

InGaN/GaN単一量子井戸型構造の 不安定点滅現象に関する研究

横浜市立大学大学院

生命ナノシステム科学研究科 物質システム科学専攻

藤井 祐輔

InGaN窒化物半導体とは？



青の洞窟@渋谷

- 信号機など、今や至るところで青色LEDを見かけることができるようになった。
- 青色LEDはInGaNという“窒化物半導体”という材料からできている。
- InGaNは構造欠陥が非常に多く含まれている。
(従来の半導体と比較して100万倍以上とされる)



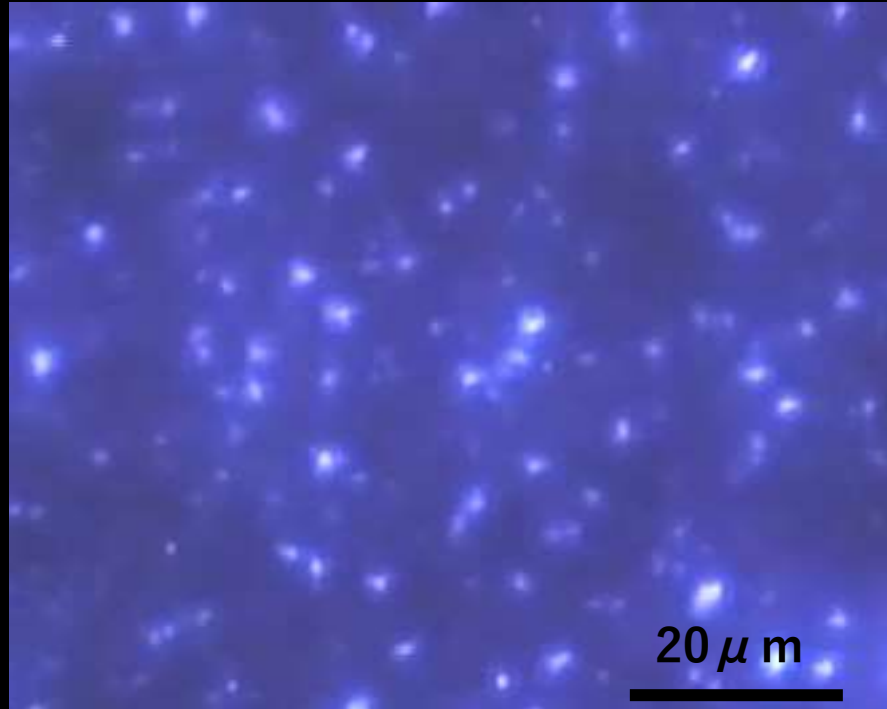
サファイア基板の利用による成長層との格子定数のズレ。
有機金属気相成長法による歪みが主な原因

しかしながら、高輝度かつ高寿命な発光をすることで注目を浴びている。

- 本研究のテーマである点滅現象はこの構造欠陥に由来する現象であると考えられる

点滅現象とはどのような現象か？

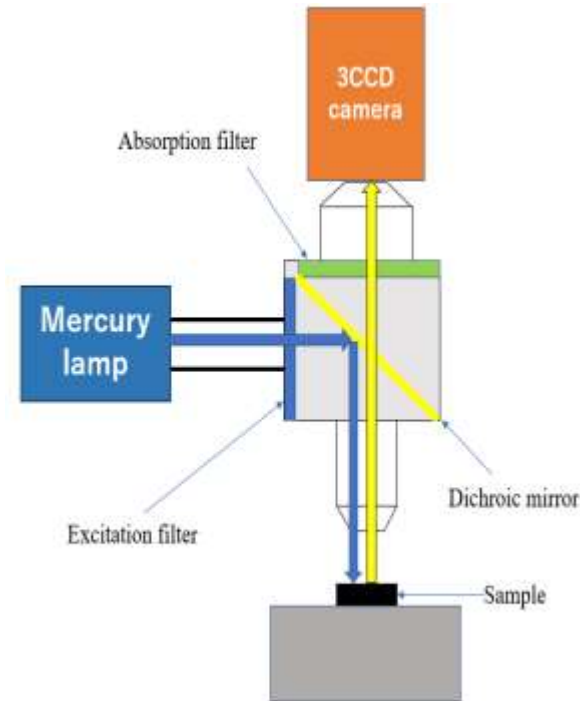
実際に観測される不安定点滅現象



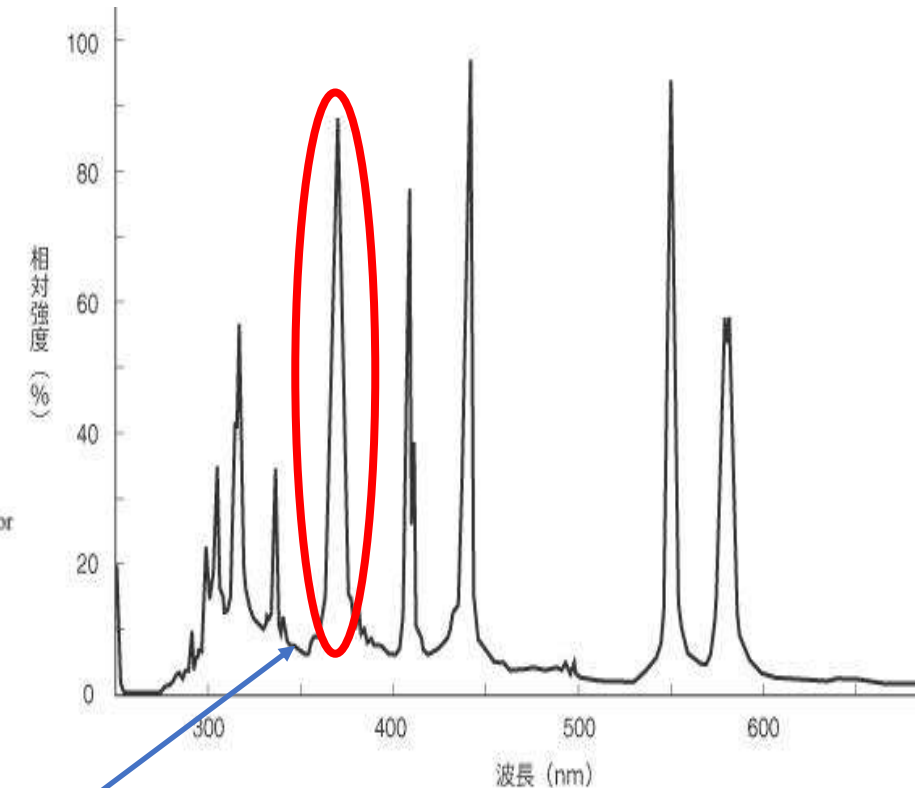
GaN(undoped) 5nm
In _x Ga _{1-x} N 3nm
GaN(undoped) 4μm
Sapphire

これは発光波長
460nmの試料を
利用

選択励起蛍光顕微鏡



水銀ランプの波長とその強度

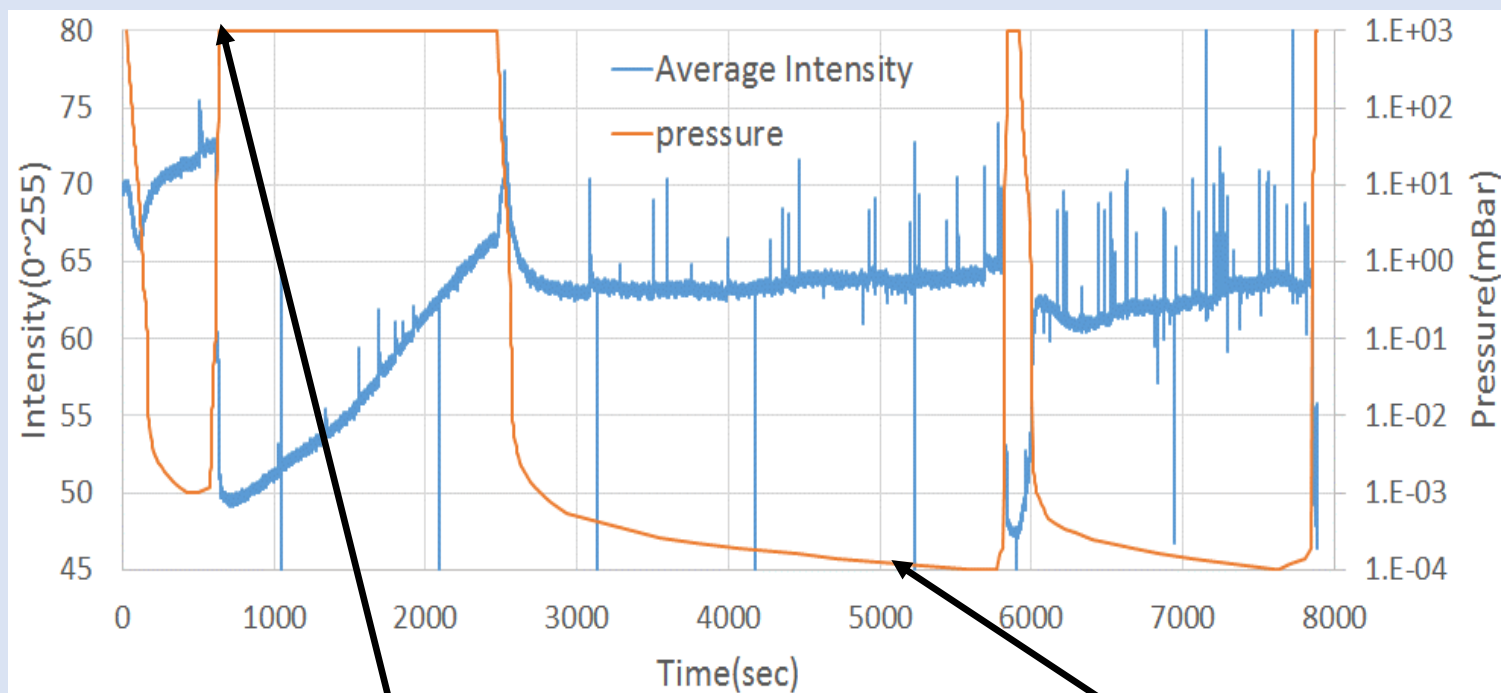


水銀ランプの365nmのピークのみを取り出し、サンプルに当てている。

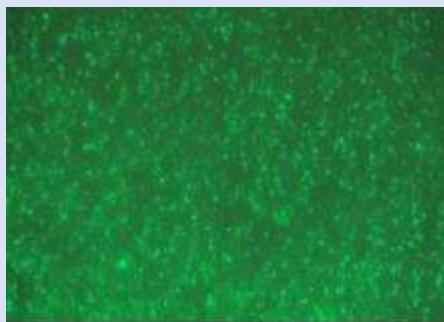
- 星の輝きのような点滅が数ミクロン単位でいくつも見られる。
- 内部に存在する多数の構造欠陥、貫通転移が原因とされているが、なぜ点滅が発生するか？明らかにされていない。

過去の研究事例（圧力依存性）

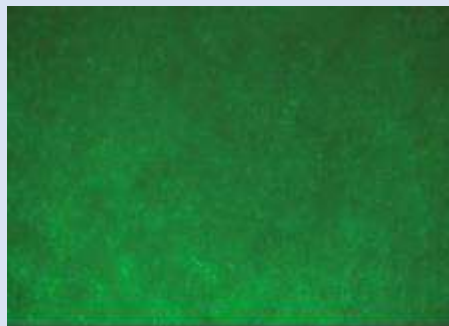
全体発光の圧力依存性



大気圧中
(輝点発生)



高真空中
(一様な発光)



大気圧中では全体発光強度が低くなり、高真空中では高くなる傾向があった。

大気圧中では輝点が発生し、所々、光が揺らいでいる。

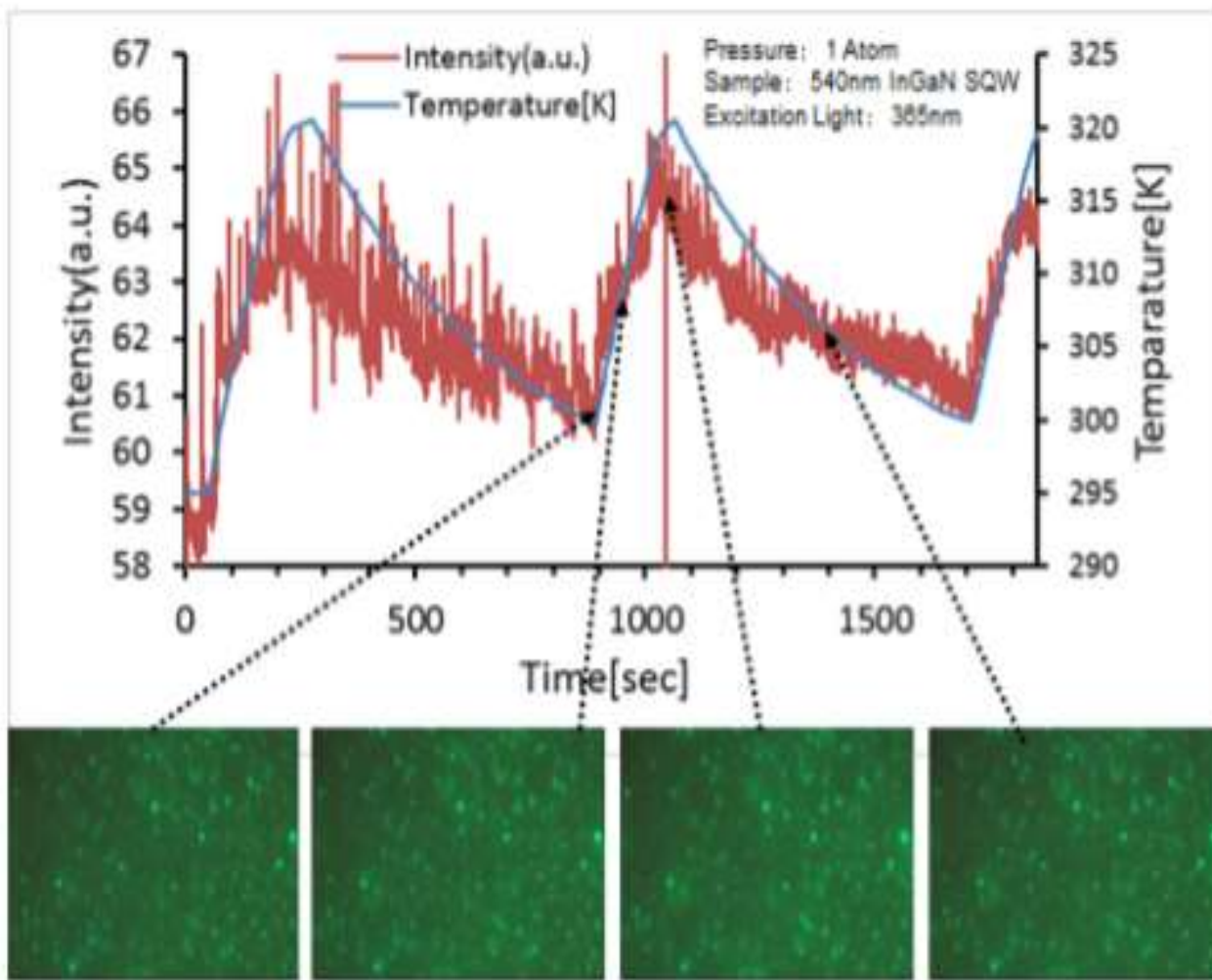


高真空中では輝点は存在せず、一様な発光を示す。

吸着物質の変化により、点滅現象に変化が生じているのではないかと示唆された。

過去の研究事例（温度依存性）

全体発光の温度依存性（300K～320K）



点滅ではなく全体発光強度の変化を追っている

温度上昇につれて全体発光強度は上がる。
温度下降につれて全体発光強度は下がる。
(300K～320Kでのデータ)

点滅の数について変化しないと定性的に結論付けていた。(300K～320K)



定量的なデータはなく、温度変化による詳細な輝き方の変化は分かっていなかった。

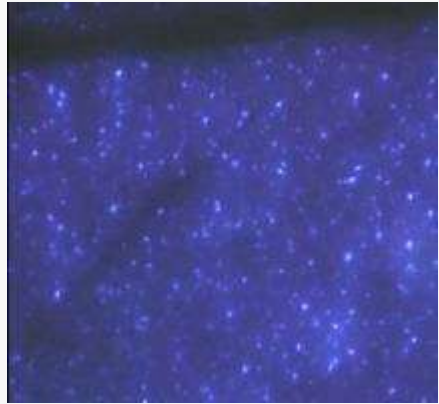
本研究で行ったこと

- 液体物の付着による点滅現象の変化を定量的に評価
- 温度変化による点滅現象の変化（300K～373Kまで）を定量的に評価
- 点滅点同士の相関性を定量的に評価

実験方法

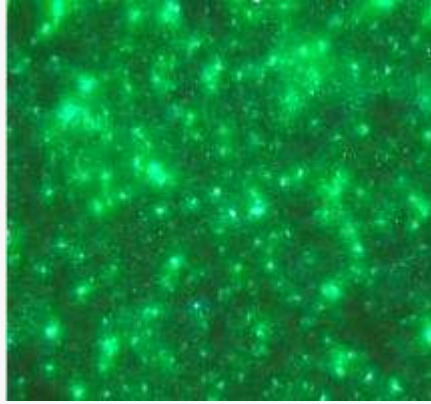
主に2種類のInGaN SQWを利用した。

発光波長460nm



Inの量 少

発光波長510nm



Inの量 多

試料構造

GaN(undeped) 5nm

$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 3nm

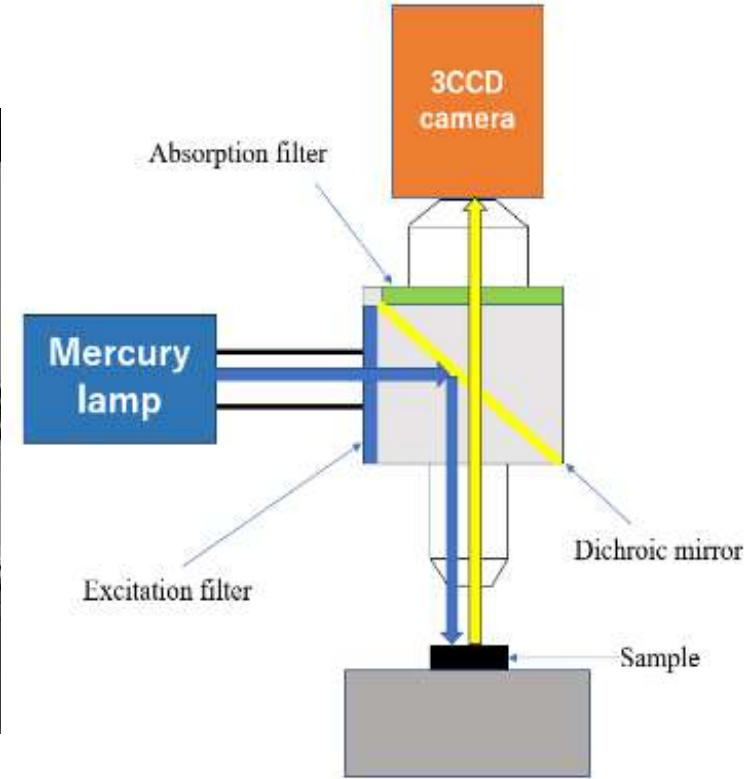
GaN(undeped) 4 μm

Sapphire

含まれるInの量で発光波長（色）が変わる。

- サファイア基板を利用している
- 成長方法は有機金属気相成長法

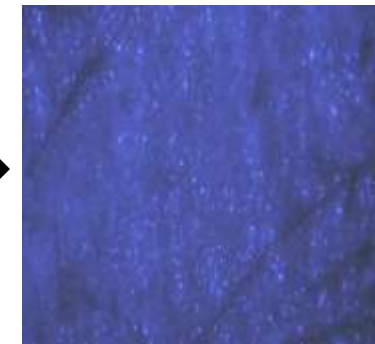
選択励起蛍光顕微鏡



試料の励起



観察（録画）

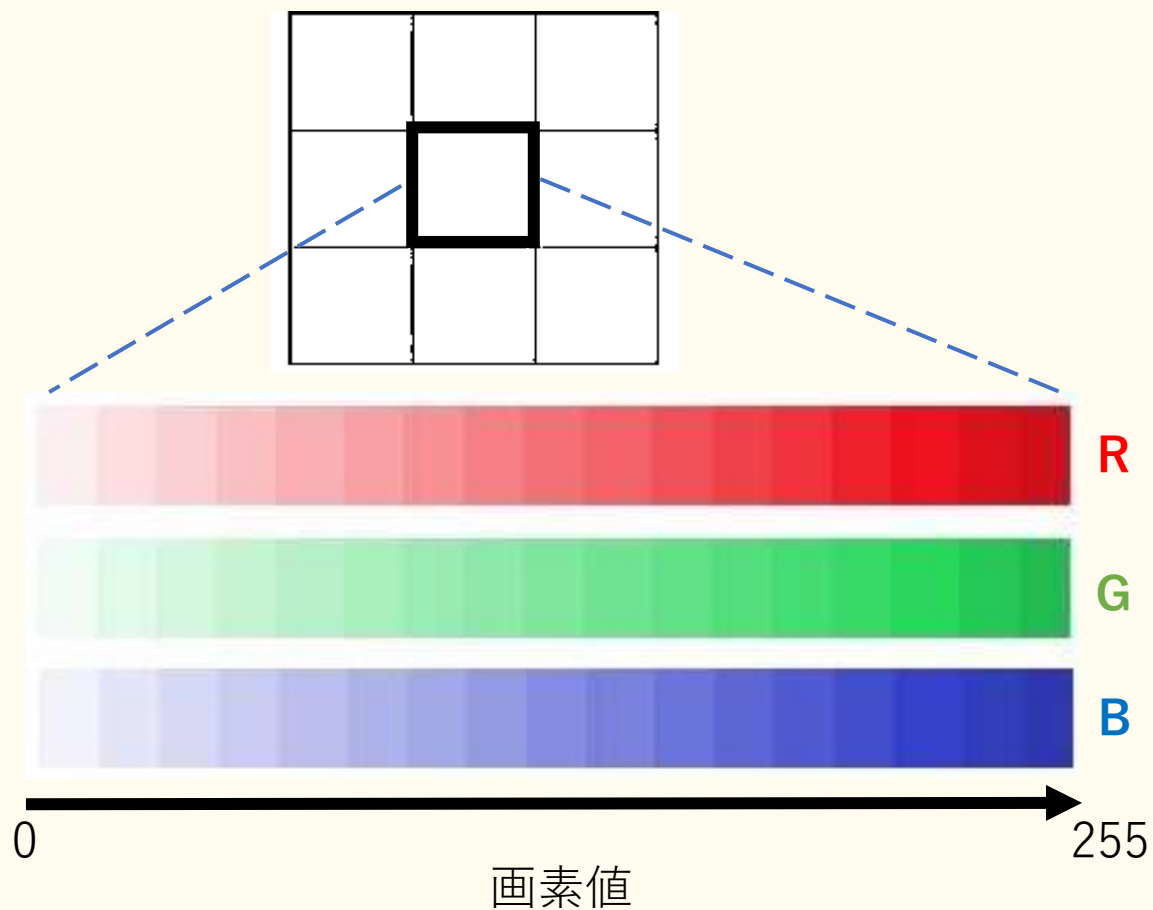


解析



動画データの分析手法 (強度の算出)

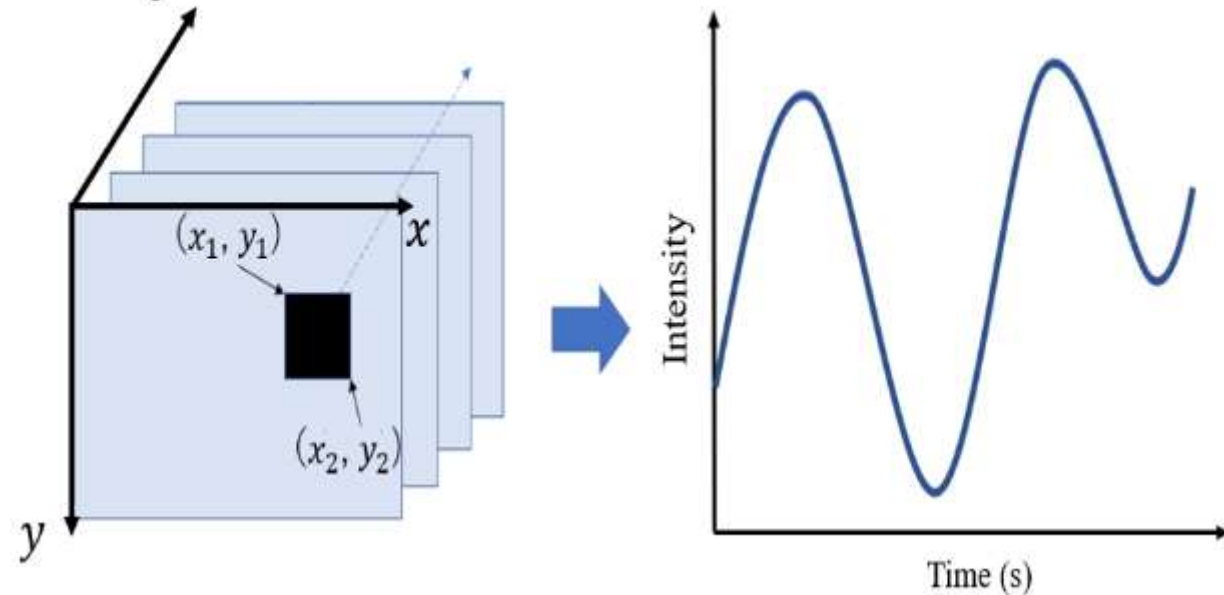
ピクセルの色はRed,Green,Blueの3つの成分で表現



- 画素値は色の濃淡や、明るさを表している。
- 本研究では3つの画素値の平均を光の強度とした。

強度の時系列データの算出

30fpsで録画 (1秒間で30枚の静止画)



$$I(t) = \sum_{x=x1}^{x2} \sum_{y=y1}^{y2} \frac{R(x, y, t) + G(x, y, t) + B(x, y, t)}{3(x2 - x1)(y2 - y1)}$$

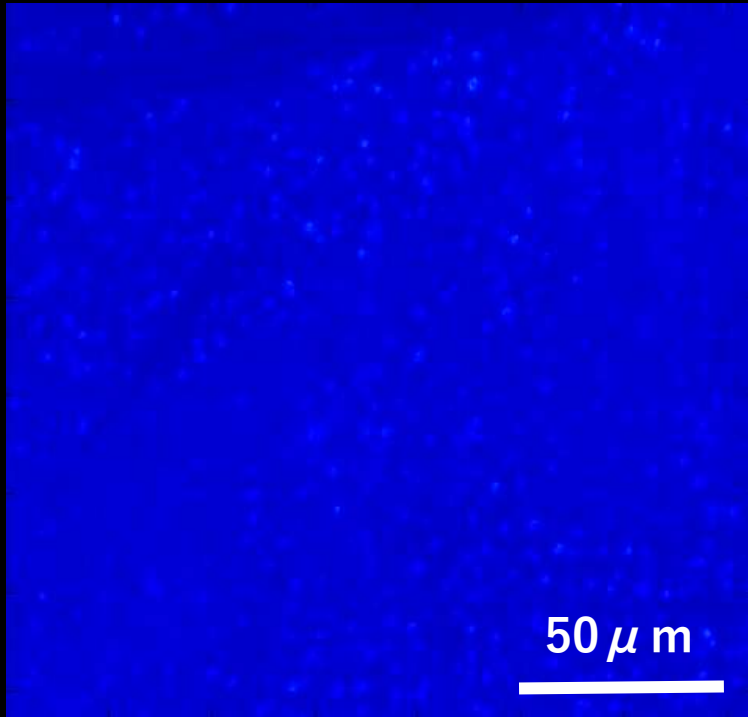
$$0 \leq I(t) \leq 255$$

あらゆる統計分析 (標準偏差、相関など) も可能となる。

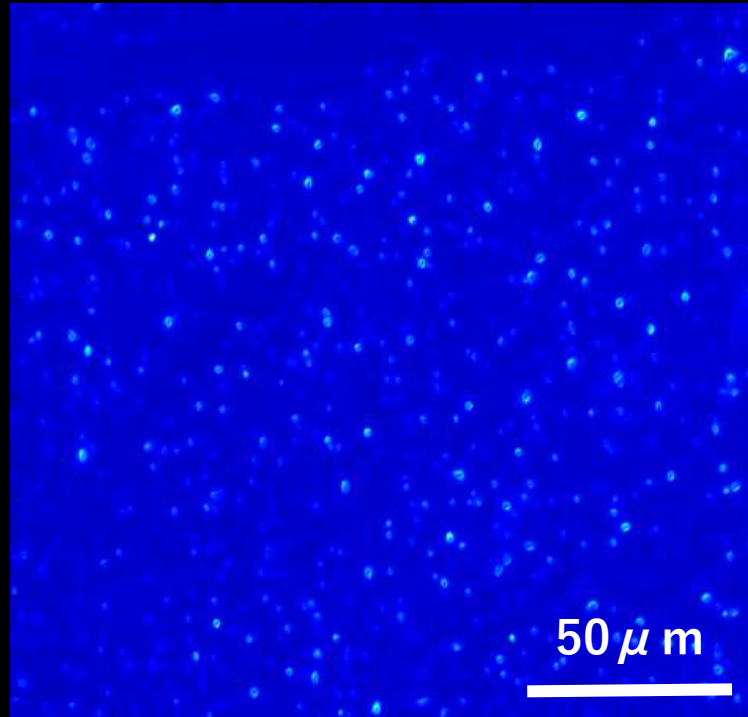
液体の付着で点滅の挙動が変化した

点滅現象を定量的にするために標準偏差マップを作成した。（1ピクセルごとの標準偏差）
標準偏差 = 光のバラツキの大きさを示す統計的な値

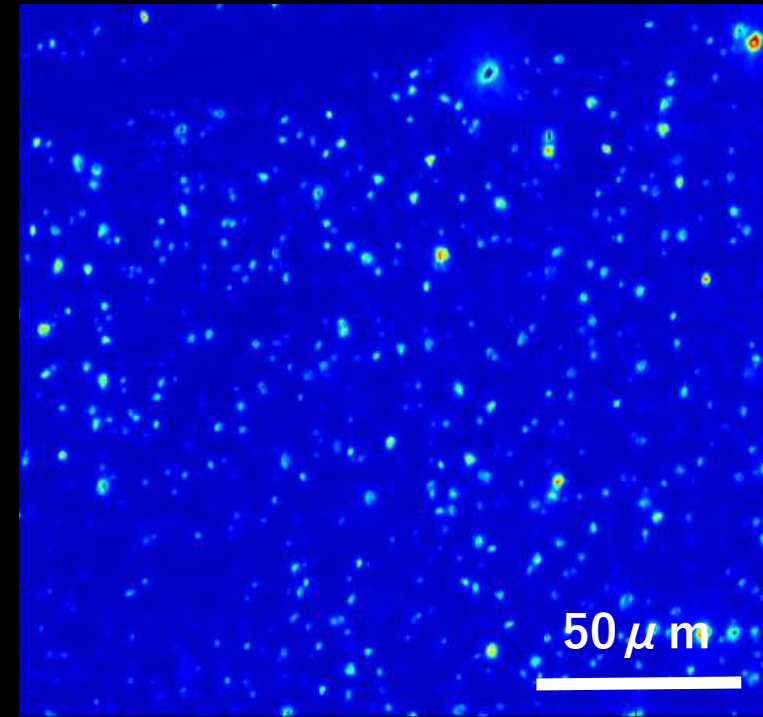
そのままの状態



水の付着



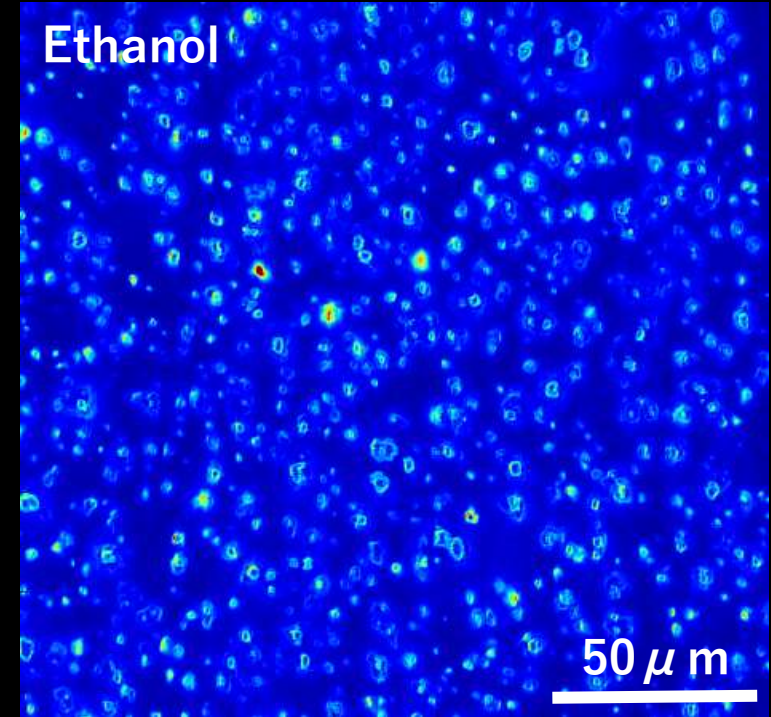
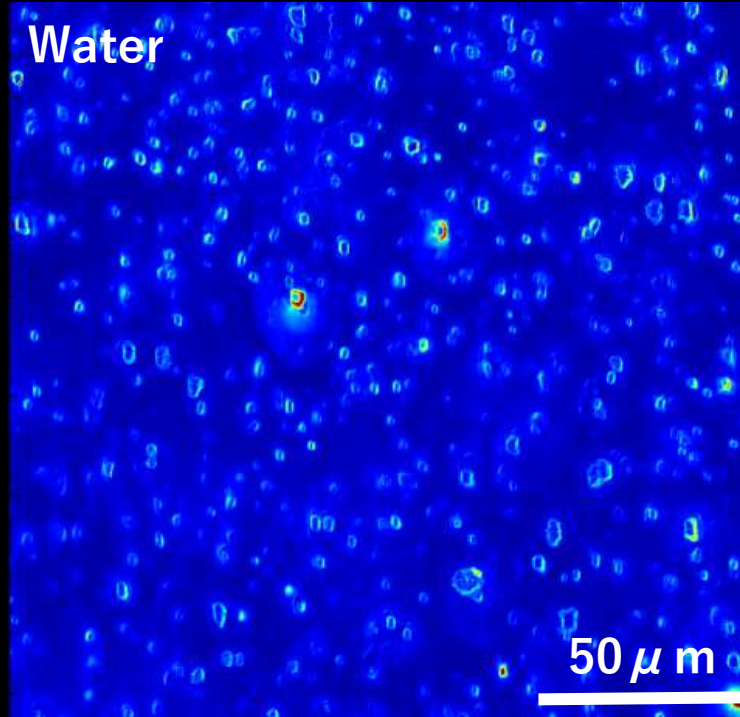
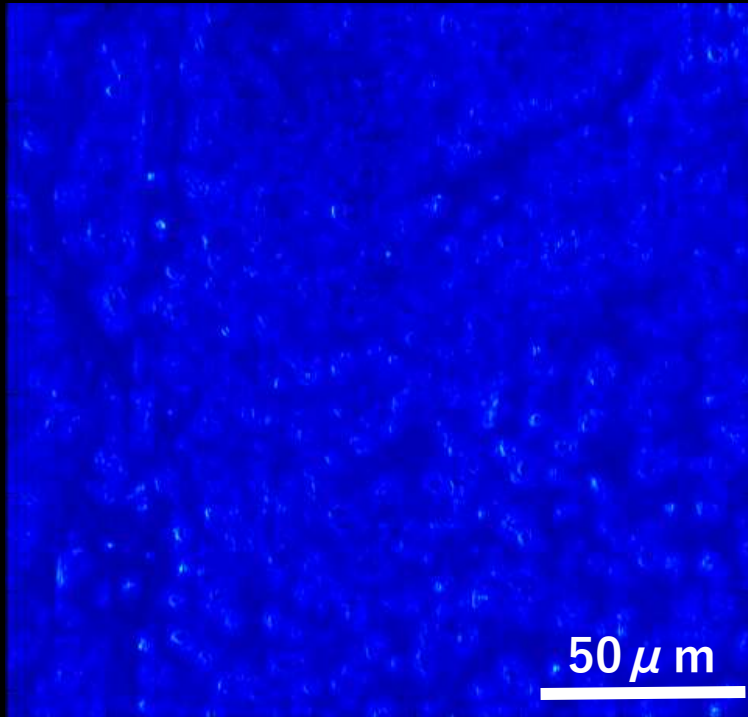
エタノールの付着



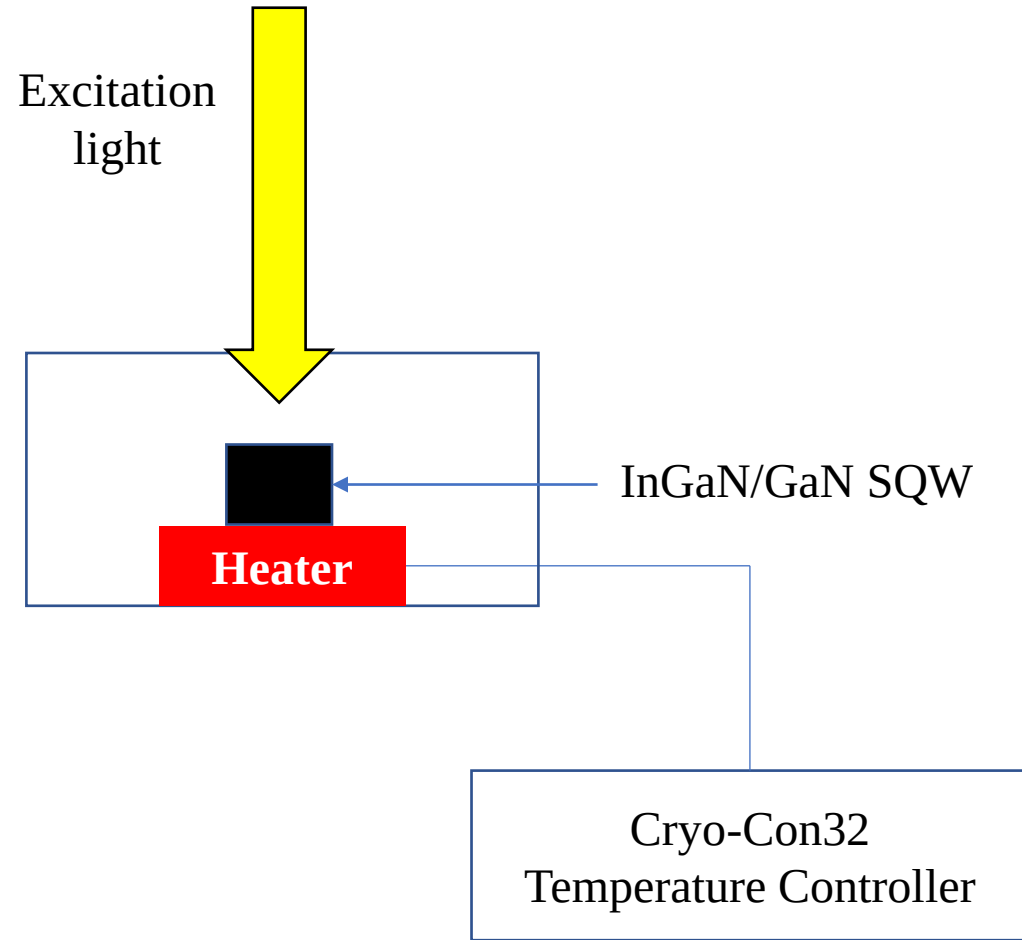
輝点の瞬きが激しくなっていることが定量的にわかる。

液体の付着が内部の電子状態を変えていることが示唆される。（極性も影響してると考えられる）

510nmでも全く同様な傾向が見られた



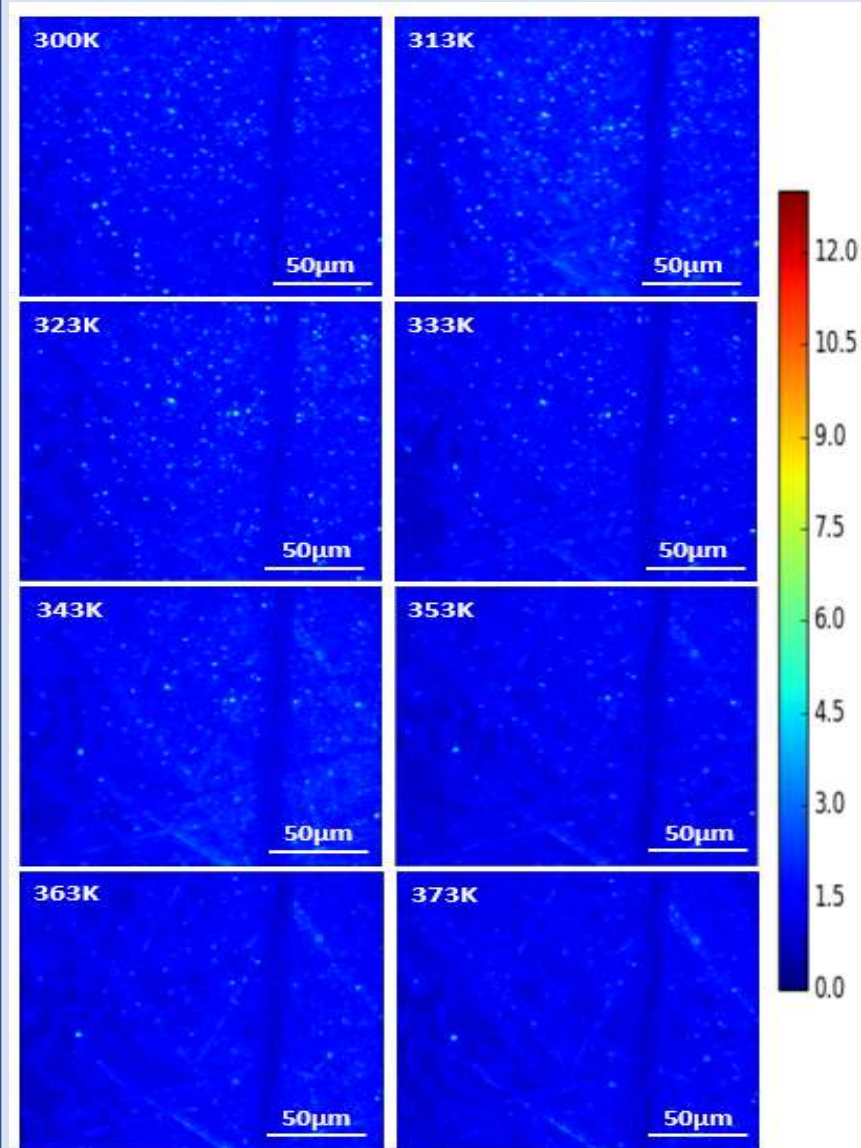
不安定点滅現象の温度依存性



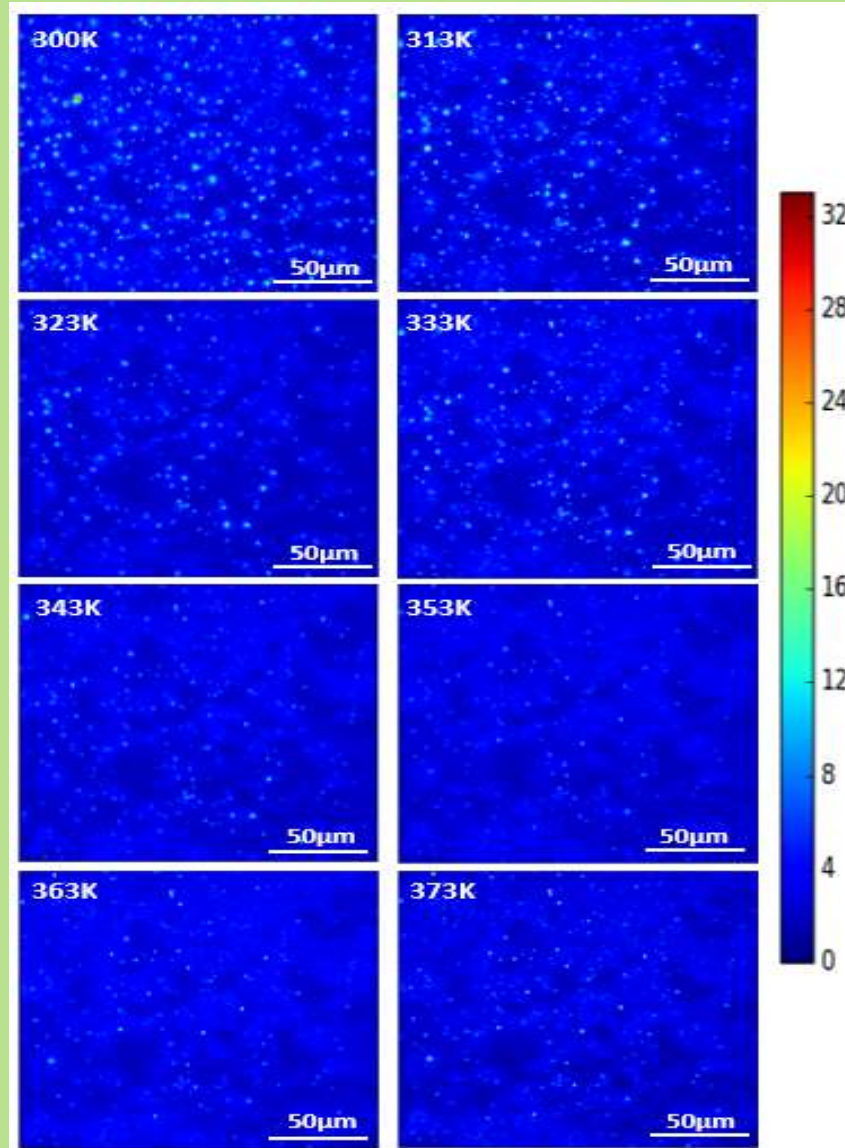
- ヒータの上に試料を乗せ、室温の300K、313K(40°C)、323K(50°C)と10Kずつ、373K(100°C)まで、点滅現象の変化を追ってみた。
- 試料を乗せたまま温度を上昇させ、温度コントローラーに表示される温度が一定になってから光励起を30秒間開始した。

温度上昇により点滅の激しさは和らいでいく

発光中心波長460nm



発光中心波長510nm



- 低い温度領域では点滅が比較的発生しやすい。
- 温度上昇により点滅の激しさは和らぎ、点滅点そのものも減少する傾向が全体的にある。
- 最高温度の373Kにて、460nmの試料ではほとんどの点滅が消滅。510nmでは点滅し続ける輝点がまだ存在していた。

温度上昇



熱膨張による欠陥の増加（キャリアが欠陥にトラップされやすくなる）

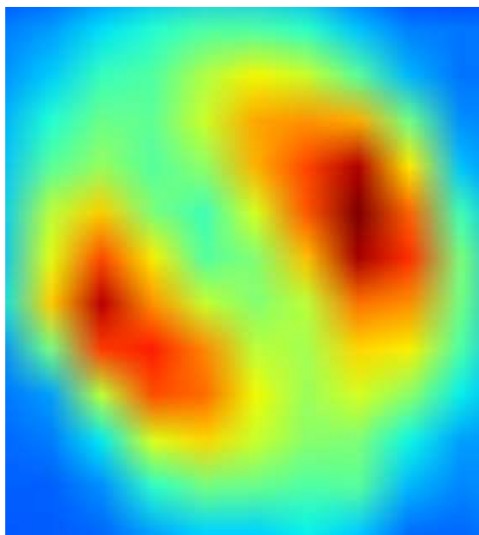


光を放出する再結合を行わなくなる。（非輻射再結合を行う）

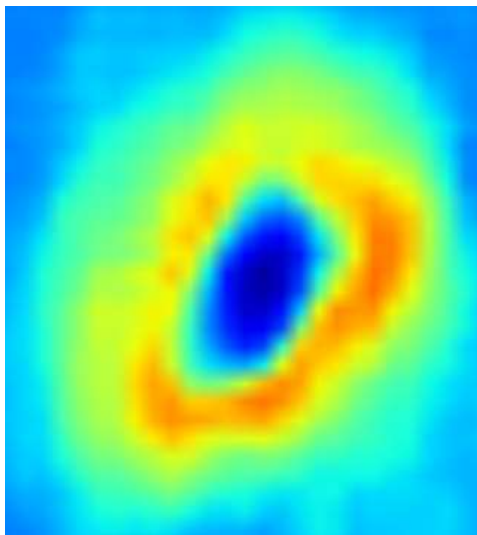
点滅にも輝き方が存在している。

標準偏差マップ上の輝点を拡大することで、**光の強度の揺らぎ方**を見ることができる。

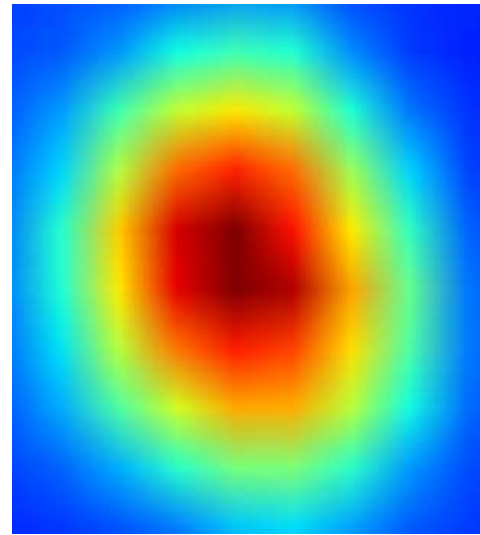
揺らいでいる点を隈なく調べた結果、以下のような傾向があった。



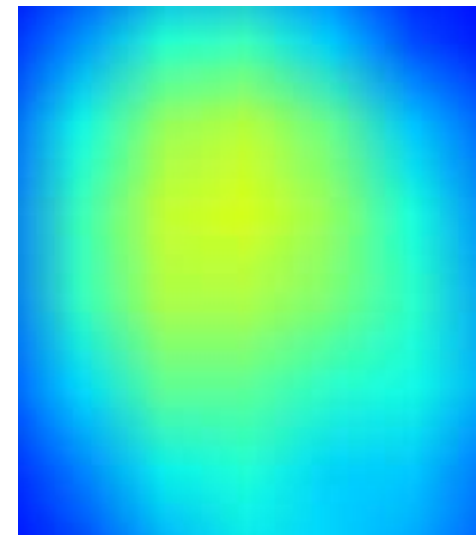
2 か所が大きく点滅



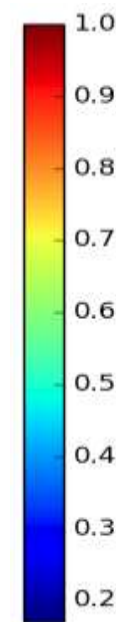
中心が全く変化しない



中心が大きく点滅している

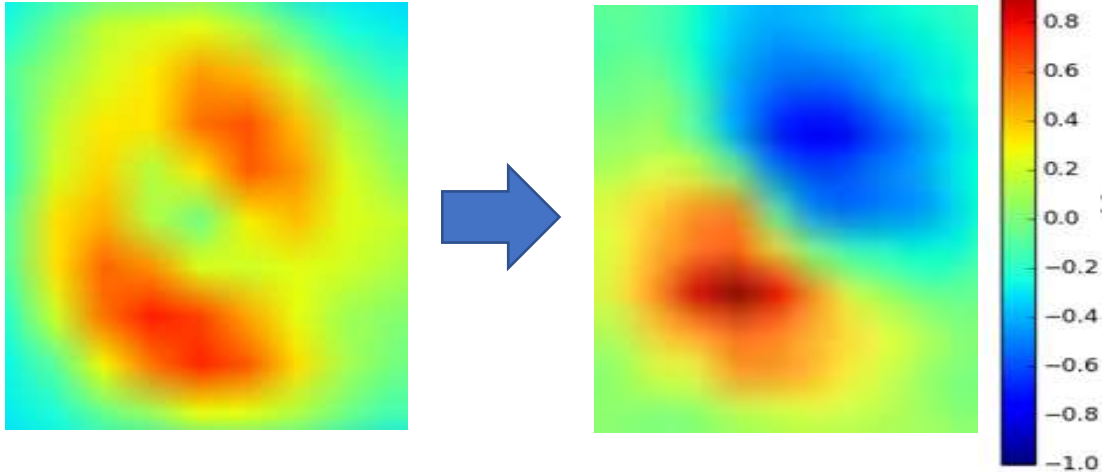


一様な点滅



2領域の光学強度は時系列で負の相関を示している。

標準偏差マップから相関マップへの変換

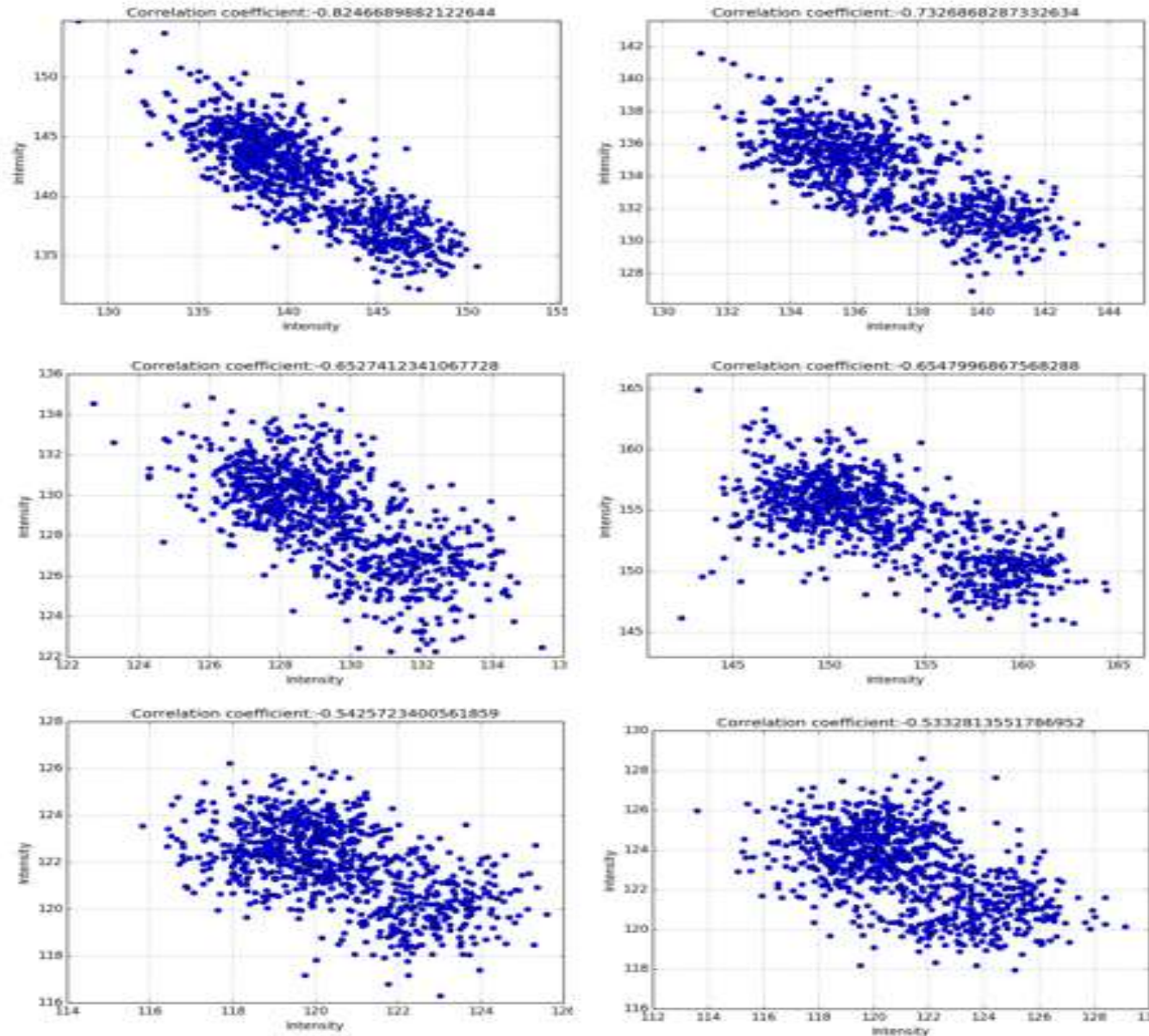


光の強度の時系列データの相関

片方の光の強度が上がれば、もう片方は下がる現象が時系列で発生している。

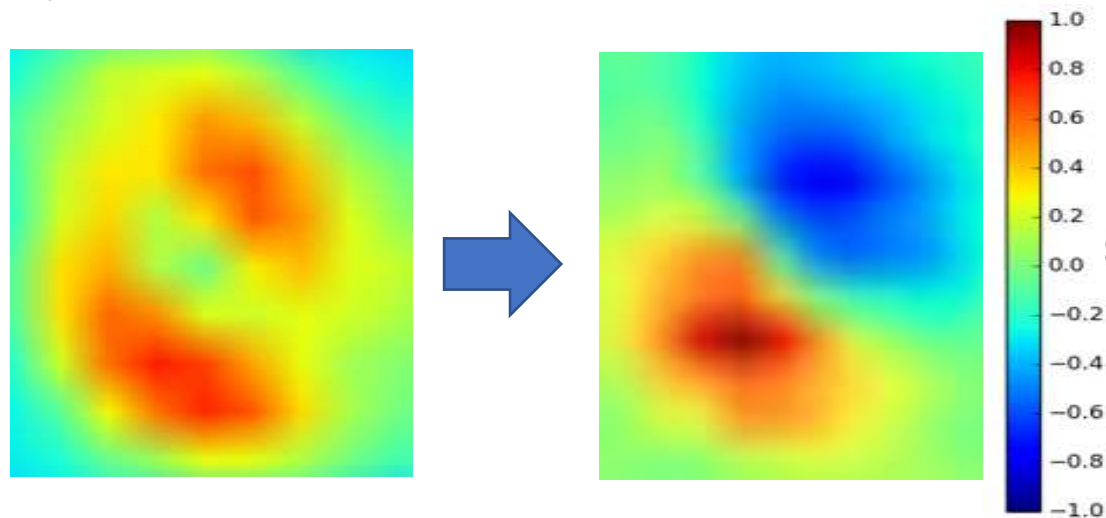


発光再結合に寄与するキャリアの数が空間的に増減を繰り返している。



周囲に存在する他の点滅でも相関性が見られた。

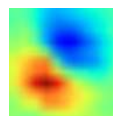
標準偏差マップから相関マップへの変換



光の強度の時系列データの相関

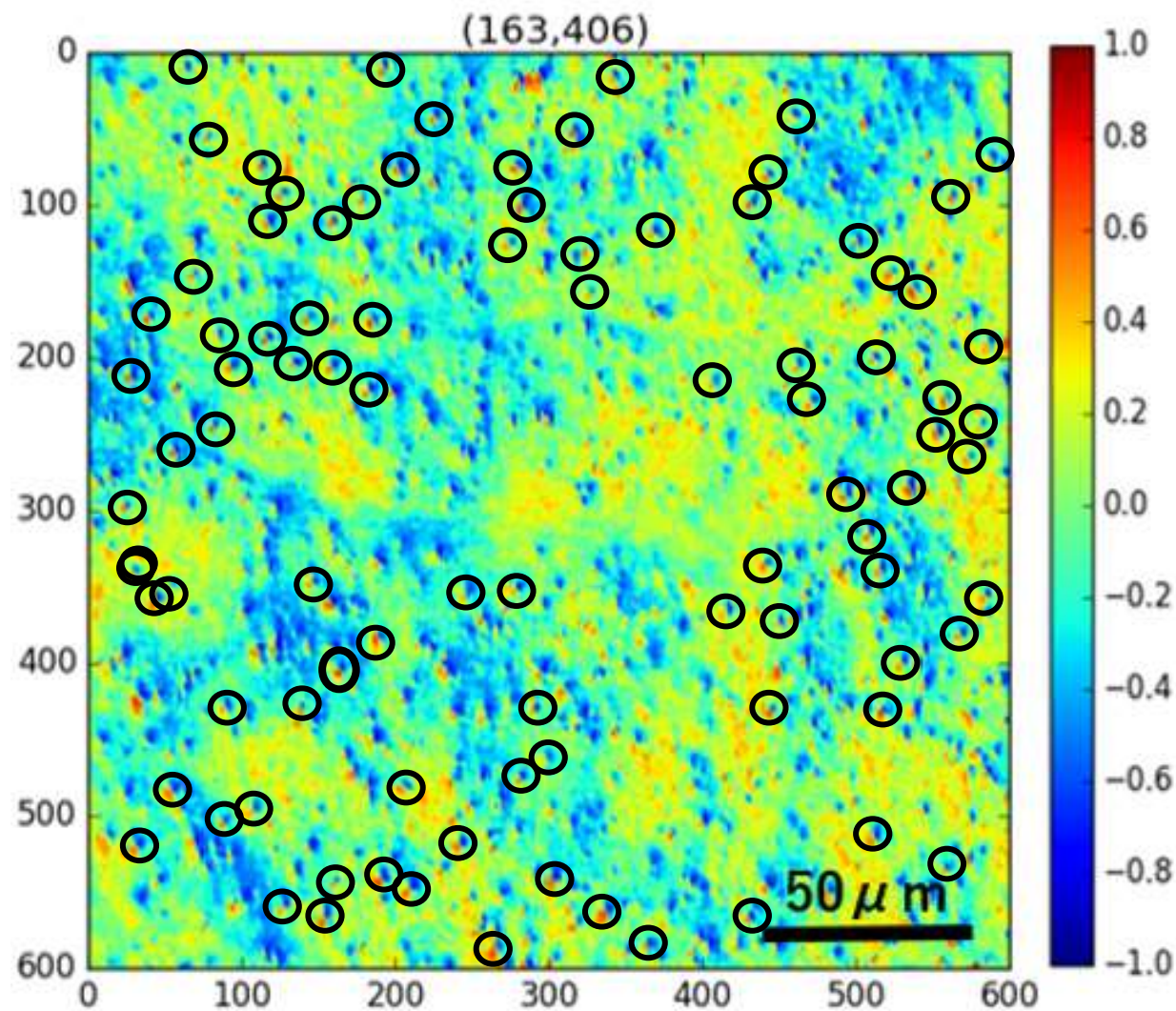
1つの点滅だけでなく、他の点滅点でも相関性を示していることが分かる。

ほとんど全ての点滅が負の相関で点滅する2つの領域で構成されていることが分かった。

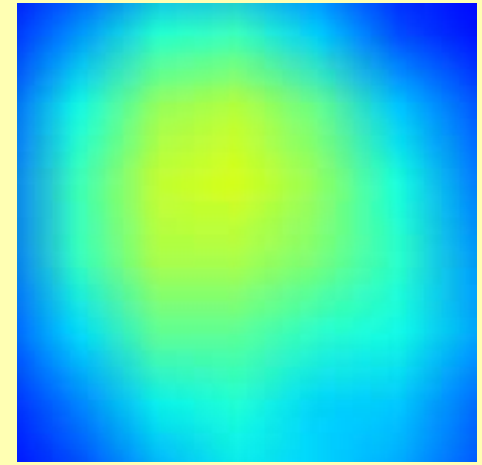
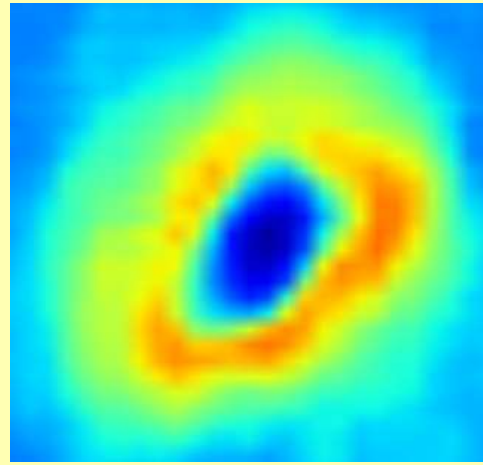
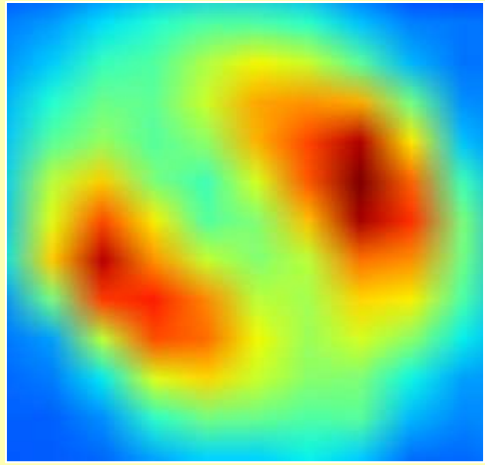


な点滅がいくつも存在

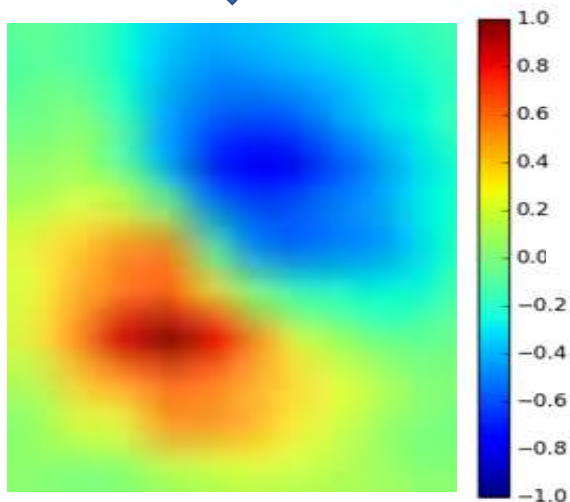
Correlation map



特に激しく光が揺らいでいる部分の可視化（この4つは標準偏差マップ）

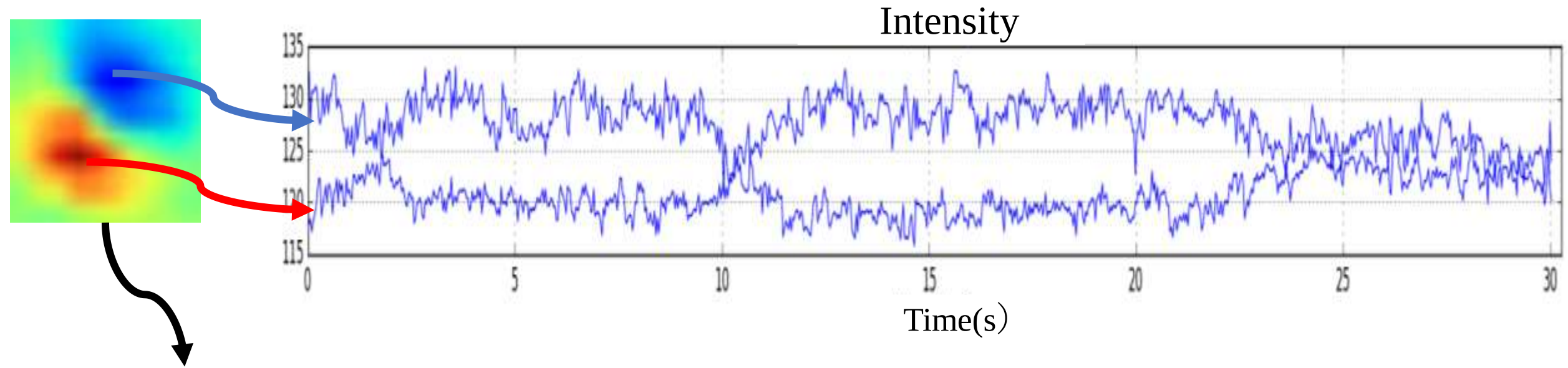


相関性を可視化したマップへ

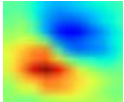


- 輝き方は異なるが、ほとんどすべての点滅は光学強度の時系列変化が負の相関である2つの領域で構成されていることが明らかになった。

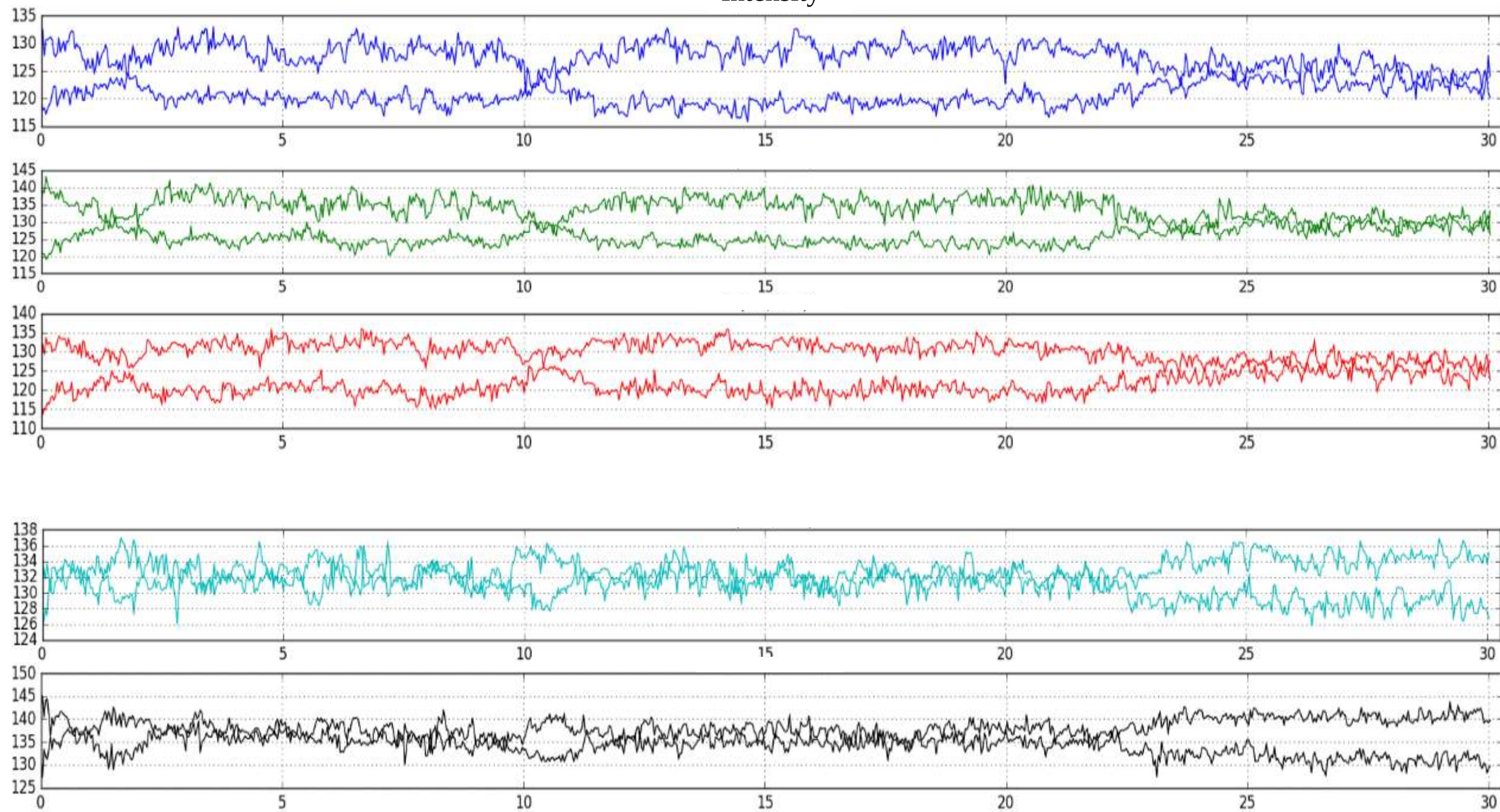
2つの領域の光学強度の時系列データを追った



- 片方の強度が上がれば、もう片方の強度が下がること1フレーム毎（0.03秒毎）に発生している。
- 上の時系列データから、**長い時間スケールで見ても**片方が上がれば、片方が下がっている傾向が分かる。

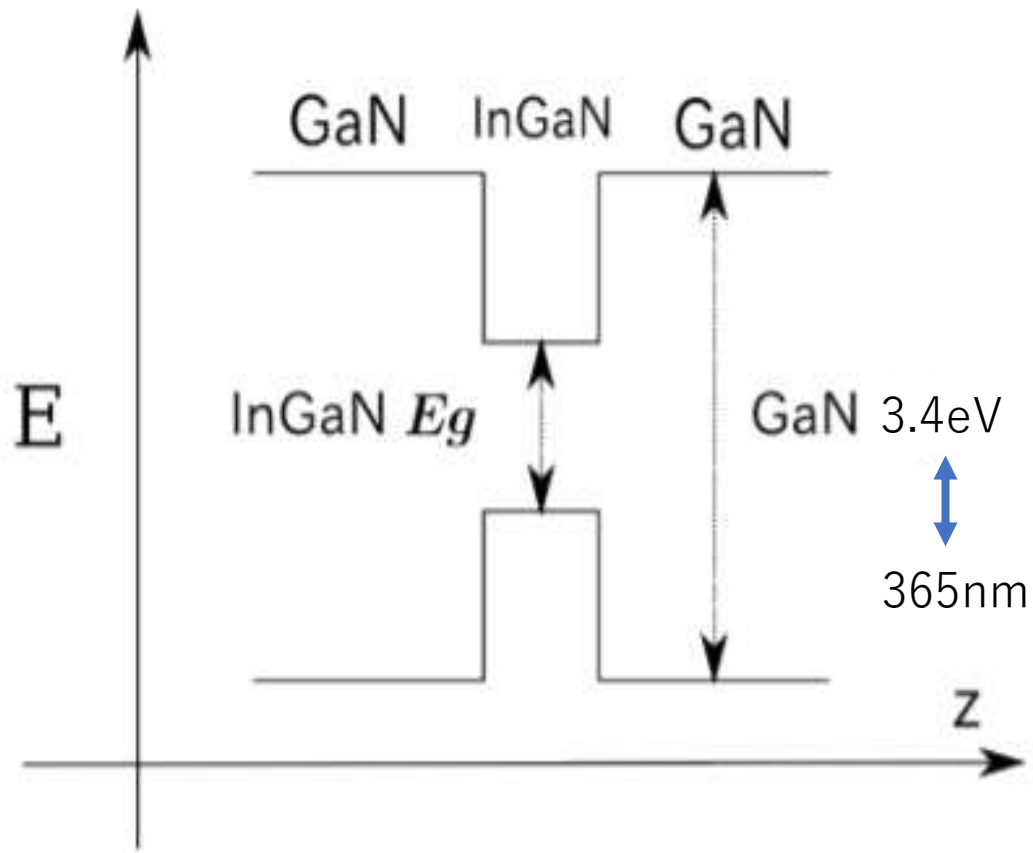
空間的に異なる点滅点  ではどのような振る舞いを見せるか同時にplotした。

Intensity



まとめ

- 液体が付着することで点滅が誘発される。液体の種類によっては挙動も大きく異なると考えられる。
- 高温であれば点滅の激しさは和らぎ、なおかつ点滅点が消滅していく傾向があった。
- 点滅は光の強度が負の相関である2つの領域で構成されており、空間的に異なる他の点滅点とも関係性が見られた。



点滅はInGaN層とGaN層の電子を励起させると発生する。

InGaN層のみの電子を励起させると発生しない (365nm以上)

InGaNのバンドギャップはVagard則で成立する

Vagard則

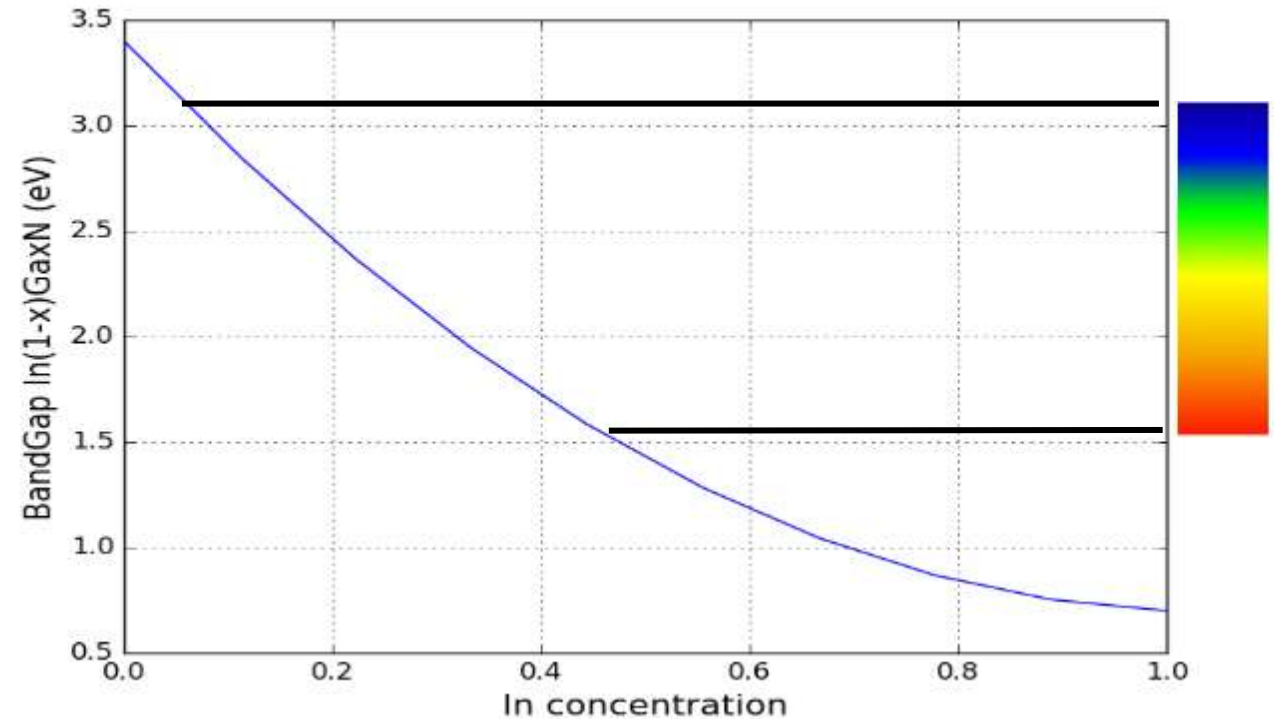
$$E_{g,InGaN}(x) = xE_{g,InN} + (1 - x)E_{g,GaN} - bx(1 - x)$$

x : Inの組成割合 (0~1) $E_{g,InN}$: InNのバンドギャップ(0.7eV)

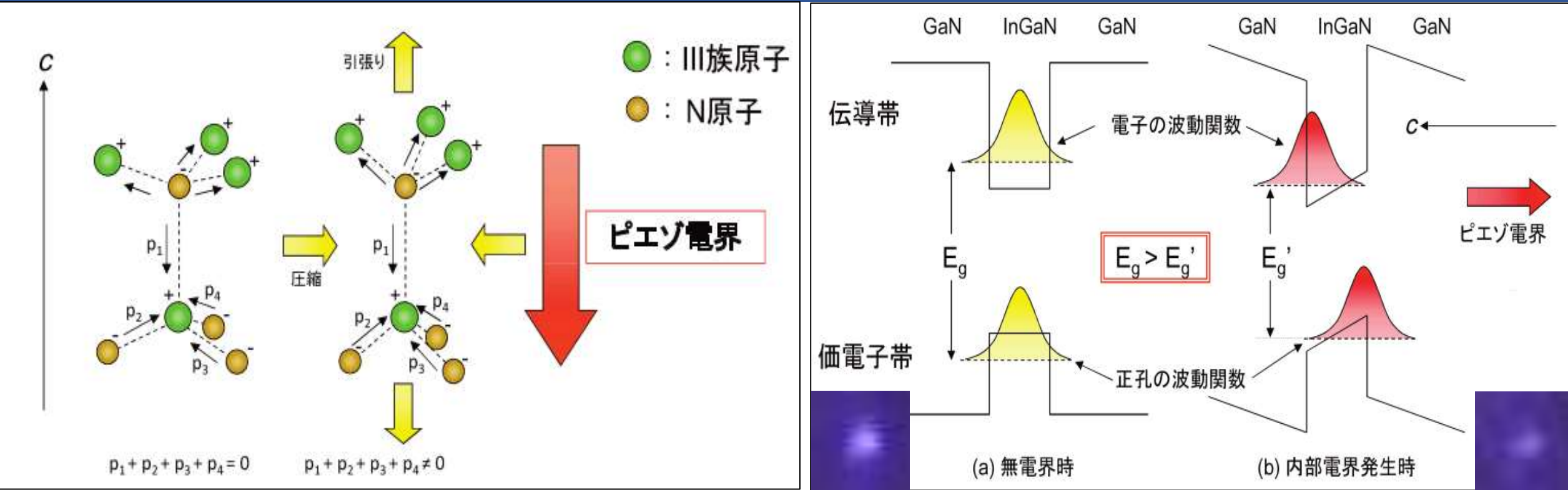
$E_{g,GaN}$: GaNのバンドギャップ(3.4eV)

b : ボーイングパラメーター (InGaNでは1とされる)

Inの組成割合 x に対するInGaNバンドギャップ値



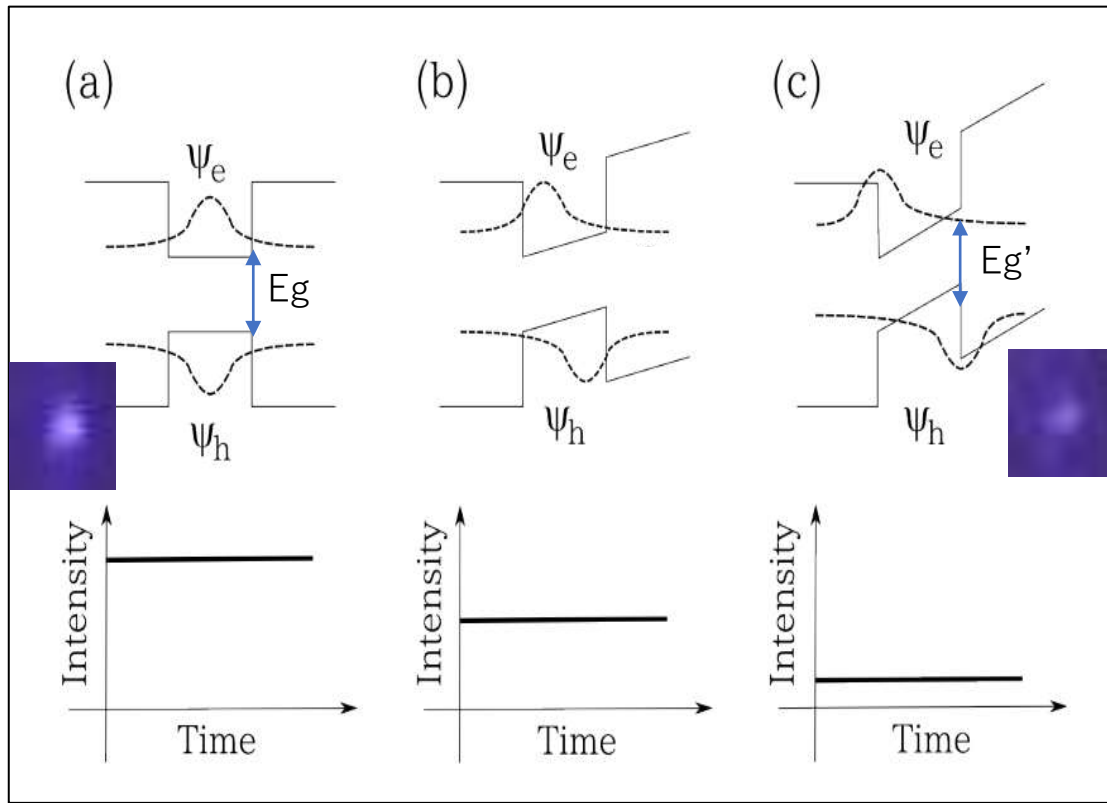
ピエゾ電界による量子閉じ込めシュタルク効果



平成27年3月 山口大学大学院理工学研究科 古谷大士さんの博士論文より拝借

- 正の電荷を持つGa及び、Inと負の電荷を持つNの分極のバランスが崩れることで発生する電界をピエゾ電界という。
- ピエゾ電界により電子と正孔の重なり積分が減少し、発光再結合率も下がる。（量子閉じ込めシュタルク効果という。）上がったたり下がったりを繰り返していることで、点滅になると自分は考えている。

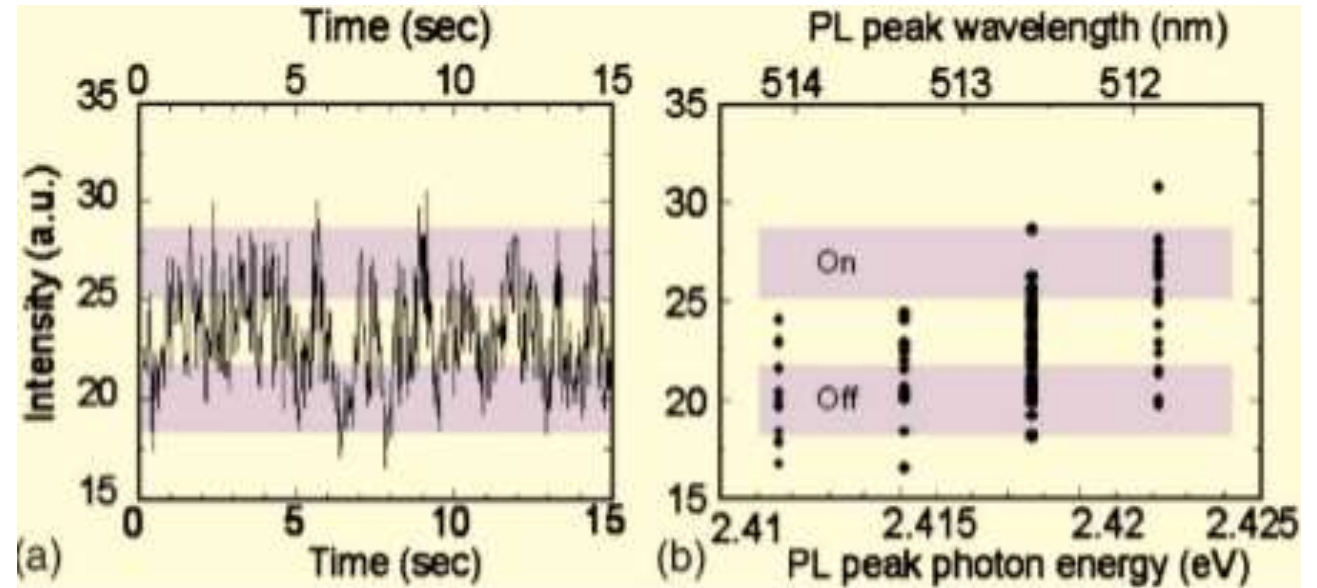
点滅は量子閉じ込めシュタルク効果によって引き起こされている可能性が高い



(a)と(c)の実効的なバンドギャップは (c) のほうが低くなる ($E_g > E_{g'}$)

バンドギャップが小さくなるので、**光学強度が弱くなる時は、発光が長波長側にシフトすることが理論的に考えられる。**

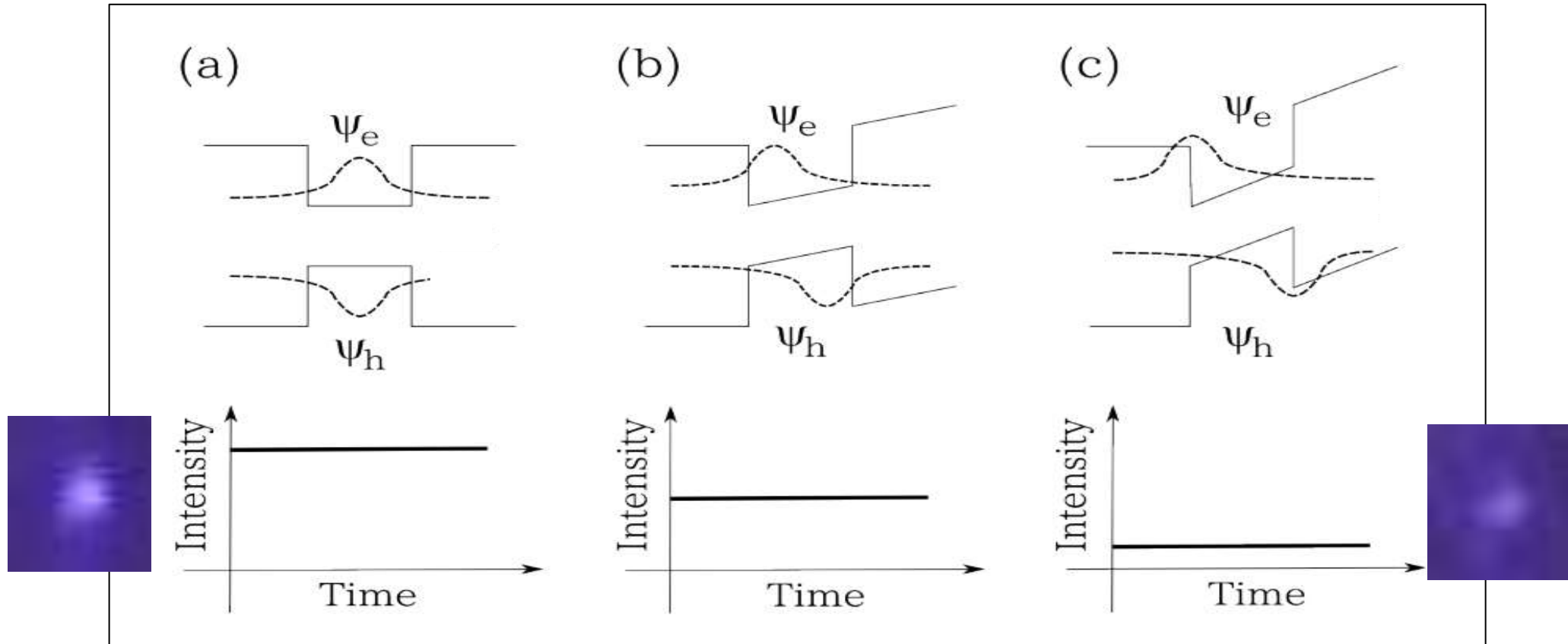
実験で検証した結果



光学強度が強い時、発光は低波長側にシフト。
光学強度が弱い時、発光は長波長側にシフト。

理論と一致していることが分かる。
QCSEによって点滅現象が引き起こされている。
この信憑性は高い。

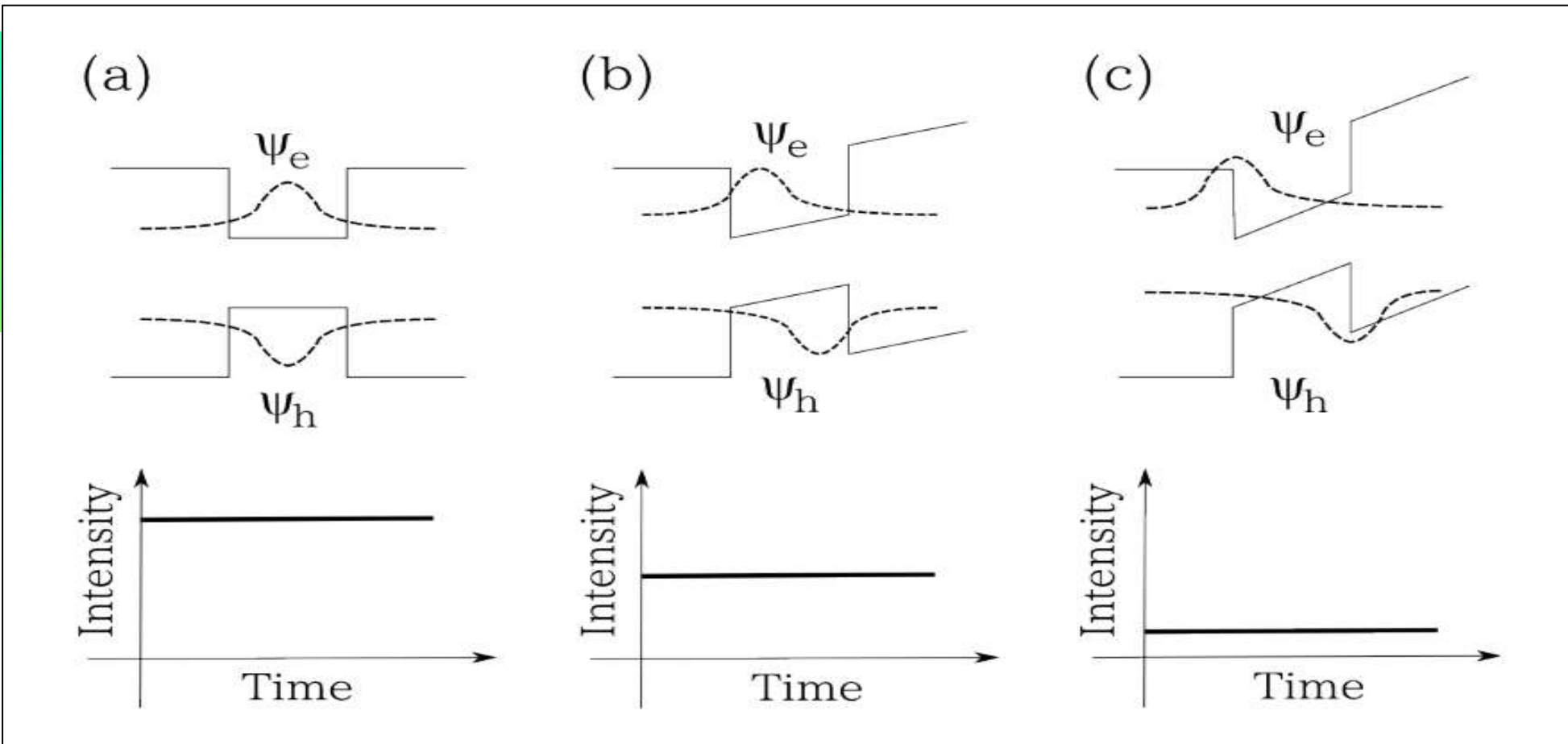
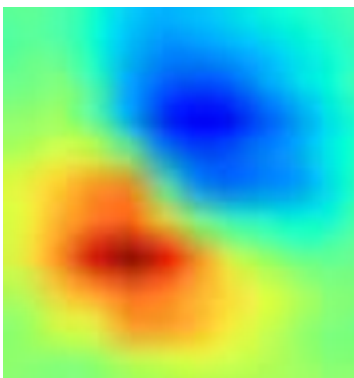
ピエゾ電界による量子閉じ込めシュタルク効果



上記の (a) (b) (c) が繰り返されることで点滅現象になるのではないか？



常に分極の変化によりピエゾ電界が増減していると考えている。



励起波長帯と観察波長帯の例

● 本研究で利用している顕微鏡に搭載されているフィルター

