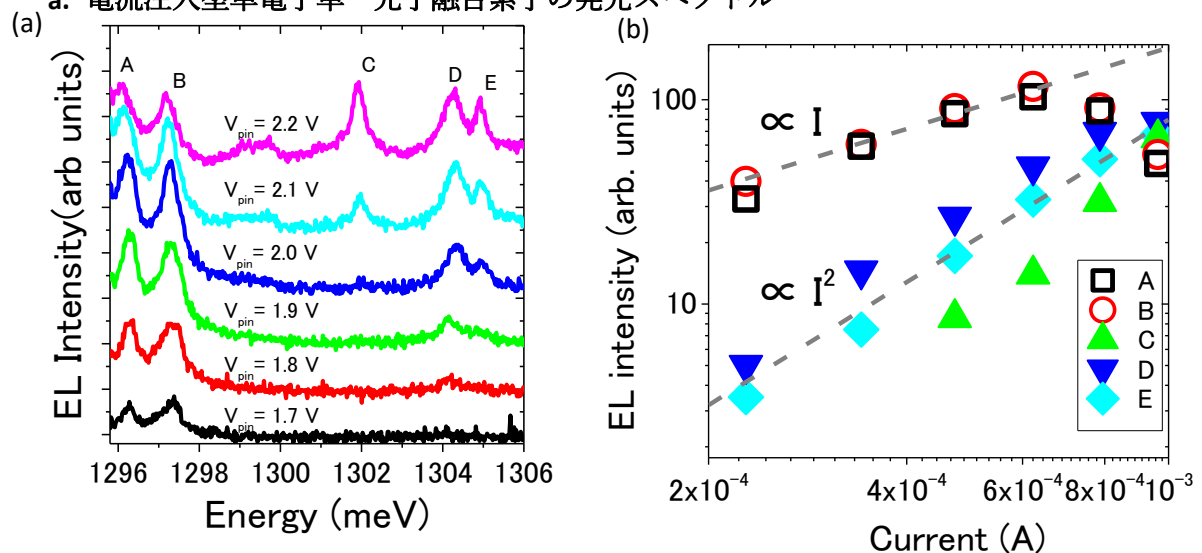


図5：(a)電流注入発光スペクトルのバイアス電圧依存性。(b)注入電流依存性

サイドゲートの高い制御を理論計算と光励起下における測定により実証し^{*f-ii}、印加においても単一光子発生可能であることを光子相関測定により実証した^{*f-iii}。

前節述べた素子と裏面からの測定手法により得た電流注入発光スペクトルを図5(a)に示す。定電流時には線幅 $100 \sim 200 \mu\text{eV}$ 程度のピークが数個見え、それぞれ単一量子ドットからのピークであることがわかる。図5(b)に示すように注入電流に対し、線形に増大するピークと二乗に比例するピークが有り、励起子だけでなく、荷電励起子、励起子分子といった複数キャリア状態も観測できており、基本的な動作を実証することができた。今後光子相関測定により同定を進めていくことで、量子ドット内荷電状態を制御したうえで単一光子発生可能な素子に発展させることができる。

b. 量子ドットへのプログラブル配線の実証と課題への取り組み

導電性フィラメントの量子ドットへの電気コンタクトを確認するため、まず多数量子ドットにおいて実験を行った。量子ドットには自己形成 InAs 量子ドット、抵抗変化材料としてアルミナを用いた。多数量子ドットの場合の理論計算による電場分布を図 6(a)にしめす。多数量子ドットにおいては電極に最も近い量子ドットに電場が集中することがわかる。作成した素子の模式図を図 6(b)に、量子ドットおよび測定した素子の SEM 写真を図 6(c)-(e)に示す。本素子では電極間隔が $2\mu\text{m}$ であり、量子ドットがない場合にはスイッチング電圧は 10V を超える。図 6(f)が量子ドットを含む場合の I-V であり、 1.5V 付近にスイッチングが見える。これは狙い通り高抵抗、低抵抗状態をもつプログラブルな導電性フィラメントが量子ドットに向けて成長し、電気的なコンタクトに成功したことを示唆している。さらにギャップ間隔を小さくし、ナノスケールのギャップ間隔において抵抗変化メモリとして動作することを実証した。^{*f-iv}

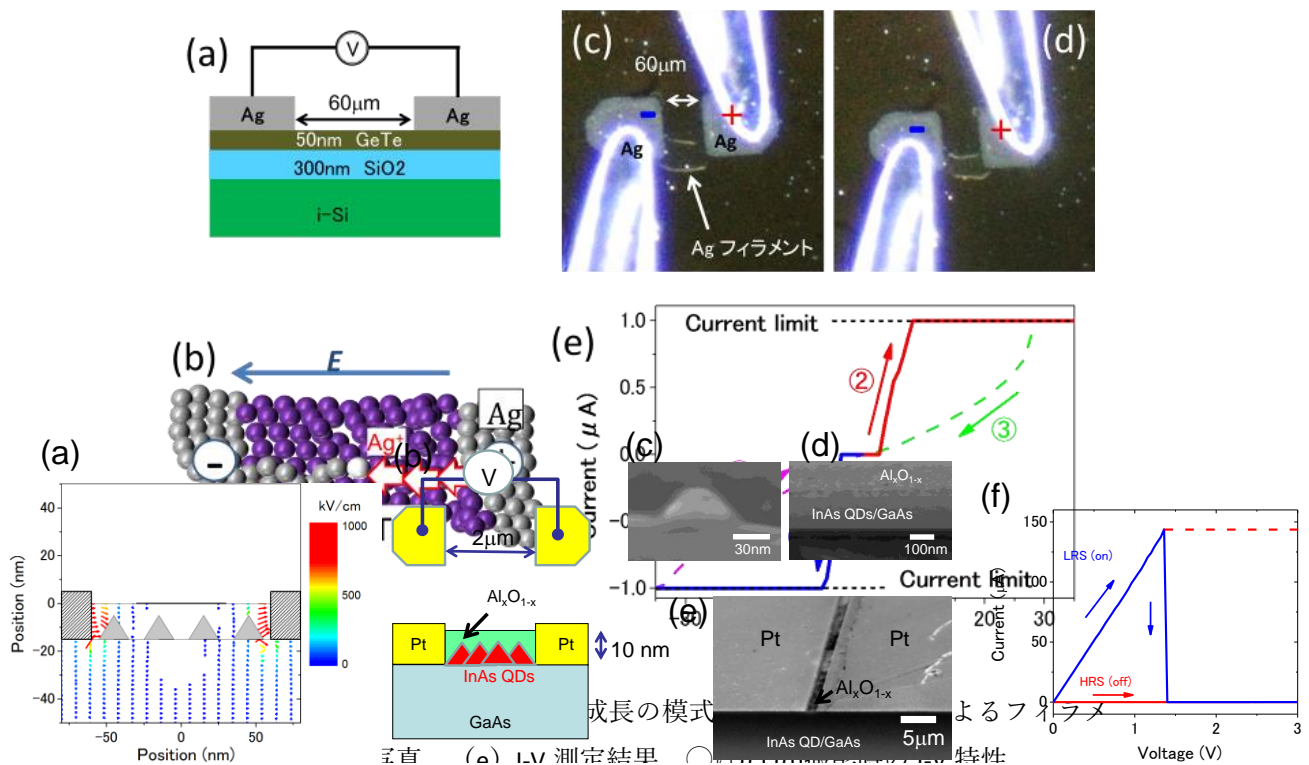


図 6: (a)理論計算により求めた ReRAM ($\text{Al}_x\text{O}_{1-x}$) - 量子ドット (金属) 融合素子内の電場分布。(b)試作した ReRAM 融合素子の模式図と (c-e)SEM 写真。(c)量子ドットの断面、(d)上部から見た Pt 蒸着前の $\text{Al}_x\text{O}_{1-x}$ 、(e)上部から見た素子構造。(f)典型的な電流-電圧測定結果。低抵抗状態 (LRS/on) - 高抵抗状態 (HRS/off) 間抵抗スイッチの様子。

先ほどの研究ではアルミナを抵抗変化材料として用い、導電性フィラメントは酸素欠損にもとづくものであったが、この材料系の組み合わせでは量子ドットを入れることで電流値が不安定になるという課題があることもわかった。この課題解決のため抵抗変化メモリ GeTe、導電性フィラメント Ag という新しい材料系を検討した。Ag とカルコゲナイド材料の組み合わせは、ECM (Electrochemical Metallization) と呼ばれる Ag イオン伝導に基づく導電性フィラメントが成長することがよく知られているが、量子ドットの親和性と制御性の向上を目指し、本研究ではカルコゲナイド材料として GeTe を用いた。GeTe の格子定数は 5.984 \AA であり、格子定数 6.058 \AA の InAs とミスマッチすくなく成膜できると期待できる。また、GeTe は Blu-ray disc の材料として知られ応用上も有利である。一方 ECM、Ag フィラメントの母体としてはほとんど研究がなく、本研究で初めて行うものである。

導電性フィラメント評価のための素子模式図、導電性フィラメント成長メカニズムの模式図をそれぞれ図 7(a),(b)に示す。電圧印加により、図 7 (c),(d)に示すように導電性 Ag フィラメントの成長が観測できる。このフィラメントの到達か否かにより低抵抗、高抵抗状態へスイッチングする様子も I-V 測定により確認できた*^{f-v} [図 7 (e)]。この成長は再現性があり、図 8 に示すように、100nm 以下の細いフィラメント成長も可能である。以上のようにナノスケールの量子ドットへの電気コンタクトに適していることがわかった。

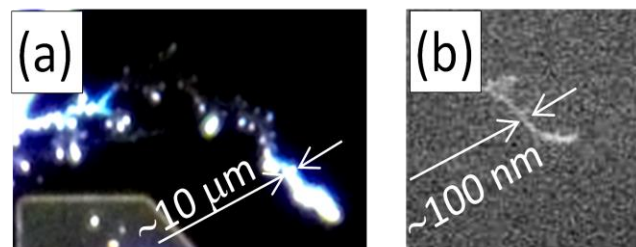
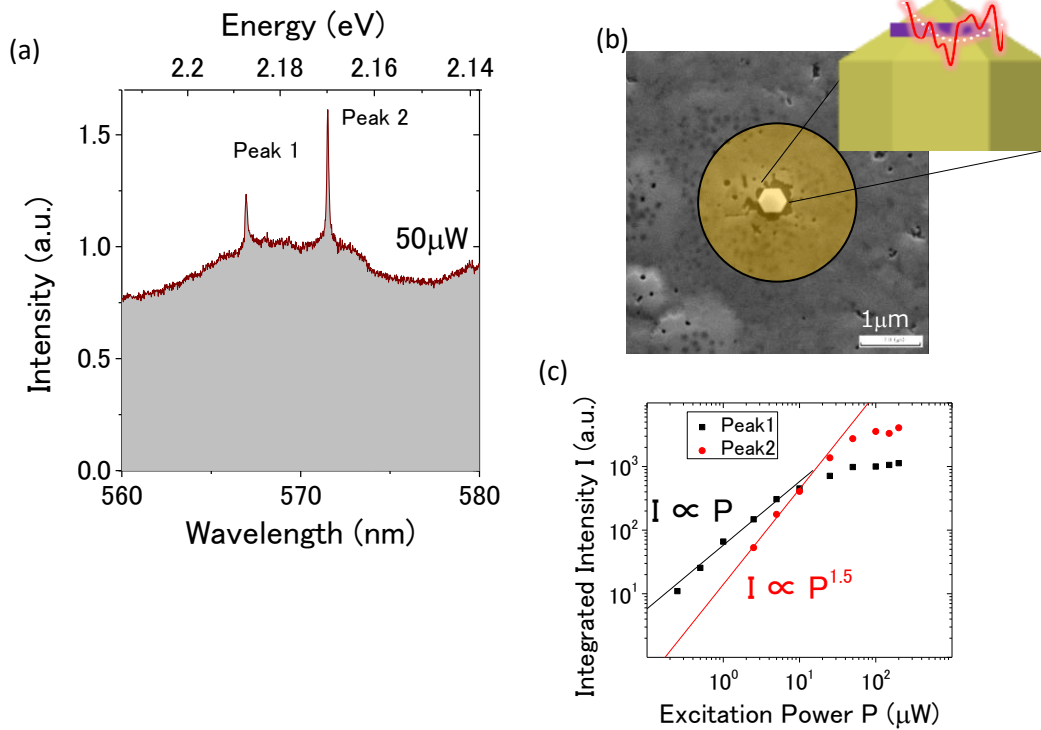


図 8：(a)低倍率顕微鏡によるマイクロフィラメント(b)走査型電子顕微鏡によるナノフィラメント

c. 単電子、光融合素子の集積化、高温動作に向けたナノコラムの研究



単電子単一光子融合素子の集積に向けたナノコラムの特性を調べるため、単一のナノコラムの顕微発光分光を起こった。図9(a)にスペクトルを示す。線幅300μeV程度の狭線発光が得られていることがわかる^{*f-vi}。これらの peak1, peak2 は図9(c)に示すように励起強度に対し、線形、2乗に比例し、励起子、励起子分子あるいは荷電励起子の発光とかがえられる。これらは、図9(b)に示すようなInGaN活性層のIn組成揺らぎによるもので、量子ドット的な電子状態を持っていることを確認できた。

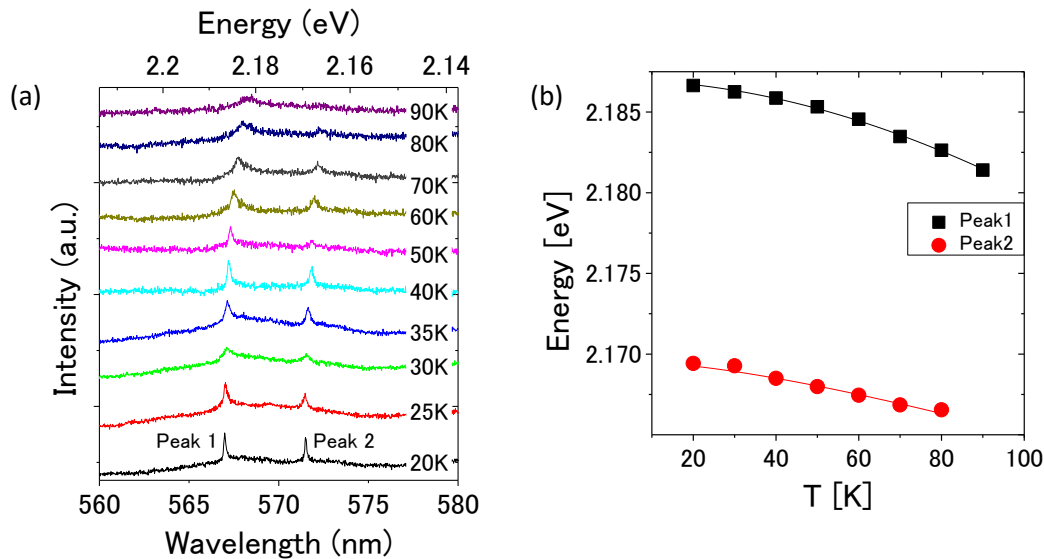
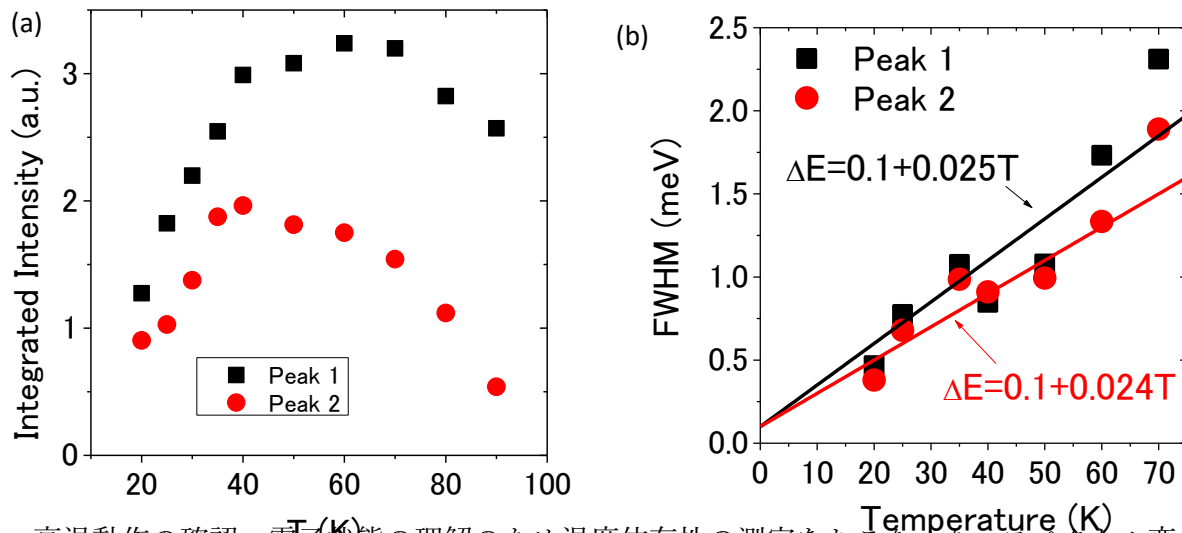


図10：(a)単一ナノコラムの顕微発光スペクトルの温度依存性(励起強度10μW). (b)発光ピークエネルギーのシフト



高温動作の確認、電子状態の理解のため温度依存性の測定をおこなった。スペクトル変化を図 10(a)に示す。温度上昇に伴い低エネルギー側にシフトしており、ピークエネルギーを温度に対してプロットしたものを図 10(b)に示す。このピークシフトは Varshni の式

$$E(T) = E(0) - \frac{\alpha T^2}{T + \beta}$$

により良くフィッティングできる。フィッティングパラメータは

peak 1 が $\alpha = 7 \times 10^{-4}$ eV/K, $\beta = 8 \times 10^2$ K peak2 が $\alpha = 1 \times 10^{-4}$ eV/K, $\beta = 2 \times 10^2$ K であり、

自己形成型の InGaN ナノワイヤでの報告[S. Deshpande, Nature Comm. (2013).]とほぼ同様である。つまり母体半導体のバンドギャップ変化によるものであることがわかった。

発光強度の温度依存性を図 11(a)にしめす。40K 付近で最大となり、90K でも極低温下に匹敵する発光強度であることがわかる。ナノコラムが単一光子素子の高温動作に向けた材料系であることがわかった*^{f-vi}。

一般にゼロ次元系のフォノンによるブロードニングに起因し、発光線幅は

$$\Delta E(T) = \Delta E(0) + AT + B \frac{1}{e^{\hbar\omega_{LO}/kT} - 1}$$

により良く説明できることが知られている。本材料系

では GaN の LO フォノンのエネルギーが $\hbar\omega_{LO}(\text{GaN}) = 91\text{meV}$ のため本実験の範囲内では kT に比べ十分大きく、第 3 項は無視できる。つまり、温度に対し線形になると予想される。実際図 11(b)に示すように線形となることが確認できた。フィッティングパラメータ A は $A \sim 25\mu\text{eV/K}$ であり音響フォノン寄与($\sim 1\mu\text{eV/K}$)よりも 1 桁以上大きい。これは非局在状態,他の局在準位への熱励起の存在を示唆しており、スペクトル拡散 (他キャリアからのクーロン相互作用) の増大が生じているものと考えられる。

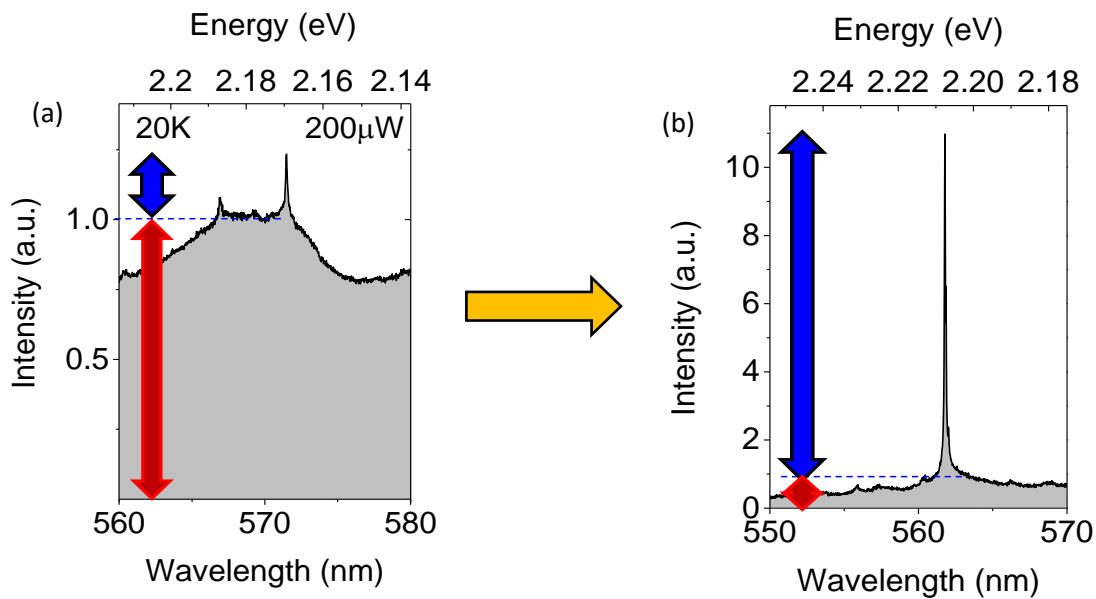


図 13 : (a)金属被膜プロセス前の顕微発光スペクトル。比較のためバックグラウンド光強度を 1 として規格化してある。(b) 金属被膜プロセス後の顕微発光スペクトル。

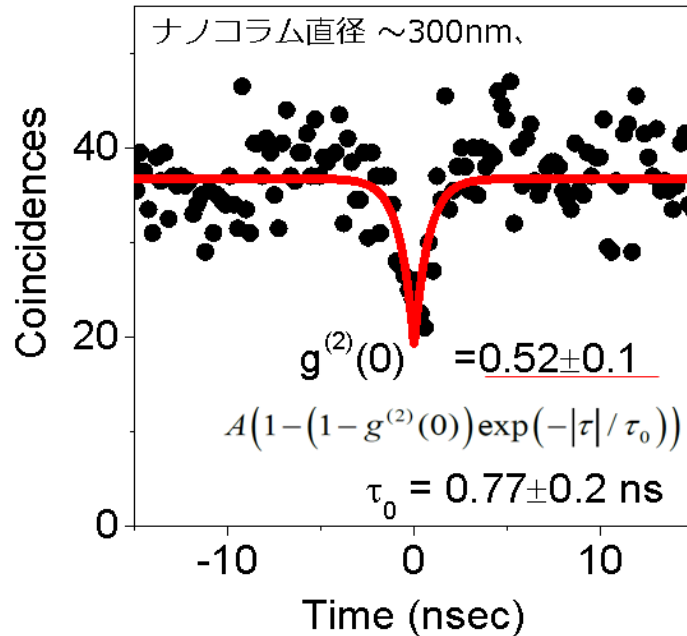


図 14：HBT 測定による自己相関光強度信号。赤線は図に示した式によるフィッティング曲線

以上のようにナノコラムは単一光子として有望な特性を持っていることが確認できたが、図 9(a)のスペクトルにもあるように狭線発光以外にブロードなバックグラウンド発光を持つという欠点を持つ。このバックグラウンド発光はナノコラム外の堆積物からの発光であり、この課題解決のために図 12 に示すように堆積物除去を行い、さらに基板からの発光も抑えるため金属 (Ti/Ag/Au) 被膜によるシャドーマスクを作成した^{*f.vii}。図 13 に示すように挟線発光強度：バックグラウンド光強度を 10：1 以上に改善することができた。この技術を用いて単一ナノコラムからの単一光子発生判定の測定のための Hanbury Brown and Twiss (HBT) の自己光強度相関測定を実施した。図 14 のように明瞭なアンチバンチングが観測できた。指標となる $g^{(2)}(0)$ は生データで 0.52 であった^{*f.vii}。本ナノコラムにおいてはシャドーマスク作成後もバックグラウンドはゼロではなく残存している。本実験条件では局在状態(シグナル)の積分強度 S とバックグラウンドの積分強度 B の比率は $\rho = S/(S+B) = 0.89$ であった。この残存バックグラウンドは他の局在状態あるいは連続状態からの発光と考えられ、本局在状態と無関係であるので、式

$$g_{cor}^{(2)}(0) = \left[g^{(2)}(0) - (1 - \rho^2) \right] / \rho^2 \quad (\text{R. Brouri et al., Opt. Lett. 2000, C. Becher et al., PRB})$$

2001)により除去するとバックグラウンドの影響除去後は、 $g^{(2)}_{\text{corr}}(0) = 0.39$ であり、本ナノコラムから単一光子発生していることを実証できた。^{*f-vii}この他の局在状態、連続状態からなる残存バックグラウンドはナノコラム直径縮小により更に小さくできるため、ナノコラムにおける $g^{(2)}(0)$ は直径縮小により更に改善できると期待できる。

研究発表リスト

雑誌論文

- f1. ^{*f-vii} Takatoshi Yamamoto, Michiru Maekawa, Yusuke Imanishi, Shunsuke Ishizawa, Toshihiro Nakaoka, Katsumi Kishino, “Photon correlation study of background suppressed single InGaN nanocolumns”, Japanese Journal of Applied Physics 55, (in printing).
- f2. N. Shimosako, Y. Inose, H. Satoh, K. Kinjo, T. Nakaoka, T. Oto, K. Kishino and K. Ema, “Carrier-density dependence of photoluminescence from localized states in InGaN/GaN quantum wells in nanocolumns and a thin film”, J. Appl. Phys. 118, 175702/1-5 (2015).
- f3. Toshio Saito, Toshihiro Nakaoka, and Yasuhiko Arakawa, “Effect of lateral electric field on the transition energies of neutral and charged excitons in In 0.5 Ga 0.5 As/GaAs quantum dots”, PHYSICAL REVIEW B 91, 115306/1-12 (2015).
- f4. ^{*f-vi} K. Sekine, Y. Onoue, T. Yoshiike, K. Asami, S. Ishizawa, T. Nakaoka, K. Kishino, “Single InGaN nanocolumn spectroscopy”, Japanese Journal of Applied Physics 54, 04DJ03/1-5 (2015).
- f5. ^{*f-iv} Toru Miyabe and Toshihiro Nakaoka, “Nanogap Resistance Random Access Memory Based on Natural Aluminum Oxide”, Jpn. J. Appl. Phys. 52 (2013) 04CJ08.
- f6. Toshihiro Nakaoka, Hiroki Satoh, Saori Honjo, and Hideo Takeuchi, "First-sharp diffraction peaks in amorphous GeTe and Ge₂Sb₂Te₅ films prepared by vacuum-thermal deposition", AIP ADVANCES 2, 042189/1-6 (2012).
- f7. ^{*f-i} T. Nakaoka, K. Watanabe, N. Kumagai, and Y. Arakawa, "A single-electron probe for buried optically active quantum dot", AIP Advances 2, 032103 (2012).
- f8. ^{*f-iii} T. Nakaoka, Y. Tamura, T. Saito, T. Miyazawa, K. Watanabe, Y. Ota, S. Iwamoto, and Y. Arakawa, "Wavelength tunable quantum dot single-photon source with a side gate", Japanese Journal of Applied Physics, 51,02BJ05 (2012).
- f9. ^{*f-ii} T. Nakaoka, Y. Tamura, T. Saito, T. Miyazawa, K. Watanabe, Y. Ota, S. Iwamoto, and Y. Arakawa, “Competing influence of an in-plane electric field on the Stark shifts in a semiconductor quantum dot”, Applied Physics Letters. 99, 181109/1-3 (2011).

学会発表

- f10. ^{*f-vi} Takatoshi Yamamoto, Michiru Maekawa, Yusuke Imanishi, Shunsuke. Ishizawa, Toshihiro Nakaoka, and Katsumi Kishino, "Photon correlation study of background suppressed single InGaN nanocolumns", 47th Solid State Devices and Materials (SSDM 2015), H-6-3, Sapporo, Japan.
- f11. ^{*f-v} Toshihiro Nakaoka, Hiroki Satoh, Yukiomi Nishiyama, Shimon Kida, and Yusuke Imanishi, Saori Honjo, Hideo Takeuchi, “Intermediate range order in Ge-(Sb)-Te amorphous films

- prepared by vacuum thermal evaporation and electrochemical metallization memory prepared by RF magnetron sputtering”, PCOS2015 (静岡) (2015) (招待講演) .
- f12. ^{*f-v}Yusuke Imanishi and Toshihiro Nakaoka, “Faradaic currents studied by cyclic voltammetry in amorphous Ge-Sb-Te films”, PCOS2015 (静岡) (2015)
- f13. ^{*f-v}Yusuke Imanishi and Toshihiro Nakaoka, “Direct observation of unconventional Ag filament growth in GeTe amorphous films”, PCOS2015 (静岡) (2015).
- f14. ^{*f-v}今西 佑典、中岡 俊裕, Ge-Sb-Te 薄膜におけるファラデー電流と抵抗スイッチ現象の共存, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学 [22a-W331-8] (2016).
- f15. ^{*f-vii} 山本貴利、前川未知瑠、今西佑典、関根清登、石沢峻介、中岡俊裕、岸野克巳, InGaN/GaN ナノコラム局在状態からの直線偏光発光, 第 76 回応用物理学会学術講演会、名古屋国際会議場(2015) [14a-4D-4]
- f16. ^{*f-v}今西 佑典、木田 士文、中岡 俊裕, Ge-Sb-Te 系抵抗変化メモリにおける Sb 組成と Ag 電極の影響, 第 76 回応用物理学会学術講演会、名古屋国際会議場(2015) [14a-PB7-4]
- f17. ^{*f-v}西山 幸臣、今西 佑典、中岡 俊裕, ナノギャップ電極を用いた GeTe 薄膜における抵抗スイッチング現象, 第 76 回応用物理学会学術講演会、名古屋国際会議場(2015)[14p-2R-1]
- f18. ^{*f-vii} 山本 貴利、前川 未知瑠、今西 佑典、関根 清登、澄川 雄樹、石沢 峻介、中岡 俊裕、岸野 克巳, InGaN/GaN 堆積物除去と単一ナノコラム発光, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 東海大学(2015) [11a-A10-11]
- f19. ^{*f-v}今西 佑典、木田 士文、宮邊 徹、中岡 俊裕, Ag 微粒子を配置した GeTe における抵抗スイッチ現象, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 東海大学 (2015) [12a-A28-1]
- f20. ^{*f-v}木田士文、宮邊徹、桑原大輔、中岡俊裕, Ge-Sb-Te 系材料における Ag 電極を用いた抵抗スイッチ現象, 第 75 回応用物理学会学術講演会、北海道大学(2014) [18a-A26-1]
- f21. ^{*f-vi} 関根清登、尾上洋平、吉池徹、浅見康太、石沢俊介、中岡俊裕、岸野克巳 単一 InGaN ナノコラムにおける狭線発光と温度依存性 第 75 回応用物理学会学術講演会、北海道大学(2014)[19a-A27-9]
- f22. ^{*f-iv} 兼平達也、宮邊徹、小淵敦生、中岡俊裕 RF スパッタ法で作製したアルミナにおけるナノギャップ電極を用いた抵抗スイッチ現象 第 75 回応用物理学会学術講演会、北海道大学(2014)[20p-A10-7]
- f23. ^{*f-vi} K. Sekine, Y. Onoue, T. Yoshiike, K. Asami, S. Ishizawa, T. Nakaoka, and K. Kishino, "Single InGaN nanocolumn spectroscopy", 46th Solid State Devices and Materials (SSDM 2014), PS-9, Tsukuba, Japan.
- f24. ^{*f-iv} 宮邊 徹、中岡俊裕, ”アルミニウム自然酸化膜を用いたナノギャップ ReRAM”, 2012 年秋季 第 73 回応用物理学会学術講演会、12p-C13 - 1、松山大学(2012).
- f25. ^{*f-iiiv} T. Miyabe and T. Nakaoka, “Nanogap ReRAM Based on Natural Aluminum Oxide”, 44th

International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), September 25-27 2012, PS-9-7, Kyoto, Japan(2012).

- f26. Hiroki Satoh, Toshihiro Nakaoka, Hideo Takeuchi, “Good Stoichiometry Achieved by Simple Vacuum-thermal Deposition of GeTe and Ge₂Sb₂Te₅ Thin Films”, Fifth International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA 12), 3P-35, ID 1282, June 6, 2012.