

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 9 月 29 日現在

機関番号：32670

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560009

研究課題名(和文) GaN結晶のメソスコピックなスケールでのひずみ場の研究

研究課題名(英文) Study on strain fields of GaN crystals which have microstructures in mesoscopic scale.

研究代表者

秋本 晃一 (Akimoto, Koichi)

日本女子大学・理学部・教授

研究者番号：40262852

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

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線トポグラフィーの手法を用いて、欠陥密度の少ないGaN結晶について μm オーダーでの結晶面の傾きのずれと結晶の面間隔の伸縮を分離し画像として可視化した。さらに解析結果から結晶欠陥について考察した。また、新たに超高真空装置を立ち上げ、GaN結晶の表面構造を超高真空中で加熱しながら、反射高速電子回折装置で観察し、構造変化について考察した。

研究成果の概要(英文)：By X-ray topography using CCD camera, two images of lattice inclination and lattice expansion or contraction of GaN crystals were obtained separately in micrometer order scale. Using these images, crystal defects in GaN were studied. By using UHV chamber which has reflection high energy electron diffraction apparatus, surface structure of GaN was observed during thermal annealing processes.

研究分野：結晶工学

キーワード：X線回折 窒化ガリウム メソスコピック X線トポグラフィー 結晶欠陥 電子回折 表面構造

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 2014 年のノーベル物理学賞受賞対象の青色発光ダイオードの材料である GaN が特に注目されている。GaN は固体照明の光源としての発光デバイスばかりでなく、高速、高耐圧のトランジスタの基板としても期待され盛んに研究が行われている。ワイドギャップ半導体の一つである GaN は、今や喫緊の課題となった省電力や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 SiC と並び有望視されている。

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。

GaN の電子デバイスへの応用に際しては、さらなる結晶欠陥の低減が必要とされている。そのためには、TEM や CL の得意とする欠陥の種類や数の同定だけでなく、欠陥周辺の広い範囲での微小なひずみ場の測定が求められている。これは、GaAs 結晶についてデバイスの実用化の際に重要であったのと同様である。

本研究課題申請者らは平成 21 年度～23 年度の基盤研究(C)によりご援助していただき、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 線トポグラフィーの手法で研究を行い、GaN 結晶に μm オーダーのメソスコピックなスケールでのコントラストが観察できることを示してきた。また、S. Kikuta and K. Kohra, Jpn. J. Appl. Phys., 5, 1047, 1966. に発表されている手法を用いて、結晶面の傾きのずれ()と面間隔の伸縮(d/d)を分離し測定することをハイドライド気相成長法により作製された GaN 結晶に対してはじめて行った。

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は高品質な単結晶基板を用いることが望ましい。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たり、内在するひずみのために結晶が割れる等の現象が発生したりするなど十分な品質のものは得られていない。本研究では、窒化物半導体結晶、特に GaN 結晶に関して、シンクロトロン放射光を利用した高分解能 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、面間隔の伸縮を詳細に研

究する。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。本研究では X 線トポグラフを用いてこれまで明らかになったメソスコピックなスケールでの結晶グレインの結晶面の傾きのずれ()と面間隔の伸縮(d/d)を分離し測定する。測定結果を結晶面の傾きのずれ()と面間隔の伸縮(d/d)のそれぞれをマッピングして画像を得る。これにより特に d/d の大きな場所を特定し、結晶成長に生かす。本研究では一つの GaN 結晶を異なる方向から切り出したことに対応する c 面と m 面の結晶の両者を研究する。そのため結晶性を 3 次元的に解析することができる。

次に本研究では、結晶の研磨について、課題申請者がこれまで研究開発を行ってきた表面近傍のひずみを解析する手法である極端に非対称な X 線回折法を用いて、研磨の各段階での表面近傍のひずみを測定し、動力学的回折理論を用いて定量的に解析する。

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(0001)面の GaN 結晶を試料とする場合、波長約 1.24\AA の X 線を用い 0002 反射または 0004 反射の回折線を測定する。回折線の画像を空間分解能 $6.7\mu\text{m}$ 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、格子面の傾きと格子面間隔の伸縮に分離する。

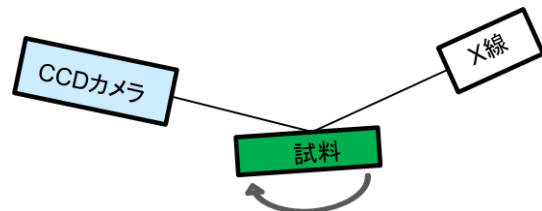


図 1 実験配置の概略

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

同じ面間隔で 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、 が存在している領域のピークは が存在しない領域のピークを中心に 反転した位置にピークが現れる。

結晶面の傾きはなく d 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。しかし、試料の面内で 180° 回転させた後、試料の角度を同じ向

きに変わっていても、 d 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。

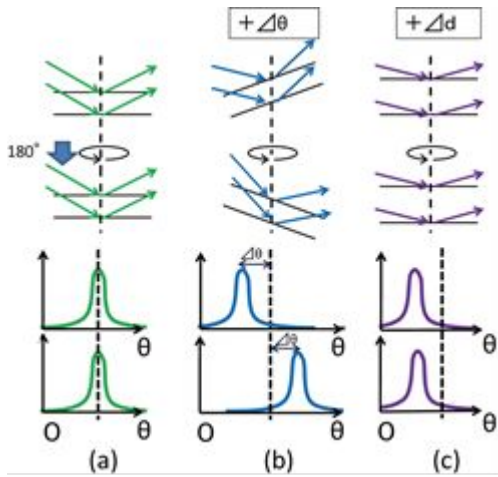


図2 結晶面の傾き面間隔の伸縮の分離

本研究ではこの原理をCCDカメラの1ピクセル毎に適用し、図3で示されるように、面内回転0度で得られる回折強度曲線(図3の上側の曲線)と面内回転180度で得られる回折強度曲線(図3の下側の曲線)を用いて、基準点からの平均のピーク角度差 Δd と0度と180度のピーク角度の差から d/d を図3に示されるように算出する。ここで、ブラッグの式より $\cot \theta \times d$ が d/d となる。

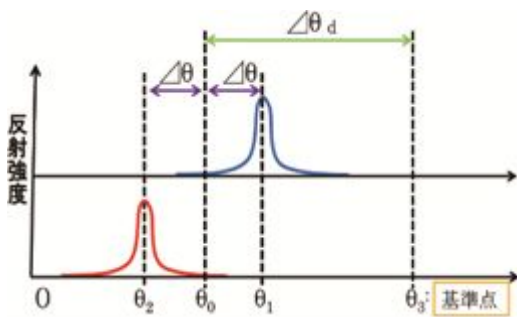


図3 d と d/d の算出方法

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。

表面構造の研究は、反射高速電子回折装置(RHHEED)を備えた超高真空装置を用いて、主に加熱による清浄表面の表面再構成構造の変化を調べる。RHEEDの電子線のエネルギーは15keVである。ターボ分子ポンプで粗排気およびベーキングを行った後、イオンポンプを用いて、約 2×10^{-10} Torrの超高真空まで排気することができる。

4. 研究成果

波長約 1.24 \AA のシンクロトロン放射光X線を用いた実験で得られた画像及び解析した画像を以下に示す。図4はアモナサーマル法により成長したGaN結晶のX線トポグラフ像である。これを、180度試料を面内回転して得られるX線トポグラフ画像と合成することにより、図5で示される d/d の画像と図6で示される d/d の画像が得られた。ここで、図4で見られる白い斑点は図5では赤色(あるいは黄色)の領域と青い領域の対となる d/d が急激に変化する領域に対応していると考えられる。それに対して図6には目立った変化は見られず、 d が大きく変わる領域は解析した範囲にはないことを示している。

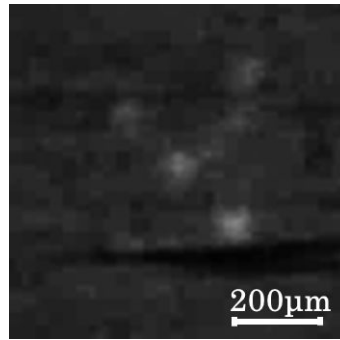


図4 X線トポグラフ像

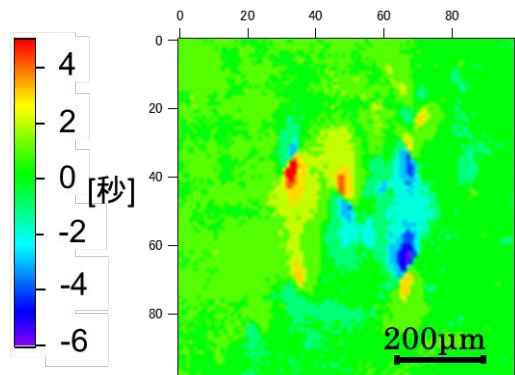


図5 d/d の解析結果

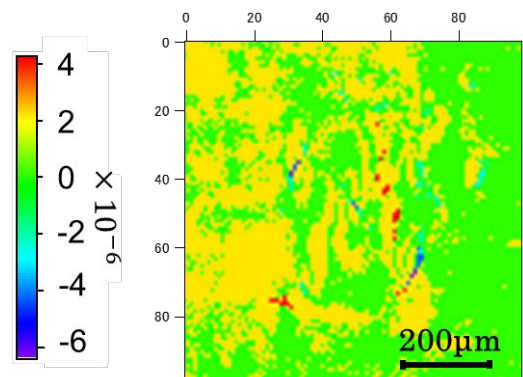


図6 d の解析結果

さらに同じ領域を 90 度と 270 度の画像から解析することにより、トポグラフで白い斑点として見られる領域には‘らせん転位’が存在すると考察された。図 7 に解析のまとめを示す。右回りの‘らせん転位’と左回りの‘らせん転位’が対になっていることがわかった。

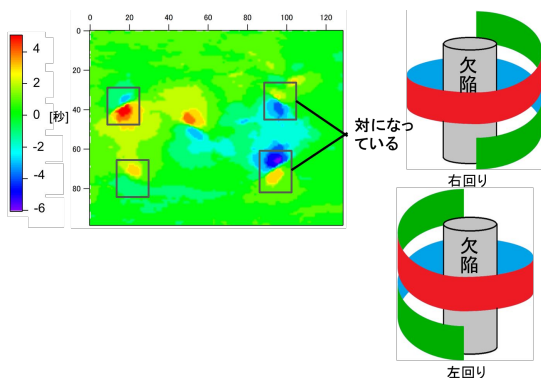


図 7 対をなす‘らせん転位’の模式図

表面構造について、GaN 研究の初期にはさまざまな表面再構成構造が報告されたが、表面あるいは装置に起因する不純物が起源ではないかということも指摘されている。本研究の実験結果は、図 8 に示されるように表面構造は 1×1 構造であった。このことは、初期の報告には不純物に起因する再構成構造が含まれているとの説を強くサポートする。

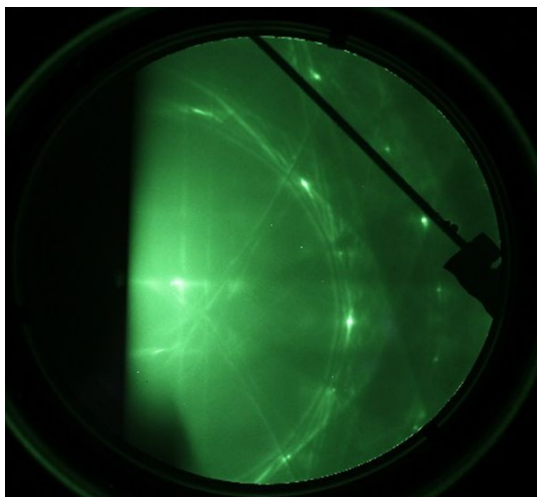


図 8 GaN(0001)面の RHEED 像

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 1 件)

A. Ruammitree, H. Nakahara, K. Akimoto, K. Soda, Y. Saito,

Determination of non-uniform graphene thickness on SiC (0001) by X-ray diffraction, Applied Surface Science, 査読有, 282, 297-301, 2013.

DOI: 10.1016/j.apsusc.2013.05.122

〔学会発表〕(計 5 件)

井上絵美子、野口彩純、大山美咲、渡辺玲那、秋本晃一、X線トポグラフ法による GaN 結晶の欠陥評価、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 24 日、早稲田大学(東京都新宿区)

Koichi Akimoto, Quantitative Strain Analysis of Surfaces and Interfaces Using Extremely Asymmetric X-Ray Diffraction, Joint Symposium 2014, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, 2014 年 12 月 3 日, Ewha Womans University, Seoul (Korea).

Azumi Noguchi, Emiko Inoue, Misaki Oyama, Rena Watanabe, Koichi Akimoto, GaN Lattice Distortion and Surface Structure, Joint Symposium 2014, Ewha Womans University, Japan Women's University and Ochanomizu University for the promotion and research for women in science, 2014 年 12 月 3 日, Ewha Womans University, Seoul (Korea)

Koichi Akimoto, Quantitative Strain Analysis of Surfaces and Interfaces Using Extremely Asymmetric X-Ray Diffraction, 第 3 回表面界面物理に関する国際会議(PSI2014), 2014 年 2 月 24 日, Hotel Blue Lily Resort, オリッサ州ブリー(インド)

Koichi Akimoto and Takashi Emoto, Quantitative Strain Analysis of Surfaces and Interfaces Using Extremely Asymmetric X-Ray Diffraction, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, 2013 年 9 月 16 日, 同志社大学 京田辺キャンパス, (京都府京田辺市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

秋本 晃一 (AKIMOTO Koichi)

日本女子大学・理学部・教授

研究者番号: 40262852

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし