

平成 30 年 6 月 20 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03976

研究課題名(和文) 絶縁膜上におけるGeSn結晶の低温成長と三次元LSI超高速トランジスタへの応用

研究課題名(英文) Low temperature growth of GeSn crystals on insulator and application to high-speed transistors for three dimensional LSI

研究代表者

佐道 泰造 (SADOH, Taizoh)

九州大学・システム情報科学研究院・准教授

研究者番号：20274491

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：集積回路は、それを構成するトランジスタの微細化により、性能を向上してきたが、短チャネル効果の顕在化、金属配線の寄生抵抗・寄生容量による配線遅延の増加などにより、さらなる微細化による集積回路の性能向上が困難となっている。集積回路のさらなる性能向上には、従来材料(Si)で構成される大規模集積回路の上に、Siよりも高性能な新材料GeSnで構成される高速トランジスタや光配線を融合し、三次元集積回路を構築することが有効である。その実現を目指し、本研究では、絶縁膜上に高品質なGeSnを低温形成するプロセス技術の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：Performance of large-scale integrated circuits has been improved through scaling of the transistors. However, further improvement through the scaling is becoming difficult, due to the short channel effects and propagation delay owing to parasitic resistance and capacitance of metal wiring. For further improvement of performance of the large-scale integrated circuits, it is useful to integrate high-speed transistors and optical interconnection, consisting of a novel material GeSn with superior electronic and optical properties compared with Si, on Si-based large-scale integrated circuits and build three-dimensional large-scale integrated circuits. To achieve this, in the present study, techniques to obtain high quality GeSn on insulator at low temperatures have been developed.

研究分野：工学

キーワード：電子・電気材料 IV族系ヘテロ半導体

## 1. 研究開始当初の背景

集積回路は、それを構成するシリコン(Si)・トランジスタの微細化により高性能化を実現してきたが、さらなる微細化による性能向上のアプローチが物理的限界を迎えている。このため、次世代の高性能集積回路を実現するには、Siよりも優れた特性を有する新材料を用いて高速トランジスタや発光デバイスを形成して集積回路に三次元混載することが有効な手段となる。

その新材料として、GeSnに注目が集まっている。Geのキャリア移動度は高いが、Snを導入すれば、バンド構造が直接遷移化し、キャリアの有効質量が低減する。その結果、キャリア移動度がさらに増加すると理論予測されている。三次元集積回路の実現のため、絶縁膜上にGeSnを低温形成する技術の開発が求められている。

## 2. 研究の目的

上記背景のもと、本研究では、絶縁膜上に高品質なGeSnを低温形成するプロセス技術を開発し、異種機能を融合した三次元LSIの基盤技術を創成する。

## 3. 研究の方法

### GeSn/絶縁膜の成長特性の解明

固相成長法や触媒成長法によるGeSn薄膜の成長特性を検討する。SnはGeに比べ結合エネルギーが小さいので、GeにSnを添加すると原子間結合力が弱化し、結晶化反応の活性化エネルギーが低下する。その結果、GeSnでは、核発生の速度が、純Geより上昇すると予想される。核発生速度の上昇に伴う核密度の増加は、GeSn小粒径化の要因となるので、核発生速度の適正化が必須となる。また、核発生の機構は、膜厚により変化する可能性がある。そこで、成長層の結晶構造に与えるSn濃度や膜厚の効果を解明する。

### GeSn/絶縁膜の大粒径成長プロセスの構築

成長層の大粒径化には、熱処理の低温化が有効である。また、触媒成長法においては、拡散制御層によるGe, Sn原子供給の抑制も大粒径化に有効である。そこで、成長特性に与える熱処理温度や拡散制御層の効果を検討し、大粒径成長のプロセス指針を明らかにする。

## 4. 研究成果

### GeSn/絶縁膜の成長特性の解明

固相成長法および触媒成長法によるGeSnの結晶成長プロセスの検討を行った。GeSnの層交換成長では、触媒層中の核発生温度が、純Geより低温化することを明らかにした。SnはGeに比べ結合エネルギーが小さいため、GeにSnを添加すると原子間結合力が

が弱化する。固相成長法においては、Sn添加により結晶化反応の活性化エネルギーが低下することが知られていたが、触媒を用いた層交換成長においても、Sn添加による成長促進の効果が発現することが明らかとなった。

成長層の電気特性に与えるSn濃度や膜厚などの効果を系統的に明らかにし、これらのパラメータを適正化することで、絶縁膜上における高キャリア移動度( $550\text{cm}^2/\text{Vs}$ )を有するGeSn薄膜の低温形成( $450^\circ\text{C}$ )を実現した。この移動度は、絶縁膜上に形成したGeやGeSnに関する従来の報告例を凌駕する成果である。

さらに、GeSn薄膜の固相成長に与える初期非晶質性の効果を検討し、初期非晶質性の変調により固相成長温度が大幅に低温化( $160^\circ\text{C}$ )することを明らかにした。

### 大粒径成長プロセスの構築

GeSn結晶の大粒径成長には、核発生速度を低く保ちつつ、核成長を促進する必要がある。そこで、拡散障壁の膜厚、熱処理温度、Sn濃度をパラメータとして、成長特性の検討を行い、核発生プロセスと核成長プロセスの解析を行った。その結果、核発生プロセスの制御には、触媒層への半導体原子の供給速度、核成長プロセスの制御には、熱処理温度を変調することが有効であることを明らかにした。さらに、核の発生位置を制御する手法を検討し、絶縁膜上の指定された位置に大粒径GeSn結晶を形成するプロセス指針を明らかにした。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計22件)

“Novel growth techniques of group-IV based semiconductors on insulator for next-generation electronics”

M. Miyao and T. Sadoh

Japanese Journal of Applied Physics Vol. 56, pp. 05DA06-1-14 (2017) (査読有)

<https://doi.org/10.7567/JJAP.56.05DA06>

“Low-temperature ( $<200^\circ\text{C}$ ) solid-phase crystallization of high substitutional Sn concentration ( $\sim 10\%$ ) GeSn on insulator enhanced by weak laser irradiation”

K. Moto, T. Sugino, R. Matsumura, H. Ikenoue, M. Miyao, and T. Sadoh

AIP Advances 7, 075204-1-6 (2017) (査読有)

<http://dx.doi.org/10.1063/1.4993220>

“Quasi-single crystal SiGe on insulator by Au-induced crystallization for flexible electronics”

T. Sadoh, J.-H. Park, R. Aoki, and M. Miyao

Japanese Journal of Applied Physics Vol.55, pp.03CB01-1-4 (2016) (査読有)  
doi.org/10.7567/JJAP.55.03CB01

“Low-Temperature Formation of Large-Grain ( $\geq 10 \mu\text{m}$ ) Ge at Controlled-Position on Insulator by Gold-Induced Crystallization Combined with Diffusion-Barrier Patterning”

R. Aoki, J.-H. Park, M. Miyao, and T. Sadoh  
ECS Journal of Solid State Science and Technology, Vol.5, No.3, pp.179-182 (2016) (査読有)  
doi.org/10.1149/2.0161603jss, pp179-182

“Low-temperature ( $\leq 300 \text{ }^\circ\text{C}$ ) formation of orientation-controlled large-grain ( $\geq 10 \mu\text{m}$ ) Ge-rich SiGe on insulator by gold-induced crystallization”

T. Sadoh, J.-H. Park, R. Aoki, M. Miyao  
Thin Solid Films Vol.602, pp.3-6 (2016) (査読有)  
dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2015.10.057

“Low-Temperature Growth of Orientation-Controlled Large-Grain Ge-Rich SiGe on Insulator at Controlled-Position for Flexible Electronics”

T. Sadoh, R. Aoki, T. Tanaka, J.-H. Park, and M. Miyao  
ECS Transactions, Vol.75, No.10, pp.95-103 (2016) (査読有)  
10.1149/07510.0095ecst

“Low-Temperature Formation of Sn-Doped Ge on Insulating Substrates by Metal-Induced Crystallization”

T. Sakai, R. Matsumura, T. Sadoh, and M. Miyao  
ECS Transactions, Vol.75, No.10, pp. 105-108 (2016) (査読有)  
10.1149/07510.0105ecst

“High carrier mobility of Sn-doped polycrystalline-Ge films on insulators by thickness-dependent low-temperature solid-phase crystallization”

T. Sadoh, Y. Kai, R. Matsumura, K. Moto, and M. Miyao  
Applied Physics Letters Vol.109, pp.232106-1-5 (2016) (査読有)  
dx.doi.org/10.1063/1.4971825

“High quality, giant crystalline-Ge stripes on insulating substrate by rapid-thermal-annealing of Sn-doped amorphous-Ge in solid-liquid coexisting region”

R. Matsumura, Y. Kai, H. Chikita, T. Sadoh, and M. Miyao  
AIP Advances Vol.5, pp.067112-1-7 (2015) (査読有)  
doi: 10.1063/1.4922266

“Ultra-low temperature ( $\leq 300 \text{ }^\circ\text{C}$ ) growth of Ge-rich SiGe by solid-liquid-coexisting annealing of a-GeSn/c-Si structures”

T. Sadoh, H. Chikita, R. Matsumura and M. Miyao  
Journal of Applied Physics, Vol. 118, pp. 095707-1-6 (2015) (査読有)  
doi.org/10.1063/1.4929878

“Thickness Dependent Solid-Phase Crystallization of Amorphous GeSn on Insulating Substrates at Low Temperatures ( $\leq 250 \text{ }^\circ\text{C}$ )”

R. Matsumura, M. Sasaki, H. Chikita, T. Sadoh, and M. Miyao  
ECS Solid State Letters, Vol.4, pp. 95-97 (2015) (査読有)  
doi.org/10.1149/2.0021512ssl

“Low-temperature ( $\sim 180 \text{ }^\circ\text{C}$ ) position-controlled lateral solid-phase crystallization of GeSn with laser-anneal seeding”

R. Matsumura, H. Chikita, Y. Kai, T. Sadoh, H. Ikenoue, and M. Miyao  
Applied Physics Letters Vol.107, pp.262106-1-5 (2015) (査読有)  
doi.org/10.1063/1.4939109

[学会発表] (計 99 件)

“(Invited) Low-Temperature Crystallization of Group-IV Semiconductors on Insulator Using Catalysis”

T. Sadoh, M. Miyao, and I. Tsunoda  
11th International WorkShop on New Group IV Semiconductor Nanoelectronics (2018)

“Low-Temperature Formation of n-Type Ge on Insulator by Sb-Induced Layer Exchange Crystallization”

H. Gao, M. Miyao, and T. Sadoh  
11th International WorkShop on New Group IV Semiconductor Nanoelectronics (2018)

“Low-Temperature ( $\sim 250 \text{ }^\circ\text{C}$ ) Growth of Large-Grain Sn-Doped Ge (100) on Insulator by Al-Induced Crystallization for Flexible Electronics”

M. Sasaki, M. Miyao, and T. Sadoh  
10th International WorkShop on New Group IV Semiconductor Nanoelectronics (2017)

“Weak-Laser-Irradiation-Enhanced Solid-Phase Crystallization of GeSn-on-Insulator at Low-Temperature ( $180 \text{ }^\circ\text{C}$ ) - Thickness-Dependent High Substitutional-Sn-Concentration -“

T. Sugino, K. Moto, H. Ikenoue, M. Miyao, and T. Sadoh

17th International Workshop on Junction Technology 2017 (2017)

“Formation of n-Type Ge on Insulator by Low-Temperature Sb-Induced Layer Exchange Crystallization”

H. Gao, R. Aoki, M. Sasaki, M. Miyao, and T. Sadoh

17th International Workshop on Junction Technology 2017 (2017)

“Low-Temperature Formation of n-Type Ge/Insulator by Sb-Induced Layer Exchange Crystallization”

H. Gao, R. Aoki, M. Sasaki, M. Miyao, and T. Sadoh

The 24th International Workshop on Active-Matrix Flatpanel Displays and Devices (2017)

“Thickness-Dependent Substitutional-Sn-Concentration in GeSn-on-Insulator by Weak-Laser-Irradiation-Enhanced Solid-Phase Crystallization at Low-Temperature (180°C)”

T. Sugino, K. Moto, H. Ikenoue, M. Miyao, and T. Sadoh

24th International Workshop on Active-Matrix Flatpanel Displays and Devices (2017)

“High Substitutional-Sn-Concentration GeSn-on-Insulator by Weak-Laser-Irradiation-Enhanced Solid-Phase Crystallization at Low-Temperature (~170°C)”

T. Sugino, K. Moto, R. Matsumura, H. Ikenoue, M. Miyao, and T. Sadoh

2017 International Conference on Solid-State Devices and Materials (2017)

“Low-Temperature Sb-Induced Layer Exchange Crystallization for Self-Limiting Formation of n-Type Ge/Insulator”

H. Gao, R. Aoki, M. Miyao, and T. Sadoh

2017 International Conference on Solid-State Devices and Materials (2017)

“(招待講演)触媒成長法を用いたIV族半導体/絶縁膜の低温形成 - 高性能フレキシブル・エレクトロニクスの創出を目指して - ”

佐道泰造, 宮尾正信, 角田功  
第78回応用物理学会 秋季学術講演会 (2017)

“Formation of GeSn Crystals with High Sn Concentration on Insulating Substrate by Pulsed Laser-Annealing”

K. Moto, R. Matsumura, T. Sadoh, H. Ikenoue and M. Miyao

9th International Workshop on New Group IV Semiconductor Nanoelectronics (2016)

“Low Temperature (~150°C) Au-Induced Lateral Growth of a-GeSn on Insulator”

T. Sakai, R. Matsumura, T. Sadoh and M. Miyao  
9th International Workshop on New Group IV Semiconductor Nanoelectronics (2016)

“Position-Controlled Ge Crystals on Insulator at Low Temperature ( $\leq 300^\circ\text{C}$ ) by Spatially-Modulated Gold-Induced Crystallization”

R. Aoki, T. Tanaka, Jong-Hyeok Park, M. Miyao, and T. Sadoh

8th International SiGe Technology and Device Meeting (2016)

“Formation of High-Mobility Ge(Sn) on Insulator by Low-Temperature (~400°C) Solid-Phase Crystallization”

Y. Kai, R. Matsumura, T. Sadoh, and M. Miyao  
8th International SiGe Technology and Device Meeting (2016)

“Low Temperature (<250°C) Au-Induced Lateral Crystallization of Sn-Doped Ge on Insulator”

T. Sakai, R. Matsumura, T. Sadoh, and M. Miyao  
8th International SiGe Technology and Device Meeting (2016)

“Large-Grain Sn-Doped Ge (100) on Insulator by Aluminum-Induced Crystallization at Low-Temperature for Flexible Electronics”

M. Sasaki, M. Miyao, and T. Sadoh  
Active-Matrix Flatpanel Displays and Devices 2016 (2016)

“Formation and Analysis of GeSn on Insulator with Non-Thermal Equilibrium Sn Concentration Obtained by Pulsed Laser-Annealing”

K. Moto, R. Matsumura, T. Sadoh, H. Ikenoue, and M. Miyao

Asia-Pacific Conference on Semiconducting Silicides and Related Materials 2016 (2016)

“Low-Temperature Formation of Position-Controlled Large-Grain Ge on Insulator by Gold-Induced Crystallization Combined with Localized Nucleation”

T. Sadoh, R. Aoki, T. Tanaka, and M. Miyao  
Asia-Pacific Conference on Semiconducting Silicides and Related Materials 2016 (2016)

“Low-Temperature ( $\leq 300^\circ\text{C}$ ) Nano-Seeding Growth of Position-Controlled Large-Grain Germanium on Insulator for Flexible Electronics”

T. Sadoh, R. Aoki, T. Tanaka, M. Miyao  
XIII International Conference on Nanostructured Materials (2016)

“Thickness-Controlled Low-Temperature (~380°C) Solid-Phase Crystallization of Sn-Doped Poly-Ge/Insulator for High Carrier Mobility (~320 cm<sup>2</sup>/Vs)”

K. Moto, T. Sadoh, Y. Kai, R. Matsumura, and M. Miyao

International Conference on Solid State Devices and Materials 2016 (2016)

②① “Low-Temperature Gold-Induced Lateral Crystallization of Sn-Doped Ge on Insulator for Flexible Electronics”

T. Sakai, T. Sadoh, R. Matsumura, and M. Miyao  
International Conference on Solid State Devices and Materials 2016 (2016)

②② “Thermally-Stable High Sn Concentration (~9%) GeSn on Insulator by Ultra-Low Temperature (~180°C) Solid-Phase Crystallization Triggered by Laser-Anneal Seeding”

R. Matsumura, K. Moto, Y. Kai, T. Sadoh, H. Ikenoue, and M. Miyao

International Conference on Solid State Devices and Materials 2016 (SSDM)

②③ “Low-Temperature Formation of Sn-Doped Ge on Insulating Substrates by Metal-Induced Crystallization”

T. Sakai, R. Matsumura, T. Sadoh, and M. Miyao  
Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (2016)

②④ “(Invited) Low-Temperature Growth of Orientation-Controlled Large-Grain Ge-Rich SiGe on Insulator at Controlled-Position for Flexible Electronics”

T. Sadoh, R. Aoki, T. Tanaka, J. H. Park, and M. Miyao

Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (2016)

②⑤ “High Carrier Mobility (~320 cm<sup>2</sup>/Vs) of Sn-Doped Poly-Ge on Insulator by Low-Temperature Solid-Phase Crystallization”

T. Sadoh, Y. Kai, K. Moto, R. Matsumura, and M. Miyao

Materials Research Society, 2016 MRS Fall Meeting & Exhibit (2016)

②⑥ “Low-Temperature (<250°C) Lateral Crystallization of Sn-Doped Ge-on-Insulator Enhanced by Au Catalysis”

T. Sakai, T. Sadoh, R. Matsumura, and M. Miyao  
Materials Research Society, 2016 MRS Fall Meeting & Exhibit (2016)

②⑦ “Low temperature solid phase crystallization of GeSn on insulator for flexible electronics”

R. Matsumura, M. Sasaki, H. Chikita, M. Miyao, T. Sadoh

The 11th International Nanotechnology Conference on Communication and Cooperation (2015)

②⑧ “Sn-precipitation-suppressed solid-phase epitaxy of GeSn on Ge at low-temperatures (~150°C)”

T. Sadoh, A. Ooato, J. -H. Park, H. M. Miyao

The 11th International Nanotechnology Conference on Communication and Cooperation (2015)

②⑨ “Orientation-controlled large-grain SiGe on insulator by gold-induced crystallization at low-temperature for flexible opto-electronics”

T. Sadoh, J.-H. Park, R. Aoki, M. Miyao

The 11th International Nanotechnology Conference on Communication and Cooperation (2015)

③⑩ “Thickness dependent solid phase crystallization of amorphous GeSn on insulating substrates”

R. Matsumura, M. Sasaki, H. Chikita, T. Sadoh, and M. Miyao

The 9th International Conference on Silicon Epitaxy and Heterostructures (2015)

③⑪ “Low Temperature (<200°C) position controlled Solid Phase Crystallization of GeSn combined with Laser Anneal Seeding”

R. Matsumura, H. Chikita, T. Sadoh, H. Ikenoue, and M. Miyao

The 9th International Conference on Silicon Epitaxy and Heterostructures (2015)

③⑫ “Melting Sn Induced Low-Temperature Seeding for Position Controlled Giant GeSn Crystal Arrays”

Y. Kai, H. Chikita, R. Matsumura, T. Sadoh, and M. Miyao

The 9th International Conference on Silicon Epitaxy and Heterostructures (2015)

③⑬ “High Sn-Concentration (~8%) GeSn by Low-Temperature (~150°C) Solid-Phase Epitaxy of a-GeSn/c-Ge”

T. Sadoh, A. Ooato, J.-H. Park, and M. Miyao

The 9th International Conference on Silicon Epitaxy and Heterostructures (2015)

③⑭ “Low-Temperature (≤300°C) Formation of Orientation-Controlled Large-Grain (≥10 μm) Ge-Rich SiGe on Insulator by Gold-Induced Crystallization”

T. Sadoh, J.-H. Park, R. Aoki, and M. Miyao

The 9th International Conference on Silicon Epitaxy and Heterostructures (2015)

③⑤ “Quasi-Single Crystal SiGe on Insulator by Au-Induced Crystallization for Flexible Electronics”

T. Sadoh, J-H Park, R. Aoki, and M. Miyao

The 22nd International Workshop on Active-Matrix Flatpanel Displays and Devices (2015)

③⑥ “Low-Temperature (~150°C) Solid-Phase Epitaxy of a-GeSn/c-Ge for High Non-Equilibrium Substitutional Sn-Concentration GeSn”

T. Sadoh, A. Ooato, J.-H. Park, and M. Miyao

International Conference on Solid State Devices and Materials 2015 (2015)

③⑦ “(Invited) Gold-induced low-temperature ( $\leq 300^\circ\text{C}$ ) growth of quasi-single crystal SiGe on insulator for advanced flexible electronics”

T. Sadoh, J.-H. Park, R. Aoki, M. Miyao

The 228th ECS Meeting (2015)

③⑧ “Effects of Diffusion-Barrier-Patterning on Formation of Position-Controlled Ge-on-Insulator by Gold-Induced Crystallization at Low Temperatures ( $\leq 300^\circ\text{C}$ )”

R. Aoki, J-H Park, M. Miyao, and T. Sadoh

2015 International Electron Devices and Materials Symposium (2015)

## 6 . 研究組織

### (1) 研究代表者

佐道 泰造 (SADOH, Taizoh)

九州大学・システム情報科学研究所・准教授

研究者番号：20274491