

Mg 添加 ZnO マイクロ薄膜の励起子結合エネルギーの算出と 誘導放出利得スペクトルの測定

Measurements of exciton binding energy and stimulated emission gain spectra of Mg-doped ZnO micrometer-thick films

神戸大理¹, 物材機構² ◯(M1)藤井 柊介¹, 安達 裕², 内野 隆司¹

Kobe Univ.¹, National institute for Materials Science², ◯S. Fujii¹, Y. Adachi², T. Uchino¹

[緒言] 近年, 我々は Mg を微量添加しバンドギャップを増大させた酸化亜鉛薄膜(膜厚 μm 以上)の室温励起子誘導放出過程が, 非ドープ ZnO マイクロ粒子や薄膜の励起子-電子散乱[1, 2]とは異なり, 励起子-励起子散乱に由来することを報告した[3]。この違いは Mg 添加による励起子結合エネルギー(E^b)の増加によって生じると考えられる。しかし, E^b の値を実験的に測定するには至っていない。そこで, 本研究では 5–300 K の温度域で光学バンドギャップを求めることで, より精度よく E^b を決定することを試みた。さらに, Mg 量の定量のため, 共鳴ラマンスペクトルを測定すると共に, 室温での光学利得を求めるため VSL (Variable Stripe Length)法によりゲインスペクトルを測定した。

[実験] 測定試料は PLD (Pulsed Laser Deposition)法で作製した 2 種類の Mg 添加量の異なる Mg 添加 ZnO マイクロ薄膜と非ドープ ZnO マイクロ薄膜を用いた[3]。これらの試料につき, 光吸収スペクトル (5–300 K), 共鳴ラマンスペクトル (室温), ゲインスペクトル (室温)を測定した。ゲインスペクトル測定における励起源には Nd:YAG ナノ秒パルスレーザーの 3 倍波(波長 355 nm)または 4 倍波(波長 266 nm)を使用した。

[結果] Fig. 1 に共鳴ラマンスペクトル測定の結果を示す。ILO フォノンのラマンシフト値と Mg 濃度との関係式[4]から, 2つの Mg 添加試料中の Mg 濃度を 6%, 11%と定量した。以降それぞれの試料を $\text{Zn}_{0.94}\text{Mg}_{0.06}\text{O}$, $\text{Zn}_{0.89}\text{Mg}_{0.11}\text{O}$, 非ドープ ZnO マイクロ薄膜を ZnO と表記する。Fig. 2 に光吸収スペクトルの T_{auc} プロットより算出した光学バンドギャップ E_g の温度依存性を示す。Fig. 2 より, Mg 濃度の増大に伴う E_g の増加が確認された。また, E_g の温度依存性は次式[5]により表現できることが分かった。

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{1}{\exp\left(\frac{k}{\theta}\right) - 1} \quad (1)$$

k は定数, θ は平均フォノン振動数に関する温度パラメータである。これらの結果と低温 PL スペクトル測定[1]の結果より, 総合的に判断し, $\text{Zn}_{0.94}\text{Mg}_{0.06}\text{O}$ と $\text{Zn}_{0.89}\text{Mg}_{0.11}\text{O}$ の E^b を $75 \pm 5 \text{ meV}$, $115 \pm 10 \text{ meV}$ と算出した。したがって, Mg 添加 ZnO 試料では, 励起子の熱安定性が向上し, これが誘導放出過程の違いとなって表われると結論づけられる。

室温でのゲインスペクトルの測定結果を Fig. 3 に示す。発光スペクトルの形状とほぼ相当したゲインスペクトルが得られたことから, いずれの試料についても室温で誘導放出が生じていることがあらためて確認された。

[1] R. Matsuzaki, H. Soma, K. Fukuoka, K. Kodama, A. Asahara, T. Suemoto, Y. Adachi, and T. Uchino. *Phys. Rev. B* **96**, 125306 (2017).

[2] R. Matsuzaki and T. Uchino, *J. Appl. Phys.* **124**, 063103 (2018).

[3] 藤井他, 第 79 回応用物理学会学術講演会 (2018) 20a-135-2

[4] J. D. Ye, *et al. Appl. Phys. Lett.* **91**, 091901 (2007).

[5] L. Wang, *et al., J. Appl. Phys.* **94**, 2 (2003).

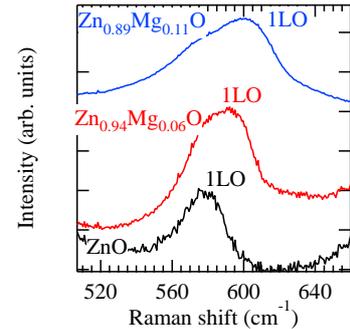


Fig. 1. Resonant Raman spectra of ZnO (black line), $\text{Zn}_{0.94}\text{Mg}_{0.06}\text{O}$ (red line) and $\text{Zn}_{0.89}\text{Mg}_{0.11}\text{O}$ (blue line).

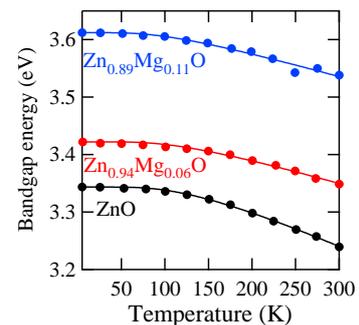


Fig. 2. Temperature dependence of optical bandgap energy for $\text{Zn}_{0.81}\text{Mg}_{0.11}\text{O}$ (blue circles), $\text{Zn}_{0.94}\text{Mg}_{0.06}\text{O}$ (red circles) and ZnO (black circles). The solid lines show fits of the data to Eq. (1).

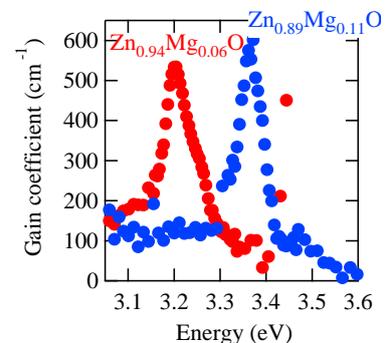


Fig. 3. Gain spectra of $\text{Zn}_{0.94}\text{Mg}_{0.06}\text{O}$ (red circles) and $\text{Zn}_{0.89}\text{Mg}_{0.11}\text{O}$ (blue circles).