

4P030

時間発光分光と単一微粒子分光による SiC 熱分解グラフェン上

CdTe 量子ドットの励起子ダイナミクス

(関西学院大院・理工) ○廣瀬拓哉, 平井孝佳, 奥畑智貴, 久津間保徳, 金子忠昭,
玉井尚登

Exciton dynamics of CdTe QDs on epitaxial graphene by time-resolved laser spectroscopy and single particle spectroscopy.

(Kwansei Gakuin University) ○Takuya Hirose, Takayoshi Hirai, Tomoki Okuhata,
Yasunori Kutsuma, Tadaaki Kaneko, Naoto Tamai

【序論】近年グラフェン複合体に関する研究が盛んに行われているが、1 層グラフェンを作製することは課題であり、またグラフェンと量子ドット (QDs) との相互作用においてエネルギー移動または電子移動の議論がある。この移動過程を明らかにするために、本研究ではまず 1 層グラフェンを SiC 熱分解法を用いて作製し、ラマン分光により評価を行った。次に時間発光分光によりグラフェン上の CdTe QDs の励起子ダイナミクスを解析し、Förster 型のエネルギー移動式を用いて相互作用の評価を行った。またグラフェン上 CdTe QDs の単一微粒子発光挙動、グラフェン-QDs 間の距離制御による励起子ダイナミクスの解析も報告する。

【実験】グラフェンは超高真空・高温加熱炉を用いて on-axis 4H-SiC (0001) Si 面を TaC 坩堝内でエピタキシャル成長して得た。グラフェンの層数と均一性の評価は共焦点顕微鏡を用いた空間分解ラマン分光によって行った。CdTe QDs の合成は V. Kloper *et al.* と N. Gaponik *et al.* の手法を参考にした[1, 2]。グラフェン上の CdTe QDs のピコ秒時間発光分光測定によりその励起子ダイナミクスを調べた。また、単一微粒子分光によりガラス基板、グラフェンおよびグラファイト上の CdTe QDs の発光挙動を調べ、比較と考察を行った。

【結果と考察】グラフェン表面のラマンマッピングから 2D バンドの半値全幅 (FWHM) 60 cm^{-1} 以下の領域が 99%以上確認できた。Si 面上のグラフェン層数と 2D-FWHM に関係があることが知られており[3]、それを参考にすると、1~2 層のグラフェン領域 (FWHM 65 cm^{-1} 以下) が基板全面にできていることが分かった。

発光寿命測定においてグラフェンやグラファイト上の CdTe QDs (粒径 3.8 nm) では SiC やガラス上の QDs と比べ早い緩和成分が見られた (図 1)。解析の結果、この早い緩和成分はそれぞれ 49 ps と 32 ps であり、エネルギー移動の緩和モデルと比

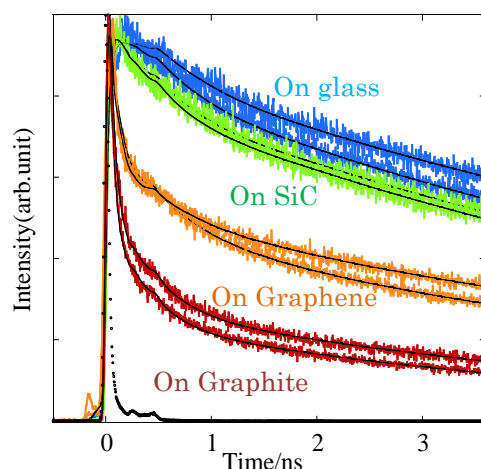


図 1 各基板上での QDs の励起子発光ダイナミクス (観測波長 614 nm)

較を行った。グラフェンのような2次元表面にエネルギー移動する場合、その成分 τ_{ET} はドナーの寿命 τ_D 、分子間距離 R 、臨界移動距離 R_0 を用いて次式で表される[4]。

$$\tau_{ET} = \tau_D \left(\frac{R}{R_0} \right)^4, \quad R_0 = \left[0.225 \frac{cn^2}{(2\pi)^2 \omega_F k_F} Q \lambda^2 \right]^{\frac{1}{4}}$$

c は光速、 n は媒体の屈折率、 ω_F は角振動数、 k_F はフェルミベクトル、 Q は量子収率、 λ はドナーの発光スペクトルである。この式を用いてエネルギー移動成分の算出を行うと、グラフェン上では 60 ps、グラファイト上では 54 ps と求まり、実験値と近い値を示した。この結果は CdTe QDs からグラフェンおよびグラファイトにエネルギー移動していることを示唆している。また CdTe QDs の単一微粒子測定ではガラス上、グラファイト上の両方で発光状態 (on) と非発光状態 (off) を繰り返すブリンキングが確認された (図 2a,b)。50 個の QDs を解析すると、グラファイト上では発光強度が弱く、さらに on-off のブリンキングが抑制されることが分かった。ブリンキングは主にオージェイオン化過程により発現することが知られている。グラファイト上ではエネルギー移動により QDs の励起子寿命が短くなり、二励起子生成が抑制される。その結果、ブリンキングが抑制されたと考えられる (図 2c)。また、エネルギー移動は分子間距離に大きく依存するのでグラフェン-QDs 間の距離を制御した顕微鏡下の寿命測定についても報告する。

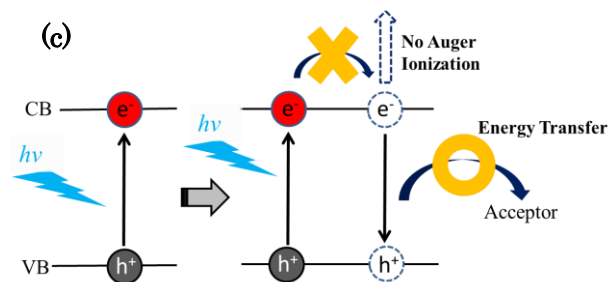
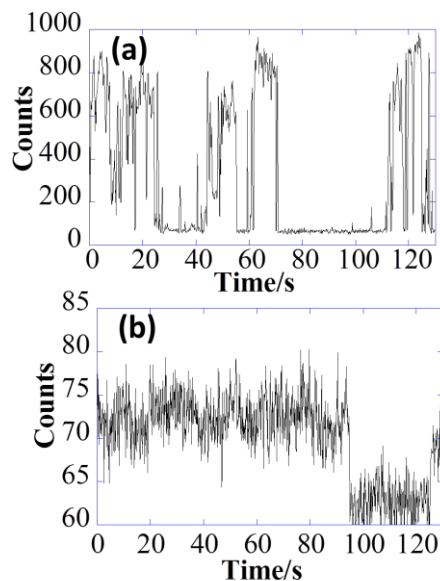


図 2 ガラス上(a)とグラファイト上(b)のブリンキング、(c)エネルギー移動によるブリンキングメカニズム

【参考文献】

- [1] V. Kloper, R. Osovsky, J. K. Olesiak, A. Sashchiuk, E. Lifshitz, *J. Phys. Chem. C*, **2007**, *111*, 10336.
- [2] N. Gaponik, D. V. Talapin, A. L. Rogach, K. Hoppe, E. V. Shevchenko, A. Kornowski, A. Eychmüller, H. Weller, *J. Phys. Chem. B*, **2002**, *106*, 7117.
- [3] D. S. Lee, C. Riedl, B. Krauss, K. von Klitzing, U. Starke, J. H. Smet, *Nano.Lett.*, **2008**, *8*, 4320.
- [4] B. N. J. Persson, N. D. Lang, *Phys. Rev. B*, **1982**, *26*, 5409.