

生体高分子における低周波電磁界と磁場の効果

東大・総合文化 前田 京剛・北野 晴久・大橋 健良・太田 健介

1. はじめに（1から5まで10ポイント）

本研究の当初の目的は以下のとおりである。すなわち、生体が低周波電磁界や高磁場からどのような影響を受けるかについては、種々の憶測がなされているが、未だに科学的なレベルでの理解はなされていないのみならず、科学的なデータ収集などもほとんど行なわれていない。そこで、DNA や関連したオリゴン・ペプチド高分子がマイクロ波・ミリ波程度の電磁波や、高磁場によってどのような影響を受けるかを、主に、交流電気伝導度・誘電率の測定をすることによって、推察することを目的とした。

2. 研究経過

- (1) 磁場を印加せずに、DNA粉末の電気伝導度を測定し、その結果を学会で口頭発表した。この結果は、現在学術論文を投稿準備中である。
- (2) 磁場下の測定について、金属材料研究所の小林・佐々木グループと議論を重ね、研究方針を検討した。

3. 研究成果

- (1) 10GHz において、サケの精子のDNA粉末の電気伝導度を測定することに成功した。その値は、室温で $0.002 (\Omega\text{cm})^{-1}$ 程度であり、水分子のそれよりもあきらかに大きい。温度依存性は活性化エネルギー 50-60 meV 程度の半導体的な温度依存性をしめすことがわかった。
- (2) 100GHz 付近では水分子の伝導度への寄与の方が大きいためにDNAの電気伝導度が測定できないということ報告を考え合わせると、DNAの電気伝導度の周波数依存性は、ホッピング型であることがわかった。これは、ヌクレオチドのパイ結合の一次元鎖を伝わる電子のホッピング伝導に対応していると推論される。ここまでの結果は、東北大学金属材料研究所においてセミナーをおこなったり、学会発表をおこない、また、現在、論文準備中である。
- (3) 磁場下の測定について、測定計画を検討した結果、あらたなクライオスタットの作成が必要であることがわかったが、諸般の事情により、測定には至らなかった。

4. まとめ

当初の目標の磁場下の測定までは至らなかったが、せっかくゼロ磁場下でDNAの電気伝導度を評価できるようになったので、予算措置の有無にかかわらず、今後とも磁場下の測定も含む研究を続けたい。

5. 発表（投稿）論文

K. Ota, H. Kitano and A. Maeda : Microwave conductivity of salmon-testes DNA powders,
To be submitted.

（参考）学会発表

太田健介, 北野晴久, 前田京剛 : 高周波におけるDNAの電気伝導度測定
日本物理学会2004年秋季大会 13aWE (青森大学)

塚越一仁¹、菅原孝宜^{1,2}、岩佐義宏²
理研¹、東北大金研²

1. はじめに

カーボンナノチューブ(CNT)は、その電氣的性質、大きなアスペクト比を持つ一次元的形状により大きな関心を持たれている物質である。その中でも、グラフェンの筒一層からなる単層 CNT(SWNT)では、電気特性から伝導度が温度のべき乗に比例するという朝永・ラッティンジャー 液体(TLL)的な性質が報告されている。分光学的手法においても TLL 的性質は報告されている [1]。石井らは、SWNT マット光電子分光からその状態密度が、結合エネルギーのべき乗に比例することを報告した [2]。また、Pichler らは、SWNT マットにカリウムをドーピングすることで、べき乗の指数 α が減少し、フェルミ液体的になることを報告している [3]。一方、多数のグラフェンの筒からなる多層 CNT (MWNT) においても、一本の電気伝導度が温度のべき乗に比例することが報告されており、TLL などによって解釈されている [4]。しかしながら、この多層 CNT では電気伝導が外側が主となっているとの報告があり、内部構造と外層伝導の相関による伝導解釈の複雑さから、明確な実験結果およびその解釈が全くない。

2. 研究経過

このような背景に対して本研究では、MWNT 1本の電界効果トランジスタ (FET) 素子を作製し、ゲート電圧を印加することでキャリア注入をおこないながら MWNT の伝導度の温度依存性を測定した。この MWNT はアーク放電法によって作製したチューブであり、精製などのチューブにダメージの入るプロセスは一切省いて試料を作製した。

3. 研究成果

今回作製した MWNT-FET 素子は、各温度においてアンバイポーラー的に振る舞った。室温において伝導度と V_G 依存性は小さく、ゲート電圧を印加したときとしてないときの比 (オン・オフ比) は 2~3 倍程度であったが、温度冷却に伴ってオン・オフ比は増大した。T=20 K において、最も比が大きい試料では 3000 倍程度になった。 $I_D - V_G$ プロットにおいて大きいヒステリシスが観測されており、これは低温になるに従い減少した。このヒステリシスを外的な要因と考え、 $V_G = 0$ V に伝導度最小がくるよう補正した各温度における $\log G - V_G$ プロットを図 1 に示す。プロット中の左側面は特定の V_G での $\log G - \log T$ プロットである。測定した MWNT の電気伝導度は $V_G = 0$ V 付近では温度のべき乗に比例し、べき乗の指数 α の値は 0.64 ($V_G = 0$ V) であった。指数 α の値はゲート電圧 (V_G) を印加しキャリアを注入することで減少し、 $V_G = \pm 20$ V では α の値はほぼ 0 と温度依存がなくなった。つまり、MWNT において観測される朝永・ラッティンジャー液体的振る

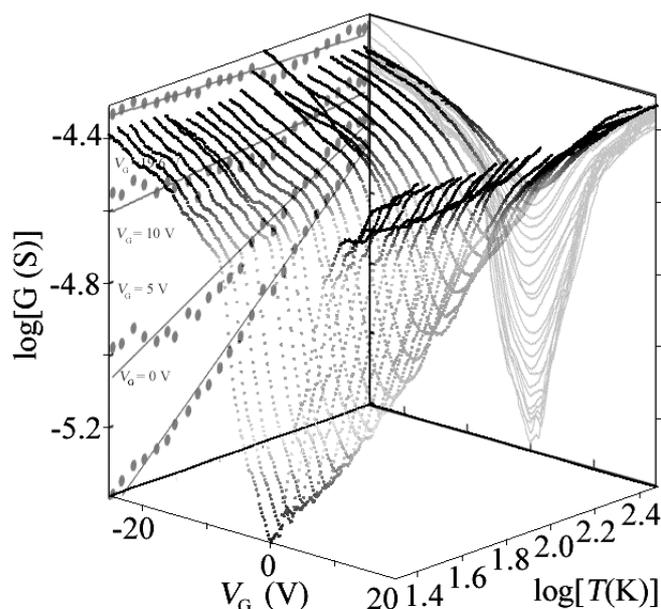


図 1. 各温度における $G - V_G$ プロット. 右側面は $G - T$ 平面への投影. 左側面はいくつかの V_G における $\log G - \log T$ プロット.

舞いは、ゲート電圧印加によるキャリア注入によって大きく変化することを明示しており、これまでの多層カーボンナノチューブでの実験解釈に対してさらに深い考察が必要であることがわかった。

4. まとめ

上記のように、MWNT において観測される朝永・ラッティンジャ液体的振る舞いに関して、ゲート電圧制御によって詳細を調べた。今後、このような振る舞いの物理的で系統的な要因の解明を試みる予定である。

参考文献

- [1] M. Bockrath et al., *Science* 397, 599 (1999).
- [2] H. Ishii et al., *Nature* 426, 540 (2003).
- [3] H. Rauf et al., *Cond. Matt.* 0404535 (2004).
- [4] A. Kanda et al., *Phys. Rev. Lett.* 92, 036801 (2004).

5. 発表論文

1. Gate-induced crossover from unconventional metals to Fermi liquids in multiwalled carbon nanotubes
T.Kanbara, T.Iwasa, K.Tsukagoshi, Y.Aoyagi, and Y. Iwasa,
Applied Physics Letters, 85, (26) 6404–6406 (2004).
2. Gate-voltage dependence of the Zero-bias anomalies in multi-walled carbon nanotubes,
A.Kanda, K.Tsukagoshi, Y.Ootuka, and Y.Aoyagi,
Physical Review Letters 92 (3) 036801–1 – 036801–4 (2004).

フラーレン・ナノデバイスの界面修飾効果

北陸先端大、CREST-JST 藤原明比古、仕幸英治、松岡亨卓、井波暢人
東北大・金研、CREST-JST 岩佐義宏、竹延大志

1. はじめに

分子性固体の電子構造は、その構成分子の電子構造（分子軌道）を強く反映する。このため、分子設計により必要な電子状態のものを得ることが可能である。さらに、これらの物質では、もともと電子構造が分子軌道由来であるため、量子サイズまで微小化しても、電子構造への影響は小さい。従って、微細加工によって作製された物質でみられる通常の量子サイズ効果とは異なり、サイズのばらつきによる電子状態の変化が少なく、電子物性の理解が容易である。また、化学修飾や化合物合成によって新しい機能の発現も期待できるため、興味深い電子材料である。応用を考える上では、フレキシビリティや軽量性、低価格性の点においても高いポテンシャルを持っている。一方で、分子性固体や有機分子を用いた場合、これらの性質がデバイス特性低下の原因になる場合も多い。デバイスの典型例である MOS 型電界効果トランジスタ（FET）の場合、無機 FET では動作時に電極とチャンネル部分の界面が原理的には問題とならないのに対して、有機 FET では動作時においても電極 - チャンネル界面が電子注入の障害となる。そこで本研究では、今後デバイスの微小化が不可避となる現状で、界面の影響が大きい有機デバイスを作製し、電極 - 界面の性質を明らかにするとともに、修飾によるデバイス特性の改善を目的とした。

2. 研究経過

有機デバイスとして、 C_{60} -MOS 型 FET を作製した。この際、デバイスの本質的なチャンネル抵抗と電極とチャンネル間の界面抵抗の寄与を分離するために、サイズが異なり W/L がほぼ一定（ ~ 20 ）の電極を作製した（図 1、表 1）。基板には、熱酸化膜 SiO_2 （400 nm）付き Si 基板を用いた。電極は、電子線リソグラフィ法を用いて、100 nm の Au 電極を直流スパッター法により作製した。チャンネル部分は、真空蒸着法で C_{60} を 150 nm の膜厚で作製した。成膜された試料は、一度大気に暴露した後、低温プローバーにセットし、約 120、24 時間、真空中でアニールした。デバイス動作特性は、様々なゲート電圧（ V_{GS} ）に対して、ドレイン電流（ I_D ）のソース - ドレイン間電圧（ V_{SD} ）依存性（出力特性）を調べた。測定温度は、77、90、110、150、250、275、293 K で行った。

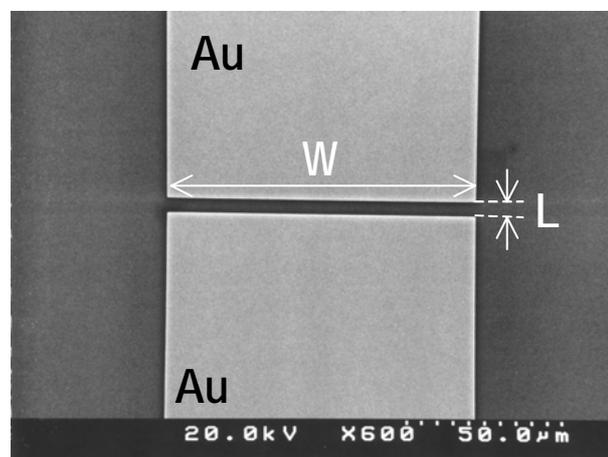


図 1 . 作製した電極の走査型電子顕微鏡像 . チャンネル（ギャップ）長を L 、チャンネル幅を W として、 $W/L \sim 20$ でサイズが異なるデバイスを 5 種類作製した .

3. 研究成果

作製した 5 種類の C_{60} -FET の出力特性は、室温では大きな違いが見られなかった。いずれの

表 1 . 作製した C_{60} -MOS 型 FET のチャンネル幅 W 、チャンネル長 L とその比 W/L .

	#1	#2	#3	#4	#5
W (μm)	99	198	298	394	494
L (μm)	4.7	9.3	14.7	19.3	23.3
W/L	21.1	21.3	20.3	20.4	21.2

デバイスにおいても、温度の低下に伴い、活性化型の温度依存性に従い電流値が減少し、質的に同様の振る舞いを示した。しかし、77K では、サイズの違いにより電流値の違いが観測された。最も小さい#1の試料では、最も大きい#5の試料の1桁程度大きい電流値が観測された。温度低下に伴う電流値の減少は通常、易動度の温度依存性として解釈される。この方法で今回作製したデバイスを評価すると、チャンネル抵抗が同じであるデバイスにおいて、異なる活性化エネルギーが見積もられてしまい、#1の試料では0.13 eV、#5の試料では0.16 eVとなる。これは同じチャンネル抵抗をもったデバイスの評価としては矛盾する結果である。そこで、5種類のデバイスにおける出力特性の温度依存性から、デバイスサイズに依存しない寄与とデバイスサイズに依存する部分に分け、それぞれを、チャンネル部分に起因する動作と界面抵抗に起因する動作として理解した。その結果、今回作製したC₆₀-FETでは、1)チャンネル部分は、電界効果によるキャリア注入量に依存しない活性化エネルギー0.17 eVのホッピング伝導を示し、2)界面部分は、V_{GS}、V_{SD}印加に伴い減少し、高電場状態ではチャンネル部分のそれ(0.17 eV)よりも小さい活性化エネルギーを持ったショットキー接合である、と理解できることが明らかになった。

今回、電極の修飾により界面状態が改質されたデバイスにおける同様の評価をするにはいかなかったが、本手法を適用することにより、様々な界面状態の有機FETにおいて、界面での電子注入効率、デバイスにおける界面部分の寄与を明らかに出来ることが分かった。今後、この指針に基づきデバイス評価、物性制御を進めたい。

4. まとめ

本研究では、サイズの異なるC₆₀-MOS型FETを作製し、その温度依存性を調べた。その結果、簡単なモデルによって、デバイス特性に対する本質的なチャンネル部分と電極-チャンネル界面における接触抵抗の部分からの輸送特性の寄与を定量的に明らかにした。本研究成果は、今後期待される有機デバイスの高性能化、デバイスの微小化などにより、無視できなくなる界面の効果の評価方法として位置づけることも出来る。

5. 発表論文掲載

- [1] "Transport properties of C₆₀ thin film FETs with a channel of several-hundred nanometers", Y. Matsuoka, N. Inami, E. Shikoh, and A. Fujiwara, accepted for publication in Sci. Technol. Adv. Mater. [Field Number : 15]

分子被覆導線の電子構造と導電率

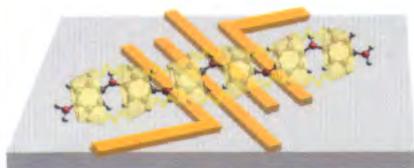
東大・新領域 伊藤耕三・下村武史・市原秀紀、日立・基礎研 平家誠嗣・藤森正成・橋詰富博
 東北大・金 研 川添良幸・水関博志・Rodion Belosludov, Amir Frajjan

1. はじめに

導電性高分子は、分子配線としての応用が期待されながら、単離が困難等の理由により、これまで1本鎖で導電率を測定することができなかつた。我々は、環状分子を用いて導電性高分子を被覆することにより、1本の導電性高分子を単離し、まっすぐに引き伸ばすことに初めて成功した。本研究では、1本の導電性高分子の電子構造および導電性を第一原理計算で理論予測する(東北大川添グループ)とともに、実際に1本鎖の導電特性を測定する(東大伊藤グループ)ことにより、理論と実験の比較から、導電性高分子の導電機構を解明し、分子配線としての応用に端緒を開くことを目的とする。

2. 研究経過

現在、伊藤らはポリアニリンを用いた分子被覆導線の作成に成功し導電率測定を行っており、金属材料研究所で計算された電子構造・導電率の理論計算結果と比較することにより、導電機構の詳細な検討を行っている。今年度は、ポリチオフェンを用いた分子被覆導線の作成にも着手した。金属材料研究所では、ポリチオフェンについても第一原理計算を行い、環状分子(シクロデキストリン)に閉じ込められた高分子の形態を最適化し、その電子構造を計算して、導電特性を理論的に予測した。得られた結果を、伊藤らが東大で行う分子被覆導線の導電率の測定結果と照らし合わせながら、ポリチオフェンを用いた分子被覆導線の導電機構について検討した。昨年度得られた結果と比較しながら、分子被覆導線の導電機構についての総合的な知見を得ることをめざした。



分子被覆導線の模式図

3. 研究成果

チオフェン骨格を有する新しい分子導線の合成に成功した。ポリチオフェンは不溶不融で、そのままではシクロデキストリンを包接させることができない。そこで始めにモノマーをシクロデキストリンに包接させてから、水中でも可能な鈴木カップリング反応を用いて重合を行った。合成の結果、DMSOに可溶で、クロロホルムに部分溶のポリマーが得られたことをUV測定確認した。また、シクロデキストリンが包接していることもNMRスペクトルによって確認した。これにより、電極と特異的な結合が可能な分子被覆導線の作製に成功した。ポリチオフェンは光導電性を有することから、これは光機能性分子被覆導線である。

また、相田ナノ空間プロジェクトにより開発されたヘキサベンゾコロネンは π 電子スタッキングによって配向するディスコティック液晶誘導体で、分子の対向位置に親水性であるポリエチレングリコール鎖とアルキル鎖を持つ。この側鎖の導入と π 電子のスタッキングにより、分子は平行二重螺旋のナノチューブ構造をとることが分かっている。このヘキサベンゾコロネンナノチューブを100nm程度のギャップをもつ電極上に分子配線して測定を行うことに成功した。

4. まとめ

チオフェンを用いた分子被覆導線の作成に成功した。また、新規分子被覆導線としてヘキサベンゾコロネンナノチューブの測定にも成功した。本研究成果は、分子被覆導線の分子配線としての応用する上で、重要な知見となる。

5. 発表(投稿)論文

Jonathan P. Hill, Wusong Jin, Atsuhiko Kosaka, Takanori Fukushima, Hideki Ichihara, Takeshi Shimomura, Kohzo Ito, Tomihiro Hashizume, Noriyuki Ishii, Takuzo Aida: "Self-assembled hexa-peri-hexabenzocoronene graphitic nanotube", Science, 304, 1481-1483 (2004).

集積化デバイス・マテリアルライブラリーの作製と構造評価

東工大・フロンティア 松本祐司、
東工大・応セラ研 鯉沼秀臣
科学技術振興機構 伊高健治、
東工大・総理工 高橋竜太、寺島岳志、山口 潤、大沢健男、南風盛将光
東北大・金研 川崎雅司

1. はじめに (1から5まで10ポイント)

近年、創薬の分野で用いられてきたコンビナトリアルケミストリー、“コンビケム”の手法を無機材料開発に応用した“コンビマテ”技術が注目されている。その中でも、パルスレーザー堆積 (PLD) 法とマスクとを組み合わせたコンビナトリアル PLD 法により、1枚の基板上に組成・構造の異なる薄膜を集積化するコンビ薄膜技術は、新材料の探索やデバイス構造の最適化に有効である。本共同研究では、そのような集積化薄膜ライブラリーの作製と高速評価をとおして、デバイス特性や物性と薄膜の結晶構造との相関をハイスループットで調べ、薄膜作製条件やデバイス構造の最適化、新規な非平衡固溶体薄膜の探索を行うことを目的としている。

2. 研究経過

最終年度にあたる本年度では、二酸化チタンルチル単結晶基板を半導体層とする電界効果トランジスタデバイスの集積化と構造最適化について検討を行った。具体的には、ルチル型 TiO_2 単結晶(110)基板を、HF 水溶液による化学エッチングと大気圧電気炉アニール処理によって、図1のような原子レベルで平坦な基板表面を調整する。次に、室温で、ソース・ドレイン電極には Al を真空蒸着し、絶縁層には、種々の条件で、アモルファス LaAlO_3 を堆積し、最後にゲート電極に、再度 Al を真空蒸着した。このとき、(110)面での異なる結晶方位、[001]、[-110]方向の移動度をそれぞれ求めるために、図2に示すようなマスクを用いて、実験条件の高速最適化と再現性について検討を行った。ゲート長とゲート幅は、それぞれ $200\ \mu\text{m}$ と $500\ \mu\text{m}$ である (図2)。

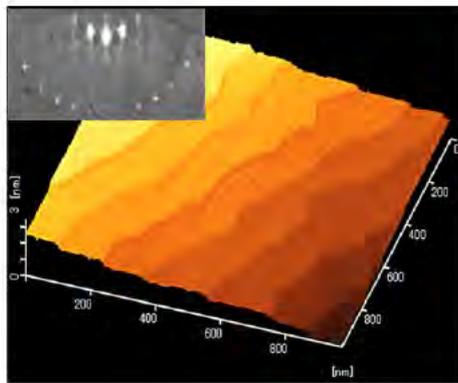


図1：高度表面処理による原子レベルで平坦化された TiO_2 ルチル(110)単結晶基板表面のAFM像

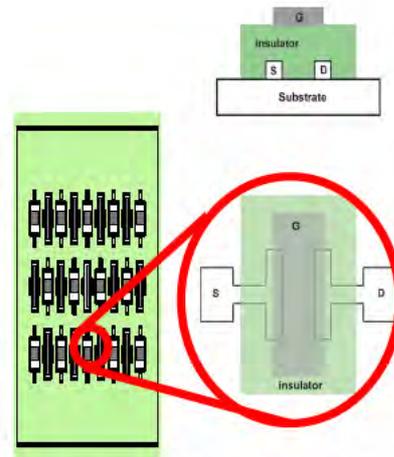


図2：デバイス構造とデバイス作製に用いたマスク形状の模式図

3. 研究成果

最適化されたデバイスの作製条件は、絶縁体層であるアモルファス LaAlO_3 は、PLD 法により、酸素圧 10mTorr、室温において堆積を行った。膜厚は、450nm である。また、各 Al 電極の膜厚は 15nm である。図3に作製した電界効果トランジスタの電気特性を示す。正のゲート電圧を印可することで、ソースドレイン間の電流が増大し、電界によって界面にキャリアが蓄積され、最大 on/off 比が $>10^4$ の良好なトランジスタ動作することが確認された。また、飽和領域での移動度は、結晶方位に大きく依存した。(110)面上に作製したデバイスでは、結晶学的に[001]と[-110]の2つの異なる結晶方位が存在する。図3に見るように、移動度が、[001]方向では $0.08\text{cm}^2/\text{Vs}$ 、[-110]方向では $0.03\text{cm}^2/\text{Vs}$ と極めて再現性良くそれぞれに対し求めることができた。ルチル結晶のバンド計算によれば[12]、[001]方向は、最もバンド分散が大きく、そのため実験的にも[-110]方向よりも大きな移動度の値を示したものと考えられる。

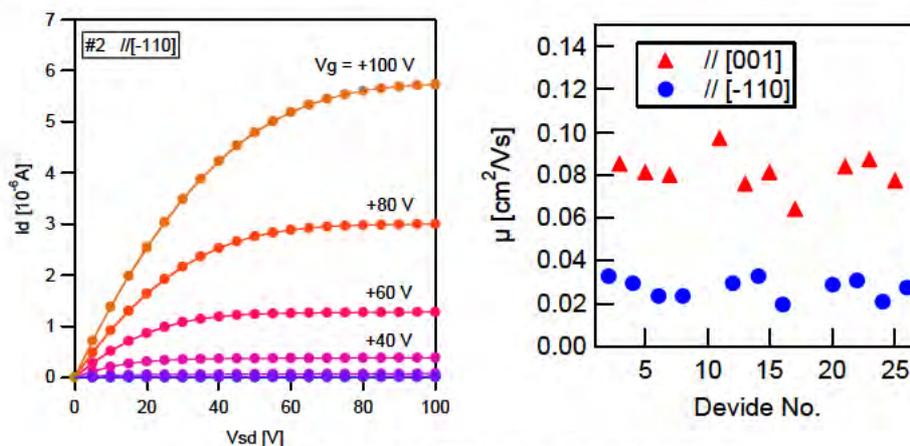


図3：試作した電界効果デバイス特性と結晶方位依存性

4. まとめ

ルチル二酸化チタン超平坦基板を半導体層とする電界効果デバイスを試作し、良好なトランジスタ特性を示すことを実験的に明らかにした。また、結晶方位に依存した明瞭な移動度の異方性を確認することができた。今後は、on/off 比や電界効果移動度をさらに向上させるために、二酸化チタンと絶縁体層との間のバッファ層の検討を行うことが課題である。

5. 発表(投稿)論文

- 1) ” Sharp metal-insulator transition in $\text{Sr}(\text{Ti}_{1-x}\text{V}_x)\text{O}_3$ -d thin films on SrTiO_3 substrates” , K. Itaka, T. Wakisaka, T. Mihara, S. Yaginuma, Y. Matsumoto and H. Koimura , *Thin Solid Films* in press
- 2) ” ルチル型 TiO_2 単結晶をチャンネル層に用いた電界効果トランジスタ” 池坂慎哉、片山正士、桑野潤、山本雄一、松本祐司、鯉沼秀臣、第 52 回応用物理学関係連合講演会 講演予稿集 (2005.3 埼玉大学)

(Sr,La)(Nb,Ta)O₃の電子構造に関する研究

九工大工 吉 富 徹 古 曳 重 美
 物材機構 新 井 正 男
 東北大金研 奥 正 興

1. はじめに

本研究は、これまでに我々が行ってきた単位胞中に層状ペロブスカイト構造を含む酸化物の合成とその物性探索の一環である。昨年度、層状ペロブスカイト酸化物 SrNbO_{3.5}の Sr サイトを全て La で置換した LaNbO₄を、有機金属前駆体を用いて比較的低温で合成し、その光学的性質や誘電的性質を測定した。LaNbO₄に特徴的な紫外光や青色光の蛍光(発光)、そして誘電率温度依存性における約 500°Cでの誘電率の異常は、何れも LaNbO₄の電子構造やその斜方晶から正方晶への構造相転移による変化に由来すると考えられる。今年度は LaNbO₄の相転移点前後での結晶構造に基づき、その電子構造を第一原理バンド計算によって求め、次年度以降に計画している LaNbO₄の単結晶合成とそれを用いた電子構造解析の基礎とする。

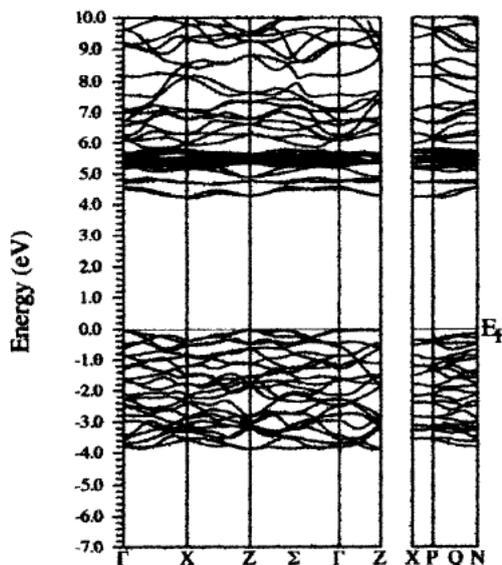
2. 研究経過

LaNbO₄は約 500°C以下で斜方晶 ($a=5.5735$, $b=11.5418$, $c=5.2159\text{\AA}$, $\beta=94.070^\circ$)、それ以上で正方晶 ($a=b=5.458$, $c=11.799\text{\AA}$)の単位構造をとることが知られている。正方晶系 LaNbO₄及び斜方晶系 LaNbO₄について第一原理電子構造計算を行った。計算にはウィーン工科大学の K. Schwartz 教授らが開発した電子構造計算パッケージ WIEN2k を用いた。

3. 研究成果

Figure 1 に正方晶系 LaNbO₄のバンド図を示した。これより正方晶系 LaNbO₄は間接遷移型のバンド構造を持つこと、ホールの有効質量は大きく、電子の有効質量は比較的小さいことがわかる。バンドギャップの計算値は約 4eV となり、ほとんどの絶縁体と同様に、実験値約 5eV よりも数割程度小さな値となる。紫外領域の発光は伝導帯に励起された電子が価電子帯に遷移する過程で生じるものと解されるが、青色発光は基底状態の電子構造からは推定不能である。つまり、この青色発光は内殻空孔状態に於ける酸素から La/Nb への電子移動に伴うものと推測されるが、次年度以降に於ける光電子放出の実験とその解析結果を待つて確定的な議論が可能となる。

ここには示していないが、斜方晶と正方晶の状態密度を比べると、両者に余り大きなエネルギー分布の差異は無かった。

Fig.1 Energy band diagram of tetragonal LaNbO₄

4. まとめ

斜方晶系及び正方晶系の LaNbO₄について第一原理電子構造計算を行った。紫外発光についてはバンド計算により解釈されたが、青色発光については更なる検討を要する。

5. 発表 (投稿) 論文

現時点までに刊行済みの論文はない。投稿準備中の論文が 1 篇ある。

半導体材料の2次非線形光学効果を用いた波長変換素子作製に関する研究

東北大学 金属材料研究所 黄 晋二
東京大学 大学院工学系研究科 近藤 高志、山村拓嗣
東京大学 大学院新領域創成科学研究科 片山 竜二

1. はじめに

第2高調波発生(SHG)などの、2次非線形光学効果を用いた波長変換は、既存のレーザでは得られない波長域のコヒーレント光を得るための強力な手法である。このような波長変換素子材料には、主に LiNbO_3 などの無機酸化物が使用されてきているが、一方、光エレクトロニクスの分野で活躍している化合物半導体は、位相整合が困難であることを理由に、ほとんど注目されてこなかったものの、巨大な2次非線形光学特性を持つ有望な2次非線形光学材料である。化合物半導体には、分子線エピタキシー(MBE)法などの高度に成熟した薄膜成長技術、および膨大なデバイスプロセス技術の蓄積を有するため、高効率かつ高機能な波長変換素子を作製できる可能性を秘めている。更に、半導体レーザとの集積化が実現すれば、コンパクトな波長可変光源を実現することができる。このように、半導体は2次非線形光学材料として、極めて有力な材料である。

位相整合条件の問題は、周期的に空間反転した半導体結晶を作製し、擬似位相整合(QPM (Quasi-Phase Matching))を達成することで解決する。我々は、 GaAs/Ge/GaAs ヘテロエピタキシャル成長の特性を利用した、独自の手法「副格子交換エピタキシー」を提案・技術確立し、周期的(周期 $3\ \mu\text{m}$)に空間反転した GaAs 薄膜結晶を作製することに成功している。更に、この手法を用いた導波路型 SHG 波長変換素子を作製し、波長変換実験を報告している。

本研究では、赤外波長域($1\ \mu\text{m}\sim 20\ \mu\text{m}$)における高効率な波長変換素子作製の基礎技術を開発することを目的とする。化合物半導体は、赤外領域においても大きな非線形光学特性を有し、かつ、赤外での透明領域が広いことから、この波長域における波長変換に適している。特に、この波長領域 ($1\ \mu\text{m}\sim 20\ \mu\text{m}$)では、安定なレーザ光源が無いため、これが実現すれば、大きなインパクトを有する。本研究では、この波長領域における高出力なコヒーレント光源の開発のために、導波路型の素子では無く、 $200\ \mu\text{m}$ 程度の厚膜を用いたバルク型波長変換結晶の作製に取り組む。

2. 研究経過

本研究では、バルク型周期空間反転 GaAs 結晶を作製するために、分子線エピタキシー (MBE) を用いて作製した周期的空間反転 GaAs テンプレート上に、成長速度の速い液相エピタキシー (LPE) を用いて、 $200\ \mu\text{m}$ 程度の厚い単結晶薄膜を形成することを目標に研究を進めてきた。この LPE 成長において重要な点は、テンプレートの周期構造を継承した膜を成長させることである。このために、成長温度、温度下降勾配などをパラメータとして、最適な成長条件の模索を行った。実験では、テンプレート上に成長させた GaAs 膜の断面をステインエッチングすることにより、 GaAs 膜中周期構造の境界を顕在化させ、走査型電子顕微鏡によってその境界を観察した。

3. 研究成果

LPE 成長における成長条件の最適化を進めた結果、成長温度 $650\sim 750^\circ\text{C}$ 、冷却速度 $0.2\ ^\circ\text{C}/\text{min}$ とすることで、テンプレートの周期構造 (周期 $20\ \mu\text{m}$) が継承された GaAs 膜を成長することができた。この成長条件から外れた LPE 成長では、周期的空間反転構造の境界が傾斜してしまうため、片方のドメインが消失してしまい、QPM 構造が保持されなかった。特に、冷却速度を大きくすると境界の傾斜が顕著になり、空間反転構造は成長開始後数 μm で消失した。

4. まとめ

本研究によって、目標としているバルク型周期的空間反転結晶の成長への足がかりを得ることができた。現段階では、 $40\ \mu\text{m}$ 程度の薄い膜のみの成長であるが、今後、厚膜の成長へ展開していく予定であり、波長変換素子の作製に取り組んでいけるものと考えている。また、成長条件によって周期構造の境界が傾斜するメカニズムの解明についても検討を進めていく。

5. 発表 (投稿) 論文

現段階での発表論文は無い。