

発光明滅を示す単一半導体ナノ粒子における励起スペクトル測定

Photoluminescence Excitation Spectroscopy
on Single Semiconductor Nanocrystals Exhibiting Blinking

京大化研

○井原 章之, 金光 義彦

Institute for Chemical Research, Kyoto Univ.

○T. Ihara and Y. Kanemitsu

E-mail: ihara@scl.kyoto-u.ac.jp

CdSe や CdS、ZnS からなる半導体ナノ粒子は、量子通信や量子暗号など将来への応用が期待される単一光子発生源の候補のひとつである[1]。室温において高い発光量子効率を示す一方で、発光強度や発光波長が時間的に不安定に変化してしまう性質をもつ。強度の変化は発光明滅現象[2]、波長の揺らぎはスペクトル拡散現象[3]と呼ばれる。これら発光の不安定性を抑制することは応用上重要な課題であるため、それらのメカニズム解明を目指して、これまでに様々な種類のナノ粒子の作製法や、単一粒子に対する新しい分光法が報告されてきた[4]。単一ナノ粒子発光の励起分光法もその 1 つで、単一粒子の吸収スペクトル形状が分かるのが特徴である[5]。この励起分光法と単一粒子発光分光法を組み合わせることで、吸収スペクトル形状の観点から、発光の不安定性の性質を議論できるようになると期待される。しかし、発光明滅あるいはスペクトル拡散を示すナノ粒子の場合に、励起スペクトルを正確に求められるかどうかは明らかでない。

今回我々は、発光明滅を示す単一 CdSe/ZnS ナノ粒子を対象として発光強度や発光寿命の励起波長依存性を測定し、励起スペクトルの導出を試みた。励起光としては、スーパーコンティニウム光源からの白色光を分光器に通して得られる単色光を用いた。繰り返しが 5MHz のピコ秒パルスであり、発光の時間分解測定が可能である。試料は Invitrogen 社の Qdot655 で、カバーガラスにポリマーと共にスピンコートすることで分散させた。試料が付着しているガラスの面側から励起光を入射し、その逆側に放射される発光を油浸式対物レンズで集光した。発光は、アバランシェフォトダイオードと単一光子計数ボードを用いて単一光子検出したほか、スペクトルの測定には分光器と冷却 CCD カメラを用いた。これらの検出器を同時に用いることで、発光スペクトルと発光寿命の同時測定のほか、発光の 2 次の光子相関が測定できるようになっている[6]。実験の結果、吸収スペクトル形状をある程度反映した、励起スペクトル形状が単一ナノ粒子においても得られることが分かった。特に、励起波長を変えながら発光寿命の時間変化を測定することにより、時間的に変化してしまう非輻射再結合過程の影響を、ある程度補正できることが示唆された。また、励起波長を変えながら発光の時間変化を測定することにより、励起波長に依存して明滅の振る舞いがある場合があることを明らかにした。

本研究は、科研費(25247052)の助成を受けて行われたものである。

[1] B. Lounis and M. Orrit, Rep. Prog. Phys. **68**, 1129 (2005).

[2] M. Nirmal *et al.*, Nature **383**, 802 (1996).

[3] S. A. Empedocles and M. G. Bawendi, J. Phys. Chem. B **103**, 1826 (1999).

[4] M. J. Fernée *et al.*, Chem. Soc. Rev. **43**, 1311 (2014).

[5] N. J. Borys *et al.*, Science **330**, 1371 (2010).

[6] 井原他, 第 61 回応用物理学会 2014 年春季学術講演会, 18a-E15-2.