

論文の内容の要旨

Cryogenic measurements of the absorption coefficient of CdZnTe as a candidate material for an immersion grating

(イマージョングレーティング候補材料)
CdZnTe の極低温吸収係数の測定

氏名 前嶋 宏志

本論文では、CdZnTe の赤外線吸収要因と、イマージョングレーティング (IG) 材料への適用可能性を調査するため、既存の測定系と独自に構築した測定系を用いて極低温での波長 5–20 μm 吸収係数を測定した。

中間赤外線領域 (10–18 μm) は分子線密集領域であり、高分散分光 ($R = \lambda/\Delta\lambda \sim 30,000$) によって、天体に関する多くの化学的・運動的情報を得られると期待される。ただし、大気吸収により地上観測が困難な波長域を多く含むため、中間赤外線は大気のない宇宙で天文衛星による観測が必要な波長帯でもある。日本・欧州共同の赤外線天文衛星ミッション SPICA (SPace Infrared telescope for Cosmology and Astrophysics) ^{*1} は世界初の中間赤外線高分散分光装置 SMI/HR (Spica Mid-infrared Instrument/High-Resolution; 10–18 μm , $R = 29,000$) の搭載を予定していた。

ただし、高分散分光観測を実現するために従来の反射型回折格子で要求分解能を達成するには巨大な回折格子が必要となり、サイズ制限のある衛星への搭載が困難となる。小型化可能な回折格子として IG がある (図 1)。IG は高屈折率 n の物質中に光路パスを持つことで波長分解能を保ったまま従来素子と比べ $1/n$ に小型化できるという特徴がある。従来の回折格子 (約 290 mm) と比べ、後述の CdZnTe ($n = 2.7$) 製の IG では約 110 mm のサイズで要求分解能を達成可能である。

SPICA SMI/HR に適した波長 10–18 μm の極低温 4.8 K 用 IG は現在開発段階である。IG 材料は物質中に光を通すため吸収係数が $\alpha < 0.01 \text{ cm}^{-1}$ であることが要求される。先行研究 (Sarugaku et al. 2017) から、CdZnTe が IG の候補材料となることが判明した。ただし、CdZnTe のうち、高抵抗型 CdZnTe ($\sim 10^{10} \Omega\text{cm}$) は常温吸収係数が要求値を満たすが、極低温での吸収係数は未測定である。また、低抵抗 CdZnTe ($\sim 10^2 \Omega\text{cm}$) は常温吸収係数が要求より大きい、これは自由キャリアによる吸収だと考えられているため、極低温では自由キャリアの凍結により吸収係数が低下する可能性がある。したがって、高抵抗型だけでなく低抵抗 CdZnTe

^{*1} SPICA は 2020 年に計画中止となった

も極低温用 IG 材料となる可能性がある。しかし、CdZnTe の極低温での 10–18 μm 吸収係数測定は前例がなく、この物質の極低温での吸収が何によって決まるかの研究はなされていない。そのため、CdZnTe を極低温用 IG に適した材料にするためにはどのような物理量のコントロールをする必要があるかの指針がない。

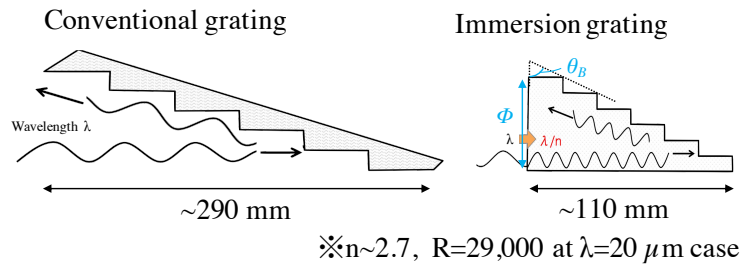


図 1 従来の反射型回折格子 (左) とイマージョングレーティング (右). 表記されたサイズは、波長 λ 20 μm での分光能力 $R = \lambda/\Delta\lambda = 29,000$, IG の屈折率 $n = 2.7$ の時の値である。

本論文の目的は、温度 4.8–300 K での高抵抗/低抵抗 CdZnTe の波長 5–20 μm の吸収係数を測定し、CdZnTe の吸収要因と IG への適用可能性を調査することである。目的達成のためには、極低温にサンプルを冷却し、吸収係数を $\Delta\alpha < 0.003 \text{ cm}^{-1}$ の高精度で測定する必要がある。本論文では、透過率のサンプル厚み依存性から吸収係数を導出するため、また吸収の抵抗率依存性を調べるため、2 種類の厚さ ($\sim t_{10} \text{ mm}$, $\sim t_1 \text{ mm}$) の低抵抗/高抵抗 ($\sim 10^2$, $> 10^{10} \Omega\text{cm}$) の CdZnTe 単結晶のサンプル、計 4 つの透過率を、常温と極低温とで測定した。

吸収係数測定の高精度化で問題となるのが、焦点ずれによる系統誤差である。一般のフーリエ分光器 (FTS) は、サンプルへの入射光が収束光であるため、高屈折率の厚いサンプルの透過率を測定すると、サンプルへ入射する収束光が屈折により光路長が伸び、検出器位置から焦点がずれて透過光強度のロスが生じる。この焦点ずれによる系統誤差の問題を解決するため、2 つの実験を組み合わせた：(1) FTS での透過率測定と (2) 独自に構築したコリメートビーム透過率測定である。

まず、(1) FTS での透過率測定について議論する。この測定では吸収係数の波長依存性を取得できるが、先述の焦点ずれによる系統誤差を含む。FTS 測定では、液体ヘリウム冷却クライオスタットを組み合わせ、極低温までサンプルを冷却する。冷却の結果、サンプルの温度が $8.5 \pm 0.5 \text{ K}$ まで到達した。また FTS 測定の結果、低抵抗型 CdZnTe の 10–18 μm 吸収係数は、300 K では $\alpha = 0.4\text{--}0.6 \text{ cm}^{-1}$ 、8.5 K では $\alpha = 0.5\text{--}1.4 \text{ cm}^{-1}$ であり、長波長ほど吸収が大きく、極低温ほど吸収が大きい傾向が得られた。一方で高抵抗 CdZnTe の 10–18 μm 吸収係数は 300 K、8.5 K とともに $\alpha < 0.1 \text{ cm}^{-1}$ と低抵抗型よりも小さく、長波長ほど吸収係数が高い傾向にあるが、温度依存性は見られなかった。ただし、この測定は焦点ずれによる系統誤差が含まれる点に注意が必要である。

次に、(2) 独自に構築したコリメート光測定系 (コリメートビームとバンドパスフィルタによる透過率測定系) で吸収係数測定を行う。この測定では、特定波長のみ測定だが焦点ずれによる系統誤差がなく、吸収係数を高精度で測定できる。この測定系では Gifford-McMahon 式冷凍機を用いてサンプルを極低温まで冷却する。冷却の結果、サンプルの温度は $8.6 \pm 0.1 \text{ K}$ まで到達した。また測定の結果、低抵抗 CdZnTe の吸収係数は $\alpha = 0.3\text{--}0.9 \text{ cm}^{-1}$ であり、長波長、低温ほど大きくなる傾向が得られた。一方で高抵抗型 CdZnTe の吸収係数は低抵抗型よりも小さな値として上限値 $\alpha < 0.11 \text{ cm}^{-1}$ が決まり、波長依存性、温度依存性は見られなかった。

焦点ずれによる系統誤差を補正した吸収係数の波長依存性を求めるため、2 つの実験 (1) (2) の結果を組み合わせる。焦点ずれによる系統誤差の波長依存性を仮定し、(2) の結果を用いて (1) の結果を補正することで、この系統誤差を除いた吸収係数の波長依存性を求めた (図 2)。補正の結果、10–18 μm 範囲で導出吸収係数の

統計誤差は $\Delta\alpha = 0.01\text{--}0.02\text{ cm}^{-1}$, 導出式由来の系統誤差は $\Delta\alpha_{\text{calc}} = 0.03\text{ cm}^{-1}$ となり, (1) FTS 測定単体の誤差 (統計誤差 $\Delta\alpha = 0.03\text{ cm}^{-1}$ + 焦点ずれ系統誤差 $\Delta\alpha_{\text{defocus}} = 0.06\text{ cm}^{-1}$ + 導出式由来の系統誤差 $\Delta\alpha_{\text{calc}} = 0.03\text{ cm}^{-1}$) よりも小さくなった. また, サンプル温度 (8.5 K) は要求温度 (4.8 K) までサンプルを冷却できなかったが, 50 K 以下では吸収係数の温度依存性が小さいため, 4.8 K での吸収係数は 8.5 K のものと一致すると推定できる. 低抵抗 CdZnTe の 10–18 μm 吸収係数は, 300 K では $\alpha = 0.4\text{--}0.6\text{ cm}^{-1}$, 8.5 K では $\alpha = 0.5\text{--}1.3\text{ cm}^{-1}$ であり, 低温ほど吸収係数が上昇する傾向と長波長ほど吸収係数が上昇する傾向が見られた. 一方で高抵抗 CdZnTe の 10–18 μm 吸収係数は 5- σ 上限値のみが求まった ($\alpha < 0.16\text{ cm}^{-1}$). 従って, 低抵抗 CdZnTe は IG の要求吸収係数 (要求値: $\alpha < 0.01\text{ cm}^{-1}$) を満たさず IG 材料として不適, 高抵抗 CdZnTe は上限値のみが求まっているが吸収係数が小さく, IG 材料として有望であることが判明した.

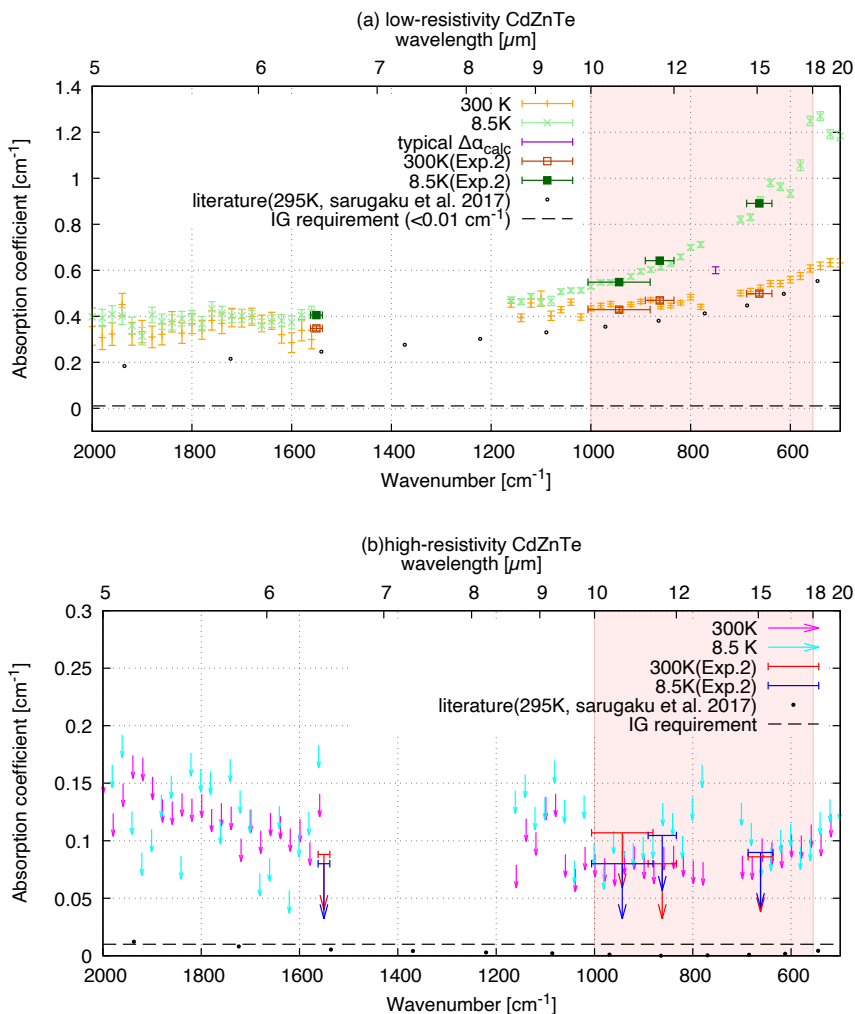


図 2 補正後の吸収係数の波長依存性. (上) 低抵抗 CdZnTe の結果, (下) 高抵抗 CdZnTe の結果. 桃色波長域は SPICA SMI/HR の波長域 (10–18 μm). 紫の誤差棒は導出式由来の系統誤差. (Exp.2) はコリメート光による 4 波長測定結果. 黒点は常温先行研究結果を示す (Sarugaku et al. 2017). 黒点線は IG 要求吸収係数上限値である.

続いて, 低抵抗 CdZnTe の吸収要因を議論するため, 吸収係数モデルを仮定して. 測定結果の吸収係数の温度依存性と波長依存性へのフィッティングを行った. まず, 吸収要因として, (A) 同一価電子帯サブバンド内の自由ホール遷移による吸収, (B) 軽いホールと重いホール価電子帯サブバンド間の自由ホール遷移による吸収に加え, (C) アクセプター準位に束縛されたホールの価電子帯への遷移による吸収の 3 つの吸

収要因を考慮して吸収モデルを仮定した。この吸収係数モデルを実験 (2) で得られた吸収係数の温度依存性について、各波長でフィッティングを行った (図 3)。このフィッティングによって、アクセプター密度 $N_A = (4.1 \pm 0.7) \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ 、アクセプター準位と価電子帯上限のエネルギー差 $E_a = 63 \pm 1 \text{ meV}$ 、重いホールと軽いホールの有効質量比 $m_h/m_l = 6 - 8$ が求まった。これらの物理量は抵抗率から予測されるアクセプター密度、類似の物質である CdTe の先行研究結果と整合する。また、モデルの各吸収要因の温度依存性から、低抵抗 CdZnTe の吸収は常温付近 (150–300 K) では自由ホール吸収が支配的であり、極低温 (< 50 K) では束縛ホール由来の吸収が支配的となることが示された。さらに、ここで議論した吸収要因は CdZnTe 特有のものではなく半導体であれば生じうる吸収要因であるため、今回構築した吸収モデルは多種の赤外線半導体材料の極低温性能を評価する際にも応用可能である。

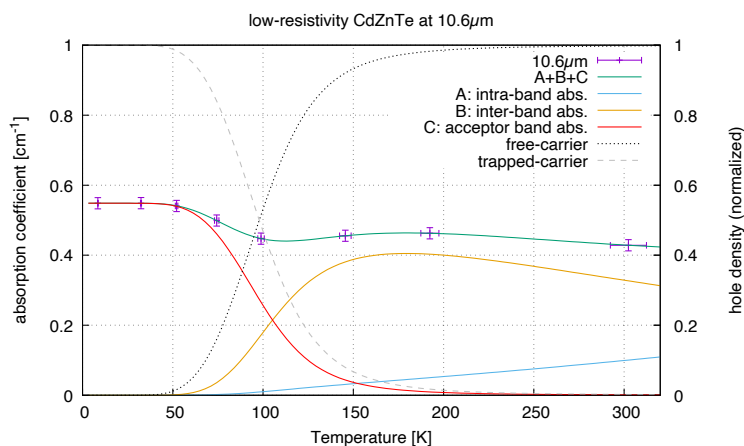


図 3 波長 10.6 μm での測定吸収係数の温度依存性 (紫) と、フィットされた吸収係数モデル (緑)。青線、橙線、赤線はそれぞれ (A) 価電子帯サブバンド内の自由ホール遷移による吸収、(B) 価電子帯サブバンド間の自由ホール遷移による吸収、(C) アクセプター準位に束縛されたホールの価電子帯への遷移による吸収のフィット結果を示す。黒破線、黒点線はそれぞれ規格化された束縛ホール密度、自由ホール密度を示す。

続いて、吸収係数の抵抗率依存性から、極低温 IG 材料の CdZnTe 結晶に要求される常温での抵抗率を予測する。IG 材料の要求吸収係数は $\alpha < 0.01 \text{ cm}^{-1}$ である。極低温吸収で支配的な束縛ホール吸収は束縛ホール密度に比例する。また、極低温での束縛ホールは、常温では励起されてほぼ全て自由ホールとなっていると考えられる。さらに、抵抗率は自由ホール密度に比例する。以上の比例関係から、極低温の束縛キャリア吸収は常温の抵抗率に比例し、極低温で要求吸収係数を満たすために必要な常温抵抗率が $\rho \geq 3 \times 10^4 \Omega\text{cm}$ であると予測される。したがって、高抵抗 CdZnTe ($> 10^{10} \Omega\text{cm}$) はこの抵抗率要求値を満たすため、極低温用 IG 材料に適する吸収係数を持つと予測される。

本論文では、CdZnTe が IG 材料に適するか、赤外線吸収要因が何であるかを調査するため、既存の FTS 測定系と独自に構築したコリメート光測定系を用いて、5–20 μm 吸収係数を 8.5–300 K で求めた。その結果、低抵抗 CdZnTe は吸収係数が高く ($> 0.4 \text{ cm}^{-1}$)、IG 材料に適さないことが判明し、高抵抗 CdZnTe は吸収係数が低く ($< 0.16 \text{ cm}^{-1}$)、IG 材料として有望であることを示した。また、吸収係数モデルを構築してフィッティングを行い、低抵抗 CdZnTe の吸収要因は常温では自由ホール由来の吸収が、極低温ではアクセプターに束縛されたホール由来の吸収が支配的であることを示した。さらに、束縛ホール密度と抵抗率の関係から極低温で要求吸収係数 ($\alpha < 0.01 \text{ cm}^{-1}$) を満たすために必要な常温抵抗率を予測した。高抵抗 CdZnTe はこの要求抵抗率を満たし、極低温用 IG 材料に適することを示し、IG の実用化への路を拓いた。

引用文献

Sarugaku, Y., Kaji, S., Ikeda, Y., et al. 2017, J. Electron. Mater., 46, 282