

# IV族元素酸化物光エレクトロニクス・ラボ

## ( Group IV Element Oxides Optoelectronics Lab. )

研究項目：IV族元素酸化物を用いたオプトエレクトロニクス用材料の研究  
研究期間：平成9年度～14年度

### 1. 当該研究の背景と目的

トランジスタに代表される電子素子と、半導体レーザーや発光ダイオードに代表される発光素子を、同一のLSI内部に高密度に集積できれば、全く新しい種類の情報処理技術が生まれる可能性があり、その実現は半導体技術の研究従事者にとって長年の夢である。今日までそれが不可能であった理由は、電子素子と発光素子に利用される材料の種類が大きく異なり、同一の基板上に一つの集積回路(LSI)として集積することが不可能であったからである。すなわち現時点においては、電子素子用材料として最適の物質はSiを代表とするIV族元素半導体であり、一方で発光素子用材料として最適の物質はGaAsやGaNを典型例とする化合物半導体である。従って、もしSiを代表とするIV族元素半導体を利用して、優秀な発光素子が新規に実現できれば、前述の光・電子融合LSIの実現が可能になり、その社会的な波及効果は非常に大きなものとなる。

本研究は、Siを代表とするIV族元素半導体を利用して、優秀な発光素子を実現する事を目指して、材料開発および発光原理の物理学的解明、および新構造素子の開発を行う事を目的としている。具体的には、SiO<sub>2</sub>/Si超格子など、IV族系半導体材料を用いた半導体酸化物/半導体の複合構造を利用して、新しい発光機構に基づく発光素子の実現を目指すと共に、発光機構の解明を通じて光物性物理学の基礎的発展に貢献する事を目指している。

また本研究においては、上記の目的に併せて、極低エネルギー・イオンビームを利用したSiO<sub>2</sub>薄膜の新しい堆積技術の開発も目的としているが、極低エネルギー・イオンビームと固体表面との相互作用の機構の解明も同時に目指している。

### 2. これまでの研究経過と現状

#### 2.1 負の温度消光現象の解明

本研究の当初にあっては、まず一般的に物質が発光する機構の基本について考察を行い、とくにその発光強度の温度依存性を実験的に調査する事によって、発光機構の詳細を解明できる可能性が存在する事を明らかにした<sup>1)</sup>。具体的には、固体の発光強度の温度依存性を与える一般的な表式を理論的に導出する事に成功し、それが多くの実験結果を非常に良く説明できる事を示した。特に、従来は原因が謎とされてきた、非常に複雑かつ奇妙な温度依存性を示す発光現象に対しても、実際には比較的単純な機構により直感的に説明できる事を示しており、光物性物理学の見地から大きな意義を持っている。

#### 2.2 CIBMBE法によるGe<sub>1-x</sub>C<sub>x</sub>固溶体の薄膜堆積

次に、実際の薄膜堆積装置である極低エネルギー・イオンビーム複合分子線エピタキシャル(CIBMBE)装置の建設を行い、熱平衡物質のみならず非熱平衡物質の創製に対しても、非常に有効な装置として機能する事を明らかにした<sup>2)</sup>。建設したCIBMBE装置の模式図をFig.1に示す。SiおよびGeなどのIV族元素は分子線の形態で供給し、CやOなどは極低エネルギー・イオンビームの形態で、分子ビームと同時に供給できるようになっている点に特徴がある。しかしながら、本装置の最大の特徴は、“空間電荷効果”をなるべく少なく抑制する設計がなされている点であり、それにより各種の合金や化合物を合成するために十分な大きさの電流(およそ10μA程度)を持った極低エネルギー・イオンビームを実現する事が可能となった。具体的には、Shield Caseの存在、およびその内部に設けられた2本のDeceleration Electrodeの存在がビームの発散を抑制するために重要な役割を果たしている。すなわちShield Caseの電位をアースに設定しておき、Deceleration

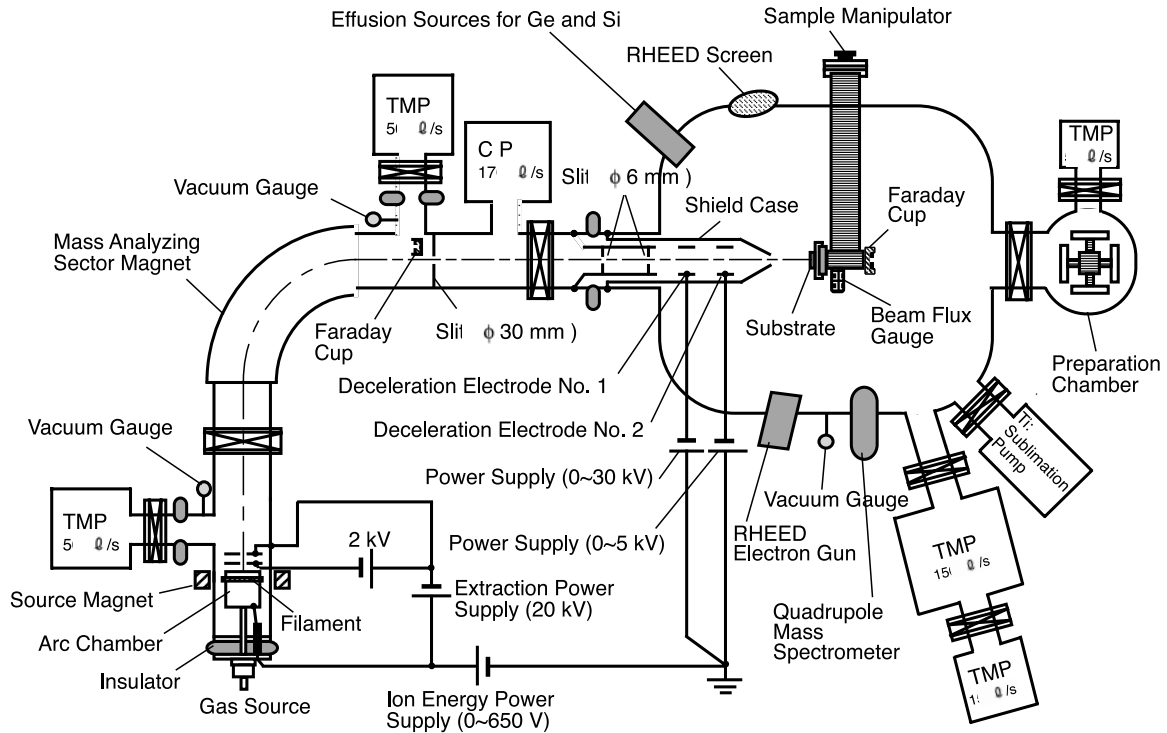


Fig.1 Schematic diagram of the combined ion beam and molecular beam epitaxial (CIBMBE) system.

Electrodeの対地電位を適切に設定する事により、ビームの発散を伴う事なしにビーム・エネルギーを減少させて、大電流・極低エネルギーのイオンビームを実現する事が可能になった。

建設したCIBMBE装置を用いて、本研究に置いては、まずGeにCを固溶させた $Ge_{1-x}C_x$ という固溶体を合成し、その装置的な特徴の抽出を試みた。 $Ge_{1-x}C_x$ 固溶体の堆積にあたっては、Geを分子線の形態で供給し、Cを極低エネルギー・イオンビームの形態で供給した。 $C^+$ イオンビームのエネルギーとしては、100eVおよび50eVの両方を採用した。熱平衡状態においては、Ge中におけるCの固溶限界は、ほとんどゼロであると考えられており、熱平衡なプロセスを利用した結晶成長技術においては $Ge_{1-x}C_x$ という固溶体を実現する事は不可能である。しかしながら本研究においては、CIBMBE装置を用いて $x = 0.047$ の濃度までCを固溶させる事に成功した。これは従来知られている範囲では最も高い値であり、本装置が優れた独自の特性を有している事を実証した。また $Ge_{1-x}C_x$ 固溶体は、Cの導入によってバンド構造が大幅に変化するため、基礎物性を大幅に制御可能な物質であると理論的に予言されており<sup>3)</sup>、作製された物質は新物質合成の観点からも興味深いものである。

$Ge_{1-x}C_x$ 固溶体のバンド構造がCの導入によってどのように変化するかについては、後述する $SiO_2$ の研究と並行して、現在でも引き続き詳しい研究を継続しており、今後の発展が期待される。

### 2.3 CIBMBE法による $SiO_2$ 薄膜の堆積

この結果を踏まえて、CIBMBE法を利用して $SiO_2$ 薄膜を堆積させる実験を行った<sup>4)</sup>。 $SiO_2$ 薄膜の堆積にあたっては、Siを分子線の形態で供給し、Oを極低エネルギー・イオンビームの形態で供給した。 $O^+$ イオンビームのエネルギーとしては50eVを採用した。このようにCIBMBE法を利用して $SiO_2$ 薄膜を堆積させる技術の最大の長所は、超高真空環境下で $SiO_2$ 薄膜を堆積できる事および比較的低温において $SiO_2$ 薄膜を堆積できる事の2点である。

実験の結果 $Si/O=1/2$ のストイキオメトリックな組成を持つ $SiO_2$ 薄膜の堆積に成功した。また薄膜の品質を評価するためにSi-2pのXPSスペクトルを測定した結果、シリコンの熱酸化法により形成された熱酸化膜に匹敵する可能性がある事が明らかとなった。従って本研究においては、CIBMBE法を利用して高品質な $SiO_2$ 薄膜の新しい堆積技術の開発に成功したと言える。

### 3. 今後の研究展開の方向

Siを代表とするIV族元素半導体を利用して、実用に耐え得る発光素子を実現する事は、現代の半導体研究者の大きな夢の一つである。その一つの端緒となったのが、1990年のCanhamによるPorous Siliconからの強い発光現象の発見であった<sup>5)</sup>。この発見は、その後のこの分野における膨大な研究の発展の扉を開いたが、その発光機構の詳細については、今でも完全に解明されているとは言い難い。その理由の一つは、ポアや微粒子のサイズが高精度で制御された試料を作製する事が困難であったためと考えられる。そのような中で登場したのが、Lockwood *et al.* によるSiO<sub>2</sub>/Si超格子からの強い発光現象の発見であった<sup>6)</sup>。この場合は超格子構造であるため、量子井戸層の厚さを高精度で制御する事が可能であり、Porous Siliconなどが持つ上記の欠点を克服して、これらの発光機構の詳細を解明する事が可能であるとの期待が高まった。我々が本研究を開始した動機の中にもそれがある。しかしながら、実際には世界中におけるSiO<sub>2</sub>/Si超格子の研究の進展は必ずしも順調なものではなく、これらナノサイズ・シリコン系の発光機構の詳細は依然として未知のままである。

これらの系においては、何らかの量子閉じ込め効果が働いている事は疑いないが、その詳細は未知のままに、実際の素子の開発が進んできたのが現状である<sup>7)</sup>。従って、まだ未知の大きな科学的領域が残されている事は確かであり、研究対象として非常に興味深い課題である。今後は、本研究において開発されたCIBMBE法の特徴を最大限に利用して、高品質なSiO<sub>2</sub>/Si超格子を実現し、その発光機構の詳細を解明する必要がある。

#### 参考文献

- 1) H. Shibata: Jpn. J. Appl. Phys. , **37** (1998) 550.
- 2) H. Shibata *et al.* : Jpn. J. Appl. Phys. , **38** (1999) 3459.
- 3) J. Kolodzey *et al.* : Appl. Phys. Lett. , **67** (1995) 1865.
- 4) H. Shibata *et al.* : Jpn. J. Appl. Phys. , **39** (2000) 1327.
- 5) L. T. Canham: Aool. Phys. Lett. , **57** (1990) 1046.
- 6) D. J. Lockwood *et al.* : Phys. Rev. Lett. , **76** (1996) 539.
- 7) 越田信義 : 応用物理, **69** (2000) 792.

#### 当該研究担当者等

ラボ構成員(総数4名)

職員(3名) 柴田 肇\* 木村眞次, Paul Fons(光技術部)

職員以外(1名) 小原 明(特別技術補助職員)

\*ラボリーダー