

## SiC(0001)表面に形成した SiON エピタキシャル超薄膜の軟 X 線吸収分光と軟 X 線発光分光の測定

### Soft x-ray absorption and emission spectroscopy measurement of a SiON ultrathin film epitaxially grown on a SiC(0001) surface

柄原浩<sup>a</sup>, 白澤徹郎<sup>b</sup>, 林賢二郎<sup>a</sup>, 森健太郎<sup>a</sup>, 高山透<sup>b</sup>, 室隆桂之<sup>c</sup>, 為則雄祐<sup>c</sup>,  
原田慈久<sup>d</sup>, 徳島高<sup>d</sup>, 堀川裕加<sup>d,e</sup>, 高橋敏男<sup>b</sup>, 辛埴<sup>b,d</sup>, 木下豊彦<sup>c</sup>  
Hiroshi Tochiwara<sup>a</sup>, Teturoh Shirasawa<sup>b</sup>, Kenjiro Hayashi<sup>a</sup>, Kentaro Mori<sup>a</sup>, Tohru Takayama<sup>b</sup>,  
Takayuki Muro<sup>c</sup>, Yusuke Tamenori<sup>c</sup>, Yoshihisa Harada<sup>d</sup>, Takashi Tokushima<sup>d</sup>, Yuka Horikawa<sup>d,e</sup>,  
Toshio Takahashi<sup>b</sup>, Shik Shin<sup>b,d</sup>, Toyohiko Kinoshita<sup>c</sup>

<sup>a</sup>九大総理工、<sup>b</sup>東大物性研、<sup>c</sup>高輝度光科学研究センター、<sup>d</sup>理研播磨、<sup>e</sup>広大院理、  
<sup>a</sup>Dept. Mol & Mat. Sci., Kyushu University, <sup>b</sup>ISSP, Univ. Tokyo, <sup>c</sup>JASRI/Spring-8, <sup>d</sup>RIKEN/Spring-8  
<sup>e</sup>Dept. Phys. Sci., Hiroshima Univ.

最近我々が作製し構造決定した 6H-SiC(0001)上のシリコン酸窒化ナノ超薄膜 SiON を試料として、軟 X 線吸収分光(SXAS)、軟 X 線発光分光(SXES)及び内殻光電子分光(CLPES)の測定を行なった。N1s, O1s の SXAS, SXES 及び C1s, N1s, O1s, Si2p の CLPES の各スペクトルを得た。これらの結果は、決定した構造と良く一致していた。

Very recently, we have processed a silicon oxynitride (SiON) nano-layer epitaxially grown on a 6H-SiC(0001) surface and determined its structure. The specimen was investigated by means of soft x-ray absorption spectroscopy (SXAS), soft x-ray emission spectroscopy (SXES) and core-level photoemission spectroscopy (CLPES). The results are in good agreement with the determined structure of the SiON.

キーワード： ナノ超薄膜、シリコン酸窒化膜、シリコンカーバイド、バンドギャップ構造

背景と研究目的： シリコンカーバイド (SiC) は $\sim 3$  eV のバンドギャップ、高絶縁破壊電界強度、高熱伝導度などの特性から、Si に替わる次世代パワーデバイスの基本物質として期待されている。しかしながら、従来法で形成された SiO<sub>2</sub> 膜と SiC との界面における欠陥密度は高い。このため、チャンネル移動度は SiO<sub>2</sub>/Si に比べ 1 $\sim$ 2 桁小さく、SiC を用いた MOS デバイスの実用化を阻む大きな要因となっている。これに対し、最近我々のグループは、SiC(0001)上に秩序配列構造を持つシリコン酸窒化膜 (SiON 膜) がエピタキシャル成長することを見出している(参考文献)。構造解析の結果、SiON/SiC(0001)界面にダングリングボンドはなく、さらにバルク終端した SiC(0001)面の上に、原子レベルで急峻な界面を持って成長しており、まさに理想的な絶縁膜/SiC 界面を形成していることが明らかになっている (Fig. 1)。これらの優れた特徴から、この SiON 超薄膜は SiC デバイス発展の

ためのマイルストーンとなることが期待される。また、SiON 超薄膜の膜厚は $\sim 0.6$  nm であり、様々なナノスケールデバイス作製の恰好の舞台となることも期待される。こうした背景から、この SiON ナノ超薄膜のもつバンドギャップ構造を明らかにすることは大変重要である。

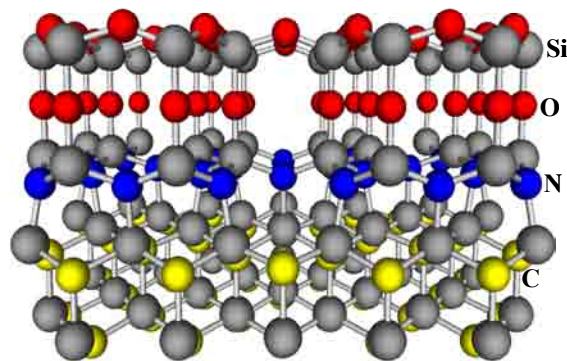


Fig. 1. Structure model of the SiON/SiC(0001)

Fig. 1に見られるように、SiON ナノ超薄膜は窒化シリコン単原子層と酸化シリコン単原子層の積層構造を有している。軟 X 線吸収・発光分光は伝導帯・価電子帯の電子構造を元素選択的に調べることが可能である。このため本研究では、SiON 超薄膜のヘテロ単原子 2 重層構造がどのようなバンドギャップ構造を有するかを、軟 X 線吸収・発光分光法により明らかにすることを目的とした。

**実験：** 実験は BL27SU 軟 X 線光化学実験ステーションにおいて行った。吸収スペクトルは N 1s, O 1s の吸収端について、全電子収量法によって測定した。発光スペクトルは試料からの発光を回折格子で分光し、CCD で検出することで得た。また、試料の内殻準位の結合エネルギーの決定と化学結合状態を調べるために、C 1s, N 1s, O 1s, Si 2p の内殻光電子分光を行った。

**結果、および、考察：** 内殻光電子分光の結果、N 1s, O 1s スペクトルにはそれぞれ 1 つの成分のみが観察された。Fig. 1 に見られるように、SiON 膜に含まれる N 原子は全て N-Si<sub>3</sub> 配位であるため、N 1s スペクトルの結果はこの構造モデルと一致する。また、構造モデルには 2 種類の環境の異なる O 原子が含まれているが、2 種類とも O-Si<sub>2</sub> 配位であるため、O 1s スペクトルには 1 つの成分しか観測されなかったと考えられる。一方、Si 2p スペクトルには、光電子の検出角依存性を調べることによって、4 つの成分が含まれていることが明らかになった。構造モデルには 4 種類の Si 原子が含まれているため、この結果と一致している。また、C 1s スペクトルには 2 つの成分が観察された。光電子の検出角依存性を調べることによって、高結合エネルギー側の成分は、界面近傍の C 原子に由来していることが分かった。

N 1s 吸収分光スペクトルには、主に 1 つのメインピークから成る構造が見られた。スペクトルの 1 次微分をとり、その変曲点の位置を吸収端とした。O 1s スペクトルには 2 つの主ピークが見られ、1 次微分をとると、2 つの変曲点が見られた。現段階では、これら 2 つ

の吸収端は、SiON 膜に含まれる 2 種類の O 原子によるものであると考えている。

発光分光は様々な励起光エネルギーにおいて測定した。その結果、ほぼ同様のスペクトルが得られ、共鳴ラマン散乱の影響（参考文献 2）は小さいことが分かった。N の発光スペクトルには価電子帯の上端近傍に鋭いピークが見られた。これは、N 2p non-bonding state に由来するものと考えられる。O の発光スペクトルにも、O 2p non-bonding state に由来すると思われるピークや、O 原子の局所電子状態密度を反映すると思われる構造が明瞭に見られた。

これら吸収・発光分光の結果から、SiON ナノ超薄膜の窒化シリコン単原子層と酸化シリコン単原子層のバンドギャップ構造が得られる見通しがたった。

**今後の課題：** 今回の実験によって、SiON ナノ超薄膜の N 原子及び O 原子の局所状態密度を反映すると思われるスペクトルを得ることができた。今後、これらの結果を第一原理計算で得られたものと比較、検討を行うことで、SiON 膜のもつバンドギャップ構造、電子状態をさらに深く理解できることが期待される。

#### 参考文献

- 1) T. Shirasawa, K. Hayashi, S. Mizuno, S. Tanaka, K. Nakatsuji, F. Komori, and H. Tochiyama, Phys. Rev. Lett. 98, 136105 (2007).
- 2) S. Shin, A. Agui, M. Watanabe, M. Fujiwara, Y. Tezuka, and T. Ishii, Phys. Rev. B 53, 15660 (1996).