研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和



研究成果の概要(和文):多軸高歪下の超薄ゲルマニウム(Ge)における室温電流注入光利得とレーザー発振への 足がかりを模索した。薄膜転写、高精細エッチングとエクサクタントエピタキシーの融合により超薄Geの関連構 造を構築し、直接端バンド分散の情報取得と低散逸環境での利得発生を目指した。新規に開発した機械的応力印 加機構とスピン敏感光光励起相関法を用いてスプリットオフ正孔関与の式鳴電子ラマン遷移近傍で日偏光利得を 達成した。さらにドーピング不要の電流注入法を開発、面直共振器との融合からGe直接バレー励起子のポラリト ン化を検討する過程で複合系における室温ボーズ凝縮の物理を論じ、次元交差Ge界面では高正孔移動度と量子振 動を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 IV族半導体レーザーは物質科学の究極目標のひとつであり、低温のフェムト秒パルス励起とはいえ擬似連続的か つGeバンド端近傍のとくに通信帯波長で円偏光利得が達成できたことは社会的にも意義があり、当該研究分野に 大きなインパクトをもつ。一方、これを可能にした新規開発の応力印加機構とスピン敏感なフェムト秒発光制度 たるはインバットをもう。 起相関法は、物性評価の技術開発の位置づけでも意義深い。さらに一定の物性評価が定まった超薄Geの作製技術 は、薄膜技術の進化形に明確に位置づけられることになる。一方、ハイブリッドGe界面における正孔ガス、模擬 ポラリトンシステムで見出された室温ボーズ・アインシュタイン凝縮は物理の観点からも意義深い。

研究成果の概要(英文):An attempt was made to achieve gain and lasing under current injection at room temperature in a strained ultrathin Ge subject to precision-controlled multi-axis mechanical stress. Used as the platform was a new class of ultrathin Ge-based microstructures including thin layers stacked by boding or Xant-mediated epitaxy. Major advances include the development of a new class of micro-mechanical stressors, the observation of stress-induced circular-polarized gain near the split-off hole electronic Raman transition through the newly developed spin-sensitive femtosecond luminescence correlation spectroscopy, mimicry of dissipative direct-edge excitonic cavity-polariton that allowed to monitor the dynamics of room-temperature Bose-Einstein condensation in a weakly coupled immiscible system. Additionally, a novel cross-dimensional hybrid Ge-based interface has been found, which enabled a high 2-D hole mobility and quantum oscillations of magnetoresistance even without modulation doping.

研究分野:半導体物理学、量子エレクトロニクス

キーワード: 超薄Ge 多軸応力 超高歪 直接遷移端 光利得 電流注入 共振器ポラリトン 高正孔移動度

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

間接遷移型の IV 族半導体でレーザーを実現することは、物質科学の究極目標のひとつである。 これまで結晶構造を改変して間接バレーを直接型に変換する方法や歪で直接遷移を誘起する方 法などが検討されてきたが,最有力のバンドエンジニアリングでさえ本質的な困難を克服できて いない。例えば、後者における遷移端の歪制御は事実上、室温電流駆動の要であり、低温環境の光 励起下で中赤外領域での発振をもたらすものの原理的に光通信波長には届かない。一方,低次元 化にもとづく直接遷移端の制御では、格子不整合かつ原子の拡散が抑制された条件下でのゲル マニウム(Ge)の量子構造の形成は難度が高く,異次元の結晶成長・制御技術が必要となる。こう した観点では、電子輸送分野での発展が著しい超薄膜 Ge が有望といえる。実際、層転写とエッチ ングのトップダウンアプローチにより基板に非依存に超薄膜 Ge が得られる。とくに非晶質で絶 縁体の Al₂03 障壁をもつ単結晶 Ge 量子井戸は,光物理と機能制御の観点からも付加価値が高い。 他方,Ca 等のインターカラント導入と化学処理によるボトムアップアプローチでも原子尺度の 超薄膜 Ge が形成できる。いずれも未開拓の Hexagonal 亜周期構造をもつ Si・Ge 結晶を用いた 直接遷移化戦略と互恵関係にある。ところがオプトエレクトロニクスで最重要のバンド端分散 は単結晶 Ge ですら不十分な部分が多い。 歪下の量子閉じ込めによるバレー制御において超薄膜 の遷移端の相対エネルギーと電子の有効質量の知見はレーザー発振の実現に直結するから学理 探求と応用展開を目指す上では,遷移端分散の実証的な把握が第一義的に重要となる。

2. 研究の目的

本研究では、マルチ軸歪制御下の超薄膜 Ge における室温電流注入光利得の実証を目指し、超薄膜 Ge の形成と応力印加制御を基軸に、実験的検証の積み重ねを通じてのみ到達可能な IV 族半導体の広帯域光利得発生、電流駆動光増幅から室温レーザー発振への足がかりを模索した。

- 3. 研究の方法
- 以下の項目に沿って研究を推進した。
- 1) 超薄膜 Ge の作製と物性
 - 転写による超薄膜Ge形成と光学特性評価
 - ② X-actant 介在エピタキシーによる超薄膜 Ge の作製
- 2) マルチ軸歪制御と面直光共振器構造との融合
- マルチ軸機械的応力印加機構の製作と極限環境における性能評価
- ② スプリットオフ正孔の共鳴電子ラマン遷移の利得検証
- ③ 面直光共振器構造との融合
- ④ 利得発生のための電流駆動法検討
- 4. 研究成果
- (1) 転写による超薄膜 Ge 形成と光学特性評価
- ①ボトムアップ法による超薄膜 Ge を活性層, Al203を障壁にもつ単結晶/非晶質へテロ量子井戸

共同研究先の協力を得て,犠牲層上の Ge を基板に直接接合 する HEtero-Layer-Lift-OFF (HELLO)法で形成。これによって もたらされる nm オーダーの超薄膜 Ge を対象に精密な分光学 的実験を行った。この際,石英基板上に非晶質の Al203 をポテ ンシャル障壁とする深閉じ込め型の単結晶 Ge 量子井戸が形成 される(図 1a)が、これまでにも検討はされても界面効果のせ いで実証が阻まれてきた本系に対し,直接端遷移の膜厚依存 性を系統的に追跡した。反射,透過,励起子発光等一連の線形 分光の結果は一貫して電子,量子井戸のサイズスケーリング 効果を示した。とくに発光では軽い正孔とスプリットオフ正 孔の電子ラマン散乱(LH, SO-ERS)の寄与が明瞭に弁別された。 一方,フォトリフレクタンスの温度・井戸幅依存性では,量子 井戸の重い正孔の励起準位の遷移が観測され(図 1b),バンド 不連続量と有効質量の妥当な仮定の下で包絡線近似との一致 を見た。井戸幅 3nm 以下での有効障壁高の低下の機構がビル トイン歪の寄与の判別に余地が残るものの,これらを通じて 直接端近傍の実際のバンド構造に関する知見が集積できた。





Catalyst

Cubic 3-D Ge

Cubic 3-D

② X-actant 介在エピタキシーによる超薄膜 Ge 作製ならびに光学特性ほか顕著な物性

Ca サーファクタント, Ca インターカラント介在エピタキーを 駆使して Ge (111) 基板上にゲルマナン(GeH) 多層膜を作製した 図 1c, d)。水素原子で Ge が終端された Ge は直接ギャップ典型 的には基板洗浄後, 550℃で 36 時間脱ガスし, 750℃に昇温 後, 400℃で Ge バッファ層をエピ成長した。650℃での Ge と Ca の共蒸着, 750℃でのアニーリング処理を経て真空から取り出 した後, -40℃の HC1 中で脱 Ca 処理を行うことで GeH の多層構 造を形成した。作製した試料が予想どおりに可視光ギャップ (Eg)をもつことを吸収と発光から検証した(図 1e)。なお, GeH を チャネルとする電気二重層型トランジスタの両極性動作を過 去に報告しているが, 本研究において異質の輸送特性が顕れる こととを新たに見出した。具体的には, 2 次元的な GeH と 3-D 単 結晶の Ge との次元クロスーオーバーが起きる界面付近では, イ オン化不純物散乱が抑制される結果, 温度減少とともに正孔移 動度の単調増大が観測された。この移動度の温度依存性は 2 次





(2) マルチ軸歪制御と面直光共振器構造との融合 ①マルチ軸歪制御のための要素技術の開発

超薄 Ge の直接遷移端の歪変調を精査するには,真空・低温環 境で機械的応力をその場で制御しつつ,系統的にバンド端の変化 を追跡できる能力が必要である。本研究で開発した異方性機械的 応力印加機構のひとつはボイスコイル(VCM)を用いた方式(図2a) である。この機構は低電圧(数 V)駆動で極低温(10 K)・真空中で も動作する。歪換算で最大 0.28 %程度の一軸性応力が印加でき る。この値は、ビルトイン格子歪の1%には及ばないものの片持ち 梁式の機械歪の上限 0.1 %より大きい。加えて変位増幅機構付き のピエゾアクチュエータを用いた応力機構を製作した。精密な変 位量制御ができ,最大変位は 150 V で 350 µm (Thorlabs APF503) である。幅は 40mm 程度あるが,クライオスタットにも組み込み可 能なサイズで極低温・真空中で動作する。両者ともにリアルタイ ムでスペクトル変化がモニタ可能なシステムに組み込んで使用 した。

応力印加による結晶歪の定量評価には、両面研磨した 20 µmの i-Geの10K,1064 nm パルス光励起下での円偏光発光(PL)スペク トルを用いた。結晶歪の値は,発光ピーク波長の赤方偏位の観測 値と full-zone の k・p 摂動の計算結果との比較から推定した。 図 2b と図 2c はそれぞれ円偏光スペクトルと偏光度(DCP)のスペ クトルの対歪マップである。ここで DCP は, 励起光の偏光(R)に関 する共・直交2偏光(R,L)の発光強度の差と比で与えられる。SO 正孔の共鳴電子ラマン散乱(SO-ERS)の負 DCP が青方偏位を示す 一方,これより低エネルギー側の長波長端に正の DCP を示す赤色 偏位が観測されるが,これは直接遷移端の寄与である。これら直 接遷移端周辺の正および負の DCP ピークエネルギーの歪依存性 を図2(d)に示す。ドットは観測値,複数の直線は異方性歪を取り 入れたバンド計算による 1064 nm 励起の SO-ERS (SO→CB→HH or SO-CB→LH)と直接遷移端の歪依存性(Γ-L, Γ-X 方向)である。負 の DCP は SO-CB-III(L 方向)の傾向と良く一致する。他方,正の DCP は、低歪時には直接端 Eg と一致するものの歪とともに SO-CB-LH(L 方向)の正の DCP 成分が重畳するせいでピーク位置が LH 側 に寄る傾向(緑実線から逸脱)があることが見て取れる。

以上と並行して薄片化した試料への2軸応力印加およびパル スレーザーによる短時間加熱と熱膨張を利用した3次元的な応 力印加の可能性を模索した。これら要素技術の復号化を通じ、マ ルチ軸の動的な応力印加によって静的歪を凌駕する過渡的歪を 発生させ、反転分布の形成が促進される方法論に道筋をつけた。



②スプリットオフ正孔の共鳴電子ラマン遷移の利得検証 Ge における価電子帯の電子ラマン散乱は,直接バレーの垂 直電子励起に続いて起きる間接バレーへの音響フォノン散乱 とそれに伴う電子空乏化に誘導されるギャップ間の Auger 型 励起・脱励起を含む複合過程である(図 3a)。後半プロセスが スプリットオフ正孔を含む場合,電子で閉じた無散逸の4準 位過程かつ S0,LH 正孔の偏光撰択則が必ずしも対称でないた め一定の条件下で円偏光度の利得発生が期待できる。本研究 では,この電子ラマン遷移における自然放出増幅と光利得の 検証を試みた。試料は,機械研磨で超薄膜化した n-Ge である。 裏面に金を蒸着して面直 Fabry-Perot 共振器構成とした。 0.1%程度の歪を印加して 10K の発光スペクトルを取得した。



励起光源に中心波長 1030 nm の Yb:KGW 受動モードロックのフェムト秒パルスレーザーを用いた。 Pump と probe 共励起条件の発光強度と単独励起条件の発光強度との差分を時間差(τ)に対して プロットしたものをフェムト秒発光励起相関法(FEC)と呼ぶが,円偏光 FEC(C-FEC)は前例がない。 励起(Pump)光を水平偏光,プローブ(Probe)光をR偏光として発光のR偏光成分のみを検出し,正 の DCP に注目することで円偏光に関する On-off 利得の評価を試みた。時間依存の C-FEC スペク トルのイメージプロット(図 3b)から時間原点 τ=0 において上述の Auger-like なキャリア散乱 に起因する発光の減少が観測できる。C-FEC によれば,スピン偏極の情報を同時に取得できる。 図 3c にR偏光励起によるスピン偏極キャリアが支配的な -20 ps と直線偏光励起によるキャリ アが支配的な時間遅延 20 ps におけるスナップショットスペクトルを示す。1650 nm 近傍の領域 においては間接遷移由来の発光に関する FP 共振器由来のスペクトルフリンジが時間非依存に観 測できるが,時間に依存する強度変調は観測できていない。他方,1200-1400 nm のホットエレク トロン由来の発光領域においては,円偏光成分は観測できるものの光利得発現を示唆するスペク トルフリンジは,強い自己吸収に伴う位相回転に阻まれて観測できない。これと対照的に歪によ り顕在化する直接端・S0-ERS 介在の発光領域では,明瞭なスペクトルフリンジとR偏光に特異的 な増強が観測された。ここから 40%の強度増強と円偏光利得を支持する結果(図 3d)を得た。



③面直光共振器構造との融合

面直共振器への歪超薄 Ge 導入を検討した。 その過程で微小共振器による光・物質強結合 (図 3a)とポラリトン凝縮の効果を積極的に 取り入れることを想起し、光利得の発生、レー ザー発振へのショートカットを模索した。た だし,GeΓ点直接バレーの共振器励起子ポラ リトンは、ラビ分裂した下分枝の電子が音響 フォノン散乱によって間接バレーに高速運動 量緩和するので本質的に散逸共存系となり, 直接遷移支配の共振器ポラリトンとは異な る。一方,系統的な実験には構造制御が容易な ことも重要である。そこで高散逸でも励起子 ポラリトン凝縮が生じ、レージング(図 3b)が エミュレートできる系として色素分子(共同 研究先より提供を受けた BODIPY)を撰択し,反 射鏡とのバット結合での強結合条件を調べ た。なお,面直共振器は光往復の利得が小さい ため高反射率鏡が必須であり,誘多膜反射鏡 との貼り合わせを検討した。光学活性層は色 素を PMMA 他のポリマー分散液を滴下・圧接, スピンキャスト等を用いて作製した。分光実 験の配置は角度分解を基本とした。パルス励 起下のポラリトン凝縮は, 増幅自然放出光・発 振光の直接偏光が励起光と一致する特性を通 じて検証した。構造,活性層厚,色素濃度,反射



率,励起波長,角度依存性の知見を集積した。その結果,散逸系のバット結合でも励起子ポラリトンは容易に発生し,パルス励起下でポラリトン凝縮が観測された。さらに重要な知見として共振器との結合・非結合色素が共存する系が発生することが判明した。一部の色素は室温以上でホットバンド蛍光(HBPL)(図 3c)と呼ばれるフォノン介在の周波数上方変換 PL(青色偏位)を示す。 共振器中の色素では,連続光(cw)励起で HBPL が顕著になるが,パルス励起だとこれが抑制されるのと同時にポラリトン凝縮が起き,スペクトルは赤色偏位する。cw とパルスの共励起でも後者が優先される。これらの結果は,共振器との結合・非結合系の共存系(図 3d)においてパルス励起 に伴う励起子ポラリトン凝縮が起きることで Gross-Pitaevskii 方程式の非線形項に起因する電子の化学ポテンシャルの低下が発生し,非結合系の電子がこれと弱く結合した共振器結合系の色素の電子系(励起子ポラリトンの下分枝)に引き込まれる効果であることがわかった。これらは ボーズアインシュタイン凝縮のダイナミクスを室温でかつ直接観測した初の報告例でもあると同時に、Ge 直接励起子ポラリトン系の設計・構築上,重要な示唆を与える結果である。

④利得発生のための電流駆動法検討

間接遷移型の Ge の特徴を生かし、ドーピング不要なインパクトイオン化電流駆動を試みた。 Si と同様にAl 等の通常金属の蒸着膜あるいは金属電極を接触させた Schottky 接合から直接、電 流注入も可能なことを見出し、PL と同等な EL スペクトルを得た。このおかげでドーピングにと もなうスペクトルブロードニングやその影響で情報を失うことなく分光実験が可能となった。

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

【学会発表】 計22件(うち招待講演 1件/うち国際学会 0件)1、発表者名

角谷 聡太、Sandipa Bhandari、田中 菜月、石田 真敏、杉浦 健一、古田 弘幸、神野 莉衣奈、深津 晋

2.発表標題

微小共振器中の有機分子におけるホットバンド蛍光の消失機構と光デバイス機能

3 . 学会等名

電子情報通信学会有機エレクトロニクス研究会

4 . 発表年 2024年

1.発表者名

角谷 聡太、Sandipa Bhandari、田中 菜月、石田 真敏、杉浦 健一、古田 弘幸、神野 莉衣奈、深津 晋

2.発表標題

有機分子励起子ポラリトンレーザーの偏光制御

3.学会等名第71回応用物理学会春季学術講演会

4 . 発表年

2024年

1.発表者名 神野 莉衣奈、大島 孝仁、大島 祐一、深津 晋

2.発表標題

-Cr203基板に格子整合した -(AI,Ga)203の成長

3.学会等名第71回応用物理学会春季学術講演会

4 . 発表年

2024年

1.発表者名

角谷 聡太、田中 菜月、石田 真敏、杉浦 健一、古田 弘幸、神野 莉衣奈、深津 晋

2.発表標題

微小共振器における有機分子の異方的な蛍光アップコンバージョン

3.学会等名第84回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年

2023年

1 . 発表者名

片山 裕美子、小林 大輝、安武 裕輔、深津 晋、上野 和紀

2.発表標題

高い正孔移動度を持つゲルマナン薄膜の成膜条件最適化

3.学会等名第84回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年

2023年

 1.発表者名 神野 莉衣奈、深津 晋

2.発表標題 選択成長 -Ga203の速度論的安定性の温度依存性

3.学会等名第84回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2023年

1.発表者名

角谷聡太、田中菜月・石田真敏、杉浦健一、古田弘幸・岡部浩隆、松田直樹、神野莉衣奈、深津 晋

2.発表標題

励起子ポラリトンレージング用BODIPY色素の強結合デバイス光物理

3 . 学会等名

電子情報通信学会有機エレクトロニクス研究会

4.発表年 2023年

1.発表者名

Yumiko Katayama, Daiki Kobayashi, Yuhsuke Yasutake, Susumu Fukatsu, and Kazunori Ueno

2.発表標題

High hole mobility in two-dimensional germanane thin films

3 . 学会等名

2023 Materials Research Society Spring Meeting

4 . 発表年 2023年 1.発表者名

角谷 聡太、田中 菜月、石田 真敏、杉浦 健一、古田 弘幸、神野 莉衣奈、深津 晋

2 . 発表標題

微小共振器と強結合した有機分子の蛍光アップコンバージョン

3.学会等名第70回応用物理学会春季学術講演会

4.発表年

2023年

 1.発表者名 岩崎 悠、神野 莉衣奈、田中 陽、安武 裕輔、深津 晋

2.発表標題

ラマン分光による有機無機ペロブスカイト光誘起構造相転移の観測

3.学会等名

第70回応用物理学会春季学術講演会

4.発表年 2023年

1.発表者名

神野 莉衣奈、神崎 正美、深津 晋

2.発表標題

ラマン分光によるサファイア基板上選択成長 -Ga203の相転移温度の面内依存性の評価

3.学会等名第70回応用物理学会春季学術講演会

4.発表年 2023年

1.発表者名

Y. Yasutake, T. Kohei, W. H. Chang, H. Ishii, T. Irisawa, T. Maeda, and S. Fukatsu

2.発表標題

Spectroscopic Study of Quantum-confinement in Ultrathin-body GeOI

3 . 学会等名

The 9th International Symposium on Control of Semiconductor Interfaces (ISCSI-IX)

4.発表年 2022年 1 . 発表者名 岩崎悠、田中陽、神野莉衣奈、安武裕輔、深津 晋

2.発表標題

低密度光に誘起される有機無機ペロブスカイト結晶の構造相転移

3.学会等名 電子情報通信学会有機エレクトロニクス研究会

4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 安武裕輔、金崎順一、深津 晋

2.発表標題

光学的に捕えたGe中の非平衡電子の超高速緩和過程とそれにともなう特異な物性

3 . 学会等名

2022電子情報通信学会OME,SDM研究会(招待講演)

4.発表年 2022年

1.発表者名
岩崎 悠、神野莉衣奈、田中 陽、安武 裕輔、深津 晋

 2.発表標題 CH3NH3PbBr3の光誘起構造相転移のダイナミクス

3.学会等名第83回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2022年

1.発表者名

小林 大輝、片山 裕美子、安武 裕輔、深津 晋、上野 和紀

2.発表標題

高い正孔移動度を持つゲルマナン薄膜の輸送特性

3 . 学会等名

第83回応用物理秋季学術講演会

4.発表年 2022年 1.発表者名

岩崎 悠、神野 莉衣奈、田中 陽、安武 裕輔、深津 晋

2.発表標題

光誘起構造相転移のダイナミクス

3.学会等名第83回応用物理秋季学術講演会

4 . 発表年 2022年

 1.発表者名 山本 真毅、森山 彰治、石田 真敏、古田 弘幸、深津 晋

2.発表標題

ナノ秒レーザー励起による有機励起子ポラリトンの室温レージングの試み

3.学会等名

第69回応用物理春季学術講演会

4.発表年 2022年

1 . 発表者名 佐藤悠介、金崎順一、谷村克己、山本 勇、東 純平、深津 晋

2.発表標題

シリコン表面近傍における光注入価電子正孔系の超高速緩和現象

3.学会等名第68回応用物理春季学術講演会

4.発表年 2021年

1.発表者名

公平拓見、安武 裕輔、張 文馨、石井裕之、入沢寿史、内田紀行、前田辰郎、深津 晋

2.発表標題

UTB-GeOIの量子化準位の顕微フォトリフレクタンス測定

3 . 学会等名

第68回応用物理春季学術講演会

4 . 発表年 2020年

1.発表者名

公平拓見、安武 裕輔、張 文馨、石井裕之、入沢寿史、内田紀行、前田辰郎、深津 晋

2.発表標題

Ultrathin-body GeOI における量子閉じ込め電子ラマン散乱

3.学会等名第81回応用物理秋季学術講演会

4 . 発表年

2020年

1 . 発表者名 安武裕輔、深津 晋

2 . 発表標題

Ge電子ラマン遷移の励起波長依存性

3.学会等名第81回応用物理秋季学術講演会

4 . 発表年

<u>202</u>0年

〔図書〕 計1件

1.著者名 荒川 泰彦、島野 亮、金光 義彦、岩本 敏、髙原 淳一、立間 徹	4 . 発行年 2023年
2.出版社	5.総ページ数
エヌ・ティー・エス	21
3.書名	
光と物質の量子相互作用ハンドブック	

〔産業財産権〕

〔その他〕

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	金崎 順— (Kanasaki Jun'ichi) (80204535)	大阪公立大学・大学院工学研究科・教授 (24405)	令和3、4年度分担者

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
	安武 裕輔	東京大学・大学院総合文化研究科・技術専門職員	令和 2 、3年度分担者
研究分担者	(Yasutake Yuhsuke)		
	(10526726)	(12601)	

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
---------	---------