

ZnO 中の Hot exciton による誘導放出

Stimulated emission in ZnO derived from hot excitons

神戸大理¹, NIMS² 松崎涼介¹, 藤井柊介¹, 辻村拓哉¹, 安達 裕², 内野隆司¹

Kobe Univ.¹ NIMS² Ryosuke Matsuzaki¹, Shusuke Fujii¹, Takuya Tsujimura¹, Yutaka Adachi² and

Takashi Uchino¹ E-mail: uchino@kobe-u.ac.jp

【緒言】ZnO は、60 meV という高い励起子結合エネルギーを有することから、これまで ZnO の励起子発光、ならびに誘導放出現象に関する数多くの研究がなされてきた。ZnO の室温での励起子誘導放出は、従来、励起子-励起子散乱に由来すると考えられてきた。しかし、近年、室温誘導放出は、励起子過程よりも電子正孔プラズマ過程の方が優勢であるという理論、実験結果も報告され[1]、その物理的起源は十分に明らかになっていない。我々は、2017 年にマイクロメートルオーダーの ZnO 薄膜や微粒子が、電子正孔プラズマ発光を含まない、純粋な励起子誘導放出を示すことを報告した[2]。さらに、マイクロメートルオーダーの ZnO 薄膜では、励起子誘導放出過程が、温度の上昇と共に、励起子-励起子散乱過程から励起子-電子散乱過程へと移行する（以降温度約 150 K）ことも報告した[2]。このように、マイクロメートルオーダーの ZnO 薄膜は、ZnO の励起子発光過程を解析する上で、理想的な材料であるといえる。本発表では、マイクロメートルオーダーの ZnO 薄膜が、150 K 以下の低温域で、hot exciton に由来すると思われる誘導放出現象を示すことを見出したので、その結果について報告する。

【実験】試料には、Pulsed Laser Deposition (PLD)法により *a* 面サファイア基板上に成長させた膜厚 2.7 μm の ZnO 薄膜を用いた。この試料の発光スペクトルを、ナノ秒パルスレーザー（パルス幅 10 ns）の第三高調波（355 nm）および第四高調波（266 nm）を励起源として、3 ~ 300 K の温度域で測定した。

【結果と考察】励起源として、いずれの高調波を用いても閾値約 200 kW/cm^2 で誘導放出が測定温度に依存せず観測された。第三高調波（355 nm）で励起した場合は、誘導放出スペクトルのピーク位置は励起レーザーのショットごとにほとんど変化はなかった。一方、第四高調波（266 nm）で励起した場合のみ、励起レーザーのショットごとに誘導放出のスペクトル形状、ピーク位置が顕著に変化するという現象が観測された（図 1 参照）。第四高調波で励起した場合は、大きな運動エネルギーを有するいわゆる、hot exciton が生成すると考えられる。したがって、ショットごとのスペクトルの変化は、hot exciton が関与した誘導放出に由来すると推察される。

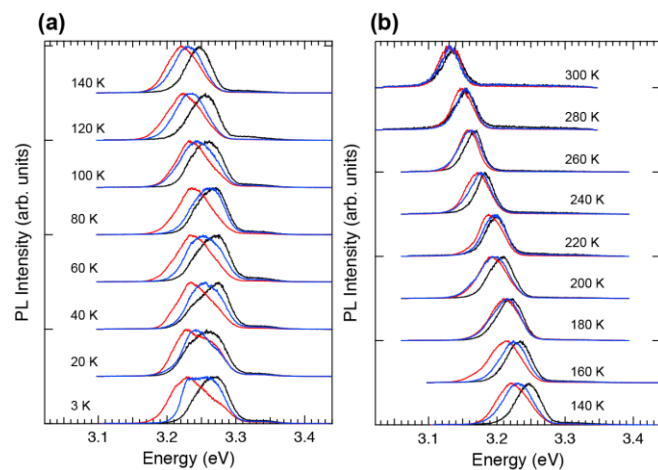


FIG. 1. Shot-to-Shot variations of the stimulated emission spectra of a micrometer-thick ZnO film measured in the temperature region from 3 to 300 K under excitation with the fourth harmonic of a Nd:YAG laser (266 nm).

- [1] C. Klingshirn *et al.* Phys. Rev. B **75**, 115203 (2007); M. A. M. Versteegh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 157402 (2012). [2] R. Matsuzaki *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 125306 (2017).