

超高密度量子ドットの結晶成長技術と その光電子デバイスへの応用

電気通信大学

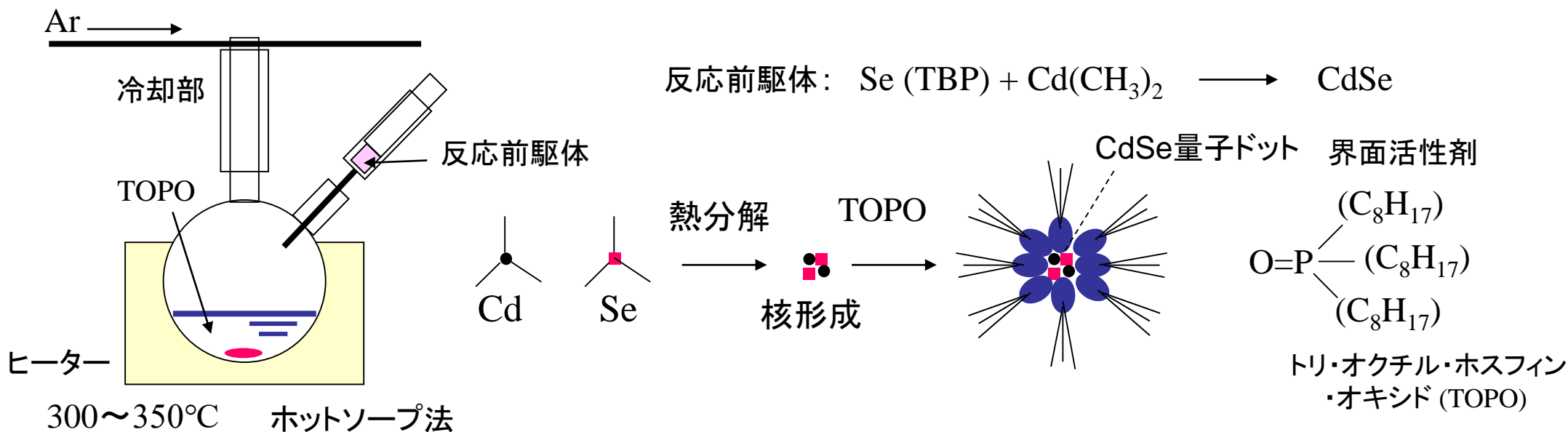
大学院情報理工学研究科 基盤理工学専攻

教授 山口 浩一

2024年5月14日

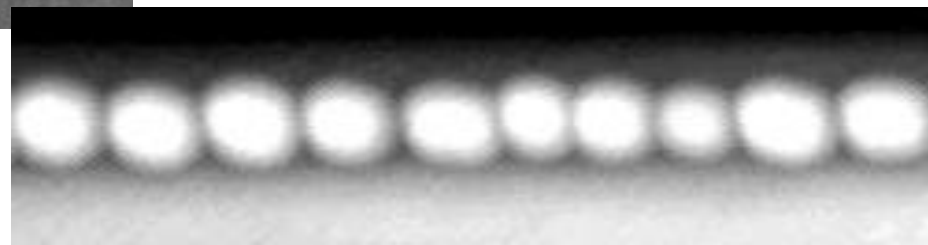
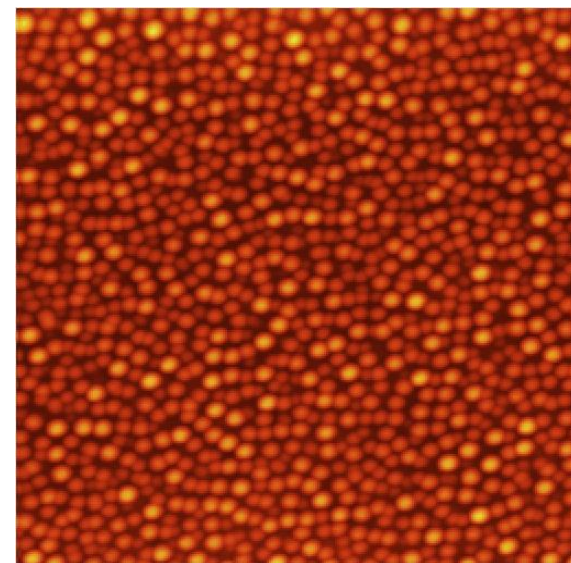
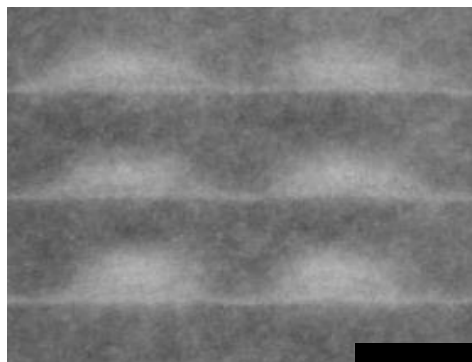
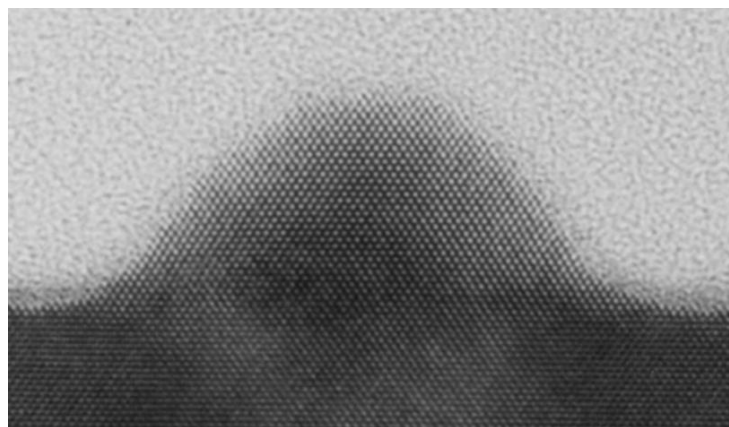
コロイダル量子ドット

(溶液中の化学合成)

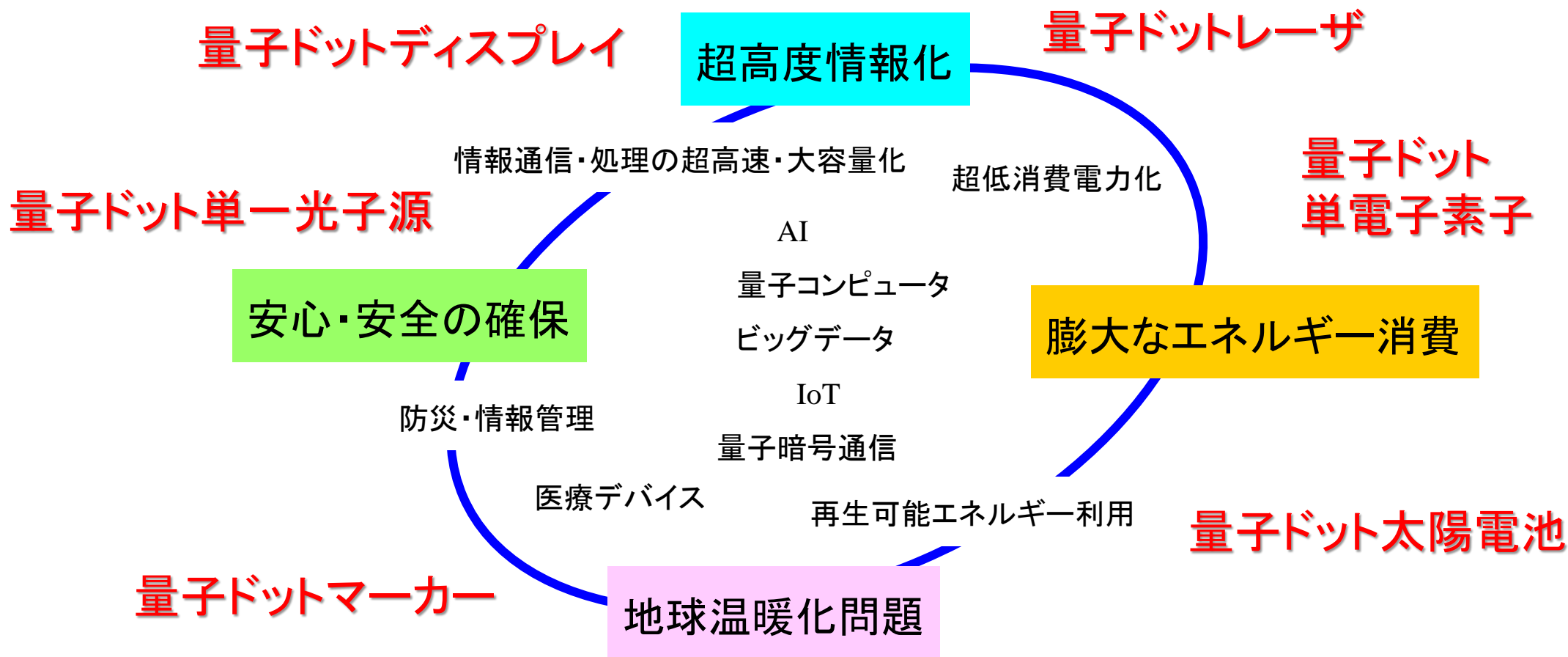


エピタキシャル量子ドット

半導体結晶成長技術による基板結晶上に高品質の量子ドットの作製



人類社会の持続的発展に向けた「量子ドットデバイスの開発」



大学の基礎研究によって構築された量子技術を社会実装に繋げる

量子未来創生デバイス開発センターの設立(2024年5月予定)

企業等との共同研究を積極的に展開

【概念・理論】

【作製技術】

【デバイス応用】

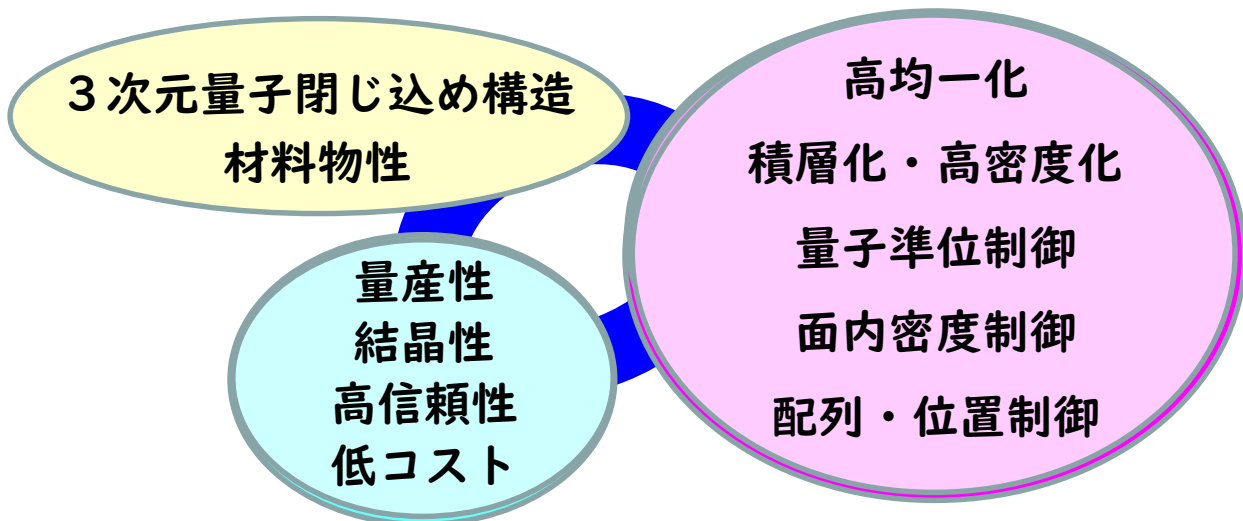
1980年
1990年
2000年
2010年
2020年

量子ドットレーザ (理論)
(各種量子ドットデバイス提案)
(量子ドット物性研究)
量子情報デバイス (理論)
エネルギー変換デバイス (理論)

化学合成法
エピタキシャル成長法
(ストランスキ・クラスタノフ成長法)

結晶品質
積層化
高均一化
高密度化
配列・位置制御

量子ドットレーザの試作
量子情報デバイスの試作
量子ドット太陽電池の試作
量子ドットレーザの実用化
量子ドットディスプレイの実用化
Si フォトニクスへの展開

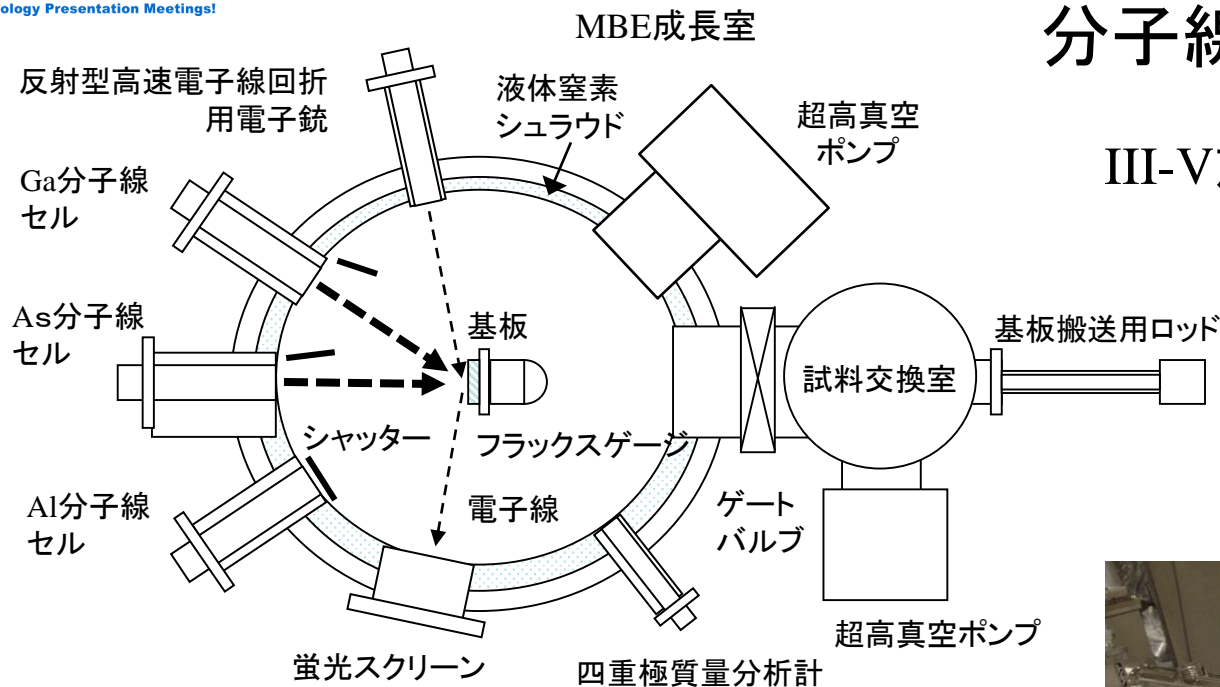


量子ドットの作製技術の進展

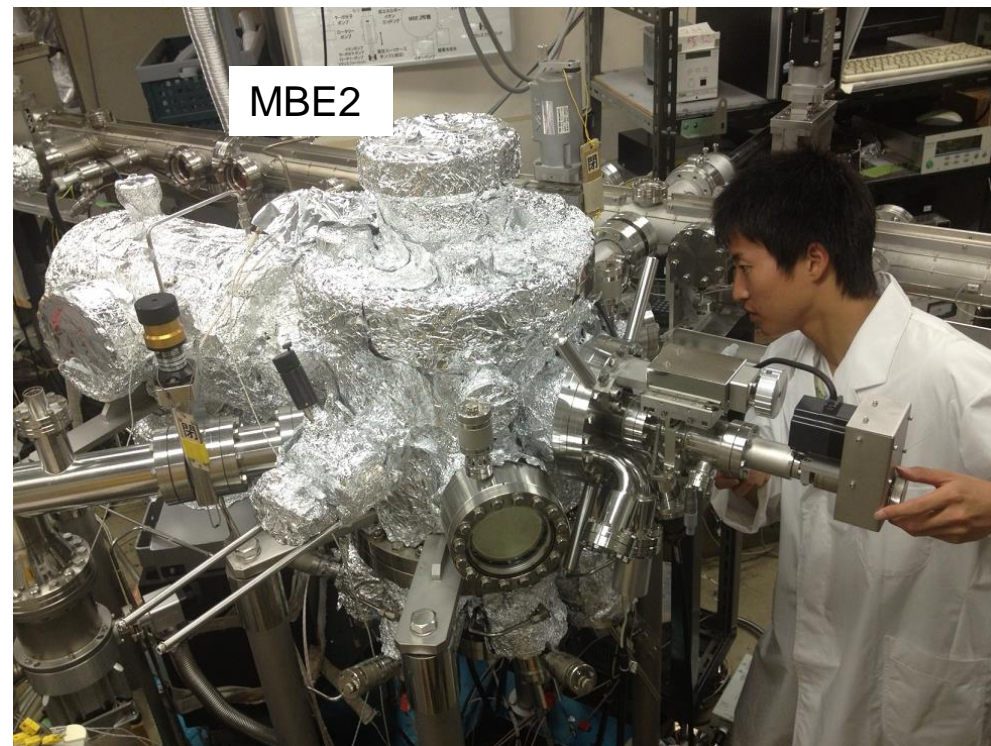
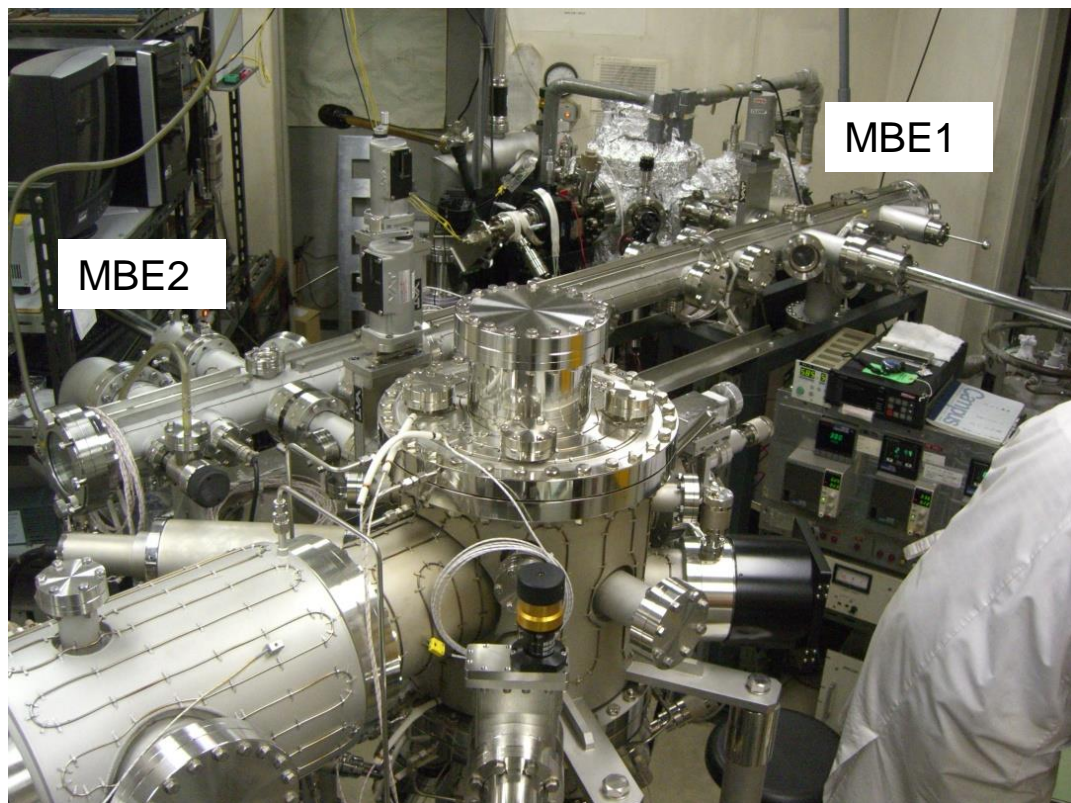
↓
量子状態制御
↓
革新デバイス

分子線エピタキシー(MBE)

III-V族半導体のエピタキシャル成長技術



超高真空($\times 10^{-10}$ Torr)下で、高純度原料を分子線にして基板表面に照射し、単結晶薄膜を成長する。反射型高速電子線回折(RHEED)により、成長表面構造をリアルタイム観察する。



①エピタキシャル量子ドットのデバイス応用

1.1 高性能の量子ドットレーザへの応用

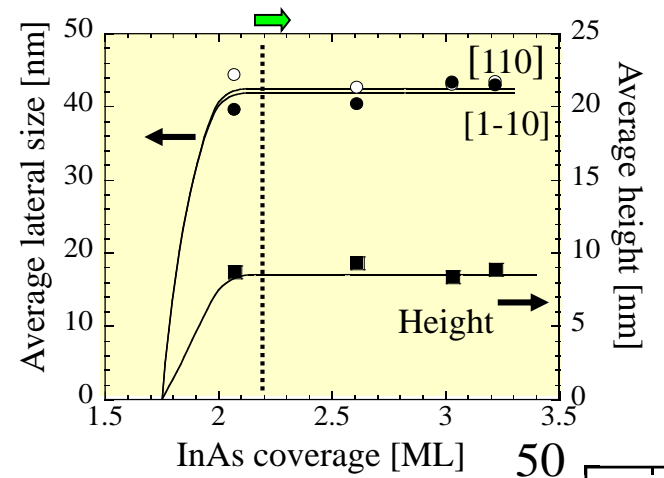
従来技術とその問題点

高均一・高密度の量子ドットの作製技術により、量子ドットレーザは実用化されたが、さらなる特性の向上には、量子ドットの**さらなる高均一化**、**さらなる高密度化**が重要である。高密度化には量子ドット層の積層化技術があるが、1層の面内密度が不十分 ($5 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ 程度) であるため、多くの積層数 (10層程度) が必要となり、活性層の膜厚が増大し、特性の低下やコストの増大の問題が発生する。よって、量子ドットの**面内密度をさらに高密度化 (10倍以上)** する技術の開発が重要である。

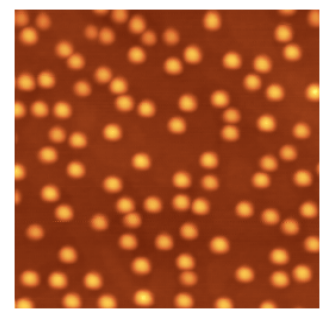
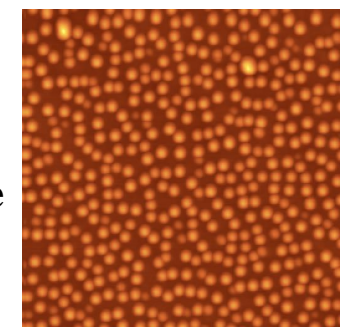
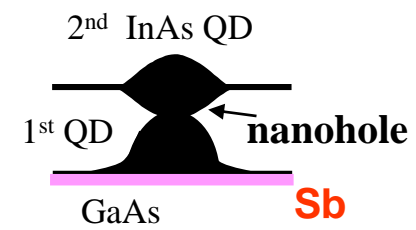
(2000年) 高均一量子ドット

(2005年) 高密度量子ドット

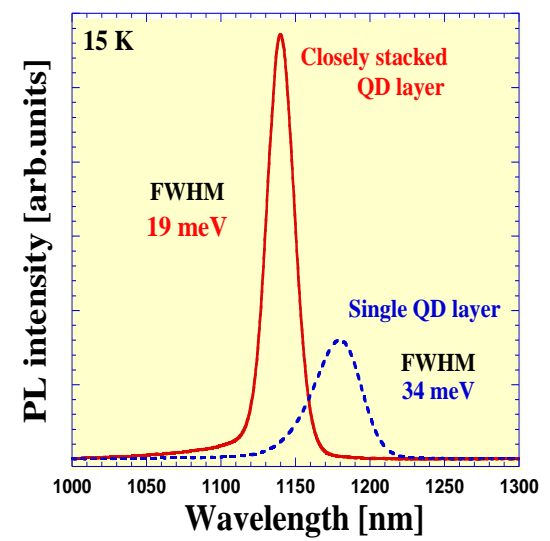
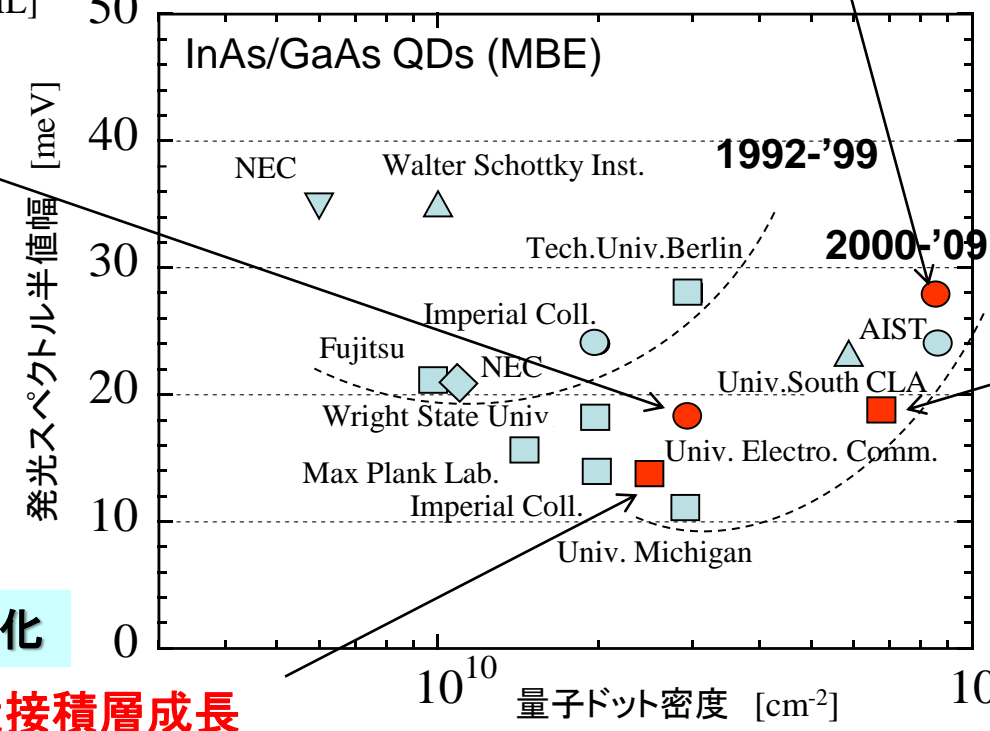
(2009年) 高密度・高均一化



Sb導入法

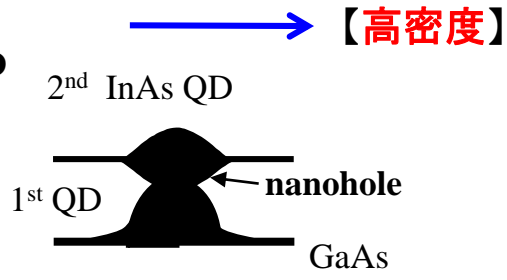
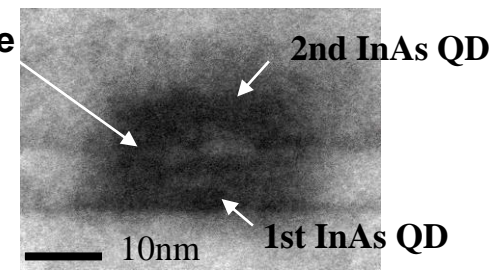
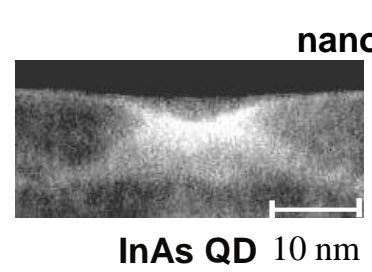


ドットサイズ
自己制限効果



(2006年) 高均一化

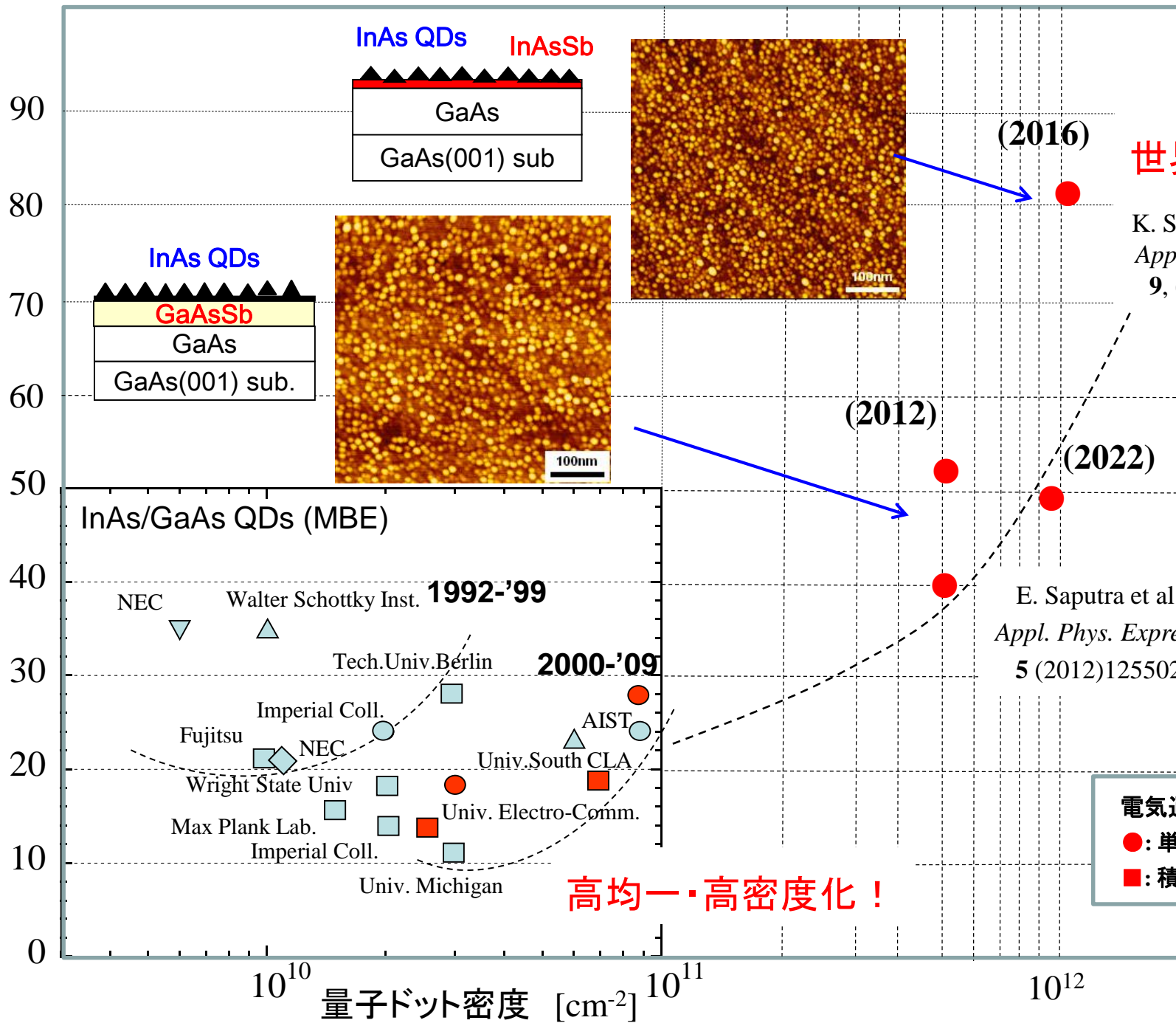
ナノホール上の近接積層成長



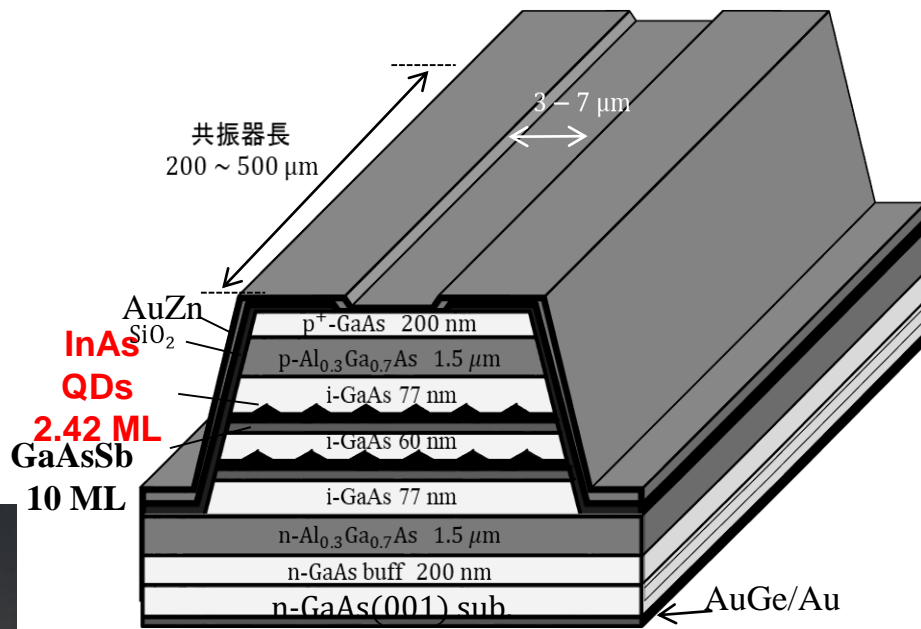
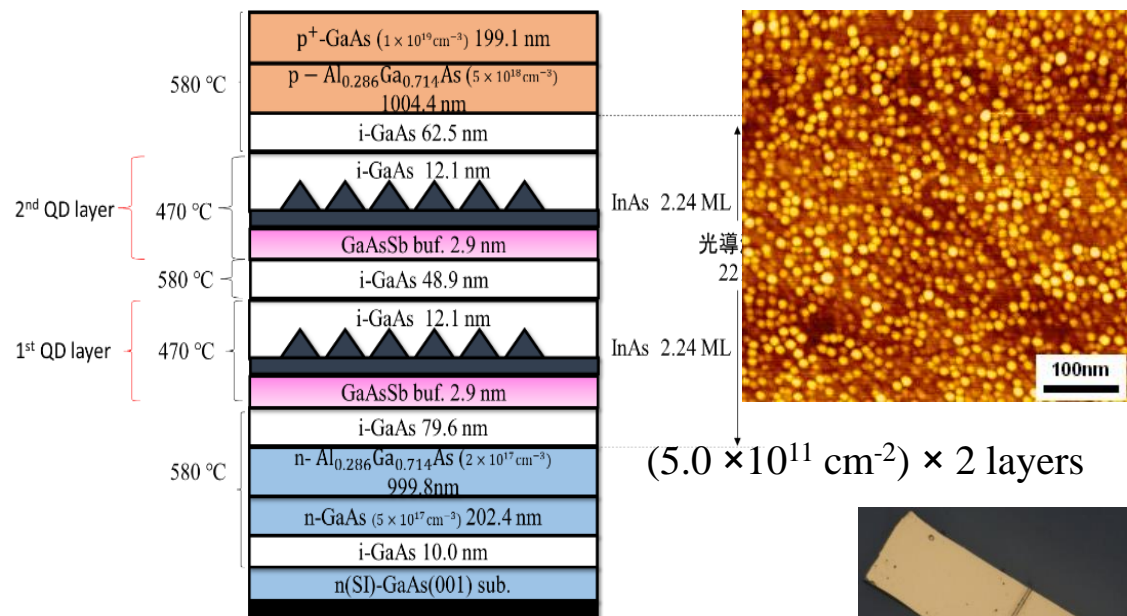
量子ドット国際会議で受賞

世界トップレベルの量子ドット作製技術 (高均一・高密度化, 面内超高密度化)

量子ドット集合体の発光エネルギー幅(不均一幅) [meV]



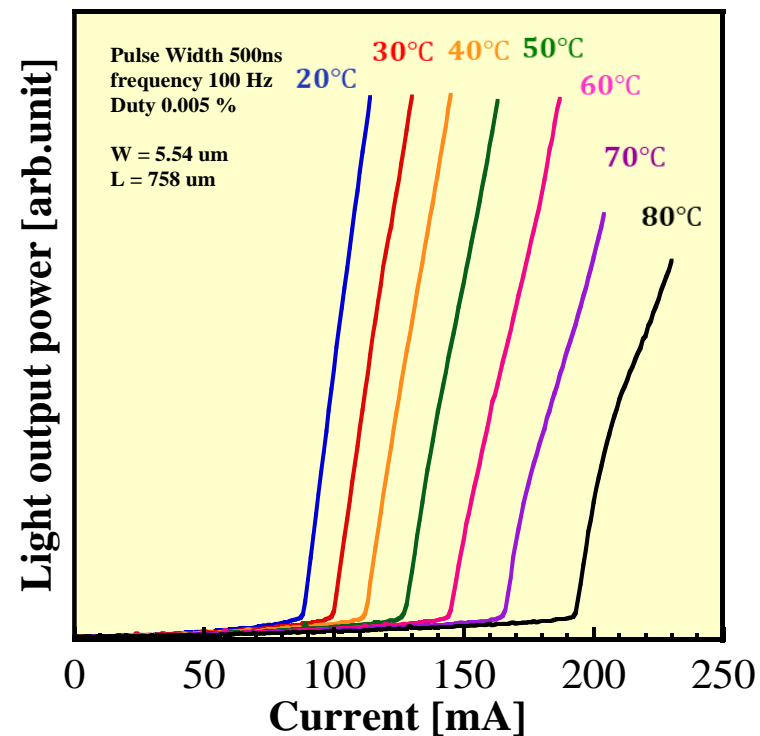
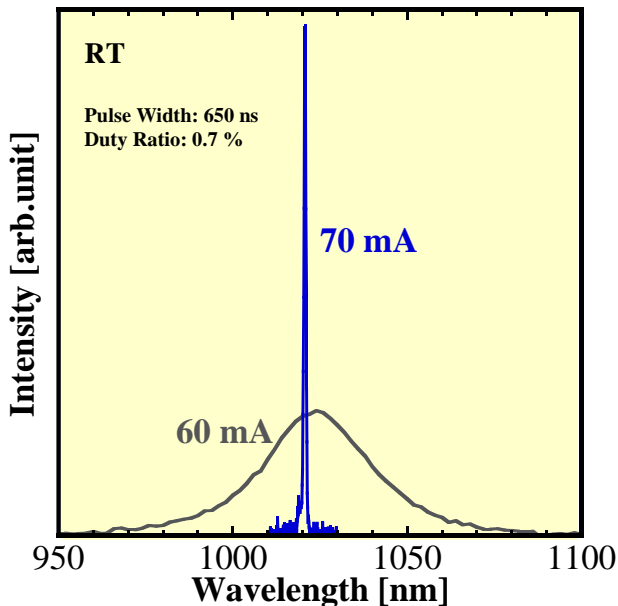
面内超高密度量子ドットレーザの作製



リッジ型メサストライプQDレーザ

- ★量子ドット積層数：通常は**10層**程度
→ **2層**
- ★共振器長：通常は **1 mm**以上
→ **0.2~0.5 mm**
- ★通常は端面に高反射(HR)コート
→ **HRコート無し**

- ★室温連続発振
- ★低い内部損失
- ★高温動作・高い温度安定性



①エピタキシャル量子ドットのデバイス応用

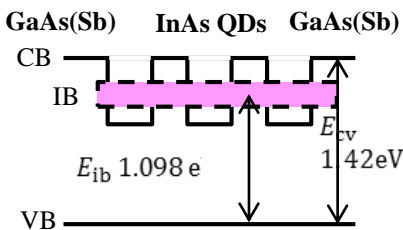
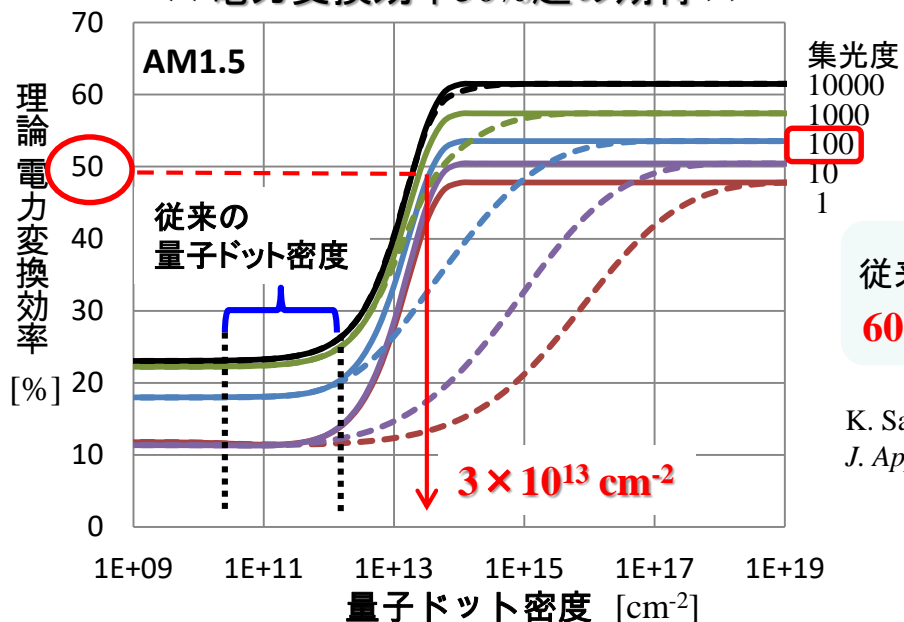
1.2 高効率の量子ドット太陽電池への応用

従来技術とその問題点

量子ドット太陽電池の実用化においても量子ドットの高均一化・高密度化の作製技術の開発は重要である。特に、従来の量子ドットの面内密度 ($5 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ 程度) では、理論計算によると、量子ドットの積層数は**600層**も必要になり、実用化は困難である。そこで、量子ドットの面内密度を増加させる作製技術が必須であり、当研究室では、**世界最高密度の $1 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$** を実現し、**実用化に近づいた**と言える。さらに、面内超高密度化により、量子ドット層内でのキャリア伝導効果が確認され、量子ドット内での**キャリアの再結合の抑制**、**2段階光励起効果の促進**を確認している。

中間バンド型量子ドット太陽電池の開発

<< 電力変換効率50%超の期待 >>



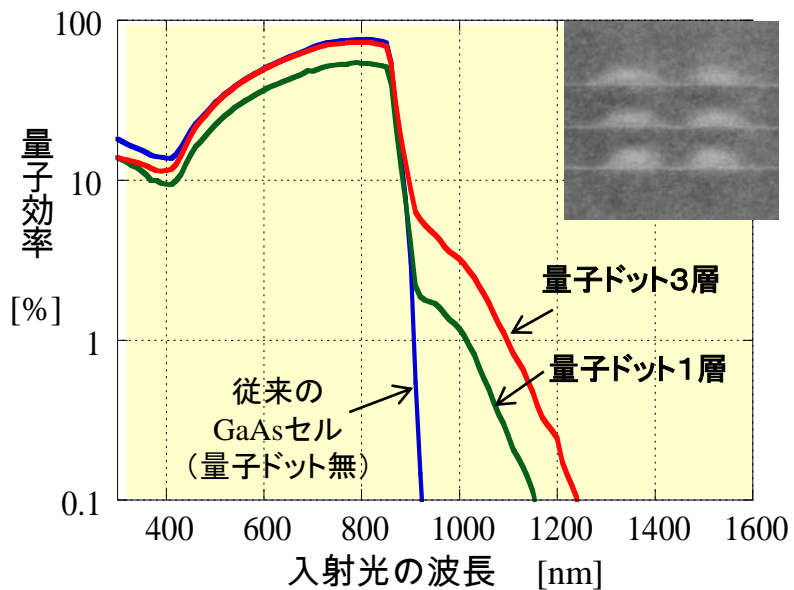
従来の面密度: $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$
600層の積層が必要

K. Sakamoto, T. Kondo, K. Yamaguchi,
J. Appl. Phys. **112** (2012) 124545.



量子ドット太陽電池の試作 (電通大・山口研)

InAs量子ドット: $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$



E. Saputra, J. Ohta, N. Kakuda, K. Yamaguchi
Appl. Phys. Express **5**, (2012) 125502.

世界最高密度を達成!

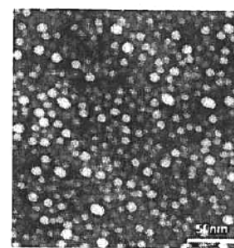
$1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$

30層の積層構造で
 $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ を達成可

K. Sameshima, T. Sano,
K. Yamaguchi,
Appl. Phys. Express **9** (2016)
075501.

日刊工業新聞
2014. 2.11
(転載承認済)

高密度・均一粒径 量子ドット作製

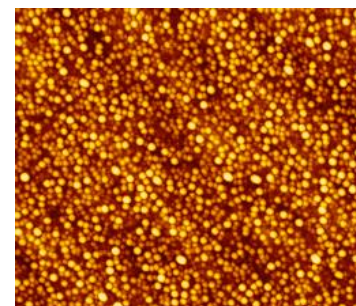


ガリウムヒ素を基板に
し、インジウムヒ素を
シモンを一緒に結晶成
長させて量子ドットを作
製する。原料の供給方法
を改良することで、密度
を向上させた技術で作製
した量子ドット(電通大
提供)

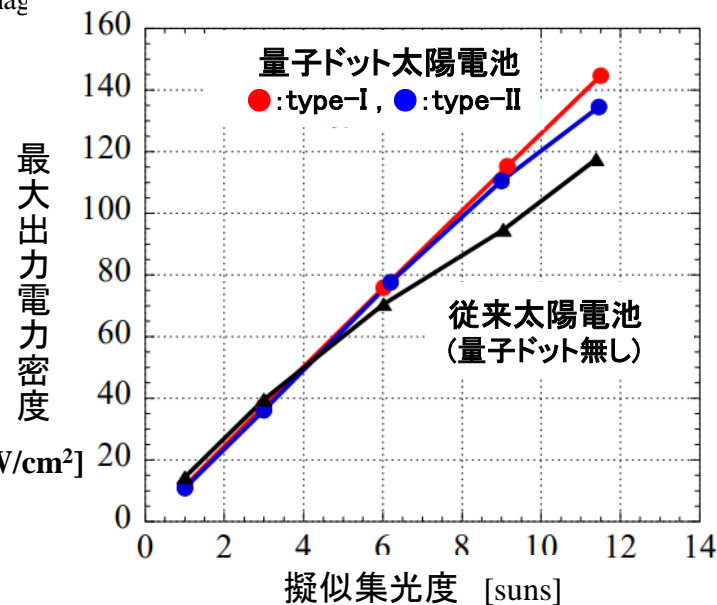
層数20分の1に削減

電通大の山口 教授らは、型を極小空間に閉じこめる導電性結晶の「量子ドット」を、高密度に均一な大きさに作製する技術を開発した。高い出力が必要で量子ドットを、少ないプロセスで作れるようになる。例えば電力変換効率が高く実用化が期待されている中間バンド型太陽電池に活用する場合、必要な量子ドットの数を従来の20分の1に削減できる。今後はデバイスとして性能の評価を進め、量子ドット太陽電池への応用を目指す。

電通大

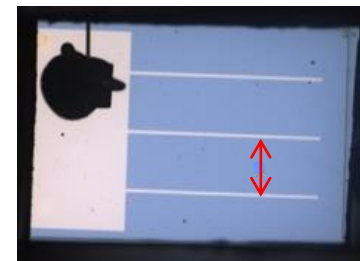


と均一性を求めた。従来に比べて20倍密度となる1平方センチあたり10億個の量子ドットを作製した。ドットの平均粒径は約5ナノメートル(10億分の1)。中間バンド型太陽電池で50%の変換効率を実現



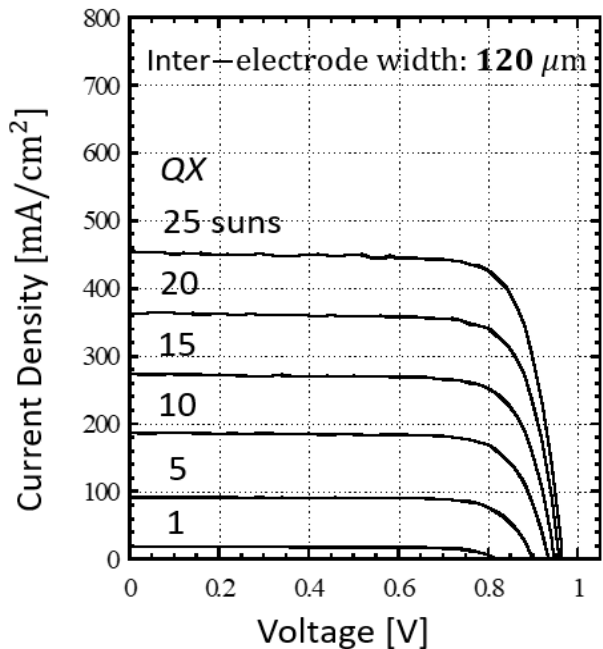
量子ドットは直径が数ナノメートルの結晶で、閉じこめた電子の性質を制御する技術。超小

中間バンド型太陽電池実用化に道

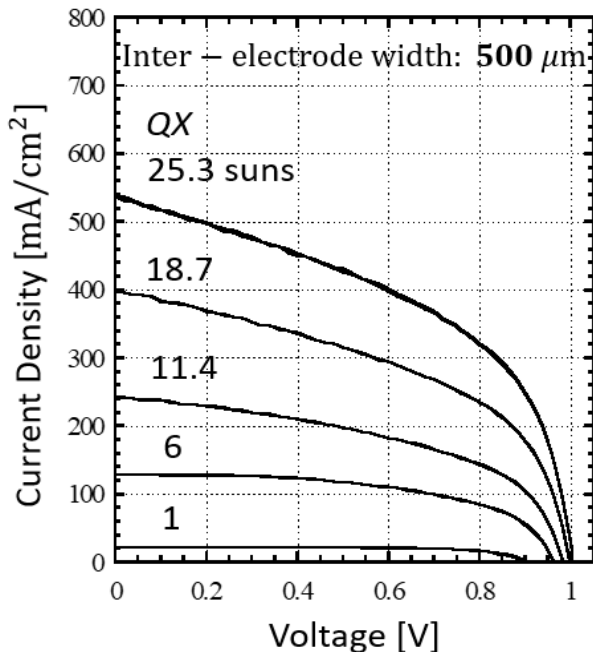


実験

GaAs太陽電池 (120 μm)

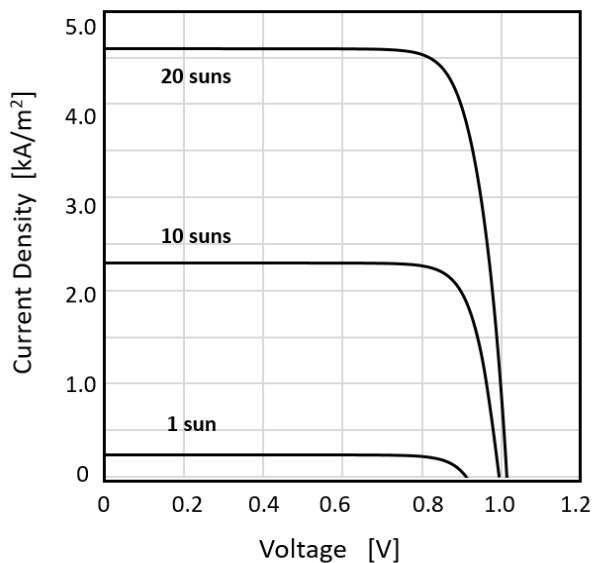


GaAs太陽電池 (500 μm)

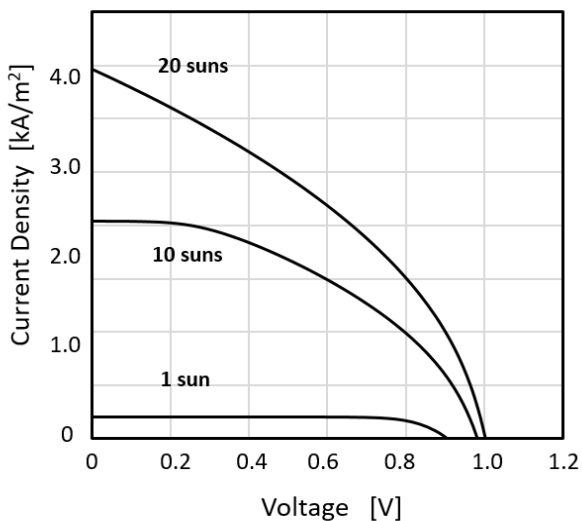


計算

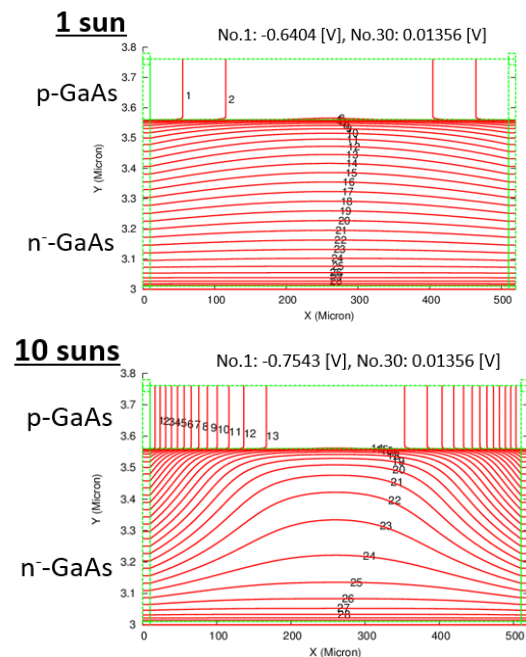
GaAs太陽電池 120 μm



GaAs太陽電池 500 μm



セル内の電位分布の計算結果
(電極間距離: 500 μm)



集光度の増加

- 電流増大
- 横方向電圧降下
- FFの低下

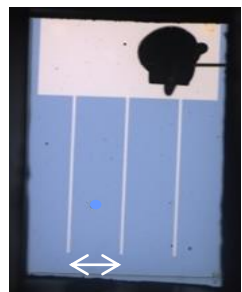
APSYS 2017

SRH 寿命時間: 10 ns

放射性再結合速度: $2 \times 10^{-8} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$

オージェ再結合速度: $2 \times 10^{-30} \text{ cm}^6\text{s}^{-2}$

面内超高密度InAs量子ドット太陽電池のI-V特性(集光特性)

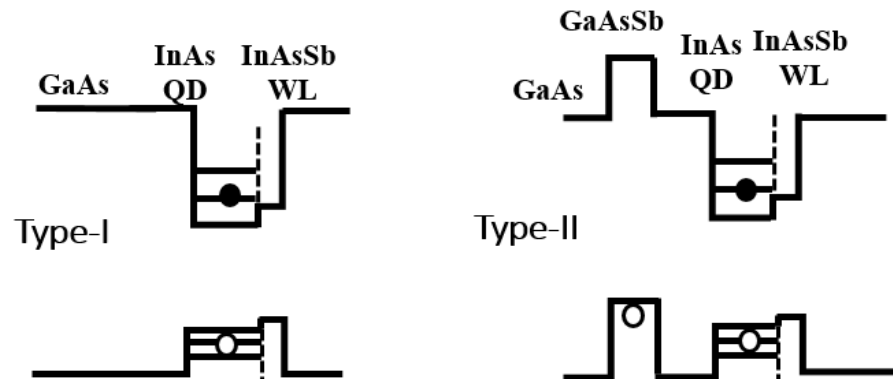


500 μm

擬似集光度 (QX)

$$QX = \frac{J_{sc}(QX)}{J_{sc}(1 \text{ sun})}$$

for GaAs cell
(500 μm)



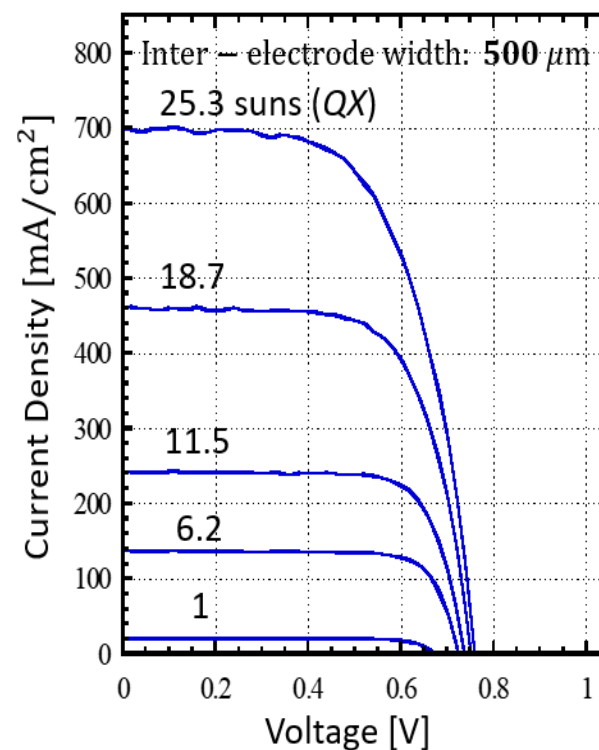
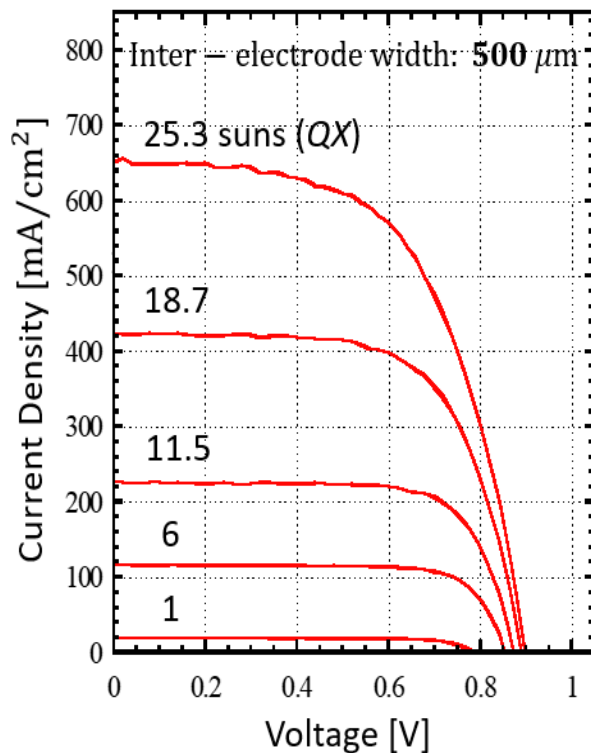
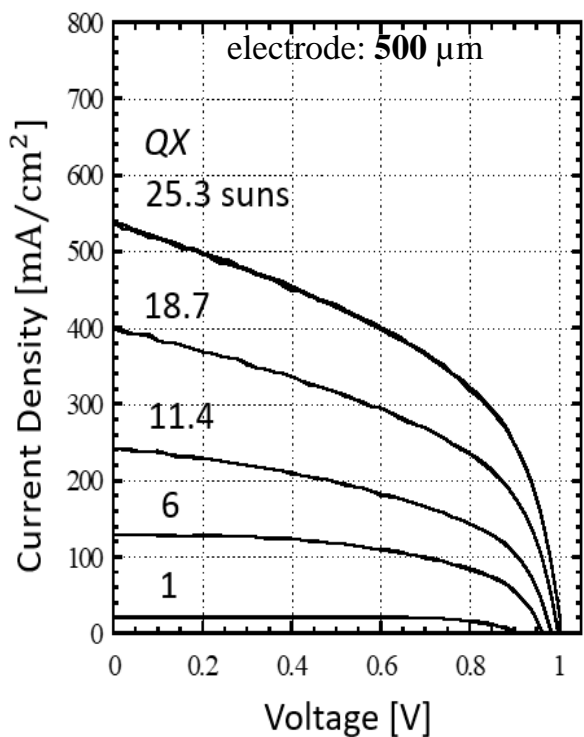
(QD: $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$)

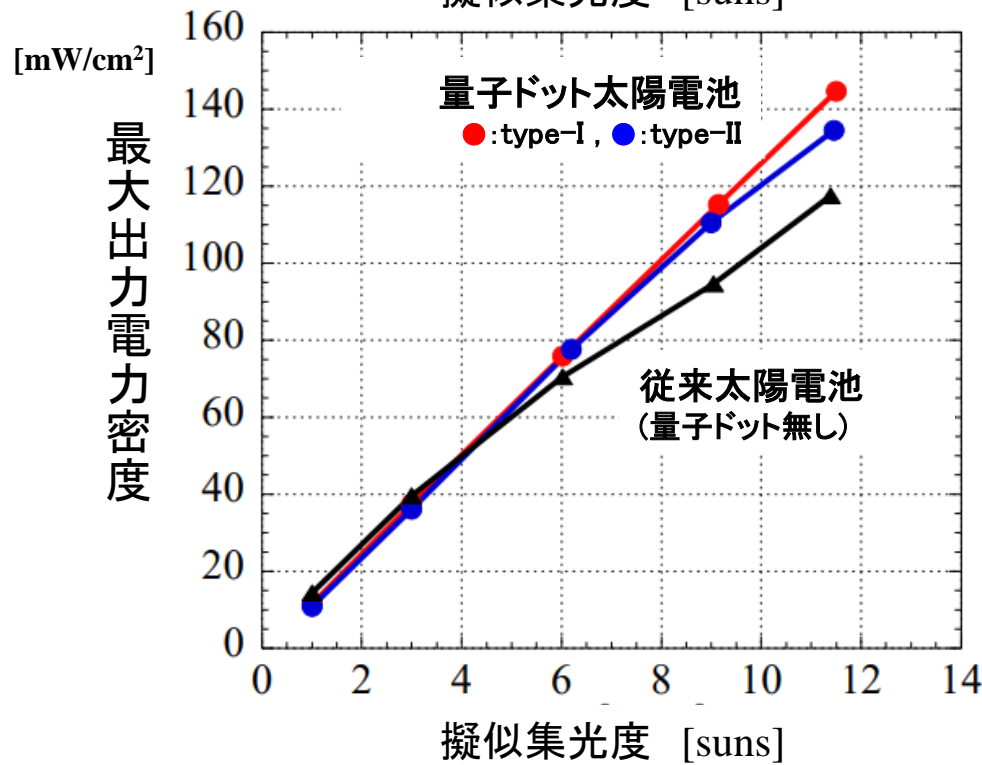
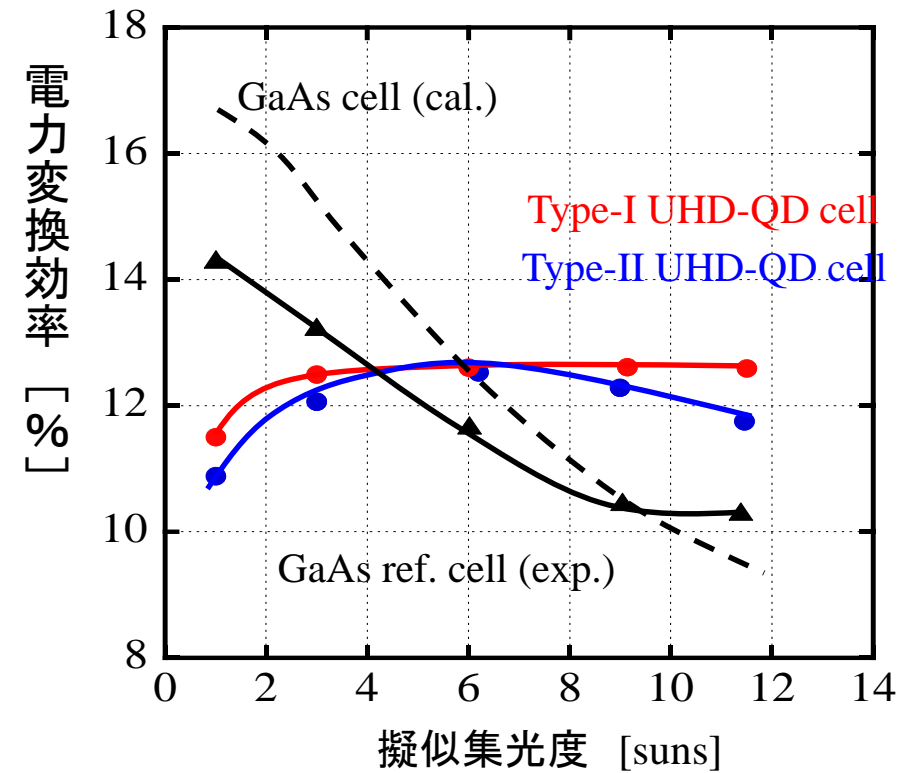
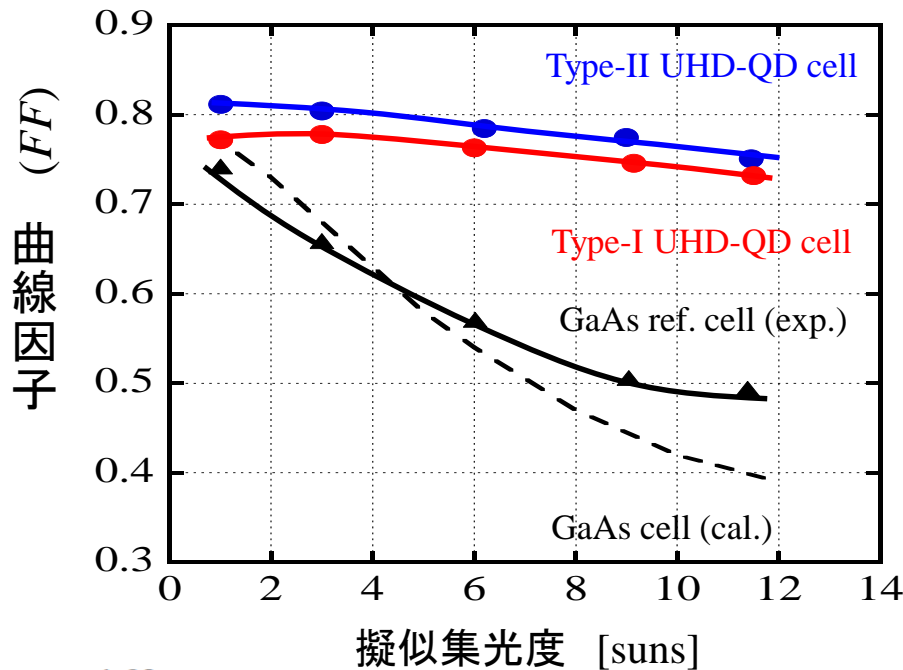
量子ドット太陽電池(type-I)

(QD: $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$)

量子ドット太陽電池(type-II)

GaAs太陽電池



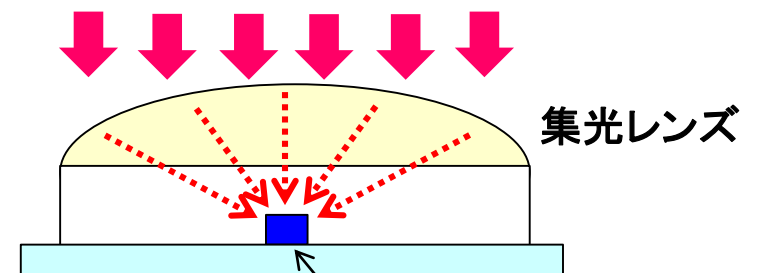


10倍集光で出力電力は約20%も増大！

高効率・高出力電力

低倍集光型太陽電池モジュール

太陽光



小面積のセル構造
→ 低コスト

量子ドット太陽電池

①エピタキシャル量子ドットのデバイス応用

想定される用途

- 量子ドットレーザの特徴である**低消費電力（低閾値化）**、**高温動作**、**高温環境下**でのレーザ発振動作により、従来の半導体レーザでは使用できない新たな用途の展開が期待される。
- 低倍集光型の量子ドット太陽電池により小型の高出力太陽電池として期待され、**宇宙での太陽光発電**、**コンパクトでモバイル太陽電池**としての利用が期待される。

実用化に向けた課題

- 開発した世界最高密度の量子ドットはオンリーワンの技術であるが、**さらなる高密度化と高均一化**により、デバイス性能は飛躍的に向上するため、実用化に大きく近づくことが可能。
- 量子ドットデバイスの作製プロセスにおける**再現性**、**低コスト化**をさらに進める必要がある。

② 半導体量子ナノ構造の高度な作製技術

★高均一・高密度の量子ドット作製技術

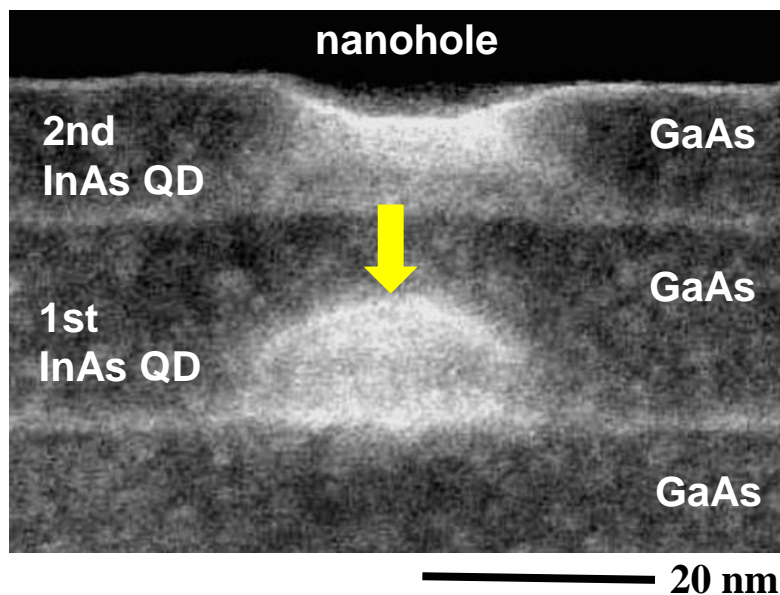
★面内超高密度量子ドットの作製技術

さらに

★量子ドット埋め込み層へのナノホール作製技術

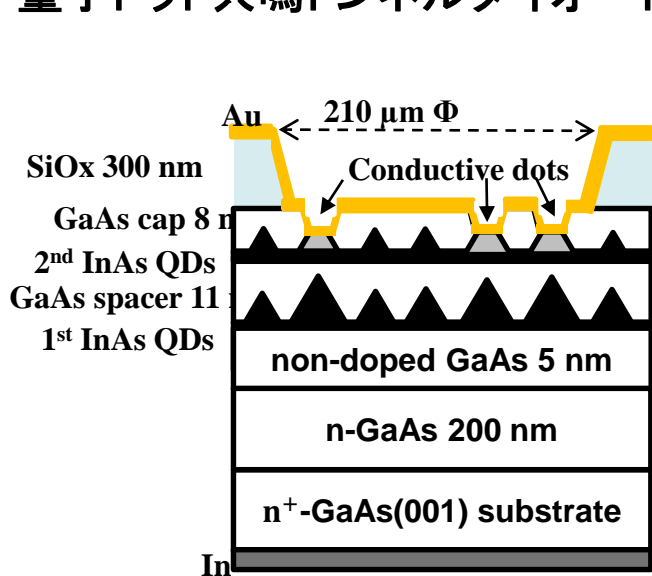
★シリコン基板上へのIII-V族半導体の
高密度・高均一量子ナノワイヤーの作製技術

量子ドット埋め込み層へのナノホール形成技術を利用した 量子ドットへの単電子のトンネル注入

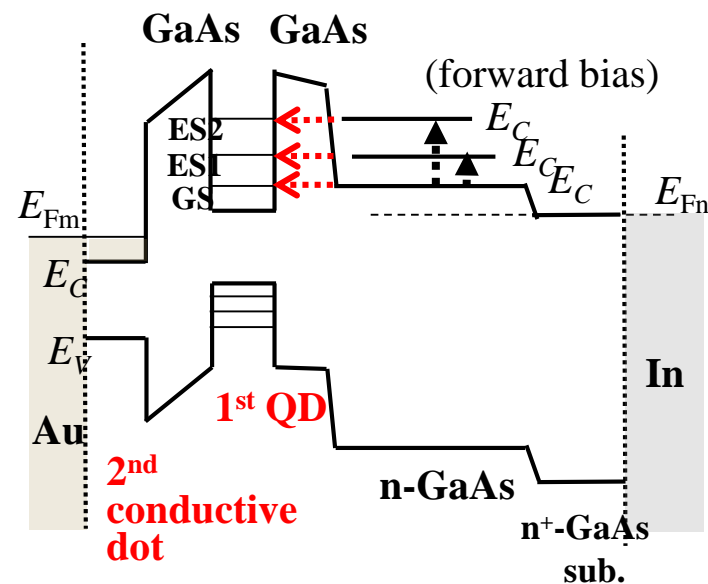
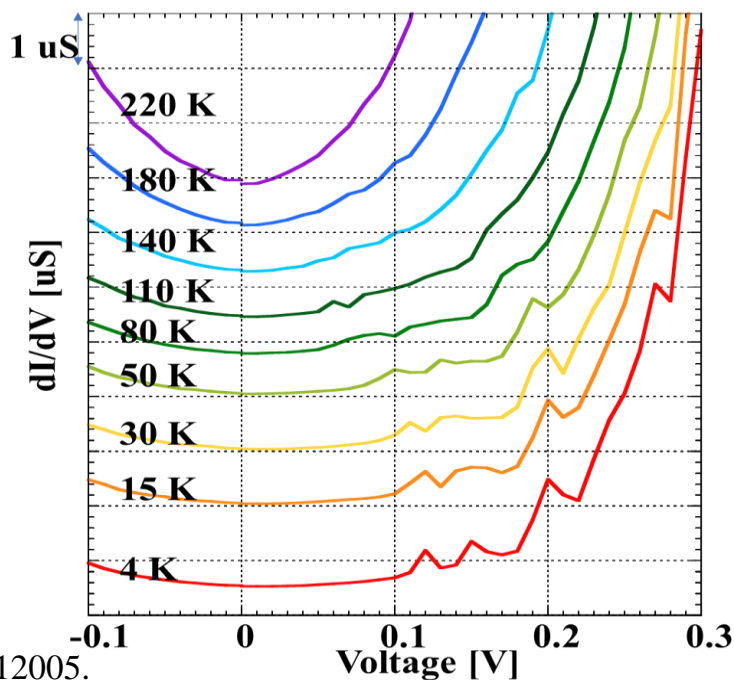


量子ドットへの単電子注入制御
→ 単電子トランジスタ
単電子メモリ
単一光子発生器
等への応用の要素技術

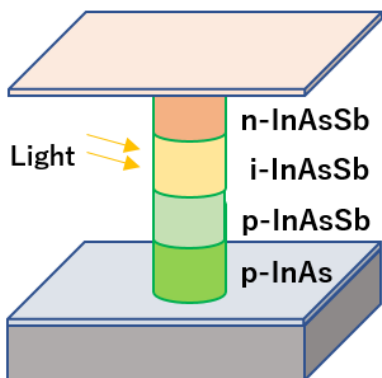
量子ドット共鳴トンネルダイオード



共鳴トンネルコンダクタンスピークの観測

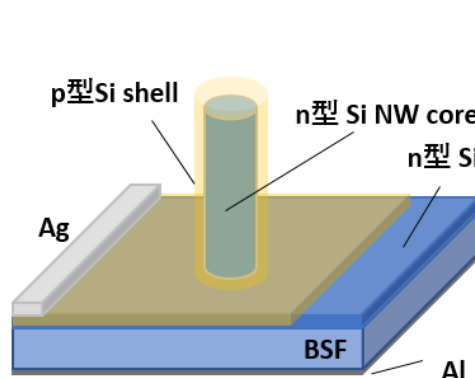


Si基板上へのInAsSb系量子ナノワイヤの作製



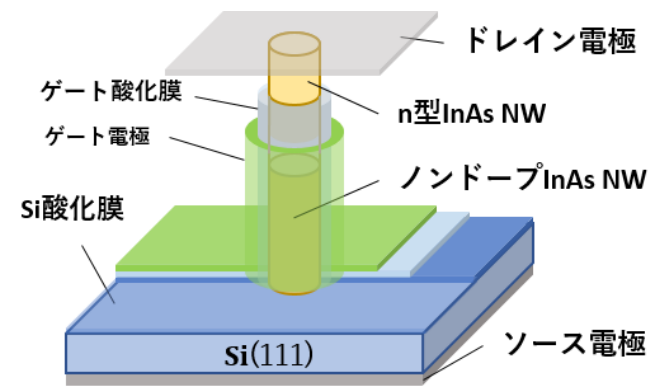
InAsSb NW フォトディテクタ

M. D. Thompson, et al., *Nano Lett.* **16**, (2016).



高効率Si NW太陽電池

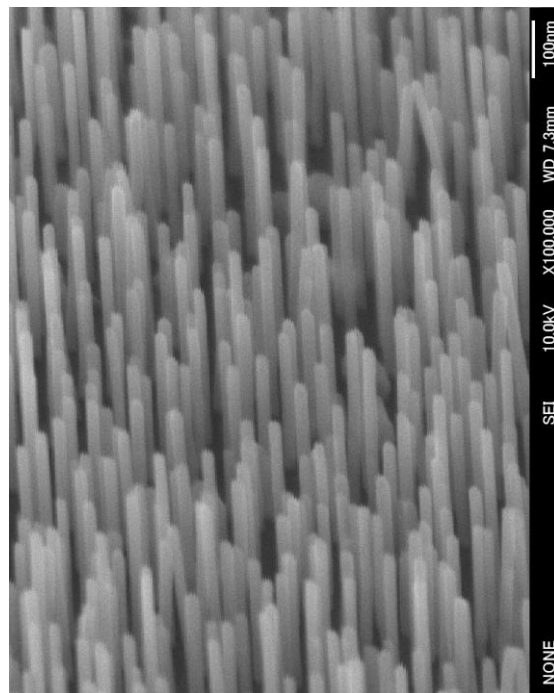
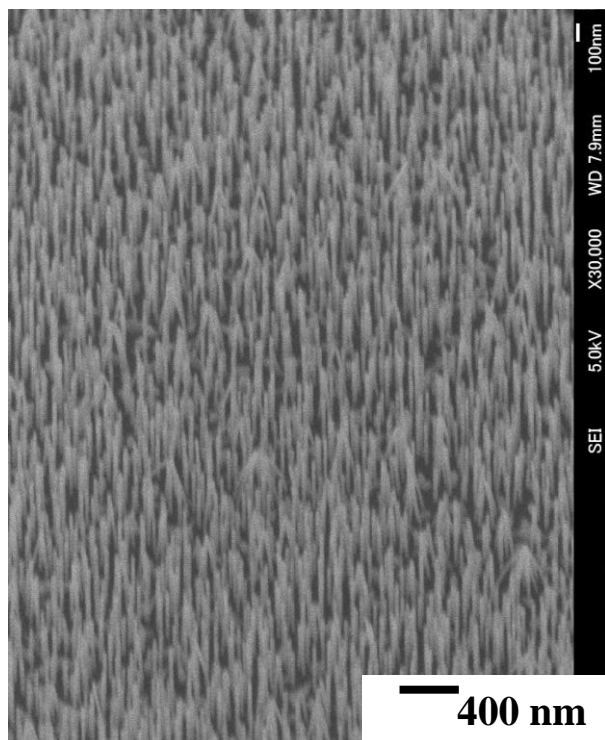
M. Ko, et al., *Scientific Reports*, **5**, (2015).



トンネル電界効果トランジスタ

K. Tomioka, et al., *Appl. Phys. Lett.* **98**, (2011).

高密度InAsSb量子ナノワイヤの作製技術(従来の10~100倍)



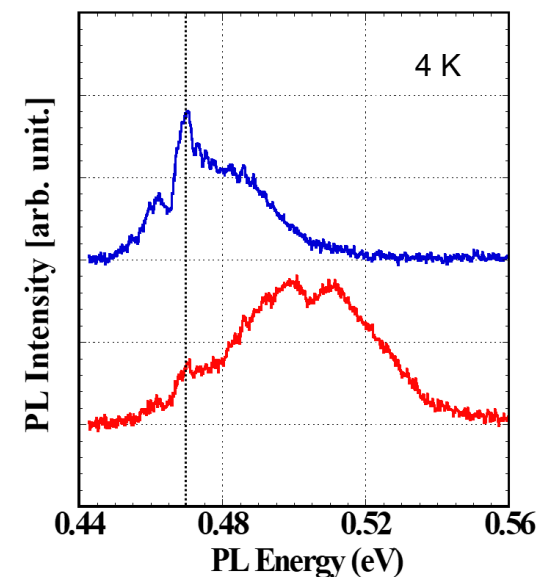
R. Nakagawa, et al., *J. Appl. Phys.*, **134**, (2023) 154302.

高密度量子ナノワイヤの 次世代半導体デバイス応用に期待

ナノワイヤ幅
< 35 nm
↓
量子サイズ効果

ワイヤ幅による
で発光波長制御

発光スペクトル



②半導体量子ナノ構造の高度な作製技術

想定される用途

- 高均一・高密度の量子ドット、面内超高密度の量子ドット、高密度・高均一の量子ナノワイヤなどの材料の製造・供給により、半導体量子ナノ構造の研究開発に興味関心のある企業、大学、研究機関等の研究開発に貢献できると共に**共同研究**の実施に繋がりたい。
- 上記の半導体量子ナノ構造の作製技術、測定評価技術、デバイスプロセス技術などのセミナーや実習体験等による**技術講習**、**リスキリング**の実施。

実用化に向けた課題

- 製造・供給体制の整備（マンパワー、設備など）の充実。
- 標準的な半導体量子ナノ構造の作製が基本となり、現状でのオーダーメイドは困難。

①エピタキシャル量子ドットのデバイス応用

②半導体量子ナノ構造の高度な作製技術

企業への期待

- ①のデバイス応用では、企業との共同研究の中で、社会実装に向けた課題とその解決の手法について企業サイドからのアドバイスを頂きたい。
- ①のデバイスの実用化では、大学の基礎技術を基に企業の装置等を使用する形（技術の移植）を希望。
- ②の材料の製造・供給については、関連企業との共同事業として展開することを希望。

企業への貢献、PRポイント

- 大学の基礎研究の成果、技術を企業との共同研究を通して社会実装に繋げることは大きな社会貢献である。
- 本学に設立予定の「量子未来創生デバイス開発センター」では、量子技術のシーズを社会のニーズとしての社会実装に向けた取り組みを進めて行きます。

本技術に関する知的財産権

- 発明の名称：量子ドットの形成方法および太陽電池
 - 特許番号：2013-034949
 - 出願人：電気通信大学
 - 発明者：山口浩一
-
- 発明の名称：量子半導体装置およびその製造方法
 - 特許番号：2004-244210
 - 出願人：電気通信大学
 - 発明者：山口浩一

産学官連携の経歴

- 2005年-2008年: 情報通信メーカーとの共同研究実施
- 2011年-2012年: JST知財活用促進ハイウェイ（大学特許価値向上支援）「高密度・高均一量子ドットレーザの試作開発」採択
- 2008年-2014年: NEDO 革新的太陽光発電技術研究開発「ポストシリコン超高効率太陽電池の研究開発（自己組織化量子ドット）」採択
- 2015年-2019年: NEDO 革新的新構造太陽電池の研究開発 「超高効率・低コストⅢ-V化合物太陽電池モジュールの研究開発（高密度量子ドット成長技術）」採択
- 2016年-2019年: ガスセンサーメーカーとの共同研究実施

お問い合わせ先

国立大学法人電気通信大学
産学官連携センター
産学官連携ワンストップサービス

TEL 042-443-5871

FAX 042-443-5725

E-mail onestop@sangaku.uec.ac.jp