19p-D3-6

Ar 雰囲気中アニールによる Mg_2Si 膜固相合成におけるマグネシウム蒸発の観察

Observation of magnesium evaporation during the solid-phase synthesis of Mg_2Si film by annealing in the argon gas atmosphere

茨城大工　高木 雄太, 山本 拓哉, 張 月, 佐藤 直幸, 池畑 隆, 鵜殿 治彦

Ibaraki Univ.,　Y. Takagi, T. Yamamoto, Getsu Chou, N.Y. Sato, T. Ikehata, H. Udono

E-mail: tikehata@mx.ibaraki.ac.jp

マグネシウムシリサイド（Mg_2Si）は，高温域で安定して高いゼーベック係数を持ち，有害元素を含まず，埋蔵量も豊富なため，安全で環境にやさしい熱電半導体と考えられている。Mg_2Si 薄膜合成については多くの試みがなされてきたが，Mg が Si に比べて蒸気圧が高く、凝縮係数が低いために，高品質な薄膜を得ることが難しいという問題があった。この問題を解決する方法の一つが，希ガス雰囲気中でのアニール処理[1]である。筆者らはこれまでの実験から，Ar ガス圧 900 Pa における Mg_2Si 固相合成(膜厚約 300 nm)の最適温度は約 350℃であり、200℃以下，および 500℃以上でのアニールは Mg_2Si の合成に適切でないことを明らかにした[2]。特に 500℃以上でのアニールでは、Mg の蒸発が懸念されるデータが得られた。そこで水晶式膜厚計を用いて，Mg の蒸発量をモニターしながら、Mg_2Si 膜(約 5μm)の合成を行い、アニール温度(200, 250, 300, 350, 400, 500℃)、Ar ガス圧(真空(10^{-5} Pa), 900 Pa)をパラメータとして、Mg 蒸発と合成膜の物性との関係を調査することにした。本講演では、予備的段階ではあるが,その調査結果を報告したい。

実験では、サンプルヒータ上に置いた 9 mm x 9 mm の Si(111)基板に Mg を約 5μm スパッタ成膜(Mg ターゲット：3N5)し、アルゴン雰囲気中でアニールした。温度制御は、まず室温から設定アニール温度まで直線的に 10 分で昇温し、3 時間保持した後自然冷却した。水晶センサーは基板の直上 30 mm に設置した。また合成膜は、XRD, 顕微ラマン、SEM-EDX、触針式段差計を用いて、膜厚、微細構造、元素組成、結晶性等が評価された。Fig. 1 は Mg 蒸発量(厳密には水晶振動子に堆積した Mg 量)とアニール温度の時間変化である。900 Pa の Ar 雰囲気中では、真空中に比べて Mg 蒸発量が 1/5 程度に抑えられている。また、蒸発速度は加熱の初期に大きく、加熱開始から約 1 時間後には蒸発が停止していることがわかった。一方アニール後も基板には合成膜が残されていた。この観測結果は、約 1 時間で Mg がより蒸気圧の低い Mg_2Si に変化したことを示していると考えられる。このことが正しければ、Mg 蒸発量を Mg_2Si 固相合成のモニターとして利用できる可能性がある。

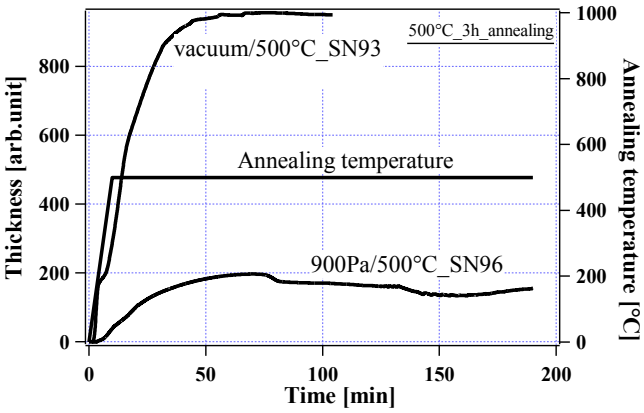

Fig. 1 マグネシウム蒸発の時間変化

(1) Q. Xiao, et al., Adv. Mater. Res. 129-131, 290-294 (2010),.　(2) T. Ikehata, et al. Phys. Stat. Soli. C 10, 1708–1711 (2013)

© 2014 年　応用物理学会