科学研究費助成事業

研究成果報告書



平成 26 年 6月 23 日現在

機関番号: 3 3 9 2 4
研究種目: 基盤研究(B)
研究期間: 2011~2013
課題番号: 2 3 3 6 0 1 6 4
研究課題名(和文)第 種量子ドット入り三角障壁構造による電子伝導の制御と光検出器応用
研究課題名(英文)Electron transport in triangular-barriers with buried type-II quantum dots and their photodetector applications
研究代表者
榊 裕之(SAKAKI, Hiroyuki)
豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授
研究者番号:9 0 0 1 3 2 2 6
交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 12,900,000 円、(間接経費) 3,870,000 円

研究成果の概要(和文): 高純度GaAs膜の中央に負に帯電したアクセプタを面状に配し、膜の上下にn型電極を設け ると三角型障壁を持つ素子ができる。この素子の上部電極に正の電圧を加えると、障壁が下がり、電子が流れる。また 、光を照射すれば、光で作られた正孔が三角障壁に蓄積し、障壁を下げるため、より低い電圧で電流が流れ、光検出器

として働く。 本研究では、障壁内にGaSb量子ドットを埋め込んだ素子を分子線エピタキシー法で作り、光で生じた正孔がドットに 捕縛されて障壁を局所的に下げるため、光検出感度が格段に高まることを示した。また、電極間にInGaAs系ナノ細線を 埋め込んだ素子では、感度がさらに高まることも見出した。

研究成果の概要(英文): In triangular barrier (TB) diodes, formed by placing acceptors in the middle part of an undoped GaAs layer between a pair of n-type electrodes, electrons are normally blocked by the barri er. Electrons can flow, however, if a sufficiently high voltage is applied to offset the barrier effect. S uch diodes work also as photo-detectors, as photo-generated holes get accumulated in the vicinity of accep tors and lower the barrier.

In this work, we have formed by molecular beam epitaxy novel TB diodes, in which type-II GaSb quantum dot s are embedded near the acceptor layer. We have shown that their detector performances are greatly improve d because photo-generated holes are mostly trapped by GaSb dots and locally reduce the barrier height. We made also TB diodes in which InGaAs quantum rods are embedded across GaAs TB diodes to show that photo-res ponses are further enhanced, as the electron flow is allowed only through the rods and greatly affected by photo-holes trapped in the rods.

研究分野:工学

科研費の分科・細目: 電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード: 光検出器 三角障壁 量子ドット 量子ロッド 分子線エピタキシー 単一光子検出

1.研究開始当初の背景

半導体の PN 接合や PIN 接合は、整流特性 を示すが、これらの素子に光を照射すると、 発生した電子や正孔が電界の作用で N 側や P 側の電極に流れ込み、光電流が生じるため、 光検出器として広く利用されている。他方、 高純度の真性半導体(I)層の上下に N 型電 極を設け、I 層の中央部に負に帯電したアク セプタを面状に入れた素子(図1(a))では、 電子がアクセプタによる斥力を受け、両電極 間には屋根型の三角障壁が生じる(図1(b))

この素子では、印加電圧が低い場合に三角 障壁が作用し、電子の流れが阻止されるが、 電圧を増し、障壁の作用を下げると、電流が 流れ始める(図2)。この素子に光を照射す ると、光で生じた正孔がアクセプタの周辺に 蓄積し、負電荷の作用を弱め、障壁を下げる ため、より低い印加電圧の時も電流が流れる。 この光検出機能に関しては、コーネル大学の イーストマンらが初期的研究を行ったが、大 きな発展を見せていなかった。

2.研究の目的

本研究では、この三角障壁素子の中央部、 即ちアクセプタ層の近傍に、正孔のみを捕縛 する機能を持った第 種量子ドットを埋め 込み、素子の特性と機能の評価を目指した。 特に、光照射で生じた正孔が示す障壁低下の 作用をドットの周辺に集中させ、障壁を流れ る電流の変化を強めることで、光検出機能を 格段に高めることを目指した。

具体的には、GaAs をベースにした三角障壁 構造で、アクセプタ層の近傍に GaSb 系の量 子ドットを埋め込んだ素子を作り、電流・電 圧特性を光照射の前後に計測し、電子伝導機 構と光検出特性の解明を目指した。また、 GaAs 三角障壁素子に、バンドギャップの小さ な InGaAs 系の量子ロッド(柱状構造)を埋 め込んだ素子も試作し、光照射で作られた正 孔をロッドに流入させ、アクセプタの近傍に 蓄積させることで、ロッドを通じて流れる電 流を効果的に増加させる方式の光検出の可 能性を示すことも目的としている。

3.研究の方法

本研究では、以下の方法で研究を推進した。 まず、(1)量子ドット入り三角障壁素子を 設計し、三角障壁の高さが各層の膜厚やアク セプタの面密度にどのように依存するかを 解明し、特性予測を行う。続いて、(2)分 子線エピタキシーによって、設計された結晶 ウェーファの成長を行った。特に、三角障壁 に埋め込む量子ドットや量子ロッドの形成 法を検討し、それらナノ構造の形状や密度の 制御法を確立する。(3)得られたウエーフ ァにリソグラフィ加工を施して、伝導特性や 光検出の評価のための素子を作成する。(4) 得られた素子について、光照射前に、暗所に おいて電流-電圧特性とその温度依存性を計 測・解析する。(5)光検出特性の計測と解 析に関しては、光照射に伴う伝導特性の経時 変化および連続光照射下の伝導特性を調べ るとともに、光照射後に正孔残存に伴う伝導 特性の持続的変化を調べる。さらに、(6) 蓄積した正孔を除去し、伝導特性の初期化の 手法を検討する。

4. 研究成果

(1)研究成果の概要

本研究では、三角障壁構造に、GaSb系の量 子ドットを埋め込んだ素子と InGaAs 系の量 子ロッドを埋め込んだ素子を試作し、伝導特 性と光検出特性を調べた。いずれも、正孔の みを捕縛する第 種量子ドット機能が働き、 高い光感度を示すことを明らかにした。

(2) 量子ドット入り三角障壁素子の設計・試作

図1(a)と(b)に示すように、高純度の GaAs (1層)の上下にN型電極を設けたNINダイ オードのI層の中央部に負に帯電したアクセ プタ層を導入すれば、三角障壁ができる。障 壁の高さはI層の膜厚やアクセプタの面密度 にほぼ比例するので、制御ができる。本研究 では、試料により0.3~0.7eV(電子ボルト) の範囲に設定した。また、この三角障壁のア クセプタ層の近傍にGaSb量子ドットを導入 した構造では、正孔を選択的に捕縛するバン ド図(図1(c)と(d))が得られる。この構 造を持つ結晶を分子線エピタキシによって 成長し、得られた結晶にリソグラフィ加工を 施し、ドット入り三角障壁素子を作成した。



図1 三角障壁素子のバンド図(a)と構造(b) および第 種量子ドット入り三角障壁素子 のバンド図(c)と構造(d)

(2) 量子ドット入り三角障壁素子の伝 導特性

ドット入り三角障壁素子の電流-電圧特性 を 10K から室温(300K)まで広い温度範囲で 計測した。その結果を図2に示す。低温では、 障壁の作用が強く働くため、電子の流れは抑 制されるが、バイアス電圧を一定以上の値 (障壁の高さの約2倍)まで高めると、障壁 が極めて低くなり、電流が急速に流れ始める ことが分かる。また、温度を上げると、熱励 起された電子が障壁を通過する確率が高ま り、電流は急増する。



図 2 試作した素子の電流電圧特性と その温度依存性

(2) 量子ドット入り三角障壁素子の光検出特性

試作したドット入り三角障壁素子に対す る光照射の効果を77Kにおいて調べた。波長 625nm の LED 光を 1 平方センチ当たり 1 µ W ほどの強度で、直径約 500 µm の素子に照射 した時の電流-電圧特性を、図3に示す。光 照射下では、電流が著しく増大しており、光 照射で生じた正孔の作用で、障壁に作用が殆 ど消滅していることが分かる。他方、光照射 を停止してから、1 分、3 分、10 分後に計測 した電流-電圧特性も調べたところ、図3に 示した通り、照射前の特性には戻らず、照射 面の特性を約 200mV ほど低電圧側に平行移動 した特性となることが判明した。これから、 光照射で作られた正孔の多くが量子ドット に捕縛されて、30分後も残存していることが 見てとれる。



図3 試作した素子の電流・電圧特性に 対する光照射効果

この正孔の蓄積効果を明らかにするため に、約20µ角の寸法の素子を4.2Kに冷却し、 約 50PW/cm² ほどの微弱な光を照射した時の 電流の経時変化を計測した。図4に示すよう に、バイアス電圧が0.8V および0.9V におい て、電流は指数関数的に増大し、三桁程度上 昇した後に、飽和する傾向を示しており、正 孔の蓄積の増加に伴って、障壁が低下するこ とが見てとれる。他方、この光検出機構では、 正孔の蓄積が電流-電圧特性を支配するため、 微弱な光を積分した上で検出するのに適す るが、必要に応じ、蓄積した正孔を消去する 必要がある。これには、バイアス電圧を高め、 量子ドットの周辺に電子を流入させて正孔 と再結合させるとともに、正孔を電界の作用 で引き抜くことが有効であることも見出し た。



(3) InGaAs 系の量子ロッド入り三角障壁素子の設計と試作

GaAs 系の三角障壁構造において、上下の両 電極の間にバンドギャップの小さな InGaAs 系の量子ロッド(柱状)構造を埋め込むと(図 5(a)と(b)、バンド図が、図5(c)と(d)に 示す形になるため、バイアス電圧を加えた時 の電流は、低温では、主にロッド内を流れる ことが期待される。



図 5 量子ロッド埋め込み三角障壁素子 の構造(a)、TEM(b)、バンド図(c)、(d)

他方、この素子に光を照射すると、光励起 で生じた正孔がロッド部に流入し、三角障壁 の頂上部に蓄積することが予測される。この 正孔は、ロッドの近傍の障壁を下げるため、 ロッドを介する電子電流を大きく増大させ ることが期待される。この予測に基づき素子 を設計し、分子線エピタキシーを用いて結晶 成長を行った。

(3) 量子ロッド入り三角障壁素子の電 流-電圧特性および光検出特性

ロッド入り三角障壁素子(Q-rod TBP)とロ ッドを含まない三角障壁素子(SL-TPB)の二 種の試料を対象にして、100Kにおいて、電流 -電圧特性を計測した。光照射前の測定結果 を図6の と とで示す。障壁効果が強く効 いており、バイアス電圧を一定以上に高めて、 障壁を下げると、電流が急激に上昇すること が分かる。また、ロッド入りの試料では、よ り低いバイアス電圧で電流が増加しており、 実効的な障壁が低いことが分かる。

光照射中の電流-電圧特性も計測した。その結果を図6の白抜きの と で示す。同じ 大きさの電流を流すために必要なバイアス 電圧は、照射前に比べて 200~300mV ほど低 くなっており、光励起で発生した正孔が蓄積 され、電子の流れに対する障壁を下げており、 本素子が優れた光検出特性を持つことが分 かる。また、この素子については、正孔を除 去する手法についても調べたところ、一定程 度のバイアス電圧を印加すれば、蓄積した全 正孔が迅速に除けることも明らかにしてい る。



図 6 量子ロッド入り三角障壁素子 (Q-rod TBP)とロッドのない素子(SL-TBP) の電流・電圧特性。測定温度は100K。 光照射時のデータを白抜きの と で示 し、光照射前は塗りつぶしで示す。

(4)研究成果のまとめと課題

三角障壁を持つ素子において、障壁の内部 に、GaSb系の量子ドットまたは InGaAs 系の 量子ロッド(柱状構造)を埋め込んだ二種類 の新型素子を設計・試作し、その伝導特性を 光照射の前後で調べた。

その結果、光励起で発生した正孔がドット やロッドに流入し、三角障壁を局所的に低下 させるため、光検出素子として高い受光感度 を実現できることが判明した。また、ドット やロッド流入して、蓄積された正孔は、より 高いバイアス電圧を印加すると消去でき、特 性が初期化できることも明らかにした。なお、 本素子は、入射する光子の効果が蓄積・積分 されるため、極微光の検出に適しているが、 単一光子の検出には、素子の寸法を数ミクロ ンかそれ以下に設定し、暗電流下げるのが有 効であることを示した。

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計15件)

"GaAs/AlGaAs quantum wells with indirect-gap AlGaAs barriers for solar cell applications", <u>T. Noda</u>, L. M. Otto, M. Elborg, M. Jo, T. Mano, <u>T. Kawazu</u>, L. Han, <u>H. Sakaki</u>, Appl. Phys. Lett. 104, 122102-1-4, DOI: 10.1063/1.4869148, 2014

(査読有)

"Triangular-barrier quantum rod photodiodes: Their fabrication and detector characteristics", <u>M. Ohmori</u>, Y. Kobayashi, <u>P. Vitushinskiy</u>, S. Nakamura, T. Kojima, <u>H. Sakaki</u>, Appl. Phys. Lett. 104, 8, 081120-1-4, DOI: 10.1063/1.4867242, 2014 (査読有)

" Growth of GaSb quantum dots on GaAs (311)A", <u>T. Kawazu</u>, <u>T. Noda</u>, T. Mano, Y. Sakuma, <u>H. Sakaki</u>, J. Cryst. Growth, 378, pp. 475-479, DOI: 10.1016/j.jcrysgro. 2012.11.020, 2013 (査読有)

"Fabrication of InAs nanoscale rings by droplet epitaxy", <u>T. Noda</u>, M. Jo, T. Mano, <u>T. Kawazu</u>, <u>H. Sakaki</u>, J. Cryst. Growth, 378, pp. 529-531, DOI: 10.1016/ j.jcrysgro.2012.11.036, 2013 (査読有)

"Impacts of ambipolar carrier escape on current-voltage characteristics in a type-I quantum-well solar cell", M. Jo, Y. Ding, <u>T. Noda</u>, T. Mano, Y. Sakuma, K. Sakoda, L. Han, <u>H. Sakaki</u>, Appl. Phys. Lett. 103, 6, 061118-1-4, DOI: 10.1063/ 1.4818510, 2013 (査読有)

"Photo-induced current in n-AlGaAs/ GaAs heterojunction channels driven by local illumination at the edge regions of Hall bar", <u>T. Kawazu</u>, <u>T. Noda</u>, T. Mano, Y. Sakuma, <u>H. Sakaki</u>, Appl. Phys. Lett. 102, 25, 252104-1-5, DOI:10.1063/1.4812293, 2013 (査読有)

"Formation of InAs/AIGaAs/GaAs nanowire structures by self-organized rod growth on InAs quantum dots and their transport properties", <u>M. Ohmori, P.</u> <u>Vitushinskiy</u>, T. Kojima, <u>H. Sakaki</u>, Appl. Phys. Express, 6, 4, 045003-1-3, DOI: 10.7567/APEX.6.045003, 2013 (査読有)

"Effects of Sb/As interdiffusion on optical anisotropy of GaSb quantum dots in GaAs grown by droplet epitaxy",<u>T. Kawazu</u>, <u>T. Noda</u>, T. Mano, Y. Sakuma, <u>H. Sakaki</u>, Jpn. J. Appl. Phys, 51, 11, 115201-1-4, DOI:10.1143/JJAP.51.115201, 2012 (査読 有)

"Current-voltage characteristics of GaAs/AlGaAs coupled multiple quantum well solar cells", Y. Ding, <u>T. Noda</u>, T. Mano, M. Jo, <u>T. Kawazu</u>, L. Han, <u>H. Sakaki</u>, Jpn.J. Appl. Phys, 51, 10, 10ND08-1-3, DOI: 10.1143/JJAP.51.10ND08, 2012 (査読有)

"Anomalous capacitance-voltage characteristics of GaAs/AlGaAs multiple quantum well solar cells", <u>T. Noda</u>, T. Mano, M. Jo, Y. Ding, <u>T. Kawazu</u>, <u>H. Sakaki</u>, Jpn. J. Appl. Phys, 51, 10, 10ND07-1-3, DOI:10.1143/JJAP.51.10ND07, 2012 (査読 有)

"Self-assembly of InAs ring complexes on InP substrates by droplet epitaxy", <u>T.</u> <u>Noda</u>, T. Mano, M. Jo, <u>T. Kawazu</u>, <u>H. Sakaki</u>, J. Appl. Phys. 112, 6, 063510-1-4, DOI: 10.1063/1.4752255, 2012 (査読有)

"Optical anisotropy of GaSb type-II nanorods on vicinal (111)B GaAs",<u>T.</u> <u>Kawazu, Y. Akiyama, T. Noda</u>, T. Mano, Y. Sakuma, <u>H. Sakaki</u>, Appl. Phys. Lett., 99, 231901-1-3, DOI:10.1063/1.3665394, 2011 (査読有)

"Anisotropic scattering of elongated GaSb/GaAs quantum dots embedded near two-dimensional electron gas", G. Li, C. Jiang, <u>H. Sakaki</u>, J. Nanoscience and Nanotechnology, 11, 12, pp.10792-10795, D01:10.1166/jnn.2011.3980, 2011 (査読有)

"Self-assembled growth of GaSb type-II nanorods aligned along quasiperiodic multiatomic steps on vicinal (111)B GaAs", <u>T. Kawazu</u>, <u>Y. Akiyama</u>, <u>H. Sakaki</u>, J. Cryst. Growth, 335, 1, pp.1-3, DOI:10.1016 /j.jcrysgro.2011.09.016,2011 (査読有)

"Effects of interface grading on electronic states and optical transitions in GaSb type-II quantum dots in GaAs", <u>T.</u> <u>Kawazu, H. Sakaki</u>, Japanese J. Appl. Phys., 50, 04DJ06-1-4, DOI:10.1143/JJAP.50.04D J06, 2011(査読有)

[学会発表](計45件)

"Recent progress in self-organized growth of quantum dot and wire structures and their advanced device applications", <u>H.Sakaki</u>, Trends in Nanotechnology International Conference (TNT Japan), Tokyo Big Sight, Tokyo, Japan (2014.1.29) "Growth of GaSb quantum dots on GaAs (111)A", <u>T. Kawazu</u>, <u>T. Noda</u>, T. Mano, Y. Sakuma, <u>H. Sakaki</u>, 12th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures in conjunction with 21st International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, (ACSIN-12 & ICSPM21), Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan (2013.11.7)

"Epitaxy and advanced device applications of quantum dots and related nanostructures", <u>H. Sakaki</u>, 4th International Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures (SemiconNano 2013), Lake Arrowhead, California, USA (2013.9.30)

"Post-growth anealing of GaSb quantum dots in GaAs formed by droplet epitaxy", <u>T. Kawazu</u>, <u>T. Noda</u>, T. Mano, Y. Sakuma, <u>H.</u> <u>Sakaki</u>, The 40th International Symposium on Compound Semiconductors, Kobe Convention Center, Kobe, Japan (2013.5.20)

InAs/AlGaAs 量子ロッド構造の電流電圧 特性,小嶋友也,<u>大森雅登</u>,<u>Pavel</u> <u>Vitushinskiy</u>,<u>榊裕之</u>,第74回応用物理 学会秋季学術講演会(同志社大学京田辺キャ ンパス) (2013.9.18)

量子ドット構造を用いた三角障壁フォト ダイオードの光検出特性,中村 翔,<u>大森雅</u> 登,<u>Pavel Vitushinskiy</u>,<u>榊 裕之</u>,第74 回応用物理学会秋季学術講演会(同志社大学 京田辺キャンパス)(2013.9.16)

"Fabrication of InAs nanoscale rings by droplet epitaxy and their optical properties", <u>T. Noda</u>, M. Jo, T. Mano, <u>T.</u> <u>Kawazu</u>, <u>H. Sakaki</u>, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2012), Nara, Japan (2012.9.25)

"Growth of GaSb quantum dots on GaAs (311)A", <u>T. Kawazu</u>, <u>T. Noda</u>, T. Mano, Y. Sakuma, <u>H. Sakaki</u>, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2012), Nara, Japan (2012.9.25)

"Molecular beam epitaxy of quantum dots and wires and their advanced device applications", <u>H. Sakaki</u>, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2012), Nara, Japan (2012.9.24)

GaAs(311)A 基板上の GaSb ドットの成長, <u>川津琢也</u>,<u>野田武司</u>,間野高明,佐久間芳樹, <u>榊裕之</u>,2012 年秋季 第73 回応用物理学 会学術講演会(愛媛大学・松山大学) (2012.9.12)

GaSb/GaAs 量子ドットを埋め込んだ p型 FET による光検出の可能性,片岡政人,<u>大森</u> <u>雅登,榊裕之</u>,2012 年秋季 第 73 回応用 物理学会学術講演会(愛媛大学・松山大学) (2012.9.11)

"Structural and transport properties

of InAs/AlGaAs columnar quantum dots", <u>M.</u> <u>Ohmori, P. Vitushinskiy</u>, <u>H. Sakaki</u>, 17th International Winterschool Mauterndorf 2012, Mauterndorf, Austria (2012.2.14)

"Photoconductive properties of triangular barrier diodes with embedded type II GaSb quantum dots", <u>H. Sakaki</u>, The 10th Japan-Sweden QNANO Workshop, Visby, Sweden (2011.6.14)

微傾斜 GaAs(111)B 基板上の GaSb タイプ II ナノロッドの自己形成,<u>川津琢也</u>,<u>秋山芳</u> <u>広</u>,<u>野田武司</u>,間野高明,佐久間芳樹,<u>榊 裕</u> 之,2012 年春季 第 59 回応用物理学関係連 合講演会(早稲田大学)(2012.3.17)

液滴エピタキシーで形成した InAs リン グの光学特性,<u>野田武司</u>,間野高明,定 昌 史,<u>川津琢也</u>,丁 毅,<u>榊 裕之</u>,2012年 春季 第59回応用物理学関係連合講演会(早 稲田大学)(2012.3.16)

InAs/AIGaAs コラム状量子ドットを用い たナノ細線の形成と評価,<u>大森雅登</u>,<u>Pavel</u> <u>Vitushinskiy</u>,<u>榊 裕之</u>,2012 年春季 第 59 回応用物理学関係連合講演会(早稲田大 学)(2012.3.16)

ナノ細線フォトトランジスタの形成と光 検出特性の評価,小林由幸,<u>大森雅登</u>, <u>Pavel Vitushinskiy</u>,<u>榊 裕之</u>,2011年秋季 第72回応用物理学会学術講演会(山形大学) (2011.9.1)

液滴エピタキシー法による GaSb/GaAs 量 子ドットの後熱処理効果,<u>川津琢也</u>,<u>野田武</u> <u>司</u>,間野高明,佐久間芳樹,<u>榊 裕之</u>,2011 年秋季 第72回応用物理学会学術講演会(山 形大学)(2011.8.31)

6.研究組織

(1)研究代表者
榊 裕之(SAKAKI, Hiroyuki)
豊田工業大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号:90013226

 (2)研究分担者
大森 雅登(OHMORI, Masato)
豊田工業大学・大学院工学研究科・嘱託研 究員
研究者番号:70454444

VITUSHINSKIY, Pavel 豊田工業大学・大学院工学研究科・研究補 助者 研究者番号:30545330

秋山 芳広 (AKIYAMA, Yoshihiro) 豊田工業大学・大学院工学研究科・研究補 助者 研究者番号:60469773

(3)連携研究者 野田 武司 (NODA, Takeshi) 独立行政法人物質・材料研究機構・ 環境・エネルギー材料部門 太陽光発電材 料ユニット 超高効率太陽電池グループ・ グループリーダー 研究者番号:90251462

川津 琢也 (KAWAZU, Takuya) 独立行政法人物質・材料研究機構 先端的共通技術部門 先端フォトニクス材 料ユニット 量子ナノ構造グループ・主任 研究員 研究者番号:00444076