

# GISAXS による埋もれた半導体ナノドット構造の解析 Microstructure of semiconducting nanodots examined by GISAXS

奥田浩司、久野啓志、加藤真行、落合庄治郎、宇佐見憲隆、中嶋一雄、田淵雅夫  
Hiroshi OKUDA<sup>1\*</sup>, Keiji KUNO<sup>2</sup>, Masayuki KATO, Shojiro OCHIAI<sup>1</sup>,  
Noritaka USAMI, Kazuo NAKAJIMA, and Masao TABUCHI

<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Kyoto University, Yoshida, Kyoto 606-8501, Japan.

\*e-mail: okuda@materials.mbos.media.kyoto-u.ac.jp

Microstructures and their thermal stability during growth and encapsulation, post heat treatments are important issues to control the performance of nanostructured materials. GISAXS combined with reflectivity is a useful approach to evaluate microstructure change of nanodots buried in cap layers. In the present work, the evolution of GISAXS patterns with annealing nanodot structures has been presented.

すれすれ入射 (Grazing Incidence) による小角散乱はノースウェスタン大学の Cohen らの金微粒子など、コントラストの強い基板上の微粒子材料について 1980 年代に報告がなされ始めており[1]、金属材料の観点からはポアチエ大学の Naudon らが 90 年代初頭に精力的に進めた[2]。初期の材料は解析の定量性などから動力学的効果の弱い材料や補正がそれほど必要でない条件などを対象としていたが、Sinha らの取り扱い[3]、Lazzari らの PDS 公開などによって広い条件に対して一般に利用される実験手段の一つという位置づけになってきている。しかしながら国内では BL ルーチン装置としての GISAXS 装置がないという事情と、解析手法の問題などからまだ一般化された手法とは言えない状況にある。本報告では BL15A での半導体ナノドットの GISAXS 測定により得られたデータを紹介し、その解析から得られる情報について報告する。

測定は BL15A に反射配置の小角散乱用ゴニオメータを設置し[4]、II-CCD による実時間モニターと IP による定量測定をおこなった。試料としてはガスソース MBE により成長された Si (0 0 1) 上の Ge ナノドット (Si キャップ層) および GaAs (0 0 1) 上に MBE により成長された InAs ナノドット ( $\alpha$ As キャップ) を用いた。In-Situ での熱処理には高真空が要求されるため、熱処理による変化は Ex-situ での処理後の試料を測定した。

図 1 は Ge ナノドットおよび Si キャップ層を含む試料の反射率測定結果の例である。反射率の解析よりキャップ層の厚さは約 40 nm であることや、表面界面の粗さなどの情報が抽出できる。Si/Ge 系ナノドットにおいては反射率に非常に明確にナノドット層とキャップ層の層厚の干渉効果による変調が観察される。これらの情報は GISAXS 解析での DWBA 近似の入力情報、あるいは DWBA/BA 近似の妥当性の検討などに利用される。

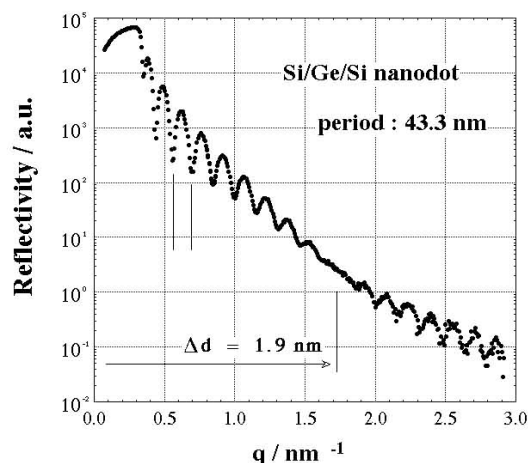


Fig. 1 Reflectivity curves from capped Ge nanodot structures.

このようなナノドット層を含む Ge 試料のフォトルミネッセンススペクトルを測定した結果、熱処理に伴うブルーシフトが明瞭に認められた。一方、ブルーシフトは熱処理温度に対してほぼ単調に変化するにもかかわらず、GISAXS パターンは比較的低温での熱処理で急に観察されなくなってしまう。これはナノドットを含む試料の熱処理によるブルーシフトには相互拡散によるサイズ変化と、平均組成変化の両方が関係しているためであると考えられる。自己形成されるナノドット構造では、自己形成のメカニズム自体が表面での十分な拡散を前提として

いる特性上、基板との相互拡散の影響が本質的に避けられない。一方で相互拡散はナノドットの組成、すなわちバンドギャップを直接大幅に変化させるため、その制御および評価は重要である。上記の熱処理の例では、界面拡散がどのような速度で進行し、内部組成自体が変化するのはどの時点であるのか、という情報は成長およびプロセスの設計上も重要である。われわれは GISAXS の適用を特にキャップ層成長初期構造の解明を通じた成長過程における相互拡散および組織安定性の理解を最終的な目標として進めている。

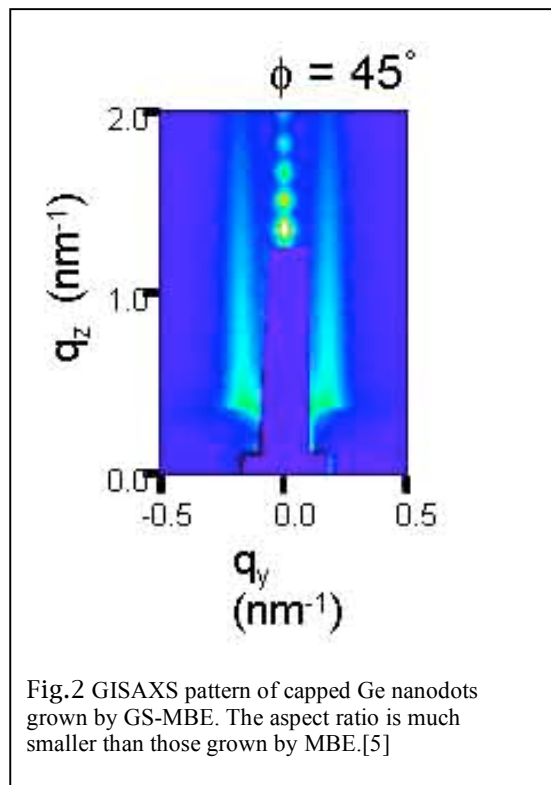


図2は GS-MBE により成長した Ge ナノドットからの GISAXS パターンの例である。面内回転による GISAXS パターンの解析により、本ナノドットでは明確なファセットはないことが明らかになった。また、アスペクト比が MBE によるナノドットと比較して非常に小さい扁平な形をとっていることが明らかとなった。BA による近似が十分である  $q_z$  の大きな領域を利用して形状のフィッティングをおこなった結果、断面 TEM 像と良い対応を示すことが示された[6]。熱処理中の短時間・低温での変化について GISAXS の解析より、初期には界面相互拡散層が形成されると考えるとほぼ説明できる変化であることが明らかとなっ

た。また、その変化から推定される「埋めこまれた状態での相互拡散係数」はバルクの不純物拡散係数と比較して約 2 桁近く、非常に大きいことが示された。この結果は、ナノスケールのキャップによって埋めこまれた歪を含むナノドット/キャップ界面においては、表面拡散ほどではないにせよ非常に早い拡散が起こることを示唆しており、ナノ構造の安定性の検討をする場合に低温プロセス化によるカイネティックな安定性を追及するときに考慮すべき重要なポイントである。現在埋めこまれた状態でのナノドット組織のより定量的な解析を進めている。一方、直接遷移型半導体である InAs 系ではエピタキシャル成長による埋めこみによってナノドット起源の小角散乱がほとんど消失してしまうという結果が得られている。そのため、現在は Ex-situ での定量解析が可能な  $\alpha$ -As キャップ材料の解析を中心にすすめている。エピタキシャル成長によるキャップ層の成長以前の状態ではナノドットの形状評価が進んでいるが、キャップ層成長初期に関しては相互拡散の効果についての解析が必要となり、現在異常分散効果を利用した GISAXS の手法開発を含めた試みを進めている。

## References

- [1] J.Levine *et al.*: *J. Appl. Cryst.* **22**, 528-532 (1989).
- [2] A.Naudon.: *Modern Aspects of Small-angle scattering*, ed. Brumberger, Kluwer pp.181-202 (1993).
- [3] Sinha *et al.*: *Phys. Rev. B.* **38**, 2297-2311 (1988).
- [4] H.Okuda *et al.*: *Appl Phys. Lett.* **81**, 2358-2360 (2002).
- [5] 奥田浩司, 落合庄治郎.: *Photon Factory News* **20**, 24-28 (2003), 放射光 **19**, 419-428(2006).
- [6] T.Ogawa *et al.*: *Mater.Sci.Forum*, 475-479, 1091-1096 (2005).