極低温から室温までの励起子発光ダイナミクスの フォノン・励起子・輻射モデルによる解析

Exciton emission dynamics from cryogenic to room temperature analyzed by phononic-excitonic-radiative model

千葉大院工 ○(M2) 地崎 匡哉, 大木 健輔, 石谷 善博

Chiba Univ., °(M2)Masaya Chizaki, Kensuke Oki, Yoshihiro Ishitani

E-mail: ishitani@faculty.chiba-u.jp

電子正孔プラズマに比べて発光速度が速い励起子を利用した高効率な発光デバイスの開発が期待されている。励起子の発光ダイナミクスの研究で,励起子の輻射寿命 τ_{rad} の様々な温度依存性が報告されており[1],近年では結晶品質の向上に伴って広い温度範囲で温度 T の 3/2 乗に比例する報告もされている[2,3]。 τ_{rad} の温度依存性が様々なのは,実験で用いられているサンプルの結晶性が異なるためであると考えられるが,結晶性のどの要素がどの様に τ_{rad} を決めているのか,そのメカニズムは明らかになっていない。我々は,励起子発光ダイナミクスの理論解析のために,半導体中の全エネルギー種とそれらの相互作用を含めたフォノン・励起子・輻射(PXR)モデルを構築した[4]。PXR モデルに結晶性による効果を取り入れた結果,自由励起子が束縛励起子よりポピュレーションにおいて優勢となる温度範囲においては,サンプルや実験条件によって異なるキャリア密度と,エネルギー準位のブロードニングの 2 つの複合効果が, τ_{rad} の温度依存性に強く反映されていることが明らかになった[5]。

これまでの我々の報告では、 τ_{rad} の温度依存性に影響し得る効果について述べてきたが、実験と計算結果との絶対値のずれがあった。また、励起子としては自由励起子(FX)を主に考えて、極低温での τ_{rad} の温度依存性については言及しなかった。本研究では、実験での極低温から室温までの輻射寿命 τ_{rad} の温度依存性を我々の計算で再現し、各温度における支配的な結晶性の効果を調べた。結晶性の効果として、非輻射再結合過程、キャリアトラップ、不純物ドーピング、束縛励起子(DBX)、励起子ポラリトン(XP)、およびエネルギー準位のブロードニング効果を取り入れた。極低温から温度が上昇していくと、輻射寿命の温度依存性へ寄与する励起子の種類は DBX から XP、FX へと移る。それ以上温度が上昇すると、励起子から連続状態への励起エネルギーの閾値がブロードニングによって減少し、ある温度で 1S 状態の励起子のみとなる。これ以上の温度範囲では 1S 励起子由来の 3/2 より大きな温度のべき数に比例する温度依存性が得られる。本研究の結果、励起子の τ_{rad} の温度依存性の決定要因が、結晶欠陥を含めてどの温度範囲でどの様に与えられるか、そのメカニズムが明らかになった。

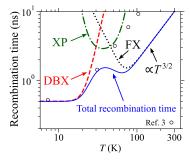


Fig. 1 Dependence of the recombination time of 1*S*-free exciton (FX), donor-bound exciton (DBX), exciton-polariton (XP), and total recombination time $\tau_{rec}(1)$ on temperature. Symbols denote the $\tau_{rad}(1)$ in Ref. [3].

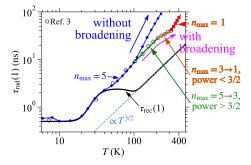


Fig. 2 Dependence of $\tau_{\rm rad}(1)$ on temperature obtained from the PXR model using recombination time in Fig. 1. Open symbols denote the $\tau_{\rm rad}(1)$ in Ref. [3]. $n_{\rm max}$ is the maximum of the principal quantum number n of exciton.

参考文献

- [1] J. S. Im et al., Appl. Phys. Lett. 70, 631 (1997). [2] K. Kawakami et al., Proc. of SPIE 9748, 97480S (2016).
- [3] S. F. Chichibu *et al.*, J. Appl. Phys. **123**, 161413 (2018). [4] K. Oki *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 205204 (2017).
- [5] M. Chizaki et al., J. Luminescence 243, 118603 (2022).