

量子細線・量子ドットの物理的基礎

荒川 泰彦

最近の半導体微細構造作製技術はめざましく、21世紀のナノエレクトロニクス・ナノフォトニクスの時代の幕開けに向けて、現在広く研究がなされている。量子細線や量子ドットのようなナノ構造は、これまでのように大量の電子をまとめて利用するのではなく、それぞれの電子を閉じ込めてその振舞いを制御することを可能にする。われわれこの分野の研究者の目標は、電子を「閉じ込める」ことにより、その性質を定め、さらに「トンネル効果」を含む「量子力学的状態の制御」によりその振舞いを手中におさめることにある。これにより、新たな電子デバイスや光デバイスを創出する。

量子細線・量子ドット光デバイスが初めて議論されたのは、ArakawaとSakakiによる1982年の量子細線・量子ドットレーザーの提案・特性解析である¹⁾。特に三次元量子閉込め半導体ヘテロ構造である「量子ドット」の概念はこのとき初めて世に現れた。その後4年の間に東大およびカリフォルニア工科大（筆者はYariv教授の研究室に84年から2年間滞在していた）により、閾値電流の温度依存特性、変調特性、スペクトル特性などが著しく向上することが理論的に示された¹⁻³⁾。しかし当時の研究状況からすると量子細線・量子ドットは21世紀になるまで手にすることはできないだろうと思っていた。したがって、当時実験的にこれらの理論予測を確かめるためにはとりあえず他の手法を用いる必要があった。われわれ（東大およびカリフォルニア工科大）は、強磁場を用い量子細線レーザーや量子ドットレーザーの

状況を疑似的に実現する実験を行い、幸い理論的予測を実証することに成功した⁴⁻⁷⁾。なお、閾値電流特性の理論的計算については東工大のグループの果たした役割も大きかった^{8,9)}。このような原理的な研究は（少々荒っぽい議論であったが）、1980年代の半ば過ぎには一応一段落した。それ以後特に本質的な進展はないように見受けられる。

本稿では、量子細線・量子ドットの物理的基礎について、量子ドットを中心に、その考え方についてわかりやすく述べることにしたい（厳密性は若干犠牲になっている点をご容赦いただきたい）。なお、「量子箱」か「量子ドット」いずれをもちいるかという用語の問題であるが、歴史的には「量子箱」を用いるのが適当と考えるが、ここでは特集号全体の統一性を維持するために、「量子ドット」を用いることにした。

1. 量子ドットにおける電子のエネルギー準位と状態密度関数

すでによく知られているように量子ドットにおいては三次元的に量子閉込めを電子のとり得るエネルギーは離散的になる。このエネルギーの値は有効質量近似に基づく三次元定常シュレディンガー方程式を解くことによって求められる。例えば障壁層のポテンシャルが無限大のときの一辺 L の立方体の量子ドットにおける電子のエネルギー準位は次式で与えられる。

$$E_{n_x, n_y, n_z} = \frac{\hbar^2}{2m_c} \frac{\pi^2}{L^2} (n_x^2 + n_y^2 + n_z^2) \quad (1)$$

n_x, n_y, n_z は量子数である。

量子ドットにおいて三次元量子閉込め効果がきちんと発現されるためには、電子は基底状態のみに存在するこ

Fundamentals of quantum wires and quantum dots (1996年6月18日受理)

Yasuhiko ARAKAWA 東京大学国際産学共同研究センター (〒106 東京都港区六本木7-22-1)

とが必要である。このためには基底エネルギー準位と第2エネルギー準位の差が $3k_B T$ より大きいことが要求される。すなわち

$$E_{2,1,1} - E_{1,1,1} > 3k_B T \quad (2)$$

V_0 が無限大のときにはこれは

$$L < \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m_c} \frac{3\pi^2}{k_B T}} \quad (3)$$

が成立していなくてはならないことに対応する。ただし、簡単のために $L_x = L_y = L_z$ とした。したがって、量子ドットの大きさはある程度小さくなくてはならない。一方、 V_0 が有限であると、量子ドットの寸法をあまり小さくすると閉込めモードの電子状態が存在しない場合がでてくる。たとえば半径 R の球型の量子ドットにおいては、そのような critical 半径 R_c は次式で与えられる。

$$R_c = \frac{\pi}{2} \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m_e V_0}} \quad (4)$$

したがってむやみに小さな量子ドットをつくれればいいというわけではない。なお、球形の量子ドットの場合には、量子数は水素原子と同様に主量子数 n 、方位量子数 l 、磁気量子数 m で軌道が記述されることはいうまでもない。

図1は球型のGaAs量子ドットが $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 層で囲まれた場合に、束縛状態がない状態を与える半径 R を、 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ と GaAs のそれぞれのバンドギャップエネルギーの差の関数として示したものである¹⁰⁾。ただし、伝導体と価電子帯のバンド不連続量の配分比を6:4としている。この図からわかるように半径2nm以下の量子ドットを作製することは少量量子井戸ポテンシャルの高さが大きくてもほとんど無意味であることがわかる。以

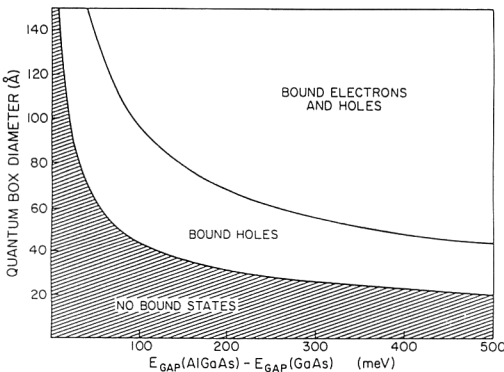


図1 球型のGaAs量子ドットにおいて束縛状態が存在しない半径 R の領域を、 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ と GaAs のそれぞれのバンドギャップエネルギーの差の関数として計算した結果¹⁰⁾。

上の議論から量子ドットの寸法は V_0 の大きさや動作温度を考慮して適切な設計がなされなければならないことがわかる。

一方、このような量子化により電子の状態密度関数はデルタ関数状になることはよく知られているとおりである。すなわち

$$\rho(\epsilon) = \sum_{n_x, n_y, n_z} 2\sigma(\epsilon - E_{n_x, n_y, n_z}) \quad (5)$$

もし多数の量子ドットが存在し、それらにおいて寸法のゆらぎがあるとすると、そのゆらぎの状態密度関数に対する効果は、次のように δ 関数に広がりをもたせることにより、

$$\rho(\epsilon) = \sum_{n_x, n_y, n_z} \frac{1}{\sqrt{2\sigma_{n_x, n_y, n_z}}} \exp\left(-\frac{(\epsilon - E_{n_x, n_y, n_z})^2}{2\sigma_{n_x, n_y, n_z}^2}\right) \quad (6)$$

と書くことができる。もちろんこの広がり量子ドットレーザーなどにおいては特性の劣化をもたらす。

2. 量子ドットにおける電子間クーロン相互作用

1節では電子状態について議論したが、これは単一電子系の議論であり、複数の電子のふるまいを議論するときには不十分である。複数の電子の状態について議論するときには、クーロン相互作用を考慮しなくてはならないことはよく知られているとおりである。ここでは、単一電子トンネリングとクーロン相互作用についてもう少し議論をしたいと思う。

一般に N 個の電子系のエネルギーは、電子間のクーロン相互作用を考慮すると

- (1) N 個の1電子エネルギーの和
- (2) $N(N-1)/2$ 個の組合せがあるクーロン相互作用エネルギーの和
- (3) 同じスピンの電子間の交換エネルギーの和

からなることが知られている。

ここでは2つの結合量子ドットにおいて相互作用がどのように問題になるか直感的に説明することにより、クーロン相互作用の重要性を議論する。2つの同じ形の量子ドットがあるとしよう。また単一の量子ドットの基底エネルギーを E_0 とする。この2つの量子ドットが近接していると、互いの電子の波動関数が重なり、その結果トンネル効果により電子が移動することができる。この量子ドットの結合により電子系のエネルギーは

$$E_{1,2} = E_0 \pm \frac{\Delta E}{2} \quad (7)$$

の2つに分離する。これらを状態1, 2と呼びそのエネルギーを E_1, E_2 としよう ($E_2 > E_1$)。この場合2つのエ

エネルギーの差 $E_2 - E_1 = \Delta E$ は結合が強くなるほど大きくなる。この現象は結合した2つのモードにおいて一般的小きる現象である。

今このような結合量子ドット系に2つの電子を充填することをクーロン相互作用を取り入れながら考える。この場合、電子間に斥力が働くので2つの電子が同じ量子ドットにあるときにはエネルギーが U だけ増大する。

まず ΔE に対して U が非常に弱い場合を考える。この場合最も低い系のエネルギーの状態は、逆向きのスピンをもつ2電子が状態1を占めたときである。2電子は独立に動いているから、同じ量子ドットに電子がくる確率は $1/2$ 、したがって、斥力のエネルギーは平均として $U/2$ となる。したがってこのときの系全体のエネルギーは

$$E \cong 2(E_0 - \Delta E/2) + U/2 \quad (8)$$

と書くことができる。一方、2電子系が同じ向きのスピンをもつ場合には、パウリの排他率により状態1,2にひとつずつ入るしかない。このときは電子は同じ量子ドットに存在することはないから斥力エネルギーは考えなくてもよい。したがって系のエネルギーは

$$E = 2E_0 \quad (9)$$

となる。したがって、逆向きのスピンをもつ電子が状態1にともあるときに系にとって最もエネルギーが低いということになる。

一方、斥力によるエネルギー変化 U が ΔE に対して十分大きいときには事情が異なってくる。まず、2つの電子が同じスピンをもつときには、パウリの排他率と強い斥力により2つの電子はそれぞれの量子ドットに局在する。このときのエネルギーには結合効果は寄与しないから全エネルギーはやはり式(9)で表される。

ところが、スピンの逆向きのときは、同じ量子ドットの中にくることがまったく禁止されているわけではない。この場合電子に自由度が生じこれが系エネルギーの低下をもたらす。したがって、斥力 U が ΔE に対して十分大きいときには、電子が各量子ドットに局在するものの、スピンの上下上下と交互に並んだ反磁性状態が安定となる。

以上の議論から次のことがいえよう。今、量子ドットが一列に鎖状に互いに結合して並んでいるとき、 $U > \Delta E$ の場合には反磁性状態にあり、その系は絶縁体といえることができる。一方、 $U < \Delta E$ のときは伝導状態となる。したがって、結合量子ドットの障壁層の厚さを変化させ U の値を変化させると、どこかでモット遷移に対応する絶縁体から金属への転移が結合量子ドット列で起

ることになる。

このように多電子体効果は量子ドットを考える上で今後重要な役割を果たすと考えられる。ここでは直感的な議論を行ったが、結合量子ドットにおける絶縁体から金属への転移についての定量的な議論は別途報告したい。

3. 単一電子トンネリング効果

単一電子トンネリング効果は電荷の物理的最小単位である1つの電子の伝導によって動作する“究極の素子”の基本となる物理現象である。これは電子のクーロン相互作用、電子のトンネル現象を伴うことから当然量子効果であるが、その動作原理はもう少し簡単に理解できる。以下、勝本氏の文献¹¹⁾に従って説明しよう。

まず図2のように絶縁物を間に挟んだ金属接合を考えよう。絶縁物の厚さが十分薄ければトンネル接合となり、電子は上下の金属をトンネル効果を介して移動することができる。この接合はコンデンサーとみなすことができ、容量 C が定義できる。コンデンサーの電荷 Q 、電圧 V 、エネルギー E_0 の間にはよく知られているように

$$Q = CV, E_0 = \frac{Q^2}{2C} \quad (10)$$

の関係が成立する。ここで電荷 Q はどう分布するのか、また C の定義はどうするのかといった議論は避けておく。今 $Q=0$ の状態でこの金属に導線をつけ、電源をつないでひとつの電子をトンネル効果ですり抜けさせたとする。そうすると電荷が $-e$ だけたまり、これにともなう静電エネルギーが次の ΔE だけ増加する。

$$\Delta E = \frac{e^2}{2C} \quad (11)$$

トンネルの直前と直後では系のエネルギーが変化すると考えられないので、 ΔE の増加分だけ電子の運動エネ

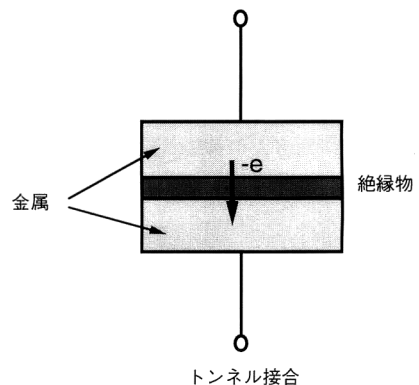


図2 絶縁物を間に挟んだ金属接合。

ルギーが減少しなくてはならない。伝導に寄与する電子のエネルギー E は、電子のフェルミエネルギー E_F 付近のみである。熱的広がりを考慮すれば、 E は $E_F + k_B T/2$ と $E_F - k_B T/2$ の間になくなくてはならない。すなわち $E_F + k_B T/2 > E > E_F - k_B T/2$ となっている。したがって、 ΔE が大きくトンネル後の電子のエネルギーが $E_F - k_B T/2$ 以下になってしまうような現象は起こり得ないということになる。このことを考慮するとトンネル現象を実現するためには次の条件が満たされなくてはならない。

$$E_F + k_B T/2 - \Delta E > E_F - k_B T/2 \quad (12)$$

左辺は、トンネル前の電子のとり得る最大エネルギーを有する電子がトンネルしたときのエネルギーを表しており、一方、右辺は電子のとり得る最小エネルギーを表している。この式を書き換え

$$k_B T > \Delta E \quad (13)$$

となる。

次にトンネル前に電荷 q があるときを考えよう。トンネル前のエネルギーが $E = q^2/2C$ 、トンネル後が $E = (q-e)^2/2C$ となることを考慮すれば ΔE は

$$\Delta E = \frac{e}{C} \left(\frac{e}{2} - q \right) \quad (14)$$

となる。この式または図3からわかるように ΔE は $e/2$ を境にして符号が変わることに注意されたい。

さて、今温度は十分低いとする。この場合にトンネルが可能であるためには、式(13)を満たすためにはトンネル直前の電荷 q が $e/2$ であつ $e/2$ に限りなく近くないといけない。今接合部に電荷が $e/2$ 以上の電荷がたまるように電圧をかけると、トンネルが頻繁に起こり電流が流れるが、電圧の時間平均が $e/2C$ より小さいとなか

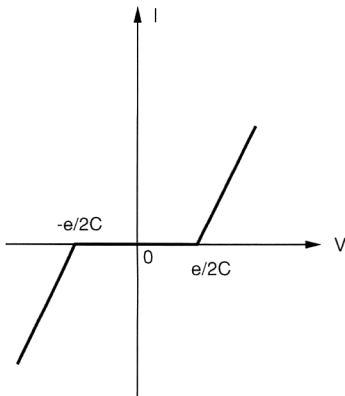


図3 トンネル接合のエネルギーを電荷量の関数として計算した結果。

なかトンネルが起こらず、電流が流れにくい。結局定電圧電源で駆動した場合には、図4のような $I-V$ 特性が得られることになる。このように電圧が低いとき、帯電効果により電流が流れにくくなる現象をクーロン閉塞という。定電流源で駆動したときには、電圧が $e/2C$ より小さいときにはトンネルがほとんど起こらず電圧は直線的に増加し、電圧が $e/2C$ を越えると電子のトンネルが起こりその結果電圧が不連続的に変化する。定電流駆動ではこの現象が振動的に繰り返される。この振動を単一電子トンネリング (single electron tunneling: SET) という。

このような SET 現象においては、小さな容量を有するトンネル接合を実現することが重要である。たとえば $T=1$ K においては C は 10^{-15} F のオーダーの容量を実現しなくてはならない。ましてや室温動作可能なためにはさらに2桁小さくしなくてはならない。最近の微細量子構造作製技術がこのような接合容量をすこしずつ可能にしている。量子ドットがこの SET においても重要な役割を果たす。

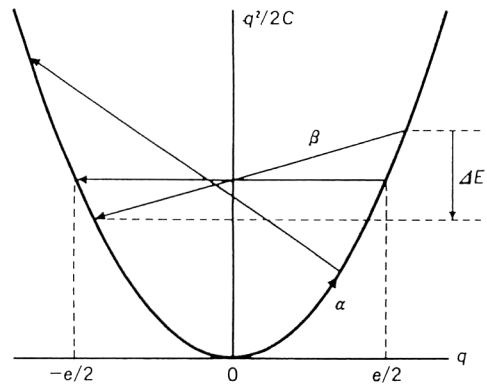


図4 クーロンブロード状態におけるトンネル接合の $I-V$ 特性 (定電圧駆動の場合)。

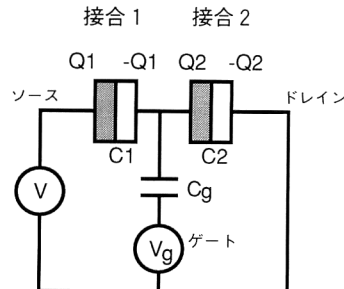


図5 SET トランジスターの概念図。

このような SET を利用したデバイスの代表的なものが SET トランジスタである。ここでは紙面の関係があるので図5に SET トランジスタの構成図を示しておくにとどめておこう¹¹⁾。

4. 励起子効果

クーロン相互作用のもうひとつの重要な物理現象として電子-正孔対による励起子効果がある。さらに励起子の多体効果であるバイエキシトン効果も物理としては重要である。さらに磁気励起子なども興味深い。ここでは、励起子および磁気励起子について簡単に議論しよう。

有効質量近似のもとではクーロン相互作用、磁場効果を考慮した電子-正孔対の運動は次のハミルトニアンで記述される。

$$H = \frac{(P_e + qA)^2}{2m_e} + V_e(x_e) + \frac{(P_h + qA)^2}{2m_h} + V_h(x_h) - \frac{e}{4\pi\sqrt{(x_e - x_h)^2 + (y_e - y_h)^2 + (z_e - z_h)^2}} \quad (15)$$

ここで A はベクトルポテンシャル、 e, h は電子と正孔を表している。 P_j, V_j ($j=h, e$) は電子、正孔の運動量、ポテンシャル形状である。 V に量子ドットのポテンシャル形状を入れれば（一般的には数值的に）励起子エネルギー等を計算することができる。

図6は GaAs/AGaAs 量子井戸、量子細線、量子ドットにおける励起子の結合エネルギーを、それぞれの構造の寸法の関数として計算した結果である。量子細線、量

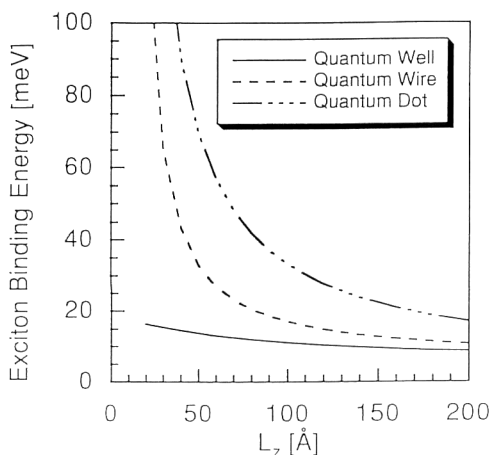


図6 GaAs/AGaAs 量子井戸、量子細線、量子ドットにおける励起子の結合エネルギーを、それぞれの構造の寸法の関数として計算した結果。

子ドットにおいては結合エネルギーが大幅に増大することが了解されよう¹³⁾。

5. 電子とフォノンとの相互作用 —フォノンボトルネックは致命的な問題か?—

すでに述べたように量子ドットレーザーは、低閾値電流特性、高変調周波数帯域特性、高純度スペクトル特性、すぐれた温度特性など、さまざまな特長を引き出せると予測されている。しかし、一方ではエネルギー準位の離散化に伴うフォノンボトルネックの問題が提議されており、レーザー特性の性能向上（特に閾値電流特性）に対して疑問が投げかけられてきた。ここでは、量子ドット中における電子 LO フォノン相互作用について検討した結果について簡単に論じておこう¹³⁾。通常電子と LO フォノンの遷移時間は次式のようなフェルミの黄金率に従って計算されてきた。

$$\tau^{-1} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle i|H'|f\rangle|^2 \delta(E_i - E_f \mp \hbar\omega) \quad (16)$$

ここから計算される τ は 10^{-14} 以下であり、これと LO フォノンの分散曲線を考慮したエネルギー遷移の帯域幅 ΔE の積は $h/2\pi$ と比べると相当小さくなってしまふ。すなわち、フェルミの黄金則に基づく解析を単純に行くと不確定性原理と矛盾が生じるのである。この矛盾は単純に黄金則を使ったために生じたものであり、より直接的に結合方程式から直接遷移レートを計算するという手法を用いればより厳密な議論ができる。この結合方程式は、量子ドット中と障壁層の電子のモードとフォノンのモードを書き出し、これら各モードの波動関数の係数に関する結合方程式を、時間を含むハミルトニアンに

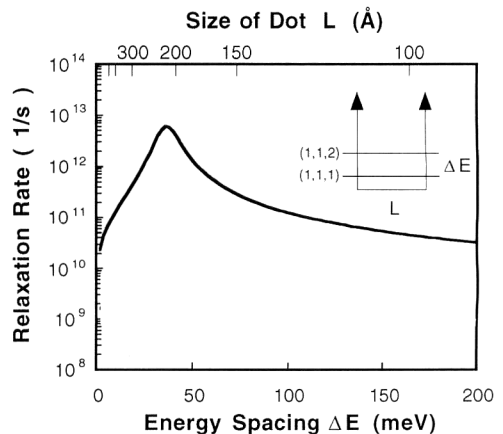


図7 電子と LO フォノンとの相互作用による単位間遷移確率をエネルギーの関数として計算した結果。

に基づき導出し、これを数値的に解く。

図7はこのようにして計算した結果であり、遷移確率のエネルギースペクトラムが広いエネルギー範囲において高い値をもっていることがわかる。したがって電子とLOフォノンの相互作用はキャリア緩和過程に有効であり、いわゆるフォノンボトルネックの問題はほとんど無視できると結論することができる。また、特にレーザーにおいては、電子と正孔が存在するためにクーロン相互作用がキャリアの緩和に有効に働くと考えられる。これらの結果に基づきレーザー特性を計算すると、量子ドットのサイズを適切に選択すれば（具体的には8~10 nm程度）、閾値電流は10 nA程度に達し得ることが明らかになった。また変調周波数帯域は光非線形利得効果を考慮しても300 GHz程度にまで達することが可能であることがわかった。これらの結果は、この構造がボトルネックの問題をほぼ排除できるとともに、量子ドットレーザーにおいて優れた特性が実現されることが期待できることを示している。

本論では量子ドットの物理に関するいくつかの基礎事項について述べた。量子ドットの具体的な応用としては、レーザー、光変調器、光スイッチングデバイス、光メモリなど、光デバイスについてはさまざまな応用があげられる。これらのデバイスに量子ドットを導入することにより、性能の飛躍的向上が期待できよう。しかし、このような状況を実現するためには、寸法のそろった良質でかつ高密度な量子ドット列が実現されなければならない。

ナノ構造の研究は、原子オーダーで構造を制御しているとするものであり、極限をめざす科学者、技術者の夢を駆り立てるものである。このため、現在、さまざまな立場から多くの研究者がこの分野の研究に基礎研究と

して取り組んでいる。しかし、このようなナノ構造に関する研究を息切れさせずに真に確立し、大きな流れを実現するためには、光デバイスに限らず電子デバイスでもよいから、ともかく従来にない高性能な役に立つデバイスを、実際につくってみせることが重要であろう。これが5年くらいのうちにできないと、人々は疑い始めサポートをしにくくなってしまう。大学の研究はそれでもやり続ければよいが、デバイス技術としては、暗礁にのりあげるかもしれない。光デバイスは量子ドットのデバイス応用として最も適している。今後の発展を強く望みたい。

文 献

- 1) Y. Arakawa and H. Sakaki: *Appl. Phys. Lett.*, **40** (1982) 939.
- 2) Y. Arakawa, K. Vahala and A. Yariv: *Appl. Phys. Lett.*, **45** (1984) 950.
- 3) Y. Arakawa and A. Yariv: *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-22** (1986) 1887.
- 4) Y. Arakawa, H. Sakaki, M. Nishioka, H. Okamoto and N. Miura: *J. Jpn. Appl. Phys.*, **22** (1983) L804.
- 5) Y. Arakawa, K. Vahala, A. Yariv and K. Lau: *Appl. Phys. Lett.*, **47** (1985) 1142.
- 6) Y. Arakawa, K. Vahala, A. Yariv and K. Lau: *Appl. Phys. Lett.*, **48** (1986) 384.
- 7) Y. Arakawa, K. Vahala and A. Yariv: *Surface Sci.*, **174** (1986) 155.
- 8) M. Asada and Y. Suematsu: *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-21** (1985) 434-442.
- 9) Y. Miyamoto, Y. Miyake, M. Asada and Y. Suematsu: *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-25** (1989) 2001-2006.
- 10) K. J. Vahala: *IEEE J. Quantum Electron.*, **24** (1988) 523-531.
- 11) 勝本信吾: *科学* **63** (岩波書店, 1993) 530 にわかりやすい解説がある。
- 12) 上田仁志: *応用物理* **62** (1993) 1233
- 13) T. Tanaka and Y. Arakawa: unpublished.
- 14) H. Nakayama and Y. Arakawa: *Proc. of Int. Workshop on Mesoscopic Phys. and Electron.* (March 6-8, Tokyo, Japan, 1995).