

PEEMによるSiO₂/Si(100)上金薄膜の二次元フラクタルパターン観測

(横国大工¹, 東大院総合文化², 阪大産研³)○山口 哲広¹, 母袋 雄也², 三原 識文²,
水野 皓司², 青木 優², 首藤 健一¹, 小林 光³, 増田 茂²

Two dimensional fractal pattern of Au thin film on SiO₂/Si(100) observed by PEEM

(Yokohama National Univ.,¹ The Univ. of Tokyo,² Osaka Univ.³) ○Tetsuhiro Yamaguchi,¹ Yuya Motai,² Shimon Mihara,² Koji Mizuno,² Masaru Aoki,² Kenichi Shudo,¹ Hikaru Kobayashi,³ Shigeru Masuda²

【序】金属や半導体表面に金属を蒸着すると、結晶成長の過程でしばしばフラクタルパターンが観測される[1, 2]. このような金属薄膜の構造変化はデバイス作製においても重要な情報であるが、報告例が少ないのが現状である. 本研究では、SiO₂/Si(100)上 Au 蒸着膜を対象として、加熱による Au 原子の表面移動や凝集過程を光電子放射顕微鏡(PEEM)で観測した. Hg(Xe)ランプによる PEEM では仕事関数の大小を反映した像が得られる. 加熱により μm スケールで二次元構造パターンが出現した.

【実験】自然酸化された Si(100)基板を RCA 洗浄し、その上にカバーガラス(厚さ 0.2 mm)をマスクとして密着させて Au を真空蒸着した. 基板は室温に保ち、真空チャンバの背圧 4×10^{-7} Torr, 蒸着速度 0.1 nm/min の条件で試料を作製した. Au の膜厚は水晶振動子膜厚計により制御した. 次に、試料を超高真空電子放射顕微鏡[3]に取り付け、PEEM 像(空間分解能: 0.3 μm 以下)の観測を行った. PEEM に用いた紫外光源は、Hg(Xe)ランプ($h\nu \leq 5.65$ eV)である.

【結果と考察】SiO₂/Si(100)上の Au 蒸着面(膜厚 ~ 6 nm)と SiO₂ 境界領域における PEEM 像を Fig. 1 (a)に示す. 明部が Au, 暗部が SiO₂に対応する. SiO₂の O 2p 価電子帯(IP = 9.9 eV)は、照射光のエネルギー($h\nu = 5.65$ eV)よりも深いため、光電子放出が起こらず暗く観測されている. 一方、Au 蒸着面では光電子放出が起こり、明るく観測されている. Au テラスの黒い斑点は試料導入の際に付着した不純物、蒸着の際に生じた構造欠陥であると考えられる.

試料を ~ 300 °Cで加熱すると(Fig. 1 (b)), Au/SiO₂境界に沿って「ひび」のような暗部が Au 蒸着面の内側に広がる. この現象は、加熱によって Au 原子が拡散・再凝集した結果、Au 蒸着面の境界部分が原子密度の変化や結晶化に伴う潜熱などにより不均一になり、直線的

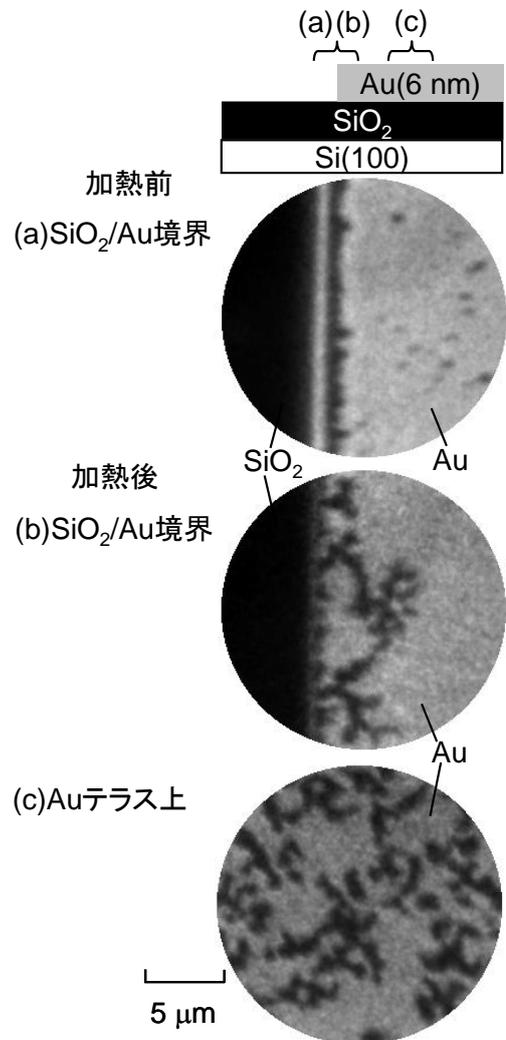


Fig. 1. SiO₂/Si(100)上 Au 蒸着膜 (6 nm) (a), 加熱後の境界(b), およびテラス(c)における PEEM 像.

な界面が不安定化したことによると考えられる。また、ひびの領域は SiO_2 領域に比べると少し明るく観測された。これは、 SiO_2 基板上に束縛された Au 原子が単原子層レベルで残存しているからと考えられる。Au テラス上(Fig. 1 (c))においても、暗い不規則な構造が全体に広がっていることが分かる。

視野拡大法による解析結果を Fig. 2 に示す。(a)はテラスにおける PEEM 像を二値化したもの、(b)は視野の半径 R と暗部の面積 A の対数プロットを表す。図から明らかなように、 $\log A$ と $\log R$ は一次の関係にある。よってこの構造はフラクタルであると結論づけられる。フラクタル次元 D は、 $A \sim R^D$ の関係から求められ、 $D = 1.9$ であった。代表的なフラクタル形成のモデルとして、拡散律速凝集(DLA)とパーコレーションがある。DLA は、無限遠方からランダムウォークで接近する粒子が、核となる固体に付着してクラスターを形成するモデルで $D = 1.7$ である。一方、パーコレーションモデルでは、ある確率で格子点(サイト)上やつなぎめ(ボンド)上に粒子を置きクラスターを形成する素過程からなる。この場合、 $D = 1.89$ であり、本研究で観測されたフラクタルパタンもこの二次元パーコレーションモデルと類似したモデルで記述示すことを示す。 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$ 上の金薄膜成長過程においてもフラクタルパタンが観測され、 $D = 1.9$ のパーコレーションモデルで解釈されている[4]。

Fig. 3 に $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ 上 Au(100 nm) 薄膜における加熱後の PEEM 像を示す。明るい領域と暗い領域による斑状のパタンが μm スケールで形成されている。これは、場所により結晶化の進行が異なり、表面における Au 密度の違いを反映しているからと考えられる。Au の仕事関数は、多結晶で $\phi = 5.1 \text{ eV}$ 、(110)面では $\phi = 5.20 \text{ eV}$ 、(111)面では $\phi = 5.26 \text{ eV}$ であり、表面原子密度の増加に伴い大きくなる。暗い領域、つまり仕事関数の大きい領域では、Au 原子が拡散・凝集し、より結晶性の高い面を形成していると考えられる。このような不均一な結晶化は多結晶 Cu の加熱過程でも報告されている[5]。

【References】

- [1] R. Q. Hwang et al., *Phys. Rev. Lett.* 67, 3279 (1991).
- [2] K. Sekar et al., *Solid State Commun.* 96, 871 (1995).
- [3] T. Kamada et al., *Surf. Sci.* 602, 724 (2008).
- [4] R. F. Voss et al., *Phys. Rev. Lett.* 49, 19 (1982).
- [5] Takeharu Sugiyama et al., *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* 137, 193 (2004).

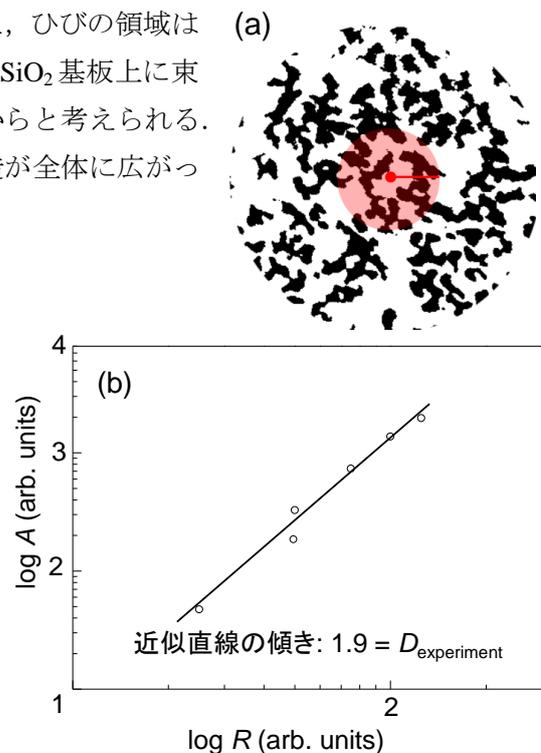


Fig. 2. (a) Au テラス領域における PEEM の二値像. (b) $\log A - \log R$ プロット.

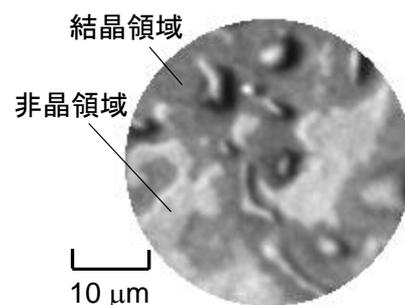


Fig. 3. Au(100 nm) 加熱後のテラスにおける PEEM 像.