



Title	Study on confined biexciton properties in semiconductor quantum dots by two-photon excitation spectroscopy and mid-infrared transient absorption spectroscopy
Author(s)	宮島, 顯祐
Citation	大阪大学, 2004, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/657">https://hdl.handle.net/11094/657</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	宮島顕祐
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第18833号
学位授与年月日	平成16年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科物理系専攻
学位論文名	Study on confined biexciton properties in semiconductor quantum dots by two-photon excitation spectroscopy and mid-infrared transient absorption spectroscopy (二光子励起分光及び中赤外過渡吸収分光による半導体量子ドット中の閉じ込め励起子分子に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 伊藤 正 (副査) 教授 張 紀久夫 教授 小林 融弘

## 論文内容の要旨

半導体量子ドット中では、光励起によって生成された電子、正孔が空間的に閉じ込められることにより大きな相関関係を持つため、大きな非線形光学応答や、バルク結晶中では現れない特異な多励起子状態が現れることが期待される。本研究では、CuCl量子ドット中に閉じ込められた励起子分子状態に着目し、二光子共鳴励起分光及び中赤外過渡吸収分光によって、新たなエネルギー準位やその遷移過程を明らかにした。

量子ドット中の励起子分子では、これまで二光子吸収過程の報告はなかった。それは、ドットのサイズ分布による吸収帯の不均一拡がりにより、二光子吸収帯の判別が難しいためと考えられる。本研究では、励起子分子の励起光に対する偏光選択則を利用してことで、二光子吸収による励起子分子の直接生成過程を初めて確認した。さらに、二光子共鳴励起によって、励起子分子のサイズ選択励起が実現できることを示した。今後、励起子分子の量子サイズ効果の研究を行う上で、二光子励起が有効な励起子分子の励起過程であることが、本研究により明らかとなった。

次に、超高速ポンプープローブ分光による中赤外過渡吸収測定を行い、励起子及び励起子分子による吸収成分を観測した。閉じ込め励起子分子による赤外過渡吸収の観測は、本研究が初めてである。励起子分子による吸収エネルギー及びスペクトルは、単一励起子のリュードベリ1s-2p状態間の遷移を主とするそれと類似している。この結果から、観測された励起子分子の過渡吸収は、励起子分子を構成する励起子の1つがリュードベリ状態間の遷移を起こすことに起因していると思われる。水素分子では、このような遷移が起こると2つの水素原子は解離するが、量子ドット中では2つの励起子は完全に解離できないため、量子ドット特有の安定した励起状態を生成していると考えられる。本研究の結果は、量子ドット中の多励起子状態に対する閉じ込め効果の新しい物理的概念を与えた。

## 論文審査の結果の要旨

半導体量子ドット中では、光励起によって生成された励起子(電子正孔対)がナノ空間に閉じ込められることによ

り、そのコヒーレンスが顕在化し、様々な量子サイズ効果が現れる。特に、1つの量子ドット中に複数個の励起子を同時に生成した場合、荷電粒子間に働くクーロン力による強い相関のために大きな非線形光学応答やバルク結晶中では現れない特異な閉じ込め多励起子状態の出現が期待される。本論文では、塩化ナトリウム (NaCl) 単結晶中に担持された数ナノメートルのサイズの塩化第一銅 (CuCl) 量子ドット試料を用いて、量子ドット中に閉じ込められた2励起子の束縛状態である励起子分子状態に着目し、二光子励起分光及び中赤外過渡吸収分光によって、複数個の互いに相互作用する閉じ込め励起子状態が形成する新たなエネルギー準位やその光学遷移過程を明らかにしたものである。

はじめに、紫外、可視、赤外波長可変光源である光学パラメトリック增幅 (OPA) レーザーシステムをはじめとする2光子励起分光、中赤外過渡吸収分光実験装置の立ち上げを行った。特に OPA は複数の光増幅装置を組み合わせるために出力光の安定条件を維持する技術を有することが不可欠であり、このことにより本論文の以下の実験が可能となった。

まず、CuCl バルク結晶においては励起子分子の二光子励起による直接生成が可能である。しかし、量子ドット中の励起子分子に対しては、これまで二光子吸収過程の存在を示す証拠はなかった。本論文では、励起光として直線偏光または円偏光を用いて、二光子吸収の偏光選択則を利用することにより、全角運動量の異なる2種類の励起子分子状態を直接生成できることを初めて明らかにした。

次に、この二光子励起に伴う励起子及び励起子分子発光スペクトルの励起エネルギー依存性を解析し、二光子励起により励起子分子のサイズ選択励起が可能であることを示した。このことにより、励起子分子状態の非線形性やその緩和過程のサイズ依存性を研究する上で、二光子励起法が有力な手段であることを明らかにした。

さらに、超高速ポンプ・プローブ分光による中赤外過渡吸収分光測定の結果、閉じ込め励起子分子の励起状態吸収の観測に成功した。この励起状態吸収エネルギー及びスペクトル形状は、閉じ込め単一励起子のリュードベリ  $1s\text{-}2p$  状態間の遷移に伴うそれらと極めて類似している。この結果から、励起子分子の過渡吸収は主に分子を構成する励起子の1つがリュードベリ状態間の遷移を起こすことに起因していると考えられる。励起子分子のモデルとなる水素分子ではこのような遷移が起こると2つの水素原子は解離するが、量子ドット中では2つの励起子は閉じ込めにより解離できないため量子ドット特有の安定した励起状態を形成するものと考えられる。

このように本論文は量子ドット中の多励起子状態に対する閉じ込め効果について新しい物理的概念を与えたものであり、非線形光学現象の基礎及び応用研究の発展に寄与するところが大きく、博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。