

希薄混晶 InGaN での励起子-電子散乱過程による発光

田中浩康^A、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

Photoluminescence due to exciton-electron scattering processes in a lightly-alloyed InGaN thin film

H. Tanaka^A, R. Kitano^A, M. Ando^B, T. Uemura^B, and M. Nakayama^A

Department of Applied Physics, Osaka City University^A

Optoelectronics Technology Division, Toyoda Gosei, Co. Ltd.^B

We have investigated the photoluminescence (PL) properties of a lightly-alloyed $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ thin film under intense excitation conditions in the temperature range from 10 to 300 K. It is found that there are two types of PL band peculiar to intense excitation conditions. In a low temperature region below 80 K, a PL band originating from exciton-exciton scattering, which is called P emission, appears with a low threshold-excitation power. The P emission is now well established in various materials. On the other hand, in a high temperature region above ~ 120 K, another PL band appears under intense excitation conditions. The energy spacing (ΔE) between the PL band and the A exciton linearly increases with an increase in temperature. The value of ΔE is estimated to be zero at 0 K by extrapolation of the temperature dependence. This fact suggests that the PL band in the high temperature region is due to exciton-electron scattering, which is called H emission. Furthermore, we have confirmed the existence of optical gain leading to stimulated emission in the energy region of the H band by using transmission-type pump-probe spectroscopy.

1. はじめに

InGaNをベースとした発光デバイスは高効率であり、その発光機構については、In組成の空間的な揺らぎによって生じる励起子局在の観点から様々な議論がなされている。しかしながら、高密度励起条件下での発光特性については、詳細な研究は限られたものである。これまで我々は、MOVPE法により作製したIn濃度が希薄なInGaN薄膜(In組成:0.02)を試料として、高密度励起条件下での励起子発光特性に関する詳細な実験を行い、10 Kにおいて励起子-励起子散乱発光(P発光)が極めて低閾値(3 kW/cm^2)で生じることを見出した[1]。ここで対象とした試料は、In濃度が希薄であるので、励起子束縛エネルギーをGaNと同じ28 meVであると仮定すると、室温近傍にお

いても、高密度励起条件下での励起子の散乱過程に起因した発光が期待される。

本研究では、希薄混晶 InGaN 薄膜を対象として、高密度励起条件下での発光特性の温度依存性の詳細な測定を行った。その結果、高温領域(120 K~室温)において、励起子-電子散乱過程による発光が生じることを見出した。また、透過型ポンプ・プローブ法により、励起子-電子散乱による発光エネルギー領域において、誘導放出を生じさせる光学利得エネルギーが存在することを明らかにした。

2. 試料と実験方法

本研究では、試料として $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ 基板上に有機金属気相成長(MOVPE)法により作製した $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ (200 nm)薄膜を

用いた。基板との緩衝層として、低温成長 AlN 層の上に GaN 層 (4 μm) を、キャップ層として GaN (20 nm) を成長している。

光学実験において、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、弱励起条件下での発光スペクトルの測定には、励起光源として He-Cd レーザー (325 nm) を、高密度励起条件下での発光スペクトルの測定には、励起光源としてパルス幅 5 ns の窒素レーザー (337 nm) を用いた。さらに、光学利得の測定には、ナノ秒パルス透過型ポンプ・プローブ法を用いた。

3. 実験結果と考察

図 1 は、室温における高密度励起条件下での発光スペクトルの励起光強度依存性 (実線) と、比較のために、吸収スペクトル (破線) と弱励起条件下での発光スペクトル (点線) を示している。また、図中の矢印は、A 励起子エネルギー (E_A) を示している。高密度励起条件下で、 E_A の低エネルギー側に H と標記した発光が閾値特性 (約 100 kW/cm^2) を示して出現し、励起光強度

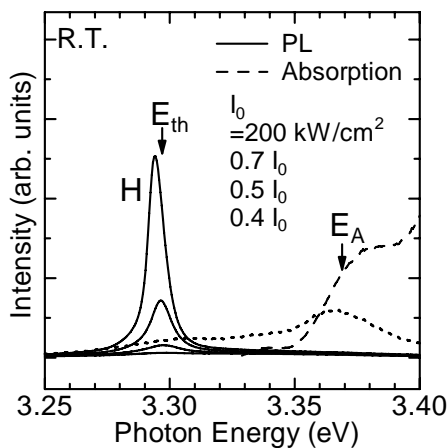


図 1 室温における、高密度励起条件下での発光スペクトルの励起光強度依存性 (実線) と吸収スペクトル (破線) と弱励起条件下での発光スペクトル (点線)。励起光強度閾値 (約 100 kW/cm^2) において H で示した発光が出現する。 E_A は A 励起子エネルギーを、 E_H は閾値近傍での H 発光ピークエネルギーを示している。

の増大と共に低エネルギー側にシフトしている。H 発光の閾値近傍の発光ピークエネルギー (E_H) と E_A のエネルギー差 (ΔE) は 72 meV で、励起子束縛エネルギー (28 meV) よりもはるかに大きなエネルギーシフトである。この結果は、H 発光が、低温領域で観測される励起子-励起子散乱発光によるものではないことを示唆している。

図 2(a) は、10 K から室温における高密度励起条件下での閾値近傍の発光スペクトル (実線) と吸収スペクトル (破線) を示している。図 2(b) は閾値近傍の発光ピークエネルギー (E_{th}) と E_A のエネルギー差 ($\Delta E = E_A - E_{th}$) の温度依存性をプロットしたものを示している。 ΔE は、低温領域 (約 80 K 以下) では励起子束縛エネルギー (28 meV) (横破線) より小さな値を示すが、高温領域

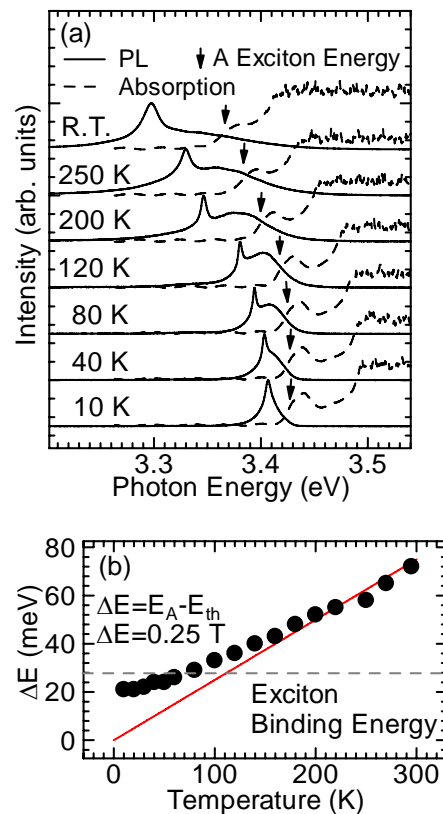


図 2 10 K から室温における (a) 閾値近傍での発光スペクトル (実線) と吸収スペクトル (破線)。矢印は、各温度での A 励起子エネルギー (E_A) を示している。(b) 閾値近傍での発光ピークエネルギー (E_{th}) と E_A のエネルギー差 (ΔE) の温度依存性。

(約 120 K 以上)では 28 meV を超えて、温度 T に対し原点 ($\Delta E=0$, at $T=0$) を通り線形的に変化する [$\Delta E=0.25T$ (meV)]。この高温領域において温度に対して線形にエネルギー変化する発光は、銅ハライド結晶において観測されている励起子-電子散乱の特性と一致している[2]。以上の結果は、高密度励起条件下において、10 K から 80 K の低温領域では励起子-励起子散乱発光が生じ、それ以上の温度では発光メカニズムが変遷し、120 K から室温の高温領域では励起子-電子散乱発光が生じていることを示している。

励起子-電子散乱発光とは、自由励起子と自由電子が非弾性散乱し、自由電子は散乱によって運動エネルギーが増大されてホットエレクトロンとなり、自由励起子がフォトン分枝上に散乱され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、 $n=1$ の励起子エネルギー (E_{ex}) と発光エネルギーの差は次式で与えられる[2]。

$$E_{ex} - \hbar\omega_{peak} = (m_h / 2m_e) k_B T \quad (1)$$

ここで、 m_e は電子の有効質量、 m_h は正孔の有効質量、 k_B はボルツマン定数である。(1) 式から分かるように、励起子-電子散乱発光の重要な特徴は、励起子エネルギーと発光エネルギーの差 (ΔE) が温度 (T) に対して原点を通り線形的に変化することである。励起子と衝突する電子としては、結晶に内在するドナー不純物による電子と光励起された励起子が解離した電子の 2 通りが挙げられるが、高密度励起条件のために、励起子が解離した電子が内在する電子よりも圧倒的に多いと考えられる。また、励起子が熱解離するためにはある程度の高温が必要である。これらの特徴は、上記の高温領域で観測される H 発光の特性を良く説明している。したがって、 $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ 薄膜において、高温領域で励起子-電子散乱

発光が生じていると結論できる。

さらに、図 2(b) の ΔE の T に対する比例関係 [$\Delta E=0.25T$ (meV)] の傾きから、(1) 式を用いて電子と正孔の有効質量の比を見積もることができる。電子の有効質量に $m_e=0.2m_0$ [3] (GaN の電子の有効質量) を仮定すると、正孔の有効質量は $m_h=1.2m_0$ と見積もることができる。GaN における正孔の有効質量は $m_h=1.0m_0$ [4]、 $m_h=1.2m_0$ [5] の報告があり、上記の正孔の有効質量はよく一致している。この結果も $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ 薄膜において励起子-電子散乱発光が生じている証拠の一つであるといえる。

これまで、励起子-電子散乱発光は、銅ハライド[2]や ZnO[6] など励起子束縛エネルギーが GaN より大きい物質では報告されている。また、GaN においても観測されている報告があるが[7]、詳細は明確ではなく、InGaN においては全く報告されていない。本研究が、InGaN 系での励起子-電子散乱発光の初めての明確な結果である。

$\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ 薄膜における励起子-電子散乱発光において、誘導放出を生じさせる光学利得の存在を確認するために、ナノ秒パルス透過型ポンプ・プローブ法を用いて測定を行った。実験では、窒素レーザーから出力されるレーザーパルスを 2 つに分け、一方は、ポンプ光として試料に集光し、もう一方は色素 (BPBD-365: ピーク波長 365 nm) を励起して発光させ、プローブ光として用いた。

図 3(a) は、室温で測定した異なるポンプ光強度での透過スペクトルを示している。 E_A は A 励起子エネルギー、 E_H は閾値近傍での H 発光エネルギーを示している。 E_A 近傍では、励起子のクーロン遮蔽効果による高エネルギーシフトが観測されている。 E_H 近傍に着目すると、ポンプ光強度の増大に伴う透過率の増大、即ち、光増幅が観測されている。このポンプ・プローブ分光実験が

ら得られた透過スペクトル変化から、光学利得スペクトルが計算できる。図 3(b)に、光学利得スペクトルのポンプ光強度依存性を示している。図 3(c)は光学利得スペクトルにおけるポンプ光強度に対応した発光スペクトルを示している。図 3(b)と(c)の比較から、

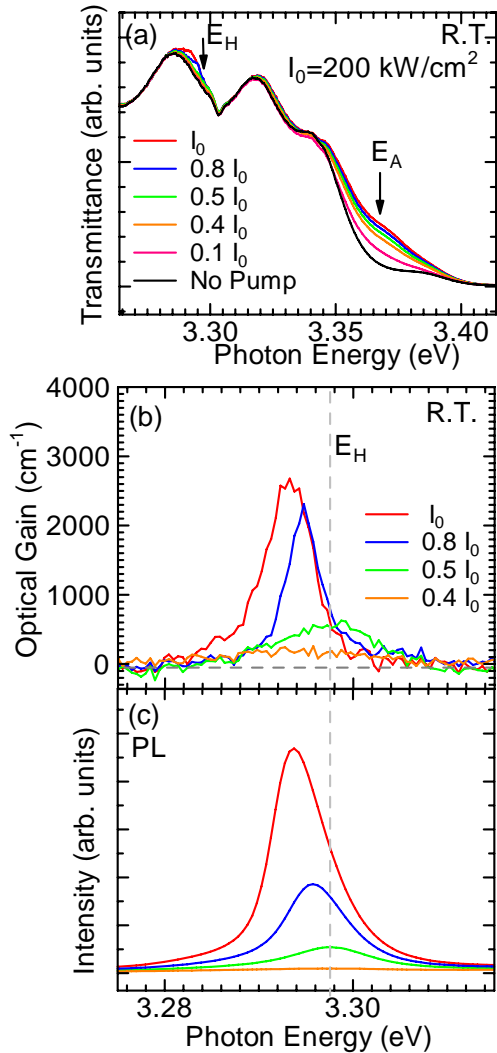


図 3 室温における透過型ポンプ・プローブ法による光学利得の測定。(a)異なるポンプ光強度 ($I_0=200 \text{ kW/cm}^2$)での透過スペクトル。No Pump は励起しない状態のプローブ光のみの透過スペクトルを意味している。 E_A はA励起子エネルギー、 E_H は閾値近傍でのH発光エネルギーを示している。(b)H発光における光学利得スペクトルのポンプ光強度依存性。(c)は(b)の光学利得スペクトルにおけるポンプ光強度に対応した発光スペクトル。

E_H 近傍で光学利得が出現し、ポンプ光強

度の増大とともに、その値が大きくなっていることが分かる。ポンプ光強度 200 kW/cm^2 で、最大約 2500 cm^{-1} の大きな光学利得が存在している。以上の結果は、 $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ 薄膜において、励起子-電子散乱過程を利用して、誘導放出(レーザー発振)が可能であることを示している。

4. まとめ

本研究では、希薄混晶 $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ 薄膜を対象として、高密度励起条件下での発光特性の温度依存性の詳細な測定を行った。その結果、温度に依存して、2種類の高密度励起条件特有の発光が生じることが明らかとなった。具体的には、低温領域(80 K以下)では、従来から良く知られている励起子-励起子散乱発光が観測され、高温領域(120 K~室温)において、励起子-電子散乱過程による発光が生じることを見出した。また、透過型ポンプ・プローブ法を用いた実験から、励起子-電子散乱過程による光学利得が生じることを明らかにした。

参考文献

- [1] M. Nakayama, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **87**, 092106 (2005)
- [2] Chong In Yu, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **34**, 693 (1973)
- [3] M. Drechsler, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., part2 **34**, L1178 (1995)
- [4] M. Steube, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **71**, 948 (1997)
- [5] I. Vurgaftman, *et al.*, J. Appl. Phys. **94**, 3675 (2003)
- [6] C. Klingshirn, phys. stat. sol. (b) **71**, 547 (1975)
- [7] K. Kazlauskas, *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 245316 (2004)