

機関番号：82110

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656025

研究課題名(和文)炭化ケイ素中のシリコン空孔欠陥を用いた単一フォトン操作

研究課題名(英文)Controlling of Single Photon Source in Silicon Carbide

研究代表者

大島 武(OHSHIMA, Takeshi)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究主幹

研究者番号：50354949

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：炭化ケイ素(SiC)中の単一光源となる欠陥中心の探索のため、半絶縁性SiC基板に室温で2 MeVの電子線を照射し、その後、アルゴン雰囲気中で300～500 Cの熱処理を行うことで、従来報告されているシリコン空孔(V_{Si})からの発光に加えて、波長670-700nm領域に非常に強い発光が観測されることを明らかにした。低温でのフォトルミネッセンス測定より、この発光の起源が正に帯電したシリコン格子位置の炭素と炭素空孔の複合欠陥(C_{SiVc})であること、共焦点顕微鏡を用いたアンチバンチング測定から、C_{SiVc}が単一光源であることを見出した。

研究成果の概要(英文)：In order to find new defects which act as single photon sources in Silicon Carbide (SiC), semi-insulating SiC wafers were irradiated with 2 MeV electrons and subsequently annealed in Argon at temperature ranges between 300 and 500 C. As a results, in addition to luminescence from Si vacancies (V_{Si}) which have been reported as single photon source in SiC, the very strong luminescence at wavelength regions between 670 and 700 nm were observed even at room temperature. By the photo luminescence measurements at low temperature, it was concluded that the origin of those luminescence is positively charged carbon antisite and carbon vacancy pair (C_{SiVc}). Also, it was revealed from antibunching measurements using a confocal microscope that C_{SiVc} act as single photon source in SiC.

研究分野：半導体工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：炭化ケイ素 欠陥エンジニアリング スピン 新機能材料 量子コンピューティング

1. 研究開始当初の背景

固体中の単一発光中心の有するスピンや発光を制御することで、従来の半導体デバイスの演算能力を遥かに凌ぐ量子コンピューティング、高輝度且つナノレベルのサイズ制御でのフォトニクスや、超高感度の磁気センサーを実現しようという試みが行われている。特に、ダイヤモンド中の負に帯電した窒素-空孔 (NV⁻) は室温においても発光し、且つ、十分に長いスピンコヒーレンス時間が期待できることから世界的に精力的に研究が行われている。しかし、ダイヤモンドは大口径・高品質な基板の成長が困難、さらに、NV⁻の生成収率の向上といった課題があるため、研究レベルでは非常に優れた成果が得られているものの実用化にはブレークスルーが必要とされる。一方、炭化ケイ素 (SiC) は、超低損失パワーデバイスへの応用が期待され、基板も 15cm 直径と大口径化が図られ、市販のダイオードやトランジスタも入手可能となるなど、デバイス作製プロセス技術も着実に進歩している。SiC はダイヤモンドと同様にワイドバンドギャップ半導体であり、単一発光中心となる欠陥を形成できることが期待できるが、この観点からの研究は必ずしも十分でなく、これまでにシリコン空孔 (V_{Si}) や V_{Si} と炭素空孔 (V_C) のペア (V_{Si}V_C) が単一発光源となるのではといった報告がある程度である。

2. 研究の目的

本研究では SiC がダイヤモンドと同じワイドバンドギャップ半導体であること、また、デバイス化技術が進んでいることから、単一発光中心を埋め込んだデバイス作製といった将来的な応用展開に有利であると考え、SiC を母材とした量子コンピューティングやフォトニクスに応用可能な単一発光源として働く欠陥の探索を行った。

3. 研究の方法

試料には市販の高品質半絶縁性 (HPSI) の六方晶 (4H) SiC 基板を用いた。HPSI 4H-SiC 基板に 2MeV 電子線を $1 \times 10^{13} \sim 10^{17} / \text{cm}^2$ の線量範囲で室温にて照射した。電子線照射中、試料は水冷板に固定することで温度の上昇を防いだ。照射後、300 ~ 1100 °C の温度範囲でアルゴン (Ar) 中、30 分間の熱処理を行った。

波長 532nm または 660nm の励起光を用いた、室温及び低温 (80K) でのフォトルミネッセンス (PL) 測定及び共焦点顕微鏡 (CFM) を用いた室温でのアンチバンチング測定を行うことで形成された欠陥を評価した。

4. 研究成果

図 1 に 2MeV 電子線を $1 \times 10^{13} / \text{cm}^2$ 照射後に 300°C で熱処理した HPSI 4H-SiC の CFM 観察結果を示す。その結果、 $4.7 \times 10^6 / \text{cm}^2$ の発光スポットが発生していることが明らかとなった。発光スポットの室温における PL スペク

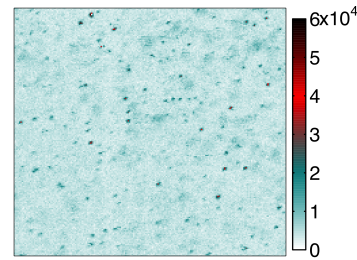


図 1 電子線 (2MeV, $1 \times 10^{13} / \text{cm}^2$) 照射後に 300°C で熱処理した HPSI 4H-SiC の CFM 像。(励起レーザー: 660nm)

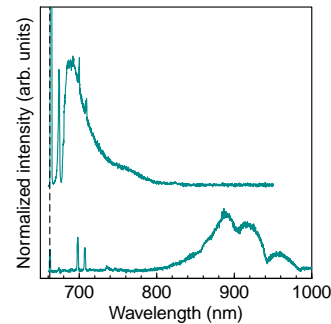


図 2 発光スポットの室温 PL スペクトル (励起レーザー: 660nm)

トルを測定したところ、発光スポットは二つに分けられ、一つは 600 ~ 700nm 付近にピーク (図 2 上) を、もう一つは 850 ~ 950nm 付近にピークをもつ発光であることが判明した (図 2 下)。後者の発光スポットの起源はこれまでの研究より負に帯電した V_{Si} であることが知られているが、前者は良く知られていない。そこで、発光の起源を同定するために 80K での PL 測定を行った。結果を図 3 に示す。850 ~ 950nm に V ラインと呼ばれる鋭い PL ピークが観察されるが、Sörman ら (Phys. Rev. B **61** (2000) p2613) により V_{Si}⁻ に起因する発光と報告されている。一方、850 ~ 950nm にも鋭い PL ピークが観察されるが、これらのピークは AB ライン (A1=648.7nm、A2=651.8nm、A3=665.1nm、A4=668.5nm、B1=671.7nm、B2=673.0nm、B3=675.2nm 及び B4=676.5nm)。但し、A3 及び A4 については

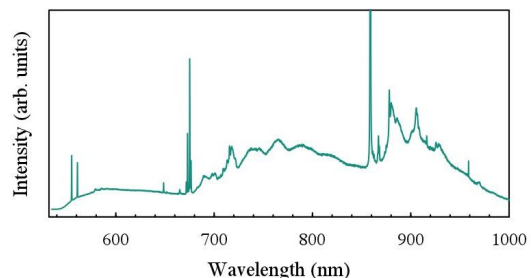


図 3 電子線 (2MeV, $1 \times 10^{17} / \text{cm}^2$) 照射後に 300°C で熱処理した HPSI 4H-SiC の低温 (80K) PL スペクトル。(励起レーザー: 660nm)

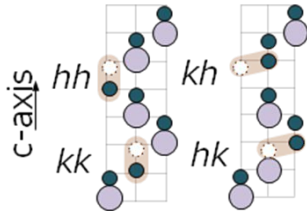


図 4 $C_{Si}V_C$ の模式図。結晶の対称性から $C_{Si}V_C$ は 4H-SiC 中では 4 つの構造をとる。

Steeds らからは報告が無く本研究で観測)と呼ばれ、Steeds ら (Phys Rev B **80** (2009) p.245202) により中性の炭素アンチサイト-炭素空孔ペア ($C_{Si}V_C^0$) であると報告されている (図 4 に模式図を示す)。しかし、本研究で ab-initio 計算を用いて $C_{Si}V_C$ の荷電状態と発光の関係性を調べたところ、中性の $C_{Si}V_C$ ではこの波長領域での発光は観測されず、正に帯電した $C_{Si}V_C$ ($C_{Si}V_C^+$) が妥当なモデルであるとの結論を得た。

次に、今回見出した $C_{Si}V_C^+$ が単一発光源として働くかを調べた。単一発光源の場合は、一つの光子の入射に対し、一つの光子を放出する。つまり、図 5 に示すような、二台の検出器 (APD1 及び APD2) を用い、そ

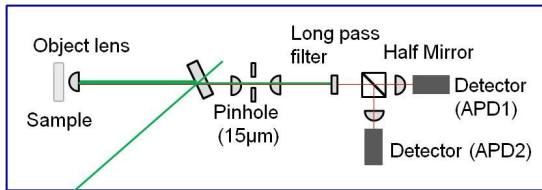


図 5 アンチバンチング測定のための共焦点顕微鏡測定系の模式図。

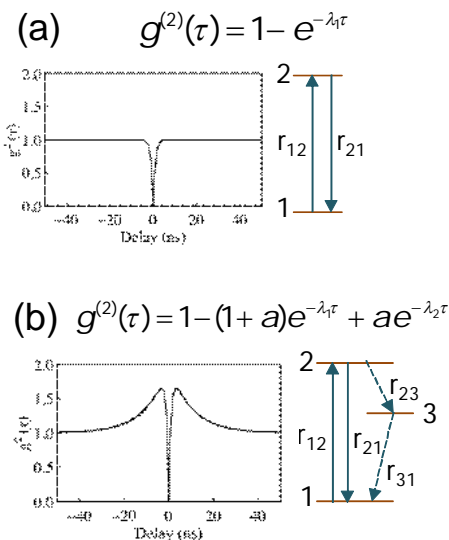


図 6 (a) 単一発光源の発光過程が単純な二準位の場合、(b) 非発光過程がある三準位の場合の模式図

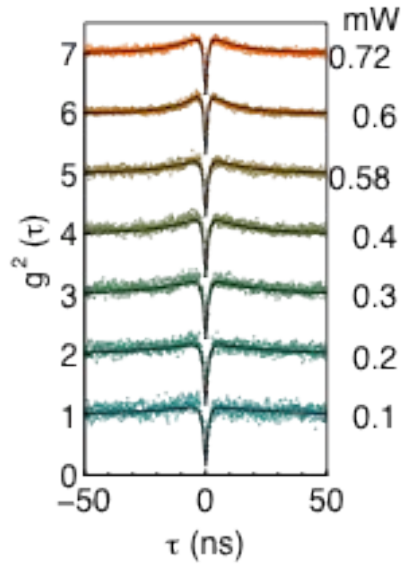


図 7 アンチバンチング測定結果。励起レーザーの波長は 532nm で、レーザー強度を 0.1~0.72mW として測定した。それぞれの強度での測定結果を見やすくするため縦軸の原点はずらしてプロットしている。

れぞれの検出器が発光を観察する時間を測定し、その検出時間差 (t) を評価することで単一発光源であることを明らかにできる (オートコリレーション関数 $g^{(2)}$ が $t=0$ で 0.5 以下であると単一発光源であるといえる)。また、Kitson ら (Phys. Rev. A **58** (1998) p.620) により、単一発光源の励起・発光過程が単純な二準位の場合は、図 6 (a) に示すように $g^{(2)}$ は t に依存せず一定で $t=0$ でアンチバンチングを示すが、非発光準位を有する励起・発光過程の場合、 $g^{(2)}$ は図 6 (b) に示すように $t=0$ でのアンチバンチング前後に若干の隆起を示す。図 7 にアンチバンチング測定結果を示す。測定温度は室温であり、532nm の波長の励起レーザーを用い、強度を 0.1~0.72mW の範囲で測定した。図より、いずれのレーザー強度の場合でも $t=0$ で $g^{(2)}$ が 0 近くまで急激に減少するアンチバンチングが発生していることが分かる。このことから、今回見出した SiC 中の $C_{Si}V_C^+$ が室温においても発光を有する単一発光源であると結論できる。更に、 $t=0$ でアンチバンチングを示す前後で $g^{(2)}$ が若干隆起することも見てとれ、発光過程は単純な二準位ではなく非発光過程を有する準位も存在することも判明した。今回の研究では、この非発光過程の詳細は明らかにすることはできなかった。今後の課題である。

$C_{Si}V_C^+$ が室温においても発光を示す単一発光源であることを突き止めたが、この欠陥中心をデバイスへ埋め込むといった将来展開を考えると、その熱安定性を知ることは、効率的な形成技術の観点、デバイス作製プロセ

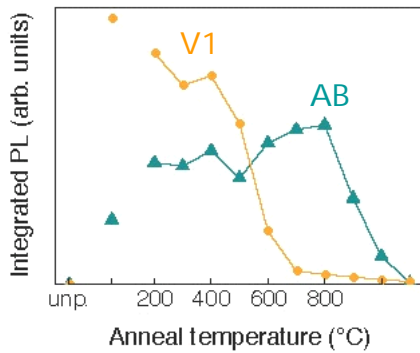


図8 電子線照射 (2MeV, $1 \times 10^{17}/\text{cm}^2$) を行った HPSI 4H-SiC の AB ライン ($\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$) の熱処理温度依存性。比較のため V1 ライン (V_{Si}^-) の結果も併せて示した。

スにどのように組み込むかの観点から重要となる。そこで熱処理温度と $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ の生成・消滅の関係を調べた。図8に電子線照射 (2MeV, $1 \times 10^{17}/\text{cm}^2$) 後の熱処理温度 (Ar 中、30 分間) と $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ に起因する PL ピークである AB ライン積分量の関係を示す。また、比較のため V_{Si}^- に起因する V1 ラインの積分量も併せて示した。図より $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ は熱処理温度の上昇とともに徐々に増加し、800°C の熱処理で最大値となり、それ以上の温度では減少し、1100°C の熱処理後は観測されなくなることが分かる。一方、 V_{Si}^- は 100°C の熱処理により最大量生成され、その後、熱処理温度の増加とともに減少し、800°C 熱処理後は少量となり、1000°C 熱処理後には観測されなくなることが見てとれる。このことから、 $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ は V_{Si}^- に比べ高温で安定であり、800°C 以上での熱処理によって選択的に $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ を形成できることが示唆される。また、定性的ではあるが、図8の結果は、電子線照射で結晶の格子位置から Si 原子がはじき出されることで V_{Si}^- が形成されるため、 V_{Si}^- は低い熱処理温度で多量に形成されるが、熱処理温度の増加とともに、電子線照射で格子位置からはじき出され格子間に存在する C 原子が本来 Si 原子が存在すべき格子位置に入り込む。その結果、 V_{Si}^- が減少し、逆に $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ が増加するが、ちょうどその C_{Si} の隣に V_{C}^- が存在すれば $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ となるため、 $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ は熱処理温度とともに徐々に増加する。800°C 以上では $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ も熱的に安定ではなく消滅していくというメカニズムを示唆するものであるといえる。

発光強度の励起レーザー入射角度依存性についても研究を進めた。図9に電子線照射 (2MeV, $1 \times 10^{17}/\text{cm}^2$) 後に 300°C で熱処理 (Ar 中、30 分間) した HPSI 4H-SiC の AB ラインの励起レーザー入射角度と発光強度の関係を示した。図より A2、A4 及び B1 ラインは角度 0°、つまり、励起レーザーが結晶の c 軸に平行の時に発光強度が大きくなっているこ

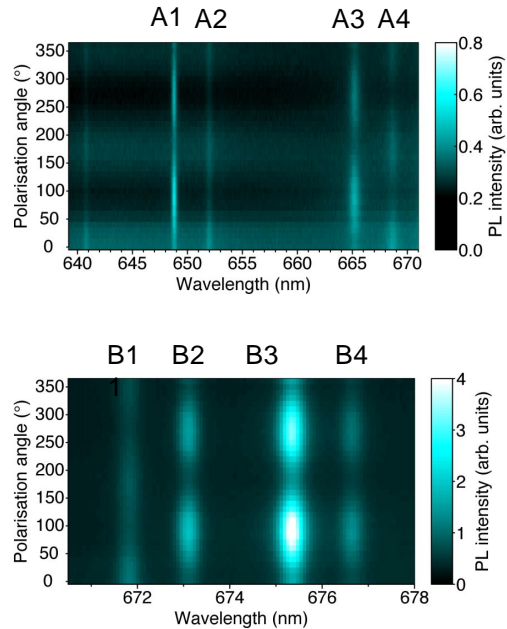


図9 電子線照射 (2MeV, $1 \times 10^{17}/\text{cm}^2$) 後に 300°C で熱処理 (Ar 中、30 分間) した HPSI 4H-SiC の AB ラインの励起レーザー入射角度と発光強度の関係。A ライン (A1 ~ A4) 及び B ライン (B1 ~ B4) の結果を、それぞれ、上段及び下段に示した。PL 測定は 80K で行った。励起レーザーが SiC 結晶 c 軸に平行な状態を角度 0° としている。

とが分かる。一方、それ以外の A1、A3、B2、B3 及び B4 ラインについては、逆に 0° では発光強度は弱く、c 軸と垂直となる 90° で最大となっていることが分かる。このことは $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ は結晶内での対称性 (hh や kk , hk や kh 。対象性は図4を参照) により励起過程が影響 (選択的) を受けることを意味するが、本研究での *ab initio* 計算では、A2、A4、B2 及び B4 ラインが、それぞれ、 hh , hk , kk 及び kh サイトの $\text{C}_{\text{Si}}\text{V}_{\text{C}}^+$ という結果を得ている。今後、詳細な検討を行いたい。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

S. Castelletto¹, B. C. Johnson, V. Ivady, N. Stavrias, T. Umeda, A. Gali and T. Ohshima, A Silicon Carbide Room-Temperature Single-Photon Source, Nature Materials 13 (2014) pp.151-156, DOI: 10.1038/NMAT3806. (査読有)

B. C. Johnson, S. Castelletto, T. Ohshima and T. Umeda, Fabrication of Single Photon Centres in Silicon Carbide, IEEE Conf. publication, Proceedings of 2012 Conference on

Optoelectronic and Microelectronic
Materials and Devices (COMMAD 2012) 1
(2012) pp.217-218, DOI:
10.1109/COMMAD.2012.6472328. (査読有)

[学会発表](計2件)

B.C. Johnson, N. Iwamoto, S. Castelletto,
S. Onoda, T. Ohshima, T. Karle and J. C.
McCallum, Optically Active Defect
Centres in Silicon Carbide Devices,
2014 Internat. Conf. on Nanoscience and
Nanotechnology, 2014年2月2日~6日,
Adelaide Convention Centre (Adelaide,
Australia).

B. C. Johnson, S. Castelletto, T.
Ohshima and T. Umeda, Fabrication of
Single Photon Centres in Silicon
Carbide, 2012 Conference on
Optoelectronic and Microelectronic
Materials and Devices, 2012年12月12
日~14日, Univ. of Melbourne
(Melbourne, Australia).

[その他]

ホームページ等

[http://www.taka.jaea.go.jp/eimr_div/Rad
Effects/index_j.html](http://www.taka.jaea.go.jp/eimr_div/RadEffects/index_j.html)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大島 武 (OHSHIMA, Takeshi)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原
子力科学研究部門・量子ビーム応用研究セ
ンター・研究主幹
研究者番号: 50354949

(2) 研究分担者

梅田 享英 (UMEDA, Takehide)
筑波大学・数理物質科学研究科(系)・准
教授
研究者番号: 10361354