

単一 CdSe/ZnS ナノ粒子の発光明滅：発光スペクトルと発光寿命の同時測定

Photoluminescence Blinking in Single CdSe/ZnS Nanocrystals: Simultaneous Measurements of Photoluminescence Spectrum and Lifetime

京大化研

○井原 章之, 金光 義彦

Institute for Chemical Research, Kyoto Univ.

T. Ihara, Y. Kanemitsu

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

化合物半導体ナノ粒子は、量子通信や量子暗号などの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]。室温でも高い発光効率を示すのが特徴であるが、一方で発光強度が時間的に不安定に変化する発光明滅現象が生じることが障害となっており、その抑制を目指して様々な構造のナノ粒子が研究されている。特に CdSe ナノ粒子を CdS や ZnS などのシェルで覆ったコアシェル型ナノ粒子は、ある程度発光明滅の抑制が可能であり、近年でも多くの実験の対象となっている[2, 3]。これまでに提案されている発光明滅のモデルとしては、中性励起子と荷電励起子を考慮した粒子のイオン化モデルのほか、粒子内や粒子表面の欠陥準位を考慮したモデルがある。発光明滅機構を解明し、その抑制のための指針を得るには、様々なサイズや構造の粒子の発光明滅の特徴を明らかにする必要がある。しかし、発光の性質が似ている複数の信号が混在している場合は、測定方法の工夫による信号の分離が必要となる。今回我々は、発光明滅を示す単一 CdSe/ZnS ナノ粒子において、発光スペクトルと発光寿命の時間変化を同時に測定することで、複数の信号の分離を試みた。励起光としては、5MHz のピコ秒パルスレーザー(444nm)のほか、スーパーコンティニウム光源を分光器で単色化した光を用いた。NA0.7 の対物レンズを用いて 1 μ m 程度のスポット励起を行った。粒子の発光波長は 600nm 程度で、同じ対物レンズで集光した。測定は全て室温で行った。

実験の結果、発光波長・発光線幅・発光量子効率・発光寿命が特徴的な振る舞いを示す 3 種類の信号に分離できることが分かった。1 つ目は中性励起子の信号で、線幅が小さい、寿命が長い、量子効率が高い、などの特徴を示した。2 つ目は荷電励起子の信号で、中性の励起子よりも低エネルギーにシフトし、線幅が大きい、寿命が短い、量子効率が低い、などの特徴を示した。3 つ目の信号は、中性の励起子よりも低エネルギーシフトし、線幅が大きい一方で、寿命は中性励起子よりも長く、量子効率も同程度になる特徴を示した。この信号は欠陥準位が関与した信号と考えられる。これらの結果は、粒子が帯電することによるオージェ再結合過程の増減のほか、欠陥準位発光における輻射再結合レートの変化が、発光明滅機構に影響していることを示している。

本研究は、科研費(25247052)および京都大学若手研究者ステップアップ研究費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] C. Galland *et al.*, Nature **479**, 203 (2011).

[3] N. Yoshikawa *et al.*, Phys. Rev. B **88**, 155440 (2013).