

放射光X線による 半導体成膜過程のin-situ測定

量子科学技術研究開発機構
放射光科学研究センター 上席研究員
佐々木 拓生

自己紹介

佐々木 拓生 (SASAKI Takuo)

【現在の所属】

- 量子科学技術研究開発機構 (QST)
- 播磨地区 (SPring-8) 所属
- 兵庫県立大学大学院客員教授を兼務

【学生時代@豊田工大】

- 宇宙用太陽電池材料の結晶成長と欠陥評価

【現在の専門】

- 放射光X線構造解析
- 半導体成膜のin situ観察



大型放射光施設
SPring-8
兵庫県佐用町

QST播磨地区の研究開発とQST専用ビームライン

方針

独自性の高い先端計測法を開発
→ 量子マテリアル、環境・エネルギー材料研究

コア技術

高輝度硬X線を活用した非破壊オペランド
ナノ構造観察・精密磁性-電子状態分析

BL11XU

先端的放射光利用技術開発が主軸

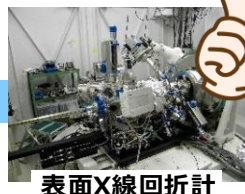
世界一の深さ分
解能の磁性探査



機能発現に関わる電子
を選んで観測、国内唯一



半導体成膜過程の
in situ 測定



ナノ結晶内部構造の高精度
非破壊可視化



局所原子配列構造の高速
計測を国内初導入



- 磁性・スピントロニクス、量子物性、量子センサー等の量子マテリアル研究に重点

BL14B1

物質研究・材料開発が主軸

新規金属水素化
物を次々と創成



QST他拠点
ユーザー多数



放射線治療研究



- 水素貯蔵材料等のエネルギー・環境材料開発に重点

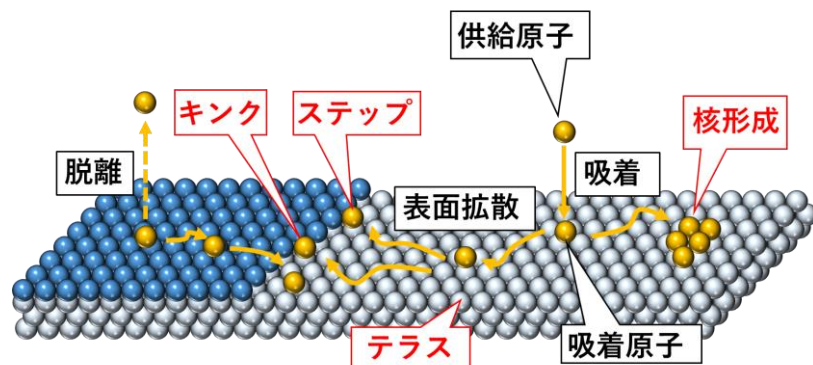
半導体成膜過程in situ測定の意味

「プロセスの見える化」と「動的な制御」

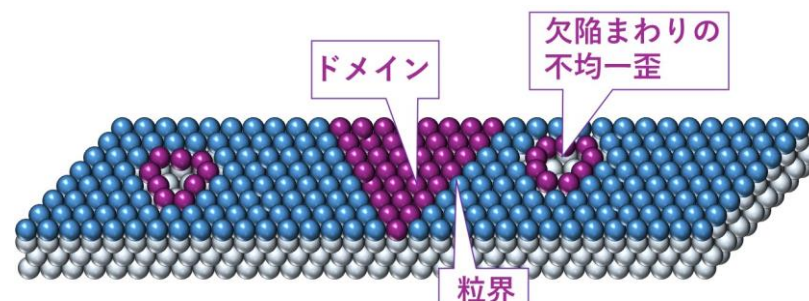


具体的には・・・

- ・ 結晶成長メカニズムの理解
- ・ 新しい結晶成長モードの発見
- ・ 最適な成長条件の探索
- ・ 結晶の品質向上
- ・ 産業応用へのインパクト



結晶成長中の表面反応



結晶成長中に発生する格子の乱れ

従来の分析技術

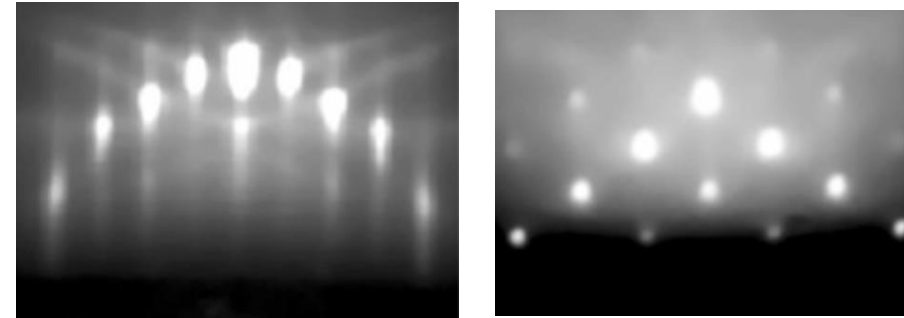
反射高速電子線回折（RHEED）

— Strengths —
強み

高速モニタリングによるその場測定が可能

— Weaknesses —
弱み

結晶ひずみや欠陥密度の定量評価



反射高速電子線回折パターン

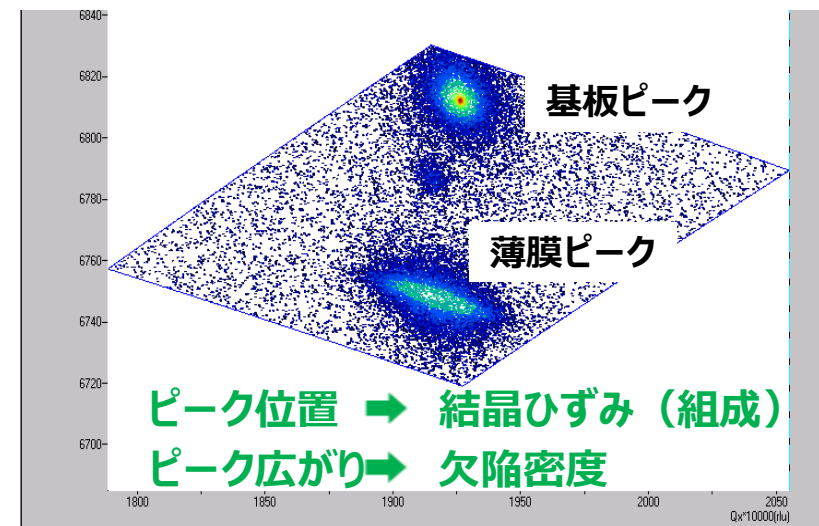
X線回折（XRD）

— Strengths —
強み

結晶ひずみや欠陥密度の定量評価

— Weaknesses —
弱み

長時間測定のためその場測定は困難



X線回折の逆格子マッピング

課題の克服



X線回折は、結晶の歪みや組成の定量化に優れている



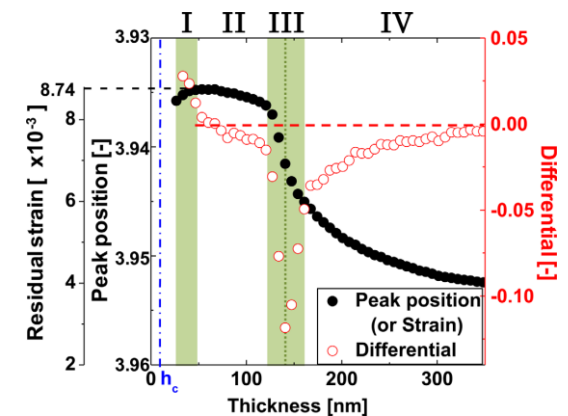
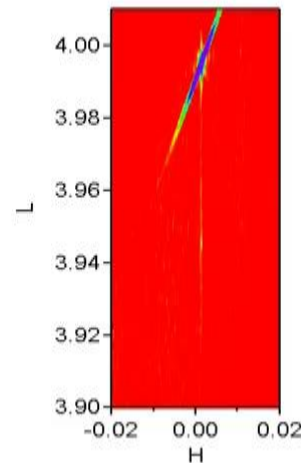
ラボのX線源では、RHEEDのような高速モニタリングは困難

➔ 放射光X線源の利用（SPring-8はラボのX線の“数億～数十億倍”の輝度）

➔ XRDの長所を生かした **in situ** 測定が可能



大型放射光施設 SPring-8

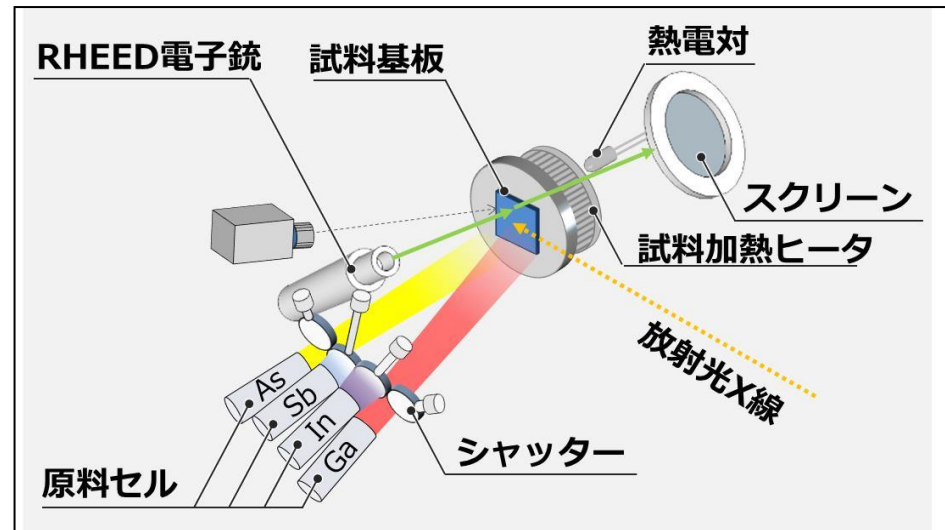
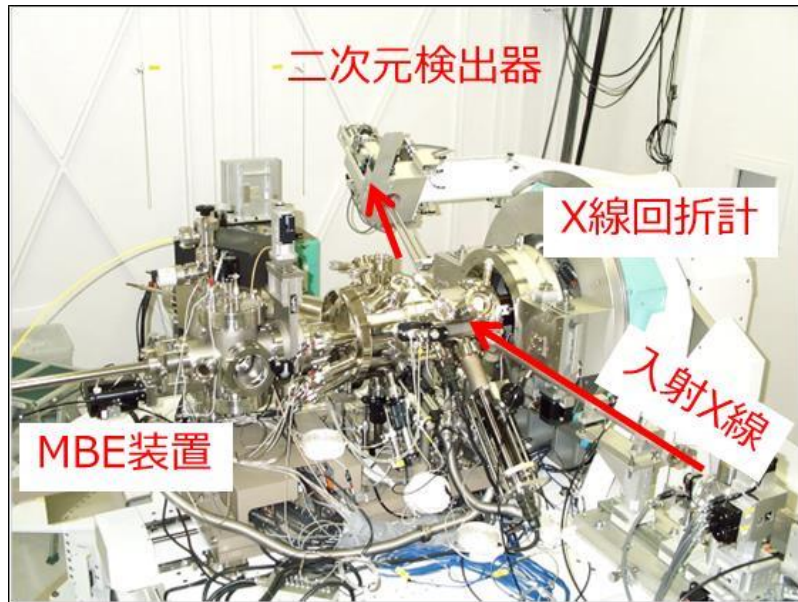


放射光その場X線逆格子マッピング（InGaAs/GaAs）

T. Sasaki, et al., Appl. Phys. Express 2, 085511 (2009).

実験装置

SPring-8・QST専用ビームラインBL11XU



分子線エピタキシー（MBE）装置-表面X線回折計システム

● 窒化ガリウム系MBE装置

- 原料：Ga、In、Al、Nプラズマ、Si、Mg
- 1200℃まで加熱可能

● X線測定

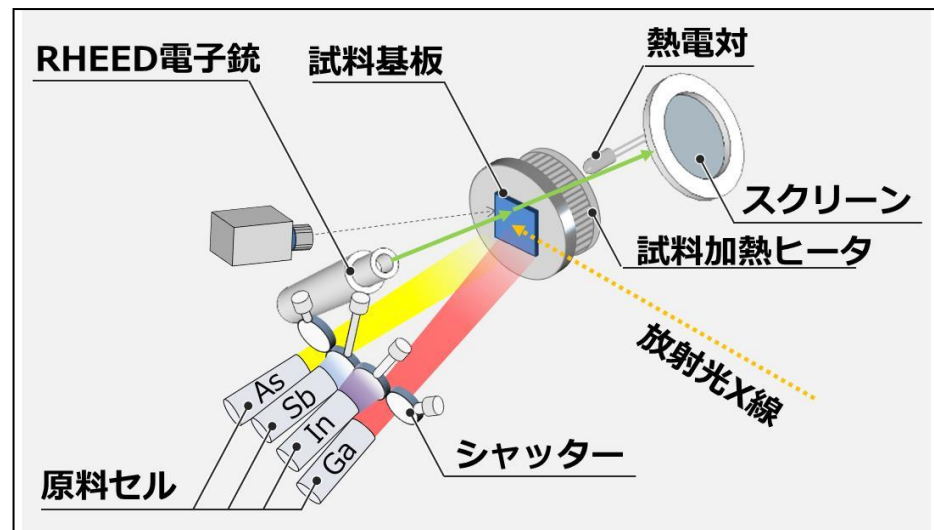
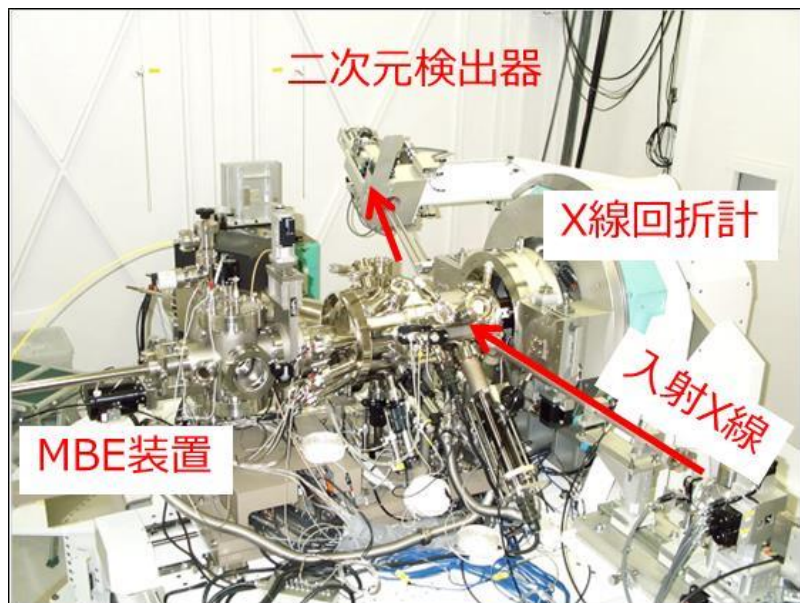
- X線エネルギー：6-70keV
- ビームサイズ：400ミクロンから1ミクロンまで集光可

● 付属するライブ観察手法

- RHEED
- 蛍光X線測定による組成分析

実験装置

SPring-8・QST専用ビームラインBL11XU

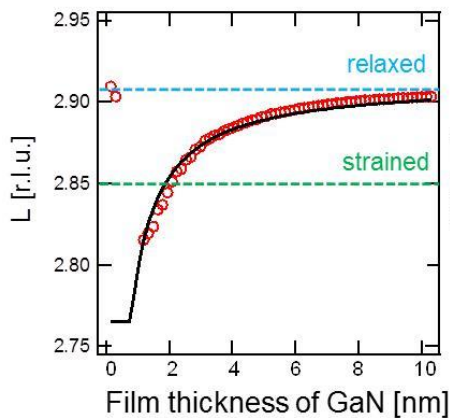
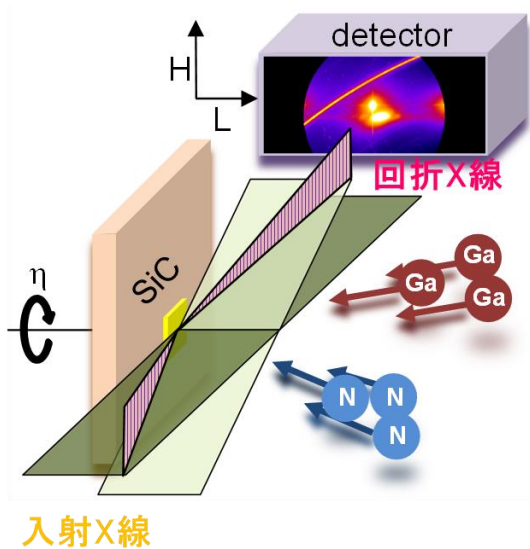


分子線エピタキシー（MBE）装置-表面X線回折計システム

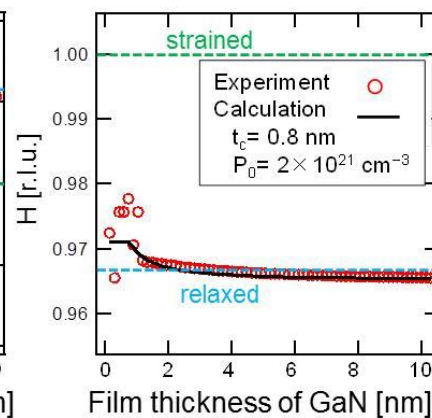
世界の放射光その場X線回折の特徴

日本（SPring-8）	GaAs系・GaN系MBE	結晶成長
ドイツ（BESSY）	GaAs系MBE	表面構造
米国（APS）	GaN系MOCVD	コヒーレント回折

GaN薄膜成長中のひずみ観察

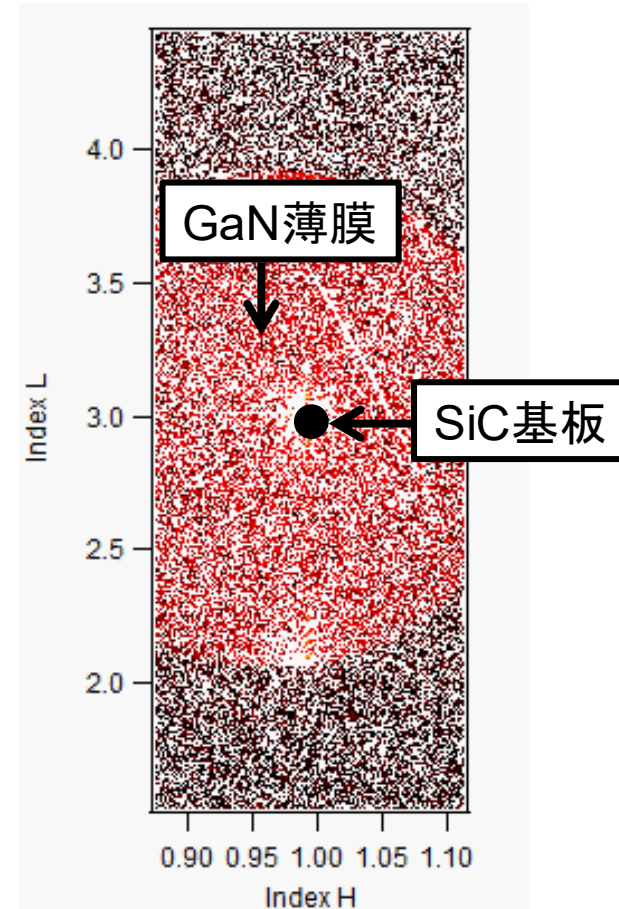


c軸方向



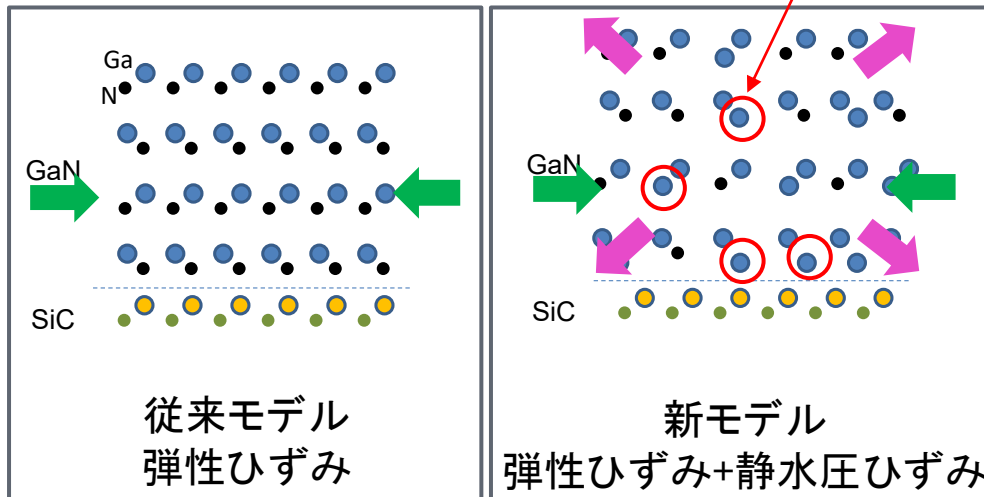
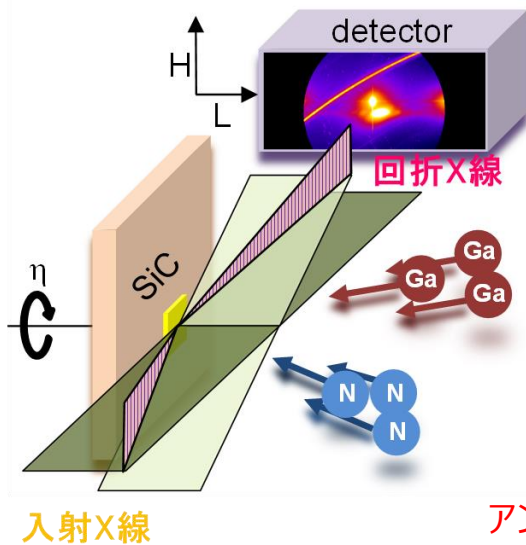
a軸方向

臨界膜厚
0.8 nm
初期点欠陥密度
 $2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$

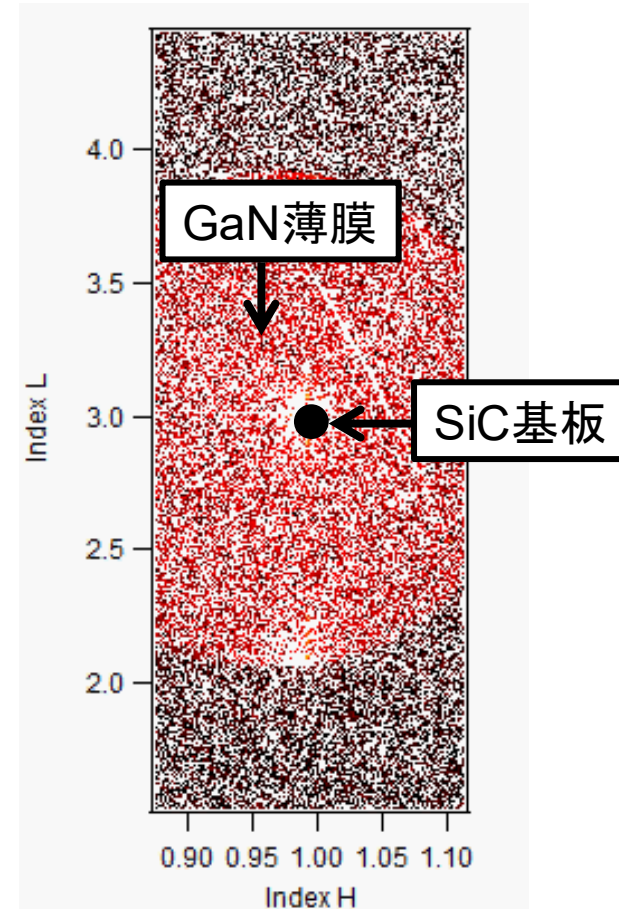


薄膜成長中の逆格子マッピング

GaN薄膜成長中のひずみ観察

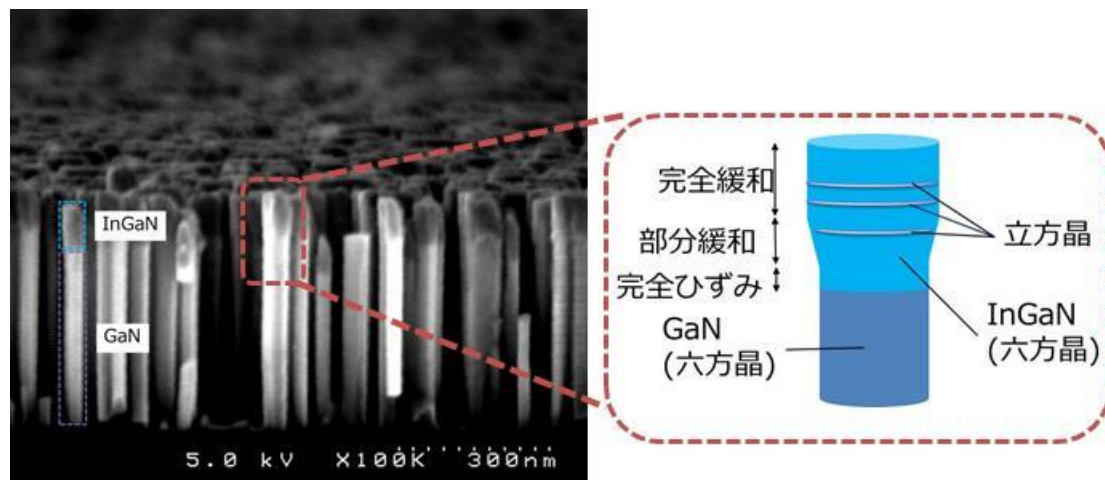
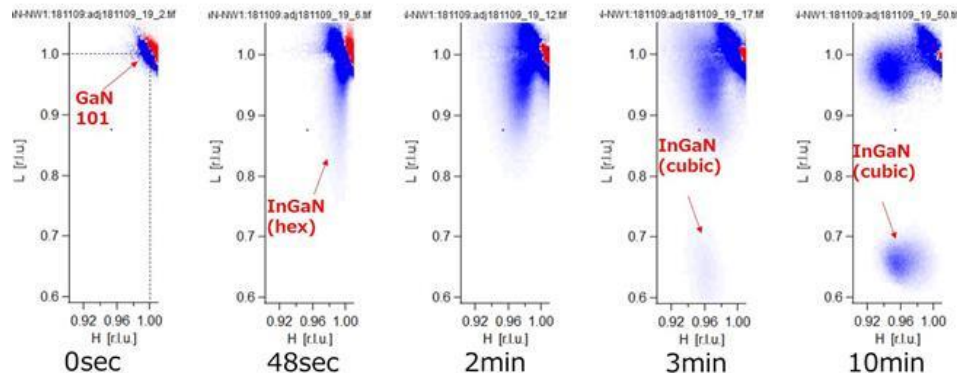
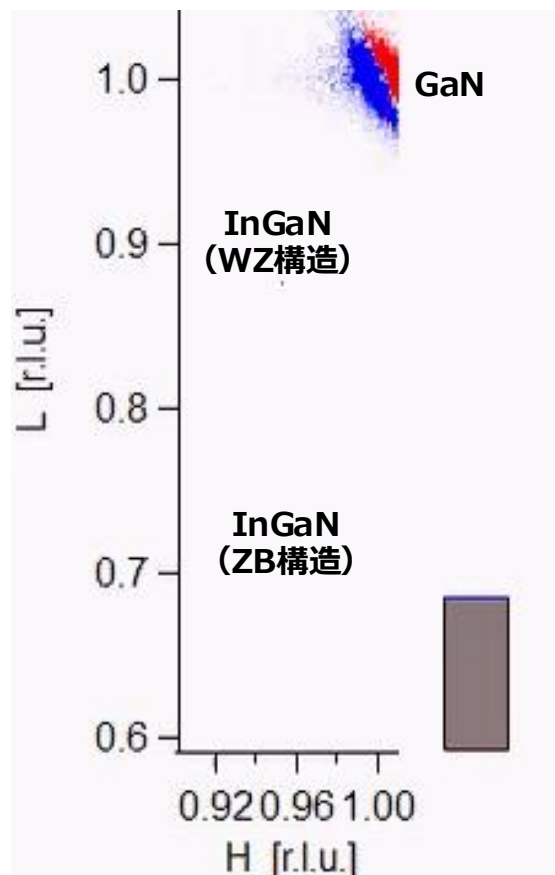


新しい成長メカニズムの発見



薄膜成長中の逆格子マッピング

GaNナノワイヤ成長中のその場観察



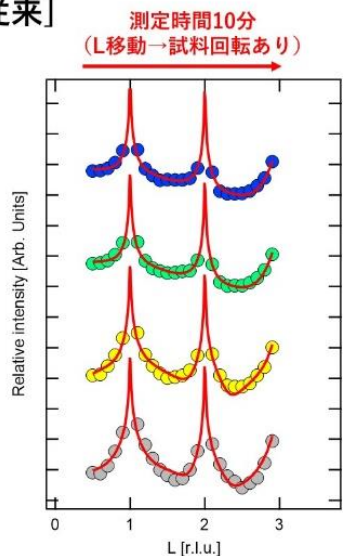
InGaNナノワイヤ成長中の
逆格子マッピング

- 立方晶が初めて出現する時期はひずみと相関あり
- 構造多形を抑制できる**最適な成長条件の探索**に有用

GaN成長表面のその場観察

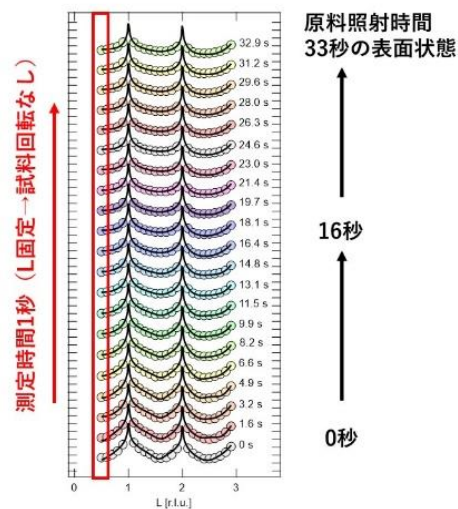
バルク敏感（ブラッグ散乱）から表面敏感な散乱（CTR散乱）のその場測定へ

[従来]

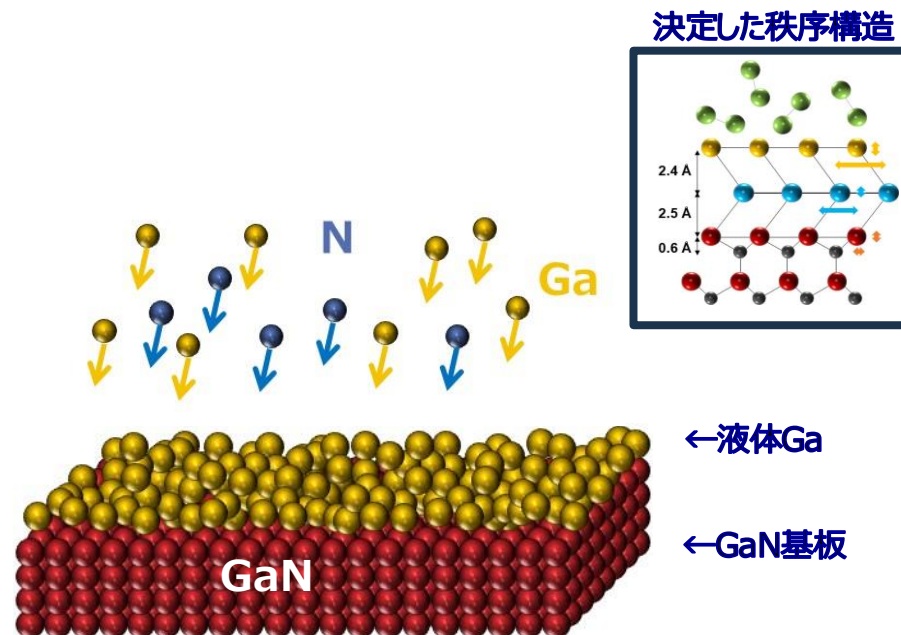


CTR散乱強度の面指数L依存性

[今回]



CTR散乱強度の面指数L依存性



測定点を固定して原料照射を**30回繰り返し**
(1測定ごとに表面状態はリセット)

佐々木拓生他 特願2022-041838

GaN成長表面の秩序構造を原子レベルで決定

T. Sasaki et al., Appl. Phys. Express 17, 025502 (2024).

新材料に挑戦



究極物性と成長科学のギャップ

Si、SiC、GaN

成長機構の理解が進み量産技術が進展

結晶成長の理解度



量産フェーズ

ダイヤモンド

1980年代にCVD達成以降、成長機構の原子論的理解が未成熟

結晶成長の理解度



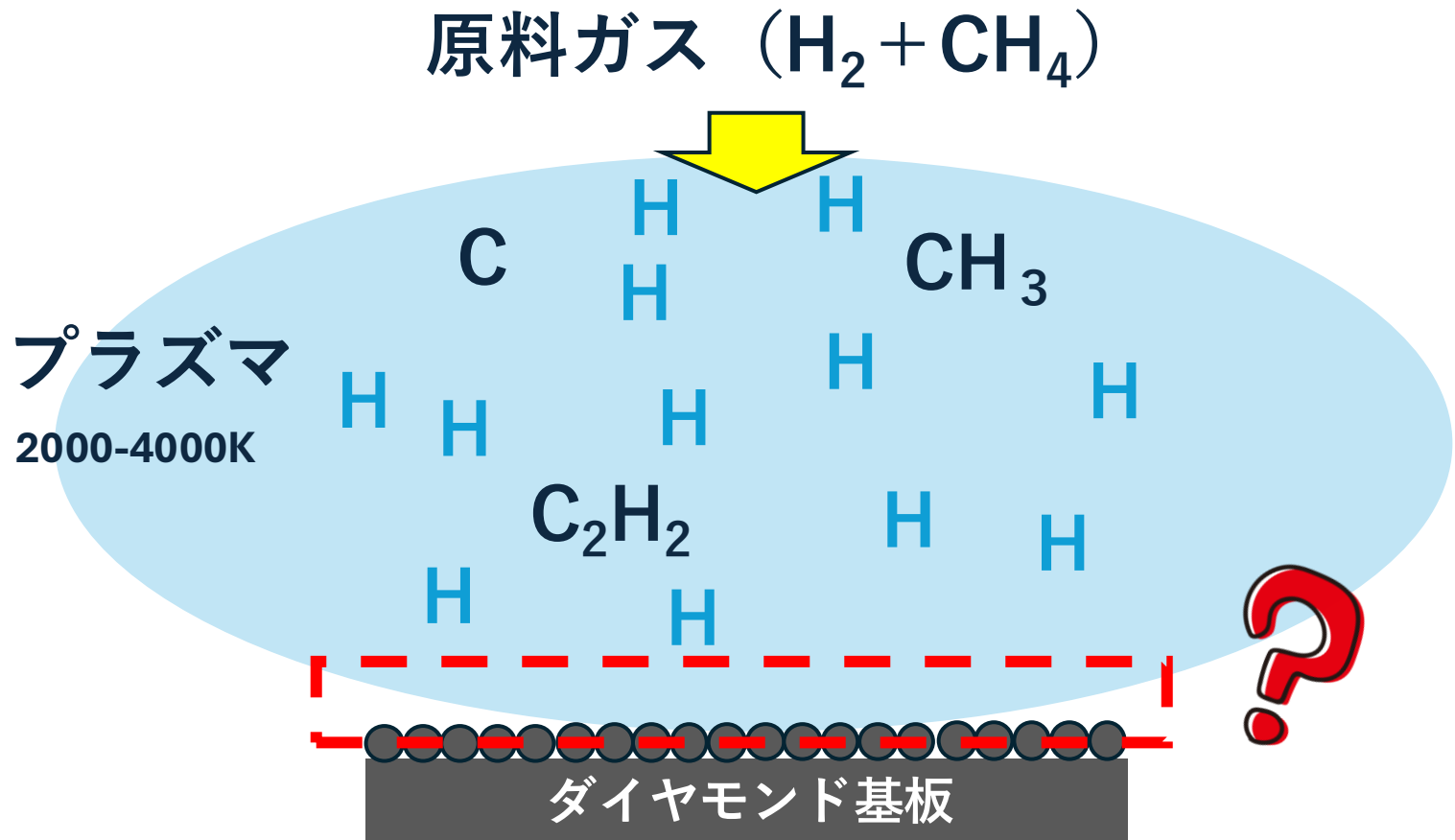
量産フェーズ



研究フェーズ

- 基板サイズ：2インチ止まり
- 転位密度： $10^4 - 10^7 \text{cm}^{-2}$

究極物性と成長科学のギャップ°



ギャップを埋めるには...

成長表面の可視化による因果関係の特定（設計パラメータの最適化）

CVDダイヤモンド成膜中の in situ 測定

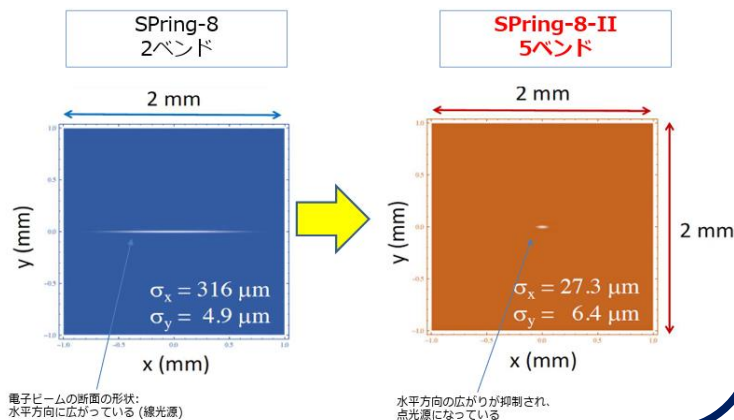
- MBE化合物からCVDダイヤモンドに展開
- CVDダイヤモンドの成長過程の謎を放射光 *in situ* X線回折で解き明かす
- 放射光ビームライン搭載型プラズマCVD装置を開発（今年度導入予定）
- CVDダイヤモンドの成長表面を原子スケールで *in situ* 構造解析
- 放射光 × AI による結晶成長の *in situ* 制御の可能性を検討中

SPring-8-IIへの期待

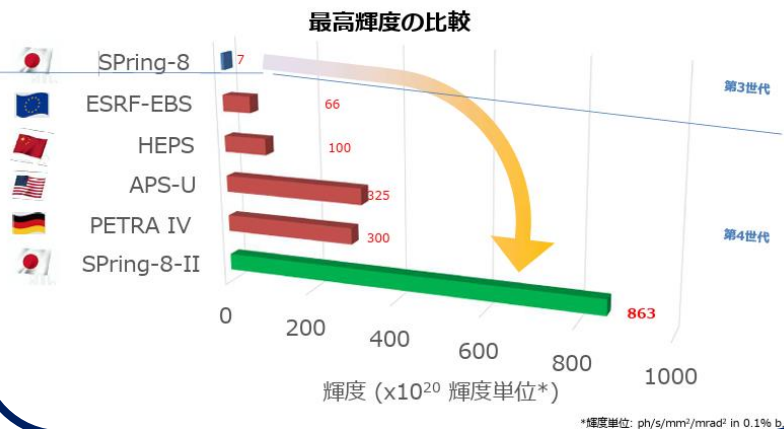
今後のスケジュール



電子ビームの極小化



従来の100倍以上の最高輝度



まとめ

- 放射光X線を利用した半導体成膜研究として、窒化物半導体薄膜、ナノワイヤ、表面のin situ測定についてご紹介
- 新たな展開として、酸化ガリウムやダイヤモンド等の新材料への挑戦と、従来比100倍のSPring-8-IIへの期待

ご質問等は佐々木までお気軽にご連絡ください。

sasaki.takuo@qst.go.jp