

Sn 添加シリコン酸化膜の発光特性

Photoluminescence from Sn doped SiO film

○秋山陽一¹秋山和也¹滝島正博²遠山大地²高橋芳浩³*Youichi Akiyama¹, Kazuya Akiyama¹, Masahiro Takishima², Daichi Touyama², Yoshihiro Takahashi³

Abstract: We have investigated photoluminescence from Sn, SiO₂ mixture film. The blue light was emitted after annealing at 900°C, and the emission intensity was changed by Sn concentration. It was also found that the emission intensity was increased by putting SiO interlayer under the mixture layer.

1. 序論

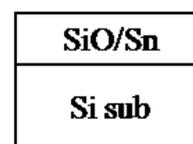
現在のLED(Light Emitting Diode)などの発光素子の材料は、GaAsやGaNなどの化合物半導体が主流である。しかし、これらの化合物半導体はSiに比べて基板の欠陥が多く、大口径化が難しい。また、プロセス設計技術が難しく高価な材料を用いるため、高集積化が困難である。そこで資源が豊富であり、一般的な電子デバイスに用いられるSiを発光素子として利用することができれば、発光素子と電子機能素子を融合した光電子集積回路が実現し、電子デバイスの更なる高機能化、集積化が期待できる。

我々はこれまでに SiO/Sn/SiO₂ 積層構造に、熱処理を施すことにより酸化シリコン膜中に Sn を拡散させることで強い PL(Photoluminescence)発光が観測できることを報告した[1]。しかし、酸化膜に比べ厚い Sn を熱拡散することで、表面に凹凸が発生したり Sn が大きいサイズで凝集することにより、素子面内で発光強度にばらつきが起こる。また、長い熱処理時間を施さないと発光が観測されないという問題があった。そこで本研究では、真空蒸着法のみで作製できる一酸化ケイ素(SiO)とSnの同時蒸着により成膜した混成膜による発光について検討を行った。また発光強度を増大させることを目的として SiO 層を下地層とし SiO-Sn/SiO 混成膜の 2 層構造についても検討を行った。

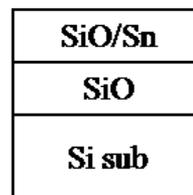
2. 実験方法

基板には n 形 Si(2.5~3.5Ωcm, 面方位<100>)を使用した。RCA 洗浄後、抵抗加熱式真空蒸着法(2 元)により Sn/SiO 混合膜(膜厚:約 40nm)を成膜した。なお、一部試料においては混成膜成膜前に SiO 膜を成膜した。本論では前者を単層、後者を 2 層構造と表わす。成膜後の試料に対し RTP(Rapid Thermal Processing)装置により大気圧 N₂ 雰囲気中にて熱処理温度到達時間を 40 sec とする熱処理を行った。なお、過去の研究結果においてシリコン酸化膜中の Sn による不純物準位に起因する発光が観測される熱処理条件として、熱処理温度は 900°Cとした。

熱処理後の試料に対しては PL 法による発光スペクトル測定を行った。PL の励起光源には波長 325nm の He-Cd レーザを用い、カットオン波長 350nm とする光学フィルタを用い励起光をカットし、CCD を検出器とする分光器により発光波長分析を行った。なお、熱処理前の試料に対して XPS による組成分析を行い、Sn 濃度の評価を行った。



(a) Single layer structure



(b) 2layer structure

Figure 1. Sample structures

3. 実験結果

図 2 に Sn 濃度 20% の単層構造 (膜厚約 40nm) の試料における PL 特性の熱処理時間依存性について示す. 熱処理時間 5min において波長 400nm の強いピークが観測された. この発光ピークはシリコン酸化膜中での Sn による不純物準位によるものと考えられている. これまでの研究において SiO/Sn/SiO₂ 積層構造による 400nm の発光のためには 30min 程度の熱処理が必要であることがわかっている. 一方, 混成膜では成膜の時点でシリコン酸化膜に Sn が添加された状態であるため, 短時間熱処理により発光起源が生成されたと考えられる.

次に混成膜の Sn 濃度が PL 特性に及ぼす影響について評価した. なお熱処理時間は 5min とした. Sn 濃度が低い試料 (15%・20%) では波長 400nm, 高い試料 (40%) では 600nm をピークとする発光が観測された. 波長 600nm の発光は SnO_x 中の欠陥に起因するものと考えられており, Sn 濃度が高い場合には多くの Sn は酸素と結合し SnO_x が形成されたことにより, 波長 600nm の発光起源が増大したと考えられる.

そこで下地膜として SiO 層を成膜し, Sn を拡散させることで波長 400nm の発光起源を増大させることを考えた. 膜厚 30nm の SiO 膜上に膜厚 40nm, Sn 濃度 15% および 40% の混成膜を成膜した試料 (2 層膜) の PL 特性を評価した. 図 4 に単層膜, 2 層膜の測定結果を併せて示す. Sn 濃度が 15% の試料では波長 400nm の発光強度が増大し, 一方, 40% の試料においてピーク波長は 600nm から 400nm に変化した. 多くの Sn は SnO_x にはならず, 熱処理により SiO 層に拡散し酸化膜の結合中に取り込まれ不純物として作用するため, 波長 400nm の発光強度が増大したと考えられる.

図 5 に, 2 層膜の発光強度に対する SiO 層の膜厚依存性を示す. 発光波長, 強度共に SiO 膜厚による大きな変化は確認できなかった. これは短時間での熱処理のため, SiO 層への Sn の拡散に差がなかったことが原因と考えられる.

4. まとめ

Sn/SiO 混合膜の発光特性について評価した. SiO/Sn/SiO 積層膜に比べ短時間の熱処理で PL 発光が観測され, Sn 濃度によって発光波長が変化することがわかった. また SiO-混成膜の 2 層構造にすることで, 波長 600nm の発光が弱まり波長 400nm のピークが強くなるようになった.

今後は発光強度のプロセス依存性について更に評価を続ける. また, この膜構造を用いた EL 素子の作製を行う予定である.

5.参考文献

- [1] 五十嵐健太郎:平成 20 年度日本大学院理工学研究科修士論文

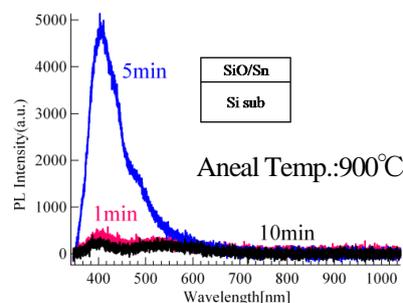


Figure 3. Annealing time dependence on PL spectra from Single layer structure

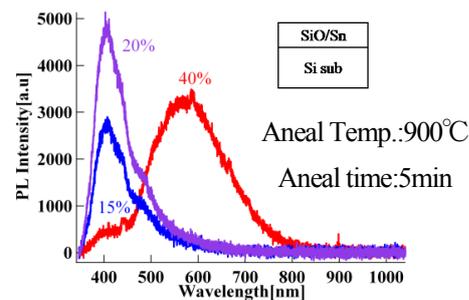


Figure 3. Sn concentration dependence on PL spectra from Single layer structure

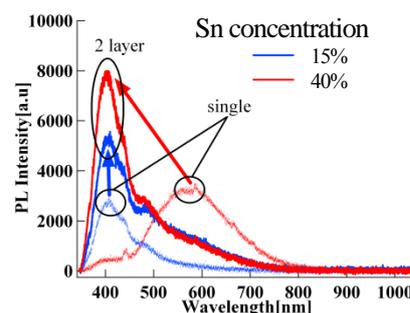


Figure 4. Structure dependence of on PL spectra (SiO Thickness:30nm)

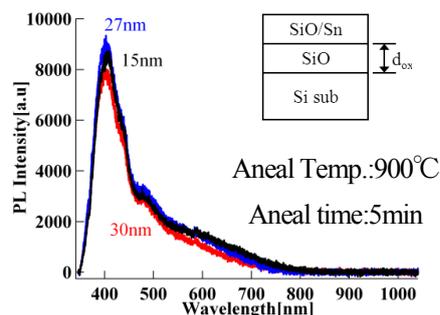


Figure 5. Thickness dependence on PL spectra from 2layer structure