課題番号　　:2018B-E14
利用課題名（日本語）　　:Au 薄膜-Si 合金化に伴う固体-液体相転移の軟 X 線光電子スペクトル解析

Program Title (English)　:Solid-liquid phase transition of Au thin film-Si alloy studied by soft-x-ray photoemission spectroscopy

利用者名（日本語）　　:豊田智史 [1],山本知樹 [2],梶野雄太 [2], 住田弘祐 [3], 三根生晋 [3], 横山和司 [2], 吉越章隆 [4]
Username (English)　　:S. Toyoda[1], T. Yamamoto[2], Y. Kajino[2], H. Sumida[3] , S. Mineoi[3] K. Yokoyama[2], A. Yoshigoe[4]
所属名（日本語）　　:1) 京都大学大学院工学研究科, 2) 兵庫県立大学, 3) マツダ, 4) 原子力機構
Affiliation (English)　　:1) Kyoto University, 2) University of Hyogo, 3) Mazda, Co., Ltd., 4) JAEA

キーワード：オペランド分光、半導体物性、触媒反応

1. 概要（Summary ）

金(Au)とシリコン(Si)は常温常圧下では互いに安定な固体を形成し、状態図にシリサイド相は存在しないが、Si 基板上に Au 薄膜を作製すると Au/Si 界面近傍では直ちに合金化する[1,2]。また、超高真空中で AuSi 合金を作製し、融点(共晶点~370℃)より高温に保持すると、原子 3 層分ほどの Si リッチな表面結晶化層が形成される[3]。これらの物質界面状態や化学反応機構の詳細を明らかにするため、Au 薄膜-Si 基板を雰囲気制御下で昇温/降温し、軟 X 線光電子スペクトルの計測と解析に取り組んでいる。2018A の結果では、酸素雰囲気下において共晶点温度が 370℃から 220℃程度に低下すること、その相転移温度よりも低い 100~150℃付近で、Au 由来のフェルミ端が若干低結合エネルギー側にシフトすること、を見出した。これらの現象は、Au の触媒機能が Si 原子拡散に対して何らかの作用を及ぼしていると推察し、酸素雰囲気下に加え、水蒸気雰囲気下、超高真空(UHV)下の違いを系統的に調べた。

2. 実験（目的,方法）（Experimental）

実験は SPring-8, BL-23SU の表面化学ステーションにて行った。Si 基板上に Au 蒸着膜(50 nm 程度)を形成し、水蒸気雰囲気下 (~1x10^{-6})および UHV(1x10^{-7})下で、室温~500℃の昇温/降温過程によって固体-液体相転移を起こし、それぞれの Au 4*f*内殻光電子スペクトルを計測した後、酸素分圧(~1x10^{-4} Pa)の結果と比較した。

3. 結果と考察（Results and Discussion）

取得したすべての Au 4*f*内殻光電子スペクトルデータは、Tougaard バックグランドを組み込んだ Doniac=Sunjic 関数によりピークフィッティング処理を施した。図 1 は Au4$f_{7/2}$ 光電子ピークの結合エネルギー値を測定温度に対してプロットした結果を示している。水蒸気雰囲気下では 120℃程度から高結合エネルギー側にシフトしており、酸素雰囲気下や UHV 下に比べ、Si 原子拡散を活発化させているような挙動が観察された。

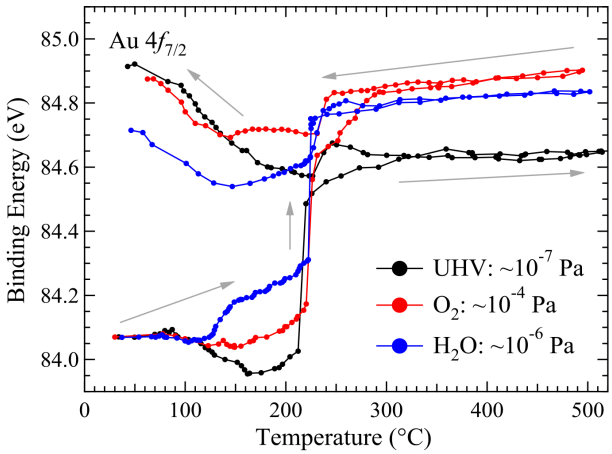

図 1. Au4$f_{7/2}$ 光電子スペクトルにおける結合エネルギーの温度依存性および雰囲気条件下による違い。

4. その他・特記事項（Others）

[1] A. Hiraki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **18**, 178 (1971).
[2] J.-J. Yeh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**, 3768 (1993).
[3] O. Shpyrko *et al.*, Science **313**, 77 (2006).