

自己組織化量子井戸物質の励起子物性

上智大学理工学部・*東京大学工学部

加藤ゆきこ・伊師潤子・樺田英之・江馬一弘・坂卓磨*・近藤高志*

Excitonic Properties in Self-Organized Quantum-Well Materials

Yukiko Kato, Junko Ishi, Hideyuki Kunugita, Kazuhiro Ema, Takuma Ban*, Takashi Kondo*

Faculty of Science & Engineering, Sophia University, *Faculty of Engineering, The University of Tokyo

我々はこれまで自己組織化量子井戸物質である $(C_6H_{13}NH_3)_2PbI_4$ において非線形分光を行ない、励起子間相互作用が非線形性において重要であることを明らかにしてきた。本年度はその励起子間相互作用について、非縮退四光波混合法、pump-probe法を用いて研究を行なっている。また、有機層にナフタレンを導入すると、大きな振動子強度を持つ励起子からナフタレン発色団へのエネルギー移動に起因する燐光発光の著しい増強が観測され、そのメカニズムの解明も行っている。

<非縮退四光波混合> 縮退四光波混合測定は、1回相互作用するパルスで励起子共鳴エネルギーに固定し、2回相互作用するパルスの光子エネルギーを変化させて行なった。その結果、cross-linear配置においては、励起子分子2光子共鳴による信号増大が明瞭に観測された。我々は、phase-space filling, excitation-induced dephasing 及び励起子分子といった励起子間相互作用を現象論的に取り入れた7準位モデルを用いて計算を行い、計算結果が我々の実験結果を良く再現することがわかった。計算から励起子間相互作用を定量的に評価することに成功した。

<pump-probe法> pump-probe法は、pump光を入射したときのprobe光(白色光)の透過率変化を測定した。pump光を励起子共鳴エネルギー(2.345 eV)にしたところ励起子-励起子分子遷移に起因する誘導吸収が2.303 eVに観測された(Fig.1)。このことから励起子分子束縛エネルギーは42 meVであることが明らかになった。この誘導吸収の入射光偏光依存性を観測したところ遅延時間 $\tau=0$ において、counter-circularでは観測されるのに対してco-circularでは観測されないことから、励起子分子は $J_z=0$ であることが確認された。しかしFig.2に示すようにこれらの選択則は300 fsで緩和しており、これは励起子のスピン緩和に対応しているものと考えられる。

<励起子-ナフタレン励起三重項エネルギー移動> $(C_nH_{2n+1}NH_3)_2PbBr_4$ の有機層にナフタレンを導入すると、無機井戸層の励起子の発光ではなく、ナフタレンからの著しい燐光発光増強が観測された。この原因として、励起子状態からナフタレン励起三重項状態へのエネルギー移動が考えられる。このエネルギー移動のメカニズムを解明するため、無機井戸層とナフタレン間の距離と配向状態を変化させた物質を用い、励起子発光の時間分解測定を行った。その結果、電子交換相互作用による三重項-三重項エネルギー移動によって、燐光増強が観測されたことがわかった。

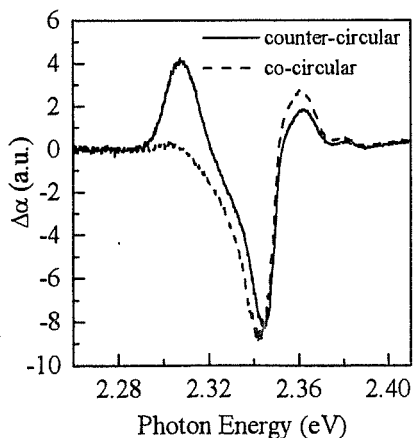


Fig.1 励起子共鳴を励起した場合の pump-probe 信号

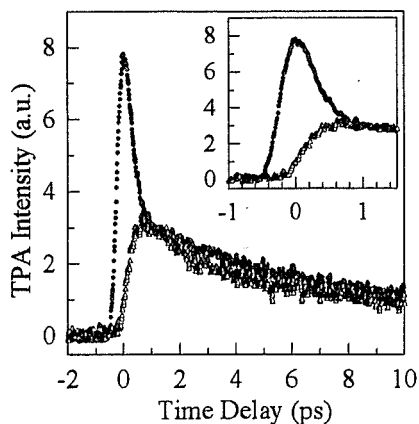


Fig.2 励起子分子への誘導吸収の偏光選択性の緩和