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６－２）

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）		
論文調査委員	主　査	九州大学	准教授　岡本晃一
	副　査	九州大学	教授　玉田薫
	副　査	九州大学	教授　寺嵜亨

論　文　審　査　の　結　果　の　要　旨

金属と誘電体の界面に発生する表面プラズモンは、外部の光と共鳴することによって、巨大な局在電場増強効果や波長限界を超えたナノ空間への光の閉じ込めなど、特異な光学特性が出現することから、様々な光技術への応用が期待されている。その一つに青色発光ダイオードの発光材料に用いられる窒化物半導体を用いたInGaN/GaN量子井戸構造の発光効率を向上できることが知られており、高輝度 LED への応用が期待されている。しかし、その詳細な発光機構については、未だ不明な点も多く残されており、そのため効果を十分に最適化できず実用化のめども立っていない状況である。本研究者は、InGaN/GaN 量子井戸構造において、発光増強の機構を詳細に理解することを目的に、主に顕微フォトルミネセンス（PL）マッピング測定を用いた発光特性の空間分解評価を行った。その結果、InGaN/GaN の発光効率、光学特性を支配する励起子の局所的なダイナミクスとのかかわりについて詳細に解明することに成功した。以下その詳細について述べる。

青色発光と緑色発光を示すInGaN/GaN 量子井戸に、厚み 50 nm の金属層を蒸着し、電動ステージを備えた蛍光顕微鏡で試料裏面から光励起し、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スペクトルを測定することにより、PLピーク強度マッピングとピーク波長マッピングが得られた。すべての試料について、PLマッピングにはIn組成の空間的不均一性に基づくと思われるマイクロメートルスケールの発光の不均一性が観測された。これをもとにPL ピーク強度とピーク波長の相関がプロットされ解析された。青色発光を示す試料については、PLピークが長波長になるほど発光が強くなるという「正の相関」が得られた。これはIn組成が局所的に高く、バンドギャップエネルギーが局所的に低くなっている場所に励起子が局在し発光中心になるという励起子局在効果で説明された。これがInGaN/GaNが結晶品質が低いにもかかわらず高効率な発光を示す主な要因である。それに対し、銀蒸着によって表面プラズモンによる高効率化が起きた場合には、マイクロメートルスケールの発光の不均一性は残るものの、PL ピーク波長と強度の相関が消失することが示された。このことは、励起子から表面プラズモンへのエネルギー移動が、励起子局在よりも早く起きることを示唆していると考察された。

一方、緑色発光を示す試料については、青い色発光とは逆に PL ピークが長波長になるほど発光が弱くなる「負の相関」が得られた。このことはIn組成が増加することによってIn組成が局所的に多い領域のサイズが大きくなり、励起子の局在効果が弱まること、結晶内にひずみが生じ、ピエゾ電解が生じて励起子の電子と正孔の波動関数の重なりが弱まる量子閉じ込めシュタルク効果（QCSE）によって、発光性再結合確立が低下すること、さらにはIn組成の高い領域に転位が増加

して発光中心から転じて非発光中心になることなどによって説明された。いずれも発光効率にとってマイナス要因である。これに対し、銀を蒸着し表面プラズモン共鳴が起きた場合には、「負の相関」が消失し、PL ピークの波長分布が著しく狭くなることが示された。このことは、励起子と表面プラズモンの共鳴が、励起子密度が増加する前に起きるため、励起子密度に応じた QCSE のスクリーニングが低減したことで説明された。

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が見出された。それにより、緑色発光において銀を用いた場合よりもはるかに大きな 80 倍もの発光増強が得られ、銀を用いた場合とは機構が異なり、励起光がアルミニウム界面で表面プラズモンと共鳴し、励起効率が 20 倍に増加したためであることが示された。この系において顕微 PL 測定を行い、同様の PL 強度と波長の相関を解析したところ、銀を用いた場合とは逆に、表面プラズモンのもたらす巨大電場によって QCSE が消失し、それによって埋もれていた励起子局在効果が緑色発光においても出現することが明らかになった。

以上のように本研究によって、表面プラズモンと共鳴することにより、単に発光増強が起きるだけでなく、InGaN/GaN 量子井戸の発光特性を支配する励起子局在効果や QCSE といった励起子の局所的ダイナミクスにも大きな影響を及ぼすことが明らかになった。励起子局在効果や QCSE は、LED、レーザー等の用途によってプラスにもマイナスにもなりうる要素であり、これを表面プラズモンによって制御できれば、フレキシブルな光学特性制御が可能になる。本研究によって、表面プラズモン共鳴による発光増強機構を詳細に解明し、それによって新たな光学特性制御の可能性をも示すことができた。

本研究で得られた知見は、表面プラズモン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り、表面プラズモンに関わる化学の広い分野に影響を与えるものである。よって、本研究者は博士（理学）の学位を受ける資格があるものと認める。