

光と励起子の長距離結合による室温超高速発光の観測

Observation of ultrafast luminescence at room temperature due to long-range coupling between excitons and light

○ 松田 拓也¹、高橋 拓也²、一宮 正義^{2,3}、芦田 昌明²、石原 一^{1,2}

(1. 阪府大院工、2. 阪大院基礎工、3. 滋賀県立大工)

○ Takuya Matsuda¹, Takuya Takahashi², Masayoshi Ichimiya^{2,3},
Masaaki Ashida², and Hajime Ishihara^{1,2}

(1. Osaka Pref. Univ., 2. Osaka Univ., 3. Univ. of Shiga Pref.)

E-mail: matsuda@pe.osakafu-u.ac.jp

半導体ナノ構造中における励起子は重心運動の閉じ込めを受ける。光の空間構造を無視する長波長近似が成り立つサイズでは、奇数次 ($n = 1, 3, 5, \dots$) の励起子のみが光学応答に寄与する [1]。しかし、長波長近似が破綻するサイズ (可視光の波長程度) 領域では、光の空間構造が現れ、奇数次 ($n = 1, 3, 5, \dots$) だけでなく偶数次 ($n = 2, 4, 6, \dots$) の励起子も光と長距離に渡り結合する。このサイズ領域では、位相整合の取れた励起子と光の相互作用体積の巨大化により、超高速光学応答が実現する。実際、我々は低温下において特定サイズの I-VII 族半導体 CuCl 膜の過渡回折格子分光によって 100 fs 級の超高速光学応答を観測している [2]。また、室温下でも位相緩和を凌ぐ超高速非線形光学応答の観測にも成功している [3]。さらに発光スペクトルにおいても、奇数次だけでなく偶数次の励起子準位のピークが複数見られ、特異な発光現象を示唆する実験結果を得た [4]。

本研究では、CuCl 膜における励起子と光の長距離結合に起因した室温超高速発光を観測した。CuCl 膜は電子線照射を取り入れた分子線エピタキシー法によって、CaF₂(111) 基板上に作製し、膜厚は反射スペクトルのフィッティングから 301 nm と同定した。バンドギャップよりも十分高いエネルギーで励起するために、光源として光子エネルギーが 3.87 eV である連続光レーザーを用いた。本系では、膜厚毎に各励起子と光との結合強度が異なる。膜厚 301 nm では $n = 5$ が光との結合が最も強く、理論計算から見積もった輻射緩和時間は 26 fs である。図 1 (a) は 5 K における発光スペクトルであり、奇数次だけでなく偶数次の励起子準位のピークが複数現れていることが分かる。

また、温度変化に伴い、輻射緩和が遅い励起子から順に消滅していくことがわかった。図 2(b) は 300 K における発光スペクトルである。CuCl では室温の熱エネルギーによって LO フォノンが励起されるが、最も速い $n = 5$ からの発光が優勢に出ていることがわかる。これは、 $n = 5$ の励起子と光との長距離結合による超高速発光がまさに実現している結果である。また、フィッティング結果から赤実線が $n = 5$ の発光成分であり、緑実線が横波励起子エネルギー E_T の 1LO フォノンサイドバンド成分、青実線が 2LO フォノンサイドバンド成分であることがわかった。本講演では異なる膜厚に対する測定結果や理論計算結果との比較についても言及する。

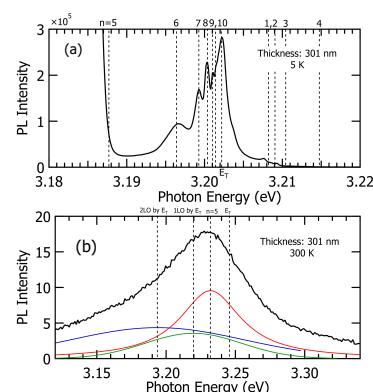


図 1: (a) 5 K と (b) 300 K における発光スペクトル。

[1] Z. K. Tang, et al., PRB **52**, 2640 (1995).

[2] M. Ichimiya, et al., PRL **103**, 257401 (2009).

[3] M. Ichimiya, et al., Phys. Status Solidi B **248**, 456-459 (2011).

[4] L. Q. Phuong, et al., PRB **86**, 235449 (2012).