【基盤研究（S）】

高品質単結晶薄膜・界面による金属ハライド X-nics の基盤構築

研究代表者	東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授 川崎　雅司（かわさき　まさし）　研究者番号:90211862
研究課題情報	課題番号：22H04958　研究期間：2022年度～2026年度 キーワード：ハライド、薄膜界面、量子物性、光機能

なぜこの研究を行おうと思ったのか（研究の背景・目的）

●研究の全体像

近年、ヨウ素(I)、臭素(Br)、塩素(Cl)、フッ素(F)などハロゲン元素を含む金属ハライドの電子物性が注目を集めている。ハライドは、銀塩感光材や触媒に代表されるような化成品としての利用が主であった。しかし最近になって、ペロブスカイト構造を持つハライドにおける優れた太陽電池特性や、二次元層状構造を持つハライド原子層物質での多彩な磁気構造や巨大な励起子応答の発現、大きなスピン軌道相互作用による非自明なスピン量子物性の発現など、従来のハライドのイメージを一新させる革新的な物性や機能の報告が相次いでいる。ハライドは豊富な物質のバリエーションを持ち、他の化合物では見られない多彩な物性と優れた電子機能を示すことから、物質科学の研究対象として今後ますます重要になると考えられる。さらなる機能の向上とデバイス応用を実現するためには薄膜化が必要であるが、ハライドの薄膜作製技術は十分に進んでいない。現状のハライド薄膜の多くは湿式法で作製されており、結晶粒界を多く含む多結晶構造である。このような結晶粒界は欠陥として作用し、物性や機能が抑制されている可能性がある。また、湿式法による成膜では、急峻な界面を持つヘテロ接合の作製も不可能である。ハライドの持つ未知の光・電子・スピン機能の可能性を存分に引き出すためには、純良単結晶薄膜を作製し、単結晶薄膜どうしを接合した理想的なヘテロ構造における物性評価が必要不可欠である。

そこで本研究では、ハライドのエピタキシャル薄膜成長技術を確立し、高品質単結晶薄膜同士の理想的なヘテロ界面における革新的な機能の創出を通じたX-nicsの基盤を構築することを目的とする（図1）。ここでX-nicsとは、エレクトロニクス・スピントロニクス・フォトニクスなどを一般化した呼称を意図しており、かつ、ハロゲンを総称するアルファベットのXをかけ合わせた造語であるが、ハライドを対象とした新物質・新物性の開拓と機能開発を目指したX-nicsなる新しい学術分野を開拓することを目指す。

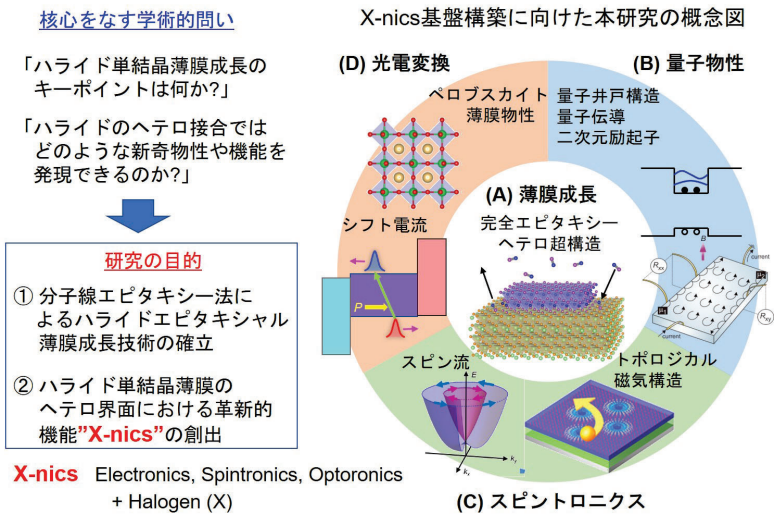

図1　本研究の全体像の概念図

この研究によって何をどこまで明らかにしようとしているのか

●研究テーマ(A) 薄膜成長

本研究では、高品質半導体の薄膜作製で実績のある分子線エピタキシー(MBE)法を用いる。MBE法は長い歴史を持つ成膜手法であるが、ハライド薄膜の作製に用いられた例はこれまでほとんどなく、既存のMBE装置をそのまま適用するのは困難である。そこでまず、ハライド薄膜の作製に適したMBEシステムを構築する。具体的には、低温域での温度制御性を高めた基板加熱機構、薄膜の電子線ダメージを低減するためのマルチチャンネルプレートを備えた電子線回折システム、高蒸気圧のハライド蒸着源に対応したバルブドセルなどである。このMBEシステムを用い、ハライド薄膜の成長過程を原子分子レベルで理解し、単結晶薄膜成長の制御要因を明らかにする。電子線回折やプローブ顕微鏡による基板表面でのハライド分子の脱吸着過程の解明、基板との格子整合性や表面終端層の違いが薄膜成長モードに与える影響の解明、バッファー層の導入による初期成長過程の制御などである。これらの知見をもとに、理想的な二次元成長モードによる単結晶薄膜成長法を確立する。物質系の横展開に関しては、研究テーマ(B)の量子物性研究で必要となる高移動度系のCuIや二次元励起子系のBiI_3やPbI_2に加え、(C)のスピントロニクス研究で必要なCrI_3やNiI_2などの二次元磁性体の薄膜を作製する。さらに、単純金属ハライドに加え(D)の光電変換研究で必要となる複合ハライドの薄膜作製にも対象を広げていく。最後に様々なハライドの単結晶薄膜同士を接合し、原子レベルで急峻な界面を持つヘテロ構造を作製し、(B)(C)(D)の界面機能の研究へと展開する。

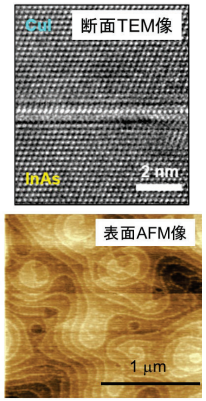

図2　InAs基板上に作製したCuI単結晶薄膜の断面の透過電子顕微鏡(TEM)像(上図)と表面の原子間力顕微鏡(AFM)像(下図)
S. Inagaki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 012103 (2021)

●研究テーマ(B) 量子物性

量子伝導は極めて高品質で清浄な薄膜ヘテロ界面で初めて観測可能な現象であり、その実現は高品質薄膜成長の到達点の明示として大きなインパクトを与える。そこで、ワイドギャップ半導体としては最高レベルの正孔移動度と高い励起子安定性を持つ銅ハライドをチャネルとする高品質の量子井戸構造を作製し、量子伝導の観測やサブバンド形成に伴う共鳴トンネル現象の検出を目指す。さらに、量子井戸構造への励起子閉じ込めによる励起子の安定化や励起子重心運動の量子化など、二次元励起子物性の研究も展開する。

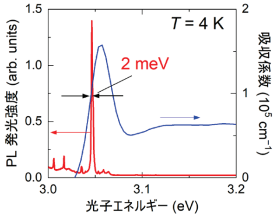

図3　CuI単結晶薄膜の低温フォトルミネッセンス(PL)スペクトル
S. Inagaki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 012103 (2021)

●研究テーマ(C) スピントロニクス

大きなスピン軌道相互作用、原子層での多彩な磁気秩序、界面での対称性の破れの融合によって生じる非自明なスピン伝導現象の観測に取り組む。光励起によるスピン流発生と磁場や偏光状態によるスピン流の制御、原子層磁性体と高移動度半導体界面におけるトポロジカルホール効果の巨大化を目指す。

●研究テーマ(D) 光電変換

空間反転対称性の破れた物質では、シフト電流と呼ばれる量子幾何効果による光電流が発生することが知られており、これまでハライド強誘電体のSbSIのバルク試料でシフト電流の低散逸性や高速応答性を実証してきた。本研究では、薄膜化によるシフト電流による光電変換のデバイス動作実証と高効率化を目指す。また、ペロブスカイト型ハライドの単結晶薄膜を用いた精密な構造・伝導・光学特性評価を行い、高い変換効率の起源の解明にも取り組む。

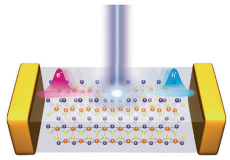

図4　ハライド強誘電体SbSIにおけるシフト電流発生の概念図
T. Hatada *et al.*, PNAS **117**, 20411 (2020)

ホームページ等	https://kwsk.t.u-tokyo.ac.jp