

放射光を用いた半導体成長表面の 原子スケールその場観察

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構

量子ビーム科学部門

次世代放射光施設整備開発センター

高輝度放射光研究開発部

次長 高橋正光

2022年7月26日

本技術の概要

- 放射光を用いたX線回折によって、結晶成長中の半導体などの表面構造を3次元的に原子レベルでリアルタイム観察できる技術を開発しました。
- X線の高い透過性により、超高真空、ガス雰囲気、溶液中など結晶成長の環境を選ばず適用可能です。
- 新物質などの結晶成長技術を開発するにあたり、最適な結晶成長条件を見出すための強力なツールとなります。

本技術の背景

実施例：窒化物半導体

窒化物半導体の現状

2000年代以降、GaInNを材料とする発光ダイオード照明や青色半導体レーザーが急速に普及

窒化物半導体の潜在的な可能性

(1) 光デバイス

- AlN(6.1eV) からInN(0.6eV)まで幅広いバンドギャップ
 - 可視光全域を含み深紫外から近赤外までカバーする万能光源

(2) パワーデバイス

- 高い絶縁破壊電界 (GaN 3.5×10^6 V/cm, Siの約10倍)
- 飽和ドリフト速度 (GaN 2.7×10^7 cm/s, Siの約3倍)
- 電気自動車等のモーターの省エネルギー駆動

本技術の背景

窒化物半導体の課題

結晶性の向上（転位密度の低減）

半導体材料	貫通転位密度 (cm^{-2})
Si	~ 0
GaAs	$< 10^3 - 10^5$
GaN(SiC基板上)	$\sim 10^8$
GaN(自立基板)	$10^4 - 10^7$

結晶成長の最適化が必要

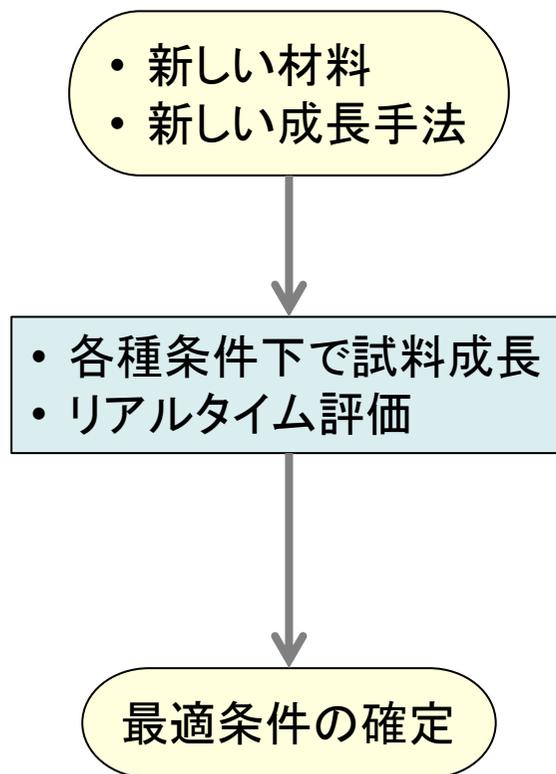
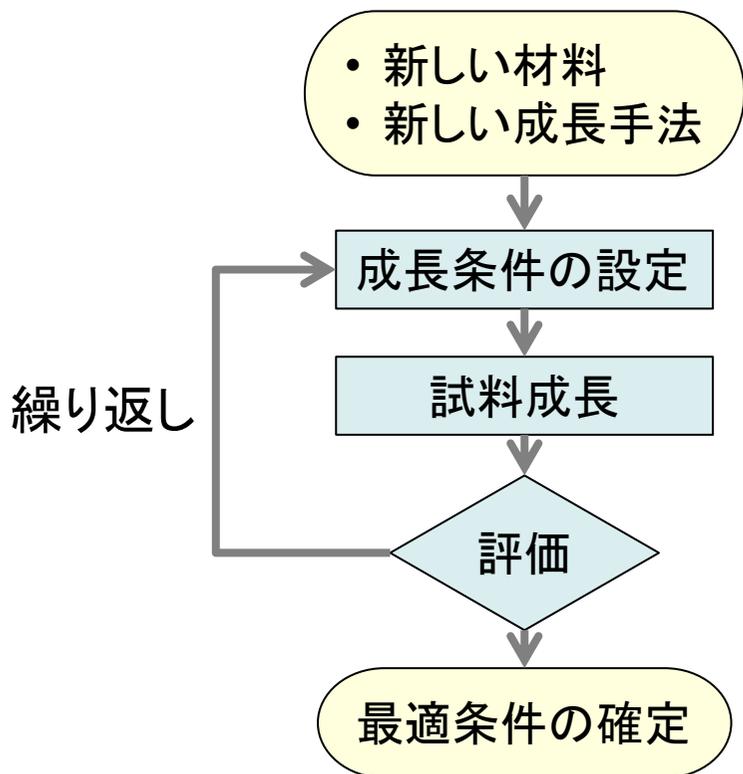
結晶成長条件最適化のアプローチ

通常の方法

- 成長と事後評価の繰り返し
- 試行錯誤

リアルタイム評価技術の利用

- 成長過程をリアルタイム観察
- 最小限の試行回数



従来の結晶成長観察技術とその問題点

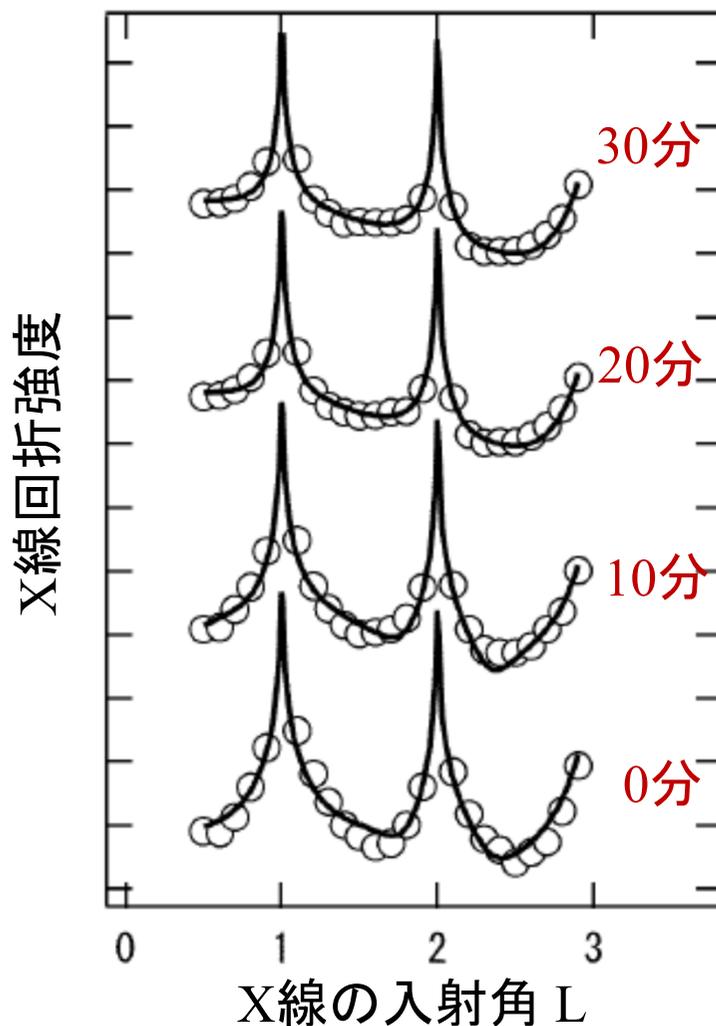
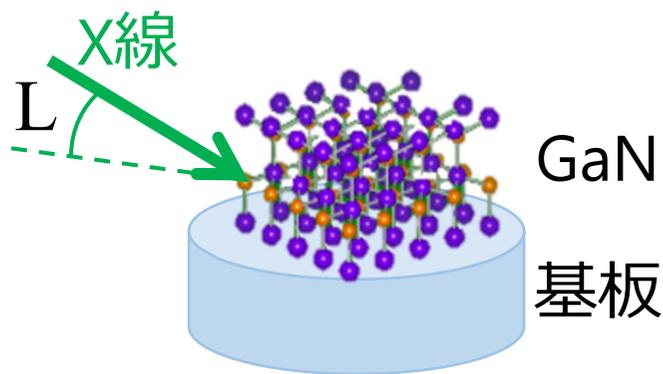
結晶成長観察技術に求められること

- 効率的な成長条件最適化 ▶ リアルタイム測定
- ナノレベル以下での構造制御 ▶ 原子分解能
- ガス雰囲気中、溶液中の成長 ▶ 多様な環境への対応性

結晶成長の観察技術	リアルタイム測定	原子分解能	環境対応性
電子回折	○	○	× 超高真空環境のみ
光反射率	○	× >μmの平均情報	○
X線回折	× 測定時間が長い	○	○

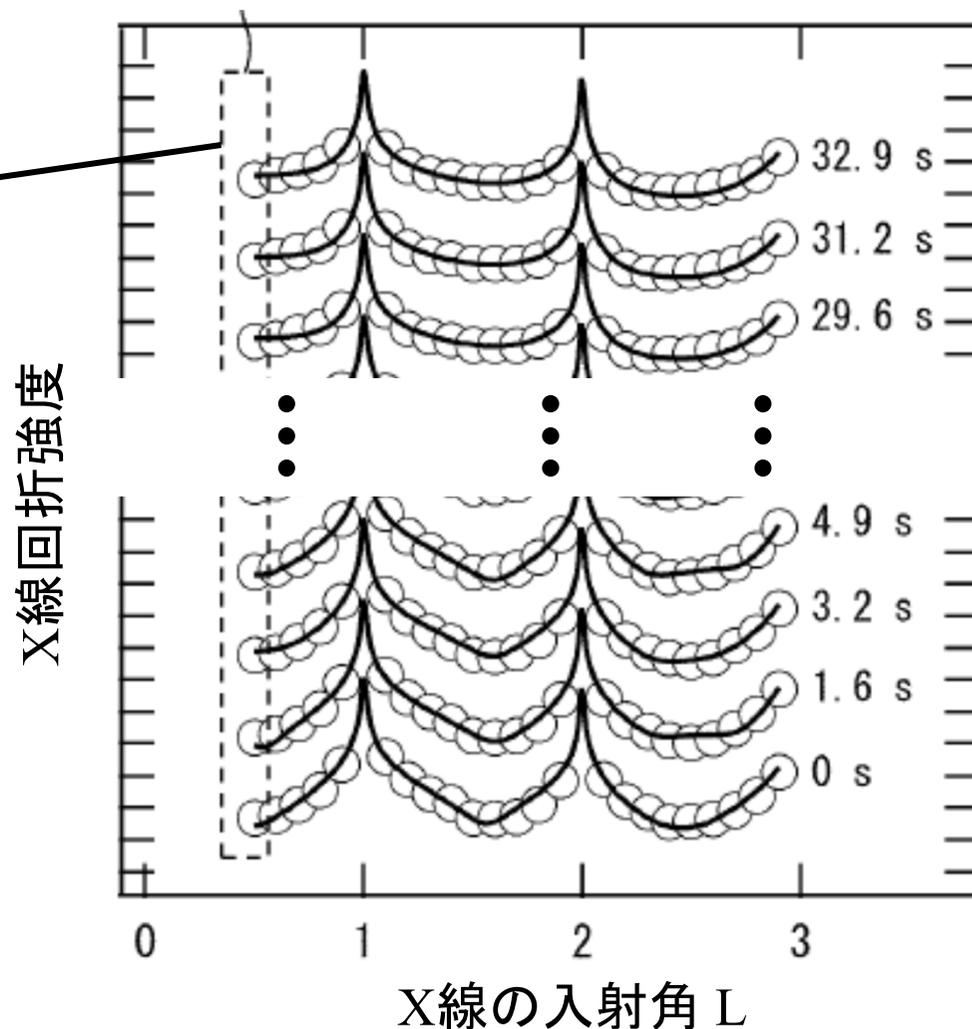
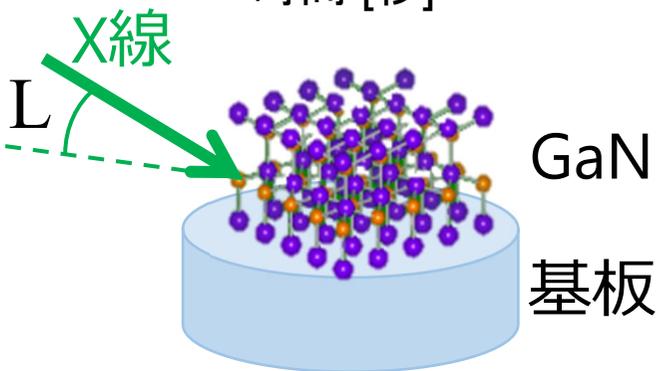
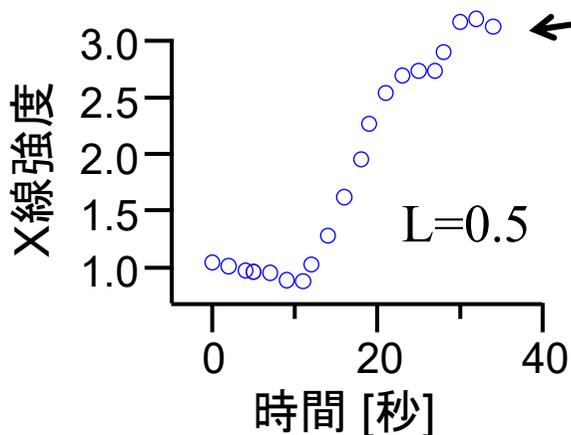
従来のX線回折測定の問題点

- X線の入射角を変化させながら測定するため、1測定あたり10分程度必要。
- 秒単位で進む結晶成長に追いつかない。



本技術の特徴

- X線の入射角を固定して時間変化を測定し、後で合成



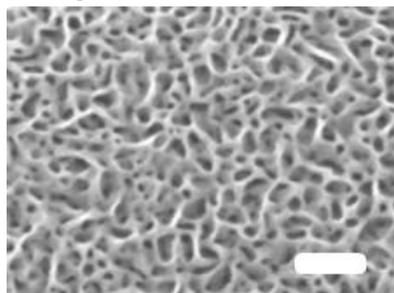
X線回折で秒単位の変化を測定可能

適用例：窒化物半導体の結晶成長

SiC(0001)基板上のGaN成長

基板温度650°C

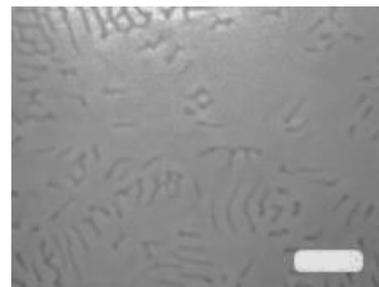
Ga/N=0.4



欠陥の多い結晶

基板温度675°C

Ga/N=1.5



欠陥の少ない結晶

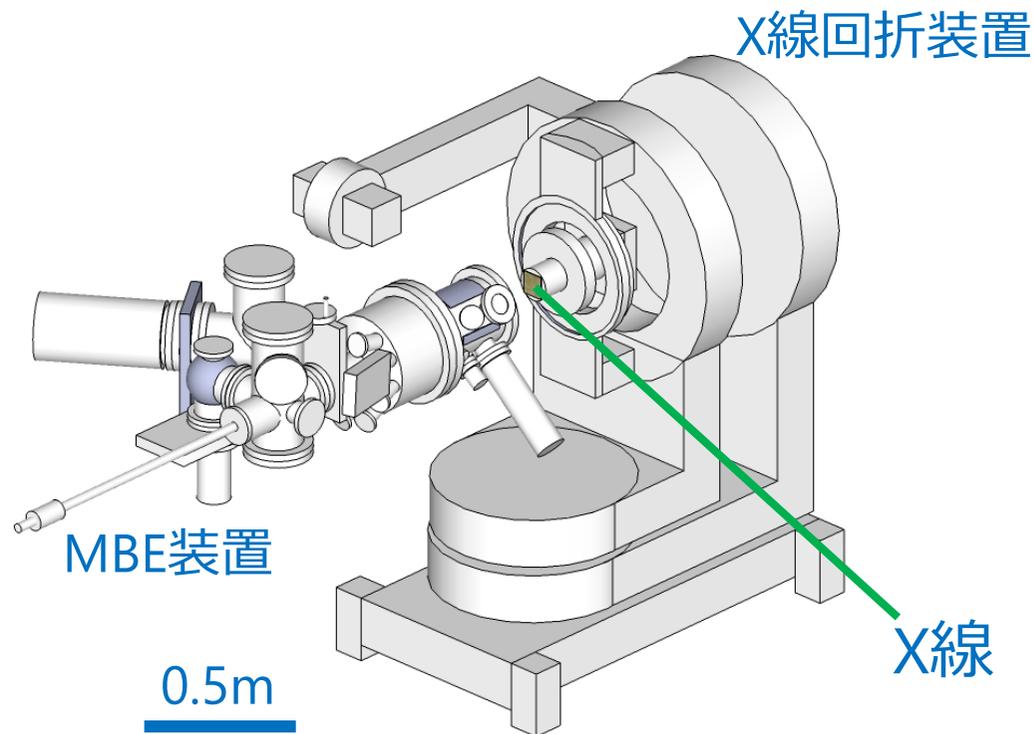
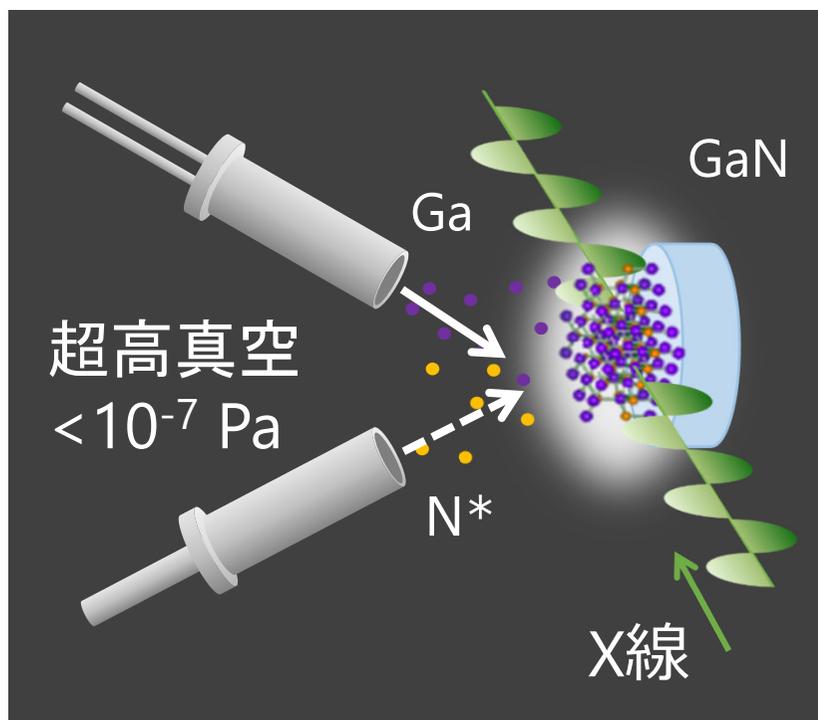
- 高品質なGaN結晶を得るにはGaを多くする必要があることが知られている
- 成長中に表面に存在しているであろう液体Ga層が高品質GaN結晶成長に何らかの役割をはたしていることを示唆



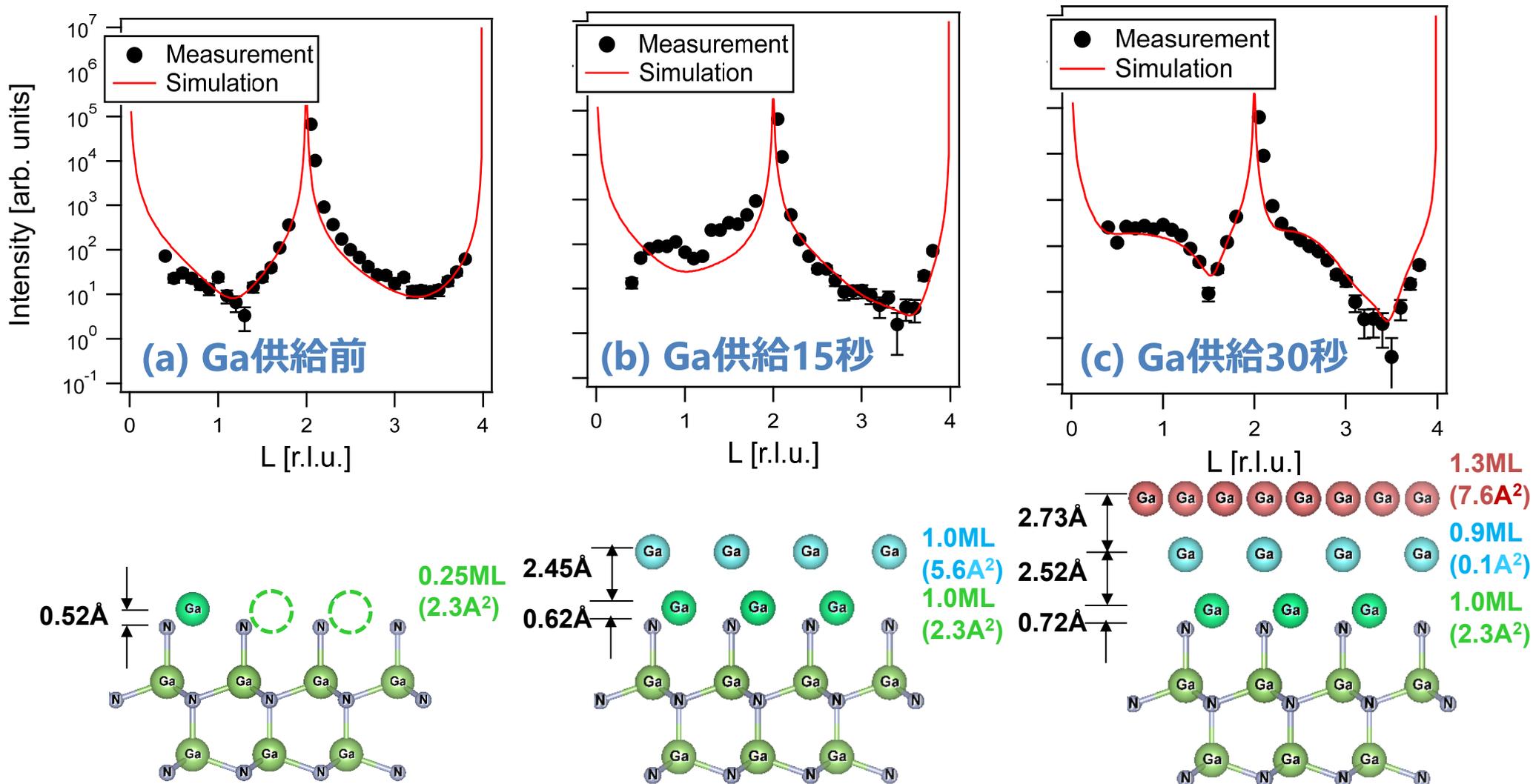
成長中の液体Ga層の性状を本技術を用いて分析

窒化物半導体成長その場X線回折装置

X線源	放射光施設SPring-8/BL11XU
成長法	RFプラズマ支援分子線エピタキシー（RF-MBE）法
試料サイズ	<20x20 mm ²
基板温度	<1000°C



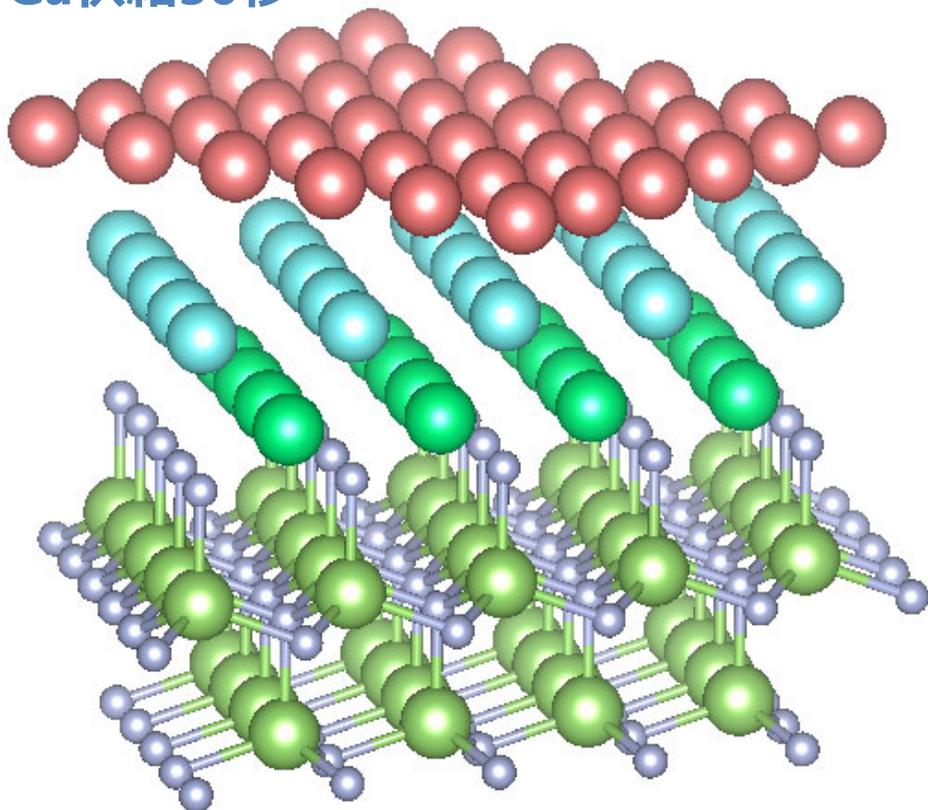
GaN成長表面の液体Ga層の構造



Ga量増加にともなう液体Ga層の構造変化を~1秒の時間分解能で解明

GaN成長表面の液体Ga層の構造

Ga供給30秒



- 成長表面に過剰なGaが液体として存在
- GaN結晶界面で、液体Gaが、GaN結晶の周期性を受け継ぎ、配列した原子層を形成



結晶性の良いGaN膜の成長

本技術の波及効果

様々な結晶成長手法、材料への適用

X線の高い物質透過性により、成長環境を選ばない

成長手法	成長環境
分子線エピタキシー (MBE)	超高真空
有機金属気相成長 (MOCVD)	ガス雰囲気
電気めっき	水溶液
固相エピタキシー	固体

想定される用途

- 新しい物質の結晶成長技術を開発するにあたり、**最適な成長条件**を見出し、確定するための強力な武器となる。
- 単なる経験則ではない、結晶成長メカニズムに踏み込んだ裏付けとなる情報が得られることで、**信頼性の高い結晶成長技術**の開発につながる。

実用化に向けた課題

- 現在、窒化ガリウムの分子線エピタキシー成長について原子レベルでの表面構造を明らかにしたところ。数多くある結晶成長手法のうち、ひとつの手法、材料の例を示したにすぎない。
- 今後、他の成長手法、材料についても実験データを取得し、本手法の適用可能性を示していく必要がある。
- 実用化に向けて、よりニーズの高い成長手法、材料を優先的に取り上げる必要がある。

企業への期待

材料メーカーへ

本技術を活用して、半導体の成長条件最適化や結晶成長メカニズムの解明に興味のある企業との共同研究を希望。GaN以外の材料系や分子線エピタキシー以外の成長法への適用など柔軟に対応する予定。

装置メーカーへ

X線回折装置などのラボ用計測機器メーカーの共同研究を希望。結晶成長装置とラボ用計測機器の融合により、新しいその場観察機器の開発につなげていきたい。

本技術に関する知的財産権

- 発明の名称：データ取得装置、データ補正装置、データ補正方法、プログラム及び記録媒体
- 出願番号：特願2022- 41838
- 出願人：量子科学技術研究開発機構
- 発明者：佐々木拓生（量研）、高橋正光（量研）

お問い合わせ先

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までお願いいたします。

TEL 043-206-3146 (共同研究)

TEL 043-206-3027 (ライセンス)

FAX 043-206-4061

e-mail innov-prom1@qst.go.jp (共同研究)

e-mail chizai@qst.go.jp (ライセンス)