

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	収差補正走査透過電子顕微鏡解析を用いたInGaN量子井戸の微細構造と発光効率低下に関する研究
Title(English)	Study of nanostructure and luminescence degradation of InGaN quantum wells by aberration-corrected scanning transmission electron microscopy
著者(和文)	丹下 貴志
Author(English)	Takashi Tange
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11949号, 授与年月日:2021年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:三宮 工,尾中 晋,吉本 護,舟窪 浩,和田 裕之
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11949号, Conferred date:2021/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位 (専攻分野)： 博士 (工学) Academic Degree Requested Doctor of
学生氏名： Student's Name	丹下 貴志		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main) 三宮 工 准教授
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub) 尾中 晋 教授

### 要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters )

本論文は、InGaN 発光デバイスの発光効率低下現象の起源となる格子歪に着目し、収差補正走査透過電子顕微鏡(Cs-STEM)による歪解析技術の確立と高インジウム InGa<sub>N</sub> 量子井戸層の歪挙動と発光効率低下との関連についてまとめたものであって、全7章で構成されている。

1章では本研究の背景と目的および論文の構成について記した。InGa<sub>N</sub> 発光デバイスは青色光源としての実用性が示されて以降、その高輝度化および高出力化へ研究基軸が移っていった。そして、もう1つの進化軸として InGa<sub>N</sub> のインジウム組成を増やすことによる放出光の長波長化があり、理論的には近紫外線から近赤外線までの発光が可能である。しかし、InGa<sub>N</sub> 中のインジウム濃度を上げると急激な発光効率の低下がおき、デバイス開発への大きな障壁となっている。発光層として機能する InGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> 量子井戸層は高い非混和性とピエゾ分極現象を伴う興味深い特性があるが、これらの特性は発光効率低下の主要因であり、また Ga<sub>N</sub> と In<sub>N</sub> の格子不整合に起因する格子歪と深く関連していることが報告されている。一方、InGa<sub>N</sub> 量子井戸層の格子レベル解析として透過電子顕微鏡(TEM)は強力な解析方法として用いられてきたが、電子線照射やサンプル作製時のイオンダメージがアーティファクトとなり解析結果に対する信憑性の課題が提起されていた。そこで本研究目的は、低ダメージな TEM サンプル作製技術の構築および Cs-STEM を用いた歪解析技術の確立であり、そしてそれらの技術を使った InGa<sub>N</sub> 量子井戸内の歪挙動と発光効率低下との関連解明と定めた。

2章では、良質な TEM サンプルを得るための Ga<sub>N</sub> 系半導体における低ダメージ TEM サンプル作製手法の構築について述べた。他の III-V 化合物半導体結晶に比べ Ga<sub>N</sub> 系材料はイオンスパッタリングによって特徴的な結晶欠陥層が形成され、これが TEM 観察時の像クオリティを悪化させていることを見出した。これらをふまえて、低加速収束イオンビーム法(FIB)と極低加速イオンミリング法を組み合わせた独自のサンプル作製プロセスを確立することにより、欠陥層が抑制されたサイトスペシフィックなサンプル作製が可能となった。

3章では、TEM による格子歪解析技術の確立について述べた。結晶格子配列の幾何学構造を解析することにより格子変位を抽出する GPA(Geometric Phase Analysis)法を採用し、Cs-STEM と組み合わせた歪解析手法を構築した。Cs-STEM 観察では観察時のランダムノイズやサンプルドリフトによる歪測定精度低下の課題があったが、画像積算によるノイズリダクション法を適用したところノイズの抑制に効果があることが立証された。本手法を InGa<sub>N</sub> 量子井戸構造に適用したところ、空間分解の 2 nm 以下で

サブパーセントの歪の検出に成功した。

4章はインジウム組成を意図的に変化させた InGa<sub>x</sub>/Ga<sub>1-x</sub>N 量子井戸構造の歪挙動について記した。3種類の In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 層 ( $x = 0.09, 0.15, 0.21$ ) を GPA 手法で調べた結果、インジウム組成に応じた数パーセントの格子変位がエピタキシャル成長方向に生じていることがわかった。InGa<sub>x</sub>N 層内には数 nm サイズの歪の揺らぎが確認され揺らぎ振幅はインジウム組成が高くなるに従い増加した。また、観測された InGa<sub>x</sub>N の  $c$  軸長と計算によって求めた完全コヒーレント成長した場合の  $c$  軸長を比較すると、インジウム組成が高くなるに従い実際の  $c$  軸長は完全コヒーレント成長の値より小さくなることが明らかになった。これは、インジウム組成の増加に伴い歪エネルギーが低下した結果と解釈される。

5章および6章では InGa<sub>x</sub>N 層へのインジウム組成の影響をより鮮明にするために GaN 基板上に InGa<sub>x</sub>N 単一量子井戸 (SQW) を形成したサンプルについてインジウム組成と構造および発光の変化を調べた。実験した In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N SQW ( $x = 0.15, 0.24, 0.28, 0.30, 0.34$ ) の特徴は、インジウム組成の増加に応じてフォトルミネッセンス強度が極端な低下を示すこと、 $x = 0.27$  以上ではトレンチ欠陥と呼ばれる特異的な結晶欠陥が顕在化することである。そこで本研究ではトレンチ欠陥の形成メカニズム解明にフォーカスした評価をおこなった。トレンチ欠陥の原子分解能解析とカソードルミネッセンスによるスペクトルイメージング解析により、トレンチ欠陥領域の InGa<sub>x</sub>N 層上部は特異的に歪が高くなっており、ローカルな発光強度低下が生じていることを見出した。これらの知見に基づいて、トレンチ欠陥形成に関して相分離理論に基づいたメカニズムを提案した。トレンチ欠陥は、臨界膜厚に達した InGa<sub>x</sub>N 層が二次元成長から三次元成長へ移った結果として形成されたものと考えられ、トレンチ欠陥の発光強度低下は歪によって量子閉じ込めシュタルク効果が増強され空間的な電荷分離が大きくなったことが主因と考察した。

7章は結論であり、本論文で得られた成果について要約し、本分野における今後の展望について述べた。次世代 InGa<sub>x</sub>N 発光デバイスへの提言として、ナノロッドやナノウォールのような三次元構造技術による半極性および非極性面 InGa<sub>x</sub>N 量子井戸構造への期待を示した。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note: Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ (T2R2) にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)  
Doctoral Program

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース : Department of, Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名 : Student's Name	丹下 貴志		指導教員 (主) : Academic Supervisor(main)	三宮 工 准教授	
			指導教員 (副) : Academic Supervisor(sub)	尾中 晋 教授	

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words )

InGaN quantum wells have been used in blue and green laser diodes, of which emission wavelength being tunable by indium concentration. However, in the red wavelength range with high indium concentration, the light emission is seriously deteriorated. This deterioration mechanism has not been so far fully clarified. In this study, the nanostructural and optical properties of InGaN/GaN quantum well (QW) are investigated by lattice strain analysis and cathodoluminescence (CL) spectroscopy in an aberration-corrected scanning transmission electron microscope (Cs-STEM). In this context, we first develop low-damage sample preparation techniques using low-voltage focused ion beam and low-voltage Ar ion milling techniques. Then, the strain analysis method optimized for InGaN/GaN heterostructure was established by combining Cs-STEM and GPA(Geometric Phase Analysis). Using these techniques, the violet, blue, and green emission InGaN/GaN QWs were investigated. The results of strain analysis showed that all InGaN QWs are grown coherently on GaN under layer and the lattice strain with indium composition appears in the growth direction. The strain was observed to increase as the indium composition increased. The measured strains in the high indium composition range are found to be below the calculated strains for fully coherent growth. This suggests that the strain relaxation within the InGaN layer increases with increasing indium composition. In addition, the influence of the defects in the InGaN/GaN structure had been investigated. To circumvent any possible influence of the defects of the buffer layer or substrate, we used single QW structures fabricated on c-plane GaN substrates. The trench defects were found when the indium composition exceeded 27% (yellow emission) and even increased at 34% (red emission). From the Cs-STEM analysis, it was revealed that the trench defect contained a stacking fault forming the zincblende crystal structure. By CL method we also clarified that the light emission is suppressed at the trench defect area and that the trench defects tend to occur in the region with locally high indium concentration. The emission degradation in the trench defects was considered to be due to the quantum confined Stark effect enhanced through the strain and greater spatial charge separation.

備考 : 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意 : 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).