

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 15 日現在

機関番号：57403

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26870815

研究課題名(和文) 触媒成長を用いた 族半導体結晶形成プロセスの極低温化

研究課題名(英文) Development of low temperature formation for group IV crystalline semiconductor film on insulating substrate by catalytic crystallization method

研究代表者

角田 功 (TSUNODA, Isao)

熊本高等専門学校・情報通信エレクトロニクス工学科・准教授

研究者番号：00585200

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、絶縁基板上への結晶半導体薄膜形成温度の低温化(ターゲット温度：150)を目指し、絶縁膜上におけるGe結晶の低温形成プロセスを創出した。我々は、盛んに研究されている金属誘起形成プロセスに非熱エネルギー(電子線、応力)を組み合わせたところ、絶縁基板上の非晶質Geの結晶成長が大幅に促進すること、特に、応力を組み合わせることで150以下の低温で結晶成長が誘起されるとの手法を開発した。また、絶縁基板上に面方位の揃った結晶Geの形成にも試み、(111)に優先配向した結晶Ge薄膜を絶縁基板上に形成することに成功した。

研究成果の概要(英文)：The low temperature (150) formation technique for crystalline Ge on insulating substrate have been investigated. We have clearly confirmed that the solid phase crystallization significantly enhanced by utilizing both electron beam irradiation and stress stimulation. In particularly, when stress stimulation utilized, low temperature (~150) crystallization for amorphous Ge on insulating substrate was realized. Furthermore, we have realized that the orientation controlled crystalline Ge on insulating substrate by catalytic metal localization during low temperature crystallization (~200).

研究分野：工学

キーワード：結晶成長 半導体

1. 研究開始当初の背景

シートコンピュータや高効率薄膜太陽電池を実現するには、軟化温度 150 以下のフレキシブルプラスチック絶縁基板上に結晶性の良い半導体薄膜を形成する技術確立が必要がある。そこで近年、非晶質半導体薄膜を低温で結晶成長させる手法が広く研究されているが、未だ 150 以下の低温且つ短時間熱処理による IV 族非晶質半導体の結晶成長手法は確立できておらず、広く研究が行なわれている。

2. 研究の目的

上記背景の元、我々は固相成長促進のためには、非晶質半導体の初期非晶質性の変調が有効であるとの着想に至った。そこで本研究では、絶縁基板上の非晶質半導体薄膜の固相結晶成長技術に非熱的エネルギーを併用した新たな低温固相結晶成長法の創出を目的とする。具体的には以下技術を開発する。

(1) 絶縁基板上の非晶質半導体薄膜の低温成長手法として着目されている金属触媒成長法に、非熱的エネルギーとして電子線や応力印加を組み合わせた新たな低温結晶成長手法を創出すること。

(2) 絶縁基板上に結晶性の良い半導体薄膜を形成する新たな低温結晶技術を創出すること。

3. 研究の方法

本提案では、以下研究を実施した。

(1) 150 以下低温結晶成長技術の創出

本研究では、結晶成長温度の低温化を最重要視し研究を遂行する。具体的には、結晶成長は熱励起に生じた空孔などが介在となり、原子間結合が配列を組み替えることで進行して行く現象であるため、絶縁基板上の非晶質半導体に対して外部からエネルギーを加えて、非晶質半導体内部の原子間結合を弱めることが出来れば、従来よりも低温で結晶成長が生じると期待される。そこで本研究では、半導体材料を Ge、金属触媒材料を Au に限定した実験条件において、電子線や応力印加を組み合わせ、結晶成長温度の低温化の可能性を探索した。なお、電子線照射は量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所において実施した。

(2) 高品質結晶成長技術の創出

本研究では、絶縁基板上に比較的低温で形成した結晶 Ge 薄膜の高品質化を最重要視し研究を遂行する。具体的には、絶縁基板上に形成した結晶 Ge 薄膜の面方位を 1 つの方向に揃えることを目的とする。現状、この目的を実現できる唯一の手法が、金属誘起層交換結晶成長法である。この手法は、絶縁基板上に金属層と非晶質半導体層を積層成膜し、300 程度の熱処理を施すと金属層と非晶質半導体層の位置が入れ替わると同時に、面方位の揃った結晶半導体層形成できる手法で

ある。しかしながら、金属層と非晶質半導体層の膜厚を揃える必要があることなどプロセス上の制約が多いことが課題である。我々は、金属誘起層交換成長法による結晶面方位制御の鍵が結晶核発生位置を界面付近に限定することにあると考えた。単純に、金属層と非晶質半導体層を積層成膜し、非常に低温で結晶成長を施せば、結晶核発生位置を界面付近に限定でき、層交換成長法に拘らずとも結晶の面方位制御が可能となるだけでなく、低温化も達成できるとの着想に至った。絶縁基板上に面方位の揃った結晶 Ge 形成の可能性を探索した。

4. 研究成果

本提案の成果は以下のとおりである。

(1) 150 以下低温結晶成長技術の創出

絶縁基板上の非晶質 Ge 薄膜に電子線を照射して、その Au 誘起成長に及ぼす影響を系統的に評価した。電子線の加速エネルギーがある閾値を超えると、非晶質 Ge 薄膜の結晶成長が約 2 倍にも促進する現象を見出した。低温成長の可能性については、今後の課題としたい。

他方、絶縁基板上の非晶質 Ge 薄膜に応力を印加して、その Au 誘起成長に及ぼす影響についても系統的に評価を行なった。応力印加条件を最適化することで、従来法に比べて約 20 倍もの結晶成長促進に成功するとともに、150 以下の低温、高々 30 分の熱処理で非晶質 Ge 薄膜が結晶化する現象を見出した。つまり、新しい低温固相成長手法を創出するに至った。

(2) 高品質結晶成長技術の創出

絶縁基板上に触媒層を成膜後、非晶質 Ge 薄膜を形成し、熱処理温度をパラメータとして等時 (20 時間) 熱処理を施し、結晶層をラマン分光法を用いて評価した。300 以上の高温領域では、触媒金属が非晶質 Ge 薄膜に拡散してしまい、結晶 Ge 薄膜の面方位はランダム方向を向いていたが、200 程度の比較的低温領域では、触媒金属が拡散することなく初期位置に局在化し、且つ (111) 方向に高配向した結晶 Ge が形成されることを見出し、新たな高品質結晶成長技術の創出に至った。

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 4 件)

Hayato Okamoto, Kohei Kudou, Tatsushi Nomitsu, Kenichiro Takakura, and Isao Tsunoda,

“Au induced low-temperature formation of preferentially (111)-oriented crystalline Ge on insulator”,
Japanese Journal of Applied Physics,

査読有, Vol.55, 04EJ10-1-4 (2016)
DOI:10.7567/JJAP.55.04EJ10

Kenta Moto, Shin Sakiyama, Hayato Okamoto, Hideyuki Hara, Hiroto Nishimura Kenichiro Takakura, and Isao Tsunoda,

“ Enhancement of Au-induced lateral crystallization in electron-irradiated amorphous Ge on SiO₂ ”,
Japanese Journal of Applied Physics,
査読有, Vol.55, 04EJ06-1-3 (2016)
DOI:10.7567/JJAP.55.04EJ06

工藤和樹, 草野欽太, 酒井崇嗣, 本山慎一, 楠田豊, 古田真浩, 中庸行, 沼田朋子, 高倉健一郎, 角田功,
“ 非晶質 Ge 薄膜の Au 誘起成長に及ぼす TEOS-SiO₂ キャップ層の影響 ”,
信学技報, 査読無, Vol.115, 41-44 (2015)

野満建至, 岡本隼人, 工藤康平, 坂口大成, 高倉健一郎, 角田功,
“ 面方位制御した結晶 Ge 薄膜の極低温誘起成長 ”,
信学技報, 査読無, Vol.115, 45-48 (2015)

[学会発表](計13件)

Hayato Okamoto, Kohei Kudou, Tatsushi Nomitsu, Kenichiro Takakura, and Isao Tsunoda,
“ Au induced low-temperature formation of preferentially (111)-oriented crystalline Ge on insulator ”,
2015 International Conference on Solid State Devices and Materials, SSDM2015, Sapporo, (Sept. 27-30, 2015)

Kenta Moto, Shin Sakiyama, Hayato Okamoto, Hideyuki Hara, Hiroto Nishimura Kenichiro Takakura, and Isao Tsunoda,
“ Enhancement of Au-induced lateral crystallization in electron-irradiated amorphous Ge on SiO₂ ”,
2015 International Conference on Solid State Devices and Materials, SSDM2015, Sapporo, (Sept. 27-30, 2015)

Kazuki Kudo, Kinta Kusano, Taisei Sakaguchi, Takatsugu Sakai, Shinichi Motoyama, Yutaka Kusuda, Masahiro Furuta, Nobuyuki Naka, Tomoko Numata, Kenichiro Takakura, and Isao Tsunoda,
“ Stress stimulation effect on Au induced lateral crystallization for amorphous Ge on insulating substrate ”,
8th International SiGe Technology and Device Meeting 2016, ISTD2016, Nagoya, (Jun. 7-11, 2016)

Kohei Kudo, Ryosuke Mochii, Tatsuhi Nomitsu, Kenichiro Takakura, and Isao Tsunoda,

“ Preferentially (111) oriented crystalline Ge by low temperature (~ 200) Au induced solid phase crystallization ”,
8th International SiGe Technology and Device Meeting 2016, ISTD2016, Nagoya, (Jun. 7-11, 2016)

草野欽太, 工藤和樹, 坂井拓也, 本山慎一, 楠田豊, 古田真浩, 中庸行, 沼田朋子, 高倉健一郎, 角田功,
“ 非晶質 Si_xGe_{1-x}/SiO₂ の Au 誘起成長に及ぼす圧縮応力の影響 ”,
第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学 (2016 年 3 月 19 日 ~ 22 日)

工藤康平, 野満建至, 餅井亮介, 岡本隼人, 高倉健一郎, 角田功,
“ 非晶質 Ge 薄膜の Au 誘起成長に及ぼす熱処理温度の影響 (2) - Au 膜厚依存性 - ”,
第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場 (2015 年 9 月 13 ~ 16 日)

工藤和樹, 草野欽太, 酒井崇嗣, 本山慎一, 楠田豊, 古田真浩, 中庸行, 沼田朋子, 高倉健一郎, 角田功,
“ 非晶質 Ge 薄膜の Au 誘起成長に及ぼす TEOS-SiO₂ キャップ層の影響 ”,
電子情報通信学会エレクトロニクスサイエティ シリコン材料・デバイス研究会, 沖縄 (2015 年 4 月 29 日 ~ 30 日)

野満建至, 岡本隼人, 工藤康平, 坂口大成, 高倉健一郎, 角田功,
“ 面方位制御した結晶 Ge 薄膜の極低温誘起成長 ”,
電子情報通信学会エレクトロニクスサイエティ シリコン材料・デバイス研究会, 沖縄 (2015 年 4 月 29 日 ~ 30 日)

茂藤健太, 崎山晋, 岡本隼人, 酒井崇嗣, 中嶋一敬, 原英之, 西村浩人, 高倉健一郎, 角田功,
“ 非晶質 Ge/SiO₂ の Au 誘起横方向成長に及ぼす電子線照射効果 ”,
第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学 (2014 年 9 月 17 ~ 20 日)

酒井崇嗣, 中嶋一敬, 茂藤健太, 本山慎一, 楠田豊, 古田真浩, 中庸行, 沼田朋子, 高倉健一郎, 角田功,
“ 非晶質 Ge/SiO₂ の Au 誘起横方向成長に及ぼす応力印加効果 ”,
第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学 (2014 年 9 月 17 ~ 20 日)

茂藤健太, 岡本隼人, 崎山晋, 原英之, 西村浩人, 高倉健一郎, 角田功,
“絶縁膜上における非晶質 Ge 薄膜の【電子線 + 金属触媒】誘起成長”,
平成 26 年度応用物理学会九州支部学術講演会, 大分大学 (2014 年 12 月 6~7 日)

岡本隼人, 工藤康平, 高倉健一郎, 角田功,
“非晶質 Ge 薄膜の Au 誘起低温成長による面方位制御”,
平成 26 年度応用物理学会九州支部学術講演会, 大分大学 (2014 年 12 月 6~7 日)

酒井崇嗣, 草野欽太, 岡本隼人, 本山慎一, 楠田豊, 古田真浩, 中庸行, 沼田朋子, 高倉健一郎, 角田功,
“TEOS 内部応力を利用した非晶質 Ge 薄膜の Au 誘起成長”,
平成 26 年度応用物理学会九州支部学術講演会, 大分大学 (2014 年 12 月 6~7 日)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

角田 功 (TSUNODA, Isao)
熊本高等専門学校・情報通信エレクトロニクス工学科・准教授
研究者番号: 00585200