

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 10 月 3 日現在

機関番号：22701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560014

研究課題名(和文)近接場走査型顕微鏡によるInGaN発光デバイスの点滅発光現象の研究

研究課題名(英文)Study on the the optical blinking of InGaN materials by near-field optical microscope

研究代表者

ミケレット ルジェロ (Micheletto, Ruggero)

横浜市立大学・その他の研究科・教授

研究者番号：50397600

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：Indium Gallium Nitridesの材料は最近人気になって、不安定発光の原因は無知な不要な現象であった。理論及び実験を含めて詳しいな研究を行いました。3年間の研究結果で、点滅現象の原因は明らかにしました。不純物の影響で結晶の温度振動が変動をされ、振幅がゆっくり周期的に変わる合成波を生ずる。発光強度は結晶の構造によるため、点滅現象が起きます。ab-initio方法を用いて光の不安定振る舞いと結晶の不純物量の関係が明らかにしました。さらに実験のアプローチで資料における吸着するガス低温または真空の実験をおこなって、点滅現象はどんな影響をされることが明らかにしました(研究論文準備中)。

研究成果の概要(英文)：This project had the main goal to solve the enigma of optical blinking in LED and other devices. This phenomena is present in Indium Gallium Nitrides LEDs and its causes were unknown. We could approach the problem experimentally and with the development of theoretical models. In these three years we could clarify what is the real cause of the blinking. The blinking is caused by the interference of thermal vibrations in the crystal lattice that alters the frequencies of a small amount. In this way we observe the blinking phenomena because crystal lattice structure is proportional to luminosity. Also we verified with very advance analysis with ab-initio methods that absorbed impure gas materials on the surface of the device may be responsible for the blinking. Besides these investigations, we also did a purely experimental approach with low-temperature and vacuum microscopy analysis with different gas to elucidate the influence on blinking (research paper in preparation).

研究分野：応用物理学・結晶工学

キーワード：結晶評価 点滅現象 光物性 量子光工学 点滅発光

1. 研究開始当初の背景

発光デバイスの材料には無知な不要な点滅現象がある。その現象のメカニズムについては世の中に確立した理論がありませんし、次時代の光デバイスを開発するためにその不安定発光の点滅現象の原因がしることが必要です。本プロジェクトの過去研究にはこの点滅現象の特性を調べたところ、主に以下の成果を得た:

- i. 点滅現象において、In 濃度の依存性を見出した。
- ii. InGaN の量子井戸中に、偏光特性を持つ局在ドメインを確認した(図 1)。
- iii. 超高空間分解能で光学特性の観察で、量子井戸における量子ドットの関係性を調べた。
- iv. 点滅現象は全体に広がっており流体力学に基づくモデルを提案した。

発光デバイスの作成のプロセスには点滅現象の原因とその物理はとても重要であると考えられる。とくにデバイスプロダクションで、制度が高い過程を確立するために不必要な現象があればとても悪い影響することある。そのために点滅現象の原理の研究は必要である。

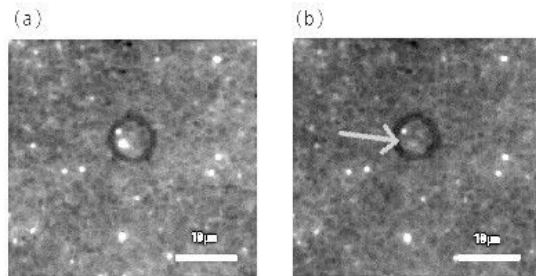


図1 : (a) InGaN デバイスの蛍光マップ。(b) は同じところで、一秒後、点滅している局在ドメインを表した。(R. Micheletto, Y. Kawakami and M. Allegrini, Appl. Phys. Lett., 95, 211904 (2009))

以上の研究成果は、著名な国際学術専門誌、国際学会などに多数引用されている(例えば Appl. Phys. Lett, 93 (8), 81907 (2008), J. Phys. D, 41 (16), 165105 (2008))。この点滅現象は、デバイスの欠陥、不純物などに起因すると考えられる。発光デバイスを改良するためには、この不要な点滅現象を制御する必要があるが、未だその点滅現象のメカニズムは明らかとなっていない。

2. 研究の目的

元のプロジェクト目的では具体的研究項目を以下に示す。

1. 偏光特性のシステム設計および点滅現象の観測
(1a) 偏光特性の光ナノプローブの作成
(1b) 高空間分解能で点滅現象の観測
2. 点滅現象のメカニズムの解明
(2a) 特性が異なる InGaN 発光デバイスの作製および観測
(2b) デバイスの特性依存性の評価
(2c) デバイス作製へのフィードバックおよびデバイスの改良
3. 点滅現象を使ったデバイス分析技術の確立

先端の光学検出を用いて InGaN 材料の発光を調べる。発光の特性は広いスケールで調べる目標し、ナノスケールの調べることも必要である。物理過程の原理をしるため、温度の依存性を分析の目的をもって、資料にいろんな不純物のガスの蒸着をされ、点滅現象はどのような影響をされることを研究しました。

デバイスの作製の場合はできなかったため(パートナーの企業の実業スケジュールの変化)、理論的な分析しました。実験データを得るだけで、点滅の現象のメカニズム深く分からないので結晶の格子の理論計算を行う必要であった。不要点滅現象を避けるには、その現象の原因を明らかにする及びその現象の理論物理を解明する必要であることが分かりました。

3. 研究の方法

高速度光学検出を用いて、光学点滅の特性を小さなタイムスケールで精密に得た。近接場走査型顕微鏡を使った高分解能の測定を行いました、点滅しているの起点(デバイスに強く発光しているところ)の位置が精密に確認できて、局在な光学特性を得た (Micheletto, R., Oikawa, K and Komatsu, J. (2012) 、 "The observation of nano and micro scaled optical blinking phenomena in the emission of InGaN LEDs: characterization and models", 13th annual LEDs conference, October 10-12 2012, San Diego, CA USA)。不純物の関係を明らかにするため真空

ポンプを用いて、低温チャンバーを使った顕微鏡(Cryostat)を用いて、発光の振る舞いを調べました(T. Tsutsumi, M. Funato, Y. Kawakami and R. Micheletto, "Study of (0001) InGaN SQW optical memory effect correlated to the increase of intense emission local domains by time-resolved photoluminescence and thermal and pressure dependence", OaM 2014, Optics and Measurement International Conference, 7-10 October, Liberec, Czech Republic, 2014)。

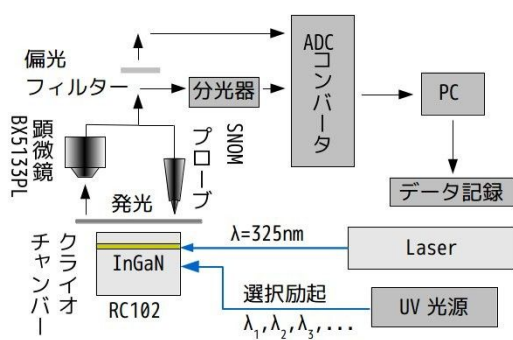


図 2. 本システムのスキーム

とくに試料の真空チャンバーの中に特別な不純物ガスを挿入して、点滅現象の発光の影響を解明しました。実験だけではなく、実験結果は、理論計算でその過程をシミュレーションする、低温、真空などの状態で不純物の関係を実験と比べて過程を明らかにした(G. Alfieri, T. Tsutsumi and R. Micheletto, "Electronic properties of substitutional impurities in InGaN monolayer quantum wells", Applied Physics Letters 106, 192102, 2015)。

4 . 研究成果

点滅現象の原因は結晶格子の温度振動(lattice thermal vibration)は不純物の依存性に影響をされます。従って、不純物の周りに振動の周波数は異なると、唸りが起きる。唸りがあるため、不均一で時間的に格子構造が変わります。発光強度が格子の構造によるので、点滅発光が起きて観測できません(R. Micheletto, K. Oikawa and C. Feldmeier, "Observation of lattice thermal waves interference by photoluminescence blinking of InGaN quantum well devices", Applied Physics Letters 103, 172109, 2013; R. Micheletto, K. Oikawa and

C. Feldmeier, "Blinking in Photoluminescence of InGaN Devices is Caused by Slow Beating of THz Vibrations of the Quantum Well" Applied Mechanics and Materials 541-542, 253-257, 2014)。さらに点滅現象はデバイスの表面に蒸着すると不純物分子に影響されることが確認しました。不必要の点滅現象を避けるには、いままで知らなかった重要な情報が新しく得ました。次時代の光デバイスの作成プロセスには貢献しました。簡単な結論として、不純物ガスはデバイスの表面にないほうが発光が安定です。なお、デバイス結晶の表面に特別な不純物の分子が少ないと点滅現象が減衰することが明らかにしました。この理論計算の研究活動の横に太陽電池の応用にも当たって太陽電池のオリジナル作製法が発見しました(K. Takatori, T. Nishino, T. Okamoto, H. Takei, K. Ishibashi and R. Micheletto, "Rare-metal-free organic thin-film solar cells using a plasmonic electrode", MNC 2013, The 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Nov. 5-8, 2013)。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 3 件)

- (1) R. Micheletto, K. Oikawa and C. Feldmeier, "Observation of lattice thermal waves interference by photoluminescence blinking of InGaN quantum well devices", Applied Physics Letters 103, 172109 (2013)
- (2) R. Micheletto, K. Oikawa and C. Feldmeier, "Blinking in Photoluminescence of InGaN Devices is Caused by Slow Beating of THz Vibrations of the Quantum Well" Applied Mechanics and Materials 541-542, 253-257 (2014)
- (3) G. Alfieri, T. Tsutsumi and R. Micheletto, "Electronic properties of substitutional impurities in InGaN monolayer quantum wells", Applied Physics Letters 106, 192102 (2015)

〔学会発表〕(計 4件)

(1) Micheletto, R., Oikawa, K and Komatsu, J. (2012) 、 "The observation of nano and micro scaled optical blinking phenomena in the emission of InGaN LEDs: characterization and models", 13th annual LEDs conference, October 10-12 2012, San Diego, CA (USA).

(2) T. Tsutsumi, M. Funato, Y. Kawakami and R.Micheletto, "Study of (0001) InGaN SQW optical memory effect correlated to the increase of intense emission local domains by time-resolved photoluminescence and thermal and pressure dependence", OaM 2014, Optics and Measurement International Conference, 7-10 October, Liberec, Czech Republic (2014)

(3) R.Micheletto, K. Oikawa, C. Feldmeier, The 4th International Conference on Advanced Materials Research (ICAMR 2014), "Blinking in Photoluminescence of InGaN Devices is Caused by Slow Beating of THz Vibrations of the Quantum Well" 、 Macao, China, 22-23 of January (2014)

(4) K. Takatori, T. Nishino, T. Okamoto, H. Takei, K. Ishibashi and R. Micheletto, "Rare-metal-free organic thin-film solar cells using a plasmonic electrode"、MNC 2013, The 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Nov. 5-8 (2013)

〔その他〕

ホームページ等

<http://ruggero.sci.yokohama-cu.ac.jp>

6. 研究組織

(1)研究代表者

ルジェロ・ミケレット (Ruggero Micheletto)

横浜市立大学・生命ナノシステム科学研究科・教授

研究者番号：50397600