

放射光を用いて半導体結晶が成長して いく様子をライブ観察する

量子科学技術研究開発機構

量子ビーム科学部門

関西光科学研究所 放射光科学研究センター

コヒーレントX線利用研究グループ

主任研究員 佐々木拓生

発表内容

- 新技術の概要
- 半導体結晶
- 従来技術の紹介とその弱点
- 新技術による課題克服
- 新技術の適用事例
 - ガリウムヒ素系半導体
 - 窒化ガリウム系半導体
- まとめ

新技術の概要

良質な材料開発のためには、半導体結晶がどのように成長していくのか成長中の様子を調べたいけれど・・・

- 代表的なライブ観察手法の【従来技術】反射高速電子線回折では得られる情報が少ない。
→表面近傍の情報に限定、プローブが電子線では定量性に課題
- 成長後の試料を【従来技術】X線回折をつかって室温で評価しても、成長中の様子は調べられない。
→成長温度と室温で異なる結晶状態、試料間誤差が課題

従来技術の課題を克服した【新技術】放射光その場X線回折によって、良質な材料開発に向けた様々な課題の解決に導きます。

半導体結晶

- III-V族化合物半導体

ガリウムヒ素 (GaAs) 系

…HEMT、発光素子、太陽電池

窒化ガリウム (GaN) 系

…発光素子、パワーデバイス

III	IV	V
B	C	N
Al	Si	P
Ga	Ge	As
In	Sn	Sb

- 半導体結晶成長の様々な謎が未解明

例えば成長初期の結晶ひずみ、転位構造、表面界面構造

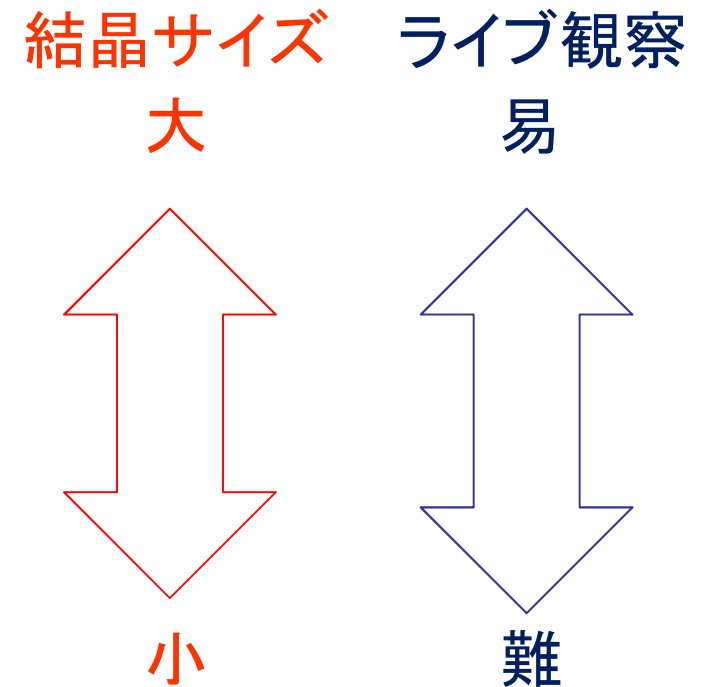
- 謎の解明には結晶成長中のライブ観察が有効

半導体結晶の高品質化、高機能化への近道

半導体結晶成長中のライブ観察

材料開発において、結晶ひずみや欠陥、結晶構造が成長とともにどのように変化していくのかライブで観察することは重要

- バルク結晶(3次元)成長
光学顕微鏡 など
- 薄膜結晶(2次元)成長
反射高速電子線回折(RHEED)
基板そり測定 など
- ナノ結晶(1・0次元)成長
観察手法を開発中



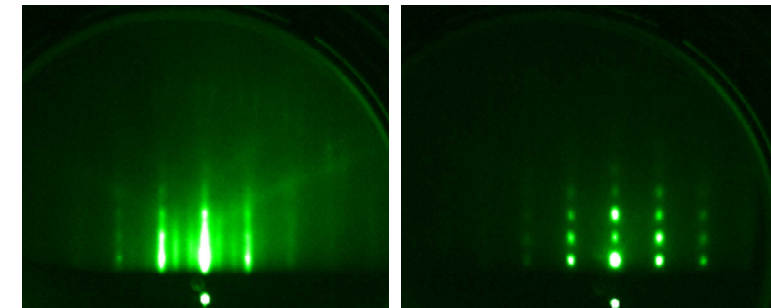
新技術の範囲

従来技術

● 反射高速電子線回折 (RHEED)

電子線回折パターンをCCDカメラでモニタリングすることで、結晶成長中の様子をライブ観察可能。結晶表面の凹凸に敏感。

代表的なライブ観察手法



表面平坦

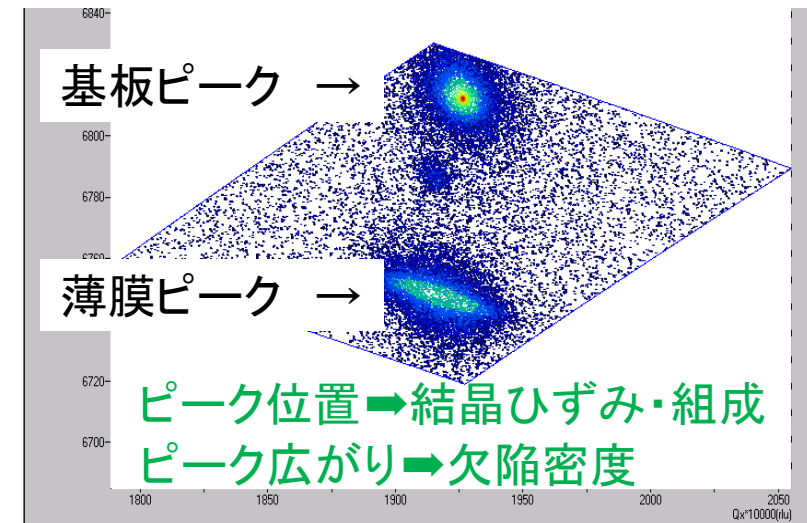
表面荒れ

薄膜成長中の電子線回折パターン

● X線回折: XRD

X線は物質透過性、構造敏感性、定量性に優れており、結晶ひずみ、欠陥、組成などの情報を同時に取得可能。

代表的な結晶評価手法



X線回折の逆格子マッピング (室温測定)

従来技術の弱点

● 反射高速電子線回折

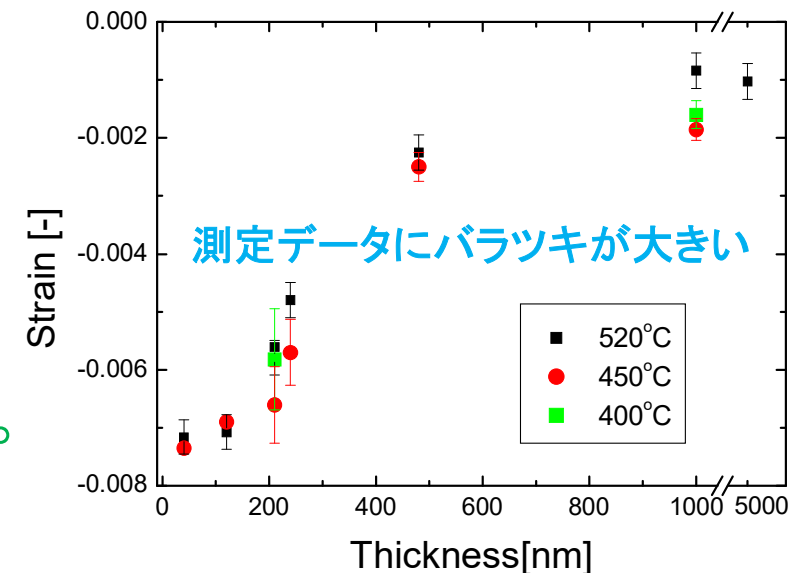
- 表面近傍にのみ敏感
- 電子線は物質との相互作用が大きいため定量解析が困難

- ➡ ひずみや欠陥などの結晶状態にかかわる情報は得られない。
- ➡ 結晶成長の謎の解明には情報量が不十分である。

● X線回折(室温測定)

- 成長温度と室温で異なる結晶状態
- 試料間のバラツキが問題

- ➡ 成長中の結晶状態を反映していない。
- ➡ 多数の試料を準備する必要がある。



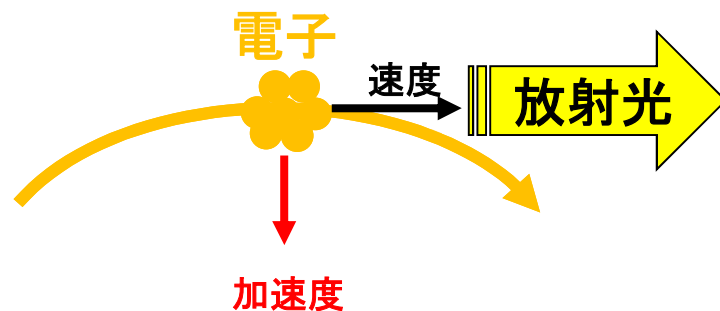
薄膜の厚さとひずみの関係

新技術（放射光その場X線回折）による課題克服

X線回折は物質透過性、構造敏感性、定量性に優れているが、測定に時間がかかるため反射高速電子線回折のような高速モニタリングは困難だった。

➡高輝度の「放射光X線」と「2次元検出器」の利用による測定の高速度化

➡X線回折の長所を生かしつつ、ライブ観察手法を開発することで課題克服



大型放射光施設 SPring-8
(兵庫県佐用町)

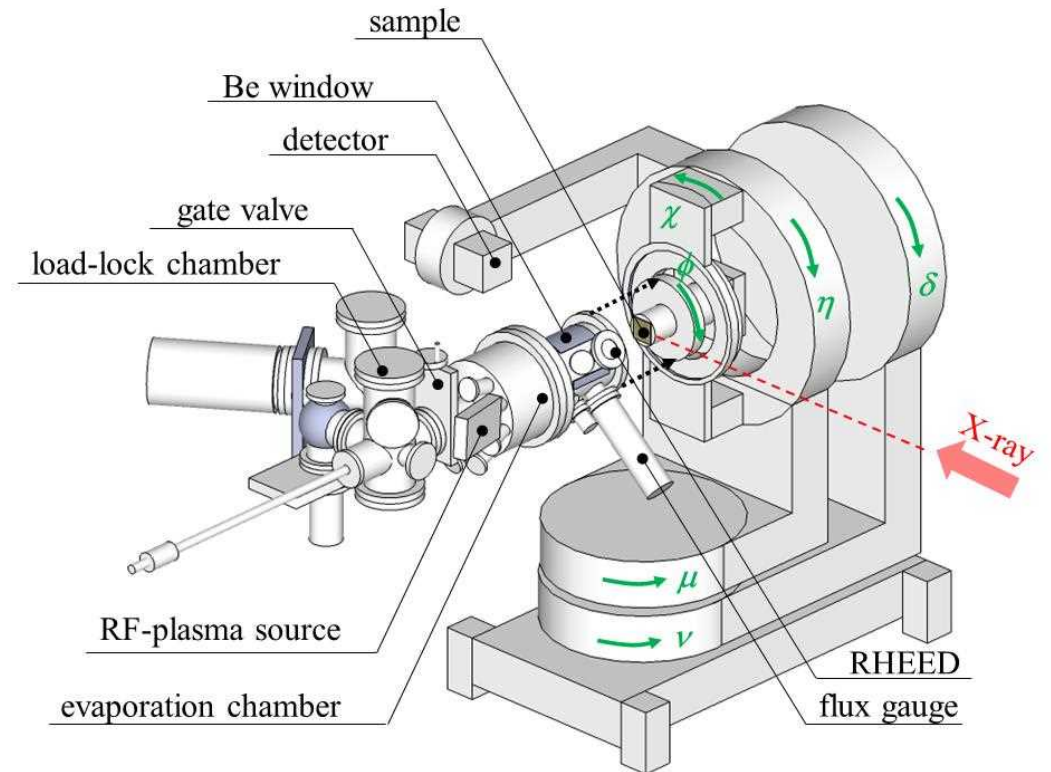
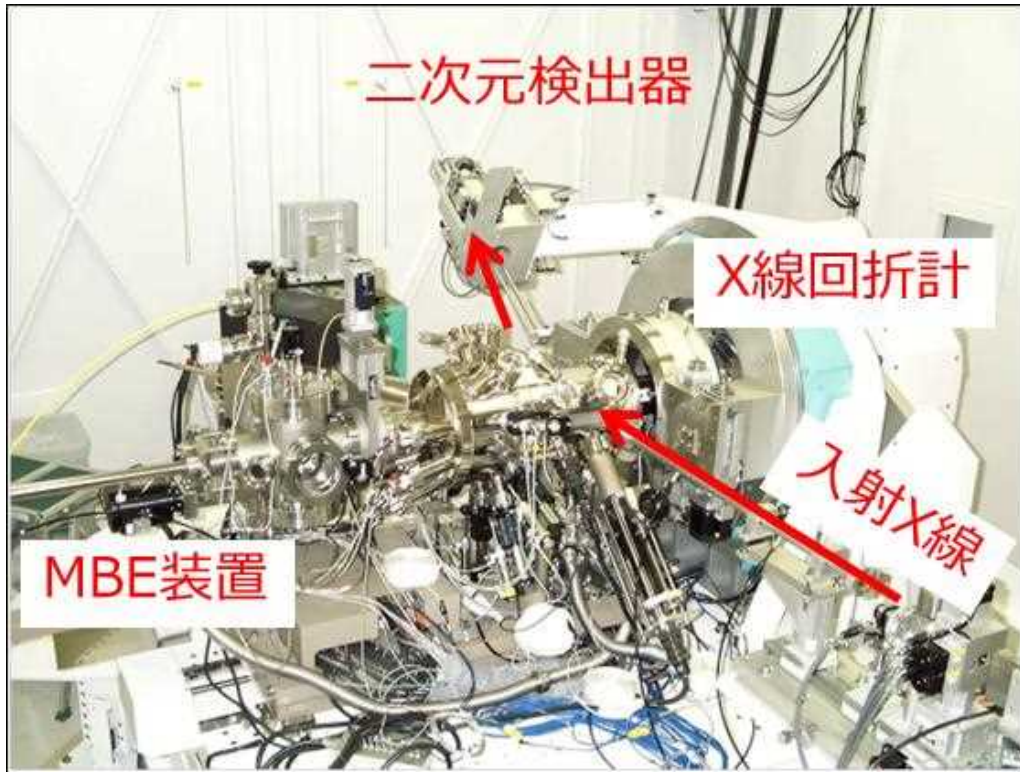
新技術の位置づけ

	ひずみ	結晶性 (欠陥)	表面形態	膜厚分解能	深さ情報
反射高速 電子線回折	○	△	○	○	×
その場走査型 トンネル顕微鏡	×	×	◎	×	×
基板そり測定	○	△	○	○	×
放射光その場 X線回折	◎	◎	○	○	○

新技術の特徴

- X線 ⇒ 結晶ひずみや欠陥密度の定量解析可
- 高輝度放射光 ⇒ 高速測定 ⇒ ライブ観察可

実験装置



MBE-XRD複合システム@SPring-8・BL11XU

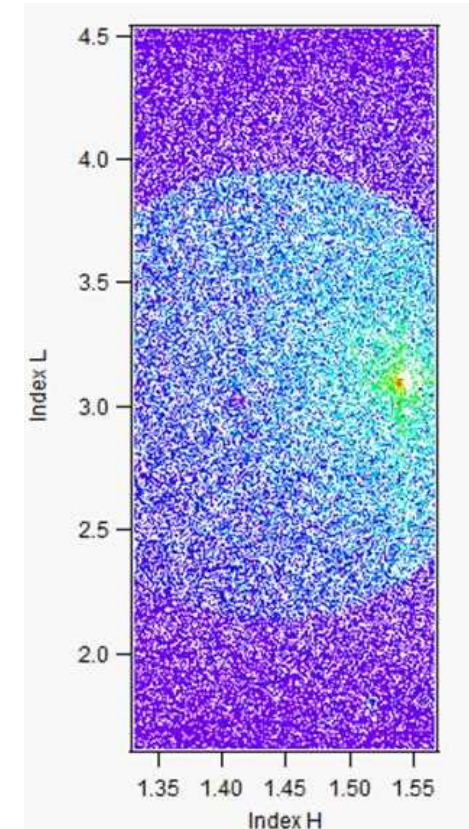
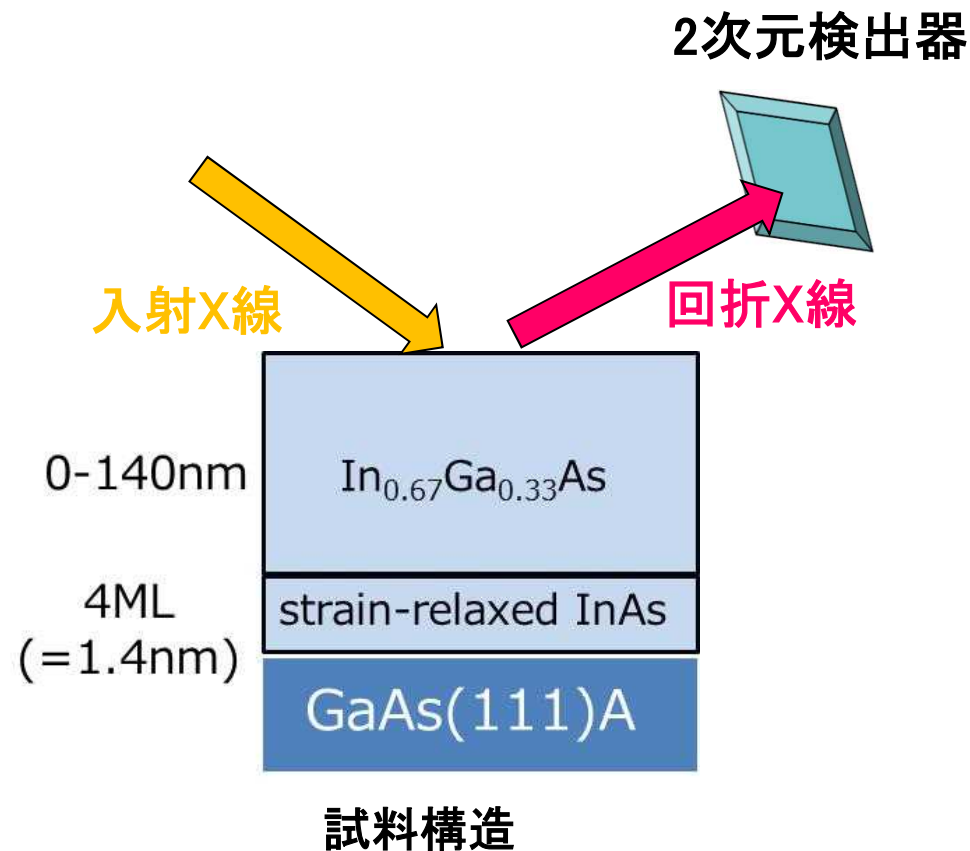
MBE: 分子線エピタキシー、XRD: X線回折計

装置仕様

- 2台のMBE装置を入れ替え可能
 - ガリウムヒ素系MBE装置(原料: Ga、In、As、Sb、Mn)
 - 窒化ガリウム系MBE装置(原料: Ga、In、Al、Nプラズマ、Si、Mg)
 - X線測定
 - X線エネルギー: 6-70keV
 - ビームサイズ: 400ミクロンから1ミクロンまで集光可
 - 付属するライブ観察手法
 - 反射高速電子線回折: RHEED
 - 蛍光X線測定による組成分析
 - 測定のみも可能、加熱中のプロセス評価も可能
 - 実験室のX線回折装置では測定できない薄い結晶、小さい結晶
 - 1200°Cまで加熱可能
- ➡ デバイス開発に重要な多種材料、多様なライブ観察に対応

ガリウムヒ素系での適用事例 (測定方法)

InGaAs/InAs/GaAs(111)A成長中の放射光その場X線回折

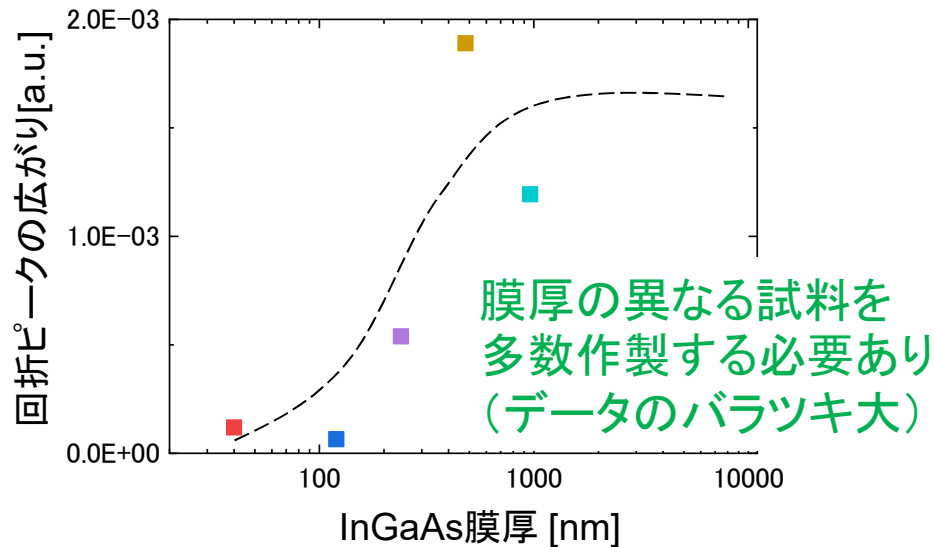


InGaAs成長中のライブ動画

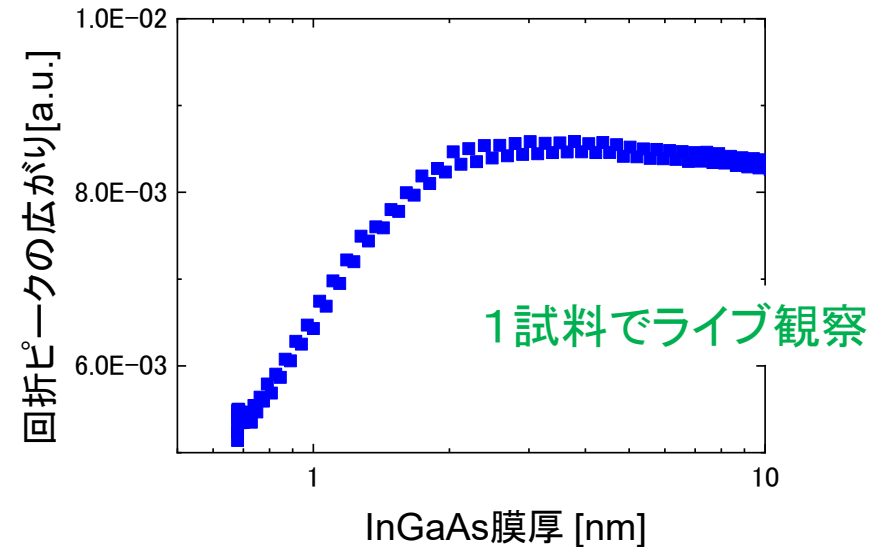
ガリウムヒ素系での適用事例 (従来法との比較)

InGaAsの膜厚とピーク広がり(欠陥密度)の関係

従来法
(室温でのX線回折)

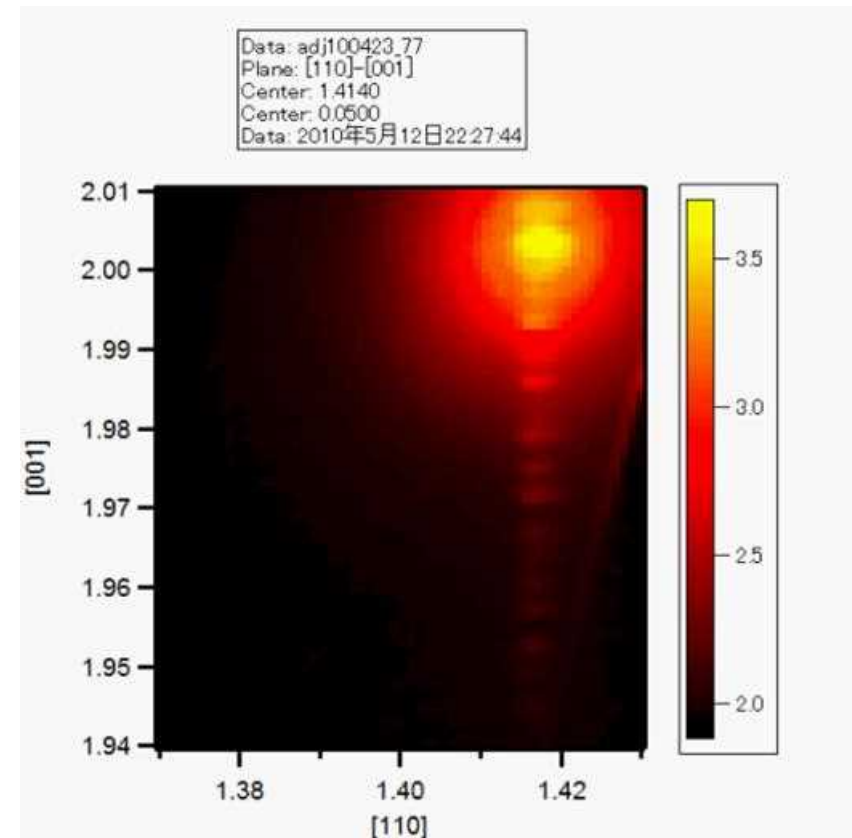
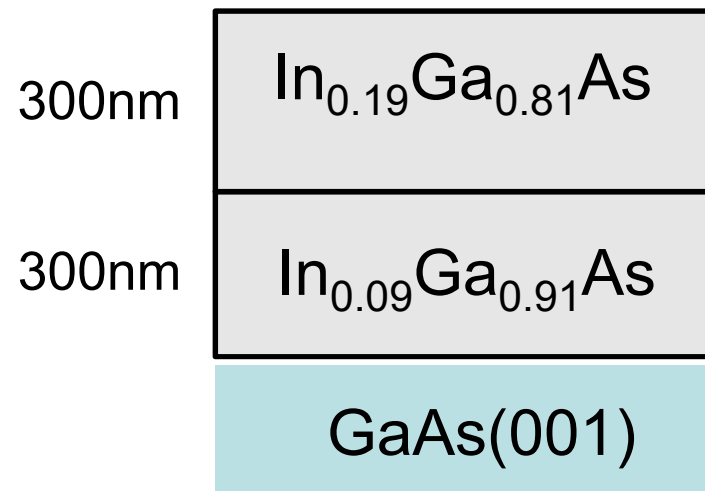


新技術
(放射光その場X線回折)



- 原子層スケールできめ細かく結晶状態を追跡可能
- 数ナノメートルの成長初期のひずみや欠陥密度も評価可能

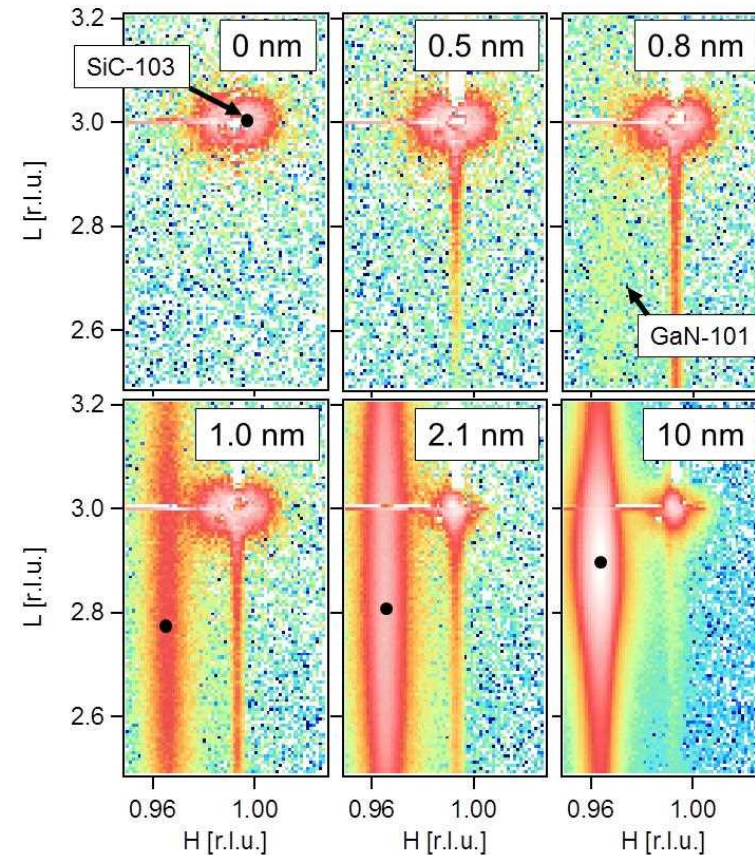
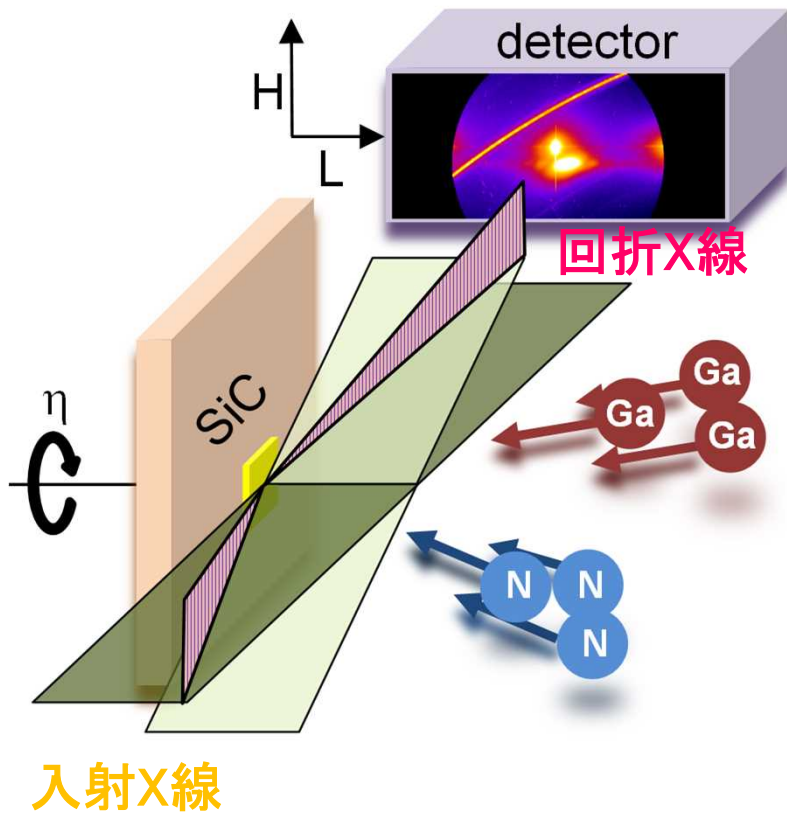
ガリウムヒ素系での適用事例 (多層構造の評価に応用)



- X線の物質透過性→埋もれた内部構造の評価に有効
- これまで見過ごされていた特異なひずみ緩和現象を発見
→結晶成長の謎の解明に貢献

窒化ガリウム系での適用事例 (測定方法)

GaN/SiC(0001) 成長中の放射光その場X線回折

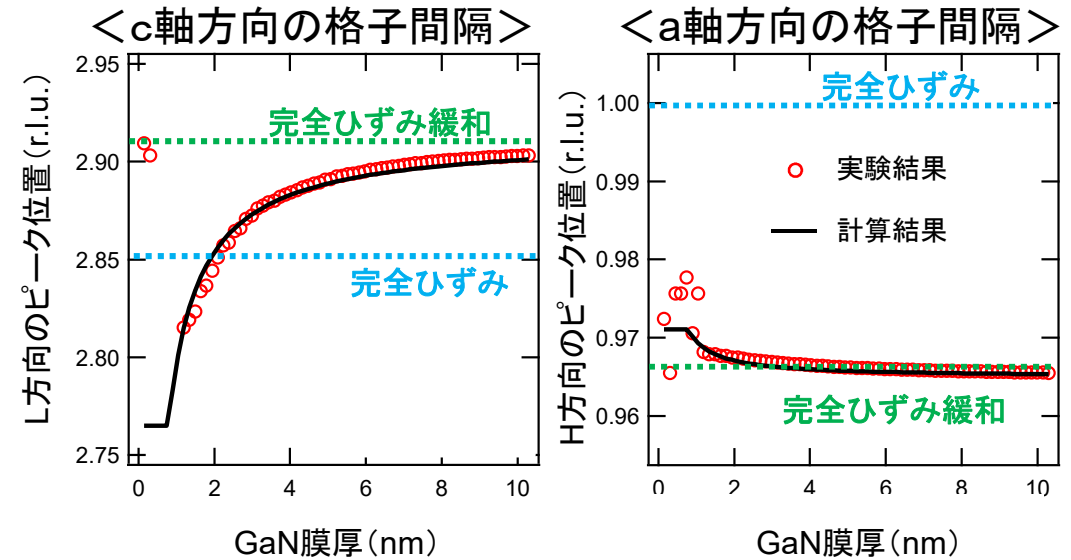
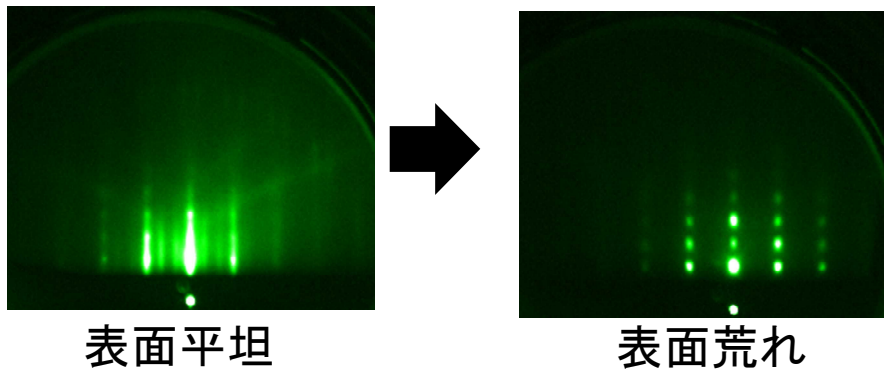


窒化ガリウム系での適用事例 (従来法との比較)

GaN成長中の結晶ライブ観察

従来法
(反射高速電子線回折)

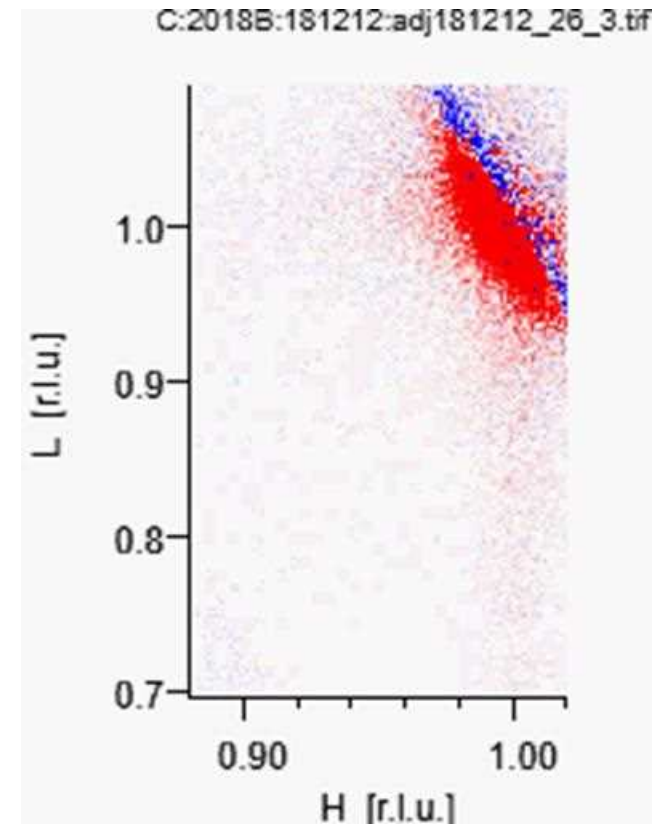
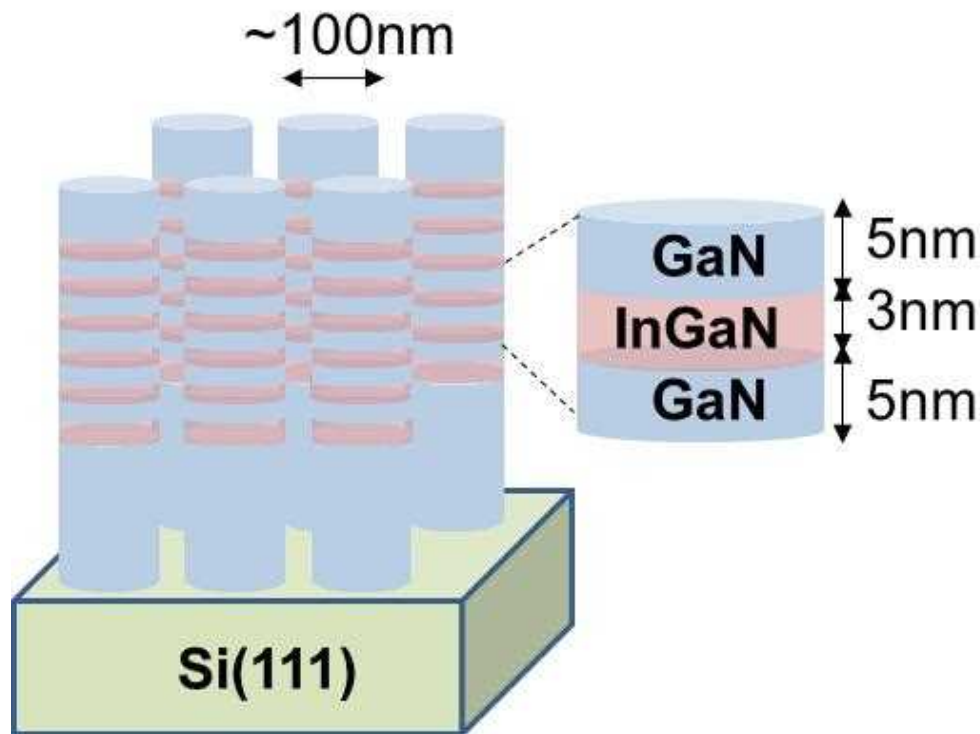
新技術
(放射光その場X線回折)



- 放射光と二次元検出器により原子層スケールの高速測定を実現
- 従来法では得られない結晶ひずみや欠陥密度を定量的に評価可能

窒化ガリウム系での適用事例 (量子ナノ構造へ応用)

GaNナノワイヤ成長中のライブ観察



未踏領域の量子ナノ構造のライブ観察も可能に！

まとめ

放射光X線と二次元検出器を利用することで、従来のX線回折の長所を生かしつつ、反射高速電子線回折のようなライブ観察できる手法(放射光その場X線回折)が利用可能になった。

- 【従来技術】 反射高速電子線回折
 - 表面近傍の凹凸にのみ敏感
 - 電子線は物質との相互作用が大きいため定量解析が困難
- 【従来技術】 X線回折:XRD
 - 室温測定では熱膨張係数差の違い、作製試料間の再現性が問題
- 【新技術】 放射光その場X線回折
 - ガリウムヒ素系、窒化ガリウム系材料成長中の結晶ひずみ、欠陥密度の定量解析が可能

想定される利用方法・用途

- 各種材料・構造における結晶成長のライブ観察
 - III-V族半導体だけでなく、それ以外の新しい材料系への展開や新しい構造への応用も期待
- 測定のみも対応可能、加熱中のプロセス評価も可能
 - 実験室のX線回折装置では測定できない(時間がかかる)超薄膜や小さい結晶の評価も対応可能
 - 1200°Cまで加熱可能なため熱処理中のプロセス評価も可能
- 材料開発に重要な「タイミング」が
 - ライブ観察によって、結晶成長の様々な謎の解明に有効であるのと同時に、良質な材料開発に向けて重要となる欠陥の発生や構造の変化といった様々な「タイミング」を捉えることが可能
- 装置開発
 - 放射光施設に限定しないライブ観察装置の開発にも応用可能

お問い合わせは、

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
イノベーションセンター 研究推進課

までお願いいたします。

TEL	043-206-3146 (共同研究)
	043-206-3027 (ライセンス)
FAX	043-206-4061
e-mail	innov-prom1@qst.go.jp (共同研究)
	innov-ip@qst.go.jp (ライセンス)

ご清聴、
ありがとうございました

<http://www.qst.go.jp/>