

九州シンクロトン光研究センター 県有ビームライン利用報告書

課題番号：2408062P

B L 番号：BL07(BL15)

(様式第 5 号)

X 線逆格子マッピング法を用いた、 GaAsN/GaAs 超格子薄膜中の N 分布評価 Evaluation of N distribution in GaAsN/GaAs superlattice thin films using X-ray reciprocal space mapping

鈴木秀俊、栗崎阜成、佐久間桃子、古藤隼人
Hidetoshi Suzuki, Kosei Kurisaki, Momoko Sakuma, Hayato Koto

宮崎大学 工学部
Faculty of Engineering, University of Miyazaki

- ※ 1 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後 2 年以内に研究成果公開〔論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表〕が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※ 2 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※ 3 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より 1 人以上）。

1. 概要（注：結論を含めて下さい）

希薄窒化物半導体である GaAsN 中の N 分布を意図的に制御するため、原子層エビタキシー法を用いて GaAsN 原子層 1 層と GaAs 原子層 2,5,9 層を交互に積層した GaAsN/GaAs 薄膜に対して、詳細な N 分布を逆格子マッピング法を用いて評価した。GaAsN/GaAs 超構造膜中の平均 N 分布は均一であったが、周期が異なる領域が複数存在していた。この周期のずれは、GaAsN 原子層間に導入される GaAs 総数の増加に伴い大きくなることが見出された。

(English)

We evaluated the detailed N distribution in GaAsN/GaAs superlattice (SL) films using the reciprocal space mapping method. To control the N distribution, the GaAsN/GaAs SL films were composed of alternative growth of one atomic layer of GaAsN and 2,5,9 atomic layers of GaAs using the atomic layer epitaxy technique. The average N distribution in the GaAsN/GaAs SL films was uniform, but multiple regions with different SL periods were observed. It was found that this period shift increased with the increase in the number of GaAs layers inserted between the GaAsN atomic layers.

2. 背景と目的

高効率多接合型太陽電池の材料として、希薄窒化物半導体 InGaAsN が注目されている。しかし、N 添加による電気特性の悪化が報告されており、この原因の一つとして N 分布の不均一化が考えられている[1]。そこで我々は GaAsN に注目し、原子層エビタキシー(ALE)法を用いて N 分布を意図的に制御した GaAsN 薄膜の成長を試みている[2]。我々はこれまでに、GaAs 基板上に GaAsN 層のみ積層したものと、GaAsN 層 1 層と GaAs 層 1~9 原子層を周期的に積層した超構造薄膜(それぞれ、(1:0)、(1:1)~(1:9)と表記)を作製し構造特性の評価を行っている[3]。これまでに作製した GaAsN/GaAs 超構造では、ほぼ想定通りの構造が形成されてはいたが、周期やその傾きが異なる複数の領域が混在していることが判明している。しかし、その詳細な構造や、周期等の乱れが GaAs 層

数の違いに依存して変化するのは不明である。超構造の周期や傾きは X 線回折(XRD)法により評価することができるが、本構造は N 組成が小さく、大学が所有する通常の XRD 装置では回折強度が小さく評価が難しい。

そこで本研究課題では、ALE法で作製したGaAsN/GaAs超構造中に対して九州シンクロトロン光研究センター(SAGA-LS)の高輝度なX線を利用した逆格子マッピング(RSM)測定を行い、超構造薄膜中の詳細なN分布と、GaAs層数の違いがN分布に与える影響を明らかにすることを目的とした。

表 1 測定したGaAsN/GaAs-SL薄膜の、
1 周期あたりのGaAsNとGaAsの原子層数、全周期数、平均N組成、膜厚のまとめ。

Sample name	layers in one period		number of periods	Nominal N content (%)	thickness (nm)
	GaAsN	GaAs			
(1:2)	1	2	120	1.07	118
(1:5)	1	5	60	0.50	117
(1:9)	1	9	36	0.30	108

3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

本研究課題では、SAGA-LSのBL07およびBL15に設置されたX線回折装置を用い、GaAsN原子 1 層とGaAs原子層2,5,9層を交互に積層したGaAsN/GaAs超構造薄膜(1:2)、(1:5)、(1:9)に対して測定を行った。超構造薄膜の作製条件は参考文献[3]の通りである。測定した薄膜の平均N組成、膜厚、超構造周期を表 1 に示す。各薄膜資料の(004)Bragg回折と、その±1次の超構造回折近傍のRSM測定を実施した。入射X線のエネルギーは15 keVで、回折X線の測定には2次元X線検出器を用いた。注目する回折点近傍のRSMは、入射X線に対する検出器の角度 2θ を固定し、入射X線に対する試料の角度 ω を変化させて測定した。

4. 実験結果と考察

測定例として、(1:2)試料の(004)近傍と、+1, -1 次の超格子回折ピーク近傍の RSM 図をそれぞれ図 1(a),(b),(c)に示す。(004)近傍には GaAs 基板と GaAsN/GaAs 超構造に起因するピークが観察される。回折ピークの $[\bar{1}10]$ 方向への広がり、試料に入射した X 線ビームサイズの $[\bar{1}10]$ 方向の広がりに対応する。GaAsN ピークは GaAs ピークと平行に広がっており、X 線の照射範囲で格子定数が均一であることを示している。つまり、N 組成が入射 X 線のビームサイズの範囲で均一であることを示している。図 1(b)(c)は±1 次の超格子(SL)回折ピークを示しているが、それぞれ逆方向に傾斜したピークの広がりが観察される。この結果は、X 線が照射された試料の左右で平均 N 組成は同じであるが超構造周期が異なることに対応しており、GaAsN/GaAs 超構造内に周期が異なる領域が複数存在していることを示している。

今回測定した(1:5)と(1:9)試料においても、SL 回折ピークで同様の傾きが観察された。そこで、それぞれの逆空間中の位置から各超構造中の周期のズレを算出した。同一試料内での周期のズレのGaAs 層数に対する変化を図 2 に示す。いずれも、GaAs 層数の増加に伴って大きくなっている。これは、GaAs 層数が増加するにつれて SL 中の周期の乱れが大きくなることを示している。

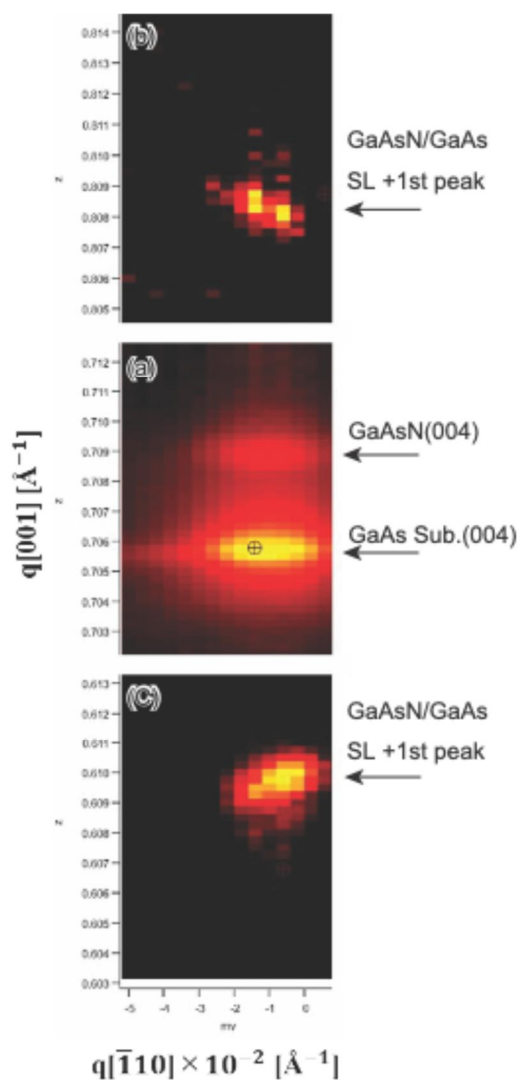


図 1：(1:2)試料の逆格子マッピング測定結果。
(a)004Bragg 回折近傍、(b)+1 次、(c)-1 次の SL
ピーク近傍。

5. 今後の課題

今回は、GaAsN 原子層成長と GaAs 原子層成長を組み合わせで作製した GaAsN/GaAs-SL 薄膜に対して、詳細な N 分布の評価を逆格子マッピング測定により行った。その結果、照射した X 線のビームサイズ内で N 組成は均一であるが、超構造周期が異なる複数の領域が存在することが見出された。超構造周期が変化した要因を明らかにするためにも、作製した試料面内での詳細な周期変化を評価する必要がある。また、現在、より均一に N 分布を制御するための成長条件を模索する必要がある。

6. 参考文献

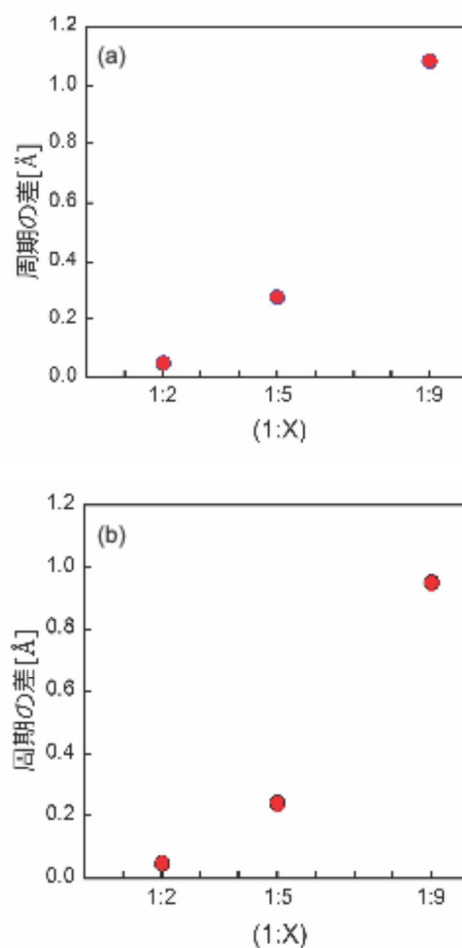


図 2：GaAsN 層の間に導入した GaAs 原子層の層数に対する超構造周期のズレの変化。Bragg ピークと(a)+1 次からの計算値、(b)-1 次からの計算値。

- [1] “Effects of gas-flow sequences on the self-limiting mechanisms of GaAsN films grown by atomic layer epitaxy”, H. Suzuki, H. Sadato, T. Haraguchi, T. Yamauchi, M. Ozeki, T. Ikari, Thin Solid Films 540, 79-83 (2013).
- [2] “Electrical properties of GaAsN/GaAs-superlattice films with different N distributions fabricated by atomic layer epitaxy” M. Kawano, T. Haraguchi, H. Suzuki, J. Cryst. Growth 649 127915 (2025).
- [3] “Growth and structural evaluation of GaAsN/GaAs superlattice films with different N distributions grown by atomic layer epitaxy” H. Koto, M. Kawano, H. Suzuki, J. Appl. Phys. 64 04SP36 (2025).

7. 論文発表・特許（注：本課題に関連するこれまでの代表的な成果）

なし（2025 年秋の応用物理学会で口頭発表予定であり、参考文献[3]の結果との比較を含めて論文投稿準備中である）

8. キーワード（注：試料及び実験方法を特定する用語を 2～3）

希薄窒化物半導体、化合物太陽電池、逆格子マッピング

9. 研究成果公開について

① 論文（査読付）発表の報告 （報告時期： 2026 年 2 月）