

令和元年6月4日現在

機関番号：32657

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05403

研究課題名(和文) 薄膜中における励起子分子の輻射ダイナミクスと量子もつれ光子対生成の理論

研究課題名(英文) Theory on radiation dynamics of biexciton in thin film and its entangled photon generation

研究代表者

安食 博志 (AJIKI, Hiroshi)

東京電機大学・理工学部・教授

研究者番号：60283735

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：量子コンピュータの基本的な媒体となる量子もつれ光子対は、励起子分子の輻射崩壊により生成される。励起子分子の輻射崩壊による遷移先には、表面励起子ポラリトンが含まれる。しかし、表面ポラリトンに遷移すると光子は外部へと取り出すことができないので、もつれ光子対は生成されない。そこで、もつれ光子対が生成できる過程とそうでない過程について遷移確率を計算した。その際に必要な表面ポラリトンの状態(光子成分と励起子成分の重み)はこれまで計算されていなかったが、本研究で初めて定量的に計算できた。以上の結果も利用することにより、量子もつれ光子対の生成効率に対して、最適な膜厚が存在することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子情報処理技術の実用化に向けて様々な量子もつれ状態が提案されているが、量子もつれ光子対は環境からの影響が極めて小さい点に長所がある。もつれ光子対の実験の多くは量子ドットを利用しているが、光と物質系の相互作用が強くなる薄膜の方が効率よくもつれ光子対を生成できると考えられる。本研究では、量子もつれ光子対の生成効率に最適な膜厚が存在することを示し、その計算方法を明らかにしている点で意義がある。

研究成果の概要(英文)：An entangled photon pair is a key resource of quantum information technologies. The entangled photon pair can be generated from the radiative decay of a biexciton. For a semiconductor film, one of the final states of the biexciton decay processes is a surface exciton polariton, which cannot emit a photon, i.e., entangled photons cannot be generated via the surface polariton. In this study, I calculate the transition rate from the biexciton to the surface polariton, which cannot contribute to the entangled photon generation. For this purpose, photon and exciton components consisting the surface polariton are numerically obtained, which has not been calculated so far. I also calculate the transition rate to the exciton and photon, in which entangled photons are generated. By calculating the thickness dependence of each transition rate, an optimum thickness of the film is found for the entangled photon generation.

研究分野：光物性理論

キーワード：量子もつれ光子対 励起子分子 表面励起子ポラリトン 量子井戸 励起子

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

光を操作する上で光と物質系の相互作用は必要不可欠であり、この相互作用を著しく増強させることが今後の光科学技術の発展において重要な課題である。共振器中の光は単一光子でさえ強い光電場が生じるので、光の操作として最も有望な系の1つである。単一光子領域で高効率な非線形性を要する量子ゲートだけでなく、量子もつれ光子対（量子情報処理技術における重要な媒体）やスクイーズド光（量子ゆらぎを押しつぶすことで標準量子限界を超えた超高感度計測を可能とする特殊な光）などの応用上重要な量子光の生成においても、共振器系は非常に注目を集めている。

共振器中の光と物質の相互作用では光の量子性が重要になり、共振器 QED の枠組みで現象を理解する必要がある。その試金石の1つは、真空ラビ分裂（光子と励起状態の結合・反結合状態であるドレスト状態の準位分裂）である。量子ドット系の真空ラビ分裂は、21世紀に入り、国外を中心として様々なタイプの共振器系で観測されるようになった。また、国内では励起子の振動子強度が極めて高い CuCl や ZnO の薄膜を内包する共振器系が作製できるようになり、明瞭な共振器ポラリトン（2次元系のドレスト状態によるエネルギー分散）の巨大な分裂（2次元系の真空ラビ分裂）が実現された。これまでの微細加工技術の進歩を踏まえると、今後、半導体における共振器 QED 効果の研究が学術的基礎研究の対象としてますます盛んになり、その成果を活かしたデバイス化への応用が期待される。ごく最近では、共振器系の光学非線形効果の実験が大きく進展し、共振器系による量子光光源などの研究開発がますます活性化されると予想される。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、共振器中の半導体（量子ドット・量子井戸）に対して、共振器 QED（共振器量子電磁力学：共振器中の光を量子論的に取り扱う）に特徴的な性質を利用した各種量子光（スクイーズド光・量子もつれ光子対など）光源を理論的に設計することである。共振器中の光学非線形相互作用は単一光子領域においてさえ非常に強く、高効率な量子光の生成が期待されている。本研究では、これまであまり考慮されていなかった共振器 QED による準位構造（ドレスト準位）とその状態を加味することにより、量子光の特性および生成効率に対する最適化条件を探ることも目的としている。量子光生成に関する共振器の効果を定量的に調べるためには、共振器がない場合の量子光生成効率を調べる必要がある。実施期間中、共振器がない場合の量子もつれ光子対の生成効率を計算することができたが、その共振器効果を調べるまでには至らなかった。

### 3. 研究の方法

量子もつれ光子対は励起子分子の輻射崩壊過程により生成される。そのため、定量的な量子もつれ光子対の生成効率を計算するためには、励起子分子の波動関数を計算する必要がある。励起子分子のモデル計算として、最近接の励起子間にはたらく引力相互作用と同一サイトに励起子が2個占有したときの斥力相互作用を考慮した強束縛近似を用いて計算した。3次元系の励起子分子の波動関数を強束縛近似で計算する場合には、膨大なメモリと計算時間を要することが知られている。そこで、波動関数を計算するにあたって、自身で開発した省メモリ・高速計算手法を用いる。この計算手法を用いれば、ノート型パソコンでも数十秒で波動関数を計算することができる。

薄膜構造の場合、励起子分子が輻射崩壊したときの終状態には、表面励起子ポラリトンも含まれる。励起子分子から表面ポラリトンへの遷移確率を計算するためには、表面ポラリトンの分散関係だけではなく、表面ポラリトンを構成する励起子成分と光子成分の重みも知る必要がある。表面ポラリトンの分散関係は古くから知られていたが、各成分の重みについての計算はこれまでなかった。この問題を解くために、離散的なエネルギー状態（励起子）と連続的なエネルギー状態（光子）が結合した固有状態を Fano による方法で求めた。

励起子分子からの輻射崩壊には「励起子と光子」、「2個の表面ポラリトン」、「表面ポラリトンと光子」、「表面ポラリトンと励起子」、の4種類の遷移過程がある。これらの輻射崩壊過程のうち、「励起子と光子」に遷移する場合のみ、量子もつれ光子対が生成される。つまり、各状態への遷移確率の膜厚依存性を計算することにより、量子もつれ光子対を生成する効率を最適にするような膜厚を調べることができる。また、励起子分子から「励起子と光子」への遷移確率の大きさから、量子もつれ光子対の生成速度を調べることもできる。本研究では、この4種類の過程に対する遷移確率をフェルミの黄金律から計算した。ただし、励起子や表面ポラリトンを構成する励起子は最低準位のみ考慮しているため、膜厚が小さい領域で定量的な評価が議論できる。

## 4. 研究成果

### (1) 励起子分子から「励起子と光子」への遷移

励起子分子が輻射崩壊して「励起子と光子」へ遷移する過程は量子もつれ光子対を生成する。この過程による遷移確率は励起子成分を構成する各励起子の遷移確率の和として表される。半導体薄膜の膜厚が輻射崩壊して放出される光の波長よりも十分小さい場合、励起子の輻射崩壊確率は膜厚に比例して大きくなる。一方、輻射崩壊に関与する励起子分子の波動関数（相対運動の波動関数が0の部分）は膜厚に反比例して小さくなる。その結果、張波長近似が成り立つような薄い膜厚では、励起子分子の輻射寿命は膜厚に依存しない。

### (2) 励起子分子から「2個の表面ポラリトン」への遷移

励起子分子から「2個の表面ポラリトン」への遷移確率は、この2つの状態の遷移行列要素の2乗に比例し、と遷移先の表面ポラリトンの状態密度に比例する。遷移先の表面ポラリトンの状態は、面内方向の波数ベクトルとエネルギーが保存するように決定されることに注意する。表面ポラリトンの分散関係は薄膜の膜厚に依存するため、遷移先の表面ポラリトンの遷移行列要素と状態密度も膜厚に依存する。したがって、「2個の表面ポラリトン」への遷移も膜厚に依存することになる。

図1の上のグラフは、膜厚  $d$  が 10nm, 30nm, 100nm, 500nm, 1000nm のときの分散関係を示している。計算には CuCl のパラメータを用いた。横軸に平行な点線は励起子分子のエネルギーの半分のエネルギーを示し、この点線と分散関係の交点から遷移先に表面ポラリトンの面内波数が求められる。また、その面内波数における表面ポラリトンの状態密度は、分散関係の傾きの逆数に比例する。図2の上のグラフは、励起子分子から遷移した表面ポラリトンの状態密度を膜厚の関数として示している。膜厚が大きくなるに従って、状態密度が単調に増加し、200nm 以上になるとほとんど変化しない。

図1の下のグラフは表面ポラリトンを構成する励起子成分の重みを面内波数の関数として計算した結果である。表面ポラリトンが光的な分散から励起子的な分散に変化していくにしたがって、励起子的な重みが大きくなる。励起子分子は光と相互作用することにより、光子と励起子に変換するので、励起子分子から2個の表面ポラリトンへの遷移行列要素は、「表面ポラリトンの光子成分」と「表面ポラリトンの励起子成分」の積で表される。つまり、励起子分子から2個の表面ポラリトンへの遷移行列要素が最も大きくなるのは、それぞれの表面ポラリトンが光子成分と励起子成分を同程度に含む場合である。図2の下のグラフは、励起子分子から2個の表面ポラリトンへの遷移行列要素を2乗した値を膜厚の関数として計算した結果である。膜厚が30nm程度で表面ポラリトンの励起子成分と光子成分が同程度になるが、さらに膜厚が大きくなると励起子分子から遷移する表面ポラリトンの面内波数は膜厚とともに大きくなり、励起子成分が支配的となる。つまり、遷移行列要素が小さくなる。これを反映して、遷移行列要素は膜厚が20nm付近で最大となり、膜厚とともに小さくなる。

2個の表面ポラリトンに崩壊するときの励起子分子の輻射寿命は、表面ポラリトンの状態密度と、励起子分子から2個の表面ポラリトンへの遷移行列要素の2乗にそれぞれ反比例する。状態密度は膜厚が大きくなると単調に増加するので、膜厚とともに輻射寿命を短くする方向にはたらく。一方、遷移行列要素の2乗は20nm付近でピークをもつ。以上より、膜厚を大きくするにしたがって、輻射寿命は短くなり、その後、長くなっていくことが予想される。

図3は、4種類の崩壊過程（励起子分子から「光子と表面ポラリトン」、「励起子と表面ポラリ

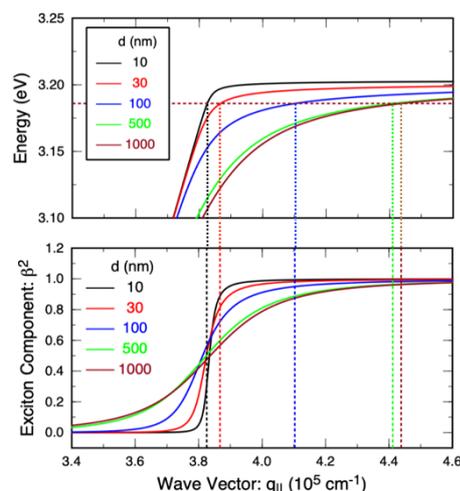


図1. (上) 様々な膜厚  $d$  に対する表面ポラリトンの分散関係。水平の点線はエネルギー保存則を満たす遷移先のエネルギー。(下) 様々な膜厚  $d$  に対する表面ポラリトンの励起子成分の大きさ。

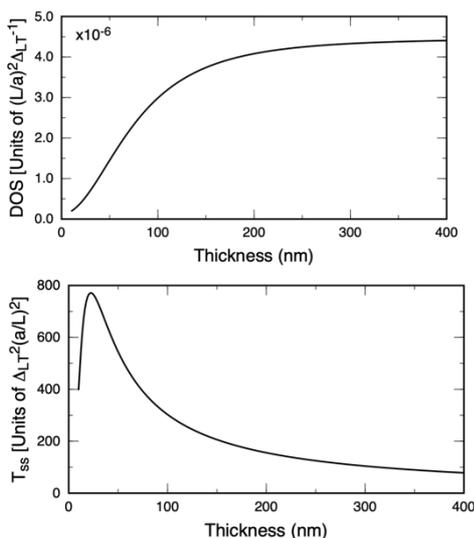


図2. (上) 遷移先の表面ポラリトンの膜厚依存性。(下) 励起子分子から2個の表面ポラリトンへの遷移行列要素の2乗。

トン」, 励起子と光子」, 「2個の表面ポラリトン」) それぞれについて輻射寿命を計算した結果である. 計算に用いたパラメータは CuCl である. 励起子分子が「励起子と光子」に崩壊する場合、膜厚が小さい領域では輻射寿命の膜厚依存性はほとんどない. 膜厚がさらに大きくなっていくと、長波長近似が成立しなくなり、最低励起子準位と光との相互作用は小さくなるため、輻射寿命が長くなる. 励起子分子が「2個の表面ポラリトン」に崩壊する場合、膜厚が小さい領域では表面ポラリトンの状態密度と遷移行列要素の2乗の両方が輻射寿命を短くする寄与を与えるので、輻射寿命は膜厚とともに急激に短くなる. さらに膜厚が大きくなると、状態密度が小さくなるため輻射寿命は少しずつ長くなっていく. 図3には、「光子と表面ポラリトン」, 「励起子と表面ポラリトン」への崩壊による輻射寿命も示している. 膜厚が20nmよりも小さい場合は、「励起子と光子」に崩壊する遷移確率が大きい、20nmよりも大きい場合は、「2個の表面ポラリトン」に崩壊する遷移確率の方が大きくなる. つまり、CuCl 薄膜で量子もつれ光子対を効率よく生成するためには、膜厚が小さい方がよい.

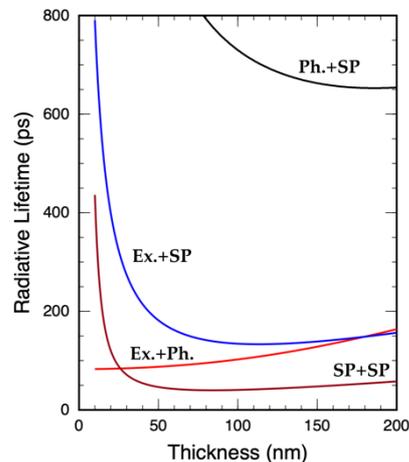


図3. 励起子分子から「光子と表面ポラリトン」(Ph+SP), 「励起子と表面ポラリトン」(Ex+SP), 「励起子と光子」(Ex+Ph), 「2個の表面ポラリトン」(SP+SP)へ遷移することによる輻射寿命の膜厚依存性.

### (3) 励起子分子の輻射寿命の膜厚依存性

図4の左のグラフは4種類の崩壊過程をすべて考慮して計算した励起子分子の輻射寿命の膜厚依存性を示している. 「励起子と光子」へ崩壊するときの輻射寿命は膜厚とともに単調に増加するが、表面ポラリトンを含む状態へ崩壊するときの輻射寿命はすべて、急激な減少から増加に転じている. これを反映して、励起子分子の輻射寿命は約70nmの膜厚で最も短くなる.

図4の右のグラフは  $T=3.5\text{K}$  で測定した CuCl の励起子分子に対する四光波混合による位相緩和時間  $T_2^{BG}$  と時間分解2光子偏光分光による縦緩和時間  $T_1^B$  の膜厚依存性を示している. 位相緩和時間が縦緩和時間のほぼ2倍であることから、この縦緩和時間は輻射寿命時間を意味していることがわかる. 実験によると励起子分子の輻射寿命は計算結果と同様、膜厚とともに急激に減少し、増加へと転じている. 計算結果と比較すると、この特徴的な膜厚依存性は表面ポラリトンの膜厚依存性を反映しているといえる. 定性的な励起子分子の膜厚依存性は説明できたが、定量的にはあまり実験と一致していない.

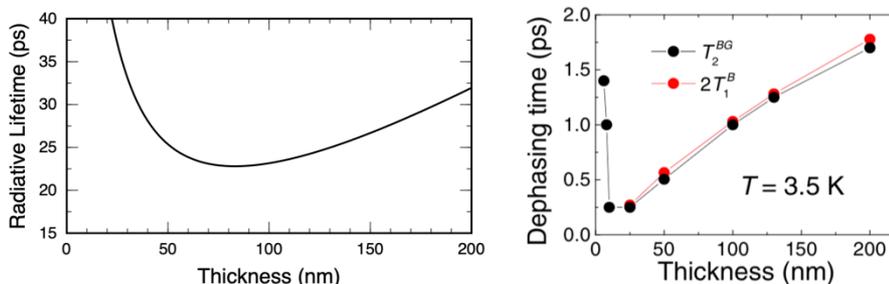


図4. (左) 励起子分子の輻射寿命の膜厚依存性の計算結果. (右) 四光波混合により測定した励起子分子の位相緩和時間  $T_2^{BG}$  と時間分解2光子偏光分光により測定した励起子分子の縦緩和時間  $T_1^B$  の膜厚依存性.

### (4) まとめ

薄膜中の励起子分子の輻射寿命について、その膜厚依存性を理論的に調べた. 励起子分子には4種類の輻射崩壊過程がある(励起子分子から「光子と表面ポラリトン」, 「励起子と表面ポラリトン」, 励起子と光子」, 「2個の表面ポラリトン」). このうち、表面ポラリトンへの遷移確率は表面ポラリトンの状態密度と励起子成分・光子成分の構成比が関与し、両者とも膜厚依存性がある. そのため、表面ポラリトンへの遷移が関与した輻射寿命は膜厚とともに減少してから増加するという、特徴的な膜厚依存性を示す.

ただし、本研究の計算では実験結果と定量的な一致は見られなかった. その理由として、以下の点が挙げられる. 1つは最低励起子準位のみを考慮した計算という点である. CuCl 薄膜における励起子の輻射寿命の膜厚依存性を計算によると、膜厚が50nmから200nmの範囲では、2番目の励起子準位から3番目の励起子準位にかけて励起子の輻射寿命が最も短くなる(励起子と光の相互作用が最も強い). したがって、高い励起子準位も含む計算を行えば、励起子分子の輻射寿命がより短くなるはずである. もう1つは、輻射崩壊する励起子分子の終状態のうち、考慮していないものがあるためである. 表面ポラリトンには、その分極方向から3種類のモード(X,

Y, Z モード)がある。ここでは、面内方向の分極をもつ Y モードの表面ポラリトンだけ終状態として考えていた。その他、縦波の励起子も終状態に含めていない。これらの終状態をすべて考慮すれば、励起子分子の輻射寿命はさらに短くなる。また、CuCl の背景誘電率を無視していたが、これを考慮すると CuCl の中の光は界面で反射し、光の強度が大きくなる。その結果、励起子と光の相互作用が大きくなり、励起子分子の輻射寿命が短くなると考えられる。以上の理由により、本研究で計算した励起子分子の輻射寿命は実験値と異なっているが、膜厚に比例して輻射寿命が長くなることは、定性的に再現できた。

励起子分子は「励起子と光子」へ崩壊すると量子もつれ光子対が生成される。一方、表面ポラリトンへ遷移した場合は、光子が薄膜の外に放出されないのでもつれ光子対として利用することができない。膜厚が大きくなると光と物質の相互作用が大きくなるため、量子もつれ光子対の生成効率が高くなると考えられていた。しかし、実際にはある膜厚以上になると、「励起子と光子」へ遷移する確率よりも「2個の表面ポラリトン」への遷移確率のほうが大きくなる。つまり、本研究により、膜厚を大きくしすぎると量子もつれ光子対の生成効率が低くなることが明らかになった。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

① Y. Mitsumori, S. Matsuura, S. Uchiyama, K. Saito, K. Edamatsu, M. Nakayama, and H. Ajiki, Biexciton relaxation associated with dissociation into a surface polariton pair in semiconductor films, Phys. Rev. B, 査読有, 97, 2018, 155303-1-6  
DOI: 10.1103/PhysRevB.97.155303

② 安食博志, 薄膜における励起子分子の輻射寿命の膜厚依存性, 第 27 回光物性研究会論文集, 査読無, 27 巻, 2016, 207-210

[学会発表] (計 6 件)

① H. Ajiki, Y. Mitsumori, S. Matsuura, S. Uchiyama, M. Sadgrove, and K. Edamatsu, Biexciton decay to surface exciton polariton, The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (EXCON 2018), Jul. 8, 2018, Nara, Japan

② 三森康義、内山将一、枝松圭一、植田誠史、中山正昭、安食博志, CuCl 薄膜中の励起子分子のエネルギー緩和時間の膜厚依存性 II, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 21 日, 岩手大学 (岩手県盛岡市)

③ H. Ajiki, Thickness dependence of radiative decay time of biexciton in thin film: efficiency of entangled photon generation, International Conference on Optics of Exciton in Confined Systems (OECS2017), Sep. 11, 2017, University of Bath, UK

④ H. Ajiki, Entangled photon generation via biexciton in a thin film, Emergency topics in Optics Apr. 24, 2017, University of Minnesota, USA

⑤ 安食博志, 薄膜における励起子分子の輻射寿命の膜厚依存性, 第 27 回光物性研究会, 2016 年 12 月 2 日, 神戸大学 (兵庫県神戸市)

⑥ 安食博志, 薄膜における励起子分子の輻射緩和, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 13 日, 金沢大学 (石川県金沢市)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。