

六方晶 BN 微結晶の発光ダイナミクス評価(4) Luminescence dynamics of hexagonal BN microcrystals (4)

東北大多元研¹, 静岡大電子研²

°秩父重英¹, 石川陽一¹, 小南裕子², 原和彦²

IMRAM-Tohoku Univ.¹, RIE-Shizuoka Univ.²

°S. F. Chichibu¹, Y. Ishikawa¹, H. Kominami², and K. Hara²

E-mail: chichibu@tohoku.ac.jp

【はじめに】バンドギャップエネルギー(E_g)の大きい、グラファイト状の2次元網目構造六方晶 h-BN は、間接遷移型半導体でありながら[1]比較的明るい発光を呈する事が知られており[2-4]、紫外線波長発光素子用材料として期待できる。これまでに、波長 215nm の光励起レーザー発振[2]や電子線励起 DUV 発光素子[3]、また 320 nm 帯の蛍光体材料としての応用研究[4]が報告されている。ごく最近、Cassabois ら[1]は h-BN が間接遷移型であることを実証するデータを示した。しかしながら、構造欠陥に関与するとされる 5.5eV 発光帯を含め、時間分解や実空間分解分光評価により発光ダイナミクスを吟味する必要がある。我々は、2010 年度末に静岡大原教授らの h-BN の光学特性評価を開始し[5]、微結晶やエピ成長 h-BN の評価を行ってきている。本講演では、前の講演(3)に続き、h-BN 微結晶の時間空間分解カソードルミネッセンス(STRCL)装置[6]による評価を行った結果を示し、空間分解カソードルミネッセンス(SRCL)による評価例[7]と比較し、発光の起源について考察する。

【実験】市販の h-BN 粉末(>99%)を、900°C で 2 時間、酸素雰囲気中で熱処理を行った h-BN 微結晶[4]の X 線回折、赤外線吸収、CL、および STRCL 測定を行った。STRCL 測定系[6]は、フェムト秒 Al₂O₃:Ti レーザーの第 3 高調波($\lambda=260$ nm、~100 fs、80 MHz、3.2 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$) で Au を表面側から励起してパルス光電子線を発生させ、それを直径 50 μm 以下に絞りながら SEM 鏡筒上部の熱電子銃の位置に導き、SEM のレンズ系を用いて試料上に集束させる仕組みとなっている。視野範囲で電子線をラスタ走査しながら計測する場合も、微小部分に静止させ計測する場合もストリークカメラを用いた計測を行った。

【結果と考察】X 線回折測定により単相であることを確認した h-BN 微結晶(結晶面は揃っていない)の低温 STRCL スペクトルには、前の講演[8]と同じ発光ピークや発光帯が観測された。そのパングロマトニック CL 像を図示する。最大で 10 μm 近くの微結晶ドメインが観測されるが、発光パターンは均一ではない。モノクロマトニック CL 像を観ると、各波長での発光の強弱コントラストは図とは一致しておらず、間接遷移型励起子(iX)の T 点フォノンレプリカ群と、それらがさらに K 点 TO フォノン散乱されたレプリカ群の発光位置は相補的であることが分かった。後者の発光寿命は前者のそれに比べて長く、また温度上昇に従い強度クエンチすることから、束縛状態がある場合のみ、K 点 TO フォノン散乱が顕著となる事、その周りには非輻射再結合中心が存在し、励起子発光が減衰することがわかった。詳細は当日発表する。

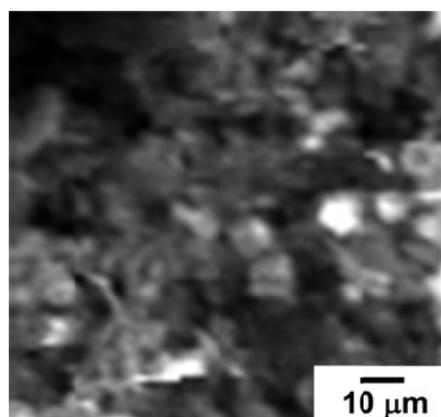


図 O₂ 熱処理後の h-BN 微結晶のパングロマトニック CL 像 (12K)

【謝辞】計測に協力頂いた羽豆耕治, 古澤健太郎, 田代公則氏に感謝します。本研究の一部は、科研費 挑戦的萌芽研究 16K14222、新学術領域 16H06427、基盤研究(B)17H02907 の援助を受けた。

【文献】[1] Cassabois 他 Nature Photon. 10 (2016) 262. [2] 渡邊他 Nature Mater. 3 (2004) 404. [3] 渡邊他 Nature Photon. 3 (2009) 591. [4] 原他 PSS (c) 8 (2011) 2509. [5] 石川, 秩父他 2012 年春季及び秋季応用物理学会 [6] 古澤, 秩父他 APL 103 (2013) 052108. [7] Bourrellier 他 ACS Photon. 1 (2014) 857. [8] 秩父他 本講演会