

「酸化亜鉛の精密エピタキシーと紫外レーザー発振」

東北大学 金属材料研究所 教授 川崎雅司

酸化亜鉛は、化粧品の粉末や自動車タイヤの添加剤、電気ノイズから機器を守るバリスターなどに大量に使われている。薄膜としては、ガスセンサーや透明導電膜としての応用が検討されている。いわゆる「研究しつくされた、枯れた材料」であった。その材料に「新しい命」を吹き込んだのが今回受賞した「精密エピタキシャル薄膜での紫外レーザー発振」である。

我々は、高温超伝導の出現以来、レーザー-MBE法という独自技術を開発し、様々な機能性酸化物薄膜の合成に取り組んだ。パルスレーザー光で固体酸化物ターゲットを瞬間的に蒸発させ、対向する基板上に薄膜を形成し、高真空下で電子線回折などで表面をその場観察しエピタキシー過程を精密に制御する。超伝導や磁性、強誘電性など、酸化物としては当たり前の機能をデバイス化しつつも、「何か光機能をものにしたい」と思い開始したのが酸化亜鉛研究である。酸化亜鉛はバンドギャップが3.3eVと紫外域にあり、電子と正孔が結合した「励起子」という粒子の結合エネルギーが60meVと半導体では群を抜いて大きいことに注目した。励起子を用いたレーザーを作ると、原理的にレーザー発振の効率が格段に良くなるのが理論的にも実験的にもわかっていた。だが、普通の半導体では、励起子の結合エネルギーが数meVと、室温の熱エネルギー（25meV）に比べて格段に小さいため、室温では励起子が分解してしまい、実用上の意味は無い。

酸化亜鉛をサファイア基板にエピタキシャル成長すると、六角柱ナノ結晶がハニカム構造に自己配列した非常に特徴的な構造を形成できることを見出した¹⁾。この薄膜に紫外光レーザーを照射したところ、六角柱のプリズム面をレーザー共振器の鏡として共振器が勝手に形成され、非常に高効率のレーザー発振が可能なることを見出した。詳細な光学物性の検討の結果、目論見どおり励起子が再結合して光を発生していることもわかった。図1に、薄膜の表面のモフォロジー（左上）と、室温でのレーザー発振実験の様子を示す。

紫外光の高効率レーザーが可能になったことは、今後大容量化が益々加速する光情報記録にとって大きな意味をもつ。さらに、紫外光が出れば蛍光物質を使うことで可視光のどんな色でもほとんど量子効率が100%で変換できるのだ。これは、照明やディスプレイなどに大きな意味を持つだろう。図1の下の実験は、酸化亜鉛からの紫外発光を、色素を用いてRGBの3原色を発生させた実験である。図2の様に面発光レーザーと蛍光層を複合化すれば、シート上のディスプレイや照明が可能になる²⁾。

この発見に勇気付けられ、様々な研究を展開した。酸化亜鉛のハニカム構造状の成長メカニズムを解明し、higher order epitaxy（公倍数格子マッチング）であることをつきとめた。図3に、その成長過程を示す。簡単のために3:4で格子マッチングする系を選んでいるが（サファイア：ZnOでは11:13）、独立に公倍数マッチングした核が横方向に成長しぶつかったときに位相不整合粒界を生じる。これが六角柱の境界に相当し、横方向の成長時に結晶構造の異方性で自然に角形になる。さらに、酸化亜鉛に酸化マグネシウムや酸化カドミウムを固溶させることで、バンドギャップを3~4eVの範囲で自由に制御し、超格子などのヘテロ接合が形成できることも示した³⁾。レーザー発光だけでなく、透明トランジスタや類似の材料で透明磁石なども開発し、今後の情報端末における酸化物の出番を伺いつつ研究を超高効率に進めている^{4,5)}。

本研究は、理化学研究所瀬川氏、東京工業大学鯉沼氏、香港科学技術大学Tang氏らの研究チームと共同で行われた。実際に実験を行った大学院生やポストドクの諸氏に感謝する。

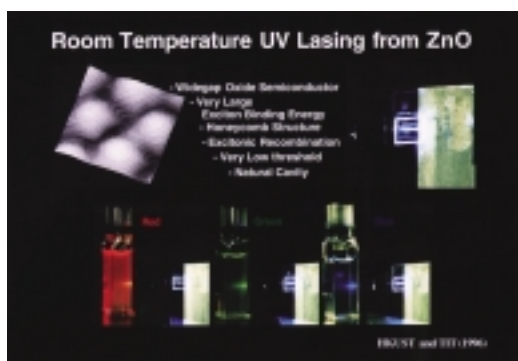


図1 酸化亜鉛の精密エピタキシーと紫外レーザー発振の研究紹介

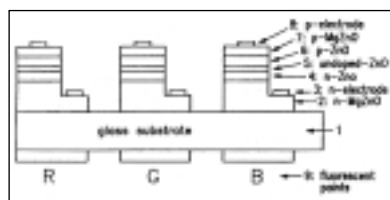


図2 フルカラーディスプレイを可能にする発光素子

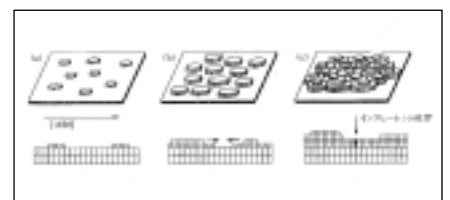


図3 ハイヤーオーダーエピタキシーにおけるインコヒーレント粒界の形成。ハイヤーオーダーでマッチングした結晶核(a)が横方向に成長し(b)、ドメイン同士がぶつかったとき、お互いの結晶の位相は、必ずしも一致せず、粒界が生じる(c)。

参考文献

- 1) 川崎雅司、大友明：固体物理33, 59 (1998)
- 2) M. Kawasaki et. al., USPP6,057,561
- 3) 田村謙太郎、大友明、川崎雅司：マテリアルインテグレーション12(12), 9 (1999)
- 4) 川崎雅司、牧野哲征、瀬川勇三郎、鯉沼秀臣：応用物理70, 523 (2001)
- 5) 牧野哲征、瀬川勇三郎、川崎雅司、鯉沼秀臣：固体物理36, 297 (2001)