

先端物質によるフロンティアフォトニクス

Towards Frontier Photonics Based on Advanced Materials

鎌田 憲彦^{*}、明連 広昭^{*}、矢口 裕之^{*}、谷口 弘三^{*}

Norihiko Kamata, Hiroaki Myoren, Hiroyuki Yaguchi, and Hiromi Taniguchi

Based on science and technology of advanced materials, the quantum mechanical nature of photons can be utilized for expanding the available spectral window and strengthening the security of our social systems. Towards such frontier photonics, we started to study some basic elements from physical and technological aspects. We succeeded in growing β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂ single crystals, detecting THz signal by our superconducting tunneling junction device. An in-situ ellipsometry enabled us to monitor thermal oxidation process of SiC surface, and a spectroscopic detection of non-radiative centers in a InAs/GaAs quantum dot structure became possible. The combination of quantum-mechanical design, nano-scale fabrication and detailed characterization is considered to be essential for proceeding the research frontier of brilliant photonics world.

Key Words: Superconductor, Superconducting Tunneling Junction, Wide Bandgap Semiconductors, Two-Wavelength Excited Photoluminescence

1. はじめに

光学とエレクトロニクスの融合が光（オプト）エレクトロニクスを拓き、今や世界が光信号による通信網で結ばれていることは良く知られている。それでも人類は、まだ光の持つ可能性のごく一部しか利用していない。さらなる革新には光を波（光波）としてではなく「光子（photon）」として、その量子力学的ふるまいを活用した第2段階の科学技術である photonics の構築が望まれている。

極限物性と有機物質合成を進めている物性物理グループ、超伝導トンネル接合（superconducting tunneling junction, STJ）素子の設計、作製と THz 検出を進めている超伝導エレクトロニクスグループ、GaN や SiC 等の半導体結晶成長、素子プロセスを進めているワイドバンドギャップ半導体グループ、そ

してナノ構造成長・分光学的定量評価等を進めている光物性工学グループの研究者らの目標もそこに繋がっており、数年前に「先端物質によるフロンティアフォトニクスの創成」をテーマとする研究グループが立ち上げられた。以下に平成 17 年度の主な研究成果について概説する。

2. 有機伝導体に関する研究

17 年度の成果として、有機伝導体の一種である β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂ の超大型単結晶合成の成功が挙げられる（Fig. 1）。これらは長さが 1 cm 程度であるものの、この系の単結晶としては世界最大である。東北大学の野田研究室との共同研究により、これらの試料を用いて、電荷移動錯体においては、世界で初めて磁気ブラッグの観測に成功した。このような大型単結晶合成に関する研究は、その必要性については明らかであるにもかかわらず、現在においては世界的にみても例がない。

^{*} 埼玉大学理工学研究科

Graduate School of Science and Engineering, Saitama University, 255 Shimo-Ohkubo, Sakura-ku, Saitama 338-8570, Japan



Fig. 1 World-record size crystals of charge transfer complex β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂ (c. 50mg).

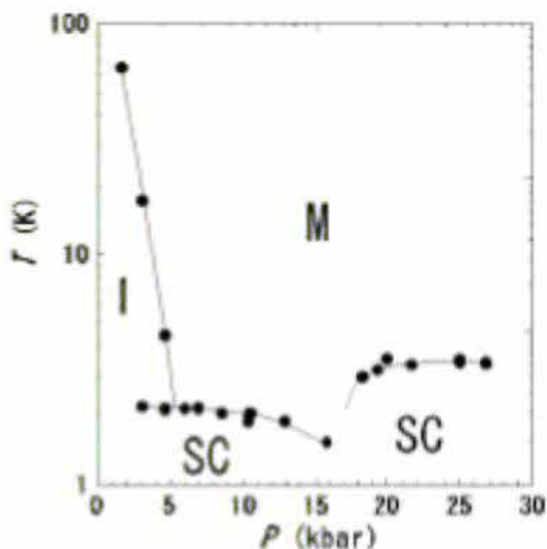


Fig. 2 Phase diagram of κ -(BEDT-TTF)₄Hg_{2.79}Cl₈ showing reentrant superconduction.

また、もう一つの成果として、常圧有機超伝導体 κ -(BEDT-TTF)₄Hg_{2.79}Cl₈ におけるリエントラント超伝導の観測が挙げられる。この物質は Hg の不整合超格子を持つことから、BEDT-TTF 層においては、バンド充填率が、ダイマー系物質の 1/2 充填率やわずかにずれた組成を持つことが期待される。したがって、この物質は Mott 絶縁体へのドーピングにより超伝導が出現しているとみなせる系である。今回この物質の電気抵抗を圧力下において詳細に測定したところ、超伝導が一旦消失し、再び超伝導が

出現するという超伝導のリエントラント現象が観測された (Fig. 2)。ドープ型有機超伝導体としては銅酸化物超伝導体が挙げられるが、有機物質では、

バンド幅を酸化物とは比べ物にならないスケールで制御できるという利点を持つため、バンド充填率

バンド幅二次元パラメーター平面上でこれまで研究できなかった領域の研究が可能になると期待される。さらに研究を進展させるために科学研究費 (特定領域研究) に申請し交付内定の通知を受けた。

以上のような超伝導体の圧力下物性研究と平行して、本年度は、超高圧下物性探索においても成果が上がっている。近年、我々が、転移温度世界記録の超伝導を観測した β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂ と類似物質である β' -(BEDT-TTF)₂AuCl₂ をキュービックアンビル型圧力発生装置を用いて超高圧下物性研究を行った結果、超高圧下では、分子間の相互作用よりもアニオンと分子の相互作用が重要であることが判明した。この成果は、超高圧下での構造変化を予測する上で重要な情報であり、今後の研究において重要な指針となる (JPSJ 注目論文に選出)。また、我々の最初の圧力誘起超伝導の観測 (β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂) の成果は第 11 回 JPSJ 論文賞を得た。

3. 基板吸収型 STJ 素子に関する研究

3.1 研究のねらい

基板吸収型 STJ 素子を用いた THz 波検出器において、(1)吸収体としての基板の厚さが 500 μ m と 1mm の素子を作製して検出効率の向上を目指した。また、(2)フォノンが伝播する基板と直接接触する下部電極の面積を変化させた素子と、単接合を直列に並べて有効検出面積を増大させた直列アレイ接合の作製を行い検出面積の拡大を目指した。

3.2 STJ 素子の作製

基板材料には THz 帯のフォトンの吸収係数が高い LiNbO₃ を、超伝導電極には堆積、加工が容易な Nb 金属を用いた。また、トンネルバリア近傍の準粒子を効率良く収集するために、Al トラップ層を用

いた。トンネルバリアは圧力 20Torr の酸素雰囲気中で、Al 表面を 30 分酸化させて形成した。薄膜の堆積にはスパッタ法を、加工にはフォトリソグラフィ技術と反応性イオンエッチング法を用いた。

3.3 THz 波照射実験

0.4K に冷却された素子に、THz 波パラメトリック発振器(Terahertz Parametric Oscillator : TPO)を用いて THz 波照射実験を行った。THz 波は、光学レンズ等で ³He クライオスタットの入射窓から TPX、フィルタを通して照射される。照射された THz 波はシリコン超半球レンズで集光し、レンズに直接接着された基板に入射される。

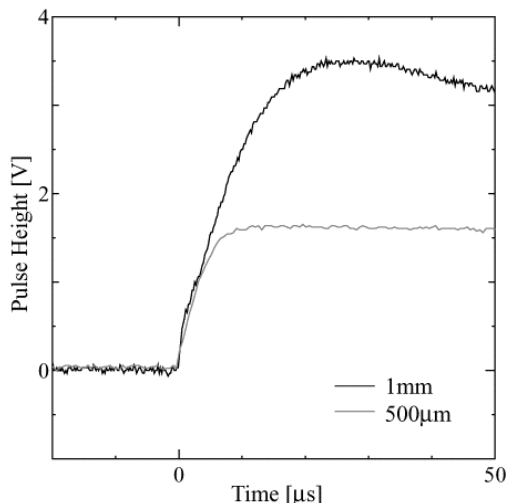


Fig. 3 Output waveforms from STJs with different substrate thicknesses.

Fig. 3 に接合面積 $2500\mu\text{m}^2$ 、厚さが $500\mu\text{m}$ と 1mm の基板上に作製した接合のプリアンプ出力信号を示す。厚さ 1mm の基板を用いた接合は、厚さ $500\mu\text{m}$ の基板を用いた接合と比較して大きな出力信号が得られた。接合面積 $400\mu\text{m}^2$ において、厚さ $500\mu\text{m}$ の基板を用いた時には直接吸収成分しか観測されなかったが、厚さ 1mm の基板を用いた場合には基板吸収成分も現れた。また、接合面積 $2500\mu\text{m}^2$ では、基板を厚くする事で直接吸収成分が消え、基板吸収成分のみ現れるようになった。この結果から、基板

を厚くする事で基板吸収成分の割合が増加する事が分かった。

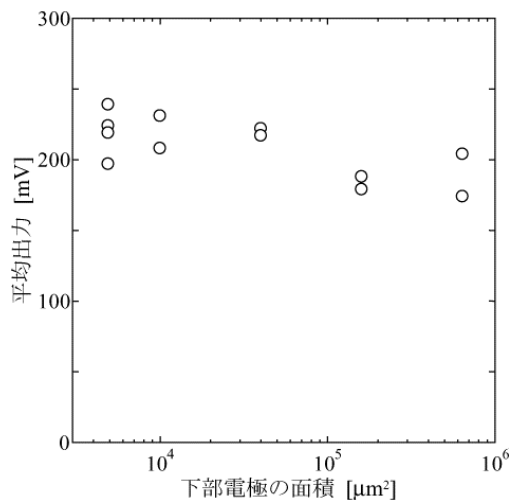


Fig. 4 Averaged output as a function of the area of lower electrode.

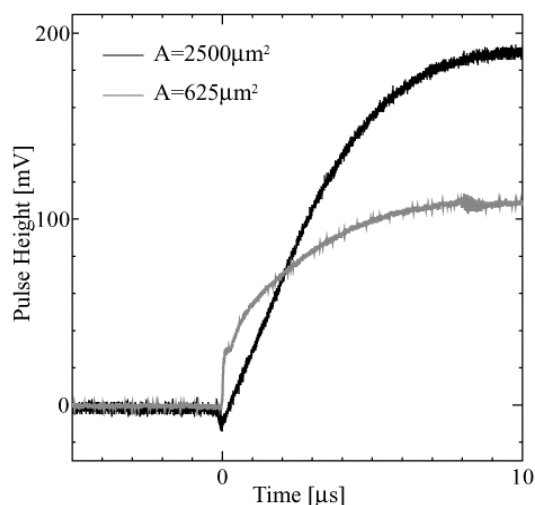


Fig. 5 Pulse height as a function of the area of upper electrode.

Fig. 4 に下部電極の面積に対するプリアンプ平均出力信号を示す。同図より、下部電極の面積を変化させてもプリアンプ出力信号に大きな変化は現れない事が分かる。Fig. 5 のプリアンプ出力信号は、下部電極面積 $4900\mu\text{m}^2$ 、上部電極の面積が異なる場合の結果を示す。図より、下部電極の面積が同じでも、上部電極の面積を大きくする事でプリアンプ出

力信号が大きくなる事が分かる。従って、プリアンプ出力信号の大きさは、下部電極の面積ではなく、トンネルバリアの面積により変化すると考えられる。

Fig. 6 に直列アレイ接合のプリアンプ出力信号を示す。この接合は上部電極 $2500\mu\text{m}^2$ の接合が 4×4 の 16 個直列に接続されている。図より、接合面積 $2500\mu\text{m}^2$ の単接合のプリアンプ出力信号と同様のプリアンプ出力信号が得られた。出力信号を検出面積に応じて増大させるためには並列接続などの検討が必要であることがわかった。

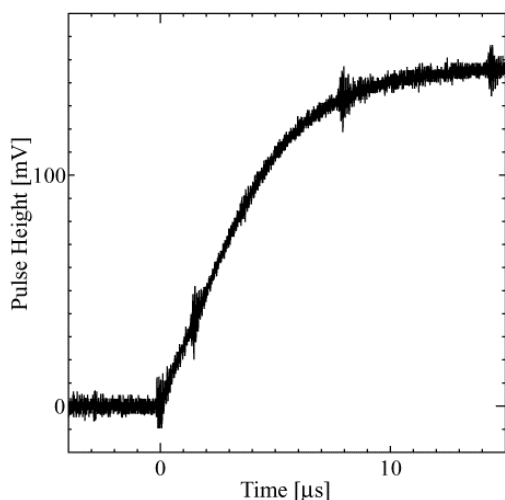


Fig. 6 An output from a series array junction.

4. ワイドバンドギャップ半導体に関する研究

シリコンの物性値によって決定されるパワーデバイスの性能限界の壁を超えるべく、近年、SiC や GaN などのワイドバンドギャップ半導体によるパワーデバイスが期待されている。SiCはSiと比較して、バンドギャップが約3倍、絶縁破壊電界が約7倍、熱伝導率が約3倍ということから、パワーデバイスへ応用した場合2桁大きい性能指数が見込まれる。また、SiCは、Siと同様に熱酸化によって表面にSiO₂層が形成されることからMOSFETへの応用が可能である。現在、すでにSiC MOSFETの性能はSi MOSFETのそれを超えているものの、本来SiCが材料として持ち合わせているポテンシャルを十分に生かしき

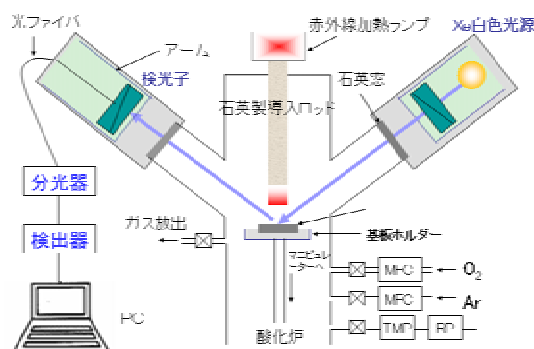


Fig. 7 Basic configuration of an in-situ ellipsometer.

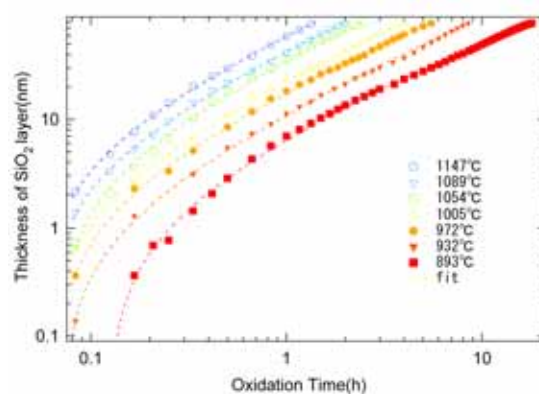


Fig. 8 Monitored process of a thermal oxidation on SiC surface.

った性能までには至っていない。そのようなことを引き起こしている原因の一つは、SiO₂/SiC界面にあると考えられており、SiCの熱酸化に関する検討が重要な課題となっている。そこで、我々はSiCの熱酸化プロセスの機構解明をするためにIn-situ分光エリプソメータを開発し(Fig. 7) SiCの熱酸化プロセスの実時間測定を行った(Fig. 8)。このような実時間測定を行うことで、酸化膜の厚さが1 nm以下という極めて薄い領域においても酸化速度の精密は測定が可能となり、SiCの酸化プロセスの機構解明への重要な知見を得ることができた。

5 . 分光学的評価等に関する研究

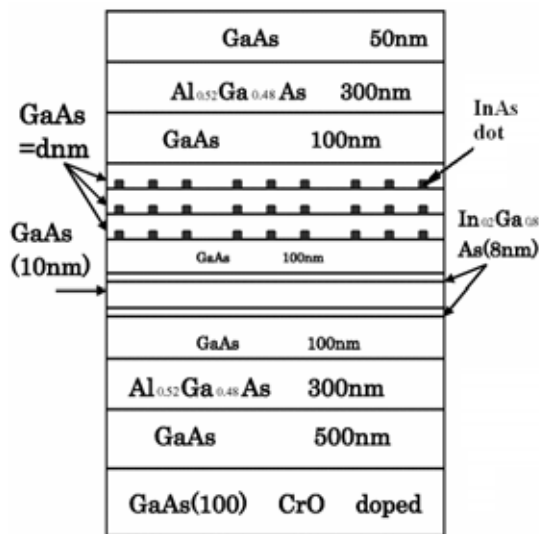


Fig. 9 A sample structure with InAs/GaAs quantum dots

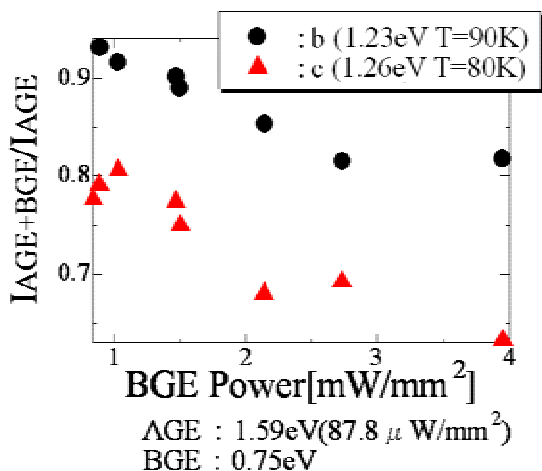


Fig. 10 The amount of BGE effect as a function of BGE Power.

発光材料・デバイスの高効率化には、結晶欠陥や残留不純物等により形成される非発光再結合準位の低減が不可欠である。通常のバンド間励起 (Above-Gap Excitation, AGE) 光に加えて禁制帯内励起 (Below-Gap Excitation, BGE) 光を照射し、AGE により生じる試料固有の自然放出光 (フォトルミネ

ッセンス) の BGE による強度変化 (BGE 効果) をしらべる方法 (2 波長励起フォトルミネッセンス) により、非接触 (電極不要)、非破壊で非発光再結合準位の密度、エネルギー分布等の定量評価が可能である。新たに励起光学系、受光系を整備し、InAs/GaAs 量子ドット構造 (Fig. 9) での測定に初めて成功した。BGE 効果の飽和傾向 (Fig. 10) また特異な温度依存性等を観測し、量子ドットのキャリア再結合に重要な手がかりを得た。この他にも短波長 GaN 系結晶成長に関して進展が得られた。

参考文献

- 1) H. Taniguchi et al., High pressure study up to 9.9 Gpa of an organic Mott insulator, β' -(BEDT-TTF)₂ AuCl₂, J. Phys. Soc. Jpn., 74, 1370-1373(2005).
- 2) T.Taino et al., Development of terahertz detector using superconducting tunnel junction, Physica C, 426-431, pp.1731-1735 (2005).
- 3) Y. Hijikata et al., Effect of Ar Post-Oxidation Annealing on Oxide-4H-SiC Interfaces Studied by Capacitance to Voltage Measurements and Photoemission Spectroscopy, J. Vac. Sci. Technol. A, Vol. 23, No. 2, pp. 298-303 (2005).
- 4) Y. Seko and H. Yaguchi, "Optical Gain of Various Strained Semiconductor Quantum Wells", Handbook of Semiconductor Nanostructures and Nanodevices, Edited by A.A. Balandin and K.L. Wang, American Scientific Publishers, Los Angeles (2005).
- 5) N. Kamata, S. Saravanan, J. M. Zanardi Ocampo, P. O. Vaccaro, Y. Arakawa, Nonradiative centers in InAs quantum dots revealed by two-wavelength excited photoluminescence, Physica B, 376-377, pp. 849-852, 2006.