

令和 5 年 6 月 18 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03808

研究課題名（和文）高密度量子系から生じる超蛍光の量子揺らぎの観測及びその制御

研究課題名（英文）Observation and control of quantum fluctuation of superfluorescence from high-density quantum systems

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・教授

研究者番号：20397764

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、NaCl単結晶中のCuCl量子ドット集合系から生じる超蛍光に対して、自発的なコヒーレンス形成過程を反映する量子揺らぎを捉えることを試みた。まず、発光の偏光度を単一パルスごとに測定する光学系を構築した。そして、発光に寄与するドメイン（コヒーレンス結合したドット集合系）数を制限することにより、量子揺らぎに起因すると考えられる偏光度の揺らぎを観測した。さらにその実験の過程で、放射の空間分解測定を行い、超蛍光が試料内部で複数の放射モードを持っていることを明らかにした。また、量子ドットの励起過程を変化させることで、過去に報告されていない、新しい超蛍光パルスの発現を観測した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の研究対象である超蛍光は、励起状態にある多数の二準系が光を介して自発的にコヒーレント結合し、協同的に放出される光である。そのため、高いエネルギー変換効率で高強度のパルス光を放射するメカニズムであり、超短パルス光源への応用が期待される。超蛍光は主に気体分子・原子において研究が始まったが、近年固体からの超蛍光が報告されるようになってきた。本研究は、その中でも超蛍光の量子性を捉えることを試みている。将来の量子情報分野への応用に対して寄与する知見が得られたと言える。

研究成果の概要（英文）： We examined to reveal quantum fluctuations in superfluorescence, originating from CuCl quantum dots embedded in a NaCl single crystal, which reflects a spontaneous formation process of coherent coupling between the quantum dots. First of all, we established experimental system to measure the degree of polarizations of the singly emitted luminescence. Using the system, we observed fluctuations of degree of polarization of the superfluorescence which may be resulting from quantum fluctuations. In the experimental process, we revealed the superfluorescence has the radiation modes in NaCl crystal using spatially resolved luminescence measurement. In addition, by adjusting the excitation process of biexcitons in CuCl quantum dots, a new superfluorescent pulse emission, which has never been reported, was observed.

研究分野：物理学

キーワード：超蛍光 量子ドット コヒーレント現象

## 1. 研究開始当初の背景

超蛍光は、コヒーレントに結合した多数の二準位系からの協同的な発光であり、パルス状の時間波形を示す。超蛍光の実験的な研究は気体原子・分子を対象に始まったが、近年は半導体などの固体においても超蛍光が報告されるようになった。超蛍光におけるコヒーレンス形成や超短パルスとしての放射は、量子光学デバイスへの応用が期待できるため、その発生機構の制御は重要な意義を持つ。

超蛍光の発生条件である二準位系のコヒーレント結合は、自然放出光がトリガーとなって生じる。そのため、超蛍光には自然放出の起源である量子揺らぎが反映され、同じ励起条件下でも、ピーク強度やパルス幅などが超蛍光毎に異なる。量子揺らぎは、超蛍光発生メカニズムを知るための重要なパラメータであるが、固体からの超蛍光においては、これまで実験的な研究がほとんどされていなかった。

申請者はこれまで、半導体量子ドット集合系から生じる超蛍光について研究を行ってきた。量子ドットは電子のエネルギー準位が離散化され、位相緩和が抑えられることから、その集合系は超蛍光発生に適した系である。量子ドット集合系は、ドットサイズ分布を反映した不均一広がりを持ち、それは一般的にはコヒーレンス結合には不利であるものの、十分な高密度状態の完全反転分布下では超短パルス発生に有利に働くことが報告されている。このような、高密度不均一系でのコヒーレンス生成過程を明らかにすることは、固体から生じる超蛍光を制御する上で重要な課題である。

## 2. 研究の目的

(1) 高密度不均一系から生じる超蛍光に対して、自発的なコヒーレンス生成に起因する量子揺らぎを捉える。

量子揺らぎの観測については、1パルス毎の超蛍光の時間波形を測定することが直接的な方法である。しかし、超短パルス光として放射される超蛍光に対して、単一パルスの時間波形を捉える測定は難しい。よって、本研究では発光の偏光度に注目した。観測している発光が多数の二準位系の協同的放射であれば、偏光が決定されているはずである。一方、偏光の向きはイベント毎にランダムに生じるため、1パルス毎に発光の偏光度を測定することで、量子揺らぎを反映した偏光度の揺らぎを観測することができる。

(2) 外部からのトリガー光照射などによってコヒーレンス形成過程を制御することで、超蛍光を高効率で発現する方法を見出す。

通常の超蛍光は自然放出光をトリガーとして生じるが、外部からのパルス光によってコヒーレンス形成過程を制御することができれば、指向性や発生効率を増大させることができる。当初はこの目的を達成するため光学系を構築した。しかし、本研究を進めていく途中で、超蛍光が試料内で空間的な放射モードを持っていることが明らかになり、そのメカニズムを知ることが重要となった。そのため、この課題は実施期間内に遂行することができなかった。

## 3. 研究の方法

研究の方法を、試料作製と光学測定について、それぞれ記述する。

### (1) 試料作製

研究に用いた試料は NaCl 単結晶中に分散した CuCl 量子ドット集合系である。NaCl 粉末に CuCl 粉末を 3 ~ 5mol% 混合した原料を用いて、横型ブリッジマン法により CuCl が混成した NaCl 単結晶を作製する。その後アニール処理を行うことで、NaCl 結晶中に CuCl 量子ドットが分散される。量子ドットの密度と平均サイズは、アニール温度及びアニール時間によって制御できる。試料は厚さ 0.5 mm にへき開して、光学測定に用いた。

作製した量子ドットの平均サイズは、発光ピークエネルギーや吸収ピークエネルギーによって見積もった。また、CuCl 濃度を評価するために XRF 測定、母体結晶の NaCl の結晶性を評価するために XRD 測定を行った。また、母体結晶内での量子ドットの空間的な均一性を、発光スペクトル及び吸収スペクトルの空間マップを測定することで評価している。

### (2) 光学実験

光学実験は、再生増幅器を基にしたパルスレーザーシステムを用いた。再生増幅器から波長 800 nm、エネルギー 4.5 mJ/pulse、時間幅 3 ps、繰り返し 1 kHz のレーザー光が得られる。これを 2 つに分割し、1 つは光パラメトリック増幅器(OPA)のポンプ光とした。OPA の出力光及び非線

形光学結晶を用いて、波長 380 - 395 nm の範囲で連続的に波長を変えられるようにしている。これが、CuCl 量子ドットへの励起光となる。特に、本研究では励起子分子からの発光に注目しており、励起子分子二光子吸収過程(励起エネルギー3.185 eV)及び励起子吸収過程(3.212 eV)による超蛍光ダイナミクスの違いが明らかにできる。図1に示すように、励起光はシリンドリカルレンズを用いてストライプ状に励起し、端面から放射される発光を検出する。励起長  $L$  と励起幅  $W$  はシリンドリカルレンズの位置で成長する。本研究では主に、 $L \sim 660 \mu\text{m}$ 、 $W \sim 30 \mu\text{m}$  とした。

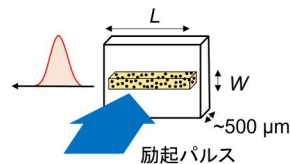


図1 . 超蛍光観測のための試料への励起方法 . 励起長  $L$ 、励起幅  $W$  はシリンドリカルレンズで調整している . 発光は厚さ  $\sim 500 \mu\text{m}$  の端面から放射されている。

一方、再生増幅器からのもう一方の光は、発光時間分解分光の手法である光カーゲート法のゲート光として用いた。超蛍光の発生を確認するためには、励起密度増大とともにパルス幅が狭くなっていくことを観測する必要がある。試料はクライオスタット内に設置し、主に温度 3 K で研究を行った。

また、本研究の目的である量子揺らぎを捉えるためには、超蛍光を 1 パルスごとに観測する必要がある。そのため、レーザーシステムと光検出器である CCD を同期させ、励起光 1 発に対する発光スペクトルを測定できるようにした。光学実験系の詳細は、以下の研究成果と共に説明する。

#### 4 . 研究成果

##### (1) シングルショット測定系の構築と超蛍光の偏光度の揺らぎ

図2に、偏光度測定の実験系を説明する。実験では、発光スペクトルを測定する分光器の前にウォラストンプリズムを導入して、2つの直交する直線偏光 (V 偏光, H 偏光) を空間的に上下に分離する。それらを同時に分光器に入れ、CCD の受光面の上下半分の範囲で、2つのスペクトルを同時に計測する。そして、それぞれの励起子分子発光の積分強度で、V・H 偏光成分 ( $I_V$ ,  $I_H$ ) を抽出し、 $R_{VH} = (I_V - I_H) / (I_V + I_H)$  によって偏光度  $R_{VH}$  を算出する。この測定を繰り返し、得られた偏光度の標準偏差で偏光度の揺らぎを定義する。さらに、ウォラストンプリズムの前に  $\lambda/4$  板を設置することで、円偏光度の揺らぎも得ることができる。

また本研究においては、励起体積内に多数のコヒーレンス結合したドット集合系 (ドメイン) が存在すると予想されている。検出する光が各ドメインから発生する超蛍光を足し合わせである場合、偏光度が平均化されて揺らぎを捉えることができない。そこで、光路にピンホールを導入し、検出する発光を空間的に切り出した。その結果、偏光度の揺らぎが大きくなる結果が得られた (図3)。これは、検出する発光に寄与するドメイン数を減らしたことにより、偏光度の揺らぎを顕著に捉えることに成功したと結論付けた。

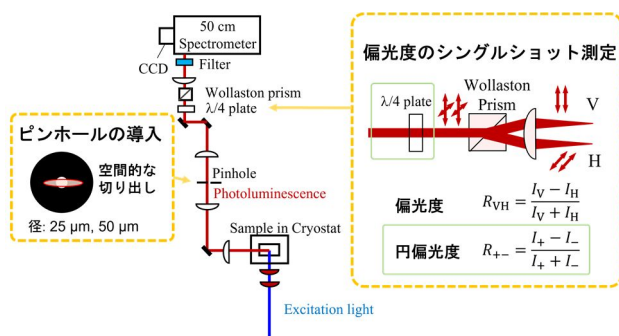


図2 . シングルショットによる偏光度測定の実験系 . 分光器のスリット前にウォラストンプリズムを設置し、V 偏光・H 偏光の強度を同時に得る。また、ウォラストンプリズムの前に  $\lambda/4$  板を設置すると、左右偏光の強度を同時に得る。それらから、偏光度を算出する。また、光路の途中にピンホールを導入し、発光を空間的に切り出した。

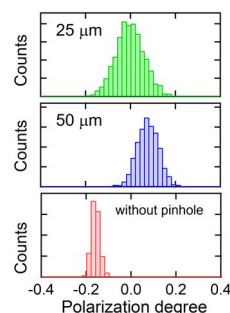


図3 . ピンホール径  $\phi = 25 \mu\text{m}$ 、 $50 \mu\text{m}$ 、ピンホールなしでの超蛍光の偏光度のヒストグラム .  $\phi = 25 \mu\text{m}$  で最も偏光度の標準偏差が大きく、揺らいていることが分かる。

##### (2) 偏光度の揺らぎの励起密度依存性

ピンホールを導入することで、観測される偏光度の揺らぎが大きくなることが分かった。図4にピンホール径  $50 \mu\text{m}$  で測定した、発光の偏光度の励起密度依存性を示す。ここで、円偏光度と直線偏光度をそれぞれ測定した。また、この試料では超蛍光が発生するしきい値が  $3.6 \text{ mJ/cm}^2$  である。偏光度の標準偏差は、超蛍光発生のしきい値付近で大きくなり、励起密度増大に伴い小さくなっていくようになっている。これは、励起密度増大に伴いドメイン数が増えることで、検出される発光の偏光度が平均化されていくためだと考えられる。一方、円偏光度と直線偏光度の違

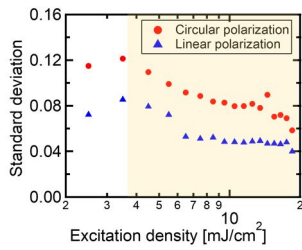


図4 . 発光の円偏光度及び偏光度の標準偏差の励起密度依存性 . 超蛍光が支配的な領域で、励起密度増大に伴い、標準偏差が減少していることが分かる .

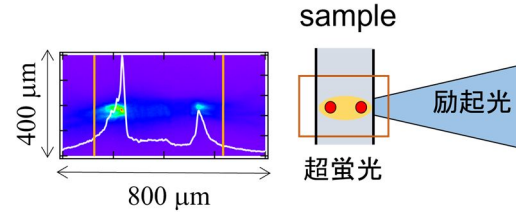


図5 . 超蛍光の放射モードの観測 . 右図のように、励起光は右側から照射されており、試料端面から紙面に垂直方向に2つの放射モードがある . 左図は実験結果であり、オレンジ縦線は試料面の位置、白線は発光強度の1次元空間プロファイルを示す .

い理由はまだ明らかにはなっていない。

以上の結果から、1つ1つのドメインからランダムな偏光度の超蛍光が生じていることが示唆されており、それが量子揺らぎを反映していると考えられる。

### (3) 超蛍光の放射モード

前述の実験にて、ピンホールを用いて発光を切り出した際、超蛍光がある放射モードを有している可能性を見出した。そこで、超蛍光が放射される試料端面からの発光を直接的にカメラで測定した。図5に、超蛍光が生じる励起条件下での実験結果を示す。NaCl結晶の表面（励起光が照射される面）及び裏面の近傍から、強い発光が現れていることを確認した。これは、励起密度増大と共に現れる。それぞれを空間分離して時間分解分光を行った結果、ほぼ同じ時間波形を持つ超蛍光であることが分かった。

本研究の目的である量子揺らぎの観測は、量子ドット間のコヒーレンス形成過程を捉えることが目的であるため、同時この放射モードが生じる理由を明らかにする必要がある。固体中で生じる超蛍光の空間モードは、KCl中のO<sup>2-</sup>分子から報告があるものの、励起密度に対するふるまいは本研究と異なっており、そのメカニズムはまだ明らかになっていない。

### (4) 新しい超蛍光パルスの観測

上記の研究で明らかになった、放射モードの発現条件を明らかにするため、励起エネルギー・励起強度・励起幅を連続的に変えながら、発光の放射モードの測定および時間分解分光を行った。その結果、最も高強度の超蛍光を得るためには、最適な励起長と励起幅があることが明らかになった。

また、励起エネルギーを変えながら測定した際、励起子共鳴励起下において、これまで議論してきた励起子分子からの超蛍光の他、さらに高強度かつ短パルスの発光が生じることを見出した。その発生条件から、多励起子状態からの超蛍光であることが示唆されている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Riku Sezaki, Kiyoshi Kobayashi, Kensuke Miyajima, Akira Ishikawa	4. 巻 91
2. 論文標題 Synchronization Phenomena Originating from Quantum Effects of Photon Fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 34401
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.91.034401	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 M.Nasu, K. Kawamura, T. Yoshida, J. Ishihara, and K. Miyajima	4. 巻 13
2. 論文標題 Influences of quantum fluctuation on superfluorescent spectra observed by single-shot measurement for semiconductor quantum dots	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 62005
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ab8b50	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11件（うち招待講演 1件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 大谷祐樹, 千葉涼太郎, 石原淳, 石川陽, 宮島顕祐
2. 発表標題 NaCl結晶中のCuCl量子ドット集合系における超蛍光の放射モードの観測
3. 学会等名 ナノ学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大谷祐樹, 千葉涼太郎, 石原淳, 石川陽, 宮島顕祐
2. 発表標題 NaCl単結晶中のCuCl量子ドット集合系から生じる超蛍光の放射モード
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 千葉涼太郎, 石原淳, 宮島顕祐, 石川陽
2. 発表標題 CuCl量子ドットからの単一超蛍光パルスの偏光測定II
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 瀬崎陸, 小林潔, 宮島顕祐, 石川陽
2. 発表標題 光子場を介した複数分極系における同期現象の全量子論
3. 学会等名 日本光学会年次学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮島顕祐, 千葉涼太郎, 大谷祐樹, 石原淳, 石川陽
2. 発表標題 半導体量子ドット集合系から生じる超蛍光の偏光度シングルショット測定
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第42回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮島顕祐
2. 発表標題 量子ドットからの超蛍光
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会シンポジウム「超放射, 超蛍光をめぐる研究の最前線」(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 瀬崎 陸、小林 潔、宮島 顕祐、石川 陽
2. 発表標題 光子-電子結合系における複数分極集団の同期現象に対する全量子論
3. 学会等名 2020年度応用物理学秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 千葉涼太郎, 石原淳, 宮島顕祐
2. 発表標題 半導体量子ドット集合系からの単一超蛍光パルスの偏光測定
3. 学会等名 第31回光物性研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 千葉涼太郎, 石原淳, 宮島顕祐
2. 発表標題 CuCl量子ドット集合系からの単一超蛍光パルスの偏光測定
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮島顕祐, 那須雅樹, 河村康平, 吉田友春, 千葉涼太郎, 石原淳, 石川陽
2. 発表標題 量子ドット集合系から生じる超蛍光スペクトルのシングルショット測定
3. 学会等名 第68回応用物理学学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 瀬崎 陸、小林 潔、宮島 顕祐、石川 陽
2. 発表標題 共振器 QED 系における超蛍光-レーザークロスオーバーを用いた 新奇発光特性の理論的解明
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>東京理科大学理学部応用物理学科宮島研究室  <a href="https://www.rs.tus.ac.jp/miyajima_lab/publications.html">https://www.rs.tus.ac.jp/miyajima_lab/publications.html</a></p>
--

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
研究分担者	石川 陽  (Ishikawa Akira)  (10508807)	山梨大学・大学院総合研究部・教授    (13501)	

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
---------	---------