

プラズモニックナノ構造による量子ドットの発光光子統計制御

増尾 貞弘(関西学院大学工学部)

半導体量子ドット(QD)は、LED、テレビ、太陽光発電などの光電子材料や生体イメージングなど様々な分野で注目されている。そのQDの興味深い特徴の1つが、単一量子ドットからの単一光子発光、多光子発光、すなわち、発光光子統計である。単一量子ドットには、同時に多励起子が生成可能であり、この多励起子が同時に光子を放射することで多光子発光が得られる。この多光子については、量子もつれ光子対としての振舞いが報告されている。しかしながら、多励起子が生成するとオージェ再結合が起り、励起子数が1つに減少することにより、単一光子発光を示す。この発光光子統計を自在に制御することができれば、QDを高輝度発光材料だけでなく、量子光源にも展開させることが可能となる。一般に、発光光子統計制御は、QDのサイズ、構造制御により行われており、オンデマンドな制御は不可能である。我々はこれまで、プラズモニックナノ構造による制御を検討してきており、単一QDと金属ナノ構造間の相互作用により、発光光子統計を制御可能なことを見出してきた¹⁻⁴⁾。ここでは、プラズモニックナノ構造として、銀コート原子間力顕微鏡チップ (AgTip)を用いた研究³⁾について紹介する。

AgTipを単一QDへ近づけると、距離が短くなるにつれ、単一QDからの発光は発光寿命の減少を伴い、単一光子発光から多光子発光へと変化した。この変化は、AgTipを近づけることでQDからAgTipへエネルギー移動が起こったことに起因していると考えられる。励起波長依存性を観測したところ、AgTipの局在プラズモンを励起可能な470 nm励起では、AgTipを近づけるにつれ、発光強度の増加が観測され、局在プラズモンを励起できない405 nm励起では、発光強度は減少することがわかった。AgTipのシミュレーションの結果等を考慮して考察すると、このAgTipを用いた場合、AgTipのプラズモン電場による励起速度の増強によりQDの発光強度を制御可能であり、QDからAgTipへのエネルギー移動による励起子の消光により、光子統計を制御可能であることがわかった。電場、エネルギー移動共に距離に依存するため、AgTipとQDの距離を制御することにより、発光増強された多光子発光・単一光子発光が得られることを見出した。以前に報告した金ナノキューブを用いた研究⁴⁾では、QDから金ナノキューブへのエネルギー移動を経由した発光速度の増強が光子統計制御のメカニズムであった。よって、これまでの研究結果をまとめると、①発光強度は局在プラズモンの電場による励起速度の増強、および発光速度の増強により制御可能、②発光光子統計は、エネルギー移動による発光速度の増強、および消光（無輻射速度の増強）により制御可能であることがわかった。①②および距離の制御を行うことにより、光子統計の自在な制御が可能であることを見出した。

謝辞 AgTipの散乱スペクトル測定は、北海道大学電子研藤原先生、笹木先生、AgTipのシミュレーションは関西学院大学工学部王博士、玉井先生に行っていただきました。皆様に感謝申し上げます。

REFERENCES

1. Naiki, H., Uedao, T., Wang, L., Tamai, N., and Masuo, S. *ACS Omega*, **2017**, *2*, 728-737.
2. Naiki, H., Oikawa, H., and Masuo, S. *Photochem. Photobiol. Sci.*, **2017**, *16*, 489-498.
3. Takata, H., Naiki, H., Wang, L., Fujiwara, H., Sasaki, K., Tamai, N., and Masuo, S. *Nano Lett*, **2016**, *16*, 5770-5778.
4. S. Masuo, K. Kanetaka, R. Sato, T. Teranishi, *ACS Photonics*, **2016**, *3*, 109-116.