ヘテロエピタキシャル Al/Ge(111)上に偏析した極薄 Ge の化学分析 Chemical Analysis of Ultrathin Ge Segregated on Hetero-epitaxial Al/Ge(111)

名大院工¹,名大高等研究院²,名大未来研³,產総研 GaN-OIL⁴ ⁰小林征登¹,大田晃生^{1,2},黒澤昌志^{1,2}, 洗平昌晃^{1,2,3},田岡紀之⁴,池田弥央¹,牧原克典¹,宮﨑誠一¹

Grad. Sch. of Eng., Nagoya Univ.¹, IAR, Nagoya Univ.², IMaSS, Nagoya Univ.³, AIST GaN-OIL⁴

°M. Kobayashi¹, A. Ohta^{1,2}, M. Kurosawa^{1,2}, M. Araidai^{1,2,3}, N. Taoka⁴, M. Ikeda¹, K. Makihara¹, S. Miyazaki¹ E-mail: kobayashi.masato@h.mbox.nagoya-u.ac.jp

序>これまでに、ヘテロエピタキシャル成長した Ag 薄膜/Ge(111)構造を N₂ 雰囲気中[1](or 真空中[2])で熱処 理することで、Ag 表面の平坦化と Ge 原子の表面偏析が進行し、二原子層程度の極薄 Ge 結晶(or Ge の単原子 層:ゲルマネン)を形成できることを明らかにした。また前回、Ag と同様に Ge と共晶反応を示す Al を Ge(111) 基板上に真空蒸着した場合においても、Al がヘテロエピタキシャル成長し、その後に真空中熱処理をするこ とで Al 表面に極薄 Ge が析出することを報告した[3]。本研究では、Ge 二次元結晶の合成指針を得ることを 目的とし、Al/Ge(111)構造において、真空中熱処理により析出した極薄 Ge の化学結合・結晶状態を評価した。 実験方法>p 型 Ge(111)基板を 4.5%HF で洗浄後、真空蒸着(到達圧力:~1.5×10⁴ Pa)により厚さ~50 nm の Al 層 を堆積した。その後、一部の試料は Al 表面の自然酸化を防ぐために、大気暴露せずに真空中(~1.5×10⁴ Pa)で 熱処理(300°C および 400°C, 1 時間)を行った。

結果及び考察>Fig.1に、熱処理前後の Al/Ge(111)において、単色化 AlKα特性 X 線(hv = 1486.6 eV)を用いて XPS 測定した内殻光電子スペクトルを示す。Ge 3d スペクトルでは、熱処理により Ge-Ge 結合成分が顕著に 増大し、400°C 熱処理した試料では Ge-O 結合成分も観測される。XPS の分析深度(~10 nm)を考慮すると、こ れらの結果は Ge 原子の表面析出を示す。また、Al-Al 結合に相当する Al 2p 信号は、熱処理前後でその形状 や強度に変化が認められないことから、Al 中への Ge 原子の混入は XPS 分析の検出限界以下(<0.1 at.%)と考 えられる。このことは Al-Ge 系の相図で表される Al 中の Ge の固溶限が室温では非常に小さいこととも一致 する[4]。加えて、各信号強度の光電子脱出角依存性から推測した深さ方向プロファイルから、Al 表面酸化層 と下地 Al 層の間に平均厚さ 0.5 nm 程度の Ge 層が存在することが分かった。同様の試料において、波長 532nm のレーザー光で励起したラマン散乱スペクトルを Fig.2 に示す。このとき、光学定数より見積もった Al に対 するレーザー光の侵入長は 8 nm であり、厚さ 50 nm の Al では基板からの信号が検出されないことを確認し ている。真空中熱処理により析出した Ge は、300 cm⁻¹に結晶成分に相当する TO フォノン信号が観測され、特に、300°C の熱処理でその信号は鋭い。別途行った AFM 測定より、400°C で熱処理した試料表面の平均二 乗粗さ(RMS)は~0.8 nm で熱処理前と同等であったのに対して、300°C 熱処理後では~0.6 nm まで減少するこ とから、表面平坦化に伴って、析出 Ge 層の結晶性が向上した可能性が考えられる。

結論>エピタキシャル Al/Ge(111)において、300℃の真空中熱処理により Ge が表面偏析し、平均厚さ~0.5 nmの高結晶性 Ge 薄層が形成できることが分かった。

参考文献> [1] K. Ito et al., Jpn. J. Appl. Phys. 57, 06HD08 (2018). [2] J. Yuhara et al., ACS Nano 12, 11632 (2018).

[3] 小林 他, 2018年 第79回応用物理学会秋季学術講演会予稿集, 18p-235-7. [4] T. B. Massalski et al., in Binary

Alloy Phase Diagrams (American Society for Metals, 1986), p.116. 謝辞>本研究の一部は、科学研究費補助金(18K19020)の支援を受けた。







Fig. 2 Raman scattering spectra of segregated Ge on Al/Ge(111) structure by vacuum annealing.