

固体レーザー励起用高出力赤外発光ダイオード

High Power LEDs for Pumping of Solid State Laser

最近、固体レーザーの励起光源として管球に代わる高出力発光ダイオードへの要求が高まり、製造技術の進歩と相まって大出力・高信頼性素子の開発が盛んである。ここではYAG及びNdPP励起用光源として開発した $Ga_{1-x}Al_xAs$ 赤外発光ダイオード、YAGLEX-I, II, III形の構造設計、製造技術の概要及びその諸特性について報告する。ダイオードは光放出面を半球状に形成するための $Ga_{1-x}Al_xAs$ 厚膜エピタキシャル層を基板とし、この上に成長接合を設けた構造で、表面には CeO_2 の反射防止膜が付けられている。室温で発光出力10~50mW、発光中心波長 $8,100 \pm 50 \text{ \AA}$ (YAG励起用)又は $8,000 \pm 50 \text{ \AA}$ (NdPP励起用)、スペクトル半値幅250~320 \AA の特性をもち、寿命は現在18,000時間経過後も初期出力を維持している。また、周波数応答特性は30~50MHzであり、光通信用素子としても応用の可能性をもっている。

小野佑一* Ono Yūichi
森岡 誠* Morioka Makoto
伊藤和弘* Itō Kazuhiro
橋 篤志** Tachibana Atsushi
倉田一宏* Kurata Kazuhiro

1 緒 言

イットリウム・アルミニウムガーネット(YAG)などの結晶を用いた固体レーザーは、そのレーザー光を誘導放出させるために、この結晶を別の強力な光源で照射する、いわゆる光励起形のレーザーである。従来はこの励起光源として、特殊な白熱ランプやカリウムランプなどの管球類が用いられてきた。しかし、これらの管球ランプ類は、大形で寿命も短いなどのほかに発光スペクトル中に励起に不必要な波長成分が多くて、励起効率が低いばかりでなく、これによる発熱を冷却するための水冷装置を必要とし、レーザー装置全体を小形化することを困難にするなどの欠点をもっていた。このため、最近励起光源としてスペクトルをよくチューニングした赤外発光ダイオード(以下、LEDと略す)を用いるLED励起固体レーザーを開発しようとする動向があり、例えば、 $GaAs^{(1)(2)}$ や $GaAs_{1-x}P_x^{(3)}$ などを用いた励起光源の研究が発表されている。

LEDを励起光源に用いる場合、最も問題となるのは発光出力である。これは励起光を照射する固体レーザー物質の種類や大きさにもよるが、通常の表示用LEDの光出力に比べおよそ数百倍以上の光エネルギーが必要とされる。また励起効率を高めるためには、LEDの発光中心波長が固体レーザー物質の吸収波長とよく合致していることと、そのスペクトル半値幅が狭いことが必要である。

今回開発した赤外LEDは、YAG及びNdPP(ネオジミウム・ペンタフォスフェート)励起用のYAGLEX-I, II形とYAGLEX-III形であり、本稿はこの赤外LEDの構造設計、製造技術の概要及び得られた特性とその応用について概説し、ユーザーの参考に供しようとするものである。

2 $Ga_{1-x}Al_xAs$ LEDの特徴

$Ga_{1-x}Al_xAs$ ($0 < x < 1$) は $GaAs$ (バンドギャップ $E_g = 1.43\text{eV}$, 直接遷移形)と $AlAs$ (バンドギャップ $E_g = 2.12\text{eV}$, 間接遷移形)との混晶で、この準二元状態図は全率固溶形である。室温で、 $x < 0.35$ では直接遷移形、 $x > 0.35$ で間接遷移形の電子帯構造をもち、その交代点での E_g はおよそ $1.9\text{eV}^{(4)}$ である。この様子を図1に示す。組成 x に伴う E_g の変化に

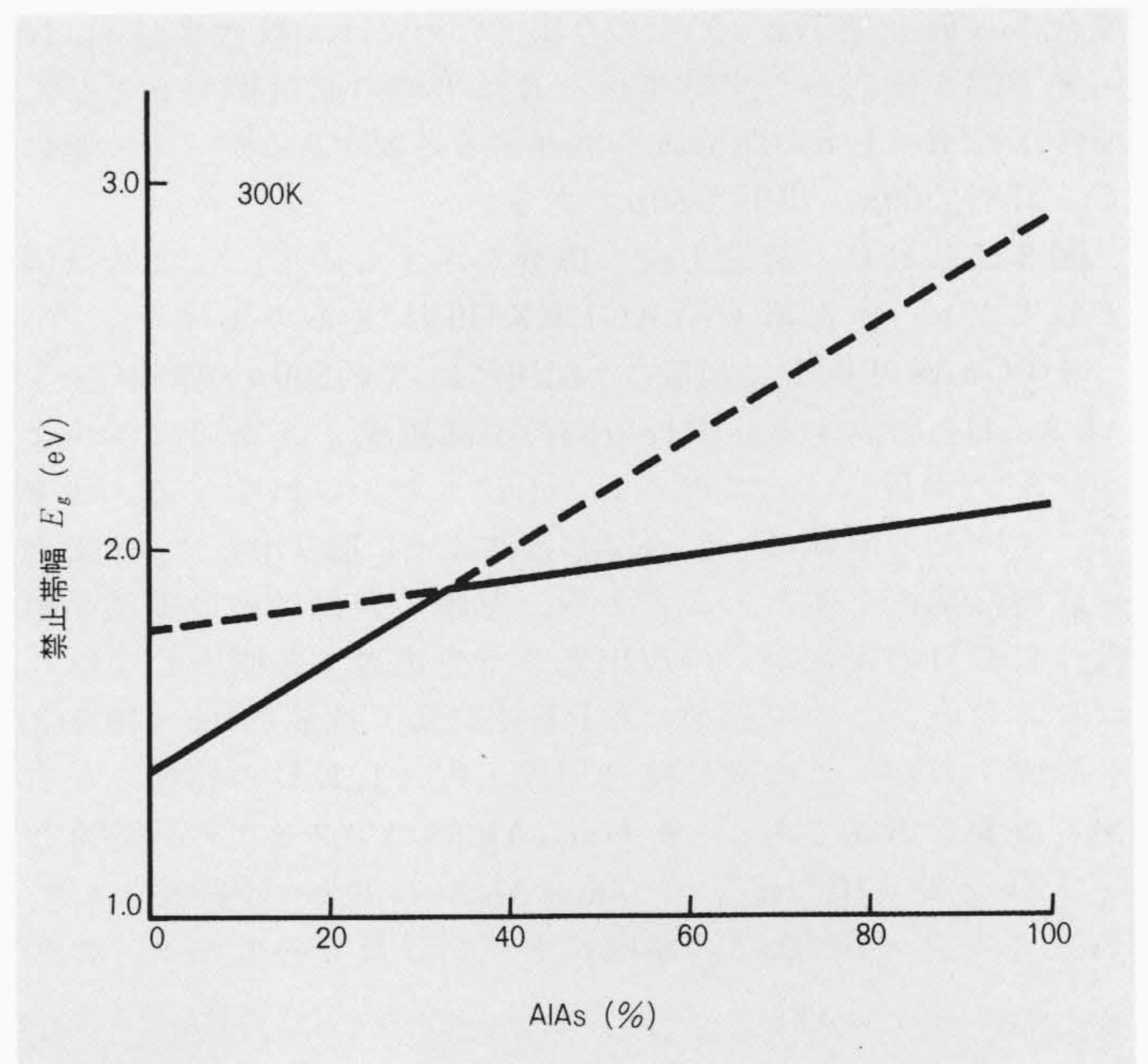


図1 $Ga_{1-x}Al_xAs$ の組成と300Kにおける禁止帯幅の関連 直接遷移形と間接遷移形の交代点での E_g は約 1.9eV であり、 $AlAs$ の組成によって E_g が変化することが分かる。

じ、発光波長も x とともに変わる。 $GaAs$ と $AlAs$ の格子定数は室温でそれぞれ $5.6525 \text{ \AA}^{(5)}$ 、 $5.6605 \text{ \AA}^{(6)}$ と近いので、混晶としたときの格子ひずみが少なく、良質の結晶が得られやすいことが特徴である。

$Ga_{1-x}Al_xAs$ はほとんどの場合、液相エピタキシャル成長(LPE)法で作られ、アクセプタ不純物としてZnとGe、ドナー不純物としてTeとSnを用いるのが一般的である。最近ではダブルヘテロ接合を用いた半導体レーザー、高効率太陽電池、光通信用LEDなど $Ga_{1-x}Al_xAs$ 系混晶材料が効率の良い電気-光変換素子として用いられる機会が多くなってきている。

* 日立製作所中央研究所 ** 日立製作所戸塚工場 理学博士

3 構造設計と製造技術

固体レーザ励起用LEDに要求される性能は、一般に次のようなものである。

- (1) 高出力、高効率であること。
- (2) 発光中心波長が固体レーザの吸収波長と一致していること。
- (3) 励起効率を良くするため、スペクトル半値幅が狭いこと。
- (4) 小形であり、高密度実装が可能なこと。
- (5) 長寿命($10^4 \sim 10^5$ 時間)であること。

これらの条件を満たす材料として、我々は発光波長を任意に選択できる混晶系材料の中から、高い発光効率を期待できる $Ga_{1-x}Al_xAs$ を選んだ。pn接合には発光波長の制御性だけでなく、発光領域の結晶性を考慮して多層LPE法による成長接合を採用した。ダイオードの構造は光の取出し率を最大にするため、形を半球状⁽⁷⁾⁽⁸⁾とし、且つこれと空気との界面で発生するFresnel反射成分を少なくするため、表面に反射防止膜を蒸着した。

図2にこの素子のチップの部分の断面構造を示す。YAGLEX-I, II形はメサ形、III形はプレーナ形である。半球の直径はI, II形が 500μ , III形が 580μ である。半球状LEDにおいて、接合から最も効率よく光を取り出すためには、接合半径 r は幾何光学的な検討から半球半径を R 、半球の屈折率を n とした場合、 $r/R=1/n$ の関係式を満足する必要があるが、その値はI, II形で 65μ , III形で 80μ である。

図3はLEDの製造方法の概要を示すもので、ここでは例としてプレーナ形素子(YAGLEX-III形)を取りあげた。

まずGaAs基板上に温度こう配法によって約 500μ の厚膜 $Ga_{1-x}Al_xAs$ (1)を形成する。成長方向の混晶組成 x は(2')に示すようにAlの偏析によって厚みとともにしだいに減少する。研磨法によりこの厚膜の一部を(2)に示すように取り出してp-n接合形成用の基板とする。このとき、厚膜の表面における混晶組成はLEDの接合からの放出光を十分透過する値としなければならない。この厚膜上にLPE法により連続的にp-n接合(3)を形成するが、この成長接合形成工程はLEDの特性を左右する重要な工程である。p- $Ga_{1-x}Al_xAs$ はアクセプタ不純物としてZnを $1 \times 10^{18} cm^{-3}$, n- $Ga_{1-x}Al_xAs$ はドナー不純物としてTeを $1 \sim 2 \times 10^{18} cm^{-3}$ の濃度にドーブしたものである。この

エピタキシャルウェーハを用い、絶縁膜形成、不純物拡散、オーミック電極形成、エッチングなどのよく知られている半導体プロセス技術によってLEDチップを形成する。このLEDチップは研磨剤を用いて半球状に加工され(4)、配線基板として用意されたSiサブマウント上にフェースダウンボンディング法で組み立てられる。この後、 CeO_2 膜を約 $1,200 \text{ \AA}$ 半球表

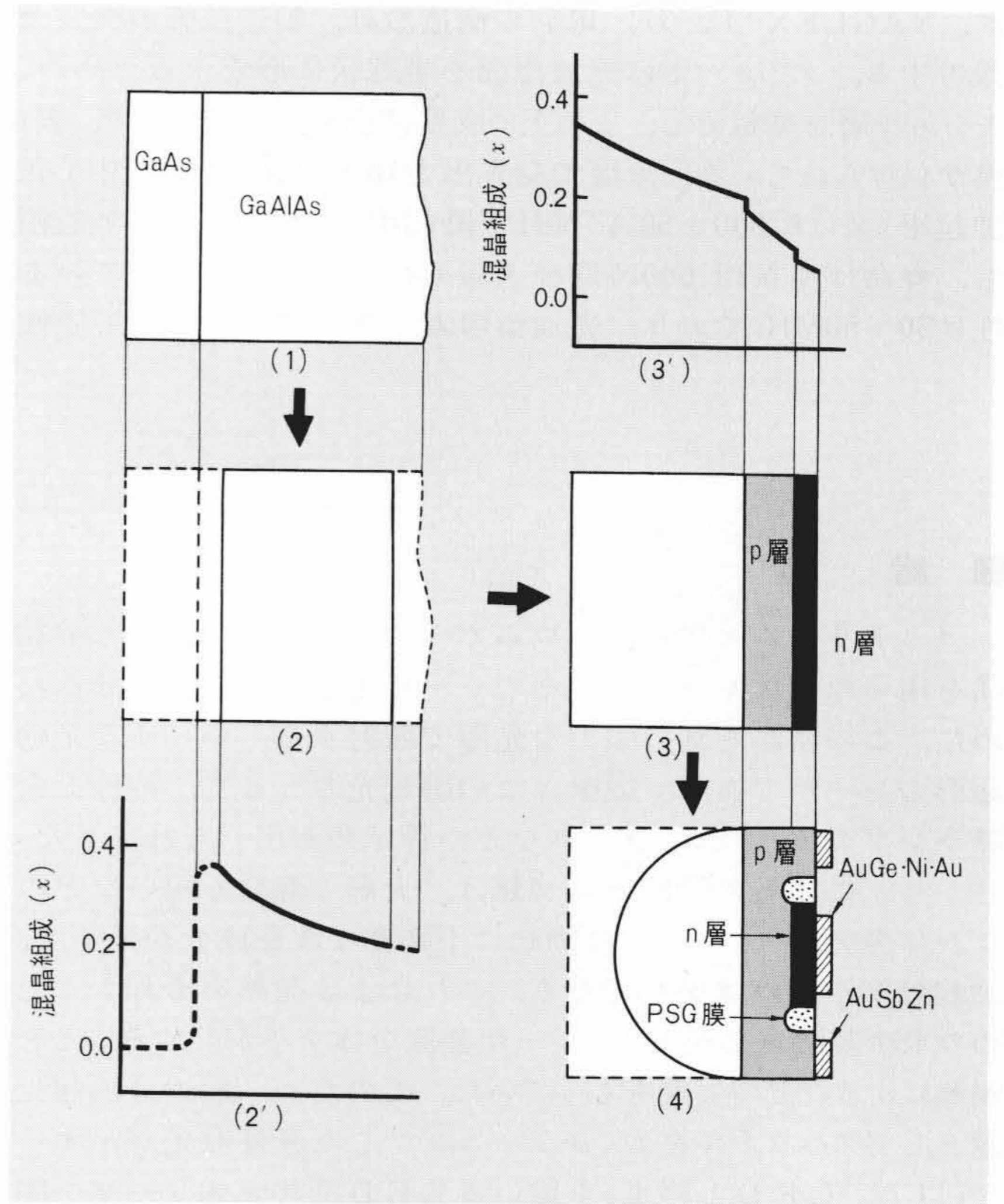


図3 固体レーザ励起用高出力赤外発光ダイオードの製法 光放出用の半球状部分はLPE法により厚膜 $Ga_{1-x}Al_xAs$ で形成され、接合部も発光領域の結晶性を考慮してp-n成長接合を採用している。

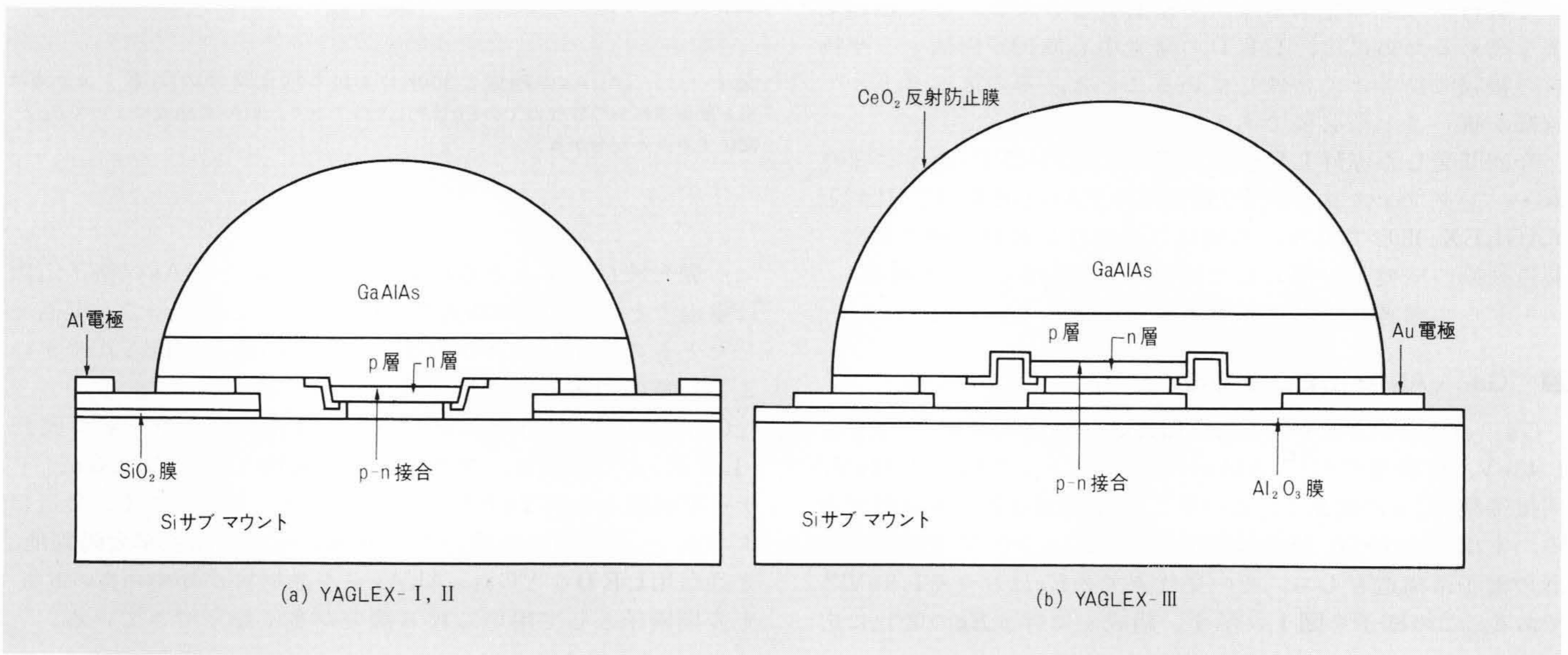


図2 固体レーザ励起用高出力発光ダイオードの断面構造 (a)はメサ形構造、(b)はプレーナ形構造で、各LEDは配線基板(Siサブマウント)上にフェースダウンボンディングされている。

面に蒸着し、特性検査を経て完成品となる。図4は完成した3種類の素子(YAGLEX-I, II, III)を示す写真である。I形、III形は側面励起用、II形は端面励起用に開発されたもので、特にII形は光出力の指向性を向上させるため集光コーンが装着されている。

4 電気、発光特性

4.1 電流電圧特性

固体レーザー励起用LEDの順方向と逆方向の電流電圧特性の例を図5に示す。順方向立上り電圧は約1.4Vであり、立上り後の直線部分のこう配からシリーズ抵抗 R_s が求まり、その値は 2.4Ω である。その他のLEDについてもほぼ2~3Ω内

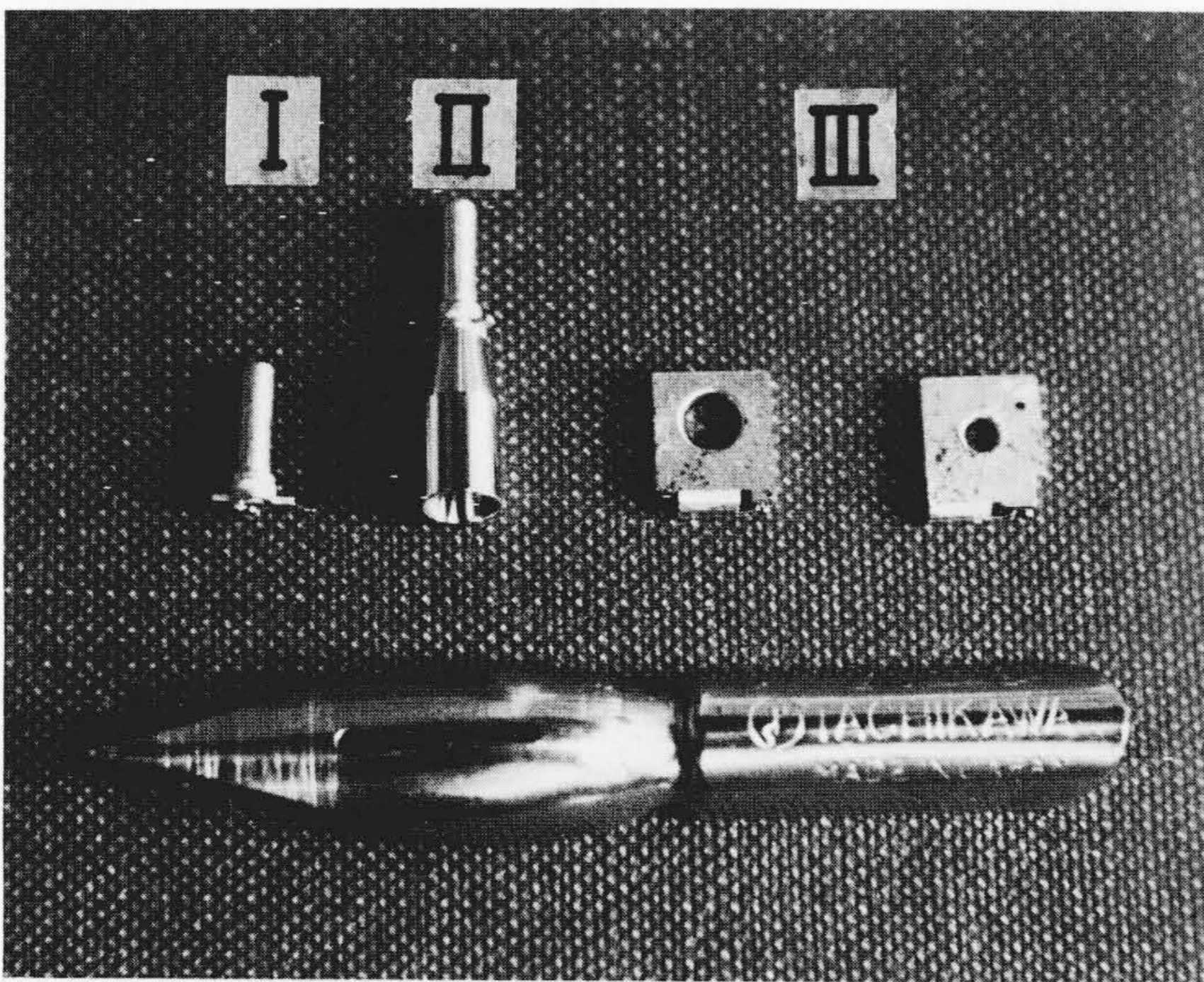


図4 固体レーザー励起用高出力赤外発光ダイオード(左からYAGLEX-I, II, III) YAGLEX-I, IIIは側面励起用, YAGLEX-IIは端面励起用として集光コーンを装着しており, 光指向性を増している。

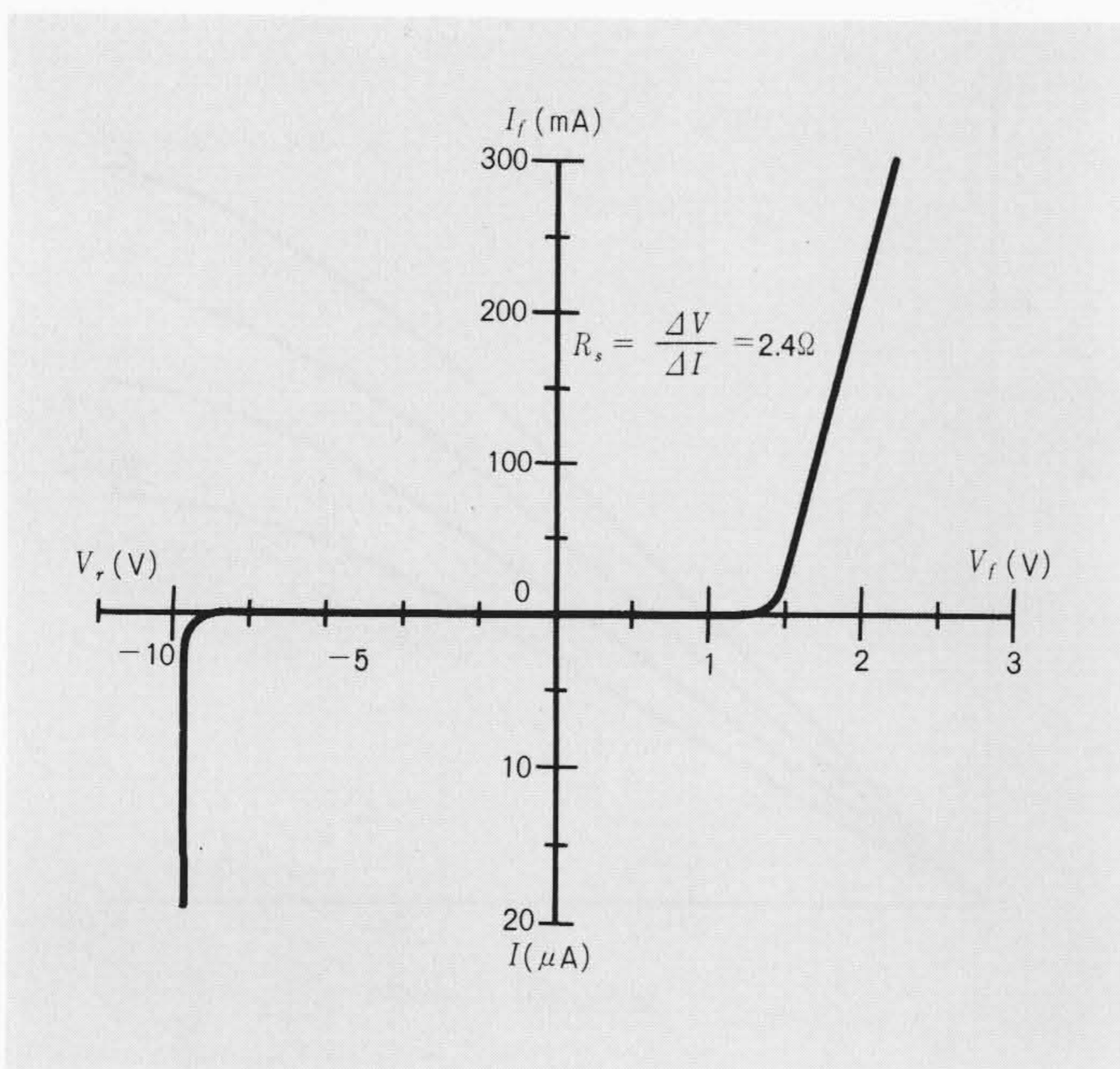


図5 順方向及び逆方向電流電圧特性 順方向の直線部分のこう配からシリーズ抵抗は 2.4Ω であり, 逆方向降伏電圧は約10Vで, これはp-Ga_{1-x}Al_x-As層のキャリア濃度とエネルギーギャップで決定される。

にある。逆降伏電圧は電流 $10\mu A$ で約10Vである。

理想的なp-n接合ダイオードの電流電圧特性は, 次の関係式⁽⁹⁾で表わされる。すなわち, ダイオード順方向電流 I_F は拡散電流 I_d と再結合電流 I_r の和

$$I_F = I_d + I_r \dots \dots \dots (1)$$

であり, 通常は2種の電流成分が同時に寄与するため

$$I_F \propto \exp(qV/nkT) \quad (n = 1 \sim 2) \dots \dots \dots (2)$$

ここで q : 電子の電荷

V : 印加電圧

k : ボルツマン定数

T : 絶対温度(K)

と表わされ, n の値からいずれの電流成分の寄与が高いかが分かる。図6の順方向電流電圧特性から, 順方向電流が $10^{-6} A$ 以下では $n = 2$ であり, $10^{-6} A$ 以上では $n = 1.6$ であることより, 小電流領域では空乏層内再結合電流が大部分を占め, 大電流領域では拡散電流成分が多くなると考えられる。発光強度(L)と順方向印加電圧の関係はLEDの内部抵抗の影響のない領域では

$$L \propto \exp(qV/kT) \dots \dots \dots (3)$$

と表わされるので, (2), (3)式から

$$\ln L \propto n \ln I_F \dots \dots \dots (4)$$

となるが, 図6の場合, 数ミリアンペア領域では $n = 2$ の再結合電流が主であり, $50 \sim 150 mA$ の大電流領域では $n = 1$ で拡散電流成分が発光に寄与している。

4.2 発光特性

(1) 発光スペクトル

図7にLEDの室温における発光スペクトルの一例を示す。発光スペクトルは左右対称形であり, p-n接合で発光した光はほとんどがGa_{1-x}Al_xAs厚膜結晶層を透過している。発光中心

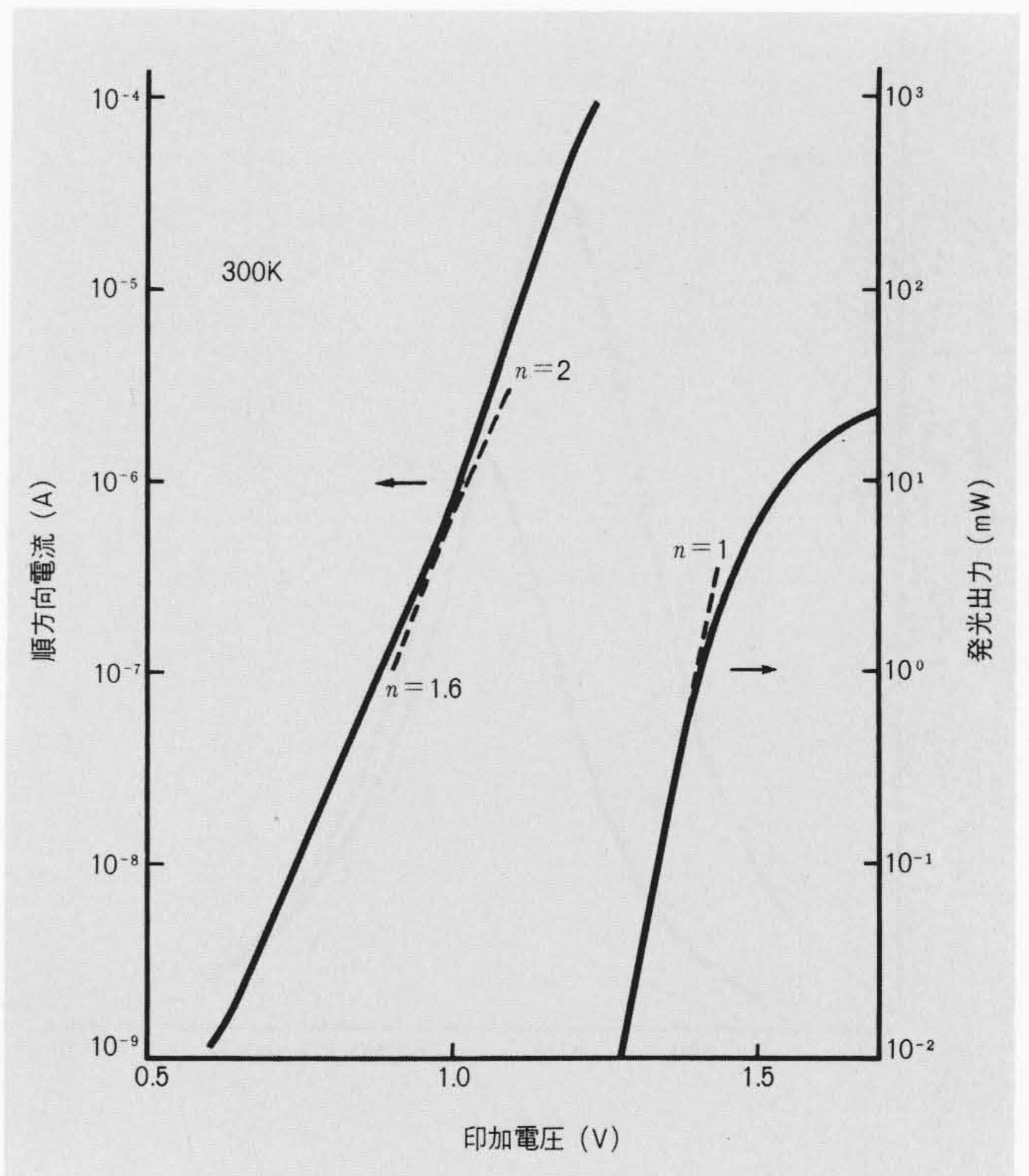


図6 順方向電流及び発光出力の印加電圧依存性 L-I特性をみると, 低電流領域では再結合電流が主であり大電流領域では拡散電流成分が発光に寄与していることが分かる。

波長及びスペクトル半値幅はYAGLEX-I, II形でそれぞれ $8,100 \pm 50 \text{ \AA}$ 及び $250 \pm 20 \text{ \AA}$, YAGLEX-III形で $8,000 \pm 50 \text{ \AA}$ 及び $300 \pm 20 \text{ \AA}$ である。

(2) 発光出力

図8にLEDの発光出力の電流依存性を示す。各曲線は、それぞれのタイプの中で平均的な出力を示す素子での測定値である。定格電流値(電流密度で $1,000 \text{ A/cm}^2$)における発光出力はI形で 10 mW , II形で 16 mW , III形で 32 mW である。光出力の電流依存性はI, II形で $10 \sim 120 \text{ mA}$, III形で $10 \sim 150 \text{ mA}$ の範囲で電流と比例しており、直線性は極めて良い。

図9は発光出力の温度による変化をみた結果である。LEDの発光出力の温度依存性は外部量子効率の温度依存性に一致すると考えてよい。一般に外部量子効率は、温度低下とともに指数関数的に増加する。LEDを冷却して使用する場合はジュール発熱による発光出力の低下現象を抑制できるために、室温使用の場合より大電流を流すことができ、最大光出力は更に増加するという利点がある。

図10にYAGLEX-III形の平均的な素子での室温における外部量子効率とパワー効率の電流依存性を示す。外部量子効率は 100 mA で最大となり、その値は 13.7% , パワー効率は 60 mA で最大となり、 12.5% である。発光効率はLEDの特性を知るうえで重要な要素であり、特に外部量子効率 η_{ext} はLEDの良否を直接反映するもので、これは次の三つの因子に分離して表わすことができる⁽¹⁰⁾。

$$\eta_{\text{ext}} = \eta_i \cdot \eta_g \cdot \eta_o \dots\dots\dots (5)$$

ここで η_i : キャリア注入効率

η_g : 結晶内部の光発生効率

η_o : 光取出し率

η_i はダイオードに流れる電流のうち発光に寄与する電流の割合で、本LEDでは $60 \sim 80\%$ と見積られる。また η_o は結晶内部での光吸収と表面反射効果⁽¹¹⁾ で定まり、本LEDでは約

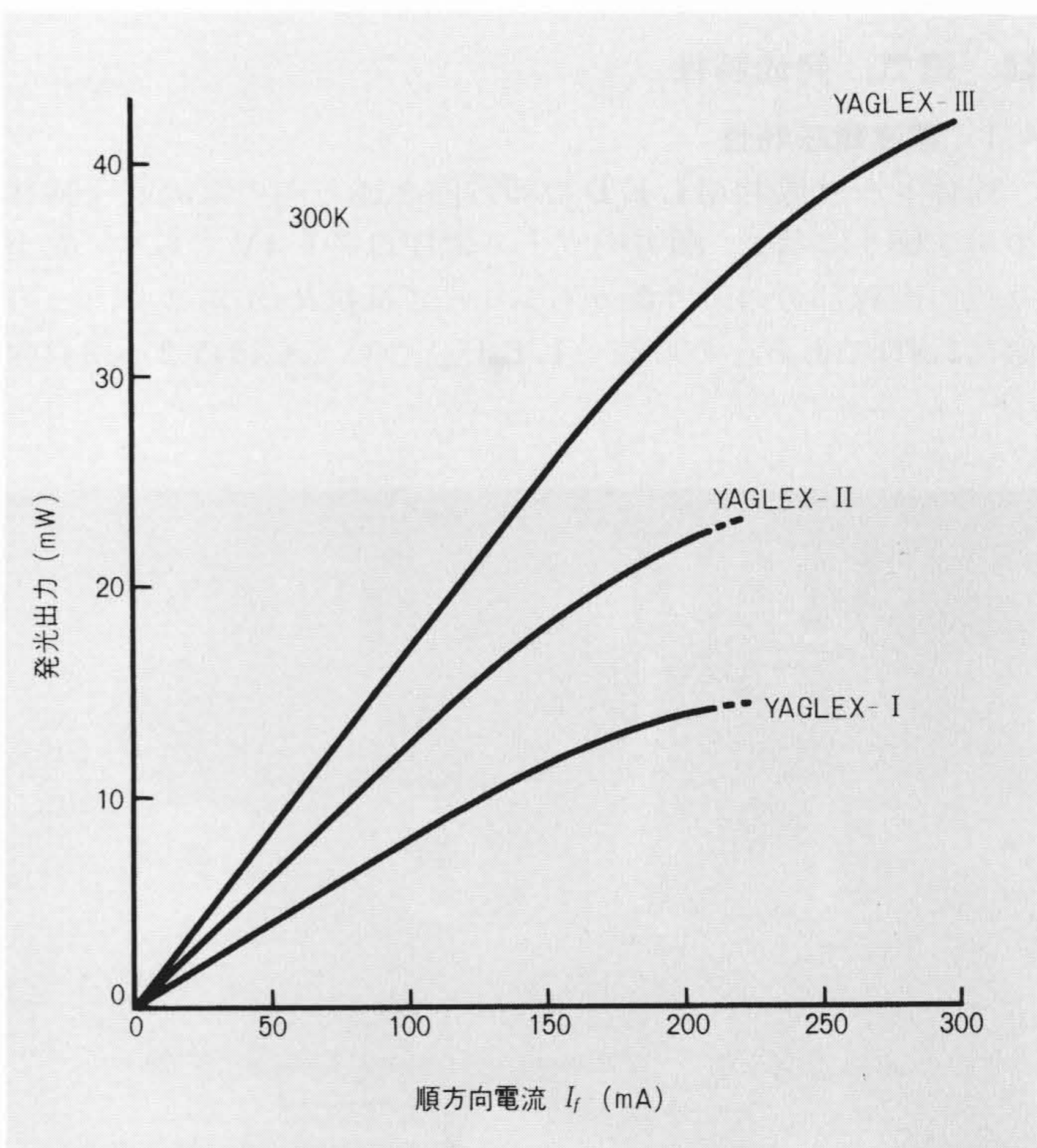


図8 発光出力の順方向電流依存性 YAGLEX-IIIは接合面積がI, IIの1.5倍としたため、発光出力が著しく増加しているのが分かる。

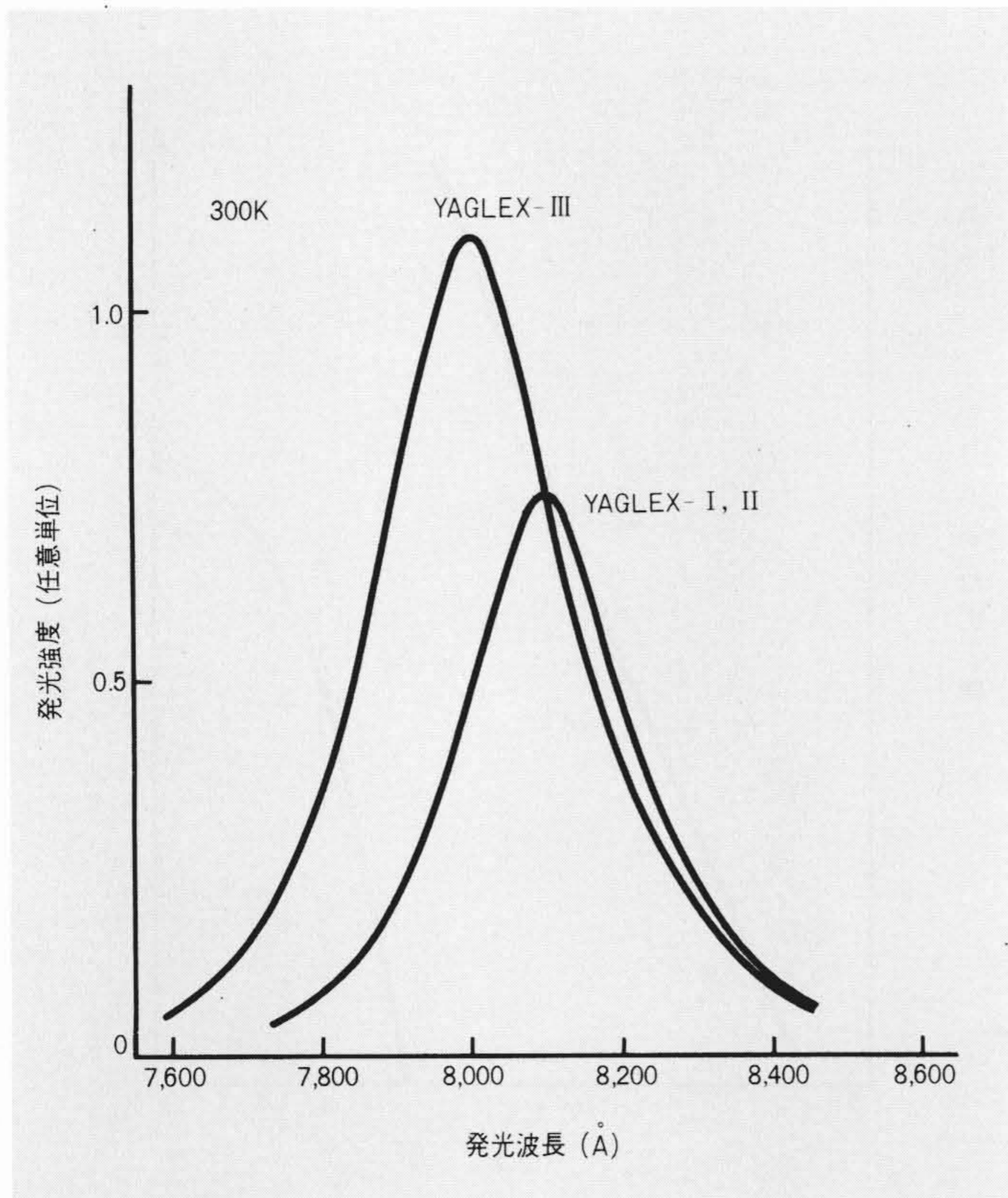


図7 発光スペクトル($T=300\text{K}$) YAGLEX-I, IIはYAG励起用, IIIはNdPP励起用で、各固体レーザ物質の吸収波長に合致していることが分かる。

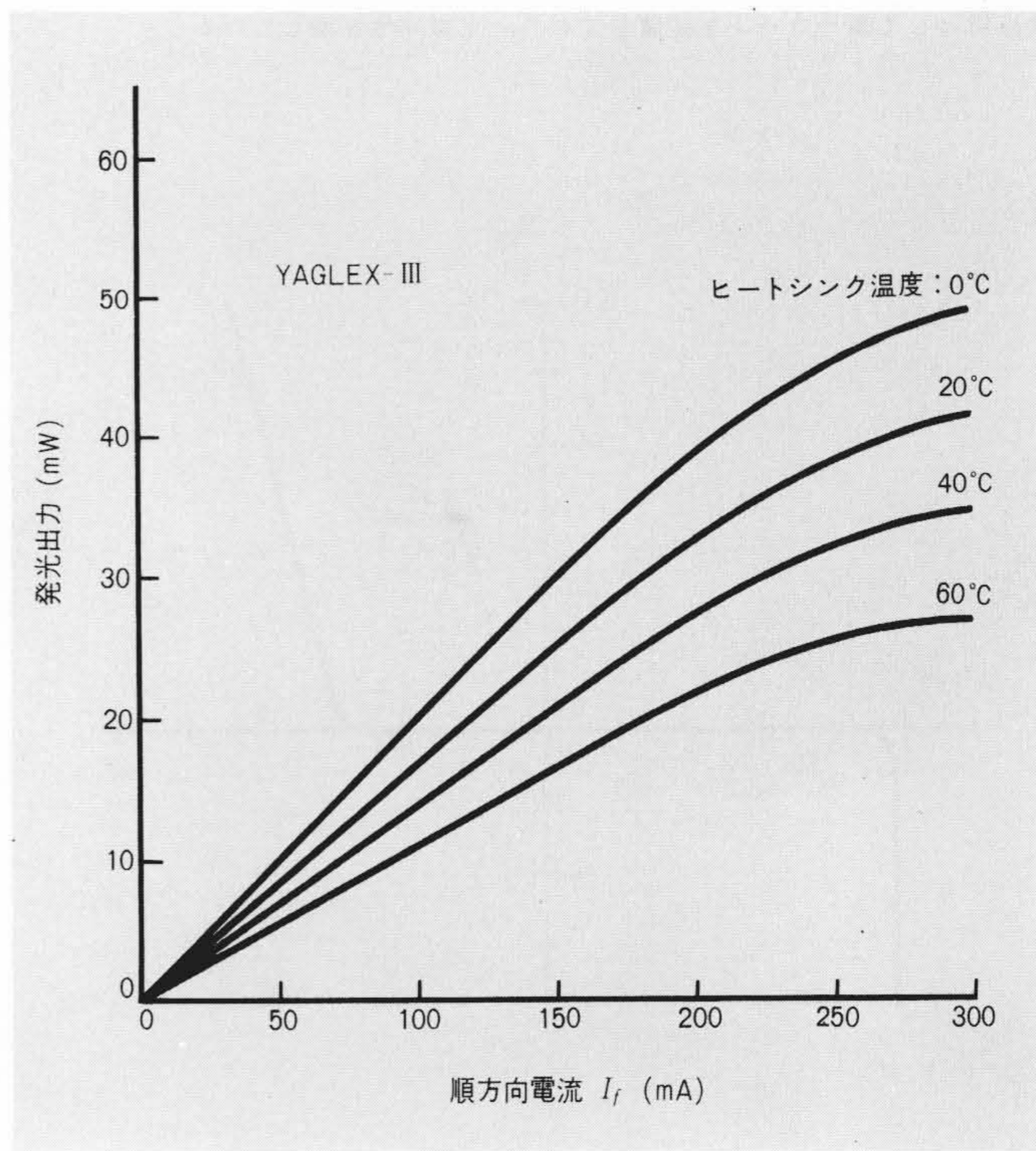


図9 温度をパラメータとした発光出力の順方向電流依存性 ヒートシンク温度が低いほど発光出力が増加し、光出力の飽和現象が少なくなるのが分かる。

30%の値が計算で求まる。 η_g の値は η_{ext} の値(最高値18.5%)から計算すると約80%という値が推測される。

図11はYAGLEX-III形の発光出力分布を示したグラフで、定格電流200mA、室温で平均光出力32mWをピークとしたガウス分布を示している。今までに得られた最大光出力は、80mW(電流420mA, DC)であり、これは現在までにこの種LEDで発表されたなかで世界最高のレベルに相当する。

(3) 発光指向特性

発光の指向性は半球状部分の形状、あるいは集光用コーンの角度によって大きく影響される。半球状部分にきずがあると、そこで乱反射して見掛け上光出力が低下する。図12はLEDからの放射光の発光指向特性の例である。YAGLEX-I, III形の場合は光の放射はほぼ等方的であり、傾角60度までは出力はほぼ一定である。YAGLEX-II形の場合は集光コーンを装着したことにより指向性が改善され、傾角20度で出力が半分になっている。集光コーン内面はAuが光沢めっきされており、これによる反射ロスは10~15%程度である。

4.3 寿命特性

LEDに定格電流1,000A/cm²を連続通電したまま室温に放置し、光出力の劣化状態を逐次測定した結果の例を図13に示す。組立条件の適当なLEDでは光出力の変化は同図に示すようにYAGLEX-I形で18,000時間、II形で8,500時間、III形で3,500時間経過後いずれも15%以内にある。組立条件が不適当で、熱抵抗の大きいLEDは数時間内に急激な光出力の減少を起し、劣化してしまう。これは発熱によって接合部に欠陥が発生したり、熱破壊が起こることが一因であると考えられる。

実際の通信用素子は10⁵~10⁶時間の寿命を要求されるが、これらのLEDにはこれを達成できる可能性が秘められている。

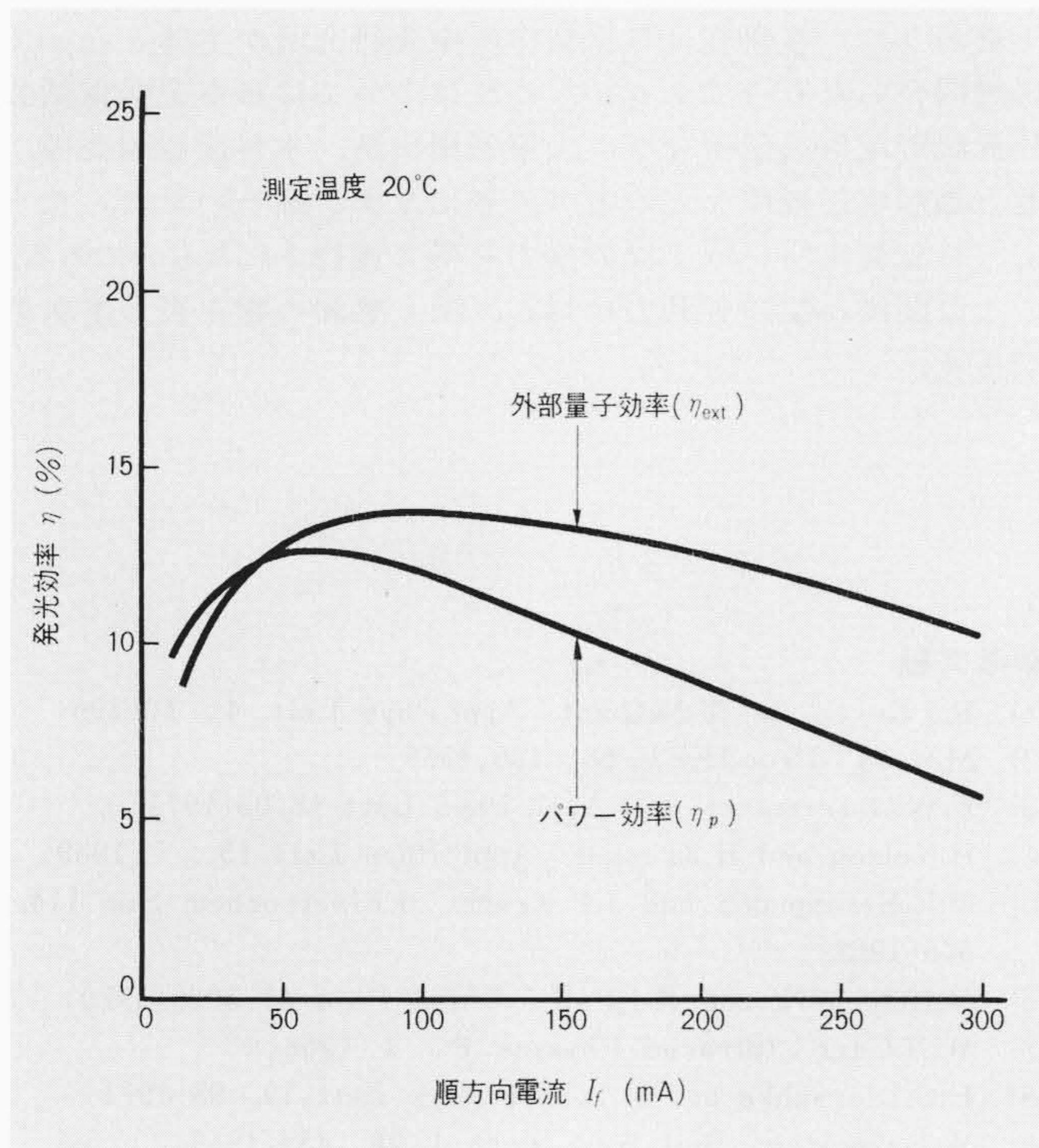


図10 発光効率の順方向電流依存性 外部量子効率及びパワー効率が、大電流領域で飽和し減少するのは、LEDの接合部で発生する熱が影響している。

4.4 応答速度

LED単体を光通信用変調光源として使用することも考えパルス応答特性を検討した。YAGLEX-Iの立上り、立下り時間は共に5~8nsであり、周波数応答性は-3dBで30~50MHzである。YAGLEX-II, IIIも同様の応答特性を示すものと考えられる。この時間を実質的に定めているのは、LEDの接合容量、浮遊容量、抵抗、伝送路のインピーダンスなどのほかに、p-n接合部における少数キャリアの寿命がある。この少数キャリアの寿命とLEDの光出力との関係を調べ、種類の光出力をもつLEDについて周波数応答特性を検討することは今後の課題である。

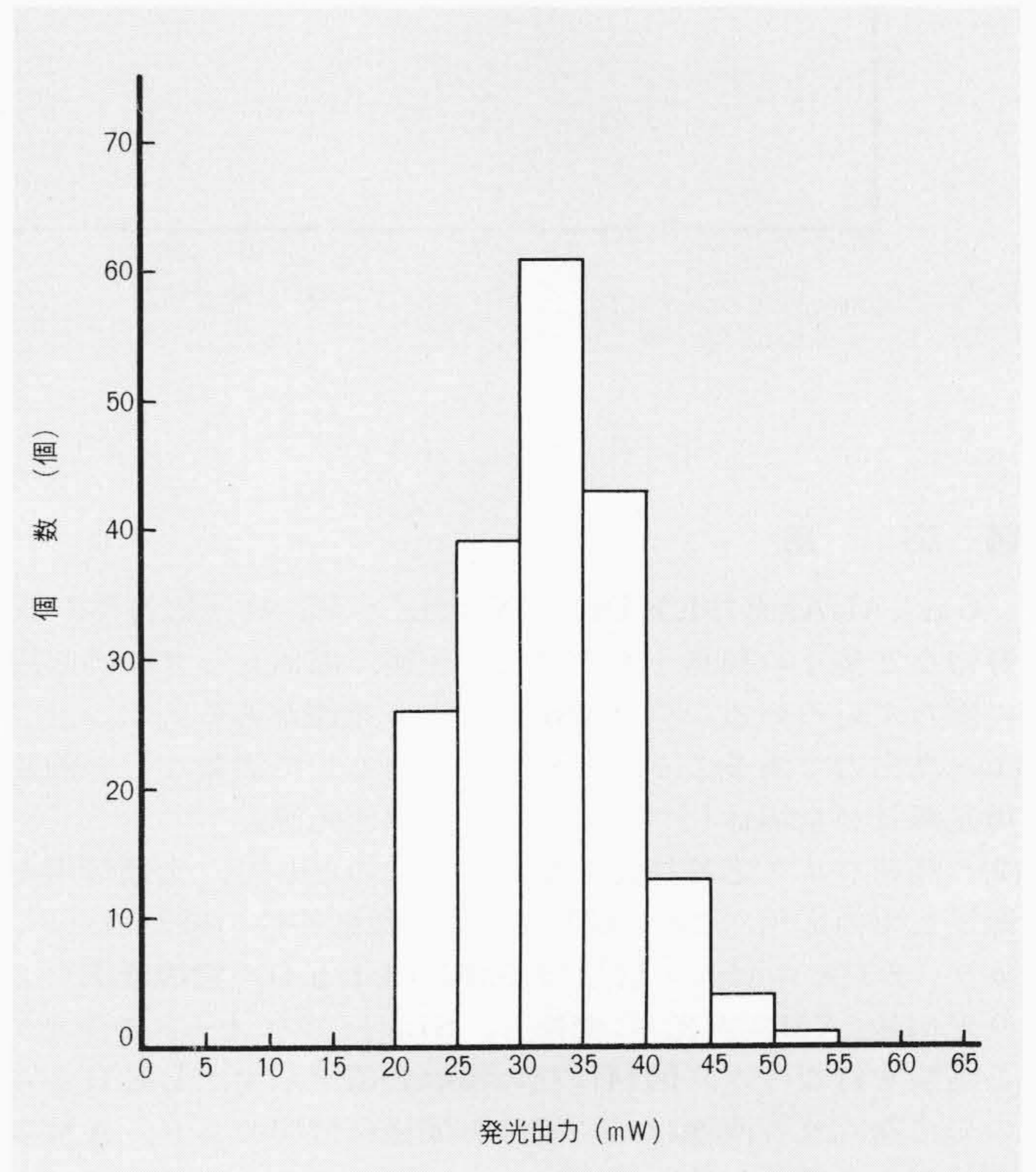


図11 YAGLEX-IIIの発光出力分布(T=20°C) YAGLEX-IIIの発光出力は平均値32mWをピークとしたガウス分布をしているのが分かる。

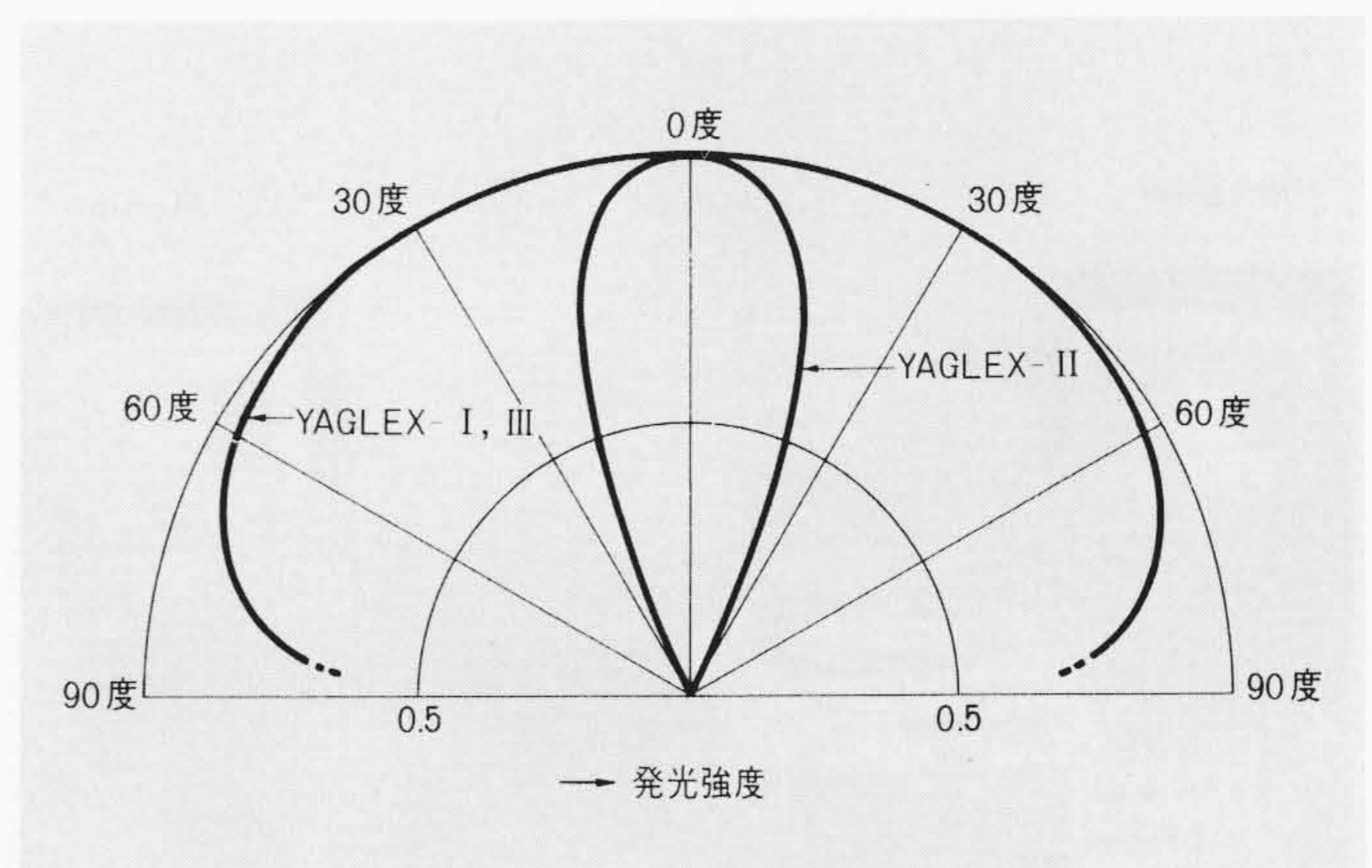


図12 発光の指向特性 YAGLEX-I, IIIは半球構造をそのまま反映して無指向性であり、YAGLEX-IIは集光コーンにより、全指向角は40度になっているのが分かる。

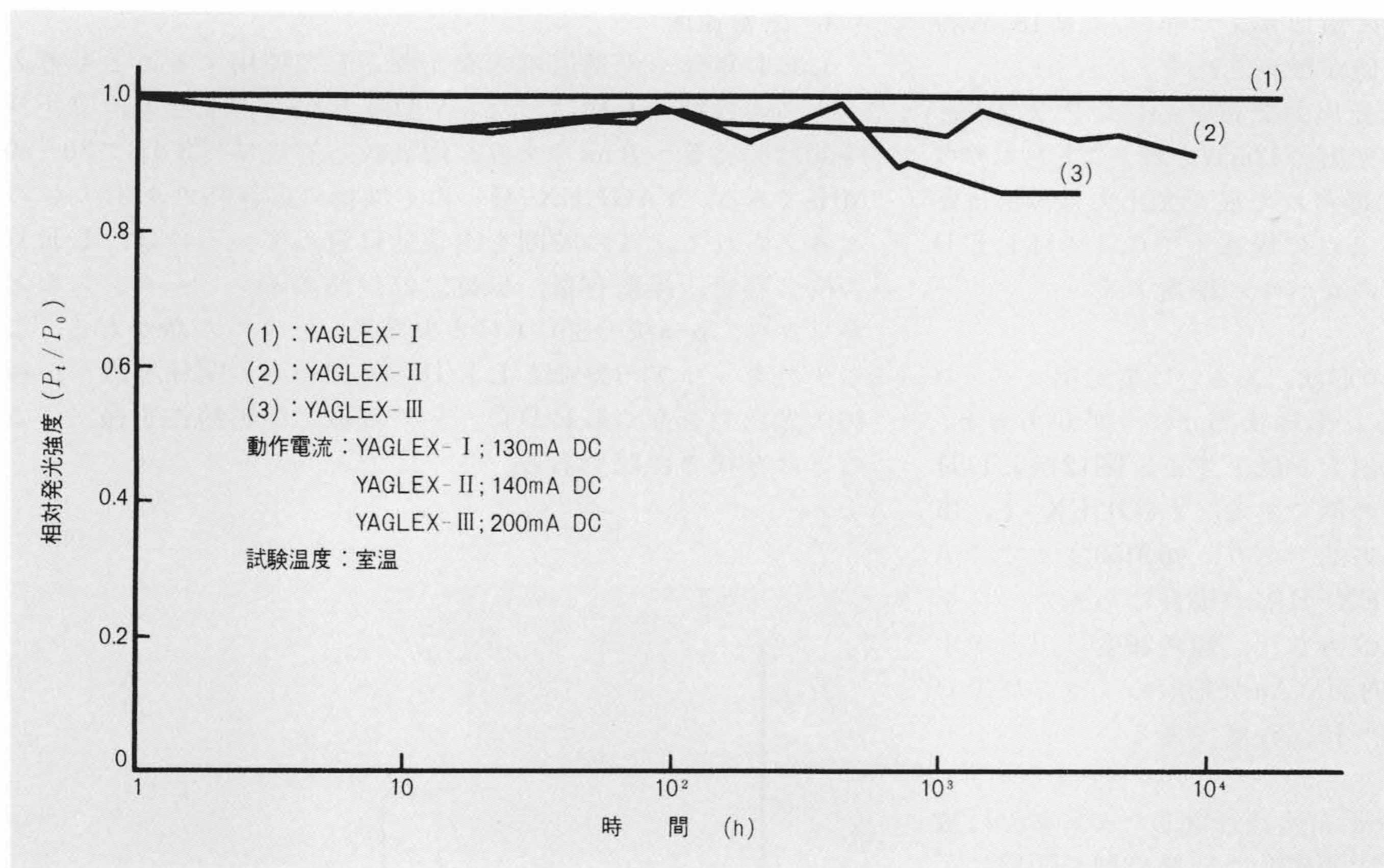


図13 YAGLEX-I, II, IIIの寿命特性 YAGLEX-I, II, IIIはいずれも発光出力の経時変化は少なく、良好な寿命特性をもっていることが分かる。

5 応 用

Ga_{1-x}Al_xAs赤外LEDは、高出力、小形、高速応答性、長寿命など多くの利点をもつので、今後、固体レーザの励起用に限らずいろいろの分野で使われる可能性がある。

- (1) 高出力であることを生かしたのとして測量などの測距用光源及び全固体化ファクシミルの照明光源。
- (2) 高速パルス応答特性を生かしたのとして、光通信用光源としての応用。これに関しては周波数応答性の確認のため、カラーテレビのビデオ信号(4.5MHz)をLEDの電流変調により光信号(AM変調光)に変換し、Siホトダイオードで受光する実験を行なった。図14にその実験装置を示す。LEDからの光で送られた画像は元の画像と同様に鮮明であり、AM変調に関する限りLEDはカラーテレビのビデオ信号の伝送に用い得る変調特性をもつことが示されている。

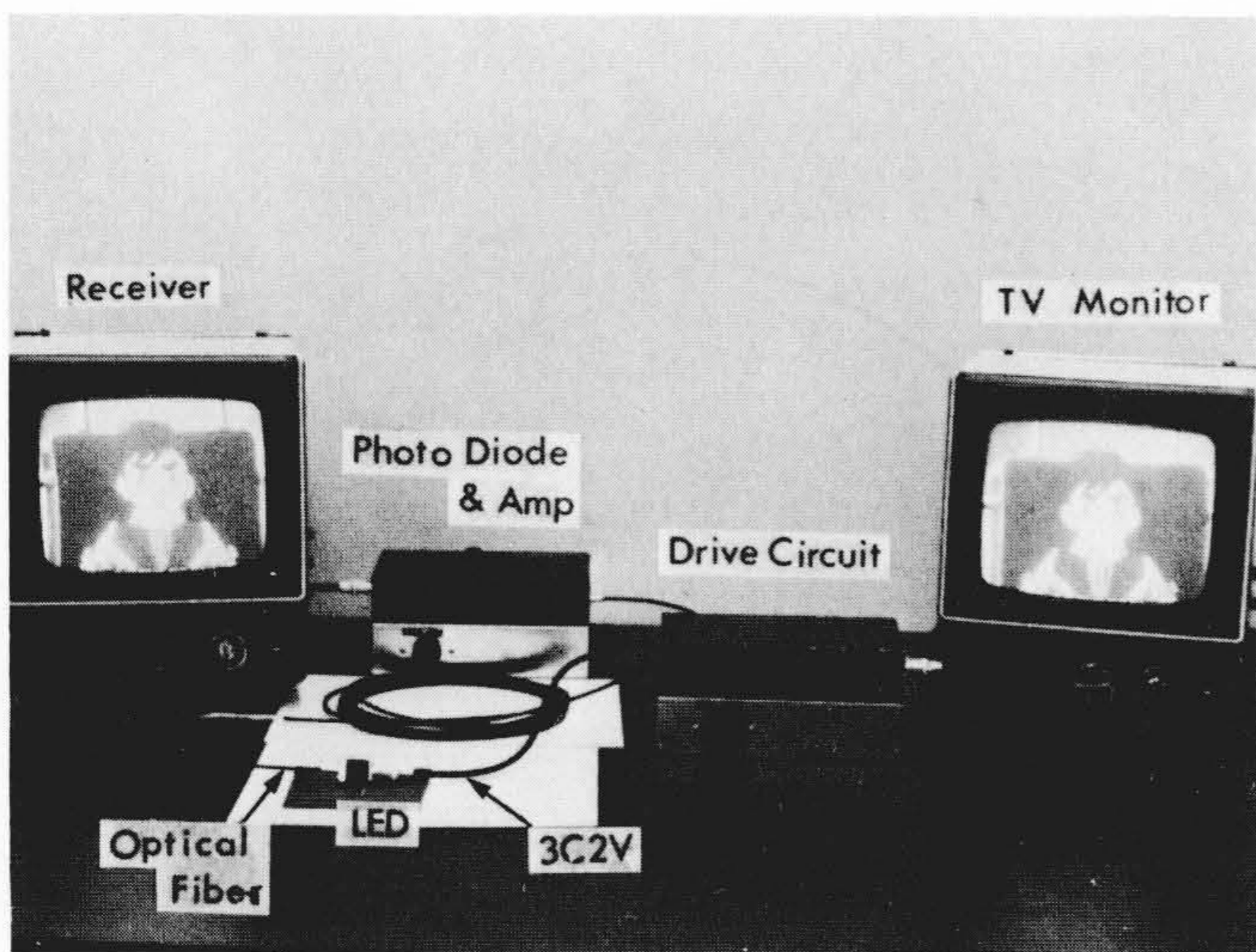


図14 LED光によるカラーテレビ信号の伝送実験 光源はYAGLEX-II形を使用し、受光はSi p-i-nダイオードを用い、その間の伝送経路はオプティカルファイバを用いた。

6 結 言

固体レーザ励起用光源としてGa_{1-x}Al_xAs高出力赤外発光ダイオード(YAGLEX-I, II, III形)を開発し、その構造設計、製造技術及び得られた諸特性につき説明した。

本LEDは性能的には励起用光源として十分な特性をもち、昭和49年にはYAGレーザの発振⁽¹²⁾にも成功しているが、今後、更に特性の向上及び安定化を実現するために改良を行なってゆく予定である。また励起用光源としてだけでなく、種類の応用分野の開発も期待できる。

終わりに、本研究は日立製作所中央研究所が主体となって研究開発したものであるが、これについては日本電信電話公社武蔵野電気通信研究所の大原省爾室長、木村達也調査役、池上徹彦室長補佐などの方々の適切な御討論をいただいたうえ、日立製作所戸塚工場の協力を得て遂行されたものである。ここに関係各位の御助力に対し、深く感謝の意を表わす次第である。

参考文献

- (1) R.J.Keyes and T.M.Quist : Appl.Phys Lett 4, 50(1964)
- (2) M.Ross : Proc.IEEE, 56, 196(1968)
- (3) F.W.Ostermayer, Jr : Appl. Phys Lett 18, 93(1971)
- (4) H.Nelson and H.Kressel : Appl Phys Lett. 15, 7 (1969)
- (5) M.E.Stranmanis and J.P.Krume : J.Electrochem. Soc 114, 640(1967)
- (6) M.Ettenberg and R.J.Paff : J.Appl Phys 41, 3926(1970)
- (7) W.N.Carr : Infrared Physics 6, 1 (1966)
- (8) E.G.Dierschke et al : Appl Phys Lett. 19, 98(1971)
- (9) W.Schockley : Bell Syst Tech J. 28, 435(1949)
- (10) H.D.Edmonds et al : Appl Phys Lett. 23, 382(1973)
- (11) K.J.Linden : Infrared Physics 10, 141(1970)
- (12) 齊藤, 木村ほか : 「LED励起Nd-YAGレーザ」第22回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 2a-K-6, 260 (昭50-4)