

固体微細構造を用いた微小エネルギー活用技術の研究

代表研究者 東北大学電気通信研究所 准教授 大塚 朋廣

1. はじめに

地球温暖化防止に向けた温室効果ガスの排出削減や、環境破壊問題等の解決のためには、人間の社会、経済活動に必須となるエネルギーの効率的な生成と有効活用が重要となる。現代社会では電気エネルギーの形でエネルギーが大規模に利用されており、このため電気エネルギーに関するエネルギー変換や省エネルギー技術の改善が重要となる。電気エネルギーの活用をミクロな観点から捉えれば、外部からのエネルギーを使って電子の運動を生成、制御し、これにより所望の機能を実現させている。この際のエネルギー変換について、熱運動やノイズ等の環境中の微小なランダムな励起からエネルギー保存則を守りつつ、電流等として利用しエネルギーを有効活用する微小エネルギー活用技術は、問題解決のためのキーテクノロジーの一つとなる。またより少ないエネルギーで高度な機能を実現する省エネルギー技術も一層重要となる。そこでこれらの電気エネルギーに関する微小エネルギー活用や省エネルギー技術について、ミクロな観点から解明し、改善することが有用となる。

電子運動のミクロな観測や制御については、固体微細構造を活用したデバイスにおいて可能になりつつある。固体微細構造では、ナノテクノロジーを駆使した測定や制御により、微細構造内の電子運動を電子一個レベルで観測し、また制御することができる[1]。そこでこれらの観測や制御の技術を利用することにより、固体微細構造デバイスを新しい微小エネルギー活用や、省エネルギー技術の創製や原理検証のための実験系として活用することができる。現状では固体微細構造中の電子状態を安定に観測、制御するためには低温が必要である等の課題はあるものの、単一電子運動へのアクセスや、比較的大きなデバイス設計の自由度、電圧等による良好な操作性等を有するため、新しいエネルギー技術の基礎学理、基盤技術を研究、実証する上で有用となる。実際に近年では、固体微細構造を活用することにより、熱等のランダムな擾乱を使って電子を励起し、固体微細構造中の人工的なポテンシャルにより電子運動を制御して、熱励起された電子の整流動作を実現し、電流を取り出す実験などが報告されており[2,3]、新しい研究分野として発展しつつある。

そこで本研究では、この固体微細構造デバイスを用いた微小エネルギー活用や、省エネルギー技術について、その基礎学理、基盤技術に関する研究を行う。特にこれまで独自に開発してきた固体微細構造デバイス内の電子状態の精密観測、制御技術を活用することにより[4]、固体微細構造内でのミクロな電子状態を調べ、エネルギー変換等の素過程について、ミクロな観点からの解明を推進する。

2. 本研究

固体微細構造デバイス中の電子運動を単一電子レベルで観測するためには、微細構造中の単一電子の電荷を検出することができる高感度な電荷計が必要となる。このような電荷計として、半導体量子ポイントコンタクトや半導体量子ドットを活用した高感度電荷計がある[5-7]。これらは半導体微細加工により形成される微細構造デバイスで、微細構造周辺に存在する電荷の変化によって電子の通り道である狭窄部の静電ポテンシャルが変化し、これによりデバイスの伝導度が変化するという特性を持つ。ナノメートルスケールの微細構造であるために、電子一個の電荷が作り出す静電ポテンシャルによってもその伝導度が変化するため、これらのデバイスの伝導度をモニターすることによってデバイス近傍の電子の電荷を検出できる。さらにエネルギー変換等に向けた電子運動の詳細を調べるためには、微細構造内の電子の静的な状態だけではなく、電子の実時間移動等のダイナミクスまで調べる必要がある。固体微細構造デバイスの測定で従来から用いられてきた直流測定では、測定セットアップ内で生じる寄生容量のために高速電気信号を減衰させてしまうフィルタ回路が形成され、高速なダイナミクスを調べることができない。これを解決するための手法として、高周波を活用した高周波反射測定が開発されてきた[8,9]。この測定手法では、高感度電荷計を高周波共振器と結合させ、高感度電荷計の伝導度変化を高周波共振器の共振特性変化に反映させる。高周波信号を共振器に入射して、反射信号を測定すれば、電荷計伝導度に依存して高周波反射強度が変化する様子を観測することができ、これを測定することで、固体微細構造中の単一電子電荷を高速に測定できるようになる。

本研究ではこのような高周波による高速電気測定を行い、エネルギー変換の素過程等を調べるための固体微細構造デバイスを、半導体微細加工により作製した。まずデバイスの下地基板となる半導体としては、ガリウム砒素、アルミニウムガリウム砒素のヘテロ構造を用いて、電子が基板垂直方向に閉じ込められた二次元電子基板を使用した。この基板は、電子の平均自由行程が長く、高品質な電子デバイスを作製することができる。この二次元電子基板上にフォトリソグラフィ等の手法により微細パターンを作製し、金属蒸着等により微細金属電極を作製した。電子は負の電荷を持つため、微細金属電極に負の電圧を印加することで、電極近くの電子を排除でき、電子運動を制御するための静電ポテンシャルを電氣的に生成して、半導体量子ポイントコンタクトや半導体量子ドット等の微細構造を形成した。図1に作製した固体微細構造デバイスの電子顕微鏡写真を示す。下地に黒く見えている部分がガリウム砒素、アルミニウムガリウム砒素ヘテロ構造による二次元電子基板で、白く見えている部分が微細加工により形成した表面微細金属電極部分である。デバイスのスケールとしては数百 nm 程度である。この写真の固体微細構造デバイスでは、写真の上半分に半導体量子ドットによる高感度電荷計が形成され、下半分に測定対象となる固体微細構造として別の半導体量子ドットデバイスが形成される構造となっている。

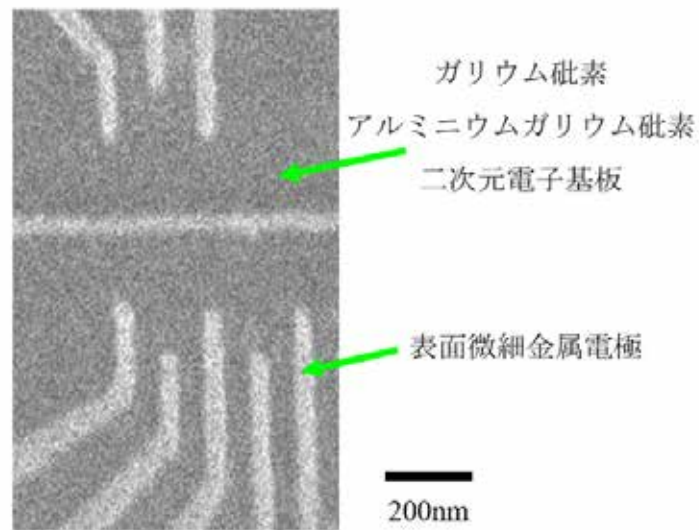


図1 固体微細構造デバイスの電子顕微鏡写真

次に固体微細構造デバイスを用いて高周波反射測定を行うための、高周波測定ボードの作製と改良を行った。高周波反射測定を行うためには、高感度電荷計を内包するようにコイルとコンデンサを利用した図2のようなLC共振回路を形成する。ここでコンデンサは測定ボードの浮遊容量から生じるコンデンサであり、この値に対してコイルのインダクタ

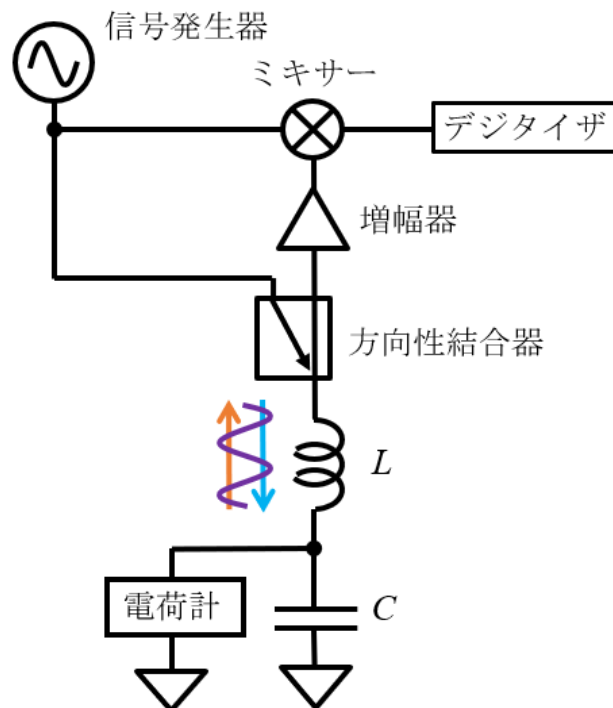


図2 高周波反射測定用の高周波共振器回路と測定系の模式図

ンス値を最適化することにより、共振周波数について測定回路構成が比較的容易な数百 MHz となるように高周波共振回路を最適化した。また複数の電荷計の同時読み出しに向けて、複数の周波数を用いたマルチプレクス読み出しに対応できるように、測定ボード上に複数の共振回路の作製を行った。そしてこの測定ボードについてネットワークアナライザを用いて高周波特性を評価し、所望の共振特性を実現できていることを確認した。またこのような測定ボードを用いて高周波測定を実施するために、図 2 のような測定系を構成した。測定系の詳細は次のようになっている。まず共振回路に対して共振周波数を持つ高周波信号を信号発生器から方向性結合器を通して入力する。次に共振回路からの反射信号について、方向性結合器を使って取り出す。そして高周波反射強度変化を高速に測定するために、高周波ミキサを使った回路により、反射高周波の強度成分を抽出し、この信号を高速デジタイザを用いて解析用パソコンに取り込み測定する。この測定系と固体微細構造デバイスを用いて単一電子電荷の読み出しを行ったところ、微細構造中の単一電子の電荷をマイクロ秒の測定時間で検出できることを確認した。またこの読み出しの際に生じる高周波測定系のノイズについての解析を行い、そのノイズメカニズムについて解明した [10]。また電子は電荷の自由度とともにスピンの自由を持っており、このスピン自由度の活用により、スピンの流れであるスピン流等を利用した新たなエネルギー変換デバイスが期待されている [11]。そこで半導体量子ドット内電子スピン状態によって電荷状態が変化する現象を利用して状態変換を行う、スピン-電荷変換を活用することにより [12]、スピン状態についても高速に測定できることを確認した。

次にこれらの固体微細構造デバイス中の電子状態のミクロな高速測定手法を活用して、微小エネルギー活用に向けた固体微細構造デバイスにおける熱励起電子運動の直接観測を行った。微小エネルギー活用デバイスでは、トンネルバリアに対する熱励起電子の移動がよく活用される。そこでトンネルバリアを有する半導体量子ドットデバイスについて、熱励起電子移動の実時間観測を行った。半導体量子ドットデバイスではトンネルバリアを介して微小領域に電子が閉じ込められることにより、単電子帯電効果や量子効果により、量子ドット内部に離散的なエネルギー準位が形成される。これらによって量子ドット内の電子が一個ずつ変化する電荷状態が生じるが、これを二重量子ドットにおいて観測した電荷状態安定図を図 3 に示す。半導体量子ドット内に形成された準位のエネルギーは量子ドットの電極電圧 1、2 の制御により操作することができ、これに伴う内部の電子数変化、および高周波信号の変化が電荷遷移線として観測されている。

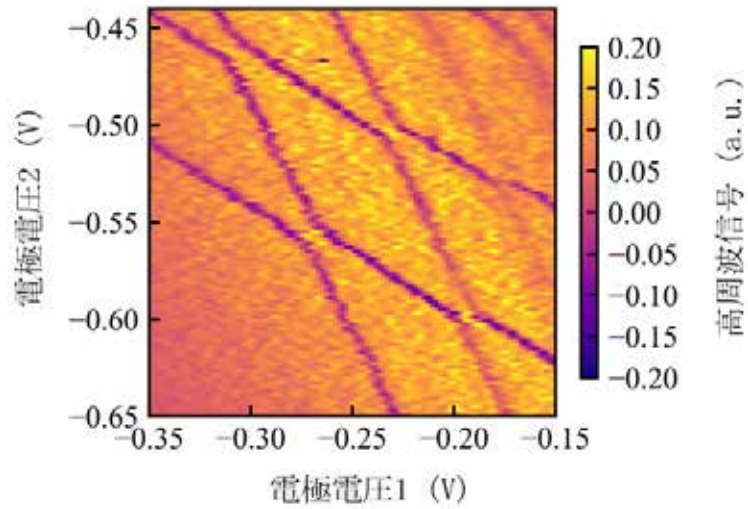


図3 半導体量子ドットデバイスにおいて観測された電荷状態安定図

特に半導体量子ドット内の複数の電荷状態のエネルギーが一致し、電子数が変化する電荷遷移線近傍では、電子の移動が熱により励起される。この熱励起の電子状態遷移について、高感度電荷計により観測した結果を図4に示す。図中では高感度電荷計の高周波信号が時間とともに2つの値の間でジャンプしている様子を見ることができる。これは熱により半導体量子ドットに対する単一電子の出入りが生じ、量子ドット内の電荷数が1つ変化するためである。この信号を解析することにより、トンネルバリアによる電子のトンネルレート等の情報を得ることができた。また電極電圧依存性を調べることで、電極における電子のエネルギー分布、電子温度等についても調べることができた。

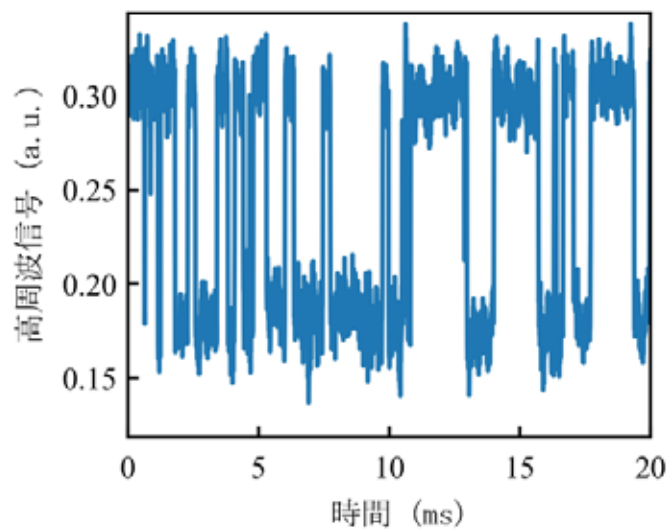


図4 固体微細構造デバイスにおける熱励起電子状態変化の実時間測定

また熱による電子運動の解析においては、半導体量子ドット内の2つの電荷状態の間の遷移だけでなく、さらに多くの電荷状態の間での遷移の観測も重要となる。例えば多くの電荷状態の間の遷移を解析することで、半導体量子ドットへの電子の出入り等のランダムな方向の電子の移動だけではなく、半導体量子ドットを通じた電子の移動等の特定の方向への電子の移動の検出も可能になる。そこでこのような、より多くの電荷状態間の遷移についても、高感度電荷計を用いて電荷状態遷移の実時間観測を行った。図5に半導体量子ドットにおける3つの電荷状態間の遷移について測定した際の、高感度電荷計の高周波信号の実時間変化を示す。ここでは半導体多重量子ドットデバイスの3つの電荷状態の間の遷移に伴い、高感度電荷計の高周波信号値が3つの値の間でジャンプしている様子を見ることができる。実時間信号を解析することにより、半導体量子ドットの電荷状態の移り変わり、およびこれに伴う電子の移動を調べることができた。これらの測定により、微小エネルギー活用のためのエネルギー変換の基盤となる熱による電子移動の素過程について単一電子感度で明らかにすることができた。またこれらの現象について、半導体量子ドットのトンネルバリア厚みや、複数トンネルバリアの大小関係、量子ドット内準位のエネルギー等のパラメータを変えながら測定を行い、その影響についても明らかにした。

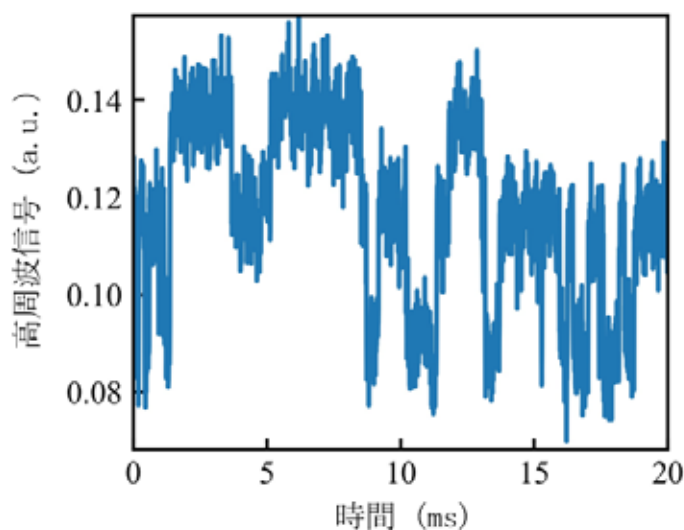


図5 固体微細構造デバイスにおける熱励起電子状態変化
(3つの電荷状態間の遷移) の実時間測定

さらに固体微細構造における電子の運動においては、電子間のクーロン反発による相互作用の影響も重要となる。この電子間の相互作用をうまく活用することにより、複数電子の同時移動等の新しい現象を誘起することができ、この現象はエネルギー変換の素過程としても活用できると期待される。そこでこのような固体微細構造中の電子間相互作用が遷移に強く影響する状態での電子移動についても、高感度電荷計を用いた電荷状態遷移の実時間測定を実施し、そのメカニズムについて調べた。

3. まとめ

本研究により、固体微細構造デバイスを用いた微小エネルギー活用や、省エネルギー技術に向けて、固体微細構造中での電子状態をマイクロで動的な観点から測定するための手法を実現、改良することができた。またこの手法を活用することにより、半導体量子ドットデバイス等の固体微細構造デバイスにおける熱励起の電子運動を単一電子レベルで測定し、エネルギー変換の素過程等を明らかにした。さらにこれらの電子移動へのトンネルバリアや量子ドット内準位エネルギー等のパラメータの影響についても調べることができた。今後はさらに固体微細構造中でのマイクロな電子状態観測、制御の手法を発展させて、固体微細構造デバイスを用いた微小エネルギー活用や、省エネルギー技術に関する研究を進めるとともに、従来からの半導体材料を用いた固体微細構造だけでなく、新しいエネルギー変換材料を活用した研究についても取り組んでいきたいと考えている。

謝辞

本研究は、公益財団法人 JFE21 世紀財団の助成を受けて行われたものである。ここに感謝の意を表す。

参考文献

1. L. P. Kouwenhoven, D. G. Austing, and S. Tarucha, *Rep. Prog. Phys.* 64 701 (2001).
2. B. Roche, P. Roulleau, T. Jullien, Y. Jompol, I. Farrer, D. A. Ritchie, and D. C. Glatli, *Nature Commun.* 6, 6738 (2015).
3. F. Hartmann, P. Pfeffer, S. Höfling, M. Kamp, and L. Worschech, *Phys. Rev. Lett.* 114, 146805 (2015).
4. T. Otsuka, S. Amaha, T. Nakajima, M. R. Delbecq, J. Yoneda, K. Takeda, R. Sugawara, G. Allison, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha, *Sci. Rep.* 5, 14616 (2015).
5. M. Field, C. G. Smith, M. Pepper, D. A. Ritchie, J. E. F. Frost, G. A. C. Jones, and D. G. Hasko, *Phys. Rev. Lett.* 70, 1311 (1993).
6. D. Sprinzak, Y. Ji, M. Heiblum, D. Mahalu, and H. Shtrikman, *Phys. Rev. Lett.* 88, 176805 (2002).
7. C. Barthel, M. Kjærgaard, J. Medford, M. Stopa, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. B* 81, 161308 (2010).
8. R. J. Schoelkopf, P. Wahlgren, A. A. Kozhevnikov, P. Delsing, and D. E. Prober, *Science* 280, 1238 (1998).
9. D. J. Reilly, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, *Appl. Phys. Lett.* 91, 162101 (2007).
10. M. Shinozaki, Y. Muto, T. Kitada, T. Nakajima, M. R. Delbecq, J. Yoneda, K. Takeda,

- A. Noiri, T. Ito, A. Ludwig, A. D. Wieck, S. Tarucha, and T. Otsuka, *Appl. Phys. Exp.* 14, 035002 (2021).
11. S. Hwang, J. S. Lim, R. López, M. Lee, and D. Sánchez, *Appl. Phys. Lett.* 103, 172401 (2013).
 12. K. Ono, D. G. Austing, Y. Tokura, and S. Tarucha, *Science* 297, 1313 (2002).