



3C-SiC膜上に成長したSiCウィスカーの光学的評価
と単一光子源への有用性

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 宮崎大学工学部 公開日: 2021-10-18 キーワード (Ja): キーワード (En): 3C-SiC, SiC-Whisker, Single photon source, Monomethylsilane, Photoluminescence 作成者: 川畑, 公佑, 中村, 泰樹, 迫田, 理久, 成田, 克, 碓, 哲雄, 福山, 敦彦, Kawabata, Kosuke, Nakamura, Taiju, Sakoda, Riku, Narita, Yuzuru メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10458/00010268

3C-SiC 膜上に成長した SiC ウィスカーの 光学的評価と単一光子源への有用性

川畑 公佑^{a)}・中村 泰樹^{a)}・迫田 理久^{a)}・成田 克^{b)}・碓 哲雄^{c)}・福山 敦彦^{d)}

Optical Characterization of SiC Whiskers Grown on 3C-SiC Films and their Usefulness for Single Photon Sources

Kosuke KAWABATA, Taiju NAKAMURA, Riku SAKODA
Yuzuru NARITA, Tetsuo IKARI, Atsuhiko FUKUYAMA

Abstract

Single Photon Source (SPS) has been adopted as a quantum information and communication technology for quantum cryptography and quantum computing. Although defects in SiC films are currently studied in SPS, there is difficulty in fabricating such defects under controlled conditions. SiC whiskers (SiC-Wk) have the potential to overcome this difficulty. In this study, we investigated the photoluminescence (PL) of SiC-Wk and discussed whether it could be used as SPS or not. The SiC-Wk were grown on the 3C-SiC films deposited on epitaxially grown 3C-SiC/Si substrates using monomethylsilane gas at 750 °C. When the temperature increased to 800 °C, only 3C-SiC films were deposited. The latter samples with no whiskers were used as a reference. In the observed PL spectra measured at low temperatures, broad luminescence attributed to the lattice defect levels of the 3C-SiC film was observed regardless of the whisker formation. By subtracting the luminescence contribution of 3C-SiC film, small emission peaks at 628 and 654 nm were observed for the whisker samples. Comparing to the reported PL spectra from the defect in SiC in the literature, we found that observed two luminescence peaks from the whiskers are available as SPS. Since defects are usually difficult to control, the usefulness of the whiskers is demonstrated.

Keywords: 3C-SiC, SiC-Whisker, Single photon source, Monomethylsilane, Photoluminescence

1. はじめに

現代の社会生活は、コンピュータやインターネットに代表される情報処理技術や通信技術に多大な恩恵を受けている。しかしながら、情報ネットワーク網の複雑化に伴い、盗聴や改ざんなど情報に対する安全や安心が脅かされるリスクも増大しつつある。このような従来の情報処理や通信技術の限界を超える革新的技術として量子情報通信技術が注目を集めている¹⁾。光の量子である光子は外乱の影響を受けにくく、量子の情報を遠方へ伝える粒子として最も適していると期待されている。特に、光子を用いた量子暗号通信などにおいて光子の単一性、すなわち同時に 2 個以上の光子が存在しないことが秘匿性の保持や誤り率の低下などの点において重要である²⁾。これらを実現させるためには一粒毎の光子を必要とときに自由に発生させることが可能な単一光子源 (Single Photon Source: SPS) が必要不可欠となる。この SPS は一度の励起で 1 つの光子を放出する発光中心であり³⁾、そ

の候補として炭化ケイ素 (SiC) 結晶上に作製された欠陥が研究されている。SiC は超低損失パワーエレクトロニクスへの応用が期待されていることから、長径の大口径化やデバイス作製のためのプロセス技術が着実に進んでいる。そのため SiC 中に SPS として機能する発光素子を形成できれば、その発光素子を埋め込んだデバイスの作製も可能であり、実用化しやすいと考えられる。SiC 欠陥の形成方法としては SiC 結晶の酸化⁴⁾や高エネルギー電子線照射⁵⁾が挙げられる。しかしながら、これらの手法による SiC 欠陥形成方法では位置の制御が難しいという課題がある。そこで、我々は新たな SPS 候補として SiC ウィスカー (Whisker: Wk) の検討を行っている。SiC-Wk は形成位置をある程度制御できると期待されており、Wk 起因の発光を制御できれば SPS に応用できる可能性がある。

そこで本研究では、3C-SiC 膜上にモノメチルシラン (CH₃SiH₃, Monomethylsilane: MMS) ガスを用いて SiC を堆積させるときの基板温度を変化させることで SiC-Wk 成長のための条件を明らかにし、成長した SiC-Wk の光学的特性評価をフォトルミネッセンス (Photoluminescence: PL) 測定を用いて行った。得られたスペクトルから SiC-Wk 起因の発光信号の有無を確認し、SPS への有用性があるかを議論した。

a)工学専攻 エネルギー系コース 大学院生

b)山形大学 大学院理工学研究科 電気電子工学分野 准教授

c)電子物理工学科 特任教授

d)電子物理工学科 教授

2. 実験

2.1 試料作製方法

本研究では、Si(111)基板の上に3C-SiC(111)膜をエピタキシャル成長させた3C-SiC/Siを基板として用いた。この基板の上にSiCの原料となるMMSガスを供給することで3C-SiC膜を堆積させた。このときMMSガスによる3C-SiC膜堆積は表面吸着サイトへのMMS解離吸着と表面吸着サイトからの水素脱離のバランスで決定される。解離吸着は次式⁶⁾で表すことができる。

$$\Gamma_{MMS} \times \alpha \tag{1}$$

ここで、 Γ_{MMS} は基板へのMMS入射頻度、 α は吸着確率である。一方の水素脱離は次式⁷⁾で表すことができる。

$$\frac{d\theta_H}{dt} = K_d \times \theta_H^2 \tag{2}$$

ここで、 K_d は水素脱離速度定数、 θ_H は水素被覆率である。また、 Γ_{MMS} と K_d は以下のように書ける。

$$\Gamma_{MMS}(P_{MMS}) = \frac{P_{MMS}}{\sqrt{2\pi m k_B T}} \tag{3}$$

$$K_d(T_{sub}) = \nu \cdot \exp\left(-\frac{E_d}{k_B T_{sub}}\right) \tag{4}$$

P_{MMS} はMMS圧力、 T_{sub} は堆積温度、 ν は振動数、 E_d は活性化エネルギーである。式(1)と(3)より、MMSの解離吸着は P_{MMS} に依存し、式(2)と(4)より水素脱離は T_{sub} に依存していることが分かる。従って、基板の上に3C-SiC膜が堆積するのか、あるいはWkが形成されるのかを確認するために P_{MMS} と T_{sub} を個別に変化させて成膜を行った。まず、 P_{MMS} を 2×10^{-2} Paで固定し、 T_{sub} を変化させた結果を表1に示す。成長したものが3C-SiC膜かSiC-Wkかの判断は後述するX線回折(XRD)と走査電子顕微鏡(SEM)観察で行った。 T_{sub} を650、750、775、800℃で変化させたところ3C-SiC膜の堆積が確認されたのは750、775、800℃であった。また、750℃でのみWkの成長が確認された。

表1. T_{sub} を変化させた膜堆積とWk成長。

	堆積温度 T_{sub}			
	650℃	750℃	775℃	800℃
膜堆積	×	○	○	○
Wk成長	×	○	×	×

次に T_{sub} を750℃に固定し、 P_{MMS} の圧力を変化させた結果を表2に示す。 P_{MMS} が 2×10^{-2} Paの時には3C-SiC膜の堆積とWkの成長の両方が観測された。この結果は、 P_{MMS} を高くすると単位時間あたりのMMS吸着量が増えるため、Wk成長が促進された結果と理解できる。よって、Wkが成長するための条件は $P_{MMS} = 2 \times 10^{-2}$ Pa、 $T_{sub} = 750$ ℃と結論づけた。

表2. P_{MMS} を変化させたときの膜堆積とWk成長。

	MMS圧力 P_{MMS}	
	2×10^{-3} Pa	2×10^{-2} Pa
堆積膜	○	○
Wk成長	×	○

図1に $P_{MMS} = 2 \times 10^{-2}$ Pa、 $T_{sub} = 800$ ℃のときの試料表面SEM画像を示した。図から、膜上にはWkは成長していないことが確認できた。一方、図2は $P_{MMS} = 2 \times 10^{-2}$ Pa、 $T_{sub} = 750$ ℃のときの試料表面SEM画像である。試料表面全体にSiC膜が成膜されているが、部分的に柱状の結晶成長、つまりWkが確認できた。図3にその一部を拡大したSEM像を示す。図から分かるようにWkは垂直に成長するのではなく節をともなって放射線状に成長していることが分かった。

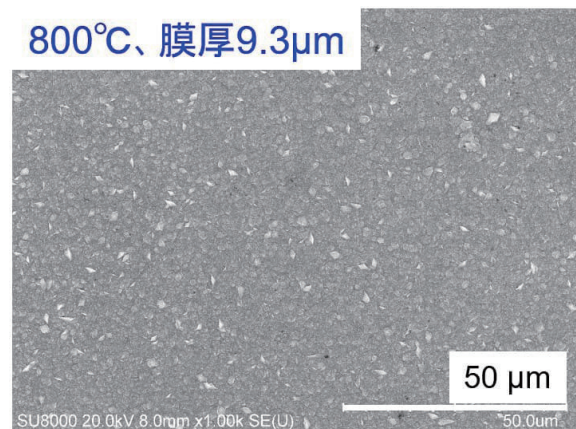


図1. $T_{sub} = 800$ ℃のときの3C-SiC膜SEM図。

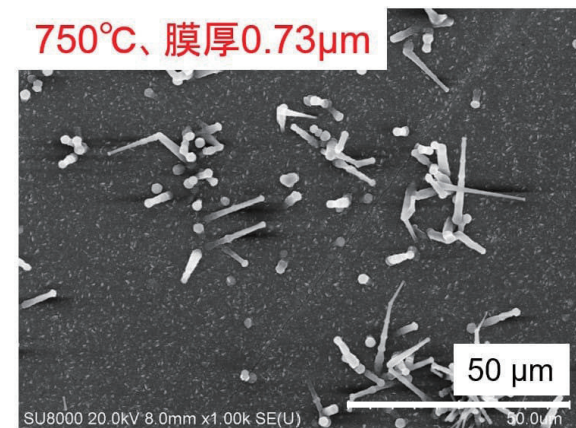


図2. $T_{sub} = 750$ ℃のときの3C-SiC膜SEM図。

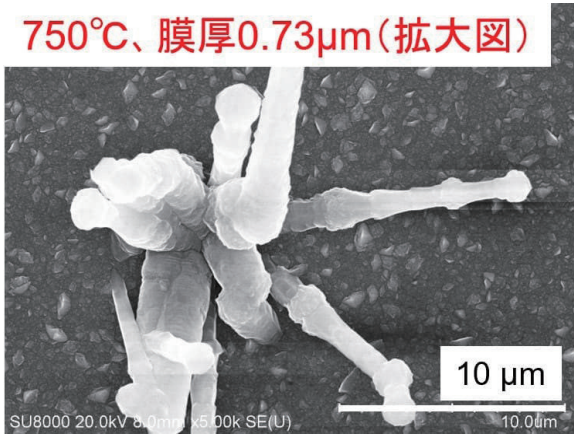


図 3. $T_{\text{sub}} = 750^\circ\text{C}$ のときの 3C-SiC 膜拡大 SEM 図.

図 4 に 3C-SiC/Si 基板と各堆積温度で堆積した 3C-SiC 膜の XRD 測定結果を示す。全ての試料において 3C-SiC の(222)面の回折ピークが明確に観測されたため、堆積したものは 3C-SiC(111)であることが分かった。また、Wk が成長した $T_{\text{sub}} = 750^\circ\text{C}$ 試料の XRD パターンには、3C-SiC(222)のピーク以外の SiC 起因の回折ピークは観測されなかった。このことから、Wk は 3C-SiC(111)が優先的に配向したものと考えられる。ただし今回の XRD 測定では、基板の 3C-SiC 膜と堆積した 3C-SiC の回折ピークが重複している可能性が高いため、より詳細な構造解析を行うためには堆積する基板を変更して Wk 成長を行う必要がある。

2.2 試料と実験条件

図 5 に本研究で用意した二つの試料の概略を示す。一つは Wk 試料で、前述したように堆積温度 T_{sub} が 750°C のもので、基板上に厚さ $0.73\ \mu\text{m}$ の 3C-SiC 膜があり、その上に Wk が成長している。もう一つは Wk が成長しなかった Non-Wk 試料で、堆積温度 T_{sub} が 800°C のものであり、基板上に厚さ $9.3\ \mu\text{m}$ の 3C-SiC 膜が堆積している。

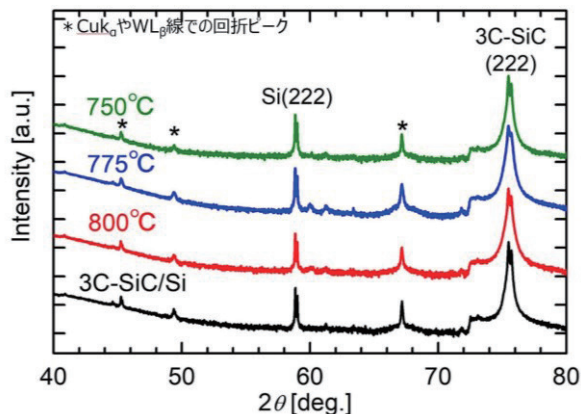


図 4. 基板および各堆積温度の XRD 測定結果.

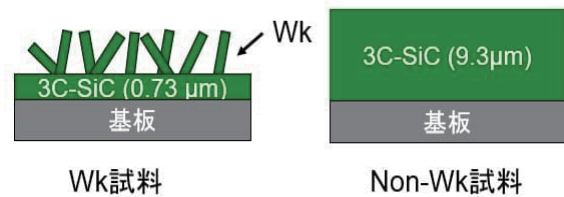


図 5. Wk 試料と Non-Wk 試料構造図.

PL 測定は励起光源として波長 $473\ \text{nm}$ 、励起光強度 $530\ \text{mW}/\text{cm}^2$ の半導体レーザーを使用し、Wk 試料では Wk 側、Non-Wk 試料では 3C-SiC 膜側から照射した。表面からの発光再結合信号は電荷結合素子検出器で検出した。測定は $4\ \text{K}$ から室温の温度範囲で行った。

3. 実験結果および考察

図 6 に Wk 及び Non-Wk 試料の低温における PL スペクトルを示す。両試料ともに広い発光スペクトルが得られた。3C-SiC のバンドギャップは $555\ \text{nm}$ ($2.23\ \text{eV}$)⁸⁾ であり、それよりも長波長側に観測されていることから、両試料に存在する 3C-SiC 膜の不純物あるいは欠陥準位起因の発光であると考えられる。また、Wk 試料には Non-Wk 試料では観測できなかった強度の小さな発光ピークが約 $650\ \text{nm}$ に観測された。図 7 には Wk 試料の PL スペクトルの温度変化を示す。低温 $6\ \text{K}$ で観測された小さな発光ピークは温度上昇によって観測されなくなり、 $100\ \text{K}$ 以上の温度では Non-Wk 試料のスペクトル形状とほぼ同じになった。

この Wk 起因発光と思われる信号をより明確にするために両試料の差分スペクトルを算出した。図 8 にその結果を示す。図より 628 と $654\ \text{nm}$ に発光ピークが確認できた。これらピークは、報告されている 3C-SiC 結晶上に生

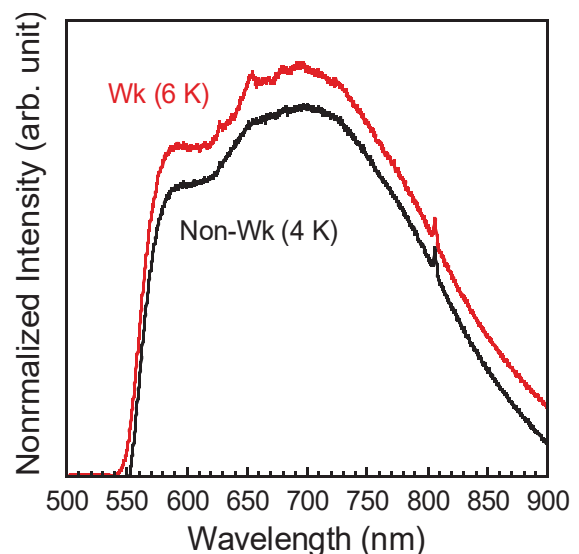


図 6. Wk 試料と Non-Wk 試料の PL 測定結果.

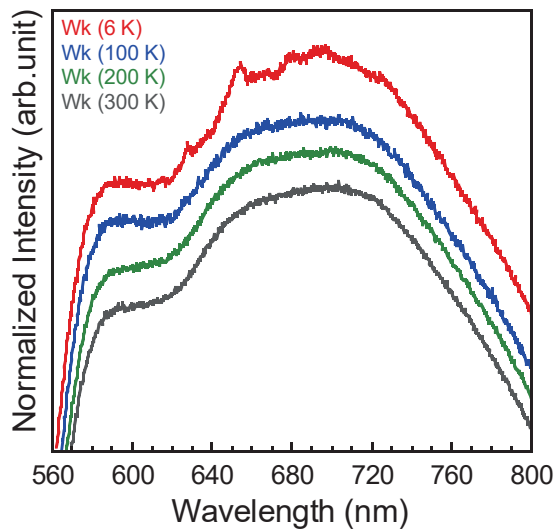


図 7. Wk 試料の PL 測定温度変化.

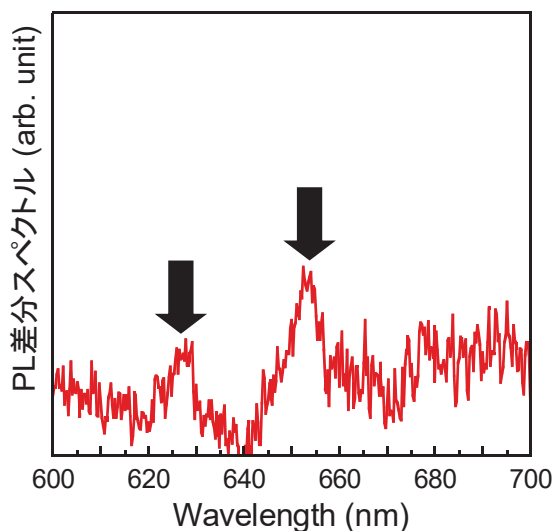


図 8. Wk 試料と Non-Wk 試料の PL 測定差分.

成された欠陥による発光ピーク⁹⁾と類似していた。以上のことから、これらのピークを Wk 起因の発光再結合信号と判断した。

4. 結論

本研究では3C-SiC膜上に成長したSiC-WkのPL測定を行い、WkがSPSとして有用であるかを議論した。試料はMMSガスを3C-SiC/Si基板上に供給して3C-SiC膜を堆積させた。MMSガスの圧力 P_{MMS} と堆積温度 T_{sub} を変化させたところ、 $P_{MMS} = 2 \times 10^{-2}$ Paと $T_{sub} = 750$ °Cのときに3C-SiC膜上にSiC-Wkが成長した。Wkが成長した試料と比較用に用いたWkが成長しなかった試料によるPLスペクトルの差分から、628と654 nmに発光ピークが観測された。報告されているSPSの結果との一致から、この発光ピークをWk起因の発光再結合信号と判断した。したがって、我々はSiC-WkはSPSへの有用性があると結論付けた。今回、得られたWk起因の発光信号の強度は非常に弱かったが、成長条件を最適にさせて高密度なWkを成長させることで、SPSとしての利用が期待できる。

参考文献

- 1) M. Ikezawa, Y. Sakuma, and Y. Masumoto: Single Photon Emission from Individual Nitrogen Pairs in Gap, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46**, L781, 2007.
- 2) 枝松圭一: 単一光子・相関光子発生技術の進展, *応用物理学会文科日本学会*, **37**, 440, 2008
- 3) A. Lohrmann, N. Iwamoto, Z. Bodrog, S. Castelletto, T. Ohshima, T.J Karle, A. Gail, S. Prawer, J.C. McCallum, and B.C. Johnson: Single-photon emitting diode in silicon carbide, *Nature Communications*, **6**, 1, 2015.
- 4) A. Lohrmann, S. Castelletto, J.R. Klein, T. Ohshima, M. Bosi, M. Negri, D.W. M. Lau, B.C. Gibson, S. Prawer, J.C. McCallum, and B.C. Johnson: Activation and control of Visible single defects in 4H-, 6H-, and 3C-SiC by oxidation, *Appl. Phys. Lett.*, **108**, 021107, 2016.
- 5) S. Castelletto, B.C. Johnson, C. Zachreson, D. Beke, I. Balogh, T. Ohshima, I. Aharonovich, and A. Gali: Room Temperature Quantum Emission from Cubic Silicon Carbide Nanoparticles, *ACS Nano*, **8**, 7939, 2014.
- 6) 福谷克之: 真空と表面, *Journal of Vacuum Society of Japan*, **56**, 209, 2013.
- 7) 小倉正平: 昇温脱離法による水素吸放出の測定, *Journal of Vacuum Society of Japan*, **57**, 219, 2014.
- 8) 四戸孝: SiC パワーデバイス, *東芝レビュー*, **59**, 49, 2004.
- 9) 本田智也, 小野田忍, 土方泰斗, 大島武, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会講演予稿集, 15p-C302-7, 2016.