

1P025

**AFM チップによるプラズモン増強を用いた
単一 CdSe/ZnS コロイド量子ドットの発光挙動制御**
(関西学院大院理工) ○立石 知基、増尾 貞弘

Control of the Emission Behavior of a Single CdSe/ZnS Colloidal
Quantum Dot by Plasmon Generated on an AFM Tip
(Kwansei Gakuin Univ.) ○Tomoki Tateishi, Sadahiro Masuo

【序】これまで我々は、金属ナノ構造体の局在表面プラズモン共鳴(LSPR)と相互作用した単一量子ドット(QD)の発光挙動について検討してきた[1-3]。QD-LSPR間の相互作用はQDと金属ナノ構造体間距離に強く依存する。そのため、相互作用したQDの発光挙動を詳細に解明するためには、QD-金属ナノ構造体間の距離制御が必要不可欠である。そこで本研究では、ナノスケールでの距離制御を達成するため、金コートしたAFMチップ、および金ナノ粒子を付着したAFMチップ[4]を駆使し、これを単一QDに対して近づけた。QD-AFMチップ間距離に依存したQDの発光挙動変化を観測したので報告する。

【実験】QDはCdSe/ZnS(発光波長605 nm)を用い、そのトルエン溶液をガラス基板上にスピンコートしたものを測定用試料とした。AFMチップはシリコン製のものを用い、これに金スパッタ、および金ナノ粒子を付着させたものを用いた[4]。励起光としてピコ秒パルスレーザー(波長465 nm)を導入した共焦点光学顕微鏡に、AFMを組み合わせた装置を用いて実験を行った。AFMチップをAFMの操作により単一QDに対してナノスケールで任意の距離に位置させ、単一QDの蛍光強度、蛍光寿命、光子アンチバンチング挙動、蛍光スペクトルの変化を観測した。

【結果と考察】金コートしたAFMチップを単一QDに近づけた前後における単一QDの蛍光強度の時間変化(a, d)、光子相関ヒストグラム(b, e)、蛍光減衰曲線(c, f)をFig.1に示す。近づける前(a, b, c)では、光子相関ヒストグラムの中央のピークが低く、光子アンチバンチング挙動を示していることから、単一QDの発光であることがわかる。近づけた後(d, e, f)では、蛍光強度の減少(Fig.1d)、蛍光寿命の短寿命化(Fig.1f)が観測され、光子アンチバンチングを示しにくくなることがわかった(Fig.1e)。

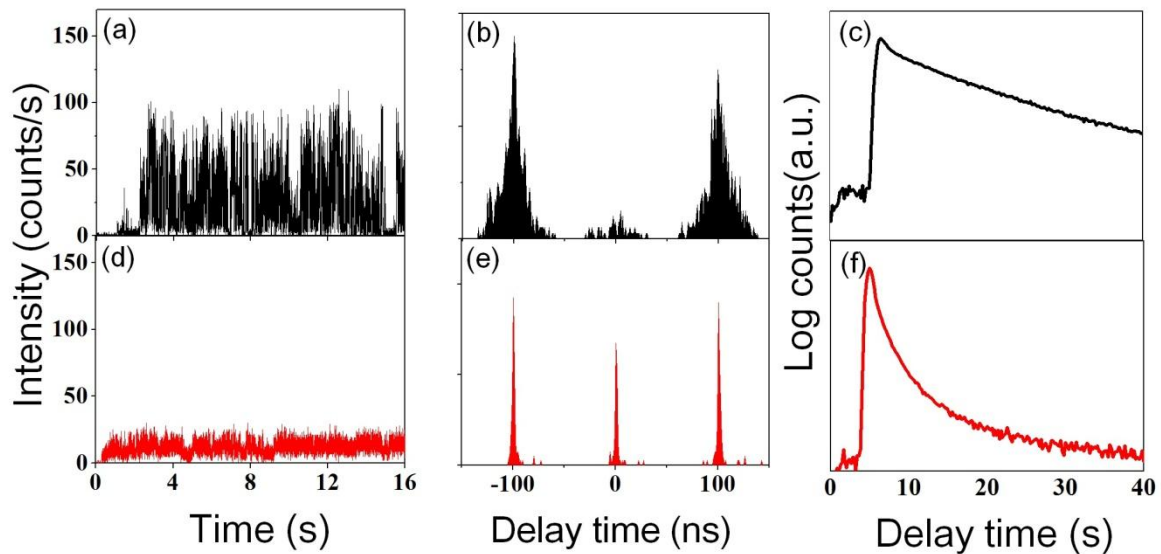


Fig.1 Time traces of fluorescence intensity (a, d), photon correlation histograms (b, e) and fluorescence decay curves (c, f) detected from a single QD before (a, b, c) and after (d, e, f) approach of a gold-coated AFM tip to the single QD.

このように、AFMチップに単一QD近づけることで、発光挙動を変化させることに成功した。このような発光寿命の短寿命化に伴う光子アンチバンチング確率の低下は、以前報告した単一QD-銀ナノ粒子で観測された挙動と同様であり[1-3]、以下のように考えることができる。単一QDは、複数の励起子が生成した場合でも、励起子同士のAuger再結合過程を経て単一励起子となり、光子アンチバンチングを示す。AFMチップを単一QDに近づけた場合(d, e, f)では、AFMチップの金ナノ構造体と単一QDが相互作用することにより、QDの輻射、および無輻射速度が増強されたと考えられる。この増強した速度が、光子アンチバンチングを示すために必要なAuger再結合過程の速度と競争的になるため、光子アンチバンチングを示しにくくなる。特に、この結果においては、輻射速度よりも、無輻射速度の増強が上回ったことにより、蛍光速度の減少に至ったと考えられる。詳細について報告する。

[1] S. Masuo, T. Tanaka, S. Machida, A. Itaya, *J. Photochem. Photobiol. A*, **237**, 24 (2012).

[2] H. Naiki, S. Masuo, A. Itaya, *J. Phys. Chem. C*, **115**, 23299 (2011).

[3] S. Masuo, H. Naiki, S. Machida, A. Itaya, *Appl. Phys. Lett.*, **95**, 193106 (2009).

[4] P. Anger, P. Bharadwaj, and L. Novotny, *Phys.Rev.Lett.*, **96**, 113002 (2006).