

整理番号	H27-J-021	報告者氏名	都甲 薫
------	-----------	-------	------

研究課題名	新機能・異種材料を集積回路に混載するためのシリコンゲルマニウム・バッファ層技術の構築		
<代表研究者>	機関名： 筑波大学	職名：助教	氏名：都甲 薫
<共同研究者>	機関名：	職名：	氏名：
	機関名：	職名：	氏名：
	機関名：	職名：	氏名：
	機関名：	職名：	氏名：
<研究内容・成果等の要約>	<p>報告者はこれまで、高キャリア移動度、光通信機能、スピン機能等を有する新材料を、絶縁膜を介してSi集積回路(LSI)に混載した「ハイブリッドLSI」を提案してきた。本研究では、その要素技術となる「格子定数可変バッファ層」を構築するため、絶縁体上において(111)面方位に配向した大粒径 (&gt;10 μm) Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> (x: 0-1) 薄膜の低温形成 (&lt;500°C) を目指した。</p> <p>その形成手法として、報告者の独自シーズ技術となる「Al誘起層交換法」を検討した。本手法は、AlとGeの層交換を通して、絶縁基板上に高配向・大粒径膜を低温で得る手法であり、現在、国内外で注目を集めている。本手法をSi<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> (x: 0-1) に応用した結果、SiGe組成によって、成長速度が劇的に異なることが判明した。この原因について、成長速度の熱力学的な考察から、「Ge組成の増加に伴い、核発生および核成長に必要な活性化エネルギーが低下すること」と結論付けた。さらに、核発生および核成長の頻度因子の観点から考察を深め、「SiGeの全組成域における大粒径化が本質的に可能であること」を明らかにした。</p> <p>以上の知見を基に、各SiGe組成に対して適切な成長温度を見出すことによって、SiGe全組成域において、当初目標を上回る(111)配向率 (&gt;95%) および結晶粒径 (&gt;50 μm) を実現した。これらの配向性および結晶粒径は、絶縁体上のSiGe薄膜として従来最高値となる。また、これまでSiやGeの成長法をSiGeに適用した例は多々あるが、Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> (x: 0-1) の全組成域で同様の結晶性が得られたのは本研究が初めてである。さらに、SiGe薄膜の形成温度は全組成域で400°Cを下回った。これは、Si-LSIを損傷しない温度であることに加え、プラスチック(ポリイミド)の耐熱温度以下である。ハイブリッドLSIのみならず、フレキシブル・デバイスの実現にも直結する成果である。</p> <p>本研究をご支援いただいた泉科学技術振興財団の関係者の方々に心より御礼申し上げます。</p>		

## &lt; 研究発表（口頭、ポスター、誌上別） &gt;

- [1] (招待講演、口頭) 都甲 薫, 山本 淳, 末益 崇,  
“SiGe 薄膜の低温合成技術と熱電変換への応用”  
応用物理学会シリコンテクノロジー分科会研究集会, つくば, Nov. 14 (2016).
- [2] (招待講演、口頭) 都甲 薫, 末益 崇,  
“IV 族半導体薄膜の金属誘起層交換成長 —現象の理解と制御—”  
第 8 回半導体材料・デバイスフォーラム, 熊本, Nov. 5 (2016).
- [3] (口頭) 中田 充紀, 都甲 薫, 山本 淳, 末益 崇,  
“ガラス上 Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> 薄膜の Al 誘起成長と熱電特性評価”  
第 77 回応用物理学会秋季学術講演会 16p-D61-4, 新潟, September 16 (2016).
- [4] (口頭) 中田 充紀, 都甲 薫, 末益 崇,  
“Al 誘起成長法による大粒径 Si<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>(111) 絶縁体の形成”  
第 76 回応用物理学会秋季学術講演会 13a-2W-4, 名古屋, September 13 (2015).
- [5] (Poster) M. Nakata, K. Toko, and T. Suemasu,  
“Al-Induced Crystallization of Intermediate-Composition SiGe on Insulator”  
47th International Symposium on Control of Semiconductor Interfaces (ISCSI-VII) and International SiGe Technology and Device Meeting 2016 (ISTDM2016), FE-PB-18, Nagoya, Japan, June 10, 2016.
- [6] M. Nakata, K. Toko, N. Saitoh, N. Yoshizawa, T. Suemasu,  
“Orientation control of intermediate-composition SiGe on insulator by low-temperature Al-induced crystallization”  
Scr. Mater. 122, 86–88 (2016).

<研究の目的、経過、結果、考察（5000 字程度）>

**【1】研究の目的**

ユビキタス情報社会の中核を担うシリコン集積回路（Si-LSI）の高度化に向け、高キャリア移動度、光通信機能、スピン機能等を有する新材料を活用する「材料革命」が進められている。そのような中、報告者はハイブリッド LSI 構造を提案している（図 1）。ハイブリッド LSI では、チップ面積の大半を占める記憶回路が Si(100)基板上に、新機能素子が絶縁膜を介して 3 次元的にモノリシック集積され、低電力損失配線で連絡される。スケーリング限界（超高速・極低消費電力動作）を材料側から革新し、LSI を超高性能・多機能化する提案である。

ハイブリッド LSI 実現の鍵となる技術は、「絶縁膜上に多様な材料を形成する技術」である。本研究では、「格子定数が変調可能な『格子定数可変（Lattice constant Controlled : LC）バッファ層』を絶縁膜上に形成し、その上に新機能材料をヘテロエピタキシャル成長する」とのアプローチを提案すると共に、LC バッファ層技術を構築することを目的とする（図 2）。

**【2】研究の経過**

報告者は、LC バッファ層の材料として、(111)面方位の  $Si_{1-x}Ge_x$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) に着眼してきた。SiGe (111) は、組成を変調することによって、電子・光・スピン機能を有する種々の III-V 族、II-VI 族化合物やシリサイド材料に格子整合する（図 3）。また、逆に格子定数にミスマッチを持たせて「歪み」を印可すれば、バンドエンジニアリングが可能となる。高正孔移動度の歪 Ge と高電子移動度の III-V 族化合物半導体を融合した高速 CMOS 等が、絶縁膜上に創出される。即ち、本提案の LC バッファ層技術の構築により、Si-LSI 中に超高機能デバイス混載することが可能となる。

したがって、本研究の具体的な目標は、デバイスサイズ（10 μm）かつ（111）面に方位制御された  $Si_{1-x}Ge_x$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) 結晶を、絶縁膜上に結晶成長することとなる。報告者はこれまでに、大粒径（>100 μm）かつ（111）面方位を有する Si 及び Ge 結晶を絶縁膜上に形成する独自技術を開発した。本技術を  $Si_{1-x}Ge_x$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) 混晶へ展開し、理想的な LC バッファ層を創出する。

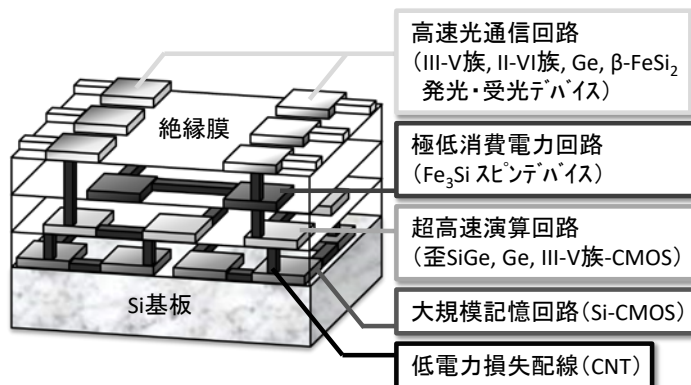


図 1. 超高性能・多機能ハイブリッド LSI

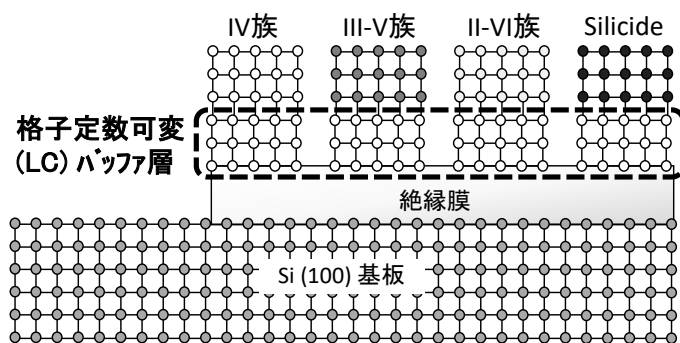


図 2. ハイブリッド LSI の基本構造

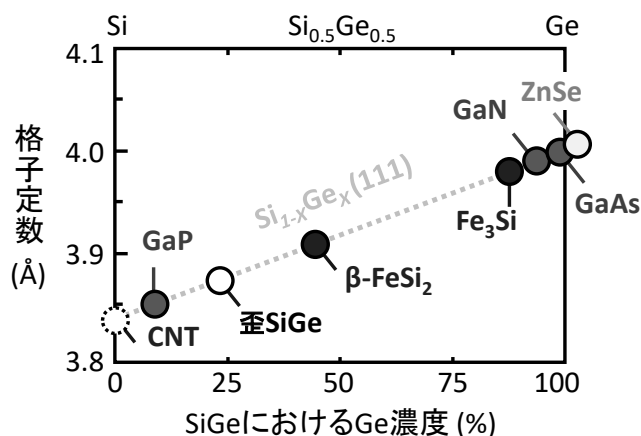


図 3. SiGe の組成比/格子定数とヘテロエピタキシャル材料

### 【3】 研究の結果と考察

料作製手順を図4に示す。石英ガラス基板に、Al 薄膜 (50 nm) をスパッタリング堆積し、試料を 30 分間大気に暴露することで、Al 表面に酸化膜を形成した。酸化膜形成後、 $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  薄膜 (70 nm) をスパッタリング堆積した。堆積完了後、光学顕微鏡でその場観察を行いながら熱処理を施し、Al 誘起層交換成長 (AIC) を誘起した。層交換成長後の試料を HF (1.5%) に 2 min 浸漬し、表面の Al を除去した。Al 除去後の試料に対し、電子線後方散乱回折 (EBSD) 法を用いることで配向性・結晶粒径の評価を行った。

その場観察の結果から、成長速度を算出した。例として、図5に 425 °C の熱処理中における  $\text{Si}_{0.85}\text{Ge}_{0.15}$  試料の光学顕微鏡像を示す。顕微鏡観察は試料裏面から行った。熱処理時間の増加に伴い、Al 層中に  $\text{Si}_{0.85}\text{Ge}_{0.15}$  の結晶核が生じ、やがて拡大していく様子が観察される。

異なる温度で熱処理した際の核密度とドメインの直径の時間変化を図6にまとめた。図6(a)に示す通り、熱処理温度の高温化に伴い、核密度の飽和値が増加した。また、核密度の増加曲線の傾きである核発生頻度も増加した。図6(b)に示したドメイン径の時間変化からは、低温化に伴って飽和ドメイン径が増加したことが分かる。成長温度が高温であるほど、時間当たりのドメイン径の増加率にあたる、横方向成長速度は大きくなった。

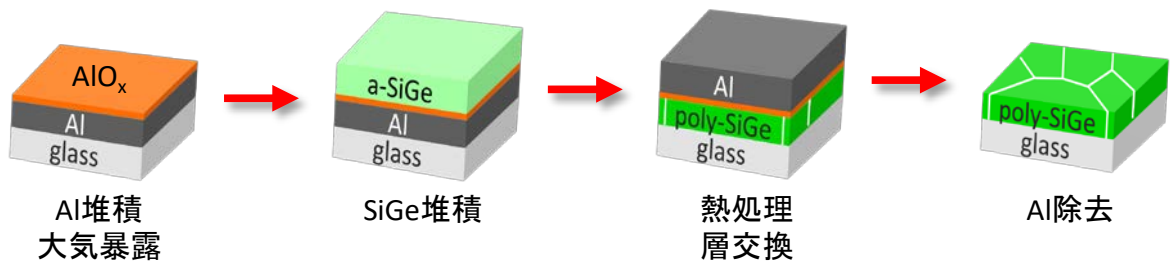


図4. 試料作製手順

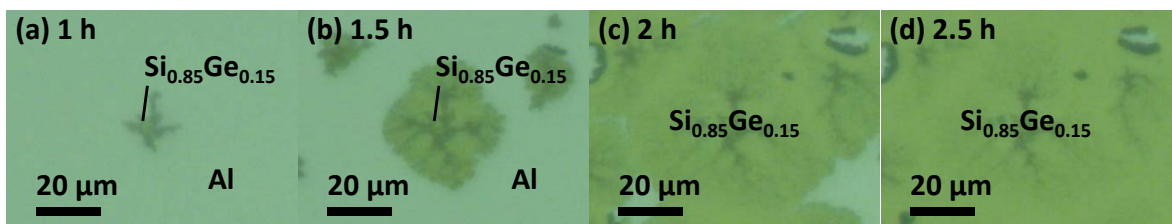


図5. 425 °C熱処理中における $\text{Si}_{0.85}\text{Ge}_{0.15}$ 試料の光学顕微鏡像

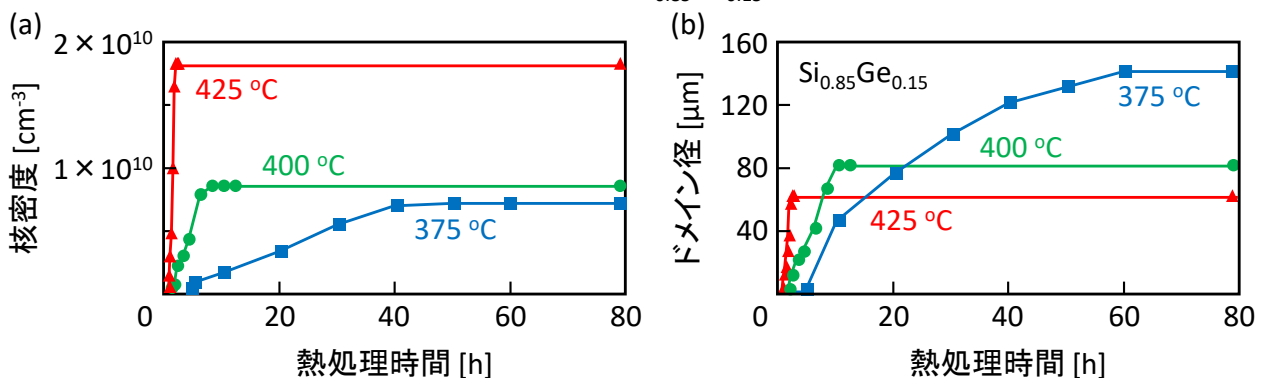


図6. 熱処理中における (a) 核密度と (b) 結晶ドメイン径の時間変化

Si<sub>0.85</sub>Ge<sub>0.15</sub> と同様の観察を  $x = 0, 0.3, 0.6, 1$  の Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> に対しても行い、熱処理温度に対する核発生頻度および横方向成長速度をアレニウスプロットした。結果を図7にまとめる。これらの直線の傾きから、核発生と横方向成長の核発生エネルギーと頻度因子を算出し、図8に示す。核発生および横方向成長の活性化エネルギーは、Ge 組成比が増えるにつれて減少した。Ge 組成比が増えるほど低温で結晶化可能であることを示している。また、核発生と横方向成長の活性化エネルギーの差は一定である。Ge や Si 単体と同様に、Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> 全組成域で大粒径化が可能であることが示唆される。活性化エネルギーと同様に、頻度因子も Ge 組成が増えるにつれて減少した。頻度因子とは、反応分子同士が衝突する頻度を表しており、平均速度に比例して増加する。重い原子ほど平均移動速度が遅く、衝突頻度が小さくなることが予想されるため、今回の傾向は妥当であると考えられる。

Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> 薄膜に対して、EBSD 法により結晶性を評価した結果を図9に示す。適切な成長温度を選択することにより、全ての組成で95%以上の高 (111) 配向を実現すると共に、当初の目標 (10 μm) を上回る 50 μm 以上の大粒径を達成した。LC バッファ層技術の構築である。

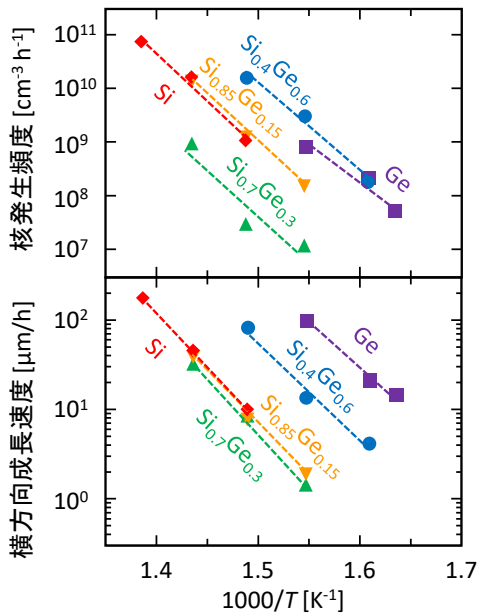


図7. (a) 核発生頻度と(b) 横方向成長速度のアレニウスプロット

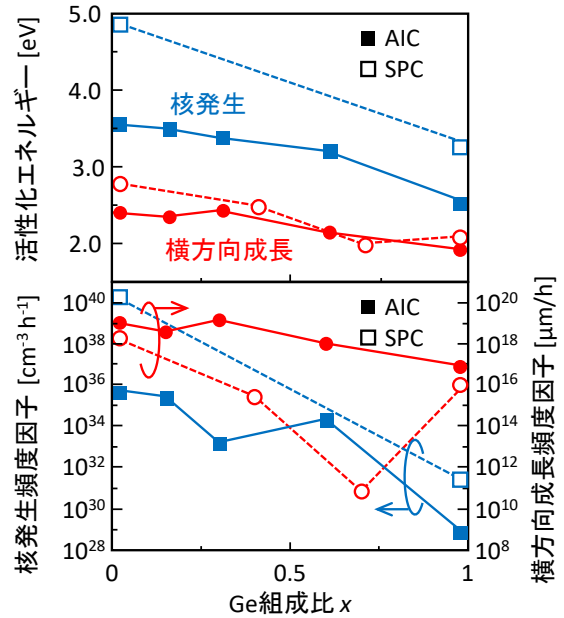


図8. (a) 活性化エネルギーと(b) 頻度因子のGe組成比依存性

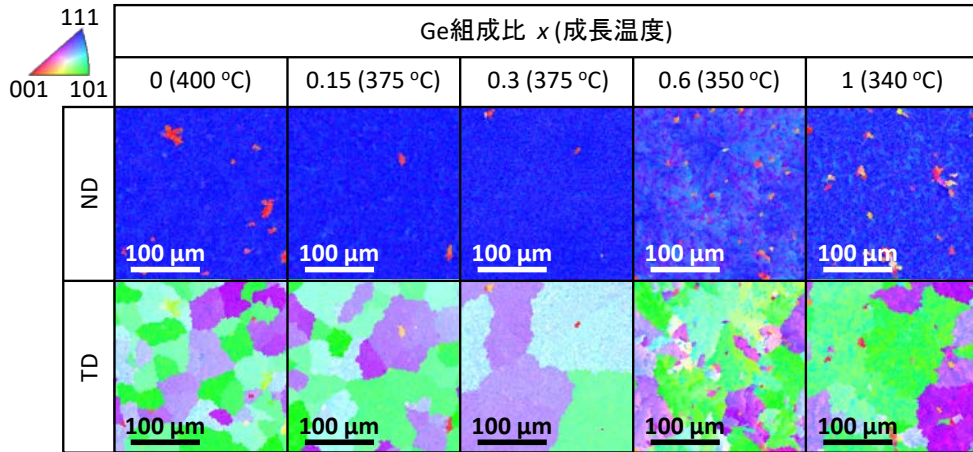


図9. Al誘起成長Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>のEBSD像