

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2006～2010

課題番号：18106001

研究課題名（和文）

真のヘテロ界面構造とその形成

研究課題名（英文）

Intrinsic Hetero-interface Structures and Their Formation

研究代表者

竹田 美和 (TAKEDA YOSHIKAZU)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：20111932

研究成果の概要（和文）：本研究では、「埋もれた界面」構造を研究室レベルで評価できる高性能 X線 CTR 散乱装置を開発し、一般に利用できる装置を構築した。界面構造の形成過程を「その場」で明らかにし、界面構造がデバイスに与える意味を明確に把握した。界面構造を制御し、デバイスの高性能化において、「界面構造制御」という新たな切り口を開拓した。

研究成果の概要（英文）：

- 1) The X-ray CTR scattering measurement system that uses laboratory X-ray sources and that can investigate the buried interfaces was fabricated.
- 2) The hetero-structure formation was observed *in situ* by X-ray diffraction, X-ray CTR scattering, and X-ray reflectivity.
- 3) The hetero-structure and device structure properties were correlated.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	30,300,000	9,090,000	39,390,000
2007年度	23,700,000	7,110,000	30,810,000
2008年度	11,600,000	3,480,000	15,080,000
2009年度	11,600,000	3,480,000	15,080,000
2010年度	12,200,000	3,660,000	15,860,000
総計	89,400,000	26,820,000	116,220,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：ヘテロ界面、結晶成長、CTR散乱法、X線構造解析

## 1. 研究開始当初の背景

- (1) 半導体ヘテロ構造における「界面」の重要性は認識されていたが、その定量評価法がなく実験は困難であった。
- (2) それに対して我々は界面定量評価の唯一の可能性として X線 CTR 散乱法に着目し、表面の平坦さの評価にもつぱら用いられていた本法を、X線の透過性を考え、「埋もれた」界面に適用出来ることを実証してきた。

## 2. 研究の目的

- (1) 密接なフィードバックを可能とする結晶

成長の「現場」での迅速な界面構造解析環境として、「埋もれた界面」構造をラボレベルで評価できる高性能 X線 CTR 散乱装置を開発する。

- (2) 結晶成長過程で「埋もれた界面」の形成過程を見る、の2点を目的とした。

## 3. 研究の方法

- (1) 「真のヘテロ界面構造」を明らかにする装置として、実験室系 X線源を用いて、半導体ヘテロ構造を成長しながら X線 CTR 散乱の測定が可能な装置系を作る。

(2) CTR 散乱のデータの取り込み、バックグラウンドの除去、カーブフィッティングによる解析を PC 上で一般に利用できるようにするため、分かり易いソフトに仕上げる。

(3) 青色発光ダイオード／レーザーの層構造を明らかにし高効率化を図る。

#### 4. 研究成果

(1) 実験装置の構成、(2) 測定、(3) 測定結果の解析に分けて報告する。

### (1)【実験装置の構成】

#### ①実験室系 X線CTR 散乱測定装置の構成



図1 実験室系 X線回折装置の X線源 (3) の直後に、多層膜集光ミラー (4) と非対称反射結晶を取り付け、ゴニオメーター (1) の試料ステージで X線の集光し、右側受光側のアームにスリット系を配置することで IP(2) の SN 比を格段に上げることができ、下図のように室温において放射光 X線での測定に匹敵するスペクトルを得ることに成功した。

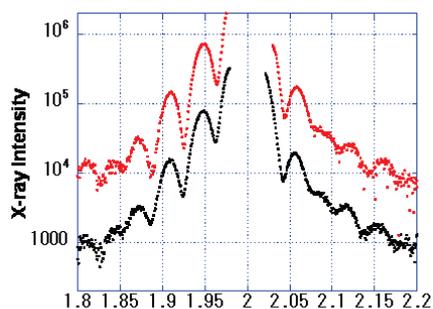


図2 GaN/GaInN/GaN ヘテロ構造の X線 CTR スペクトル。赤が放射光 X線 (測定時間 2 分)、黒が上の装置 (90 分) でのスペクトル。SN 比が悪いと測定時間を伸ばしても良好なスペクトルとならない。

### ②結晶成長装置の組み込み

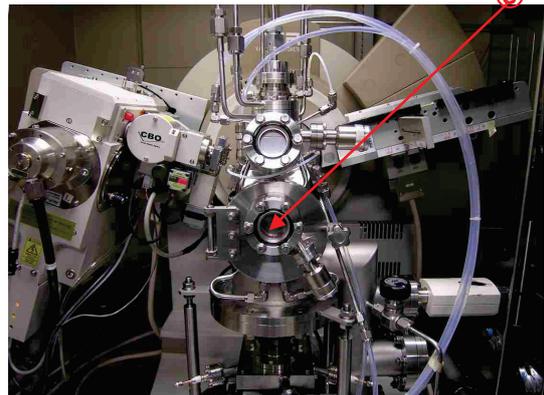


図3 小型縦型の MOVPE 反応炉 (5) を製作し、前頁の実験室系 X線 CTR 散乱装置の試料ステージ部に取り付けた。試料ステージ表面が反応炉内のサセプター部となる。加熱による変形等を考慮し、Z ステージ (上下方向) の微調が可能である。基板温度は GaN 系半導体に必要な 1,200°C まで昇温可能である。

また、実際の成長な原料ガス系、キャリアガス系、排ガス処理系および真空ポンプ類も設置した。

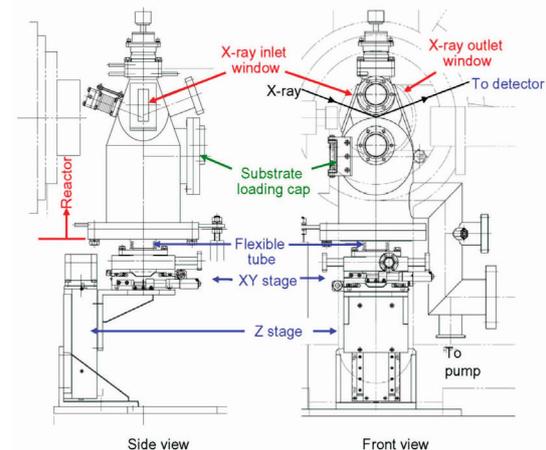


図4 図3の成長装置の設計側面図と表面図



図5 Ga、Al、In の有機金属原料供給系、アンモニア供給系およびキャリアガス水素、窒素の供給系。



図6 本体の後ろに真空ポンプ類および排ガス処理系。X線発生装置の電源制御部は⑥である。



図7 X線ゴニオ制御部(⑦)、解析用PC(⑧)及び原料ガスの流量制御系(⑨)を本体の前面に備えている。

## (2) 【測定】

### 室温および高温での測定

本研究で開発した成長装置を持つX線回折装置は、X線CTR散乱、X線回折、X線反射率を室温から約1000℃までの任意の温度で(成長雰囲気下で)測定できる。

#### a) X線CTR散乱

他で成長したGa<sub>0.5</sub>In<sub>0.5</sub>N/GaNヘテロ構造試料を成長装置に装填し、窒素雰囲気中1,000℃でCTR散乱測定を行い、室温と遜色のないSN比のスペクトルが得られた(下図)。実験室系のCTR散乱測定装置と成長装置が組み合わされ、高温で稼働している世界で唯一の装置である。

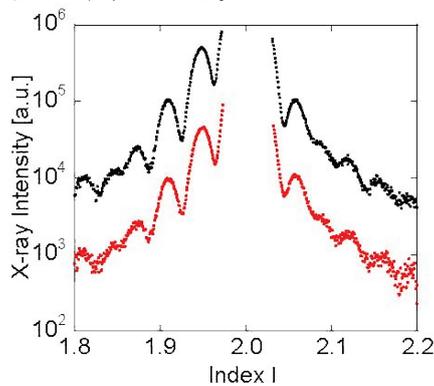


図8 Ga<sub>0.5</sub>In<sub>0.5</sub>N/GaNヘテロ構造の室温(黒)および1,000℃(赤)のCTRスペクトル。

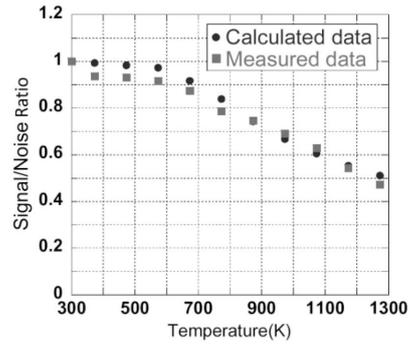


図9 X線CTR散乱におけるSN比(実験結果(■)とモデル計算(●))成長温度(～1300K(1000℃))付近では室温の半分程度になる。

#### b) X線回折

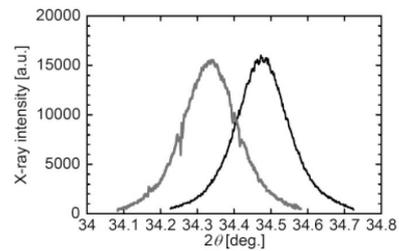


図10 GaNの1000℃での回折ピーク(左)と室温での回折ピーク(右)。

#### c) X線反射率

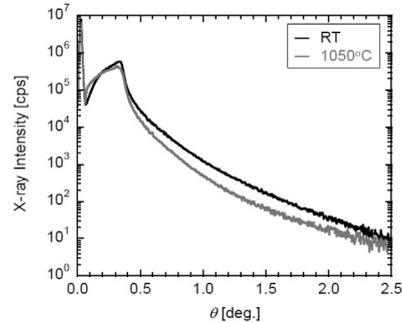


図11 GaNの室温と1050℃(成長温度付近)でのX線反射率。

## (3) 【測定結果】

### InGa<sub>0.5</sub>N及びGa<sub>0.5</sub>In<sub>0.5</sub>N/GaNの成長における「その場」測定

#### a) InGa<sub>0.5</sub>Nの成長における「その場」測定

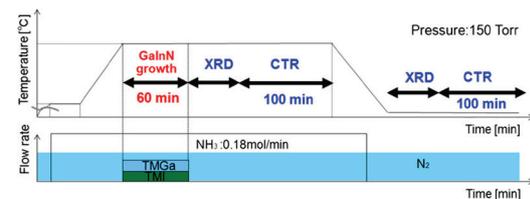


図12 InGa<sub>0.5</sub>Nの成長とXRDおよびCTR散乱の「その場」測定プロセス。

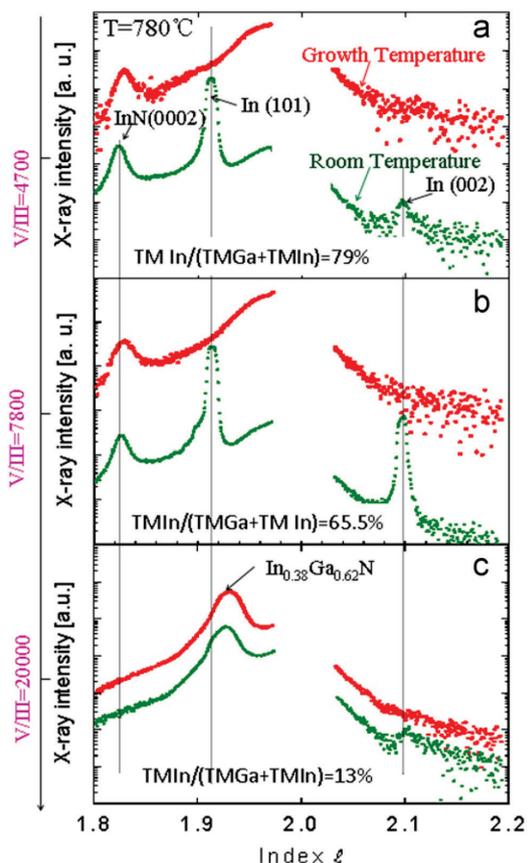


図 1 3 図 1 2 のプロセスにおける X 線 CTR 散乱スペクトル (赤 : 780°C、緑 : 室温)。成長温度と室温でのスペクトルの違いから、V/III 比が十分でない時は成長温度では In の液相が存在すると考えられる。また、(c) では  $\text{In}_{0.38}\text{Ga}_{0.62}\text{N}$  の単層が得られている。

#### b) GaN/InGaN/GaN の成長における「その場」測定

a) により InGaN 単層の成長と「その場」における X 線回折および X 線 CTR 散乱の測定が可能であることが示された。これ自身世界初の成果である。しかし、上記の手法では、液相層や非晶質層の検出が出来ないこと、X 線 CTR 測定に時間を要するため、成長の「その場」測定にふさわしいかどうかの検証が難しいなどの問題点もあった。そのため、より短時間で測定が可能である X 線反射率測定を加え、「その場」により近い条件での測定をデバイス構造である GaN/InGaN/GaN の成長に対して用いた。

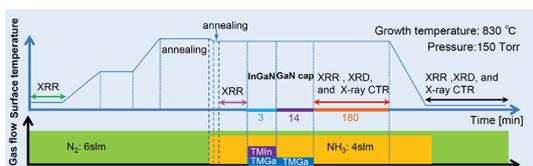


図 1 4 GaN/InGaN/GaN の成長と XRR、XRD および CTR 散乱の「その場」測定プロセス。

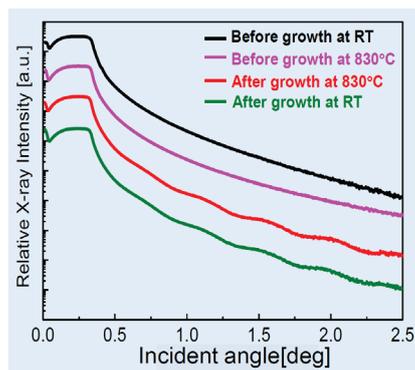


図 1 5 GaN/InGaN/GaN 成長後の X 線反射率スペクトル。各成長過程における違いが明瞭に現れている。

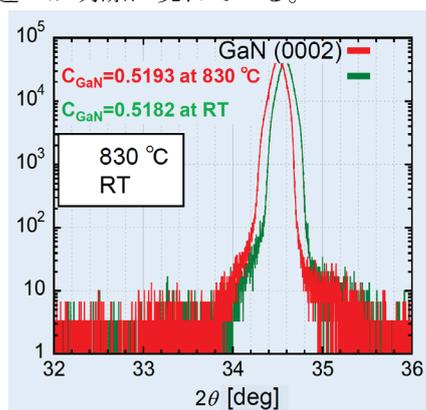


図 1 6 GaN/InGaN/GaN 成長後と室温冷却後の X 線回折スペクトル。

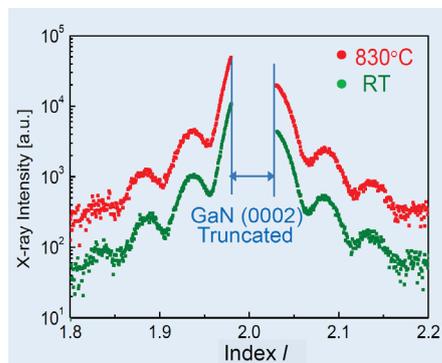


図 1 7 GaN/InGaN/GaN 成長後と室温冷却後の X 線 CTR 散乱スペクトル。

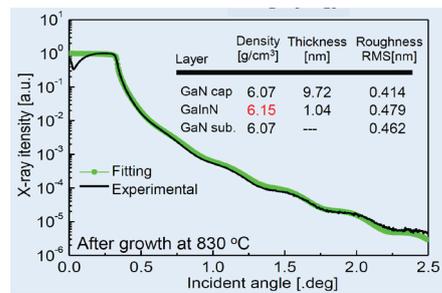


図 1 8 GaN/InGaN/GaN 成長後の X 線反射率と得られた情報。

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 16 件)

- ① "Novel system for X-ray CTR scattering measurement on in-situ observation of OMVPE growth of nitride semiconductor heterostructures", K. Ninoi, G. Ju, H. Kamiya, S. Fuchi, M. Tabuchi, and Y. Takeda, *Journal of Crystal Growth*, Vol. 318, pp., 1139-1142 (2011), 査読有, doi:10.1016/j.jcrysgro.2010.10.201
- ② "X-ray characterization at growth temperatures of InxGa1-xN growth by MOVPE", G. Ju, K. Ninoi, H. Kamiya, S. Fuchi, M. Tabuchi, and Y. Takeda, *Journal of Crystal Growth*, Vol. 318, pp.1143-1146 (2011), 査読有, doi:10.1016/j.jcrysgro.2010.11.051
- ③ "X-ray characterization of GaN and related materials at growth temperatures system design and measurements", Y. Takeda, K. Ninoi, G. Ju, H. Kamiya, T. Mizuno, S. Fuchi, and M. Tabuchi, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, Vol. 24, Art. # 012002 (2011), 査読有, doi:10.1088/1757-899X/24/1/012002
- ④ "Development of X-ray diffractometer for in-situ observation of thin-film crystal growth equipped with focusing monochromator", H. Tameoka, T. Kawase, M. Tabuchi, and Y. Takeda, *Physica Status Solidi (c)*, Vol. 8, No. 2, pp.294-296 (2011), 査読有, doi:10.1002/pssc.201000508
- ⑤ "Ga and As composition profiles in InP/GaNAs/InP heterostructures — X-ray CTR scattering and cross-sectional STM measurements", Y. Takeda, M. Tabuchi, and A. Nakamura, *Journal of Physics: Condensed Matter*, Vol. 22, Art. #474011 (2010), 査読有, doi:10.1088/0953-8984/22/47/474011
- ⑥ "Measurement of X-ray CTR Signals from GaN/GaN/GaN at High Temperatures Using Newly Developed Measurement System", Y. Takeda, T. Mizuno, H. Kamiya, K. Ninoi, and M. Tabuchi, *Transactions of the Materials Research Society of Japan*, Vol. 34, No. 4, pp.585-588 (2009), 査読有
- ⑦ "Study on Accumulation process of As atoms in InP/GaNAs/InP hetero-structures", M. Tabuchi, A. Mori, H. Tameoka, K. Fujii, and Y. Takeda, *Transactions of the Materials Research Society of Japan*, Vol. 34, No. 4, pp.593-595 (2009), 査読有

- ⑧ "Development of New X-ray CTR Scattering Measurement System Using Johansson Monochromator", M. Tabuchi, H. Tameoka, T. Kawase, and Y. Takeda, *Transactions of the Materials Research Society of Japan*, Vol. 34, No. 4, pp.589-5918 (2009), 査読有
- ⑨ "Buried Heterostructure of nitride semiconductors revealed by laboratory level X-ray CTR scattering"(invited), Y. Takeda, Y. Maeda, T. Mizuno, and M. Tabuchi, *Transactions of the Materials Research Society of Japan*, Vol. 33, pp.547-550 (2008), 査読有
- ⑩ "X-ray CTR scattering measurements using conventional X-ray source to study semiconductor hetero-interfaces", Y. Maeda, T. Mizuno, A. Mori, M. Tabuchi, and Y. Takeda, *Transactions of the Materials Research Society of Japan*, Vol. 33, pp.591-594 (2008), 査読有
- ⑪ "Analysis of In distribution in GaInN/GaN multilayer structures by X-ray CTR scattering", M. Tabuchi, Y. Ohtake, and Y. Takeda, *Transactions of the Materials Research Society of Japan*, Vol. 32, No. 9, pp.219-222 (2007), 査読有
- ⑫ "Study on buried interfaces in semiconductor heterostructures by X-ray reflectivity"(invited), Y. Takeda and M. Tabuchi, *Transactions of the Materials Research Society of Japan*, Vol. 32, No. 1, pp. 187-192 (2007), 査読有
- ⑬ "The importance to reveal buried interfaces in the semiconductor heterostructure devices"(invited), Y. Takeda and M. Tabuchi, *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 83, Art. #012002 (2007), 査読有, doi:10.1088/1742-6596/83/1/012002
- ⑭ "X-ray CTR scattering measurement to investigate the formation process of InP/GaNAs interface", M. Tabuchi, A. Mori, Y. Ohtake, and Y. Takeda, *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 83, Art. #012031 (2007), 査読有, doi:10.1088/1742-6596/83/1/012031

[学会発表] (計 39 件)

全て国際会議、国内会議は省略

- ① "X-Ray Characterization of Semiconductor Heterostructures at the Atomic-Level"(invited), Y. Takeda and M. Tabuchi, 2010 International Symposium on Crystal Growth, Hanyang University, Seoul, Korea, November 7-9 (2010)
- ② "X-ray CTR scattering measurement at growth temperature of InxGa1-xN grown by

- MOVPE", G. Ju, K. Ninoi, H. Kamiya, S. Fuchi, M. Tabuchi, and Y. Takeda, The 16th International Conference on Crystal Growth (ICCG-16), 8-13 August(2010), Beijing, China
- ③ "New X-ray CTR scattering measurement system using conventional X-ray source for in-situ observation of OMVPE growth of nitride semiconductor heterostructures", K. Ninoi, G. Ju, H. Kamiya, S. Fuchi, M. Tabuchi, and Y. Takeda, The 16th International Conference on Crystal Growth (ICCG-16), 8-13 August(2010), Beijing, China
- ④ "Development of X-ray diffractometer for in-situ observation of thin-film crystal growth equipped with focusing monochromator", H. Tameoka, T. Kawase, M. Tabuchi, and Y. Takeda, The 37th International Symposium Compound Semiconductors (ISCS2010), FrC3-7, Takamatsu Symbol Tower, Kagawa, Japan, May 31-June 4 (2010)
- ⑤ "Growth and characterization of nitride semiconductors by MOVPE reactor installed in the X-ray CTR measurements system", Y. Takeda, H. Kamiya, K. Ninoi, G.X. Ju, S. Fuchi, and M. Tabuchi, 9th Akasaki Research Center Symposium, Hotel Rubura Ohzan, Nagoya, Japan, March 12, (2010)
- ⑥ "Growth temperature and room temperature characterization of nitride semiconductors by MOVPE reactor installed in the X-ray CTR measurements system", Y. Takeda, K. Ninoi, G.X. Ju, S. Fuchi, and M. Tabuchi, 10th Akasaki Research Center Symposium, Hotel Rubura Ohzan, Nagoya, Japan, November 26, (2010)
- ⑦ Influence of growth rate and temperature on InP/GaN interface structure analyzed by X-ray CTR scattering measurement", H. Tameoka, A. Mori, M. Tabuchi, and Y. Takeda, 2009 Indium Phosphide and Related Materials (IPRM2009), MA2.4, Newport Beach, CA, USA, May 10-14(2009).
- ⑧ "X-ray CTR scattering analysis of As accumulation on GaInAs surface and growth temperature Effects", A. Mori, H. Tameoka, M. Tabuchi, and Y. Takeda, 2008 Indium Phosphide and Related Materials 2008 (IPRM2008), WeP6, Versailles, France, May 25-29(2008)
- ⑨ "MOVPE reactor and X-ray CTR measurement system for GaN and related compounds"(invited), Y. Takeda, T. Mizuno,

H. Kamiya, and M. Tabuchi, 8th Akasaki Research Center Symposium, Nagoya, Japan, November 20(2008)

- ⑩ "Desorption time of As adsorbed on GaInAs surface analyzed by X-ray CTR scattering", A. Mori, Y. Ohtake, T. Ujihara, M. Tabuchi, and Y. Takeda, 2007 Indium Phosphide and Related Materials 2007 (IPRM2007), PB29, Kunibiki Messe, Matsue, Japan, May 14-18, 2007, pp. 315-318 (2007)
- ⑪ "Mechanisms of As distribution in InP on GaInAs layer grown by OMVPE", M. Tabuchi, Y. Ohtake, A. Mori, and Y. Takeda, The 15th International Conference on Crystal Growth (ICCG15), o06, Salt Lake City, Utah, USA, August 12-17(2007)

[その他]  
ホームページ等  
<http://mars.numse.nagoya-u.ac.jp/f6/index6j.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

竹田 美和 (TAKEDA YOSHIKAZU)  
名古屋大学・工学研究科・教授  
研究者番号：20111932

### (2) 研究分担者

田淵 雅夫 (TABUCHI MASAO)  
名古屋大学・シンクロトロン光研究センター・特任教授  
研究者番号：90222124  
宇治原 徹 (UJIHARA TORU)  
名古屋大学・工学研究科・教授  
研究者番号：60312641  
渕 真悟 (FUCHI SHINGO)  
名古屋大学・工学研究科・助教  
研究者番号：60432241

### (3) 連携研究者なし