Tm 添加 AlGaN における青色発光遷移過程の光学特性評価

Optical characterization of transition processes in AlGaN:Tm in blue-region 阪大院工 ⁰市川 修平, 高津 潤一, 藤 諒健, Dolf Timmerman, 舘林 潤, 藤原 康文 Osaka Univ., ^oShuhei Ichikawa, Junichi Takatsu, Ryoken Fuji, Dolf Timmerman, Jun Tatebayashi, and Yasufumi Fujiwara E-mail: ichikawa@mat.eng.osaka-u.ac.jp

【はじめに】 我々はこれまでに、有機金属気相成長法(organometallic vapor phase epitaxy: OMVPE)により希土類元素のTm を AlGaN 結晶中に in-situ 添加し(AlGaN:Tm)、これを活性層とすることでTm イオンに由来 する狭帯域青色発光を観測してきた[1]。AlGaN 中のTm イオンからの青 色発光として、波長 465 nm および 480 nm 付近での発光が得られており、 それぞれ 4f 殻内の $^{1}D_{2}$ – $^{3}F_{4}$ 遷移および $^{1}G_{4}$ – $^{3}H_{6}$ 遷移に対応する発光と考 えられる。青色発光領域での狭帯域発光デバイス応用を目指し、発光特 性を自在に制御するためには、これら遷移過程に関する十分な知見を得 ることが求められる。本研究では、 $^{1}D_{2}$ – $^{3}F_{4}$ 遷移および $^{1}G_{4}$ – $^{3}H_{6}$ 遷移過程 についてフォトルミネッセンス(PL)測定により評価し、各遷移の励起・ 緩和過程に関して特徴的な知見を得たので報告する。



Fig. 1: PL spectrum of AlGaN:Tm at 10 K.

【実験・結果】(0001)サファイア基板上に、OMVPE によりアンドープの GaN (ud-GaN)を 1.5 µm 程度成長し、その後活性層として AlGaN:Tm 層を 300 nm 程度成長した。最後にキャップ層として 再度 ud-GaN 層を 10 nm 程度成長し試料を作製した。励起光として YAG 4 倍高調波レーザー(λ: 266 nm、パルス幅: 400 ps、 繰り返し周波数: 1 kHz)を用い、極低温下で PL 測定・時間分解 PL(TRPL) 測定を行った。Fig.1に AlGaN:Tm の PL スペクトルを示す(欠陥発光であるイエロールミネッセン ス成分を除去後)。図より、青色発光領域に Tm イオンに起因した ¹D₂--³F₄ 遷移および ¹G₄--³H₆ 遷移 の発光が明瞭に観測される。つづいて、各遷移の発光寿命を測定するために TRPL 測定を行った。 Fig. 2 に PL スペクトルの時間変化および PL 強度減衰曲線を示す。、¹D₂-³F4 遷移由来の発光は ¹G₄--³H₆遷移と比較して、短い立ち上がり時間と極めて短い発光寿命を有することが分かる。フィ ッティング結果から、 $^{1}D_{2}$ - $^{3}F_{4}$ 遷移および $^{1}G_{4}$ - $^{3}H_{6}$ 遷移(とくに 479.8 nm)の立ち上がり寿命 \leq 400 ps、 2.2 µs、発光寿命 3.1 µs、91.6 µs がそれぞれ得られた。各発光遷移過程が、いずれも母材中に形成 されたトラップ準位を介したエネルギー輸送に伴う間接励起過程に起因したものであると仮定し た際には、¹D2励起状態を実現するエネルギー輸送過程および¹D2--3F4発光遷移過程が、共に非常 に高い効率を有していることになる。また、発光強度の励起強度依存性からは(Fig. 3)、強励起条 件下において ¹G₄-³H₆遷移による発光強度が飽和する一方で、¹D₂-³F₄遷移による発光強度は励起 強度に対して線形に増大することが分かった。これは、励起強度に対して D2-3F4 発光遷移に寄与 する Tm 発光中心密度が十分量存在することを意味する。しかしながら、¹G4-3H6遷移の発光強度 飽和が観測される 0.14 mW 励起下での PL スペクトルにおいて(Fig. 1)、¹D2-3F4 遷移の発光強度は ¹G₄-³H₆ 遷移による発光強度の 57%程度しか得られておらず、短い立ち上がり寿命・短い発光寿命 から予測される結果とは反した結果となっている。このことは、AlGaN:Tmにおける ¹D2 励起過程 が、上述のような間接励起過程を介したものでないことを示していると言える。

[1] J. Takatsu, Y. Fujiwara, et al., J. Appl. Phys. 123, 161406 (2018).



Fig. 2: (a) Time-dependent PL spectra of AlGaN:Tm after a pulse excitation. (b) TRPL decay curves of ${}^{1}D_{2}-{}^{3}F_{4}$ and ${}^{1}G_{4}-{}^{3}H_{6}$ -related transitions.



Fig. 3: Excitation power dependences of integrated PL intensity related to ${}^{1}D_{2}-{}^{3}F_{4}$ and ${}^{1}G_{4}-{}^{3}H_{6}$ transitions.