

マイクロビーム放射光 X 線を用いた GaN/GaInN 薄膜の格子ひずみと In 組成分布の同時評価

Concurrent Analysis of Lattice Strain and In Composition Distribution of GaN/GaInN Thin Films Using Synchrotron Radiation X-rays with Micrometer Diameters

稲葉 雄大, 山口 雄大, 工藤 喜弘

Yuta Inaba, Yudai Yamaguchi, Yoshihiro Kudo

ソニー株式会社
Sony Corporation

発光デバイスに用いられる GaN/GaInN 薄膜では、In 組成むらや格子歪み分布が発光特性に影響を及ぼすと考えられている。このことを実験的に検証することを目的として、マイクロビームを用いた X 線回折測定と蛍光 X 線検出を同時に行った。その結果、場所によって In 組成および格子歪みが増加していることが確認できた。

キーワード： 窒化ガリウム、逆格子マップ、マイクロビーム

背景と研究目的：

GaN 系発光デバイスの活性層には $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ 層が用いられており、In 組成を増やすにつれて発光波長が長波長化するが、一般に発光効率は低下する。この現象には、In 組成ゆらぎと格子ひずみが大きな影響を与えていると考えられている[1]。GaN と InN は熱力学的に均質な混晶になりやすく、In 組成を増やすほど相分離しやすいことが知られているが、その発光特性への影響は単純ではない。一般的に相分離は発光特性の低下を招くと思われるが、In の組成ゆらぎによってポテンシャルにゆらぎが生じ、その極小点において電子・ホール再結合発光が起きやすくなるというモデルが提唱されている[2]。また、基板と活性層の格子不整合に起因する格子ひずみもポテンシャルを変化させる。結晶格子の大きさは In 組成に依存するため、上記の In 組成ゆらぎと格子ひずみは密接な相関がある。

このような In 組成ゆらぎと格子ひずみ、および発光特性の相関関係を解き明かすことは発光特性向上の指針を得る上で重要である。そこで、本課題では In 組成ゆらぎと格子ひずみ、および発光特性の相関関係を解き明かすことを目的として、放射光マイクロビーム X 線を用いて蛍光 X 線と回折 X 線を検出することによって、In 組成ゆらぎと格子ひずみの同時マッピング測定を試みた。

実験：

試料は c 面サファイア基板の上に形成された GaN 層の上に作製した多重量子井戸(Multi Quantum Well; MQW)とした。MQW の構造は、活性層の膜厚が 3 nm、バリア層の膜厚が 15 nm であり、5 周期分繰り返されている。発光波長は緑色帯であり、In 濃度は 25%程度である。この試料に対して屈折レンズを用いて 2 μm 程度に集光したエネルギー 30 keV の X 線を試料に照射し、In-K α 蛍光 X 線強度を測定すると同時に、同一箇所でも 00010 対称反射(指数が二桁になる部分には以降下線を引くことにする)および 11-210 非対称反射の逆格子マップを測定した。さらに、試料ステージを動かすことで X 線の照射位置を変えて、複数の位置で測定を行った。

回折 X 線の検出には、CCD (Charge Coupled Device) 検出器を用いた。CCD 検出器はカメラ長が 100.230 mm となるようにゴニオメータの散乱角 2θ 軸に設置し、逆格子マップ測定時の 2θ は GaN の反射位置に設定した。反射位置は GaN の格子定数(無機結晶データベース ICSD (Inorganic Crystal Structure Database)の No.54698)である $a = 3.18940 \text{ \AA}$, $c = 5.18614 \text{ \AA}$ から計算したが、00010 および 11-210 反射の 2θ はそれぞれ約 46.93° 、約 49.51° である。CCD のゲインは 80 とし、ビニングは 1×1 で使用した。このときのカメラ長とピクセルサイズ 9 μm から計算される 2θ のステップサイズは約 0.005° となる。試料回転角 ω 軸は 00010 反射で $23.344 \sim 23.794^\circ$ の範囲を、11-210 反射

で $42.74 \sim 43.06^\circ$ の範囲を 0.005° 間隔で走査した。1 点あたりの CCD の積算時間は 4 秒である。

In 蛍光 X 線の測定には、Si PIN フォトダイオードを用いた。PIN ダイオードから出力された信号は更にアンプで増幅された後、マルチチャンネルアナライザ (Multi-Channel Analyzer; MCA) に蓄積され、MCA のコントローラーが接続された制御用 PC でスペクトルとして表示される。このスペクトルにおいて、弾性散乱を用いてチャンネルとエネルギーの対応をつけた後、In-K α 蛍光 X 線のピーク全体が入るように ROI (Region of Interest) を設定した。この ROI 中の積分強度がカウンタによって計測され、記録される。また、Ga K α 線等のより低エネルギーの強い蛍光 X 線で検出器が飽和することを防ぐために、Al 箔を適当に重ねて検出器前に貼り付けた。これにより、In の蛍光 X 線に影響を及ぼすことなく、低エネルギーの蛍光 X 線強度を減衰させることが出来た。測定時は可能なかぎり試料に検出器を近づけたが、このときの Dead Time は対称・非対称反射の双方で 15% 程度であった。

結果および考察：

測定した逆格子マップ ($\omega, 2\theta$ に対する強度マップ) を以下の (1), (2) 式を用いた q_x, q_z のマップへと変換した。ただし、 λ は X 線の波長である。今回の測定では対称反射の指数が 00010 、非対称反射の指数が $11-210$ なので、 q_x 軸が $[11-20]$ 方向と、 q_z 軸が $[0001]$ 方向と一致することになる。

$$q_x = \frac{2\pi}{\lambda} (\cos(\theta - \omega) - \cos\omega) \quad (1)$$

$$q_z = \frac{2\pi}{\lambda} (\sin(\theta - \omega) - \sin\omega) \quad (2)$$

ここで、In-K α 蛍光 X 線強度が最も大きく異なる 2 つの場所 (a), (b) の逆格子マップを図 1. に示す。

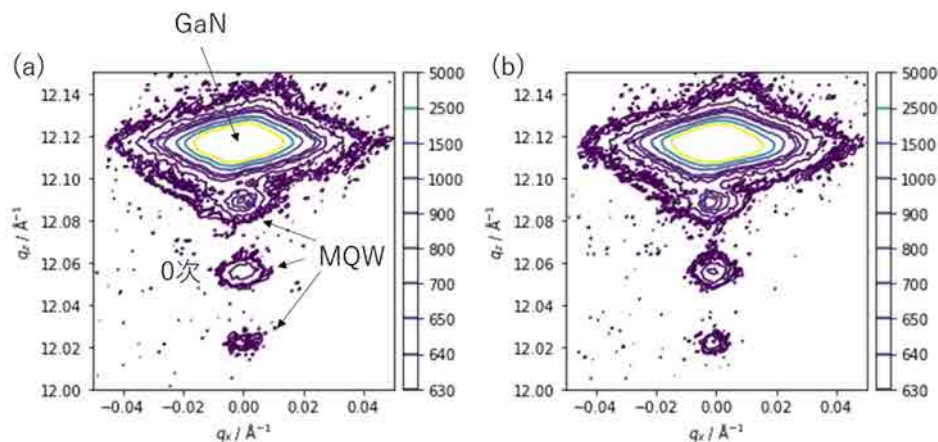


図 1. In-K α 蛍光 X 線強度が (a) 弱い場所、(b) 強い場所での逆格子マップ測定結果

$q_z = 12.12 \text{ \AA}^{-1}$ 程度の大きなスポットが GaN 層由来の回折点であり、その下の 3 つの小さなスポットが MQW 由来の回折点 (サテライトピーク) である。サテライトピークには必ず 0 次と呼ばれるピークが存在しており、そのピーク位置は運動学的回折理論の範疇では MQW の平均格子定数に相当することが知られている [3]。このため、MQW の 0 次ピークの位置を解析することで、平均的な格子歪みを評価することができる。平均格子定数は MQW を構成する各層の格子定数および膜厚によって変化するため注意が必要だが、今回の設計値から推測される 0 次ピーク位置に最も近いのは $q_z = 12.06 \text{ \AA}^{-1}$ 付近のサテライトピークである。図 1 を見ると、微小ではあるが、0 次ピークの位置が変化している。このことから、In 組成が異なる場所では GaN/GaNN 量子井戸の平均の格子歪みが増加していることが推察される。

今後の課題：

今後、測定した全ての点での MQW 由来の回折ピーク位置と In 組成の変化の対応を詳細に解析することで、In 組成と格子歪みの相関関係を解き明かしていく。

参考文献：

- [1] I. Ho et al., *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2701 (1996)
- [2] S. F. Chichibu et al., *Nature Materials* **5**, 810 (2006)
- [3] A. Segmüller and A. E. Blakeslee, *J. Appl. Cryst.* **6**, 19 (1973)