

19p-F9-4

Si 結晶中の空孔機構による自己拡散の活性化エネルギー**Activation energy of self-diffusion with vacancy mechanism in Si crystals**

東北大金研（研究場所） ○末澤正志、飯島嘉明、米永一郎

IMR, Tohoku Univ. Masashi Suezawa, Yosiaki Iijima, Ichiro Yonenaga

E-mail: suezawa@imr.tohoku.ac.jp

本講演では、シリコン結晶中の空孔機構による自己拡散に関する最近の研究結果を、私見を交えながら報告させて頂く。

シリコン結晶中の自己拡散は、空孔及び格子間原子を媒介として起きることが知られている。しかし、前者による拡散の活性化エネルギーを実験によって求めることは、長い間なされていなかった。2007年に清水らは、シリコン同位元素の超格子($^{28}\text{Si}/^{30}\text{Si}$)20 層、を作成し、拡散温度 735~875°C の低温で起きる拡散をラマン散乱法で研究した。そして、すでに報告されていた格子間原子による高温部のデータと合わせて解析し、空孔および格子間原子機構による自己拡散の活性化エネルギーがそれぞれ 3.6 eV および 4.92 eV であると報告した (Phys. Rev. Lett. 98 (2007) 095901)。それに対して、Bracht & Chroneos は、上記の値が 1)彼らの理論値 (4.5 ~ 4.6 eV) より小さいこと、2)自己拡散の活性化エネルギーが Sb 拡散のもの (4.08eV) より小さいのはおかしいこと、等を理由に、彼らの結果を批判した(J. Appl. Phys. 104 (2008) 076108)。

最近、Kube, Bracht ら (Phys. Rev. B88 (2013) 085206) は、清水らと同様なシリコン同位元素の超格子($^{28}\text{Si}/^{29}\text{Si}$)20 層およびサンドイッチ結晶 ($^{nat}\text{Si}/^{28}\text{Si}$ (この部分が厚い)/ ^{nat}Si) を作成し、650 ~ 950°C の範囲で拡散係数の温度依存性を測定した。サンドイッチ結晶の測定結果を清水等と同様に解析し、空孔および格子間原子機構による自己拡散の活性化エネルギーがそれぞれ 3.52 eV および 4.92 eV であると報告した。これらは清水等の結果と良い一致を示しているので、シリコン固有の性質を求めていると解釈した。一方、空孔機構の活性化エネルギーが Sb のものより小さいことを説明する為に、「温度に依存する形成エネルギーおよび形成エントロピー」という概念を導入した。

しかし、彼らの試料には炭素が $5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ 程度含まれている。彼らは、電氣的に活性な不純物だけが空孔形成に関与すると考えているが、急冷法を用いた深田らの研究(J. Appl. Phys. 87 (2000) 8361)によると、炭素ドーパ結晶中の空孔形成エネルギーは 3.2eV で、高純度試料中のもの(3.85 eV)より小さい。Kube, Bracht らが得た値から空孔移動の活性化エネルギー 0.42eV を差し引くと 3.10eV となり、上記の 3.2eV とほぼ一致する。したがって、彼らが得た値は intrinsic なものではなく、不純物炭素に関係していると考えられる。

清水等の試料は論文によると高純度であるが、MBE 法で成長した試料中には空孔のクラスターが含まれていることが知られていること、及び、超格子には原子レベルでは平滑でない広い界面が含まれていることから空孔の発生源が存在することが予想される。したがって、清水等の結果も intrinsic な性質を測定しているのではないと思われる。