

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月24日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05008

研究課題名(和文) 角度分解局所ロッキングカーブイメージングによる歪分布観察

研究課題名(英文) Observation of strain field in single crystals by angle-resolved X-ray topography and local rocking curve imaging.

研究代表者

高橋 由美子 (TAKAHASHI, Yumiko)

日本大学・理工学部・研究員

研究者番号：70339258

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)：放射光を用いた斜入射トポグラフィーの光学系にアナライザ結晶を付加し、局所ロッキングカーブ法と組み合わせることによって一方位での測定で格子面間隔変化と格子面の傾きを分離可能にした。加えて非対称反射でX線侵入深さを制御することで面内方向の歪・変形・結晶性等の情報とその深さ方向の変化を定量的に把握できる新規の評価方法を確立した。本手法を用いてAlイオン注入SiC単結晶基板を観察し、イオン注入条件によって歪の状態が異なり、高濃度イオン注入試料では基板表面層に強い歪場が存在することが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では放射光斜入射トポグラフィーとロッキングカーブ法を組み合わせた新規単結晶評価方法を開発し、薄膜・単結晶基板等に対し、面内方向と深さ方向の情報とを併せ持つ評価方法を確立した。特に従来法では十分な情報が得られなかった広域歪分布の詳細な解析が可能になった。本手法を用いることで結晶成長研究の進展やデバイス技術の改善に有用な知見が期待できるためX線結晶学や材料物性など基礎科学への貢献とともにパワーデバイス等の材料・デバイス開発やプロセス評価など、産業分野での応用が期待できる。

研究成果の概要(英文)：A method has been developed to measure the wide area distortion quantitatively. By combining the grazing incidence synchrotron X-ray topography and the local rocking curve method, the constituents of lattice spacing variation and lattice plane tilt can be separated in the one-direction measurement. This method was used to observe Al-ion-implanted SiC epitaxial wafers. It was found that the strain distribution varied according to the ion implantation conditions. The strong strain field in the surface layer was observed particularly in the high concentration ion implanted sample.

研究分野：X線イメージング

キーワード：イメージング 放射光 X線 トポグラフィー ロッキングカーブ 歪分布

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、次世代パワーデバイスの実用化を目指す世界的傾向が加速され、炭化ケイ素(SiC)・窒化ガリウム(GaN)・ダイヤモンドなどの単結晶の欠陥評価が盛んになりつつある[1]。これらのパワーデバイス用単結晶は結晶成長技術がまだシリコン(Si)ほどの高品質を得られるには至っていない上にエピタキシー、イオン注入といったプロセスを必要とするため、格子欠陥のみならず広域におよぶ歪分布も重要な因子となっている。実際、アルミ(Al)イオン注入 SiC 基板の斜入射トポグラフでは、深さ方向への X 線の侵入を抑制することで表面近傍のマクロな歪が観察されている(図1)[2]。このように面内方向と深さ方向の情報とを併せ持ちマクロな歪分布が観察できる評価方法の重要性が増している。

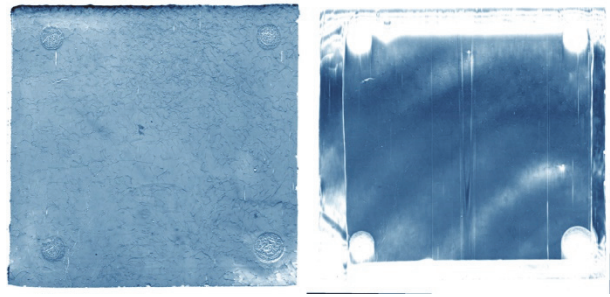


図1 Al注入 SiC 基板の斜入射トポグラフ
X線侵入長 1.7 μm (左)、0.25 μm (右)

左では基板由来の転位が観察され、右ではイオン注入処理に起因すると考えられるマクロな歪場が見られる。

2. 研究の目的

パワーデバイス用単結晶など、格子欠陥のみならず比較的広域に渡る歪状態をも詳細に観察する必要がある材料の評価のため、面内方向の歪・変形・結晶性等の情報とその深さ方向の変化を定量的に把握できる新規の評価方法を確立することが本研究の目的である。

3. 研究の方法

(1) 従来法の問題点と本研究の方法

放射光トポグラフィーの1種である斜入射トポグラフィーは1980年代から盛んになり今日でも利用されている方法で、試料への X 線照射角を数度以下に抑えることによって深さ方向への X 線の侵入を抑制し、表面近傍の欠陥や歪状態を際立たせる。

しかし、物性との関連を調べるためには画像情報のみでは限界があり、歪分布の定量的評価が必要になる。デジタル画像を用いてその画素ごとに得られるロッキングカーブを評価する局所ロッキングカーブ法はこの点で有効である。歪はロッキングカーブの微量な角度シフト $\Delta\theta$

$$\Delta\theta = \tan\theta_B \cdot \left(\frac{\Delta d}{d}\right) + (\hat{n}_r \cdot \hat{n}_m)\Delta\varphi$$

(ここで d 格子面間隔、 θ_B ブラッグ角、 \hat{n}_r ロッキングカーブ回転軸、 \hat{n}_m 面の傾き軸を示す。)として検出されるため格子面間隔変化 $\Delta d/d$ と格子面の傾き $\Delta\varphi$ が混在している。これを分離するため通常は多方位照射によって連立方程式を解くが、主に非対称反射を用いる斜入射トポグラフィー光学系でオフセット角等を有する試料を扱う場合は X 線照射方向によって回折条件や X 線侵入深さが大きく変化してしまうので、このままでは使えないことが多い。

このため試料後方にアナライザ結晶を配して回折 X 線の角度フィルターとして用いることで一方向のみの測定でも歪成分と格子面の傾きを分離できる方法を考案した。この光学系で試料の局所ロッキングカーブを測定して最大値を 2 次元分布に再構成したものが面の傾きを排除した分布となる。またピーク位置シフトの分布から面の傾きに関する情報、FWHM からは結晶性の情報が得られる[3, 4]。

(2) 実験方法

試料は 4H-SiC(0001)基板で膜厚 5 μm のエピタキシャル層に Al イオン注入を行ったものである。注入濃度は $1 \times 10^{19} \sim 1 \times 10^{21}/\text{cm}^3$ 、注入時温度は室温~500 $^{\circ}\text{C}$ 、アニール温度は 1600~1800 $^{\circ}\text{C}$ と注入条件を変化させている。Al イオンは表面から 200nm 付近までほぼ均一に分布している。

本研究の目的のためには X 線の平行性が高く単色性・エネルギー可変性を備えた光源が必要である。このため、実験には高エネルギー加速器研究機構放射光研究施設(KEK-PF)のビームライン BL-14B、B1-3C を用いた。光学系の概要を図2に示す。基本は斜入射 X 線トポグラフィー光学系で X 線波長と入射角を変化させて試料への X 線侵入深さを制御した。試料下流のアナライザ結晶には Si(220)を用いた。試料角度を揺動して得られる画像セットから検出器のピクセル事にロッキングカーブを作成し、その最大値・ピークシフト量を 2 次元画像に再構成することで歪分布の定量的評価を試みた。検出器には X 線 CCD カメラ(Photonic Science, XFDI)を用いた。有効ピクセルサイズは $6.45 \times 6.45 \mu\text{m}^2$ 、空間分解能は約 15 μm である。

産業分野の応用という観点からは 3 インチウェハー全面を観察できる大照射面積の光学系が望ましい。そこで単色 X 線・エネルギー可変の条件に加え約 $\phi 100\text{mm}$ の照射面積を得られる日本

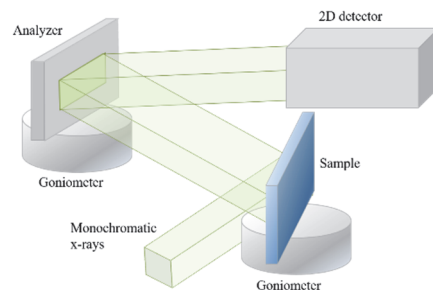


図2 放射光を用いた光学系

大学電子線利用研究施設のパラメトリック X 線放射 (Parametric x-ray radiation source; PXR) [5] を光源とする光学系も検討した。

4. 研究成果

図 3 にイオン注入を行っていない試料の 11-28 反射トポグラフと局所ロッキングカーブ法により得られた分布を示す。X 線波長 1.26 Å、試料への X 線入射角を 5° にとり X 線侵入深さをエピ層/基板界面近傍 (2~10 μm) とした。従来の斜入射トポグラフィー光学系で得られる画像 (図 3(a)) に対し、アナライザ結晶を用いた光学系では図 3(b) のように試料の一部のみが鮮明になり試料の歪に敏感になっていることが分かる。ここでの「歪」は格子面間隔変化と格子面の傾きが混在したものであるが、局所ロッキングカーブ法により画素ごとの最大値を再構成することで、アナライザ結晶のアクセプタンス幅内の精度で格子面の傾きの影響が除去され、図 3(c) のように試料全面の画像が得られた。この図のコントラストは主に格子面間隔の変化に起因すると考えられる。一方、局所ロッキングカーブのピーク位置シフトをマッピングすることで試料の格子面の傾き分布が得られる (図 3(d))。

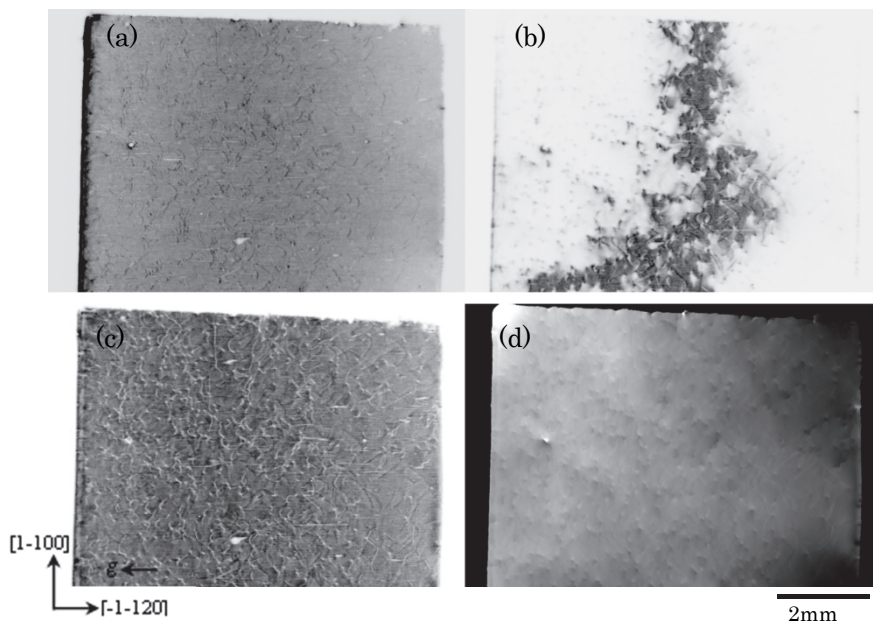


図 3 4H-SiC のイメージ
斜入射トポグラフ(a)とアナライザ結晶による角度分解像(b)、局所ロッキングカーブから再構成した最大強度分布(c)、ピークシフト分布(d)

この手法を用いてイオン注入を行った試料の X 線侵入深さによる違いを観察した例を以下に示す。イオン注入条件は基板温度 500°C、Al イオン濃度 1×10^{21} ions / cm³、アニールは 1800°C で 5 分間行っている。比較のためイオン注入を行っていない試料も測定した。X 線波長を 1.26 Å および 1.13 Å とし、試料への X 線入射角はそれぞれ 5° および 0.3° で試料の 11-28 反射を撮影した。後者の X 線侵入深さは 0.3~0.8 μm と見積もれる。図 4 は従来の斜入射トポグラフィー法で撮影したイメージで、イオン注入を行っていない試料では X 線入射角を浅くしても大きな違いは生じないが、イオン注入した試料の極表面では画面の一部しか焦点が合わなくなり、歪・変形が生じていることがうかがえる。

このイオン注入を行った試料に対して同じ波長・入射角で局所ロッキングカーブを測定し、再構成した画像が図 5 である。最大強度分布のうち X 線侵入深さの深い図 5(a) では転位によ

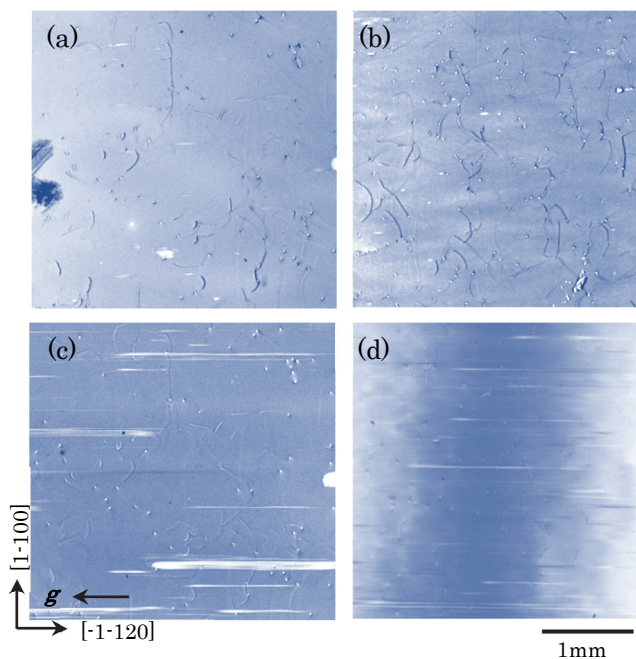


図 4 4H-SiC の斜入射トポグラフ
イオン注入なし(a, c)とイオン注入あり(b, d)の場合。
(a),(b)は X 線入射角 5°、(c),(d)は約 0.3° で測定。

る歪場が鮮明でトポグラフ(図 4(b))のコントラストを強調したような状態であるが、トポグラフではフラットに見える無欠陥部位にも弱いコントラストがあり、歪分布を高感度でとらえていることが分かる。極表面(図 5(c))では転位像の輪郭が不鮮明になり、貫通らせん転位、貫通刃状転位はほとんど識別できない。一方、ピークシフト分布では X 線侵入深さの深い図 5(b)でも基底面転位のコントラストは弱く貫通らせん転位、貫通刃状転位は強調されている。これらのコントラストの生成原因は欠陥の歪状態と光学系の性能を考慮した検討が必要である。ピーク位置変化では深部(図 5(b))での平均のピークシフト値が 0 でほぼ均一な分布となっているのに対し、表面層(図 5(d))では平均 5 μrad 程度で $-20\sim+10$ μrad の範囲で分布している広域の歪分布が観察された。これらの結果はイオン注入によってエピタキシャル層の表面近傍に生成した歪場がその後のアニーリング処理によっても完全に取り去られていないことを意味する。今回の実験ではアナライザ結晶のロッキングカーブ幅は実測で約 17 μrad で、20 ppm 程度以下の格子面間隔変化は分離できていない。測定精度を向上させより高品質の結晶に対応するためにはアナライザ結晶の回折面を高次反射にするなどの改善が必要である。

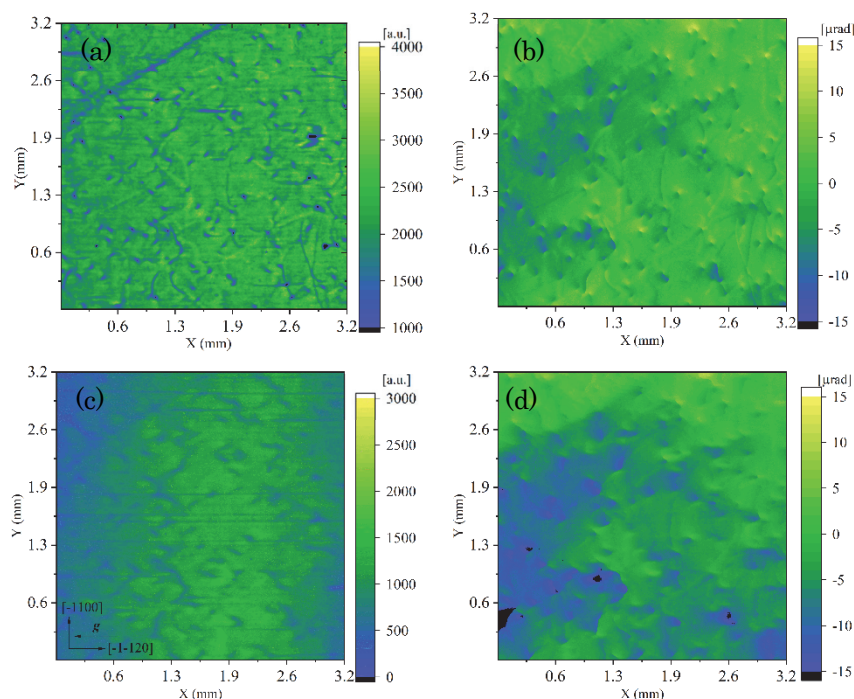


図 5 局所ロッキングカーブからの再構成図
最大強度分布(a)(c)とピークシフト分布(b)(d)
X 線入射角は 5° (a)(b)および 0.3° (c)(d)

斜入射トポグラフィーとロッキングカーブ法を組み合わせ、一方位測定で格子面間隔変化と格子面の傾きを分離することによって面内方向と深さ方向の情報とを併せ持つ広域歪の評価方法を確立した。この手法で Al イオン注入 SiC 基板の歪状態を観察し、イオン注入の影響と考えられる広域の歪場が観察された。これらのことから格子欠陥などのマイクロな欠陥に加え広域歪も考慮した評価方法の有効性を確認できた。

<引用文献>

- [1] 川戸清爾、放射光 X 線トポグラフィーの進展、日本結晶学会誌、54 巻、2012、2-11.
- [2] 高橋由美子、他、イオン注入 SiC 基板の X 線侵入長を制御した斜入射トポグラフィー、第 27 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム予稿集、2014、p 143.
- [3] 志村考功、他、放射光 X 線トポグラフィーによる極薄ひずみ Si 層の結晶性評価、日本結晶学会誌 54 巻、2012、47-53.
- [4] Tetsuya Ishikawa, et. al., Angle-Resolved Plane Wave X-Ray Topography. Jpn. J. Appl. Phys., **24** (1985) L559-L562.
- [5] Y. Takahashi et. al., Parametric X-ray radiation as a novel source for X-ray imaging, X-Ray Spectrom., **41** (2012) 210-215.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

- ① Y. Hayakawa, K. Hayakawa, K. Nogami, T. Sakai, I. Sato, Y. Sumitomo, Y. Takahashi and T. Tanaka, Performance of K-edge subtraction tomography as an application of parametric x-ray radiation, Phys. Rev. Accel. Beams **22** (2019) 024701. 査読有.

DOI:10.1103/PhysRevAccelBeams.22.024701

- ② Y. Hayakawa, K. Hayakawa, T. Kaneda, K. Nogami, T. Sakae, T. Sakai, I. Sato, Y. Takahashi and T. Tanaka, Simultaneous K-edge subtraction tomography for tracing strontium using parametric X-ray radiation, Nucl. instrum. methods phys. res., B 402, (2017) 228-231. 査読有.
DOI:10.1016/j.nimb.2017.03.014
- ③ K. Hirano, Y. Yamashita, Y. Takahashi and H. Sugiyama, Development and application of variable-magnification x-ray Bragg optics, AIP Conf. Proc. 1741 (2016) 040020. 査読有. DOI:10.1063/1.4952892

[学会発表] (計 9 件)

- ① 高橋由美子, 平野馨一, 志村考功, 長町信治, Al イオン注入 SiC 基板の角度分解トポグラフィと逆格子空間マッピング, 2018 年度量子ビームサイエンスフェスタ, 2019 年
- ② 高橋由美子, 平野馨一, 志村考功, 長町信治, Al イオン注入 SiC 基板の逆格子マッピングによる歪状態の観察, 第 32 回日本放射光学会年会, 2019 年
- ③ 高橋由美子, 平野馨一, 志村考功, 長町信治, 斜入射角度分解トポグラフィによる Al イオン注入 SiC 基板の歪分布観察, 第 54 回 X 線分析討論会, 2018 年
- ④ Y. Hayakawa, K. Hayakawa, K. Nogami, T. Sakai, I. Sato, Y. Sumitomo, Y. Takahashi and T. Tanaka, Performance of K-edge subtraction tomography as an application of parametric x-ray radiation, CHARGED & NEUTRAL PARTICLES CHANNELING PHENOMENA 2018, 2018 年
- ⑤ 高橋由美子, 平野馨一, 志村考功, 長町信治, 逆格子空間マッピングと角度分解トポグラフィによる Al イオン注入 SiC 基板の歪状態の観察, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018 年
- ⑥ 高橋由美子, 平野馨一, 志村考功, 長町信治, 逆格子空間マッピングと局所ロッキングカーブ法による Al イオン注入 SiC 基板の歪状態の観察, 2017 年度量子ビームサイエンスフェスタ, 2018 年
- ⑦ 高橋由美子, 平野馨一, 志村考功, 長町信治, 角度分解トポグラフィと逆格子マッピングによる SiC 基板の歪分布観察, 第 31 回日本放射光学会年会, 2018 年
- ⑧ 高橋由美子, 平野馨一, 志村考功, 長町信治, X 線侵入深さ依存性を考慮した角度分解トポグラフィによる Al イオン注入 SiC 基板の歪状態の観察, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 2017 年
- ⑨ 高橋由美子, 平野馨一, 志村考功, 長町信治, 角度分解トポグラフィと局所ロッキングカーブ法によるイオン注入 SiC 基板の歪分布観察, 第 52 回 X 線分析討論会, 2016 年

[その他]

日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設ホームページ:

<http://www.lebra.nihon-u.ac.jp/>

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所放射光施設ホームページ:

<http://www2.kek.jp/imss/pf/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 平野 馨一

ローマ字氏名: (HIRANO, Keiichi)

所属研究機関名: 大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

部局名: 物質構造科学研究所

職名: 准教授

研究者番号 (8 桁): 40218798

研究分担者氏名: 早川 恭史

ローマ字氏名: (HAYAKAWA, Yasushi)

所属研究機関名: 日本大学

部局名: 理工学部

職名: 教授

研究者番号 (8 桁): 40307799

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。