

Si (111) 基板上に炭素との固相反応で生成した SiC 薄膜の評価 Evaluation of SiC thin-film generated by solid phase carbonization on Si(111)

東北大学工¹、東北大学電気通信研究所²、東北大学金属材料研究所³、JST/CREST⁴

○細谷友崇¹、三本菅正太²、伊藤俊³、吹留博一²、長澤弘幸²、末光真希^{2,4}

Tohoku Univ¹, RIEC², IMR³, JST/CREST⁴, Tomotaka Hosotani¹, Shota Sanbonsuge², Shun Itou³, Hirokazu Fukidome², Hiroyuki Nagasawa², Maki Suemitsu^{2,4}

E-mail: 55tomo@rakusei.net

1. はじめに

電子デバイス動作を飛躍的に高速化させる電子材料として、グラフェンが注目を浴びている[1]。そのグラフェンの工業的生産方法として EG (Epitaxial Graphene) 法[2]があるが、その EG 法の基板となるバルク SiC ウエハは高価である。そこで、Si 基板上に SiC 薄膜をエピタキシャル成長させ、その SiC 薄膜に EG 法を適用する GOS (Graphene on Silicon) 法が開発された[3]。しかし、SiC 薄膜の結晶欠陥密度が高いため、GOS のドメインサイズはバルク SiC ウエハ上 EG 法より得られるグラフェンよりも小さいという欠点がある[4]。本研究では、TEM 観察を行って、GOS 劣化要因を抽出すると共に、GOS ドメインサイズ拡大を企図した固相炭素による炭化実験を行った。

2. 実験及び結果(1) –TEM 観察による GOS 劣化要因の抽出–

既存 GOS の断面 TEM 画像を観察した。SiC 薄膜中に含まれる主な結晶欠陥は積層欠陥(SF)であり、表面に露出した SF 上のグラフェンは不連続であった。また、SF は SiC/Si 界面の凹凸から発生していた。これらのことから、GOS ドメインサイズの支配的な制限要因の 1 つは、SiC/Si 界面の凹凸であることがわかった。

SiC/Si 界面の平坦性は、SiC 形成の初期段階である Si 表面の炭化過程の影響を受ける。Si 表面の炭化は、Si 基板から表面への Si 原子の供給量に律速されるので[5]、SiC/Si 界面に凹凸が発生したということは、Si 原子が表面側に局所的に供給されたことを示唆する。このような局所的な Si 原子の供給は、成長初期の Si 基板表面が SiC で完全に被覆されていなかったことに起因すると考えられる。

3. 実験及び結果(2) –固相炭素による炭化実験–

2より SiC/Si 界面の凹凸がドメインサイズ制限要因であると分かったので、Si 基板表面を固相炭素で覆ったうえで加熱し、十分な炭素供給量のもとで炭化反応を促すことにより、Si 原子の局所的拡散よりも炭化反応(SiC 形成)を優先させ、平坦な SiC/Si 界面を得ることができると考えた。

希弗酸で自然酸化膜を除去した Si 基板上に、炭素源となるレジストを厚さ 1.5 μm に塗布した。次に、石英製管状炉を用いて大気圧窒素雰囲気下にて加熱することで、レジスト中の炭素以外の成分を揮発除去した(炭素化)。炭素化条件による炭化層品質を比較するため、(1)1273K で 4 時間と、(2)873K で 2 時間の 2 通りの処理を実施した。最後に、炭素化条件の異なるそれぞれの試料に対し、真空チャンバー内にて 1523K、10 分の通電加熱を行い、固相炭素と Si 基板表面との炭化反応を促した(固相炭化)。

(1)の 1273K で炭素化した基板を XRD にて評価すると、3C-SiC(2-20)に起因する回折ピークが見られた。表面を光学顕微鏡で観察すると、 2×10^3 個/ cm^2 のエッチピットを確認した。断面 TEM 画像を観察すると、界面は平坦ではなく、また SF の他に GOS では見られなかった Double positioning boundary(DPB)が確認された。一方、(2)の 873K で炭素化した基板を光学顕微鏡で観察すると、エッチピット密度は 8×10^2 個/ cm^2 まで減少した。

4. 結論

固相反応によって炭化層を形成できることを初めて実証した。ただし、SiC 核形成密度が十分ではないため、基板表面が SiC に被覆される前に Si 原子が拡散することによるエッチピットが観察された。また、炭素化工程が短時間であるとエッチピットが少ないことから、長時間に及ぶ高温処理もエッチピット原因の 1 つであると考えられる。

より高温で炭化することで SiC 核形成密度を上げ、それと同時に Si 原子の外方拡散を防ぐことにより、平坦な SiC/Si 界面を得ることができると考えられる。今後、平坦な SiC/Si 界面によって、SF 密度の大幅な低減で、GOS のドメインサイズ拡大が期待される。

[1]P.R.Wallance: Phys. Rev. **71** (1985) 622

[2]R.Kaplan: Surf. Sci. **215** (1989) 111

[3]M.Suemitsu, Y.Miyamoto, H.Handa, and A.Konno: Surf. Sci. Nanotechnol. **7** (2009) 311

[4]H.Nakazawa and M.Suemitsu: Appl. Phys. Lett. **79** (2001) 755

[5]C.J.Mogab,H.J.Leamy: J.Appl.Phys. **45** (1974) 1075