

縮退 ZnO:Ga 薄膜の電子-正孔プラズマによる低閾値室温誘導放出発光

Low threshold room temperature stimulated emission originating from electron-hole plasmas in degenerate ZnO:Ga thin films

神戸大¹, 物材機構² °田代 愛佳¹, 安達 裕², 内野 隆司¹

Kobe Univ.¹, NIMS², °Aika Tashiro¹, Yutaka Adachi², Takashi Uchino¹

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

【緒言】直接遷移型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 E_g 変調効果[2] を受けた ZnO 薄膜の励起子誘導放出過程を明らかにした。一方、化学ドーピングによりキャリア濃度 n が Mott 密度 n_M (約 $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) を超えると、励起子が解離するため励起子由来の光吸収や発光は一般に観測されない。しかし、 n_M 以上の試料では、フェルミレベルが伝導帯中の深い位置に存在するため、非常に弱い光励起でも電子-正孔プラズマ(EHP)の光学利得条件を満たす可能性がある。本研究では、 n_M 以上の Ga ドープ高品位 ZnO 薄膜を作製し、同薄膜からの室温での電子-正孔プラズマ由来の誘導放出を観測したので、その結果を報告する。

【実験方法】試料には、パルスレーザー蒸着 (PLD) 法で作製した Ga ドープ縮退 ZnO 薄膜 ($n = 8.8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) を用いた。この試料に対して、光吸収測定とフェムト秒パルスレーザーを用いた PL 測定を行った。光吸収測定は 10 K から 313 K の温度域で行った。PL 測定は、励起源に Ti:sapphire レーザー (パルス幅 150 fs, 励起波長 $\lambda = 332 \text{ nm}$), 検出器にストリークカメラを用いて室温および 6 K で行った。

【結果】Fig. 1 に温度別光吸収スペクトルを示す。室温で 3.7 eV 近傍に吸収増大を観測し、その強度は温度低下に伴って増大した。本試料中に励起子は存在しないため、この強度変化はフェルミ面近傍の電子の多体効果によるものと考えられる。Mahan[3]は、フェルミ面付近での吸収強度 $\alpha(\omega)$ は次のべき乗則に従うと予測した。

$$\alpha(\omega) = \alpha_0(\omega) \left\{ \frac{\xi_0}{\omega - \omega_c} \right\}^{2.4}$$

ここで、 ω_c はフェルミ準位に相当するエネルギーの角振動数、 Δ は電子と正孔間の相互作用を反映したパラメータであり、 n の増大及び温度の増大と共に減少する。実験結果はこの理論的予測と矛盾しない。Fig. 2(a), (b) に ZnO:Ga 薄膜の室温 PL スペクトルと PL ピーク積分強度の励起フルエンス依存性を示す。0.15 mJ/cm^2 までの低フルエンス域では、3.38 eV 付近にドナー-アクセプター対再結合と推測される自然放出ピークを観測した。0.31 mJ/cm^2 になると、自然放出ピークの高エネルギー側に新たな鋭いピークが出現した。発光積分強度は、閾値約 0.3 mJ/cm^2 で急激な上昇を示したことから (Fig. 2(b)参照), この高エネルギー発光は誘導放出であると考えられる。観測された閾値は、報告されている非ドープ ZnO 薄膜の励起子由来の誘導放出閾値と比較して一桁程度小さい。さらに、この発光ピークは、フルエンスの増大に伴いブロード化とレッドシフトを示した (a)参照)。以上の結果より、今回観測された誘導放出は、EHP に由来すると結論づけられる。発表では、低温での時間分解発光測定の結果なども踏まえ、今回見出した低閾値 EHP 誘導放出の機構についてより詳しく議論する。

[1] R. Matsuzaki, *et al.*, 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).

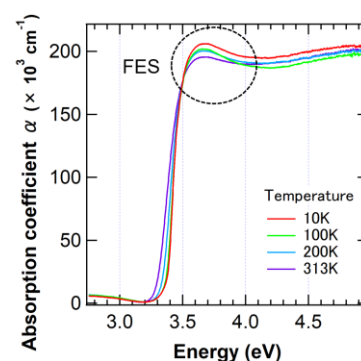


Fig. 1. Temperature dependence of the absorption spectra of ZnO:Ga film.

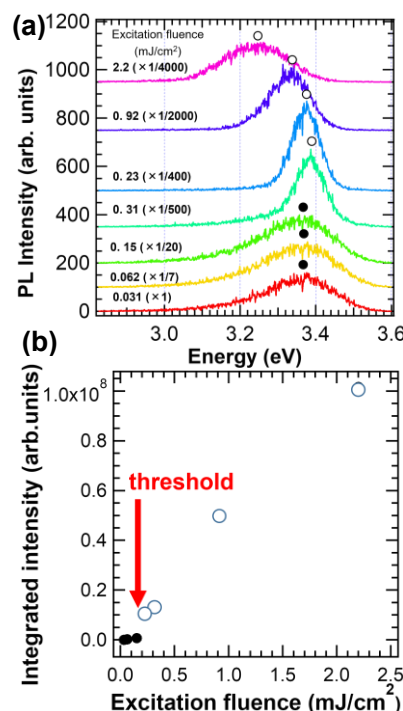


Fig. 2. Excitation fluence dependence of the (a) PL spectra and (b) integrated PL intensity of ZnO:Ga film at room temperature.