

InGaN 系量子井戸 LED 構造の 選択励起下における発光効率

黒本径資 (電気電子工学専攻) 角川健一 (電気電子工学専攻)
山田陽一 (電気電子工学科) 田口常正 (電気電子工学科)
只友一行 (電気電子工学科) 工藤広光 (三菱電線工業)
岡川広明 (三菱電線工業)

Luminescence efficiency of InGaN-based quantum-well LEDs under selective excitation

Michiyoshi KUROMOTO	(Department of Electrical and Electronic Engineering)
Kenichi KADOKAWA	(Department of Electrical and Electronic Engineering)
Yoichi YAMADA	(Department of Electrical and Electronic Engineering)
Tsunemasa TAGUCHI	(Department of Electrical and Electronic Engineering)
Kazuyuki TADATOMO	(Department of Electrical and Electronic Engineering)
Hiromitsu KUDO	(Mitsubishi Cable Industries)
Hiroaki OKAGAWA	(Mitsubishi Cable Industries)

Luminescence efficiency of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -based light-emitting diodes (LEDs) has been studied by means of excitation-power-density- and temperature-dependent photoluminescence spectroscopy. The internal quantum efficiency (IQE) of LEDs was evaluated at various excitation photon energies using a wavelength-tunable dye laser system. The IQE obtained under selective excitation of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ active layers was approximately 1.5 times as high as that obtained under band-to-band excitation of GaN and AlGaIn cladding layers.

Key Words: $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -based LEDs, LEPS, photoluminescence, selective excitation, luminescence efficiency.

1. はじめに

近年、窒化物系半導体デバイスの高効率化、及び高出力化が急速に進み、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 系紫色 LED の外部量子効率は 40 % を越えるまでに至っている。外部量子効率の更なる向上を目指すためにはその主な構成因子である内部量子効率と光の取り出し効率の双方の向上が必要不可欠であり、そのためには各々の効率を個別評価する必要がある^{1,2)}。

これまでに我々は励起光源として Xe-Cl エキシマレーザ(発振波長 308 nm, パルス幅 2.5 ns, 繰り返し周波数 100 Hz)を用いてフォトルミネッセンス(photoluminescence: PL)スペクトルの励

起パワー密度依存性の測定を行うことにより、InGaN 系量子井戸 LED 構造と InGaIn 混晶薄膜の内部量子効率を定量的に評価してきた。その結果として、加工基板上に横方向成長 (Lateral Epitaxy on a Patterned Substrates: LEPS) させて作製した InGaN 系量子井戸 LED 構造の内部量子効率は、発光ピーク波長 380 nm の試料では 35 %、発光ピーク波長 405 nm の試料では 64 % に達することを実験的に導出した。また報告値である電流注入下で測定された外部量子効率はそれぞれ 24 %、43 % であった。内部量子効率の値と比較して光の取り出し効率がどちらも約 70 % という結果が得

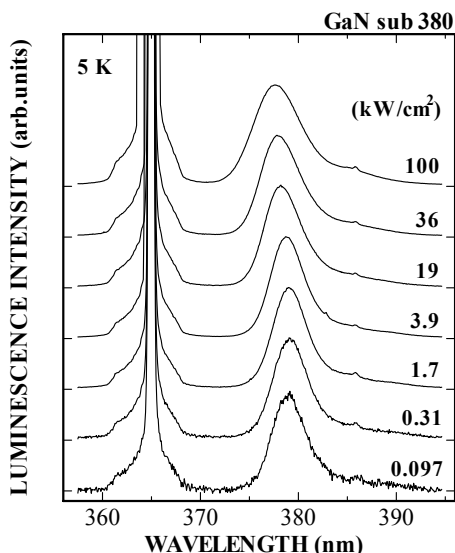


Figure 1. PL spectra at 5 K taken from a GaNsub380 sample under excitation-power densities of 0.097, 0.31, 1.7, 3.9, 19, 36, and 100 kw/cm².

られた。このような結果から我々は内部量子効率の定量的評価の妥当性を裏付けてきた。

本研究では、発光ピーク波長・成長基板の異なる3種類のInGaN系量子井戸LED構造について活性層を選択的に励起する条件下で内部量子効率を定量的に評価した結果について報告する。

2. 実験

測定には有機金属気相成長法 (Metal Organic Vapor Phased Epitaxy : MOVPE) により作製されたInGaN系量子井戸LED構造を用いた。LEPS技術を用いて作製されたInGaN系量子井戸LED構造 (発光ピーク波長 : 380 nm, 405 nm)³⁾、およびGaN基板上に成長されたInGaN系量子井戸LED構造 (発光ピーク波長 : 380 nm) である。今後これらの試料をそれぞれLEPS380, LEPS405, GaNsub380と表す。

LED構造のクラッド層におけるバンド間励起下でのPL測定にはXe-Clエキシマレーザー(発振波長 308 nm, パルス幅 2.5 ns, 繰り返し周波数 100 Hz)(Xe-Cl laser)を用い、活性層を選択的に励起する条件下でのPL測定にはXe-Cl laser励起の波長可変色素レーザー(Dye laser)を用いた。量子井戸LED構造の活性層を選択的に励起するための励起波長は365 nmとした。PL信号の検出には、50 cm単一回折格子分光器(刻線数 600 g/mm)および液体窒素冷却のCCDカメラを用いた。測定系の

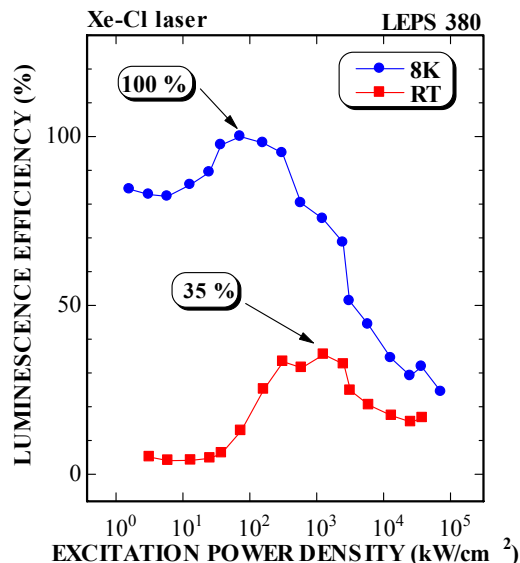


Figure 2. Luminescence efficiency at 8 K and RT (circles and squares, respectively) taken from a LEPS380 sample under band-to-band excitation of an AlGaIn cladding layer.

スペクトル分解能は0.304 nm以下である。

3. 結果と考察

図1にGaNsub380における5KでのPLスペクトルの励起パワー密度依存性を示す。励起パワー密度の増大に伴い、発光強度が増大し、発光半値全幅も増大することが分かる。また発光ピーク位置に関しては励起パワー密度の増大に伴って低エネルギー側にシフト(ブルーシフト)している。このブルーシフトはIn_xGa_{1-x}N混晶におけるバンドフィリング効果が考えられる。In組成比が大きくなるとIn組成揺らぎの影響が大きくなり、不均一広がりが増大する。このような場合、状態密度の低エネルギー側に裾準位を形成し、励起パワー密度を増大させると、生成されたキャリアによりその裾準位は容易に状態密度が飽和してしまう。そのため発光ピーク位置がブルーシフトすると考えられる⁴⁾。

InGaN系量子井戸LED構造において、それぞれの励起パワー密度における発光効率を、次式を用いて導出した。

$$\eta_{eff} = \frac{I_{integ}}{I_{ex}} \quad (1)$$

発光効率の定義として積分発光強度 I_{integ} を励起パワー密度 I_{ex} で除することにより、単位パワー密度当たりの発光強度、すなわち発光効率 η_{eff}

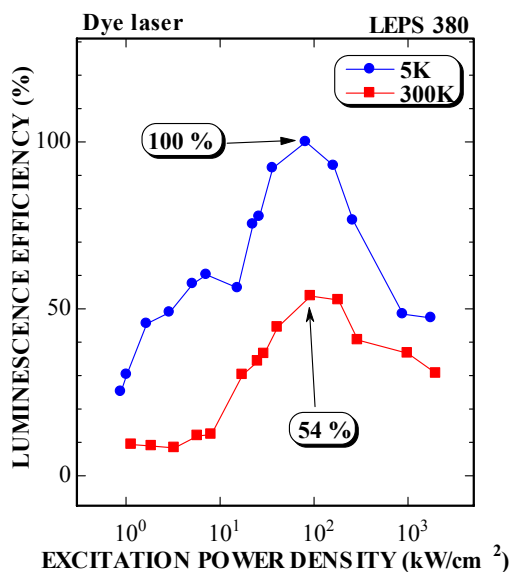


Figure 3. Luminescence efficiency at 5 K and RT (circles and squares, respectively) taken from a LEPS380 sample under selective excitation of InGaN active layers.

を見積もっている。図 2 に LEPS380 におけるクラッド層のバンド間励起下での発光効率の励起パワー密度依存性を示す。図 2 において低温における発光効率のピークを 100 % と仮定した時の室温での発光効率の割合を内部量子効率と定めた。よって図 2 において室温における内部量子効率の最大値は 35 % と見積もることができる。ここで低温、室温における発光効率のピーク位置について考察する。発光効率のピーク位置は室温より低温の方がより弱励起側に位置している。これは低温の方が非輻射再結合中心に遷移するキャリアが抑制されているためであると考えられる。

図 3 に LEPS380 において活性層を選択的に励起した条件下での発光効率の励起パワー密度依存性を示す。低温、室温ともに発光効率は励起パワー密度の増大と共に増加し、ある励起パワー密度で発光効率のピークを迎え、さらに励起パワー密度を増加すると逆に発光効率は減少する。発光効率がこのような挙動を示す理由としては以下のことが考えられる。まず励起パワー密度の増大に伴い、生成されたキャリアが非輻射再結合中心に捕獲され、それに伴い発光効率は増加していく。非輻射再結合過程が飽和するのが発光効率のピークであり、それ以上の励起パワー密度領域においては輻射再結合が飽和していくため、発光効率は減少していく。図 3 より LEPS380 において低温での発光効率のピークを 100 % と仮定した場合、室温における内部量子効率の最大値は 54 %

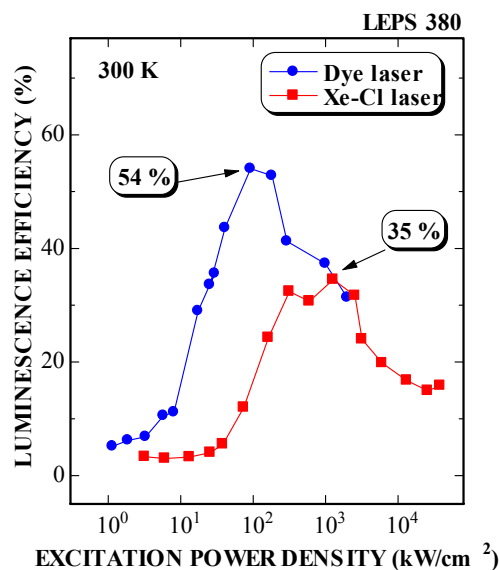


Figure 4. Luminescence efficiency at RT taken from a LEPS380 sample under selective excitation (circles) and band-to-band excitation (squares).

と見積もることができる。

内部量子効率の比較として、LEPS380 における室温での発光効率の励起パワー密度依存性を図 4 に示す。Xe-Cl laser で励起した場合、内部量子効率の最大値が 35 % であるのに対して Dye laser で励起した場合は 54 % である。この原因としては Xe-Cl laser で励起した場合、クラッド層を励起することになりクラッド層内の欠陥などで非輻射再結合中心の影響を受けていたが、Dye laser で励起すると活性層を励起するためその影響がなくなったからだと考えられる。また発光効率のピーク位置は Xe-Cl laser より Dye laser の方がより弱励起でピークを迎えている。これは Dye laser の方が活性層をより効率良く励起しているため、非輻射再結合中心の影響が少ないからである。

次に GaNsub380 における室温での発光効率の励起パワー密度依存性を図 5 に示す。LEPS380 と同様に Xe-Cl laser で励起した場合、内部量子効率の最大値が 66 % に対して Dye laser では 87 % であり、発光効率のピーク位置も Dye laser の方が弱励起でピークを迎えている。また LEPS380 と GaNsub380 で比較すると、内部量子効率の最大値は GaNsub380 の方が大きく、発光効率のピーク位置もより弱励起でピークを迎えている。これは GaN 基板上に作製することで LEPS 法を用いた時よりも更に低転位密度基板を作製することができたため、転位などの非輻射再結合中心に遷移するキャリアが抑制されているからだと考えられ

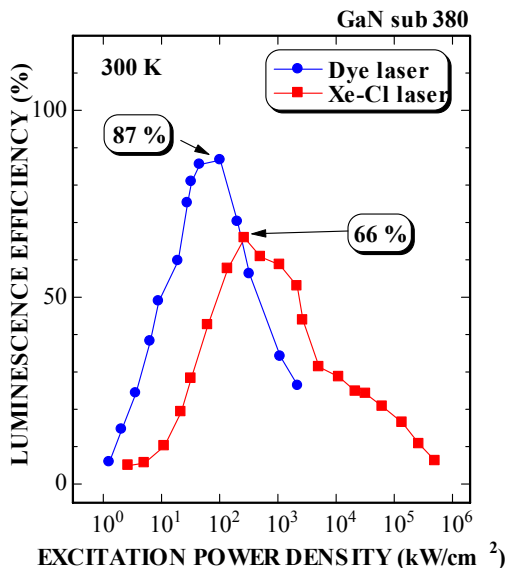


Figure 5. Luminescence efficiency at RT taken from a GaNsub380 sample under selective excitation (circles) and band-to-band excitation (squares).

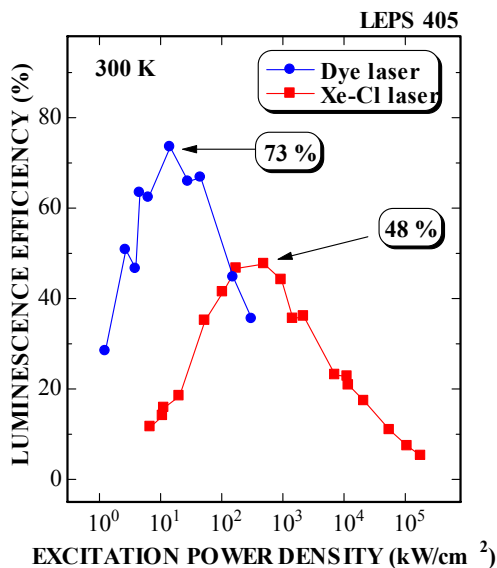


Figure 6. Luminescence efficiency at RT taken from a LEPS405 sample under selective excitation (circles) and band-to-band excitation (squares).

る。結晶中の転位は非輻射再結合中心として働くことが知られている⁵⁾。転位密度に関して従来のサファイア基板上に成長させた LED 構造と比較すると、LEPS 技術を用いて作製された LED 構造で従来の約 1/3 程度 ($1.5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$) であり³⁾、GaN 基板上 LED 構造に至っては 10^6 cm^{-2} 台まで低減され、高品質な InGaN 系量子井戸 LED 構造となっている。このことにより内部量子効率の更なる向上には転位密度を更に低減化させる必要がある。

LEPS405 の室温における発光効率の励起パワー密度依存性を図 6 に示す。今まで述べてきたように Xe-Cl laser で励起した場合、内部量子効率の最大値が 48% に対して Dye laser では 73% であり、発光効率のピーク位置も Dye laser の方が弱励起である。また LEPS380 と比較すると内部量子効率の最大値は LEPS405 の方が大きく、発光効率のピーク位置もより弱励起でピークを迎えている。これは LEPS405 の方は In 組成比が大きいため、キャリアの局在化の影響が顕著であり、非輻射再結合中心に遷移するキャリアの割合が抑制されているからだと考えられる。発光効率は In 組成の局在エネルギーと欠陥密度のバランスで決定される^{6,7)}。Xe-Cl laser で励起した場合において GaNsub380 が LEPS405 よりも内部量子効率の最大値が大きくなったことから発光効率は In 組成比によるキャリアの局在化の影響よりも、サンプル内部の転位密度の及ぼす影響の方が支配

的であることが考えられる。

内部量子効率の比較として今まで述べてきたことについて表 1 に示す。クラッド層のバンド間励起した条件下と活性層を選択的に励起した条件下で比較すると LEPS380 において内部量子効率の最大値は 35% から 54% になり 1.5 倍になった。GaNsub380 では 66% から 87% になり 1.3 倍になった。GaNsub380 より LEPS380 の増加率が高い理由としてはクラッド層における転位密度が多いためだと考えられる。また LEPS405 における内部量子効率の最大値は 48% から 73% になり増加は 1.5 倍であった。この増加率が LEPS380 と等しいのはクラッド層における転位密度が同じであるからだと考えられる。これらの結果より今回我々は $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 系量子井戸 LED 構造の活性層のみの光学的品質を選択的に評価できたといえる。

Table 1. The comparison of internal quantum efficiency.

	LEPS380	GaNsub380	LEPS405
Xe-Cl laser (308 nm)	35 %	66 %	48 %
Dye laser (365 nm)	54 %	87 %	73 %

4. まとめ

LEPS技術を用いて作製されたInGaN系量子井戸LED構造(発光ピーク波長: 380 nm 405 nm)とGaN基板上に作製された $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 系量子井戸LED構造(発光ピーク波長: 380 nm)の3種類の試料に対して、Dye laserを用いて活性層を選択的に励起する条件下でPLスペクトルの励起パワー密度依存性の測定を行った。その結果としてLEPS380において内部量子効率の最大値は54%、GaNSub380では87%、LEPS405は73%であった。これはXe-Cl laserを用いてクラッド層のバンド間励起下で測定した時の内部量子効率の最大値よりもLEPSにおいてはどちらも1.5倍、GaN基板では1.3倍であった。LEPS380とLEPS405において増加率が等しいのはクラッド層における転位密度が同じであり、GaNSub380と比較してLEPS380の方が高かったのはクラッド層における転位密度が多いためだと考えられる。これらの結果より今回我々は $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 系量子井戸LED構造の活性層のみの光学的品質を選択的に評価できたといえる。またより複雑な構造をしている試料に対しても各々の層に対するエネルギーを与えることによって各層の内部量子効率を定量的に評価することが可能であることが分かる。更なる高効率のデバイスを作製していく上で各層の内部量子効率を個別に評価することは重要なことである。LED構造における各層ごとの考察ができ、内部量子効率の向上が期待できる。

謝辞

本研究は、文部科学省知的クラスター創成事業の援助を受けて行われたものである。

参考文献

- 1) S. Watanabe, N. Yamada, M. Nagashima, Y. Ueki, C. Sasaki, Y. Yamada, T. Taguchi, K. Tadatomo, H. Okagawa, and H. Kudo Appl. Phys. Lett. **83**, 4906 (2003).
- 2) 田口常正、「GaN系発光ダイオードの発光メカニズム」照明学会誌、第85巻、273、2001
- 3) K. Tadatomo, H. Okagawa, Y. Ohuchi, T. Tsunekawa, Y. Imada, M. Kato, and T. Taguchi, Jpn. J. Appl. Phys. Part2, **40**, 583 (2001).
- 4) Y. Kawakami, M. Funato, Sz. Fijito, Sg. Fijita, Y. Yamada, and Y. Masumoto, Phys. Rev. B **50**, 14655 (1994).
- 5) T. Sugahara, M. Hao, T. Wang, D. Nagakawa, Y.

Naoui, K. Nishino, and S. Sakai, Jpn. J. Appl. Phys. Part2, **37**, L1195 (1998).

6) S. Watanabe, M. S. Minsky, N. Yamada, T. Takeuchi, R. Schneider, C. Sasaki, M. Iwata, Y. Yamada, and T. Taguchi, Proc. Int. Workshop on Nitride Semiconductors, 532 (2000).

7) M. S. Minsky, S. Watanabe, and N. Yamada, J. Appl. Phys. **91**, 5179 (2001).

(平成17年12月27日受理)