

Ⅲ族窒化物半導体発光素子における高効率局在励起子発光

—InGaN青色発光ダイオードはなぜ明るい?—

秩父 重英

筑波大学 理工工学系 助教授



全固体フルカラーディスプレイ実現に必要な青・緑色発光ダイオード(LED)、次世代照明用の白色LEDそして超高密度DVD用半導体レーザー光源の実現は、機能的デバイスの開発にとどまらず、エネルギーの有効利用という観点からも重要で、それらを実現することは化合物半導体研究者の40年来の夢であった。この「夢のデバイス」が、名城大学赤崎勇教授グループの長年の研究成果によりGaNをベースとするⅢ族窒化物半導体を用い10余年前に産声をあげ、当時日亜化学の中村修二氏によりそれまでの20-100倍明るい青色LEDとして開発・市販されるに至った事は、日本が世界に先駆けて発信した科学技術の最もインパクトのある成果のひとつである。ところが、1994年に市販が始まったInGaN(窒化インジウムガリウム)量子井戸構造LEDには、なんと 10^{10}cm^{-2} という高密度な貫通転位が含まれていた。かような欠陥物質から高効率発光が得られる事はまさに非常識な出来事であった。本稿では、「なぜそんな物が光るのか」について追求してきた成果と、それを今後意図的に有効利用する試みについてお話しします。

はじめに

Ⅲ族窒化物半導体AlN, GaN, InNは、それらの混晶¹を作ることによって図1に示すように発光波長を200nmという深紫外線から可視光全域を覆い、光通信で用いる1.55 μm の赤外線まで変化させられる、ヒ素等の毒物を含まない優れた半導体材料である。

現在市販されている青色・緑色・照明用白色LEDや次世代DVD用レーザの活性層

(光を出す部分)には、不純物添加したGaN単体では明るくないため、専らInGaN混晶量子井戸²が用いられている。このLEDは確かに非常に明るいのであるが、図2に透過電子顕微鏡写真を示すように、基板との格子不整合からなんと 10^{10}cm^{-2} 近くという高密度な貫通転位が含まれていた。それまでの既存のLEDでは転位密度が 10^4cm^{-2} を越えると殆ど光を発することができないのが常識であり、なぜInGaNが光るのか、半導

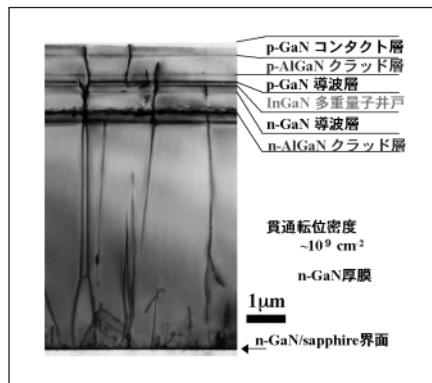


図2 InGaN量子井戸レーザの断面透過電子顕微鏡像

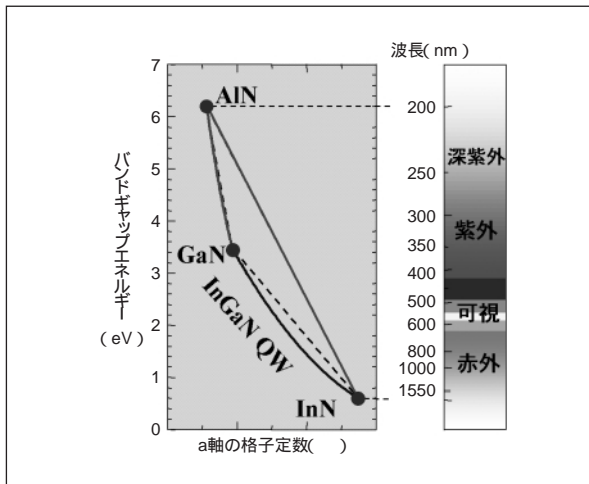


図1 Ⅲ族窒化物半導体の格子定数とバンドギャップの関係

体研究者全体の疑問となっていた。更に、研究を進めるうちに、ウルツ鉱構造のⅢ族窒化物半導体は分極物質であり、歪量子井戸には圧電分極による大きな内部電場が誘起されて電子と正孔の波動関数が空間的に分離され、発光確率を激減させる「量子閉じ込めシュタルク効果(QCSE)」もあることが解かった(図3参照)。つまり、InGaNは高密度転位・波動関数分離

の2つの欠点により、どう考えても光るはずがないにもかかわらず、高い発光量子効率を呈す摩訶不思議な半導体であった。この謎解きをするため、執筆者と早大宗田孝之教授は、中村氏らから試料提供を受け、発光機構の解明を開始した。

研究の成果

本来光らないはずの物質が光ることから、あらゆる非発光性再結合中心からキャリアを保護する機構が働いているであろうという考えを基に発光機構を探った。まず、図4に

図3 歪みInGaN量子井戸における量子閉じ込めシタルク効果。圧電分極により井戸の両端に固定電荷が誘起されて電場が発生し、電子と正孔が空間的に分離されて光りにくくなる。

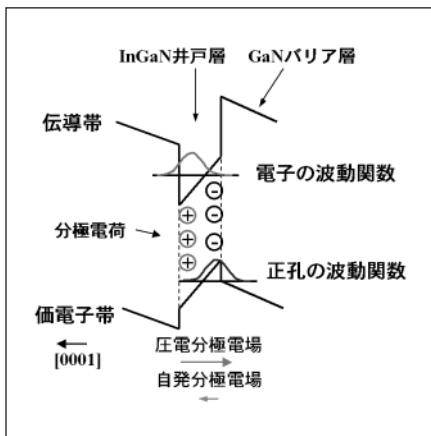


図4 InGaN量子井戸のPL励起、広域CL、スポットCLスペクトルと発光マッピング像

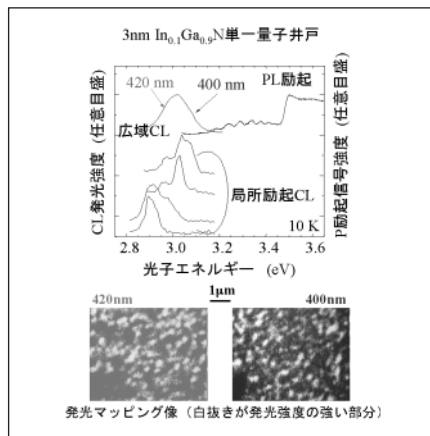
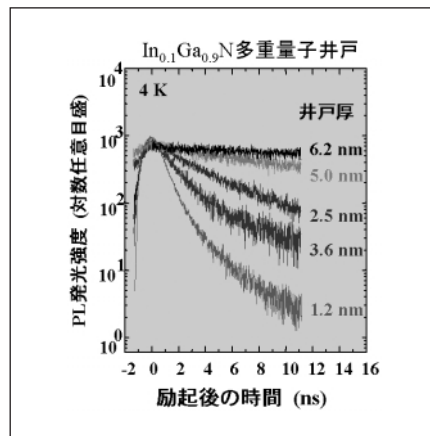


図5 InGaN量子井戸の低温における時間分解PL信号。圧電効果と局在効果が混在している。



示すように結晶全域に渡る吸収と発光にはエネルギー差があることをフォトルミネセンス (PL) 励起および陰極線ルミネセンス (CL) スペクトルから見出し、ナノメートルスケールでは半値幅は狭いが、全域ではバンドギャップ不均一性がある事を明らかにした。また、実空間での発光パターン解析から、正味の少数キャリア拡散長が装置分解能の50nmより短い事を明らかにした。つまり、量子井戸内の励起子³が、高密度に存在する貫通転位の間隔よりもさらに短い周期で結晶に存在する、ポテンシャルの低い微小領域に局在することによって高い効率を実現しているというモデルを立てたのである。

このモデルを提案する際に注意を払ったのが、先に述べた分極電場の影響である。

図5に低温での時間分解PL信号示すが、井戸厚増加にしたがって輻射寿命の増加がみられた。この結果は井戸厚増加とともに

に電子と正孔の空間的分離が激しくなり発光確率が低下することを反映している。しかしながら、井戸厚が励起子のボーア半径以下程度になればその効果は低減できることを示した上、超薄膜では発光強度の時間変化が伸張指数関数で表される事も同時に見出した。後者は、励起子が不均一な量子ナノ構造に局在して発光する際の挙動とまさに一致するものであった。以上から得られた、分極性高転位密度InGaNにおける「高効率局在励起子発光」のモデルポンチ絵を図6に示す。

今後への展開

本研究で得られた成果は、非常に興味深い局在励起子物理現象を明らかにしたのみでなく、高輝度発光素子設計のひとつの手段として「局在状態」を積極的に用い

る事を提案したものであるといえる。実際、参考文献^[1]の論文を皮切りに世界の研究者がこのアイデアを支持ないしは修飾する論文を多数出版し、局在効果を積極的に利用するデバイス設計も行われるようになった(例えば平成14年度にはInAlGaNを用いた紫外発光素子研究で理研・平山秀樹研究員が本賞を受賞している)。今後、効率的に非発光再結合中心を避ける局在励起子の発光過程を用いたデバイスの積極的提案が行えると期待しています。

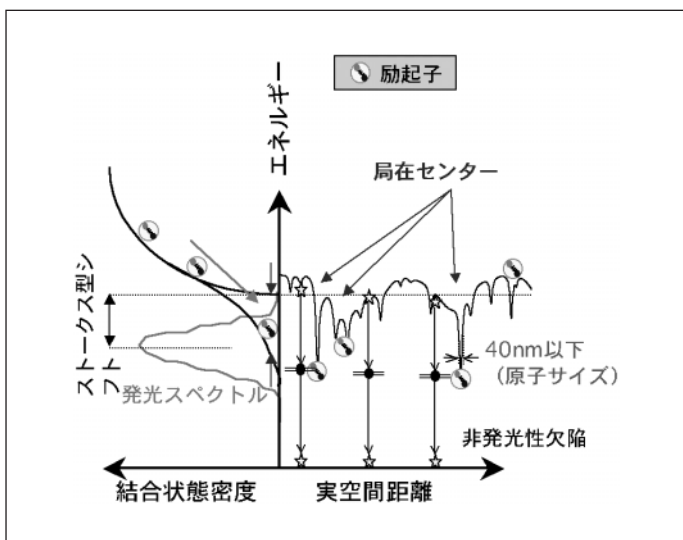


図6 InGaNにおける局在中心を介した励起子発光モデル図。左には結合状態密度と発光スペクトル、右には空間的分布をポンチ絵で示した。

補足説明

1 混晶

2種類以上の単結晶が混ざり合っ各々の中間的特性を持つ物質。

2 量子井戸

厚さを電子(励起子)のドブロイ波長以下まで薄くすることにより電子と正孔を閉じ込め、量子サイズ効果を発現させる構造。電子正孔が閉じ込められる側を井戸と呼ぶ。InGaN井戸の場合はおおよそ2-3nm程度の厚さを持つ。

3 励起子

電子と正孔が弱く結びついた量子。対となって結晶中を移動する。GaNではこの結合力が既存の半導体よりも強い。

References (参考文献)

- 【1】 S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota and S. Nakamura, Appl. Phys. Lett. 69, 4188 (1996).
- 【2】 S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota and S. Nakamura, Appl. Phys. Lett. 70, 2822 (1996).
- 【3】 S. Chichibu, K. Wada and S. Nakamura, Appl. Phys. Lett. 71, 2346 (1997).
- 【4】 S. Chichibu, A. Abare, M. Minsky, S. Keller, S. Fleischer, J. Bowers, E. Hu, U. Mishra, L. Coldren, S. DenBaars and T. Sota, Appl. Phys. Lett. 73, 2006 (1998).
- 【5】 S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota and S. Nakamura, J. Appl. Phys. 79, 2784 (1996).