

## 1C01

### 銀コート AFM チップを駆使した単一量子ドットの発光挙動制御

(関西学院大理工) ○増尾貞弘, 高田広樹

### Control of the Emission Behavior of a Single Quantum Dot by a Silver-coated AFM tip

(Kwansei Gakuin Univ.) ○Sadahiro Masuo, Hiroki Takata

【序】半導体量子ドット(QD)の注目すべき特徴の1つは、一光子吸収により、1つのQD内に複数の励起子を生成できることであり、この過程を利用することで、太陽電池や発光材料の高効率化が期待されている。しかしながら、多くの場合、複数の励起子は Auger 再結合によって1つの励起子に減少してしまう。この Auger 再結合を利用することにより、単一QDを単一光子発生源として用いることも可能である。つまり、Auger 再結合を制御することが重要である。我々はこれまで、単一QDを金属ナノ構造体のプラズモンと相互作用させることにより、Auger 再結合の制御を試みてきた[1-3]。その結果、金属ナノ構造体の存在により、Auger 再結合よりも速く複数の励起子から発光させることに成功してきた。このメカニズムを詳細に解明するためには、単一QDと金属ナノ構造体間の距離の制御が重要である。我々は、AFM マニピュレーションを用い、単一金ナノ粒子を単一QDに近づけることにより距離制御を行うことも試みている。しかしながら、このAFM マニピュレーションでは nm スケールでの明確な距離制御が困難であることがわかってきた。そこで本研究では、金属ナノ構造体として銀コート AFM 探針(銀チップ)を用い、AFM の分解能で距離制御を試みた。これにより、銀チップを単一QDに nm スケールで近づけ、その距離に応じた単一QDの発光挙動について検討を行った。

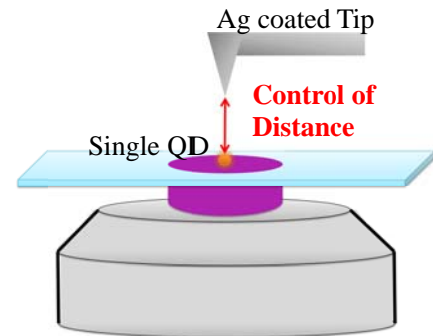


Fig. 1 The concept of this work

【実験】QDには、CdSe/ZnS(蛍光ピーク 605 nm)を用い、ガラス基板上に分散させることで測定用試料とした。銀チップは、シリコン製の AFM カンチレバーに銀をスパッタすることにより作製した。測定は以下の手順で行った。ピコ秒パルスレーザー(波長 405, 465 nm)をラジアル偏光にした後、AFM を組み込んだ共焦点顕微鏡に導入した。単一QDに対しレーザー光を照射することで、蛍光強度、蛍光寿命、および光子アンチバンチング挙動を測定した後、単一QDに対して銀チップを任意の距離で近づけ、その距離に応じた単一QDの発光挙動変化を測定した。また、2つの励起波長を用いることで発光挙動に対する励起波長依存性も検討した。

【結果と考察】単一QDに対して銀チップを任意の距離近づけ、その距離に応じた発光挙動を測定した結果を Fig. 2 に示す。励起波長 405 nm(a-j)では、銀チップ-単一QD間の距離が短くなるほど、近づける前(a, e)に比べて蛍光強度は低くなり(b, c)、光子アンチバンチング挙動を

示す確率が低下し(f, g), 蛍光寿命は短寿命化した(i)。一方, 励起波長 465 nm(k-t)では, 銀チップを QD に近づけると, 蛍光寿命と光子アンチバンチング挙動は 405 nm 励起の場合と同様に变化した(p, q, s)。しかし, 蛍光強度の変化は 405 nm 励起の場合とは異なり, 銀チップを近づけるにつれて増加した(l, m)。また, 銀チップを遠ざけると, どちらの励起波長においても発光挙動は近づける前の挙動に戻ることがわかり, 銀チップのアプローチに依存したリバーシブルな結果を得ることに成功した。

以上の結果から, 次のようなメカニズムを考えることができる。プラズモンは, QD の励起過程 (励起速度), および緩和過程(輻射・無輻射速度)に影響を与える。蛍光の短寿命化を伴う光子アンチバンチングの確率低下は, 銀チップによって輻射・無輻射速度が速くなり, Auger 再結合が起こる前に複数の励起子が発光したことに起因すると考えられる。一方, 励起波長依存性は, 銀チップに生成したプラズモンによる増強電場の強度が励起波長に依存し, QD の励起速度が变化したことに起因したと考えられる。これらの効果は, 単一 QD と銀チップ間の距離に依存するため, 距離が短いほど顕著に影響が表れたと考えられる。以上のように, 1 つの QD に対して銀チップを近づけ, その距離に応じた単一 QD の発光挙動を見出すことに成功した。

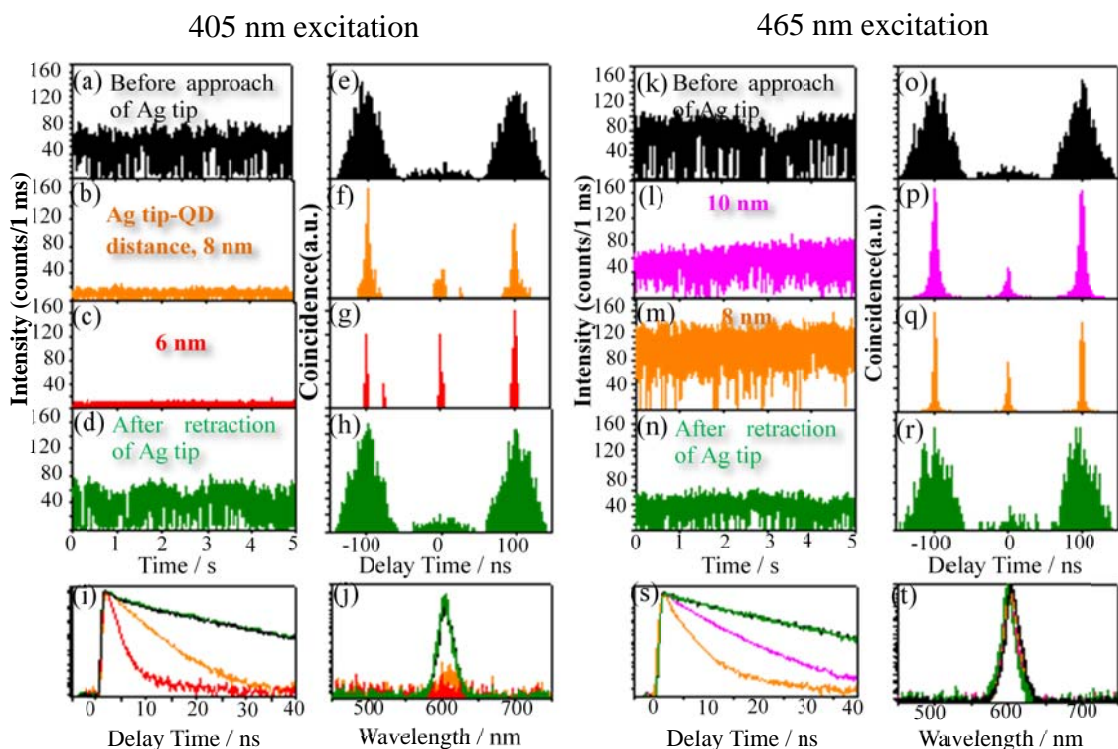


Fig. 2 Fluorescence intensity (a-d, i-l), photon correlation histograms (e-h, m-p), fluorescence decay curves (q, s) and fluorescence spectrum (r, t) of the single QD depending on the single QD-Ag tip distance.

#### 【参考文献】

- [1] Masuo, S. Naiki, H. Machida, S. Itaya, A. *Appl. Phys. Lett.*, 95, 193106 (2009)
- [2] Naiki, H. Masuo, S. Machida, S. Itaya, A. *J. Phys. Chem. C.*, 115, 23299 (2011)
- [3] Masuo, S. Tanaka, T. Machida, S. Itaya, A. *J. Photochem. Photobio. A.*, 237, 24 (2012)