

全反射高速陽電子回折による β 酸化ガリウムの表面原子構造解析 Surface atomic structure analysis of β -gallium oxide by total-reflection high-energy positron diffraction

花田 貴¹, 望月 出海², 吉川 彰¹¹ 東北大学 金属材料研究所

〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

² 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 低速陽電子実験施設

〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

Takashi HANADA^{1,*}, Izumi MOCHIZUKI², and Akira YOSHIKAWA¹¹Institute for Materials Research, Tohoku University,

2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan

² The Slow Positron Facility, Institute of Materials Structure Science,
High Energy Accelerator Research Organization (KEK),
1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

1 はじめに

酸化ガリウム Ga_2O_3 はバンドギャップが 4.5eV であり、従来主流であった Si (1.1eV) に替わる材料として注目されているワイドギャップ半導体の GaN (3.4eV) や SiC (3.3eV) よりさらに大きいためウルトラワイドギャップ半導体と呼ばれ、高耐圧、低損失、小型軽量などの優れた特性を持つパワーデバイスの材料として期待されている[1]。 Ga_2O_3 は融液成長が可能のため、GaN や SiC より容易に安価な大型結晶が得られている。さらに高価なイリジウムルツボを用いず、 Ga_2O_3 原料の周辺部は低温のまま中心部だけ熔融させるスカルメルト法で大口径のバルク結晶を成長させる研究も行われている[2]。 Ga_2O_3 にはいくつかの結晶構造が知られているが、その中で最も安定な結晶構造をもつものは $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ と呼ばれている。半導体を用いたデバイス作製では理想的な電気特性を得られるように金属や絶縁体との接合を形成する必要があるが、 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の接合界面や表面の原子配列については、第一原理計算による研究は行われていたが、実験による構造解析の報告はなかった。本研究では $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(010)$ 表面について全反射高速陽電子回折(TRHEPD)による原子構造の解析を試みた。

2 実験

TRHEPD 実験[3]は低速陽電子実験施設で 10 KeV に加速した陽電子を用いて行った。 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(010)$ 試料は、Novel Crystal Technology の市販基板を用いた。 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ はバルク単位胞自体の構造パラメータ数が 14 と多い上に、加熱清浄化後の再構成表面では原子の欠損や変位などが起こり未知のパラメータ数が非常に多くなる。TRHEPD では鏡面 00 反射の近くに回折スポットが現れない入射方位で測定し、00 反射のみに注目することで、面内原子座標に依存せず表面垂直方向の原子座標だけによる解析を行うことが

できる。一般に陽電子を或る方位から入射すると、00 ロッドを通り入射方位にほぼ垂直な 0 次ラウエゾーン上の逆格子ロッドと Ewald 球の交点に反射点が円弧状に並び、これらの反射点間の距離が近いと多重散乱が顕著に起こる傾向がある。[-103] 方位 (図 1 (a) の左上の角から右下の角に向かう方位、図 1 (b) の赤線に垂直な方位) から陽電子を入射すると、0 次ラウエゾーンとなる図 1 (b) の赤線上の赤丸で示した 00 ロッドと隣のロッドとの間隔が大きく、00 反射が他の反射との多重散乱の影響を受けにくい。以下では[-103]方位での結果を示す。

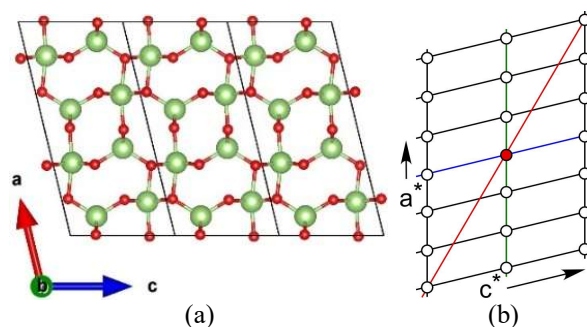


図 1 : (a) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(010)$ 理想表面の原子構造で黒線の平行四辺形が単位胞。(b) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3(010)$ 表面の逆格子(黒線)と逆格子ロッド(丸)で赤丸が00ロッド。

3 結果および考察

図 2 (a) に視射角 $\theta = 1.1^\circ$ で陽電子線を入射した TRHEPD パターンを示す。図 2 (b) に、 $\theta = 0.3^\circ$ から 0.1° ごとに測定したパターンについて、パターン番号を横軸として、それぞれのパターンで y 方向 101 画素、x 方向 51 画素の 00 反射を含む矩形領域をとり、x 方向に積算した反射強度分布を縦軸 y 方向の画素位置に対して示す。00 反射強度が 3 つの θ でピークを持つこ

とが分かる。 $\tan 2\theta$ の一次関数として図 2 (b)の赤線で示したものが、理想的な 00 反射点の軌跡である。陽電子線強度を上げるため入射ビームの角度広がりと比較的大きくしているため、強度が極大となる θ_p の前後では θ_p の反射が畳み込まれて、パターンごとの最大強度の y 画素位置が θ_p のそれに引かれて赤線からずれる。特に回折点のサイズが小さくなる高視射角で顕著になる。 $\tan 2\theta$ の一次関数として軌跡をフィッティングすることで、それぞれのパターンでの 00 反射の y 位置を追跡した。図 2 (a)の回折スポットを囲む矩形領域についてパターン上部に重ねて描いたような x 方向強度曲線から角度ごとの積分回折強度を求め、これを全パターンについて行うことで図 3 (a)のような回折強度の視射角依存性を得た。

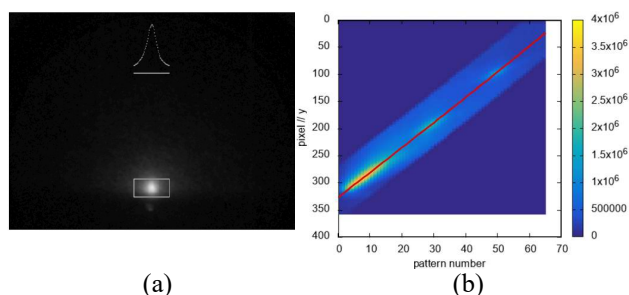


図 2 : (a) β -Ga₂O₃(010)表面の[-103]方位、視射角 1.1° で陽電子線を入射した TRHEPD パターン。(b) 視射角を 66 点変えて測定した全パターンについて、00 反射点を含む y 方向 101 画素、x 方向 51 画素の矩形領域をとり、x 方向に積分した y 方向の反射強度分布を横軸パターン番号として示したもの。

TRHEPD による表面構造解析のために、任意の結晶構造の表面原子配列に対して任意の視射角と方位角で任意の回折点の動力的回折強度計算[4]ができるソフトを作成した[5]。さらに実験と計算の一致の目安となる R 因子を Levenberg-Marquardt 法で最小化するソフトを作成した。 R 因子は

$$R = \frac{1}{n} \sqrt{\sum_i [(I_i^{cal} - I_i^{exp}) w_i]^2}$$

とした。ここで全測定角度数を n 、 i 番目の測定強度を I_i^{exp} 、計算強度を I_i^{cal} とし、測定強度のスケールは平均が 1 になるよう規格化し、計算強度のスケールは R 因子が最小になるように決めた。重み因子は

$$w_i = 1 / \sqrt{I_i^{exp} + 0.01}$$

とした。

図 3 (a) に 740°C で清浄化した測定結果 (赤点) について R 因子最小 ($R = 0.013$) の計算結果 (青線) を示す。緑線は結晶の (010) 面で切断した理想表面を仮定したときの結果 ($R = 0.092$) である。図 3 (b) にそれぞれの表面近傍での陽電子散乱ポテンシ

ヤルの 00 反射成分の深さ依存性を示す。横軸 z の正の側が真空中、負の側が結晶内部である。 R 因子最小の表面では表面垂直 z 方向の原子変位と特に Ga の脱離が顕著であり、散乱ポテンシャルが乱れている。

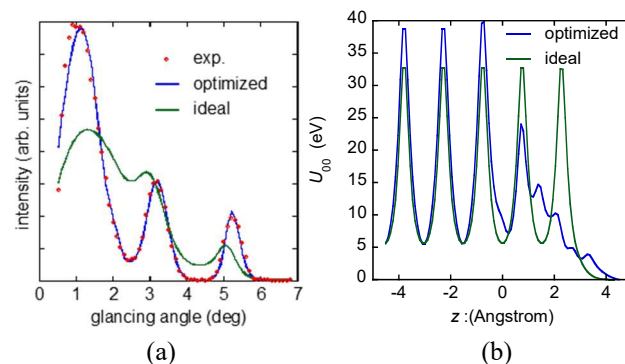


図 3 : (a) 740°C で清浄化した β -Ga₂O₃(010)表面の[-103]方位での 00 反射強度視射角依存性の実験 (赤点) と最適化構造 (青線) と理想切断構造 (緑線) での計算の比較。(b) β -Ga₂O₃(010)表面の陽電子散乱ポテンシャル 00 反射成分の深さ依存性。

4 まとめ

β -Ga₂O₃ の優れた特性を生かしたデバイス作製のためには、 β -Ga₂O₃ の表面構造や電極・誘電体との界面構造とデバイス性能の関係を明らかにして因果関係を解明していくことが今後重要になると考えられる。本研究では β -Ga₂O₃(010)表面の深さ方向の原子構造を解析することを試みた。今後、(001)、(-201)表面や複数の入射方位、複数の反射を取り入れた 3 次元構造解析を進める予定である。

謝辞

本研究は科研費基盤研究(C) 22K04177 と 2022 年度 TIA 連携プログラムの助成を受けて行われた。

参考文献

- [1] K. Sasaki, Appl. Phys. Exp. **17**, 090101 (2024).
- [2] A. Yoshikawa, V. Kochurikhin, T. Tomida, I. Takahashi, K. Kamada, Y. Shoji, K. Kakimoto, Scientific Rep. **14**, 14881 (2024).
- [3] Y. Fukaya, A. Kawasuso, A. Ichimiya, T. Hyodo, J. Phys. D **52**, 013002 (2019).
- [4] A. Ichimiya, Jpn. J. Appl. Phys. **22**, 176 (1983).
- [5] T. Hanada, Y. Motoyama, K. Yoshimi, T. Hoshi, Comput. Phys. Commun. **277**, 108371 (2022).

* takashi.hanada.c8@tohoku.ac.jp