

Title	Ge/Siヘテロエピタキシャル成長の歪み緩和と刃状転位形成機構
Author(s)	藤本, 義隆; 押山, 淳
Citation	サイバーメディアHPCジャーナル. 2011, 1, p. 23-26
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/70445
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

Ge/Si ヘテロエピタキシャル成長の歪み緩和と刃状転位形成機構

藤本 義隆¹⁾、押山 淳²⁾

¹⁾東京工業大学 大学院理工学研究科 物性物理学専攻

²⁾東京大学 大学院工学系研究科 物理工学専攻

1. はじめに

Si 系半導体デバイスの性能向上は、その基本素子である電界効果型トランジスタの素子サイズのスケールリング（比例縮小化）と高集積化によって支えられている。しかしながら、微細化による素子の性能向上に限界が見え始めつつあることから、スケールリング則に依存しない新たな性能向上技術の模索が必要となってきた。その一つとして、電気的なキャリア移動度が Si よりも高い Ge を Si 基板上に作製し、それをトランジスタのチャネルとして利用した高速電子デバイス応用への試みがある。

Si(001)基板上の Ge 層成長では、それらの 4%程度の格子定数の違いから、Ge 層は圧縮歪みを受け、Ge 層の増加とともに歪エネルギーが増大する。その結果、ある臨界膜厚を超えるとミスフィット転位が発生し、歪エネルギーを解放する。このように生じた転位は、Ge 膜の構造的な不均一性などからくる表面荒れや膜質の劣化を招き、ひいてはキャリア移動度の低下などデバイス特性の劣化を引き起こすことが報告されている[1]。近年、この Ge 膜質の劣化を防ぐ方法として、水素などのサーファクタントを用いたエピタキシャル成長技術が提案されている[2]。これにより形成された Ge/Si ヘテロ構造の Ge 膜と Si 基板の間には、界面に沿って刃状転位が形成され、その結果、高品質な Ge 膜が作製されることが報告されている[3]。しかしながら、Si 基板上の Ge 膜の成長過程における初期段階での表面形態、転位を引き起こす欠陥構造、いわゆる転位芯構造や、転位が発生する臨界膜厚など基礎的な知見が十分得られていないのが現状である。このため、Ge/Si ヘテロ構造

における更なる高品質な結晶膜作製の実現には、Si 基板上の Ge 層成長過程における歪緩和機構と転位発生の基本的性質をマイクロスケール、特に原子レベルの観点から理解することが求められる。

本稿では、Si(001)基板上の Ge 膜成長における歪緩和機構や刃状転位の形成機構を量子力学の電子論的立場から明らかにするために、密度汎関数理論の第一原理に基づいた高精度電子構造計算を実行し、そこから得られた結果を報告する[4,5]。

2. 計算方法

本研究では、密度汎関数理論(DFT)に基づいた第一原理電子構造計算手法を用いている[6]。この第一原理電子構造計算とは、実験値などの経験的パラメーターを用いずに、式(1)に示す 1 電子のシュレディンガー方程式に対応するような Kohn-Sham 方程式を解く方法である[7]。そして、取り扱われている系の全エネルギーから各原子に働く力を求め、その力に沿って原子核の位置を変化させ、全エネルギーの最小値（極小値）を求める。これはちょうど、対象となっている物質のエネルギー的安定構造を求めていることに対応する。このような方法により得られた Si 結晶などの固体の構造的な特性（格子定数、ボンド長など）は、実験値と比較してもその誤差が 1% 程度以下であることが知られている。解くべき Kohn-Sham 方程式は、

$$\left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + v_{\text{ext}}(\mathbf{r}) + \int \frac{\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} d\mathbf{r}' + v_{\text{xc}}(\mathbf{r})\right] \varphi_i = \varepsilon_i \varphi_i \quad (1)$$

と書かれる。ただし、電子密度 $\rho(\mathbf{r})$ は、

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_i |\varphi_i(\mathbf{r})|^2 \quad (2)$$

である。ここで、第1項は電子の運動エネルギーを表し、第2項 $v_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ は原子核からの寄与を含めた外場ポテンシャル、第3項は電子の古典的なクーロン相互作用を表している。最後の第4項 $v_{\text{xc}}(\mathbf{r})$ は交換・相関ポテンシャルと呼ばれ、量子的な電子間の相互作用を表わしている。ただし、 $v_{\text{xc}}(\mathbf{r})$ は、局所密度近似(LDA)によって近似された関数形を用いている。

具体的な系の構造的安定性や電子特性を調べるためには、式(1)で表した Kohn-Sham 方程式の解を数値的に精度良く求めることが必要である。このために、本研究では3次元の空間を有限のグリッドで分割する実空間差分法を採用した実空間密度汎関数理論(RSDFT)コードを用いている[8]。この実空間差分法の主な利点は、①取り扱う系の空間を小さな部分空間に分割することが出来るため、それらを各計算ノードに容易に振り分けることができ並列計算機に向いている、②取り扱う行列の要素が対角要素付近に集中しているため、行列の演算コストが極めて少なく済むなどが挙げられる。実空間差分法に関する詳細は文献[9]、RSDFT コードについては文献[8]に書かれてある。

3. Ge/Si 系ヘテロエピタキシャル成長と刃状転位

1. 刃状転位の転位芯構造

図1の左図には、巨視的なイメージとしての Si 基板上的 Ge 膜とそれらの界面近傍にある刃状転位のイラストを描いている。また、図1の右図には、本研究で提案している転位芯の原子構造として5員環と7員環のペア構造を示している。この欠陥構造を導入することで、Si 基板の約4%の格子不整合を解消するように Ge 結晶を積むことができる。この

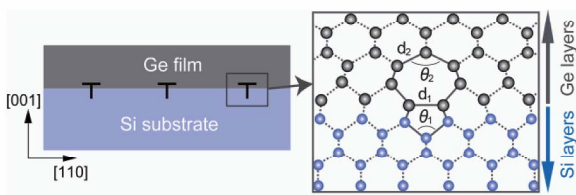


図1 Si 基板上的 Ge 膜とそれらの界面近傍にある刃状転位 (左図)。5-7 員環からなる転位芯の原子構造 (右図)。

ため、[110]方向に並んだ24周期構造の Si 基板中に、ただ一つの 5-7 転位芯構造を導入する。このように、転位のある長周期の結晶構造を取り扱うため、ここでは最大で千数百原子群の大規模な DFT 計算を実行する必要がある。

2. エピタキシャル成長のエネルギー論

Si 基板上に作成された Ge 膜の成長過程を議論するために、フィルムエネルギーを

$$\gamma_f = \frac{E - m_{\text{Si}}\mu_{\text{Si}} - m_{\text{Ge}}\mu_{\text{Ge}} - m_{\text{H}}\mu_{\text{H}}}{S} - \Gamma_b \quad (3)$$

として定義する。ここで、 E は系の全エネルギー、 m_{Si} 、 m_{Ge} 、 m_{H} はそれぞれ Si、Ge、H の原子数を、 μ_{Si} 、 μ_{Ge} 、 μ_{H} はそれぞれ Si バルク、圧縮された Ge バルク、 H_2 分子の化学ポテンシャルを表している。また、 S は(001)面の面積を、 Γ_b はスラブモデル計算によって生じる下層の表面エネルギーを示している。この Γ_b は、計算モデルから生じる不必要なエネルギーであるため、全体から差し引かれている。

図2には、転位の存在しない 2×1 構造と5-7転位構造に関して、式(3)で定義されたフィルムエネルギーのダイアグラムを示している。まず、Ge層に関するフィルムエネルギーの振る舞いを見るために、 2×1 構造に着目する。この 2×1 構造は、Ge膜中に転位の欠陥構造が存在しない構造である。Ge層が増加するとともに、フィルムエネルギーが減少していくことが見て取れる。そして、おおよそ4層になると一定の値 $\gamma_{2 \times 1}^\infty$ に近づいていることが分かる。この $\gamma_{2 \times 1}^\infty$ は、Ge表面がSi基板との相互作用が無視できるほど、十分Ge層が積まれた時の 2×1 構造のフィルムエネルギーを示している。そのため、Ge層を4層程度積むと 2×1 構造のフィルムエネルギーは、それ以上Ge層を積んでも変化しないことが分かる。

次に、図1に示すような5-7転位構造が生じている場合について考える。転位が発生するには、その核となる転位芯がGe膜とSi基板の界面近傍のどの位置でエネルギー的に最も安定であるかを定めることが重要である。なぜならば、転位芯よりも下側のSi基板に近いGe層は圧縮歪みを受けているが、転位芯の上方にあるGe層は、歪みを受けていないためである。そのため、まずエネルギー的に安定な転

位芯の位置を決めることを考える。図 2(a)の転位構造モデル A1 から A3 には、5-7 転位芯が Ge 膜の表面にある場合を表している。このときの A1-A3 モデルでは、積まれる Ge 層の増加とともに、転位芯と Si 基板との間の Ge 層が増加していることに注意する。この場合のフィルムエネルギーの振る舞いは、2×1 構造の場合と同じように Ge 層が増加すると、フィルムエネルギーが減少していき、やがてある一定値 γ_{DC}^{∞} に近づく。ここで、 γ_{DC}^{∞} は $\gamma_{2\times 1}^{\infty}$ と同様に Ge 表面近くにある 5-7 転位芯と Ge/Si 界面との相互作用が無視できるほど十分小さい場合でのフィルムエネルギーを表している。図 2(b)の結果から、フィルムエネルギーが 4 層で γ_{DC}^{∞} に到達していることから、5-7 転位芯は A2 モデルの位置にあることが、エネルギー的に好まれることが分かる。

次は、いま決定した 5-7 転位芯の上方に Ge 層が積層されていく状況を考える。すなわち、図 2(a)の転位構造モデル B2 から B5 にあるように、構造モデル A2 の表面に Ge 層が作成されていく場合を考える。

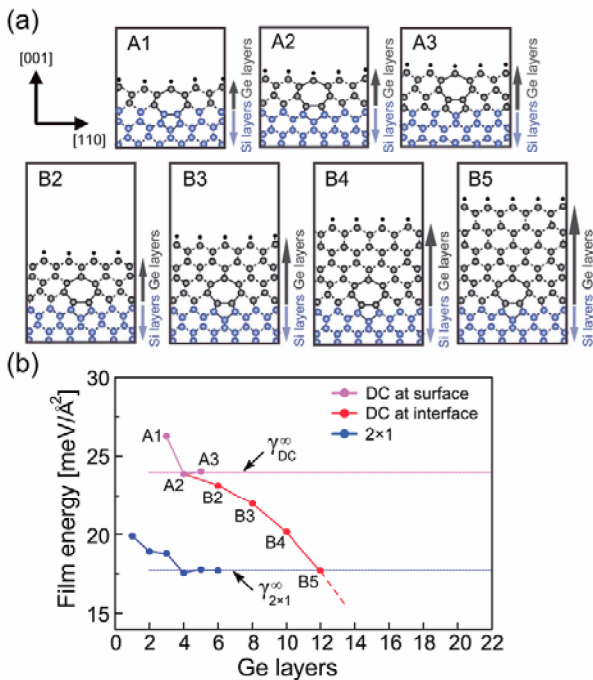


図 2 (a)Ge/Si ヘテロ構造における刃状転位構造図。A1-A3 は、転位芯が Ge 表面に存在する場合、B2-B5 は、転位芯が Ge/Si 界面に存在する場合の転位構造図。(b)フィルムエネルギーの Ge 層数依存性。A1-A3 と B2-B5 はそれぞれ図 2(a)の構造に対応するフィルムエネルギーを表している。

図 2(b)から明らかなように、Ge レイヤーの増加とともにフィルムエネルギー(B2-B5)が減少していく様子が分かる。そして、ちょうど転位構造 B5 のとき、2×1 構造のフィルムエネルギー $\gamma_{2\times 1}^{\infty}$ よりも転位構造のフィルムエネルギーが低くなる。これは、Si 基板上の Ge レイヤーが、成長初期段階では 2×1 構造を保っているが、12 層積まれると転位構造 B5 へと変化する。すなわち、転位が発生する臨界膜厚は 12 層であることが分かる。

3. 走査型トンネル電子顕微鏡像

前節で述べたように、Ge 層が 12 層程度積まれると転位が生じることが分かった。このように転位芯は、Ge 膜表面から十分離れた Ge/Si 界面近傍に埋もれているため、その原子構造などの情報を得ることは非常に困難である。ここでは、結晶深部にある転位構造を、Ge 表面を観察することでその位置を検知できる可能性を示す。また、Ge 表面を観測する方法として、走査型トンネル電子顕微鏡 (STM) を用いることを提案する。STM は、半導体や金属表面を原子レベルで観測できる有用な方法として広く知られている。STM におけるトンネル電流 I は、表面からの位置 r での状態密度を ρ_s とすると

$$I \propto \int_0^{eV} \rho_s(r, E_F - eV + \epsilon) d\epsilon \quad (4)$$

の関係が成り立つ。ここで、 V は印加される電圧、 E_F はフェルミエネルギーである。したがって、シミュレーションによる STM 像は、表面の状態密度をフェルミエネルギーから印加電圧まで積分することにより求めることができる [10]。

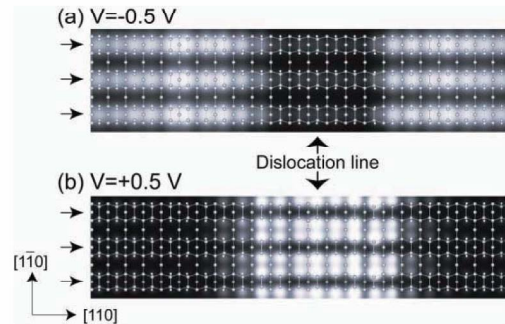


図 3 シミュレーションによる STM 像 : (a) 価電子帯、(b)伝導帯に関する像。印加電圧はどちらも 0.5 V とした。

図 3 には、本計算により得られた転位構造モデル B5 (図 2(a)) の STM 像を示している。図 3(a)には価電子帯に関する STM 像を、図 3(b)には伝導帯に関する STM 像を示している。これらの STM 像は、構造モデル B5 の上方からみていることに対応する。価電子帯の STM 像(図 3(a))には、中央付近で暗い (黒い) 線が見えることが分かる。また、伝導帯の場合(図 3(b))では、逆に中央付近に明るい (白い) 線が見られる。これらの STM 像に見られる暗い、あるいは明るい線は、ちょうど転位芯構造の上方にあたる。このように転位が発生すると、[1-10]方向に沿って暗い、あるいは、明るい転位線が STM 像内に極めて明瞭に現れる。

4. まとめ

本稿では、次世代半導体デバイス産業の基盤技術に関わる Ge/Si ヘテロ構造のエピタキシャル成長に関するテーマを紹介した。千数百原子群からなる刃状転位構造の計算モデルを取り扱う必要性から、実空間密度汎関数計算コードを大阪大学サイバーメディアセンターのスーパーコンピュータ上で実行し、基板上の歪みを受けた Ge 膜成長での歪み開放メカニズムと刃状転位形成過程のエネルギー論を明らかにした。また、刃状転位構造の STM 像の計算を実行し、原子レベルで転位線の観測が可能であることを示唆する結果を得た。

謝辞

本研究の一部は、東京工業大学グローバル COE プログラム「ナノサイエンスを拓く量子物理学拠点」の支援を受けたことを記し、謝意を表します。また、本稿で紹介した計算は大阪大学サイバーメディアセンターの SX-8R および SX-9 を主に利用して行ったものです。最後に、本寄稿の執筆を依頼してくださいました大阪大学サイバーメディアセンター広報委員会に感謝いたします。

参考文献

[1] S. H. Olsen, A. G. O'Neill, D. J. Noriis, A. G. Cullis, N. J. Woods, J. Zhang, K. Fobelets: *Semicond. Sci.*

Technol. **17** (2002) 655.

[2] M. Copel, M. C. Reuter, E. Kaxiras, and R. M. Tromp: *Phys. Rev. Lett.* **63** (1989) 632.

[3] A. Sakai, T. Tatsumi, and K. Aoyama: *Appl. Phys. Lett.* **71** (1997) 3510.

[4] Y. Fujimoto and A. Oshiyama: *Phys. Rev. B* **81** (2010) 205309.

[5] Y. Fujimoto and A. Oshiyama: *AIP Conference Proceedings*, in press.

[6] P. Hohenberg and W. Kohn: *Phys. Rev.* **136** (1964) B864.

[7] W. Kohn and L. J. Sham: *Phys. Rev.* **140** (1965) A1133.

[8] J. -I. Iwata, D. Takahashi, A. Oshiyama, T. Boku, K. Shiraishi, S. Okada, and K. Yabana: *J. Comp. Phys.* **229** (2010) 2339.

[9] K. Hirose, T. Ono, Y. Fujimoto, and S. Tsukamoto: *First-Principles Calculations in Real-Space Formalism*, Imperial College Press, London (2005).

[10] J. Tersoff and D. R. Hamann: *Phys. Rev. B* **31** (1985) 805; H. Okada, Y. Fujimoto, K. Endo, K. Hirose, and Y. Mori: *ibid* **63** (2001) 195324; Y. Fujimoto, H. Okada, K. Endo, T. Ono, S. Tsukamoto, and K. Hirose: *Mater. Trans.* **42** (2001) 2247.