

InGaN SQW 青色 LED の再結合発光における ホットエレクトロン効果

工藤広光¹・藤本正克²・山田陽一³・田口常正³・中村修二⁴・四宮源市⁴

¹大学院電気電子工学専攻・²山口県工業技術センター・³電気電子工学科・⁴日亜化学工業

パルス電流印加時における InGaN 単一量子井戸構造青色 LED の電流注入スペクトルを 77K において測定した。200mA 以下の低電流パルス印加時に発光ピークは見かけ上、高エネルギー側にシフトした。この結果をバンドフィリングモデルに基づいて検討した。一方、200mA 以上の高電流パルス印加時に発光スペクトルの高エネルギー側に特異な現象が観測され、ホットエレクトロンが寄与していることが示唆された。マクスウェル・ボルツマン分布関数を用いて電子温度に関する理論的な解析を行った。

Key Words : *electro luminescence, SQW, InGaN, hot electron, blue shift*

1. 序言

電球に置き換わる発光ダイオード (LED) の開発が実現したのは 1980 年代前半、AlGaAs を使用したカンデラクラスの高光度赤色 LED が開発されたことによる。LED は発光スペクトルの半値幅が狭くシャープな発光を呈し、長寿命、低消費電力を売り物にして電球の砦を凌駕しつつある。また、可視 LED の多様化と高輝度化の進歩により各種表示ランプ、数字表示装置などに幅広く応用されている。一方、光通信やフォトコプラ用光源としての赤外 LED が GaAs、(Al, Ga) As 系材料により開発実用化され、オプトエレクトロニクスの中で重要な役割を果たしている。光の三原色の中で、赤色はすでに完成の域に達し、緑色 LED も GaP により実用化されたが青色に関しては、20 年前の赤色 LED と同程度の明るさでしかなくこれまでの研究課題であった。そこで、赤色から紫外発光素子の材料の候補の一つとして III-V 族窒化物系化合物半導体 (In, Ga, Al) N が注目された¹⁾。これら窒化物系材料の特徴として高硬度、高融点、高熱伝導度などが上げられ、かつエネルギーバンド構造として直接遷移型を有し、室温でのバンドギャップエネルギーはこれらの混晶を用いれば、1.95eV から 6.0eV まで変えることが可能である。しかし、窒化ガリウム系半導体はエピタキシャル成長用の適当な基板がないという致命的な欠点があった。最近になって、分子線エピタキシー法 (MBE 法)、有機金属化学気相成長法 (MOCVD 法) などによって、

サファイア基板上に低温で AlN あるいは GaN バッファ層を成長後、その上に高温で GaN エピタキシャル膜を成長すると GaN 膜の結晶性、表面モフォロジーが飛躍的に向上することが報告された^{2,3)}。そして、1994 年、InGaN/AlGaIn 構造の 1cd 以上の光度を有する高光度青色 LED が日亜化学工業によって初めて開発製品化された^{4,5,6)}。また、1995 年には高光度 InGaN 単一量子井戸構造 (SQW) 青、緑色 LED も開発製品化された⁷⁾。これら高光度青色 LED の実現により、白色光源、フルカラーディスプレイが実現可能となり、半導体産業は新しい局面をむかえた。なお、InGaN SQW 青色 LED の発光機構には不明な点が数多くあり、高電流注入時における特性評価⁸⁾はまだ報告されていない。

本報告では、パルス電流注入時における InGaN SQW 青色 LED の EL スペクトルを測定し、200mA 以下の低電流パルス注入時に見られるブルーシフト及び、200mA 以上の高電流パルス注入時に観測されたホットエレクトロン効果の解析を行った。

2. 実験

今回使用した LED は、日亜化学工業製 InGaN SQW 青色 LED である。以下に、EL (Electro Luminescence) 測定の概略を述べる。液体窒素温度 (77K) に保った InGaN SQW 青色 LED にパルスジェネレータ (HP 8114A 100V/2A) を用いてパルス電流 (周波数: 10Hz、

パルス幅：100nsec) を注入し、LED からの光を分光器に集光し CCD 検出器により測定した。

3. 実験結果と考察

図 1 に InGa_N SQW 青色 LED の内部構造⁹⁾を示す。InGa_N SQW LED は厚さ 30 Å の活性層を厚さ 4 μm の n 形 Ga_N 及び、厚さ 1000 Å の p 形 AlGa_N でサンドイッチした単一量子井戸構造となっており、活性層における In の組成比を変えることで青色から緑色¹⁰⁾までの発光が可能となっている。

次に、液体窒素温度 (77K) で行ったパルス電流注入時における EL スペクトルを図 2 に示す。式(1)を用いて InGa_N SQW 青色 LED のバンドギャップエネルギーを求めたところ、2.95eV という結果を得た。

$$E_g(X) = XE_{g\text{InN}} + (1-X)E_{g\text{GaN}} - bX(1-X) \quad (1)$$

ここで $E_g(X)$ は InGa_N のバンドギャップエネルギー、 $E_{g\text{InN}}$ 、 $E_{g\text{GaN}}$ は InN と GaN のバンドギャップエネルギー、 X は組成比、 b はボウイングパラメータで値として 1.0eV を用いている。なお、InGa_N SQW 青色 LED の組成比 X は 0.2 である。

パルス電流注入時における EL 測定から、高電流パルス 1800mA (周波数：10Hz、パルス幅：100nsec) 注入時における発光スペクトルのピークエネルギーは 2.69eV、半値幅は 116meV (20nm) であった。従って、式(1)より得られた InGa_N SQW 青色 LED のバンドギャップエネルギーが 2.95eV であることからこの発光は 260meV と非常に深い準位に局在していると考えられる。この深い準位への局在化は In の組成比の揺らぎによる構造的不均一拡がり起因していると思われる。また、高電流パルス 1800mA 注入時において 2.85eV (435nm) 付近に新しい発光が観測された。この発光は、Ga_N バッファ層に成長させた Ga_N の p-n 接合青色 LED が同じく 2.85eV 付近に発光ピークを有し、発光強度がホール濃度に依存すると報告¹¹⁾されていることから、高電流パルス注入によって、InGa_N 活性層からキャリアが溢れ出しているものと考えられる。これは、室温及び、77K において定電流 (~120mA) 注入時に 2.85eV 付近からの発光が観測されないことから説明できる。

続いて、低電流パルス 200mA 以下の領域において観測された発光スペクトルのブルーシフトの解析を行った。図 3 に InGa_N SQW 青色 LED におけるピークエネルギーのパルス電流依存性を示す。実験は全て液体窒素温度 (77K) で行い、測定周波数は 10Hz、パルス幅は 100nsec とした。図 3 を見ると分かるよ

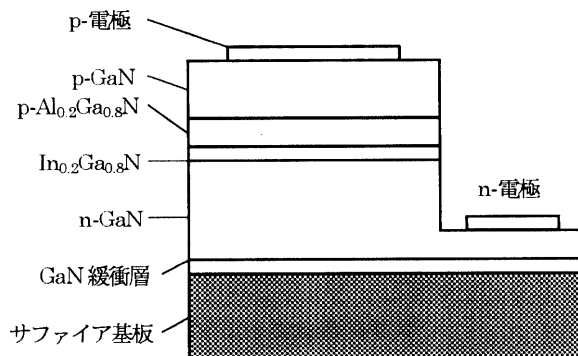


図 1. InGa_N SQW 青色 LED の内部構造

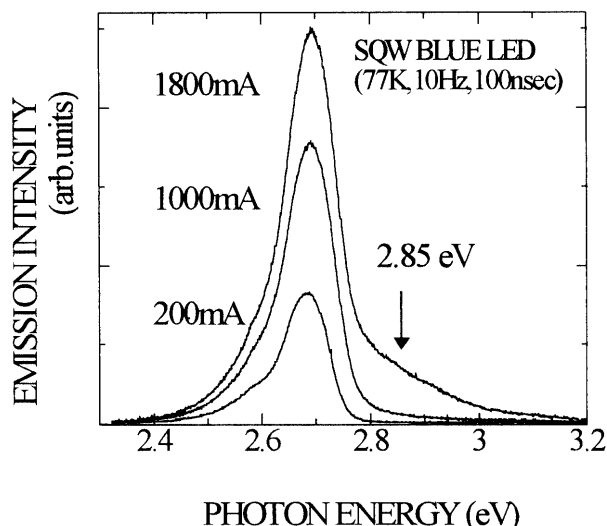


図 2. パルス電流注入時における EL スペクトル (77K)

うに、電流パルスが 130mA から 200mA に増加するに伴いピークエネルギーが 2.668eV から 2.687eV と約 19meV (約 3.3nm) 高エネルギー側へシフトした。しかし、電流パルス 200mA 以上の領域では発光スペクトルのピーク位置に変化は見られなかった。

次に、InGa_N SQW 青色 LED に対するピーク強度のパルス電流依存性を図 4 に示した。図 4 において横軸がパルス電流、縦軸が発光スペクトルのピーク強度であり、それぞれ指数表示している。図 4 を見ると、InGa_N SQW 青色 LED の発光強度は注入電流パル

スが 200mA まで増加するに伴い、急激に増加し、200mA 以上の領域では発光強度の飽和が観測された。

次に、図 5 に半値幅 (F. W. H. M. : full width at half maximum) のパルス電流依存性を示す。図 5 を見ると明らかなように、電流パルス 200mA 付近で半値幅の飽和が観測された。また、200mA 以上の高電流パルス領域において半値幅が緩やかに増加しているが、これは後に述べるホットエレクトロン効果により発光スペクトルの高エネルギー側へのブロードニングが生じているためと考えられる。

以上、図 3、図 4、図 5 に示した解析結果を検討すると、電流パルス 200mA 注入時においてブルーシフトが飽和し、ピーク強度も飽和、そして半値幅も飽和したことから InGaN 活性層内においてバンドフリッピングが生じていると同定された。

続いて、200mA 以上の高電流パルス印加時にホットエレクトロン効果を観測したので、その解析結果について報告する。ホットエレクトロン効果とは高電界印加により加速された電子が様々な散乱過程からホットになる現象のことである。また、ホットエレクトロンの谷間遷移による負性抵抗を利用したガン効果素子、ホットエレクトロンによる衝突電離と飽和速度による走行を利用した IMPATT ダイオードなどはホットエレクトロン効果を直接応用した典型的な例である。これまでキャリアの分布関数や活性層におけるキャリアの加熱効果が放射再結合に及ぼす影響についてはあまり報告されていない。しかし、MBE 法や MOCVD 法などを用いた薄膜成長技術が発展した昨今、高電界印加により生じたホットエレクトロンが活性層に与える影響を無視するのは困難と思われる。

本研究で使用した InGaN SQW 青色 LED の p-n 接合領域では n 形 GaN 層 (4 μ m) が InGaN 層 (30 Å) 及び、p 形 AlGaIn 層 (1000 Å) に比べて、非常に厚いため電界のほとんどは n 形 GaN 層にかかると考えられ、高電界印加により n 形 GaN 層で生成されたホットエレクトロンが活性層中に注入されることになる。また、EL 測定と同時に行った (電流-電圧) 特性から p-n 接合部分に加わる電界強度を求めると、電流パルス 200mA 注入時における電界強度が約 10kV/cm、電流パルス 1800mA 注入時における電界強度が約 80kV/cm と非常に高電界になっていることが分かった。従って、高電界印加によるホットエレクトロンの影響が十分に考えられる。次に、ホットエレクトロン効果を理論的に解析するため式 (2) に示したマクスウェル・ボルツマン分布関数を用いた EL スペクトルのフィッティングを行った。

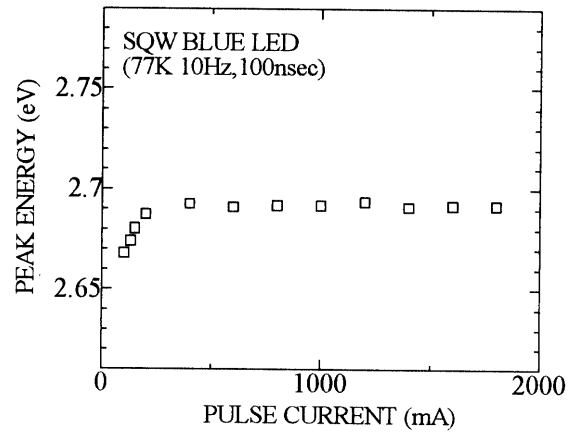


図 3. ピークエネルギーのパルス電流依存性

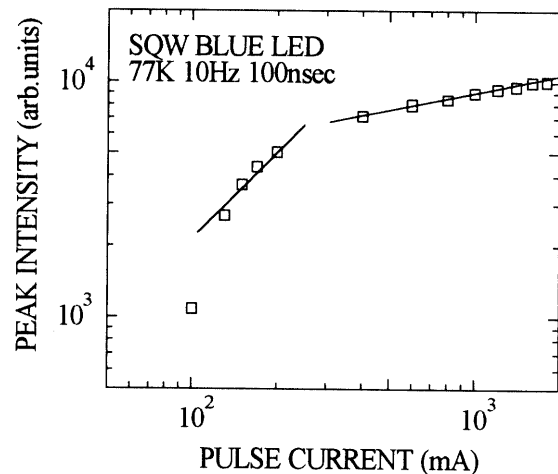


図 4. ピーク強度のパルス電流依存性

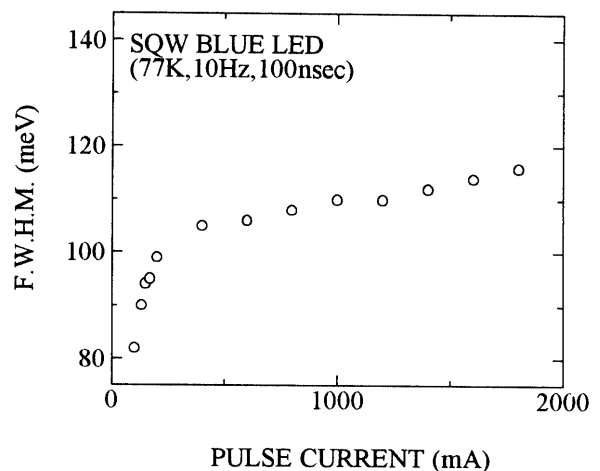


図 5. 半値幅のパルス電流依存性

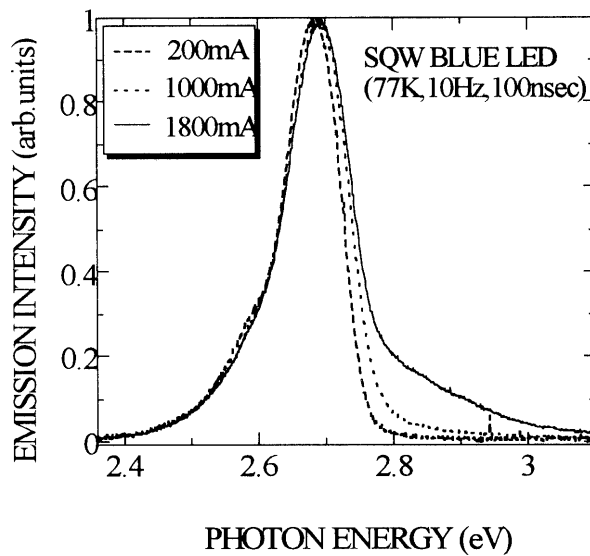


図 6. 規格化したパルス電流注入時における EL スペクトル (77K)

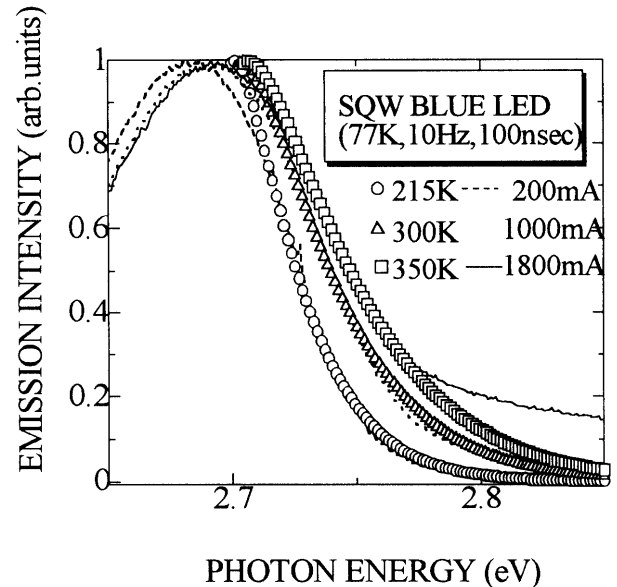


図 7. マクスウェル・ボルツマン分布関数によるフィッティング

$$I \propto (E - E_g)^{1/2} \exp\{-(E - E_g)/kT_e\} \quad (2)$$

(T_e : フィッティングパラメータ)

発光スペクトルは電子のエネルギー状態を反映しており、式 (2) において電子温度をフィッティングパラメータとしているので、この式を用いたフィッティングによって電子温度の推移を見ることができる。図 6 に規格化したパルス電流注入時における EL スペクトルを示す。この図を見ると、電流パルスが 200mA から 1800mA まで増加するに伴い、発光スペクトルが高エネルギー側へブロードニングするのが観測された。これは、ホットエレクトロン効果特有の現象で電界強度の上昇に伴い電子がホットになっていく様子を端的に示しものである。

次に、規格化した EL スペクトルの高エネルギー側を拡大し、式 (2) に示したマクスウェル・ボルツマン分布関数を用いてフィッティングした結果を図 7 に示す。図 7 より破線で示した電流パルス 200mA 注入時における EL スペクトルは電子温度 $T_e=215K$ でフィッティングすることができた。また、点線で示した電流パルス 1000mA 注入時における EL スペクトルは電子温度 $T_e=300K$ 、実線で示した電流パルス 1800mA 注入時における EL スペクトルは電子温度 $T_e=350K$ でそれぞれフィッティングできた。なお、電流パルス 1800mA 注入時における EL スペクトルは 2.85eV 付近の発光によりスペクトルの裾がう

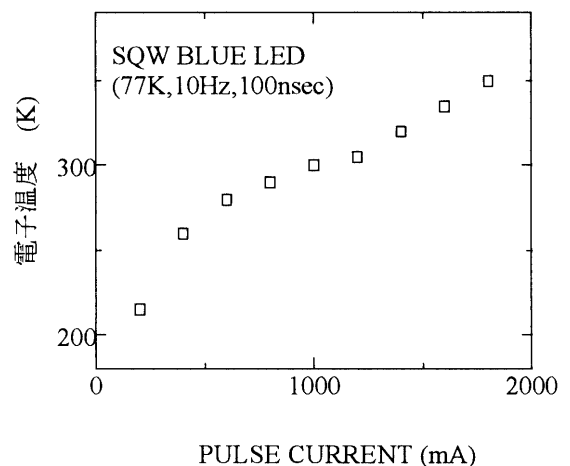


図 8. フィッティングにより得られた電子温度の電流依存性

まくフィッティングできなかつた。

以上、電流パルス 200mA から 1800mA 注入時における EL スペクトルをマクスウェル・ボルツマン分布関数を用いてフィッティングした結果得られた電子温度の電流依存性を図 8 に示す。図 8 より、電流パルスが 200mA から 1800mA (電界強度が約 10kV/cm から約 80kV/cm) まで増加するに伴い、電子温度 T_e が 215K から 350K とホットになっていく様

子が理論的に導かれた。

4. 結論

本研究では、市販の InGaN SQW 青色 LED を用いて高電流注入により得られた EL スペクトルの解析を行った。その結果、電流パルス 200mA 以下の領域でブルーシフトを観測し、電流パルス 200mA 注入時にブルーシフトが飽和し、発光強度が飽和、そして、半値幅も飽和したことから InGaN 活性層内において band filling が生じていると同定された。また、高電流パルス 1800mA 注入時に 2.85eV 付近から p 形または n 形 GaN 層からと思われる発光が観測された。

次に、電流パルス 200mA 以上の領域でホットエレクトロン効果を見出し、マクスウェル・ボルツマン分布関数を用いたフィッティングにより電流パルスが 200mA から 1800mA (電界強度は約 15kV/cm から 80kV/cm) まで増加するに伴い、液体窒素温度 (77K) での測定にもかかわらず電子温度 T_e が 215K から 350K とホットになっていく過程が理論的に求められた。

参考文献

- 1) S. Nakamura et al., Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 32, 8 (1993).
- 2) S. Nakamura et al., Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 31, 1258 (1992).
- 3) S. Nakamura et al., NIKKEI ELECTRONICS 1994. 2. 28 (no. 602).
- 4) S. Nakamura et al., Appl. Phys. Lett. 64, 1687 (1994).
- 5) H. C. Casey, Jr. et al., Appl. Phys. Lett. 68, 2867 (1996).
- 6) Piotr Perlin et al., Appl. Phys. Lett. 69, 1680 (1996).
- 7) S. Nakamura et al., Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 34, 797 (1995).
- 8) 工藤広光 他: 1997 年春季応用物理学会 講演番号 28a-D-8.
- 9) S. Nakamura et al., 応用物理 第 65 巻 第 7 号 (1996).
- 10) 藤本正克 他: 1997 年春季応用物理学会 講演番号 31p-K-2.
- 11) S. Nakamura et al., Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 30, 1998 (1991).

(1997. 4. 15 受理)

EFFECT OF HOT ELECTRONS ON RECOMBINATION RADIATION IN InGaN SQW BLUE LEDS

Hiromitsu KUDOU, Masakatsu FUJIMOTO, Yoichi YAMADA, Tsunemasa TAGUCHI,
Shuji NAKAMURA, and Gen-ichi SINOMIYA

The blue electroluminescence spectra of an InGaN SQW LED under forward-bias pulse currents were measured at 77K. The blue shift of the emission band occurred at low pulse currents below 200mA, while a shift towards higher energy could not observe above a forward current of 200mA. The effect of hot electrons on recombination radiation spectra was observed and was analyzed using the Maxwell-Boltzmann distribution function to estimate a temperature of injected carriers.