## 単一 CdSe/CdS ナノ粒子の励起子分子発光:クーロン相互作用による増強 Coulomb force-assisted efficient biexciton emission in single CdSe/CdS nanocrystals <sup>o</sup>広重 直, 井原 章之, 猿山 雅亮, 寺西 利治, 金光 義彦 京大化研

## <sup>O</sup>Nao Hiroshige, Toshiyuki Ihara, Masaki Saruyama, Toshiharu Teranishi ,and Yoshihiko Kanemitsu Institute for Chemical Research, Kyoto Univ.

E-mail: hiroshige.nao.56n@st.kyoto-u.ac.jp

次世代の光源や太陽電池への応用が期待されているコロイド半導体ナノ粒子の光学的特性に 関する研究が近年活発に行われている。ひとつひとつのナノ粒子の発光を分離して測定できる単 一分子顕微分光を用いることで、ナノ粒子の発光の本質的な特性が明らかにされつつある。従来、 単一ナノ粒子中に生成される 2 個の電子正孔対(励起子分子)の発光量子効率決定するために、発 光の 2 次の光子相関(g<sup>(2)</sup>)を測定する手法が用いられてきた[1]。これに対して我々は最近、タイ ムタグ計測法に基づいた g<sup>(2)</sup>と発光寿命の同時測定および励起強度の増大に伴う非線形な光学応 答などを考慮した新たな解析手法を開発した[2]。この手法を用いると、単一ナノ粒子中の励起子 分子の発光量子効率と輻射再結合速度の評価を同時に行うことができる。

本研究では、この新たに開発した実験手法を用い、高効率発光するシェル層の厚い CdSe/CdS コアシェルナノ粒子を試料として励起子分子輻射再結合ダイナミクスの詳細を調べた。シェル層 の厚い CdSe/CdS ナノ粒子では正孔が CdSe コアに閉じ込められるが、電子は CdS シェル全体に非 局在化する quasi-type II 型のバンド構造を持つことが知られている[3,4]。試料には、CdSe コアの 半径が 1.6 nm で、CdS シェルの厚みを 10 層から 33 層まで変化させた 4 種類の CdSe/CdS ナノ粒 子を用いた。それぞれの試料において、多数の単一ナノ粒子に対し励起子分子発光の量子効率と 寿命を同時測定し、輻射再結合速度を評価した。実験には、2 MHz の繰り返し周波数に設定した ピコ秒パルス光源を用いた。g<sup>(2)</sup>測定には Hanbury Brown-Twiss 干渉計を用い、光子の検出時刻を すべて記録するタイムタグ計測を行った。

励起子に対する励起子分子の輻射再結合速度の値(β)を計測したところ、シェル厚みが小さ い試料では、その値が4程度となった。一方、シェル厚みが大きい試料では、βの値が10以上ま で増大することが分かった。また、type I型のバンド構造をもつ CdSe/ZnS ナノ粒子の場合は、β の値が4程度となった[2]。この結果は、シェル厚みが大きい CdSe/CdS ナノ粒子における励起子 に対する励起子分子の輻射再結合速度の増大が、電子と正孔の数だけでは説明できず、クーロン 相互作用が関与していることを示唆する。励起子分子を構成する2個の電子は、2個の正孔が閉 じ込められているコアからの強いクーロン引力によって励起子の電子よりもコアに局在し、シェ ル層の厚いナノ粒子中における励起子分子の波動関数は、励起子の波動関数よりもコアに局在し ていると考えられる。

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

[1] G. Nair et al., Nano Lett. 11, 1136 (2011).

- [2] N. Hiroshige, T. Ihara, Y. Kanemitsu, submitted for publication (2017).
- [3] F. García-Santamaría et al., Nano Lett. 9, 3482 (2009).
- [4] Y. S. Park, et al., ACS Nano 8, 7288 (2014).