

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 8 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400325

研究課題名(和文)共振器QED効果による良質な量子光生成に関する理論研究

研究課題名(英文)Theoretical study on high-quality photon generation using the cavity QED effects

研究代表者

安食 博志(Ajiki, Hiroshi)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60283735

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：量子もつれ光子対は、量子暗号などの量子情報処理技術や量子コンピュータの基本要素となる。本研究では、半導体ナノ構造を共振器中に配置した系で、純度が高い量子もつれ光子対を高効率に生成するための条件などを理論的に調べた。特に、所望のタイミングで光子対を生成することができるパルス光励起において、最適な生成条件を明らかにした。また、高純度なもつれ光子対が生成できる新しい系として、半導体ナノギャップ構造を提案した。

研究成果の概要(英文)：Entangled photon pairs are fundamental resources of the quantum information processing, such as the quantum cryptography, and quantum computing. We have theoretically studied optimal conditions to efficiently generate entangled photon pairs with high quality using semiconductor nanostructures embedded in a microcavity. In particular, we have revealed the optimal conditions for photon-pulse excitation, which enables us to generate entangled photon pairs on demand. We have also proposed semiconductor nano gap structures as a new system to generate entangled photon pairs with high purity.

研究分野：光物性理論、量子光学

キーワード：量子もつれ光子対 励起子分子 共振器 励起子 励起子-光結合状態 ドレスト状態 半導体ナノ構造  
電磁界解析シミュレーション

## 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。光と物質系の相互作用を増強させる系として注目を集めているのが光共振器である。共振器中に閉じ込められた光は、単一光子の場合でさえ光電場が増強される。そのため、光共振器を含む系は、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、非常に有望な系として注目を集めている。

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、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、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）の巨大な準位分裂（2次元系の真空ラビ分裂）が実現されている。

## 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量子もつれ光子対などの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、この点に加え、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。

## 3. 研究の方法

共振器中の励起状態と光の相互作用は、共振器中の光を量子化して取り扱う（共振器 QED）。各種最適化条件を調べるにあたって、クラスター計算機による数値計算を行った。

## 4. 研究成果

(1) 共振器-量子ドット系におけるパルス光入射による量子もつれ光子対の生成

量子もつれ光子対を量子情報処理や量子コンピュータに応用するためには、所望のタイミングで光子対を生成する必要がある。このような光子対の生成は、励起子分子をパルス照射により励起することで実現できる。共振器を利用すれば、光と物質系の相互作用が増強されるので、共振器-量子ドット系により高効率な量子もつれ光子対が生成されると期待できる。このとき、共振器中の光子と量子ドット中の励起子の重ね合わせ状態である2励起ドレスト状態が量子もつれ光子対の生成源となる。そこで、共振器-量子ドット系にパルス光を照射したときの（2励起ドレスト状態からの）量子もつれ光子対生成に関して、高速かつ高効率な生成条件を理論的に調べた。

### ① 量子もつれ光子対の生成時間

量子もつれ光子対は、2励起ドレスト状態からのカスケード緩和で生成される。図1は、この過程の緩和時間（光子対の生成時間）を共振器のQ値の関数として示している。

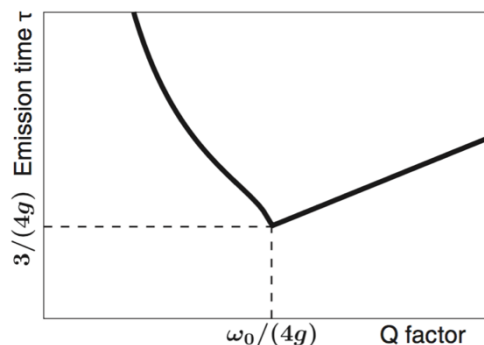


図1. 共振器のQ値に対する量子もつれ光子対の生成時間

Q値が小さい領域（弱結合領域）では、Q値が大きくなるとともに生成時間が短くなる（パーセル効果）。一方、Q値が大きい領域（強結合領域）では、光子対の共振器内への閉じ込めが強くなるため、Q値が大きくなると生成時間が長くなる。したがって、弱結合領域と強結合領域の境界付近で最も高速にもつれ光子対が生成される。

図1から分かるように、量子もつれ光子対の生成時間は相互作用  $g$  を大きくすることで短縮することができる。我々は、従来の共振器よりも相互作用が大きくなる系として、新たに半導体ナノギャップ共振器を提案した[研究成果(2)を参照]。

### ② パルス光の最適条件

量子もつれ光子対の源となる2励起ドレスト状態の占有率を高くするための最適な条件を数値計算により調べた。2励起ドレスト状態は1つ目のパルス光で1励起ドレスト状態を励起し、2つ目のパルス光で2励起ドレスト状態が励起される。2励起ドレスト状態の占有率を高くするためには、1励起ドレスト状態の占有率を高くする必要がある。図2は、

1 励起ドレスト状態の占有率を 1 つ目のパルス光の幅とその強度の関数として計算した結果で、赤色の領域で 1 励起ドレスト状態の占有率が高くなる。このように、占有率を高くするためにはパルス光の条件を選ぶ必要がある。同様に、2 つ目のパルス光について、2 励起ドレスト状態の占有率を高くするための条件も明らかにした。2 励起ドレスト状態の占有率が高くなる条件で、量子もつれ光子対を高効率に生成することができる。

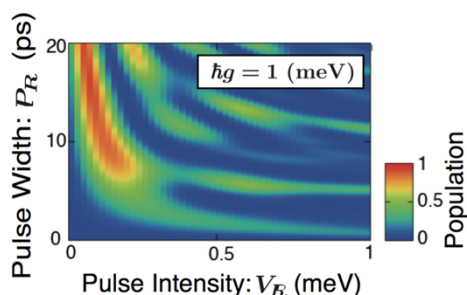


図 2. 1 つ目のパルス光の幅と強度の関数として計算した 1 励起ドレスト状態の占有率

## (2) 半導体ナノギャップ共振器の提案

### ① 任意形状に閉じ込められた励起子光学応答の電磁界解析シミュレーションの開発

これまで、電磁界解析シミュレーションとして、有限要素法 (FEM) や時間領域差分法 (FDTD) などが利用され、任意形状の誘電体や金属 (プラズモン) の光学応答が調べられてきた。一方、任意形状の半導体に閉じ込められた励起子の場合、単一の光の振動数に対して 2 個の横波の励起子ポラリトンと 1 個の縦波励起子が同時に励起される。そのため、通常の FEM や FDTD を用いて電磁界シミュレーションを行うことはできない。

そこで、従来の Maxwell 境界条件に加えて励起子分極の境界条件を考慮した FEM を開発した。さらに、計算精度を格段に向上させるため、頂点要素法と辺要素法を組み合わせたハイブリッド型のアルゴリズムを新たに提案した。これにより、任意形状に閉じ込められた励起子光学応答による電磁場をシミュレーションできるようになった。

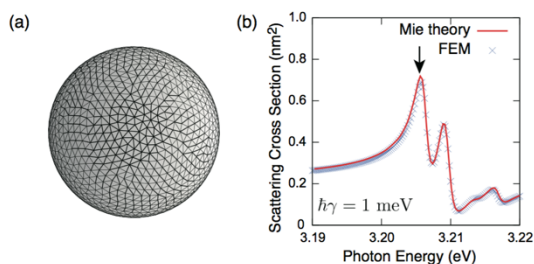


図 3. (a) 半導体球の計算メッシュ (b) 半導体球に閉じ込められた励起子の散乱断面積。Mie 理論で解析的に計算した結果と開発した有限要素法の結果との比較。

図 3 は、半導体球の散乱断面積を本研究で開発した FEM で計算した結果と Mie 散乱理論で計算した結果の比較である。開発した FEM は高い精度で散乱断面積を計算できることが確認された。

### ② 半導体ナノギャップ共振器

共振器中の光と物質系の相互作用の大きさは、共振器のモード体積に反比例して強くなる。通常の共振器のモード体積は光の波長程度までしか小さくできない (回折限界) が、金属のナノギャップ構造を用いると、表面プラズモンによるエバネッセント波により、モード体積は回折限界を超えて小さくすることができる。その結果、巨大なラビ分裂が生じることが理論的にも実験的にも明らかにされてきた。しかし、プラズモンの減衰時間は短いため、そのスペクトル幅が大きくなり、明瞭なラビ分裂を引き起こすことは難しい。ドレスト状態を利用する場合、純度の高い量子もつれ光子対を生成するためには、巨大かつ明瞭なラビ分裂が必要になる。

そこで、我々は表面励起子ポラリトンのエバネッセント波を利用した「半導体ナノギャップ共振器」を提案した。励起子の減衰時間は低温にすると非常に長くなるため、そのスペクトル幅は非常に小さくなる。また、表面プラズモンと同様にエバネッセント波を利用するため、共振器のモード体積は回折限界を超えて小さくすることができ、ラビ分裂を大きくすることができる。その結果、巨大かつ明瞭なラビ分裂を生じさせ、純度の高い量子もつれ光子対を高効率に生成することが期待できる。

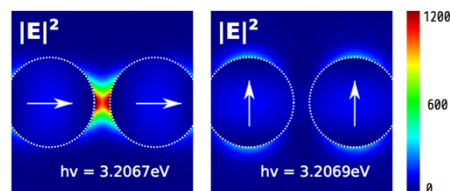


図 4. 半導体ナノギャップの共鳴条件下における電場強度分布。

図 4 は半導体ナノギャップに励起子を共鳴励起する光を照射したときの電場強度分布を、開発した励起子光学応答の電磁界解析シミュレーションで計算した電場強度である。左側は 2 個の半導体ディスクの中心を結ぶ方向に偏光がある場合、右側はこれに垂直な方向に変更がある場合の計算結果である。前者の場合、ナノギャップ間に強い局在場が生じる。

図 5 は半導体ナノギャップに量子ドット (分極の大きさは 10 Debye) を置いたときの近接場スペクトルである。量子ドットの準位と共振器の共鳴モードのエネルギーが一致する条件でスペクトルピークが分裂している。これはラビ分裂によるもので、580  $\mu$ eV もの大きさに達している。このラビ分裂のエネルギーは量子ドットの分極が 10 Debye という比較

的小さい値にしては、非常に大きい。さらに、ラビ分裂した準位のスペクトル幅はラビ分裂の大きさよりも十分小さく、が非常に明瞭なラビ分裂が見られている。したがって、半導体ナノギャップ共振器-量子ドット系は高純度な量子もつれ光子対を生成するための有望な系であると考えられる。

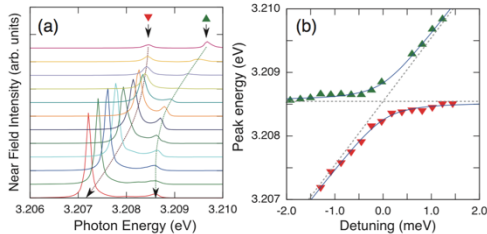


図5. 半導体ナノギャップ共振器-量子ドットの (a) 近接場スペクトル、(b) 近接場スペクトルのピークエネルギー。

### (3) 薄膜における励起子-光結合状態

薄膜中の励起子と光の相互作用は、励起子と光の空間パターンがほぼ一致する膜厚で最大値をとる。そのような励起子は膜厚が大きくなるほど高い準位状態にあり、相互作用の最大値は膜厚とともに大きくなる。励起子の輻射寿命は相互作用が大きくなるほど短くなり、その膜厚依存性は相互作用の膜厚依存性を反映している。

このように、励起子の輻射寿命は膜厚が大きくなると短くなる傾向にあるが、最近、励起子分子の輻射寿命の膜厚依存性はこの傾向と正反対になる、という実験結果が報告された。励起子と光の相互作用が強いほど励起子分子の輻射寿命が長くなるという結果は、矛盾しているようにみえる。そこで、我々は励起子分子の輻射寿命の膜厚依存性に興味をもつようになった。また、この問題は励起子分子からの量子もつれ光子対生成の効率にも深く関係し、共振器がある場合に光子対の生成効率がどれだけ高くなるか、定量的に議論するためにも重要なテーマである。

膜厚が無限大の極限で励起子と光は結合状態(励起子ポラリトン)を形成し、励起子分子はポラリトンを介して輻射的に緩和する。同様に、膜厚が有限の場合も励起子分子は励起子-光結合状態を介して輻射的に緩和すると考えられる。つまり、励起子分子の輻射寿命の膜厚依存性を理論的に調べるためには、薄膜における励起子-光結合状態を求める必要がある。薄膜の場合、励起子-光結合状態は系全体に広がった Leaky Mode と薄膜表面で減衰する Surface Mode (表面励起子ポラリトン) に分類される。そこで、最低励起子準位のみ考慮した Leaky Mode と Surface Mode を解析し、それぞれの結合状態における励起子成分と光子成分の割合を明らかにした。

#### ① Leaky Mode

Fano の理論を用いて、Leaky Mode の解析解

が得られた。この解を用いると、励起子からのフォトルミネッセンスのスペクトルや励起子の輻射緩和に対する時間依存性を計算することができる。これらは従来の半古典的な理論では計算することができない。

#### ② Surface Mode

Surface Mode の分散関係は、すでに研究されてきたが、その状態における励起子成分と光子成分の割合は明らかにされていなかった。励起子分子から Surface Mode への遷移確率を計算するためには、この成分比の情報が不可欠である。そこで、Surface Mode を励起子-光結合状態として取り扱うことにより、それぞれの成分を計算した。

図6は CuCl 薄膜 (膜厚  $d=50$  nm,  $200$  nm,  $500$  nm,  $1000$  nm) の Surface Mode の (a) 分散関係と (b) 励起子成分の割合を計算した結果である。膜厚が大きくなるにつれて、励起子のエネルギーと光子のエネルギーが交差する波数付近で分散のゆがみが大きくなるが、 $500$  nm 以上になるとほとんど変化が見られなくなる。つまり、 $500$  nm 以上の膜厚になると半無限大の表面モードと同じ分散関係になると考えてよい。励起子成分の計算結果を見ると、光子の分散に近い波数では励起子成分がほとんどなく、励起子の分散に近い波数で励起子成分がほぼ1になり、その間が滑らかにつながっている。

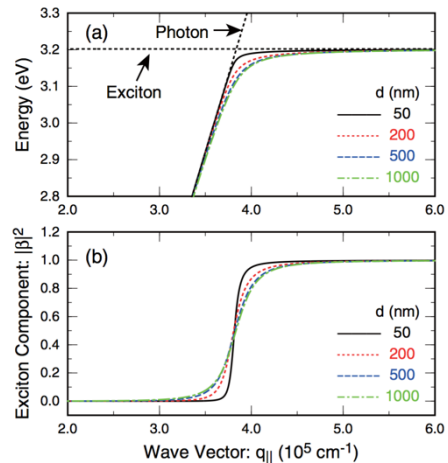


図6. 様々な膜厚  $d$  の CuCl 薄膜における表面モード。(a) 分散関係、(b) 励起子成分の割合。

今後の課題として、複数の励起子準位を考慮した励起子-光結合状態を求めることが挙げられる。これを用いると、薄膜中の励起子分子について、その輻射寿命や量子もつれ光子対のサイズ依存性を定量的に議論することができるようになる。



## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 12 件)

- (1) H. Ajiki, “Quantum description of exciton-light coupled states for a thin film”, *Phys. Rev B*, 92, 155316-1-10 (2015) 査読有  
DOI:10.1103/PhysRevB.92.155316
- (2) M. Uemoto and H. Ajiki, “Simulation Method for Resonant Light Scattering of Exciton Confined to Arbitrary Geometry”, *Opt. Express*, 22, 9450-9464 (2014) 査読有  
DOI:10.1364/OE.22.009450
- (3) K. Shibata and H. Ajiki, “Entangled-photon generation from a quantum dot in a microcavity through pulsed laser irradiation”, *Phys. Rev. A*, 89, 042319-1-8 (2014) 査読有  
DOI:10.1103/PhysRevA.89.042319
- (4) M. Uemoto and H. Ajiki, “Large and well-defined Rabi splitting in a semiconductor nanogap cavity”, *Opt. Express*, 22, 22470-22478 (2014) 査読有  
DOI: 10.1364/OE.22.022470
- (5) 安食博志, 「強結合領域における共振器-量子ドット系からのもつれあい光子対生成」, *レーザー研究*, 41, 492-496 (2013) 査読有  
[http://www.lsj.or.jp/laser/ab\\_index\\_41.html](http://www.lsj.or.jp/laser/ab_index_41.html)

[学会発表] (計 24 件)

- (1) H. Ajiki, “Entangled Photon States Generated from a Planar CuCl Microcavity”, *CLEO/Europe-EQEC2015*, 25, Jun. 2015, Munich (Germany)
- (2) 安食博志, 「薄膜中の励起子分子から表面励起子ポラリトンへの輻射緩和」, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 17 日, 関西大学 (大阪府・吹田市)
- (3) 安食博志, 「薄膜における励起子と光の結合状態」日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 21 日, 早稲田大学 (東京都・新宿区)
- (4) 柴田一範、安食博志, 「光パルス励起による共振器量子ドット系からのもつれ光子対生成: 高速かつ高効率に生成するための条件」, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 9 日, 中部大学 (愛知県・春日井市)
- (5) H. Ajiki and M. Uemoto, “Exciton Induced Hotspot at Nanogap of Semiconductor Nano Structures”, *The 7th International Conference on Nanophotonics (ICNP) / The 3rd Conference on Advances in Optoelectronics and Micro/Nano Optics (AOM)*, 2013 年 5 月 19 日, Hong Kong (China)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

安食 博志 (Ajiki Hiroshi)  
大阪大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 60283735

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者