
ヘテロ結晶接合界面のフォノン輸送解析のための
時間分解ラマン散乱イメージング開拓
Development of Time Resolved Raman Scattering Spectroscopy for
Phonon Transport Analysis Across Heterointerfaces

M21助自7

代表研究者 石谷善博 千葉大学 工学研究院 教授
Yoshihiro Ishitani Professor, Faculty of Engineering, Chiba University
共同研究者 馬ベイ 千葉大学 工学研究院 助教
Bei Ma Research Associate, Faculty of Engineering, Chiba University

In semiconductor light-emitting devices and high-electron mobility transistors, the interaction between lattice vibration quanta (phonons), which is the identity of heat energy, and the electronic system determines the fundamental limits of device characteristics. In the future, as the amount of information handled by IT-related equipment increases, it is expected that the high-current and high-speed operation of devices will give rise to more and more heat energy release to the atmosphere from devices. Therefore, there is a strong requirement in the future to take out the energy inside of the device to the outside and effectively utilize it. However, evaluation of the transport of this thermal energy in devices is at a preliminary stage. In particular, little attention has been paid to longitudinal optical (LO) phonons, which are dominant in limiting electronic and optical functional properties. We have proposed a method using two lasers for excitation and Raman signal observation in Raman scattering spectroscopy. In this study, we examine how the evaluation of phonon transport at interfaces and in films by this method can be applied to group III nitride semiconductors used in LEDs and power devices. We show analyses of phonon transport at film interfaces and in films by the phonon generation by ultraviolet light and the Raman observation by ultraviolet to near-infrared light. The difference in state occupancy between the LO phonon and other optical phonons is found to appear in the difference in mode energy variation by the excitation. We found that it is possible to evaluate the spatial dependence of the LO phonon decomposition process in the picosecond region. In nanosecond region, since it is necessary to measure up to microseconds, there is an upper limit to the laser repetition rate. Here, it is effective to perform Raman scattering observation before the PL signal rises.

研究目的

半導体発光素子、高電子移動度トランジスタ (HEMT) では熱の正体である格子振動の量子 (フォノン) と電子系の相互作用が根本的素子特性限界を決めるが、素子内部での熱流制

御、排熱制御の研究は少ない。この熱排除が可能となれば、上記素子の高出力動作のみならず、エネルギー変換、表示、照明、殺菌等の素子の省エネ化、熱電素子への熱供給等による熱制御エレクトロニクスの構成・設計概念が構築される。発光素子やHEMTの動作核心

部では特に縦光学 (LO) モードの電子・光機能への影響が大きいことが分かっており、様々なエネルギーを持つフォノンモードを区別した格子振動エネルギー輸送解析・制御の研究が必要である。しかし現在これに関する知見は極めて少ない。本助成では、このために欠くことのできないモードを区別したフォノン輸送計測・ダイナミクス解析法の革新を目的とする。従来のサーモリフレクタンス法では困難なエネルギーの異なるモードを区別できるラマン分光を基盤にして、GaNやGaInN結晶を用いて、(1) 結晶内部またはヘテロ結晶界面の上下の3次元の温度解析、(2) 特に電子系との相互作用の強いLOフォノンがどのように他の光学モードや音響モードに分解するかを解析する基盤を開拓すること、(3) 時間分解ラマン分光手法の開拓をピコ秒領域およびナノ～マイクロ秒領域で行うことを目的とした。

概 要

半導体発光素子、高電子移動度トランジスタでは熱の正体である格子振動の量子(フォノン)と電子系の相互作用が根本的素子特性限界を決めるが、素子内部での熱流制御、特に排熱制御の研究は少ない。今後トランジスタでは高出力化がなされ、発光素子では仮想現実や拡張現実における高精細な視野の確立のためのマイクロLEDが必要になる。さらにその他IT関連機器の取扱い情報量の増加のため半導体素子の利用増加が急速に進み、また素子の電流量や高速動作が進むと予測され、益々多くの熱エネルギーが大气に開放される。また、素子の小型化では熱問題は非常に重要な問題となる。このため、素子内部のエネルギーの外部への取出しと有効利用は今後強く求められる。しかし、素子中のこの熱エネルギーの輸送評価は極めて初期段階にある。特に電子・光

機能特性の制限において支配的となる縦光学 (LO) フォノンの分解・生成の制御法につながる物性評価への注目度は低い。現在のフォノン制御の主眼は熱電素子であり、そこで重要な音響フォノン評価に注目が集まり、サーモリフレクタンス測定が主に行われている。この手法ではフォノンエネルギーを区別した計測は困難である。一方、モードを区別できるラマン散乱も表面温度計測に用いられてきたが、界面を介した熱エネルギー輸送評価はこれまでの単一レーザを用いた評価では困難である。我々は、ラマン散乱分光において励起およびラマン信号観測の2レーザを用いる手法を提案して研究を進めている。本研究では、この手法による界面および膜内のフォノン輸送評価がLEDやパワーデバイスに用いられるIII族窒化物半導体に対してどの様に適用可能であるかの観点やそこに存在する問題点を明確にする観点から研究を行った。また、光物性でのフォトルミネッセンス (PL) 解析と同様に、フォノンダイナミクス解析においても時間分解計測が有効である。しかし、フォノンダイナミクスにおける解析時間範囲はLOフォノンのサブピコ秒～ピコ秒領域から音響フォノンのマイクロ秒領域まで広い範囲に及ぶ。本研究では、紫外光によるフォノン生成と紫外～近赤外光によるラマン観測により、膜界面および膜内のフォノン輸送を解析する手法の開発を行った。時間分解解析では、音響フォノンの空間輸送に着目したサブナノ秒パルスレーザを用いた解析とLOフォノンダイナミクスに着目したフェムト秒レーザを用いた解析の手法開発を行った。その結果、使用レーザ波長の選択により、本手法がフォノン輸送の時空間解析に原理的に適応可能となることがわかった。特に光励起時にキャリアのエネルギー緩和により直接的に生成されるLOフォノンとその他の光学フォノンの状態占

有度の違いがモードエネルギー変化の違いに現れていると考えられ、電子過程への影響の強いLOモード解析の重要性と解析が可能であることが示された。ピコ秒領域ではLOフォノンの分解過程評価の空間依存性の評価が可能であることが分かったが、S/Nの向上が今後必要である。ナノ秒では、マイクロ秒程度の計測までが必要であることから、レーザ繰返しに上限があり、1パルス当たりの光強度が増加する。このため顕微測定での表面損傷を考えると計測条件が大きく限定される。LOフォノンの時間分解計測では80MHzのフェムト秒レーザが使用可能であるが、ナノ・マイクロ秒測定では数十kHzの繰返し数が望まれる。この場合パルス当たりのレーザ強度が大きくなる問題が生じた。また、PLの重量によりS/Nが極めて悪化する問題がある。ここでは、短パルスレーザと光電子増倍管を用いた高速な計測によりPL信号の立ち上がり前にラマン散乱観測を行うことが有効であることが分かったが、波長走査に時間がかかり、計測時間が長くなる問題がある。これはイメージング計測に対しては重大な問題である。計測波長範囲を限定した方法などイメージング計測には更なる改良が必要である。

本 文

1. はじめに

半導体発光素子、高電子移動度トランジスタ (HEMT) では熱の正体である格子振動の量子 (フォノン) と電子系の相互作用が根本的素子特性限界を決めるが、素子内部での熱流制御、特に排熱制御の研究は極めて少ない。この熱排除が可能となれば、上記素子の高出力動作のみならず、エネルギー変換、表示、照明、殺菌等の素子の省エネ化、熱電素子への熱供給などにおける熱制御等によりエレクトロニクスの構成・設計概念が変革され得る。発

光素子やHEMTの動作核心部では各種フォノンのうち特に縦光学 (LO) モードの影響が大きいことが分かっており^[1]、音響フォノン制御が求められる熱電素子の開発等とは異なって様々なエネルギーを持つフォノンモードを区別した格子振動エネルギー輸送解析・制御の研究が必要である。しかし現在これに関する知見は極めて少ない。図1に様々な半導体のLOフォノンと電子系の熱平衡300Kでの相互作用強度を示す。紫外レーザやLED、高速高出力HEMTに有望な材料である窒化物半導体は大きな相互作用強度を持つことが分かる。デバイス動作過程で生じた非熱平衡LOフォノンは崩壊して最終的にその多くが音響フォノンになる。このため、発光素子やHEMTでは各フォノンモードを区別して全エネルギー種を統合したエネルギー解析の学理構築が必要であり、これにより電子・光素子の設計概念に革新がもたらされると考えられる。

本研究では、モードを区別したフォノン輸送計測・ダイナミクス解析法の開拓を行うため、非熱平衡状態のフォノンエネルギー分布を空間的に解析し、発光特性解析と結合して半導体内の全エネルギー種を統一したフォノンキャリアダイナミクス・空間輸送解析の革新を行うため、フォノン生成用とラマンプローブ用の2レーザを用いた時間・空間分解ラマン分光イメージング装置の開拓を行うことを目的

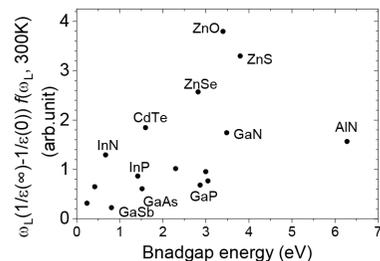


図1 各種半導体の300Kでの電子-LOフォノン相互作用強度は状態占有度。

とする。 $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{N}/\text{GaN}$ ヘテロ構造およびGaNを例にとり、(1) 結晶内部またはヘテロ結晶界面の上下の3次元的温度解析による膜内および界面フォノン輸送、(2) A_1 (LO) モードと E_2 (high) モードにおける実効温度の違いの検知、(3) ピコ秒およびナノ秒レベルの時間分解フォノン計測手法の開拓を行った。

2. 研究方法

本研究ではサファイア (0001) 基板上に成長されたGaNテンプレートの上に膜厚100-110 nmの $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ 薄膜が有機金属気相成長法により成長された。組成 x は0.05、および0.09であった^[2-4]。赤外反射分光によるこれらの試料の残留電子密度は $6 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 程度以下であった。GaNは自立GaN基板が用いられ、その残留電子密度は赤外反射分光測定で評価した結果、 $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 未満であった。これらの試料について環境温度296Kでフォトルミネッセンス (PL) 測定およびラマン分光測定を行った。

ラマン分光では3種の光学系が用いられた。光学系の概略図を図2に示す。(1) 連続動作によるレーザを用いるものでは、波長532 nmのDPSSレーザと波長325 nmのHe-Cdレーザによる計測である。532 nmによるラマン信号観測では開口比 $\text{NA}=0.95 \cdot 100$ 倍の対物レンズを用

い、325 nmレーザによる計測では $\text{NA}=0.47 \cdot 40$ 倍の対物レンズを用いた。これらのレーザ光の同時照射では $\text{NA}=0.47 \cdot 40$ 倍の対物レンズを用い、試料表面でのレーザスポット直径は532 nmレーザでおよそ $0.69 \mu\text{m}$ 、325 nmレーザでおよそ $0.42 \mu\text{m}$ であった。(2) 波長532 nmのDPSSパルスレーザとその2倍波の262 nm光による計測では、レーザパルス幅はおよそ640 psであった。計測にはCCDカメラおよび光電子増倍管と時間相関単一光子計測 (TCSPC) ボードを用いた。(3) チタンサファイアレーザの基本波 (中心波長875 nm) とその3倍波 (262 nm) を用いた。これらの計測系で光学系は共焦点系であり、分光器入口スリットをクロススリットとして共焦点スリット機能を兼ねた。ストークス光および反ストークス光の検知に応じてエッジフィルターとノッチフィルターを選択して計測を行った。メージング計測はピエゾステージを用いて試料位置を走査して行われた。ラマンシフトは水銀ランプを用いて波数校正が行われた。532 nmレーザを用いた計測では5360.7 Å線が、325 nmレーザを用いた計測では3341.5 Å線が用いられた。

紫外光の照射によりフォノン生成が行われた。325 nmレーザ照射では、GaInNによる光生成キャリアのエネルギー緩和によりフォノンが生成される。つまり励起レーザ光の光子エネルギーとバンドギャップエネルギー E_g の差よりキャリアのバンド内緩和で1光子吸収に対して生成されるフォノンエネルギー量が計算される。325 nmレーザ照射のみによるGaInP膜の計測では、時間分解PL計測による100 ps程度の再結合寿命を考えるとCWの325 nmレーザの吸収により生成された電子・正孔密度はキャリア拡散を考慮して $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 程度であると見積もられた。325 nmレーザと532 nmレーザの同時照射では、532 nmレーザの焦点位置に試

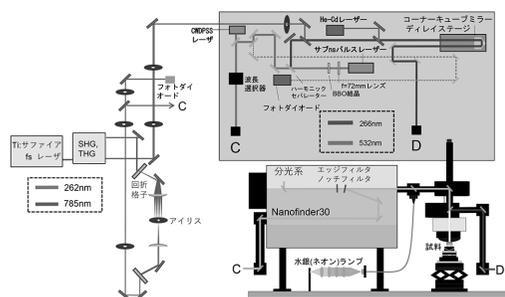


図2 ラマン分光光学系概略図 CW発振の532 nm・325 nmレーザ、パルスの532 nm・266 nm、パルスの785 nm・262 nmの組み合わせで計測可能な光学系

料表面をほぼ合わせ、325 nmレーザの試料表面でのスポット径はおよそ7 μm であった。325 nmレーザの1 mW照射での励起キャリア密度は 10^{16}cm^{-3} 程度またはそれ以下と見積もられた。キャリア寿命を100 psから1 nsとすると、古典電子気体の緩和時間近似を用いてこのキャリアの熱伝導率への寄与は1.5 W/Km程度であり、CW励起時のキャリアによる熱伝導は無視した。

3. 結果および議論

3.1. 面内および界面フォノン輸送

GaInN試料では貫通転位近傍の界面における熱伝導状態を調べた。図3に $x=0.05$ の試料について325 nm励起によるPLマッピングおよび325 nm光のパワーを7 mWから14 mWに増加した際のラマン散乱像を示す。貫通転位生成箇所と考えられる円形のPL強度暗部で E_2 (high) モードエネルギーが減少しており温度増加が観測できる。PL強度について、(GaInN, GaN) が(暗点、暗点)、(暗点、明点)、(明点、暗点)、(明点、明点)の4種について、GaInN層およびGaN層それぞれにおける E_2 (high) (E_2^H) フォノンエネルギーの低下量を計測した。PLの明暗の4つの組み合わせに対して、325 nmレーザの照射強度を6 mWから12 mWと変化させた場合のGaInN層の E_2^H フォノンエネルギーの低下量および325 nmレーザ12 mWの照射の有無に対する532 nmレーザを用いて計測したGaN層の E_2^H フォノンエネルギーの低下量を図4に示

す^[3,4]。但し、この際に325nmレーザのスポットサイズは図3の像取得時に対して大きかったために E_2^H フォノンエネルギーの低下量が小さいが、この4点のデータ2組はそれぞれ一貫した計測条件で得られたものである。GaInN層のフォノンエネルギーの観測では(暗点、暗点)で最もエネルギー低下量が大きく、GaN層の測定では(暗点、明点)で最もエネルギー低下量が大きい。この結果は、GaInN層のPL暗点部ではフォノン生成量が大きいかまたは熱伝導率が小さいためにGaInN層のフォノン生成箇所の温度上昇が大きいことを示している。GaN層からGaInN層へ貫通転位が貫いている場所ではGaInN層で生成されたフォノンのGaN層への輸送が妨げられるためにGaN層での温度上昇は抑えられており、この4種の明暗の組み合わせの中ではGaInNの温度上昇が最も大きくなったと考えられる。一方、(暗点、明点)の部位に

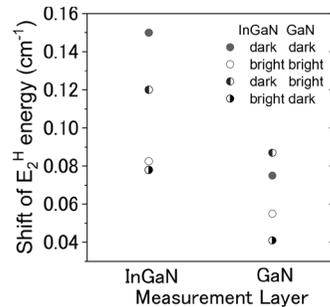


図4 GaInNおよびGaN層のPL強度の強弱の組合せと325 nmレーザ光増加に対するそれぞれの層での E_2 (high) モードエネルギーの減少量(温度上昇量)の関係

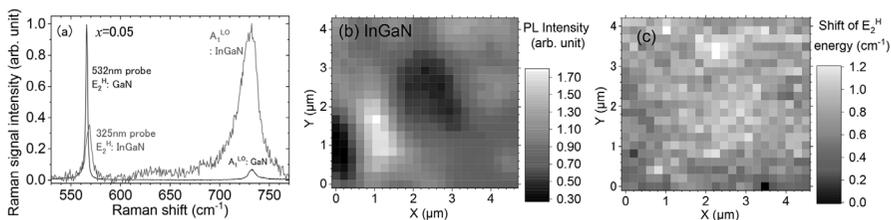


図3 ラマン散乱スペクトル特性 (a) スペクトル例、(b) PL強度分布、(c) 325 nmレーザ光の強度増加による E_2 (high) モードピークエネルギーの減少量^[3,4]。

比べて(暗点、暗点)の場所ではGaN層へのフォノン輸送速度が小さくなるためにGaN層の温度上昇度が小さく、フォノンエネルギー低下量が(暗点、明点)での値より小さくなったと考えられる。これらのことから、界面近傍の転位が基板側へのフォノン輸送の障壁になっていることが直接観測されたと言える。

図5には $x=0.05$ および $x=0.09$ で532nmレーザによるGaN層の観測場所を325nmレーザによりフォノンを生成した場所から平面内で直線状に走査したときのこの E_2^H フォノンエネルギーの減少量を示す。励起場所から20 μm 以上にわたってGaNにおける温度上昇が観測された。GaN層膜厚はGaInN層のそれに比べて50倍程度あり、532nmレーザで観測している界面近傍領域では主に界面に垂直方向に輸送されたフォノンによる局所的なフォノンエネルギーの減少を観測していると考えられる。このことから、この温度上昇はGaN膜中のフォノン輸送よりむしろGaInN膜中で輸送されたフォノンがヘテロ界面を通過してGaN層に輸送されたものを主に観測していると考えられる^[3,4]。この結果からGaInN層面内で20 μm におよぶフォノン輸送が観測され、温度上昇が最大値の50%になる位置が発熱場所から15 μm に及ぶことが分かった。

一方で、GaInN層内では非輻射性電子正孔再結合による発熱もおこる。 $x=0.05$ ではそのバンドギャップエネルギーを3.2eVとして、325nmレーザにより励起された1電子・正孔対あたり

のバンド内緩和による放出エネルギーは0.6eVであり、さらにバンド端に存在する電子正孔が非輻射再結合によりバンドギャップに相当する3.2eVのエネルギーを開放すると合計で励起エネルギーに相当する3.8eVの全てが1電子・正孔対あたり開放され得る。およそ16%の電子・正孔対が赤外光を一切放出せず非輻射再結合を起こすと、この16%の電子・正孔の非輻射再結合によりGaInN膜内に放出されるエネルギーは全ての電子・正孔が励起直後のバンド内緩和の際に放出するエネルギーと同等になる。一方、YAGレーザ4倍波の266nm線を用いると $x=0.05$ でおよそ1.46eVのバンド内緩和エネルギーとなり、PLの量子効率が54%を超えれば、非輻射再結合による発熱は生成キャリアのバンド内緩和により発生する熱エネルギーを下回ると考えられる。結晶欠陥部位の熱伝導特性を精度よく求めるためにはキャリア拡散の影響を受ける非輻射性電子正孔再結合の影響を相対的に小さくする必要があり、また結晶内に開放されたエネルギー量を限定するためにもより短波長の光をフォノン生成光源として用いる必要がある。

3.2. A_1 (LO) モードの特異性

本項目の検討に対して、次の実験的解析を行った。GaInN層を325nmレーザ光でポンプ・プローブを行った。この紫外光の照射により熱生成が行われるため、この E_2^H モードと A_1 (LO) (A_1^L) モードのラマン散乱スペクトルピークエネルギーの照射パワー依存性を計測し、両モードの温度増加特性の違いを解析した。図6に結果の例を示す。 $x=0.05$ において温度変化 ΔT に対する E_2^H モードエネルギーの変化量 ΔE_2^H は $\Delta E_2^H = -1.05 \times 10^{-2} \Delta T \text{ cm}^{-1}$ 、 A_1^L モードエネルギーの変化量 ΔA_1^L は $\Delta A_1^L = -2.3 \times 10^{-2} \Delta T \text{ cm}^{-1}$ と求められ、これらを用いると A_1^L モー

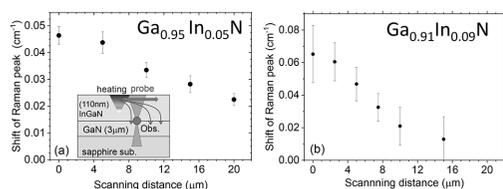


図5 励起位置に対して観測位置を横方向に走査した時のGaNの E_2 (high) モードエネルギー減少量

ドエネルギーの変化量は E_2^H モードエネルギーの変化量のおよそ2倍になると考えられる。しかし、実際の変化量はさらに大きく7倍におよび、 A_1^L モードと E_2^H モードの関係も場所により異なる。紫外照射で励起された電子・正孔はエネルギー緩和の際にまず初めにLOフォノンが放出され、その後LOフォノンがその他の光学フォノンや音響フォノンに分解し、熱平衡に至ると考えられる。このため、 A_1^L モードと E_2^H モードでは生成過程が異なり、 E_2^H モードは A_1^L モードの分解過程の一部および A_1^L モードの分解の結果生成されたその他の光学モードや音響モードから生成される。この生成過程の違いが本結果で観測されたフォノン過程を支配しており、電子エネルギーのバンドギャップ以上のエネルギーをもつ光による励起とラマン観測によりLOフォノンの分解過程の空間マッピング評価が可能であることが分かった。この結果から時間分解ラマン散乱分光の空間マッピング評価の重要性が示唆されると考えられる。

3.3. サブナノ秒レーザーによる時間分解計測

DPSSレーザー2倍波と4倍波を用いた時間分解計測ではパルス幅が640ps程度であり、PLとラマン信号の時間関係から光路長設計を行った。励起光と検知光の時間コインシデンスは遅延ステージの可動鏡位置を調整して得られた。励起光照射から計測までの遅延時間は遅延ステージを用いて行われた。図7に、励起前および励起後の反ストークス信号スペクトルを

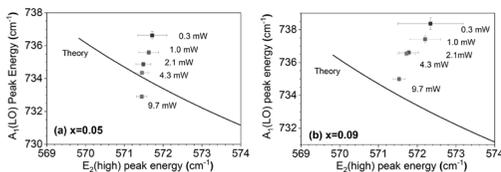


図6 紫外レーザー照射強度に依存する E_2 (high) モードと A_1 (LO) モードエネルギーの関係

示す。このときのレーザー強度は266 nmで0.27 mW、532 nmで0.16 mWであった。この図では、266 nm照射によるラマン信号強度の増加と低波数側へのピークシフトが見られており、温度上昇が計測できているものと思われる。しかし、ピークシフト量 0.67 cm^{-1} に対してフォノン周波数の温度依存性と熱歪を考慮した理論から得られる温度増加量は150 Kであり、一方スペクトル強度比から得られる温度上昇は5 K程度でありその差は大きい。この結果は場所に依存せず得られた。明らかな表面損傷は見られなかった。顕微測定のため紫外励起光のパワー密度が大きいことによる試料表面での高いキャリア密度の影響が考えられる。パワー密度を落とした顕微測定で高いS/Nを得ることが必要である可能性があり、今後計測に必要な条件を整えてゆく。

本研究におけるフェムト秒レーザーによる時間分解計測では基本波のパルス幅が140 fs程度で

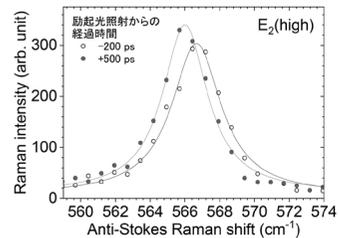


図7 Nd-YAG4倍波266 nm励起・2倍波532 nm検知による E_2 (high) フォノン反ストークス信号スペクトルの励起前後のスペクトル変化 励起初期時間の利用によりPL成分が低減された。

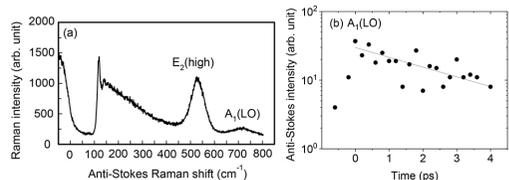


図8 Ti:サファイアレーザー3倍波262nmポンプ・基本波875nmプローブによる A_1 (LO) フォノンアンチストークス信号スペクトル (a) と励起後過渡変化 (b) 図中実線は指数関数フィッティング結果(寿命 $3.0 \pm 0.7 \text{ ps}$)を示す。

あり、スペクトル幅の広がり大きい。このため、透過型回折格子を用いて波長選択を行い、波長幅と時間幅のバランスをとった。TCSPCによりPLの立上がりとラマン散乱信号の時間軸上での大まかな一致が得られる光路設定を行い、続いて遅延ステージを用いてラマン散乱の反ストークス光信号強度を検知して正確な時間制御を行った。この結果得られたラマン散乱スペクトルおよび A_{1g} モード信号スペクトル積分強度の時間減衰を図8に示す。262nmレーザーによる励起電子密度は $2.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 、785 nm光強度150 pJ (12mW) の計測条件であった。指数関数フィッティングの結果ライフタイム $3.0 \pm 0.7 \text{ ps}$ が得られた。この値は報告されている文献値と同等な値である。現時点ではまだS/Nの向上が必要であるが、ビームの広がりや位置の抑制や2レーザーの焦点深さ位置の独立制御などにより改善を図っている。 E_2^H モードおよび A_{1g} モードの両モードの時間分解計測が可能となったためLOフォノンの分解過程の解析およびその空間イメージングが今後可能になると思われる。

4. 結論

本研究により、ラマン散乱分光において励起およびラマン信号観測の2レーザーを用い、さらにその波長を選択して半導体多層膜構造の熱(フォノン)生成個所の選択とその場所からのフォノンエネルギーの輸送特性の時空間解析が実験的に可能であることが実証された。特に光励起時のLOフォノンとその他の光学フォノンの状態占有度の違いがモードエネルギー変化の違いに現れていると考えられ、電子過程への影響の強いLOモード解析の重要性と解析が可能であることが示された。時間分解ラマン計測では、ピコ秒領域とナノ秒領域での可能性が示された。ピコ秒領域ではLOフォノンの分

解過程評価の空間依存性の評価が可能であることが分かったが、S/Nの向上が今後なされる。ナノ秒～マイクロ秒程度の計測では、レーザー繰返しに上限が考えられ、顕微測定での表面損傷を考えると計測条件が限定される。測定時間のゲート機能をもつCCDの利用やS/Nを低下させるフォトルミネッセンス成分を小さくできる励起初期時間などを用いることが有効であり、測定系の更なる工夫が必要である。

参考文献

- [1] K. Oki and Y. Ishitani, “**Influence of LO and LA phonon processes on thermal-nonequilibrium excitation and deexcitation dynamics of excitons in GaN, AlN, and ZnO**”, *J. Appl. Phys.* **125**, 205705 (2019)
- [2] S. Okamoto, N. Saito, K. Ito, . Ma, K. Morita , D. Iida, K. Ohkawa, and Y. Ishitani, “**Energy transport analysis in a $\text{Ga}_{0.84}\text{In}_{0.16}\text{N}/\text{GaN}$ heterostructure using microscopic Raman images employing simultaneous coaxial irradiation of two lasers**”, *App. Phys. Lett.* **116**, 142107 (2020).
- [3] 石谷善博, 中山朋哉, 伊藤航太郎, 馬 蓓, 飯田大輔, Mohammed A. Najmi, 大川和宏 二波長ラマン散乱分光を用いたInGaN/GaNヘテロ構造におけるInGaN/GaNヘテロ構造におけるフォノン輸送解析 日本結晶成長学会誌 48, 48-4-04 (2021)
- [4] T. Nakayama, K. Ito, B. Ma, D. Iida, M. A. Najmi, K. Ohkawa, and Y. Ishitani, “**Analysis of phonon transport through heterointerfaces of InGaN/GaN via Raman imaging using double-laser system: the effect of crystal defects at heterointerface**” *Mater. Sci. Semicond. Process.* **150**, 106905 (2022)

今後の研究の見通し

本研究により、時間分解ラマン分光の基盤立ち上げが行われた。対象時間範囲は、サブピコ秒から数十ピコ秒のLOフォノン寿命の測定時間領域と、所謂熱エネルギーである音響フォノンを含めた全格子振動エネルギーの空間

輸送に有効なサブナノ秒~マイクロ秒の時間領域である。前者では信号が得られるところまで達成されたが、S/N比向上が必要であり、フォノン励起用とラマン観測用の2レーザの焦点深さの調整などの工夫が必要である。後者では、レーザのパルス繰返し数が小さくなるため、レーザパルス強度の増加が必要になり、レーザによる表面損傷や励起キャリア密度の増加による弊害が出た。励起位置を計測位置が同一箇所の場合は、励起密度を下げてかつ高精度な計測を行うためにはこの時間領域でも短パルス光を用いてフォトルミネッセンスの立ち上がり前の時間領域で計測を行う必要がある。これらの計測条件の最適化が必要である。また、3次元計測では面内、界面を跨ぐフォノン輸送の計測解析が可能であることが示され、排熱で重要な界面を跨いだフォノン輸送を促進する構造の提案・解析が可能になった。光励起によるフォノン生成を行った結果、LOフォノンとその他の光学モードの間で実効温度に大きな差があることが分かったことは、電子の移動度や発光特性に影響の大きいLOフォノンのダイナミクス解析が可能であることを示している。

これらにより、今後LOフォノンの分解を促進する構造によりLOフォノン制御へ向けた具体的構造探索が可能になるが、イメージング計測においてS/N向上や計測時間の短縮のため、照射レーザ強度やパルス時間幅、計測時間領域などの最適化が必要になる。

本助成金による主な発表論文、著書名

- 1) 石谷善博, 中山朋哉, 伊藤航太郎, 馬 蓓, 飯田大輔, Mohammed A. Najmi, 大川和宏 二波長ラマン散乱分光を用いたInGaN/GaNヘテロ構造におけるInGaN/GaNヘテロ構造におけるフォノン輸送解析 日本結晶成長学会誌 48, 48-4-04 (2021)

[近日投稿予定]

- 1) Thee Ei Khaing Shwe, Tatsuya Asaji, Tomoya Nakayama, Bei Ma, and Yoshihiro Ishitani “**Probing of selective increase in longitudinal optical phonon occupation in GaInN layer on GaN template wafer by Raman spectroscopy using optical inter-band electron excitation**”.
- 2) Tatsuya Asaji, Thee Ei Khaing Shwe, Bei Ma, and Yoshihiro Ishitani “**Dependence of phonon transport at GaInN/GaN-heterointerfaces on alloy composition of Ga_{1-x}In_xN**”.