

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 2 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760250

研究課題名(和文)フェムト秒パルス収束電子線によるワイドギャップ窒化物半導体の時空間同時分解計測

研究課題名(英文) Spatio-time-resolved cathodoluminescence measurement for wide bandgap nitride semiconductors

研究代表者

羽豆 耕治 (Hazu, Kouji)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：30367057

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：低転位密度c面GaN局所キャリアダイナミクスを、時間空間同時分解カソードルミネッセンス測定によって評価した。前面入射型光電子銃の高光電子放出効率化により低加速電圧で表面下の欠陥構造評価が可能となった。高分解能カソードルミネッセンス測定により反転領域界面近傍で、非輻射再結合チャネルの視覚化できるようになった。

研究成果の概要(英文)：Local carrier dynamics in a low dislocation density c-plane GaN were studied by the spatio-time-resolved cathodoluminescence measurement. A high photoelectron emission efficiency of the front-excitation-type photoelectron-gun enabled to investigate sub-surface defect structures with low acceleration voltages. High-resolution cathodoluminescence imaging allows for visualization of nonradiative recombination channels in the vicinity of accidentally formed inversion domain boundaries.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物性・結晶工学

キーワード：光物性 時空間同時分解カソードルミネッセンス計測

1. 研究開始当初の背景

固体結晶における転位や積層欠陥等のマクロ欠陥や点欠陥は、ナノメートル台の微細領域で発生し、キャリアや光の散乱中心や非輻射中心として働くため、低次元構造やナノ構造、バルクの特性を左右する。一方、発光性能を決める輻射寿命は、ナノ構造体の次元・サイズにより変化する。すなわち、ナノ領域における輻射寿命と非輻射寿命の定量化は、材料本質の評価にもデバイス高性能化にも必須である。自空間同時分解計測法として、フェムト秒チタンサファイアレーザを励起光源に用い、発光を近接場光として観測する SNOM 法が国内外で市販されているが、励起できる物質が光源波長に制限され、空間分解能がプローブ径に依存するため、励起領域が最少でも数十 nm 程度と広く、測定領域は吸収長内の表面付近であるという制限がある。特に、深紫外線 LED 開発を考えた場合、市販のフェムト秒レーザの 3 倍高調波、4 倍高調波では励起できないワイドバンドギャップ半導体の自空間同時分解計測を行う必要があり、その励起光源として、フェムト秒パルス収束電子線の利用が有効な手段である。

2. 研究の目的

フェムト秒レーザの 4 倍高調波を用いて AlN 薄膜の時間分解フォトルミネッセンス (TRPL) 測定を行い、高品位 AlN 薄膜の極低温における輻射寿命が 10ps 程度と定量化した。この値は他の II-VI、III-V 化合物半導体の報告値に比べ遥かに短く、AlN が極めて輻射性に優れていることを世界に先駆け示した。一方、転位密度が上述の高品位 AlN 薄膜の 2 桁高い AlN 薄膜では輻射寿命が長かった。かような輻射寿命の違いの原因を明かにする必要がある。ところが、4 倍高調波のパルス当りのパワー密度は  $40\text{ nJ}\cdot\text{cm}^{-2}$  と極めて低く、光学素子の反射・吸収損失を考慮すると SNOM 法による時空間同時分解計測は非常に困難であることが予想される。アンモニアソース MBE ( $\text{NH}_3$ -MBE) 法および有機金属化学気相エピタキシャル (MOVPE) 法により AlN 薄膜や高 AlN モル分率 AlGaN 混晶を成長し、フェムト秒パルス収束電子線を用いた時空間同時カソードルミネッセンス (STRCL) 測定により、ワイドバンドギャップ窒化物半導体の構造欠陥やドメイン構造・点欠陥が非輻射寿命に与える影響と、ナノ構造体サイズが輻射寿命に与える影響を把握する。

3. 研究の方法

Au で修飾したフィラメント材を真空槽内に設置し、合成石英窓を通じ、モードロック  $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ti}$  レーザの発生する 80 フェムト秒光パルスの 3 倍高調波 (ここで 100 フェムト秒程度) を照射する表面入射配置にて光電子を発生させる。光電子放出自体は高速応答する

物理現象なため、金属端から飛び出す時点でのパルス時間幅増加は少ない。STRCL 測定は、SEM 像により位置を確定して計測を行うことに意義がある。このため、高輝度収束パルス電子線を用いて二次電子像を撮像する必要がある。これを満たすための電子数は既知であるため、条件を最適化することにより、良好な SEM 像の観察を可能とした。微細領域での発光ダイナミクス解析を行って欠陥やドメイン構造・点欠陥が非輻射寿命に与える影響を把握した。

4. 研究成果

(1) 前面入射型と背面入射型光電子銃の出力を比較するため、厚さ 20nm の Au 薄膜を図 1 (a) に示す装置内に設置した。光電子電流値を測定するため、ファラデーカップを試料台の上部に設置した。取り出し電圧と加速電圧は 7.5kV、12kV で測定した。図 1 (b) に示すように、前面入射型光電子銃の出力が背面入射型のそれより高いことが分かる。これは、背面入射型では、Au 薄膜の光学損失を考慮することで解釈される。前面入射型光電子銃では、高密度励起領域で飽和傾向を示したが、これは、Au 電極面が薄いため損傷したためと考えられ、厚膜 Au 電極を用いると飽和は観測されなかった。

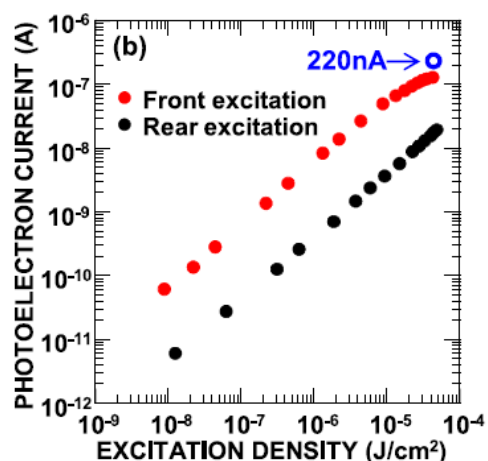
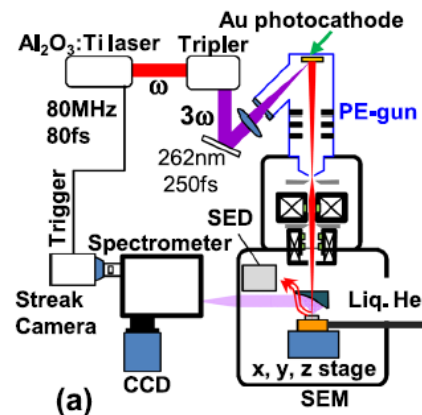


図 1 (a) 前面入射型 STRCL 装置図、(b) チタンサファイアレーザの 3 倍高調波の励起密度と光電子電流の関係

(2) HVPE 成長した 0.5mm 厚の自立 GaN 基板を測定した。試料 A1 と A2 の電子密度はそれぞれ  $3 \times 10^{18}$ 、 $2 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$  である。各試料の刃状転位密度は X 線ロッキングカーブの半値全幅から試料 A1 は  $6.6 \times 10^6$ 、B1 は  $6.3 \times 10^6 \text{cm}^{-2}$  と見積もられた。試料 A1 の室温での広域 PL スペクトルを図 2 (a) に示す。スペクトルには 3.373eV にバンド端近傍(NBE)の発光(半値全幅: 73meV)、3.28eV に L0 フォノンレプリカが観測された。2.2eV 付近のブロードな発光の強度は NBE 発光強度の 3 桁以上低かった。試料 A2 のスペクトルも A1 と同じスペクトルを示し、2 つの試料が高品質であることが変わる。図 2 (b) に試料 A1 の NBE 発光の室温での時間分解 PL (TRPL) 信号を試料内で異なる 3 点で測定した結果を示す。TRPL 信号の速い減衰時間( $\tau_1$ )は測定位置によって 0.47 から 1.24ns と異なるものの、それらのスペクトルは変化していなかった。この結果から、室温での非輻射寿命( $\tau_{NR}$ )は試料の場所によって異なることが分かった。

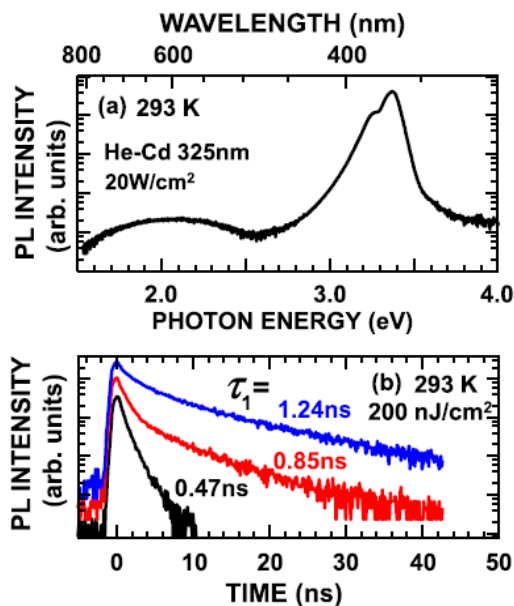


図 2 自立 GaN 基板試料 A1 の (a) 293K での広域 PL スペクトル、(b) 293K での TRPL 信号。

(3) NBE 発光の局所  $\tau_{NR}$  と発光強度の空間分布を可視化するため、試料 A1 の inversion domain boundaries (IDBs) 付近を STRCL 測定した。図 3 (a) に SEM 像を、(b) に 293K (c) に 20K での NBE 発光強度マッピング像を示す。発光強度マッピング像はプローブ電流値 100pA で測定した。SEM 像には、IDBs による台形のくぼみと暗点が観測された。暗点部は図 3 (b) の 293K での発光強度マッピング像でも観測された。293K での発光強度マッピング像には、非輻射再結合中心 (NRCs)

の空間分布による複雑な構造が観測され、その空間分解能はキャリアの拡散距離によって制限される。低温では NRCs は凍結されるため、図 3 (c) で観測される暗線と暗点は試料自体の欠陥または強い NRCs の存在によるものと考えられる。

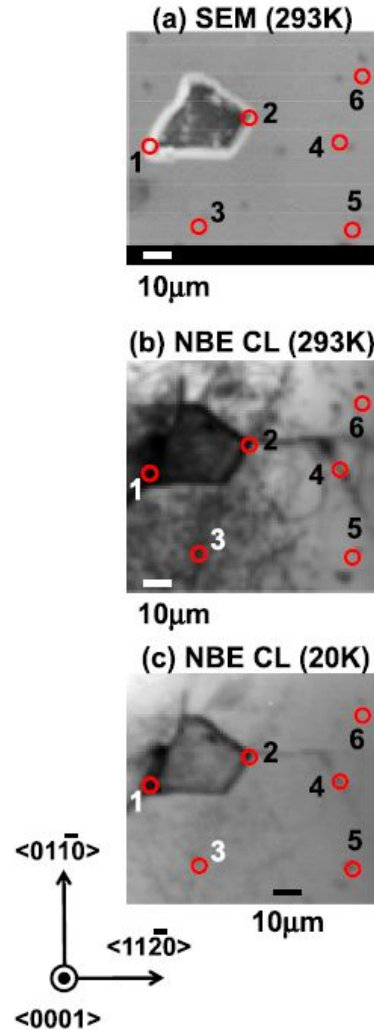


図 3 試料 A1 の (a) SEM 像、(b) 293K、(c) 20K での NBE 発光強度マッピング像

(4) 図 3 に記載した場所でそれぞれ観測した時間積分スペクトルを図 4 (a) に TRCL 信号を図 4 (b) に示す。これらの測定はプローブ電流値 25pA で行った。この条件ではパルスあたり 2 個の電子を打ち込むことに相当し、励起される電子・正孔対は 2000 以下である。NBE 発光ピークは 3.38eV (半値全幅: 90meV) で図 2 (a) と変わらないものの、台形の周辺では若干のレッドシフトが観測された。これは、局所的な歪ないしは残留キャリア密度の増加によるものと考えられる。TRCL 信号は 2 つの指数関数の重ね合わせでフィッティングでき、速い減衰時間 ( $\tau_1$ ) は測定場所によって異なっていた。293K での発光

強度マッピングの欠陥付近の $\tau_1$ の減少は、室温の $\tau_1$ は $\tau_{NR}$ によって支配されるため、NCRsの再結合が増強されたためだと考えられる。一方、低温では $\tau_1$ は測定場所に依らず180psであった。これは低温では輻射寿命( $\tau_{NR}$ )によって支配されるためである。

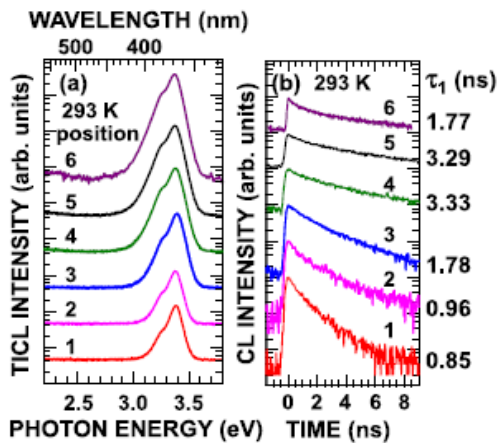


図4 (a)時間積分 CL スペクトルと (b) TRCL 信号の測定場所依存性

(5) 局所等価内部量子効率を293Kと20KでのNBE発光スペクトルの積分強度から算出した。試料A1とA2の結果を図5に示す。また、図5には自立GaN基板の広域PL測定から得られた最高値とGaNテンプレートの値を共にプロットした。局所測定がより高密度励起のため高い値を示す傾向があるものの、STRCL測定では、NRCsによる影響を受けない非常に高効率に発光する領域を選択的に評価することができることが分かった。この結果から、図3の位置4番で最高となる20%が得られ、そこでの $\tau_1$ は3.33nsであった。

STRCL測定によって局所的なキャリアのダイナミクスを観測することができることが分かり、よりバンドギャップエネルギーの大きい、AlNやAlGaIn混晶への展開が期待される。

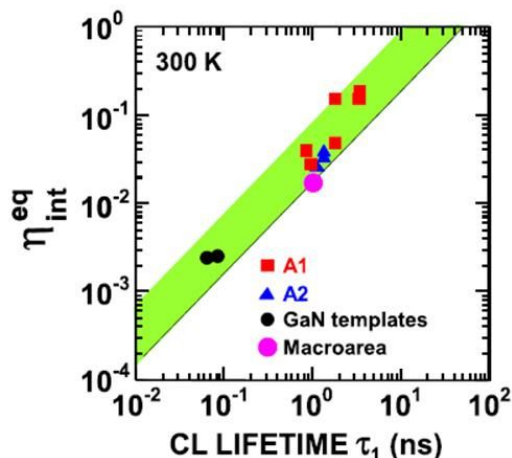


図5 自立 GaN 基板の等価内部量子効率

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

(1) K. Furusawa, M. Tashiro, K. Hazu, S. Nagao, H. Ikeda, K. Fujito, and S. F. Chichibu, "Local carrier dynamics around the sub-surface basal-plane stacking faults of GaN studied by spatio-time-resolved cathodoluminescence using a front-excitation-type photoelectron gun", Applied Physics Letters vol. 8, pp. 042108 1-4 (2013).

(2) Y. Ishikawa, M. Tashiro, K. Hazu, K. Furusawa, H. Namita, S. Nagao, K. Fujito, and S. F. Chichibu, "Local lifetime and luminescence efficiency for the near-band-edge emission of freestanding GaN substrates determined using spatio-time-resolved cathodoluminescence", Applied Physics Letters vol.101, pp. 212106 1-4 (2012).

〔学会発表〕(計5件)

(1) 石川陽一, 古澤健太郎, 田代公則, 羽豆耕治, 長尾哲, 池田宏隆, 藤戸健史, 秩父重英, "高輝度表面入射型パルス電子銃を搭載した時間空間分解カソードルミネセンス装置によるHVPE成長GaIn基板の評価", 第60回応用物理学会春季学術講演会(30p-G21-3), 2013年3月30日, 神奈川工科大学.

(2) K. Furusawa, Y. Ishikawa, M. Tashiro, K. Hazu, S. Nagao, K. Fujito, A. Uedono, and S. F. Chichibu, " ", International Workshop on Nitride Semiconductors 2012 (IWN2012), Sapporo, Japan, Oct. 14-19 2012, No. MoP-GR-54.

(3) 古澤健太郎, 石川陽一, 田代公則, 羽豆耕治, 秩父重英, "表面入射型パルス光電子銃を搭載した時間空間分解カソードルミネセンス装置によるワイドバンドギャップ半導体の評価", 第73回応用物理学会学術講演会(12p-H10-21), 2012年9月12日, 愛媛大学・松山大学.

(4) 秩父重英, 羽豆耕治, 石川陽一, 田代公則, 古澤健太郎, 長尾哲, 藤戸健史, "m面GaIn基板にNH<sub>3</sub>-MBE成長したAl<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>Nの時間空間分解CL評価-GaN基板のチルトモゼイクが発光特性に及ぼす影響-", 第73回応用物理学会学術講演会(12p-H10-22), 2012年9月12日, 愛媛大学・松山大学.

(5) 石川陽一, 田代公則, 羽豆耕治, 古澤健太郎, 小南裕子, 原和彦, 秩父重英, "六方晶BN微結晶の時間・空間分解カソードルミネセンス評価", 第73回応用物理学会学術講演会(12p-H10-23), 2012年9月12日, 愛

媛大学・松山大学。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

羽豆 耕治 (HAZU KOUJI)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：30367057

(2) 研究分担者

なし

研究者番号：

(3) 連携研究者

なし

研究者番号：