

In フラックスを用いた温度差法による GaSe 結晶の低温溶液成長

Low temperature solution growth of GaSe crystal by In flux method under a temperature gradient

東北大工¹, 東北大環², °(D)佐藤 陽平¹, (D)唐 超¹, (M1)渡辺 克也¹,(B)大崎 淳也¹, 山本 卓也², 田邊 匡生¹, 小山 裕¹Tohoku Univ. Eng.¹, Tohoku Univ. Env.¹, °Yohei Sato¹, Chao Tang¹, Katsuya Watanabe¹,Ohsaki Junya¹, Takuya Yamamoto², Tadao Tanabe¹, Yutaka Oyama¹

E-mail: s.yohei@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】グラフェンを代表とする層状材料はその移動度の高さや大きな異方性から高速トランジスタや THz 波光源、検出器等への応用が期待されている。本研究では層状材料の中でも THz 波光源としての応用が期待される GaSe を蒸気圧制御温度差液相成長法により Se を溶解した Ga 溶液から温度差法で低温成長し、THz 波光源として用いることで、従来法である Bridgman 法により融液から成長した結晶と比較して発生効率を 4 倍に向上した。しかし、層状材料のバルク結晶を安定して成長することのできる溶液成長法は確立されておらず、GaSe の場合には Ga 中の Se の濃度勾配が付き難いため、成長速度が遅く、最大出力の THz 波発生に必要な厚さを有する結晶が得られていない。よって今回は In 溶媒を使用し、GaSe 結晶の成長速度高速化を図った。

【実験方法・結果】溶媒として In、原料としてフレーク状の GaSe を使用し、温度差法により基板結晶を使用せずに GaSe 結晶を低温成長した。成長の評価として In 中の GaSe 濃度勾配を TG-DTA により評価し、OpenFOAM による熱流体物質移動シミュレーションから成長中の過飽和度の分布を評価した。成長した結晶に対しては PL 測定を行った。TG-DTA の結果から成長温度である 750°C~780°C の温度領域において In 中の GaSe 濃度勾配から求められる 1°C 当たりの Se 濃度勾配(0.1156 at%/°C)は Ga 溶媒中の Se の濃度勾配(0.0125 at%/°C)の 9 倍以上であった。結果として Ga 溶媒から成長する結晶がフレーク状の結晶(厚さ:300~500µm)であるのに対し、In 溶媒からはインゴット状の GaSe 単結晶(厚さ:3mm 以上)を成長することに成功したことから、これは Se の濃度勾配増加による成長速度高速化の結果であると考えられる。PL 測定より、In 溶媒から成長した GaSe 結晶のバンド間発光遷移のピーク位置は Ga 溶媒から成長した結晶のピーク位置よりも低エネルギー側にシフトしたことから、InSe のバンドギャップが GaSe よりも小さいことを踏まえ、In 溶媒からは $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{Se}$ 混晶が成長したと考えられる。

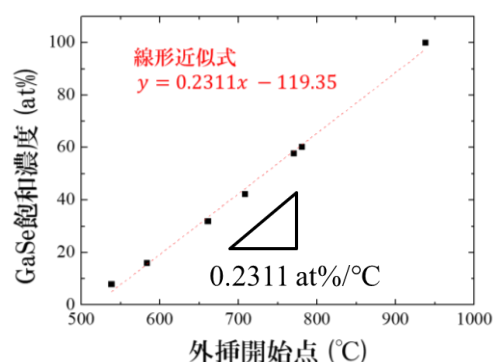


図 1. TG-DTA により測定した各温度の GaSe の飽和濃度