

令和 4 年 6 月 21 日現在

機関番号：14301
研究種目：基盤研究(B) (一般)
研究期間：2019～2021
課題番号：19H02615
研究課題名(和文) 極限環境下深紫外時空間分解分光法を用いた超ワイドギャップ半導体励起子工学の創成

研究課題名(英文) Creation of ultrawide-bandgap-semiconductor exciton-engineering using deep-ultraviolet time and spatially resolved spectroscopies under extreme environments

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) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究により、室温以上の高温下では貫通転位は青色LEDの非輻射再結合中心として働くこと、ナノ多結晶ダイヤモンドからの深紫外バンド端発光の観測、AlGaIn系深紫外LEDの内部量子効率・電流注入効率・光取り出し効率の実験的切り分け、100 nmより良い空間分解能を持つ深紫外近接場光学顕微鏡の開発、n型窒化アルミニウムの束縛励起子物性解明などといった成果が得られ、超ワイドギャップ半導体励起子の光物性に関する理解が進むとともに、その評価技術である極限環境下深紫外時空間分解分光法を深化することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

波長200 nmから300 nmの深紫外光は、浄水やウイルスの不活化、ラベルフリー生体イメージング、および半導体微細加工技術などに大変有用である。超ワイドギャップ半導体は深紫外光源の1つとして注目されているが、現状超ワイドギャップ半導体を用いた深紫外光源の性能は低く留まっている。そこで本研究では、未だ成熟していない深紫外分光の深化とともに、深紫外分光を用いた超ワイドギャップ半導体の光物性解明に取り組み、深紫外光源の高性能化に繋がる超ワイドギャップ半導体の基礎光物性を明らかにすることに成功した。

研究成果の概要(英文)：This study explored the excitonic properties of ultrawide bandgap semiconductors and the techniques of deep-ultraviolet time and spatially resolved spectroscopies under extreme environments. These include, unveiling that threading dislocations act as non-radiative recombination centers in blue-emitting LEDs at above room temperatures, first observation of deep-ultraviolet band-edge emission from nano-polycrystalline diamond, elucidating the internal quantum efficiency, current injection efficiency, and light extraction efficiency of AlGaIn-based deep-ultraviolet LEDs, demonstration of deep-ultraviolet scanning near-field optical microscope with spatial resolution better than 100 nm, resolving the bound excitonic properties of n-type aluminum nitride.

研究分野：半導体光物性

キーワード：フォトルミネッセンス エレクトロルミネッセンス 窒化物半導体 ダイヤモンド 励起子 深紫外分光 近接場分光 極限環境下分光

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超ワイドギャップ半導体の研究が盛んになりつつある。光デバイスの観点から見た場合、超ワイドギャップ半導体によって深紫外発光素子の作製が可能となる。また電子デバイスの観点から見た場合、従来素子を上回る超低損失・高耐圧パワーデバイスの実現が期待される。しかしながら、特に発光素子に着目すると、超ワイドギャップ半導体の深紫外発光デバイスの発光効率は極めて低いのが現状である。

2. 研究の目的

上記背景の原因として、窒化アルミニウム(AIN)やダイヤモンドに代表される超ワイドギャップ半導体の基礎光物性に未だ不明な点が多いことが問題であると申請者は思い至った。そこで本研究の目的を超ワイドギャップ半導体の基礎光物性の解明と設定し、その手段として極限環境下(極低温下・応力下・磁場下)における深紫外時空間分解分光法を用いることに本研究の学術的独自性がある。また本研究計画では、単一材料の評価に留まらず、一連の超ワイドギャップ半導体进行评估することにより、超ワイドギャップ半導体基礎光物性に関する普遍的な知見の獲得と未解決問題の解明を目的とした。

3. 研究の方法

本研究の手法は、極限環境下における深紫外時空間分解分光法の深化・開拓と、当該手法を用いた超ワイドギャップ半導体の基礎光物性の解明である。当該深紫外分光法自体、未だ発展途上の評価技術であり、この分光法の深化・開拓自体にも意義を見出して研究を推進する。

4. 研究成果

(1) LED の駆動温度付近における光物性を調べるために可視領域における高温下顕微フォトルミネッセンス装置を開発し、青色LEDにおいて、高温下では貫通転位は非発光再結合中心として働くことを明らかにした[1]。

(2) CW レーザを用いた深紫外フォトルミネッセンス分光測定系を構築することにより、ナノ多結晶ダイヤモンドからの深紫外発光を始めて観測した[2]。

(3) 選択励起条件下・非選択励起条件下で深紫外LEDからのフォトルミネッセンスの温度依存性を計測することで、LEDの外部量子効率を特徴づけるファクターとして、量子障壁層における非発光再結合を考慮することの重要性を見出した[3]。

(4) 深紫外温度可変エレクトロルミネッセンス光学系を構築し、深紫外LEDの外部量子効率の温度依存性を計測し、光取り出し効率、電流注入効率、および内部量子効率を実験的に抽出することに成功した[4]。また電圧印加下の時間分解フォトルミネッセンス分光測定も行うことで、電流注入効率を向上させるための指針を提案した[5]。

(5) これまでに申請者が開発した深紫外近接場光学顕微鏡の改良を行った。本研究を開始するまでに空間分解能150nmを有する深紫外近接場光学顕微鏡の開発に成功していたが、本研究ではCrコートされた深紫外光ファイバプローブの先端をFIB加工によって開口作製することにより、100nm以下の直径を持つ開口を作製することに成功し、この光ファイバプローブを用いて100nmより良い空間分解能をもつ近接場PLスペクトルの取得に成功した。

(6) 深紫外角度分解フォトルミネッセンス測定系を構築することにより、AINの励起子微細構造を評価した。短距離・長距離電子正孔交換相互作用を考慮することで、AINの励起子構造を統一的に説明することに成功した[6]。

(7) n型ホモエピタキシャルAINの束縛励起子分光を行うことで、中性Siドナー束縛励起子エネルギーの同定を行った。この値とHaynes' ruleによって示唆されるSiドナーのイオン化エネルギーは、2電子遷移によって示唆されるSiドナーのイオン化エネルギー、異方性とポーラロン補正を考慮して計算によって示唆されるSiドナーのイオン化エネルギーと良い一致を示した[7]。

<引用文献>

- [1] Ryota Ishii, Yuji Koyama, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami, *Optics Express* 29, 22847 (2021).
- [2] Ryota Ishii, Rei Fukuta, Fumitaro Ishikawa, Masafumi Matsushita, Hiroaki Ohfuji, Toru Shinmei, Tetsuo Irifune, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami, *High Pressure Research* 40, 140 (2020).
- [3] Ryota Ishii, Akira Yoshikawa, Kazuhiro Nagase, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami, *Applied Physics Express* 13, 102005 (2020).
- [4] Ryota Ishii, Akira Yoshikawa, Kazuhiro Nagase, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami, *AIP Advances* 10, 125014 (2020).
- [5] Ryota Ishii, Akira Yoshikawa, Kazuhiro Nagase, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami, *Japanese Journal of Applied Physics* 60, 020903 (2021).
- [6] Ryota Ishii, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami, *Physical Review B* 102, 155202 (2020).
- [7] Ryota Ishii, Akira Yoshikawa, Hirotugu Kobayashi, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami, *Japanese Journal of Applied Physics* 60, 080901 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計17件（うち査読付論文 16件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 9件）

1. 著者名 Ishii Ryota, Koyama Yuji, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 29
2. 論文標題 Microscopic origin of thermal droop in blue-emitting InGaN/GaN quantum wells studied by temperature-dependent microphotoluminescence spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 22847 ~ 22854
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.428421	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 Kafar A., Sakaki A., Ishii R., Shojiki K., Stanczyk S., Gibasiewicz K., Staszczak G., Marona L., Schiavon D., Grzanka S., Krukowski S., Suski T., Perlin P., Funato M., Kawakami Y.	4. 巻 12
2. 論文標題 Structural and emission improvement of cyan-emitting InGaN quantum wells by introducing a large substrate misorientation angle	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optical Materials Express	6. 最初と最後の頁 119 ~ 135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OME.445043	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 該当する
1. 著者名 Ishii Ryota, Yoshikawa Akira, Kobayashi Hirotsugu, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 60
2. 論文標題 Impact of the positive electron-hole exchange interaction constant on the binding energy of neutral donor bound excitons in AlN	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 080901 ~ 080901
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac15ae	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 Amano Hiroshi et al.	4. 巻 53
2. 論文標題 The 2020 UV emitter roadmap	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 503001 ~ 503001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/aba64c	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 該当する

1. 著者名 Ishii Ryota, Yoshikawa Akira, Nagase Kazuhiro, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 13
2. 論文標題 265 nm AlGaIn-based deep-ultraviolet light-emitting diodes grown on AlN substrates studied by photoluminescence spectroscopy under ideal pulsed selective and non-selective excitation conditions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 102005 ~ 102005
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/abb86f	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 Kafar A., Ishii R., Gibasiewicz K., Matsuda Y., Stanczyk S., Schiavon D., Grzanka S., Tano M., Sakaki A., Suski T., Perlin P., Funato M., Kawakami Y.	4. 巻 28
2. 論文標題 Above 25nm emission wavelength shift in blue-violet InGaIn quantum wells induced by GaN substrate misorientation profiling: towards broad-band superluminescent diodes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 22524 ~ 22524
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.394580	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 該当する

1. 著者名 Ishii Ryota, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 102
2. 論文標題 Long-range electron-hole exchange interaction in aluminum nitride	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.155202	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 石井良太・吉川 陽・永瀬和宏・船戸 充・川上養一	4. 巻 120
2. 論文標題 エレクトロルミネッセンス・フォトルミネッセンス法によるAlN基板上265nm帯AlGaIn LEDの評価	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 信学技報	6. 最初と最後の頁 21-24
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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, Yoshikawa Akira, Nagase Kazuhiro, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 10
2. 論文標題 Temperature-dependent electroluminescence study on 265-nm AlGaIn-based deep-ultraviolet light-emitting diodes grown on AlN substrates	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 125014 ~ 125014
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0024179	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 Kafar A., Sakaki A., Ishii R., Stanczyk S., Gibasiewicz K., Matsuda Y., Schiavon D., Grzanka S., Suski T., Perlin P., Funato M., Kawakami Y.	4. 巻 9
2. 論文標題 Influence of substrate misorientation on the emission and waveguiding properties of a blue (In,Al,Ga)N laser-like structure studied by synchrotron radiation microbeam X-ray diffraction	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Photonics Research	6. 最初と最後の頁 299 ~ 299
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/PRJ.411701	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 該当する

1. 著者名 Ishii Ryota, Yoshikawa Akira, Nagase Kazuhiro, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi	4. 巻 60
2. 論文標題 Bias-dependent time-resolved photoluminescence spectroscopy on 265 nm AlGaIn-based LEDs on AlN substrates	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 020903 ~ 020903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abd91d	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, 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 ¹³ 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 -

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 Shojiki Kanako, Ishii Ryota, Uesugi Kenjiro, Funato Mitsuru, Kawakami Yoichi, Miyake Hideto	4. 巻 9
2. 論文標題 Impact of face-to-face annealed sputtered AlN on the optical properties of AlGaN multiple quantum wells	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 125342 ~ 125342
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5125799	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 Mitchell B., Timmerman D., Zhu W., Lin J. Y., Jiang H. X., Poplawsky J., Ishii R., Kawakami Y., Dierolf V., Tatebayashi J., Ichikawa S., Fujiwara Y.	4. 巻 127
2. 論文標題 Direct detection of rare earth ion distributions in gallium nitride and its influence on growth morphology	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 013102 ~ 013102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5134050	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 Minami Yuki, Cadatal-Raduban Marilou, Kuroda Koki, Shinohara Keito, Lai Youwei, Yamanoi Kohei, Sarukura Nobuhiko, Shimizu Toshihiko, Ishii Ryota, Kawakami Yoichi, Kabasawa Nobuo, Amano Takashi, Kiyohara Kosuke, Kiyohara Motosuke	4. 巻 -
2. 論文標題 Achromatic Deep Ultraviolet Lens Using Novel Optical Materials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 physica status solidi (b)	6. 最初と最後の頁 1900480 ~ 1900480
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssb.201900480	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14件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 8件）

1. 発表者名 石井良太, 船戸充, 川上養一, 吉川陽, 小林敬嗣
2. 発表標題 Si添加ホモエピタキシャルAlN薄膜の極低温下フォトルミネッセンス測定
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shiki Tanaka, Ryota Ishii, Norman Susilo, Tim Wernicke, Michael Kneissl, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami
2. 発表標題 Epitaxially laterally overgrown AlGa _N quantum wells studied by selectively and non-selectively excited photoluminescence
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ryota Ishii, Akira Yoshikawa, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami
2. 発表標題 Temperature-dependent electroluminescence spectroscopy on 265-nm AlGa _N -based LEDs grown on AlN substrates
3. 学会等名 IWSingularity 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryota Ishii, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami
2. 発表標題 Luminescence spectroscopies on 265-nm AlGa _N DUV LEDs and AlN films grown on AlN substrates
3. 学会等名 SPIE PHOTONICS WEST 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石井良太・吉川 陽・永瀬和宏・船戸 充・川上養一
2. 発表標題 エレクトロルミネッセンス・フォトルミネッセンス法によるAlN基板上265 nm帯AlGa _N LEDの評価
3. 学会等名 LQE CPM ED
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ryota Ishii, Mitsuru Funato, and Yoichi Kawakami
2. 発表標題 Recent progress in deep-ultraviolet scanning near-field optical microscope: a tool visualizing the luminescence properties of Al-rich AlGa _N active layers
3. 学会等名 SPIE PHOTONICS WEST (Online, Mar. 6-11, 2021), (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yoichi Kawakami, Ryota Ishii, and Mitsuru Funato
2. 発表標題 Recombination Mechanism in III-Nitride Based Singularity Structures by Scanning Near-field Optical Microscopy
3. 学会等名 The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (国際学会)
4. 発表年 2021年

1 . 発表者名 K. Shojiki, R. Ishii, K. Uesugi, M. Funato, Y. Kawakami and H. Miyake
2 . 発表標題 Comparative study of AlGa _N multiple quantum wells on annealed-sputtered-AIN and MOVPE-grown-AIN on sapphire substrates
3 . 学会等名 13th International Conference on Nitride Semiconductors, Washington, USA (July 7-12, 2019) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 A. Kafar, R. Ishii, S. Stanczyk, K. Gibasiewicz, S. Grzanka, T. Suski, P. Perlin, M. Funato and Y. Kawakami
2 . 発表標題 Engineering of emission wavelength of InGa _N quantum wells by fabrication of spatial off-cut variation
3 . 学会等名 9th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors, Okinawa, Japan (Nov. 10-15, 2019) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 R. Ishii, Y. Koyama, M. Funato, and Y. Kawakami
2 . 発表標題 High-temperature promoted nonradiative recombination at threading dislocations in blue-emitting InGa _N quantum well
3 . 学会等名 9th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors, Okinawa, Japan (Nov. 10-15, 2019) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 R. Ishii, M. Funato and Y. Kawakami
2 . 発表標題 Exciton fine structure of aluminum nitride
3 . 学会等名 SPIE Photonics West, San Francisco, USA, 2020 (1-6 Feb., 2020) (invited) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2020年

1. 発表者名 正直花奈子, 石井良太, 上杉謙次郎, 船戸充, 川上養一, 三宅秀人
2. 発表標題 アニール処理スパッタAIN膜上AlGaIn多重量子井戸構造の光学特性
3. 学会等名 第11回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会, 広島大学
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InGaIn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, 北海道大学
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Kafar, R. Ishii, S. Stanczyk, K. Gibasiewicz, S. Grzanka, T. Suski, P. Perlin, M. Funato and Y. Kawakami
2. 発表標題 Study of luminescence properties of InGaIn layers with wide-range lateral indium content profiling
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

川上研究室 http://www.optomater.kuee.kyoto-u.ac.jp/ 川上研究室 http://www.optomater.kuee.kyoto-u.ac.jp/
--

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
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ドイツ	TU Berlin			