

ワイドギャップ半導体における非輻射再結合機構の解明

(課題番号 12450011)

平成 12 年度～平成 14 年度科学研究費補助金(基盤研究(B)(2))
成果報告書

京 都 大 学 図 書



9810056563

附 属 図 書 館

平成 15 年 3 月

研究代表者 川 上 養 一
(京都大学 工学研究科 助教授)

はしがき

本報告書は、平成 12 年度から平成 14 年度までの 3 年間にわたって実施された科学研究費補助金基盤研究(B)(2)「ワイドギャップ半導体における非輻射再結合機構の解明（課題番号 12450011）」で得られた研究成果をまとめたものである。

研究組織

研究代表者：川上 養一（京都大学・工学研究科・助教授）
研究分担者：藤田 茂夫（京都大学・工学研究科・教授）
船戸 充（京都大学・工学研究科・講師）
上野 山雄（松下電器産業株式会社・先端技術研究所・主担当）
（研究協力者：岡本 晃一（京都大学・工学研究科・日本学術振興会特別研究員
平成 14 年 12 月より
カリフォルニア工科大学・電気工学科・博士研究員））

研究経費

平成 12 年度	6,400 千円
平成 13 年度	4,000 千円
平成 14 年度	3,200 千円
計	13,600 千円

研究発表

ア. 学会誌等

1. Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Kunimichi Omae, Shigeo Fujita and Shuji Nakamura* (*Nichia Chemical Industries Ltd.,)
“Dimensionality of excitons in InGaN-based light emitting devices”
Physica State Solid (a), 178, pp.331-336, 2000
2. Shigeo Yamaguchi, Hitoshi Kurusu, Yoichi Kawakami, Shizuo Fujita and Shigeo Fujita
“Effect of degree of localization and confinement dimensionality of excitons on their recombination process in CdSe/ZnSe/ZnS_xSe_{1-x} single quantum well structures”
Physical Review B, Vol.61, No.15, pp.10303-10313, 2000
3. Tomoaki Izumi, Yukio Narukawa, Koichi Okamoto*, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita and Shuji Nakamura**
(*VBL, Kyoto Univ.) (**Nichia Chemical Industries Ltd.,)
“Time-resolved photoluminescence spectroscopy in GaN-based semiconductors with micron spatial resolution”
Journal of Luminescence, 87-89, pp.1196-1198, 2000
4. Koichi Okamoto*, Hyun-Chul Ko*, Yoichi Kawakami and Shigeo Fujita
(*VBL, Kyoto Univ.)
“Time-space-resolved photoluminescence from (Zn,Cd)Se-based quantum structures”
Journal of Crystal Growth, 214/215, pp.639-645, 2000
5. Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Kunimichi Omae, Shigeo Fujita and Shuji Nakamura* (*Nichia Chemical Industries Ltd.,)
“Dynamics of optical gain in In_xGa_{1-x}N multi-quantum-well-based laser diodes”
Applied Physics Letters, Vol.77, No.14, pp.2151-2153, 2000
6. Koichi Okamoto, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Masahide Terazima* and Shuji Nakamura**
(*Science, Kyoto Univ.) (**Nichia Chemical Industries Ltd.,)
“Nonradiative Recombination Processes in GaN-Based Semiconductors Probed by the Transient Grating Method”
Proc. Int. Workshop on Nitride Semiconductors IPAP Conf. Series 1, pp.540-543, 2000
7. Tomoaki Izumi, Kenichi Inoue, Yukio Narukawa, Koichi Okamoto,

- Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Isao Kidoguchi* and Yuzaburo Ban*
 (*Matsushita Electric Industrial)
 "Recombination Dynamics in GaN and InGaN/GaN Multiple Quantum Wells
 on Air-Bridged Lateral Epitaxial Grown GaN Layers"
 Proc. Int. Workshop on Nitride Semiconductors IPAP Conf. Series 1,
 pp.599-602, 2000
8. Akio Kaneta, Tomoaki Izumi, Koichi Okamoto, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita,
 Yoshihiro Narita*, Tsutomu Inoue*, and Takashi Mukai**
 (*JASCO Corporation) (**Nichia Corporation)
 "Spatial Inhomogeneity of photoluminescence in an InGaN-based
 light-emitting diode structure probed by near-field optical microscopy under
 illumination-collection mode"
 Japanese Journal of Applied Physics, 40, pp.110-111, 2001
 9. Yoichi Kawakami, Kunimichi Omae, Akio Kaneta, Koichi Okamoto,
 Tomoaki Izumi, Shin Saijou, Kenichi Inoue, Yukio Narukawa*,
 Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
 "Radiative and nonradiative recombination processes in GaN-based
 semiconductors"
 Physica State Solid (a), 183, pp.41-50, 2001
 10. Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Kunimichi Omae, Shuji Nakamura*, and
 Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
 "Pump and probe spectroscopy of InGaN multi quantum well based
 laser diodes"
 Materials Science and Engineering B82, pp.188-193, 2001
 11. Koichi Okamoto, Akio Kaneta, Kenichi Inoue, Yoichi Kawakami,
 Masahide Terazima*, Genichi Shinomiya**, Takashi Mukai**, and
 Shigeo Fujita (*KU-Chemistry, Graduate School of Science)
 (**Nichia Corporation)
 "Carrier dynamics in InGaN/GaN SQW structure probed by the transient
 grating method with subpicosecond pulsed laser"
 Physica State Solid (b), 228, pp.81-84, 2001
 12. Yoichi Kawakami, Kunimichi Omae, Akio Kaneta, Koichi Okamoto,
 Yukio Narukawa*, Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
 "In inhomogeneity and emission characteristics of InGaN"
 Journal of Physics: Condensed Matter, 13, pp.6993-7010, 2001
 13. 川上養一、大前邦途、成川幸男、中村修二*、藤田茂夫 (*日亜化学工業)

“InGaN 系半導体デバイスの発光機構”

材料, 第 50 巻, 第 4 号, pp.372-375, 2001

14. Akio Kaneta, Giichi Marutsuki*, Koichi Okamoto, Yoichi Kawakami, Yoshinori Nakagawa*, Genichi Shinomiya*, Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
“Spatial inhomogeneity of photoluminescence in InGaN single quantum well Structures”
Physica State Solid (b), 228, No.1, pp.153-156, 2001
15. Kunimichi Omae, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Yukihiro Kiyoku*, and Takashi Mukai* (*Nichia Corporation)
“Degenerate four-wave-mixing spectroscopy on epitaxially laterally overgrown GaN: signals from below the fundamental absorption edge”
Applied Physics Letters, 79, pp.2351-2353, 2001
16. Yoichi Kawakami, Kunimichi Omae, Akio Kaneta, Koichi Okamoto, Tomoaki Izumi, Shin Saijou, Kenichi Inoue, Yukio Narukawa*, Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
“Dynamics of spontaneous and stimulated emissions in GaN-based semiconductors”
Photonics West, Optoelectronics 2001, San Jose, USA ,
Proc. SPIE, Vol.4280, pp.45-57, 2001
17. Koichi Okamoto, Shin Saijou, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Masahide Terazima*, Takashi Mukai**, and Genichi Shinomiya** (*KU-Chemistry, Graduate School of Science) (**Nichia Corporation)
“Direct observation of the nonradiative recombination processes in InGaN-based LEDs probed by the third-order nonlinear spectroscopy”
Photonics West, Optoelectronics 2001 , San Jose, USA ,
Proc. SPIE, Vol.4278, pp.150-157, 2001
18. Kunimichi Omae, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa*, Yuusuke Watanabe*, Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
“Nondegenerated pump and probe spectroscopy in InGaN-based semiconductors”
Physica State Solid (a), 190, No.1, pp.93-98, 2002
19. Giichi Marutsuki*, Yukio Narukawa*, Tomotsugu Mitani*, Takashi Mukai*, Genichi Shinomiya*, Akio Kaneta, Yoichi Kawakami, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
“Electroluminescence mapping of InGaN-based LEDs by SNOM”

- Physica State Solid (a), 192, No.1, pp.110-116, 2002
20. Kunimichi Omae, Yoichi Kawakami, Motokazu Yamada*, Yukio Narukawa*, Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
 "Effects of internal electric field and carrier density on transient absorption spectra in a thin GaN epilayer"
 Physical Review B, 65, pp.073308-1-4, 2002
 21. Akio Kaneta, Giichi Marutsuki*, Yukio Narukawa*, Takashi Mukai*, Koichi Okamoto, Yoichi Kawakami, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
 "Spatial and temporal luminescence dynamics in an $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ single quantum well probed by near-field optical microscopy"
 Applied Physics Letters, 81, No.23, pp.4353-4355, 2002
 22. Koichi Okamoto, Kenichi Inoue, Yoichi Kawakami, Masahide Terazima*, Ayumu Tsujimura**, Isao Kidoguchi**, and Shigeo Fujita
 (*KU-Chemistry, Graduate School of Science)
 (**Matsushita Electric Industrial Co.)
 "Nonradiative recombination processes of carriers in InGaN/GaN probed by the microscopic transient lens spectroscopy"
 Review of Scientific Instruments, Vol.74, No.1, PartII, pp.575-577, 2003
- イ. 口頭発表
1. Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Kunimichi Omae, Shigeo Fujita and Shuji Nakamura* (*Nichia Chemical Industries Ltd.,)
 "Pump & probe spectroscopy of InGaN multi quantum well based laser diodes"
 E-MRS, Strasbourg, France (2000 May 30-June 2)
 2. Tomoaki Izumi, Kenichi Inoue, Yukio Narukawa, Koichi Okamoto, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Isao Kidoguchi* and Yuzaburo Ban* (*Matsushita Electric Industrial)
 "Recombination dynamics in GaN and InGaN/GaN multiple quantum wells on air-bridged lateral epitaxial grown GaN layers"
 Int. Workshop on Nitride Semiconductors -IWN 2000-, Nagoya, Japan (2000 September 24-27)
 3. Koichi Okamoto, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Masahide Terazima**, and Shuji Nakamura** (*Science, Kyoto Univ.) (**Nichia Chemical Industries Ltd.,)
 "Nonradiative Recombination Processes in GaN-Based Semiconductors Probed by the Transient Grating Method"
 Int. Workshop on Nitride Semiconductors -IWN 2000-, Nagoya, Japan

(2000 September 24-27)

4. Yoichi Kawakami, Tomoaki Izumi, Kenichi Inoue, Koichi Okamoto,
Kunimichi Omae, Yukio Narukawa, Shuji Nakamura*, Isao Kidoguchi**,
Yuzaburo Ban**, and Shigeo Fujita
(**Nichia Chemical Industries Ltd.,) (**Matsushita Electric Industrial)
“Radiative and nonradiative recombination processes in
GaN-based semiconductors”
Int. Workshop "Physics of Light-Matter Coupling in Nitrides",
Saint-Nectaire, France (2000 October 8-12)
5. Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa, Kunimichi Omae, Shuji Nakamura*,
and Shigeo Fujita (*Nichia Chemical Industries Ltd.,)
“Dynamics of optical gain in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ multi quantum well based laser diodes”
2000 Japan-Korea Joint Workshop on Short-Wavelength Semiconductor
Optoelectronic Devices and Materials, Cheju, Korea (2000 October 30)
6. 岡本晃一、川上養一、藤田茂夫、寺嶋正秀*、中村修二**、四宮源市**
(*京大・理)(**日亜化学工業)
“過渡グレーティング法でみた GaN 系半導体の非輻射再結合過程”
2000 年秋季第 61 回応用物理学会学術講演会, 北海道工業大学,
(2000 年 9 月 3-7 日) 6aL4, p.309.
7. 大前邦途、川上養一、藤田茂夫、向井孝志*、長濱慎一*、中村修二*、
四宮源市* (*日亜化学工業)
“縮退四光波混合測定による ELO GaN における非線形光学分光”
2000 年秋季第 61 回応用物理学会学術講演会, 北海道工業大学, ¥¥
(2000 年 9 月 3-7 日) 6aL5, p.309.
8. 金田昭男、泉知明、岡本晃一、川上養一、藤田茂夫、
丸月義一*、中河義典*、四宮源市* (*日亜化学工業)
“InGaN SQW における励起子発光の振動子強度発現機構”
2000 年秋季第 61 回応用物理学会学術講演会, 北海道工業大学,
(2000 年 9 月 3-7 日) 6pL6, p.313.
9. 西條 慎、泉 知明、岡本晃一、川上養一、藤田茂夫、
中河義典*、丸月義一*、中村修二*、四宮源市* (*日亜化学工業)
“InGaN 量子井戸 LED の輻射・非輻射再結合寿命特性”
2000 年秋季第 61 回応用物理学会学術講演会, 北海道工業大学,
(2000 年 9 月 3-7 日) 6pL9, p.314.
10. 泉知明、井上謙一、成川幸男、岡本晃一、川上養一、藤田茂夫、
辻村歩*、木戸口勲* (*松下電産)

“GaN 系半導体における輻射・非輻射再結合機構に対する In 添加効果”

2000 年秋季第 61 回応用物理学会学術講演会, 北海道工業大学,

(2000 年 9 月 3-7 日) 6pL10, p.314.

11. Yoichi Kawakami, Kunimichi Omae, Akio Kaneta, Koichi Okamoto, Tomoaki Izumi, Shin Saijou, Kenichi Inoue, Yukio Narukawa*, Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
“Dynamics of spontaneous and stimulated emissions in GaN-based semiconductors”
Photonics West, Optoelectronics 2001, San Jose, USA (2001 January 25)
12. Koichi Okamoto, Shin Saijou, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Masahide Terazima*, Takashi Mukai**, and Genichi Shinomiya** (*KU-Chemistry, Graduate School of Science) (**Nichia Corporation)
“Direct observation of the nonradiative recombination processes in InGaN-based LEDs probed by the third-order nonlinear spectroscopy”
Photonics West, Optoelectronics 2001, San Jose, USA (2001 January 25)
13. Koichi Okamoto, Akio Kaneta, Kenichi Inoue, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Masahide Terazima*, Genichi Shinomiya**, and Takashi Mukai** (*KU-Chemistry, Graduate School of Science) (**Nichia Corporation)
“Carrier dynamics in InGaN/GaN SQW structure probed by the transient grating method with subpicosecond pulsed laser”
4th Int. Conf. Nitride Semiconductors, Denver, USA (2001 July 16-20)
14. Akio Kaneta, Koichi Okamoto, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita, Giichi Marutsuki*, Yoshinori Nakagawa*, Genichi Shinomiya*, and Takashi Mukai* (*Nichia Corporation)
“Spatial inhomogeneity of photoluminescence in InGaN single quantum well structures”
4th Int. Conf. Nitride Semiconductors, Denver, USA (2001 July 16-20)
15. Kunimichi Omae, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa*, Yuusuke Watanabe*, Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)
“Nondegenerated pump and probe experiments in InGaN-based semiconductors”
Int. Workshop Physics of Light-Matter Coupling in Nitrides, Rome, Italy (2001 September 26-29)
16. 岡本晃一、西條慎、川上養一、藤田茂夫、寺嶋正秀*、四宮源市**、向井孝志** (*京大・理) (**日亜化学工業)

- “ピコ秒過渡回折格子法による InGaN 系 LED におけるキャリア・励起子の拡散過程の直接観測”
2001 年春季第 48 回応用物理学関連連合講演会, 明治大学
(2001 年 3 月 28-31 日) 31pK7, p.417.
17. 大前邦途、山江和幸、川上養一、成川幸男*、渡邊祐介*、向井孝志*、藤田茂夫 (*日亜化学工業)
“InGaN 量子井戸構造における誘導放出ダイナミクスに関する研究”
2001 年春季第 48 回応用物理学関連連合講演会, 明治大学
(2001 年 3 月 28-31 日) 30pM8, p.407.
18. 大前邦途、山江和幸、川上養一、成川幸男*、渡邊祐介*、向井孝志*、藤田茂夫 (*日亜化学工業)
“InGaN ダブルヘテロ構造における過渡吸収スペクトルに対する内部電界効果の影響”
2001 年春季第 48 回応用物理学関連連合講演会, 明治大学
(2001 年 3 月 28-31 日) 29pL15, p.378.
19. 金田昭男、泉知明、岡本晃一、川上養一、丸月義一*、中河義典*、四宮源市*、藤田茂夫 (*日亜化学工業)
“蛍光像観測による InGaN SQW の発光不均一性”
2001 年春季第 48 回応用物理学関連連合講演会, 明治大学
(2001 年 3 月 28-31 日) 30pM9, p.407.
20. 井上謙一、泉知明、岡本晃一、川上養一、藤田茂夫、寺嶋正秀*、辻村歩**、木戸口勲** (*京大・理) (**松下電産)
“低転位 GaN 上 InGaN/GaN MQW における非輻射過程の評価”
2001 年春季第 48 回応用物理学関連連合講演会, 明治大学
(2001 年 3 月 28-31 日) 30pM13, p.409.
21. 岡本晃一、井上謙一、川上養一、藤田茂夫
“発光・発熱同時検出顕微分光法の開発と応用”
日本分光学会 通常総会・春季講演会・シンポジウム, 早稲田大学
(2001 年 5 月 11 日)
22. 大前邦途、川上養一、清久裕之*, 向井孝志*, 藤田茂夫 (*日亜化学工業)
“ELO GaN における励起子多体効果に起因する線形・非線形光学効果”
日本分光学会 通常総会・春季講演会・シンポジウム, 早稲田大学
(2001 年 5 月 11 日)
23. 丸月義一*、成川幸男*、向井孝志*、四宮源市*、金田昭男、川上養一、藤田茂夫 (*日亜化学工業)
“近接場顕微鏡による InGaN 系 LED の EL マッピング評価”

- 2001 年秋季第 62 回応用物理学会学術講演会, 愛知工業大学
(2001 年 9 月 11-14 日) 13pR13, p.291.
24. 大前邦途、川上養一、清久裕之*、向井孝志*、藤田茂夫 (*日亜化学工業)
“高密度励起下における ELO GaN の励起子多体効果の発光ダイナミクス”
2001 年秋季第 62 回応用物理学会学術講演会, 愛知工業大学
(2001 年 9 月 11-14 日) 13aR1, p.284.
25. 大前邦途、山江和幸、川上養一、山田元量*、成川幸男*、向井孝志*、
藤田茂夫 (*日亜化学工業)
“GaN 薄膜における過渡吸収ダイナミクスの測定”
2001 年秋季第 62 回応用物理学会学術講演会, 愛知工業大学
(2001 年 9 月 11-14 日) 13aR5, p.285.
26. 金田昭男、岡本晃一、川上養一、丸月義一*、向井孝志*、四宮源一*、藤田茂夫
(*日亜化学工業)
“近接場光学顕微鏡による InGaN SQW の空間分解測定”
2001 年秋季第 62 回応用物理学会学術講演会, 愛知工業大学
(2001 年 9 月 11-14 日) 13pR12, p.291.
27. 井上謙一、岡本晃一、川上養一、寺嶋正秀*、辻村歩**、木戸口勲**、藤田茂夫
(*京大・理) (**松下電産)
“低転位 GaN 上 InGaN/GaN MQW における非輻射過程の評価 (II)”
2001 年秋季第 62 回応用物理学会学術講演会, 愛知工業大学
(2001 年 9 月 11-14 日) 13pR9, p.290.
28. 川上養一、大前邦途、金田昭男、丸月義一*、藤田茂夫 (*日亜化学工業)
“窒化物半導体ナノ構造における励起子ダイナミクス”
日本分光学会関西支部, 大阪 (2001 年 11 月 30 日)
29. Giichi Marutsuki*, Yukio Narukawa*, Tomotsugu Mitani*, Takashi Mukai*,
Genichi Shinomiya*, Akio Kaneta, Yoichi Kawakami, and Shigeo Fujita
(*Nichia Corporation)
“Electroluminescence mapping of InGaN-based LEDs by SNOM”
4th Int. Symp. on Blue Laser and Light Emitting Devices, Cordoba, Spain
(2002 March 11-15)
30. Koichi Okamoto, Kenichi Inoue, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita,
Masahide Terazima*, Ayumu Tsujimura**, Isao Kidoguchi**
(*KU-Sci.) (**Matsushita Electric Industrial Co.)
“Nonradiative recombination processes of carriers in InGaN/GaN probed by
the microscopic transient lens spectroscopy”
12th Int. Conf. on Photoacoustic and Photothermal Phenomena,

Toronto, Canada (2002 June 24-27)

31. Kunimichi Omae, Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa*, Takashi Mukai*, and Shigeo Fujita (*Nichia Corporation)

“Effects of exciton localization and internal electric fields in InGaN-based quantum structures revealed by pump and probe spectroscopy”

26th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors, Edinburgh, UK

(2002 July 29-August 2)

32. 大前邦途、成川幸男*、向井孝志*、川上養一、藤田茂夫 (*日亜化学工業)

“InGaN 量子井戸構造の内部電界効果の井戸幅依存性”

2002 年春季第 49 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学

(2002 年 3 月 27-30 日) 29pZM6, p.393.

33. 金田昭男、岡本晃一、丸月義一*、川上養一、向井孝志*、

藤田茂夫 (*日亜化学工業)

“InGaN SQW の時間分解近接場発光測定”

2002 年春季第 49 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学

(2002 年 3 月 27-30 日) 29pZM7, p.394.

34. 芝原 豪、大前邦途、川上養一、柳本友弥*、長浜慎一*、向井孝志*、

藤田茂夫 (*日亜化学工業)

“GaIn および AlInGaIn を活性層とする紫外レーザダイオードの光物性”

2002 年春季第 49 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学

(2002 年 3 月 27-30 日) 29aZM17, p.386.

35. 今北裕之*、荒木 誉*、西塚幸司*、佐々木昭夫*、山口栄雄**、金田昭男、

川上養一、藤田茂夫 (*大阪電通大学) (**神奈川大学)

“In 添加 GaN の時間分解発光特性”

2002 年春季第 49 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学

(2002 年 3 月 27-30 日) 29pZM10, p.395.

36. 岡本晃一、井上謙一、川上養一、藤田茂夫、崔 正權*、寺嶋正秀*、辻村 歩**、

木戸口 勲** (*京大・理) (**松下電産)

“低転位 GaN の時間-空間分解光熱変換過程の観測”

電子情報通信学会 LQE/ED 研究会, 京都, 同志社大学 (2002 年 6 月 13-15 日)

37. 金田昭男、丸月義一*、成川幸男*、向井孝志*、川上養一、藤田茂夫

(*日亜化学工業)

“時間分解近接場分光による InGaN 単一量子井戸の発光ダイナミクス”

電子情報通信学会 LQE/ED 研究会, 京都, 同志社大学 (2002 年 6 月 13-15 日)

38. 岡本晃一、川上養一、崔 正權*、寺嶋正秀*、向井孝志**、藤田茂夫

(*京大・理) (**日亜化学工業)

- “共焦点レーザー顕微鏡を用いた InGaN/GaN 系 LED のナノ空間分解発光特性”
2002 年光化学討論会, 京都, 京都テルサ (2002 年 9 月 11-13 日)
39. 金田昭男、岡本晃一、丸月義一*、成川幸男*、川上養一、向井孝志*、藤田茂夫
(*日亜化学工業)
“InGaN SQW の開口径 30 nm のプローブによる近接場発光測定”
2002 年秋季第 63 回応用物理学会学術講演会, 新潟大学
(2002 年 9 月 24-27 日) 24aYG7, p.303.
40. 山江和幸、西塚幸司、川上養一、柳本友弥*、長浜慎一*、向井孝志*、藤田茂夫
(*日亜化学工業)
“AlInGaN 量子井戸を活性層とする紫外レーザダイオード構造の CL マッピング”
2002 年秋季第 63 回応用物理学会学術講演会, 新潟大学
(2002 年 9 月 24-27 日) 24pYG2, p.305.
41. Yoichi Kawakami, Kunimichi Omae, Amane Shikanai, Koichi Okamoto,
Akio Kaneta, Fritz Henneberger*, Yukio Narukawa**, Giichi Marutsuki**,
Shinichi Nagahama**, Takashi Mukai**, and Shigeo Fujita
(*Humboldt Univ. zu Berlin) (**Nichia Corporation)
“Recombination mechanism in low-dimensional nitride semiconductors”
Photonics West, Optoelectronics 2003, San Jose, USA (25-31 January 2003)
42. Amane Shikanai, Kouji Hazu*, Takayuki Sota*, Yoichi Kawakami,
Katsuo Suzuki*, and Shigeo Fujita (*Waseda University)
“Nonlinear optical dynamics in GaN and related materials”
Photonics West, Optoelectronics 2003, San Jose, USA (25-31 January 2003)
43. 鹿内 周、小島一信、大前邦途*、川上養一、成川幸男**、向井孝志**、藤田茂夫
(*大阪大学) (**日亜化学工業)
“The cooling process of photo-excited carriers in InGaN multi-quantum wells”
第一回ワイドギャップ半導体アジアパシフィックワークショップ、
淡路島夢舞台国際会議場 (2003 年 3 月 11 日)
44. 金田昭男、武藤隆、丸月義一*、成川幸男*、向井孝志*、川上養一、藤田茂夫
(*日亜化学工業)
“Recombination dynamics of InGaN single quantum well probed by near-field spectroscopy”
第一回ワイドギャップ半導体アジアパシフィックワークショップ、
淡路島夢舞台国際会議場 (2003 年 3 月 10 日)
45. 川上養一
“Spatial and temporal luminescence dynamics in InGaN-based quantum structures probed by near field optical microscopy”

平成 14 年度日本学術振興会日独科学協力事業セミナー、ベルリン、ドイツ
(2003 年 3 月 18 日)

46. 鹿内 周、小島一信、大前邦途*、川上養一、成川幸男**、向井孝志**、藤田茂夫
(*大阪大学) (**日亜化学工業)

“InGaN 多重量子井戸構造におけるホットキャリアダイナミクス”

2003 年春季第 50 回応用物理学関係連合講演会、神奈川大学

(2003 年 3 月 27-30 日)

47. 金田昭男、武藤 隆、川上養一、丸月義一*、成川幸男*、向井孝志*、藤田茂夫
(*日亜化学工業)

“Illumination 法および Illumination-Collection 法による

InGaN SQW の空間分解発光測定”

2003 年春季第 50 回応用物理学関係連合講演会、神奈川大学

(2003 年 3 月 27-30 日)

48. 小島一信、鹿内 周、川上養一、成川幸男*、向井孝志*、藤田茂夫 (*日亜化学工業)

“InGaN 多重量子井戸構造における光学利得の測定”

2003 年春季第 50 回応用物理学関係連合講演会、神奈川大学

(2003 年 3 月 27-30 日)

ウ. 出版物

1. 川上養一 (分担執筆)

“INTRODUCTION TO NITRIDE SEMICONDUCTOR BLUE LASERS AND
LIGHT EMITTING DIODES”

TAYLOR & FRANCIS, 第 5 章, 2000

2. 川上養一 (分担執筆)

“Low-Dimensional Nitride Semiconductors”

Oxford University Press, 第 10 章, 2002

本研究は、(1)ワイドギャップ半導体において活性層に注入されたキャリア／励起が非輻射再結合中心へ捕獲される様子を定量的かつダイナミックに評価すること、(2)非輻射再結合中心の原子構造を同定しその電子状態を明らかにすること、(3)さらにこれらの情報を結晶成長条件にフィードバックさせて原子レベルで制御された結晶成長法を開発することを目的としている。

平成 12 年度は、特に(1)に関して研究実績が得られた。具体的には、

1. InGaN および ZnCdSe 系ナノ構造の励起子次元性と輻射・非輻射再結合過程および光利得生成機構について光学顕微鏡を用いた時間分解 PL 測定や白色光・ポンププローブ分光法によって明らかにした。(ア 1-5,7 イ 1,2,4,5,7-10 ウ 1)
2. ナノ秒パルスの Nd:YAG レーザーの三倍高調波(355nm)を重ね合わせてつくった光学的干渉縞によって試料を励起し、HeNe レーザーによるプローブ光(633nm)の回折光を光電子倍增管で検出することによって、ZnCdSe 系および InGaN 系半導体の非輻射再結合過程によって生じる熱信号を測定[過渡回折格子(Transient Grating; TG)法]した。InGaN 系半導体のほうが、ZnCdSe 系半導体よりも数倍熱伝導度が高く、高電流駆動時に有利に働くことが示された。(ア 6 イ 3,6)
3. 励起レーザをパルス幅 600fs の OPA (Optically Parametric Amplifier, 380nm) とすることで、光生成した励起子の拡散過程も評価でき、時間のみならず空間的なダイナミクスもからめた輻射・非輻射再結合過程を評価することに成功した。すなわち、時間分解フォトルミネッセンス法から測定される発光寿命と、本ピコ秒・サブピコ秒グレーティング法で測定される拡散定数から、活性層中の In 濃度によってキャリア・励起子の拡散距離がどの様に変化するかを系統的に評価できるようになった。(ア 6 イ 3,6)

平成 13 年度の研究は、GaN 系半導体における非輻射再結合過程について、非発光過程によって生じる熱を屈折率変化として高感度でとらえる TG 法と熱レンズ(Transient Lens; TL)法を用いて評価・解析を行った。とくに、貫通転位と熱信号の相関を明らかにするために、サファイア基板上に通常の方法で作製した試料のみならず、横方向選択成長法の一つである ABLEG(Air-Bridged Lateral Epitaxial Growth)法による低転位密度試料の評価を行った。さらに、回折限界を超えた空間分解能を実現するために、近接場光学顕微鏡 (Scanning Near-field Optical Microscopy; SNOM) を導入し、微小領域からの発光測定を実現した。具体的には、

1. 平成 12 年度に引き続き、InGaN 低次元構造の輻射・非輻射再結合過程を詳細に評価し、局在準位での発光過程を精査した。(ア 9,10,12,13,15,16 イ 11,15,17,18,20,22,24,25,28)
2. 通常の方法で作製した GaN の TG 測定を行い膜厚 10 μm の試料に対して k - q^2 プロッ

トから熱伝導度を決定し、 $2.28 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$ という値を得た。これは、一般的に知られた GaN の熱伝導度 $1.3 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$ と比べて大きく結晶性の向上に起因するものと考えられる。(ア 11, 17 イ 12, 13, 16, 21, 27)

3. 上記 GaN と ABLEG-GaN の TG/TL 測定を行い、TG 信号において減衰寿命の短いキャリア成分と減衰寿命の長い熱成分を分離して観測した。ABLEG-GaN においては、非輻射再結合によって発生する熱の成分が小さいことが明らかにされた。両者の試料で、顕微 TL 信号を観測し貫通転位の多い領域では低温においても発熱量が 0 でないことが分かった。(ア 11, 17 イ 12, 13, 16, 21, 27)

4. ABLEG-GaN 上に作製した $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($x=1, 2, 3\%$) において TG 測定を行った。In の添加量が増えると TG 信号の相対熱強度が $x=1\%$ で少し増え $x=2\%, 3\%$ では減少することが分かった。これは、フォトルミネッセンスの積分強度の In 組成依存性とは逆の傾向であり、発光過程と非発光過程が相補的に測定できていることが実証された。(ア 11, 17 イ 12, 13, 16, 21, 27)

5. SNOM 装置を構築し、InGaN 量子構造のイルミネーションコレクションモードでの測定を初めて実現した。その結果、発光波長と強度が、数 100nm 以下の空間スケールで揺らいでいることが明らかとなった。(ア 8, 14 イ 14, 19, 23, 26, 29)

平成 14 年度は、研究を総括するにあたり、これまで開発してきた TG, TL 法および SNOM 法の性能をさらに発展させマルチモード測定法を行うことで、発光・非発光機構の詳細を評価した。具体的には、

1. TL 法を光学顕微鏡と組み合わせた顕微過渡レンズ法を開発し、低転位 GaN の光熱変換過程の時間-空間分解計測を試みたところ、GaN の非輻射再結合による発熱量、熱伝導が $3\mu\text{m}$ の空間分解において得られた。その結果、貫通転位が励起後形成された励起子の非輻射再結合中心として作用していることがわかった。このような過程は、従来の発光検出に基づく手法では観測困難で、熱を直接検出して始めて観測できた。さらに、空間分解能の高い TL 信号測定用の SNOM システムも構築し、高い時間、空間分解能を有する測定系への展開も実現した。(ア 22 イ 30, 36, 38)

2. InGaN 活性層中の内部電界と局在準位によって変調を受けたバンド構造を評価するために、白色光ポンププローブ法による評価を行った。その結果、内部電界のスクリーニングと局在準位へのフィリングが、キャリア/励起子密度の変化とともにダイナミックに変化してゆく様子を定量的に解析することに成功した。(ア 18, 20 イ 31-35, 40-43, 46, 48 ウ 2)

3. SNOM の空間分解能を 30nm まで向上させ、詳細な InGaN 中の局在発光中心構造を明らかにした。さらに時間分解 SNOM-PL 測定により生成された励起子が空間的に異なる領域に拡散し局在発光していることが実証された。この手法は、電流

注入発光マッピング (SNOM-EL) にも適用され、実デバイス駆動時にも局在準位へのフィリングが観測された。(ア 19,21 イ 33,37,39,45,47)

以上 3 年間の精力的な研究により、ワイドギャップ半導体における輻射・非輻射再結合過程についてその時間・空間ダイナミクスの観点から系統的な研究がなされ、非輻射再結合のプロセスについて理解を深めることができた。今後、近接場光学顕微鏡による高分解条件にて種々の発光・非発光信号を同時に測定することによってより詳細な知見が得られるものと期待している。

Hyun-Chul Cho, Shingo Fujita

Hyun-Chul Cho, Shingo Fujita, Department of Applied Chemistry, Faculty of Engineering, Kansai University, Suita, Osaka 564-8680, Japan

Abstract

A scanning probe technique, which possesses both temporal and spatial resolution was developed by combining a photorelated pump laser system with the optical microscope. By using this technique, the time-resolved photoluminescence (TRPL) with sub-nm spatial resolution was performed for the self-assembled (CdSe/ZnS) quantum dots (QDs) fabricated on GaAs. In crystal-synthesized PL spectra of CdSe/ZnS with 10 monolayer (ML) deposited thickness, two peaks in the photoluminescence spectra at 2.0 and 2.2 eV. These peaks can be attributed to the emissions from the ground and excited states of the QDs, respectively. QDs having a diameter of 4 nm and 6 nm, respectively, were fabricated by the chemical synthesis of the QDs was characterized by the photoluminescence. However, in the crystal-synthesized QDs, it was found that both spectral shape and PL intensity have changed with increasing the diameter of QDs. Especially, the PL intensity was very low and was well fitted by the single exponential decay. These results suggest that the radiative recombination is very small, independent of the sizes of crystal-synthesized QDs. In contrast, for the QDs synthesized by the chemical synthesis, the PL intensity was high and was well fitted by the double exponential decay.

Keywords: Quantum dots, Photoluminescence, Scanning probe technique

1. Introduction

Quantum dots (QDs) are semiconductor nanocrystals with sizes comparable to the exciton Bohr radius, which can exhibit quantum confinement effects.

2. Experimental

The QDs were synthesized by the chemical synthesis method. The QDs were characterized by the photoluminescence (PL) spectroscopy. The PL spectra were measured by using a scanning probe technique.

3. Results and Discussion

The PL spectra of the QDs synthesized by the chemical synthesis method are shown in Fig. 1. The PL spectra show two peaks at 2.0 and 2.2 eV.

The PL intensity of the QDs synthesized by the chemical synthesis method is higher than that of the QDs synthesized by the crystal synthesis method.

The PL intensity of the QDs synthesized by the chemical synthesis method is higher than that of the QDs synthesized by the crystal synthesis method.

Quantum dots (QDs) are semiconductor nanocrystals with sizes comparable to the exciton Bohr radius, which can exhibit quantum confinement effects. The QDs were synthesized by the chemical synthesis method. The QDs were characterized by the photoluminescence (PL) spectroscopy. The PL spectra were measured by using a scanning probe technique. The PL spectra show two peaks at 2.0 and 2.2 eV. The PL intensity of the QDs synthesized by the chemical synthesis method is higher than that of the QDs synthesized by the crystal synthesis method. The PL intensity of the QDs synthesized by the chemical synthesis method is higher than that of the QDs synthesized by the crystal synthesis method.