

全反射X線回折による窒化物超格子の解析

日亜化学工業 川村朋晃

全反射X線回折は入射X線および出射X線の角度を変えることにより、X線の検出深さを制御しながら薄膜構造解析を行う手法であり、試料表面近傍の薄膜構造の解析に用いられる[1]。本手法ではX線の入射角および出射角の精密制御が必要であり、6軸回折計[2]等の多軸回折計が使用される。本発表では全反射X線回折法の原理、測定法について述べるとともに、一例としてSUNBEAMに導入した多軸回折計を用いて解析したInGaN/GaN超格子試料の結果について示す。

試料として (InGaN/GaN)₉/GaN/Al₂O₃(0001)基板を用い、基板に垂直な反射面であるGaN(11-20)のBragg反射プロファイルの出射角依存性をX線の入射角を変えながら測定した。入射角が小さいときはBragg反射強度がほぼ単調に減少しているのに対し入射角の増大に伴い超格子構造に起因するピークが現れており、本手法を用いることにより薄膜構造の深さ分解構造解析が可能であることを示している。

[1] H. Rhan, et al., Z. Phys. B 80 (1990), 347. [2] M. Lohmeier, et al. J. Appl. Cryst., 26 (1993), 706.

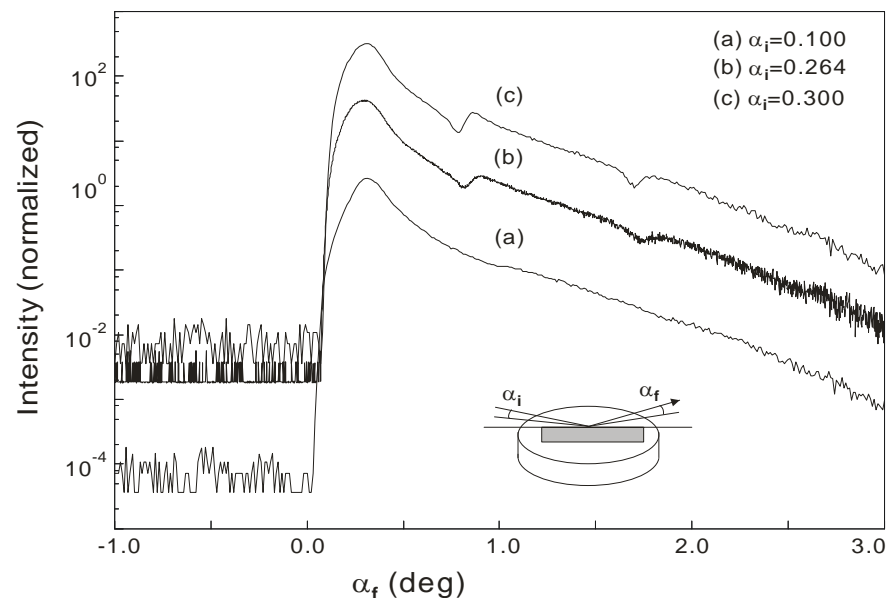


図 (11-20) Bragg反射プロファイルの出射角(α_f)依存性

全反射X線回折法の原理・特長

- 入射角および出射角を制御してBragg反射を測定する



- 数nm-数百nm領域の深さ方向制御構造解析
- 面内方向および深さ方向の歪み・構造解析
- 数nmの単層膜から数百nmの多層膜までをカバー
- 異常分散効果利用による組成・歪みの独立評価

従来のX線回折法との比較

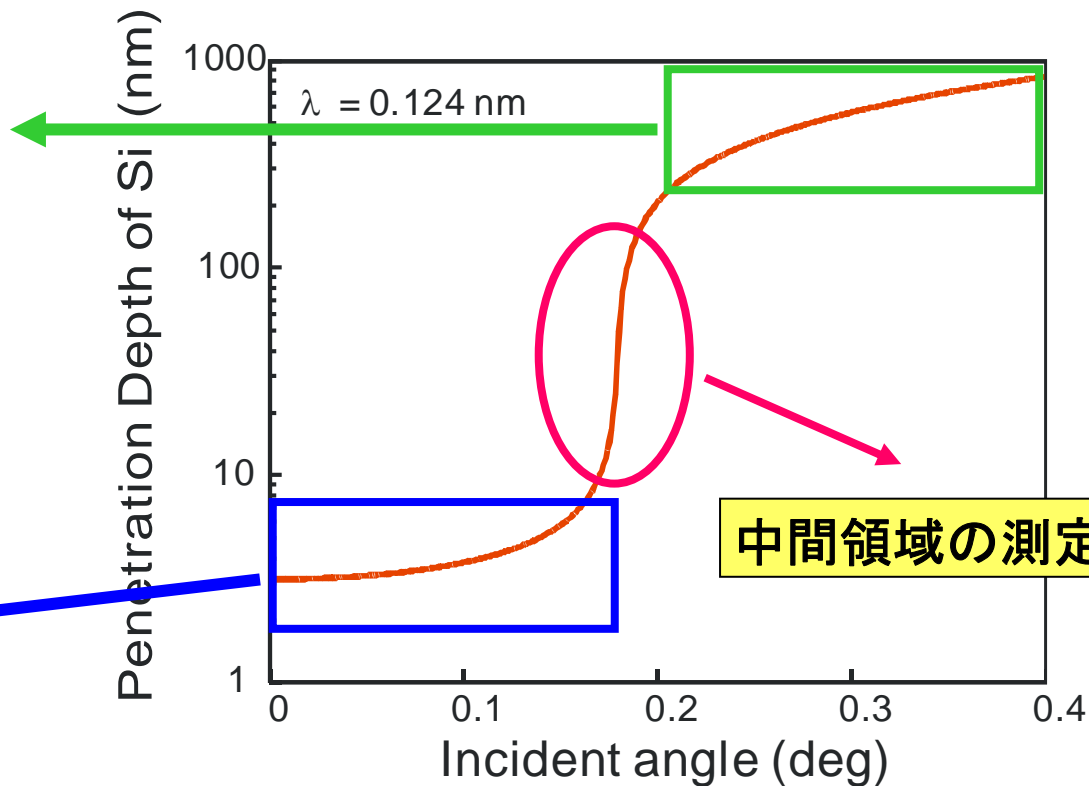
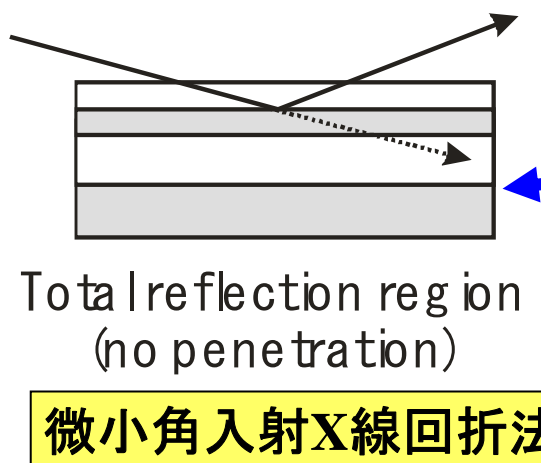
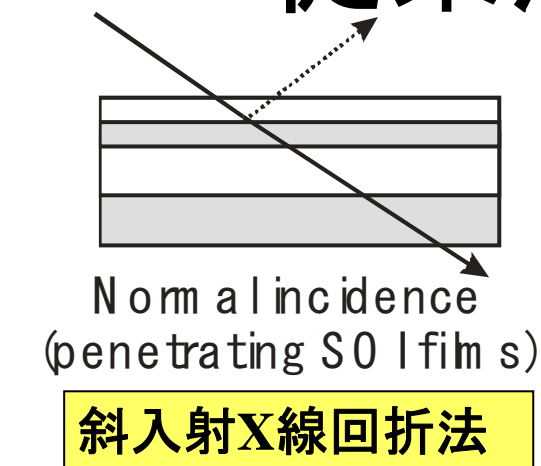
斜入射X線回折および微小角X線回折

- ・斜入射X線回折 → 数度程度の入射角
測定領域は表面から数ミクロン程度
→ 極薄膜材料ではバルク領域
- ・微小角入射X線回折 → 全反射臨界角近傍でX線を入射
表面数nm領域の評価



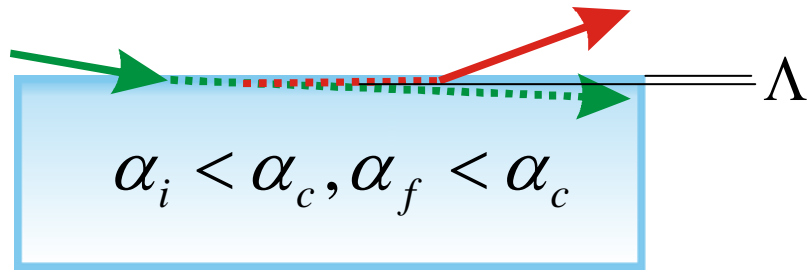
中間領域(深さ数十nmから数百nm領域)の評価が困難

従来法における測定領域



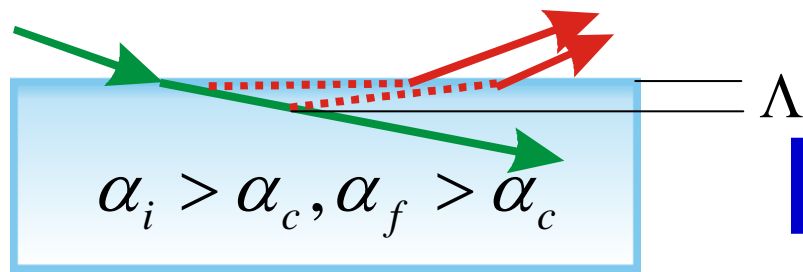
X線侵入深さの入射角度依存性(Si)

全反射X線回折法における測定領域



入射角, 出射角 < 臨界角

測定領域 : 表面から数nm



入射角, 出射角 > 臨界角

測定領域 : 表面から数百nm



全反射Bragg反射における散乱深さ

散乱深さ Λ の定義：Bragg反射強度が e^{-1} になる深さ

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\pi(z_i + z_f)},$$

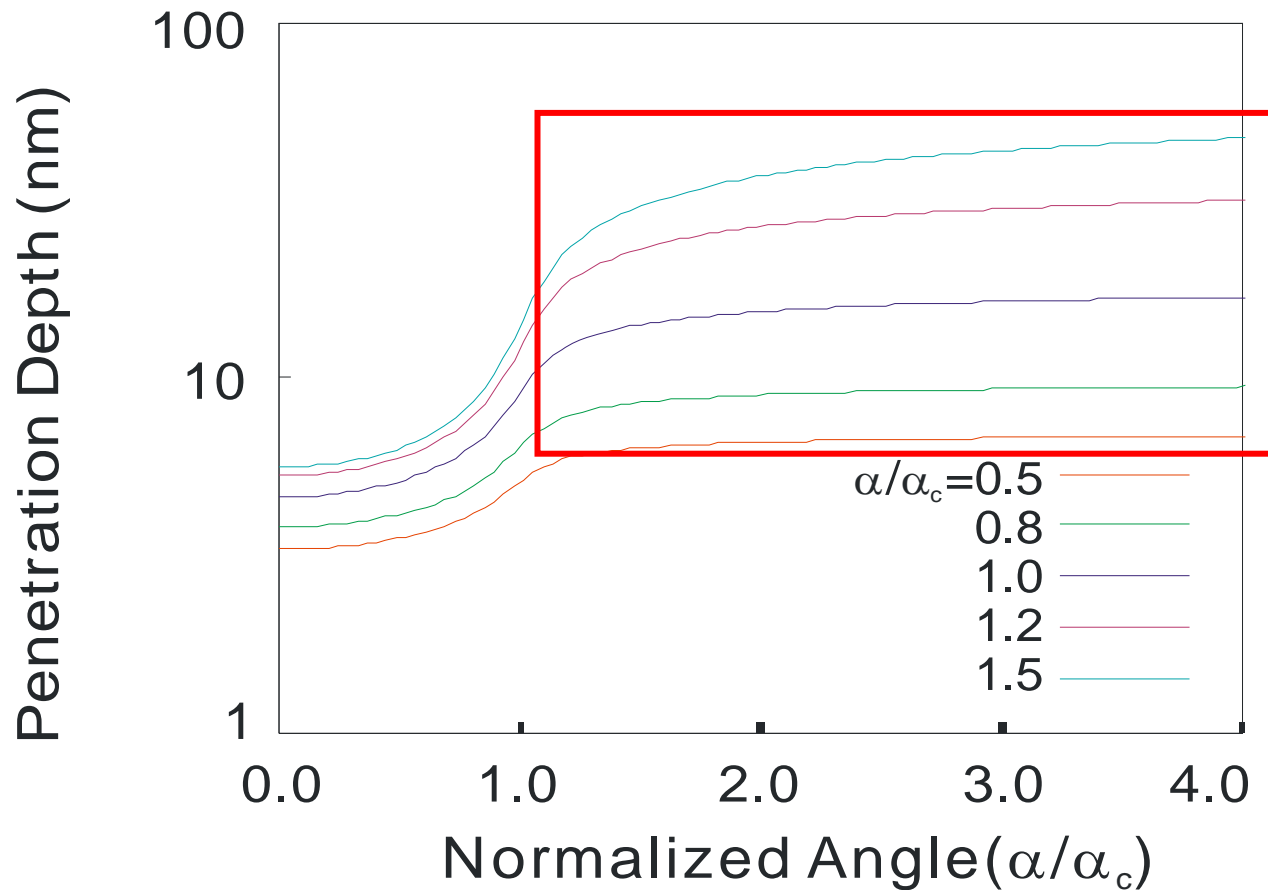
$$z_{i,f} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ (2\delta - \sin^2 \alpha_{i,f}) + \left[(\sin^2 \alpha_{i,f} - 2\delta)^2 + 4\beta^2 \right]^{1/2} \right\}^{1/2}.$$



入射角および出射角を制御することにより散乱深さ Λ の制御が可能

散乱深さ Λ の計算例

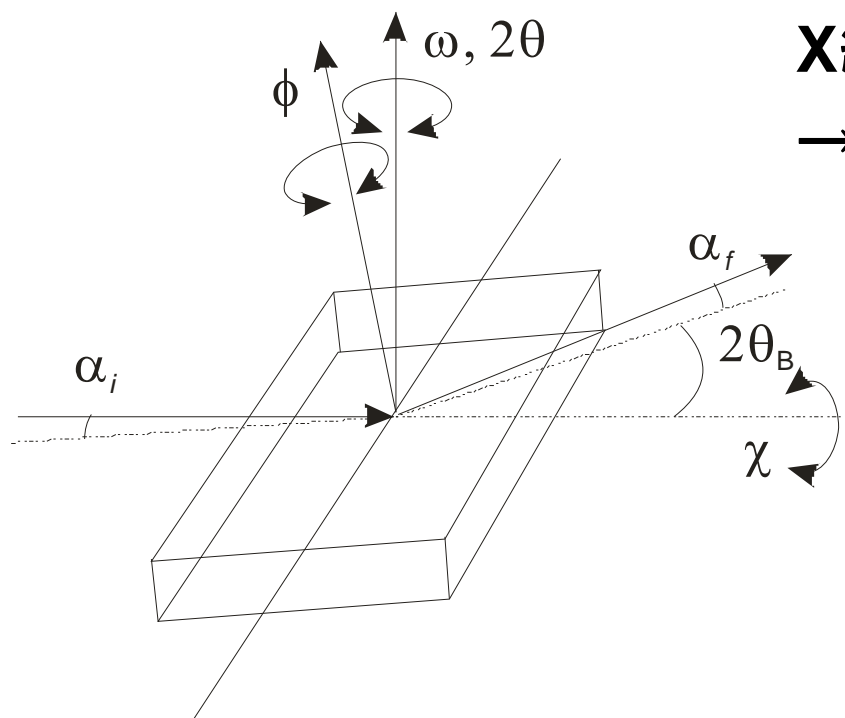
試料 : Si
波長 : 0.154nm
 $\alpha_i/\alpha_c = 0.5 - 1.5$



1. $\alpha < \alpha_c$ では入射角が小さいほど検出領域も浅い
2. $\alpha > \alpha_c$ 領域でも検出深さの入射角依存が存在する

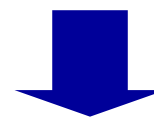
全反射X線回折法の測定(1)

---- 4軸回折計の場合 ----



4軸X線回折計の回転軸

X線の入射角および出射角の精密制御
→4個の軸を全て制御する必要がある

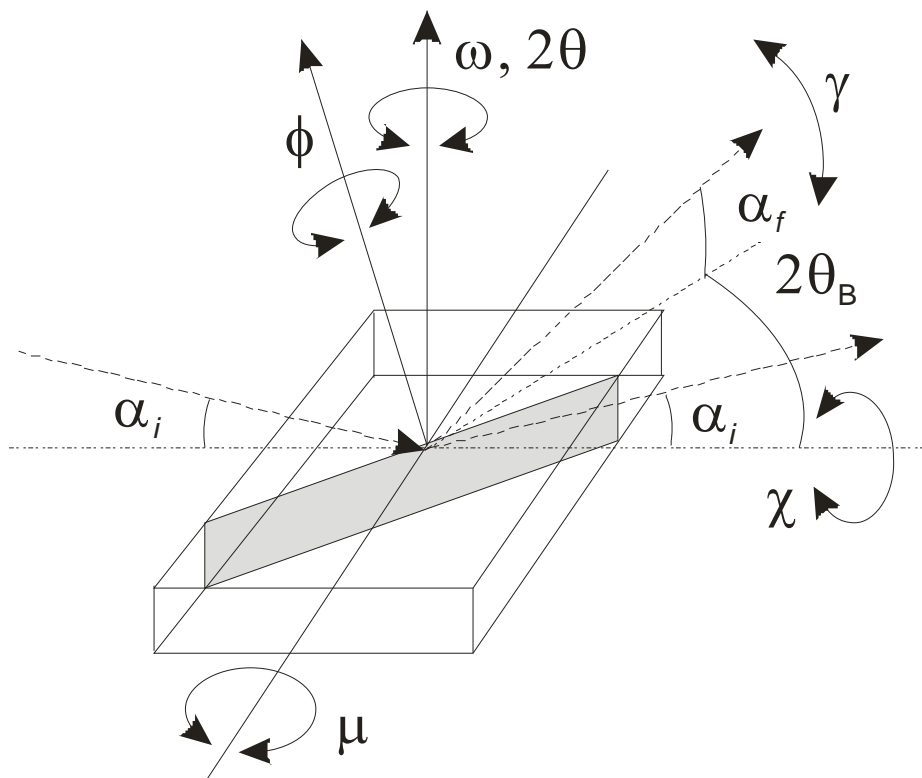


4軸X線回折計による測定

- ・原理的に可能
- ・複雑な角度計算が必要
- ・試料の照射面積の制御が困難
→強度補正が複雑になる

全反射X線回折法の測定(2)

--- 多軸回折計の場合 ---



多軸X線回折計の回転軸

・6軸回折計(ω , 2θ , χ , ϕ , μ , γ 軸)

通常の4軸回折測定および全
反射回折測定が可能

大型装置の搭載が困難

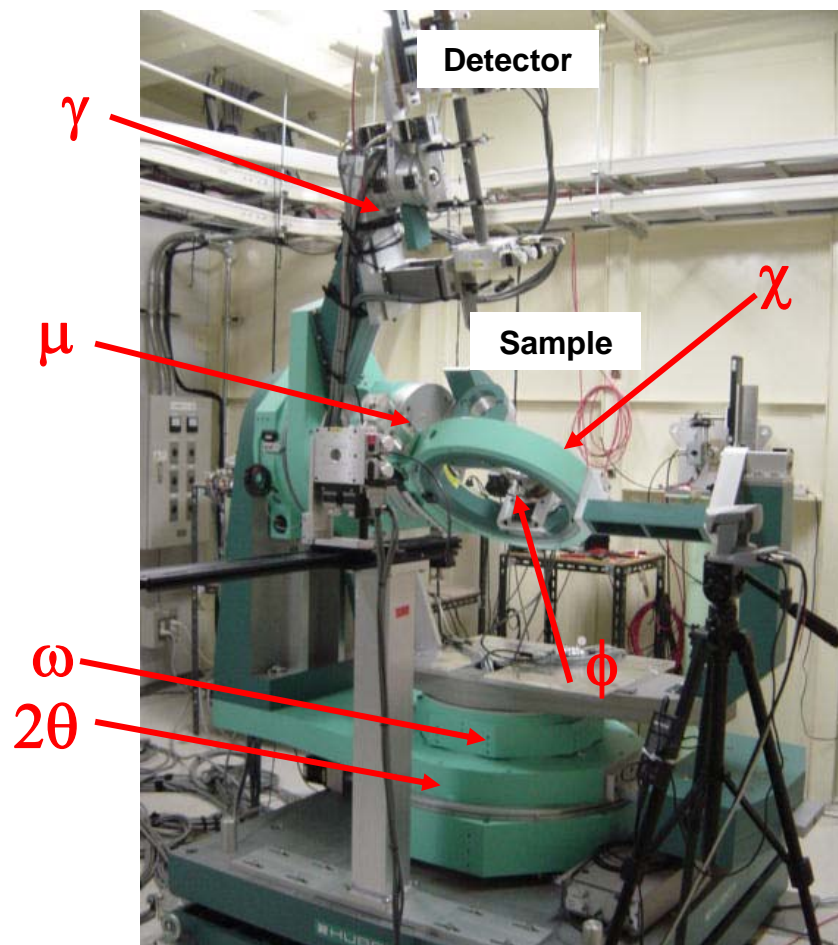
・Z軸回折計(θ , 2θ , μ , γ 軸)*

高耐荷重ゴニオが可能

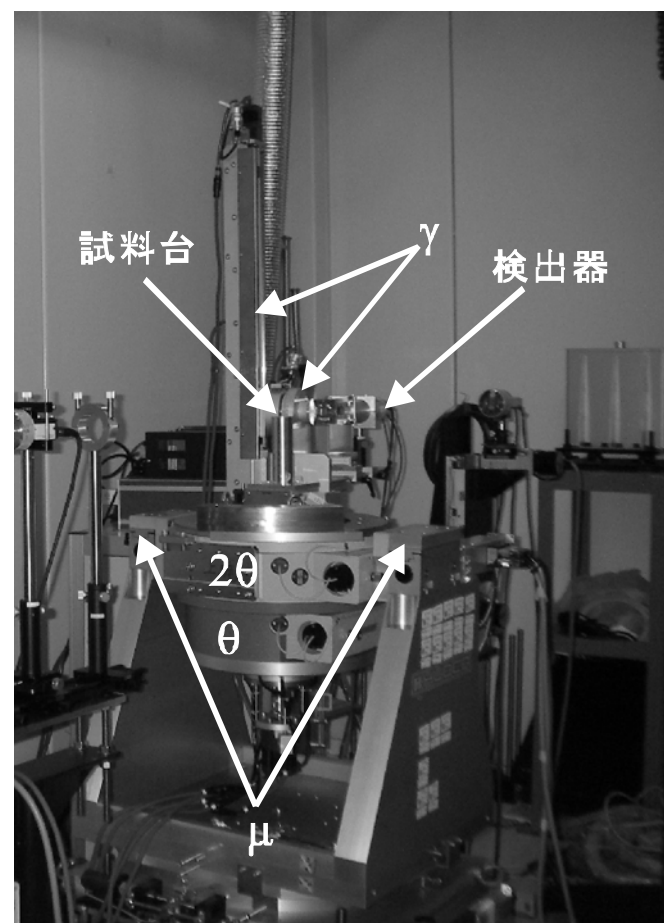
→大型装置の搭載が可能

逆空間の測定範囲が6軸回折
計よりも小さい

全反射X線回折測定装置の例

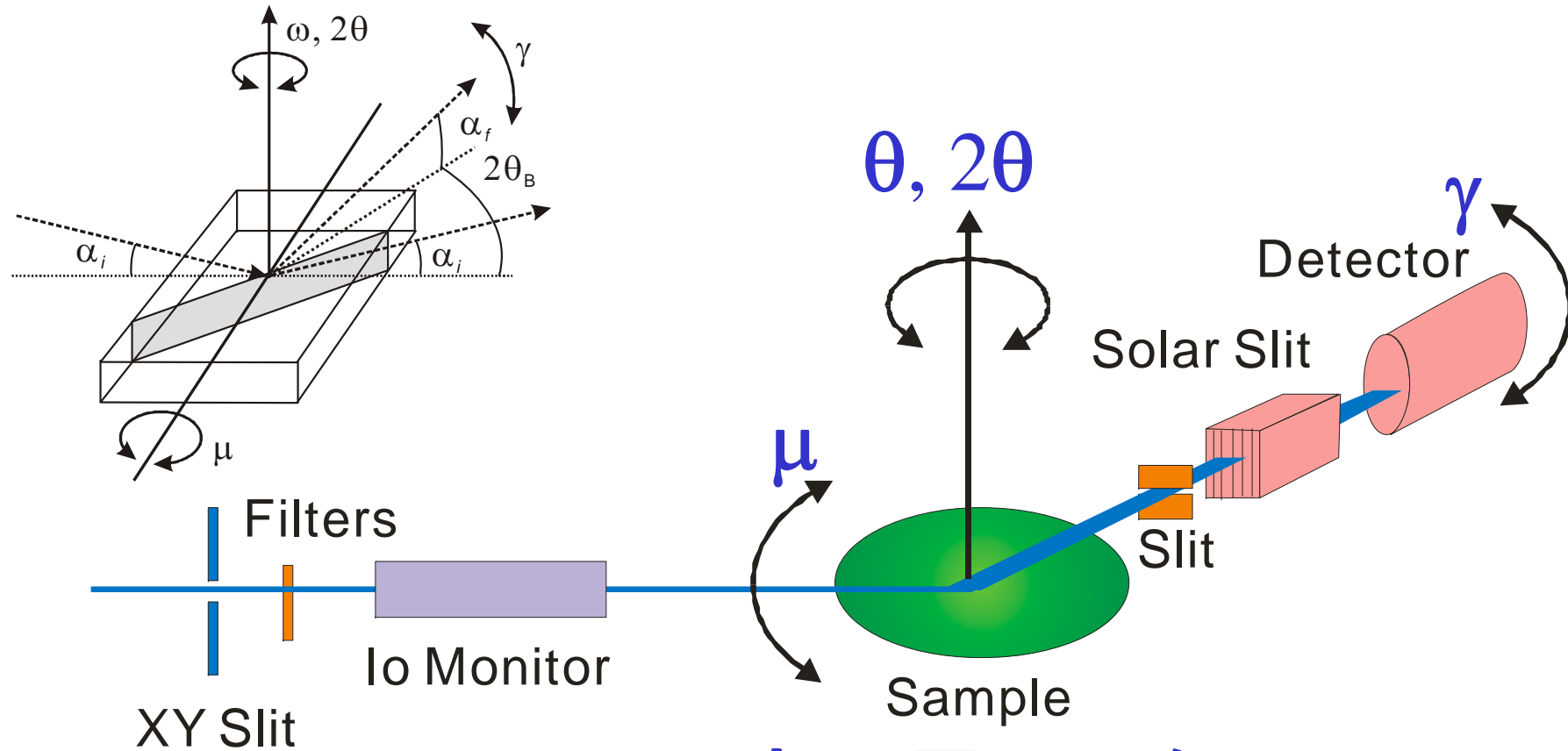


多軸回折計



Z軸回折計

全反射X線回折の測定系の一例

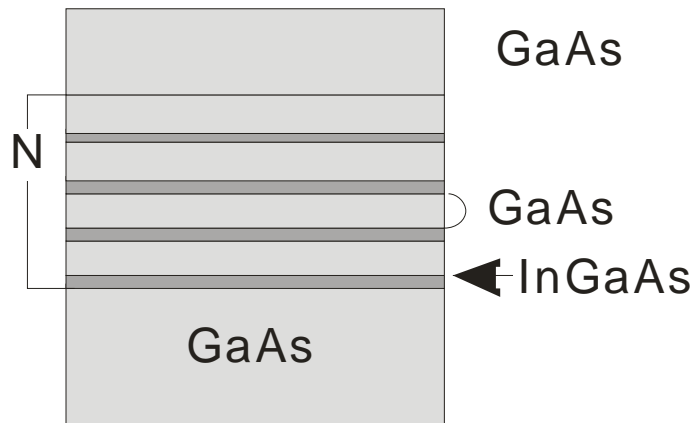


測定配置の一例

測定例(1)---AlGaAs/GaAs超格子---

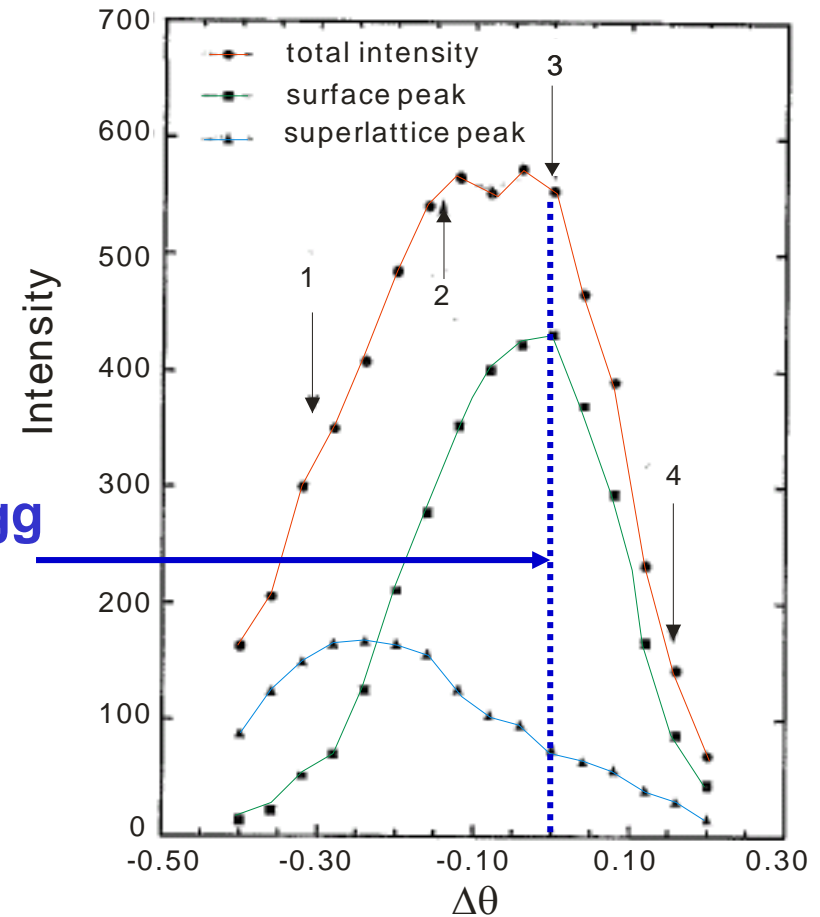
入射角 : $0.7^\circ - 2.5\alpha_c$ で測定

↓
キャップ層から超格子層に対応する

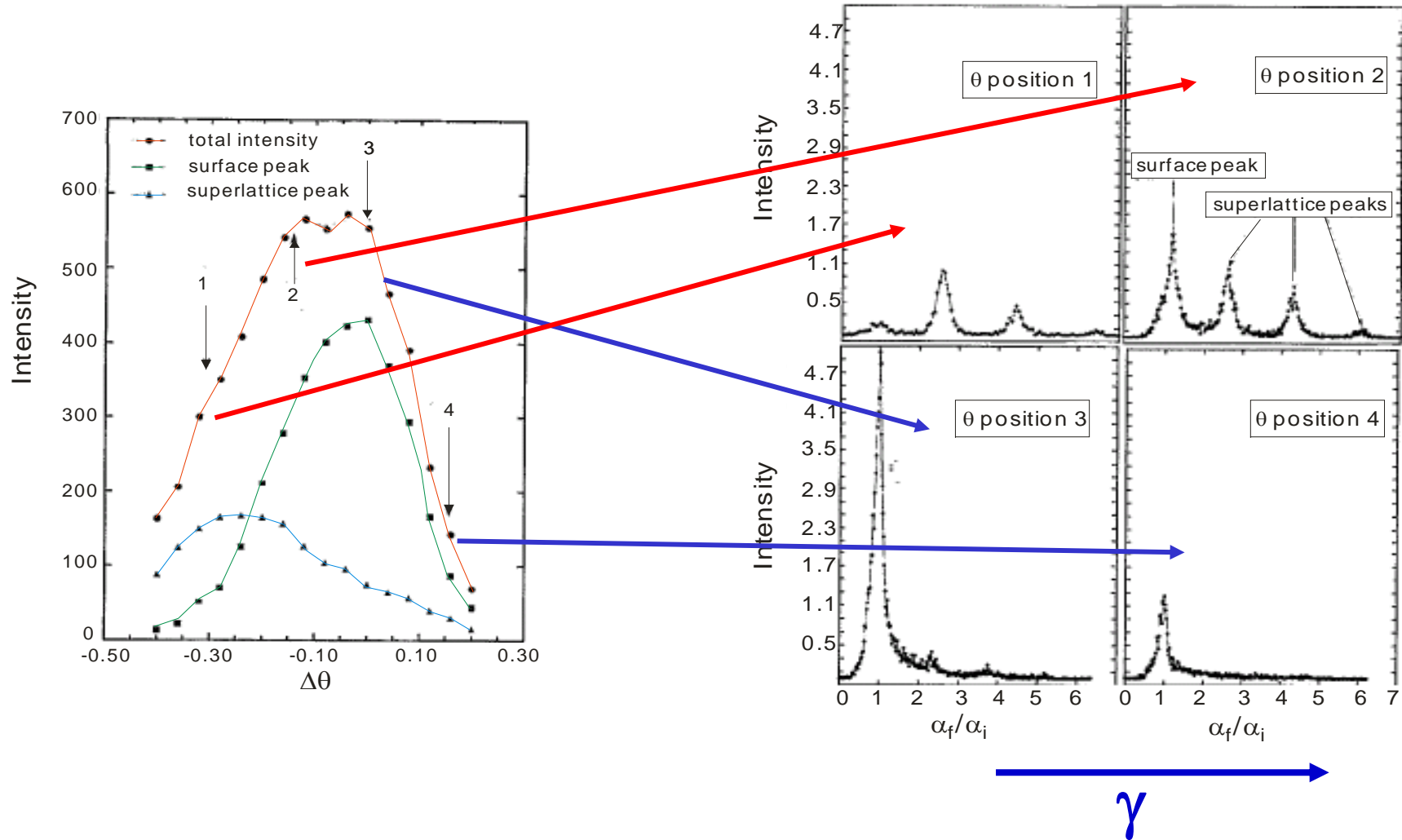


測定試料の構造

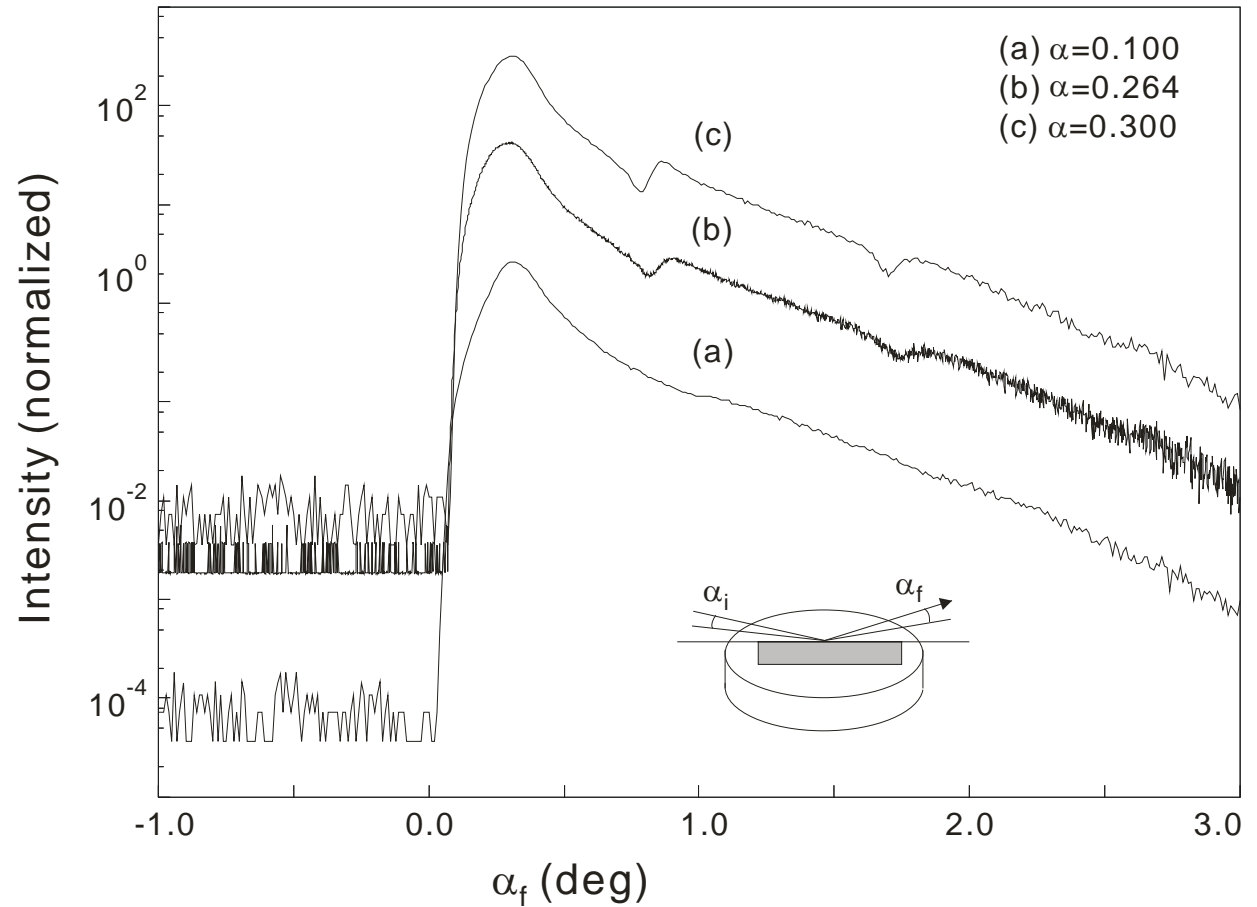
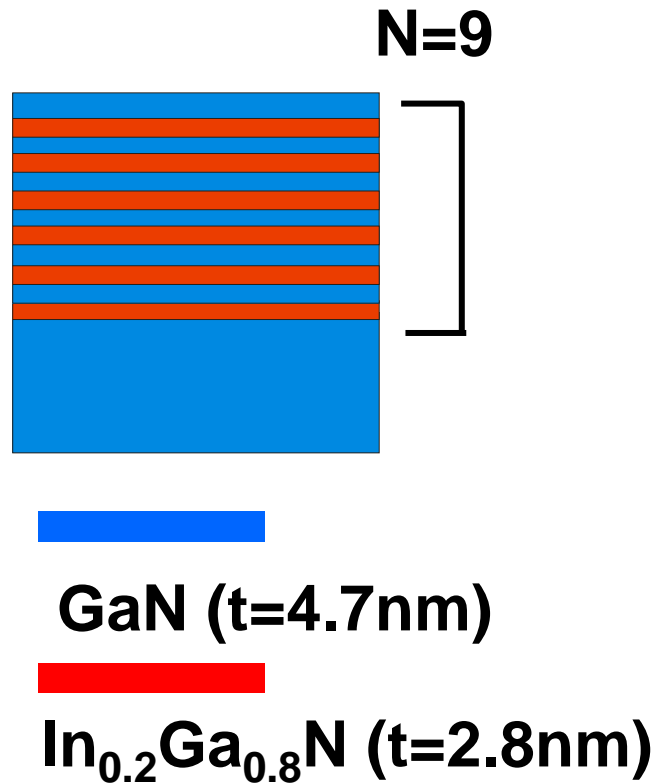
Bragg



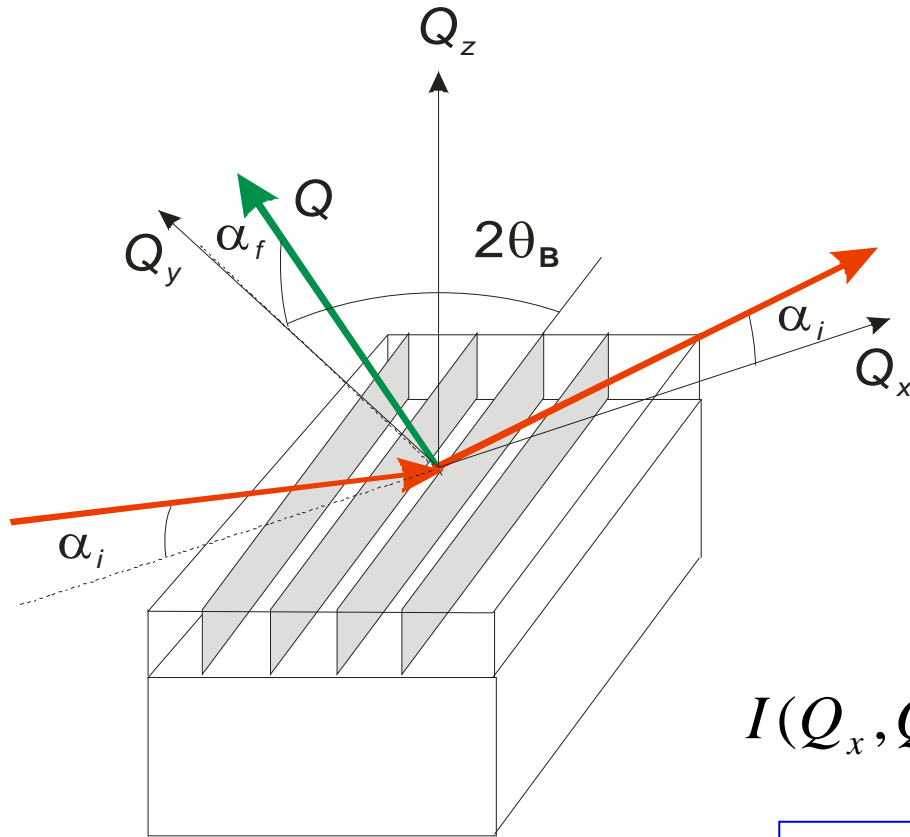
各 $\Delta\theta$ における Q_z プロファイル



測定例(2) --- InGaN/GaN超格子 ---



全反射条件でのBragg反射の表式



$$Q_x \approx 0,$$

$$Q_y = K \sin \theta (\cos \alpha_f + \cos \alpha_i) \\ \approx 2K \sin \theta (\alpha_i \approx \alpha_f \approx 0),$$

$$Q_z = K (\sin \alpha_i + \sin \alpha_f),$$

$$\theta = \theta_B + \Delta \theta.$$

$$\alpha_i^2 = \alpha_f^2 - 2\Delta \theta \sin 2\theta_B.$$

$$I(Q_x, Q_y, Q_z) \propto \underbrace{|T_i|^2}_{\text{red}} \underbrace{|S(q_x, q_y, q_z)|^2}_{\text{green}} \underbrace{|T_f|^2}_{\text{red}} e^{-\sigma^2 Q_z^2}.$$

Bragg反射強度は材料に依存する項($T_{i,f}$)および試料構造に依存する項($S(\mathbf{q})$)に分離可能

Q_z方向のBragg反射強度

$$S(q_x, q_y, q_z) = \sum_{m=0}^{\infty} e^{-iq_x x_m} \sum_{n=0}^{\infty} e^{-iq_y y_n} \times$$
$$\int_0^{\infty} \chi_H(q_x, q_y, q_z, z) e^{-iq_z z_j} dz,$$
$$= \underbrace{G(q_x, q_y)}_{\text{q}_{xy} \text{方向の強度分布項}} \int_0^{\infty} \chi_H(q_x, q_y, q_z, z) e^{-iq_z z_j} dz, \quad \underbrace{\hspace{10em}}_{\text{q}_z \text{方向の強度分布項}}$$

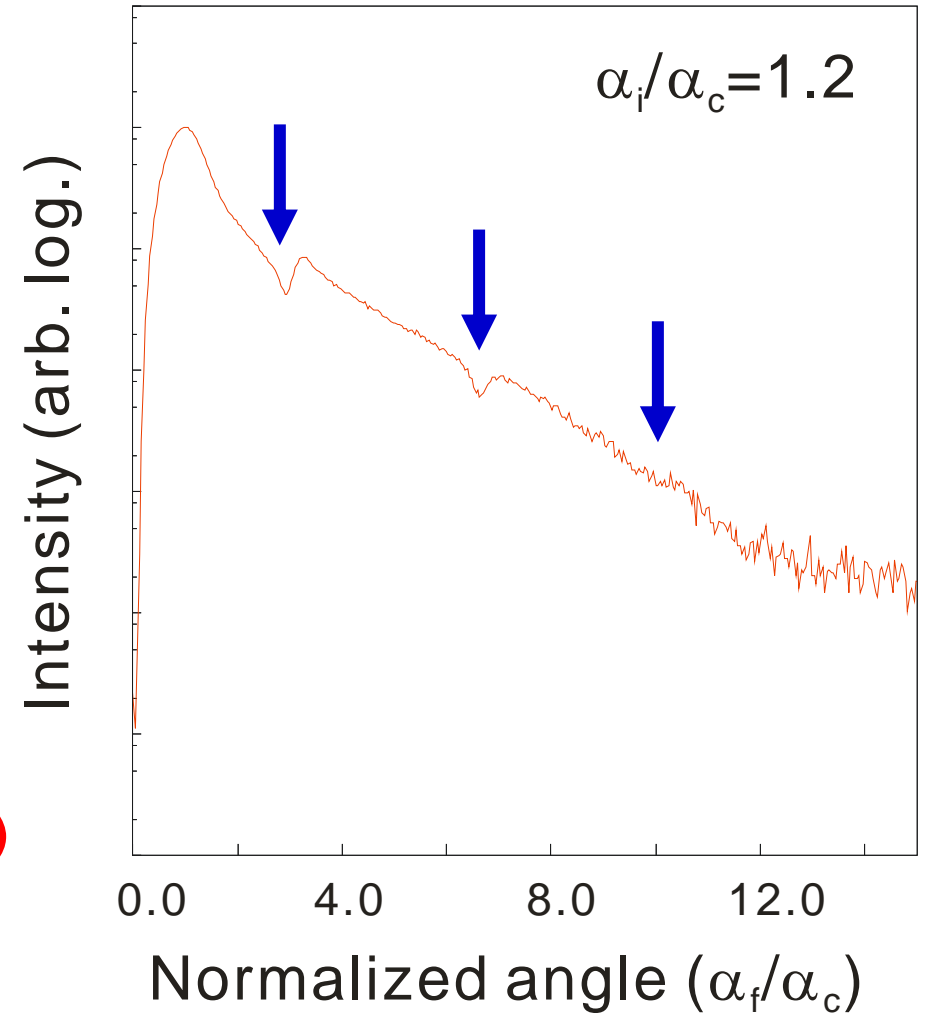
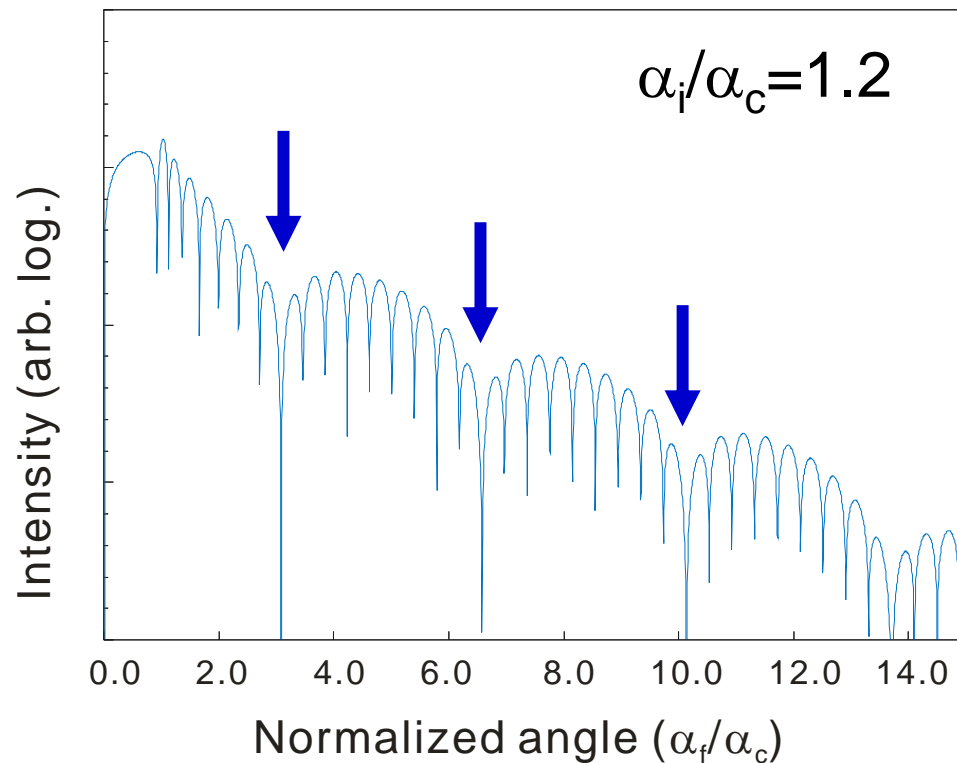
q_{xy}方向の
強度分布項

q_z方向の強度分布項

条件:

1. 界面におけるBragg反射の多重散乱効果を見捨てる
→運動学的取り扱いでのq_z方向の強度の計算が可能
2. 面内方向へ進む波と垂直方向へ進む波の相関を見捨てる
→面内方向(q_{xy})と垂直方向(q_z)の波の変数分離が可能

計算および測定結果($\alpha_i/\alpha_c=1.2$)



1. Qz方向には一回散乱のみ(運動学的取り扱い)
2. 全反射領域での入射X線強度の減少を無視
3. 超格子の界面粗さを無視
4. 入射ビームの分解能を無視

結果および今後の課題

まとめ

- 全反射X線回折法の紹介
 - 従来の斜入射X線回折法等との違い, 測定原理, 測定装置
 - 全反射X線回折法による超格子構造の解析例

今後の課題

- 全反射領域での入射X線強度変化の考慮
- 超格子界面層の粗さの考慮 (界面層の分割等)

$$S(q_z) = \chi_H^B + (\chi_H^1 - \chi_H^B) e^{-iq_z t^B} + (\chi_H^1 - \chi_H^B) e^{-iq_z (t^B + t^{QW} + mt^{ML})} + \sum_{j=1}^m (\chi_H^{j+1} - \chi_H^j) e^{-iq_z (t^B + jt^{ML})}, \quad (\chi_H^{m+1} = \chi_H^B)$$