

## 超平坦結晶上の酸化物ナノ構造の 格子歪のX線回折による測定

<sup>a</sup> 坂田修身、<sup>b</sup> 松田晃史、<sup>b</sup> 佐藤周平、<sup>b</sup> 秋葉周作、<sup>b</sup> 劉 進、<sup>b</sup> 佐々木 敦、<sup>b</sup> 吉本 護

<sup>a</sup> 高輝度光科学研究センター、<sup>b</sup> 東京工業大学・応用セラミックス研究所

**背景：**人工の酸化アルミニウム単結晶（サファイア）基板は、Si系電子デバイスにおける絶縁性基板としてだけでなく、低誘電率を利用した高周波用基板、また最近では窒化ガリウムなどの青色発光素子のエピタキシャル成長用基板として幅広く利用されており、光エレクトロニクス分野で極めて重要な酸化物基板となっている。我々は大気中や水中でも安定なサファイア基板に着目し、大気中の熱処理によって表面を原子レベルで平坦化する事に成功している[1]。一方、この超平坦サファイア基板上に、多成分系酸化物薄膜の原子層制御に適したレーザーMBE（分子線エピタキシー）法を用いて、種々の酸化物ナノ構造の構築に関して報告してきた[2,3]。そこで、本研究では、岩塩型構造を有し、反強磁性体のp型透明半導体として触媒や電極などとして有用である酸化ニッケルNiO[4]において、ナノスケールの厚みを持つナノ超薄膜の精密な結晶構造解析を報告する。超薄膜NiOは最近では有機物発光デバイスにおけるホール注入層としての応用研究も盛んに行われてるようになった[5]。これまで我々は超平坦サファイア基板上の直線状の原子ステップ（高さ：約0.2nm）での優先的な結晶成長を利用してNiOナノワイヤー（ナノ細線）の作製に成功しているが、これらナノ構造体の結晶構造に関する知見はこれまで得られていなかった。原子スケールに相当するような非常に小さな、1次元（ナノワイヤー）および2次元原子列（量子薄膜）によるX線回折現象に関する研究は、基礎科学上のみならず、次世代の超小型電子デバイス応用の観点からも極めて重要なものと考えられる。

**目的：**超平坦サファイア単結晶基板上にエピタキシャル成長させたNiOナノ超薄膜のナノ・スケール構造を特徴づけるいくつかの構造因子（結晶ドメイン長、および、基板結晶とのエピタキシー性、薄膜結晶のドメインの3次元形状など）が、超薄膜のナノスケール厚さの違いに

よりどのように変化するかを調べる。また、鏡面研磨サファイア基板（表面ステップがランダム分布している）上に成長したNiO薄膜との構造に差があるのかなどを調べられる測定を試み、基板表面のステップが薄膜成長に与える影響を明らかにするための情報を得ることを目的とする。

**測定：**図1に示すような実験ハッチ1に設置されている多軸回折計とX線散乱強度計測システムを用いた。接着剤など一切用いず、その裏面から真空排気して試料ホルダーに試料をマウントした。ホルダーはアクリルを材質に選択し、バックグランド散乱を小さくした。超平坦サファイア基板は、テラス面が結晶学的な(0001)面、ステップ面が(1 -1 0 0)面と一致するようにミスカットした後、大気中高温で熱処理して作製された。図2に超平坦サファイア基板の表面AFM像を示す。

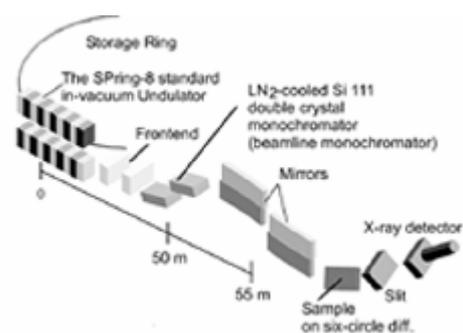


図1 BL13XUでの多軸回折計とX線散乱強度計測システム

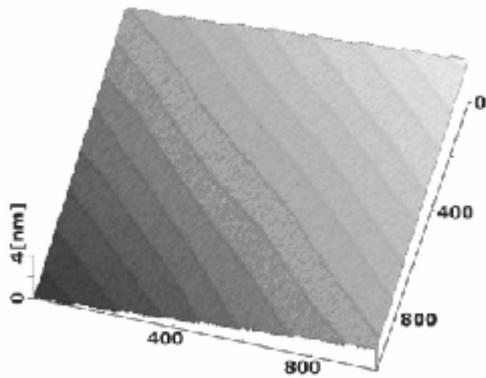


図2 超平坦サファイア基板の表面 AFM 像

**結果および考察：** 基板表面法線方向に対しての測定スキャンから NiO 膜厚、薄膜の基板結晶との格子整合（歪）の程度および表面法線方向の薄膜のドメインサイズ、また表面内回転スキャンから薄膜のエピタキシー性をそれぞれ評価した。さらに NiO(1-11)逆格子点に関する 3 次元スキャンから NiO 超薄膜結晶のドメインの 3 次元サイズ(面内: in-plane および成長方向: out-of-plane)が得られた。

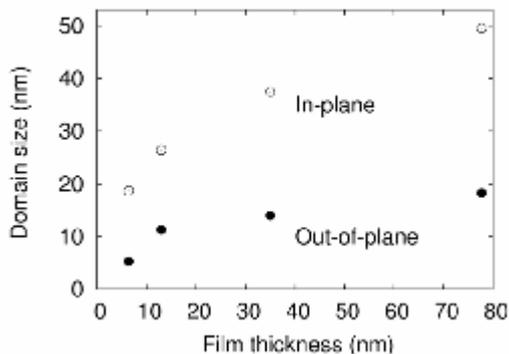


図3 超薄膜結晶ドメインサイズの膜厚依存性

サファイア基板の(1 1 -2 3)反射と NiO 薄膜の(1 -1 1)の反射が試料表面法線周りの同じアジマス角で観察されたことから、結晶方位関係は、サファイア基板の[1 1 -2 0] // NiO[1 -2 1]である。図3に NiO 超薄膜の2方向の結晶ドメインサイズの膜厚依存性を示す。2種の方向の結晶ドメインサイズは、成長初期には膜厚と共にほぼ比例して増加するが、約 10nm から 15nm の膜厚近傍で面内ドメインサイズはほぼ一定値になる。これは超平坦サファイア基板の原子テラス面内での各コヒーレント結晶ドメインの成長に伴う重なり合いが関連していると考えられる。また図4に示した結晶モザイクネスの膜厚依存性も図3と同様な変化をしている。

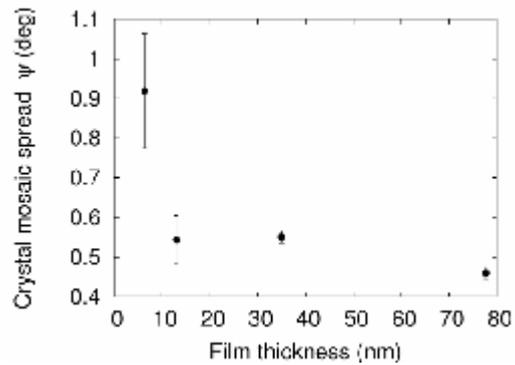


図4 結晶モザイクネスの膜厚依存性

**今後の課題：** 超平坦基板上でのナノ結晶の核形成機構をさらに検討し、ステップに沿った超巨大シングルドメインナノワイヤーの形状異方性と結晶方位関係の議論に発展させる。

#### 参考文献：

- [1] M.Yoshimoto et al, Appl. Phys. Lett. **67** (1995) 2615.
- [2] M. Takakura et al, MRS Proc. , **648** (2001) P6.5.
- [3] 吉本 護ほか, 日本応用磁気学会誌、25巻、9号(2001) pp.1.
- [4] H.Sato et al, Thin Solid Films, **236** (1993) 27.
- [5] I-Min Chan et al, Appl. Phys. Lett. **81** (2002) 1899.
- [6] G. H. Du et al, Appl. Phys. Lett. **79** (2001) 3702.

#### 発表論文など：

- [7] 松田晃史、秋葉周作、佐藤周平、吉本護、坂田修身、Min-Su Yi:「超平坦基板上 NiO エピタキシャル薄膜の高輝度放射光を用いたナノスケール構造解析」、応用物理学会2003年秋春季年会(神奈川県大学、3月)(口頭発表)。
- [8] O. Sakata, Min-Su Yi, A. Matsuda, J. Liu, S. Sato, S. Akiba, A. Sasaki, and M. Yoshimoto, "Structural analysis of NiO ultra-thin films epitaxially grown on ultra-smooth sapphire substrates by synchrotron x-ray diffraction measurements", Appl. Surf. Sci. (in press) (2003).