

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H04810

研究課題名(和文) 深紫外時空間スペクトロスコープの開拓による超ワイドギャップ半導体の光物性解明

研究課題名(英文) Optical properties of super-widegap semiconductors studied by time and spatially resolved deep-ultraviolet spectroscopy

研究代表者

石井 良太 (Ishii, Ryota)

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：60737047

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、深紫外(波長：200-300 nm)における時空間スペクトロスコープの開拓とそれによる超ワイドギャップ半導体の光物性解明を目的としたものである。本研究成果として、前者については、世界最短波長で動作する室温深紫外近接場光学顕微鏡の開発に成功した。後者については、深紫外フォトルミネッセンス分光法を用いてダイヤモンドの同位体効果が励起子光物性に与える影響を解明、ナノ多結晶ダイヤモンドからの深紫外発光の観測、窒化アルミニウムガリウム量子井戸構造からの局在発光を観測した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

空気中を漂うウイルス(例えばコロナウイルスやインフルエンザウイルス)の滅菌に深紫外光の照射が有効であることがわかっている。しかしながら、現行の深紫外光源の発光効率も低く、深紫外光源の材料となる超ワイドギャップ半導体の光物性解明が望まれている。そこで本研究は、高効率深紫外発光光源の実現を目指して、未成熟である深紫外分光技術の深化とそれによる超ワイドギャップ半導体の光物性解明に取り組んだ。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to explore time and spatially resolved deep ultraviolet spectroscopy and to reveal the optical properties of ultra-wide bandgap semiconductors. In the former, we developed a deep-ultraviolet scanning near-field optical microscope which has the shortest excitation wavelength ever reported. In the latter, we revealed the isotopic effect on excitons in diamond using deep-ultraviolet photoluminescence spectroscopy. We observed a deep-ultraviolet emission from nano-polycrystalline diamond. We observed localized emissions from AlGaIn quantum well structures using a deep-ultraviolet scanning near-field optical microscope.

研究分野：半導体光物性

キーワード：深紫外分光 近接場分光 励起子 ダイアモンド 窒化物半導体 時間分解分光 ワイドギャップ半導体

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

半導体材料研究の新たな潮流として、バンドギャップの極めて大きい超ワイドギャップ半導体の研究が盛んになりつつある。超ワイドギャップ半導体を用いて深紫外発光素子や超高耐圧パワーデバイスの作製が可能となる。しかしながら、発光素子に着目すると、超ワイドギャップ半導体を用いた深紫外発光素子の発光効率率は可視発光素子と比べて著しく低いのが現状であった。この原因としては、超ワイドギャップ半導体のバルク結晶育成技術、薄膜作製技術、デバイス加工技術などが未成熟であることに加えて、超ワイドギャップ半導体における基礎光物性が良く分かっていないことが挙げられる。

### 2. 研究の目的

本研究では、超ワイドギャップ半導体の基礎光物性が良くわかっていないことに着目し、本研究の目的を、深紫外領域(波長: 200-300 nm)における時空間スペクトロスコピーの開拓と、それによる超ワイドギャップ半導体の光物性解明とした。

### 3. 研究の方法

本研究では、超ワイドギャップ半導体のなかでも、ダイヤモンドと窒化アルミニウム(AIN)および窒化アルミニウムガリウム(AlGaIn)の光物性解明を主眼とした。またこれら超ワイドギャップ半導体材料の評価手段である深紫外分光技術が未成熟であることにも着目し、高空間分解能を実現する室温深紫外近接場光学顕微鏡の開発を行った。

### 4. 研究成果

#### (1) 室温深紫外近接場光学顕微鏡の開発

超ワイドギャップ半導体である AlGaIn は混晶半導体であり、空間的に不均一な発光分布を持つことが知られている。この不均一な発光が AlGaIn 系深紫外発光ダイオードの発光効率と密接に結びついていると考えられているが、高空間分解能で AlGaIn を選択的に励起し評価する手段が存在しなかった。そこで本研究では、深紫外近接場光学顕微鏡を励起光学系・対物光学系・プローブ走査系・照明光学系・結像光学系・検出光学系の要素に分割し、それぞれの要素について最適化を試みることで、世界最短励起波長 (210 nm) を有し、150 nm より良い空間分解能を有する室温深紫外近接場光学顕微鏡を開発した。とりわけ深紫外領域では、励起光源の時間的な強度・位置安定性が測定において問題となるが、励起光源の強度と位置に対して新規フィードバックシステムを構築したことに本研究の特徴がある(図1)。

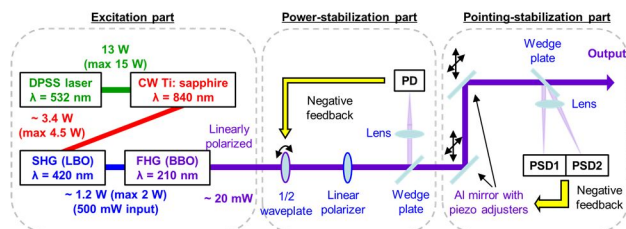


図1. 開発した深紫外励起光源の強度・位置安定化システム

#### (2) 深紫外 CW レーザを用いたフォトルミネッセンス分光法によるダイヤモンドの評価

ダイヤモンドにおける同位体効果が励起子やフォノンに与える影響は極めて大きいことが知られている。同位体効果が励起子に与える影響は極低温で評価することにより初めて精密に定量することが可能である。本研究では、深紫外 CW レーザを用いることで極低温励起子を生成できることに着目した。図2に、深紫外 CW レーザを用いて励起したときの、ダイヤモンドの励起子温度と格子温度の関係を示す。深紫外 CW レーザを用いることにより、極低温励起子を生成できることがわかる。本手法により、ダイヤモンドにおける複数の励起子発光を精査することで、ダイヤモンドにおける同位体効果が励起子および種々のフォノンに与える影響を精密定量した。

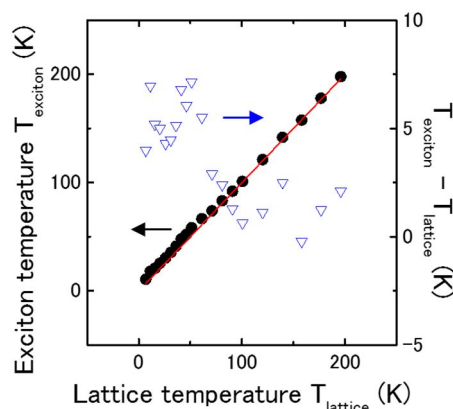


図2. 深紫外 CW レーザを用いて励起したときのダイヤモンドの励起子温度と格子温度の関係

(3) ナノ多結晶ダイヤモンドからの深紫外発光の観測

上記深紫外 CW レーザを用いて、非常に感度の高い深紫外フォトルミネセンス分光測定系を構築することに成功したので、ナノ多結晶ダイヤモンドの深紫外光物性を評価したところ、ナノ多結晶ダイヤモンドからの深紫外発光を初めて観測することに成功した。

(4) 窒化アルミニウムガリウム量子井戸構造からの局在発光の観測

(1)で構築した室温深紫外近接場光学顕微鏡を用いて窒化アルミニウムガリウム量子井戸構造の近接場フォトルミネセンスマッピング測定を行った。その結果、らせん転位に起因した高 Ga 組成領域からの局在発光を可視化することに成功した(図 3)。

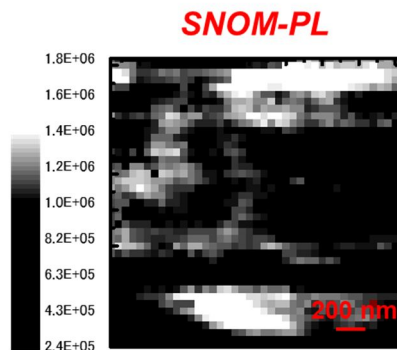


図 3. 開発した深紫外近接場光学顕微鏡を用いて窒化アルミニウムガリウムからの局在発光を可視化した様子

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ishii Ryota, Shikata Shinichi, Teraji Tokuyuki, Kanda Hisao, Watanabe Hideyuki, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 58
2. 論文標題 Isotopic effects on phonons and excitons in diamond studied by deep-ultraviolet continuous-wave photoluminescence spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 010904 ~ 010904
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7567/1347-4065/aaef3e">https://doi.org/10.7567/1347-4065/aaef3e</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ishii Ryota, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 4
2. 論文標題 Pushing the limits of deep-ultraviolet scanning near-field optical microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 APL Photonics	6. 最初と最後の頁 070801 ~ 070801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5097865	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Ishii Ryota, Fukuta Rei, Ishikawa Fumitaro, Matsushita Masafumi, Ohfuji Hiroaki, Shinmei Toru, Irifune Tetsuo, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 40
2. 論文標題 Deep-ultraviolet near band-edge emissions from nano-polycrystalline diamond	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 140 ~ 147
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/08957959.2019.1702658	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ishii Ryota, Shikata Shinichi, Teraji Tokuyuki, Kanda Hisao, Watanabe Hideyuki, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 59
2. 論文標題 Intrinsic exciton transitions of isotopically purified <sup>13</sup> C studied by photoluminescence and transmission spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 010903 ~ 010903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab5b77	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Ryota Ishii, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami
2. 発表標題 Development of a deep-ultraviolet scanning nearfield optical microscope for nano-spectroscopic characterizations of Al <sub>x</sub> Ga <sub>1-x</sub> N (x:0~1) active layers
3. 学会等名 International Workshop on Nitride Semiconductors (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石井良太, 船戸充, 川上養一
2. 発表標題 深紫外近接場光学顕微鏡の開発とAlリッチAlGa <sub>N</sub> 系特異構造のPLマッピング評価
3. 学会等名 応用物理学会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山崎一人, 石井良太, 船戸充, 川上養一
2. 発表標題 圧電素子を用いた光音響分光測定系の構築によるGa <sub>N</sub> の支配的な非輻射再結合過程の評価
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石井良太, 鹿田真一, 寺地徳之, 神田久生, 渡邊幸志, 船戸充, 川上養一
2. 発表標題 深紫外CWレーザーを用いた12Cと13Cの極低温励起子光物性評価
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 石井良太, 鹿田真一, 寺地徳之, 神田久生, 渡邊幸志, 船戸充, 川上養一
2. 発表標題 深紫外CW・時間分解PL 分光法による12C=13C超格子の光学特性評価
3. 学会等名 第65回応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石井良太
2. 発表標題 ダイヤモンドを中心としたワイドギャップ半導体の深紫外光物性と同位体効果
3. 学会等名 ニューダイヤモンドフォーラム第2回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石井良太
2. 発表標題 窒化物半導体光物性
3. 学会等名 第38回電子材料シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石井良太
2. 発表標題 ダイヤモンドの励起子光物性とその深紫外光応用
3. 学会等名 超高压材料科学セミナー (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石井良太, 小山友二, 船戸充, 川上養一
2. 発表標題 青色・緑色発光InGaN量子井戸構造の高温環境下における顕微PLマッピング
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ryota Ishii, Yuji Koyama, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami
2. 発表標題 High-temperature promoted nonradiative recombination at threading dislocations in blue-emitting InGaN quantum well
3. 学会等名 The 9th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<a href="http://www.optomater.kuee.kyoto-u.ac.jp/">http://www.optomater.kuee.kyoto-u.ac.jp/</a>
---

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考