

Ge_{1-x-y}Si_xSn_y エピタキシャル層の結晶構造の成長温度と熱処理依存性

Influence of Growth and Annealing Temperature on Crystalline Structure of Ge_{1-x-y}Si_xSn_y Epitaxial Layers

名古屋大院・工、○寺島辰也、山羽隆、浅野孝典、田岡紀之、中塚理、財満鎮明

Graduate School of Eng., Nagoya Univ.

○T. Terashima, T. Yamaha, T. Asano, N. Taoka, O. Nakatsuka, and S. Zaima

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

【はじめに】IV族系三元混晶Ge_{1-x-y}Si_xSn_yは、組成制御によりGe基板との格子整合と1 eV程度のバンドギャップとを両立できるため、多接合型太陽電池セルへの応用が期待される[1]。しかし、SiおよびGe中へのSnの平衡固溶限が非常に低く、その実用化にはSn析出の抑制が課題である。これまでに我々は、Ge_{1-x-y}Si_xSn_y低温成長によるSn析出抑制などについて報告してきた[2]。一般的に、成長温度の増大により、エピタキシャル膜の結晶性向上が期待できるが、成長温度が混晶膜の結晶性に及ぼす影響は未解明である。また、多接合構造のためのGe_{1-x-y}Si_xSn_y上へのIII-V族化合物半導体成長には、600°C程度の高温プロセスも必要となる。本研究では、Ge(001)基板上に様々な成長温度で形成したGe_{1-x-y}Si_xSn_y層の結晶性および膜中のSn原子の熱的安定性について調べた。

【実験内容】Ge(001)基板に化学洗浄および超高真空中での熱処理を施し、清浄表面を形成後、分子線エピタキシー (MBE) 法により、基板温度200~350°Cにおいて、膜厚200 nmのGe_{1-x-y}Si_xSn_y層を成長した。Si、Ge、およびSn組成は、それぞれ16%、79%、および5%とした。成長後、一部の試料には、窒素雰囲気中において400°C~600°C、10分間の熱処理を施した。

【結果および考察】X線回折 (XRD) 2次元逆格子空間マッピング測定の結果から、成長温度 200~300°C の Ge_{1-x-y}Si_xSn_y 層の Ge 基板に対するミスフィット量は 0.4% 以下の低い値と評価された。一方、350°C 成長の場合、ミスフィット量は 0.8% と大きな値となり、これは Sn 析出が生じるためと考えられる。薄膜中の格子置換位置および蒸着された Sn 組成を、それぞれ XRD およびラザフォード後方散乱 (RBS) 法により評価した。RBS および XRD から見積もられた Sn 組成の差が析出した Sn の量と考え、その温度依存性を Fig. 1 に示す。比較のため、Ge 上に成長した Sn 組成 5% の Ge_{1-x}Sn_x 層の結果も示した。300°C で形成した Ge_{1-x}Sn_x 層においては、蒸着 Sn 組成と格子置換位置の Sn 組成は大きく異なっており、Sn の顕著な析出を示唆している。一方、成長温度 300°C 以下で形成した Ge_{1-x-y}Si_xSn_y 層においては、蒸着 Sn 組成と格子置換位置 Sn 組成は一致しており、Ge_{1-x-y}Si_xSn_y 三元混晶では Ge_{1-x}Sn_x よりも照射した Sn が効果的に格子置換位置に取り込まれる事を示している。

Fig.2 に XRD より見積もられた Ge_{1-x-y}Si_xSn_y 層の格子定数の熱処理温度依存性を示す。成長温度 300°C 以下の試料においては、600°C の熱処理後も格子定数は変化せず、顕著な Sn 析出や転位導入がないことがわかる。これより、Ge_{1-x-y}Si_xSn_y 層は固溶限を超える 5% の Sn 組成を有するにも関わらず、600°C の高温熱処理においても安定な構造を保つことが実証できた。

[1] Y.-Y. Fang *et al.*, J. Am. Chem. Soc. **130**, 16095 (2008). [2] T. Yamaha *et al.*, ECS Trans. **50**, 907 (2012).

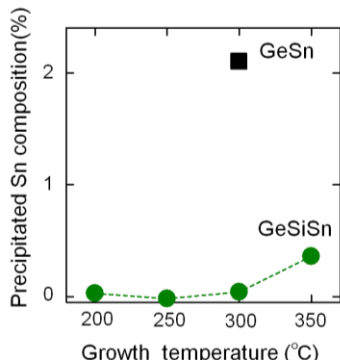


Fig.1: Precipitated Sn composition for Ge_{1-x-y}Si_xSn_y and Ge_{1-x}Sn_x/Ge(001) samples as a function of annealing temperature.

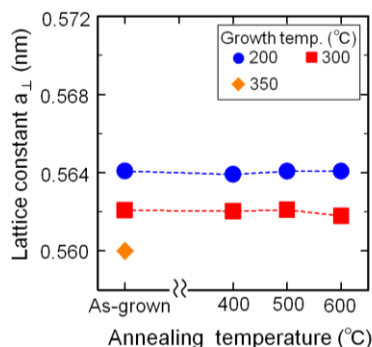


Fig.2: Annealing temperature dependence of the lattice constant along the [001] direction for Ge_{1-x-y}Si_xSn_y/Ge(001) samples.