InGaN 薄膜における励起子－励起子散乱による誘導放出

北野　亮[A]、安藤　雅信[B]、上村　俊也[B]、中山　正昭[A]
大阪市立大学大学院工学研究科電子情報系専攻[A]
豊田合成株式会社 オプトE事業部[B]

Stimulated emission due to exciton-exciton scattering in an InGaN thin film

R. Kitano[A], M. Ando[B], T. Uemura[B], and M. Nakayama[A]
Department of Applied Physics, Osaka City University[A]
Optelectronics Technical Division, Toyoda Gosei., Co. Ltd.[B]

We have investigated the photoluminescence (PL) properties of a lightly-alloyed $In_{0.02}Ga_{0.98}N$ thin film under intense excitation conditions. The InGaN thin film was grown on an Al_2O_3 substrate by metal organic vapor phase epitaxy. A PL band (P band) peculiar to the intense excitation condition is clearly observed. The excitation-power dependence of the P-band intensity exhibits an almost quadratic nature, accompanying with a threshold-like appearance. At the threshold excitation power, the energy of the P band is lower than the energy of the n=1 A free exciton by the energy difference between n=1 and n=2 exciton energies. The P-band energy gradually shifts toward a low-energy side with an increase in excitation power. Furthermore, we have confirmed that the P band has the optical gain of about 40 cm^{-1} at the excitation power of 200 kW/cm^2 by using a variable-stripe-length method. The results described above demonstrate that the P band is caused by the stimulated emission due to an exciton-exciton scattering process. It is noted that the threshold excitation power (~3 kW/cm^2) for the P band in the InGaN thin film is much lower than that in a high quality GaN single crystal.

1.はじめに

近年、InGaN は可視から紫外域にわたる発光デバイスの材料として広く用いられ、基礎物性とデバイス応用の両面において盛んに研究が行われている。強励起条件特有の発光特性である励起子－励起子散乱による発光は、これまでⅡ－Ⅵ族半導体を中心として盛んに研究が行われており、誘導放出を生じる発光過程として知られている[1]。しかしながら、InGaN において、この励起子－励起子散乱発光に起因した誘導放出については、これまで全く報告されていない。

本研究では In 濃度が 2 %という希薄な InGaN 薄膜に着目した。この試料に対して、10 K において、強励起条件での発光特性について研究を行い、励起子－励起子散乱による P 発光帯を観測した。この発光帯についての励起光強度依存性、及び、Variable Stripe Length Method （VSL 法）を用いた光学利得に関する詳細な測定結果から、In 濃度が希薄な InGaN 薄膜において励起子－励起子散乱過程による誘導放出が生じていることを明らかにした。また、InGaN 薄膜におけるその誘導放出の閾値は、GaN 単結晶の場合[2]と比較して極めて低いものである。

2.試料と実験方法

本研究では、試料として$Al_2O_3(11\bar{2}0)$基板上に有機金属気相成長（MOVPE）法により作製した$In_{0.02}Ga_{0.98}N$（200 nm）薄膜

を用いた。基板との緩衝層として、極薄膜AlNの上にGaN層（4 μm）を成長している。吸収スペクトルの測定にはダブルビーム分光光度計を用い、発光スペクトルの測定においては、弱励起用の光源にHe-Cdレーザー（325 nm）、強励起用の光源に、パルス幅 5 nsの窒素レーザー（337 nm）を用いた。さらに、VSL法により光学利得の測定を行った。

3.実験結果と考察

図 1 は、10 Kでの吸収スペクトル（破線）および弱励起条件での発光スペクトル（実線）を示したものである。図中の矢印で示したE_Aは吸収スペクトルより見積もったA自由励起子エネルギーである。一般に、InGaNではGaNにInを混晶化することによる混晶ポテンシャルの揺らぎにより、局在状態が形成されることが知られている[3]。弱励起条件では、A自由励起子エネルギーから 30 meV程度ストークスシフトしたブロードな発光帯が観測されている。この発光帯は、混晶ポテンシャルの空間的揺らぎに起因した弱局在励起子による発光と考えられる。

図 2 は、10 Kにおける、強励起条件での発光スペクトルの励起光強度依存性

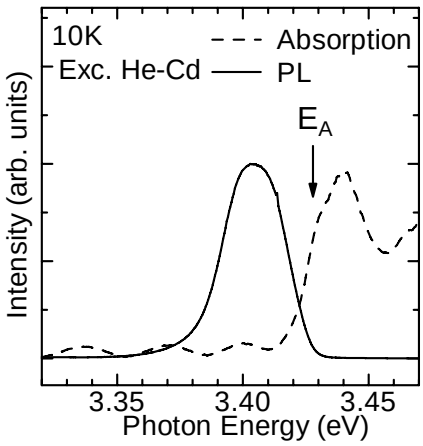

図 1　10 Kにおける、吸収スペクトル（破線）および弱励起条件での発光スペクトル（実線）。図中の矢印E_AはA自由励起子エネルギーを示す。

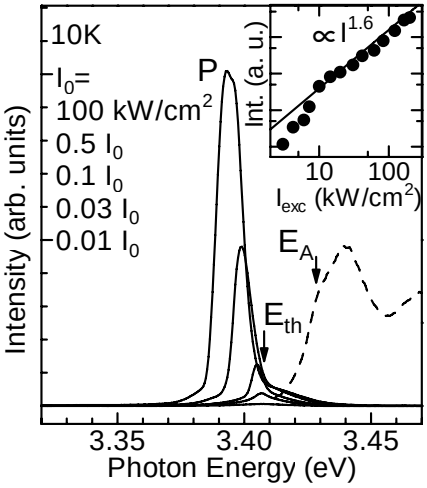

図 2　10 Kにおける、強励起条件における発光スペクトルの励起光強度依存性（実線）および吸収スペクトル。図中の矢印E_AはA自由励起子エネルギーを、E_{th}はPで示した発光の閾値近傍での発光エネルギーを示している。挿入図はPで示した発光の積分発光強度の励起光強度依存性。

（実線）および吸収スペクトル（破線）を示したものである。強励起条件では、ある閾値（3 kW/cm^2）以上で、シャープなP発光がA自由励起子エネルギー（E_A）の低エネルギー側に出現し、励起光強度の増大と共に低エネルギーシフトしている。さらに、このP発光は以下の特徴をもつ。

その積分発光強度は、図 2 の挿入図に示すように、3 kW/cm^{2}付近で閾値特性を示し、10 kW/cm^{2}以上で、励起光強度に対して2乗に近い超線形性（1.6乗）を示す。挿入図中の実線は、P発光積分強度の励起光強度 10 kW/cm^{2}以上の領域をフィッティングしたものである。ここで、P発光の積分発光強度を見積もる際に、同じエネルギー領域に弱局在励起子による発光が重なっているので、二つのガウス関数を用いて、P発光のスペクトルを分離した。また、閾値近傍における発光のピークエネルギー（E_{th}）とE_Aの差（$\Delta E = E_A - E_{th}$）は 21 meVである。本研究で用いた試料は

In濃度が 2 %と希薄なInGaNであるので、励起子束縛エネルギーをGaNと同じ 28 meVと仮定すると、このエネルギー差（ΔE）はn=1 とn=2 の励起子状態間のエネルギー差に一致する。以上の特徴から、P発光は励起子－励起子散乱による発光であると考えられる。

励起子－励起子散乱発光とは、基底状態（n=1）の２つの励起子が非弾性散乱して、一方の励起子は励起状態（n≧2）に散乱し、もう一方は、基底状態よりもエネルギーの低いフォトン状態に散乱することにより生じる発光である。この散乱過程におけるエネルギー保存則と運動量保存則から、発光エネルギーとn=1 励起子エネルギー（E_1）の差は次式で与えられる[3]。

$$E_1 - \hbar\omega_{\mathrm{n}} = \left(1 - \frac{1}{n^2}\right) E_{\mathrm{b}} + 3\sigma k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{eff}} \qquad (1)$$

ここで、E_{b}は励起子束縛エネルギーである。(1) 式の右辺の第 2 項は励起子の運動エネルギーに起因するもので、励起子系の有効温度（T_{eff}）を反映している。σは 1 以下の正の定数である。

(1) 式から励起子－励起子散乱発光の特徴は、散乱先である励起状態（n≧2）と基底状態（n=1）の状態間のエネルギー差分だけ励起子エネルギーより低エネルギー側で発光すること、励起光強度の増大に伴う励起子系の有効温度の上昇により低エネルギーシフトすることなどが挙げられる。また、この発光は励起子 2 体の衝突に起因することから、原則的には、発光強度は励起光強度に対し 2 乗に比例して増大する。これらの特徴は、10 K における強励起条件での発光特性（図 2）の実験結果と良く一致しており、本研究の In 濃度が希薄な InGaN 薄膜において励起子－励起子散乱発光が生じていると結論できる。

さらに、着目すべきことは、この励起子－励起子散乱発光が 3 kW/cm^{2}という極めて低閾値で観測されている点である。高品位のGaN単結晶においては、この励起子－励起子散乱発光の閾値が 270 kW/cm^{2}という報告がある[2]。このように、GaNにわずかにInを混晶化することによって、励起子－励起子散乱発光を 1/100 程度の極めて低閾値で観測できることが明らかになった。その原因としては、GaNにわずかにInを混晶化させることによる混晶ポテンシャル揺らぎが励起子の非弾性衝突の散乱効率を向上させ、励起子－励起子散乱発光の低閾値化が生じていると考えられる。

InGaN 薄膜における励起子－励起子散乱発光において、誘導放出が生じていること、つまり光学利得の存在を確認するために VSL 法を用いた。VSL 法とは図 3（a）に示すように、端面からの発光強度

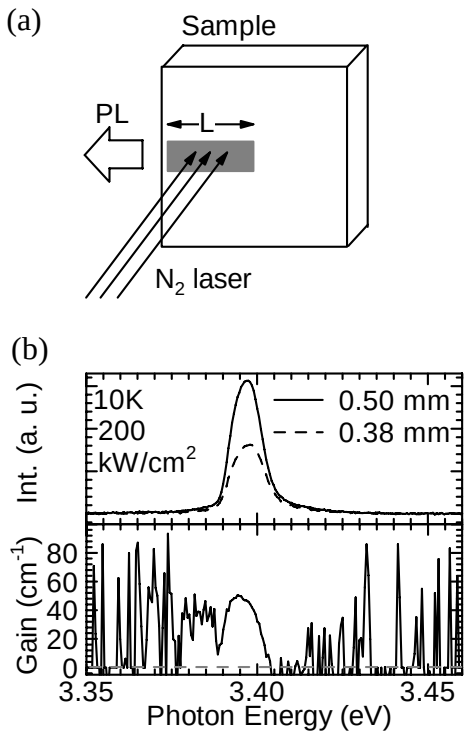

図 3 （a）VSL法の模式図。（b）10 Kにおける、上図は励起光強度 200 k W/cm^{2}でのストライプ長が 0.50 mmと 0.38 mmのP発光スペクトル。下図はそれらを基に計算した光学利得スペクトル。

のストライプ長依存性を測定するものである。光学利得が存在すれば、端面からの発光強度（I_L（E））はストライプ長（L）に対して指数関数的な依存性を持ち、次式で表すことができる[4]。

$$I_{\mathrm{L}}(E) = I_{\mathrm{S}}(E)(exp[g(E)L] - 1)/g(E) \quad (2)$$

ここで、I_Sは自然発光強度である。この（2）式を用いることで、VSL法により光学利得（g（E））を評価することができる。

図 3（b）の上図は、10 Kにおける、励起光強度200 kW/cm^{2}でのストライプ長が0.50 mmと 0.38 mmにおけるP発光スペクトルを示したものである。下図はこれら2 つのスペクトルを基に、(2）式を用いて計算した光学利得スペクトルである。P発光のピーク付近に明確に光学利得が存在している。図 4 は、10 Kにおける、閾値以上の異なる励起光強度（10 kW/cm^2～200 kW/cm^2）でのP発光の積分発光強度をストライプ長に対して片対数プロットしたものである。図中の破線は実験結果をフィッティングしたものである。どの励起光強度においても、P発光の積分発光強度は明らかにストライプ長に対して指数関数的な依存性をもっている。また、この傾きから、(2）式を用いて計算すると、最大励起光強度の 200 kW/cm^{2}において 36 cm^{-1}の光学利得が得られる。以上の VSL 法の結果は、本研究におけるIn濃度が希薄なInGaN薄膜において、励起子－励起子散乱による誘導放出が生じていることを明確に示している。

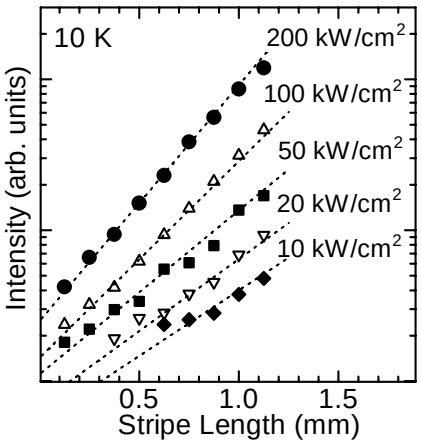

図 4 10 Kにおける、閾値以上の異なる励起光強度（10 kW/cm^2～200 kW/cm^2）でのP発光の積分発光強度のストライプ長依存性。

4.まとめ

本研究では、In 濃度が希薄な InGaN 薄膜に着目し、強励起条件での発光特性に関する詳細な研究を行った。10 K において励起子－励起子散乱による P 発光を GaN の単結晶に比べて極めて低閾値で観測した。このことから、GaN にわずかに In を混晶化することによる混晶ポテンシャル揺らぎが励起子の散乱確率を向上させ、P 発光が低閾値で観測されたと考えられる。さらに、VSL 法を用いて、光学利得の測定を行い、In 濃度が希薄な InGaN 薄膜において、励起子－励起子散乱による誘導放出が生じていることを明確にした。

謝辞

試料の結晶成長に御協力をいただいた豊田合成株式会社の中井真仁氏に感謝いたします。

参考文献

[1] I. Tanaka and M. Nakayama J. Appl. Phys. **92**, 3511 (2002)

[2] S. Kurai, *et el*., Jpn. J. Appl. Phys. **38**, L102 (1999)

[3] M. Smith, *et el*., Appl. Phys. Lett. **69,** 2837 (1996)

[4] C.Klingshirn, Phys. Status Solidi **(b)71**, 547 (1975)

[5] K. L. Shankee and R. F. Lehenny, Appl. Phys. Lett. **18**, 475 (1971)