九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

Studies on Enhancement Mechanisms in Light Emission from Metal Coated InGaN/GaN Quantum Wells

立石, 和隆

https://doi.org/10.15017/1931696

出版情報：九州大学, 2017, 博士（理学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：

KYUSHU UNIVERSITY

（様式３）

氏　　名　：立石 和隆

論 文 名　：　Studies on Enhancement Mechanisms in Light Emission from Metal Coated InGaN/GaN Quantum Wells
(金属被覆 InGaN/GaN 系量子井戸の発光増強機構に関する研究)

区　　分　：　甲

論 文 内 容 の 要 旨

金属／誘電体界面における自由電子のプラズマ振動である表面プラズモン（Surface Plasmon: SP）は、光と共鳴することによって金属表面近傍に強い電場増強効果やナノ空間への光閉じ込め効果をもたらし、表面増強散乱ラマンなど様々な応用が注目されている。金属／誘電体界面を伝搬する SP は、同じ振動数を持つ伝搬光よりも波数が大きく、高い状態密度を持つ。それによって近傍の原子・分子の励起状態や励起子の輻射遷移確率を上昇させ、高効率発光をもたらすことが知られている。これを利用して、青色発光ダイオードの発光材料として知られる InGaN/GaN 量子井戸(QWs) の表面に銀薄膜を蒸着することにより、発光の内部量子効率（IQE）を向上させることができる。この方法は蛍光灯に代わる高効率発光素子への応用が期待されているが、その詳細な発光増強機構については不明な点も多く残されている。そこで本研究では、この発光増強の機構をより深く理解するため、顕微フォトルミネセンス（PL）マッピング測定を用いて、発光特性の空間分解評価を行った。さらに銀に代わる新たな SP に用いる金属材料として、アルミニウムに注目し、その銀とは異なる発光増強機構について解明した。

図 1 に示した InGaN/GaN 系 QW 構造に、厚み 50 nm の金属層を蒸着し、試料の裏面から光励起･PL スペクトルの検出を行った。顕微 PL マッピングは、電動ステージを備えた蛍光顕微鏡を用いて、2μm x 2μm のサイズのピクセルごとに 100 μm x 100 μm の走査範囲で PL スペクトルを測定した。

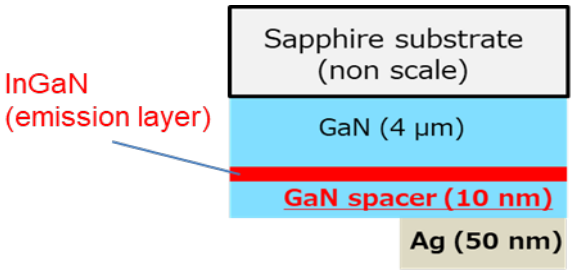

図 1　InGaN/GaN QW の試料構造．銀被覆・/非被覆部位の比較のため、試料表面の半分にのみ銀を製膜した．

図 2 (a),(b)はそれぞれ、銀被覆 InGaN/GaN QWs 表面の銀蒸着部位から得られた PL スペクトルのピーク強度およびピーク波長のマッピング画像である。どちらのマッピングにおいてもマイクロメートルスケールの不均一な構造を持っており、これは InGaN における In 組成の空間不均一性に起因すると思われる。図 2(c)は、顕微 PL マッピングにより得られたピーク強度とピーク波長の相関のプロットである。銀非被覆部位においては、ピークが長波長になるほど発光強度が減少する負の相関が見られた。これに対し、銀被覆部位においては、発光が~10 倍に増強されると同時に、非被覆部位で見られた負の相関が消失した。非被覆部位で見られた負の相関は、量子閉じ込めシュタルク効果 (QCSE) を考慮することで説明できる。緑色発光を示す高 In 組成の InGaN/GaN

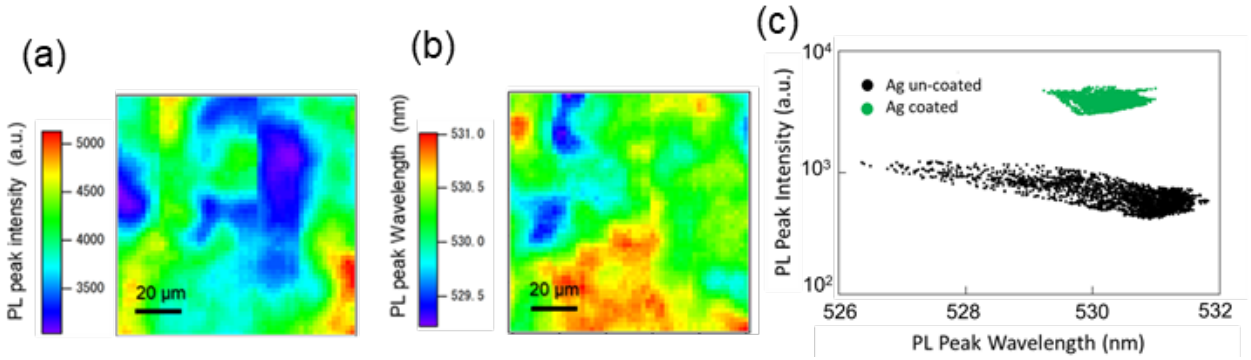

図 2　緑色発光を持つ InGaN 系量子井戸の銀被覆部位の同一領域から得られた(a)ピーク強度および(b)ピーク波長マッピング. (c)銀被覆部位(緑)及び非被覆部位(黒)におけるピーク強度とピーク波長の相関.

QWs では、GaN と InN の格子不整合によって生じる結晶格子の歪みによってピエゾ電界が発生し、エネルギー準位を歪ませて発光波長の長波長化をもたらす。この結晶内のピエゾ電界は発光層に生じる励起子の電荷によって緩和されることも知られている。QCSE の緩和の程度は発光層における各部位の励起子密度、つまりは In 組成の空間分布に依存するため、それが負の相関の原因となる。これに対し銀被覆部位においては、非被覆部位で見られた負の相関が見られなくなると共に、ピーク波長の分布範囲が極端に狭くなった。この結果は InGaN に発生した励起子と SP とのエネルギー移動が非常に速く、定常状態における励起子密度が低下したことにより、各部位の励起子密度の空間分布がなくなったことに起因すると考えている。このような特徴は、スペクトル幅が狭くピーク強度が高い発光を得る上で有益な発光特性であり、今後さらなる解析・応用が期待される。

また、同様の系において、銀の代わりにアルミニウム薄膜を用いることによって、光吸収効率の向上による著しい発光増強効果が得られることを見出した。図 2(a)に示したアルミニウム被覆境界付近の顕微 PL 像及び図 2(b)に示したアルミニウム被覆部位及び非被覆部位の発光スペクトルから、アルミニウムを用いることで銀を用いた場合よりもはるかに大きな~80 倍の発光増強が得られた。励起スペクトルの測定、発光強度の温度依存性測定等の測定によって、増強機構は励起光-SP 間の共鳴によって生じた励起密度の上昇によるものであり、銀を用いた場合の発光増強とはまったく異なる機構であることを明らかにした。アルミニウム被覆 InGaN/GaN QWs に対しても同様に顕微 PL マッピング法を適用することにより、アルミニウム上の SP と励起光の共鳴によって励起密度が上昇することによる発光特性の変化についても解明した。

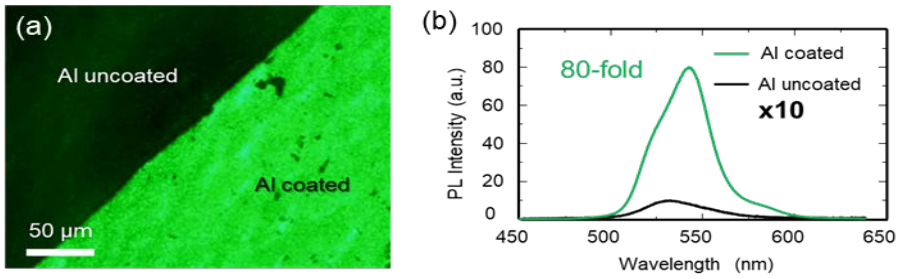

図 3 スペーサー厚 40 nm のアルミニウム被覆緑色発光 InGaN/GaN QWs の(a)アルミニウム被覆/非被覆境界付近における顕微 PL 像(b)アルミニウム被覆部位、非被覆部位から得られた典型的な PL スペクトル

本研究によって、SP による InGaN/GaN QW の発光増強の機構を、In 組成の空間分布やそれに基づく励起子挙動と関連付けて解明することができた。それによって、SP のもたらす空間発光特性とその機構について、銀をとアルミニウムを用いた場合とでそれぞれ理解することができた。本研究で得られた知見は、SP の基礎光学特性を理解するうえでも、今後さらなる高効率化やデバイス応用を目指す上でも重要であると思われる。