

Development of evaluation system for Silicon Carbide by MiR-tunable laser

Kyohei Yoshida^{#,A)}, Taro Sonobe^{A)}, Keiichi Ishida^{A)}, Naoki Kimura^{A)}, Satoshi Ueda^{A)}, Masato Takasaki^{A)}, Ryota Kinjo^{A)}, Choi Yong Woon^{A)}, Mahmoud.Bakr^{A)}, Toshiteru Kii^{A)}, Kai Masuda^{A)}, Hideaki Ohgaki^{A)}

^{A)} Institute of Advanced Energy, Kyoto-University

Gokasyo, Uji-City, Kyoto, 611-0011

Abstract

A mid-infrared free electron laser (MIR-FEL: 5 – 20 μm) facility (KU-FEL: Kyoto University Free Electron laser) has been constructed for contributing to development of energy science in Institute of Advanced Energy, Kyoto University, and first laser saturation at 13.2 μm was achieved in May 2008. Recently, SiC is attracting interest as next generation materials, and functional materials such as photocatalyst, superconductor, and so on. And SiC is one of wide-gap semiconductors, they show unique electrical property through coupling of lattice vibration with electronic structure. Therefore, it is considered that irradiation of MIR possibly give rise to the changes in electronic structures such as photoluminescence (PL). In this study, current states of evaluation system development and possibility of selective excite by irradiating FEL are presented.

中赤外波長可変レーザーによる炭化ケイ素の物性評価システムの構築

1. はじめに

京都大学エネルギー理工学研究所では、エネルギー科学への貢献を目的として、中赤外自由電子レーザー (KU-FEL) の研究開発を行っており、2008年3月には、波長 13.2 μm において、出力の飽和を達成した。

また、本研究グループでは、光触媒などで注目されているワイドギャップ半導体を対象として、KU-FEL を用いた材料物性評価手法の開発に取り組んでいる。ワイドギャップ半導体の伝導、光物性の変化は、格子系の変化と電子系の相互作用が重要な役割を担っており、その精密かつ直接的な測定が機構の解明に必要である。そこで、KU-FEL の放射する中赤外レーザーにより目的とする試料の特定のフォノンモードの励起を行い、そのときのフォトルミネッセンス (PL) 発光特性や、電気抵抗を測定する物性測定システムを構築している。本発表で、中赤外レーザー照射による選択的フォノン励起の可能性と、物性測定システムの開発状況を報告する。

2. FEL トランスポートライン

当研究所が所有する MIR-FEL (KU-FEL) は、発振波長 13.2 μm において、出力の飽和を達成した。その時のビーム特性は、ピークパワー 5 MW、パルスエネルギー 5 mJ、マイクロパルス長 700 fs、マクロパルス長 1 μm であった。また、図.1 に FEL の概要を示す。FEL は、共振器上流部のミラーから放射され ZnSe 光学窓を経て、赤線で示す経路をたどり、アプリケーションルームに伝送される。FEL は、ミラーボックス内に取り付けられている金平面ミラーで反射して伝送する。伝送経路は、水分子や二酸化

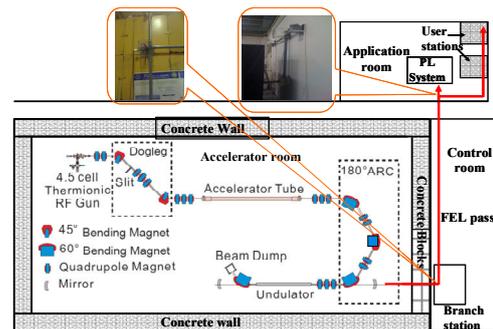


図.1 KU-FEL 施設概要

炭素による吸収を防ぐために、窒素置換し空気を除去して伝送効率を高める。さらに、写真に示す T 字の分岐点となるミラーボックスは、直線導入器で FEL を分岐させる方向を決めている。PL 測定システムまでの伝送距離はおよそ 20 m である。

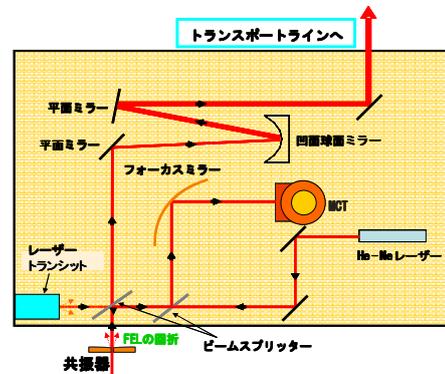


図.2 FEL の平行光化システム

また、FEL は、カップリングのホールから放射される際に回折が起きる。共振器上流部のカップリングホールを点光源とみなし、距離 L 離れた場所にて

きるスポットの第一暗輪、すなわち最初にレーザー光のエネルギーが 0 となる位置で定義するビーム直径 a とすると、波長 λ 、カップリングホールの直径を a_0 とすると、

$$a = \frac{2.44\lambda L}{a_0} \quad (1)$$

で表される。

したがって、波長 $13.2 \mu\text{m}$ の光を 20 m 伝送したとすると、ビーム直径は 32 cm にも広がる。このような発散を防ぐために、図.2 に示すように焦点距離 2 m の球面ミラーを、カップリングホールを焦点として 2m 離して設置し平行光としている。この方法は、放物ミラー等を用いて平行光とするよりもアライメントが非常に簡単であるため、FEL 利用施設 FELIX でも用いられている。また、He-Ne レーザーを共振器に入射しアライメントレーザーとして用いている。さらに、FEL の回折による発散を正確にシミュレートするため、光の発散角を調節可能なレーザートランスミットを導入し FEL のガイド光を実際の FEL と同様に扱えるようにした。

3. 物性測定システム

3.1 測定システム概要

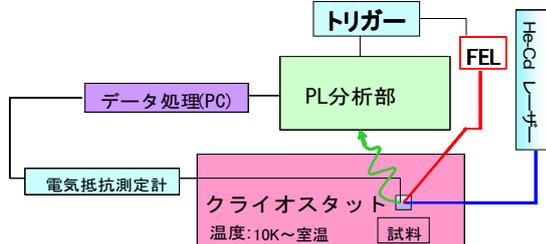


図.3 物性測定システム概要

図.3 に構築している物性測定システムの概要図を示す。測定システムは、フォトルミネッセンス (PL) 測定装置、電気抵抗測定装置という装置から成り立っている。これらの測定装置により FEL で格子振動の選択的励起が起きたときの電子状態、電気抵抗の変化を観測する。クライオスタットは、極低温化における PL スペクトルの変化及び、電気抵抗の温度依存性を測定するために導入した。

3.2 フォトルミネッセンスの原理

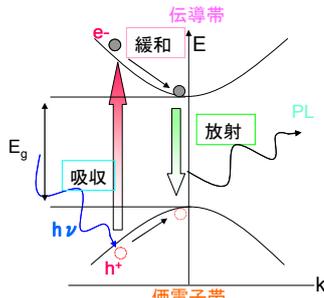


図.4 フォトルミネッセンス測定原理

次にフォトルミネッセンス測定の原理を示す。本測定装置に用いる励起光源は、He-Cd レーザーを用いており、 325 nm と 442 nm の光を放射できる。この光を、ターゲット試料に照射すると、試料表面において、伝導帯に電子が励起し、価電子帯においては正孔 (ホール) が生成する。その後、生成した電子と正孔は、エネルギーの低い伝導帯と価電子帯の底の部分に遷移し、電子と正孔が再結合したときに発光する。この光がフォトルミネッセンスと呼ばれ、分光器により光の波長を測定することでバンドギャップや不純物が含まれている材料では、不純物準位の情報を直接的に得ることができる。

3.3 測定システム光学系

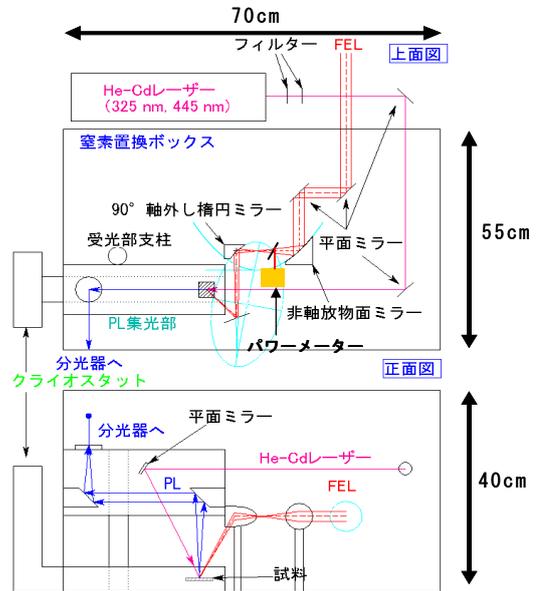


図 5. PL 測定システム光学系

図.5 に、物性測定システムの光学系を示す。He-Cd レーザーは、アルミ平面ミラーにより反射されサンプルホルダーに伝送される。サンプルホルダーは、クライオスタットに取り付けられているコールドヘッド上におく。また、FEL は、二枚の金平面ミラーにより、平行移動させた後、非軸放物ミラーと 90° 軸外し楕円ミラーによりフォーカスさせサンプルホルダー上の試料に照射される。放物ミラーと楕円ミラーの間にビームスプリッターを設置しパワーメーターを取り付けることで、照射された FEL の出力を計測しながら、PL 測定を行うことができるようになる。放射された PL は、二枚のアルミ放物ミラーによりフォーカスさせられ、光ファイバーケーブルで分光器に伝送し、分光した後 CCD デテクターで測定される。

3.3 電気抵抗測定

電気抵抗は、励起した格子振動により伝導電子が散乱されることから発生する。式 (2) は電気伝導度 σ を表す関係式で、 n は単位堆積あたりの伝導電子数、 e は電荷量、 μ_e は移動度である。

$$\sigma = ne\mu_e \quad (2)$$

この式からわかるように、電気抵抗は電子の移動度が関係している。また、電子の移動度は、式 (3) のように表すことができる。 e は電荷量、 c_{11} は弾性定数、 m_e は電子の質量、 m_e^* は電子の有効質量、 $f_a(0)$ は電子に対する散乱因子である。

$$\mu_e = \frac{ec_{11}v^2m_e^2}{4\sqrt{3}\pi(\hbar_b T)^{3/2}f_a^2(0)(m_e^*)^{5/2}} \quad (3)$$

式 (3) は、電子移動度が散乱因子[1]によって影響を受けることを示している。散乱因子は、格子振動により支配されているため、FEL による格子振動の選択的励起が生じた時には、電気抵抗にも変化が起こる可能性があることが示唆される。

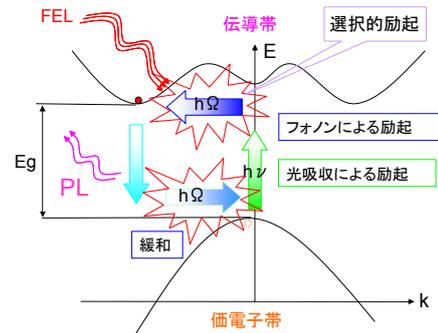


図 6. 間接遷移型半導体の発光・遷移過程

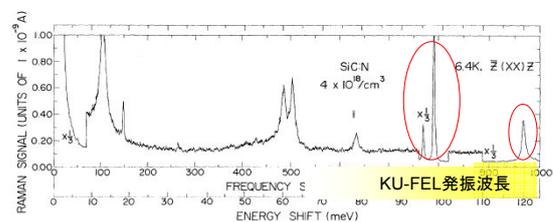


図 7. 6H-SiC (N ドープ) ラマン散乱スペクトル

4. ターゲット試料：炭化ケイ素

本研究では、ターゲット試料として炭化ケイ素 (SiC) を選択した。SiC は、ワイドギャップ半導体の一種で、高絶縁破壊耐性、高熱伝導率、高キャリア移動度という特性を持つことから次世代半導体として注目を浴びている。また、それに加え、近年、ホウ素ドープした SiC は超伝導現象を示すこと[2]と、特定の構造をした SiC は、光触媒作用をしめすこと[3]も報告されている。ここで、SiC は、間接遷移型半導体であり、材料の特性は、格子振動と電子状態の密接に関係が重要な役割を担っていると考えられている。図.6 に間接遷移型半導体の遷移・発光過程を示す。間接遷移型半導体は、光吸収により遷移した後、格子振動のエネルギーを貴いバンドの底に移動する。そして、底の電子が遷移し、発光した後再び格子振動へエネルギーを与え価電子帯において再結合する。SiC のような間接遷移型半導体の励起、発光過程は、光吸収に加え、格子振動が強く関与している。また図.7 のラマン散乱スペクトル[4]が示すように、SiC は KU-FEL の発振できる領域である波長 12.5 μm 近傍に格子振動スペクトルを有しているため、FEL の照射により格子振動の選択的な励起が可能であると考えられる。この選択的な励起が起こった際の PL を測定することにより、特定の格子振動が及ぼす電子状態への影響を観測する。また、電気伝導度測定においても、選択的な格子振動励起がおきた際の電気抵抗の変化を観測し、PL 測定の解析も合わせ SiC における格子振動と電子の相関について解析する。

5. まとめ

中赤外波長可変レーザーを利用した物性測定システムを構築した。また、ターゲット試料として SiC を選択し、その選択的格子振動励起の可能性について検討した。今後の予定として、FEL を照射しながら PL 測定、電気抵抗測定を測定、及び解析を行う。また、クライオスタットにより極低温における PL スペクトルの変化と、電気抵抗の温度依存性についても測定を行う。

参考文献

- [1] 固体物性シリーズ 格子振動 小林正一 福地充 訳 丸善
- [2] Zhi-An REN, Junya Kato, Takahiro MURANAKA, JUN AKIMITSU*, Markus KRIENER, and Yoshiteru MAENO, J. Phys. Soc. Jpn., Vol.76, No.10, October, 2007, 103710
- [3] Weimin Zhou, Lijun Yan, Ying Wang, and Yafei Zhang, Applied Physics Letters, 89, 013105, 2006
- [4] P.J.Colwell, V.Klein:Phys.Rev.,B6,498(1972)