

シンクロトロン放射光を用いた結晶成長プロセス評価

Evaluation and control of crystal growth process using synchrotron X-rays

○ 高橋正光¹ (1. 量研機構)

○ Masamitsu Takahashi¹ (1.QST)

E-mail: takahashi.masamitsu@qst.go.jp

薄膜の結晶性向上やナノ構造の高い構造制御性を可能にするためには、結晶成長プロセスのその場モニター技術が重要である。分子線エピタキシーにおける反射型高速電子回折などがその代表例である。しかしながら、より一般には、化学気相成長やめっき、融液成長など、電子が透過できない環境中での結晶成長も広く用いられている。このような試料環境を選ばない結晶成長モニターとして、X線の利用が有効である。

X線というと、ラウエ写真やブラッグ反射のように、結晶の三次元周期性から生じる回折ピークの測定がイメージされるかもしれない。しかし、結晶成長プロセスの検証・診断に必要とされる情報は、成長フロントである成膜表面や、欠陥、粒界など、むしろ理想的な結晶からの乱れに相当するものであり、これらはブラッグ回折点以外の逆格子空間内に広がった強度分布として観測される。しかも、理想的な平面波とみなせるX線を用いて測定されたX線強度分布からは、複素散乱振幅の位相情報を抽出することが可能であり [1]、本質的には実空間像と等価な情報とみなすことができる。このような散漫散乱は、ブラッグ回折に比べれば微弱であるが、現在の強力なシンクロトロン光源から得られるX線は、その時分割測定も可能にしている。

我々は、大型放射光施設 SPring-8 のビームライン BL11XU で、X線回折計と一体化した結晶成長装置を開発し、主として III-V 族化合物半導体 [2,3]、窒化物半導体結晶成長への応用を進めてきた [4]。本装置では、強力な放射光X線を用いるとともに、大面積の二次元X線検出器を用いることで、いわゆるブラッグ回折だけではなく、逆格子空間内に分布する三次元的なX線散乱パターンが広くかつ高速に測定される [5]。このような測定によって、結晶成長の進行にともない、刻々と変化する三次元空間および時間軸の四次元データが大量に産み出される。これら一連の四次元データには、成長中の結晶構造の情報が網羅的に含まれるとみることができる。また、同一試料に対する連続したその場測定から得られるデータは、試料ごとのばらつきに影響されないため、非本質的な擾乱を含まないという点でも信頼性が高い。

このように多様な試料環境中での成長において蓄積される大量のX線散乱パターンに対し、インフォマティクス的な分析をおこなうことで、複雑に絡まりあったパラメータの最適化や、これまで見過ごされていた結晶成長メカニズムの発見などがもたらされる可能性を期待している。それにより、従来、経験と勘による試行錯誤によって開発されてきた材料プロセスの大幅な効率化につながるかもしれない。

[1] J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz and D. Sayre, *Nature* **400** (1999) 342.

[2] M. Takahashi et al., *Jpn.J.Appl. Phys.* **41** (2002) 6247.

[3] M. Takahashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82** (2013) 021011.

[4] T. Sasaki et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **55** (2016) 05FB05.

[5] W. Hu et al., *J. Appl. Crystallogr.* **45** (2012) 1046.