

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 23 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17460

研究課題名(和文) 摂動下分光法の複合測定による(AI,In,Ga)N系半導体の光物性解明

研究課題名(英文) Optical properties of (Al,In,Ga)N-based semiconductors studied by spectroscopy under various perturbation fields

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) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、光・応力・電場・磁場といった摂動下における分光法を駆使することで、(Al,In,Ga)N系半導体の光物性を解明することを目的としている。
本研究を達成するために、まず応力下分光測定系・電場下分光測定系・および光照射下分光測定系といった新規測定系の構築を行った。そして構築した測定系を用いて(AI,In,Ga)N系半導体の光物性を評価し、具体的には緑色発光InGaN量子井戸構造の緩和・再結合ダイナミクスの新たなモデルの提唱、深紫外発光AlGaInの再結合ダイナミクスの時空間的考察、およびAlNの励起子微細構造に関する新たなモデルの提唱を行った。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to resolve the optical properties of (Al,In,Ga)N-based semiconductors utilizing spectroscopy under various perturbation fields such as light, stress, electric field, and magnetic field.
We therefore constructed some novel spectroscopic systems, where we can apply the perturbation field. Utilizing these kinds of spectroscopy, we demonstrated the relaxation/recombination dynamics of green-emitting InGaN and deep-ultraviolet-emitting AlGaIn quantum wells, and proposed the novel model of the exciton fine structure of AlN.

研究分野：半導体光物性

キーワード：摂動下分光法 窒化物半導体 励起子 光物性 再結合過程 緩和過程

1. 研究開始当初の背景

(1) 青色領域(450 nm 付近)の窒化物半導体 LED は極めて高い外部量子効率を誇っており、これをベースにした高効率白色 LED は従来の白色照明を次々と置換している。一方で、発光波長が青色領域から短波長または長波長になると、窒化物半導体 LED の外部量子効率は低下するといった問題は未だ解決されておらず、窒化物半導体の更なる応用に向けて、この問題の解決が喫緊の課題となっている。

(2) 上で述べた応用上の問題を解決するためには、(Al, In, Ga)N 系半導体の光物性を解明することが不可欠である。しかしながら、(Al, In, Ga)N 系 LED の発光効率を決定する励起子・キャリアダイナミクスには、量子閉じ込め効果、変形ポテンシャル効果、歪み誘起内部電界、ポテンシャル揺らぎ、および非輻射再結合中心の存在といった多くの物理現象が関与しており、光物性の解明を阻んでいるのが現状である。

2. 研究の目的

上記で述べたとおり、窒化物半導体の更なる応用に向けて、(Al, In, Ga)N 系半導体の光物性を解明することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、(Al, In, Ga)N 系半導体における光物性を解明することを目的として、光・応力・電場・磁場といった摂動下における分光測定系を構築し評価を行った。

4. 研究成果

(1) プローブ光とポンプ光の 2 つの光を GaN 薄膜、GaN 基板、および InGaN 単一量子井戸構造に照射し、ポンプ光によってプローブ光がどのような時間的変化を起こすかを計測する測定系を構築した。その測定系を図 1 に示す。プローブ光には He-Ne レーザ(波長 633 nm, 連続波)、ポンプ光には YAG レーザの第 3 高調波をパラメトリック変換によって波長変換した光の第 2 次高調波を用いた。その波長は 325 nm で、パルスレーザ(繰り返し周波数 10 Hz, 時間幅 5 ns)である。検出には光速フォトダイオードを用い、その周波数応答と同等の時間応答を持つ増幅器とオシロスコープで時間波形の観測を行った。図 2 に、

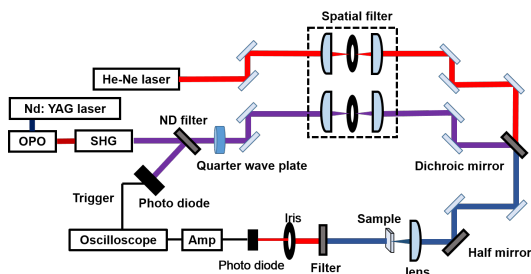


図 1. 過渡レンズ測定系

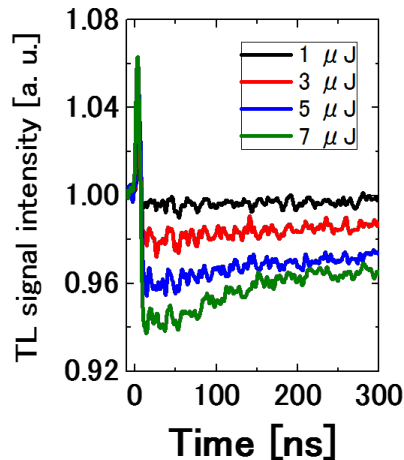


図 2. サファイア上 GaN 薄膜の過渡レンズ信号波形

サファイア上 GaN 薄膜の過渡レンズ信号波形を示す。パルスレーザ照射によって正と負のプローブ光の透過率変化が観測されており、それぞれキャリア発生と熱発生に起因している。本信号波形から内部量子効率を見積もる手法を開発した。その結果を図 3 に示す。

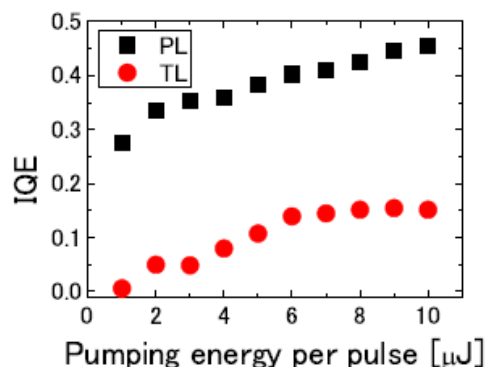


図 3. 従来手法(PL)と本手法(TL)から見積もったサファイア基板上 GaN 薄膜の内部量子効率

図 3 に示すように、従来手法(PL)から見積もられる内部量子効率と本手法(TL)から見積もられる内部量子効率には差が存在し、熱を直接定量する本手法と比べて、従来手法は内部量子効率を過剰評価する傾向にあることが分かった。なお本結果は、近年の他研究からもサポートされる結果となっている。また、サファイア基板上 GaN 薄膜と GaN 基板の内部量子効率を本手法を用いて比較することで、後者の方が内部量子効率が高くなることを明らかにし、両試料における貫通転位密度の差がその原因であると結論付けた。

(2) (Al,In,Ga)N 系半導体と同じワイドギャップ半導体であるダイヤモンドの応力下分光を行い、ダイヤモンドの励起子スペクトルの評価を行った。試料には高温高压法によって作製された(001)面と(111)面の単結晶ダイヤモンドを用いた。一軸性応力下におけるダイヤモンドのフォトルミネッセンススペクトルを図 4 に示す。[111]方向に一軸性応

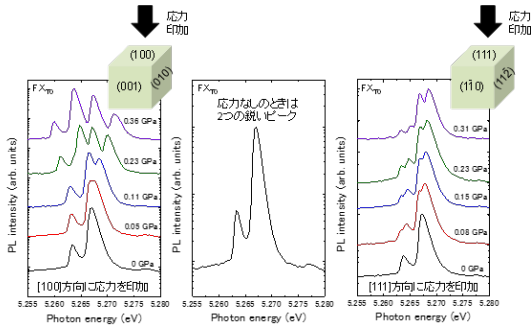


図 4. 一軸性応力下における
ダイヤモンドのフォトルミネッセンス
スペクトル(測定温度は 4.2 K)

力を印加したときに 4 つの発光起源が現れることを初めて見出し、従来の電子バンド理論では説明できない分裂であることを明らかにした。現在、従来の電子バンド理論に新たな相互作用を加えることによって理論を拡張し、実験結果を説明できる理論構築を行っている。

(3) 極低温下から室温下にかけて電場を印加することのできる分光用クライオスタットを開発した。図 5 に、深紫外発光 LED の電流・電圧特性の温度依存性を示す。温度を変化させることによって、LED デバイスとして重要な指数である立ち上がり電圧・順方向電流・逆方向電流などが大きく変わり、温度が LED の物性を特徴付ける重要なパラメータとなっていることが分かった。また、深紫外発光 LED に 4 V を加えたときのエレクトロルミネッセンススペクトルの温度依存性を図 6 に示す。図 6 に示すように、エレクトロルミネッセンススペクトルは温度によって大きく異なることが明らかとなった。温度によって LED 内におけるキャリア(電子・正孔)の空間分布が変化することがこの原因と考えている。そこで、本仮説を検証するために、深紫外発光 LED のフォトルミネッセンス測定も行った。このときに用いた光源は光パラメトリック発振器によって発生された波長 300 nm のピコ秒パルスである。エレクトロルミネッセンスとフォトルミネッセンスの積分発光強度の温度依存性を比較すると両者には大きな差が観測された。これは温度によってキャリア分布が変化することを示す結果であると考えている。今後はさらに、立ち上がり電圧以下の電圧を加えた状態で深紫外発光 LED

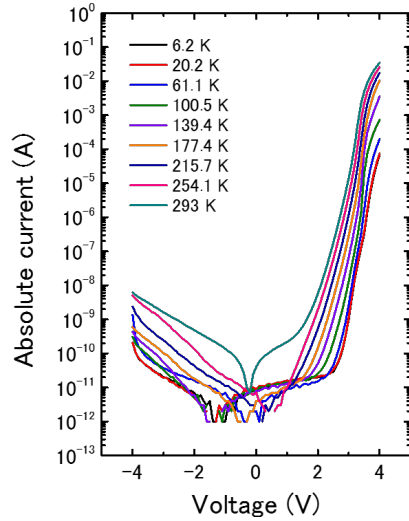


図 5. 深紫外発光 LED の電流電圧特性の
温度依存性

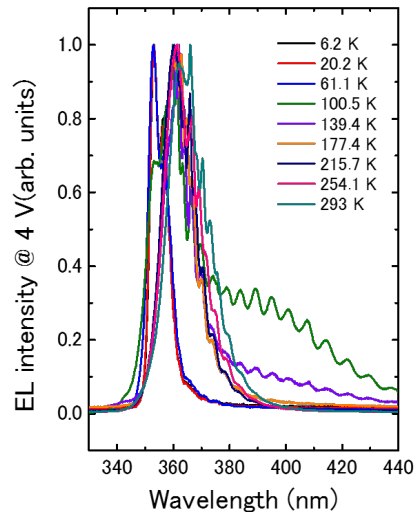


図 6. 深紫外発光 LED のエレクトロルミネッセンス(EL)スペクトルの温度依存性
(印加電圧は 4 V に固定)

のフォトルミネッセンス測定もを行い、LED における電界とキャリア分布に関する評価を引き続き行う予定である。

(4) 磁場下において深紫外分光を行うことができる分光測定装置を開発した。ここでは、深紫外用の波長板や Z 偏光子を独自に開発し、測定装置に組み込んでいる。本装置を用いて、未だ統一見解の得られていない AlN の励起子微細構造について評価しているところである。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計1件)

石戸亮祐, 石井良太, 船戸充, 川上養一,
“多波長励起発光分離法を用いた InGaN
薄膜のラマン散乱分光”
信学技報, 査読無, 115, 2015, 59-62.

[学会発表](計9件)

石井良太, 鹿田真一, 船戸充, 川上養一,
“一軸性応力下におけるダイヤモンドの
微分吸収スペクトル”
第64回応用物理学会春季学術講演会,
2017年3月14日, パシフィコ横浜
R. Ishii, M. Funato, and Y. Kawakami,
“Optical Properties of excitons in
widegap semiconductors”
International Symposium on Photonics
and Electronics Science and Engineering
2017,
2017年3月10日, 京都大学
R. Ishii, S. Shikata, M. Funato, and Y.
Kawakami,
“単結晶ダイヤモンドの応力下分光”
第35回電子材料シンポジウム,
2016年7月7日, ラフォーレ琵琶湖
石井良太, 船戸充, 川上養一,
“GaN と AlN の物性定数の同定と (Al,Ga)N
系半導体の物性予測”
第8回窒化物半導体結晶成長講演会,
2016年5月10日, 京都大学
R. Ishii, S. Shikata, M. Funato, and Y.
Kawakami,
“Exciton fine structure in diamond
studied by photoluminescence
spectroscopy under uniaxial stress”
17th International Conference on
Physics of Light-Matter Coupling in
Nanostructures,
2016年3月29日, 東大寺文化センター
塚本真大, 石井良太, 船戸充, 川上養一,
“近接場過渡レンズ法による InGaN 単
量子井戸におけるキャリアダイナミクス
の評価”
第63回応用物理学会春季学術講演会,
2016年3月19日, 東京工業大学
石井良太, 鹿田真一, 船戸充, 川上養一,
“一軸性応力下におけるダイヤモンドの
フォトルミネッセンススペクトル”
第63回応用物理学会春季学術講演会,
2016年3月21日, 東京工業大学
石戸亮祐, 石井良太, 船戸充, 川上養一,
“多波長励起発光分離法を用いた InGaN
薄膜のラマン散乱分光”
電子情報通信学会,
2015年11月26日, 大阪市立大学
塚本真大, 石井良太, 船戸充, 川上養一,
“過渡レンズ法を用いた GaN 基板と薄膜に
おける非輻射再結合過程の評価”
第76回応用物理学会秋季学術講演会,
2015年9月16日, 名古屋国際会議場

[その他]

<http://www.optomater.kuee.kyoto-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石井 良太 (ISHII, Ryota)

京都大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 60737047