

令和 5 年 6 月 20 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02644

研究課題名（和文）屈折レンズ集光放射光ナノビームによるInGaN/GaN多重量子井戸構造の局所評価

研究課題名（英文）Local structure characterization of InGaN/GaN multi quantum wells by using synchrotron radiation nanobeam focused by compound refractive lens

研究代表者

木村 滋（Kimura, Shigeru）

公益財団法人高輝度光科学研究センター・回折・散乱推進室・主席研究員

研究者番号：50360821

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、放射光高分解能ナノビームX線回折システムを、35 keV以上の高エネルギーX線で利用できるようにし、局所逆空間マップの実空間マッピングとIn蛍光X線マッピングの同時測定を可能にするシステムを構築すること、更にそのシステムを利用し有効性を実証することを目的に行った。Si製屈折レンズを新規に作成し、ビームサイズ、590 nm（水平方向）× 320 nm（垂直方向）を実現し、システムを構築することができた。しかしながら、屈折レンズの開発に時間がかかり、(1-100)面InGaN/GaN多重量子井戸構造の格子緩和とIn組成ゆらぎの相関関係を解明することは出来なかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

Si-MEMS技術は日本が世界的に進んでいる技術であり、この技術で世界に先駆けて深さ100 μmの屈折レンズを作製し、サブミクロン集光が実現できたことは、本研究で提案したナノビーム回折と蛍光X線マッピングの同時測定だけでなく、高エネルギーX線用集光素子として、さまざまな材料評価に威力を発揮すると期待でき、その波及効果は、学術的にも社会的にも大きい成功である。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study was to construct a system that enables simultaneous measurement of real-space mapping of local reciprocal space maps and InK fluorescence X-ray mapping, and to demonstrate the effectiveness of the system. New refractive lenses made of Si was fabricated to realize a beam size of 590 nm (horizontal) × 320 nm (vertical), and the system was successfully constructed. However, because it took time to develop the refractive lenses, it was not possible to elucidate the correlation between lattice relaxation and In composition fluctuation in (1-100) InGaN/GaN multiple quantum well structures due to lack of time.

研究分野：結晶評価

キーワード：屈折レンズ 放射光 ナノビーム InGaN 多重量子井戸

1. 研究開始当初の背景

(1) III-V 族窒化物半導体の研究開発は近年急速に進展し、すでに、LED 電球、液晶ディスプレイ、交通信号機、携帯電話のバックライト、次世代 DVD など多方面に応用が展開している。このような LED やレーザを構成する III-V 族窒化物半導体には活性層として InGaN 結晶が用いられているが、最近では、発光効率の向上やレーザ閾値電流の低減のため無極性または半極性 InGaN 結晶が注目されている。これは、(0001)面に変えて、無極性や半極性 InGaN 結晶を活性層に用いることでピエゾ電界の発生を抑制でき、大幅な発光効率の向上が期待されるからである。一般に素子構造中の InGaN 結晶はヘテロ接合を構成するが、InGaN 結晶の層厚や In 組成を増加すると歪エネルギーが増加し、積層欠陥や転位の発生と共に格子緩和が生じる。最近、我々の研究グループは、無極性面である(1100)面 InGaN/GaN ヘテロ構造において、界面でのミスフィット転位の発生に伴って、InGaN 層に、 $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ 方向と $\langle \bar{1}\bar{1}20 \rangle$ 方向の異なった二種の格子面傾斜が存在し、それぞれ 10~数 10  $\mu\text{m}$  程度の大きさで分布することを放射光マイクロ回折により解明した (①)。一方、これまでの研究から、(0001)面 InGaN 結晶では、層厚や In 組成を増加した場合、面内の全領域で均一に格子緩和が起こることが知られており、(1100)面 InGaN 結晶で明らかとなった現象は、面方位の違いによる界面エネルギーの違いに起因するものと考えられ、興味深い現象である。

(2) 上述の研究は、(1100)面 InGaN 層では格子緩和度が面内で不均一に変化することを示している。したがって、その不均一性と In 組成ゆらぎに相関があるかを調べることは、(1100)面 InGaN/GaN ヘテロ構造の歪みを制御する上で非常に重要な課題である。

(3) 図 1 に、これまで SPring-8 の高輝度アンジュレータビームライン BL13XU で開発を行ってきた高分解能ナノビーム回折システムを示す (②, ③)。このシステムでは、集光素子として位相ゾーンプレートを使用することにより、定常的にビームサイズ 200 nm  $\times$  200 nm の集光放射光ビームを利用した局所逆格子マッピング測定が可能となっている。しかしながら、位相ゾーンプレートで集光可能な X 線のエネルギー範囲は 15 keV 以下に限られる。これは、位相ゾーンプレートのゾーンを形成する Ta が、これより高エネルギーの X 線に対しては、十分な位相差を付与できないことに起因する本質的な問題である。一方、In 原子の K 吸収端は 27.943 keV であるため、蛍光 X 線マッピングを測定するためには、吸収端以上の高エネルギー X 線を試料に照射しなければならず、現状では測定不可能である。

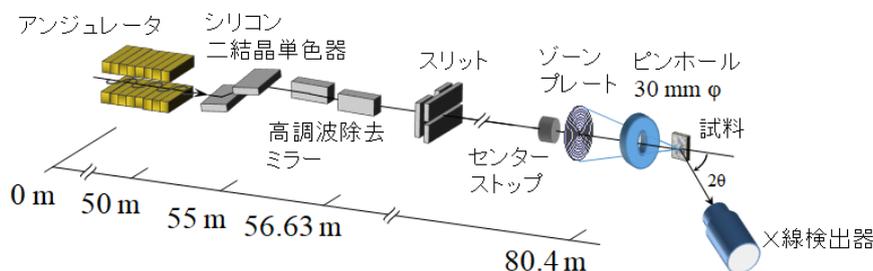


図 1 開発を行ってきた高分解能ナノビーム回折システム

2. 研究の目的

(1) 本研究では、MEMS (Micro Electro Mechanical Systems) 製造で利用される Si 深掘り技術であるボッシュプロセスに着目した。ボッシュプロセスは独ロバート・ボッシュ社で開発された Si 深掘り加工技術で、エッチングステップとパッシベーションステップを交互に行って Si をエッチングするプロセスで、垂直性を保ったままアスペクト比 50 程度の加工が可能である (④)。この技術を利用すれば、35 keV 用の高性能な屈折レンズが作製可能であると考え、本提案に至った。本研究は、この考えを具体化するため、微細加工に最適なレンズ配置を検討し、これまでにない高性能 Si 製屈折レンズを作製するとともに、そのレンズ性能を最大限に利用するナノビーム X 線回折システムを開発しようとするものである。

3. 研究の方法

(1) 35 keV の X 線に対する Si の屈折率は  $1 - \delta$  ( $\delta = 3.94 \times 10^{-7}$ ) であり、1 に非常に近く、かつ、わずかに小さい。このことは、X 線は凹レンズでわずかに集光することを意味している。したがって、焦点距離を縮めるためには、図 2 に示すように、多数の凹レンズを配置することにより行う。

(2) このような屈折レンズの場合、焦点距離  $f$  は、 $f = R/(2N\delta)$  で与えられ、 $R$  は中心部の曲率半径、 $N$  はレンズ数である。この式は、曲率半径  $R$  を小さくするか、レンズ数  $N$  を多くすれば、

焦点距離が短くなることを示しており、同じ焦点距離の屈折レンズを作製する場合でも  $R$  と  $N$  とには複数の解があることが分かる。したがって、レンズの曲率半径  $R$  を  $5\ \mu\text{m}$  以上とし、レンズ開口  $c$  を  $50\ \mu\text{m}$ ,  $80\ \mu\text{m}$ ,  $90\ \mu\text{m}$  の3種類、ビームの垂直方向、及び水平方向を、それぞれ、焦点距離  $200\ \text{mm}$  と  $100\ \text{mm}$  のレンズで集光することで、サブミクロンビームを得ることを目指した。

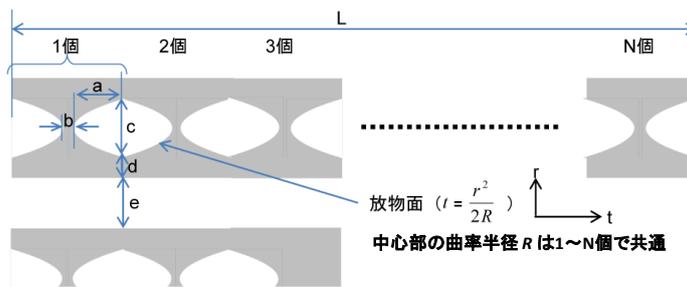


図2 Si製屈折レンズ配置の模式図

#### 4. 研究成果

(1) 表1と表2に作製したSi製屈折レンズのパラメータを示す。表1は垂直方向を集光するレンズ、表2は水平方向を集光するレンズのものである。表1の垂直方向に集光するレンズの焦点距離は、ほぼ  $200\ \text{mm}$ 、表2の水平方向に集光するレンズの焦点距離は、ほぼ  $100\ \text{mm}$  になっているのがわかる。2次元集光は表1と表2の同じレンズ番号のレンズを組み合わせを行った。レンズ番号1, 2, 3について金ワイヤー走査法によりビームサイズを求めた結果を図3-5に示す。全てのレンズでビームサイズがサブミクロンを実現している。集光ビームの光子数はレンズ番号1, 2, 3でそれぞれ、 $5.0 \times 10^8$ ,  $8.3 \times 10^8$ ,  $1.0 \times 10^9$ であった。これらの結果から、レンズ3が、ビームサイズが一番小さく、かつ、光子数が一番多く得られることが分かった。レンズ3のビームサイズと格子数は当初の目標を達成した。

表1 垂直方向を集光するレンズのパラメータ

レンズ番号	$R$ (mm)	$N$	$a$ (mm)	$b$ (mm)	$c$ (mm)	$f$ (mm)
1	5.06	32	61.76	10	50	200.7
2	8.86	56	90.29	10	80	200.8
3	10.13	64	99.95	10	90	200.9

表2 水平方向を集光するレンズのパラメータ

レンズ番号	$R$ (mm)	$N$	$a$ (mm)	$b$ (mm)	$c$ (mm)	$f$ (mm)
1	5.06	64	61.76	10	50	100.3
2	8.86	112	90.29	10	80	100.4
3	10.13	128	99.95	10	90	100.4

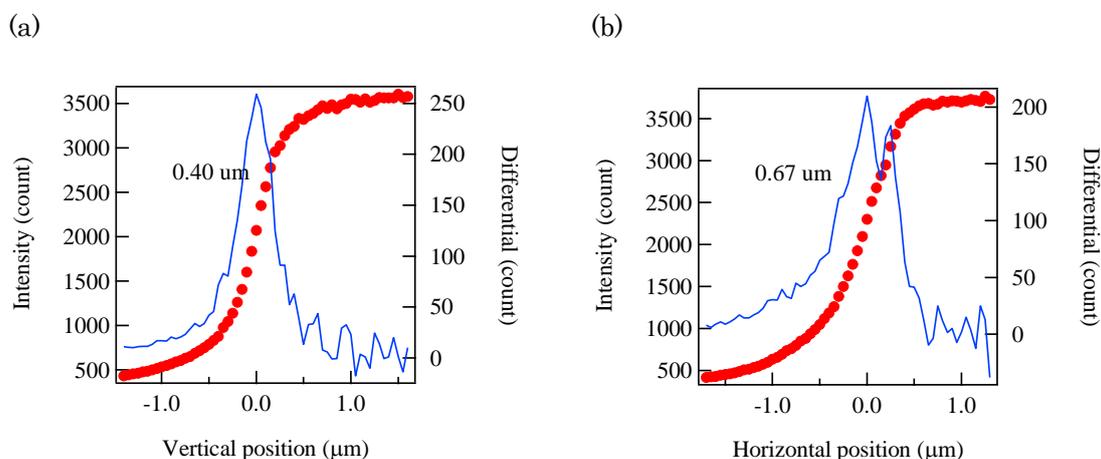


図3 レンズ番号1の垂直方向(a)と水平方向のビームプロファイル。赤丸は金ワイヤー走査により得られた透過強度、青線は透過強度を微分した曲線で、半値幅が示しているビームサイズである。

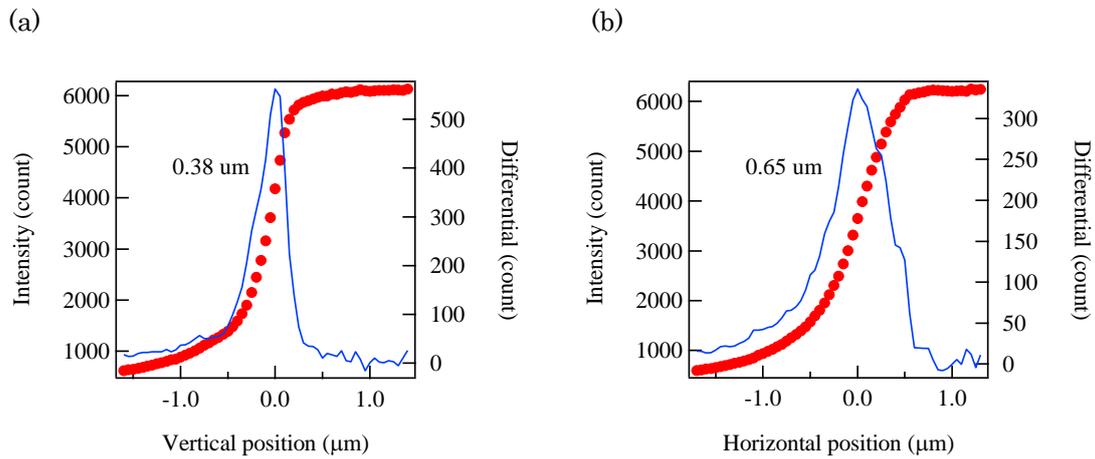


図4 レンズ番号2の垂直方向(a)と水平方向のビームプロファイル。赤丸は金ワイヤー走査により得られた透過強度、青線は透過強度を微分した曲線で、半値幅が示しているビームサイズである。

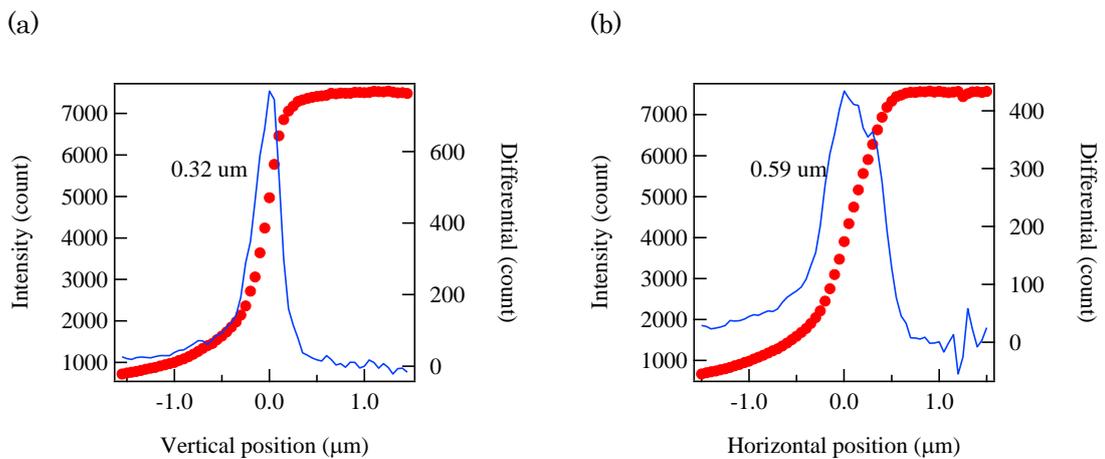


図5 レンズ番号3の垂直方向(a)と水平方向のビームプロファイル。赤丸は金ワイヤー走査により得られた透過強度、青線は透過強度を微分した曲線で、半値幅が示しているビームサイズである。

(2) 図6に今回作製したSi製屈折レンズを組み込んだナノビームX線回折システムを示す。本システムはSPring-8 BL13XUの第4実験ハッチに設置され、35 keVのナノビームを利用した局所逆格子マップ測定と蛍光X線の同時測定が可能となった。一方、このシステムの有効性を示すために行う予定であった(1100)面InGaN層の格子緩和度の不均一性とIn組成ゆらぎの相関に関する実験は、屈折レンズの開発に予定以上に時間がかかったため、現状まだ出来ていない。

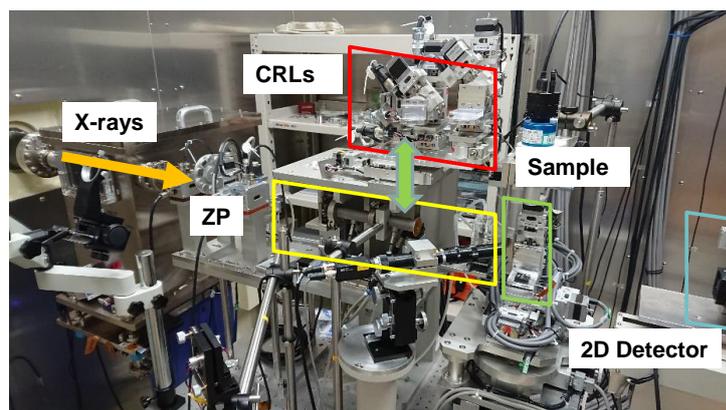


図6 Si製屈折レンズを組み込んだナノビーム回折装置

<引用文献>

- ① S. Yoshida, T. Yokogawa, Y. Imai, S. Kimura, and O. Sakata, "Evidence of lattice tilt and slip in m-plane InGaN/GaN heterostructure", Appl. Phys. Lett. **99**, 131909 (2011).
- ② S. Kimura, et al., "Nanometer-scale Characterization Technique for Si Nanoelectric Materials using Synchrotron Radiation Microdiffraction", Key Eng. Mater. **470**, 104-109

(2011).

③ Y. Imai, K. Sumitani, and S. Kimura, “Current status of nanobeam X-ray diffraction station at SPring-8”, AIP Conf. Proc. 2054, 050004 (2019).

④ 野沢 善幸, “Bosch 型エッチャーによるシリコン深掘り技術”, J. Vac. Soc. Jpn., 53, 446-453 (2010).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Kazushi Sumitani, Yasuhiko Imai, and Shigeru Kimura
2. 発表標題 Development of Compound Refractive Lenses Made of Si for Sub-micron Focusing of High-Energy X-rays
3. 学会等名 Material Research Meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 隅谷 和嗣, 今井 康彦, 木村 滋
2. 発表標題 高エネルギーX線サブミクロン集光のためのSi製屈折レンズの開発
3. 学会等名 2023年 第70回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 隅谷 和嗣, 今井 康彦, 木村 滋
2. 発表標題 Si製屈折レンズを用いた高エネルギーX線サブミクロン集光
3. 学会等名 第36回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	隅谷 和嗣  (Sumitani Kazushi)  (10416381)	公益財団法人高輝度光科学研究センター・回折・散乱推進室・研究員    (84502)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------