

Si 及び SIMOX 基板上に作製した γ -FeSi₂ 薄膜の界面微細構造Interface Structure of IBSD- γ -FeSi₂ Thin Film Fabricated on Si and Silicon-on-Insulator Substrates笹瀬雅人^{*1}

Masato SASASE

Abstract

We have been demonstrated that the ion beam sputter deposition (IBSD) is capable of fabricating a highly oriented γ -FeSi₂ film on a Si(100) substrate. Strong photoluminescence (PL) has been observed up to high as room temperature from IBSD- γ -FeSi₂ with subsequent annealing. In the present study, effect on the substrate/film interface nanostructure and compositional changes to the PL properties has been investigated by using two different substrate, Si(100) and silicon on insulator (SOI). The PL measurement shows that the peak intensity around $E = 0.81$ eV drastically increased upon thermal annealing when Si(100) is used as a substrate. Such feature has not been observed with SOI substrate. The cross sectional observation of transmission electron microscope (XTEM) images showed that these films have quite different structures. The γ -FeSi₂ films on Si(100) were aggregated, forming γ -FeSi₂ particles with the size of 20 -200 nm. Dislocations and stacking faults were not observed around the interface. Aggregation also occurred by forming smaller (20 -30 nm) γ -FeSi₂ particles with SOI substrate. No γ -FeSi₂/Si interface was observed since the buried SiO₂ layer significantly swelled and surface Si layer disappeared by annealing.

要約

最近の研究により、イオンビームスパッタ蒸着(IBSD)法を用いて作製した γ -FeSi₂ 薄膜の PL 発光が室温近くで確認された。一方、その詳細な発光起源は明らかとなっていないのが現状である。本研究では、発光特性に与える界面付近の膜組成及び微細構造の影響を明らかにするため、異なる基板上(Si and SOI)に成膜した γ -FeSi₂ 薄膜について断面 TEM 観察により検討した。アニールにより発光強度の増大した Si 基板上の γ -FeSi₂ との界面付近は非常にポーラスであるものの、欠陥は極めて少なかった。一方、SOI 基板上に成膜した γ -FeSi₂ 薄膜は表面及び界面が平坦でなく、20 ~ 30 nm の結晶粒が島状に存在していた。また γ -FeSi₂ 層の下に多結晶の SiO₂ 層が約 0.5 μ m 存在しており、界面における Si の存在が認められなかった。従って発光起源において γ -FeSi₂ と Si 層の界面構造が重要な役割を担っていることを明らかとした。

1. 緒言

鉄とシリコンから構成される γ -FeSi₂ は環境に優しい元素が用いられ、受発光特性など多くの優れた物性が期待される化合物半導体である¹⁻³⁾。今までの我々の研究において、イオンビームスパッタ蒸着 (Ion Beam Sputter Deposition : IBSD)法により 973 K の基板温度で(100)に強く配向した γ -FeSi₂ 薄膜の成長に成功した^{4,5)}。そして発光特性の評価から、基板温度が 6 ~ 100K の範囲で 0.81 eV 周辺に顕著な発光ピークが観測された。さらに γ -FeSi₂ 薄膜を蒸着した Si 基板を 10⁻⁴ Pa 程度の真空度で長時間、1123 K でアニールを行うことにより、0.81 eV 付近のピーク強度が 50 倍程度、大幅に向上し、消光の基板温度が室温近くまで改善されることが明らかとなった⁶⁾。一方、基板のみの PL 測定では同様の現象は観察されなかったことから、この発光は薄膜に由来するものと考えられるが、発光起源や発光強度の増大の要因について明らかになっていないのが現状である。本研究では、発光特性に与える基板/薄膜界面の微細構造の影響を明らかにするために、異なる基板上に作

*1 エネルギー開発グループ

本研究は、日本原子力研究開発機構との共同研究の一部である。

製した γ -FeSi₂ 薄膜について断面透過型電子顕微鏡観察を行った。

II. 実験方法

基板には、n 型 Si(100)及び、イオン注入により表面から 100 nm 程度の深さに均一に導入して絶縁層(SiO₂)を形成させた SOI(silicon on insulator)基板を用いた。成膜前にスパッタ処理した各々の基板上に IBSD 法により γ -FeSi₂ 薄膜を作製した⁴⁾。スパッタ蒸着は、Ar⁺イオンを加速電圧 35 kV、イオン電流 250 μ A の条件で Fe ターゲットに照射して行った。成膜速度は 0.5 nm/min、膜厚を 30 nm で一定とし、成膜中に Fe 原子の拡散及び反応を促進させるために、973 K で基板加熱しながら成膜を行った。成膜終了後にアニーリングは行わずに速やかに室温まで下げた。基板温度については放射温度計、及び Si 基板に直接取り付けられた熱電対により測定した。

発光強度の増大を図るために、試料を高真空中(10⁻⁴ Pa)で 1153 K に加熱し、24 時間かけてアニール処理を行った。アニール処理には赤外線炉を用いた。また、発光性能評価には、YAG レーザー(532 nm)を励起源とし、分光器を介して InGaAs 光電子増倍管により測定した。

作製した薄膜の結晶構造を X 線回折法 (XRD : Mac Science 社製)により、 θ -2 θ 走査で測定した。X 線源は CuK α 線 (0.1540598 nm) を用いた。また、断面構造は透過型電子顕微鏡 (TEM : JEOL 2010F, 3000F)を用いて観察した。

III. 実験結果

図-1 にアニール前後における PL スペクトル変化を示す⁷⁾。図-1(a)は Si 基板上に作製した γ -FeSi₂ 薄膜、(b) は SOI 基板上に作成した γ -FeSi₂ 薄膜の PL スペクトルの変化を示す。この発光能性の評価において、強度は異なるもののいずれの基板においても、0.81eV 周辺に発光ピークが見られ、基板のみの測定では観察されなかったことから、これらの発光は薄膜に由来するものと考えられる。さらに、図-1(a)から明らかなように γ -FeSi₂ 膜を蒸着した Si 基板を 10⁻⁴Pa 程度の真空中で長時間(5 ~ 12 時間)アニール(1123K)を行うことで、0.81eV のピーク強度が 50 倍程度、大幅に向上し、消光の基板温度が室温近くまで改善されることがわかった。一方、SOI 基板を同じくアニールしたところ、ピーク強度は減少した。この差異を明らかにするため、各々の基板上に作製した γ -FeSi₂ 薄膜について断面方向から透過型電子顕微鏡観察を行った。

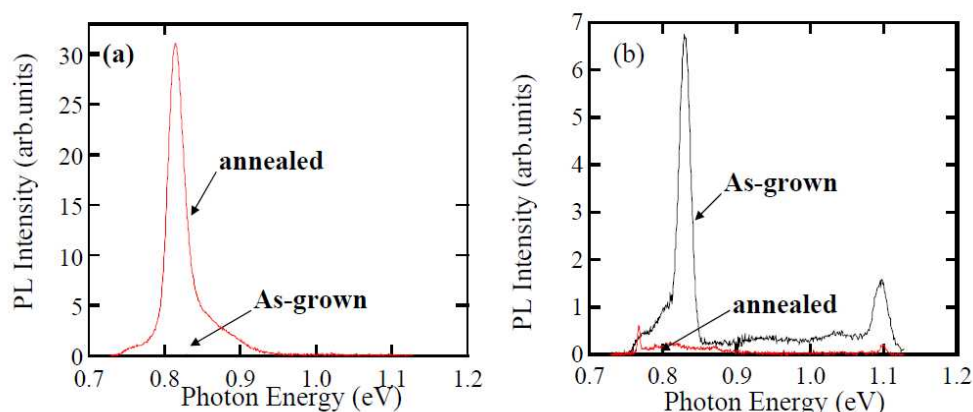


図-1 Change of the PL spectra of the fabricated γ -FeSi₂ on (a) an Si(100) and (b) SOI substrate. Each figure compares the spectra taken before and after annealing at 1153 K in vacuum (10⁻⁴ Pa).

Si(100)基板上に作製した γ -FeSi₂ 薄膜のアニール前後の断面 TEM 写真を図-2 に示す。図-2(a)はアニール前後の膜形態を示す低分解能明視野像、(b)は図-2(a)円内の高分解能明視野像を示す。アニール処理前、均

一な厚みを持った β -FeSi₂ 薄膜が、アニール処理により連続膜から、20 ~ 200 nm の大きさに凝集したシリサイド微粒子が形成された。これらのシリサイド微粒子はシリコン内に埋め込まれた形状となり、 β -FeSi₂ は Si に囲まれた形態を示している。さらに、図-2(b)の高分解能像から、Si 基板上的 β -FeSi₂ 薄膜は、シリコンに対し (100)//Si(100)のエピ関係を保ち、アニールにより結晶性が向上することが分かる。

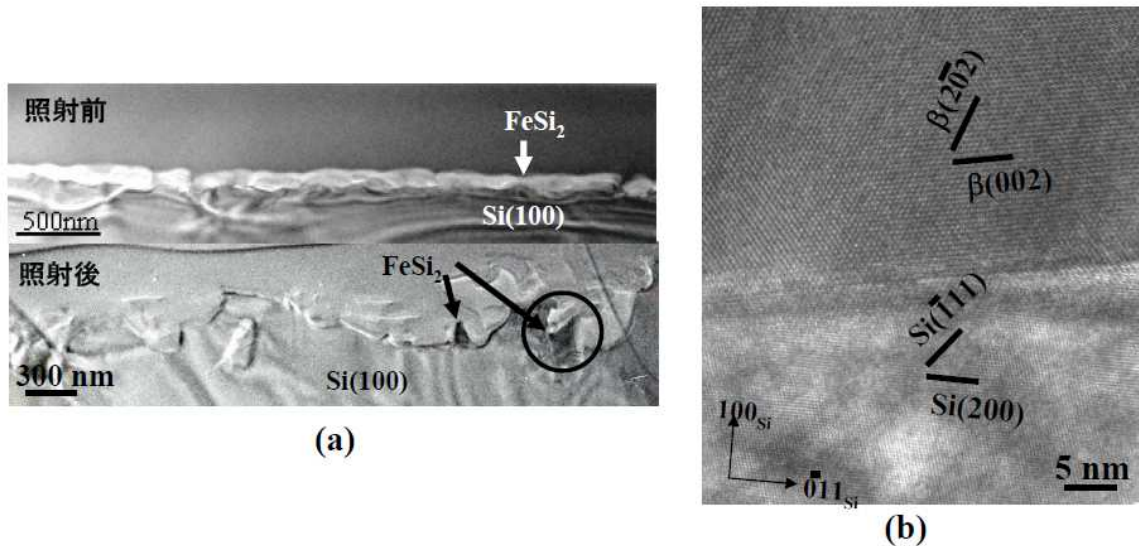


図-2 Cross sectional TEM images of the fabricated β -FeSi₂ on a Si(100) substrate with annealing at 1153 K in vacuum, (a) low magnification images, (b) high magnification image.

次に SOI 基板上に作製した β -FeSi₂ 薄膜のアニール前後の断面 TEM 写真を図-3 に示す。図-3(a)は、アニール前後の膜形態を示す低分解能明視野像、(b)は図-3(a)円内の高分解能明視野像を示す。アニール処理により絶縁層である SiO₂ の厚みが、100 nm から 400 nm に増加し、シリサイドと絶縁層の間に存在していた Si 層が消失した。また、 β -FeSi₂ 薄膜はアニール前の均一な連続膜から、20 ~ 30 nm の大きさに凝集したシリサイド微粒子に変化した。図-3(b)の高分解能像から、そのシリサイド微粒子は SiO₂ 絶縁層の上ではなく、その内部に包埋され、絶縁層に囲まれた構造であることが明らかとなった。以上の結果から、Si 基板上に蒸着した β -FeSi₂ 薄膜のアニールによる発光特性の改善には、基板 Si が重要な役割を果たしていることが考えられる。

IV. まとめ

イオンビームスパッタ蒸着 (IBSD) 法を用いて作製した β -FeSi₂ 薄膜の発光起源について検討することを目的とし、異なる基板上に成膜した β -FeSi₂ 薄膜を用いて界面の微細構造を断面 TEM 観察により検討した。アニールにより発光強度の増大した Si 基板上的 β -FeSi₂ は強く凝集し、Si との界面において激しい歪みが観察された。一方、SOI 基板上に成膜した β -FeSi₂ は界面が平坦でなく、20 ~ 30 nm サイズの結晶粒が島状に存在していた。また β -FeSi₂ 層の下に多結晶の SiO₂ 層が約 0.5 μ m 存在しており、Si との界面を形成していることが認められた。これらの結果から、 β -FeSi₂ の発光においては β -FeSi₂ と Si 層の界面構造が重要な役を担っていることを明らかにした。

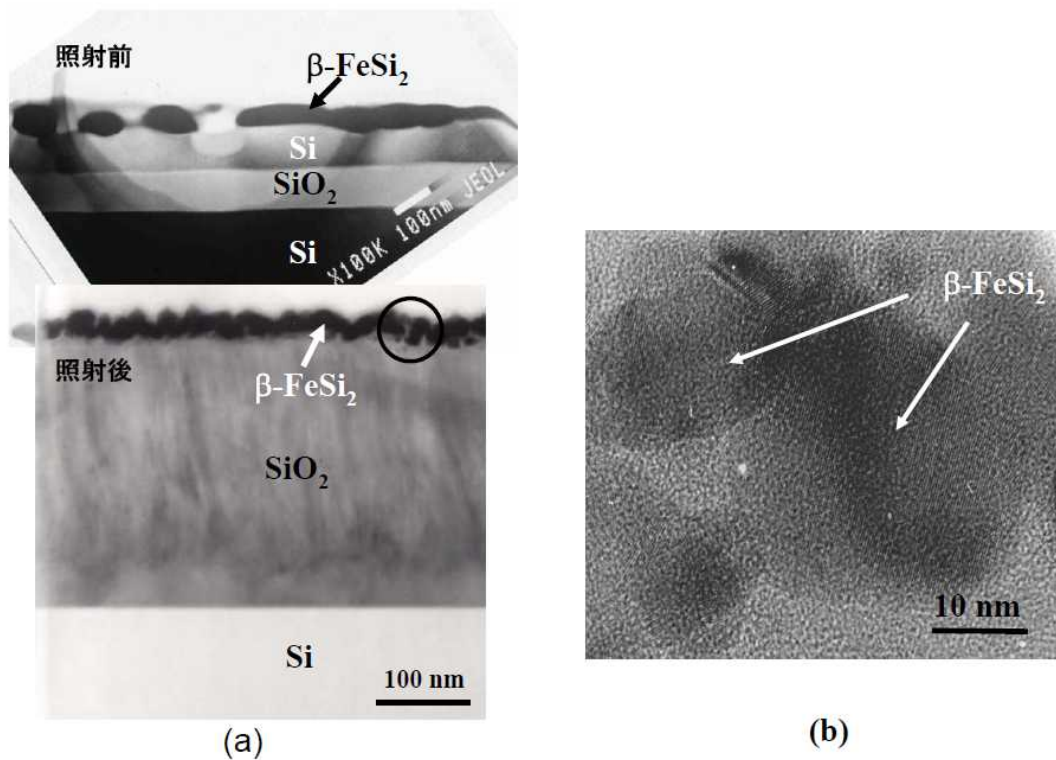


图-3 Cross sectional TEM images of the fabricated β -FeSi₂ on a SOI substrate with annealing at 1153 K in vacuum, (a) whole image of β -FeSi₂/SiO₂/Si interface (low magnification) (b) high resolution lattice image of interface region circled in Fig-2(a).

参考文献

- 1) D. Leong, M.A. Harry, K.J. Reeson, K.P. Homewood, Appl. Phys. Lett. 68 (1996) 1649.
- 2) e.g. Y. Makita, The 1st NREL Conference "Future Generation Photovoltaic Technologies" Ed.McConnell (AIP, New-York, 1997) 3.
- 3) K.M. Geib, J.E. Mahan, R.G. Long, M. Nathan, G. Bai, J. Appl. Phys. 70 (1991) 1730.
- 4) M. Sasase, T. Nakanoya, H. Yamamoto, K. Hojou, Thin Solid Films 401 (2001) 73.
- 5) H. Yamamoto, K. Yamaguchi, K. Hojou, Thin Solid Films 461 (2004) 99 (references therein).
- 6) K. Yamaguchi, K. Shimura, H. Uono, M. Sasase, H. Yamamoto, S. Shamoto, K. Hojou, Thin Solid Films 508(2006)367.
- 7) K. Shimura, K. Yamaguchi, M. Sasase, H. Yamamoto, S. Shamoto, K. Hojou, Vacuum 80(2006)719.