

AlGaN における発光減衰曲線と緩和過程

坂井友英^A, 中川尚人^A, 鈴木将孝^A, 福井一俊^A,
直江俊一^B, 三宅秀人^C, 平松和政^C
福井大工^A, 金沢大工^B, 三重大工^C

Time Resolved Decay Curves and decay process studies of AlGaN Alloys

T.Sakai^A, N.Nakagawa^A, M.Suzuki^A, K.Fukui^A,
S.Naoe^B, H.Miyake^C, K.Hiramatsu^C

^A*Department of Electrical and Electronic Engineering, Fukui University,
Fukui910-8507, Japan*

^B*Department of Mechanical System Engineering, Kanazawa University, Kakuma,
Kanazawa 920-1192, Japan*

^C*Department of Electrical and Electronic Engineering, Mie University, Mie 514-8507,
Japan*

Abstract

GaN, AlN, and their alloys AlGaN are promising materials for visible-UV opto-electronic devices, such as LEDs LDs and photo detectors. We have been performed photoluminescence (PL), PL excitation, and PL time decay studies to investigate the PL mechanisms of AlGaN system. The decay curves are well explained by the three single exponential decay components model. The temperature dependence of the time integrated PL spectrum in each decay component reveals that the transition energy of three components is close with each other. It also suggests that there are the intensity exchanges among three components are observed.

1. はじめに

GaNやAlNなどの窒化物半導体とその混晶は、ワイドバンドギャップ系半導体の一種であると共に、他のIII-V族化合物半導体と同様にヘテロ構造が作製できるなど、エレクトロニクス分野において多様な応用の可能性が期待されている。特に、バンドギャップの広いAlNとGaNの混晶系であるAlGaNは、今後発展が期待される紫外LEDやLDの主演として考えられている[1]。しかし、薄膜結晶の質的向上は顕著ではあるものの、発光メカニズム、基礎物性に関する実験研究は、まだ未解明な部分があるのが現状である。そこで、発光デバイス材料であるAlGaN

の発光を知る上で重要な発光機構とその緩和過程を調べることを目的に実験を行った。

実験方法としては、通常バンド間励起によって生じる可視・紫外発光を測定した。また、発光減衰曲線については数 ns までの測定は報告されているが、それよりも長い時間領域(100ns 以上)までではない。AlGaN、特にAl高濃度の混晶では、緩和時間が100ns以上と非常に長いため、そこまで測定することによって正確な緩和過程を知る手がかりになると思われる。そこで、UVSOR-1のSingle Bunch運転時にAlGaN混晶の発光減衰曲線測定を約120nsまで行った。各発光エネルギー位置において10K~170Kの

範囲で発光減衰曲線の温度依存性を測定し、また各組成比の試料に対し、発光減衰曲線の発光エネルギー依存性を測定した。

2. 試料と実験方法

試料は MOVPE 法によって作製された薄膜結晶を用いた。Al₂O₃ 基板上に育成された NGK 社製高品質 AlN 薄膜を基板とすることで、格子不整合による格子歪みを緩和し、良質な薄膜を作製している。今回測定した AlGa_xN 混晶の組成比は Al_xGa_{1-x}N で $x=0.34 \sim 0.863$ である。なお、組成比は X 線回折測定により決定した。

測定は分子科学研究所 UVSOR-BL7B 3m 直入射分光ラインで行った。励起光をサンプルに照射し、発光は光ファイバーで真空外に持ち出し、CCD 付きの発光解析用 30cm 汎用分光器で測定した。発光減衰曲線は UVSOR- のシングルパンチ運転時に時間相関単一光子計数法によって行った。シングルパンチ運転時の光パルス周期は 178ns、光パルスの半値幅は約 400ps である。

3. 実験結果及び考察

3 - 1 . 発光スペクトル

三元系の基本的な発光スペクトルは、基礎吸収端近傍で見られる UV 発光、不純物もしくは欠陥による発光と言われている Y 発光帯、また、両発光帯の中間にドナー アクセプタ(D-A)対による発光がある。Y 発光と D-A 発光は非常に弱いため、今回は UV 発光に着目して議論する。図 1 に Al_{0.65}Ga_{0.35}N の UV 発光の発光スペクトルを示す。測定温度は 9K である。UV 発光帯は Main 発光といくつかの LO Phonon replica 発光で構成されている。LO Phonon replica フォノン発光は、

LO Phonon が放出されたエネルギーと同等のエネルギー分だけ低エネルギー側に観測できる。Main 発光と同一形状と考え、元の発光スペクトルに合うようにスペクトル分解を行った。

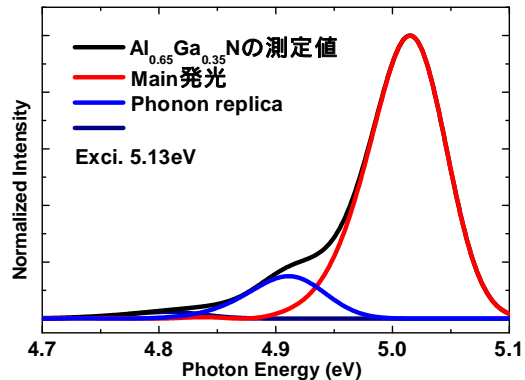


図 1. Al_{0.65}Ga_{0.35}N の UV 発光スペクトル

3 - 2 . 発光減衰曲線

図 2 に各発光エネルギー位置での発光減衰曲線を示す。横軸は緩和時間、縦軸は最大強度を 1 で規格化したものを常用対数で示してある。

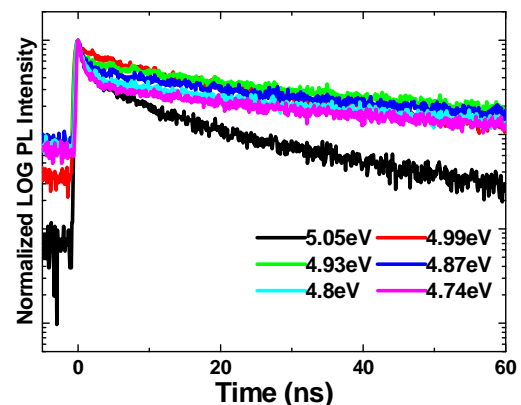


図 2. Al_{0.65}Ga_{0.35}N の各発光エネルギー位置での発光減衰曲線(9K)

この発光減衰曲線は単純な指数関数及び、拡張指数関数では説明できない。そこで我々は Slow(20~70ns)、Middle(3~20ns)、Fast(1ns 以下)の 3 成分から成る単一指数関

数の和として解析をおこなってきた[2]. フィッティングには発光の重ね合わせ(Pile-Up)を考慮した次の式を用いて行った. Pile-Upとは測定対象の発光が励起光の繰り返し周期(178ns)と同程度か長い緩和時間を持つと, 前の励起光パルスで起こった発光が減衰しきる前に, 次の励起パルスが発光を生じさせてしまうことである.

$$J(t) = I_f e^{-\frac{t}{\tau_f}} + \sum_{n=0}^{\infty} I_m e^{-\frac{t}{\tau_m}} + \sum_{n=0}^{\infty} I_s e^{-\frac{t}{\tau_s}}$$

$$= I_f e^{-\frac{t}{\tau_f}} + \frac{e^{-\frac{R}{\tau_m}}}{e^{\frac{R}{\tau_m}} - 1} I_m e^{-\frac{t}{\tau_m}} + \frac{e^{-\frac{R}{\tau_s}}}{e^{\frac{R}{\tau_s}} - 1} I_s e^{-\frac{t}{\tau_s}}$$

図3に $\text{Al}_{0.65}\text{Ga}_{0.35}\text{N}$ の発光スペクトルと緩和時間を重ね合わせたものを示す. 横軸は光子エネルギー, 左縦軸は強度, 右縦軸は緩和時間を示す. この図より, レプリカ領域の緩和時間は長く, ほぼ一定なこと, メイン領域での変化が大きいのことが分かる.

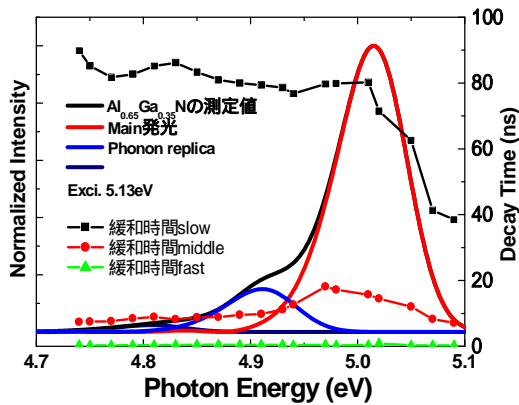


図3. $\text{Al}_{0.65}\text{Ga}_{0.35}\text{N}$ の発光スペクトル及び緩和時間

図4に面積強度の発光エネルギー位置依存性を示す. 面積強度の総和は3成分を足し合わせたものになっており, これが発光スペクトルそのものになっている. Fast成分は見やすくするために強度を10倍してある. 図上にある縦線は3成分それぞれのピーク

位置を示してある. 各成分のピーク位置が低エネルギー側から Slow成分, Middle成分, Fast成分という順にシフトしていることが分かる. これは各成分のエネルギー状態が違うことを意味しており, 近接していても, それぞれが違うエネルギーからの発光であることが分かる.

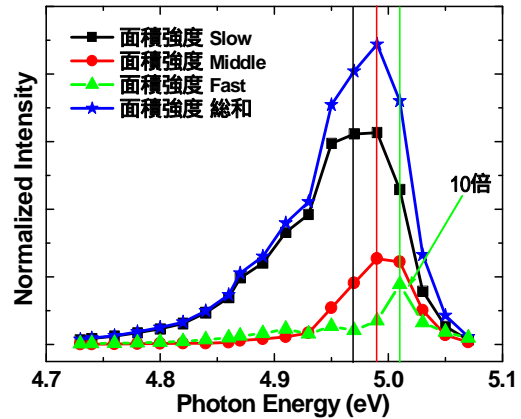


図4. $\text{Al}_{0.65}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$ の面積強度の発光エネルギー位置依存性

図5に各サンプルでの面積強度の発光エネルギー位置依存性をまとめたものを示す. Alの組成比が増加するにつれて, Slow成分の割合が増加し, Middle, Fast成分は減少していることが分かる. このことから, Al濃度とSlow成分に密接な関係があることが分かる.

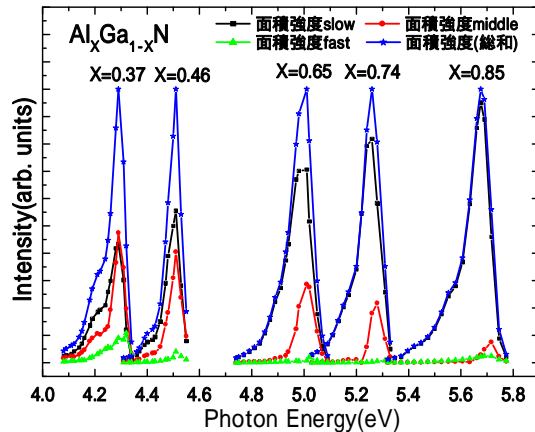


図5. 面積強度の発光エネルギー位置依存性

図 6 に $\text{Al}_{0.65}\text{Ga}_{0.35}\text{N}$ の発光ピーク位置での発光減衰曲線の温度依存性を示す。今回の測定では発光ピーク位置の他に高エネルギー側と低エネルギー側に合わせて 4 点

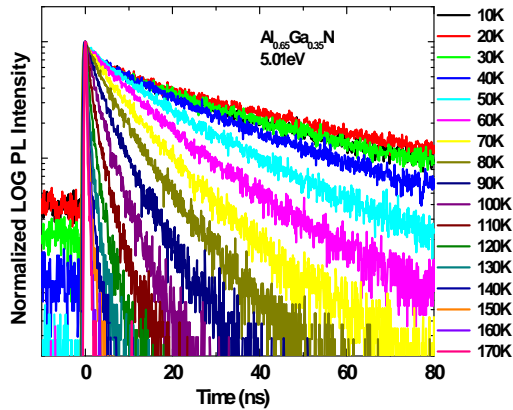


図 6. $\text{Al}_{0.65}\text{Ga}_{0.35}\text{N}$ の発光ピーク位置での発光減衰曲線の温度依存性

同じように発光減衰曲線の温度依存性を測定した。事前に発光スペクトルの温度依存性を測定し、そのエネルギー位置での発光強度とフィッティングで求める面積強度が等しくなるように解析を行った。図 7 にフィッティング結果の面積強度をマッピングイメージにして示す。横軸は温度、縦軸は発光エネルギーであり、各成分は分けて示してある。黒い部分の強度が強く、白い部分は強度が弱くなっていることを示している。

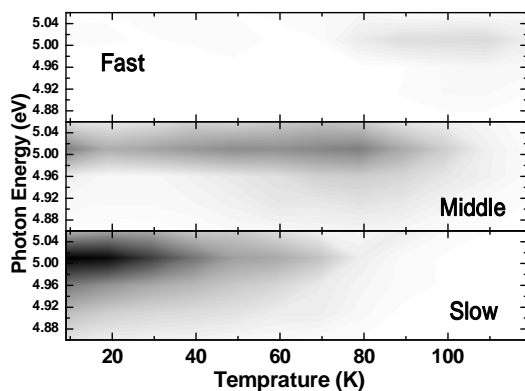


図 7. $\text{Al}_{0.65}\text{Ga}_{0.35}\text{N}$ の面積強度のマッピングイメージ

低温側では Slow 成分が支配的であるが、温度の上昇と共に支配的な成分は Middle 成分、Fast 成分へと徐々に移り変わっている。

強度の移り変わりが見えることから、3 成分はそれぞれ異なった発光過程であると考えられる。発光エネルギー位置依存と温度依存性のデータから、Fast 成分は合金効果に由来する組成の揺らぎによって生じた、空間的に局在したエネルギー状態に捕まった励起子によるものだと考えられる。Slow 成分は成長中にできた空格子や欠陥が電子を引き付けてきた状態に捕まった励起子によるものであると考えた。MOVPE 成長では Al 組成比が増加するにつれて、窒素部分等に空格子ができ、その空格子が電子を引き付けるため、あたかも中性ドナーのような振る舞いを見せる。また Middle 成分は温度上昇などにより中性ドナーから電子を離脱した、いわゆるイオン化ドナーのようなものに束縛された励起子からの発光であると考え、3 成分と温度上昇に伴う強度交替が説明できる。

4. まとめ

AlGaIn の緩和過程を調べるために、発光・発光減衰曲線の測定を基礎吸収端付近にて行った。発光減衰曲線については発光帯全域で発光エネルギー位置依存性及び温度依存性を確認した。発光減衰曲線を 3 つの単一指数関数で解析でき、Fast 成分は組成の揺らぎによる局在励起子による発光、Slow 成分は電子を伴う空格子等のいわゆる中性ドナーのようなものに束縛された励起子からの発光、また Middle 成分は温度上昇などにより中性ドナーから電子を離脱した、いわゆるイオン化ドナーのようなものに束縛された励起子からの発光であると考えた。

参考文献

- 〔1〕赤崎 勇編著 “青色発光デバイスの魅力”
- 〔2〕中川 尚人 “第 16 回光物性研究会論文集 397(2005.12)