

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名

自己組織化量子閉じ込め構造

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名（研究機関名・職名は研究参加期間終了時点）

研究代表者	譚井 浩平	上智大学理工学部	教授
主たる研究参加者	江馬 一弘	上智大学理工学部物理科	教授
	陸川 政弘	上智大学理工学部化学科	助教授
	浅井 圭介	東京大学工学研究科	システム量子工学専攻 助教授
	近藤 高志	東京大学工学研究科	マテリアル工学専攻 助教授
	江良 正直	佐賀大学理工学部	機能物質化学科 助教授

3. 研究内容及び成果

低次元系半導体は電子や励起子などの量子閉じ込め効果により、際立った光学特性を示すことが知られている。そのため、量子ドットや量子細線、量子井戸のような低次元系半導体の構築とその量子効果に由来した機能的特性に関する研究は、非線形光学材料など新機能性材料への応用を睨んで盛んに行われている。しかしながら、このような無機半導体の人工量子閉じ込め構造ではバリア層と閉じ込め層のバンドギャップ差を極端に大きく取ることができず、光による励起状態（励起子）にとっては理想的な閉じ込め構造は実現できない。ましてや次元性の及ぼす励起子物性への影響を系統的に調べた例はほとんどないと言ってもよい。その研究例の少なさの主な原因の一つに、試料作製の困難さがあげられる。一般的に、量子井戸、超格子のような低次元系化合物は、分子線エピタキシー法等を用いて作製されてきた。しかし、このような手法を用いても、層界面の揺らぎを防ぐことは難しく、理想的な低次元構造を得ることはさらに困難である。

一方、有機・無機複合物質は、自己組織的に量子井戸構造を形成することが知られており、上述の問題点を払拭することができると思われる。また、有機・無機複合物質ではバリア層と閉じ込め層のバンドギャップ差が大きいため、励起子を理想的に閉じ込めることができる。したがって、低次元系での励起子物性を調べるのに最適な物質といえる。そこで、本研究では、有機・無機層状ペロブスカイト型物質 $(\text{RNH}_3)_2\text{MX}_4$ に着目し、その有機、無機層を種々置き換えることにより、様々な次元性を持つ自己組織型量子閉じ込め構造を構築し、励起子の次元性が及ぼす量子閉じ込め構造への影響を系統的に調べることを目的とした。

研究組織は、自己組織化量子閉じ込め物質の開発を行う「基礎材料設計グループ」と励起子に基づく物性、及びその電子構造を評価する「物性構造評価グループ」、さらに当該物質の応用を担当する「プロセス・応用検討グループ」から構成された。

本研究プロジェクトで行った研究内容は以下の4つの大項目に整理することができる。

- | | |
|----------------------------|---------------------|
| [1]新規量子閉じ込め構造の構築 | (譚井研究室、浅井研究室) |
| [2]低次元系量子閉じ込め構造の電子状態と励起子 | (江馬研究室、近藤研究室、浅井研究室) |
| [3]有機・無機超格子構造の新規構築方法 | (譚井研究室、江良研究室、浅井研究室) |
| [4]層状ペロブスカイト化合物の応用 | (江良研究室、江馬研究室、浅井研究室) |

上記より明らかなように、各グループがひとつの内容にとらわれることなく、グループ間で、成果、及び技術情報の交換を頻繁に行うことによって、研究を推進した。

主な研究成果の概要

[1]新規量子閉じ込め構造の構築

研究プロジェクト発足当時の有機・無機ペロブスカイト型化合物に関する研究は、2次元系化合物に限られていた。本プロジェクトでは従来と異なる種々の有機配位子を用いることで、1次元、2次元、3次元とその中間領域の量子井戸構造を有する数多くの有機-無機ハイブリッド化合物を系統的に作製することができた。このことにより、0次元以外の次元性を有する自己組織化量子閉じ込め構造を構築する手法を確立することができた。得られた新規低次元系量子閉じ込め物質を用いて、[2]に示す物性評価を行った。

[2] 低次元系量子閉じ込め構造の電子状態と励起子

[1]で得られた自己組織化量子井戸物質について、バンド構造、励起子のエネルギー構造、スピン微細構造、緩和過程等を明らかにした。これによって、自己組織化量子井戸物質が励起子物性研究に最適であることが判明した。さらに、励起子共鳴における大きな非線形性を見出し、その起源を明らかにするとともに、室温非線形デバイスの可能性も示した。2次元から3次元につながる量子井戸物質において、励起子物性のサイズ依存性を明らかにするとともに、井戸厚の薄い領域での誘電性増強効果の重要性を定量的に示した。また、1次元物質についても電子構造・励起子構造を解明し、自己組織化量子閉じ込め構造の1次元、および2-3次元の励起子物性の統一的理解を進めた。

[3] 有機・無機超格子構造の新規構築方法

層状ペロブスカイト有機・無機超格子のナノメートルスケールでの薄膜化を二段階蒸着法、Langmuir-Blodgett法、Self-assembly法、Self-intercalation法などを開発することによって実現した。これらの手法はナノスケールでの層状ペロブスカイト超格子ができるだけでなく、金属、半導体、強磁性体など様々な物性を示す無機ハロゲン化物層と機能性有機分子とを単分子層レベルで組み合わせた全く新しい超格子材料を構築できる手法である。

また、有機層を閉じ込めのバリアとして使うだけでなく、発色性の分子を導入することで、無機層とのエネルギーのやり取りを実現した。更に、有機層に n 共役系高分子を導入した有機・無機半導体超格子の構築に成功した。これらは、非常に高効率の非線形性が期待できる無機半導体-有機分子励起子強結合系のモデルとして期待される。

[4] 層状ペロブスカイト化合物の応用

層状ペロブスカイトの励起子物性を利用して、発光デバイスへの応用を試みた。その結果、低温ではあるが層状ペロブスカイト超格子を発光層とした素子において効率よい緑および紫の発光を得ることができた。また、層状ペロブスカイトに導入したナフタレン発色団からのりん光を発光デバイスへ応用できる可能性を確認した。さらに、層状ペロブスカイト化合物の優れた耐放射線性を利用して、放射線検出用シンチレーターとしての応用を可能にした。本研究の成果に関しては、国内外に競合する研究は全くなく、様々な超短パルス放射線の検出やホジロンエミッショントモグラフィーをはじめとする核医学診断装置へ応用されるものである。加えて、室温においても励起子共鳴において大きな非線形性と速い応答速度を持つ事が判明し、それを利用して室温における超高速シリアル-パラレル変換を実現させた。励起子非線形性を室温において応用するのは初めてである。

4. 事後評価結果

4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

有機・無機層状ペロブスカイト型化合物は、従来、有機層と無機層が交互に自己組織的に積層し、無機層半導体量子井戸構造内の励起子が非常に大きな励起子束縛エネルギーによって、室温でも安定な励起子発光が発現する特異な物質として知られていた。この物質系に対して、より優れた非線形量子光機能を発現させる狙いのもとに、従来とは異なる種々の有機配位子を用いることで、3次元、2次元、1次元、0次元の自己組織化量子構造を実現する材料の創製を系統的に進め、0次元を除く自己組織化量子閉じ込め構造の創製に成功したことは、この特異な物質系に対する物質探索研究として、意義は十分にあった。ただし、現状では低次元性を反映した顕著な非線形光学機能は得られてはいる。今回、豊富に蓄積されたデータを基に物性機能への次元性の効果を顕在化することを期待する。物性機能的には2次元量子井戸構造の研究を中心に行われたが、励起子物性に関し、バンド構造、励起子のエネルギー構造、スピン微細構造、緩和過程等を明らかにし、励起子光物性の理解を前進させた。

デバイス応用面に関しては、量子井戸(2次元)構造材料による、励起子を利用した新しい応用の可能性が探索された。有機層に発色性の分子を導入することで、無機層とのエネルギーのやり取りを実現させた。無機層の3重項励起子からのエネルギー移動を利用して有機層の燐光発光を実現させることに成功し、効率の良い発光デバイスの可能性を示したこと、ドーピングによる室温発光強度の増強、テラビット信号のシリアル-パラレル変換などは、今後の展開に期待を持たせる成果である。なかでも、応用に関する最も注目すべき成果は、 γ 線照射による有機層重合実験の過程で発見された放射線検出用シンチレーターとしての機能であろう。放射線照射による励起子発光が従来のシンチレーターに比較して数桁も早い高速応答を示し、材料の耐放射線

性も極めて高く、革新的なシンチレータである。今後の実用化への発展が大いに期待できる成果である。

外部発表は286件（英文論文59件、和文論文12件、国際学会発表65件、国内学会発表149件）である。メンバーの多彩な構成を考えると英文論文、国際発表がもっとあってもよかった。特許に関しては12件と満足すべき件数である。シンチレーター特許など有望特許が出願された。

4 - 2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

無機半導体と有機分子とをナノメータスケールで複合化した特異な物質系の材料構築法、各種分光測定、理論的考察などの研究を地道に系統的に進めた貢献は評価される。低次元化による新奇な物性発見には至らなかったが、2次元構造物質については、人工超格子の作成法の確立、有機層への発色団の導入による燐光発光の発見、バンド構造と励起子発光の緩和過程の解明など、従来に比較して、励起子基礎物性の理解を前進させた科学的意義は評価される。

技術的には、燐光発光によるエレクトロルミネッセンス素子としての可能性、テラビット信号のシリアル-パラレル変換など、今後に期待をもたせる面がある。特に、従来にない超高速応答シンチレーターとしての機能発見の技術的インパクトは、実用化に対し現実味のある成果として注目される。現在、市場に出ている各種シンチレーターに比べて革新的な性能であり、材料の量産技術が確立すれば、ポジトロンエミッショントモグラフィーをはじめとする核医学診断装置のような今後発展が期待される大きなシンチレーター市場を抑える可能性は高い。本シンチレーターの研究は、科学技術振興事業団の権利化試験プロジェクトにも採択され、研究開発が進められることになったが、大きな進展を期待する。

4 - 3. その他の特記事項

受賞1件

*応用物理学会講演奨励賞

受賞者：澁谷憲悟

受賞研究：二次元量子閉じ込め構造を利用した新規超高速シンチレーターの開発

[<<量子効果トップ](#)

This page updated on September 12, 2003

Copyright(C)2003 [Japan Science and Technology Corporation](#)