

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(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21560013

研究課題名（和文）

GaNのメゾスコピックなスケールでの結晶グレインに関する研究

研究課題名（英文）

Study on crystal grains of GaN which has microstructures in mesoscopic scale.

研究代表者

秋本 晃一 (AKIMOTO KOICHI)

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：40262852

研究成果の概要（和文）：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を用いて、GaN結晶に観察された μm オーダーのメゾスコピックなスケールのコントラストに対して、結晶面の傾きのずれと面間隔の伸縮を分離し測定することにはじめて成功した。また、極端に非対称なX線回折法を用いた表面近傍の研磨などによる表面のひずみの測定法を動力的回折理論を駆使して確立した。

研究成果の概要（英文）：By X-ray topography using CCD camera, $\Delta\theta$ and Δd successfully measured separately in μm order GaN which has microstructures in mesoscopic scale. By employing Darwin's dynamical X-ray diffraction theory, quantitative evaluation of strain at surfaces and interfaces becomes possible. Method of quantitative strain analysis on the GaN surface was established.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：結晶工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：化合物半導体、X線回折、結晶工学、窒化ガリウム、メゾスコピック

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 GaN に代表されるワイドギャップ半導体が実用化されつつあり、固体照明の光源や、高速、高耐圧のトランジスタの基板として期待され、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も有望視されている。

しかし、GaN は通常、サファイヤ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。しかし、本研究課題申請者らは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 GaN の結晶にメゾスコピックなスケールでの格子ひずみを観察することにはじめて成功した。トポグラフィのコントラストは数十秒から十数

秒と見積もられる結晶グレイン間のわずかな傾きによると考えられる。なお、TEM や CL 等の観察法では局所的な転位分布は見る ことができるが、サブミリメートル程度のメ ズスコピックなスケールでの結晶グレイン 間のわずかな傾きは観察されたことはない。 また、基板に近い部分の結晶からのトポグラ フと基板から数mm程度離れた位置の結晶 からトポグラフのコントラストは明らかに このようになっており、基板から離れた位置で より大きな結晶グレインとなっていることが わかった。しかし、結晶グレインの境界に特 徴的な強いコントラストを生じる部分もあ らわれていた。このようなコントラストは Si や GaAs では観察されず、GaN の電子デバ イスへの応用に問題をもたらすことはあきら かなである。

また基板から離れていくとコントラスト が変わることから成長過程でグレイン相互 の関係が変わり、結晶グレインを人為的に制 御することが可能であることも予想できる。

2. 研究の目的

窒化物系半導体は GaN/サファイヤ基板 等のヘテロ成長基板が主に用いられている が、デバイス特性の観点から高品質な単結晶 基板を用いることが望ましいことはいうま でもない。しかし、現行の窒化物半導体の単 結晶基板における結晶性は、Si や GaAs 系に 比べ、転位密度や空孔欠陥等が多く存在し、 充分な品質のものは創生できていないのが 現状である。本研究では、窒化物半導体結晶、 特に GaN 結晶に関して、高分解能 X 線トポ グラフィーを用い結晶グレインについて、そ の大きさ、結晶グレイン間の傾きを詳細に評 価する。これを結晶成長条件と対応させるこ とにより、結晶を劣化させている要因を明確 にし、高品質化に必要な改善ポイントを得る ことを目的とする。

また、基板結晶を切り離れた GaN 自立基 板に関して、成長過程における結晶グレイン の挙動と転位、欠陥との関係を明らかにする。 さらに、これらの成長条件、成長環境との相 関についても明確にする。

3. 研究の方法

X 線 CCD カメラを用いた X 線トポグラ フの実験配置の概略を図 1 に示す。c 面 ((001) 面) の GaN 結晶を試料とする場合、 波長約 1.24Å の X 線を用い 104 反射の回折線 を測定する。回折線の画像を空間分解能 7.4 μm 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。また試料を面内回転させて測 定を行い、出願特許 (産業財産権②、特願 2011-176546) の方法に従って格子面の傾き と格子面間隔の伸縮に分離する。

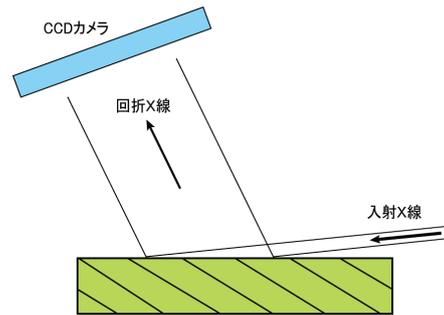


図 1 X 線トポグラフの実験配置

結晶面の傾きのずれ ($\Delta\theta$) や結晶の面間 隔の伸縮 (Δd) の分離の原理を図 2 に示す。

同じ面間隔で $\Delta\theta$ が存在している領域 (図 2 (b)) と存在しない領域 (図 2 (a)) を比べ ると、X 線の測定で試料の角度を変えていく とブラッグピークのあらわれる角度が $\Delta\theta$ だけ異なる。そして、試料を試料の面内で 180° 回転させた後、試料の角度を同じ向き に変えていくと、 $\Delta\theta$ が存在している領域の ピークは $\Delta\theta$ が存在しない領域のピークを 中心に $\Delta\theta$ 反転した位置にピークが現れる。

結晶面の傾きはなく Δd が存在する領域 (図 2 (c)) と存在しない領域 (図 2 (a)) を 比べると、試料の角度を変えていくとピーク の現れる角度が異なる。試料の面内で 180° 回転させた後、試料の角度を同じ向きに変え ていっても、 Δd が存在している領域と存在 しない領域のピークの関係は面内の角度を 変えない場合と同様になる。

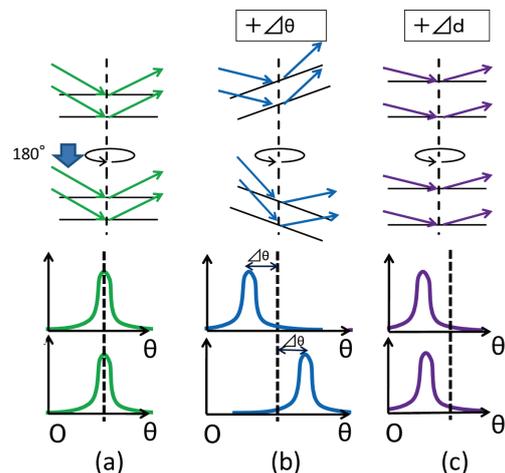


図 2 結晶面の傾き面間隔の伸縮の分離

GaN 結晶の表面近傍のひずみはその後の結 晶成長に大きな影響を与え、デバイス特性に も影響を与える可能性がある。本研究では、 結晶の研磨に着目し表面近傍のひずみを測 定する方法の一つである極端に非対称な X 線回折法により研究を行う。

極端に非対称なX線回折法をGaN結晶に対して行った場合の理論的な回折強度曲線の計算を行った。図3に完全結晶で期待される回折強度曲線の半値幅や侵入深さを示す。GaN結晶のc面の場合、103反射で波長1.55ÅのX線を用いると極端に非対称なX線回折の光学系が実現できる。図3に示されるように、X線の波長を変えることにより、結晶への侵入深さを自由に制御できる。図3の横軸の波長の下の()内が侵入深さを示している。

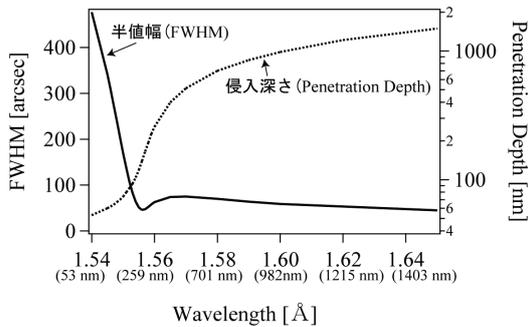


図3 極端に非対称なX線回折法における侵入深さと半値幅

4. 研究成果

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ン放射光を用いたX線トポグラフィーの手法で研究を行ってきた。撮影されたX線トポグラフの例を図4(a)の写真に示す。μmオーダーのメゾスコピックなスケールでのコントラストが観察できる。

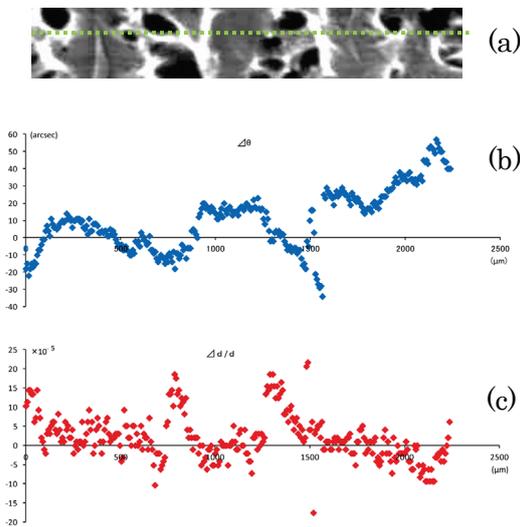


図4 X線トポグラフにおける角度の傾斜と面間隔の分離

前述の研究の方法に記載された方法を用いて、X線トポグラフィーの手法を用いて結晶面の傾きのずれ($\Delta\theta$)と面間隔の伸縮(Δ

d/d)を分離し測定することをGaN結晶に対してはじめて成功した。図4(a)の横点線に沿って測定し得られた $\Delta\theta$ が図4(b)であり、 $\Delta d/d$ が図4(c)である。この成果は応用物理学会で発表するとともに出願特許(産業財産権②、特願2011-176546)として発表した。X線トポグラフ像(図4(a)(写真))では複雑な形状をした結晶ドメインが存在しており、それに対応して $\Delta\theta$ (図4(b))も大きく変動しているが、 $\Delta d/d$ (図4(c))は多くの場所で 10^{-5} 台であるのに対し、 10^{-4} 台にまで大きくなるのはかなり限られている。2mmの範囲で2か所しかない。結論として複雑な形状をしている結晶ドメインから、 $\Delta d/d$ が大きくなるという観点から問題となる結晶ドメインを特定できた。

一般に、単結晶を成型・切断・研磨しウエハを作製するが、GaNは熱的、化学的に非常に安定であるため、研磨加工、中でも化学機械研磨(CMP)はかなり困難な状況にあり、最も適した研磨法は未だ確立されていない。これは表面近傍のひずみについて測定する方法が限られているためでもある。本研究ではGaN結晶の研磨による表面近傍のひずみの測定を極端に非対称なX線回折法により行った。

測定したロッキングカーブからの半値幅(FWHM)を各侵入深さで求めた結果を図5に示す。

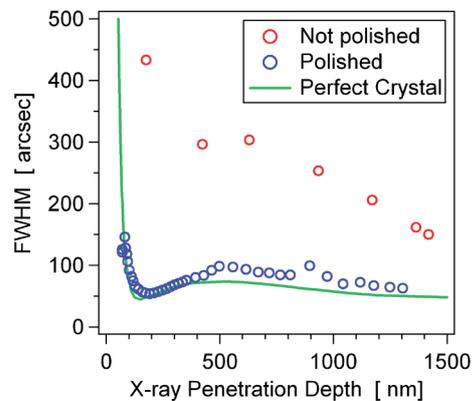


図5 研磨条件によるX線の回折強度曲線の半値幅の違い

実験試料として研磨条件の異なるGaN単結晶を2種類用意した。それぞれCMPを行ったものと行っていないものの2つである。それぞれの試料において実験を行い、任意の侵入深さからのロッキングカーブを測定した。各試料の実験値が点(青, 赤)で、完全結晶から期待される半値幅(計算値)が緑の実線で表わされている。また横軸のX線侵入深さは、ピーク時における値を示した。CMPを行った試料は理論値にかなり近付いていることがわかった。

図5に示されるように、CMPを行った試料についてもX線の侵入深さが300~800nmの場合には半値幅は理論値とはやや異なっている。これがどの程度なのか、いくつかの理論曲線を角度の分散として重ね合わせることで解析した。その結果を図6に示す。その結果、角度の分散は $0.007\sim 0.013^\circ$ という非常に小さな範囲におさまっていることが分かった。

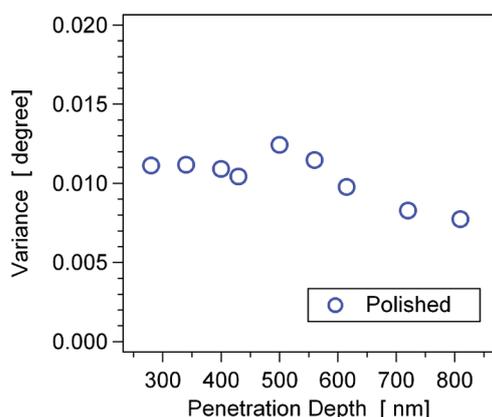


図6 理論曲線の重畳より求められた角度の分散

この成果は応用物理学会で発表するとともに、出願特許（産業財産権①、特願2012-041155）として発表した。

本研究は、他の方法よりも高精度に格子ひずみを測定できる手法であるシンクロトロン放射光を用いたX線トポグラフィーによりはじめて明らかになった μm オーダーのメゾスコピックなスケールの結晶グレインについて結晶面の傾きのずれ($\Delta\theta$)と面間隔の伸縮($\Delta d/d$)を分離し測定することによりGa₂N結晶のさらなる高品質化に資することに最大の特徴がある。また、測定する手法が少ない表面近傍の微小なひずみを、課題申請者が高い評価を得てきた極端に非対称なX線回折法により研究を行うことも特筆すべきことである。

窒化物系半導体材料は、次世代の発光デバイスや電子デバイスに道を開く必要不可欠な材料である。本研究によりGa₂N自立基板が広く実用化されれば、転位密度を2桁以上低減でき、極めて高効率な光源が実現できる。また、電子デバイス用途でも高周波パワーデバイス、ノーマリオフFET等、高出力、低損失の素子開発への利用への道が拓けることが期待される。このように、Ga₂Nを代表とする窒化物半導体は高効率なデバイスの創出によって、今や喫緊の課題となった省電力技術と地球環境問題への貢献においても大いに期待される材料であり、高品質で安価な基板の普及は産業、経済、社会への貢献度も極

めて高いと考えられる。

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9件)

- ① K. Akimoto and T. Emoto, Quantitative strain analysis of surfaces and interfaces using extremely asymmetric X-ray diffraction (Topical Review), Journal of Physics: Condensed Matter, 22(47),473001 (19pp), 2010, 査読有, DOI:10.1088/0953-8984/22/47/473001
- ② W. Voegeli, T. Takayama, T. Shirasawa, M. Abe, K. Kubo, T. Takahashi, K. Akimoto, and H. Sugiyama, Structure of the quasi-one-dimensional Si(553)-Au surface: Gold dimer row and silicon honeycomb chain, Phys. Rev. B82, 075426, 2010, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevB.82.075426
- ③ T. Emoto, J. Ghatak, P. V. Satyam, and K. Akimoto, Strain evolution in Si substrate due to implantation of MeV ion observed by extremely asymmetric x-ray diffraction, J. Appl. Physics, 106(4), 043516, 2009, 査読有, DOI:10.1063/1.3202329
- ④ T. Takayama, W. Voegeli, T. Shirasawa, K. Kubo, M. Abe, and T. Takahashi, K. Akimoto, H. Sugiyama, Structural Study of the Si(553)-Au Surface, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, 7, 533-536, 2009, 査読有, DOI:10.1380/ejsnt.2009.533

[学会発表] (計22件)

- ① 鈴木良和, 持木健吾, 秋本晃一, 浪田秀郎, 長尾哲, X線回折法によるGa₂N表面近傍のひずみ評価, 2012年春季第59回応用物理学関係連合講演会, 早稲田大学(東京都), 2012年3月18日.
- ② K. Akimoto, Strain analysis of SiC and Ga₂N surface regions using extremely asymmetric X-ray diffraction, 11th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN11), St. Petersburg (Russia), 2011年10月4日.
- ③ 持木健吾, 鈴木良和, 秋本晃一, 浪田秀郎, 長尾哲, X線トポグラフ法によるGa₂N結晶の結晶面の傾きと面間隔の伸縮の分離, 2011年秋季第72回応用物理学学会学術講演会, 山形大学(山形県), 2011年8月30日.

- ④ 鈴木良和, 持木健吾, 秋本晃一, 榎本貴志, X線回折法による GaN 表面近傍のひずみ評価(計算), 2011 年秋季第 72 回応用物理学会学術講演会, 山形大学(山形県), 2011 年 8 月 30 日.
- ⑤ 秋本晃一, 極端に非対称な X 線回折法による半導体表面界面の格子ひずみ解析, 「X線・放射光による埋もれた界面の構造計測」シンポジウム, 物質・材料研究機構(茨城県), 2011 年 7 月 25 日.

[産業財産権]

○出願状況(計 2 件)

- ① 名称: 周期表第 13 族金属窒化物基板
発明者: 浪田秀郎, 長尾哲, 秋本晃一
権利者: 三菱化学株式会社
種類: 特許
番号: 特願 2012-041155
出願年月日: 24 年 2 月 28 日
国内外の別: 国内
- ② 名称: 窒化物半導体結晶の測定方法、ドメインの検出方法および窒化物半導体結晶の評価方法
発明者: 浪田秀郎, 長尾哲, 大畑達寛, 内山泰宏, 秋本晃一
権利者: 三菱化学株式会社
種類: 特許
番号: 特願 2011-176546
出願年月日: 23 年 8 月 12 日
国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

秋本 晃一 (AKIMOTO KOICHI)
名古屋大学・工学研究科・准教授
研究者番号: 40262852

(2) 研究分担者なし

(3) 連携研究者なし