

ZnO:Ga 薄膜の誘導放出機構

Mechanism of stimulated emission of ZnO:Ga thin films

神大理¹, 物材機構² ○(M1)田代 愛佳¹, 安達 裕², 内野 隆司¹

Kobe Univ.¹, National Institute for Materials Science², ○A. Tashiro¹, Y. Adachi², T. Uchino¹

E-mail: 211s212s@stu.kobe-u.ac.jp

【緒言】酸化亜鉛は、直接遷移型Ⅱ-VI族ワイドギャップ半導体であり、約 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、励起子発光を用いた半導体レーザーへの応用が期待されている。近年、我々の研究グループは、ZnO 薄膜の誘導放出過程に及ぼす膜厚効果[1]、及び Mg ドープに伴うバンドギャップ変調効果[2]について報告した。本研究では、Ga ドープ ZnO 薄膜を用いて、Ga イオンドープによるキャリア濃度の増加とその結果生じる見かけ上のバンドギャップの増大が ZnO 誘導放出特性に与える効果について調べた。

【実験方法】試料にはパルスレーザー蒸着 (PLD) 法により作製した膜厚 249 nm の非ドープ ZnO 薄膜と膜厚 207 nm の Ga 0.1%ドープ ZnO 薄膜を用いた。以下それぞれを ZnO 膜、GZO 膜と記載する。これらの試料のキャリア濃度をホール測定によって調べた。さらに発光スペクトルを、励起源に波長 355 nm パルス幅 10 ns の Nd:YAG レーザーを使用し、温度域 3-300 K、励起フルエンス域 0.026-39 mJ/cm² で測定した。

【結果】ホール測定の結果、ZnO 膜と GZO 膜のキャリア濃度はそれぞれ $2.7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 、 $9.2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ であり、Ga 添加に伴うキャリア濃度の増大が確認できた。Fig. 1 に、3 K における ZnO、GZO 薄膜の PL スペクトルの励起フルエンス依存性を示す。両試料で、低フルエンス領域では 3.36 eV 付近に束縛励起子 (D^0X) に由来する自然放出の発光ピークを観測した。これは、自然放出過程では両試料の励起子発光過程に差がないことを示している。フルエンスが 1.0 mJ/cm² を超えると低エネルギー側に誘導放出に由来する鋭敏なピークが出現した。さらに、そのピークエネルギーは GZO 膜の方が ZnO 膜よりも高エネルギーであること、及び ZnO 膜の方がフルエンスの増大に伴うピークエネルギーのレッドシフトが大きいことが分かった。このレッドシフトは、光励起キャリアの増大の結果生じたバンドギャップ繰り込み (BGR) とそれに伴うバンドギャップ収縮に由来すると考えられる。Fig. 2 に、各試料の誘導放出ピークエネルギーの温度依存性を示す。3 K で確認された GZO 膜の誘導放出エネルギーの高エネルギーシフトは、200 K 程度までの高温域まで観測されることが分かった。GZO 膜ではキャリア濃度の増大により Burstein-Moss (BM) シフトが生じ、その結果、見かけ上のバンドギャップが増大する。今回観察された GZO 膜の誘導放出エネルギーの高エネルギーシフトは、この BM シフトによるバンドの構造の変化を反映したものであると考えられる。

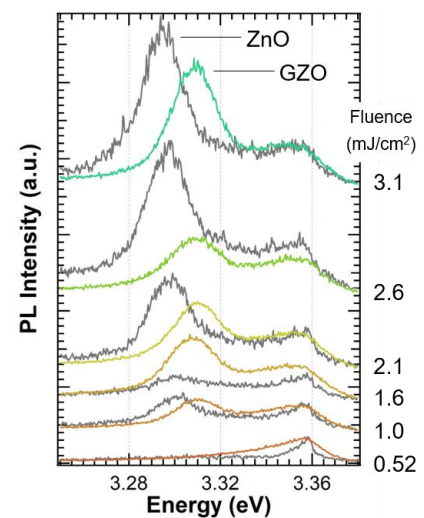


Fig. 1 Excitation fluence dependence of the 3 K PL spectra of ZnO (gray lines) and GZO (colored lines) films, respectively.

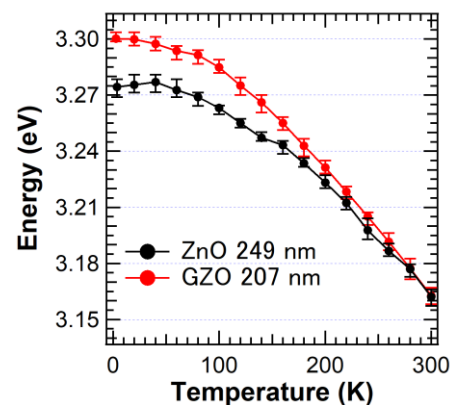


Fig. 2 Temperature dependence of the peak energy of the stimulated emission for ZnO and GZO. Excitation fluence is 10 mJ/cm².

[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] S. Fujii, Y. Adachi, and T. Uchino, Phys. Rev. B **102**, 075204 (2020)