

令和元年8月30日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04330

研究課題名(和文)窒化ガリウムからのテラヘルツ放射機構の解明と物性評価への応用

研究課題名(英文) Investigation of terahertz emission mechanism on gallium nitride and its application to evaluation method

研究代表者

川山 巖 (Kawayama, Iwao)

大阪大学・レーザー科学研究所・准教授

研究者番号：10332264

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,600,000円

研究成果の概要(和文)：自発分極がc軸方向に存在するm面 GaN をレーザーテラヘルツ放射顕微鏡(LTEM)により観察し、自発分極により放射THz波が増強されていることを確認し、分極反転ドメインの特定に成功した。さらに、放射されたTHz波を二つのワイヤーグリッド偏光子に通して、片方のワイヤーグリッドを90度回転させることにより、THz波の偏光のx成分とy成分の分布を取得し、この2つの偏光成分を合成することにより、任意のベクトル量をもつm-GaNの表面の局所分極を可視化することに成功した。本手法により、ドメイン内部における分極の変化の様子がより鮮明にイメージングすることが可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、次世代高速・省エネルギーパワーデバイス材料として期待されている窒化ガリウム結晶を、独自に開発したレーザーテラヘルツ放射顕微鏡を用いて観察し、観測されたTHz放射の波形・強度を分析することにより、従来手法では困難な、窒化ガリウム表面における格子欠陥・転位、不純物、および分極構造を評価することに成功した。これは、GaN結晶およびデバイスの品質向上に大きく貢献する成果である。

研究成果の概要(英文)：We observed m-plane GaN in which spontaneous polarization exists in the c-axis direction using a laser terahertz radiation microscope (LTEM), and confirmed that the THz emission is enhanced by spontaneous polarization, and succeeded in specifying the inversion domain. We also passed the THz wave through two wire grid polarizers, rotated one wire grid by 90 degree, and obtained the distribution of the x and y components of the polarization of the THz wave, and combined these two polarization components to visualize the local polarization of the m-GaN surface. This technique makes it possible to image changes in polarization in the domain more clearly.

研究分野：材料物性

キーワード：テラヘルツ波 ワイドギャップ半導体 窒化ガリウム 分極 イメージング

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

窒化ガリウム(GaN)はLEDなどの発光デバイスとしてすでに広く普及しているが、低損失かつ高速な次世代省エネルギーパワーデバイス材料としても注目を浴びている。しかしながら、その結晶品質は十分とは言えず、欠陥・転位密度の抑制が必須である。また、GaNはc軸方向に自発分極を持つためc面に大きな分極が発生する。このことは接合界面に容易に2次元電子ガス層を形成できるため、高速デバイスとして有利な面もあるが、ゼロバイアスにおいても、チャンネルに高電圧が発生する、いわゆる“ノーマリーオン”状態となるため、安全性の面で大きな問題となっている。そのため、GaNの局所的な欠陥・転位密度や表面分極の大きさを、非接触かつ高感度に計測する手法の開発が望まれている。

研究代表者は、テラヘルツ(THz)波の透過・反射を利用する通常のTHz分光法とは異なり、試料そのものから発生するTHz波に着目した分光・イメージング手法であるレーザーTHz放射顕微鏡/分光法(LTEM/LTES)を開発し、様々な材料やデバイスに適用してきた。超短パルスレーザーを物質に照射したときに放射されるTHz波は、瞬間的な電流もしくは分極の変化によって発生する。すなわち、THz放射の波形はレーザーの照射による励起キャリアや分極のサブピコ秒オーダーの動的変化を反映している(図1)。

研究代表者はこの手法により、強誘電体の自発分極[1]、グラフェンの吸着分子[2]、太陽電池の欠陥評価[3]など、様々な材料やデバイスの評価が可能であることを示してきた。そして図2に示すように、GaN基板において、格子欠陥に由来するフォトルミネッセンス(PL)像とLTEM像がほぼ一致しており、GaNからのTHz放射強度が格子欠陥により増強することを見いだした。[4]。本現象のメカニズムの詳細を明らかにし、光励起キャリアや表面分極をダイナミックに計測する手法を確立することにより、GaN結晶およびデバイスの画期的な評価手法として展開することにより、GaNを用いた半導体パワーデバイス開発に貢献できると考えた。

2. 研究の目的

図3(a)はGaN表面からのテラヘルツ放射メカニズムを示す概念図である。励起レーザーパルスにより発生したキャリアが、表面のバンドの曲がりにより加速し瞬時電流として流れる(表面サージ効果)。このサージ電流がTHz波の放射源となる。我々が発見した不純物・欠陥によるTHz波増強現象のメカニズムとしては図3(b)のように考えている。PL発光の原因となる不純物・欠陥準位はアクセプタとして働くことが知られている[5]。不純物・欠陥準位にトラップされた電子により表面ポテンシャルが増加し表面付近のバンドが押し上げられ、その結果、表面付近で励起されたキャリアの加速が促進され、サージ電流が増加すると現在は解釈している。

本研究では、THz放射波形・強度の結晶面方位依存性から、上記のような仮説を検証し、THz波放射強度・波形と格子欠陥・転位、不純物、および分極構造との相関を明らかにすることが目的である。本研究により得られた知見を元に、LTEM/LTESをGaN基板およびデバイスの評価手法として確立することを目指す。

3. 研究の方法

超短パルスレーザー励起したGaNからのTHz放射機構を明らかにし、GaN基板およびデバイス評価手法としての有用性を検証するために、面方位の異なるGaNからのTHz放射計測を行い、表面分極や自発分極の影響を検証した。図4に計測システムの模式図を示す。光源としてチタンサファイアレーザーを用いた。発振波長は690~1050nmと可変であり、100fs程度のパルス幅を持ち、繰り返し周期は80MHzである。こ

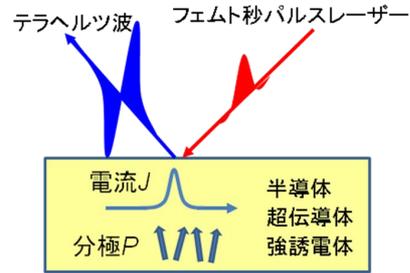


図1 テラヘルツ波放射顕微鏡の概念図

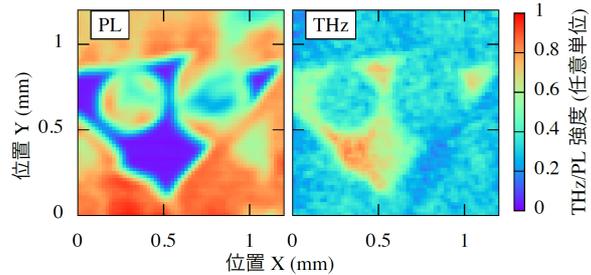


図2 GaN(0001)面のPL像とLTEM像

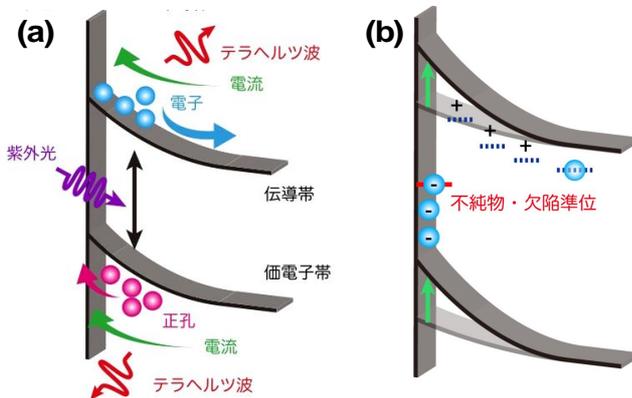


図3 (a)GaN表面からのTHz波放射メカニズム、(b)不純物・格子欠陥によるTHz波増強効果の概念図。

の基本波を非線形光学結晶(BBO、BIBO)により第二高調波および第三高調波を発生させ、これを励起光として用いた。励起光を対物レンズにより測定試料上に集光した。発生した THz 波は放物面鏡によりコリメートされ、検出器上に集光される。検出器にはダイポール型の光伝導アンテナを用い、トリガー光にはチタンサファイアレーザーの基本波を用いた。ファイバー分光器によりフォトルミネッセンス(PL) も同時に測定した。測定試料には市販の n 型 c 面および m 面 GaN 基板を用いた。

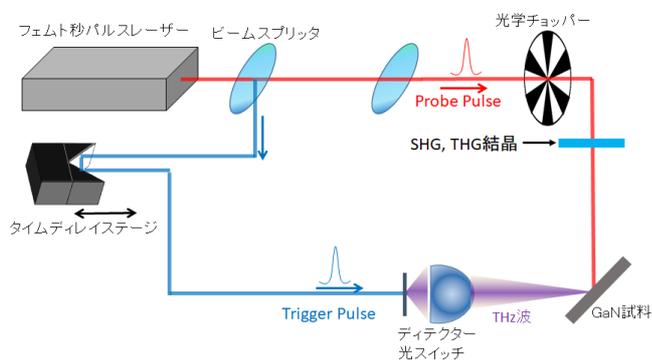


図4 レーザーTHz放射顕微鏡システムの模式図。

#### 4. 研究成果

図5は、測定した m 面 GaN の結晶軸と、放射された THz 波および励起レーザーパルスの偏光との関係を示す。励起レーザーは  $45^\circ$  の角度で入射し、入射面に垂直に偏光している(s 偏光)。GaN 表面から放射された p 偏光 THz 波のみがワイヤグリッド偏光子を通過し、 $45^\circ$  の放射角で検出される。試料回転角  $\theta$  は、入射面と m 面との交点と c 軸に平行な  $[0001]$  方向とのなす角度である。6(a) は、 $\theta=0^\circ$  における m 面 GaN の LTEM 画像を示し、挿入図は同じ領域を測定した PL 像である。図 6(b) は図 6(a) における点 A、B および C のそれぞれの領域における THz 放射波形である。この THz 放射波形における約 5.2ps のピーク振幅の分布が図 6(a) の LTEM 像である。この LTEM 像には、三つの異なる種類の領域が見られる。すなわち、点 A で示されている小さな青い領域、点 B を含む  $x=0.8$  mm、5.2 mm 付近の  $[0001]$  方向(c 軸)に垂直な赤い線状の領域、および点 C を含むこの赤い線の間を薄赤の領域である。赤色は正の THz 振幅を示し、青色は負の THz 振幅を示している。

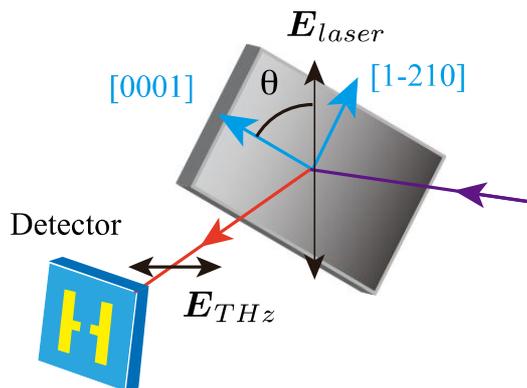


図5 m 面 GaN 表面からの THz 波放射の偏光角依存性。

c 軸に垂直な線状の領域は、以下のように考察できる。m 面 GaN 基板は c 方向への何度も積層を繰り返した GaN 薄膜ををスライスすることによって得られる。その際の、断続的に成膜を行っており再成長させた界面付近は欠陥密度が高いと考えられる。c 面 GaN の結果より欠陥密度が高い場所は THz 放射強度が高いことが予想されるため、この点 B を含む線状領域は、GaN の再成長界面であると考えている。次に注目すべき点は、点 A からの THz 放射波形の位相が、点 B、C における THz 放射波形の位相から  $180^\circ$  度反転していることである。先に説明した線状領域は挿入図から分かるように、PL 像でも観察できる。しかしながら、位相の反転している点 A との違いは明瞭ではない。GaN は c 軸方向に分極があり、THz 波の振幅はこの方向と一致している。つまり、テラヘルツ波の振幅を計測することにより、分極の大きさと方向を計測出来ることを意味する。これらの結果から、点 A を含む領域は、成長中に c 軸方向が反転した、いわゆる分極反転ドメインからの放射であると考えられる。このように、LTEM を用いることにより、GaN パワーデバイスの特性に大きく影響を与える、表面分極の測定が可能であることを

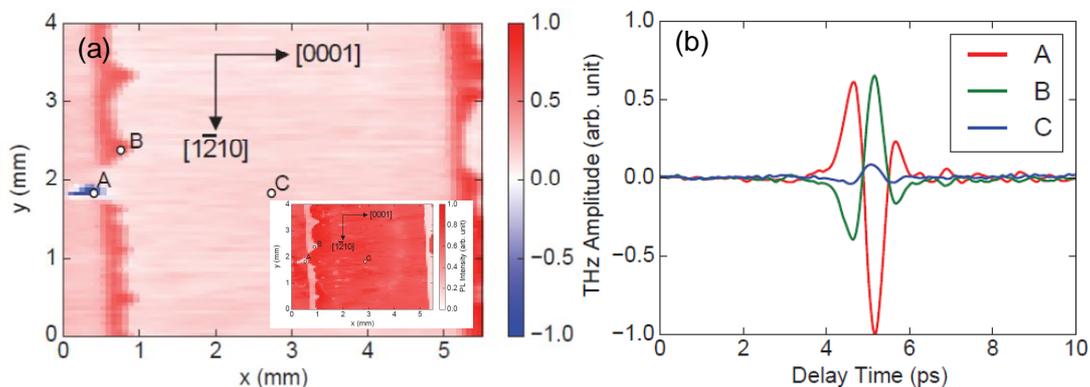


図6 m 面 GaN の(a) LTEM 像と(b) THz 放射波形

実証した。また、PL では明瞭に観察できない分極反転ドメインのイメージングにも成功した[6]。

さらに、我々はTHzベクトルイメージングの手法を取り入れ、任意のベクトル量をもつm面GaNの表面の局所分極を可視化することを試みた。m面GaN表面から放射されたTHz波を二つのワイヤグリッド偏光子に通して、片方のワイヤグリッド(図7のWG1)のみを90°回転させることにより、THz波の偏光のx成分とy成分の分布を取得する。この2つの偏光成分を合成することにより分極のベクトルイメージを取得することが可能となる。図3は、このような手法で撮った、m面GaNの表面分極のベクトルイメージである。矢印の長さがTHz波ピーク強度、向きがTHz波ピークの向きであり、表面分極を表していると考えて良い。図の-y軸方向がGaNのc軸方向であり、実線で囲んだ部分はTHz波の偏光方向とc軸方向がほぼ一致している。一方、破線で囲まれた部分は全体として-c軸方向に向いており、分極反転ドメインであることがわかる。さらに今回のデータからは、マクロには表面分極はc軸方向と平行であるが、ミクロにはかなりの分布があることが分かる。

このように、本研究の目的であった「THz放射波形・強度の結晶面方位依存性から、THz波放射強度・波形と格子欠陥・転位、不純物、および分極構造との相関を明らかにする」ことをほぼ達成し、かつPL測定では取得することが困難な分極反転ドメインのイメージングに成功するなど、LTEMがワイドギャップ半導体評価法として示すことができた。

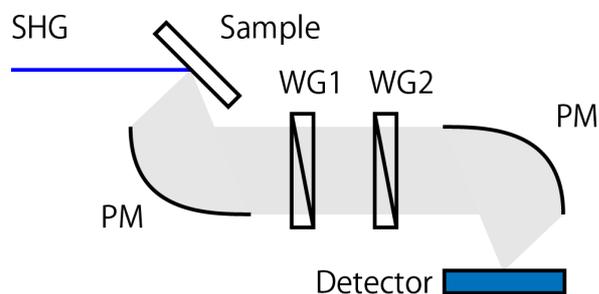


図7 ベクトルイメージングシステムの模式図

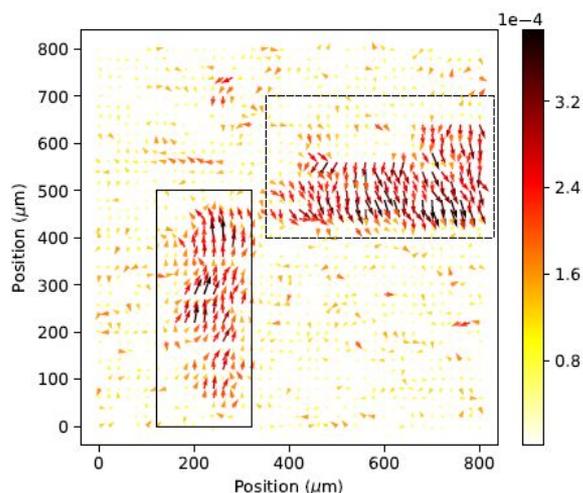


図8 m面GaNの表面分極のベクトルイメージ

#### <引用文献>

1. D. S. Rana *et al.*, *Adv Mater.* **21**, 2881(2009)
2. Y. Sano *et al.*, *Sci Rep.* **4**, 6046 (2014)
3. H. Nakanishi *et al.*, *Appl. Phys. Exp.* **5**, 112301(2012)
4. Y. Sakai, *Sci Rep.* **5**, 13860 (2015)
5. M. A. Reshchikov *et al.*, *Phys. Rev. B*, **90**, 235203 (2014)
6. Y. Sakai *et al.*, *APL Photonics* **2**, 041304 (2017)

#### 5. 主な発表論文等

##### [雑誌論文](計2件)

1. Y. Hotta, I. Kawayama, S. Miyake, I. Saiki, S. Nishi, K. Yamahara, K. Arafune, H. Yoshida, S. Satoh, N. Sawamoto, A. Ogura, A. Ito, H. Nakanishi, M. Tonouchi, and H. Tabata, “Control of dipole properties in high-k and SiO<sub>2</sub> stacks on Si substrates with tricolor superstructure”, *Appl. Phys. Lett.* Vol. 113, 012103 (2018)、査読あり
2. Yuji Sakai, Iwao Kawayama, Hidetoshi Nakanishi, and Masayoshi Tonouchi, “Polarization imaging of imperfect m-plane GaN surfaces”, *APL Photonics* Vol. 2, 041304 (2017); doi: 10.1063/1.4979511、査読あり

##### [学会発表](計15件)

1. Iwao Kawayama, “Terahertz emission spectroscopy and imaging for energy saving material/device development”, The 2nd International Conference on Advanced Materials and Processes for Environment, Energy and Health(iCAMP2018), Montreal, Canada, 2018/10/31-2018/11/2
2. Jian Hao, Gong Chen, Tatsuhiko Nishimura, Hidetoshi Nakanishi, Hironaru Murakami, Masayoshi Tonouchi, Iwao Kawayama, “Characteristics of Laser-Induced Terahertz Emissions from Gallium Oxide Surfaces”, 25th INTERNATIONAL WORKSHOP ON OXIDE

ELECTRONICS(iWOE25), Switzerland, 2018/9/30-2018/10/3

3. Iwao Kawayama, “Evaluation of semiconductor materials and devices by laser-induced terahertz emissions”, SPIE Optical Engineering + Applications Conference, San Diego, United States, 2018/8/19-2018/8/23
4. Iwao Kawayama, “Terahertz emission spectroscopy of wide band gap semiconductors”, Collaborative Conference on Materials Research 2018(CCMR2018), Incheon, South Korea, 2018/6/25-2018/6/29
5. Iwao Kawayama, “Probing interface potential of semiconductor heterostructures with laser terahertz emission spectroscopy”, The 9th International Symposium on Ultrafast Phenomena and Terahertz Waves(ISUPTW2018), Changsha, 4China, 2018/4/24-2018/4/26
6. 川山 巖, “テラヘルツ放射分光・イメージングによる半導体材料・デバイス評価”, 電子情報通信学会電子デバイス研究会 (ED) テラヘルツ応用システム研究会 (THz), 2018/11/7-2018/11/8, 東北大学電気通信研究所
7. Iwao Kawayama, “Laser-excited thz system for solar cell evaluation”, The 4th International Symposium on Microwave/Terahertz Science and Applications, The 8th International Symposium on Terahertz Nanoscience, Current trends in Optical and X-Ray metrologies of key enabling nanomaterials/devices for the Ubiquitous Society, renewable energy and health(MTSA2017-OptoX- Nano-TeraNano 8), Okayama Convention Center, Japan, 2017/11/19-11/23
8. Iwao Kawayama, “Polarization imaging of GaN using laser terahertz emission microscopy”, 4th Japan-Korea International Symposium on Materials Science and Technology 2017(JKMST2017), Osaka, Japan, 2017/8/24-8/26
9. Yuji Sakai, Iwao Kawayama, Hidetoshi Nakanishi, Masayoshi Tonouchi, “Imaging Polarization in GaN Surfaces by Laser Terahertz Emission Microscopy”, CLEO Technical conference 2017(CLEO2017), San Jose Convention Center, San Jose, California, USA, 2017/5/14-2017/5/19
10. 川山 巖, “新電子材料の光・テラヘルツ機能創製と規デバイス応用”, 岡山大学 ナノ材料シンポジウム, 2018/1/5-1/6, 岡山大学
11. Iwao Kawayama, “Detection of Non-Radiative Inversion Domain in GaN with Terahertz Emission Microscopy”, 5th Russia-Japan-USA-Europe Symposium on Fundamental & applied Problems of Terahertz Devices & Technologies(RJUSE-TeraTech-2016), Sakura Hall, Katahira Campus Tohoku University, Sendai, Japan, 2016/10/31-2016/11/4
12. Yuji Sakai, Iwao Kawayama, Hidetoshi Nakanishi, Masayoshi Tonouchi, “Detection Of Non-Radiative Defects In GaN With Laser THz Emission Microscopy”, IRMMW-THz 2016 (IRMMW2016), Bella Center Copenhagen, Denmark, 2016/9/25-2016/9/30
13. Iwao Kawayama, “Laser terahertz emission microscope for the inspection of semiconductor materials and devices”, Asia-Pacific Laser Symposium(ALTA2016), Seogwipo KAL hotel, Jeju Island, Korea, 2016/5/10-2016/5/14
14. 川山 巖, “テラヘルツ顕微鏡で見る省エネルギー材料・デバイス～持続可能社会の実現に貢献する先端計測技術～”, 生産技術振興協会主催 平成 28 年度ハイテクセミナー「テラヘルツ波イメージング革命～見えないものが見えてくる～」, 42683, 島津マルチホール(大阪)
15. 酒井 裕司, 川山 巖, 中西 英俊, 斗内 政吉, “テラヘルツ波放射による m 面 GaN の自発分極の評価”, 応用物理学会 2016 年秋季学術講演会, 2016/9/13-2016/9/16, 朱鷺メッセ (新潟コンベンションセンター)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

なし

## 6. 研究組織

研究協力者氏名：酒井 裕司、中西 英俊、斗内 政吉

ローマ字氏名：Yuji Sakai, Hidetoshi Nakanishi, Masayoshi Tonouchi