

## In 蛍光 X 線を用いた GaInN 量子井戸の結晶評価 IV Characterization of GaInN multi-quantum wells using the fluorescent x-ray of indium IV

宮嶋孝夫<sup>a</sup>、工藤喜弘<sup>a</sup>、上村重明<sup>a</sup>、寺田靖子<sup>b</sup>

Takao Miyajima<sup>a</sup>, Yoshihiro Kudo<sup>a</sup>, Shigeaki Uemura<sup>a</sup>, and Yasuko Terada<sup>b</sup>

<sup>a</sup> ソニー（株）マテリアル研究所、<sup>b</sup> 高輝度光科学研究センター

<sup>a</sup> Material Laboratories, Sony Corporation, <sup>b</sup> Japan Synchrotron Research Institute

X 線マイクロビームを照射することで得られる In 蛍光 X 線の 2 次元マッピングを行うことで、アニール処理した GaInN 量子井戸平面内の In 組成分布を評価した。今回は、測定領域を特定するために、ストライプ形状の Pd 金属パターンをマーカーとして導入した。その結果、特定した局所領域の測定が可能になり、In 組成分布が、フォトルミネッセンス測定や蛍光顕微鏡観察で得られる発光強度分布に一対一対応することが明瞭になった。

The indium compositional distributions in Ga<sub>0.8</sub>In<sub>0.2</sub>N/GaN quantum wells after thermal annealing were measured by mapping the indium fluorescent x-ray which was generated by an x-ray micro beam. For specifying the measurement position, Pd-metal stripe was formed on the sample. From the measurements, we found that the indium compositional distributions completely correspond to the luminescence intensity distributions which were observed by photoluminescence or fluorescent microscopy.

### 背景と目的

近年、GaN 系半導体を用いることで、青色半導体レーザや青色及び緑色 LED が実用化され、高密度光記録や大画面表示素子のキーデバイスとして利用されている。これらの GaN 系光デバイスは、他の半導体光デバイスと比較すると、 $10^{10}$ - $10^6$  cm<sup>-2</sup> の貫通転位が存在するにもかかわらず、高い量子効率を得られるという特徴を有している。この現象には、デバイス発光層に用いられている GaInN 量子井戸における空間的 In 組成揺らぎが強く関わっていると考えられが、従来の実験技術では、量子井戸における空間的な In 組

成揺らぎを直接観測することは、極めて困難であった。そこで、大型放射光施設である SPring-8 の高輝度 X 線マイクロビームを用いて、マイクロメータ領域の In 原子からの蛍光 X 線を測定することで、GaInN 量子井戸面内における In 組成揺らぎを求める実験を試みている [1-3]。この実験には、In 原子の K 殻を励起できるような 27keV 以上の高エネルギーを有する高輝度の X 線源が必要であり、SPring-8 を用いて初めて行える実験である。

前回の実験 [3] では、アニール処理により顕在化した GaInN 量子井戸面内の In 組成分布を観察することに成功した。今回は、さら

にストライプ形状のPd金属マーカを導入し、測定領域を特定することを試みた。これにより、同一場所を他の評価手段で測定した実験結果を一对一对応させることで、目的となる半導体物性の考察を更に深めることが可能になる。

本研究の目的は、ナノメータ領域の空間的In組成揺らぎを詳しく解析し、貫通転位との関係を求めることで、GaN系発光デバイスの更なる高効率化を促進しようというものである。GaN系光デバイスは、可視域波長領域を広くカバーするとともに、白熱電球や蛍光灯を凌駕する有力な固体照明デバイスとして、その有用性が認められ、国際的な開発競争が進められており、ナノテクノロジー分野における研究として大変重要である。

### 実験方法

X線マイクロビームを使った蛍光X線の2次元マッピング測定は、SPring-8のビームラインであるBL37XUにおいて行った。測定試料としては、有機金属気相成長(MOCVD)法で成長したc面サファイア基板上の $\text{Ga}_{0.8}\text{In}_{0.2}\text{N}/\text{GaN}$ 量子井戸を用いた。井戸数は4。結晶成長後、窒素雰囲気中で $1000^\circ\text{C}$ のアニール処理を施した後、サファイア基板を $60\mu\text{m}$ 程度まで薄膜化した。(サファイア基板の薄膜化は、測定時のノイズ源となる非弾性散乱X線の発生を抑制するものであり、その効果は、以前の実験で確認されている[2])。今回は、さらに、測定場所を特定するために、フォトリソ工程を用いて、試料表面に幅 $2\mu\text{m}$ のストライプ状Pd金属パターンを形成し、測定時のマーカーとした。

Fig. 1に実験のレイアウトを示した。

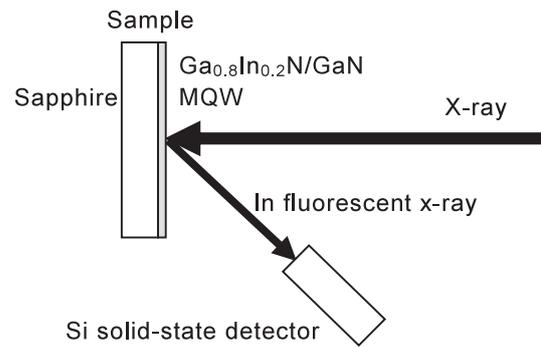


Fig. 1 Schematic diagram of sample assembly

SPring-8の蓄積リングより得られた白色X線を、Si(111)単結晶で $E=37\text{keV}$ のエネルギーに単色化し、Kirkpatrick-Baez型ミラーにより、 $1.3\mu\text{m} \times 3.8\mu\text{m}$ (鉛直×水平)にマイクロビーム化した。このX線マイクロビームを、試料に入射角 $10^\circ$ で照射し、PdまたはIn原子のK殻を励起して生成される蛍光X線をSi半導体検出器で測定した。さらに、測定試料をステップモータにより動かすことにより、蛍光X線の2次元分布を測定した。測定は、すべて室温で行われた。

### 実験結果と考察

Fig. 2(a)に、 $50\mu\text{m} \times 60\mu\text{m}$ の領域を $5\mu\text{m}$ ステップで測定することによって得られたPd蛍光X線量の2次元分布を示した。入射X線が照射されている付近のPd金属パターンは、あらかじめ光学顕微鏡で確認している。この光学顕微鏡像と、Fig. 2(a)を重ね合わせることで、入射X線の照射位置をマイクロメータオーダーで特定することが可能になった。

Fig. 2(a)で示した同一領域の規格化されたIn蛍光X線量の2次元分布をFig. 2(b)に示した。ここで、規格化されたIn蛍光X線量とは、Si半導体検出器より測定されたInの蛍光X線より、主に非弾性散乱X線により

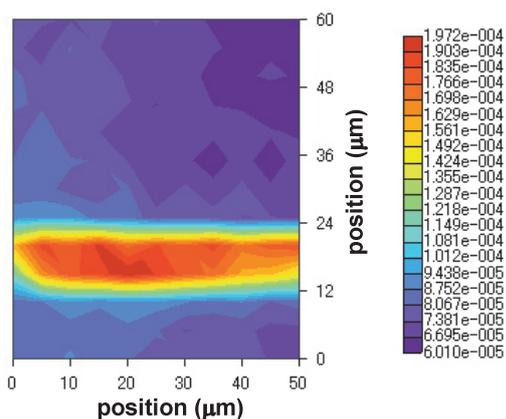


Fig. 2(a) The normalized intensity distribution of the palladium fluorescent x-ray in a 50µm x 60 µm area

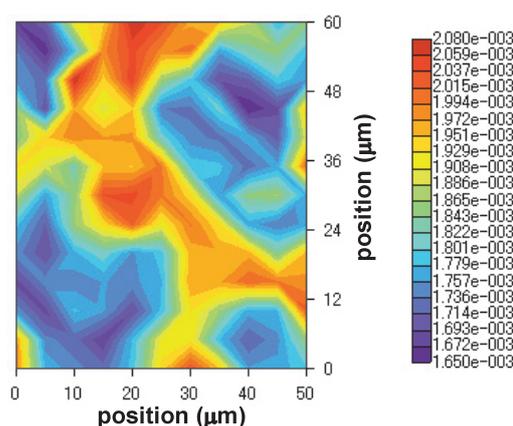


Fig. 2(b) The normalized intensity distribution of the indium fluorescent x-ray in a 50µm x 60 µm area

発生したバックグラウンド信号量を差し引き、入射 X 線量により規格化したものである。

Fig. 2(b) は、アニール処理をすることにより、 $\text{Ga}_{0.8}\text{In}_{0.2}\text{N}/\text{GaN}$  量子井戸中に、In 組成が変動した島状領域が現れることを明瞭に示している。典型的な島状領域の大きさは、直径 20µm 程度であり、その内部の In 組成が、外部の In 組成に対して、15% 程度異なっていた。さらに、Fig. 2(b) で示したものと同一領域を、フォトルミネッセンス法及び蛍光顕微鏡で測定したところ、得られた発光強度分布が、Fig. 2(b) で示された In 組成分布と、ほぼ一致することが分かった。

## 結論

X 線マイクロビームを照射することで得られる In 蛍光 X 線の 2 次元マッピングを行うことで、1000℃ のアニール処理をした  $\text{Ga}_{0.8}\text{In}_{0.2}\text{N}/\text{GaN}$  量子井戸面内の In 組成分布を求めた。ここでは、Pd 金属マーカを使用することで、測定領域（入射 X 線照射位置）をマイクロメータオーダーで特定できるようにした。その結果、In 組成分布が、フォトルミネッセンス測定や蛍光顕微鏡観察で得られる発光強度分布に良く対応していることが明

瞭に示された。

## 今後の課題

これまでの実験では、 $\text{Ga}_{0.8}\text{In}_{0.2}\text{N}/\text{GaN}$  量子井戸の発光効率が、1000℃ のアニール処理をすることにより低下し、この発光効率の低下に In 組成分布が関与していることは明らかになった。今後は、この実験結果と他の評価手段により得られた実験データを比較検討することにより、その物理メカニズムを究明する。これらの実験及び考察は、まだまだ不明なところが多い GaN 系発光デバイスの劣化メカニズムの解明と発光効率の向上に大きく寄与できるものと考えられる。

## 参考文献

- [1] T. Miyajima, Y. Kudo, W. Karino, Y. Terada, A. Ohmae and N. Fuutagawa: SPring-8 User Experiment Report No.15 (2005A), 165.
- [2] T. Miyajima, Y. Kudo, S. Uemura, Y. Terada: SPring-8 User Experiment Report, 2005B0341.
- [3] T. Miyajima, Y. Kudo, S. Uemura, Y. Terada: SPring-8 User Experiment Report, 2006A1643.

## 論文発表状況・特許状況

- 1) T. Miyajima, Y. Kudo, K. -Y. Liu, T. Uruga, T.Asatsuma, T. Hono and T. Kobayashi: phys. stat. sol. (b) **228** (2001) 45.

## キーワード

・ 蛍光 X 線

物質を X 線で照射したときに原子の内殻軌道の電子を励起放出し、この空準位に高い準位の電子が移るときに放出される特性 X 線のこと。