



酸素雰囲気中オペランド軟 X 線光電子分光による Au 薄膜/Si 基板界面化学反応の解析

Analysis of chemical reactions at the Au-thin-film/Si interface by
operando soft x-ray photoelectron spectroscopy under oxygen ambient

○豊田 智史¹、山本 知樹²、梶野 雄太²、住田 弘祐³、三根生 晋³、横山 和司²、吉越 章隆⁴

(京都大学¹、兵庫県大²、マツダ³、原子力機構⁴)

○S. Toyoda¹, T. Yamamoto², Y. Kajino², H. Sumida³, S. Mineoi³, K. Yokoyama², and A. Yoshigoe⁴

(¹Kyoto Univ., ²Univ. of Hyogo, ³Mazda, ⁴JAEA)

E-mail: toyoda.satoshi.4w@kyoto-u.ac.jp

Au 金属の融点は 1064°C、Si 単結晶の融点は 1414°Cであり、単体ではともに高融点である。しかし、Au-Si の 2 元系は 370°C程度で単一の共晶点を有し[1]、各々の単体よりも大幅に融点が低下する合金系である。Si 基板の上に 100 nm 程度の Au 膜を蒸着して大気圧下で加熱すると、共晶点以下の 250°C程度でも SiO₂ 膜が表面に形成すること[2]から、低温でも Si 原子は Au 膜中を高速で拡散すると考えられている。この物質群は、デバイス工学的な観点からも重要であり、高速拡散はシリコンデバイスの歩留まりを低下させる現象として理解される。一方、Si(111)基板 7x7 超構造上の Au 数原子層の物性に関して、構造的な一次元性と二次元性の共存[3]、電子的な強局在性と弱局在性の共存[4]、といった興味深い事実も明らかになってきた。近年では、Si(111)基板 6x6 超構造を利用すると 370°Cから 250°Cまで液相が過冷却し、高密度であるが非周期的な Au 原子の 5 角形配列の秩序相が液相を安定化させることが報告され[5]、液相側の性質についても注目が集まってきている。また、Si ナノワイヤー成長には Au 触媒が用いられており、Au-Si 界面化学反応の計測と理解は、結晶成長の制御指針などにもつながるだろう。

我々は、雰囲気制御下で光電子分光データを取得しつつ、液相側も含め界面化学反応を定量解析する技術を構築することが重要であると考え、Au/Si 界面をモデル系として研究を進めている。図 1 は Si 基板の上に 50 nm 厚程度の Au 薄膜を蒸着し、昇温過程について酸素(O₂)雰囲気制御軟 X 線光電子分光計測を行った結果である。ある温度を境に、Au 4f 内殻光電子スペクトルが 0.5 eV ほど高結合エネルギー側にシフトする様子が見て取れる。これは Au 膜の固相から液(合金)相への転移を示していると考えられる。転移温度について、超高真空中(5×10⁻⁸ Pa)は 370°C 付近であり、AuSi 合金状態図[1]と同様であったが、O₂雰囲気下(1×10⁻⁴ Pa)は 250°C付近まで低温化した。また、Si 2p 内殻光電子スペクトルでは Si 結合種に加えて SiO 結合種も観察され、これらの化学種が Au 薄膜中を拡散していると示唆される。以上のことから、O₂ 分子の低温還元反応[6,7]が Si 系拡散種に何らかの化学的寄与を及ぼし、Au 膜の液相への転移を促進していると推察した。講演では、これらの界面化学反応メカニズムに関する考察を報告する。

【謝辞】本研究は SPring-8 BL23SU 表面化学実験装置 (原研施設利用課題: 2018A-E21、JASRI 内部課題: 2018A3801) を用いて行われた。【参考文献】[1] D. Capua C. Gazz. Chim. Ital. (1920). [2] A. Hiraki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **18**, 178 (1971). [3] 井野正三、表面科学、**30**, 512 (2009). [4] 長谷川修司、表面科学、**33**, 118 (2012). [5] T. U. Schulli *et al.*, Nature **464**, 1174 (2010). [6] 寺岡他、放射光、**18**, 298 (2005). [7] 吉越他、表面科学、**33**, 172 (2012).

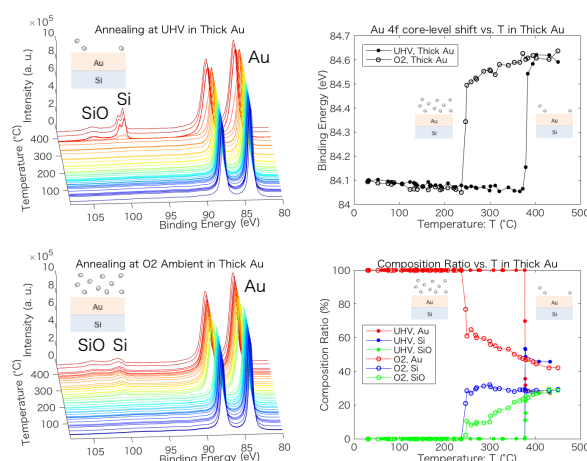


図 1. Au 薄膜/Si 基板界面反応の光電子分光計測