

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月14日現在

機関番号：53901

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2011～2012

課題番号：23860062

研究課題名（和文）窒化物系 LED における発光効率評価法の確立と効率低下要因の解明

研究課題名（英文）Study on evaluation method for luminescence efficiency and efficiency droop mechanism in III-nitride-based LEDs

研究代表者

室谷 英彰（MUROTANI HIDEAKI）

豊田工業高等専門学校・電気・電子システム工学科・助教

研究者番号：20612906

研究成果の概要（和文）：

本研究課題では、窒化物系 LED の発光効率評価法の確立と効率低下要因の解明を目標に、InGaN 系混晶半導体の光物性評価を行った。InGaN ナノワイヤにおいて内部量子効率の導出と発光ダイナミクスの解析を行い、既存の内部量子効率評価法の問題点を明確化した。さらに、内部量子効率の励起パワー密度依存性を解析することにより、強励起下における効率低下機構について考察し、強励起下における内部量子効率の低下が局在準位の飽和を反映していることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

The optical properties of InGaN alloy semiconductor systems have been studied by means of photoluminescence (PL) and time-resolved PL spectroscopy. On the basis of the evaluation of the internal quantum efficiency (IQE) and recombination dynamics of InGaN nanowires, the controversial issues of the estimation of IQE were clarified. Moreover, the mechanism of efficiency reduction under the higher excitation condition was discussed based on the analysis of the excitation power density dependence of IQE. It was found that the reduction of the IQE under higher excitation power density reflected the saturation of localized states by photo-generated excitons.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
23年度	1,200,000	360,000	1,560,000
24年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,100,000	630,000	2,730,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：電気・電子材料、薄膜・量子構造、窒化物半導体、LED、フォトルミネッセンス

1. 研究開始当初の背景

近年、発光ダイオード（LED）の発光効率は飛躍的に向上しており、青色 LED では外部量子効率 $\eta_{\text{ext}}=84\%$ という非常に高い値が報告されている。しかし、紫外 LED および緑色 LED の発光効率は未だ低く、今後の効

率向上が望まれている。通常、LED の効率評価には外部量子効率が用いられる。外部量子効率は電流注入効率、内部量子効率、光の取り出し効率の積で表されるため、LED の効率向上のためには電流注入効率、内部量子効率、光の取り出し効率を個別に評価し、それぞれ

を個別に向上させる必要がある。しかし、これらの定量的な評価法は確立されていないのが現状である。

一般的に、GaAs 系 LED 構造のように貫通転位や点欠陥等の結晶欠陥が少ない系では、低温・弱励起下において非輻射再結合過程の影響をほぼ無視することができる。このため、低温・弱励起下において内部量子効率は 100% であると仮定することが可能であり、弱励起下における低温と室温との発光強度比から内部量子効率を導出することができる。しかし、窒化物系 LED 構造の様に結晶内に多くの欠陥を含む系では、低温においても非輻射再結合過程の影響を受けているものと考えられる。このため、窒化物系 LED 構造では、弱励起下における発光強度の温度依存性のみからでは正確に内部量子効率を導出することが困難である。

また、窒化物系 LED 構造では高注入電流密度領域において電流密度の増大に伴い外部量子効率 (EQE) が低下するという現象が報告されている。この原因としてオーグジュ再結合、電子のリーク、キャリアの非局在化、ホールの注入不足の影響等が指摘されているが、明確な結論は得られていない。

これらのことから、窒化物系 LED の発光効率向上のためには、内部量子効率を正確に評価するための手法の確立と効率低下機構の解明が必要であると考えられる。

2. 研究の目的

本研究課題は、窒化物系 LED の発光効率向上のための指針を構築することを最終的な目標とし、窒化物半導体材料において内部量子効率を正確に評価するための評価手法の確立と強励起下 (高注入電流領域) における効率低下機構の解明を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

本研究課題では、InGaN 混晶半導体において光学実験的手法により、既存の内部量子効率評価手法の問題点の明確化と、強励起下における効率低下機構の解明に関する研究を行った。具体的には、InGaN ナノワイヤにおいてフォトルミネッセンス (PL) 測定により、既存の評価手法による内部量子効率評価を行い、その問題点を明確化した。さらに、PL 測定および時間分解 PL 測定により、弱励起および強励起下における内部量子効率の低下機構に関する検討を行った。なお、PL 測定には、HeCd レーザー、半導体レーザー ($\lambda = 405 \text{ nm}$) および Xe-Cl エキシマレーザー ($\lambda = 308 \text{ nm}$) を励起光源として用いた。時間分解 PL 測定はシンクロスキャンストリークカメラを用いて行った。このときの励起光源には Ti:Al₂O₃ レーザーの第 3 高調波 ($\lambda = 267 \text{ nm}$)

を用いた。

4. 研究成果

本研究課題では、既存の内部量子効率評価手法の妥当性を検討するために、これまでに報告されている手法を用いて室温の PL 強度が異なる 2 種類の InGaN ナノワイヤの内部量子効率を評価した。弱励起下における低温と室温の発光強度比から内部量子効率を導出する方法を用いた場合、室温の PL 強度が低い試料 (Sample B) の内部量子効率の方が、PL 強度が高い試料 (Sample A) よりも高い値となった。また、積分発光強度を励起パワー密度で割った値を発光効率と定義し、低温における発光効率の最大値を内部量子効率 100% と仮定する方法で内部量子効率を評価した場合でも、室温における内部量子効率の最大値は Sample B の方が高い値となり、PL 強度の結果と矛盾することが分かった。

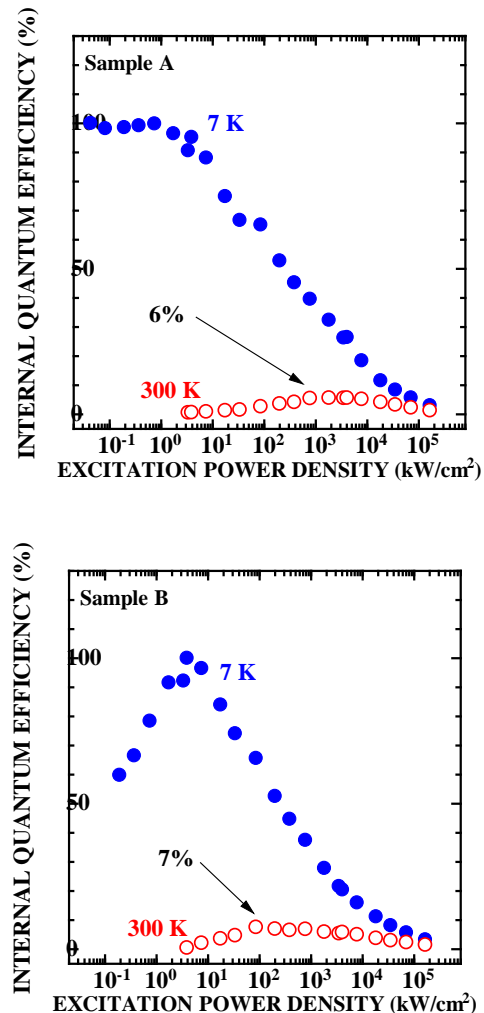


図 1. InGaN ナノワイヤ (Sample A, Sample B) の 7 K および 300 K における内部量子効率の励起パワー密度依存性

内部量子効率評価法の問題点を明確化するために、PL 強度の温度依存性および励起パワー密度依存性から導出した内部量子効率の励起パワー密度依存性を解析した。図 1 に Sample A および Sample B の 7 K および 300 K における内部量子効率の励起パワー密度依存性を示している。Sample A では、低温弱励起下において内部量子効率は 100% でほぼ一定であり、励起パワー密度に依存しないことが分かった。一方、Sample B では低温においても内部量子効率は励起パワー密度の増大に伴い増大した後、減少している事が分かった。この結果は、Sample B では低温においても非輻射再結合過程がであることを示しているものと考えられる。

このことについて詳細に検討するために、時間分解 PL 測定を行った。図 2 に Sample A および Sample B の低温における発光減衰特性を示している。発光減衰特性から発光寿命を導出した結果、Sample A においては早い成分の発光寿命が 430 ps、遅い成分の発光寿命が 1.79 ns であった。一方、Sample B においては、早い成分の発光寿命が 210 ps、遅い成分の発光寿命が 1.84 ns であり、遅い成分では 2 つの試料の発光寿命に大きな差はないのに対し、早い成分では Sample B の発光寿命が Sample A の半分以下であることが分かった。この結果は、Sample B では低温においても非輻射再結合過程が活性であることを反映したものと考えられ、内部量子効率の励起パワー密度依存性の結果と矛盾しない。

以上の結果から、低温において非輻射再結合過程の影響が大きい系においては、低温の内部量子効率が 100% であるという仮定が成立しないため、低温と室温の強度比を用いる方法、発光効率の最大値を用いる方法のいずれであっても内部量子効率を正確に評価することができないものと考えられる。

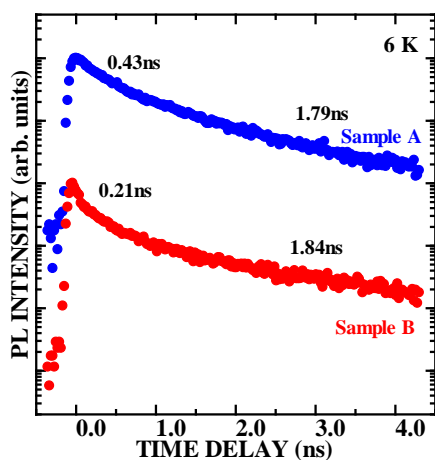


図 2. InGaN ナノワイヤ (Sample A, Sample B) の 6 K における発光減衰特性

次に、強励起下における内部量子効率の低下の要因について考察するために内部量子効率と PL ピークエネルギーの励起パワー密度依存性を比較した。その結果、図 3 に示すように強励起下における内部量子効率の低下は PL ピークエネルギーのブルーシフトと同時に起きることが分かった。励起パワー密度の増大に伴う PL ピークエネルギーのブルーシフトは、キャリア密度の増大に伴う局在準位の充填を反映したものであるため、この結果は内部量子効率の低下と局在準位の充填が同時に起きていることを示している。したがって、強励起領域における内部量子効率の低下は局在準位の飽和を反映したものであると考えられる。

最後に、内部量子効率の In 組成比依存性について検討した。結晶品質が比較的高く、低温弱励起下において内部量子効率が 100% と仮定することができる試料を用い、内部量子効率の In 組成比依存性を導出した。その結果、内部量子効率は In 組成比の増大に伴い増大することが分かった。前述のように強励起下における内部量子効率の低下に局在準位の飽和が関与しているものと考えられるため、In 組成比の増大に伴う内部量子効率の増大は局在化の度合いの増大を反映したものと考えられる。そこで、PL スペクトルの温度依存性および低温における発光寿命の発光エネルギー依存性から局在エネルギーを導出し、内部量子効率と局在エネルギーの関係を解析した。図 4 は PL スペクトルの温度依存性から導出した局在エネルギー σ および発光寿命の発光エネルギー依存性から導出した局在エネルギー E_0 と内部量子効率の関係を示している。内部量子効率は E_0 および σ の増

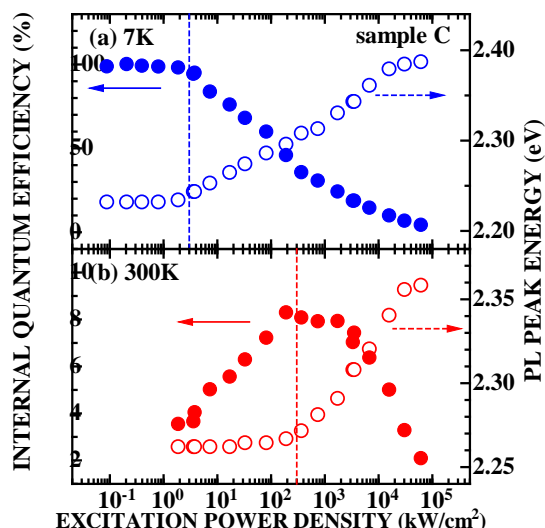


図 3. 7 K および 300 K における内部量子効率と PL ピークエネルギーの励起パワー密度依存性の比較

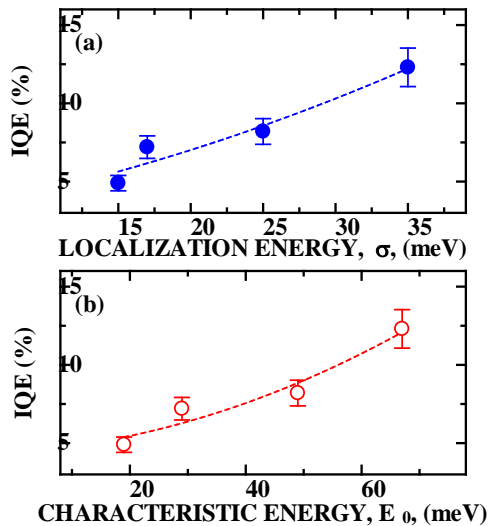


図4. 内部量子効率(IQE)と局在エネルギー(σ および E_0) の関係

大に伴い、単調に増大することが分かった。これらの結果は、内部量子効率と局在の度合いの間に明瞭な相関関係があることを示しており、このことから、内部量子効率の増大は局在の度合いの増大を反映したものであることが確認できる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① H. Murotani, H. Andoh, T. Tsukamoto, T. Sugiura, Y. Yamada, T. Tabata, Y. Honda, M. Yamaguchi, H. Amano, "Emission wavelength dependence of internal quantum efficiency in InGaN nanowires" 査読有, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 52, 08JE10 1-3 (2013). DOI: 10.7567/JJAP.52.08JE10
- ② S. Kurai, K. Shimomura, H. Murotani, Y. Yamada, H. Miyake, K. Hiramatsu, "Correlation between in-plane strain and optical polarization of Si-doped AlGaIn epitaxial layers as a function of Al content and Si concentration" 査読有, Journal of Applied Physics, Vol. 112 033512 1-5 (2012). DOI: 10.1063/1.4743016
- ③ H. Murotani, K. Anai, D. Akase, Y. Yamada, H. Miyake, K. Hiramatsu, "Dependence of internal quantum efficiency on doping region and Si concentration in Al-rich AlGaIn

quantum wells" 査読有, Applied Physics Letters, Vol. 101, 042110 1-4 (2012).

DOI: 10.1063/1.4739431

- ④ A. Ishibashi, H. Murotani, T. Yokogawa, Y. Yamada, "Spatial inhomogeneity of aluminum content in air-bridged lateral epitaxially grown AlGaIn ternary alloy films probed by cross-sectional scanning near-field optical microscopy" 査読有, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 51, 035604 1-6 (2012). DOI: 10.1143/JJAP.51.035604

- ⑤ H. Murotani, R. Kittaka, S. Kurai, Y. Yamada, H. Miyake, K. Hiramatsu, "Recombination dynamics of localized excitons in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($0.37 < x < 0.81$) ternary alloys" Physica Status Solidi (c), 査読有, 8, 2133-2135 (2011).

DOI: 10.1002/pssc.201000899

[学会発表] (計 7 件)

- ① 室谷英彰, 安藤浩哉, 塚本武彦, 杉浦藤虎, 山田陽一, 田畑拓也, 本田善央, 山口雅史, 天野浩, "InGaIn ナノワイヤにおける PL スペクトルの温度依存性" 第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川工科大学, 神奈川県, 2013. 3. 28
- ② H. Murotani, H. Andoh, T. Tsukamoto, T. Sugiura, Y. Yamada, T. Tabata, Y. Honda, M. Yamaguchi, H. Amano, "Emission wavelength dependence of internal quantum efficiency in InGaIn nanowires" International Workshop on Nitride semiconductors 2012 (IWN2012), Sapporo, Japan, 2012. 10. 15
- ③ 室谷英彰, 安藤浩哉, 塚本武彦, 杉浦藤虎, 山田陽一, 田畑拓也, 本田善央, 山口雅史, 天野浩, "InGaIn ナノワイヤの内部量子効率に対する積層欠陥の影響" 第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛県, 2012. 9. 12
- ④ 室谷英彰, 安藤浩哉, 塚本武彦, 杉浦藤虎, 山田陽一, 田畑拓也, 本田善央, 山口雅史, 天野浩, "InGaIn ナノワイヤにおける内部量子効率の発光波長依存性" 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 早稲田大学, 東京都, 2012. 3. 15
- ⑤ 赤瀬大貴, 室谷英彰, 穴井恒二, 山田陽一, 三宅秀人, 平松和政, "AlGaIn 系量子井戸構造の内部量子効率に対する Si 添加効果(2)" 第 72 回応用物理学会学術講演会, 山形大学, 山形県, 2011. 9. 1
- ⑥ R. Kittaka, H. Muto, H. Murotani, Y.

Yamada, H. Miyake, K. Hiramatsu,
“Two-photon resonance of biexcitons
in mid-compositional $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$
ternary alloys” 9th International
Conference on Nitride Semiconductors
(ICNS-9), Glasgow, UK, 2011.7.12

- ⑦ H. Murotani, D. Akase, K. Anai, Y.
Yamada, H. Miyake, K. Hiramatsu,
“Effects of Si doping on internal
quantum efficiency of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/$
 $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ quantum wells” Asian Pacific
Workshop on Widegap Semiconductors,
(APWS-2011), Mo-P49, Toba, Japan,
2011.5.23

6. 研究組織

(1) 研究代表者

室谷 英彰 (MUROTANI HIDEAKI)

豊田工業高等専門学校・電気・電子システ
ム工学科・助教

研究者番号：20612906