

GaN 結晶のマルチモーダル多光子イメージングによる 貫通転位種判別の試み

徳島大学 ポスト LED フォトニクス研究所 長谷栄治

Attempt to Discriminate Types of Threading Dislocation in GaN
Using Multimodal Multiphoton Imaging

Eiji Hase

Institute of Post-LED Photonics, Tokushima University

本研究では、発光デバイスやパワーデバイス用材料への実用あるいは応用が期待される窒化ガリウム (GaN) 中の転位の種類をマルチモーダル多光子光学イメージング法による発光強度の変化を利用して識別する手法を検討する。特に 2 光子および 3 光子光学励起を用いたフォトルミネッセンスイメージングを用いて、非破壊かつ 3 次元的に転位の分布と種類を観察することを最終目的として、その実現のための光学系の構築及び検討を行った。

This study explores a method for identifying the types of dislocations in gallium nitride (GaN), a material for applications in light-emitting and power devices, by utilizing changes in luminescence intensity through multimodal multiphoton optical imaging. Specifically, the research aims to nondestructively and three-dimensionally observe the distribution and types of dislocations using photoluminescence imaging induced by two-photon and three-photon excitation. In this paper, we discuss the construction and examination of the optical system for this purpose.

1. はじめに

窒化ガリウム (GaN) 系半導体は、直接遷移型の半導体であることや、ワイドバンドギャップ材料であることから、青色～紫外光の発光デバイス用材料として広く用いられている。GaN は 3.4 eV のバンドギャップを持つため、発光は波長約 365 nm の紫外光であるが、GaN 中の結晶格子の一部をインジウム (In) やアルミニウム (Al) といった他の元素で置換すれば、組成の変化に応じてバンドギャップエネルギーが変化するため、0.7～6.2 eV (発光波長にすると近赤外～深紫外) まで制御可能であるという特徴を有する。一方で、GaN はこのような発光デバイス用途のみならず、電子デバイス用材料としても強く期待されている。特に、GaN が持つ各種物性値の優位性から、インバーター等の電力変換・制御を担うパワーデバイス用途において、近年の性能要求が材料物性に起因する限界に近づいている Si (シリコン) パワーデバイスに取って代わり、より大きな電力を低損失かつ小さなサイズで実現する材料と目されている。ここで、このような GaN のパワーデバイスとしての実用化に向けての重要な課題は、これまでに応用されている汎用の発光ダイオード (LED) 用途の場合に比べて桁違いに高い電流密度での動作となるため、より厳しい結晶品質が要求される点である。GaN では、Si のような完全な結晶を作製するのは困難であり、結晶中

に欠陥が多く含まれる。GaN 結晶中には、点欠陥を除くと、基板界面から結晶上部に向かって貫通している貫通転位の数是最も多く、その密度は市販品で 10^6cm^{-2} (転位が均一に存在していると仮定すると、 $10 \mu\text{m}$ 四方に 1 個) 程度である。貫通転位の種類としては、らせん転位と刃状転位、両者の混合である混合転位という 3 つに分類される。このような転位の密度は素子の寿命に強く影響し、転位は種類により異なる電気的特性を持つ結果、デバイス特性に対して異なる悪影響を及ぼすことが知られている。したがって、GaN のパワーデバイス応用のためには、これら結晶中の貫通転位を詳細に評価する手法の確立が求められる。従来、貫通転位を評価する際には、透過型電子顕微鏡 (TEM: transmission electron microscopy) やエッチピット法、カソードルミネッセンス (CL: cathodoluminescence) 測定が用いられてきたが、どの手法においても非破壊性・3次元計測能を両立して転位の空間分布とその種類を計測することは困難であった。そこで近年、フェムト秒レーザーを光源に用いた多光子顕微鏡法の半導体材料への応用が注目されている¹⁾。この応用は、パルスレーザーと高 NA 対物レンズの併用により、光子密度を時空間的に高くすることで効率良く発生する多光子励起現象を用いて画像のコントラストを得るものである。例えばバンドギャップ 3.4eV の GaN の場合、レーザー中心波長を 700nm 程度、または 1050nm 程度に設定して結晶に照射することで、2光子、または3光子吸収によってキャリアを励起でき、GaN において転位部分は非発光再結合中心となることがわかっている。したがって、多光子励起によるフォトルミネッセンス (PL: photoluminescence) 強度をコントラストとして画像化すれば、転位を暗点として観察することが可能となる。本手法では、励起光の光子密度が高い対物レンズの焦点近傍のみで信号が得られることが最大の特徴であり、測定位置を3次的に走査させることにより、3次的な転位の観察が可能となる。このように、本手法は非破壊性・3次元計測能を両立して転位の空間分布を観察可能である点で有用であるが、この手法に貫通転位の種類の判別能を付与することが出来れば本手法の有用性が更に高まると考えられる。

そこで本研究では、2光子 PL と 3光子 PL というマルチモーダルな多光子イメージングにより、GaN 中の貫通転位の種類を判別することを研究目的とする。具体的には、転位種類によるエネルギー準位の違いがもたらす 2光子・3光子励起による発光効率(強度)の変化を利用して分類が可能かを検討する。これまでに、GaN の刃状転位に起因するエネルギー準位は 1.7eV 付近と、バンドギャップのちょうど半分程度の準位を持つということが調べられている²⁾。ここで、励起光と転位(刃状転位を想定)のエネルギー準位に着目すると、2光子励起の場合は転位近傍において1光子過程で励起光が吸収される一方で、3光子励起ではロス(吸収)無く励起されるため、両者において転位部の発光強度が異なると考えられる。このように、2光子 PL 像と 3光子 PL 像の比較から転位種の分類を試み、計測した同一試料について、エッチピット法等の転位種判別が可能な従来の手法にて得られた結果と比較することで、マルチモーダル多光子イメージングによる貫通転位種判別の有用性を考察することを申請研究の最終的なゴールとする。

本報告書ではそれら実現のための前段階として行った、多光子顕微鏡の構築と GaN 基板中の貫通転位の観察とマルチモーダル多光子イメージングのための光学系の検討に関する実験について記載する。

2. 実験方法および結果

2.1 透過型多光子顕微鏡装置の開発とGaN基板中転位の多光子イメージング

はじめに、マルチモーダル多光子イメージングのための多光子顕微鏡の開発を行った。ここでは、他の研究における実験の都合を考慮して透過型のシステムを採用した。図1に実験装置の概略図を示す。光源として波長可変のフェムト秒パラメトリック光発振器を用いた(中心波長可変幅 = 680-1300nm, パルス幅 = 120fs, パルス繰り返し周波数 = 80MHz)。このような波長可変のフェムト秒レーザー光源を多光子顕微鏡用いることで、2光子PLと3光子PL GaNにおいて2光子励起・3光子励起を誘起することを考慮し、レーザー中心波長は710nmおよび1065nmに設定した。レーザー光は1/2波長板と偏光子から成る出力調整器を経た後、1/4波長板(HWP)により円偏光となるよう設定した。レーザー光の焦点は、ガルバノミラー(GM)、リレーレンズ、対物レンズによりサンプル上で2次元スキャンされる。対物レンズは屈折率マッチングを考慮して油浸のものを用い、効率よく多光子励起を誘起するためNA=0.9のものを用いた。焦点において発生した前方透過多光子PL成分は、コンデンサーレンズにより集められ、ダイクロイックミラーおよび光バンドパスフィルター(BPF)でレーザー基本波成分を除去した後、パルスカウンターに接続されたフォトンカウンティング型光電子増倍管(PC-PMT)によってその光強度が計測される。上記セットアップを用いることで、数十~数百 μm 四方の視野における多光子PL強度分布をサブ μm 程度の空間分解能で画像化できる。

構築した顕微鏡装置を用いて、転位密度が $10^6/\text{cm}^2$ 程度の市販のGaN基板の多光子イメージングを行った。上述のレーザー走査により $50\mu\text{m} \times 50\mu\text{m}$ の領域(500pixel \times 500pixel)の画像を取得しながら顕微鏡ステージにより測定面を $0.5\mu\text{m}$ ずつ $20\mu\text{m}$ 走査して画像を取得していくことにより、3次元測定を行った。図2にレーザー中心波長を710nmに設定して取得した2光子PL像群を3次元再構成した結果を示す。画像は明暗のコントラストを反転させてから3次元再構成しており、貫通転位の分布が非破壊かつ3次元的に可視化できていることがわかる。このように、転位の3次元観察が可能な多光子顕微鏡装置が構築できたので、次は同一試料の同一位置について2光子および3光子PL像の取得を行った。結果を

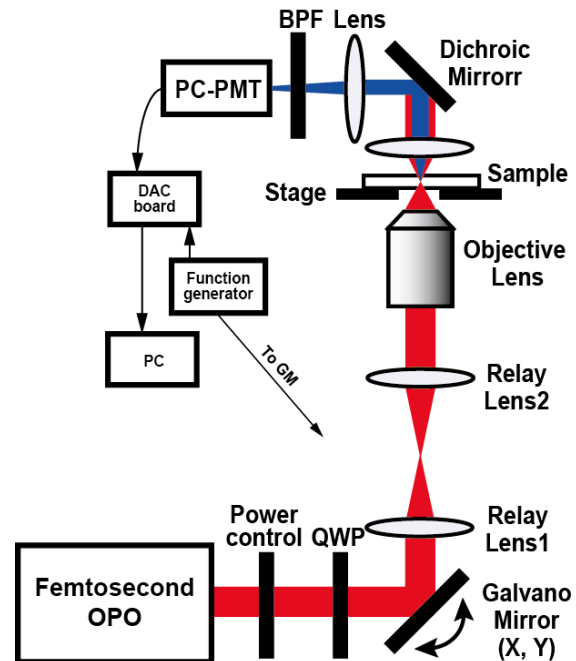


Fig.1 Experimental setup for the multimodal multiphoton imaging (transmission type).

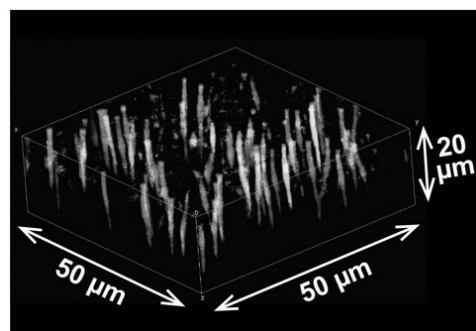


Fig.2 3-dimensional imaging of dislocation in GaN with two-photon excitation.

図3に示す。図3(a)は先ほどと同様に取得した2光子PL像であり、図3(b)は光源の中心波長を1065nmに設定して取得した3光子PL像である。どちらの場合も良好なコントラストで転位の位置を反映する暗点が画像化できている。両画像は同一位置で取得しているものの、可視化されている暗点の分布が異なっていることがわかる。この両者の発光強度の違いが転位種の違いを反映している

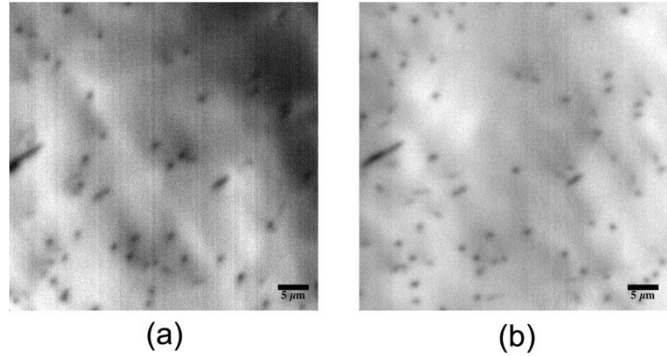


Fig. 3 2-dimensional imaging of GaN with (a) two-photon excitation and (b) three-photon excitation.

かどうかを検討することが主題であるが、実際には装置の観点から、両画像を取得する際の中心波長の違いによる対物レンズの色収差により、試料における同一面内を測定できていないと考えられる。試料内部測定の際のGaNの分散による光軸のずれについては補正することが簡単ではないが、正確な2光子・3光子画像の比較のための位置合わせは重要である。また、通常多光子顕微鏡では、原理的に共焦点ピンホールを物理的に必要とせず焦点面のみの情報を抽出することが可能である。しかしながら、今回計測対象とするようなバルク半導体結晶の場合は、発生したPLが検出器に到達するまでに試料中で再吸収・再発光が起こる可能性があることから、焦点平面外の情報が画像に重畳されると考えられる。そこで次のステップとして、顕微鏡装置の構成を反射型かつ共焦点ピンホールを導入することにより、上記の測定面の明確化を図ることとした。

2.2 反射共焦点型多光子顕微鏡装置の開発と共焦点効果の確認

GaNのマルチモーダル多光子イメージングにおける測定面の明確化を図るため、図4に示す反射共焦点型多光子顕微鏡装置を構築した。透過型の場合と同様に、光源には波長可変のフェムト秒レーザーを用いて、リレーレンズとガルバノミラー、対物レンズから成るレーザー走査型の顕微鏡の構成とした。試料から発生した多光子PLは、励起側と同じ対物レンズによって集められ、同一光路を通過してデスクャンされる。その後、ダイクロイックミラーにより基本波成分を除去し、共焦点ピンホールにより対物レンズの焦点面以外からの光を除去し、バンドパスフィルターにより基本波成分を再度除去した後、PC-PMTによって検出される。電気系・制御系も透過型の場合と全く同様である。

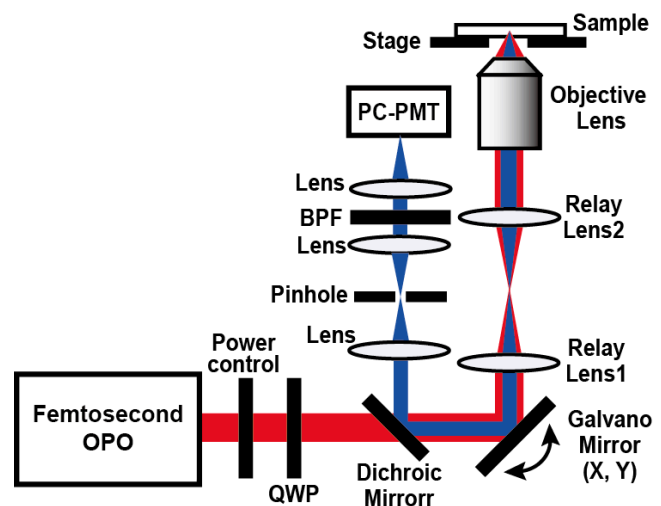


Fig. 4 Experimental setup for the multimodal multiphoton imaging with confocal reflection configuration.

上記システムを用いて、先ほどと同一のGaN基板を2光子励起により測定した。ここ

では、同一の条件・測定位置でピンホールがある場合とない場合で画像を取得した。図5に実験結果を示す。まず、図5(a)はピンホールがない場合の結果であり、焦点面以外からの発光と考えられる信号により暗点を可視化することが困難である。一方、図5(b)の共焦点ピンホールを設置した場合には、焦点面以外の信号の除去により画像コントラストが良好となっている

ことが確認できる。一方、視野における欠けは光学系の調整の不十分によるものと考えられる(光学系調整の確認のため、透過型の場合と比べると倍の測定視野で取得している)。また、この画像は図3の透過型の場合と比較して、10%の取得時間(10s)で画像を取得しており、積算時間を抑えた上でコントラストよく転位の観察が可能であることも確認できた。以上のような結果から、GaNのマルチモーダル多光子イメージングにおいては、反射共焦点の構成を採用することが好ましいことが確認できた。

3. 結論

本研究では、GaNにおける転位の種類をマルチモーダル多光子光学イメージング法による発光強度の変化を利用して識別する手法について、その実現のための光学系について検討した。透過型多光子顕微鏡のシステムでは、焦点平面外の情報が画像に重畳し、マルチモーダル多光子イメージングにおける励起波長の違いによる色収差も相まって、2光子・3光子測定における同一位置での測定を保証することが困難であると考えられる。一方、反射共焦点配置を導入することによって焦点平面外の情報を除去でき、同一位置測定の見込みが立った上、短い画像取得時間で転位における暗点のコントラストを十分に得られることが確認できた。

4. 謝辞

本研究の実施にあたり、ご支援いただきました公益財団法人日本板硝子材料工学助成会様に深く感謝申し上げます。

5. 参考文献

- 1) T. Tanikawa et. al, Appl. Phys. Express, 2018.
- 2) I. Yonenaga et. al, J. Cryst. Growth, 2011.

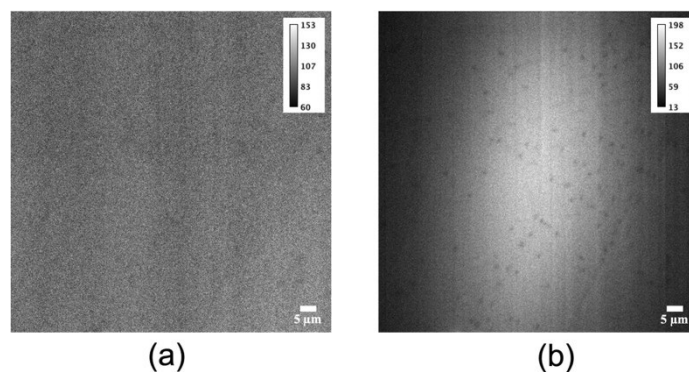


Fig.5 2-dimensional multiphoton imaging of GaN (a) without the confocal pinhole and (b) with pinhole.