

研究成果報告書

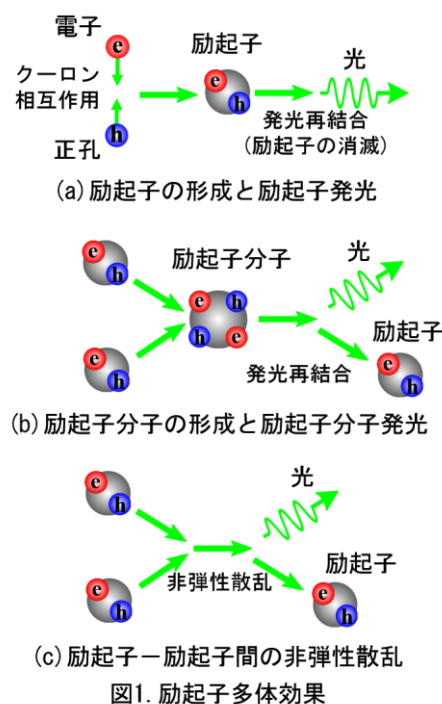
研 究 題 目		InGaN 系半導体における励起子多体効果の発現検証と光機能性	実 施 年 度 2019-2020 年度
代 表 研 究 者	所 属	徳山工業高等専門学校 情報電子工学科	
	氏 名	室 谷 英 彰	印

1. 研究の目的・背景

半導体においてキャリア（電子と正孔）が励起されると、電子と正孔はクーロン相互作用によって互いに束縛された励起子状態となる。さらに、高密度にキャリアを励起し、励起子密度が高くなると、励起子間の相互作用が無視できなくなり、励起子分子の形成や励起子-励起子散乱等の複数の励起子が関与した励起子多体効果が顕著となる。このような励起子および励起子多体効果に基づく発光遷移過程（図1：励起子系光学遷移過程）は、既存の発光デバイスの発光機構とは異なっており、高い遷移確率を有していることや、誘導放出現象による光増幅機能（光学利得）が期待できるため、この過程を利用することでデバイス性能の飛躍的な向上が見込まれる。

室温において励起子効果が発光機構に関与していることが期待できる材料として、InGaN 系半導体を含む窒化物半導体である。窒化物半導体は、原理的に可視光から深紫外線領域において高効率に発光することが可能な材料であり、青色領域および近紫外線領域においてはLED や半導体レーザー等の発光デバイスが実現されている。そのため、窒化物半導体において、励起子系光学遷移過程を発光デバイスの動作原理として用いることで、実用的な波長領域においてこれまでにない高性能な発光デバイスの実現が可能となる。このためには、窒化物半導体の励起子系光物性を理解し、デバイス構造を設計・最適化するための指針を確立する必要があると考えられる。

以上のような背景のもと、本研究では、窒化物半導体において励起子系光物性を評価し、励起子系光学遷移の詳細とその光機能性を明らかにすることで、励起子系光学遷移過程を応用したデバイス（励起子効果発光デバイス）の設計指針を確立することを目的とした。InGaN 系およびAlGaIn 系半導体において、室温の発光機構に対する励起子系光学遷移過程の関与の有無および励起子多体効果の発現を検証することを目指した。さらに、励起子系光学遷移過程の持つ光機能性の中でも光学利得の生成に注目して、励起子が関与した光学利得生成過程の発現を検証し、その安定性を評価することを目指した。



2. 研究成果及び考察（申請時の計画に対する達成度合を織込む）

本研究では、InGa_N 系半導体および AlGa_N 系半導体において窒化物半導体において励起子系光学遷移過程の評価を行い、励起子が室温の発光機構に関与していること明らかにした。さらに、励起子が関与した光学利得生成機構の発現を確認し、その熱的な安定性について評価した。

(1) 励起子系光学遷移過程の評価

励起子の輻射・非輻射再結合過程に基づいたレート方程式を用いた内部量子効率の解析モデル（図2）を提案した。この解析モデルを用いて、InGa_N 系半導体および AlGa_N 系半導体において測定した内部量子効率の温度および励起強度依存性を解析することにより、室温の発光機構が励起子の再結合過程によって説明できることを明らかにした。さらに、内部量子効率を解析した結果と、別に測定した発光ダイナミクスの温度依存性を解析した結果とを比較した結果、両者が定量的に一致することが確認できた。この結果は、提案した解析モデルの妥当性を示すものであり、InGa_N 系半導体および AlGa_N 系半導体の室温の発光機構に励起子が関与していることを示している。これらのことから、InGa_N 系半導体および AlGa_N 系半導体が励起子効果発光デバイスの実現の可能性を有した材料系であることが確認できた。[成果発表 (2), (3), (4), (7), (8), (11), (13), (14), (16)-(24), (26), (27)]

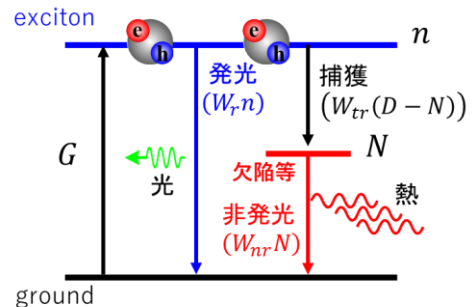


図2. レート方程式モデル

(2) 光学利得生成機構の発現検証と安定性の評価

AlGa_N 系半導体において光励起誘導放出測定を行い、励起子が関与していると考えられる光学利得の生成機構による誘導放出を観測することができた。また、誘導放出特性の温度依存性を解析することにより、温度上昇に伴って光学利得の生成機構が励起子系光学遷移過程から縮退した電子正孔プラズマ（EHP）の光学遷移過程へと変化することが確認された。さらに、活性層の構造を最適化することで光閉じ込め係数を向上させた試料を評価した結果、室温において励起子が関与した誘導放出が観測され、誘導放出スペクトルにはファブリペロー共振器の縦モードと考えられる微細構造が観測された（図3）。このことは、室温において励起子が関与した光学利得生成機構によるレーザー発振が生じていることを示しており、AlGa_N 系半導体によって励起子系光学遷移過程を利用した半導体レーザーを実現できる可能性を示すものである。[成果発表 (1), (5), (6), (9), (10), (12), (15), (25)]

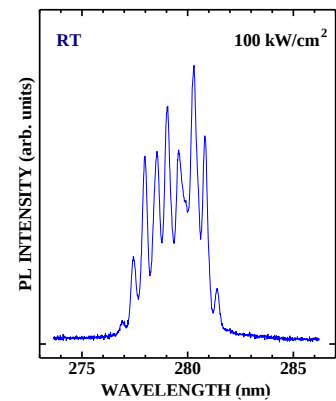


図3 縦共振器モード

以上の結果から、当初の励起子多体効果の発現とその光機能性を評価するという目標の達成には至らなかったものの、励起子効果発光デバイスの実現を目指すという観点では、その可能性を強く裏付ける結果を得ることができた。

3. 経費の使用状況（申請時の計画に対する実績を記述）

助成額 150 万円は、申請した研究課題の遂行のためにすべて使用した。

申請時には、設備備品費として 61 万円を計上していたが、他の予算で導入した備品によって予定していた内容を実現できたため、設備備品費の使用実績は 0 円である。一方で、申請時に予定していた可視光で発光する InGaN 系半導体に加え、紫外領域で発光する AlGaIn 系半導体を研究対象としたため、紫外領域に対応するために光学部品類等の消耗品費が、申請時の 39 万円に対して、使用実績は 764,578 円となった。また、その他費用として申請時には 50 万円を計上していたが、当初の使用予定に加えて間接費用および論文投稿費用が必要となり、使用実績は 735,422 円となった。

助成金によって、滞りなく申請課題を進めることができ、成果の一部を公表することができた。助成していただいた公益財団法人中国電力技術研究財団に心から感謝いたします。

4. 将来展望（今後の発展性、実用化の見込み等について記述）

本研究では、InGaIn 系半導体および AlGaIn 系半導体において室温における発光機構に励起子が関与していることを示すことができた。さらに、AlGaIn 系半導体では室温において励起子が関与したレーザー発振を観測することができた。これらの結果は、InGaIn 系半導体および AlGaIn 系半導体による励起子効果発光デバイスの実現の可能性を強く裏付けるものである。このことから、励起子効果発光デバイスの実現に向けたデバイス構造の設計において、材料系の選択という点では一定の指針を示すことができたと考えている。次の段階としては、励起子の熱的な安定性を向上させ、励起子効果を増強させるためのデバイス構造を見出すことが必要となる。このため、今後は活性領域の構造を変えた複数の試料において系統的に励起子系光学遷移過程を評価することにより、最適な活性領域の構造を作製するための指針の確立を目指す。また、励起子効果発光デバイスの実用化には、効率的に励起子を生成（励起）する方法を見出すことが必要となるため、励起子の生成方法についても検討を進める。

5. 成果の発表（学会での発表、学術誌への投稿等を記載。予定を含む）

・学術誌への掲載

- (1) H. Murotani, R. Tanabe, K. Hisanaga, A. Hamada, K. Beppu, N. Maeda, M. Ajmal Khan, M. Jo, H. Hirayama, and Y. Yamada, “High internal quantum efficiency and optically pumped stimulated emission in AlGaIn-based UV-C multiple quantum wells”, Applied Physics Letters, Vol. 117, pp. 162106 1-5 (2020).
- (2) H. Murotani, H. Miyoshi, R. Takeda, H. Nakao, M. Ajmal Khan, N. Maeda, M. Jo, H. Hirayama, and Y. Yamada, “Correlation between excitons recombination dynamics and internal quantum efficiency of AlGaIn-based UV-A multiple quantum wells”, Journal of Applied Physics, Vol. 128, pp. 105704 1-7 (2020).
- (3) H. Murotani, K. Shibuya, A. Yoneda, Y. Hashiguchi, H. Miyoshi, S. Kurai, N. Okada, K. Tadatomu, Y. Yano, T. Tabuchi, K. Matsumoto, and Y. Yamada, “Analysis of efficiency curves in near-UV, blue, and green-emitting InGaIn-based multiple quantum wells using rate equations of exciton recombination”, Journal of Applied Physics Vol. 58, pp. SCCB02 1-5 (2019).

・国際会議での発表

- (4) H. Murotani, H. Miyoshi, R. Takeda, H. Nakao, M. Ajmal Khan, N. Maeda, M. Jo, H. Hirayama, Y. Yamada, “Exciton recombination dynamics and internal quantum efficiency of AlGaIn-based UV-A multiple quantum wells”, 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, March 2021.
- (5) A. Hamada, R. Tanabe, K. Hisanaga, K. Beppu, H. Murotani, N. Maeda, M. Ajmal Khan, M. Jo, H. Hirayama, Y. Yamada, “Excitonic stimulated emission from AlGaIn-based multiple quantum wells”, The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, March 2021.
- (6) H. Murotani, H. Hirayama, Y. Yamada, “Optically-pumped excitonic lasing in AlGaIn-based UV-C MQWs”, Virtual Workshop on Materials Science and Advanced Electronics by Singularity, February 2021.
- (7) H. Murotani, H. Miyoshi, R. Takeda, M. A. Khan, N. Maeda, M. Jo, H. Hirayama, Y. Yamada, “Radiative and nonradiative recombination rates of excitons and their effects on internal quantum efficiency of AlGaIn-based UV-B MQWs”, 9th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors, November 2019.
- (8) H. Murotani, H. Miyoshi, R. Takeda, M. A. Khan, N. Maeda, M. Jo, H. Hirayama, Y. Yamada, “Role of exciton recombination processes on internal quantum efficiency in AlGaIn-based UV-B multiple quantum wells”, 13th International Conference on Nitride Semiconductors, July 2019.
- (9) H. Murotani, K. Hisanaga, R. Tanabe, A. Hamada, N. Maeda, M. Jo, H. Hirayama, Y. Yamada, “Optically pumped stimulated emission from AlGaIn-based UV-C multiple quantum wells with high internal quantum efficiency of 16 % at 750 K”, 13th International Conference on Nitride Semiconductors, July 2019.

国内学会・研究会での発表

- (10) 濱田晟, 福田拓矢, 倉井聡, 室谷英彰, 前田哲利, M. Ajmal Khan, 定昌史, 平山秀樹, 山田陽一, “AlGaIn系 UV-C 多重量子井戸構造における誘導放出のしきい励起パワー密度の温度依存性”, 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, 2021 年 3 月
- (11) 藤井厚志, 押村遼太, 草場崇史, 倉井聡, 室谷英彰, 上杉謙次郎, 三宅秀人, 山田陽一, “Face-to-face アニール処理されたスパッタ成膜 AlN テンプレート上 AlGaIn 系多重量子井戸構

造の内部量子効率”，第 68 回応用物理学会春季学術講演会，2021 年 3 月

(12) 室谷英彰，田邊凌平，久永桂典，濱田晟，別府寛太，前田哲利，M. Ajmal Khan，定昌史，平山秀樹，山田陽一，“AlGa_N 系 UV-C 多重量子井戸構造の内部量子効率と励起子系誘導放出特性”，電子情報通信学会レーザ・量子エレクトロニクス研究会「窒化物半導体光・電デバイス、材料、関連技術、及び一般」，2020 年 11 月

(13) 室谷英彰，山田陽一，“AlGa_N 量子井戸構造における励起子の発光・非発光ダイナミクスと深紫外誘導放出”（招待講演），応用物理学会応用電子物性分科会研究例会「紫外材料・デバイス開発の最前線～物性の理解とデバイス開発～」，2020 年 11 月

(14) 室谷英彰，三好博之，武田椋平，中尾拓希，倉井聡，M. Ajmal Khan，前田哲利，定昌史，平山秀樹，山田陽一，“AlGa_N 系 UV-A 多重量子井戸構造における内部量子効率と励起子の輻射再結合ダイナミクスの励起強度依存性”，第 81 応用物理学会春季学術講演会，2020 年 9 月

(15) 田邊凌平，濱田昂，別府寛太，倉井聡，室谷英彰，前田哲利，定昌史，平山秀樹，山田陽一，“AlGa_N 系 UV-C 多重量子井戸構造における室温誘導放出と縦共振器モードの観測”，第 81 応用物理学会春季学術講演会，2020 年 9 月

(16) 岡村悠司，室谷英彰，“InGa_N 系量子井戸構造における励起子レート方程式モデルによる内部量子効率の励起密度依存性の解析”，2020 年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会，2020 年 8 月

(17) 中津留圭悟，橋口勇樹，室谷英彰，倉井聡，岡田成仁，只友一行，矢野良樹，小関修一，松本功，山田陽一，“緑色 InGa_N 量子井戸構造における発光効率曲線解析と輻射・非輻射再結合ダイナミクスの相関”，2020 年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会，2020 年 8 月

(18) 中生拓希，三好博之，武田椋平，室谷英彰，倉井聡，M. Ajmal Khan，前田哲利，定昌史，平山秀樹，山田陽一，“UV-A 帯 AlGa_N 量子井戸構造における内部量子効率と輻射・非輻射再結合寿命ダイナミクス”，2020 年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会，2020 年 8 月

(19) 押村遼太，藤井厚志，中谷文哉，倉井聡，室谷英彰，上杉謙次郎，三宅秀人，山田陽一，“高温アニールした微傾斜サファイア基板上スパッタ成膜 AlN テンプレートに成長された AlGa_N 多重量子井戸の内部量子効率評価”，2020 年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会，2020 年 8 月

(20) 室谷英彰，三好博之，武田椋平，中生拓希，倉井聡，M. Ajmal Khan，前田哲利，定昌史，平山秀樹，山田陽一，“AlGa_N 系多重量子井戸構造における励起子レート方程式モデルによる効率 Droop 現象の解析”，第 67 回応用物理学会春季学術講演会，2020 年 3 月

(21) 三好博之，武田椋平，中生拓希，倉井聡，室谷英彰，M. Ajmal Khan，前田哲利，定昌史，平山秀樹，山田陽一，“AlGa_N 系多重量子井戸構造における励起子の輻射・非輻射再結合レートの励起強度依存性”，第 67 回応用物理学会春季学術講演会，2020 年 3 月

(22) 押村遼太，赤松勇紀，藤井厚志，倉井聡，室谷英彰，上杉謙次郎，三宅秀人，山田陽一，“アニール処理されたスパッタ AlN テンプレート上 AlGa_N 多重量子井戸における内部量子効率の c 面サファイア m 軸オフ角依存性”，第 67 回応用物理学会春季学術講演会，2020 年 3 月

- (23) 三好博之, 武田棕平, 中生拓希, 倉井聡, 室谷英彰, M. A. Khan, 前田哲利, 定昌史, 平山秀樹, 山田陽一, “AlGa_N 系多重量子井戸構造における励起子レート方程式モデルによる効率曲線の解析”, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 2019 年 9 月
- (24) 室谷英彰, 三好博之, 武田棕平, 中生拓希, 倉井聡, M. A. Khan, 前田哲利, 定昌史, 平山秀樹, 山田陽一, “AlGa_N 系多重量子井戸構造における励起子レート方程式モデルによる効率曲線の解析 (2)”, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 2019 年 9 月
- (25) 田邊凌平, 久永桂典, 濱田晟, 別府寛太, 倉井聡, 室谷英彰, 前田哲利, 定昌文, 平山秀樹, 山田陽一, “AlGa_N 量子井戸構造における深紫外誘導放出の温度依存性”, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 2019 年 9 月
- (26) 赤松勇紀, 藤井厚志, 倉井聡, 室谷英彰, 三宅秀人, 山田陽一, “AlGa_N 多重量子井戸構造における内部量子効率の井戸幅および障壁層 Al 組成比依存性”, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 2019 年 9 月
- (27) 橋口勇樹, 永見祐二, 中津留圭吾, 倉井聡, 岡田成仁, 只友一行, 室谷英彰, 矢野良樹, 田淵俊也, 松本功, 山田陽一, “緑色 InGa_N 系量子井戸構造における内部量子効率曲線のフィッティング解析”, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 2019 年 9 月