

GaNのイエローミネッセンスの温度変化

早瀬 亮、中田 博保

大阪教育大学教育学部教養学科

Temperature dependence of yellow luminescence in undoped GaN

R.Hayase and H.Nakata

Department of Arts and Science, Faculty of Education, Osaka Kyoiku University

We measured photoluminescence (PL) in undoped GaN epitaxial layers at 4~300K by a He-Cd laser. Yellow luminescence(YL) and blue luminescence(BL) were observed around 2.2eV and 3.0eV, respectively. PL intensity of YL decreases with increasing temperature, and drops suddenly near 150K. The phenomenon was not observed when the temperature decreased. Hence, we consider that DX center affected the phenomenon. We propose a new transition model of three bodies including DX center.

1. はじめに

GaNは、1960年代からバンドギャップの測定が行われ、その当時からノンドープのGaNで2.2eVをピークとする黄色の発光、イエローミネッセンス(YL)が測定されてきた。この起源については不純物か欠陥が関与していると考えられ、当時から議論されているが、未だ決着はついていない。

OginoとAokiは浅いドナーと深いアクセプターの準位間の遷移が原因だとしている。[1]また、Glaser達は深いドナーと浅いアクセプターの遷移モデルを提唱しており[2]、Hoffmann等は浅いドナーと深いドナーの間の遷移だとしている。[3] Sedhain等は、1.23eV付近の発光起源がYLと関連があるとし、その起源が V_{Ga} と O_N の複合体によるものとしている。[4]

また、ノンドープのGaNのYLに関連する多くの不純物準位や欠陥が報告されている。例えば、Macht等は点欠陥の形で試料に幅広く分布したものによるとしている。[5] O_N

[6]や、Mgが関連した異なる2つのアクセプター準位[7]なども報告されている。

またYLと同様にノンドープのGaNで青色の発光(BL)が観測されている。Reshchikov等は、有機金属気相成長法(MOCVD法)で作成された試料で、3.0eV付近にピークがあるBLについて報告している。それによると、温度の上昇によってBLの強度が減少し、それに伴って同時に存在するYLの強度が増大する。[8]

本研究では、ノンドープGaNを対象とし、YLの温度依存性の測定を行った。その結果、150K付近で異常なふるまいを見出した。この結果から、YLの発光起源のモデルをDXセンターを交え提唱する。

2. 試料と実験方法

本実験で用いた試料、NTU-10は、サファイア基板上にAlNを700°Cで15nm、GaNを1000°Cで約1 μ m、MOCVD法で成長させた薄膜である。また、試料MS265-1もMOCVD

法で成長させた薄膜である。

これらの試料でのPLの分光測定には、励起光源としてHe-Cdレーザー(325nm、20mW)を用いた。検出器には光電子増倍管(浜松ホトニクス R980)を使い、ロックインアンプで処理した。また、ヘリウム冷凍機で冷却を行い、PLの温度変化も測定した。

励起強度依存性の測定では、フィルターで励起光をカットし100%から順に測定した。

3.実験結果

図1は、4KでのHe-Cd励起による、発光スペクトルを示す。試料NTU-10では、2.25eVにピークを持つYLの他にバンド端、DA発光も見られる。また、DA発光ではわずかにLOフォノンが介在したピークも見られ、これは文献値とほぼ一致する。試料MS265-1では、同様にYL、バンド端の発光が見られる。NTU-10と大きく異なるのは、3.0eVにピークを持つBLが観測されることである。

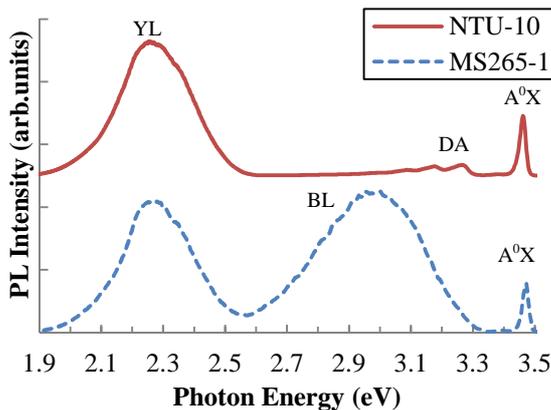


図1 4Kでの発光スペクトル

図2では、MS265-1の温度変化を示す。この実験で温度は4Kから徐々に上げながら測定した。この結果では、Reshchikov等が報告しているBLの発光強度の減少に伴う

YLの増大は観測されなかった。図3ではYLに見られた急激な発光強度の変化は見られず、100K付近で発光自体も見られなくなった。

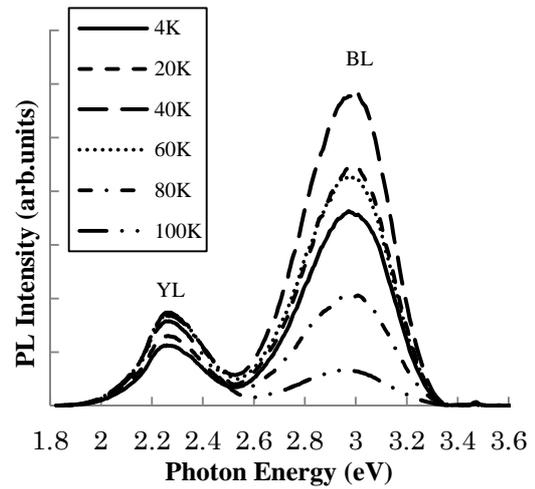


図2 MS265-1の発光スペクトル

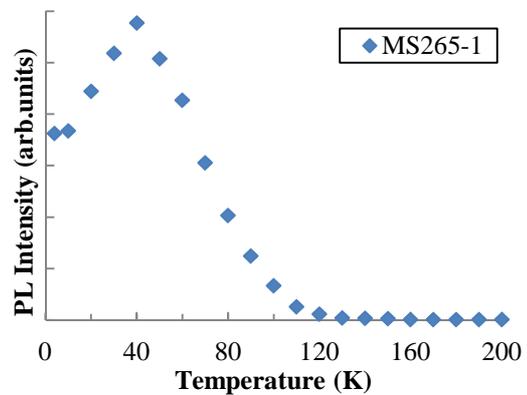


図3 BLの温度変化

図4はYLの温度変化を示す。測定は4Kまで温度を下げた後、徐々に温度を上げながら測定を行った。すると、150K付近で急激な発光強度の増加が見られ、その後急激な減少が観測された。

図5では、図4に示す実験とは異なり、300Kから徐々に温度を下げながら測定を行った。すると、図4で見られた急激な発光

強度の変化は見られないというヒステリシスが観測された。

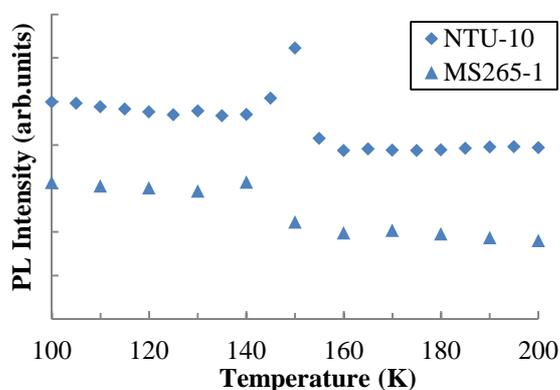


図4 YLの温度変化

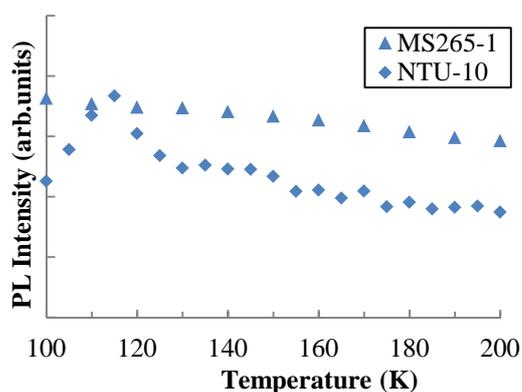


図5 YLの温度変化

図6は、試料NTU-10のバンド端の発光スペクトルを示す。バンド端の発光は、温度を上げ80Kになると4Kの発光強度の4分の1程度になるが、3.27eVのピークは温度による発光強度の大きな変化は観測されなかった。また、4Kにバンド端の発光はにおいて3.466eVのピークであり、これは浅いアクセプター束縛励起子 A^0X の発光と考えられ、文献値とも一致する。[5]また、温度変化とともにピークシフトが観測され、80Kではピークが3.460eVになり、より束縛エネルギーの高いもう一つのアクセプター準位へ遷移した

と考えられる。また、DA発光では、温度変化による発光強度の大きな減少は観測されなかった。

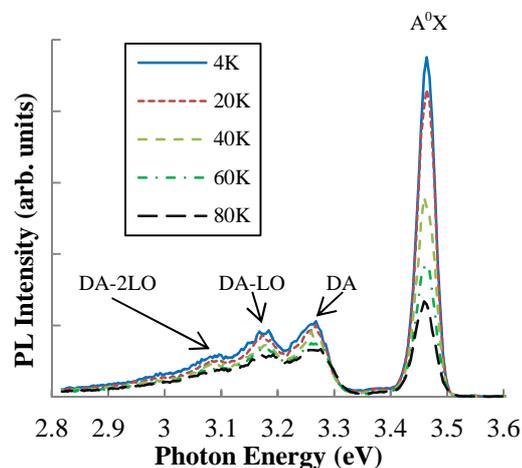


図6 バンド端付近の発光スペクトル(NTU-10)

図7は試料MS265-1における励起強度依存性を示す。YLでは、ピークシフトが見られなかった。これまで、GaNのYLの起源で有力とされてきた起源はDA発光であるが、DA発光の場合、励起強度が低下するのに伴って、ピークも低エネルギー側へシフトすると考えられる。

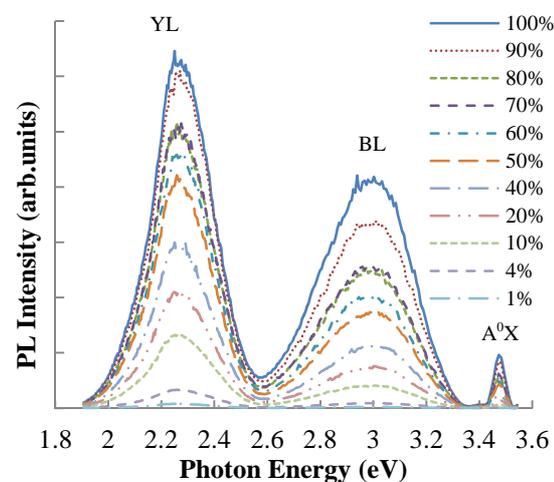


図7 4KでのMS265-1の励起強度依存性

以上の結果から、YLの発光起源としてこれまで有力とされていたDA発光ではないと思われる。そこで我々はDA発光に代わるモデルを提唱する。

図4で温度上昇の測定で観測された急激な発光強度の変化が、温度下降時に図5のように観測されず、ヒステリシスが観測された。ヒステリシスは、DXセンターが存在すると観測されるので、DXセンターを交えたモデルを考える。

図8のように、DXセンターを含む3体での発光モデルを考える。DXセンターと2つのイオン化したドナーを考える。ここにレーザーによって浅いドナー(d^+)に電子が励起され中性ドナー(d^0)になる。次に電子が深いドナー(D^+)へと遷移することによってYLが観測される。この際、DXセンターは負に帯電しているため、励起された電子との間に斥力を生み、再結合が起こりやすくなるのではないかと考える。よって、150K付近で見られた急激な発光強度の低下は、DXセンターが消滅したために起こったと考えられる。また、発光強度の低下前に見られる、急激な発光強度の増加は、DXセンターが消滅する際に、捕獲されていた電子が放出され、それによって一時的に発光強度が強くなると考えた。

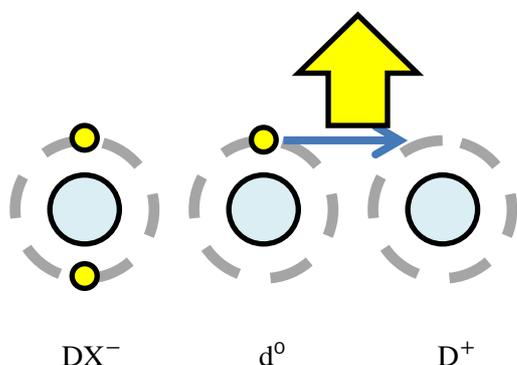


図8 DXセンターを交えた発光モデル

4.まとめ

本研究では、意図的にはドーピングしていないGaNに対し、He-Cdを用いPLを測定した。すると、150K付近で急激な発光強度の増加の後に減少するという結果が得られた。

また、ヒステリシスも観測されたことから、発光起源にDXセンターの関与を考え、DXセンターを含めた3体での発光モデルを提唱した。

参考文献

- [1] T.Ogino and M.Aoki, Jpn.J. Appl. Phys. 19 2359 (1980).
- [2] E. R.Glaser *et al.* Phys.Rev.B 51 13326(1995).
- [3] D.M. Hofmann *et al.* Phys.Rev. B52 16702 (1995).
- [4] A.Sedhain *et al.* Appl.Phys.Lett 96, 151902 (2010).
- [5] L.Macht, J.L.Weyer, A. Grzegorezyk and P.K. Larsen, Phys. Rev. B 71 073309 (2005).
- [6] M.Toth, K.Fleischer, and M.R.Phillips Phys. Rev. B 59, 1575 (1999).
- [7] B.Monemar *et al.* Phys. Rev. Lett. 102, 235501 (2009).
- [8] M.A.Reshchikov, Y.T.Moon and H.Morko Phys.Stat. Sol. (c) 2 2716 (2005).