

III-VI 半導体シェルによる AgInS₂ 量子ドットコロイドからのバンド端蛍光 Band-edge photoluminescence from AgInS₂ colloidal quantum dots by the formation of III-VI semiconductor shells

阪大工¹, 東工大², 名大工³ ○上松 太郎¹, 輪島 知卓¹, HOISANG Watcharaporn¹,
SHARMA Dharmendar Kumar², 平田 修造², 山本 剛久³, 亀山 達矢³,
VACHA Martin², 鳥本 司³, 桑畑 進¹

Osaka Univ.¹, Tokyo Tech.², Nagoya Univ.³ ○Taro Uematsu¹, Kazutaka Wajima¹,
Watcharaporn Hoisang¹, Dharmendar Kumar Sharma², Shuzo Hirata², Takahisa Yamamoto³,
Tatsuya Kameyama³, Martin Vacha², Tsukasa Torimoto³, Susumu Kuwabata¹

E-mail: t-uematsu@chem.eng.osaka-u.ac.jp

直径数ナノメートルのコロイド状半導体ナノ粒子（量子ドットコロイド）は蛍光材料として開発が進められた結果、バイオイメージングのような専門性の高い領域に留まらず、波長変換材料として液晶ディスプレイのバックライト光源に搭載され始めた。半導体のバンド端遷移に由来する単色性の高い蛍光スペクトルは本材料最大の魅力であるが、特性の良いものは総じてカドミウム化合物であり、数年のうちに全面的に使用禁止になることが決定しているため、代替材料の開発が必要とされている。我々を含む複数のグループによる研究から、III-V や I-III-VI 半導体から成る量子ドットが比較的高い量子収率を示すことが明らかになったが、単色性の高さ（スペクトル半値幅の狭さ）についてはカドミウム系 II-VI 半導体量子ドットよりもかなり劣っていた。

本研究は、I-III-VI 半導体量子ドットの一つである硫化銀インジウム (AgInS₂) ナノ粒子の蛍光単色化を目指した。粒子内部や表面に存在する複数の欠陥準位によって、半値全幅 (FWHM) は 250 nm (400 meV) 程度と非常に幅広く、組成比の操作などが行われてきたが、ほとんど改善が見られなかった。量子ドットは大きな比表面積を有することから、我々は問題がむしろ表面にあると考え、様々な表面修飾を試みた。その結果、一部に共通の元素をもち、AgInS₂ よりもバンドギャップの大きい硫化インジウム (In₂S₃) および同じ III-VI 半導体である硫化ガリウム (Ga₂S₃) によって表面をコーティングすることによって、元の欠陥蛍光よりも短波長側に新たな蛍光ピークが出現し、最小で FWHM = 28 nm (103 meV) 程度という鋭い蛍光スペクトルを得ることに成功した (Figure 1)。その他の分析からバンド端蛍光であることが強く示され、STEM 観察から AgInS₂/Ga₂S₃ コア/シェル構造が確認されたものの、Ga₂S₃ シェルはアモルファスであることが判明した。これは結晶性や結晶同士のマッチングを重要視する II-VI 半導体のコア/シェル構造とは全く異なる状況であり、欠陥制御が困難な多元系半導体ナノ粒子に対するシェルの設計方針に、新たな可能性を提供している。

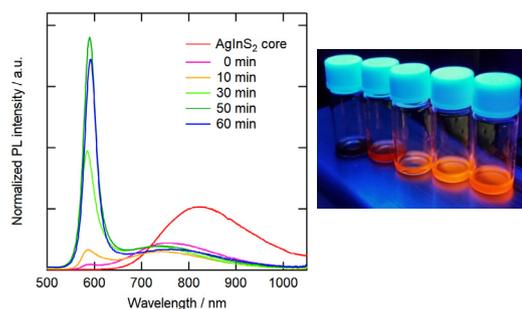


Figure 1. Photoluminescence from AgInS₂ nanoparticle cores and during the formation of Ga₂S₃ shells. Times in the figure indicate the period after the temperature of solution reached at 260 °C. Excitation wavelength was 400 nm. Photograph for the corresponding samples under UV (365 nm) irradiation was shown together.