

光励起電子移動を利用したコア/シェル量子ドット蛍光体の

電子構造評価

Electronic structure of core/shell quantum dot fluorophore investigated by photoinduced electron transfer

¹阪大院工, ²名大院工 [○]笹倉卓也¹, 上松太郎¹, 鳥本司², 桑畑進¹

Osaka Univ.¹, Nagoya Univ.², [○]Takuya Sasakura¹, Taro Uematsu¹,

Tsukasa Torimoto², Susumu Kuwabata¹

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

量子ドット蛍光体は粒径数ナノメートルまで微粒子化した半導体材料であり、バンド構造に由来する広帯域の光吸収と、単色性の高い蛍光を発するという特徴から、近年はディスプレイ材料やバイオイメージングに利用されている。ところが、有機分子から成るリガンドの分解・脱離に起因する量子ドットの凝集や、不完全な電子閉じ込めによって発生する蛍光ブリンキングなど、無機材料コアではなくその周辺に原因とする量子収率の低下が起こることが知られており、解決求められていた。量子ドットコアを、これよりもバンドギャップの大きい無機材料で被覆し、type-I型と呼ばれるコア/シェル構造を構成することにより、光照射によって生成した励起子をコア内に閉じ込められる効果が生じる。電子・ホールがコア外部に漏れだすのをある程度防止することができる。発光性再結合の増加し、結果的にコア量子ドットの数倍に向上するが、コア/シェル量子ドットであってもコア/シェル界面に生じるポテンシャル障壁が不十分な場合、励起子はシェルを透過してしまい、化学修飾によって蛍光強度が低下するなどの問題を生じている。

本研究は、外部へのキャリア流出による蛍光強度低下を研究するため、量子ドットの溶液にレドックス種を加え、量子ドットからの電子移動を起こし、その結果として発生する蛍光強度の変化から電子移動速度を見積もった。特殊な合成法によりコア/シェル量子ドットのシェル膜厚および組成を原子層単位でコントロールし、それらのパラメーターが量子ドットと消光剤間で生じる光励起電子移動に与える影響を評価した。量子ドットとして特性のよく知られた CdSe/CdS コア/シェル量子ドットを用い、イオン吸着を利用した方法でシェルの厚さを原子層レベルで変化させた。これに電子受容体として *p*-ベンゾキノンを追加し、蛍光強度変化と蛍光寿命から量子ドットと *p*-ベンゾキノン間の電子移動速度を見積もった (Figure 1)。その結果、シェルが厚くなるにつれて電子移動速度は単調に低下していくという結果が得られたが、3 nm に及ぶシェルを持つ CdSe/CdS コア/シェル量子ドットでもなお電子移動を完全に阻止するには至らなかった。量子ドットを安定な材料とするためにはこの結果を踏まえた量子ドット的设计が必要であることが示された。

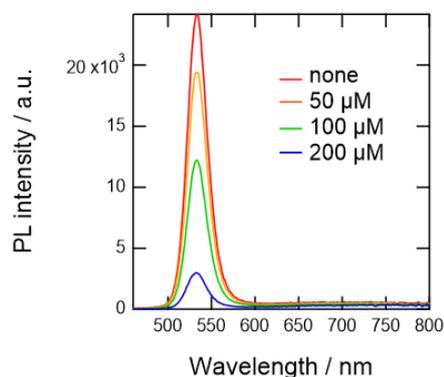


Figure 1. PL spectra of CdSe/CdS core/shell QDs in the presence of *p*-benzoquinone