新しい光機能材料 GeC/Si 混晶のエピタキシャル成長技術と その光学的特性の研究

18360010

平成18年度~平成19年度科学研究費補助金 (基盤研究(B))研究成果報告書

平成20年3月31日

研究代表者 布 下 正 宏 奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科教授

<はしがき>

情報化社会はますます高度化し、情報量は爆発的に増大している。その将来の基盤としてユビキタスネットワークや量子情報処理技術の先導的技術革新が強く望まれている。そのためのキーデバイスはマイクロ波とフォトニクスの融合、すなわち Si LSI と光機能デバイス(シリコンフォトニクス)の集積化が有望視されており、この新しい光機能デバイスでは、量子効果による量子閉じ込めやqubit のような新機能の発現が不可欠であり、10nm 以下の Si 系半導体のナノクリスタル形成とその精密配列技術という新しいナノテクノロジーの研究開発が国内外で精力的に進められている。

本研究では、平成 18 年度~平成 19 年度の 2 年間に亘り、奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科のグループがシリコンフォトニクスに必須のシリコンベースの光機能デバイスを目指して、新しいバイオナノプロセスの開発とともに光機能材料 GeC、 β - $FeSi_2$ 、Si のナノクリスタルの二次元超格子の形成技術とその発光特性評価の研究を行ってきた。ここに本研究の成果と得られた知見をまとめて総括をするとともに、今後の研究課題等について記す。

研究組織

研究代表者:布下正宏(奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 教授、

現 先端科学技術研究調査センター 特任教授)

研究分担者:太田 淳(奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 教授)

研究分担者: 徳田 崇(奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 助教、現 准教授)

研究協力者:中間勇二(奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 博士後期課程 学生、

現 島津製作所)

交付決定額(配分額)

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 18 年度	7,900,000	0	7,900,000
平成 19 年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
総計	15,300,000	2,220,000	17,520,000

研究発表

(1) 雑誌論文等

① Y. Nakama, S.Nagamachi, J.Ohta and M.Nunoshita, "Position-controlled Si nanocrystals in a SiO₂ thin film using a novel amorphous Si ultra-thin-film

- "nanomask" due to a bio- nanoprocess for low-energy ion implantation", Appl. Phys. Express 1, 2008, pp.034001-3.
- ② Y.Nakama, J.Ohta and M.Nunoshita, "High-density and very small-size Ge_{1-x}C_x nanocrystal assemblies on a Si(100) substrate fabricated using bio-nanoprocess with proteins "ferritin" and solid source molecular beam epitaxy", Jpn. J. Appl. Phys., 47(4), 2008, pp.3028-3031.
- ③ Y. Nakama, K. Minakawa, J. Ohta, and M. Nunoshita, "Very small-size and high-density β-FeSi₂ nanocrystal assemblies grown on a Si(100) substrate using an embedded solid-phase epitaxy and bionanoprocess with protein ferritin", Appl. Phys. Lett. 91, 203102 (2007).
- ④ Y. Nakama, J. Ohta, and M. Nunoshita, "Precise size control of Si nanocrystals in a SiO₂ thin film using low-energy ion implantation and novel two-step annealing with RTA and a Nd:YAG pulse laser", submitted to Jpn. J. Appl. Phys.

(2) 学会発表

- ① Y. Nakama, J. Ohta, and M. Nunoshita, "MBE-grown Ge_{1-x}C_x nanocrystals by using a novel bio-nanoprocess due to protein 'ferritin'", 2007 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2007), Tukuba, Japan, F-6-1, (2007).
- ② Y. Nakama, K. Minakawa, J. Ohta, and M. Nunoshita, "Fabrication of the two-dimensional superlattice structure made of Ge_{1-x}C_x nanocrystals" 6th GIST/NAIST Joint Symposium on Advanced Materials, Nara, Japan, 2006/11, Announcement schedule
- ③ 中間勇二,皆川亨介,太田淳,布下正宏,「バイオナノプロセスを用いた GeC ナノクリスタルの作製」,第 54 回応用物理学関係連合講演会,29p-SB-5(青山学院大学,2007 年 3 月)
- ④ 皆川亨介, 中間勇二, 太田淳, 布下正宏, 「バイオナノプロセスと埋め込み SPE 法を用いた 高密度 β -FeSi₂ナノ結晶の形成」, 第 54 回応用物理学関係連合講演会, 29p-SB-6(青山学 院大学, 2007 年 3 月)
- ⑤ 中間勇二,皆川亨介,太田淳,布下正宏,「フェリチンタンパク質を用いたナノマスクの作製」,第67回応用物理学会学術講演会,31p-RB-7(立命館大学,2006年8月)

(3) 図書/出版物

① 仲間勇二,「バイオナノプロセスを用いたIV族系半導体ナノクリスタルの作製と精密制御の研究」,学位論文,2008年3月.

研究成果による産業財産権の出願・取得状況

なし

研究成果

Si 系発光デバイス等を目指して、新しいバイオナノプロセスとトップダウン式の MBE 法、SPE 法、イオン注入法等を融合させ、Si 基板上に GeC、6-FeSi₂、Si それぞれのナノクリスタル(NC) の 2 次元精密配列(超格子)の形成技術を開発した。得られた新しい知見は次の通りである。

- (1) Si(100)基板上に作製した 2nm 厚極薄膜 Si ナノマスクの微小孔を介し、真空アークプラズマガンの C 分子線源に用いて分子線エピタキシー(MBE)選択成長により直径 7±2nm、ピッチ 12nm にほぼ 2 次元配列した GeC-NC の形成に初めて成功し、その PL スペクトルを観測した。NC 化により Ge_{1-x}C_x の格子点 C 組成 x=3.2%を達成したが、目標の x \geq 4%とバンドボーイングの 克服による直接遷移型バンド構造は実現できなかった。[Jpn.J.Appl.Phys.47(4)2008]
- (2)上記の Si ナノマスクを介して SiO₂ 薄膜中に 0.6keV で Si イオンを超低加速注入(ドーズ量 1× 10¹⁶cm⁻²)し、Nd:YAG パルスレーザアニールを用いて直径 3.0±0.3nm, 間隔 6nm の Si-NC の 2 次元超格子構造の形成に初めて成功し、波長 600nm に強い PL ピークを検出した。 [Appl.Phys.Express,1,2008]
- (3)バイオナノプロセスによって Si(100)基板上に 2 次元配列した Fe 内包フェリチンのたんぱく質 を O_3 プラズマで除去し、PECVD チャンバ内において NH_3 プラズマで還元した Fe ナノドット カラムを同一チャンバ内で a-Si 薄膜を堆積・埋め込み、高真空中、800 $^{\circ}$ $^{\circ}$ 、1 時間の固相エピタ キシー法によって直径 6.0 ± 0.4 nm、12nm ピッチの均一な 8-FeSi $_2$ NC の 2 次元配列の形成とその PL スペクトルの観測に成功した。 [Appl.Phys.Lett.,91,2007]

しかし、当初の計画であった \mathbf{Si} 系材料(\mathbf{GeC} , β - \mathbf{FeSi} 2)のナノクリスタルと二次元超格子の形成には成功したが、バイオナノプロセスとキャップ層の開発に手間取り $\mathbf{2}$ 年間ではこれらの発光デバイスの開発および $\mathbf{GeC/Si}$ 混晶のバンドボーイングの解明と克服には到らなかった。

上記の研究成果の詳細は、以下のように発表論文、学会発表プロシーディングおよび研究協力者 仲間勇二君の博士論文を以って報告とする。