

その場逆格子マッピングによる太陽電池用材料 InGaAs/GaAs の歪緩和過程の理解と転位分布制御に関する研究

Understanding strain relaxation mechanisms and controlling dislocation distribution for InGaAs/GaAs using *in situ* reciprocal space mapping

佐々木 拓生¹⁾ 高橋 正光²⁾ 鈴木 秀俊³⁾ 大下 祥雄¹⁾

Takuo SASAKI Masamitsu TAKAHASHI Hidetoshi SUZUKI Yoshio OHSHITA

¹⁾豊田工業大学 ²⁾原子力機構 ³⁾宮崎大学

(概要) SPring-8 の原子力機構専用ビームライン 11XU にて、太陽電池用材料 InGaAs/GaAs (001) の構造解析を実施した。結晶成長その場 X 線回折装置を利用することで、InGaAs 薄膜の歪緩和と結晶面の軸ずれの情報を同時に得ることができた。両者の相関から、結晶成長中のヘテロ界面に現れるミスフィット転位の分布について推察し、基板の微傾斜方向に応じて、ミスフィット転位のすべり面に選択性が現れることを見出した。

キーワード：放射光X線回折、リアルタイム測定、太陽電池、InGaAs、転位

1. 背景と目的

GaAs (001) 基板上の $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 薄膜は、バンドギャップエネルギーを 0.36 から 1.42 eVまで幅広く制御できる。この特長から、エネルギー変換効率が 50%に迫るタンデム型太陽電池として、InGaAsの利用が期待されている。しかし、その一方でInGaAs薄膜はGaAs (001) 基板と格子不整合の関係である。そのため、薄膜-基板間のヘテロ界面ではクロス状 ([110]と $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向) にミスフィット転位が発生し、InGaAs薄膜の格子歪を緩和させる。ミスフィット転位の一部は界面から表面に向かう貫通転位となり、太陽電池特性の劣化要因となる。したがって、太陽電池の高効率化のためには、貫通転位密度を低減した歪緩和InGaAs薄膜をGaAs (001) 基板上に製膜することが必要である。我々はヘテロ界面でクロス状に発生するミスフィット転位が結晶成長とともにどのように分布し、格子歪の緩和に寄与するのかといった基礎的な知見を得ることが重要と考えている。ヘテロ界面での転位分布を制御することができれば、転位のすべり運動を促進させ、結果的に薄膜中に残留する貫通転位密度を低減できるからである。

GaAs (001) 基板上のInGaAs薄膜成長では、主に 60°転位が形成されるが、そのすべり系はTab. 1 に示すように計8種類 ($S_1 \sim S_8$) ある。転位線の方向は S_1 から S_4 は $[\bar{1}\bar{1}0]$ 、 S_5 から S_8 は $[\bar{1}10]$ であり、さらにすべり面の違い、バーガースベクトルの違いによって分類される。これまでは透過型電子顕微鏡を用いることで、 $[\bar{1}\bar{1}0]$ と $[\bar{1}10]$ 方向の転位密度を測定し、その結果から、 S_1 から S_4 と S_5 から S_8 間では密度に異方性があることが知られている^[1]。しかし、それ以上詳細なすべり系の分類は困難であり、ミスフィット転位の分布と歪緩和への寄与を解明する上で従来の評価手法では限界があった。また、微傾斜基板を用いた薄膜成長では薄膜の結晶面が基板の結晶面とずれるという報告があり、すべり系またはバーガースベクトルの不釣り合い (例えば S_1 、 S_2 と S_3 、 S_4 間) によるものと考えられている^[2]。そこで、本研究ではその場X線逆格子マッピング^[3]を利用して、微傾斜GaAs基板上にInGaAs薄膜を結晶成長し、結晶面の軸ずれと歪緩和の情報を同時にリアルタイム観測する。その結果をもとに膜厚の増加とともに格子歪の緩和過程と転位分布がどのように変化していくか検討する。

Tab. 1 Eight active slip systems for the (001) heteroepitaxy of zinc blende semiconductors

System	Line Vector	Glide Plane	Burgers Vector
S_1	$[\bar{1}\bar{1}0]$	(111)	$a/2[10\bar{1}]$
S_2	$[\bar{1}\bar{1}0]$	(111)	$a/2[01\bar{1}]$
S_3	$[\bar{1}\bar{1}0]$	($\bar{1}\bar{1}$ 1)	$a/2[101]$
S_4	$[\bar{1}\bar{1}0]$	($\bar{1}\bar{1}$ 1)	$a/2[011]$
S_5	$[\bar{1}10]$	($\bar{1}$ 11)	$a/2[101]$
S_6	$[\bar{1}10]$	($\bar{1}$ 11)	$a/2[01\bar{1}]$
S_7	$[\bar{1}10]$	(1 $\bar{1}$ 1)	$a/2[10\bar{1}]$
S_8	$[\bar{1}10]$	(1 $\bar{1}$ 1)	$a/2[011]$

2. 実験方法

放射光施設SPring-8、原子力機構専用ビームライン 11XUの結晶成長その場X線回折装置を利用した。使用した基板は傾斜角が 2°、傾斜方向が $[\bar{1}\bar{1}0]$ のGaAs (001) である。試料構造はIn組成が約 10%の $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ 層をGaAs基板上に 400 nm成長した。成長温度は 477 °Cであり、成長速度は 0.2 ML/secである。X線回折は対称 004 反射の3次元 (HKL空間) 逆格子マップを測定した。HKL空間におけるGaAsまたはInGaAs回折ピークをHK面に投影することでInGaAs薄膜の結晶面の軸ずれの情報を、また、HL面に投影することでInGaAs薄膜の歪緩和の情報をそれぞれ抽出した。3次元逆格子マップの測定時間は 60 秒であり、これは約 6 nmのInGaAs薄膜成長に対応する。

3. 研究結果と考察

Fig. 1(a)は対称 004 反射から得られた InGaAs 回折ピークの L 方向の面指数であり、InGaAs 薄膜の歪の緩和量と比例関係にある。InGaAs の膜厚が 50 nm (図中 A) までは InGaAs は完全に歪んだ状態であるが、50 nm を超えると徐々に歪緩和がおきる。そして、180 nm 付近 (図中 B) から急激に歪緩和し、300 nm 付近 (図中 C) から飽和傾向を示すことがわかる。Fig. 1(b) は InGaAs 回折ピークの HK 座標における面指数の変化であり、結晶面の軸ずれの方向とその大きさを表している。図中 A から C は Fig. 1(a) と対応しており、Fig. 1(a) と (b) を比較することで、InGaAs 薄膜の膜厚増加に伴う歪緩和と結晶面の軸ずれの相関を見ることが出来る。まず、結晶面の軸ずれの方向は一貫して微傾斜方向の [110] と逆方向であることが分かった。一方、軸ずれの大きさは、歪緩和の大きさと相関があることが分かった。つまり、徐々に歪緩和する膜厚領域 (A→B) では軸ずれは小さく、急激な歪緩和 (B→C) とともに軸ずれも大きく変化することが分かった。

以上の結果から、InGaAs 薄膜成長における、ミスフィット転位分布の変化を推察する。徐々に歪緩和する膜厚では結晶面の軸ずれは $[\bar{1}\bar{1}0]$ であった。これは Fig. 2 の中図に示すように、 $[\bar{1}\bar{1}0]$ のミスフィット転位のすべり面が (111) と $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ で均等でなく、選択的に黒色の転位記号で示した $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ をすべるミスフィット転位の方が多いとが考えられる。このすべり面の選択性の原因は不明だが、微傾斜方向が [110] であったことに関係すると考えられる。膜厚が増加すると同左図に示すように、すべり面の選択性が著しく大きくなり、 $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ をすべるミスフィット転位によって急激な歪緩和がおきると考えられる。なお、結晶面の軸ずれの方向が $[\bar{1}\bar{1}0]$ であったため、[110] のミスフィット転位にはすべり面の選択性はない。以上より、微傾斜方向が [110] の GaAs (001) 基板の上に InGaAs 薄膜を成長した場合、Tab. 1 に示す S_3 、 S_4 のミスフィット転位の方が S_1 、 S_2 よりも選択的に多く導入され、歪緩和に寄与することが分かった。今後、微傾斜基板の傾斜方向と傾斜角度を系統的に変化させ、同様の構造解析を行うことで、歪緩和と転位分布の相関を詳細に検討し、転位分布の制御に繋げる予定である。

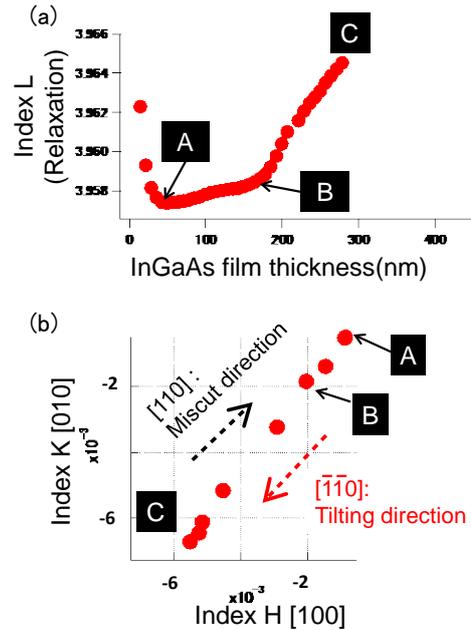


Fig. 1 Results of in situ reciprocal space mapping for InGaAs growth on the GaAs vicinal substrate; (a) evolution of lattice relaxation as a function of InGaAs film thickness and corresponding lattice tilting (b).

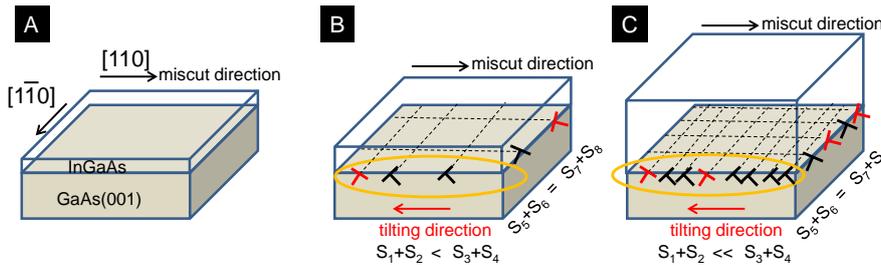


Fig. 2 Dislocation distribution models for InGaAs growth on the GaAs vicinal substrate. Each model indicated as A to C is at the InGaAs film thickness of 50, 180 and 300 nm, corresponding to Fig. 1.

4. 結論

その場 X 線逆格子マッピングにより、太陽電池用材料 InGaAs/GaAs の歪緩和と結晶面の軸ずれの膜厚変化を初めてリアルタイム観測した。結晶面の軸ずれは歪の緩和量と相関があること、また微傾斜基板の方向によってミスフィット転位のすべり面に選択性が現れることを見出した。今後、太陽電池材料中に存在する貫通転位密度を低減するため、すべり面の選択性に関して微傾斜方向ならびに傾斜角度依存性を検討する予定である。

5. 引用文献

[1] M. S. Abrahams et al., Appl. Phys. Lett. 21, 185 (1972).
 [2] J. W. Eldredge et al., J. Vac. Sci. Technol. B 13, 689 (1995).
 [3] T. Sasaki et al., Appl. Phys. Express 2, 085501 (2009).