

縮退 ZnO:Ga 薄膜中のフェルミエッジ異常と励起子生成

Fermi edge singularity and related exciton generation in degenerate ZnO:Ga thin film

神戸大¹, 物質・材料研究機構² ○(M1)田代 愛佳¹, 安達 裕², 内野 隆司¹Kobe Univ.¹, National Institute for Materials Science², °A. Tashiro¹, Y. Adachi², T. Uchino¹

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

【緒言】直接遷移型 II-VI 族ワイドギャップ半導体である酸化亜鉛は、約 60 meV と高い励起子結合エネルギーを持つことから、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。近年我々は、薄膜の膜厚効果[1]、ならびに Mg ドープに伴うバンドギャップ変調効果[2]が影響を及ぼす ZnO 薄膜の励起子誘導放出過程を明らかにした。一般に、このような励起子由来の光学過程は、キャリア濃度が Mot 密度 (約 $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) を超えると励起子が解離するため観測されないと考えられてきた。しかし、Mot 密度以上の試料であっても、光励起で生じた 1 個の局在化した正孔と伝導帯中の Burstein-Moss シフトによって上昇したフェルミエネルギー近傍の複数の電子との相互作用により、フェルミエッジ付近の異常吸収とそれに伴う励起子 (Mahan 励起子) 生成が起こりうるという考えもまた提唱されている[3,4]。そこで本研究では、Mott 密度以上の ZnO 薄膜の光学特性を調べるため、高 Ga ドープ ZnO 薄膜の吸収・発光スペクトルを測定した。

【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 ZnO 膜、GZO 膜と記載する。これらの試料につき、ホール測定、光吸収スペクトル測定、PL スペクトル測定を行った。PL 測定は励起源に波長 355 nm パルス幅 10 ns の Nd:YAG レーザーを使用し、励起フルエンス域 0.52-39 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、Mott 密度を超える GZO 膜の生成が確認できた。Fig. 1 に GZO 膜の温度別光吸収スペクトルを示す。約 150 K 以下の温度域で、3.38 eV 近傍に新たなピークが生じることがわかった。このピークは緒言で述べたフェルミエッジ近傍の異常吸収によると推察される。事実、この吸収スペクトルはフェルミエッジ異常吸収を考慮した理論式でフィッティング可能であることが分かった。したがって、このピークは Mahan 励起子の生成に伴う吸収であると推察される。続いて、発光過程においても Mahan 励起子に由来する現象が現れるか調べるため、3 K における ZnO 膜、GZO 膜の発光スペクトルを測定した。その結果、両試料で励起子に由来する自然放出ピークを観測した。さらに、励起フルエンスの上昇に伴い、誘導放出に由来する発光を両試料で観測した。誘導放出ピークエネルギーを励起フルエンスの 3 分の 1 乗に対してプロットしたところ (Fig. 2) ZnO 膜では全フルエンス域で直線関係になり、この誘導放出は EHP 過程であることが分かった。一方 GZO では、8 mJ/cm² 以下のフルエンスでは、発光ピークエネルギーはフルエンスに依存せずほぼ一定値を取ることが分かった。したがって、8 mJ/cm² 以下のフルエンス領域において観測された GZO の誘導放出は EHP 過程ではなく励起子過程に由来すると考えられる。このような GZO の光吸収及び発光スペクトルの測定結果は、Mott 密度以上のキャリア濃度領域においても励起子 (Mahan 励起子) の生成が可能であるという理論予測を強く支持している。

[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). [3] G. D. Mahan, Phys. Rev. 163, 612 (1967). [4] T. Palmieri, E. Baldini, A. Steinhoff et al., Nat. Commun. 11, 850 (2020).

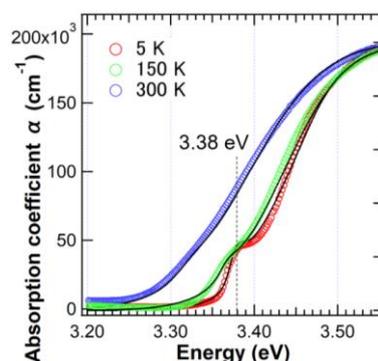


Fig. 1 Temperature dependence of the absorption spectra of the GZO film (open circles). The solid lines are the theoretical fits to the data.

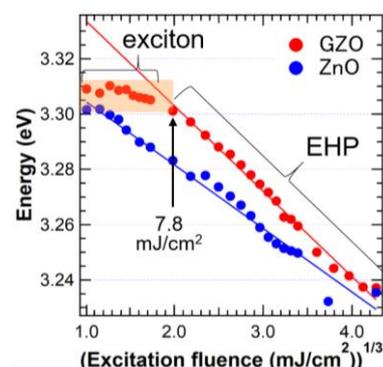


Fig. 2 The peak energies of the simulated emission bands of the GZO and ZnO films vs. one-third power of the excitation fluence.