

令和 3 年 6 月 15 日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04954

研究課題名(和文)紫外LED動作時の禁制帯内励起光照射による欠陥準位の検出・評価手法の確立

研究課題名(英文) Characterization of defect levels in UV-LEDs by below-gap excitation light under operating condition

研究代表者

鎌田 憲彦 (Kamata, Norihiko)

埼玉大学・理工学研究科・教授

研究者番号：50211173

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：禁制帯エネルギー E_g 以上の光子エネルギーの励起(Above-Gap Excitation, AGE)光で試料を励起し、 E_g 以下の禁制帯内励起(Below-Gap Excitation, BGE)光を断続照射する際のフォトルミネセンス強度変動から、非発光再結合準位の定量評価が可能である。本研究ではAGE光の代わりにLEDに順方向電流を流し、BGE光を断続照射した際のEL強度変動および電流変動から素子内の非発光再結合準位を検出・評価する手法を開発した。これまでの弱励起から実際の素子動作までの広い注入電流領域での評価が可能となり、材料評価とLED素子特性との対応関係を理解する上で有効である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

SDGsに向け現代社会を支える科学技術の高度化が求められている。AlGaInやInGaIn-LEDは波長域を拡大しながら広く社会に用いられているが、コストパフォーマンスに優れた基板を欠くために貫通転位や点欠陥が多く、それらが非発光再結合準位としてはたらくLEDの効率低下と寿命の短縮をもたらす。これまで材料研究としてのフォトルミネセンスの蓄積はあるが弱励起領域に限定されており、LEDの動作領域とは異なっていた。本研究により両者の間を繋げる新たな手法が得られたため、これまでの欠陥準位に関する蓄積を実際の動作領域での欠陥準位のふるまいの理解と、その低減策に役立てることが可能となった。

研究成果の概要(英文)：It is possible to characterize nonradiative recombination (NRR) centers by detecting intensity change of photoluminescence (PL) due to the addition of an intermittent below-gap excitation (BGE) light under constant above-gap excitation (AGE) light. The change of EL intensity and forward current due to the BGE light is used to characterize NRR centers in an LED under forward bias condition in this study. The method is valid for a wide range of carrier injection and connects the result of weak excitation by previous PL study and actual LED performance.

研究分野：発光素子

キーワード：UV-LED 青～緑色LED 欠陥準位 非発光再結合 禁制帯内励起光

1. 研究開始当初の背景

GaN系LEDは可視域から深紫外域まで波長域を拡大しているが、貫通転位や点欠陥が非発光再結合(NRR)準位となって素子効率低下と寿命短縮の主因である。研究代表者は2波長励起フォトルミネ

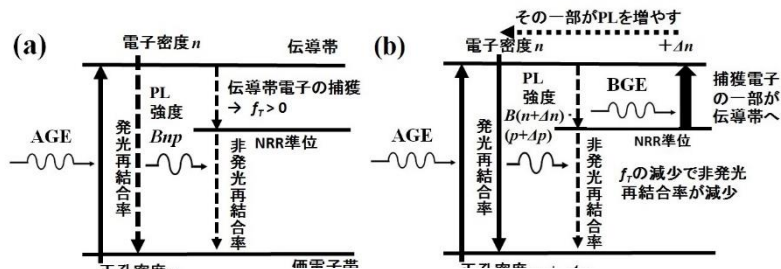


図1 (a)キャリア再結合過程と(b) BGE 光によるPL強度増加 (1準位モデル)

センス (Two-Wavelength Excited Photoluminescence, TWEPL) 法を開発し、欠陥準位の非接触・非破壊での定量測定を1995年に初めて達成した。この手法では $h\nu_A > E_g$ のバンド間励起 (Above-Gap Excitation, AGE) 光でPLを生じさせ (図1(a))、さらに $h\nu_B < E_g$ の禁制帯内励起 (Below-Gap Excitation, BGE) 光を断続照射する。NRR準位から伝導帯 (または価電子帯から準位) へのBGE (図1(b)) により、非発光再結合率が低下しPL強度は増加する。BGE照射あり/なしでのPL強度 $L_{AGE+BGE}$ 、 L_{AGE} の比で定義される規格化PL強度 $L_N = L_{AGE+BGE} / L_{AGE}$ の1からのずれが準位の存在を示す。

AGE光で生じるキャリア密度はLED動作時の2桁以下であり、準位毎に再結合率の飽和傾向が異なるため (図2)、素子動作を定めるNRR準位を特定するためにはより高密度領域での測定が必要である。しかしAGE光強度を増すとBGE効果は低下し準位の検出が困難となる点が課題であった。

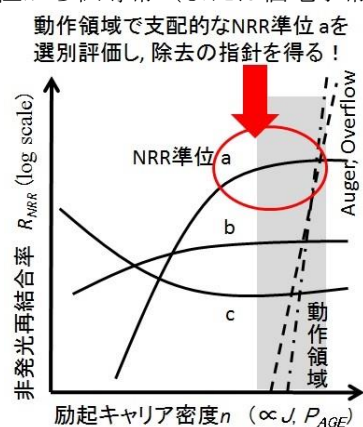


図2 非発光再結合率の励起キャリア密度依存性

2. 研究の目的

AGE光ではなく電流注入+変調BGE光照射により微弱なEL強度変化を検出し、従来のTWEPLより高キャリア密度領域でNRR準位を検出する。これにより低励起でのTWEPLとLED動作領域との間を繋ぎ、BGE光照射の手法の適用性を拡大する。

3. 研究の方法

AGE光の代わりに電流により電子・正孔を直接LED発光部 (量子井戸層) へ注入し、同時にLED出射側からBGE光を断続照射して、BGEあり/なしでのEL強度 L_{I+BGE} 、 L_I を観測し、それらを用いて規格化EL強度を $L_N = L_{I+BGE} / L_I$ により定義する。 $L_N > 1$ は1準位モデル、 $L_N < 1$ は2準位モデルで扱う (図3)。

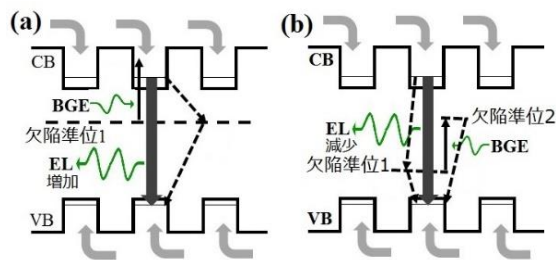


図3 (a)電流注入と(b) BGE光によるEL強度低下 (2準位モデル)

この際LEDは定電流駆動とする。次にLEDに定電圧駆動で電流を流し、外部からBGE光を断続照射して電流の増分 Δi を測定する。

4. 研究成果

(1) UV-LEDの電流注入測定

発光波長396nmの市販UV-LEDでは、規格化EL強度の変化は光子数密度の高い1064nm

の BGE で駆動電流 10mA まで観測され、それ以上では困難だった (図 4 (a))。一方電流増加 Δi は駆動電流にほぼ比例して増大し、1340nm の BGE で最大となった (図 4 (b))。

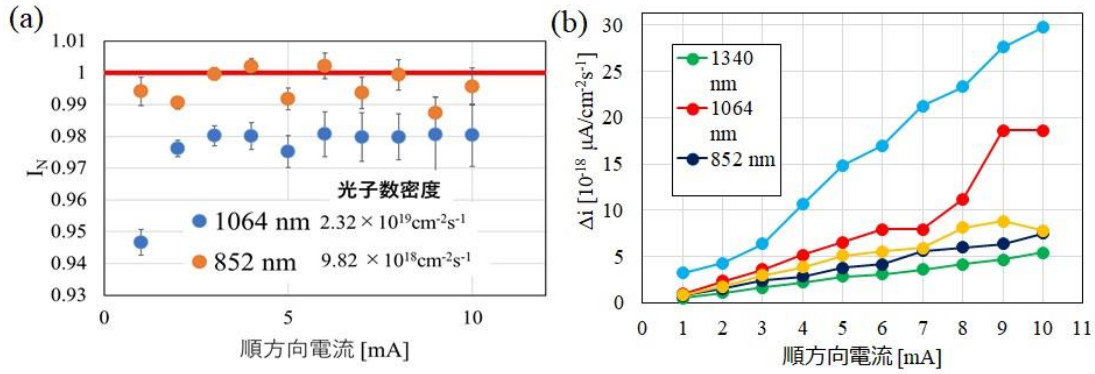


図 4 (a)定電流時の規格化 EL 強度と (b) 定電圧時の電流増加の順方向電流依存性

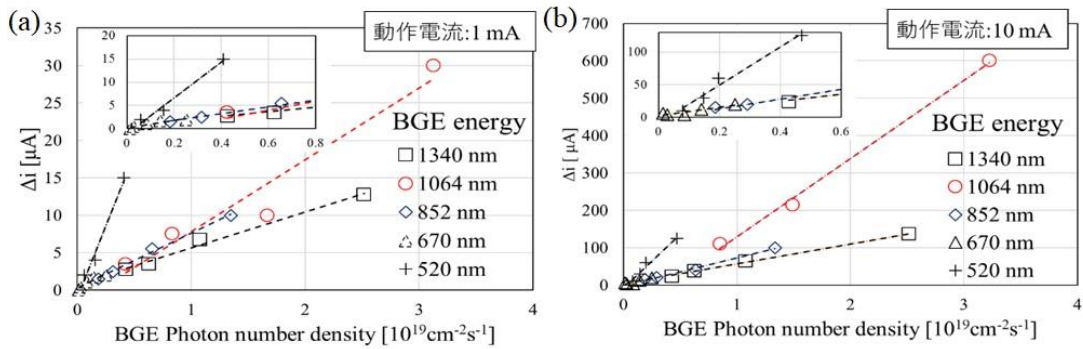


図 5 (a)定電流時の規格化 EL 強度と (b) 定電圧時の電流増加の順方向電流依存性

駆動電流 1mA と 10mA での Δi の BGE エネルギー、光子密度依存性を比較したところ、1mA では 670 nm の影響が 852 nm より大きいのに対し、10mA では逆転した (図 5 (a)、(b))。これは順方向電流値によって欠陥準位の電子占有状態が変わったことを意味する。

(2) UV-LED の AGE 光照射測定

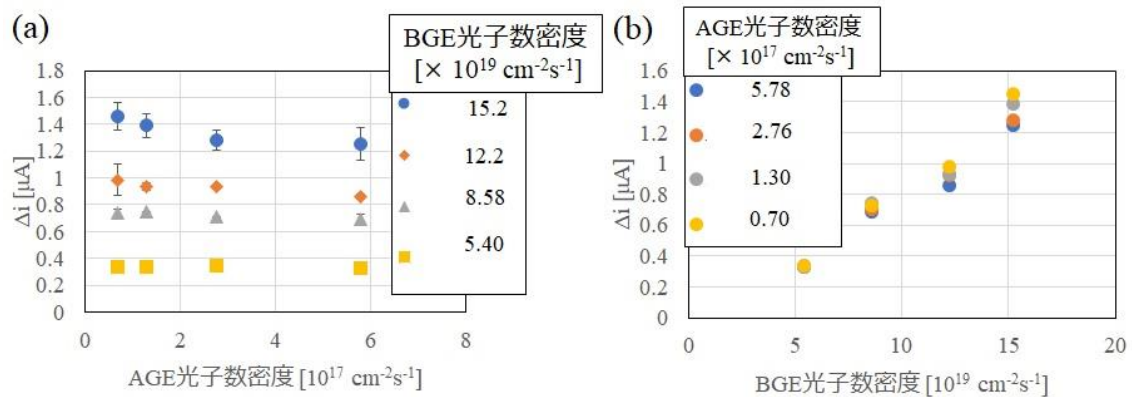


図 6 (a)AGE 光照射時の Δi の (a) AGE 光子密度および (b) BGE 光子密度依存性

駆動電流を増しても Δi はほぼ比例して観測可能だが、BGE 光は全層を励起するため欠陥準位の分布場所を特定できない。そこで電流注入ではなく、量子井戸層を選択励起する AGE 光 (355nm, 3.49eV) 照射での Δi を測定した。その結果 AGE 光子密度にはわずかに負の依存性を示すが BGE 光子密度には比例し (図 6 (a)、(b))、図 5 の Δi の主因は量子井戸層内の準位ではないことが示された。

(3) n-AlGaIn 試料の BGE 光照射測定

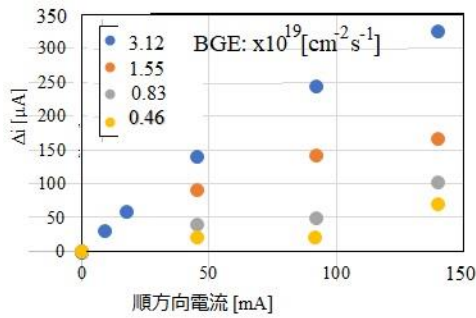


図7 n-AlGaIn の 532nm 励起時の Δi の駆動電流依存性

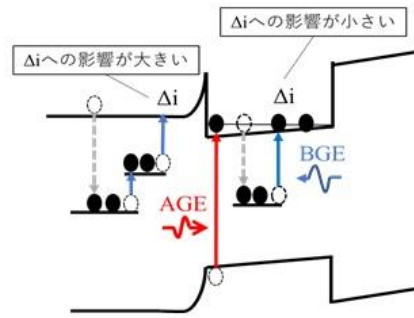


図8 UV-LED 内で L_N , Δi に影響する NRR 準位分布の概念図

サファイア基板/Al テンプレート上に MOCVD 成長した n-AlGaIn 試料に電極を付け、532nm (2.33eV) の BGE 光のみを照射して光電流を測定したところ、駆動電流にほぼ比例した Δi が観測された (図7)。このため UV-LED で観測される Δi は発光部である量子井戸層ではなく n-AlGaIn 層である可能性が高い。これに対して規格化 EL 強度を低下させる NRR 準位は量子井戸層内にあると解釈される (図8)。

(4) 測定系の改善

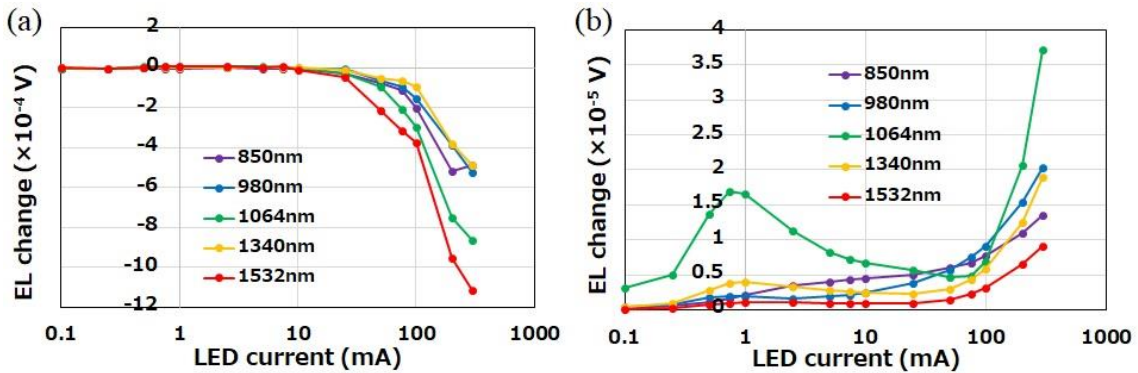


図9(a)EL チョップ方式と(b) BGE 光チョップ方式での EL 強度変化の駆動電流依存性

ピーク波長 505nm、定格電流 300mA の市販青緑色 LED を用い、規格化 EL 強度の測定感度改善のため、従来の EL チョップ方式と BGE 光チョップ方式とをチョッパー周波数 1,000Hz で比較した。これまでの規格化 EL 強度ではなく EL 強度差 (EL change) = $I_{L+BGE} - I_L$ を縦軸とする両者の比較 (図9(a), (b)) から、前者は電流増加に伴い変化量が急減するのに対し後者は 100mA 以上でも検出可能であることが示された。後者の方式 (図10(a), (b)) では変化が増加か減少かを EL チョップ方式で確認する必要があるが、高感度化により EL 強度差の観測が 300mA まで可能となった。

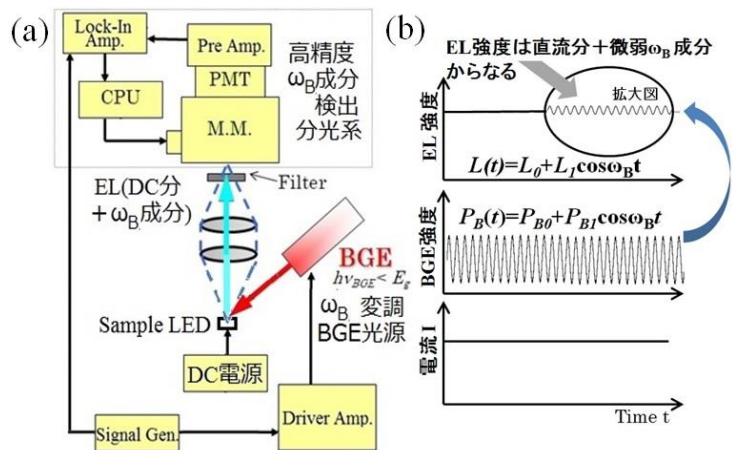


図10(a) BGE 光チョップによる検出系と (b) BGE 光変調による高感度検出の概念図

(5) 青緑色 LED の高感度測定

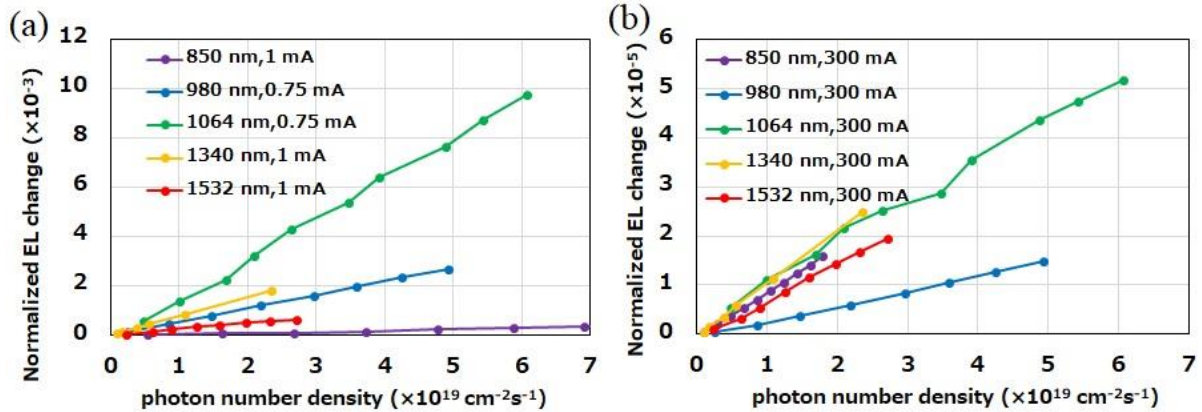


図 1 1 (a) 低注入および(b) 高注入時の EL 強度変化の BGE エネルギー・密度依存性

EL 強度 L_0 に対する EL 強度差を新たに

$$\text{規格化 EL 強度変化 (Normalized EL Change)} = (L_{i+BGE} - L_i) / L_0$$

と定義し BGE 光チョップ方式での値を測定した。その結果 1mA 付近では 0.81eV

(1532nm)、0.93eV (1340nm) BGE の影響はわずかだが (図 1 1 (a))、300mA では最大の寄与に近く (図 1 1 (b))、EL 強度変化の BGE エネルギー依存性が駆動電流値によって異なることがわかった (図 1 2)。また電流増加 Δi についても、BGE エネルギー依存性は駆動電流値によって異なる (図 1 3)。これらは注入レベルによって低エネルギー側から NRR 準位が飽和して影響力を弱め、支配的な NRR プロセスとなる準位が変わるためと解釈される。

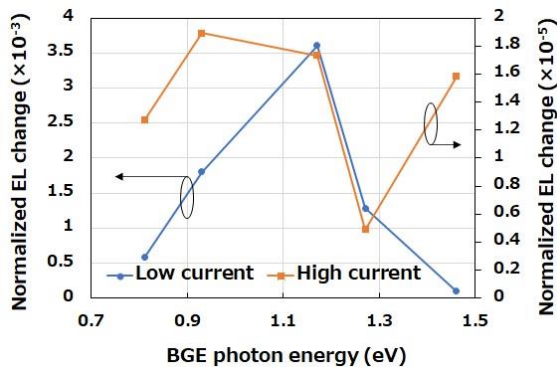


図 1 2 規格化 EL 強度変化の BGE エネルギー依存性とその駆動電流依存性

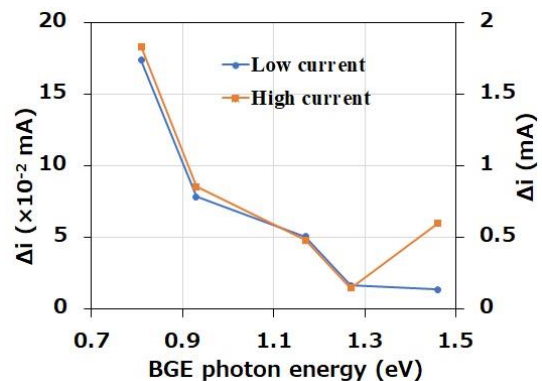


図 1 3 電流増加 Δi の BGE エネルギー依存性とその駆動電流依存性

(6) 結論

電流注入した LED に BGE 光を照射し、定電流駆動時の EL 強度変化及び定電圧駆動時の電流増加 Δi を計測することで、LED 素子内に存在する欠陥準位を検出することができる。EL 強度変化は電流増とともに低下するが、BGE 光チョップ方式により 300mA までが可能となった。電流増加は駆動電流とともに増加するため観測が容易だが、関与する準位の分布場所は他の測定を援用する必要がある。測定した UV-LED では n-AlGaIn 層に分布する可能性が高い。LED 特性を定める NRR 準位の相対的寄与の程度はトラップフィリングのために駆動電流に依存する。総じて従来の低励起領域から LED 動作領域までを繋ぐ手法としての有効性が実証された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 M. Ismail Hossain, Yuri Itokazu, Shunsuke Kuwaba, Norihiko Kamata, Noritoshi Maeda, and Hideki Hirayama	4. 巻 58
2. 論文標題 Nonradiative recombination centers in deep UV-wavelength AlGaIn quantum wells detected by below-gap excitation light	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 SCCB37-1~7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab1069	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 M. Ismail Hossain, Yuri Itokazu, Shunsuke Kuwaba, Norihiko Kamata, Noritoshi Maeda, and Hideki Hirayama	4. 巻 10
2. 論文標題 Superlattice period dependence on nonradiative recombination centers in the n-AlGaIn layer of UV-B region revealed by below-gap excitation light	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 035224-1~10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5134698	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 M. Ismail Hossain, Yuri Itokazu, Shunsuke Kuwaba, Norihiko Kamata, and Hideki Hirayama	4. 巻 105
2. 論文標題 Temperature dependence of nonradiative recombination processes in UV-B AlGaIn quantum well revealed by below-gap excitation light	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optical Materials	6. 最初と最後の頁 109878-1~8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.optmat.2020.109878	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 M. D. Haque, M. Julkarnain, A. Z. M. Touhidul Islam, N. Kamata and T. Fukuda	4. 巻 8
2. 論文標題 Study of Nonradiative Recombination Centers in n-GaN Grown on LT-GaN and AlN Buffer Layer by Below-Gap Excitation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Advances in Material Physics and Chemistry	6. 最初と最後の頁 143-155
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4236/ampc.2018.83010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 N. Kamata	4. 巻 258
2. 論文標題 Spectroscopy of Nonradiative Recombination Levels by Two-Wavelength Excited Photoluminescence (Review Article)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Stat. Sol. B	6. 最初と最後の頁 2000370-1~14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssb.202000370	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 7件)

1. 発表者名 千代田 夏樹、鎌田 憲彦、矢口 裕之
2. 発表標題 InGaN-LED動作時の禁制帯内励起光照射による非発光再結合準位の検出
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会、19p-Z29-2
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩井 宏樹、フェルドス サンジーダ、鎌田 憲彦、八木 修平、矢口 裕之
2. 発表標題 中間バンド型GaPN混晶のキャリア再結合過程の光学的評価：窒素濃度1.4%と3.2%の比較
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会、19p-Z29-1
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Norihiko Kamata, Ken Matsuda, Sota Shirai, Zentaro Honda, and Hideki Hirayama
2. 発表標題 Detection of Nonradiative Recombination Levels in UV-LEDs by Irradiating Below-Gap Excitation Light
3. 学会等名 Compound Semiconductor Week (CSW) 2019, TuP-D-11 (Poster), Nara, May 21, 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Norihiko Kamata
2. 発表標題 Carrier Recombination Processes in GaAs- and GaN-Based Semiconductors and Optical Characterization of Defect Levels,
3. 学会等名 5th Int. Conf. on Computer, Communication, Chemical, Materials & Electronic Engineering (IC4ME2), Keynote-2 (Invited), Rajshahi (Bangladesh), July 12, 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Ismail Hossain, Yuri Itokazu, Shunsuke Kuwaba, Norihiko Kamata, Noritoshi Maeda and Hideki Hirayama
2. 発表標題 Nonradiative Recombination Centers in UVB AlGaIn Quantum Well and Their Temperature Dependence Revealed by Below-Gap Excitation Light
3. 学会等名 The 9th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors (APWS2019), MoP-CH-12(Poster), Okinawa, Nov.11, 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 白井 草汰、千代田 夏樹、鎌田 憲彦、糸数 雄史、山初 駿太、平山 秀樹
2. 発表標題 電流注入と光励起を用いた UV-LED 内の欠陥準位の検出
3. 学会等名 第 6 7 回応用物理学会春季学術講演会、14p-PB2-6、(2020.3.14)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鎌田憲彦
2. 発表標題 固体の中の光と影 - 光の科学と固体光源の可能性を拓く技術 -
3. 学会等名 2019年度(第52回)照明学会全国大会(招待講演), 九州大学伊都キャンパス, 2019年9月12日(招待講演)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 N. Kamata, Y. Itokazu, Md H. Ismail, and H. Hirayama
2 . 発表標題 Optical Characterization of Defect Levels in AlGaIn Multiple Quantum Wells by Using Below-Gap Excitation Light
3 . 学会等名 The 2018 Int. Symp. for Advanced Materials Research (ISAMR 2018) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 M. Ismail Hossain, Yuri Itokazu, Shunsuke Kuwaba, Norihiko Kamata, Noritoshi Maeda, and Hideki Hirayama
2 . 発表標題 Nonradiative Recombination Centers in AlGaIn Deep UV-LEDs Detected by Below Gap Excitation Light
3 . 学会等名 The Int. Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2018) (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 Sota Shirai, Ken Matsuda, Norihiko Kamata, and Zentaro Honda
2 . 発表標題 Nonradiative Recombination Centers in UV-LEDs Detected by Below-Gap Excitation Light Under Current Injection
3 . 学会等名 The Int. Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2018) (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 Ken Matsuda, Sota Shirai, Zentaro Honda, and Norihiko Kamata,
2 . 発表標題 Nonradiative Recombination Centers in UV-LED Chips Detected by Below-Gap Excitation Light,
3 . 学会等名 2019 Asia-Pacific Conf. on Engineering and Natural Sciences (APICENS) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 照明教育「専門講座テキスト」編纂委員会, 鎌田分担執筆(光の発生 - 固体発光光源)	4. 発行年 2019年
2. 出版社 一般社団法人照明学会, 印刷所(株)サンワ	5. 総ページ数 2-1 ~ 2-18
3. 書名 新編「照明専門講座テキスト」第35期	

1. 著者名 照明学会編(照明ハンドブック改訂編纂委員会), 鎌田分担執筆(LEDと半導体レーザ)	4. 発行年 2020年
2. 出版社 オーム社	5. 総ページ数 90 ~ 97
3. 書名 「照明ハンドブック」第3版	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	矢口 裕之 (Yaguchi Hiroyuki) (50239737)	埼玉大学・理工学研究科・教授 (12401)	
研究分担者	平山 秀樹 (Hirayama Hideki) (70270593)	国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・主任研究員 (82401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------