

タイムタグ計測法を活用した単一ナノ粒子の2光子カスケード発光の研究

Investigation of two-photon cascade emission in single nanocrystals using time-tagged recording method

京大化研

○井原 章之, 広重 直

Institute for Chemical Research, Kyoto Univ.

○Toshiyuki Ihara and Nao Hiroshige

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

半導体ナノ粒子(コロイド量子ドット)は、室温において高効率に発光するナノ材料である。バイオイメージング・ディスプレイ・光電変換デバイスなどに利用される。ナノ粒子の光学特性・量子的性質を調べるために、単一のナノ粒子の発光を分析する顕微分光法が用いられる。我々は近年、この単一ナノ粒子発光分光法を用い、サイズ・形状・材質の異なる様々なナノ粒子を対象として、それらの材料のもつ量子的性質を研究している。これまでの研究で、単一ナノ粒子の発光に対し、粒子のイオン化や量子閉じ込めシュタルク効果が与える影響を明らかにした[1-4]。最近では、Hanbury Brown-Twiss 干渉計を用い、単一ナノ粒子の発光の $g^{(2)}$ (2 次の光子相関) の性質を研究している。 $g^{(2)}$ を測定することで、単一ナノ粒子に励起された2つの電子正孔対(励起子分子)から2つのフォトンが連続的に放出される「2光子カスケード発光」の性質を詳細に調べることができる。

今回我々は、単一ナノ粒子における2光子カスケード発光の特徴を、従来よりもさらに精密に分析する実験を行った。実験には、レーザーパルスが試料を励起した時刻と、単一光子が検出された時刻を全て記録する「タイムタグ計測」を用いた。室温において 655 nm 程度で発光する CdSe/ZnS ナノ粒子を試料とし、5 MHz の繰り返しのピコ秒パルス光で励起した。単一ナノ粒子の発光を 200 秒間タイムタグ計測する実験を、数十個の単一ナノ粒子に対して行った。タイムタグ計測で得られたデータに対し、発光強度・寿命・ $g^{(2)}$ の時間変化を 50 ミリ秒の時間間隔で解析した。励起子分子発光を除去できる時間的なゲートをかけて $g^{(2)}$ を解析した場合に、アンチバンチングの質が向上することを確認した。

実験によって得られたデータを、入射フォトンのポアソン分布・発光の非線形性等を考慮したモデルと比較した。励起子分子の2光子カスケード発光の特徴から、単一ナノ粒子の吸収断面積の絶対値を決定できることを明らかにした[5]。また、励起子分子の発光寿命・2光子カスケード発光の量子効率を高密度励起条件下で決定できることや、CdSe/ZnS ナノ粒子における室温発光の輻射再結合レートが電子と正孔の数にほぼ比例することを明らかにした[6]。

本研究は、科研費(16K17483)および JST-CREST の助成を受けて行った。

- [1] T. Ihara *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 035309 (2014).
- [2] T. Ihara and Y. Kanemitsu, Phys. Rev. B **90**, 195302 (2014).
- [3] T. Ihara and Y. Kanemitsu, Phys. Rev. B **92**, 155311 (2015).
- [4] H. Ibuki, T. Ihara, and Y. Kanemitsu, J. Phys. Chem. C **120**, 23772 (2016).
- [5] T. Ihara, Phys. Rev. B **93**, 235442 (2016).
- [6] N. Hiroshige, T. Ihara, Y. Kanemitsu, submitted for publication (2017).