

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25820320

研究課題名(和文) TEM内超微小硬さ試験によるIII族窒化物薄膜材料の機械特性値その場ナノ計測

研究課題名(英文) Measurements of mechanical properties of group III-nitride films by in situ transmission electron microscope nanoindentation

研究代表者

徳本 有紀 (Tokumoto, Yuki)

東京大学・生産技術研究所・講師

研究者番号：20546866

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：III族窒化物薄膜の機械特性値の正確な評価のための研究を進めた。超微小硬さ試験を行い、硬度および弾性率を測定した。また、透過型電子顕微鏡内で超微小硬さ試験を行い、貫通転位と超微小硬さ試験により導入される転位の相互作用をその場観察し、超微小硬さ試験により導入される転位の伝搬に対する影響を明らかにした。透過型電子顕微鏡内外の超微小硬さ試験の結果から、薄膜の表面状態、極性、薄膜に含まれる貫通転位密度、ひずみとの相関を解明した。

研究成果の概要(英文)：In order to accurately evaluate mechanical properties of group III-nitride thin films, nanoindentation was performed. Then, in situ transmission electron microscope nanoindentation was performed to elucidate dislocation generation and propagation processes in group III-nitride thin films. By combining ex situ and in situ nanoindentation, the relationship between macroscopic mechanical properties and nanoscopic dislocation dynamics was revealed.

研究分野：転位物性

キーワード：転位 窒化物半導体薄膜

## 1. 研究開始当初の背景

III 族窒化物半導体(AlN、GaN、InN およびそれらの混晶)は直接遷移型バンド構造をもつワイドバンドギャップ半導体であり、光・電子デバイスとして広く応用されている。これら III 族窒化物の光学的・電気的特性は機械的特性によっても左右される。III 族窒化物半導体デバイスには  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などの異種基板上にエピタキシャル成長させた薄膜が用いられるが、薄膜と基板との格子不整合および熱膨張係数差に起因して残留応力が生じ、薄膜成長中の転位の運動、クラックの導入を引き起こす。また III 族窒化物同士へのヘテロ界面においても格子不整合に起因してひずみが生じ、圧電分極効果によりデバイスの光学的・電気的特性に影響を与える。したがって、光学的・電気的特性向上を目指したデバイス設計の際に、ナノスケールの変形ダイナミクスと対応付けた機械的特性値の知識が必要となると考えられた。

薄膜材料の機械的特性(硬度・ヤング率)を評価する有力な装置として、近年開発された超微小硬さ試験機が利用されている。この装置では、圧子への印加荷重を  $\mu\text{N}$  のオーダーで制御し圧子押し込み方向の変位を  $\text{nm}$  の精度で検出することが可能となっている。これまでいくつかの研究グループが GaN、AlGaN 薄膜の硬度およびヤング率について超微小硬さ試験機により調べているが、同一の材料についても報告値のばらつきが大きく、材料自体(組成)の違いより測定者による変化の方が大きい。超微小硬さ試験機による硬度・ヤング率の測定は測定環境(室温、空気の流れなど)や装置(圧子の表面形状、除振システムなど)に敏感であるため、材料そのものの硬度・ヤング率の違いを調べるためには、一定の環境の下、同一の装置で系統的な測定を行わなければならない。また、マクロな機械的特性はナノスケールの転位の動的挙動に支配されるため、薄膜作製時に導入される(grown-in)転位や点欠陥の影響を受ける。したがって、薄膜本来のマクロな機械的特性はナノスケールの転位の発生・伝播機構と対応付けて評価する必要がある。超微小硬さ試験機の圧子押し込みによる転位の発生・伝播機構を明らかにするために圧痕近傍の TEM 観察を行い、導入された転位の挙動解明を試みた報告があるが(S. -R. Jian *et al.*, *J. Appl. Phys.* **103** (2008) 033503)、従来の手法(収束イオンビーム(FIB)加工)で作製した TEM 試料では個々の転位を明瞭に区別して観察できていない。

## 2. 研究の目的

本研究は(1)III 族窒化物薄膜の機械的特性値(押し込み硬さ、降伏応力、弾性率)の計測と(2)その特性発現の素過程であるナノスケールでの変形ダイナミクス(転位の発生・伝播挙動)の直接観察を両立させ、双方を明確に関連付けた III 族窒化物薄膜の機械的性質を明

らかにすることを目的とした。薄膜材料の機械的特性値はナノスケールでの転位の動的挙動に支配されるため、もともと含まれる転位や点欠陥の影響を受ける。

そこで本研究では、超微小硬さ試験を透過型電子顕微鏡(TEM)外から TEM 内へと拡張し、かつ定量評価を可能にする。これにより、転位の発生・伝播を抑制した材料設計指針の構築を目的とした。

これまでに TEM 外超微小硬さ試験により GaN、AlGaN 薄膜の機械的特性を調べる研究は行われているが、機械的特性が発現する素過程である転位挙動との相関は明らかになっていない。超微小硬さ試験機によりマクロな機械的特性を定量的に評価する試料と同一の試料について、国内外でまだ数カ所しか普及していない TEM 内超微小硬さ試験機を用い、世界に先駆けてナノスケールの領域の機械的特性と転位の動的挙動とを関連付けて評価するという点が本研究の最大の特色である。

## 3. 研究の方法

薄膜作製時に導入される貫通転位と超微小硬さ試験により導入される転位の相互作用を明らかにするために、透過型電子顕微鏡内で超微小硬さ試験によるその場観察を行う。

また、組成の異なる窒化アルミニウムガリウム混晶薄膜、同一組成で貫通転位密度、ひずみの異なる窒化アルミニウム薄膜を用い、透過型電子顕微鏡内外の超微小硬さ試験により、薄膜の表面状態、薄膜に含まれる貫通転位密度、ひずみとの相関を調べた。

さらに、極性、ひずみや結晶性、表面平坦性の異なる窒化インジウムについて、超微小硬さ試験を行い、硬度とヤング率を定量的に評価した。

## 4. 研究成果

(1) 硬度および弾性率と貫通転位密度、組成の相関

窒化アルミニウム薄膜の超微小硬さ試験を行い、薄膜に含まれる貫通転位密度、ひずみと、薄膜の硬度および弾性率との相関を調査した。透過型電子顕微鏡内で超微小硬さ試験を行った結果、貫通転位のうち刃状転位は超微小硬さ試験により導入される転位の伝搬を阻害せず、らせん転位は超微小硬さ試験により導入される転位の伝搬を阻害することが明らかとなった。しかし、らせん貫通転位密度は低く、超微小硬さ試験により測定される硬度には反映されないと判断した。一方、同一組成でひずみの異なる薄膜では硬度に差があることがわかった。また、組成の異なる窒化アルミニウムガリウム混晶薄膜の超微小硬さ試験を行った結果、硬度には組成による変化が見られたが、弾性率は組成に依らずほぼ一定であった。用いた試料は一部秩序状態となっているものの、その体積分率は非

常に小さく、硬度には影響を与えないと考えられる。ひずみと硬度の組成依存性が類似しており、これらの間に相関があることが示唆された。

## (2) 硬度とひずみの相関

ひずみと硬度の相関性を解明するために、膜厚増加に伴うひずみ緩和をさせた窒化アルミニウム薄膜試料を用い、超微小硬さ試験を行った。その結果、同一組成で膜厚が薄くひずみの異なる薄膜試料について、ひずみが大きい薄膜試料の方が硬度が高かった。一方、膜厚が厚く、結晶性(X線回折ロッキングカーブ半値幅)の異なる薄膜試料については硬度の差は小さかった。これらの結果より、薄膜の硬度には結晶性よりひずみの方が大きく影響することが示唆された。面内圧縮ひずみがある場合、すべり面間隔が狭くなることによりパイエルスポテンシャルが増加し硬度が高くなると考えられる。

## (3) 窒化インジウムの機械的特性値

窒化インジウムの機械的特性値の評価を行った。膜厚が異なる数種類のIn極性およびN極性の窒化インジウム試料を用い、超微小硬さ試験を行い、硬度およびヤング率に対する極性(不純物濃度)の影響を検討した。超微小硬さ試験の結果、極性の違いは硬度やヤング率の絶対値にはほとんど影響しないが、ばらつきには大きく影響を与えることがわかった。また、ひずみや結晶性よりも表面の平坦性による影響の方が大きいことがわかった。以上の結果を踏まえ、表面平坦なIn極性で膜厚が厚い試料の硬度およびヤング率の値が最も信頼度が高いと判断し、窒化インジウムの硬度とヤング率をそれぞれ8.6GPa、176GPaと求めた。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1件)

- ① I. Yonenaga, Y. Ohkubo, M. Deura, K. Kutsukake, Y. Tokumoto, Y. Ohno, A. Yoshikawa, and X. Q. Wang, "Elastic properties of indium nitrides grown on sapphire substrates determined by nano-indentation: In comparison with other nitrides", AIP Advances, 査読有, **5**, 2015, 077131/1-13. doi:10.1063/1.4926966

[学会発表] (計 10件)

- ① M. Deura, Y. Ohkubo, Y. Tokumoto, K. Kutsukake, Y. Ohno and I. Yonenaga, Correlation between crystal quality and mechanical properties of InN, The 6<sup>th</sup> International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-6), 2015.11.11, Act City Hamamatsu, Hamamatsu, Japan.
- ② 出浦桃子, 大久保泰, 徳本有紀, 沓掛健太朗, 大野裕, 米永一郎, InNの結晶特性

と硬度・ヤング率の相関, 第7回窒化物半導体結晶成長講演会(プレ ISGN-6), 2015年5月7日, 東北大学(宮城県・仙台市).

- ③ 徳本有紀, 窒化物半導体中の転位・構造欠陥の動特性と制御に関する基礎研究, 日本物理学会第70回年次大会, 2015年3月21日, 早稲田大学(東京都・新宿区).
- ④ 大久保泰, 徳本有紀, 出浦桃子, 後藤頼良, 沓掛健太朗, 大野裕, 米永一郎, 窒化インジウム薄膜の硬度・ヤング率と結晶特性の関係, 日本物理学会第70回年次大会, 2015年3月21日, 早稲田大学(東京都・新宿区).
- ⑤ 大久保泰, 出浦桃子, 徳本有紀, 沓掛健太朗, 大野裕, 米永一郎, InNの硬度とヤング率の評価, 電子情報通信学会研究会(窒化物半導体光・電子デバイス, 材料, 関連技術, 及び一般), 2014年11月27日, 大阪大学(大阪府・吹田市).
- ⑥ 大久保泰, 徳本有紀, 出浦桃子, 後藤頼良, 沓掛健太朗, 大野裕, 米永一郎, ナノインデンテーション法によるInNの硬度とヤング率の評価, 日本物理学会2014年秋季大会, 2014年9月20日, 中部大学(愛知県・春日井市).
- ⑦ 徳本有紀,  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) 混晶薄膜の機械的特性, 第153回超塑性研究会, 2013年12月27日, 東京大学(東京都・文京区).
- ⑧ Y. Tokumoto, K. Kutsukake, Y. Ohno and I. Yonenaga, In situ observation of dislocation dynamics in AlN films, Electron Microscopy & Multiscale Modeling (EMMM) 2013, 2013.11.13, Kyoto, Japan.
- ⑨ 徳本有紀, 種市寛人, 沓掛健太朗, 大野裕, 三宅秀人, 米永一郎,  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  薄膜の混晶硬化と秩序構造との相関, 日本物理学会2013年秋季大会, 2013年9月26日, 徳島大学(徳島県・徳島市).
- ⑩ 徳本有紀, 沓掛健太朗, 大野裕, 米永一郎, AlN薄膜への転位導入と伝搬挙動の観察, 第5回窒化物半導体結晶成長講演会, 2013年6月22日, 大阪大学(大阪府・吹田市).

[その他]

ホームページ等

<http://www.tokumoto.iis.u-tokyo.ac.jp/>

- ## 6. 研究組織
- (1) 研究代表者

徳本 有紀 (TOKUMOTO, Yuki)  
東京大学・生産技術研究所・講師  
研究者番号：20546866