

ダイヤモンド発光デバイス

大 串 秀 世^{*,**}

Diamond Light Emitting Devices

Hideyo OKUSHI^{*,**}

It is known that diamond exhibits near band-edge emission lines at 235 nm (5.27 eV) due to free-exciton recombination associated with a transverse optical phonon (FE^{TO}). The excitons in diamond have a large binding energy (80 meV) with a small Bohr radius (1.57 nm) because of the low dielectric constant. Therefore, a high density of excitons can be generated even at room temperature and an application of the high density exciton ($>10^{19}/\text{cm}^3$) has been expected for a light source for deep-ultraviolet (deep-UV) light emitting diodes (LEDs). Here, recent achievements in diamond deep-UV LED are reviewed in terms of characteristics of free exciton emission in diamond, potential of exciton LED, p-n junction properties and LED performance.

Key words: diamond, light emitting devices, exciton, deep-UV, p-n junction

ダイヤモンドは、物質中で最も高い硬度や高い熱伝導率、非常に小さい熱膨張率など、物理的機械的性質としてすぐれた特性をもち、化学的に安定で、耐摩耗性や耐化学薬品性に関してもすぐれた特性を示すなど、機能性材料の観点では材料中トップの特性を有している。半導体材料としても、室温で約 5.5 eV という大きなバンドギャップをもち、シリコンを含め他の半導体材料と比較すると、半導体特性に関係する物性値は抜群のものをもっていることが知られている¹⁾。

最近の 10 年間、ダイヤモンドは半導体としての材料開発が大きく進展し、従来の半導体同様に電子デバイスへの応用を考えてよい段階になってきた²⁾。しかしながら、ダイヤモンドが半導体材料として生き残るためには、現在のエレクトロニクス産業を支えているシリコンや、オプトエレクトロニクス材料としての III-V 化合物半導体をもつ発光デバイス用材料としての圧倒的なポテンシャルの壁を越える必要がある。このためには、既存の半導体デバイス物理ではない新しいデバイス物理に基づくデバイスの実現が必要である。そのデバイス物理は、既存の半導体でまだ十

分利用できていない量子力学で期待される現象であって、ダイヤモンドだけにしか期待できない新しい原理・現象でなければならない³⁾。

この有力な候補が、ダイヤモンドの自由励起子によるボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) である⁴⁾。この現象が高い温度で実現されれば、エネルギーとしてコヒーレントな 235 nm の紫外光が発生するなど、励起子の波動性を利用する新しい概念による紫外発光デバイスの提案と応用が期待できる^{3,5,6)}。励起子による BEC の実現は長年の基礎物理学の課題であり、いろいろな材料の励起子についてその実現が試みられ失敗しているが、ダイヤモンドはその基礎物性値から、BEC の実現の可能性を秘めている⁴⁾。ダイヤモンドの励起子で BEC を実現し、それを発光デバイスに応用するという考えはかなり大胆であるが、筆者らはここ数年展開してきた研究から、その実現に一步近づいてきたと考えている。

本稿では、上述した背景のもとに展開している、ダイヤモンドの紫外発光デバイスについて、まず筆者が属する産業技術総合研究所 (産総研) の研究を中心に紹介する。

* 産業技術総合研究所ダイヤモンド研究センター (〒305-8568 つくば市梅園 1-1-1 つくば中央 2-13) E-mail: h.okushi@aist.go.jp

** 科学技術振興機構戦略的創造研究事業 (CREST), 「高密度励起子状態を利用したダイヤモンド紫外線ナノデバイスの開発」研究代表者

1. ダイヤモンドの励起子発光

ダイヤモンドに電子ビームを照射する（カソードルミネセンス, cathode luminescence (CL)) と、図1に示すように、ダイヤモンドの自由励起子による 235 nm (5.27 eV) の波長をもつ紫外線が室温で観測される。図1は、原子レベルで平坦な単結晶ホモエピタキシャルダイヤモンド薄膜での、励起子発光強度と電子ビーム電流の関係を示したもので、励起電流に伴い非線形に発光強度が増加する現象が観測されている⁷⁾。

図中の挿入図は、このときの CL スペクトルを示している。縦型光学フォノンを伴った自由励起子による 235 nm と、そのフォノンのサイドバンドの 242 nm (5.12 eV) に強いピークが観測されるが、これらの発光は Ib ダイヤモンド基板からは観測されない。

ダイヤモンドの場合、誘電率が他の半導体材料と比べ小さいことにより、自由励起子の束縛エネルギー (80 meV) が大きくなり、室温下でも高密度な励起子 (臨界励起子密度が約 $6 \times 10^{19}/\text{cm}^3$) が存在できる。従来の合成条件での薄膜では、転位や不純物との複合欠陥による発光が可視光領域に観測されるが、原子レベルで平坦な薄膜からは、励起子発光以外の発光は観測されず、高品質な結晶になっている^{8,9)}。

図1に示した非線形効果の現象は、測定条件やスペクトルの温度依存性の詳細な検討から、高密度な励起子によって生じるダイヤモンド固有の現象で、ボース・アインシュタイン凝縮⁴⁾と関連する可能性があることが示唆されてきている^{10,11)}。このボース・アインシュタイン凝縮に関する研究については、文献3)に筆者らの研究の考え方を記述したので、それを参照していただくと幸いである。

2. ダイヤモンド紫外線励起子発光デバイスの特徴

ダイヤモンドの励起子による BEC が実現すると、この状態になっている励起子は波動関数的に同一なので、その崩壊過程で放出する光はレーザー光と同様にコヒーレントになり、それを紫外線光源に応用することが可能になる。さらに、BEC に伴って生じる超流動現象⁷⁾など量子統計現象を利用することにより、量子コンピューターなどへの応用¹²⁾のほか、現段階では想像できない応用分野が広がると期待される。

この励起子による BEC を現実の系として実現するデバイスは、電流注入によって高密度励起子状態を発生させる p-n 接合ダイオードが基本になると思われる。もちろん、BEC のためにだけでなく、ダイヤモンドの p-n 接合ダイオードを基本とする紫外線励起子発光ダイオードは 235

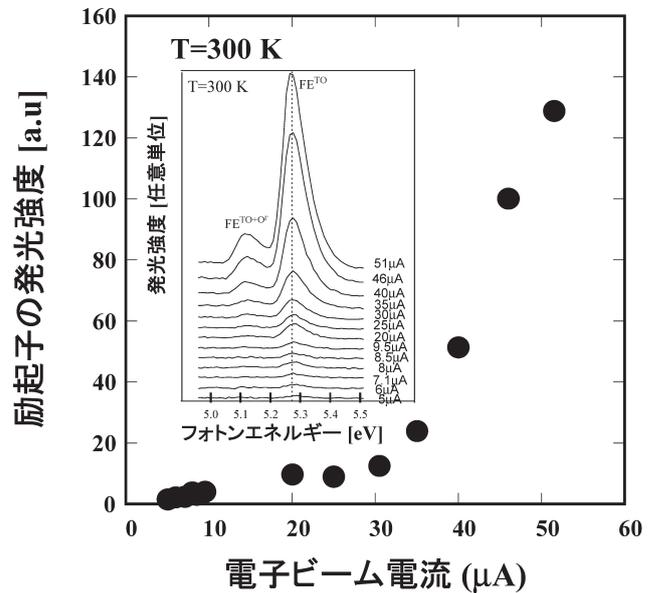


図1 カソードルミネセンス (CL) より、得られた室温での高品質ダイヤモンド薄膜における自由励起子発光強度と励起電子ビーム電流の関係。挿入図は実際の発光スペクトルを示した。また、 FE^{TO} および $\text{FE}^{\text{TO}+\text{OF}}$ はそれぞれ、縦型光学フォノンを介した自由励起子とそのフォノンサイドピークを示す。

nm という紫外線を出すことから、これが実用レベルで実現できれば、その用途も大きな広がりが見込める。

励起子状態は、物質・材料のもつ真性な性質によって生じるもので、不純物原子などの外因的要素によるものでないことに注目する必要がある。一般に物質・材料中に発生する電子正孔対は、高温であれば自由な電子と自由な正孔になって存在するが、低温では、空間的に接近した電子正孔対の状態である励起子のほうが自由な電子と正孔の対より安定になる。この励起子は、直接・間接遷移型の半導体を問わず存在可能である。

しかし、実際に励起子が安定に存在できるか否かは、励起子の束縛エネルギーとそれを乖離する熱エネルギーの関係で決まるので、従来の半導体での励起子は低温で低密度しか存在できない。ところが表1に示すように、ダイヤモンドの場合、先に述べたように束縛エネルギーが大きいので、室温でも高密度 ($>10^{19} \text{ cm}^{-3}$) な励起子が存在可能になる¹³⁾。励起子密度が $10^{18} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 以上達成できるとすると、前述したダイヤモンドの励起子は、40~200 K で BEC の臨界密度に達するので BEC が期待できる⁸⁾。

一般に半導体発光ダイオードの発光効率、(1) 内部量子効率、(2) 取り出し効率、(3) 電圧損失の3つの因子で決まる¹³⁾。このうち、(2) と (3) はダイオードの製作プロセスによる因子であり、半導体材料やその発光機構の原理的可能性を判断するのは (1) の因子である。内部量子効率

表1 束縛エネルギーとモット密度 (cm⁻³) の関係。

	束縛エネルギー (meV)	モット密度 (cm ⁻³) (臨界励起子密度)
GaAs	4.2	8×10 ¹⁵
ZnSe	19	5×10 ¹⁷
ダイヤモンド	80	6×10 ¹⁹

(η) は、発光寿命を τ_R 、これ以外の非発光過程や他の欠陥関連の発光過程による自由電子正孔対の寿命を τ_{NR} とすると、次のように表すことができる。

$$\eta = \frac{\tau_R^{-1}}{\tau_R^{-1} + \tau_{NR}^{-1}} = \left[1 + \frac{\tau_R}{\tau_{NR}} \right]^{-1} \quad (1)$$

直接遷移型では、結晶の同じ対称点 (Γ 点) での自由電子正孔対が再結合できるので、発光寿命が短くそのため発光過程の確率が非常に高くなり、原理的には η は最大値の 1 に近い値がとれる。これに対して間接遷移型では、自由な電子と正孔は、お互いに結晶の別な対称点に存在し、再結合するにはフォノンの介在を必要とするので、直接遷移型と比較し一般的には 3~6 桁程度発光寿命が長くなる。このため、自由電子正孔対の寿命は欠陥準位等による非発光過程で支配され、 η の値は 1 に比較しかなり少ない値しかとれなくなる (表 2 参照)。この理由により、シリコンやダイヤモンドは、同じ間接遷移型の半導体なので、発光デバイスへの応用には大きな疑問がもたれている。

しかし、励起子の状態は空間的に近接した電子正孔対で構成されているので、間接遷移型であっても、電子正孔対が直接再結合して発光する確率が大きくなる。したがって、表 2 に示すように、間接遷移型の励起子の場合も、原理的には η が 1 に近い値がとれることが可能になる。これは、間接遷移型の場合、たとえ欠陥等による再結合センターの濃度が多くても、それ以上の高密度な励起子が定期的に発生すると、欠陥等による再結合センターでの励起子の再結合が実効的に減少し、式 (1) の τ_{NR} の値が実効的に長くなることにより加速される。

このように、間接遷移型でも、励起子発光を利用することにより、直接遷移型と遜色のない内部量子効率が期待できる。しかし、直接遷移型と同程度の発光効率を得るには、材料中の欠陥等による再結合センターの濃度より高密度な励起子を発生できる条件が必要である。室温下で高密度な励起子状態を得ることができる高品質なダイヤモンドが、数少ない候補のひとつといえる。

3. ダイヤモンドの励起子発光デバイス (p-n 接合) の試作

ダイヤモンドによる紫外発光ダイオード (LED) の研

表 2 直接遷移型と間接遷移型における内部量子効率 (η)^{*}。

自由電子正孔対	
直接遷移型	間接遷移型
Γ 点での直接再結合 τ_R^{-1} が大	再結合するためにはフォノンの介在が必要 τ_R^{-1} が小
$\tau_R^{-1} \geq \tau_{NR}^{-1}$ または $\tau_R^{-1} \gg \tau_{NR}^{-1}$ → $\eta \approx 1$	$\tau_R^{-1} \ll \tau_{NR}^{-1}$ → $\eta \approx 0$
励起子	
空間的な電子と正孔の重なりにより τ_R^{-1} が大きくなる	
直接遷移型	間接遷移型
$\tau_R^{-1} \geq \tau_{NR}^{-1}$ または $\tau_R^{-1} \gg \tau_{NR}^{-1}$ → $\eta \approx 1$	$\tau_R^{-1} \geq \tau_{NR}^{-1}$ または $\tau_R^{-1} \leq \tau_{NR}^{-1}$ ここで τ_{NR}^{-1} が実効的に 0 になることも可能 (本文参照) → $\eta \approx 1$

$$*\eta = \frac{\tau_R^{-1}}{\tau_R^{-1} + \tau_{NR}^{-1}} = \left[1 + \frac{\tau_R}{\tau_{NR}} \right]^{-1}.$$

究は、現在の物質・材料研究機構の小泉らによって発表されたのが最初である¹⁴⁾。彼らは、非常に困難とされてきた n 型の制御について、リン (P) をドーパントにして (111) 面を用いたホモエピタキシャル成長法で成功した¹⁵⁾。そして、この成果をもとに、ダイヤモンドによる p-n 接合とこれによる電流注入による励起子発光の観測を、世界に先駆けて成功した。このときの LED は、低抵抗のホウ素 (B) ドープの高圧合成基板の上に、ホモエピタキシャル成長法に B ドープの p 層と n 層を積んだ構成になっている。しかし、ダイヤモンドによる実用化を考えると、(111) 面は結晶面として硬度が強く研磨が困難で、へき開以外では原子レベルの平坦性が期待できず、機械研磨による平坦化や微細加工、エッチングが対応できる (001) 面での n 型の合成が必要である。

東京ガスの堀内らは、ダイヤモンドの LED の開発研究を積極的に展開した^{16,17)}。彼らは、自前の低抵抗の B ドープ高圧合成基板の (100) 面の上に、ホモエピタキシャルによる B ドープ p 型層を作製し、さらにその上に硫黄 (S) による n 型層を作製してダイヤモンド LED を試作した。S ドープ層はホール効果では明確な n 型の判定が得られないが、接合特性からは室温下で ± 10 V で約 3 桁の整流比を示すものが得られ、この接合を用いて電流注入による励起子発光が観測されている。このときの LED の性能としては、10 mA 駆動時の最大特性として、外部量子効率 0.027%、出力 7 μ W を報告している¹⁷⁾。この性能は、初期のダイヤモンドの LED としてはよい効率が得られているが、さらに効率を上げるためには、ホール効果で n 型判定ができない n 型層の改善が必要であった。

産総研グループは、先に述べたダイヤモンドの励起子に

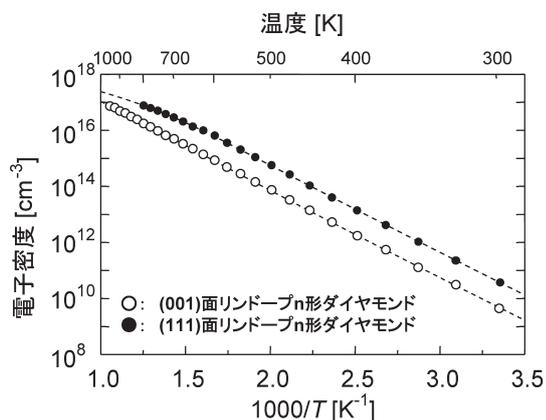


図2 リン (P) をドーパしたホモエピタキシャルダイヤモンド薄膜のホール効果の温度依存性から求めた、電子濃度と温度の関係。○は (001) 面を用いた場合、●は (111) 面の場合。両面とも室温から 600°C の温度範囲で明確な n 型の判定が得られている。

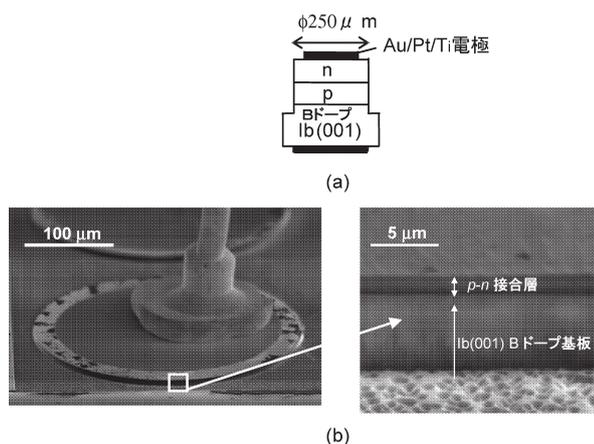


図3 (001) 面 p-n 接合ダイオードの試料構造 (a) と試料の走査型電子顕微鏡 (SEM) 像 (b)。

よる BEC の可能性を含め、それをデバイスとして実現するために必要な LED の研究を継続的に展開してきた。産総研の加藤らは、これまでの合成条件の範囲を広げ、最適化を行うことにより、P をドーパントとして (001) 面での n 型の合成に成功した¹⁸⁾。図2は、室温から 600°C の温度範囲のホール効果による自由電子密度の温度依存性を示したもので、室温下の電子移動度が $400 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ 台を示す (111) 面と遜色ない n 型が得られている。

産総研の牧野らは、この (001) 面の P ドープ n 型の成功をもとに、(001) 面を用いた p-n 接合ダイオードの試作を行っている¹⁹⁾。図3は、このときの試料構造と、試料の走査型電子顕微鏡 (SEM) 像である。図4に示すように、試作した p-n 接合ダイオードの電流-電圧 (I - V) 特性をみると、 $\pm 30 \text{ V}$ の印加電圧で 6 桁以上の整流特性をもつダイオード特性が得られている。接合の容量の電圧依存性

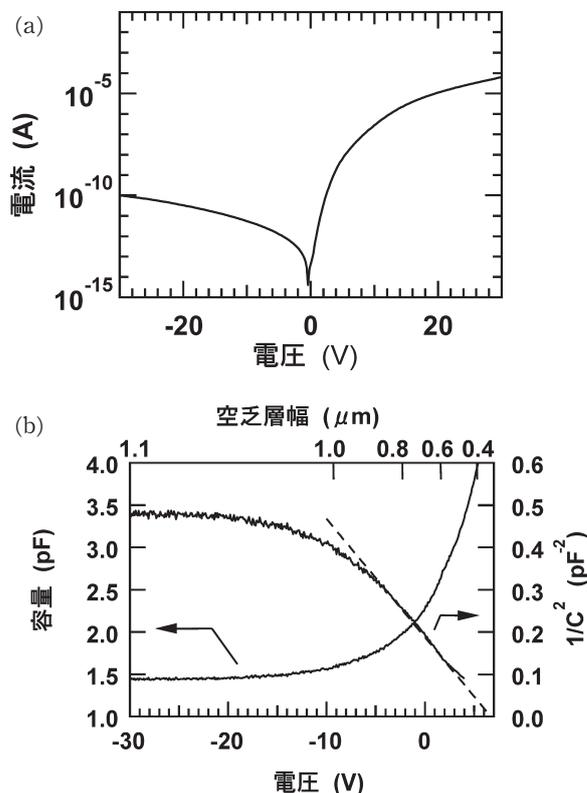


図4 (001) 面 p-n 接合ダイオードでの (a) 電流-電圧 (I - V) 特性と (b) 容量-電圧 (C - V) 特性。

(C - V 特性) も、他の半導体の標準的な p-n 接合特性と同様な傾向のデータが得られている。このデータは、(111) 面での p-n 接合特性と比較するとまだ不十分なところがあるが、今後ダイヤモンド特有の接合特性に関する詳細なデータ集積と解析を踏まえた研究²⁰⁾により、その特性の改善が十分に期待される。

4. 発光特性

図5は、図4で示した p-n 接合での発光特性を示したもので、波長領域 200~600 nm の発光スペクトル、挿入図は 250 nm 付近の自由励起子発光領域を拡大したものである。図に示されるように、順方向電圧 43~47 V、電流 23~35 mA の発光スペクトルは、励起子による紫外光領域のシャープなスペクトルと欠陥に関連する 500 nm 付近の可視光領域のブロードスペクトルで構成されている。500 nm の発光は、主として窒素と空孔との複合欠陥によるものと考えられる。先の S ドープの LED のときは、欠陥起因の発光が、band-A とよばれている拡張欠陥が主だったのだが^{16,17)}、図の結果では band-A による発光はあまり観測されていない。

自由励起子発光強度と欠陥関連の発光強度との比をみると、順方向の電流を増加するに従って励起子発光強度が増

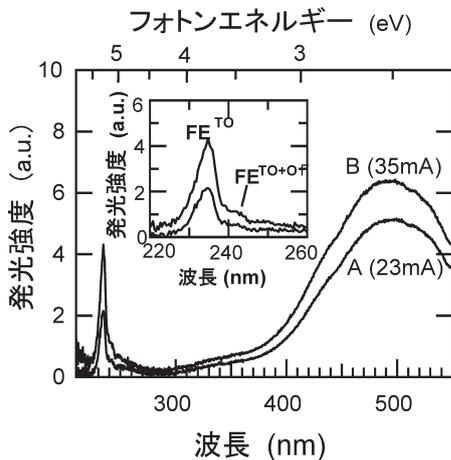


図5 (001)面 p-n 接合ダイオードでの発光特性を示したもので、波長領域 200~600 nm の発光スペクトル。挿入図は 250 nm 付近の自由励起子発光領域の拡大図。

加していくのが観測される¹⁹⁾。この傾向は、S ドープ n 型の LED と同様であり、発光領域の励起子密度が増加することにより、欠陥関連の発光や非発光過程による再結合速度が実効的に飽和あるいは減少することを示唆している。

この現象は、 $10^{18}/\text{cm}^3$ 以上の励起子密度のときのカソードルミネセンス (CL) による励起子発光スペクトルの詳細な解析からも観測されている^{10,11)}。この結果は、欠陥等の再結合センターの濃度が少々多くても大きな内部量子効率を得られることを意味しており、他の半導体と比較しダイヤモンド LED の有利で重要な特徴である。

P ドープ n 型 (001) 面の p-n 接合ダイオードによる LED の試作は開始したばかりであり、まだ LED の性能に関するデータが集積されていない。ただし、現段階で性能が発表されている前述の S ドープ LED と比較すると、同程度かそれ以上の紫外線発光強度が得られている。

5. 高効率 LED 製作のための課題

ダイヤモンドの LED を実用レベルにもっていくためには、まだ材料プロセス技術、デバイス化プロセス技術、およびそれを支援する理論的研究など、多くの研究・技術課題を解決しなくてはならない。半導体材料としてのダイヤモンドの研究は最近急速に進展しているものの、まだ本格的な研究が開始したばかりであり、研究人口も少なく、他の半導体と比較してまだ大きく遅れている。

材料的には、シリコンと同じ単元素であることから、ホモエピタキシャル法により高品質な単結晶薄膜が得られるようになっている²⁾。しかし、実用に資するためには、高速で高品質の材料合成技術が必要で、大面積化技術とともに今後の大きな課題である。ドーピング技術については前

述したのが現状であるが、特に n 型については、より低抵抗な材料開発が必要である。

LED の高効率化に重要なオーミック電極の形成技術に関しては、p 型の場合、高品質 p 型膜を用い $10^{-5} \Omega \cdot \text{cm}^2$ 以下の低接触抵抗が実現しており、ショットキー接合の順方向印加時のオン抵抗としても十分なものが得られている²¹⁾。しかし、n 型のオーミック電極については非常に厳しい状況で、報告があるものの²²⁾、まだ真のデータとして採用できるオーミック電極は得られていない。試作した LED ではまだ n 型が高抵抗で、まともなオーミック電極を使用できないため、電圧損失が大きく、これを改善するのが当面の重要な課題である。このほか、ダイヤモンド半導体の材料プロセス技術についての最近の研究動向と課題については、文献 2) を参照されたい。

本稿では、ダイヤモンドの自由励起子の再結合発光を利用する 235 nm の深紫外線の発光デバイスの意義と、現在の研究状況について記述した。ダイヤモンドの励起子では、他の半導体の励起子では原理的に期待できないボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) が期待でき、それを実現し応用するための基本デバイスとしての LED の開発が要求されている。

もちろん、BEC のためだけでなく、235 nm の深紫外線を発光する LED はそれだけでも広範囲な応用が期待できる。本文で述べたように、高密度の励起子による発光機構を考えると、原理的には直接遷移型と同程度の内部量子効率が期待でき、間接遷移型のハンデはない。それゆえ、実用レベルのダイヤモンドの LED の開発課題は、コスト低減のための材料開発と、高効率化のためのデバイスプロセス技術の確立である。

現在、これらの開発課題にたいしては、ダイヤモンドは他の半導体材料と比較してまだ大きく遅れているが、シリコンと同じ IV 族の単元素半導体を考えると、高品質化という材料科学的面では直接遷移型の化合物半導体と比較して有利であると思われる。ダイヤモンドの発光デバイスの開発が進展するためには、大学・国立研究機関だけでなく、企業サイドの方々にも参画していただくことが重要であると考えている。

本稿は、筆者が属する産総研ダイヤモンド研究センターのグループ研究と、JST-CREST のプロジェクト「高密度励起子状態を利用したダイヤモンド紫外線ナノデバイスの開発」の研究成果をもとに作成したもので、共同研究者の各位と産総研、JST-CREST の関係各位に深く感謝する。

文 献

- 1) 林 和志, 大串秀世: “ホモエピタキシャルダイヤモンド薄膜の合成”, 応用物理, **64** (1995) 1239-1243.
- 2) 大串秀世, 山崎 聡: “電子デバイス用ダイヤモンド半導体”, 応用物理, **74** (2005) 1227-1231.
- 3) 大串秀世: “ダイヤモンドの研究にける夢”, New Diamond, **21**, No. 2 (2005) 2-5.
- 4) たとえば, J. P. Wolfe, J. L. Kin and D. W. Snoke: “Bose-Einstein condensation of nearly ideal gas: Excitons in Cu_2O ,” *Bose-Einstein Condensation*, eds. A. Griffin, D. W. Snoke and S. Stringari (Cambridge University Press, Cambridge, 2002) pp. 281-329, およびそこの引用文献.
- 5) 大串秀世: “ダイヤモンド半導体”, 未来材料, **2**, No. 10 (2002) 6.
- 6) 大串秀世: “ダイヤモンド紫外線ナノデバイスの開発”, ケミカルエンジニアリング, **47** (2002) 506-511.
- 7) H. Watanabe and H. Okushi: “Nonlinear effects excitonic emission from high quality homoepitaxial diamond films,” Jpn. J. Appl. Phys., **39** (2000) L835-L837.
- 8) H. Watanabe, D. Takeuchi, S. Yamanaka, H. Okushi, K. Kajimura and T. Sekiguchi: “Homoepitaxial diamond films with atomically flat surface over a large area,” Diamond Relat. Mater., **8** (1999) 1272.
- 9) H. Okushi: “Homoepitaxial growth for electronic devices,” Diamond Relat. Mater., **10** (2001) 281.
- 10) H. Okushi, H. Watanabe and S. Kanno: “Characteristics of excitonic emission in diamond,” Phys. Status Solidi a, **202** (2005) 2051-2058.
- 11) H. Okushi, H. Watanabe and S. Kanno: “Quantum statistical properties of excitonic emission in diamond,” Diamond Relat. Mater., submitted.
- 12) たとえば, 久我隆弘: 量子光学 (朝倉書店, 2003) pp. 150-173.
- 13) たとえば, 山田範秀: “可視光 LED の高効率化”, 応用物理, **68** (1998) 139-145.
- 14) S. Koizumi, K. Watanabe, M. Hasegawa and H. Kanda: “Ultraviolet emission from a diamond pn junction,” Science, **292** (2001) 1899-1901.
- 15) S. Koizumi, M. Kamo, Y. Sato, H. Ozeki and T. Inuzuka: “Growth and characterization of phosphorous doped {111} homoepitaxial diamond thin films,” Appl. Phys. Lett., **71** (1997) 1065.
- 16) 堀内賢治: “ダイヤモンド紫外線発光素子”, 応用物理, **70** (2001) 1318-1320, およびそこの引用文献.
- 17) 堀内賢治, 河村亜紀, 岡島裕一郎, 井出卓宏: “ダイヤモンドホモエピタキシャル成長と紫外発光ダイオードへの応用”, New Diamond, **20**, No. 1 (2004) 6-11.
- 18) H. Kato, S. Yamasaki and H. Okushi: “*n*-type doping of (001)-oriented single-crystalline diamond by phosphorus,” Appl. Phys. Lett., **86** (2005) 222111.
- 19) T. Makino, H. Kato, H. Ogura, H. Watanabe, S.-G. Ri, S. Yamasaki and H. Okushi: “Strong excitonic emission from (001)-oriented diamond p-n junction,” Jpn. J. Appl. Phys., **44** (2005) L1190-L1192.
- 20) たとえば, T. Makino, H. Kato, S.-G. Ri, Y. Chen and H. Okushi: “Electrical characterization of homoepitaxial diamond p-n⁺ junction,” Diamond Relat. Mater., **14** (2005) 1995.
- 21) Y. G. Chen, M. Ogura, S. Yamasaki and H. Okushi: “Ohmic contacts on p-type homoepitaxial diamond and their thermal stability,” Semicond. Sci. Technol., **20** (2005) 860-863.
- 22) T. Teraji, S. Koizumi and H. Kannda: “Ga Ohmic contact for *n*-type diamond by ion implantation,” Appl. Phys. Lett., **76** (2000) 1303-1305.

(2005年12月29日受理)