

高品質窒化物系混晶半導体薄膜のサブギャップ領域における光吸収・熱発生過程の解明

今井大地*

Analysis of the Optical Absorption and Heat Generation Processes via Sub-bandgap Energy States in High Crystalline-quality Nitride-based Semiconductor Alloy Thin Films

Daichi IMAI*

We investigated the optical absorption and heat generation processes via sub-bandgap energy states in AlInN alloy thin films, which is one of the nitride-based semiconductor alloys and recently applied to the optical cavity of laser diodes and vertical-cavity surface-emitting lasers. We successfully observed weak sub-bandgap absorptions with heat generation in several hundred nm thick AlInN thin films by using photothermal deflection spectroscopy (PDS). Initial study of the depth dependence analysis and analysis of the generated heat diffusion processes in PDS measurements were also conducted.

1. はじめに

窒化ガリウム (GaN) に代表される III 族窒化物半導体は、主要二元化合物とそれらの混晶組成比の制御により原理的には深紫外から近赤外の幅広い波長域の光素子を作製でき、白色LED照明や光ディスク用青色半導体レーザー (LD) などの小型・低電力消費な光素子の実現により、我々の社会生活に変革をもたらしてきた。今後、更なる動作効率向上や実用波長域拡大が進められることで、材料加工、医療、光通信、VR、ARなど、様々な分野における技術革新やSDGs推進に対する貢献が期待される。

現在、窒化物系光素子では、深紫外域や緑色より長波長域における発光効率の急激な低下や、高出力動作時の性能劣化などが課題となっている。これらの課題解決に向けては、LEDやLDの発光層及び周辺を構成する混晶半導体 (可視光域はGaInN、紫外域はAlGaIn) の基礎吸収端以下のエネルギー領域 (サブギャップ領域) における物性制御が重要となる。発光層での欠陥生成や不純物混入、混晶半導体特有の混ざり方の不均一さによるバンドエネルギーのばらつきが発生すると、サブギャップ領域に深い準位が形成され (図1)、これが、①非発光再結合による発光効率低下や素子の自己発熱、②光の自己吸収による内部損失 (素子内部で光増幅するLDの場合) など、光素子の動作効率低下を引き起こす主要因となっている (近年はAlInNも面発光型LD (VCSEL) 共振器に応用されている)¹⁾。そこで本研究では、窒化物系混晶半導体薄膜における光吸収に付随して起こる非発光 (熱発生) 過程の直接的観測、更には発生した熱の輸送特性解析手法の確立に取り組み、混晶半導体のサブギャップ領域に起因する窒化物系LEDやLDの動作効率低下過程の解明や、それらの具体的制御指針の提示に向けた基盤技術開拓に取り組んだ。

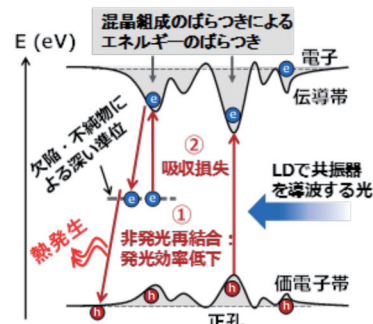


図1 混晶半導体薄膜におけるギャップ内状態とそれによる光素子の効率低減過程の例。

2. 実験および解析手法

測定試料には有機金属気相成長法により GaN/サファイアテンプレート上に成膜された AlInN 混晶薄膜を用いた。In 組成比はそれぞれ 0.114 および 0.155 である。これらの試料は名古屋工業大学の三好教授より提供して頂いたものであり、近年、表面平坦性に優れた高品質 AlInN 混晶薄膜の作製が報告されている。²⁾ AlInN 混晶の発光スペクトルはフォトルミネッセンス (PL) 法により観測し、光吸収過程の観測には光熱偏向分光 (PDS) 法を用いた。PDS 法の励起光にはキセノン光源を分光器で分光した単色光源を用いた。試料は屈折率の温度変化が大きいヘキサミンに浸されており、深い準位を介した非発光再結合により試料内部で熱発生が生じると、その熱が液体媒質中に拡散し、試料表面近傍を通過した

2023年3月9日 受理

* 豊田理研スカラー

名城大学大学院理工学研究科材料機能工学専攻

ローレーザーが偏向される。この現象を利用して薄膜のサブギャップ領域における光吸収を高感度に観測可能である。また、本手法を応用して、発生した熱の輸送過程の解析手法構築にも取り組んだ。

3. 結果および考察

図2にAlInN混晶薄膜の室温PLスペクトルを示す。In組成比の増加に伴いAlInN混晶のバンド端近傍からの発光は低エネルギーシフトしている。3.4 eVおよび2.2 eV付近のピークは下地のGaNテンプレートによるものである。これらの試料ではAlInN混晶の発光ピークがGaNのバンドギャップよりも大きいいため、発光の一部はGaNに吸収されている。吸収係数は波長に依存するため発光強度を単純に比較することはできないが、それを考慮しても発光強度はIn組成比0.114の方が一桁程大きいことがわかる。

一方、図3に示すようにPDS信号強度はIn組成比0.114の方が大きく、これはサブギャップ吸収を引き起こすような深い準位が0.114の方が多くを示す。このように、発光強度やサブギャップ吸収はいずれも深い準位により引き起こされるが、その大小関係は必ずしも一致していない。今後、発光強度およびPDS信号強度それぞれの各種欠陥や不純物密度依存性を評価することで、発光効率向上や光吸収低減に対し、それぞれどのような欠陥や不純物を制御することが有効であるかなど、深い準位に関するより詳細な理解が得られると思われる。

図4(a)にPDS測定から得られた信号の位相スペクトルを示す。PDSでは励起光を光チョッパーにより周期変調し、プローブ光の偏向をロックインアンプにて検出する。その際、信号の位相成分には試料中で発生した熱が試料表面に出てくるまでの時間遅れの情報が含まれるため、位相成分を解析すれば、試料深さ方向に対する深い準位の密度や、発生した熱の拡散過程等の情報を得ることができ、III-V族化合物半導体では本手法による熱伝導率の解析が報告されている。⁽³⁾ここでは本手法を窒化物半導体に適用すべく、まずは試料構造の単純なGaN単層基板を用いた初期検討を行った。図4(a)に示すように、GaNのバンドギャップ近傍で吸収係数(光侵入長)が大きく変わるため位相が大きく変化する。図4(b)は熱伝導方程式に基づくモデル解析から得た位相信号の吸収係数依存性である。実験的に得られた位相変化を再現するように計算値に含まれる熱伝導率を調整することで、GaNのバンド間吸収に相当する吸収係数(およそ $1 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$)までの領域において、実験的に得た位相変化をよく再現する結果が得られた。今後、位相変化に対するチョッパー周波数や試料膜厚の影響を考慮して、試料深さ依存性解析や測定精度に関する検証を進める。

4. まとめ

PDS法によりAlInN混晶薄膜のサブギャップ吸収過程が明瞭に観測された。発光スペクトル解析と組み合わせることで、深い準位の物性をより詳細に理解できるようになると考えられる。また熱伝導方程式に基づく理論モデルにより位相スペクトルを解析することで、PDSによる深い準位の試料深さ方向依存性や発生した熱の拡散過程の解析に関する初期的検討を行った。今後、上記解析を更に進めることで、混晶半導体のサブギャップ領域に起因する窒化物系LEDやLDの動作効率低下過程の解明や、それらの具体的制御指針の解明に繋げていく。

REFERENCES

- 1) K. Ikeyama, Y. Kozuka, K. Matsui, S. Yoshida, T. Akagi, Y. Akatsuka, N. Koide, T. Takeuchi, S. Kamiyama, M. Iwaya and I. Akasaki, *Appl. Phys. Express*, **9** (2016) 102101.
- 2) M. Miyoshi, M. Yamanaka, T. Egawa and T. Takeuchi, *J. Cryst. Growth*, **506** (2019) 40-44.
- 3) N. Yacoubi and C. Aliberta, *J. Appl. Phys.*, **69** (1991) 12.

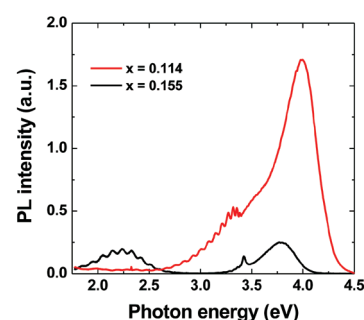


図2 AlInN混晶のPLスペクトル。

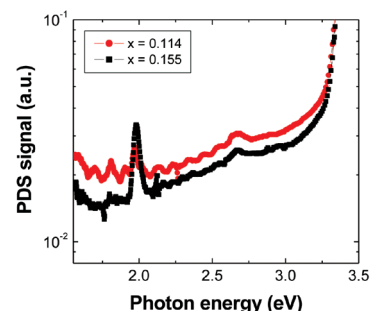


図3 AlInN混晶のPDSスペクトル。

2.0 eV付近のピークは試料表面で散乱した励起光が検出器前に設置したバンドパスフィルターを通過したことに起因する。

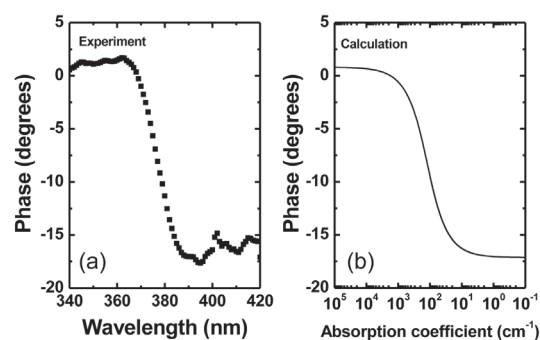


図4 GaN基板におけるPDS位相スペクトル。(a)に実験値、(b)に理論計算から得たスペクトルを示す。