AI誘起層交換成長の物理 ~Siの面方位制御を目指して~

Physics of Al-induced crystallization -- Aiming for an orientation control of silicon --

¹九大院シス情,²学振特別研究員(PD) ⁰黒澤 昌志^{1,2,a)}, 佐道 泰造¹, 宮尾 正信¹ ¹Kyushu University,²JSPS Research Fellow (PD) ⁰M. Kurosawa^{1,2,a)}, T. Sadoh¹, and M. Miyao¹ ^{a)}Email: kurosawa@alice.xtal.nagoya-u.ac.jp(現在所属:名大院工)

[はじめに] 近年, IV 族元素(Si, Ge)と共晶反応する金属群(Ag[1], Al[2,3], Au[4])を用いた 層交換成長の研究が国内外で活発化してきている. Al や Au を層交換成長の触媒金属に用いれば, 面方位の整列した Ge 多結晶薄膜をプラスチック上に形成することも可能となった[5,6]. 390℃ 耐熱のバイオプラスチック[7]が日本で開発されるなど,周辺分野も日々進化している.そのため, 低温結晶化の単なる追求だけではなく,意のままに Si や Ge の面方位を"制御(control)"するには どうしたら良いのか?という疑問に真摯に答えるべく,層交換成長の物理を深く掘り下げる研究 も重要となってきている.これまで,面方位を(100)又は(111)に"調整(tuning)"できるとの報告例 が多数存在するが,系統的な解釈は確立していない.本講演では,結晶成長温度が高く,その 低温化がもっとも希求されている Si の Al 誘起層交換成長(Si-AIC)に的を絞り,面方位制御の ポイントを明らかにしていく.

[実験方法] 本結晶成長法のプロセスフローを Fig. 1(a)に示す. DC スパッタリング法を用いて 石英基板上に Al 膜 (50-200 nm 厚)を堆積し、Al 膜表面に自然酸化膜を形成するため大気に暴露 した(時間: 5 min-24 h). その後、試料を分子線堆積装置へ投入し非晶質 Si 膜 (50-200 nm 厚)を 堆積した.最後に、窒素雰囲気又は真空中で熱処理(450-500°C)を施し、AIC 成長を誘起した. [実験結果] AIC 成長後の Si の優先面方位を電子後方散乱回折(EBSD)測定により評価し、 大気暴露時間とAl 膜厚の関数として纏めた(Fig. 1(b)).図中点線を境に、優先面方位が(100)と(111) に二分される.この傾向は他グループの報告も含め一致する.具体的には、大気暴露時間が 長時間化(試料 B→試料 D)すると(即ち拡散バリアが厚膜化すると)、面方位が(100)から(111) に変化する.一方、Al の薄膜化(試料 B→試料 E)でも、面方位を(100)から(111)に変えられる. これら2つが Si の面方位を決定づけるキーファクターであることは自明である.また、供給十分 状態での Si の成長速度は強い面方位依存を持つため[8],AIC 成長速度が面方位に与える影響も 調査した(Fig. 1(c)).Si 核発生時間とその成長速度の関係は、優先面方位によらずユニークに 一つのライン上に集まった.つまり、AIC 成長が拡散律速状態であること、優先面方位が核発生 時点ですでに決定されていることを意味する.これらの実験結果を踏まえ、当日の講演では 面方位制御に向けた系統的解釈について議論を行う.

[1] M. Scholz et al., APL 94, 012108 (2009).
[2] O. Nast et al., APL 73, 3214 (1998).
[3] M. Kurosawa et al., APL 95, 132103 (2009); JJAP 48, 03B002 (2009); ECS-JSS 1, P144 (2012).
[4] J.-H. Park et al., TSF 520, 3293 (2012).
[5] K. Toko et al., APL 101, 072106 (2012); APL 104, 022106 (2014).
[6] J.-H. Park et al., APL 103, 082102 (2013); JJAP 53, 020302 (2014).
[7] P. Suvannasara et al., Macromolecules 47, 1586 (2014).
[8] L. Csepregi et al., JAP 49, 3906 (1978).



Fig. 1 (a) Schematic illustration of Al-induced crystallization of Si. (b) Crystal orientation maps depending on various AIC conditions (samples A-H). (c) Growth rate vs incubation time for samples B-H. The symbols of circle, square, triangle indicates difference in preferential crystal orientation of the AIC-Si grains. Regardless of the preferential orientation, all the data can be fitted by a universal curve (grey line) in (c), indicating that AIC is diffusion-limited reaction.