

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400320

研究課題名(和文)半導体量子ドット集合系における超短パルス超蛍光の発生メカニズム

研究課題名(英文) Generation mechanism of ultrashort pulsed superfluorescence from semiconductor quantum dot assembly

研究代表者

宮島 顕祐 (MIYAJIMA, Kensuke)

東京理科大学・理学部第一部応用物理学科・准教授

研究者番号：20397764

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：我々は、励起状態にある二準位系集合体が協同的に光を放出する「超蛍光」と呼ばれる現象を研究対象とし、半導体量子ドット集合系を用いて超蛍光が超短パルス光となって放出される機構を研究した。その結果、我々の試料であるCuCl量子ドット集合系からは他の固体物質と比較しても高温で超蛍光が発生することを明らかにした。これらの特徴は、半導体量子ドットの自然放出寿命が短いため、量子ドット間のコヒーレンス形成が非常に速いことに起因していると考えられる。そして、量子ドットの密度制御などにより、1ps以下となる超短パルス光が発生し得ることを示すことができた。

研究成果の概要(英文)： We focused on superfluorescence, which is a cooperative spontaneous emission from many excited two-level systems coupled coherently, and researched a generation mechanism of ultrashort pulsed superfluorescence from semiconductor quantum dot (QD) assembly. As a result, we clarified that our samples, CuCl QD assembly, exhibited generation of the superfluorescence at temperature higher compared to the other solid-state materials. This characteristic is induced from ultrafast formation of coherence among the QDs due to the short radiative spontaneous lifetime. In addition, we showed a possibility of generation of ultrashort pulses whose time width less than 1 ps by controlling the QD density.

研究分野：光物性

キーワード：超蛍光 励起子分子 量子ドット コヒーレンス 超短パルス

1. 研究開始当初の背景

超蛍光とは、励起状態にある多数の二準位系の双極子モーメントが共鳴光を介して自発的にコヒーレント結合することにより、協同的に放出される自然放出である。この現象は、原子・分子気体や固体中の分子集合において過去に報告が多数されている。一方で、半導体量子ドット集合系は、超蛍光発生可能な系であるものの、ドットサイズ分布に起因する不均一広がりがコヒーレント結合の妨げとなり、研究はほとんど行われて来なかった。しかし、我々の研究グループは、CuCl量子ドット集合体を用い、励起子分子準位からの超蛍光が現れることを以前に報告していた。

2. 研究の目的

半導体量子ドット集合系での超蛍光において「超高速コヒーレンス生成」に起因する量子ドット特有の発生メカニズムを探求する。特に、「広い不均一幅に促進される超短パルス光の発生」と「超高速コヒーレンス生成過程とその空間伝搬効果」の2つを実験・理論の両面から探求することを目的とした。

3. 研究の方法

研究の方法を以下に示す。

(1)高密度 CuCl 量子ドット集合系の作製を行う。横型ブリッジマン法による NaCl 単結晶中の CuCl 量子ドット集合体を作製し、XRD による結晶構造解析及び TEM による形状観察などを行った。

(2)量子ドットのサイズ分布による不均一広がりが超蛍光発生に与える効果を理論的に示した。

(3)サイズ分布を持つ CuCl 量子ドット集合体へ、狭線幅レーザーを用いた選択励起を行い、サイズ選択励起での発光ダイナミクスを測定した。

(4)発光時間分解分光の試料温度依存を測定した。温度上昇による位相緩和時間の減少により超蛍光パルスは増幅自然放出への移行が現れるため、その結果からコヒーレンスの形成時間について議論できる。

(5)空間伝搬効果を明らかにするために、当初は高時間分解能での光学測定系を構築する予定であったが、成功しなかった。その代わりに、励起光を照射してからドット間でのコヒーレンス形成が起こるその形成時間を短くすることを目的として、シード光照射による超蛍光発生の変化を観測した。

(6)超蛍光発生について生じる量子揺らぎを、発光スペクトルシングルショット測定で捉えることを試みた。

4. 研究成果

(1) NaCl 結晶中の CuCl 量子ドット作製について、この研究期間内では以下の点について知見を得ることができた。

これまで明確に観測されたことのなかった NaCl 単結晶中の CuCl 量子ドットの TEM 観察に成功した。

X線回折によって、CuCl ナノ微粒子の結晶面が NaCl 母体結晶と揃って成長していることを明らかにした。この結果は、バルク単結晶内に微粒子結晶がエピタキシャル成長する特異な過程であると言える。(論文作成中)

(2) 理論計算によって、不均一広がりを持つ二準位系集合体においても二準位系の密度があるしきい値を超えることができれば、不均一広がりは、超短パルスの超蛍光を発生するための有利な条件になることを示した。(論文)

(3) サイズ分布を持つ量子ドット集合体について、励起子分子の二光子共鳴励起によるサイズ選択励起を明らかにした。さらに、CuCl 量子ドット集合系においては、半径約 5 nm の量子ドットを選択励起することで、最も効率よく超蛍光を発生させることができる可能性を示した。(論文)

(4) 超蛍光の時間分解発光スペクトルの温度依存性を測定した。その結果、我々の試料で 75 K まで超蛍光発生が継続することが分かった。この値は、他の固体からの超蛍光の中では非常に高く(例えば KCl 中の酸素分子では 23 K と報告されている)、ドット間のコヒーレンス形成が非常に早いことを示唆している。TEM 像などで見積もった量子ドット密度や不均一広がり幅などから、パルス幅 1 ps 以下となる超蛍光が発生可能であること結論づけた。(論文作成中)

(5) 超蛍光の空間伝搬効果を明らかにするため、ストライプ状の励起空間に対して、シード光パルス照射することで、空間コヒーレンス生成の制御を試みた。試行の結果、シード光照射によって、超蛍光強度の増大やパルス幅減少が観測された。しかし、そのシード光照射の効果が現れる条件を完全には見いだせていない。また、超高速コヒーレンス生成については、研究当初は、試料の共振器を蒸着することなどを想定していたが、NaCl の加工が困難であり成功していない。

(6) 超蛍光本来の性質である量子揺らぎの効果を捉えるため、シングルショット測定を行った。超蛍光が支配的となる励起密度下において、発光のスペクトル幅の増大が観測されており、発光がコヒーレント光であることが示唆されている。そのスペクトル幅のシングルショットごとの揺らぎの明確な観察に向

けて、現在も実験を継続している。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計4件)

宮島顕祐, CuCl 量子ドット集合体における二光子共鳴励起下での励起子分子超蛍光、ナノ学会会報、第15巻、1-6 (2016). 査読無

宮島顕祐, 高密度量子ドット集合体における超蛍光、光学 45 巻、167-174 (2016). 査読無

Genta Sato, Tatsuro Akatsu and Kensuke Miyajima, Biexciton generation processes for CuCl quantum dot ensembles, Materials Research Express, 3, 25002 (2016), 査読有
DOI:
<http://dx.doi.org/10.1088/2053-1591/3/2/025002>

Akira Ishikawa, Kensuke Miyajima, Masaaki Ashida, Tadashi Itoh, Hajime Ishihara, Theory of Superfluorescence in Highly Inhomogeneous Quantum System, Journal of Physical Society of Japan, 85, 34703 (2016), 査読有
DOI: <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.85.034703>

[学会発表](計20件)

宮島顕祐, 熊谷悠紀, 那須雅樹, 石川陽, 高密度半導体量子ドット集合体からの励起子分子超蛍光、2017年1月7日~9日、レーザー学会学術講演会第37回年次大会、徳島大学(徳島県徳島市) 招待講演

熊谷悠紀, 那須雅樹, 宮島顕祐, CuCl 量子ドット集合系におけるシード光照射による超蛍光の発生制御、2016年12月1日~3日、第27回光物性研究会、神戸大学(兵庫県神戸市)

那須雅樹, 熊谷悠紀, 宮島顕祐, シングルショット測定による高密度 CuCl 量子ドット集合系からの超蛍光の揺らぎの観測、2016年9月13日~16日、日本物理学会 2016 年秋季大会、金沢大学(石川県金沢市)

那須雅樹, 熊谷悠紀, 宮島顕祐, 高密度 CuCl 量子ドット集合系における超蛍光の Single Shot 測定、2016年6月14日~16日、ナノ学会第14回大会、北九州国際会議場(福岡県北九州市)

井藤拳, 赤津達郎, 宮島顕祐, NaCl 単結晶中に生成された CuCl ナノ結晶の形状と結晶配向、2016年3月19日~22日、日本物理学会

会第71回年次大会、東北学院大学(宮城県仙台市)

K. Miyajima, Superfluorescence of CuCl Quantum Dots Assembly, Nonequilibrium Phenomena in Complex Matter: new observations and new theories, 2015年12月13日~16日(Krvavec, Slovenia)

井藤拳, 赤津達郎, 宮島顕祐, NaCl 単結晶中の CuCl 量子ドットのサイズ及び構造解析、2015年12月11日~12日、神戸大学(兵庫県神戸市)

石川陽, 宮島顕祐, 時間依存射影演算子を用いた超蛍光の理論、2015年9月16日~19日、日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学(大阪府、吹田市)

熊谷悠紀, 佐藤弦太, 宮島顕祐, 石川陽, 高密度 CuCl 量子ドット集合系における励起子分子超蛍光の温度依存性 II, 2015年9月16日~19日、日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学(大阪府、吹田市)

赤津達郎, 井藤拳, 宮島顕祐, NaCl 単結晶中の CuCl 量子ドットのサイズ及び構造評価、2015年5月11日~13日、ナノ学会第13回大会 東北大学(宮城県仙台市)

赤津達郎, 井藤拳, 佐藤弦太, 宮島顕祐, NaCl 単結晶中の CuCl 量子ドットの結晶評価、2015年3月27日~30日、日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学(東京都新宿区)

熊谷悠紀, 佐藤弦太, 宮島顕祐, 石川陽, 高密度 CuCl 量子ドット集合系における励起子分子超蛍光の温度依存性、2015年3月27日~30日、日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学(東京都新宿区)

赤津達郎, 佐藤弦太, 宮島顕祐, CuCl 量子ドット集合系における励起子分子発光の励起スペクトルとその励起密度依存性、2014年12月12日~13日、第25回光物性研究会、神戸大学(兵庫県神戸市)

佐藤弦太, 赤津達郎, 宮島顕祐, 高密度 CuCl 量子ドット集合系における励起子分子超蛍光の励起長依存性、2014年12月12日~13日、第25回光物性研究会、神戸大学(兵庫県神戸市)

T. Akatsu, G. Sato, K. Miyajima, Two-Photon Absorption Band and Size-Selective Excitation of Biexcitons Confined in CuCl Quantum Dots, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 2014年11月13日~14日、神戸大学(兵庫県神戸市)

K. Miyajima, K. Ikeda, A. Ishikawa,
Superfluorescence of Biexcitons in CuCl
Quantum Dots, International Symposium on
Recent Progress of Photonic Devices and
Materials, 2014 年 11 月 13 日 ~ 14 日、神戸大
学 (兵庫県神戸市)、招待講演

赤津達郎, 佐藤弦太, 宮島顕祐, CuCl 量子
ドット集合系における励起子分子発光の励
起スペクトルとその励起密度依存性, 2014 年
9 月 7 日 ~ 10 日、日本物理学会 2014 年秋季
大会、中部大学 (愛知県春日井市)

Genta, Sato, Tatsuro Akatsu, Keigo Ikeda and
Kensuke Miyajima, Size-dependent Energy and
Relaxation Process of Biexcitons Confined in
CuCl Quantum Dots, International Union of
Materials Research Societies, 2014 年 8 月 24 日
~ 30 日、福岡大学 (福岡県福岡市)

宮島顕祐, 佐藤弦太, 赤津達郎, 長田雅海,
池田圭吾, NaCl 単結晶中の CuCl 量子ドット
の作製とアニール効果、ナノ学会第 12 回大
会、2014 年 5 月 22 ~ 24 日、宇治おおばくプ
ラザ (京都府宇治市)

K. Miyajima, K. Ikeda, G. Sato, and A.
Ishikawa, Influence of Excitation Process on
Generating Superfluorescence from Biexcitons in
Assembly of CuCl Quantum Dots, the 7th
International Conference on Spontaneous
Coherence in Excitonic Systems, 2014 年 4 月 21
~ 25 日、ザプリンス箱根 (神奈川県箱根町)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

取得状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年月日 :
国内外の別 :

〔その他〕
ホームページ等
http://www.rs.tus.ac.jp/miyajima_lab/publications.html

6 . 研究組織
(1) 研究代表者
宮島 顕祐 (MIYAJIMA Kensuke)
東京理科大学・理学部・准教授
研究者番号 : 20397764

(2) 研究分担者
石川 陽 (ISHIKAWA Akira)
山梨大学・総合研究部・准教授
研究者番号 : 10508807

(3) 連携研究者
()

研究者番号 :

(4) 研究協力者
()