

X線小角散乱による AlN 膜上 GaN ナノドットの構造解析 Structural evaluation for GaN nanodots formed on AlN films by small-angle x-ray scattering

表 和彦, 伊藤 義泰, 岡崎 祐子
Kazuhiko Omote, Yoshiyasu Ito, Yuko Okazaki

(株)リガク
Rigaku Corporation

AlN 薄膜表面およびそれをさらに AlN 薄膜によって埋め込まれた GaN ナノドットの形状を計測する目的で、反射配置の小角散乱測定 (GISAXS) を行った。その結果、表面から直接観測できないナノドットが埋め込まれた試料においてもナノドットに起因する小角散乱強度が測定され、埋め込まれる前後の形状変化を観測することができた。データの定量的な解析のため、薄膜内部の X 線強度を distorted wave Born approximation (DWBA) に基づいて計算した。また、測定したデータ全体にほぼ整合する解析を行うため、ナノドットの形状を頂点の切れた円錐モデルで近似した。その結果、AlN でキャップすることにより、円錐の上部が切り取られる形でナノドット高さが大幅に低くなるとともに、円錐径がやや大きくなる傾向が見られた。また、キャップ後さらに熱処理した試料においては、ナノドットの大きさがわずかに小さくなることが示唆された。

キーワード： ナノドット, X 線小角散乱, GaN, GISAXS, DWBA

背景と研究目的：

半導体ナノドットは優れた温度特性を持つ高効率な光デバイスへの応用が期待され多くの研究がなされている。一方 GaN 系の半導体は、青色から紫外光までの発光素子として非常に注目を集めている。そのような中で最近、自己組織化によって形成した GaN ナノドットを発光体とすることにより、温度特性の飛躍的な向上や臨界電流の低減が図られることが示唆されている^[1]。このとき、ナノドットの大きさと発光スペクトルの波長には大きな相関があるため、ドットの大きさを制御することが重要な課題となっている^[2]。ところが、表面に形成されたばかりのナノドットであれば AFM 等によって観測することもそれほど困難ではないが、本来、実際にデバイス化に必要なキャップ後、界面に埋もれた状態での大きさや形状を測定することが必要である。しかしそれらを非破壊で測定する手法が十分確立しておらず、そのための新しい計測技術の確立が期待されている。X 線小角散乱法はそのような目的に最適であり、さらに、高輝度の X 線が得られる SPring-8 のアンジュレータ挿入光源 (BL46XU) を用いれば詳しい形状変化を観測できるものと期待される。

実験：

BL46XU において X 線波長を 0.13050nm (9.5KeV) として実験を行った。最近、GISAXS 測定では CCD カメラに代表される二次元検出器を用いて散乱パターンを一度に測定することが多いが、本実験では、得られる X 線強度が弱いため、バックグランドを下げて高いダイナミックレンジが得られるよう、0 次元のシンチレーション検出器と回折計を組み合わせ、検出器を走査することにより散乱パターンを計数した。このとき、なるべく強い X 線強度を得るため、X 線入射角度を全反射臨界角度近傍に設定し、X 線出射角度を複数選択して (Q_z を複数選択した) 面内方向のスキャン (Q_y スキャン) と面内散乱角度 (Q_y) を一定に保った一つの Q_z スキャンで二次元的なデータを取得した。GISAXS の概念図と測定に用いた回折計 (ATX-GSOR) を図 1 に示す。

本研究では、MOCVD によって自己組織化成長した三種類の GaN ナノドットについて評価を行った^[2]。一つ目は、AlN(100nm)/SiC(0001)基板の薄膜表面に成長した GaN ナノドット。二つ目は、

一つ目の試料を AlN キャップ層（約 20nm）で埋め込んだもの。三つ目は、二つ目の試料を高温でアニールしたものである。これらの試料に対する GISAXS 測定結果を図 2 に示す。

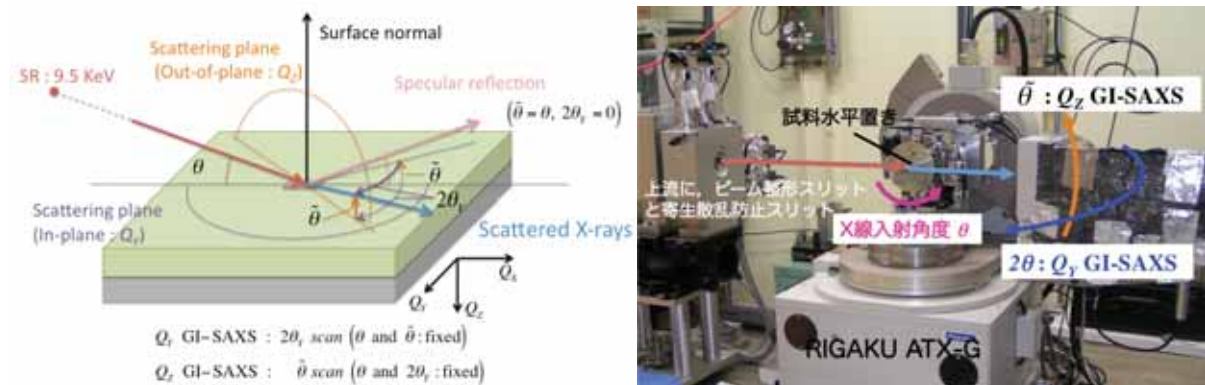


図 1 GISAXS の概念図（左図）と実験に用いた回折計（ATX-GSOR）（右図）

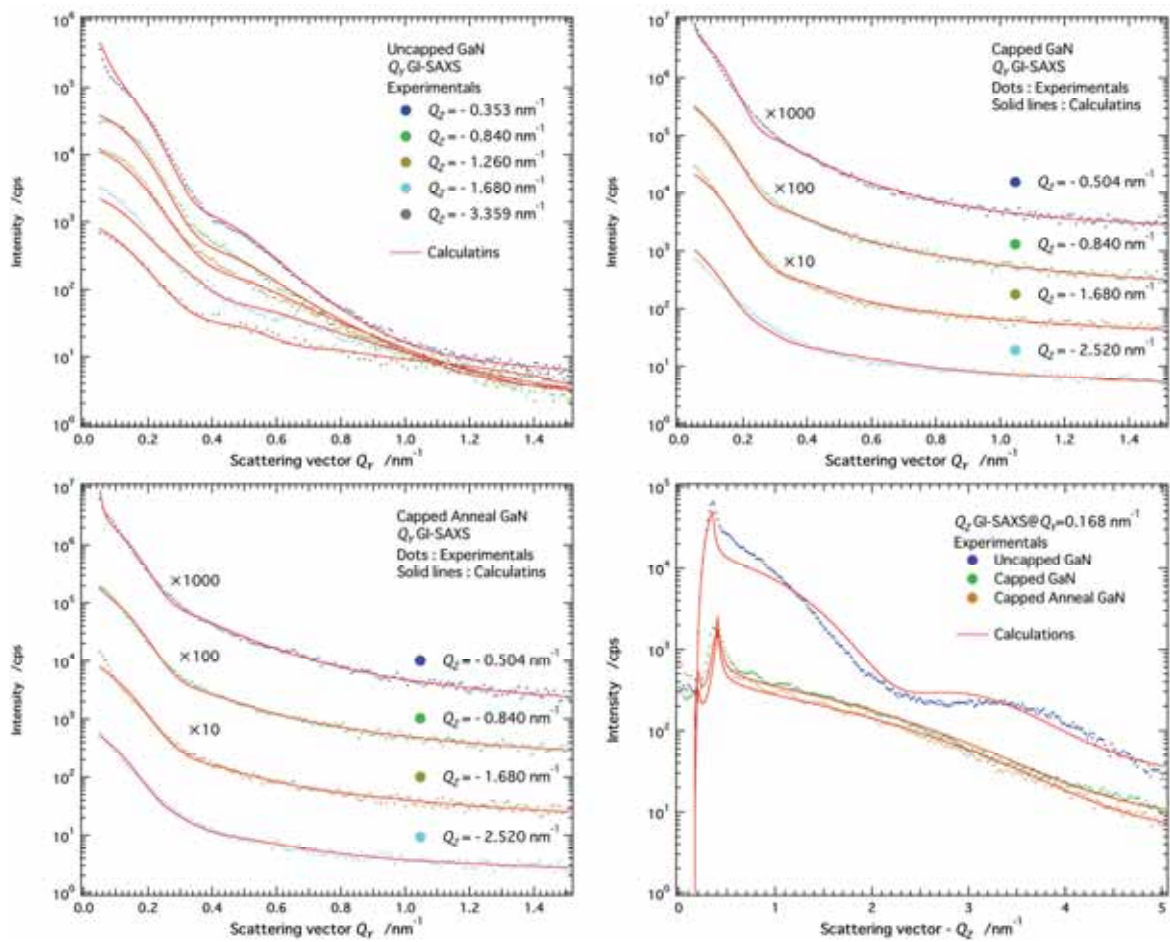


図 2 GaN の GISAXS 測定結果（点線：実験，実線：計算）。左上図：表面に成長した GaN ナノドットの Q_y GISAXS。右上図：AlN でキャップした試料の Q_y GISAXS。左下図：キャップ後アニールした試料の Q_y GISAXS。右下図：各試料の Q_z GISAXS。

結果および考察：

図 2 に示した測定結果からわかるように，SPRing-8 の高輝度光源を用いることにより，AIN キャップ層に埋もれた GaN ナノドットからも十分な小角散乱シグナルを観測することができた．得られたデータから，まず定性的に次のようなことが言える． Q_z が最小の Q_y GISAXS に着目すると，ドットの直径に対応する振動の節の位置が，表面ナノドット，キャップナノドット，キャップ後アニールナノドットでそれぞれ， $Q_y = 0.40 \text{ nm}^{-1}$ ， 0.25 nm^{-1} ， 0.28 nm^{-1} であることが分かる．そのため，キャップすることにより，ドットの平均直径が大きくなることが予想される．また，それほど大きな差はないが，アニールによりわずかにドット径が小さくなることが予想される．さらに， Q_z の絶対値が大きくなるにしたがって Q_y GISAXS の振動の節の位置がシフトしており，ナノドットの側面は垂直に立っておらず側面が傾いた円錐形をしていることが予想される．次に Q_z GISAXS に着目すると，表面法線方向のナノドットの高さに対応する振動の節の位置が，表面ナノドット，キャップナノドット，キャップ後アニールナノドットでそれぞれ， $Q_z = 2.4 \text{ nm}^{-1}$ ， 4.5 nm^{-1} ， 4.5 nm^{-1} となっており，キャップすることによりナノドットの高さが低くなることが予想される．アニール前後でキャップしたナノドットの高さはほぼ等しいと予想される．

上記の定性的な議論を考慮し，頂点の切れた円錐モデルを用いて GaN ナノドットの形状因子を計算することにした（図 3）．また，すれすれ入射特有の薄膜内部での X 線強度を DWBA 法に基づいて計算した^{[3],[4]}．また，サイズ分布をガンマ分布関数で与えた^[4]．解析では，実験結果と計算結果が一致するよう形状パラメータおよびサイズ分布パラメータを非線形最小二乗法により最適化した．

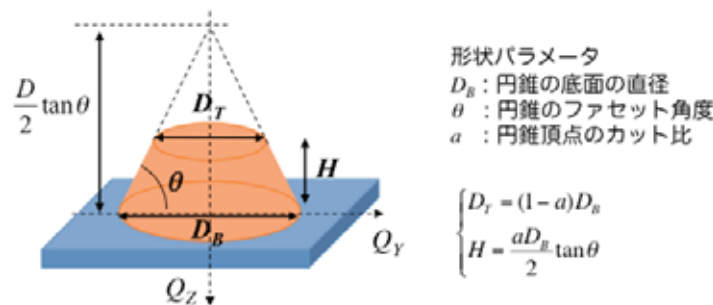


図 3 GaN ナノドットの形状モデル

非線形最小二乗法で解析した GISAXS の計算結果を図 2 の実線に示す．また，最適化で得られた形状および分布パラメータを表 1 に，最適化したパラメータで計算される円錐底面および上面の直径分布，円錐の高さ分布を図 4 に示す．

表 1 最適化された形状パラメータ (D_T と H は最適化されたパラメータより計算)

	表面ナノドット	キャップナノドット	キャップ後アニールしたナノドット
底面の平均直径 D_B	24.3(2) nm	27.6(3) nm	25.1(4) nm
ファセット角度 θ	28(2) $^\circ$	27(2) $^\circ$	24(3) $^\circ$
頂点のカット比 a	0.43(2)	0.21(2)	0.26(3)
平均サイズで規格化した分布の標準偏差	0.21(1)	0.25 [fixed]	0.25 [fixed]
上面の平均直径 D_T	13.9 nm	21.7 nm	18.6 nm
高さ H	2.8 nm	1.5 nm	1.5 nm

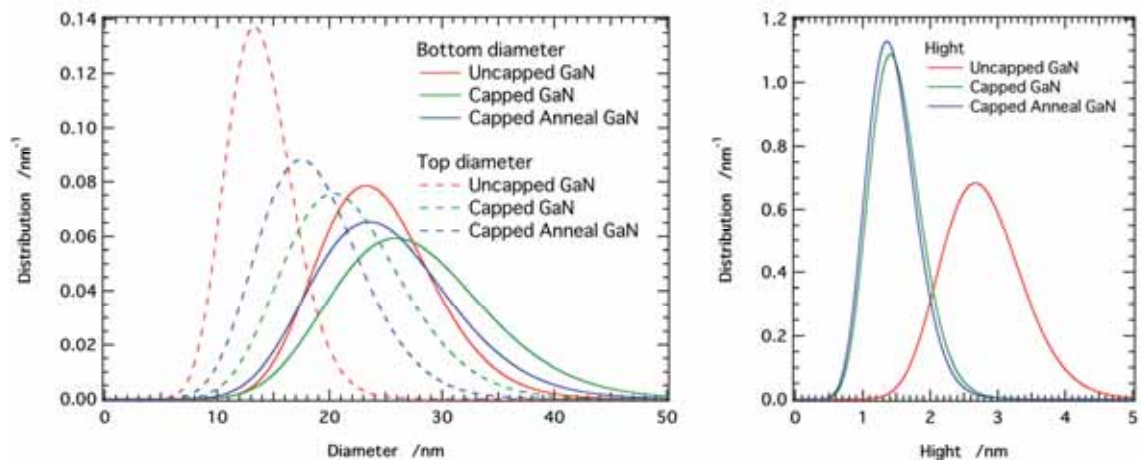


図 4 左図 : GaN ナノドットの底面と上面の直径分布, 右図 : 高さ分布

本実験および解析から, いずれのナノドットも円錐の錐角 θ がほぼ等しい形状を持つことが分かった. また, キャップ層で埋め込まれることによりナノドット高さが大きく低下する一方, その平均直径がわずかに大きくなることが分かった. 特に, 円錐の錐角 θ がほぼ等しいにもかかわらず, キャップ層を持つ GaN ナノドットの円錐のカット比 a が小さくなることから, キャップによって円錐の上面が大きく切り取られるかたちで形状変化していることが推定される. さらにアニールにより, ほぼ相似形を保ったままわずかに小さくなることが示唆された.

今後の課題 :

本研究では, 高輝度放射光の利用によりキャップ前後における GaN ナノドット形状変化の定量的解析を行った. さらに, アニール後の原子拡散や基板方位を反映した面内異方性の検討も興味ある課題である. また, ここで詳しく解析した GaN ナノドットだけでなく, 高速光通信用デバイスとして注目されている GaAs 基板上 InAs ナノドットの同様な評価にも高輝度放射光による GISAXS 測定が有効であると考えられ, 今後もそのような構造解析を引き続き推進していきたいと考えている.

参考文献 :

- [1] K.Hoshino, *et al.*, Appl. Phys. Lett., **85**, 1262 (2004).
- [2] M. Miyamura, K. Tachibana, and Y. Arakawa, Appl. Phys. Lett., **80**, 3937 (2002).
- [3] S. K. Shiha, E. B. Sirota, S. Garoff, and H. B. Stanley, Phys. Rev., **B38**, 2297 (1988).
- [4] K. Omote, Y. Ito, and S. Kawamura, Appl. Phys. Lett., **82**, 544 (2003).