

液相 Sn への Ge 優先溶融を利用した SiGeSn 薄膜の極低温エピタキシャル成長 Ultra-low-temperature epitaxial growth of SiGeSn thin-films by using preferential melting of Ge atoms into liquid-Sn

¹名古屋大院工, ²学振特別研究員(PD)

○加藤元太¹, 黒澤昌志^{1,2}, 山羽隆¹, 田岡紀之¹, 中塚理¹, 財満鎮明¹

¹Nagoya University, ²JSPS Research Fellow (PD)

○M. Kato¹, M. Kurosawa^{1,2}, T. Yamaha¹, N. Taoka¹, O. Nakatsuka¹, and S. Zaima¹

E-mail: mkato@alice.xtal.nagoya-u.ac.jp

【はじめに】集積回路の3次元化/多機能化に向けて, Si プラットフォーム上への新機能材料の極低温混載技術の確立が強く求められている. バンドギャップと格子定数の独立制御が可能なことから[1], SiGeSn 三元混晶が近年注目されている. 最近, 我々は, epitaxial-GeSn/SOI 積層構造の表面に SiO₂ をキャップしたときに限り, 熱処理で, GeSn と Si の相互拡散が 400°C で生じ, Si_{0.77}Ge_{0.21}Sn_{0.02} が得られることを報告した[2]. 今回, アモルファス SnSi(a-SnSi)/Ge 積層構造の採用により, 更なる結晶化温度の低温化, SiGeSn 組成比の制御域の拡張に成功したので報告する.

【実験方法】本手法の要点は, 液相 Sn 中の Si, Ge の大きな溶解限差の利用にある. 例えば, 450°C における熱平衡溶解限はそれぞれ Si ≪ 0.5%, Ge ≃ 6% である. つまり, Sn の融点(231.9°C)以上の熱処理を施せば, 下地基板から液相 Sn(Si) 中への優先的な Ge 溶解込みが生じる[Fig. 1(a)]. その後は, 熱の逃げやすい基板側から試料表面への固化が自己組織的に進行し, 余剰な Sn は表面に析出する[Fig. 1(b)]. 本実験では, 清浄化した Ge(001) 基板上に a-Sn_{0.3}Si_{0.7} 薄膜(膜厚: 50 nm, 基板温度: 100°C) を分子線堆積した試料を用いた.

【実験結果】典型例として 450°C, 1 秒間熱処理した a-SnSi/Ge(001) の Ge 224 Bragg 回折点付近の XRD 二次元逆格子空間マップ(XRD-2DRSM)を Fig. 2 に示す. Si 224 と Ge 224 逆格子点を結ぶ直線(strain-relaxed)上にピークが出現する. これは, 1 秒間と極短時間の熱処理にもかかわらず, SnSi 中に Ge が取り込まれ, 完全に歪み緩和した Si_{1-x-y}Ge_xSn_y 薄膜がエピタキシャル成長した驚くべき結果である. 熱処理温度を 450°C に固定し, 熱処理時間(t_a)を変化させた試料のラマンスペクトルを Fig. 3(a) に示す. 各試料ともに 3 つの結合(Ge-Ge, Si-Ge, Si-Si)に起因するピークが出現しており, 各ピーク位置は熱処理時間に依存して変化する. これらのピーク位置より, 格子置換位置に取り込まれた各元素の組成を算出した[Fig. 3(b)][3]. 熱処理時間 t_a の制御により Si_{1-x-y}Ge_xSn_y の組成変動が可能となることがわかる. また, t_a の長時間化に伴い, Ge の取り込み量は徐々に増加する. この「液相 Sn(Si) 中への Ge 取込」は 240°C という極低温でも生じ, エピタキシャル成長の必要条件であることが明らかとなっている. 今回, 次世代集積回路の構築に必須となる IV 族系混晶を用いたバンドギャップエンジニアリング, 極低温結晶成長を可能とする画期的結晶成長法を創出できた.

[1] P. Moontragoon *et al.*, J. Appl. Phys. **112**, 073106 (2012). [2] O. Nakatsuka *et al.*, Thin Solid Films **520**, 3288 (2012). [3] 組成換算式として例えば V. R. D'Costa *et al.*, Phys. Rev. B **76**, 035211 (2007)

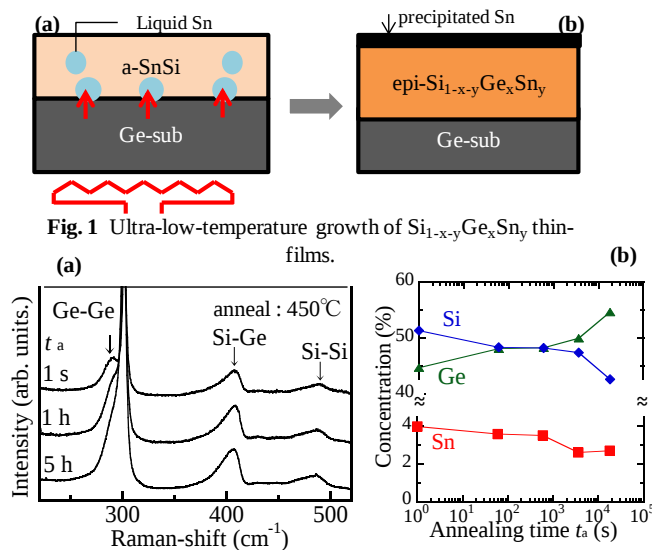


Fig. 3 (a) Typical Raman spectra obtained from a-SnSi/Ge(001) samples after annealing at 450°C for 1s, 1 h, and 5 h. (b) Annealing time dependence of concentrations of Si, Ge, and Sn in the crystallized films.

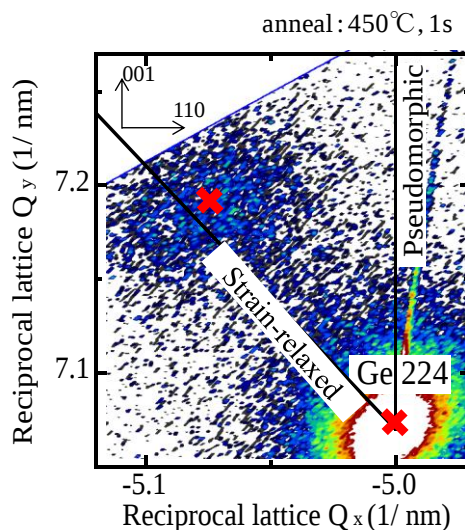


Fig. 2 XRD-2DRSM of a-Sn_{0.3}Si_{0.7}/Ge(001) sample after annealing at 450°C for 1 s.