

ポンププローブ分光法による
量子ドットの励起子スピン緩和ダイナミクス
(関西学院大・理工) ○田原 一彬, 奥畑 智樹, 玉井 尚登

Exciton spin dynamics in Quantum dots by pump-probe spectroscopy
(Kwansei Gakuin Univ.) ○Kazuaki Tahara, Tomoki Okuhata
Naoto Tamai

【序】半導体量子ドット(QDs)の量子スピン特性は、スピントロニクスや量子コンピュータなどの新たなデバイスへの応用が可能であり、近年非常に注目されている[1]。QDsのスピン特性は円偏光の光励起により容易に偏極させることが可能であり、さらにQDsのスピン緩和プロセスは三次元の量子閉じ込めによって大きく影響を受けるため、スピン緩和寿命はQDsのサイズや形状を変えたり、core-shell型構造にすることによって異なる特徴を見せることが知られている[2, 3]。CdSe ナノ結晶におけるキャリア特性のサイズ依存性は1990年代から研究が始められているが、MBEで作製したQDsに比べてコロイド合成したQDsのスピンダイナミクスは研究報告例が非常に少ない。そこで本研究ではコロイド合成したQDsのスピン緩和過程の解明を目指し、まずオレイン酸で保護したCdSe QDsを合成した。また合成した量子ドットを円偏光ポンププローブ過渡吸収分光システムを組み立て、スピン緩和ダイナミクスを測定しサイズ依存性を調べたので報告する。

【実験】オレイン酸を保護剤としてサイズの異なる3つのCdSe QDs (3.3 nm, 3.9 nm, 4.6 nm)を合成した。QDsの励起子スピン緩和は励起子微細構造の中における励起子遷移として理解することが出来るため、Optical Parametric Amplifier (OPA)を用いて状態選択励起による円偏光ポンププローブ分光測定(図1)を室温下で行った。また観測光にはD₂Oセルを通して白色光にしたものを使用した。励起光と観測光はそれぞれアクロマティックλ/4波長板を用いて偏光特性を右回り円偏光および左回り円偏光にした。ここで測定は励起光と観測光の両方を同じ偏光条件で行ったものと、異なる偏光条件で行ったものの二回ずつをそれぞれのサンプルで行った。それらのダイナミクスの和をとることでキャリアダイナミクス、差をとることでスピンダイナミクスを得た。

【結果と考察】図2は粒径3.9 nmのCdSe QDにおいてポンプ光とプローブ光が同じ方向の円偏光で行った結果と異なる方向の円偏光で行った結果

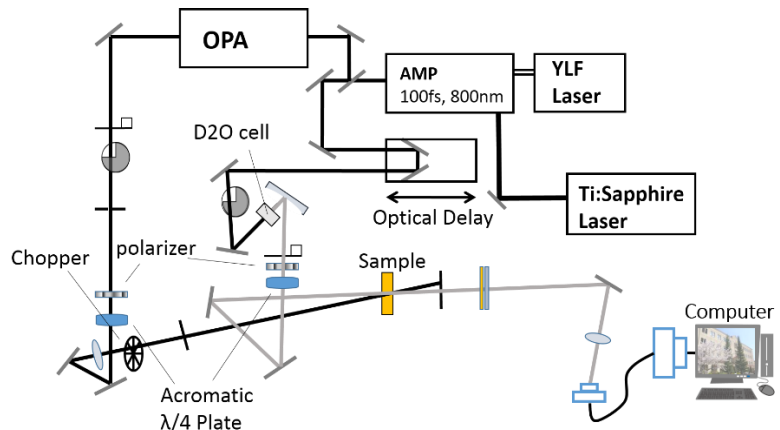


図1. 円偏光過渡吸収分光測定系

を示している。実験の観測波長はすべて QDs の 1S(h)-1S(e)ピークで行い、励起光強度は複数励起子過程の影響を防ぐためすべて 10 μ W で測定した。また図 3 に粒径 3.9 nm の CdSe QD のキャリアダイナミクスとスピンドイナミクスを示している。スピンドイナミクスは全てのサンプルにおいて二成分の指数関数で解析出来る事が確認され、速い緩和成分の寿命はそれぞれ 0.31 ps, 0.38 ps および 1.68 ps となった。この結果より速い成分の寿命は、サイズが大きくなるにつれて増加していることが確認された(図 4)。CdSe QDs では強い量子閉じ込め効果によって光励起に伴い、励起子が生成される。このとき 1S-1S 励起における励起子状態は電子-正孔交換相互作用や結晶構造の異方性により、励起子微細構造と呼ばれる 8 つの微細構造からなる励起子状態を形成する。励起子スピン緩和はこの励起子微細構造内での緩和過程であると考えられ、速い緩和成分は QDs の強いスピン-軌道相互作用に起因し、遅い緩和成分は電子-正孔相互作用に起因する励起子スピン緩和過程であると考えられている[3]。したがって QDs のサイズを小さくすると空間的な電子と正孔の波動関数の重ね合わせが増加し、高い電子-正孔交換相互作用が励起子微細構造に寄与したため、遅い緩和成分が支配的になったためであると考えられる。これらの結果から得られた傾向は過去に報告された傾向とほぼ同じであり、今回組み立てた系がコロイド法で合成した QDs のスピンドイナミクス測定において有効であることが示唆された。学会当日においては他の CdSe ハイブリットナノ構造体におけるスピン緩和ダイナミクスについても報告する予定である。

【参考文献】

- [1] D. Loss and D. P. DiVincenzo, *Phys. Rev. A*, **57**, 120 (1998).
- [2] G. D. Sholes et al. *Accounts*, **42**, 1037-1046, (2009).
- [3] Hong Ma et al. *J. Phys. Chem. A*, **116**, 2018-2023, (2012).

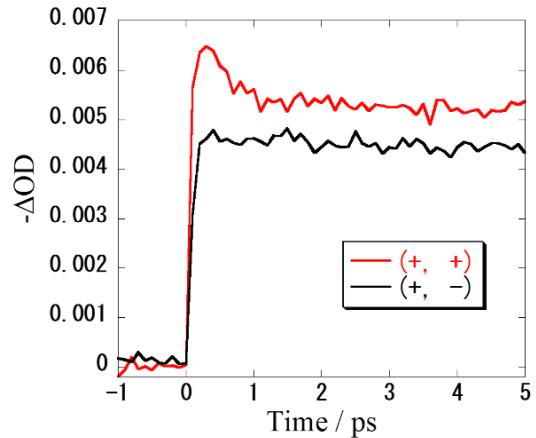


図 2. CdSe QD (3.9nm)における二つの偏光条件での 1S ブリーチダイナミクス

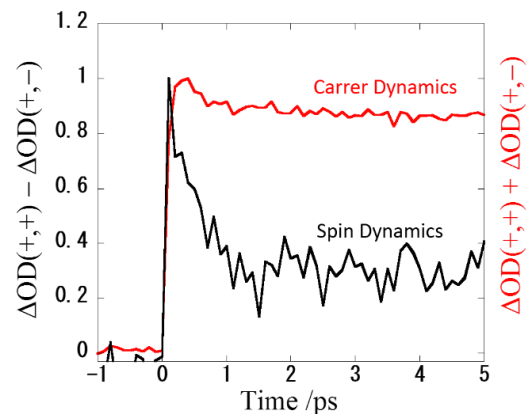


図 3. CdSe QD (3.9nm)における 1S ブリーチのキャリアダイナミクスとスピンドイナミクス

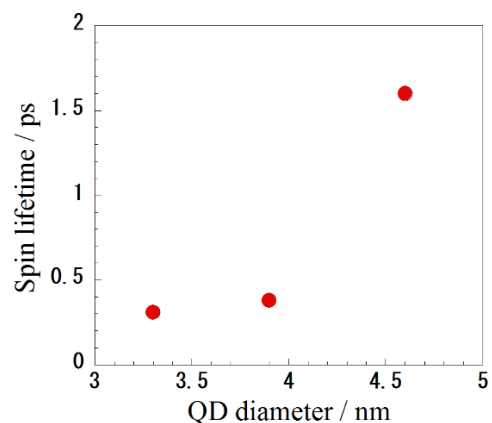


図 4. 粒径の異なる CdSe QD における速い緩和成分のスピン緩和寿命