

ZnO 薄膜の誘導放出における励起子利得機構

Excitonic gain mechanism of the stimulated emission from ZnO thin film

神戸大¹, 物材機構² ○松崎 涼介¹, 安達 裕², 内野 隆司¹

Kobe Univ.¹, NIMS², Ryosuke Matsuzaki¹, Yutaka Adachi², Takashi Uchino¹

E-mail: 177s225s@stu.kobe-u.ac.jp

【緒言】ZnO は室温において比較的大きな励起子結合エネルギー(60 meV)を有することから、励起子発光に基づく室温誘導放出を利用した光レーザー発振媒体への利用が期待される。我々は膜厚数マイクロメートルの ZnO 薄膜において、励起子-電子散乱に基づく室温誘導放出を観測し[1], 励起子誘導放出過程が、キャリア濃度及び温度に依存することを前回の学術講演会で報告した[2]。本研究では、励起子誘導放出過程の温度及び励起子密度依存性についてさらに詳しく解析するとともに、ゲインスペクトルを測定することによって、励起子誘導放出の利得機構についての考察を試みた。

【実験】試料は、PLD 法によってサファイア基板上に作製した、膜厚 2707 nm の c 軸配向 ZnO 薄膜を使用した。この薄膜試料について、ナノ秒パルス Nd:YAG レーザーの第 3 高調波(355 nm)を用いて、0.052–78 mJ/cm² の励起フルエンス域、および 3–300 K の温度域で発光スペクトル測定を行った。また、室温でのゲインスペクトルを variable stripe length (VSL) 法 (ストライプ幅 50–1000 μm) を用いて測定した。

【結果と考察】まず、励起フルエンスを 10 mJ/cm² で一定とした場合における誘導放出ピーク位置の温度依存性を Fig. 1 に示す。図中の 3 本の曲線は、励起子-1LO フォノン過程 (X-1LO), 束縛励起子-1LO フォノン過程 (D⁰X-1LO), 励起子-電子散乱過程 (X-e) の発光エネルギーの温度変化の理論値をそれぞれ表している[3]。温度の上昇とともに誘導放出過程が X-1LO (3–40 K), D⁰X-1LO (40–140 K), X-e (140–300 K) と段階的に移り変わっていくことがわかった。これらの励起子誘導放出過程は、測定温度に依存してそれぞれ異なる発振閾値を有する。そこで、発光スペクトルの励起フルエンス依存性を各温度で測定した。Fig. 2 に誘導放出ピーク位置および発振閾値に基づいて作成した薄膜試料における励起子誘導放出過程の相図を示す。縦軸は励起フルエンスおよびその値から計算される電子-正孔対密度の理論値を表している[1,4]。140 K 以下の温度域では励起子-励起子散乱過程 (X-X) などの複数の励起子過程が誘導放出に関与する一方、140 K 以上の温度域では励起子-電子散乱過程 (X-e) のみが支配的になるということが明らかとなった。最後に、室温での光学利得を求めるために、ゲインスペクトル測定を行った。その結果、ゲインスペクトルの形は発光スペクトルの形をよく反映し、励起フルエンス 10 mJ/cm² において、発光ピーク波長付近で光学利得係数 179 cm⁻¹ の値が得られた。

【参考文献】

- [1] R. Matsuzaki *et al.* *Phys. Rev. B* **96**, 125306 (2017).
- [2] 松崎涼介, 安達裕, 内野隆司, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, [20a-G203-6] (2018).
- [3] C. Klingshirn *et al.* *Phys. Rev. B* **75**, 115203 (2007).
- [4] C. Klingshirn *et al.* *Phys. Status Solidi B* **247**, 6 (2010).

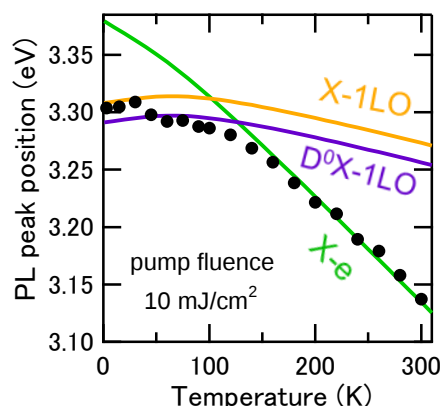


Fig. 1. Temperature dependence of the peak energy of the stimulated emission spectra measured for a pump fluence of 10 mJ/cm². Solid curves show the theoretical peak positions of different excitonic processes.

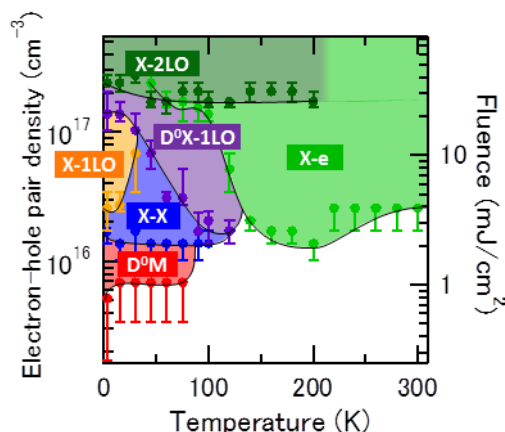


Fig. 2. Phase diagram of excitonic stimulated emission from the ZnO film with thickness of 2707 nm