

令和 4 年 4 月 27 日現在

機関番号：14501

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2021

課題番号：20K21004

研究課題名（和文）赤外増感型バンド内光学遷移の制御と超高感度量子型赤外線センサーへの応用

研究課題名（英文）Control of intraband optical transition sensitized in infrared wavelength region and application for ultra-high sensitive infrared sensor

研究代表者

喜多 隆（Kita, Takashi）

神戸大学・工学研究科・教授

研究者番号：10221186

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では量子ドットとヘテロ界面を融合した量子ナノ構造を有する新しい赤外光センシングデバイスを開発した。このデバイスはヘテロ界面における高効率なバンド内光学遷移エンジニアリングを原理として駆動しており、量子ドット形状による光増感が特徴である。開発したデバイスは $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{GaAs}$ ヘテロ界面に $\text{InAs}$ 量子ドットを挿入した構造で、ヘテロ界面に蓄積される電子が赤外光で励起されて光電流を生じる量子型デバイスである。赤外光センシングは量子ドットによって顕著に増強した。理論計算により、量子ドット界面に局在する強いプラズモンモードによって赤外光の電場が増強していることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究はバンド内光学遷移のエンジニアリングを通じた新しい原理で動作する量子型高効率赤外線センサーである。量子ドットを内包するシンプルなヘテロ構造でありながら室温において市販されているフォトセンサーの光検出能を凌駕することが明らかになり、新しい超高感度量子型赤外線センサーに波及する。また、バンド内光学遷移のエンジニアリングは常温動作する高感度な量子型赤外線センシングを含む未踏の赤外波長領域の光センシングデバイス実現につながる根本であり、近赤外域からテラヘルツ波長帯にまで及ぶ光センシングへの波及効果も予想され、社会的意義も大きい。

研究成果の概要（英文）：We have developed an infrared sensing device with a quantum nano-structure of a heterointerface containing quantum dots. This device exhibits effective intraband photo-absorption at the heterointerface which is enhanced by quantum dots. The central part of our device is an  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{GaAs}$  heterostructure containing  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  quantum dots. In this device, the electrons that have been accumulated at the heterointerface are transferred to the conduction band of the  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  barrier by absorbing infrared photons and the following drift due to the electric field at the interface. These intraband transitions at the heterointerface are sensitized by the quantum dots. According to theoretical calculations, strong localized plasmon modes enhances the electro-magnetic wave of the infrared signal light.

研究分野：半導体電子工学

キーワード：赤外線センサー バンド内光学遷移 量子ナノ構造

## 1. 研究開始当初の背景

バンド内光学遷移はバルクでは自由電子吸収として知られ、量子構造ではバンド内(サブバンド間)光学遷移エネルギーが制御でき、量子型赤外線センサー(吸収)や量子カスケードレーザー(発光)などに応用されている。たとえば、2次元の自由度を持つ量子井戸の場合、量子井戸に垂直に入射する光(量子井戸面内に偏光した光)に対してバンド内光学遷移は「禁制」であり、光吸収は生じない。そのため、量子井戸を利用する場合は量子井戸に平行な光入射成分を大きくするための工夫をデバイス表面や裏面に凝らされている。一方、量子ドットを用いればすべての方位からの光に対してバンド内遷移は「許容」となるので、面型光センサーには最適である。そのため、量子ドットを用いた赤外線光検出デバイスの研究が活発に行われてきた。しかし、量子ドットの面密度は $10^{10}\text{cm}^{-2}$ 程度であるので量子ドットにおけるバンド内光吸収強度をデバイスに利用できるほど大きくするには多層積層によって量子ドット数を増やすことが必要であるが、結晶成長の観点から転移の発生を抑えて結晶品質を保ちながら量子ドットの高密度化を図るには解決しなければいけない多くの課題がある。

このような状況の中、最近、AlGaAs/GaAsヘテロ界面に量子ドットを挿入した量子ナノ構造において、バンド間光吸収に相当するような非常に強いバンド内光吸収を発見した。最近の研究で、このようなわずか1層のヘテロ界面で強いバンド内光吸収が量子ドットによる増感現象であることが明らかになってきている。この原理のポイントは、量子ナノ構造による「バンド内光学遷移エンジニアリング」であり、量子ナノ構造でないと制御できない物性である。また、本研究における挑戦は、量子構造を赤外光の吸収媒質として直接利用していた従来のデバイスとは根本的に異なり、量子ドットによって変調されたヘテロ界面におけるバルクレベルの強いバンド内遷移を誘発するという新しい原理に基づいている。

## 2. 研究の目的

量子ナノ構造を利用するとバンド内のサブバンド間光学遷移によって赤外波長域に応答する光電変換が可能になる。バンド内光学遷移は半導体のヘテロ界面で発現するため、価電子バンド⇔伝導バンド間における熱励起キャリアの生成を抑制しつつ、ヘテロ界面のバンドオフセットエネルギーと同程度のフォトンエネルギーを有する赤外光の吸収を同時に実現することができる(図1)。われわれはこれまでに半導体ヘテロ界面に量子ドットを挿入したシンプルな量子ナノ構造においてバンド間光吸収に相当するような非常に強いバンド内光吸収を発見した【朝日, 喜多他, Nature Communications (2017, 2019)】。バンド内光学遷移強度は、光電場で誘起される電子分極の大きさと遷移始状態の電子占有率に

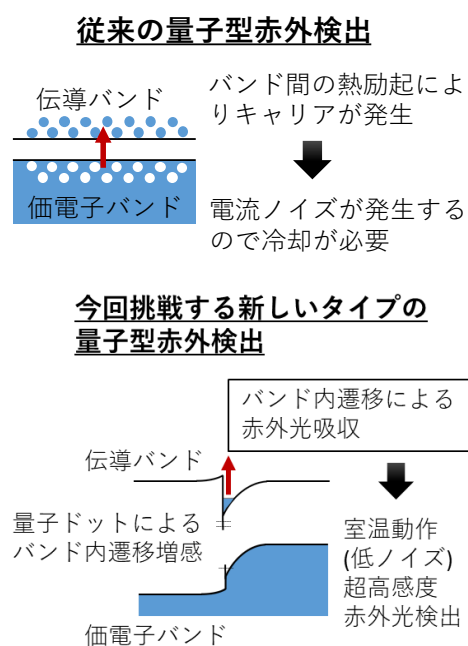


図1 今回開発する量子型赤外線センサーの特徴。

比例する。本研究では、この半導体ヘテロ界面に量子ドットを挿入した量子ナノ構造において発現する強いバンド内光学遷移分極の学理を追求し、赤外域（特に 3~8  $\mu\text{m}$  の中赤外域）においてこれまでにない高い光検出能を実現するとともに、バンド内光学遷移分極制御によって遷移強度を極限まで高めて室温動作超高感度量子型（フォトン吸収に応じて電流増加する）赤外線センサーに応用することを目的にした。

### 3. 研究の方法

#### (1) 量子ナノ構造の作製と基礎光学特性評価・制御

実績がある分子線エピタキシー技術を利用して、GaAs (001) 基板の上に AlGaAs/GaAs ヘテロ界面に InAs 量子ドットを挿入した量子ナノ構造を内包するダイオード構造を作製する。また、光電流計測システムとフォトルミネッセンス測定システムを駆使してバンド内に形成される準位を詳細に調べる。

#### (2) バンド内光学遷移増強効果メカニズムの解明

量子ドットの面内サイズ異方性制御や量子ドットの多層積層によるアスペクト比制御によって、入射光に対する遷移選択則を最適化し、光電場で誘起される電子分極を最大化する。また、光吸収と光散乱強度の励起光入射角度依存性によって局在表面プラズモン形成による近赤外~中赤外領域における光アンテナ効果を実証する。

#### (3) 光吸収係数の定量評価とバンド内遷移光電流の最大化

n-i-n デバイス構造を作製し、バイアス電圧印加状態での光電流特性を詳細に調べる。ヘテロ界面電子濃度依存性を明らかにしてバンド内光学遷移の吸収率を最大化する。

#### (4) 赤外線センサーの試作と基礎特性評価

これらの成果をもとに赤外線センサデバイス構造の設計とシミュレーションによる最適化を行い、作製したデバイスについて赤外光検出基礎特性を明らかにする。

### 4. 研究成果

本研究では、分子線エピタキシー技術を用いて図 2 のような量子ナノ構造を内包する n-i-n 型デバイスを作製した。図 2 a はデバイス構造、図 2 b は電界分布である。量子ナノ構造は AlGaAs/GaAs ヘテロ界面に InAs 量子ドットを挿入した構造であり、設計によりヘテロ界面に電界が集中していることがわかる。これによって伝導バンドの電子はヘテロ界面に蓄積され、赤外光励起によって外部に取り出すことができる。外部に取り出される電子は入射する赤外光のフォトン数に比例するため、量子型センサーとなる。

このデバイスについてバンド内に形成される準位を詳細に調べるため、室温において光電流スペクトルとフォトルミネッセンススペクトルを詳細に調べた。その結

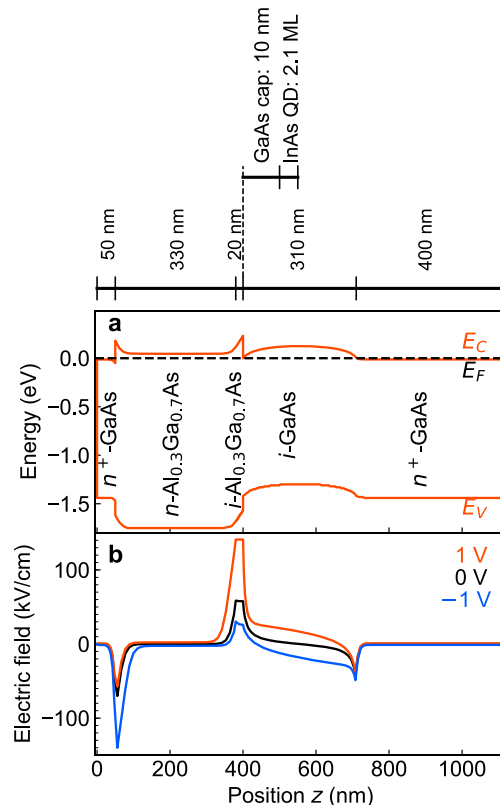


図 2 赤外線デバイス構造

果を図3に示す。

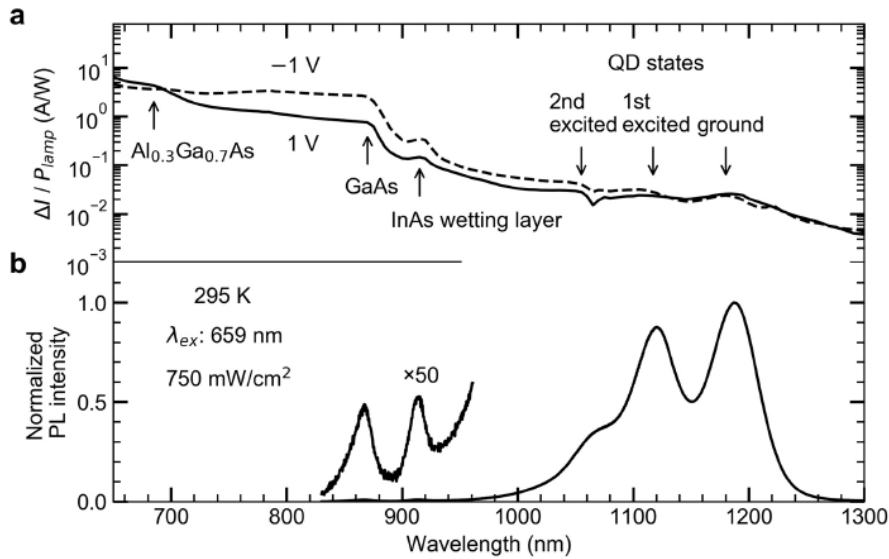


図3 フォトルミネッセンス分光スペクトルと励起吸収による光電流特性。

図3bのフォトルミネッセンススペクトルは量子ドット準位に由来する複数のピークを示しており、それに相当する吸収端が光電流スペクトルに現れている。このことは量子ドットでできたエネルギー準位がしっかりと光吸収のレベルとして働いていることを示している。

また、このデバイスは $1.3\mu\text{m}$ の赤外光に対して室温で明瞭な光応答を示した。図4にその結果を示す。バイアス電圧印加状態での光電流特性を詳細に調べたところ、赤外光強度に応じた光電流の増加が観測された。この赤外検出特性のバイアス依存性より、バイアス電圧によって制御されたヘテロ界面電子濃度に依存した応答特性が明らかになった。また室温においても検出特性の劣化は全く観測されず、極めて低ノイズの光検出を実現していることがわかる。

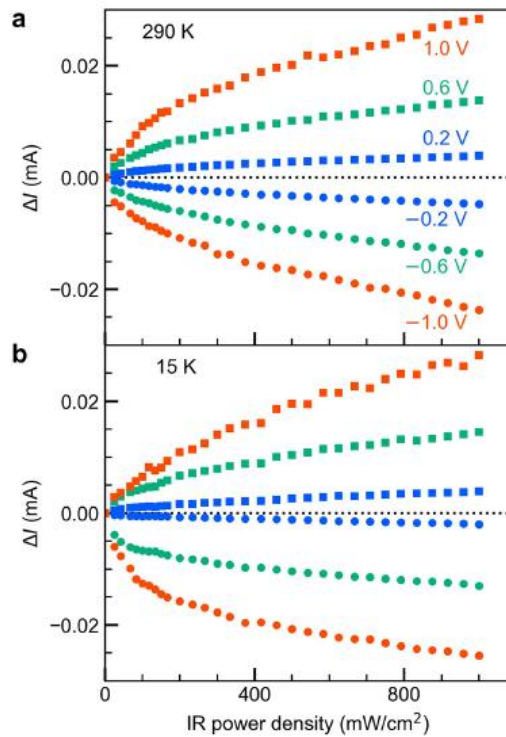


図4 赤外線デバイス構造

このような赤外光の低ノイズで高感度な検出は従来の熱に敏感なフェルミ統計に支配された半導体バンド内の光遷移だけでは説明できず、新たなメカニズムの可能性を示唆している。このような光増感機構は量子ドットを挿入した時に特徴的に現れることから、量子ドットに由来する光増感機構が存在することが明らかになった。このことを明らかにするため、GaAsマトリックス中に挿入したInAs量子ドットによって外部から入射した電磁波(光)がどのように影響を受けるかを理論的に計算した。

図5に、その代表的な結果を示す。量子ドットは半球状であると仮定して計算した。量子ドット頂上付近で入射してきた電磁波は増強されることが明らかになった。この増強特性

は量子ドットのサイズ、形状、密度などによって影響を受け、その応答波長も変化する。また複数の共鳴モードが存在し、応答特性は近赤外から中赤外の波長域をカバーすることが分かった。今後、このような光増強の共鳴特性をより精密に制御することで、これまでにない超高感度な赤外光検出デバイスの実現が期待できる。

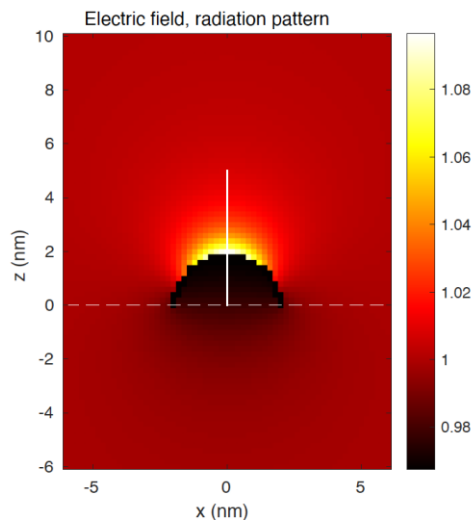


図5 InAs/GaAs 量子ドットによる光電場増強。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 K. Watanabe, S. Asahi, Y. Zhu, and T. Kita	4. 巻 130
2. 論文標題 Voltage Boost Effects in Two-Step Photon Upconversion Solar Cells with a Modulation-Doped Structure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 085701-1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0058518	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Y. Zhu, S. Asahi, N. Miyashita, Y. Okada, and T. Kita	4. 巻 130
2. 論文標題 Two-photon photocurrent spectra of InAs quantum dot-in-well intermediated-band solar cells at room temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 124505-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0060569	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Y. Zhu, S. Asahi, K. Watanabe, N. Miyashita, Y. Okada, and T. Kita	4. 巻 129
2. 論文標題 Two-Step Excitation Induced Photovoltaic Properties in an InAs Quantum Dot-In-Well Intermediate-Band Solar Cell	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 074503-1-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0036313	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 T. Murata, S. Asahi, Stefano Sanguinetti, and T. Kita	4. 巻 10
2. 論文標題 Infrared Photodetector Sensitized by InAs Quantum Dots Embedded Near an Al <sub>0.3</sub> Ga <sub>0.7</sub> As/GaAs Heterointerface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 11628-1-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-020-68461-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 N. Kinugawa, S. Asahi, and T. Kita	4. 巻 14
2. 論文標題 Reciprocal Relation Between Intraband Carrier Generation and interband Recombination at the Heterointerface of Two-Step Photon Up-Conversion Solar Cells	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 014010-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.14.014010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計21件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 7件)

1. 発表者名 T. Kaizu, I. Kohama, Y. Minami, T. Kitada, Y. Harada, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada
2. 発表標題 Lateral Photoconductivity of Multiple-Stacked InAs/GaAs Quantum Dot Structure for Photoconductive Antenna Device
3. 学会等名 Compound Semiconductor Week(CSW)2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Zhu, S. Asahi, and T. Kita
2. 発表標題 Collection of Photocarriers Varied by Effective Electron Intraband Excitation in an InAs Quantum Dot-in-Well Intermediate Band Solar Cell
3. 学会等名 48th IEEE Photovoltaic Specialists Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Asahi, and T. Kita
2. 発表標題 Two-step up-conversion solar cells: recent progress and future direction
3. 学会等名 8th International Workshop Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures (SemiconNano2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Kita
2. 発表標題 Control of Carrier Dynamics in Quantum Dots for Intermediate-Band Solar Cells
3. 学会等名 2021 International Conference on Solid State Devices (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 朝日重雄、M. P .Nielsen、池田一真、N. J. Ekins-Daukes、喜多隆
2. 発表標題 正孔のアップコンバージョンを利用した2段階フォトンアップコンバージョン太陽電池のバンド内遷移過程
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Zhu, S. Asahi, and T. Kita
2. 発表標題 On the Simulation of Two-Step Photocurrent Generation in an InAs Quantum Dot -in-Well Intermediate Band Solar Cell
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 喜多隆
2. 発表標題 太陽電池のエネルギー変換効率と高効率化への道
3. 学会等名 令和3年度 応用物理学会 多元系化合物・太陽電池研究会 年末講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 T. Kita
2. 発表標題 Control of Quantum-Dot Growth for Novel Solar Cells
3. 学会等名 ISPlasma2022 / IC-PLANTS2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 朝日 重雄、H.Mahamu、喜多 隆
2. 発表標題 2段階フォトンアップコンバージョン太陽電池における ヘテロ界面のバンド内遷移の光吸収率
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 豊友太、朝日重雄、H. Mahamu、M. P. Nielsen、N. J. Ekins-Daukes、喜多隆
2. 発表標題 正孔フォトンアップコンバージョン太陽電池の赤外光照射による光電流制御
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Watanabe, S. Asahi, Y. Zhu, and T. Kita
2. 発表標題 Up-Converted Photocurrent Enhancement in Modulation-Doped Two-Step Photon Up-Conversion Solar Cells
3. 学会等名 47th IEEE Photovoltaic Specialists Conference (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Zhu, S. Asahi, and T. Kita
2. 発表標題 Intensive-Light-Induced Backtracking Voltage Phenomenon: An Insight into Intermediate-Band Solar Cell Output Performance
3. 学会等名 47th IEEE Photovoltaic Specialists Conference (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Zhu, S. Asahi, and T. Kita
2. 発表標題 Efficiency Compensation from Intraband Transitions of Opposite Carrier in a Quantum Dot-in-Well Intermediate Band Solar Cell
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡辺航平、朝日重雄、喜多隆
2. 発表標題 変調ドープした二段階フォトンアップコンバージョン太陽電池における電圧上昇効果
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Nakabayashi, S. Asahi, and T. Kita
2. 発表標題 Development of Mid-Infrared Photodetector Can Operate Under Room Temperature with High Sensitivity Using Intraband Transition
3. 学会等名 第39回電子材料シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Zhu, S. Asahi, K. Watanabe and T. Kita
2. 発表標題 Performance Analysis of an InAs/GaAs/Al <sub>0.3</sub> Ga <sub>0.7</sub> As Quantum Dot-in-Well Intermediate Band Solar Cell Under Two-Step Photoexcitations
3. 学会等名 第39回電子材料シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Watanabe, S. Asahi, Y. Zhu, and T. Kita
2. 発表標題 Dramatic Enhancement of Current and Voltage in Modulation-Doped Two-Step Photon Up-Conversion Solar Cells
3. 学会等名 第39回電子材料シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 朝日重雄、M. Nielsen, N.J. Ekins-Daukes, 喜多隆
2. 発表標題 正孔のアップコンバージョンを利用した2段階フォトンアップコンバージョン太陽電池の追加赤外光による光電流減少メカニズム
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y.Zhu, S. Asahi, and T. Kita
2. 発表標題 Performance Degradation of Quantum Dot-in-Well Intermediate Band Solar Cell Under Intense Bi-Color Barrier and Intraband Photoexcitations
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡辺航平、朝日重雄、喜多隆
2. 発表標題 変調ドープした二段階フォトンアップコンバージョン太陽電池における光励起効率の向上
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡辺航平、朝日重雄、Yaxing Zhu、喜多隆
2. 発表標題 変調ドープによるフォトンアップコンバージョン太陽電池の特性制御
3. 学会等名 日本材料学会半導体エレクトロニクス部門委員会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

神戸大学フォトリック材料学研究室 <a href="http://www.research.kobe-u.ac.jp/eng-photonics/">http://www.research.kobe-u.ac.jp/eng-photonics/</a>
---

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	原田 幸弘  (Harada Yukihiro)  (10554355)	神戸大学・工学研究科・助教    (14501)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	朝日 重雄  (Asahi Shigeo)  (60782729)	神戸大学・工学研究科・助教     (14501)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
オーストラリア	ニューサウスウェールズ大学			
イタリア	ミラノピッコカ大学			