

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：32621

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25800180

研究課題名(和文)窒化物半導体ナノ構造のキャリアダイナミクスと光機能

研究課題名(英文)Carrier Dynamics and Optical Function of Nanostructured Nitride Semiconductors

研究代表者

猪瀬 裕太 (INOSE, Yuta)

上智大学・理工学部・研究員

研究者番号：90634501

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では窒化物半導体ナノ結晶を対象として、以下について研究を進め明らかにした。(1)薄膜に比べてナノ結晶の内部量子効率と取り出し効率が高く、それによって外部量子効率も非常に高くなることを確認した。(2)InGaN/GaN試料のキャリアダイナミクスから局在深さを見積もり、発光効率との関係性を明らかにした。またGaN試料の結晶サイズ依存性を評価し、励起子-フォノン相互作用にナノサイズ効果が発現することを見出した。(3)集団配列効果に起因した誘導放出現象という光機能を観測し、時分解分光と空間像および角度依存から発振メカニズムを直接観測した。また構造ゆらぎの影響についても明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have researched optical properties of nano-sized nitride columnar semiconductors and demonstrated three items as described below.

(1) Both of internal quantum efficiency and light extraction efficiency of the nano crystals are higher than those of film samples, then nanocolumns show very high external quantum efficiency. (2) We estimated depth of localized states for InGaN/GaN samples, and defined a clear relationship between the depth and the emission efficiency. We measured additionally crystal size dependence of GaN nanocolumns, and we found nano-size effects in the exciton-phonon interaction. (3) We detected stimulated emission via an array of the nano crystals, and observed directly the oscillation mechanism through time-resolved spectroscopy, real spatial images, and wavenumber spatial images. Furthermore, we evinced the influence of structural fluctuation on the column arrays.

研究分野：半導体の光物性、ナノ構造による光制御

キーワード：窒化物半導体、キャリアダイナミクス、量子効率、取り出し効率、励起子、フォノン相互作用、励起子多体効果、誘導放出、ランダムレージング

1. 研究開始当初の背景

(1) 研究背景

ワイドギャップ半導体は、励起子束縛エネルギーが大きい為に室温でも安定に励起子が形成され、興味深い励起子物性を示すことが知られている。また紫外域や可視域の発光デバイスとしても期待され、近年の結晶成長技術の向上により活発に研究が行われている (D. Hirano and Y. Kanemitsu, *J. Lumin.* 128, 712 (2008).)。研究代表者はその中でも、直径100nmから1 μ m程度、高さ約1 μ mの柱状結晶である**窒化物半導体ナノコラム** (M. Yoshizawa, *et. al*, *Jpn. J. Appl. Phys.* 36, L459 (1997).) に着目し、研究対象試料として選択した。ナノコラムでは、円柱結晶を窒化ガリウム (GaN) や窒化インジウム (InN)、あるいは混晶の窒化インジウムガリウム (InGaN) にすることができ、さらにそれらの多重量子井戸の形成も可能である。この試料は、ナノサイズ効果によって結晶品質向上を阻んでいた貫通転移が軽減された**高品質な結晶**であり、通常薄膜に比べ発光効率が低い。

ナノサイズ物質の光学的・電気的な特性は、その物質の大きさや形状によって大きく変化し、バルク結晶にはない新奇な特性を示す。そのため、多くの分野で革新的な機能を生み出す材料として期待されている。これまで研究代表者は、波長可変フェムト秒レーザーを用いた時間分解分光によって、GaN ナノコラムにおける励起子多体効果の光学特性を研究し、さらにそれらの**ナノサイズ効果の影響**を調べてきた (K. Kouyama, M. Inoue, Y. Inose, *et. al*, *Phys. Stat. Sol. C* 6, 141 (2009).)。

自己形成されたナノコラム試料はナノ結晶がナノスケール間隔でランダムに配置し、全体として**ナノ構造**を形成するという特徴もある。ナノコラムの高発光効率の原因には、そのような**集団配列効果**によって生じる**光局在現象 (光のアンダーソン局在)** (Aegerter, *J. Opt. Soc. Am. A* 24, 23 (2007).) の寄与が考えられたので、光伝播特性について詳細に評価を行って紫外から可視域で光が強く局在し得ることを明らかにした (Y. Inose, *et. al*, *Phys. Rev. B* 82, 205328 (2010).)。また、そのような局在状態に利得媒質を合わせることで**ランダムレージング**という誘導放出現象も実現されるが (Wiersma, *Nature* 390, 671 (1997).)、ナノコラムにおいては結晶自体の光学利得を利用したランダムレージングの観測に成功した (M. Sakai, Y. Inose, *et. al*, *Appl. Phys. Lett.* 97, 151109 (2010).)。

(2) 研究概要

研究開始以前に対象としてきた自己形成型のナノコラム試料は、コラム毎に直径が異なり、またInGaNについては組成比のばらつきも生じるために、基礎光学特性の解明にとって大きな障害となっていた。しかしながら、現在では図1に示すように位置制御型のナノコラム成長法が確立され (K. Kishino, *et. al*,

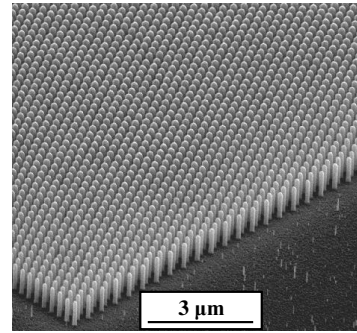


図1. 位置制御型の InGaN/GaN 多重量子井戸ナノコラム結晶。

J. Cryst. Growth 311, 2063 (2009).)、コラム径や組成比の均一化が実現されている。当研究では、新たな位置制御技術によって作製された**均一な高品質試料**を研究対象とする。

位置制御型の試料では、コラム径が100nmを下回るような結晶も作製されつつある。このようなサイズの半導体結晶は、ナノワイヤとバルクの間域的な領域に当たり、キャリア間の有効距離と結晶サイズが同程度となる。そこで本研究では、波長可変フェムト秒レーザーを用いた時間分解分光によって、高品質なナノサイズ半導体中の励起子物性が受ける**ナノサイズ効果の解明**を中心として、新しい物性の発現を目指す。また、キャリアが高密度になった状態では、キャリア同士の反発や衝突に起因する**動的相関**がキャリアダイナミクスに強く影響することが予想される。多数キャリア間の動的相関は興味深い研究内容であり、光物性分野の中心的な研究対象とされている。本研究では新規試料を用いて、これまで構造の不均一性に隠れていたこれらの光学現象の新たな発見に努める。

近年の窒化物半導体では、発光の高効率化とデバイスへの応用研究が急速に進んでおり、**内部量子効率**や**光の取り出し効率**を定量的に評価する必要も生じている (S. Watanabe, *et. al*, *Appl. Phys. Lett.* 83, 4906 (2003).)。本研究では、キャリアダイナミクスのナノサイズ効果を探求すると同時に、量子効率などの定量的な評価を行っていく。

ナノコラム径と同程度の間隔で規則配置したナノコラム試料には、**フォトニック結晶**としての側面もある。配置が規則的になったことで、ランダム配置に比べて光と電子との結合が強くなり、強励起状態では**分布帰還型 (distributed feedback : DFB) の誘導放出** (M. Imada, A. Chutinan, S. Noda, M. Mochizuki, *Phys. Rev. B* 65, 195306 (2002).) が生じ得る。また、上下に分布ブラッグ反射 (distributed Bragg reflector : DBR) 構造を形成するなどすれば、新しい原理に基づく発振現象であるポラリトンレーザー (L. V. Butov, *Nature* 447, 540 (2007).) が実現可能である。本研究では、バルク試料では実現できないこのような**新規光機能**の開発に向けた道筋を探る。

2. 研究の目的

本研究では、高品質な窒化物半導体ナノコラム試料を研究対象として、主に以下の3つの目的に向かって研究を進めてきた。

- (1) **発光効率の定量測定**から発光デバイスとしての特性を評価する。
- (2) ナノサイズ物質における空間的・時間的な**キャリアダイナミクス**を調べ、励起子物性の**ナノサイズ効果の解明**を目指す。また、高密度励起状態における光学現象を探求する。
- (3) 集団配列効果で生じる**光機能を開拓**し、ナノコラム試料の応用研究へと繋げる。

3. 研究の方法

(1) 研究体制

本研究では、ナノコラム試料の高品質化を目指す「試料作製」、半導体の光学応答を実験により評価する「光学測定」、集団配列効果による光伝播現象やナノ結晶における励起子の振る舞いを計算から求める「数値解析」という3班が協力して、効果的に研究を進めてきた。

(2) 研究方法

以下では、本研究において構築する3つの特徴的な研究手法について説明する。

特徴的な手法の1つは**顕微分光系**である。ナノコラム試料は、 $100\mu\text{m}$ から $200\mu\text{m}$ 四方の領域内に結晶を規則的に成長させるが、そのようなマイクロサイズのパターンが基板の上に複数配置されている。そこで、このような微小パターン内の試料から正確な光学応答を抽出するために図2のような顕微分光系を構築した。その上で、顕微分光系とフェムト秒レーザーを組み合わせることによって**時空間分光**を可能にして、キャリアの密度依存や温度依存、光子系との結合を評価した。

2つ目は**角度依存性測定系**である。ナノコラム試料では、その**集団配列効果**によって光のバンド構造が形成され、強励起下においては誘導放出現象の発現が期待された。バンド構造に対応した周波数・角度で増幅された光が放出されることになるので、**発光の角度依存性**を測定することによってそのような配列効果を評価した。研究開始当初は、放物面ミラーを用いた系の構築を計画していたが、顕微分光系において実空間のフーリエ変換像をモニターできるようにした。

3つ目は数値解析である。ナノコラム試料の集団配列効果を評価するためには電磁場解析も必要である。定常状態での**バンド構造**と**電磁場空間分布**は、**平面波展開** (plane wave expansion; PWE) 法 (M. Plihal. and A. A. Maradudin, Phys. Rev. B 44, 8565 (1991).) を使用した。また、パルス光が入射された際の電磁場の振る舞いや**誘導放出現象のシミュレーション**は、時間領域の解析手法である**時間領域差分** (finite difference time domain : FDTD) 法 (A. Taflove and S. C. Hagness,

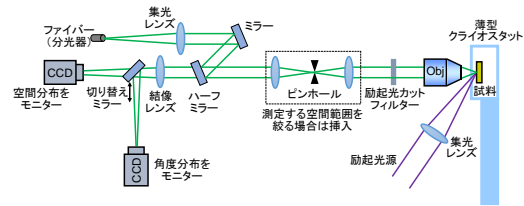


図2. 顕微分光系。必要に応じて、空間切り出しや角度分布モニターが出来るようにしてある。

Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method, Artech House, Norwood and MA, 3rd edition (2005).) を用いた。

4. 研究成果

本研究では窒化物半導体の高品質ナノサイズ結晶を対象として、(A)**発光効率**から発光デバイスとしての特性を評価、(B)**キャリアダイナミクスとナノサイズ効果の解明**、(C)集団配列効果により生じる**光機能の開拓**、という3つを主な目的として研究を進めてきた。

(A)では構築した顕微分光系にCWレーザーを組み合わせて**内部量子効率の評価**を行い、図3(a)に示したように良質薄膜に比べてナノコラム試料が約3倍と高効率であることが明らかになった。これは即ちコラム結晶が高品質であることを示している。さらに全角度に放射された光を検出する積分球を用いた新たな光学測定系を構築して、実験的に**取り出し効率を算出**することに成功した。こ

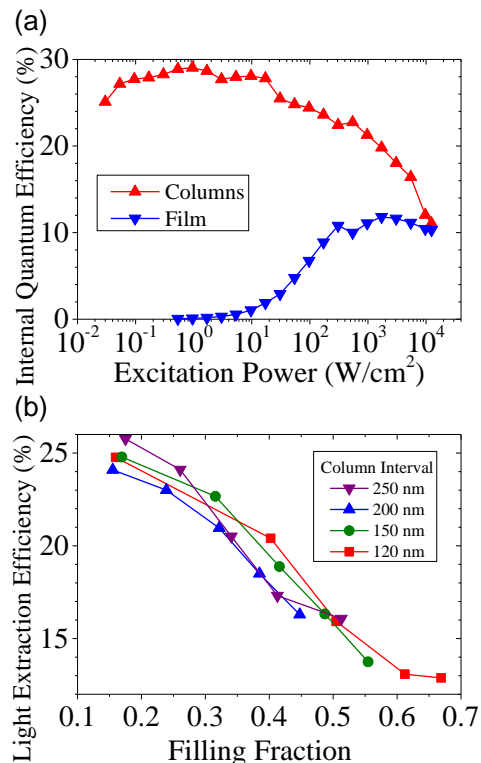


図3. 室温における InGaN/GaN 試料の(a)内部量子効率の励起密度依存性、(b)光取り出し効率のコラム充填率依存性。

ちらについては図 3 (b)に示すような明確なコラム周期依存性が得られ、ナノコラム試料は最大で薄膜の 3 倍と高い効率を示すことが分かった。これは試料形状に起因したものであり、ナノ結晶という形状効果の結果である。以上の結果を合わせると、デバイス評価にとって重要な指標である**外部量子効率**は、最大で良質薄膜よりもおよそ**1桁も大きくなり得る**ことが分かった。またこれらの検証から、これまで広く用いられてきた内部量子効率算出方法が不適切であることも明確になった。なお図 3 (a)において**量子効率が下がる原因**としてオージエ効果や吸収飽和などが挙げられているが、**表面非輻射再結合**が支配的な要因であることが判明した。

(B)においては、顕微分光系にフェムト秒パルスレーザーを組み合わせて**InGaN/GaN 試料の時間分解分光**を行った。効率測定とも合わせた解析から、励起密度上昇とともに非輻射中心へのキャリアトラップ、内部電場の遮蔽、表面非輻射再結合に起因した非輻射レート増加など、キャリアダイナミクスの基本的な振る舞いを明らかにした。また多角的な光学測定によって InGaN のエネルギー分布を明らかにした結果が図 4 である。図は上から発光スペクトルと PLE (photoluminescence excitation) スペクトルおよび緩和時間スペクトルであり、① 状態密度が指数関数的に変化して緩和時間が大きな一定値を示す Localized State、③ 状態密度が一定で緩和時間が小さくキャリアが自由に動ける Extended State、② 状態密度が緩やかに変化して緩和時間が大きく変化する Transition Region、とい

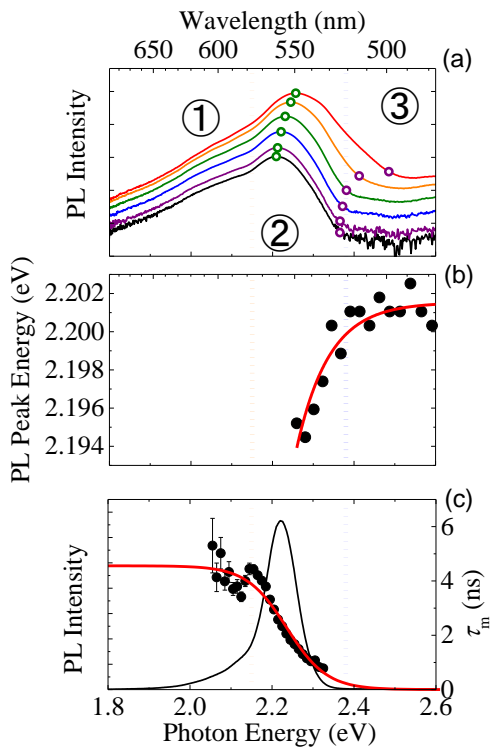


図 4. 低温における InGaN/GaN ナノコラムの(a)片対数発光スペクトル、(b)PLE スペクトル、(c)緩和時間スペクトル。

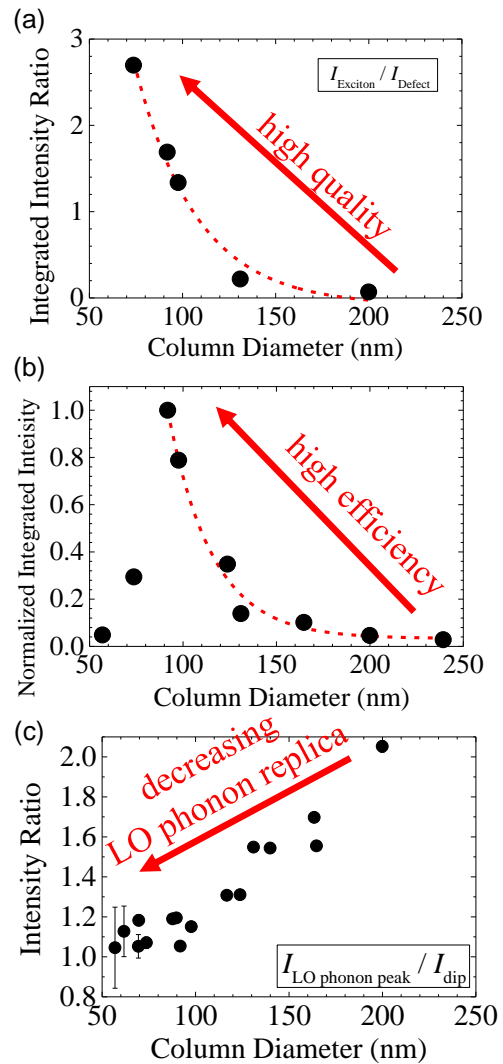


図 5. 低温における GaN ナノコラムのコラム径依存性。(a)欠陥発光に対する励起子発光の成分比、(b)励起子成分の発光効率、(c)LO フォノンレプリカ成分の大きさ。

う 3 つのエネルギー領域に分類されることが示された。また Localized State と Extended State の局在深さを定量評価し、発光効率に与える影響を明らかにした。

また InGaN に加え、組成揺らぎのない GaN 試料の結晶サイズ依存性も評価した。図 5 (a)からは結晶サイズが小さくなると**結晶品質が向上**すること、図 5 (b)からは直径 100 nm 以下では**表面非輻射再結合が支配的**になることが判明した。図 5 (c)は励起子の LO フォノンレプリカ成分の大きさを表したもので、結晶サイズ減少によって**励起子 - フォノン相互作用**が小さくなるという顕著な**ナノサイズ効果の発現**を見出した。また特徴的な励起子多体効果の観測にも成功した。

(C)については図 6 (a)に示したように、フェムト秒パルスレーザーによる強励起下において InGaN/GaN 試料で**誘導放出現象**を観測した。数値計算との比較から、この現象が**集団配列効果**に起因した**分布帰還機構**によって生じていることが明らかになった。また空

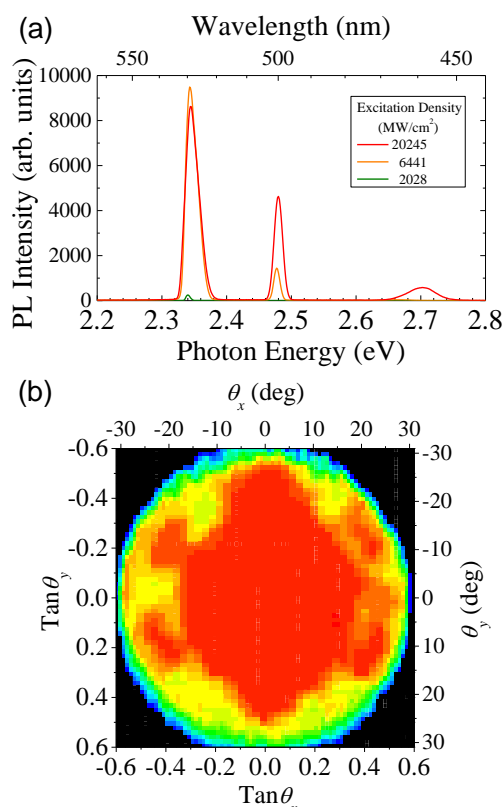


図6. 構造揺らぎの小さなInGaN/GaNナノコラム試料における(a)誘導放出スペクトル、(b)発光角度分布。

間フィルターを用いた測定から、この現象は結晶と真空との高い屈折率比によって**構造ゆらぎに敏感**であり、ゆらぎが大きいと光局在に起因したランダムレーズングに近い振る舞いを示すことを明らかにした。また発光の実空間と波数空間像(図6(b)など)および偏光依存性から、試料内で発生している**分布帰還メカニズムを直接的に観測**することに成功した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計6件)

1. T. Kametani, J. Kamimura, Y. Inose, H. Kunugita, A. Kikuchi, K. Kishino, and K. Ema, "Fundamental optical properties of InN grown by epitaxial lateral overgrowth method", AIP Conf. Proc., Vol. 1566, p.107 (2013). [査読有]
DOI: 10.1063/1.4848308
2. Y. Inose, K. Ema, M. Sakai, A. Kikuchi, K. Kishino, and T. Ohtsuki, "Anderson localization of light in two-dimensional random arrays of semiconductor nanocolumns", AIP Conf. Proc., Vol. 1566, p. 548 (2013). [査読有]
DOI: 10.1063/1.4848528
3. M. Sakai1, Y. Inose, T. Ohtsuki, K. Ema, K. Kishino, and T. Saiki, "Near-field optical imaging of light localization in GaN

nanocolumn system", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 53, p. 030301 (2014). [査読有]

DOI: 10.7567/JJAP.53.030301

4. Y. Inose, H. Ueda, N. Shimosako, K. Ema, Y. Igawa, K. Kishino, "Light Localization and Stimulated Emission in InGaN/GaN Nanocolumns", Physics Procedia, Vol. 76, pp. 68-72 (2015). [査読有]
DOI: 10.1016/j.phpro.2015.10.012
5. N. Shimosako, Y. Inose, K. Ema, Y. Igawa, K. Kishino, "Photo-generated Carrier Dynamics of InGaN/GaN Nanocolumns", Physics Procedia, Vol. 76, pp. 42-46 (2015). [査読有]
DOI: 10.1016/j.phpro.2015.10.008
6. N. Shimosako, Y. Inose, H. Satoh, K. Kinjo, T. Nakaoka, T. Oto, K. Kishino and K. Ema, "Carrier-density dependence of photoluminescence from localized states in InGaN/GaN quantum wells in nanocolumns and a thin film", J. Appl. Phys., vol. 118, p. 175702 (2015). [査読有]
DOI: 10.1063/1.4935025

[学会発表] (計22件)

1. Y. Inose, H. Ueda, K. Ema, R. Vadivelu, Y. Igawa, K. Kishino, and T. Ohtsuki, "Light localization and lasing characteristics in InGaN/GaN nanocolumn arrays", The Fourth International Workshop on Advanced Spectroscopy and Optical Materials (IWASOM'2013), O14, Gdansk University, Gdansk, Poland, July 14-19, 2013.
2. H. Ueda, Y. Inose, K. Ema, K. Kishino, and T. Ohtsuki, "Numerical analysis of Anderson localization of light by 2D transfer matrix method", The Fourth International Workshop on Advanced Spectroscopy and Optical Materials (IWASOM'2013), P25, Gdansk University, Gdansk, Poland, July 14-19, 2013.
3. Y. Inose, H. Ueda, K. Ema, R. Vadivelu, Y. Igawa, K. Kishino, and T. Ohtsuki, "Random lasing and distributed feedback lasing in InGaN/GaN nanocolumn arrays", Nonlinear Optics (NLO) 2013, NTh1A.4, The Fairmont Orchid, Kohala Coast, Hawaii, USA, July 21-26, 2013.
4. 下迫直樹, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 井川雄介, 岸野克巳, 「InGaN/GaN ナノコラムの光励起キャリアダイナミクス」, 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-B5-7, 同志社大学京田辺キャンパス, 2013年9月16-20日.
5. 猪瀬裕太, 植田裕輝, 下迫直樹, 江馬一弘, 酒井優, 井川雄介, 岸野克巳, 「窒化物半導体ナノコラムにおける誘導放出特性」, 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-B5-8, 同志社大学京田辺キャンパス, 2013年9月16-20日.
6. 下迫直樹, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 井川雄

- 介, 岸野克巳, 「InGaN/GaN ナノコラムの光学特性」, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 26pPSA-32, 徳島大学常三島キャンパス, 2013 年 9 月 25 - 28 日.
7. 植田裕輝, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 岸野克巳, 大槻東巳, 「2 次元系における光のアンダーソン局在の転送行列法を用いた数値解析」, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 26pPSB-49, 徳島大学常三島キャンパス, 2013 年 9 月 25 - 28 日.
 8. 猪瀬裕太, 植田裕輝, 下迫直樹, 江馬一弘, 酒井優, 井川雄介, 岸野克巳, 大槻東巳, 「窒化物半導体ナノコラムにおける光局在とレーザー発振」, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 27aDA-12, 徳島大学常三島キャンパス, 2013 年 9 月 25 - 28 日.
 9. N. Shimosako, Y. Inose, K. Ema, Y. Igawa, and K. Kishino, "Photo-generated Carrier Dynamics in InGaN/GaN Nanocolumns", Sogang-Sophia Workshop on Frontiers of Nanoscience and Nanotechnology, P16, during the Fourth Sogang-Sophia Festival of Exchange (SOFEX2013), Sophia University, Tokyo, Japan, November 15, 2013.
 10. Y. Inose, H. Ueda, N. Shimosako, K. Ema, Y. Igawa, and K. Kishino, "Light localization and stimulated emission in InGaN/GaN nanocolumns", The 17th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL2014), P-133, Wroclaw, Poland, 13-18 July, 2014.
 11. N. Shimosako, Y. Inose, K. Ema, Y. Igawa, and K. Kishino, "Photo-generated Carrier Dynamics of InGaN/GaN Nanocolumns", The 17th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL2014), P-150, Wroclaw, Poland, 13-18 July, 2014.
 12. 下迫直樹, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 岸野克巳, 「InGaN/GaN ナノコラム結晶の光励起キャリアダイナミクス I」, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 10aPS-79, 中部大学春日井キャンパス, 2014 年 9 月 6 - 10 日.
 13. 猪瀬裕太, 下迫直樹, 江馬一弘, 岸野克巳, 「InGaN/GaN ナノコラム結晶の光励起キャリアダイナミクス II」, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 10aPS-80, 中部大学春日井キャンパス, 2014 年 9 月 6 - 10 日.
 14. 下迫直樹, 猪瀬裕太, 江馬一弘, 岸野克巳, 「InGaN/GaN 規則配列ナノコラムの光励起キャリアダイナミクス I」, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-C5-6, 北海道大学札幌キャンパス, 2014 年 9 月 16 - 20 日.
 15. 猪瀬裕太, 下迫直樹, 江馬一弘, 岸野克巳, 「InGaN/GaN 規則配列ナノコラムの光励起キャリアダイナミクス II」, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-C5-7, 北海道大学札幌キャンパス, 2014 年 9 月 16 - 20 日.
 16. 金城一哉, 猪瀬裕太, 下迫直樹, 佐藤光, 江馬一弘, 大音隆男, 岸野克巳, 「InGaN/GaN 規則配列ナノコラムにおける局在キャリアダイナミクス」, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 16p-1D-1, 名古屋国際会議場, 2015 年 9 月 13 - 16 日.
 17. 金城一哉, 猪瀬裕太, 佐藤光, 江馬一弘, 中岡俊裕, 宮川倫, 大音隆男, 岸野克巳, 「GaN ナノコラムにおける励起子物性のコラム径依存性」, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 18pPSA-27, 関西大学千里山キャンパス, 2015 年 9 月 16 - 19 日.
 18. H. Satoh, Y. Inose, N. Shimosako, K. Kinjo, Y. Mizuno, R. Miyagawa, T. Oto, K. Kishino, and K. Ema, "Structural Dependence of Light Extraction Efficiency in Nanocolumn Arrays", Applied Nanotechnology and Nanoscience International Conference (ANNIC 2015), Espace Saint Martin, Paris, France, 5-7 November, 2015.
 19. K. Kinjo, Y. Inose, N. Shimosako, H. Satoh, T. Oto, K. Kishino, and K. Ema, "Localized Carrier Dynamics in Regularly-Arrayed InGaN/GaN Nanocolumns", Applied Nanotechnology and Nanoscience International Conference (ANNIC 2015), Espace Saint Martin, Paris, France, 5-7 November, 2015.
 20. Y. Inose, K. Kinjo, J. Yoshida, T. Oto, K. Kishino, and K. Ema, "Diameter Dependence of Optical Properties in Regularly-arrayed GaN Nanocolumns", Applied Nanotechnology and Nanoscience International Conference (ANNIC 2015), Espace Saint Martin, Paris, France, 5-7 November, 2015.
 21. 猪瀬裕太, 金城一哉, 江馬一弘, 吉田純, 山野晃司, 岸野克巳, 「GaN ナノコラムにおける LO フォノンレプリカおよび励起子多体効果」, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 20a-H121-8, 東工大大岡山キャンパス, 2016 年 3 月 19 - 22 日.
 22. 金城一哉, 猪瀬裕太, 佐藤光, 江馬一弘, 中岡俊裕, 大音隆男, 岸野克巳, 「InGaN/GaN 規則配列ナノコラムにおける局在深さの解析」, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 20a-H121-9, 東工大大岡山キャンパス, 2016 年 3 月 19 - 22 日.
- [その他]
ホームページ
<http://soliton.ph.sophia.ac.jp>
6. 研究組織
研究代表者
猪瀬 裕太 (INOSE, Yuta)
上智大学・理工学部・研究員
研究者番号: 90634501