

(様式第4号)

X線トポグラフィー法を用いた
InGaAs/GaAs(001)へテロ界面における格子不整合転位の分布観察
Observation of misfit dislocations at InGaAs/GaAs (001) interface
by X-ray topography

鈴木秀俊¹、佐々木拓生²
Hidetoshi Suzuki¹⁾, Takuo Sasaki²

¹宮崎大学 IR 推進機構、²豊田工業大学
¹Interdisciplinary Research Organization, Univ of Miyazaki,
²Toyota Technological Institute

※長期利用課題は、実施課題名の末尾に期を表す (I)、(II)、(III) を追記すること。

1. 概要

多接合太陽電池用への応用が期待されている格子不整合系 InGaAs/GaAs(001)へテロエピタキシャル膜に関して、単色 X 線トポグラフィー法を用いて格子不整合転位観察を行なった。GaAs 基板と InGaAs エピタキシャル膜による信号を分離し、それぞれの転位成分を評価する事に成功した。

(English)

Lattice mismatched hetero-epitaxial systems have been used to improve multi-junction solar cells. To understand relaxation mechanisms due to lattice mismatch is important to reduce threading dislocation penetrating into solar cell layer from interfaces. In this study, misfit dislocations at InGaAs/GaAs (001) interface have been characterized by monochromatic X-ray topography.

2. 背景と研究目的：

次世代の超高効率多接合太陽電池の有力な候補として、格子不整合系 III-V 族混晶が期待されている。格子不整合材料は基板の格子定数に束縛されないため、自由に III-V 族混晶の組成を決定できる。従って、太陽光スペクトルに適合したバンドギャップの組み合わせを選択でき、無集光下で 40%以上の変換効率が期待されている。格子不整合系の結晶成長において問題となるのは、格子歪みを緩和する為に形成される格子不整合転位に起因する貫通転位である。傾斜組成バッファー層の導入などにより貫通転位密度低減が試みられているが、理想的な値までは減少出来ていない。格子不整合系多接合太陽電池をより高品質化する為には、転位形成による歪み緩和過程を理解し、貫通転位を低減する必要がある。我々は歪み緩和過程の理解を目指して、結晶成長装置と X 線回折装置を複合した装置を用いて結晶成長中のリアルタイム測定を試み、GaAs(001)上の InGaAs を数 nm 成長する事に 2 次元あるいは 3 次元の逆格子図を得る事に成功している[1,2]。逆格子図の詳細な解釈には転位分布のモデル構築が必要であるが、そのためには実空間上での転位分布測定結果との比較が必要である。本研究では、InGaAs/GaAs(001)の転位を実空間上で測定する為、X 線トポグラフィー法を用いる。本研究の特色は、X 線トポグラフィー法を用いて InGaAs/GaAs(001)の転位分布を実空間上で直接観察し、先に得られているリアルタイム X 線逆格子図の結果と比較する事によって、結晶成長全体にわたって転位挙動の追跡が可能となる点にある。

今回は九州シンクロトロン光研究センター-BL09A に設置された単色 X 線トポグラフィー装置を使用し、GaAs 基板上に成膜した膜厚 100~200 nm 程度の InGaAs 薄膜に関して測定を行った。特に、(1)単色 X 線による薄膜からのみのトポグラフィー像が測定可能か、(2)格子不整合転位を観察し実空間上で分布観察可能か、の 2 点を確認する事を目的とした。

3. 実験内容（試料、実験方法の説明）

半絶縁性GaAs(001)基板上に分子線エピタキシー(MBE)法を用いてエピタキシャル成長を行った $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 薄膜を測定試料として用いた。 In 組成(x)は0.1で、 InGaAs 膜厚は120と210 nmの2種類である。また、比較のため結晶成長を行っていないGaAs(001)基板を測定した。

X線トポグラフィー測定を九州シンクロトン光研究センターBL09Aにておこなった。測定装置の配置を図1に模式的に示す。測定手順は以下の通りである。

1. 白色X線によるアライメント調整

- (1) 試料を測定ステージに設置
- (2) 試料に白色X線を照射し、ラウエ斑点をイメージングプレートにより測定
- (3) ラウエ斑点測定結果を元に、試料および検出機を-224回折点位置に調整
- (4) フラットパネル検出器を用いて回折斑点を観察しながら試料位置及び検出器位置を微調整
- (5) 検出器としてX線フィルムを配置し、X線照射により露光、白色トポグラフィー像を取得

2. 単色X線によるトポグラフィー測定

- (1) X線光路中にモノクロメータを導入(図1b)
- (2) 白色トポグラフィー測定により調整した検出器位置にフラットパネル検出器を配置
- (3) モノクロメータ角度調整により試料に照射されるX線の波長を調整
- (4) 基板GaAsおよびエピタキシャル膜 InGaAs のそれぞれが観察されるX線波長を特定
- (5) 検出器としてX線フィルムを配置し、X線照射により露光、単色トポグラフィー像を取得

X線の入射視射角(θ_x)5.7°、入射方位は[-110]、-224の回折角(θ_{x2})は約80°であった。また、 InGaAs -224単色トポグラフィー測定時の波長

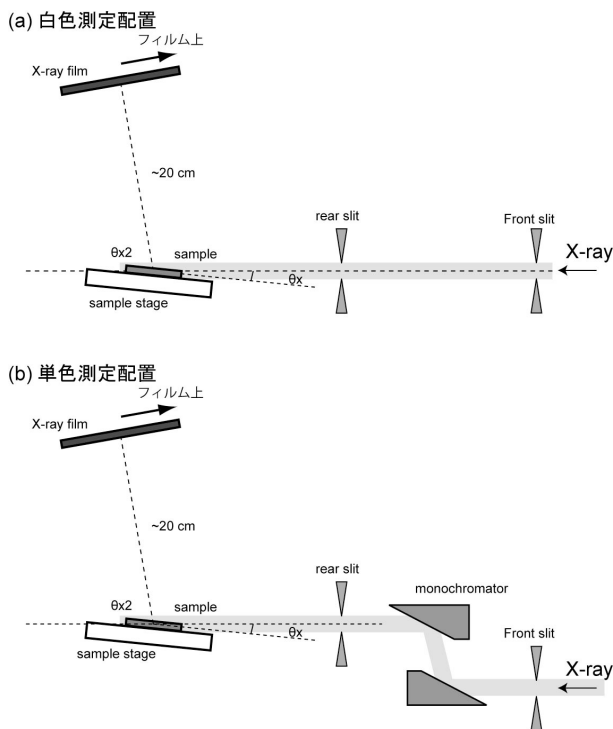


図1 白色(a)および単色(b)トポグラフィー測定の装置および試料配置模式図。

4. 実験結果と考察

InGaAs 膜厚 210 nm 試料の白色および単色 X 線トポグラフィー測定結果を図 2 に示す。白色 X 線トポグラフィー像(図 2a)では、フィルム中央に-224 回折が観察され(黒矢印)、さらに周辺に弱い GaAs 起因の他の回折点を観察した(赤矢印)。本試料では GaAs と InGaAs の格子定数差は 1% 程度のため、フィルム上での位置はほとんど同じとなる。青矢印で示した部分に薄く観察される回折点が InGaAs -224 の一部であり、ほとんどは GaAs -224 と重なっている。したがって、正しい転位分布の情報を得るためには、単色 X 線トポグラフィー測定が必要である。単色 X 線トポグラフィー像(図 2b)では、InGaAs -224 の回折斑点のみとなり、GaAs と InGaAs の信号が分離出来た事を示している。

InGaAs 膜厚 120 および 210 nm 試料の単色 X 線トポグラフィー測定結果の拡大図 3 に示す。いずれの膜厚においても[110]および[-110]に平行な線状のコントラストが観察された。このコントラストは InGaAs/GaAs 界面の格子不整合転位を反映していると考えられる。膜厚 120 nm ではシャープで直線的なコントラストが[110]と[-110]方向の双方で得られている。210 nm では [110]に平行な線状のコントラストが見られるが、120 nm と比較してコントラストははっきりせず、直線性も悪い。膜厚増加に伴い転位密度が増加し、複数の転位が集まって一つの線になっている為だと考えられる。

コントラストが明確であった膜厚 120 nm の試料に関して、[110]と[-110]方向に垂直な転位(それぞれ α および β 転位)の間隔を測定し、転位分布のヒストグラムを作成した(図 4)。 α, β 転位共に転位間距離の最頻値は $1.5 \sim 2.0 \times 10^{-2}$ cm と同じであった。 α 転位間距離は 5.0×10^{-2} cm まで分布しているのに対し、 β 転位間距離は 1×10^{-1} cm まで分布した。これらの転位分布の異方性が 3 次元逆格子回折で観察されたものと考えられる。また、最頻度が同じであるにもかかわらず、転位密度や分布の広がり異なるのは、異方的な転位形成過程を反映していると考えられる。

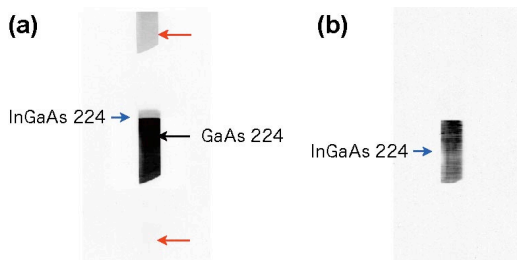


図 2 InGaAs/GaAs(001)から得た、白色(a)および単色(b)(波長 0.150 nm)X 線トポグラフィー像。

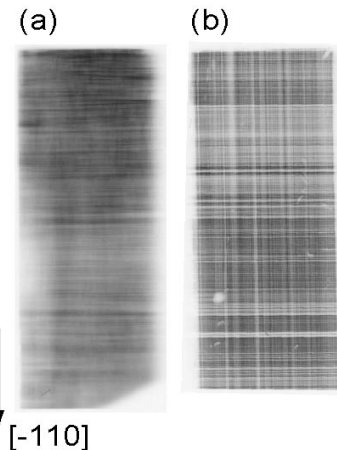


図 3 $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ から得た単色(波長 0.150 nm)X 線トポグラフィー像。膜厚(a) 120 nm および(b) 210 nm。

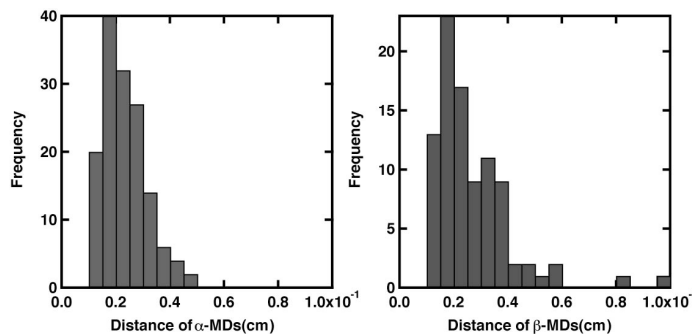


図 4 InGaAs/GaAs(001)薄膜(膜厚 120 nm)の X 線トポグラフィー像から得た α および β 転位の転位間距離ヒストグラム。

5. 今後の課題：

今回の測定により、単色 X 線を使用する事により InGaAs と GaAs からの X 線トポグラフィー像を分離し、InGaAs 薄膜のみの転位分布を観察する事に成功した。また、コントラストにはムラがあり、転位分布を反映している様子が観察出来た。特に膜厚 120 nm では、転位密度および転位分布の異方性が確認された。しかし、測定時間の関係から十分な枚数の試料測定が出来なかった。また、転位密度が大きい試料であった為、それぞれの転位を分離する事が困難であった。今後はより膜厚の薄い(転位密度の小さい)試料の測定を行う必要がある。

6. 論文発表状況・特許状況

国際会議発表予定

1. “Distribution of misfit dislocations at the interface of InGaAs/GaAs(001) observed by monochromatic X-ray topography”, 14th international conference on defects - recognition, imaging and physics in semiconductor (2011, Sep. Miyazaki)
H. Suzuki, et al.

国内会議発表予定

1. 「格子不整合太陽電池用材料 InGaAs/GaAs(001)における転位分布の単色 X 線トポグラフィー観察」学振 175 委員会「第 7 回次世代の太陽光発電シンポジウム」(2011 年 6 月、岐阜)
鈴木秀俊、他

7. 参考文献

- [1] T. Sasaki, et al., *Appl. Phys. Express* **2** (2009) 085501.
- [2] H. Suzuki, et al., *Appl. Phys. Lett.* **97** (2010) 041906.

8. キーワード (試料及び実験方法を特定する用語を 2~3)

- ・ X 線トポグラフィー
- ・ ヘテロエピタキシー
- ・ InGaAs/GaAs