

金属 - 誘電体 - 金属発光素子

Experiments on Metal-Insulator-Metal Light Emitting Diodes

濱崎 襄二*・村上 泰典**・川畑 正博***・松井 正安****・榎 裕之*

Joji HAMASAKI, Yasunori MURAKAMI, Masahiro KAWABATA, Masayasu MATSUI and Hiroyuki SAKAKI

1. 序

極めて薄い誘電体薄膜を通して金属薄膜内に電子流を打ち込むと、発光現象が観察される。この現象については、トンネル効果によって絶縁性の誘電体薄膜を通過した高エネルギー電子流が、打ち込まれた金属薄膜にプラズマ波を誘発し、このプラズマ波と電磁波との結合によって発光が観察されるという説明が試みられている¹⁾²⁾。この発光現象を短波長レーザの利得機構として利用するためには、上記の発光機構の妥当性を実験的に検討した上で、発光効率の改善と素子の寿命の改善を行うことが必要である。

本文では、上記の発光機構の妥当性を検討するために行った一連の実験結果の概要を報告する。

2. 発光素子の構造と製作法

図1は試作素子の主要部の基本構造を示す。可視光で1/10波長の面精度で研磨された石英ガラス板またはサファイア板を基板とし、まず、 5×10^{-6} Torrの真真空度の下で外部接続用の電極を蒸着により作る。電極の^{1/4}波には、まずクロム(Cr)を20Å程度蒸着し、その上に金(Au)を2000Å程度蒸着する。次に、 5×10^{-7} Torrの真真空度の下で幅500μm、厚さ1000Åの帯状のアルミニウム(Al)を蒸着する。Alのプラズマ共振波長は828Åであるので、10 eV以下のエネルギーの電子流によってはAl中のプラズマ波が誘発されることはない。この帯状Alはマイナス電極につながるように作られる。次に真空室を乾燥空気中で満たし、約200°Cに2時間保持して、露出表面に厚さ約30Åの安定な酸化膜(アルミナ Al_2O_3)を形成する。この膜が絶縁性の誘電体膜となる。次に、 5×10^{-7} Torrの真真空度の下で、帯状Al- Al_2O_3 に直交する形となるよ

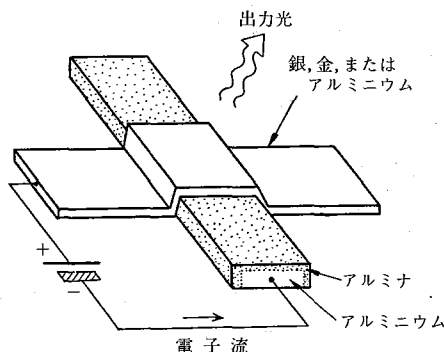


図1 金属-誘電体-金属発光素子の構造

うに、幅500μm、厚さ100~200Åの帯状の金属膜を蒸着する。この金属膜には、銀(Ag)、金(Au)、アルミニウム(Al)を用い、これはプラス電極につながるように作られる。Ag、Auのプラズマ共振波長は3250Åであるから、3.9 eV以上のエネルギーの電子流によってプラズマ波が励起される。Alは比較用の素子に用いた。次に、帯状薄膜と電極との接続部分を補強するため、この部分に 5×10^{-6} Torrの真真空度の下でAgを厚さ1000Å程度蒸着する。最後に、素子表面全体を保護するため、一酸化硅素(SiO)を素子部分に蒸着する。

このようにして製作された素子の直流特性は経時変化を持つので、製作後2日を経て実験に用いた。しかし、発光実験に必要な通電実験を開始すると2~4日で全数破壊されてしまう結果となり、そのため、詳細な繰り返し実験を行うことはできなかった。

3. 発光素子の静特性

3.1 電圧-電流特性

図2は77°Kにおいて50 Hz正弦波電圧をAl- Al_2O_3 -Ag形素子に印加したときの、電圧電流特性の一例を示す。4.2°Kにおいても同様な特性が得られた。77°Kにおいて、幅20μs、繰り返し周波数500 Hzの電流パルスで

* 東京大学生産技術研究所 第3部

** 現 住友電気工業 KK

*** 現 東京大学医学部

**** 現 日本電気 KK

研 究 速 報

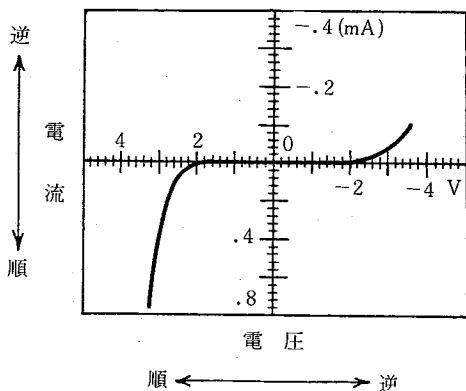


図 2 電圧-電流特性の一例

用いて電圧電流特性の測定を行い、絶縁性誘電体薄膜を通過するトンネル電流に関する近似理論³⁾との比較を行った。Al-Al₂O₃-Al 形素子については実験値は理論曲線と良く一致するが、Al-Al₂O₃-Ag 形および Al-Al₂O₃-Au 形素子については、電圧の増大につれて絶縁膜の厚さが若干増加するように見える実験値が得られている。充分な発光が得られる電圧領域での実験値を説明できる絶縁膜の厚さは、Al-Al₂O₃-Al について 22 Å, Al-Al₂O₃-Ag について 40 Å, Al-Al₂O₃-Au について 50 Å となった。

3.2 電圧-静電容量特性

発光に到らない低電圧範囲内で、室温における電圧静電容量特性の測定を行った。測定周波数は 100 kHz である。Al-Al₂O₃-Al 形素子の静電容量は電圧に無関係であった。Al-Al₂O₃-Ag 形素子の特性の一例を図 3 に示す。電圧零で最小容量となる拋物線状の変化を示している。Al-Al₂O₃-Au 形素子の特性も同様であった。Al₂O₃ の標準的誘電率値を用いて、静電容量測定値から絶縁膜の厚さを算出すると、それぞれの形の素子について、33 Å, 50 Å, 55 Å が得られた。これらの値は電圧電流特性から得られた値より 10 Å 程度大きい、その値と電圧変化に対する変化は大体一致していると見られる。

4. 発 光 特 性

4.1 電圧・電流と発光強度の関係

図 4 (a), (b) は、77 K における Al-Al₂O₃-Au 形素子の発光強度の、それぞれ電圧依存性と電流依存性の一例を示している。発光強度は、順方向 4.0 V で急激な立ち上りを示し、電流にほぼ比例して増加する。逆極性電圧印加のときにも発光が見られるが、順方向のときと比較して相当に小さい。Al-Al₂O₃-Ag 形素子でも同様な特性が得られ、また、4.2 K においても同様であることが観

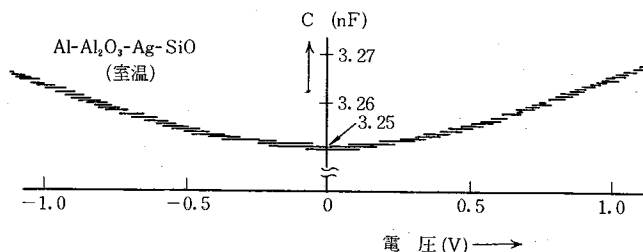
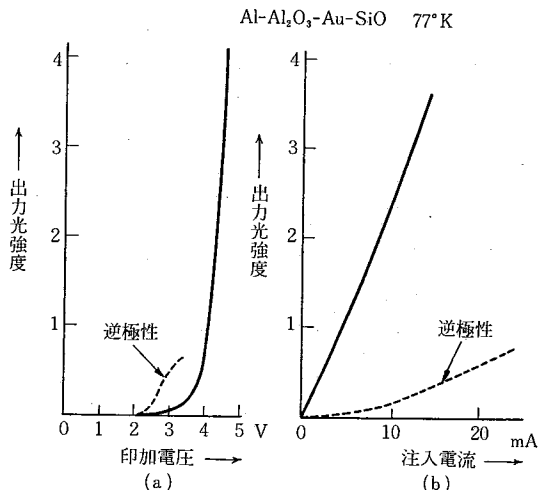


図 3 電圧-静電容量特性

図 4 (a) 電圧-発光強度
(b) 電流-発光強度

察されている。

Al-Al₂O₃-Al 形素子においても電流が流れると弱い発光が見られる。また、弱い発光は素子の種類、電圧の極性に関係なく 2.0 V 以上の電圧で観測されるので、この発光は Al-Al₂O₃ 薄膜中の電子の捕獲準位をトンネル電流が励起する現象によるものと考えられる。

顕微鏡下でプラス電極に接続された金属薄膜 (Ag, Au) 側から発光の分布を観察すると、トンネル接合部全体が一樣に青白く発光しているのが見られる。基板側からは、発光が弱いので肉眼では観察できない。また、Ag または Au 膜の厚さを増加させると、観測される発光強度は急激に減少する。これらの事実と後述の発光波長分布の Ag, Au 膜による差異とを合わせると、Ag, Au 膜の裏側で発光が起こり、膜を通過した光が外部で観測されると理解される。

4.2 発光強度の波長分布

図 5 は、サファイア基板上に作成された Al-Al₂O₃-Ag 形素子の 77 K における発光強度の波長分布特性を示す。波長 3500 Å から発光が認められ、赤外部に至るまで

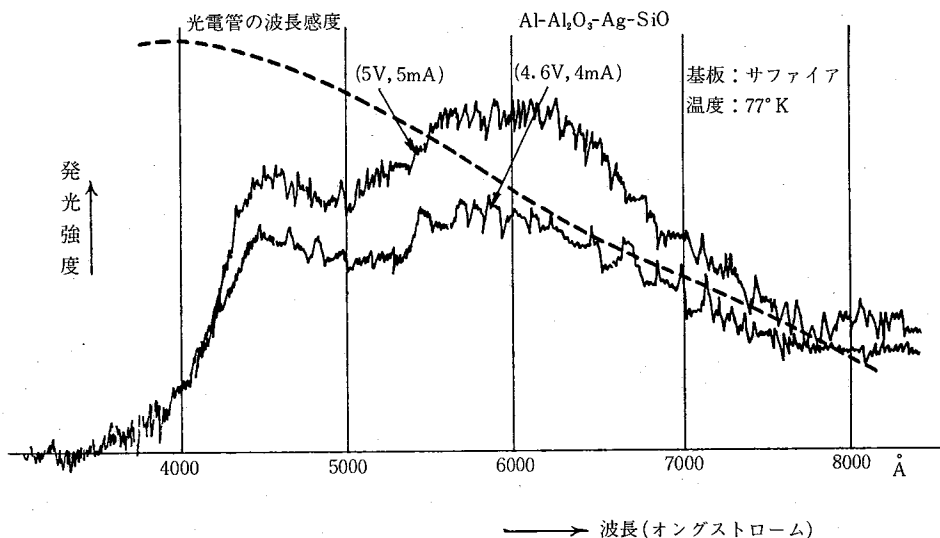
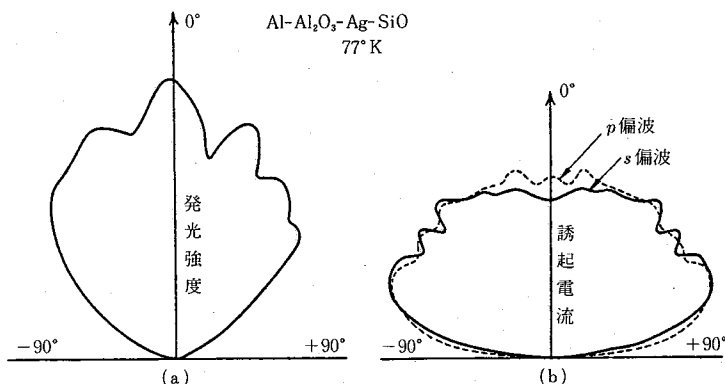


図 5 発光強度の波長分布特性

図 6 (a) 発光強度の角度依存性
(b) 誘起電流の角度依存性

の極めて広い波長範囲で発光が観測されている。石英ガラス上の $\text{Al}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{Ag}$ 形素子では、波長 4200Å から発光が認められる。また、石英ガラス上の $\text{Al}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{Au}$ 形素子では、波長 $4000\text{Å} \sim 5000\text{Å}$ の発光強度は小さい。これは Au 膜を通過した光が観測されているためと考えられる。電圧の極性を逆にした場合および $\text{Al}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{Al}$ 形素子では、全体に発光強度が小さく、また、長波長側にかたよった発光が見られる。

4.3 発光強度・誘起電流の角度依存性

図 6 (a), (b) は、 77K における $\text{Al}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{Ag}$ 形素子の、それぞれ、発光強度の角度依存性、レーザ光による誘起電流（外部印加電圧は零）の角度依存性を示す。共に広い指向特性を持っているが、多数の不完全なローブに分かれている。(b) においては大きな入射角で最大

誘起電流が得られるが、励起用レーザ光の偏波特性にはあまり依存しない。また、励起用レーザ光の波長 $4579\text{Å} \sim 5145\text{Å}$ の範囲では、短波長側で誘起電流は大きいことが観測されている。

5. 発光素子の破壊現象

前に述べたとおり、発光実験に必要な電流を流し始めると、試作素子は全部 2~4 日の中に短絡状態となって破壊に到る。 SiO 膜で保護されていない素子は一度も大きな電流を流さない状態で放置しても、素子表面に腐食性のひび割れが入って数日中に破壊される。

SiO 膜で保護された素子について、顕微鏡下において破壊前後の表面状態変化を観察した。破壊前においては、素子表面は一様に滑らかである。破壊後においては、 Al

研 究 速 報

-Al₂O₃ 層の端に起点を持ったブラウン運動軌跡状の曲りの多い複雑な曲線に沿った破壊跡が残されている場合と、Al-Al₂O₃-(Ag,Au)の三層にわたった亀裂が膜の端から入り三層が一体のまま部分的に剝離してめくれあがっている場合とがある。

破壊過程については不明な点が多いが、あえて推論するならば、発光実験に必要な大電流通電を行うと高エネルギー電子流の作用で Al₂O₃ 膜中の結晶粒界などの不整部分に導電性粒子が蓄積しこのような部分が膜中に網状に発生すること、この網の端が Al₂O₃ の膜の端に達しそこで一度絶縁破壊が起こるとその網を絶縁破壊現象が伝搬するような機構があること、絶縁破壊が進むと爆発的なめくれ現象が現れることなどが推測される。

6. 考 察 ・ 結

静特性の実験結果は、この発光素子の電流が主としてトンネル効果によって流れていることを支持している。金属の種類および印加電圧により絶縁膜の実効的厚みが若干変化する理由については、今のところ結論を得ていない。

発光特性の実験結果については、強い発光の立ち上がり電圧が金属 (Ag,Au) のプラズマ共振波長に対応した電圧 (3.9 V) であることから、この発光成分は金属膜内のプラズマ波の励起と深く係わっていると考えられる。しかし、外部においては、スペクトル、偏波特性、指向特性のいずれについてもプラズマ共振波長の光の特質は観察されていない。スペクトル上ではプラズマ共振波長より僅かに長い波長から長波長側において、極めて広い波長域にわたる発光が観察される。したがって、発光がプラズマ波の励起によると結論するには、励起されたプラズマ波が外部の観測機器に到達する以前に表面プラズマ波などの長波長電磁波と結合できる波に変換される機構の解明がなされなければならない。

他方、Al-Al₂O₃-Al 素子においても、また 3.9 V 以下

の低電圧においても、さらには逆極性電圧においても、弱い発光が認められる。この発光成分は、より長波長側にかたよった極めて広い波長域にわたる発光であって、トンネル電流が Al₂O₃ 膜中の捕獲準位を励起することに伴った発光と考えられる。しかし、発光強度の弱さ、スペクトル分布の違いから、これが発光の主要機構であるとは考え難い。

この発光素子の実験における最大の難点は、素子を形成する三つの層のいずれもが多結晶質膜であるため、現象の解析が複雑となり同時に素子の寿命が短い点である。したがって、今後は分子線エピタキシー法などの手段によって単結晶性の薄膜を用いた素子を製作して実験を行うことが必要である。

本実験の実施に当たって有益なご援助をいただいた安達芳夫教授、藤井陽一教授ならびに生駒俊明教授に感謝する。

参 考 文 献

- 1) T.L. Hwang, S.E. Schwartz and R.K. Jain, "Plasma Radiation from Tunnel Junctions", Phys. Rev. Lett., Vol. 36, p. 379, 1976
- 2) S.L. McCarthy and J. Lambe, "Enhancement of Light Emission from Metal-Insulator-Metal Tunnel Junctions", Appl. Phys. Lett., Vol. 30, p. 427, 1977
- 3) J.G. Simmons, "Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film", J. Appl. Phys., Vol. 34, p. 1793, 1963
- 4) 川畑, 濱崎, "Al-Al₂O₃-Ag 構造のトンネル接合ダイオードからの発光", 特定研究「光導波エレクトロニクス」第 5 回研究会資料, 13, 1978
- 5) 川畑正博, 修士論文(東京大学工学系電気工学), 昭和 53 年 3 月
- 6) 村上泰典, 修士論文(東京大学工学系電気工学), 昭和 56 年 3 月