

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 5 月 24 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H03863

研究課題名(和文) バンド端蛍光を発するCdフリー量子ドットの合成と応用

研究課題名(英文) Synthesis of Cd-free quantum dots exhibiting band edge fluorescence

研究代表者

桑畑 進 (Kuwabata, Susumu)

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号：40186565

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,000,000円

研究成果の概要(和文)：サイズが10 nm以下である半導体ナノ粒子(量子ドット)は、バルク半導体が有しない発光特性や量子サイズ効果を示す。しかし、高性能な量子ドットは全てカドミウム化合物である。我々は、カドミウム元素を複数の低毒性元素に置き換えることにより、カドミウムフリーの量子ドットを合成することに成功している。しかし、スペクトル的にブロードな欠陥サイトからの発光ゆえ、その特性は十分だとは言えない。本研究では、量子ドット表面に他種の半導体を被覆するコア・シェル構造体を構成する事で、シャープなバンド端発光を示す量子ドットへ劇的に変身させ、量子ドットを実用性を向上させるコア・シェルテクノロジーの開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

サイズが10 nm以下の半導体粒子は量子ドットと呼ばれており、蛍光を発し、その色は粒子のサイズで変化し、かつ有機蛍光分子よりも耐久性が優れているので、新しい発光素子として興味を持たれている。しかし、これまでに開発されてきた高特性な量子ドットは全てカドミウム化合物であった。我々は、2007年に蛍光を発するカドミウムを含まない量子ドットを開発したが、その蛍光は欠陥サイトから発せられるため、カドミウム化合物量子ドットより劣っていた。しかし、本研究によってバンド端から蛍光を発する、カドミウム化合物と同等の高特性な量子ドットの作製に成功し、量子ドットの本格的応用の可能性を開いた。

研究成果の概要(英文)：Semiconductor nanoparticles (quantum dots) having a size of 10 nm or less exhibit emission characteristics and quantum size effects that bulk semiconductors do not have. So far, however, all high-performance quantum dots have been cadmium compounds. We have succeeded in synthesizing cadmium-free quantum dots by replacing the cadmium element with multiple low-toxic elements. However, its characteristics are not sufficient because it emits photoluminescence from defect sites that is spectrally broad. In this research, by constructing a core-shell structure in which the surface of a quantum dot is coated with another type of semiconductor, it is dramatically transformed into a quantum dot that exhibits sharp band-edge emission. Furthermore, the quantum dots are improved in practicality by developing new core-shell technologies.

研究分野：電気化学、ナノ材料科学

キーワード：量子ドット 半導体ナノ粒子 フォトルミネッセンス 量子サイズ効果 コア・シェル構造

1. 研究開始当初の背景

半導体を電子顕微鏡でないと見えないサイズまで小さくすると、バルクサイズの半導体では現れない機能が発現する。ひとつは図1に示す量子サイズ効果である。サイズが10 nmより小さくなると、サイズの減少とともにバンドギャップのエネルギー幅が大きくなっていく。これは粒子内の量子閉じ込め効果で発現するので、このような粒子を量子ドット (Quantum dot: QD) と呼ぶようになった。量子ドットの中には、フォトルミネッセンス特性を示すものがある(図2)。それらの発光色、すなわち発光の波長は図2の上図からわかるようにバンドギャップのエネルギー幅で決定する。よって、粒子サイズが異なる量子ドットは「量子サイズ効果」により発光色が変化する(図2の下図)。

1990年代前半に、Murray や Alivisatos らが、線幅の狭いスペクトルの発光を示す CdSe の合成法を開発すると、それが商品化され、特に生体細胞のラベル試薬として興味を持たれ、数多くの研究が発表されると同時にバイオマーカーとして販売も行われた。さらに、液晶ディスプレイのバックライトへの応用も研究され、スマートフォン用ディスプレイに採用されるにまで至った。しかし、良質な発光スペクトルを示す量子ドットはおしなべてカドミウム化合物であるということは致命的であった。カドミウムを含まない発光性量子ドットとしては、InP が唯一のものとして残ったが、猛毒のリン化合物を出発物質に用いて合成することから、それを扱う研究者人口は多いものでは無かった。そのような中、本研究報告者の研究グループで、AgInS₂、ならびにこれと ZnS の固溶体である (AgIn)_xZn_{2(1-x)}S₂ の量子ドットがフォトルミネッセンスを発するという発見があり、2007年に発表した (*J. Am. Chem. Soc.*, **129** (2007) 12388) (図3)。しかし、残念な事にこの量子ドットの発光スペクトルは、図4に示すように幅が広く、色純度は低い物であった。それゆえ、この量子ドットの発光スペクトルの幅を狭くするか、あるいは発光スペクトルの幅が狭い新規な量子ドットを合成するかという選択に迫られていた。

2. 研究の目的

InP は、III-V半導体で唯一発光するが、既述したように合成が困難である。一方、II-VI半導体はIIの元素としてはCdに限定されるが、VIの元素は複数の候補がある。発光することが確認された AgInS₂ は、発光性量子ドットである CdS の Cd²⁺ を Ag⁺ と In³⁺ に置き換えたものと考えられる。1価と3価の元素に置き換えれば良いのであれば、候補となる元素の組み合わせは複数個存在する。しかし、CdS や CdSe によるような2成分化合物に比して3成分以上のマルチ元素化合物は合成の難度は高まり、結晶中に生じる欠陥のタイプ数も多くなる。2成分半導体の場合、発光する場合は伝導帯に励起した電子と価電子帯の正孔が直接再結合することで発光する「バンド端発光」のみが起こり、欠陥は主として発光の量子効率を低減させる。一方、3成分半導体である AgInS₂ の場合、種々の欠陥の中、図5に示すように欠陥が作る軌道を介しての発光が起こり、それゆえ蛍光分子のような発光スペクトルの幅の広がりが出てくるのではないかと予想した。もしそうであるならば、Cd²⁺ を他の1価、3価の元素に置き換えた新規の半導体量子ドットを合成しても、それだけでバンド端発光を示す可能性は低い。そこで、本基盤研究では、いたづらに種々の半導体量子ドットを合成し、偶然的にバンド端発光を示すものが得られることを期待するのではなく、AgInS₂ をベースとして論理的思考で欠陥発光からバンド端発光へ変換させる方策を考案することとした。

2成分半導体量子ドットの場合、図6に示すように表面にバンドギャップのエネルギー幅がより大きい半導体をコートしたコア-シェル構造にすると、発光の量子収率が增加する。これは、コア内の量子の閉じ込め効果が強化されるとともに、コア表面に存

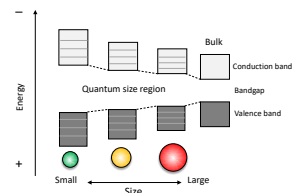


図1 量子サイズ効果

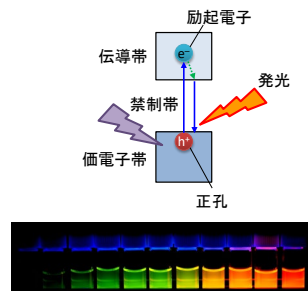


図2 フォトルミネッセンスの原理 (上図) と粒子サイズの異なる量子ドットの発光の様子 (下図)。

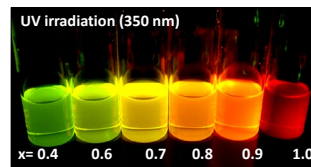


図3 (AgIn)_xZn_{2(1-x)}(S₂CNEt₂)₄ のフォトルミネッセンス。

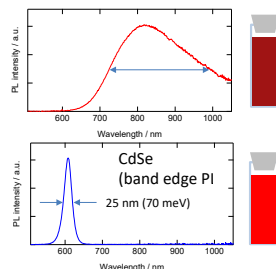


図4 (AgIn)_xZn_{2(1-x)}(S₂CNEt₂)₄ と CdSe の発光スペクトルの比較。

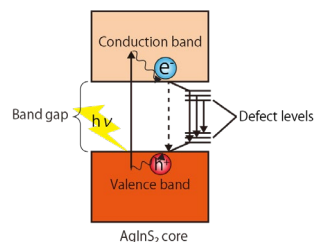


図5 AgInS₂ からの発光モデル (予想)。

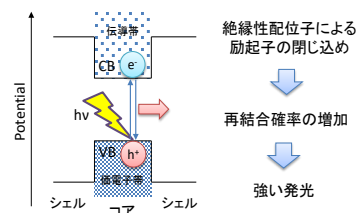


図6 コア-シェル構造の効果。

在するであろう欠陥を消去する効果によるものと考察されている。この考えを基として、 AgInS_2 量子ドットに対するシェル効果の効果を調査することから研究を開始した。

3. 研究の方法

本研究で用いた半導体量子ドットは、 CdSe 、 CdTe 、 CdS 、および AgInS_2 である。それぞれの合成方法については研究成果中に手短かに説明する。 AgInS_2 量子ドットについては、バンド端発光する脱カドミウム量子ドットを合成するためのシェル・テクノロジー開発と量子効率向上のための合成法の改良を目的とした研究に用いた。良質の脱カドミウム量子ドットの合成法が完成した時、すぐに固体デバイス化できるようにするため、バンド端発光するカドミウム化合物の量子ドットを用いてシェル・テクノロジーの高度化を行った。

4. 研究成果

4-1 Ga_xS_x シェルを被覆することによる AgInS_2 量子ドットのバンド端発光

$\text{Ag}(\text{OAc})$ 、 $\text{In}(\text{OAc})$ 、チオ尿素をオレイルアミンと 1-ドデカンチオール (59/1 vol/vol) の混合溶媒の中に溶解し、 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ の昇温速度で 200°C まで加熱した後、室温まで下げた。遠心分離で沈殿する成分を除去し、メタノールを貧溶媒として加える事で AgInS_2 ナノ粒子を沈殿させ、遠心分離でオレイルアミンが配位した AgInS_2 ナノ粒子を粉末として得た。これをもう一度オレイルアミン浴に分散し、 $\text{Zn}(\text{OAc})_2$ とチオ尿素を入れて 200°C に加熱した。この方法は、 CdSe 量子ドットに ZnS 半導体シェルをコートした CdSe/ZnS 量子ドットを調製する方法であり、 ZnS はバンドギャップが 3.5 eV もあるので定番のシェル材料として多用されている。合成されたであろう $\text{AgInS}_2/\text{ZnS}$ 量子ドットの発光スペクトルを調べたところ、スペクトルの幅 (full width at half maximum: FWHM) は AgInS_2 と変わらず、ピーク波長はブルーシフトしていた。「1. 研究開始当初の背景」に記載したように、 AgInS_2 と ZnS は固溶体を形成することを記載したが、 AgInS_2 存在下で ZnS を生成させるとシェルが形成するのではなく、両半導体の固溶体ができてしまったのだと考えると、残念ながら発光スペクトルの結果を説明することができてしまう。

AgInS_2 にシェルをコートするためには、 AgInS_2 と固溶体を形成しない半導体を選択しなければならない。そこで固体の相図をチェックすると、 In_2S_3 は AgInS_2 の成分元素で構成されているにも関わらず、極少量しか固溶しないことがわかり、かつそのバンドギャップは 2.2 eV と AgInS_2 のそれ (1.8 eV) よりも少し大きいのでシェル材料として選択してみた。 In_2S_3 シェルの形成は上述の ZnS シェル形成と同条件で、 $\text{Zn}(\text{OAc})_2$ の代わりに $\text{In}(\text{OAc})_3$ を出発物質に用いた。得られたであろう $\text{AgInS}_2/\text{In}_2\text{S}_3$ 量子ドットの発光スペクトルを計測したところ、図 7 (青線) のような結果が得られた。 AgInS_2 の欠陥発光より 100 nm ほどブルーシフトした欠陥発光が出現した。これは、 AgInS_2 のごく表面に In_2S_3 との固溶体が形成したのかも知れない。それに加えて 600 nm 付近に非常にシャープな発光スペクトルが出現した。ピーク波長が欠陥発光よりも短波長であること、ならびに FWHM が数十 nm であることより、 AgInS_2 からのバンド端発光であると言っても良さそうである。しかし、その強度は欠陥発光と同程度であるので、まだ満足できるものではない、そこで In_2S_3 と同族の半導体で、バンドギャップのエネルギー幅が 2.8 eV とより大きな Ga_2S_3 を選択した。 $\text{Ga}(\text{OAc})_3$ を出発物質に用いてシェルを形成した所、シェル形成の反応時間とともに図 8 (上図) のような結果を得た。すなわち、 Ga_2S_3 シェルの成長とともにシャープな発光スペクトルの強度が増大し、それに対する欠陥発光の相対強度が低下し、60 分間の反応によってシェル形成させた量子ドットの発光は、シャープな発光がメインとなった。その変化は図 8 (下図) のように視覚的にも認識することができ、暗赤色の発光を放っていた AgInS_2 が、 Ga_2S_3 シェルの形成にともなって鮮やかなオレンジ色へと変化していった。

このシャープな発光スペクトルがバンド端発光か否かは、 450 nm のパルス光照射による発光寿命計測を行った。欠陥発光の波長である 780 nm の発光寿命は 919 ns と長く、間違いなく欠陥が形成している軌道が関与した発光であることが確認された。一方、 585 nm にピークを

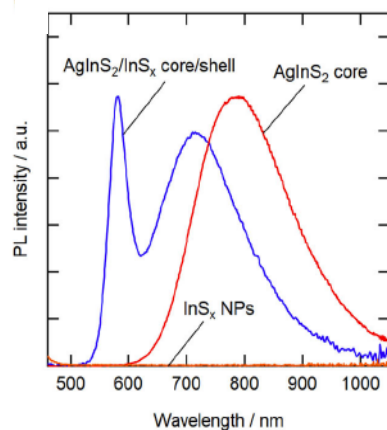


図 7 $\text{AgInS}_2/\text{In}_x$ 量子ドットの発光スペクトル。

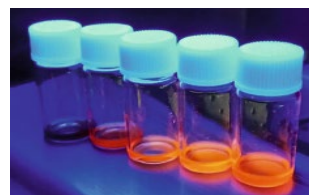
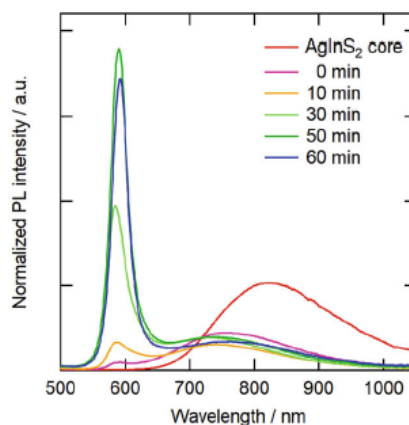


図 8 $\text{AgInS}_2/\text{Ga}_x$ 量子ドットの発光スペクトル (上図) と発光している分散液の写真 (下図)。

有するシャープな発光の寿命は 24.8 ns と非常に短く、これはバンド端発光であることが確認されている CdSe の発光寿命とほぼ一緒であった。この実験事実からも、シャープな発光は AgInS₂ のバンド端発光であると結論でき、念願のバンド端発光する Cd フリーの量子ドットの合成に成功した。なお、形成したシェルは、一部は AgInS₂ と融合している可能性があり、それゆえ元素分析で Ga₂S₃ と同定できておらず、かつ HAADF-STEM 観察ではアモルファス構造であったので、これ以降は合成したコア-シェル量子ドットは AgInS₂/GaS_x 量子ドットと記載することにする。

願望していた量子ドットは合成できたものの、量子効率率は 12.4% であり、50% を優に超える CdSe 量子ドットの発光にくらべると必ずしも大きな値とは言えず、まだ改良すべき材料であった。種々の方法を試した所、AgInS₂ の合成時の加熱温度を 135°C まで下げる、GaS_x シェルの形成時に用いる硫黄化合物をジメチルチオ尿素に変えることでバンド端発光の量子収率は 20% にまで向上した。さらに、合成した AgInS₂/GaS_x 量子ドットをクロロホルムに分散し、そこへトリオクチルフォスフィン (TOP) を加えると、劇的な変化が起きる事を発見した。一連の変化がわかるように各過程で得られた発光スペクトルを図 9 (上図) にまとめて示し、それぞれの発光の写真を下図に示す。TOP 処理を行うとバンド端発光の強度は倍以上に増加し、欠陥発光の強度を低下させる。その結果、量子効率は 50% を超え、欠陥発光の影響が無くなった発光色は鮮やかな黄色に変化した。FWHM は 33 nm であり、InP/ZnS コアシェル量子ドットのそれ (48 nm) よりも高い色純度であった。

TOP 処理の効果について調査するため、単粒子発光計測を行った。1 つの量子ドットは光照射している間発光し続けているわけではなく、光励起した電子が何らかなタイミングで粒子表面に存在するトラップサイトに捕まると、その後は光励起させても Auger 再結合が起きてしまうので消光してしまう。この OFF 状態は数秒~数百秒も続くことがあり、その長さはひとつの粒子であっても ON と OFF の状態の間隔は不規則であり、当然ながら異なる粒子間にも規則的な関係は無い。そして、全ての粒子が ON と OFF を繰り返して、それが量子収率に影響している。TOP 前後の単粒子計測の結果を図 10 に示す。それぞれ 3 つの粒子を計測したもので、線が上部にいる時が ON 状態で下部に移行した時が OFF 状態になったことを示す。明らかに TOP 処理を行った時の方が ON 状態が長くなっていることがわかる。すなわち、TOP は AgInS₂/GaS_x 量子ドットのトラップサイトに吸着することにより、励起電子がトラップされるタイミングを減少させることで Auger 再結合が起こる時間を低減させていると考察できる。これによって、バンド端発光の量子収率を劇的に増加させたのだと考えられる。

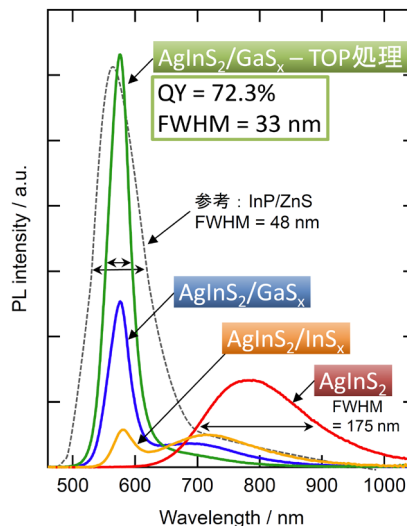


図 9 AgInS₂, AgInS₂/InS_x, AgInS₂/GaS_x, ならびに AgInS₂/GaS_x を TOP 処理した量子ドットの PL スペクトルと発光の写真。

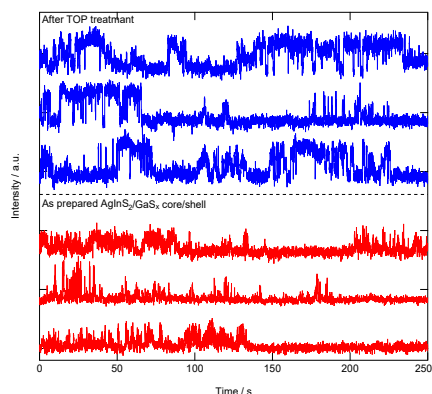


図 10 TOP 処理前(下図)と TOP 処理後(上図)の AgInS₂/GaS_x のそれぞれ 3 つの粒子の単粒子発光計測。

4-2 量子収率向上のための AgInS₂ 合成法の改良

AgInS₂ の合成時に出発物質を混合し加熱するとかなりの量の黒い沈殿物が出現し、実験手順の所に既述したように、これを遠心分離により除去する。この沈殿物を分析したところ、Ag₂S が主成分であった。AgInS₂ 結晶中には、Ag-S, In-S, そして Ag-In の結合が存在す

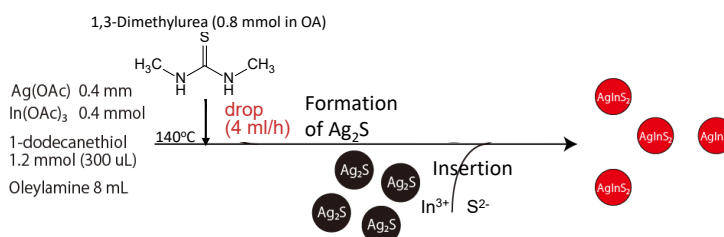


図 11 改良型 AgInS₂ 合成法。

るが、これらのうち Ag-S 結合が最も起こりやすいことを意味している。すなわち、合成の反応過程は、最初に Ag_2S 粒子が生成し、そこへ In^{3+} と S^{2-} が挿入することで AgInS_2 ナノ粒子が生成すると推定できる。先に生成した Ag_2S 粒子へイオンが挿入することは、それほど早い反応とは思われないので、ある程度の大きさ以上に成長した Ag_2S 粒子は表面付近にしか挿入反応は起こらないと考えられる。沈殿物として除去できる粒子は問題ないが、最終生成物として得られたナノ粒子の中にも In^{3+} と S^{2-} が十分に挿入していないものもあるかもしれず、その場合には生成物の光学特性に影響している可能性がある。そこで合成法を図 11 のように改良することを考案した。すなわち、反応溶液中に $\text{Ag}(\text{OAc})$ と $\text{In}(\text{OAc})_3$ を溶解し、そこへ硫黄源であるジメチルチオ尿素をゆっくりと滴下するという方法である。Ag 源、In 源、S 源が同時に十分存在している状態で加熱すれば、上記のように Ag_2S の生成と成長が優先し、粒径分布が存在する中、粒径の小さいものだけが AgInS_2 ナノ粒子になるのに対し、S 源を滴下すれば Ag_2S 粒子が生成しても S 源濃度が薄い状態では Ag_2S 粒子の成長が優先せず挿入反応も同時に進行すると考えた。

この S 源滴下合成法を、異なる加熱温度で行って生成したナノ粒子の発光（欠陥発光）スペクトルと XRD パターンを図 12 に示す。130°C で合成した粒子の XRD パターンはほぼ Ag_2S と一致しており、この温度では挿入反応が起こらない。140°C で合成したナノ粒子の XRD パターンは正方晶系（tetragonal）の AgInS_2 （t- AgInS_2 ）に一致し、量子収率 67.4% という十分に強く発光する粒子であった。加熱温度を 160°C、180°C と高くすると、正方晶系から直方晶系（orthorhombic）の AgInS_2 （o- AgInS_2 ）に変化し、発光の量子収率は低下した。すなわち、欠陥発光する AgInS_2 量子ドットとしては、正方晶系のものが直方晶系よりも優れていることがわかった。これらの結果より、 Ag_2S 粒子の副生成物の生成量を低減でき、温度を制御することによって、優れた光学特性を有する AgInS_2 量子ドットを生成できる合成法を確立することができた。

欠陥発光の量子収率のより大きな AgInS_2 量子ドットほど、 GaS_x シェルで表面コートしたときのバンド端発光の量子収率が大きくなることは、経験的にわかっていた。そこで、S 源滴下合成法によって欠陥発光の量子効率を改善された AgInS_2 量子ドットに GaS_x シェルの被覆を施した。140°C で合成した t- AgInS_2 粒子と 180°C で合成した o- AgInS_2 粒子の欠陥発光スペクトル、ならびにそれぞれに GaS_x シェルをコートした量子ドットの発光スペクトルを図 13（上図）に示す。 GaS_x シェル被覆を施した t- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ 、o- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ ともにシャープなバンド端発光を示しており、今までの経験通り前者の量子効率は後者のそれより大きい値となった。さらに、t- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ ならびに o- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ に TOP 処理することによる量子効率の改善についても調査した（下図）。その結果、140°C で合成した t- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ を TOP 処理した量子ドットは 72.3% というこれまでに得られた中で最高の量子効率のバンド端発光が得られ、実用的に用いることのできる量子ドットを合成することに成功した。

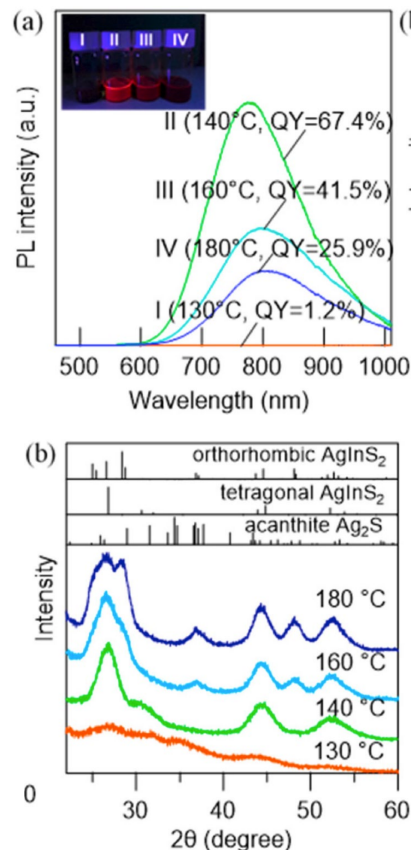


図 12 異なる加熱温度で S 源滴下法で合成した AgInS_2 ナノ粒子の発光スペクトル(a)と XRD パターン(b)

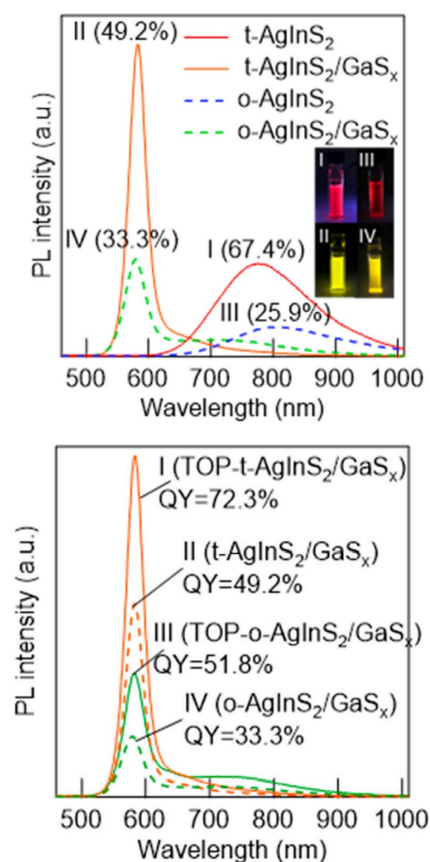


図 13 t- AgInS_2 、o- AgInS_2 、t- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ 、o- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ 、ならびに TOP 処理した t- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ 、o- $\text{AgInS}_2/\text{GaS}_x$ の発光スペクトル。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kumagai Kohei, Uematsu Taro, Torimoto Tsukasa, Kuwabata Susumu	4. 巻 21
2. 論文標題 Direct surface modification of semiconductor quantum dots with metal-organic frameworks	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 CrystEngComm	6. 最初と最後の頁 5568 ~ 5577
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9CE00769E	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hoisang Watcharaporn, Uematsu Taro, Yamamoto Takahisa, Torimoto Tsukasa, Kuwabata Susumu	4. 巻 9
2. 論文標題 Core Nanoparticle Engineering for Narrower and More Intense Band-Edge Emission from AgInS ₂ /GaS _x Core/Shell Quantum Dots	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanomaterials	6. 最初と最後の頁 1763 ~ 1763
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/nano9121763	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Kameyama Tatsuya, Yamauchi Hiroki, Yamamoto Takahisa, Mizumaki Toshiki, Yukawa Hiroshi, Yamamoto Masahiro, Ikeda Shigeru, Uematsu Taro, Baba Yoshinobu, Kuwabata Susumu, Torimoto Tsukasa	4. 巻 3
2. 論文標題 Tailored Photoluminescence Properties of Ag(In,Ga)Se ₂ Quantum Dots for Near-Infrared In Vivo Imaging	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 3275 ~ 3287
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.9b02608	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Motomura Genichi, Ogura Kei, Kameyama Tatsuya, Torimoto Tsukasa, Uematsu Taro, Kuwabata Susumu, Tsuzuki Toshimitsu	4. 巻 116
2. 論文標題 Efficient quantum-dot light-emitting diodes using ZnS-AgInS ₂ solid-solution quantum dots in combination with organic charge-transport materials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 093302 ~ 093302
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5143618	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tatsuya Kameyama, Marino Kishi, Chie Miyamae, Dharmendar Kumar Sharma, Shuzo Hirata, Takahisa Yamamoto, Taro Uematsu, Martin Vacha, Susumu Kuwabata, and Tsukasa Torimoto	4. 巻 10
2. 論文標題 Wavelength-Tunable Band-Edge Photoluminescence of Nonstoichiometric Ag-In-S Nanoparticles via Ga ³⁺ Doping	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Appl. Mater. Interfaces	6. 最初と最後の頁 42844-42855
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.8b15222	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Taro Uematsu, Kazutaka Wajima, Dharmendar Kumar Sharma, Shuzo Hirata, Takahisa Yamamoto, Tatsuya Kameyama, Martin Vacha, Tsukasa Torimoto, and Susumu Kuwabata	4. 巻 10
2. 論文標題 Narrow Band-Edge Photoluminescence from AgInS ₂ Semiconductor Nanoparticles by the Formation of Amorphous III-VI Semiconductor Shells	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 713-726
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41427-018-0067-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kameyama Tatsuya, Sugiura Kouta, Kuwabata Susumu, Okuhata Tomoki, Tamai Naoto, Torimoto Tsukasa	4. 巻 10
2. 論文標題 Hot electron transfer in Zn _{1-x} Ag _x In ₂ Te nanocrystal/methyl viologen complexes enhanced with higher-energy photon excitation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 16361 ~ 16365
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0ra02842h	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Shushi, Morimoto Atsumi, Kuwabata Susumu, Torimoto Tsukasa	4. 巻 60
2. 論文標題 Shape-controlled synthesis of Cu ₂ O nanoparticles with single-digit nanoscale void space via ionic liquid/metal sputtering and their photoelectrochemical properties	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SAAC01 ~ SAAC01
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abb75a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計24件(うち招待講演 4件/うち国際学会 10件)

1. 発表者名 Daiki Nishimura, Taro Uematsu, Tsukasa Torimoto, and Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Synthesis of Organic Ligand Free Quantum Dots in Solid State
3. 学会等名 Taiwan Japan Bilateral Workshop 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神畑知輝、上松太郎、鳥本 司、桑畑 進
2. 発表標題 硫化ガリウムシェルを有するCu-Ag-In-S量子ドットの合成と赤色発光
3. 学会等名 2019年電気化学秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神野賢人、熊谷康平、上松太郎、鳥本 司、桑畑 進
2. 発表標題 金属有機構造体(MOFs)で包埋した量子ドットの合成と発光特性
3. 学会等名 2019年電気化学秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kohei Kumagai, Taro Uematsu, Tsukasa Torimoto, and Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Metal-organic frameworks as novel stabilizers for semiconductor quantum dots
3. 学会等名 The 1st Australia-Belgium-Japan joint symposium on excitonics and cellular communication (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Watcharaporn Hoisang, Taro Uematsu, Tsukasa Torimoto, and Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Synthesis of color-tunable Ag(In _x Ga _{1-x})S ₂ /GaS _y core/shell quantum dots
3. 学会等名 電気化学会第87 回大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 西村大輝、上松太郎、鳥本 司、桑畑 進
2. 発表標題 ゾル・ゲル法による量子ドット蛍光体を分散させた固体マトリクスの調製
3. 学会等名 電気化学会第87 回大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 笹倉卓也, 上松太郎, 鳥本司, 桑畑進
2. 発表標題 Studies on exciton confinement effect of core/shell quantum dot fluorophores by photoinduced electron transfer
3. 学会等名 電気化学会 関西支部・東海支部合同シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神畑知輝、上松太郎、鳥本 司、桑畑 進
2. 発表標題 硫化ガリウムシェルを有するCu-Ag-In-S量子ドットの合成と赤色発光
3. 学会等名 2019年電気化学秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神野賢人、熊谷康平、上松太郎、鳥本 司、桑畑 進
2. 発表標題 金属有機構造体(MOFs)で包埋した量子ドットの合成と発光特性
3. 学会等名 2019年電気化学秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taro Uematsu, Watcharaporn Hoisang, Tsukasa Torimoto, Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Photoluminescence Intensity and Quality Enhancement for AgInS ₂ /GaS _x Core/shell Quantum Dots by Improving Core Synthesis Method
3. 学会等名 Taiwan Japan Bilateral Workshop 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Daiki Nishimura, Taro Uematsu, Tsukasa Torimoto, and Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Synthesis of Organic Ligand Free Quantum Dots in Solid State
3. 学会等名 Taiwan Japan Bilateral Workshop 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 笹倉卓也, 上松太郎, 鳥本司, 桑畑進
2. 発表標題 Studies on exciton confinement effect of core/shell quantum dot fluorophores by photoinduced electron transfer
3. 学会等名 電気化学会 関西支部・東海支部合同シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 上松 太郎
2. 発表標題 カドミウムフリー量子ドットからの バンド端発光と光学特性向上
3. 学会等名 高分子討論会2019 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taro Uematsu
2. 発表標題 Improvement of optical properties for cadmium-free quantum dot fluorophores
3. 学会等名 The 65th Annual Meeting of PSJ (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kohei Kumagai, Taro Uematsu, Tsukasa Torimoto, and Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Metal-organic frameworks as novel stabilizers for semiconductor quantum dots
3. 学会等名 The 1st Australia-Belgium-Japan joint symposium on excitonics and cellular communication (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Watcharaporn Hoisang, Taro Uematsu, Tsukasa Torimoto, and Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Synthesis of color-tunable Ag(In _x Ga _{1-x})S ₂ /GaS _y core/shell quantum dots
3. 学会等名 電気化学会第87 回大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 西村大輝、上松太郎、鳥本 司、桑畑 進
2. 発表標題 ゾル・ゲル法による量子ドット蛍光体を分散させた固体マトリクスの調製
3. 学会等名 電気化学会第87 回大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上松太郎, 笹倉卓也, 鳥本 司, 桑畑 進
2. 発表標題 コア/シェル量子ドットの電子構造が光励起電子移動に及ぼす影響
3. 学会等名 電気化学会第87 回大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Taro Uematsu
2. 発表標題 Improving Photoluminescence Properties of Cadmium-free Quantum Dots by the Optimization of Nanostructure
3. 学会等名 日本化学会 第100春季年会 アジア国際シンポジウム（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Improvement of Photoluminescence Property of Band-edge Emission from AgInS ₂ /Ga ₂ S ₃ Core/shell Quantum Dots
3. 学会等名 IDW' 18（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kohei Kumagai, Taro Uematsu, and Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Developments of novel semiconductor nanoparticles stabilized with metal-organic frameworks (MOFs)
3. 学会等名 22nd Topical Meeting of the International Society of Electrochemistry (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Taro Uematsu, Kazutaka Wajima, Dharmendar Kumar Sharma, Shuzo Hirata, Takahisa Yamamoto, Tatsuya Kameyama, Martin Vacha, Tsukasa Torimoto, and Susumu Kuwabata
2. 発表標題 Narrow Band-edge Emission from AgInS ₂ /GaS _x Core/shell Quantum Dots: Improvement of Quantum Yield
3. 学会等名 Japan-Taiwan Bilateral Workshop on Nano-Science (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 上松 太郎, 輪島 知卓, SHARMA Dharmendar Kumar, 平田 修造, 山本 剛久, 亀山 達矢, VACHA Martin, 鳥本 司, 小谷松 大祐, 桑畑 進
2. 発表標題 AgInS ₂ /GaS _x コア/シェル量子ドットコロイドからのバンド端発光と光学特性の向上
3. 学会等名 2018年応用物理学会秋季講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 笹倉卓也、上松太郎、鳥本 司、桑畑 進
2. 発表標題 光電子移動を利用したコア/シェル型量子ドット蛍光体の励起子閉じ込め効果に関する評価
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 上松 太郎、桑畑 進	4. 発行年 2020年
2. 出版社 技術情報協会誌	5. 総ページ数 pp374-389 (16ページ分)
3. 書名 「次世代ディスプレイへの応用に向けた材料、プロセス技術の開発動向」	

〔出願〕 計3件

産業財産権の名称 発光材料及びその製造方法	発明者 桑畑 進、上松太 郎、鳥本 司、亀山 達矢、小谷松大祐	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2020-040093	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 半導体ナノ粒子の製造方法	発明者 桑畑 進、上松太 郎、鳥本 司、亀山 達矢、小谷松大祐	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2020-040094	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 半導体ナノ粒子の製造方法	発明者 桑畑 進、上松太 郎、小谷松 大祐、 鳥本 司、亀山 達	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-021769	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関