

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：84502

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600151

研究課題名(和文) 石英製屈折レンズを用いる放射光マイクロ回折によるInGaN層のピンポイント評価

研究課題名(英文) Characterization of InGaN films by synchrotron radiation microdiffraction with using parabolic refractive X-ray lenses made of quartz glass

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・利用研究促進部門・副主席研究員

研究者番号：50360821

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：高エネルギー用X線集光素子として実績のある屈折レンズを石英で作製することに挑戦し、レンズを試作した。集光性能の測定は、高分解能マイクロ回折計に新たに屈折レンズ調整機構を組み込み、試料位置で金メッシュスキャンをすることにより、ビームサイズとフラックスの測定を実施した。測定された最小のビームサイズは、20 keV: 1.9 μm(水平方向)×1.1 μm(垂直方向)、25 keV: 1.5 μm(水平方向)×1.0 μm(垂直方向)、30 keV: 1.6 μm(水平方向)×1.6 μm(垂直方向)であった。30 keVの集光ビームを利用し、InGaN超格子の熱安定性の評価を実施した。

研究成果の概要(英文)：We have fabricated planar parabolic refractive X-ray lenses made of quartz glass for high energy X-ray focusing by optical lithography and dry etching techniques. We succeeded a 100-μm-deep etching, realizing that high efficient microfocusing for high energy X-rays. Using the lenses for 30 keV, we characterized thermal stability of InGaN multi quantum well structures.

研究分野：X線光学

キーワード：放射光 集光素子 屈折レンズ 石英 GaInN

1. 研究開始当初の背景

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、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 方向と $\langle \bar{1}120 \rangle$ 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 μm 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]。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この現象は、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。

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どうかを調べることは、(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。

2. 研究の目的

そこで、本研究では、これまで開発してきた放射光高分解能マイクロ回折システム[2]に、In 蛍光 X 線マッピングを測定できる機能を付加し、逆格子マップの実空間マッピングとの同時測定を可能にするシステムを構築し、InGaN 層の格子緩和と In 組成ゆらぎの相関関係を解明することが目的である。

放射光マイクロ回折を利用した局所逆格子マッピングによる InGaN/GaN ヘテロ構造の歪評価は、申請者らが世界に先駆けて進めてきた技術である[1]。これに、In 蛍光 X 線マッピング機能が追加されれば、非常に強力な評価ツールとなり、InGaN 結晶が使用されるさまざまなデバイスの高性能化に大きく寄与すると期待される。

3. 研究の方法

(1) 石英製屈折レンズの作製

30 keV の X 線に対する石英の屈折率は 1

$-\delta$ ($\delta = 5.07 \times 10^{-7}$) 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、多数の凹レンズを配置することにより行う。

(2) 屈折レンズのマイクロ回折計への導入

試作した屈折レンズを高分解能マイクロ回折システムに組み込む。このためには、レンズをアライメントするためのステージ類が必要となるが、既存の位相ゾンプレート調整用のステージ等を流用する。このシステムを使用し、実際に集光ビームサイズとフォトンフラックス測定を実施し、集光効率を求める。これにより、試作したそれぞれ 5 種類のレンズの内、微細加工に最適なレンズパラメータを決定する。

(3) InGaN 層の格子緩和と In 組成ゆらぎの相関関係の解明

GaN 基板にエピタキシャル成長した InGaN の In 組成ゆらぎを蛍光 X 線マッピングで測定するとともに、格子緩和を局所逆格子マッピングで測定し、両者の相関関係の有無を解明する。

4. 研究成果

(1) 石英製屈折レンズの作製

試作した屈折レンズの模式図を図 1 に示す。今回、レンズの開口 c を 100 μm に固定し、100 $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ の放射光ビームを集光することを目指し、ビームの垂直方向、及び水平方向を、それぞれ、焦点距離 200 mm と 100 mm のレンズを、X 線のエネルギー、20, 25, 30 keV 用にそれぞれ作製した。

これらレンズの作製にあたって、曲率半径 R とレンズ数 N について、微細加工に最適な組み合わせを探索することを目的とし、それぞれのエネルギー用に 3 種類のレンズを 1 枚の石英基板に作製した。作製したレンズのパラメータを表 1 に示す。

図 2 には、作製した屈折レンズのうち、焦点距 100 mm のもののレンズ番号 1 と 2 の斜め SEM 写真を示す。きれいにレンズが作製できていることが分かる。測長 SEM でレンズの寸法を測定した結果、設計寸法 $\pm 3.7\%$ で作製ができていることが分かった。

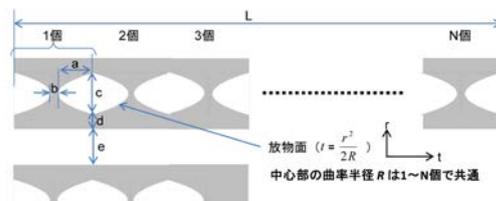


図 1 作製した屈折レンズの模式図。

表1 作製した屈折レンズのパラメータ.

f=100mm寸法表 (単位: μm)									
レンズNo.	R	a	b	c	d	e	径数(N)	L	エネルギー
1	45.73	27.3	10	100	50	100	200	12933.7	
2	13.72	108.5	10	109.1	50	100	60	13020	20keV用
3	4.57	273.5	10	100	50	100	20	11340.9	
4	29.24	42.7	10	100	50	100	200	15099.9	
5	11.09	135.7	10	112.7	50	100	80	22512	25keV用
6	2.92	428.1	10	100	50	100	20	17323.3	
7	20.29	61.6	10	100	50	100	200	26642.7	
8	8.12	163.0	10	102.5	50	100	80	26873.2	30keV用
9	2.03	615.8	10	100	50	100	20	24830.5	

f=200mm寸法表 (単位: μm)									
レンズNo.	R	a	b	c	d	e	径数(N)	L	エネルギー
1	45.73	27.3	10	100	50	100	100	6455.9	
2	13.72	108.5	10	109.1	50	100	30	6810	20keV用
3	4.57	273.5	10	100	50	100	10	5570.5	
4	29.24	42.7	10	100	50	100	100	9549.9	
5	11.09	135.7	10	112.7	50	100	40	11256	25keV用
6	2.92	428.1	10	100	50	100	10	8661.6	
7	20.29	61.6	10	100	50	100	100	13221.1	
8	8.12	163.0	10	102.5	50	100	40	13197.6	30keV用
9	2.03	615.8	10	100	50	100	10	12415.3	

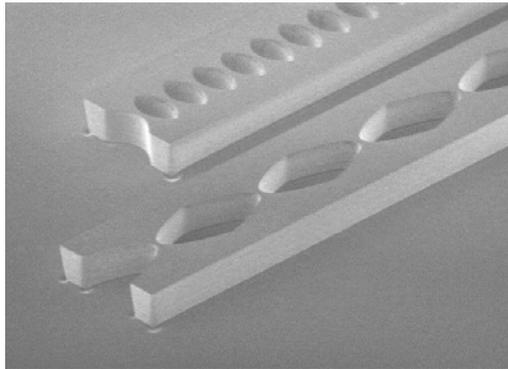


図2 屈折レンズの斜めSEM写真.

(2) 屈折レンズのマイクロ回折計への導入と集光性能の評価

集光性能の測定は、高分解能マイクロ回折計に新たに屈折レンズ調整機構を組み込み、試料位置で金メッシュスキャンをすることにより、ビームサイズとフラックスの測定を実施した(図3).

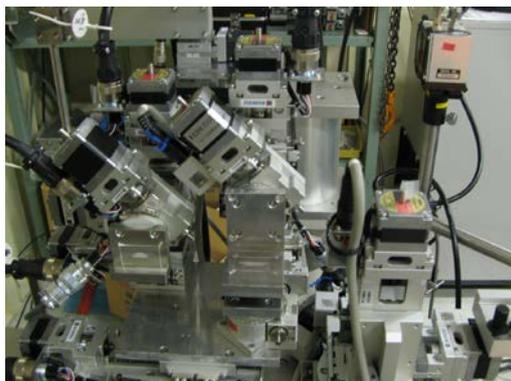


図3 高分解能マイクロ回折計に新たに屈折レンズ調整機構.

表2に測定されたビームサイズとフラックスを示す. 測定された最小のビームサイズは、20 keV: 1.9 μm (水平方向) × 1.1 μm (垂直方向), 25 keV: 1.5 μm (水平方向) × 1.0 μm (垂直方向), 30 keV: 1.6 μm (水平方向) × 1.6 μm (垂直方向)であった. また、フラックスはすべてのエネルギー、10⁸ photons/秒以上あり、十分に実用可能な高エネルギーマイクロビームが形成できることが分かった.

表2 集光性能

E (keV)	レンズNo. f=100 縦	レンズNo. f=200 横	集光サイズ 縦(μm)	集光サイズ 横(μm)	フラックス (phs/sec)
20	1	1	2.2	1.5	6.7×10 ⁸
	2	2	1.1	1.9	5.8×10 ⁸
	3	3	0.6	2.5	1.7×10 ⁹
25	4	4	1.5	1.0	2.2×10 ⁹
	5	5	3.4	1.3	2.7×10 ⁹
	6	6	1.8	1.0	3.5×10 ⁹
30	7	7	2.8	1.3	9.2×10 ⁹
	8	8	1.6	1.6	1.2×10 ¹⁰
	9	9	3.4	3.9	1.5×10 ¹⁰

(3) InGaN 層の格子緩和と In 組成ゆらぎの相関関係の解明

X線マイクロビームを用いた逆格子マップとIn蛍光X線をはじめて組み合わせ、同時、同一位置での局所領域測定により、低転位GaN基板上InGaN超格子の熱的安定性について調べた.

基板はc面バルクGaN基板を用いたInGaN系デバイスを成長した. 活性層は3nm厚InGaN(In組成10%)井戸層と7.5nm厚InGaN(In組成2%)バリア層の3周期の量子井戸構造とした. 種々の条件で熱処理を行うことにより、熱の影響を調べた. X線マイクロビームを用いた逆格子マップの実空間マップを得ると同時に、In蛍光X線の実空間マップも得た. 集光素子として屈折レンズを使用し、30keVの放射光を集光して使用した.

熱の影響の例として、キャップレス、窒素雰囲気中で830°C、20分の熱処理により発光スペクトルの短波長化が起こり、発光効率の減少が見られた(図4). この要因を明らかにするため、X線マイクロビームによる評

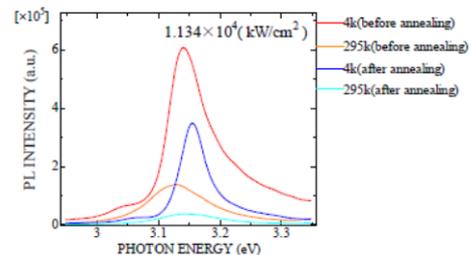


図4 発光スペクトル

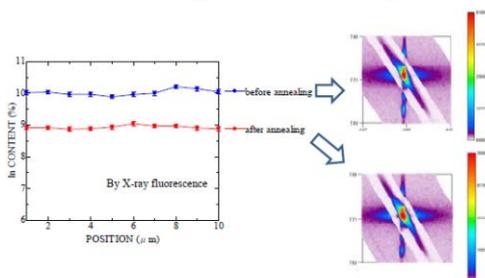


図5 蛍光X線強度と0008対称反射の逆格子マップ.

価を行った。逆格子マップでは熱処理前後で格子緩和は起こっておらず、In の平均組成が熱処理後減少していることが確認された(図5)。また In 蛍光 X 線の同時、同一位置での測定においても In 組成の減少が確認された。しかし高転位密度の場合と比較し、低転位 GaN 基板上 InGaN では熱処理後も In の面内均一性に変化はなかった。これより熱処理による発光特性の変化の要因が、転位による偏析ではなく In の均一な固相拡散によるものと分かった。

<引用文献>

- ① S. Yoshida, T. Yokogawa, Y. Imai, S. Kimura, and O. Sakata, Appl. Phys. Lett. **99**, 131909 (2011).
- ② S. kimura, Y. imai et al., Key Eng. Mater. **470**, 104-109 (2011).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① 田尻 寛男, 今井 康彦, BL13XU (表面界面構造解析の現状, SPring-8 /SACLA 利用研究成果集, 査読有, 3 巻, 2014, 145-153.

[学会発表] (計 2 件)

- ① 横川 俊哉, 梶 拓也, 木村 滋, 今井 康彦, X 線マイクロビームによる GaN 基板上 InGaN 系デバイスの評価, 2015 年 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 2015 年 3 月 13 日, 東海大学 (神奈川県平塚市)
- ② 木村 滋, 今井 康彦, 高エネルギー X 線集光用石英ガラス製屈折レンズの開発, 2015 年 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 2015 年 3 月 11 日, 東海大学 (神奈川県平塚市)

6. 研究組織

(1)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・利用研究促進部門・副主席研究員
研究者番号: 50360821

(2)研究分担者

今井 康彦 (IMAI, Yasuhiko)
公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・研究員
研究者番号: 30416375

(3)研究協力者

横川 俊哉 (YOKOGAWA, Toshiya)