

平成 30 年 5 月 31 日現在

機関番号：32670

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04667

研究課題名(和文) GaN結晶のメソスコピックなスケールでのひずみ場と表面再構成構造の研究

研究課題名(英文) Study on strain fields and surface reconstructions of GaN crystals which have microstructure in mesoscopic scale.

研究代表者

秋本 晃一 (Akimoto, Koichi)

日本女子大学・理学部・教授

研究者番号：40262852

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：窒化ガリウムはシリコンに代わるパワーデバイスの材料としての期待も大きい。本研究ではシンクロトロン放射光を用いたX線トポグラフィーの手法で、GaN結晶基板上にGaN薄膜を成長させた断面試料を用いることにより成長界面近傍について研究した。その結果、特に界面で d/d の値が急激に変化していることがわかった。また、シンクロトロン放射光を用いたX線CTR散乱の測定を行った。その結果、GaN薄膜の結晶性により、CTR散乱強度が異なることから、表面構造が結晶性に依存することが示唆された。

研究成果の概要(英文)：Gallium nitride (GaN) has attracted much attention as the materials for the power devices instead of Silicon. We have been studied the cross section of GaN epitaxial layers on GaN substrates by X-ray topography using CCD camera. At the growth interface, we found large and sudden variation of a lattice spacing. We have been studied GaN surface structures normal to the surface by X-ray crystal truncation rod (CTR) scattering. We found CTR scattering intensity of c-plane GaN depends on the crystallinity of GaN films.

研究分野：結晶工学

キーワード：X線回折 窒化ガリウム メソスコピック X線トポグラフィー 結晶欠陥 電子回折 X線CTR散乱 表面構造

1. 研究開始当初の背景

化合物半導体は、発光デバイスから電子デバイスに到るまで広い分野で利用されてきた。最近では 2014 年のノーベル物理学賞受賞対象の青色発光ダイオードの材料である GaN が特に注目されている。GaN は固体照明の光源としての発光デバイスばかりでなく、高速、高耐圧のトランジスタの基板としても期待され盛んに研究が行われている。ワイドギャップ半導体の一つである GaN は、今や喫緊の課題となった省電力や地球温暖化対策のキーテクノロジーを支える材料として SiC と並び有望視されている。

しかし、GaN は通常、サファイアなど格子定数の異なる物質の基板上にヘテロエピタキシャル成長させるため、結晶成長に伴い欠陥が生ずることはよく知られている。これまで多くの研究者の努力により欠陥の低減に相当程度まで成功し、透過電子顕微鏡 (TEM) やカソードルミネッセンス (CL) ではその欠陥を観察視野の中に見ることが難しいまでになった。

GaN の電子デバイスへの応用に際しては、さらなる結晶欠陥の低減が必要とされている。そのためには、TEM や CL の得意とする欠陥の種類や数の同定だけでなく、欠陥周辺の広い範囲での微小なひずみ場の測定が求められている。これは、GaAs 結晶についてデバイスの実用化の際に重要であったのと同様である。

本研究課題申請者は平成 21 年度～23 年度の基盤研究 (C) によりご援助していただき、高精度で結晶グレインやそれに伴う格子ひずみを観察できるシンクロトロン放射光を用いた X 線トポグラフィの手法で研究を行い、GaN 結晶に μm オーダーのメソスコピックなスケールでのコントラストが観察できることを示してきた。また、S. Kikuta and K. Kohra, Jpn. J. Appl. Phys., 5, 1047, 1966. に発表されている手法を用いて、結晶面の傾きのずれ () と面間隔の伸縮 (d/d) を分離し測定することをハイドライド気相成長法により作製された GaN 結晶に対しはじめて行った。引き続き実施した平成 24 年度～26 年度の基盤研究 (C) においては、結晶面の傾きのずれ () と面間隔の伸縮 (d/d) のそれぞれをマッピングして画像を得ることに成功した。

現在、GaN 結晶についての多くの研究は極性面である c 面についての研究であるが、デバイス特性の観点からは非極性面である m 面が注目されている。しかし、m 面は結晶成長が難しい面であり、例えば結晶性に優れたアモノサーマル法で成長したバルク基板上に他の方法で薄膜成長させるのには、試料の割れや成長とともに結晶性が劣化するなど多くの困難を伴う。m 面についてはその表面再構成構造 (長距離秩序構造) についてもほとんど報告はなく、結晶成長についての手がかりが少ないのが現状である。c 面について、

研究初期に表面再構成構造の同定が極性判別に大きな助けになったのとは対照的な状況である。

2. 研究の目的

本研究では、これまで得られた研究成果をさらに発展させ、結晶グレイン間の傾き、面間隔の伸縮を詳細に研究し、結晶成長に生かすことを目的の一つとする。特に、一つの GaN 結晶を異なる方向から切り出したことに対応する c 面と m 面の結晶の両者を研究し、結晶性を 3 次元的に解析することを企図している。また、アモノサーマル法で作製された結晶欠陥の少ない GaN 基板上に一般的に薄膜成長で用いられるハイドライド気相エピタキシャル成長法で GaN 薄膜を成長させた GaN 結晶について、薄膜成長のどの段階で、どのようなメカニズムで、試料に大きなひずみが導入されるのかを明らかにする。なお、一般的な半導体では、基板と薄膜が同じ結晶である場合には、このような大きなひずみが発生することは知られていない。

次に本研究では、反射高速電子回折装置を備えた超高真空装置を用いて、最近注目されている非極性面である m 面の表面再構成構造を明らかにする。また、極端に非対称な X 線回折法を用いて表面近傍のひずみについて動力学的回折理論を用いて定量化する。

これらを総合して、特に m 面について結晶成長を阻害する要因を明らかにし、今後の GaN 結晶の結晶性の向上のための研究に資することを目的とする。

3. 研究の方法

バルク結晶の結晶評価法として、X 線 CCD カメラを用いた X 線トポグラフィ法を用いた。X 線源として、シンクロトロン放射光を用いる。シンクロトロン放射光は高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所の放射光研究施設を共同利用し、波長 1.24\AA の X 線を用いた。c 面 ((001) 面) の GaN 結晶を試料とする場合、002 反射または 004 反射の回折線を測定する。また、必要に応じて 116 反射や 105 反射など非対称回折を用いる。回折線の画像を空間分解能 $6.7\mu\text{m}$ の X 線 CCD カメラで撮影する。回折条件を試料に対する入射角を数秒ずつ変化させて撮影する。また試料を 180 度面内回転させて測定を行い、格子面の傾きと格子面間隔の伸縮に分離する。

本研究では CCD カメラの 1 ピクセル毎にその強度変化をデジタルデータから抽出し、面内回転 0 度で得られる回折強度曲線と面内回転 180 度で得られる回折強度曲線を用いて、基準点からの平均のピーク角度差 δ をまず求める。 δ は強度が最高になる 0 度と 180 度のピーク角度の差の半分から算出する。ブッラグの式より $-\cot \theta_0 \times \delta$ が d/d となる。

試料としては、c 面及び m 面について、特

に結晶成長界面に着目して、断面試料を用いた測定を行う。

表面構造の研究は、表面に水平な方向における構造を観察するために、超高真空中で反射高速電子回折法 (Reflection High Energy Electron Diffraction : RHEED) の装置を備えた超高真空装置を用いて、c 面及び m 面の GaN 基板について、加熱による清浄表面の表面再構成構造を調べる。RHEED では、表面から 0.1~1nm 程度までの原子配列の周期構造が観測できる。今回用いる m 面試料は報告の多いサファイア基板上の c 面試料とは清浄化の方法が異なる可能性があり、清浄化方法の確立も重要な研究である。

さらに表面構造の詳細を研究する段階においては、シンクロトン放射光を用いた表面 X 線回折法により研究を行う。特に、表面に垂直な方向の構造については、X 線 CTR 散乱法 (X-ray crystal truncation rod scattering) を用いて測定を行う。この測定では、結晶表面の乱れ (格子緩和や凸凹など) を評価することができる。実験はシンクロトン放射光を用いて行う。シンクロトン放射光は高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所の放射光研究施設を共同利用する。

4. 研究成果

(1) GaN 結晶基板上に GaN 薄膜を成長させた断面試料を用いることにより成長界面近傍について、結晶面の面間隔の伸縮 (d/d) のそれぞれをマッピングして画像を図 1 に示す。図 1 において、画像の中央付近の水平線を境にコントラストが大きく変化していることがわかる。その位置が結晶成長界面である。定量的には、界面で d/d の値が 10^{-6} 台で変化している特徴的である。

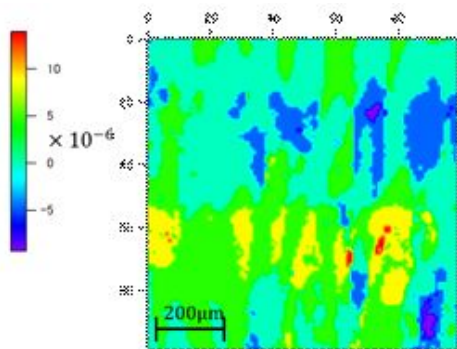


図 1 成長界面での結晶面の面間隔の伸縮

(2) GaN(001)面 (c 面) について X 線 CTR 散乱法の実験を行い、図 2 に示されるような実験結果を得ている。図 2 は二次元のミラー指数 10 において表面垂直方向のミラー指数を 0~4 まで変化させたときの強度変化を表している。図 2 はサファイア基板上に MOCVD 法 (有機金属化学気相成長法) により GaN 薄膜を成長させた場合であり、図 3 はアモノサ

ーマル法 (溶媒に超臨界アンモニアを用いて、高温・高圧下で GaN 成長する液相成長法) で結晶成長させた GaN 基板上に MOCVD 法により GaN 薄膜を成長させた場合である。基板の違いにより、CTR 散乱強度は図 2 で示される『U 字谷』と図 3 で示される『鋭い谷』と強度が異なっており、何らかの構造の違いが示唆される。

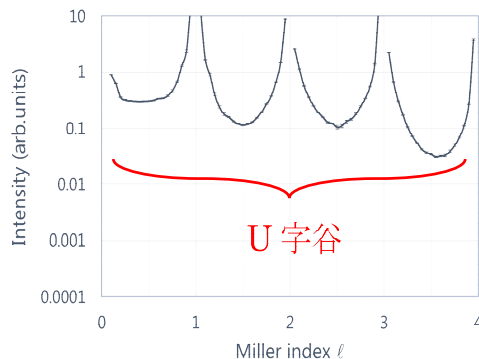


図 2 X 線 CTR 散乱強度分布 (サファイア基板上の GaN 薄膜)

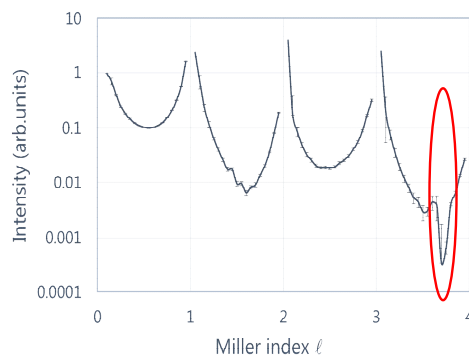


図 3 X 線 CTR 散乱強度分布 (アモノサーマル法により成長した GaN 結晶基板上の GaN 薄膜)

また、これらの X 線 CTR 散乱法の実験結果を理論計算と比較すると、より理論曲線に近いのは結晶性の良いアモノサーマル法により成長した GaN 結晶基板上的 GaN 薄膜であることもわかった。

以上の X 線トポグラフ法による実験結果と X 線 CTR 散乱法による実験結果を総合すると、結晶性により表面構造が変化し、それにより結晶成長界面でさまざまなひずみが生ずるのではないかという重要な結論が示唆された。

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 1 件)

秋本晃一、異常分散 X 線回折を利用した GaN 結晶の極性評価、日本結晶学会誌、

〔学会発表〕(計 17 件)

海野由佳、北島由梨、秋本晃二、X 線 CTR 散乱法による GaN 結晶表面の測定、日本物理学会第 73 回年次大会、2018 年
Haruka Miyashita, Saki Amagai, Koichi Akimoto, Lattice strain evaluation by using indirect X-ray reflection, Joint Symposium 2017, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2017 年
Yuko Kitano, Mizuki Shoro, Satoko Miyakawa, Koichi Akimoto, Characterization of GaN crystals with the X-ray topography, Joint Symposium 2017, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2017 年
Mizuki Shoro, Yuko Kitano, Satoko Miyakawa, Koichi Akimoto, FWHM Images of the Rocking Curves by X-Ray Topography, Joint Symposium 2017, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2017 年
Yuri Kitajima, Yuka Umino, Koichi Akimoto, Analysis of the desorbed species from HVPE GaN samples, Joint Symposium 2017, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2017 年
Koichi Akimoto and Fumie Nishikawa, Structure and Strain of Hafnium Oxide Thin Films Studied by X-Ray Diffraction, Joint Symposium 2017, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2017 年
北野祐子、宮川理子、正露瑞季、秋本晃二、X 線トポグラフィ法による GaN 結晶の評価、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、2017 年
宮下遥香、天貝早希、秋本晃二、村上達海、小椋厚志、X 線の遠まわり反射によるひずみ半導体の格子ひずみ評価、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年
正露瑞季、北野祐子、宮川理子、秋本晃二、X 線トポグラフィ法における半値幅画

像の作成、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年

海野由佳、安藤香代子、野口彩純、北島由梨、天貝早希、宮下遥香、秋本晃二、X 線 CTR 散乱法による GaN 結晶表面の測定、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年

Yuko Kitano, Satoko Miyakawa, Emiko Inoue, Koichi Akimoto, Characterization of GaN Crystals with X-ray topography, Joint Symposium 2016, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2016 年

Yuka Umino, Kayoko Ando, Azumi Noguchi, Koichi Akimoto, Simulation of reflection high-energy electron diffraction patterns for Gallium Nitride crystal surfaces, Joint Symposium 2016, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2016 年

宮川理子、北野祐子、井上絵美子、秋本晃二、X 線トポグラフィ法による GaN 結晶の断面試料の評価(1)、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、2016 年

北野祐子、宮川理子、井上絵美子、秋本晃二、X 線トポグラフィ法による GaN 結晶の断面試料の評価(2)、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、2016 年

Koichi Akimoto, Polarity Determination of GaN Thin Films by Anomalous X-Ray Diffraction, Joint Symposium 2015, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2015 年

Satoko Miyakawa, Emiko Inoue, Yuko Kitano, Koichi Akimoto, Characterization of GaN Crystals with X-ray topography, Joint Symposium 2015, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, Seoul, Korea, 2015 年

西川史恵、平井知子、秋本晃二、X 線の遠まわり反射による格子ひずみ評価、日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年

〔その他〕

<https://researchmap.jp/read0184001/>

6. 研究組織
(1) 研究代表者

秋本 晃一 (AKIMOTO Koichi)
日本女子大学・理学部・教授
研究者番号：40262852

(2)研究分担者
なし

(3)連携研究者
なし

(4)研究協力者
なし