



InGaAs/GaAs(001)界面における成長初期過程の転位の X 線回折およびトポグラフィ法を用いた観察

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 宮崎大学工学部 公開日: 2020-06-21 キーワード (Ja): キーワード (En): GaAs, Lattice mismatched solar cell, Reciprocal space mapping, Misfit dislocation, X-ray topography 作成者: 高比良, 潤, 小寺, 大介, 境, 健太郎, 前田, 幸治, 大下, 祥雄, 鈴木, 秀俊, 高比良, 潤, Koderu, Daisuke, Ohshita, Yoshio メールアドレス: 所属: 宮崎大学, 宮崎大学, 宮崎大学
URL	http://hdl.handle.net/10458/5566

InGaAs/GaAs(001)界面における成長初期過程の転位の X 線回折およびトポグラフィ法を用いた観察

高比良 潤^{a)}・小寺 大介^{b)}・境 健太郎^{c)}・前田 幸治^{d)}・大下 祥雄^{e)}・鈴木 秀俊^{f)}

Misfit Dislocations of Initial Growth Stage in InGaAs/GaAs(001) Interface Observed Using X-ray Diffraction and Topography

Jun TAKAHIRA, Daisuke KODERA, Kentarou SAKAI, Kouji MAEDA,
Yoshio OHSHITA, Hidetoshi SUZUKI

Abstract

Reciprocal space mapping (RSM) and X-ray topography (XRT) were performed to understand the anisotropies of misfit dislocations (MDs) formed in the initial growth stage of InGaAs on GaAs(001). The MDs densities increased with increasing both In composition and the film thickness, and it highly depended on the film thickness rather than the In composition. Anisotropies in MDs distribution observed by XRT were good agreement with those observed by RSM. In addition, the 15% of Burgers vectors for all MDs could be identified by XRT.

Keywords: GaAs, Lattice mismatched solar cell, Reciprocal space mapping, Misfit dislocation, X-ray topography

1. はじめに

格子不整合系 III - V 族半導体は、超高効率多接合太陽電池として期待されている。それは、エネルギーギャップが基板の格子定数に制限されないため、最適なバンドギャップの組み合わせを選択できるからである。しかし、この構造では基板と膜の格子定数が異なっているため、格子の歪みが生じてしまい、ミスフィット転位と呼ばれる欠陥が界面に形成されてしまう。ミスフィット転位は貫通転位を発生させる原因であり、太陽電池の変換効率を低下させる。格子不整合系 III - V 族半導体において、格子不整合による転位の挙動とそれに伴った歪み緩和過程を理解することは、転位密度を低減させるために重要である。

転位はバーガースベクトルを求めることで種類を決めることができる。バーガースベクトルとは、転位が発生することによって生じるすべり方向の大きさと方向を示したベクトルである。バーガースベクトルと転位線の角度によって転位の種類が決まる。バーガースベクトルを求めることが歪み緩和過程の理解につながる。

格子不整合系 III - V 族半導体は、 α 転位と β 転位と呼ばれる 2 つの転位が主な転位である。これらの転位は、バーガースベクトルと 60° の角度をなす特長がある。図 1 に転位とバーガースベクトルの図を示す。また、このバーガースベクトルは α 転位と β 転位それぞれで 4 種類に分解することができる。

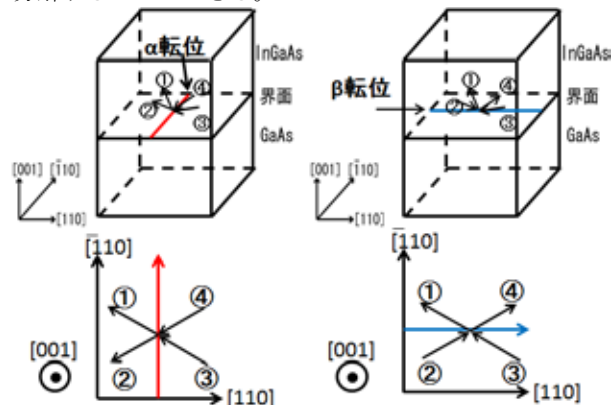


図 1. 転位とバーガースベクトルの関係

これまでの研究では、III - V 族ヘテロエピタキシャルの場合において、格子緩和初期の α 転位と β 転位の導入の早さに異方性があり、結晶性に大きく影響することがわかっている¹⁾。しかし、転位による高さ方向の結晶軸の傾きがどうなっているのかは考慮されておらず、結晶軸の傾きに異方性や膜厚依存性があるかについて、調査する必要がある。

a)電気電子工学専攻大学院生

b)豊田工業大学大学院生

c)産学・地域連携センター准教授

d)電子物理工学科教授

e)豊田工業大学教授

f)電子物理工学科准教授

また、MBE 成長中でのリアルタイム X 線回折測定により、基板の面方位を変化させると、歪み緩和に異方性が生じることがわかっている²⁾。これは、格子不整合系 III - V 族半導体のバーガースベクトルの方向に偏りが生じているからである。バーガースベクトルが打ち消し合えば対消滅を起こし、転位線は終端される。つまり、バーガースベクトルが制御できれば、対消滅の促進が可能であり、転位密度の低減に有効である。

本研究では、ミスフィット転位の挙動を理解するために、まず基板傾斜の無い GaAs(001) ジャスト基板上に作製した InGaAs 薄膜における格子緩和初期の転位について、逆格子マッピング法と XRT 測定で観察する。緩和の初期過程において、転位の導入が膜厚が厚くなるにつれて増加していることがわかっているため、今回は初期緩和過程における異方性や膜厚依存性、バーガースベクトルの方向の理解を目的としている。

2. 試料と実験方法

2.1 試料

試料は分子線エピタキシー(MBE)法により作製された $\text{In}_x\text{GaAs}_{1-x}/\text{GaAs}(001)$ を用いた。In 組成は 4%、7%、9%、13% で Ga セル温度、As セル温度、成長温度は一定で In セルの温度を変化させて In 組成を調整した。膜厚は 24~349nm で、セルの温度を一定にすることで In 組成を一定にし、成長時間を変えることで膜厚を調整した。

2.2 実験方法

高分解能 X 線回折装置を用い、InGaAs の 004 逆格子点を中心に逆格子マッピング測定(RSM)を行った。定量的な比較をするために、ガウス関数を用いてピークフィットを行った。

X 線トポグラフィー測定(XRT)は、作製した試料の内、In 組成 7~9%、膜厚が 70~90nm のものを用いて、九州シンクロトロン光研究センター-BL09A にて行った。

モノクロメーターを入射 X 線光路に導入し、単色 X 線のエネルギーを薄膜 InGaAs の回折が観察される値に調整し、X 線フィルムにてトポグラフィー像を得た³⁾。

3. 実験結果および考察

3.1 逆格子マッピング法による転位の解析

図 2(左)に In 組成 9%、膜厚 88nm、X 線入射方向 [110] の逆格子マッピングの結果を示す。中心に見える InGaAs004 ブラッグピークの左右にサテライトピークが確認できた。サテライトピークは Kaganer 等の研究により、60° 転位に起因して発生していることがわかっており、転位密度と密接に関係している⁴⁾。

サテライトピークの定量的な解析のために強度プロファイルを作成し、ガウス関数でフィッティングを行った。図 2(右)にその例を示す。InGaAs ブラッグピークの強度

が最も高い位置を中心として横軸方向([110]方向)に赤い太線のような位置で強度プロファイルをとった。その結果、赤い太線のライン上には 4 つのピークが存在することがわかった。InGaAs のブラッグピークは結晶固有のものであり、転位の影響を受けづらく他のピークへの正確なフィッティングの妨げになるため、フィッティングの際はブラッグピークを無視して行った。

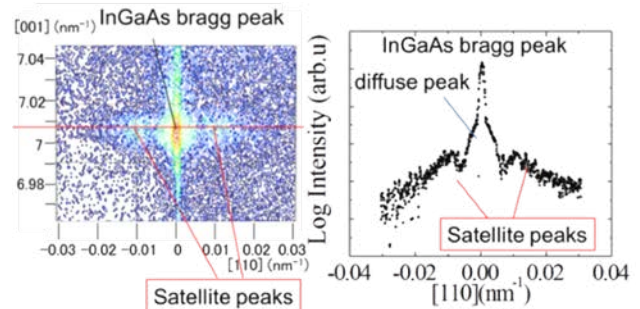


図 2. 逆格子マッピングと強度プロファイル

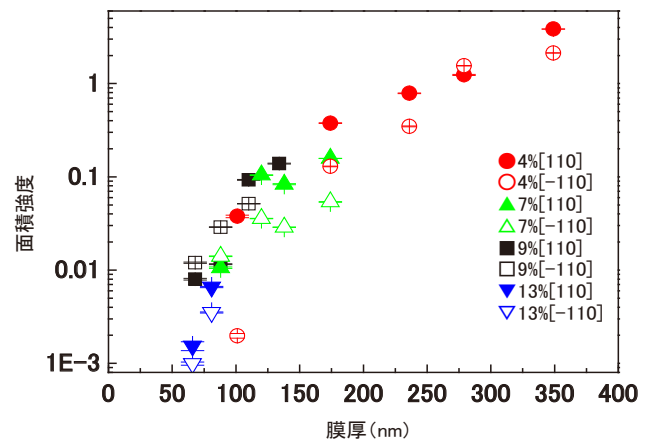


図 3. 膜厚とサテライトピークの面積強度

図 3 にサテライトピークの面積についてのグラフを示す。膜厚の増加に伴い面積強度は増加する傾向が見られた⁵⁾。また、サテライトピーク間距離と半値幅は減少していた。よって、転位の振る舞いは In 組成に関係なく強い膜厚依存性があることがわかった。

今回用いた試料は臨界膜厚による規格化で膜厚を決定している。そのため、In 組成による変化を見るために横軸を膜厚/臨界膜厚に変更している。図 4 にサテライトピーク間距離の関係を示す。これより、全ての組成で膜厚の増加に伴いサテライトピーク間の距離が減少していくという傾向が見られた。さらに、In 組成が大きくなるとサテライトピーク間の距離は短くなった。また、面積強度に関しては In 組成が低い試料の方が大きく、半値幅に関しては In 組成が低い試料の方が小さいという傾向があった。よって、膜厚/臨界膜厚が同じ場合、In 組成が小さいほど転位密度が高いという In 組成依存性があった。

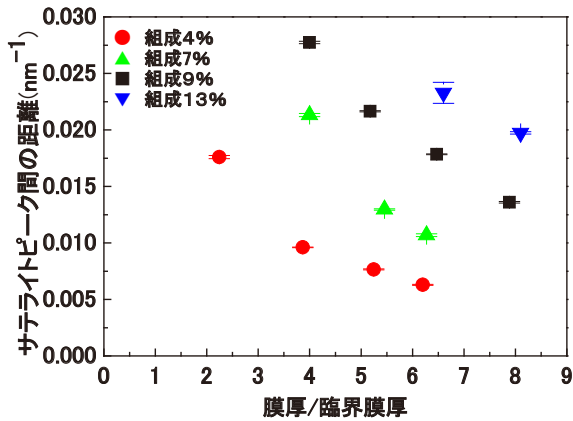


図4. [110]入射時のサテライトピーク間距離

異方性を比較するために[110]入射と $[\bar{1}\bar{1}0]$ 入射の結果を一つにまとめたものを図5に示す。サテライトピークの面積強度では、In組成9%の試料では異方性が見られなかったが、他のIn組成では[110]入射の方が面積強度が大きいという結果になった。これは実空間における α 転位の方が転位の導入が早いことに起因していると考えられる。また、膜厚が増えることによって異方性が大きくなったり小さくなったりといった変化は見られなかった。これは、 α 転位の方が導入は早いものの、その後の転位の入り方には極端な差が無いことを示していると考えられる。

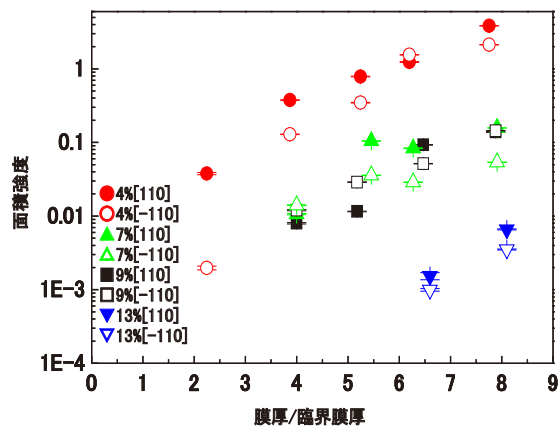


図5. 臨界膜厚で規格化したサテライトピーク面積の異方性

3.2 X線トポグラフィ測定によるミスフィット転位密度

図6にXRTによる測定例を示す。 $[\bar{1}\bar{1}0]$ と $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向に線状のコントラストが見えている。これは、 α 転位と β 転位に起因したミスフィット転位であると考えられる。また、転位線にはコントラストの強弱や太さの違いが見られる。これは、複数の転位が束状に集まっていることによって現れたものである⁹⁾。

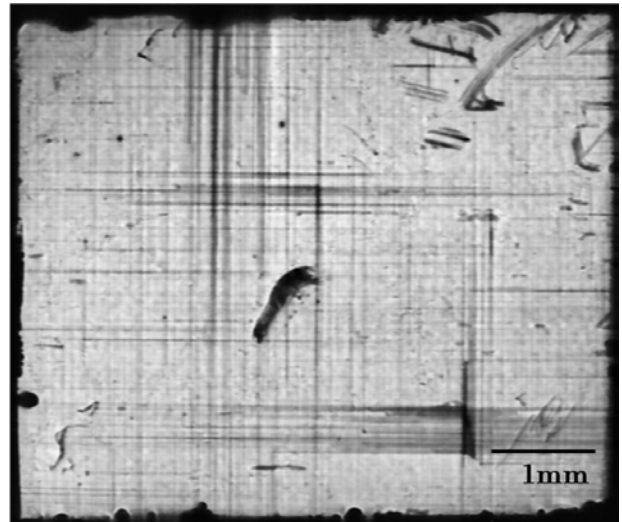


図6. In組成7%、膜厚88nm、回折点224のXRT像

次に、X線トポグラフィと逆格子マッピングの比較について述べる。図7に回折点224における膜厚68nm(左)と88nm(右)のXRT像を示し、図8にRSM法で現れたサテライトピーク的面積強度について示す。実空間であるXRTでは、膜厚88nmの方が転位線の本数や束が多く見える。また、逆空間であるRSMでは、図8のように88nmの時のサテライトピーク的面積強度が約3.8倍大きいことがわかった。このように、XRTとRSMで求めたミスフィット転位は良い一致を示していた。

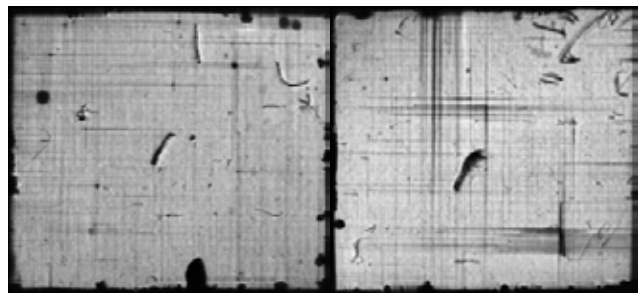


図7. 膜厚68nm(左)と88nm(右)のXRT像

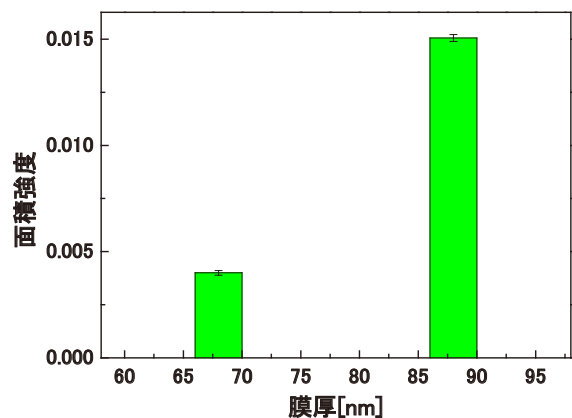


図8. 図7のサンプルのサテライトピーク面積強度

3.3 バーガースベクトルの方向の解析

バーガースベクトルの方向を同定するために、ラインプロファイルによる解析を行った。図9に解析例を示す。任意の範囲にラインプロファイルを各回折点ごとに求め、 $2\bar{2}4$ で見られる転位線の内、1つの回折点でのみコントラストが消滅している場所を探した。図10に結果を示す。縦軸のコントラストが小さい時、黒い線が見られるので、図の下向きのピークが転位線を表しているが、矢印の部分は、 $\bar{4}04$ のみピークが見られない。つまり、 $\bar{4}04$ のみ転位線が見られていないため、バーガースベクトルの方向は $[101]$ であると同定できる。

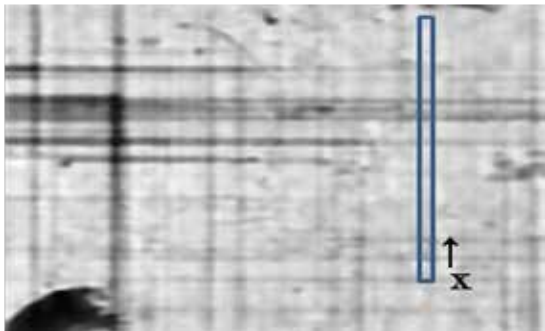


図9. ラインプロファイルの解析例

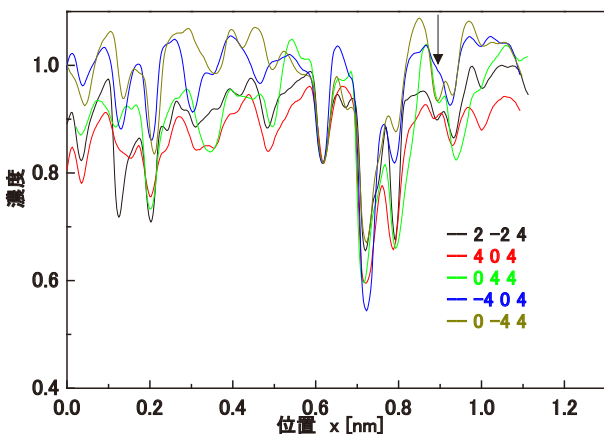


図10. ラインプロファイル結果

このように、ラインプロファイルによる転位の解析を行い、バーガースベクトルの方向を同定できた。さらに詳細な解析のためにラインプロファイルの微分を行って、より多くのバーガースベクトルの方向の同定や、転位線の本数を求めることを試みた。

図11にラインプロファイルを微分したグラフを示す。図に引いてある横線が、各回折点の傾きが0である所、つまりラインプロファイルのピークを表している。縦線が、 $2\bar{2}4$ に現れている転位線を指しており、この転位線が他の回折点で現れていない所を探すことで、比較を行った。ラインプロファイルを微分した結果、2つのバーガースベクトルの方向が同定できた。1つは $\bar{4}04$ の所に見られ、図10で同定できたバーガースベクトルと同じ場所

を示していた。また、新しく 404 の部分に転位線が見られない所が見つかり、バーガースベクトルの方向は $[\bar{1}01]$ であることがわかった。

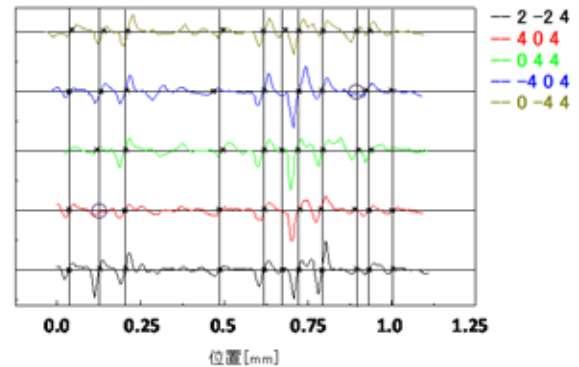


図11. ラインプロファイルの微分結果

同様の解析を図12のような計5か所で行い、バーガースベクトルの決定率を算出した。今回の解析で、 $2\bar{2}4$ に見られた転位線の本数は5か所の中でそれぞれ11本~18本であり、内バーガースベクトルの方向を同定できた数は1本~4本であった。それぞれの箇所のバーガースベクトルの決定率を平均すると約15%であった。このように決定率が低かった原因としては、転位線が束になっている部分の解析が難しかったことが挙げられる。転位線が1本しかない所は、完全に転位線が消滅している時の判別が簡単だが、転位線が束になっている部分は、たくさんの転位が複合して存在していることや、XRT像そのもののコントラストの差が違うため、バーガースベクトルの方向の同定が難しい。よって、決定率が下がってしまうと考えられる。微傾斜基板を用いた場合、どのような結果になるか今後観察が必要になる。

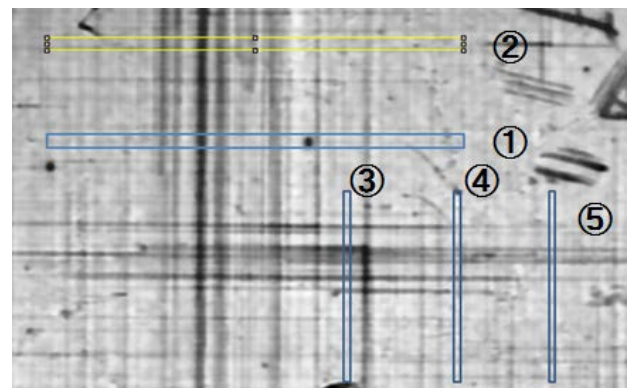


図12. ラインプロファイルの解析位置

4. 結論

本研究では、ミスフィット転位の挙動を理解するために、初期緩和過程における異方性や膜厚依存性、バーガ

ースベクトルの方向について研究した。逆空間における転位の観察には逆格子マッピング法を用い、転位の異方性を調べるため X 線を基板の[110]方向と $[\bar{1}10]$ 方向から入射した。また、実空間の観察には XRT 測定を用い、XRT 像を解析することでバーガースベクトルの方向を同定した。

逆格子マッピングでは、転位が入ることでサテライトピークが出現し、膜厚が増加するとサテライトピークの形状が変化していた。サテライトピークの面積強度は膜厚の増加に従い増加し、半値幅とサテライトピーク間距離は減少していた。よって、転位の振る舞いは In 組成に関係なく強い膜厚依存性があることがわかった。異方性については、サテライトピークのアーク強度が[110]方向の方が大きいという結果になった。これは、実空間における α 転位の方が転位の導入が早いことと良い一致を示している。

XRT 測定による結果、 α 転位と β 転位を観察できた。回折点 224 と比較し、バーガースベクトルの方向を同定した結果、その決定率は平均 15%であった。転位線が束になっている部分は、転位が混合しており、解析が難しいため、決定率を下げる原因となっている。バーガースベクトルの方向は、4 つの方向全てに現れており、分布が大幅に偏っている傾向は見られなかった。今後微傾斜基板を測定することで、今回の結果とどのような違いがあるか比較する必要がある。

参考文献

- 1) H. Suzuki, T. Sasaki, A. Sai, Y. Ohshita, I. Kamiya, M. Yamaguchi, M. Takahashi, and S. Fujikawa: "Real-time observation of anisotropic strain relaxation by three-dimensional reciprocal space mapping during InGaAs/GaAs (001) growth", *Applied Physics Letters*, Vol.97, pp.041906-1-041906-3, 2010.
- 2) T. Nishi, T. Sasaki, K. Ikeda, H. Suzuki, M. Takahashi, K. Shimomura, N. Kojima, Y. Ohshita, and M. Yamaguchi: "Real-Time Observation Of Crystallographic Tilting InGaAs Layers On GaAs Offcut Substrates", *AIP Conf. Proc.*, Vol.1556, pp.14-17, 2013.
- 3) H. Suzuki, T. Sasaki, S. Yamamoto, Y. Ohshita, A. Fukuyama, and M. Yamaguchi: "Distribution of Misfit Dislocations at the InGaAs/GaAs(001) Interface Observed by Monochromatic X-ray Topography", *Materials Science Forum*, Vol.725, pp.85-88, 2012.
- 4) V. M. Kaganer, R. Köhler, M. Schmidbauer, and R. Opitz: "X-ray diffraction peaks due to misfit dislocations in heteroepitaxial structures", *Physical Review B*, Vol.55, pp.1793-1810, 1997.
- 5) T.Sasaki, H. Suzuki, A. Sai, J.H. Lee, M. Takahashi, S. Fujikawa, K. Arafune, I. Kamiya, Y. Ohshita, and M. Yamaguchi: "In situ Real-Time X-ray Reciprocal Space Mapping during InGaAs/GaAs Growth for Understanding Strain Relaxation Mechanisms", *Applied Physics Express*, Vol.2, pp.085501-1-085501-3, 2009.
- 6) 片山 真弘: InGaAs/GaAs ヘテロエピタキシャル膜における格子不整合転位の異方性評価, 宮崎大学大学院工学研究科電気電子工学専攻修士論文, 2012.