

CdTe 量子ドットの複数励起子ダイナミクスの表面状態依存性

(関学大院理工) ○小林洋一・玉井尚登

【序論】量子ドット(QDs)は、キャリアがボーア半径以下の領域に空間的に閉じ込められているため、バルクと比べて複数励起子が生成しやすい。また励起子間相互作用が強いため、オージェ効果などが顕著に発生する。複数励起子存在下では、一励起子状態よりも安定な状態が新たに形成されることや、より高エネルギーな電子状態からの緩和が現れることなどにより、低励起光強度における光物性とは異なることが知られている。我々はこれまでに CdTe QDs の保護剤によって二励起子の緩和時間が変化することを明らかにした [1]。複数励起子状態からの発光や励起子間結合エネルギーも同様に QDs の表面状態に依存する可能性があることから、本実験では異なる保護剤を用いて CdTe QDs を合成すると共に、過渡吸収スペクトルと時間分解発光スペクトルを測定し、CdTe QDs の複数励起子ダイナミクスの表面状態依存性を解析したので報告する。

【実験】保護剤としてオレイン酸とチオグリコール酸(TGA)を用いて異なるサイズの CdTe QDs をそれぞれ合成した。それぞれの試料において過渡吸収スペクトル、ストリークカメラを用いた時間分解発光スペクトルの励起光強度依存性を測定し、それらのダイナミクスからオージェ再結合過程や複数励起子状態の発光ダイナミクスを解析した。

【結果・考察】過渡吸収スペクトルの最低励起状態(1S)におけるダイナミクスは励起光強度が低いとき、一励起子のダイナミクスの遅い緩和成分のみを観測したが、励起光強度が高くなるにつれてオージェ再結合に対応する速い成分を観測した。一粒子に平均的に 1～2 個の励起子が生成するような励起光強度でのダイナミクスの速い成分を二励起子のオージェ再結合の時定数(τ_{Auger})として、粒径(D)に対してログプロットしたものを図 1 に示す。どちらの量子ドットも τ_{Auger} が D^m に比例して増加し、オレイン酸キャップ CdTe QDs では $m = 7.0 \pm 0.6$, TGA キャップ CdTe QDs では $m = 4.6 \pm 0.2$ であった。これより、量子ドットのオージェ再結合が表面保護剤に影響して変化することが明らかになった。

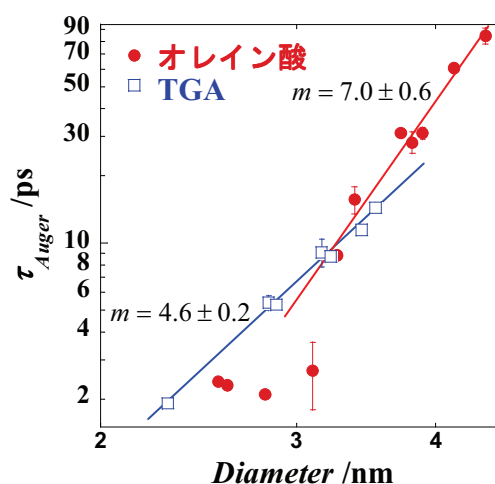


図 1 : 異なる保護剤で合成した CdTe QDs のオージェ再結合の時定数 (τ_{Auger}) の粒径依存性

複数励起子状態の発光ダイナミクスを明らかにするために、同様の量子ドットを用い時間分解発光スペクトルを解析した。異なる励起光強度で測定した励起後 23 ps に

における $D = 4.1$ nm のオレイン酸キャップ CdTe QDs の時間分解発光スペクトルを図 2 に示す。励起光強度が $5 \mu\text{W}$ のとき、発光スペクトルは一成分のガウス関数で解析できたが、 $200 \mu\text{W}$ のスペクトルは低励起光強度のスペクトルとは明らかに異なっており、三成分のガウス関数で解析できた。これまでの複数励起子状態に関する報告から、 1.92 eV のピークが 1S の一励起子状態、 1.88 eV が 1S の二励起子状態、 2.07 eV が 1S より一つ上の状態(1P)からの発光に対応する成分と帰属した[2, 3]。スペクトルピークから 1S 状態の一励起子状態から二励起子状態、また 1P 状態との間のエネルギー差を求めると、それぞれ 40 , 150 meV であった。

図 2 の①～③の波長における発光ダイナミクスを図 3 に示す。図 2 のスペクトル解析から、①のダイナミクスはほぼ一励起子状態の輻射ダイナミクスに対応しており、二励起子などの小さな速い成分を除いて単一指数関数で解析できた。②の二励起子状態のダイナミクスは一励起子ダイナミクスとの重ね合わせとして観測され、二励起子状態の速い緩和時間は 76 ps であった。③の 1P 状態の発光ダイナミクスの緩和時間はパルスの応答関数程度(~ 40 ps)であり、極めて速い緩和であることがわかる。

発表では時間分解発光スペクトルと過渡吸収スペクトルとの相関を述べると共に、異なる保護剤の CdTe QDs についても同様の実験を行い、複数励起子状態や励起子間結合エネルギーの違いについても報告する予定である。

【参考文献】

- [1] Y. Kobayashi, L. Pan, N. Tamai *J. Phys. Chem. C*, **2009**, *113*, 11783.
- [2] M. Achermann, J. A. Hollingsworth, V. I. Klimov, *Phys. Rev. B*, **2003**, *68*, 245302.
- [3] C. Bonati, M. B. Mohamed, D. Tonti, G. Zgrablic, S. Haacke, F. Van Mourik, M. Chergui, *Phys. Rev. B*, **2005**, *71*, 205317.

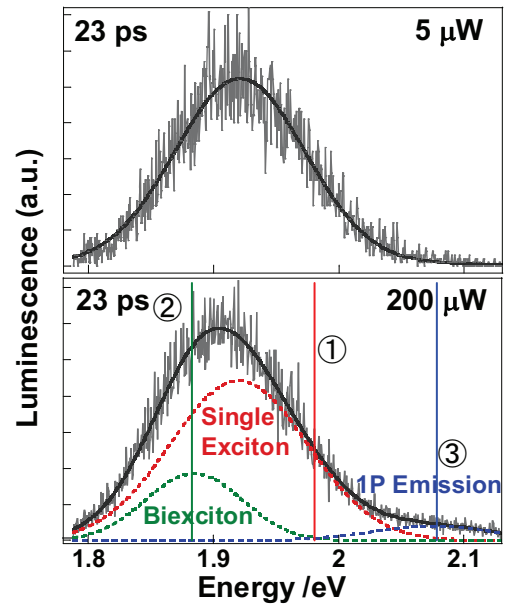


図 2 : 励起後 23 ps の異なる励起光強度におけるオレイン酸キャップ CdTe QDs ($D = 4.1$ nm)の時間分解発光スペクトル

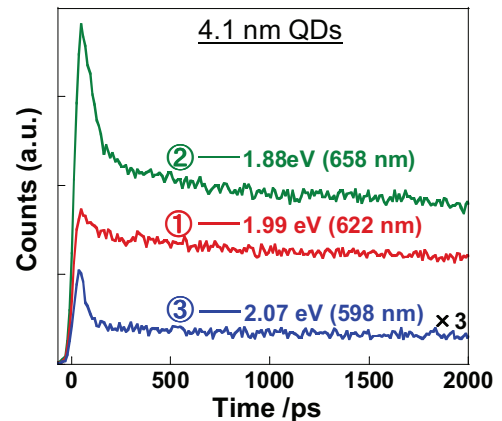


図 3 : オレイン酸キャップ CdTe QDs の各波長における発光ダイナミクス