

| | |
|---------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 氏名(本籍) | たけもと かず や 竹本一矢(東京都) |
| 学位の種類 | 博士(理学) |
| 学位記番号 | 博乙第1918号 |
| 学位授与年月日 | 平成15年3月25日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第4条第2項該当 |
| 審査研究科 | 物理学研究科 |
| 学位論文題目 | Exciton Dephasing Mechanism of CdSe and CuBr Quantum Dots Embedded in Matrix (マトリックス中のCdSeおよびCuBr量子点における励起子の位相緩和メカニズム) |
| 主査 | 筑波大学教授 理学博士 舂本泰章 |
| 副査 | 筑波大学教授 理学博士 大塚洋一 |
| 副査 | 筑波大学助教授 理学博士 野村晋太郎 |
| 副査 | 筑波大学助教授 理学博士 服部利明 |

論文の内容の要旨

ナノメートルサイズの半導体量子点では、電子・正孔および励起子が狭い空間に閉じ込められることで量子閉じ込め効果が顕著に表れ、エネルギー状態は δ 関数的に離散化する。個々の量子点の持つ狭いスペクトル均一幅(Γ_h)は、時間領域では長い位相緩和時間(T_2)に相当するため、量子点に閉じ込められた励起子の持つ長いコヒーレンス時間は、量子情報操作などデバイス応用への有力候補として期待が持たれている。しかしながら現実の系では、量子点の均一幅は寿命による広がりだけでなく励起子同士の散乱、励起子-フォノン散乱、欠陥や不純物による散乱、表面・界面での散乱など様々な要因により決定されるため、実際には δ 関数的ではなく有限の幅を持つが、低温での均一幅を決定づける本質的メカニズムについては未だ明らかではない。

本研究では強い閉じ込め領域の典型であるCdSe量子点と、弱い閉じ込め領域のCuBr量子点の2種類の試料を用いて、励起子の均一幅を蓄積フォトンエコー法により時間領域から測定し、その温度依存性の詳細な議論を行った。

平均半径2.3~3.6nmのサイズを持つ4種類のガラス中のCdSe量子点を用いて、均一幅の温度依存性の評価を行った。0.6~40Kの範囲でのガラス中のCdSe量子点における均一幅の温度依存性は $\Gamma_h = \Gamma_{h0} + AT + B \sinh^{-2}(\hbar\omega/2k_B T)$ のように表現される。ここで、第1項は温度に依存しない成分、第2項は励起子-二準位系(TLS: Two-Level System)間の相互作用、第3項は励起子-閉じ込め音響フォノン間の相互作用(2フォノンラマン過程)である。

低温での均一幅に対するTLSの寄与は、CuBr量子点におけるマトリクス依存性としてより顕著に観測された。ガラスおよびNaBr中のCuBrについて、均一幅の温度依存性を比較すると、およそ15K以上の高温領域では、ガラス中のCdSe量子点と同様、主として量子化された音響フォノンの寄与を反映し、両者は似通った温度依存性を示すが、15K以下ではNaBrをマトリクスとするサンプルの方がより幅が狭くなり、低温の極限で数+ μ eVに漸近するような特徴的な振る舞いを見せた。ガラスおよびNaBr中のCuBr量子点に対する実験データは、それぞれ $\Gamma_{\text{CuBr/glass}} = \Gamma_{h0} + AT + B \sinh^{-2}(\hbar\omega/2k_B T) + Cn(T)$ および $\Gamma_{\text{CuBr/NaBr}} = \Gamma_{h0} + A \cosh^{-2}(\delta/2k_B T) + B \sinh^{-2}(\hbar\omega/2k_B T) + Cn(T)$ という式で非常に良く再現できた。ここで、Cを係数とする第4項はBose分布 $n(T)$ を持つLOフォノンによる散乱過程を表し、40K以上でその寄与が増大する。 $\Gamma_{\text{CuBr/glass}}$ と $\Gamma_{\text{CuBr/NaBr}}$ の表現は第2項を除いては

全く同一であり、低温での均一幅の温度依存性がマトリクス中のTLSと密接に関連していることを示している。またこのような特徴は、以前報告されたガラスやNaCl中のCuCl量子点についての結果と類似しており、極低温領域でのTLSの寄与が量子点の種類によらず重要な役割を担っている証拠と言える。

強い閉じ込め領域から弱い閉じ込め領域にわたる量子点で、均一幅の温度依存性・サイズ依存性およびマトリクス依存性を系統的に調べ比較することで、量子点に閉じ込められ量子化された音響フォノンと、それを囲むマトリクス中の微小エネルギーの励起が、低温における量子点の均一幅を決定づける普遍的メカニズムであると結論することができる。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文はCdSe量子点およびCuBr量子点における励起子の位相緩和メカニズムを低温領域で蓄積フォトンエコー法により実験的に研究し、強い閉じ込め領域から弱い閉じ込め領域にわたる量子点で均一幅を決める普遍的メカニズムを見出したもので、量子点の位相緩和を統一的に促える視点を確立した点は高く評価できる。

よって、著者は博士（理学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。