光電流量子干渉法を用いた量子ドット結合膜における マルチエキシトンコヒーレント応答の観測

Photocurrent Quantum Interference Measurement of Multiexciton Coherent Signals in Coupled Quantum Dot Films

京大白眉センター[1]，京大化研[2]　○田原 弘量[1,2]，坂本 雅典[2]，寺西 利治[2]，金光 義彦[2]

The Hakubi Center for Advanced Research, Kyoto University[1],

Institute for Chemical Research, Kyoto University[2]

°Hirokazu Tahara[1,2], Masanori Sakamoto[2], Toshiharu Teranishi[2], and Yoshihiko Kanemitsu[2]

E-mail: tahara.hirokazu.7m@kyoto-u.ac.jp

コロイド半導体量子ドットは溶液プロセスで合成される光学材料であり、サイズや組成によってバンドギャップを広い範囲で制御できる特長を持っている。一対の電子正孔から成るエキシトンは発光ダイオードや太陽電池などの光電デバイス応用に向けて研究が進められてきたが、複数のエキシトンから成るマルチエキシトンの光電物性は十分に解明されていない。マルチエキシトンの多光子放出過程やキャリア増幅などの次世代光電デバイスに向けた高いポテンシャルを活用するためには、超高速レーザー分光による物性過程の解明が不可欠である。

本研究では、マルチエキシトンの量子物性および光電物性の解明を目指して、超高速レーザーパルス対による光電流量子干渉計測を行った。我々はこれまでにマルチエキシトンの量子特性をとらえるために、位相ロックレーザーパルス対による量子干渉計測を行い、マルチエキシトンのコヒーレント応答の観測、さらに共鳴多光子吸収における寄与を明らかにしてきた[1-3]。この手法を光電流検出法に発展させることで、光電過程におけるマルチエキシトンの寄与を調べた。試料には最低準位に高い縮退度を有する PbS 量子ドットを用い、基板上で結合させることで光電流を取得できる量子ドット結合膜を作製した。エキシトン共鳴のレーザーパルス対を励起に用い、相対時間差を変化させながら光電流を測定することで、光電流における量子干渉信号を計測した。量子干渉信号の形状を解析することで、エキシトン、バイエキシトン、トリエキシトンのコヒーレント信号を計測することに成功した。さらに、量子ドット結合膜では非結合の量子ドット集団と比較して、マルチエキシトンのコヒーレント信号が著しく増大することが観測された。励起強度に対する依存性を正確に測定することで、量子ドット間結合に起因した集団増強効果によって信号が増大していることを明らかにした[4]。これは、量子ドット結合系が示す新しい集団特性であり、マルチエキシトンの光電応答を強める重要な結果である。本研究は科研費（JP20K14385, JP19H05465）および JST-CREST（JPMJCR21B4）の助成を受けて行われた。

[1] H. Tahara, M. Sakamoto, T. Teranishi, and Y. Kanemitsu, Phys. Rev. Lett. **119**, 247401 (2017).

[2] H. Tahara, M. Sakamoto, T. Teranishi, and Y. Kanemitsu, Nat. Commun. **9**, 3179 (2018).

[3] H. Tahara and Y. Kanemitsu, Adv. Quantum Technol. **3**, 1900098 (2020).

[4] H. Tahara, M. Sakamoto, T. Teranishi, and Y. Kanemitsu, Phys. Rev. B **104**, L241405 (2021).

© 2022年 応用物理学会