

平成22年 6月21日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2008 ～ 2009

課題番号：20740176

研究課題名 (和文) 励起子分子状態を利用した量子もつれ光子の高効率生成

研究課題名 (英文) Efficient generation of entangled photons via biexciton states

研究代表者

大島 悟郎 (OOHATA GORO)

大阪府立大学・理学系研究科・助教

研究者番号：10464653

研究成果の概要 (和文)：量子もつれ光子とは、複数の光子が分離不可な性質を持つ特殊な状態であり、量子情報など光を使う最先端分野で注目されている。半導体を用いて量子もつれ光子を生成させる場合、励起子分子状態（電子・正孔の束縛状態の一種）を利用することが考えられるが、未だその効率的な生成スキームが確立されていない。そこで本研究では、特に半導体の微小共振器構造に注目し、新しいスキームの考案、理論的解析、およびそのスキームに必要な共振器構造の設計、試料作製を行い、実験的検証を行った。

研究成果の概要 (英文)：Entangled photons are special state which cannot be separated between each other. These special photons attract attention of the cutting-edge field of optics, e.g. quantum information. In a semiconductor, the biexciton state can be the source of entangled photons. However, the good scheme of effective generation of entangled photons from biexcitons was not established. In this work, I focused on the structures of semiconductor microcavities, and devised new scheme of entangled photon generation from a semiconductor microcavity. Furthermore, I designed the cavity structures for the new scheme and fabricated the samples. Finally, the optical properties of the samples were investigated experimentally.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2009年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：光物性, 量子光学, 量子もつれ, 励起子, 励起子分子, 半導体微小共振器, 共振器ポラリトン

## 1. 研究開始当初の背景

近年、量子情報通信の発展とその要請から“量子的な光”（非古典光）に注目が集まっ

ている。この非古典光とは例えば単一光子や、量子もつれ光子、スクイズド光などがあげられるが、どれも最近の研究で原子や非線形結

晶を巧みに用いることで生成できることが明らかとなってきた。さらに、最新の研究では半導体等の固体素子を用いて、このような量子通信に不可欠な非古典光を生成・制御することが提案・要求されてきている。本研究で注目した現象は、二光子吸収によって直接、励起子分子を生成させ、その後、二光子に再分裂する過程：励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱(RHPS)である。このような光子対生成スキームは、2004年に始めて実験的に検証され、Nature誌にて発表され注目を浴びたが[Ref: 1], その後のより発展的な実験や、より効率よく量子もつれ光子を生成させる実験はされてこなかった。

より効率的に励起子分子が生成され二励起子に散乱するようにするには、物質とその外部環境を整えることが大切である。このような着想から、私はCuClを微小共振器に埋め込むことで光と励起子・励起子分子の相互作用を増大させることを考え、CuCl微小共振器の作製を行ってきた。その結果、共振器光子と励起子の強結合状態である共振器ポラリトンの観測に成功した。

[Ref: 1] K. Edamatsu, G. Oohata, R. Shimizu, and T. Itoh, *Nature* **431**, 167 (2004).

## 2. 研究の目的

本研究では、励起子分子による励起子散乱を高効率に生じさせる試料の作製と観測方法の開拓を目的とした。そこで、具体的には特に以下の3点に目標を設定した。

(1) 半導体を共振器に閉じこめられた状態にすると、RHPSが非常に増強されるという理論的予測がされている。この理論を元にCuCl微小共振器を設計し、RHPSが増強されることを実験的に明らかにする。これを実現するには、具体的な共振器ポラリトンのパラメータ、特に離調度とRabi分裂量を設定し、そこから求まる散乱条件（いわゆる位相整合条件）を求め、その条件に沿うように観測実験系を定め、半導体微小共振器によって増強されたRHPS信号の観測を実現する。

(2) 本研究では固体中の励起子分子状態が大変重要な要素である。これまでは活性媒質として、光物性分野における励起子分子研究で最も典型的な物質であるCuClを用いて研究を行ってきた。今回は、RHPSをより効率よく起こしうる可能性のある物質を模索した。特に励起子分子の安定性や振動子強度の大きさが顕著な物質である、無機有機複合層状半導体（層状ペロブスカイト型）が有力候補である。

(3) 以上二つの観点から、RHPSがより起こりやすい材質・外部環境を考慮した試料作製を行い、最終的にRHPSからの量子も

つれ光子の観測を行った。RHPS効率の大幅向上の結果、量子もつれ光子の観測は容易となり、これまでには議論できなかった光子対の量子もつれ状態（これは励起子同士の量子もつれ状態に対応）を詳細に観測・解析することができる。特に、励起子や励起子分子の位相情報がどのように関わってくるかに興味を持って研究を行った。

## 3. 研究の方法

1) 微小共振器によるRHPSの増強研究目的でも述べたが、半導体を微小共振器に閉じこめられた状態にすると、RHPSが非常に増強されるという理論的予測がされている[Ref: 2]。この方法は、これまで半導体共振器によって光パラメトリック散乱が非常に強く起こることを参考に、さらに励起子分子効果を考慮することで新たに構築された全く新しいスキームである。理論予測では実質的な実験に即した計算はなされていなかったが、私は新たに実験で検証可能な具体的な実験条件を独自に考案した（申請時未発表）。この新たなスキームでは、二つの励起パルス光（両方、励起子分子二光子共鳴に設定）を、Pump&Probeもしくは4光波混合の要領で、散乱条件（位相整合条件）に即した有限角度で同時入射させ、量子もつれ光子対（完全に独立な二波長）を垂直方向から取り出す。このスキームは、比較的簡便で実現可能な光学系である。

本研究では、この新たなスキームを基にCuCl微小共振器を設計し、RHPSが増強されることを実験的に明らかにする。これを実現するには、具体的な共振器ポラリトンのパラメータ、特に離調度とRabi分裂量を設定する必要がある。これまで申請者らの研究で、鉛ハライド系の層状物質PbF<sub>2</sub>/PbBr<sub>2</sub>による多層膜反射鏡(DBR)で共振器構造を実現することによってCuCl微小共振器における励起子-光子相互作用が強く起こり、内部で共振器ポラリトン状態を形成していることを実験的に明らかにした。この時実現したRabi分裂は約97meVである。この結果によって、まさに本研究で必要な試料が作製可能であることが証明された。なぜなら、設計上必要なRabi分裂量を遙かに上回る値であるため、必要な値への設計には活性層(CuCl)の厚さを変えるだけで実現可能だからである。

以上に示したように、申請者は独自のスキームの元、実現可能な測定系と試料構造のパラメータをすでに算出しており、またそのような試料が実際に作製可能であることも過去の結果から明らかである。このような計画に従って、本目標を目指した。

(2) 現在知られている無機半導体において、CuClは低温で最も励起子分子が安定に存在

し、かつ振動子強度の強い物質だと考えられてきた。実際に  $\text{CuCl}$  において RHPS がもっとも強くかつ明確に観測されている。しかし、 $\text{CuCl}$  は大気中で非常に不安定であり、本実験を実現するには常に良質の試料を作り続ける必要がある。また、 $\text{CuCl}$  においてさえ、RHPS 信号は温度 50-70 K で消滅してしまうため、応用という事まで視野に入れると、より性能の良い物質が望まれる。そこで、本研究では非常にチャレンジングな課題ではあるが、RHPS の高強度発生という観点から、励起子分子による効果がより強く現れる物質を新たに探索する必要があると考えた。これまでの様々な研究から、単純な物質では励起子分子の効果が強く現れる物質は恐らく存在しないであろう。そこで本研究では、まず励起子分子活性媒質としてはあまり注目されてこなかった、無機有機複合型半導体 [Ref: 3] に焦点を絞り、励起子分子の光学応答について研究した。

[Ref:2] H. Ajiki and H. Ishihara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 053401 (2007).

[Ref: 3] T. Ishihara, J. Takahashi and T. Goto, *Phys. Rev. B* **42**, 11099 (1990).

#### 4. 研究成果

(1) まず、より現実的な実験に則した光子対生成スキームを新たに開発した (図 1 参照)。このスキームを用いると、単一波長、2 ビームを用いる典型的なポンププローブ測定と同様の比較的単純な系で実験できることになる。また、生成効率も従来の理論に比べて十分高いことも計算から証明された。

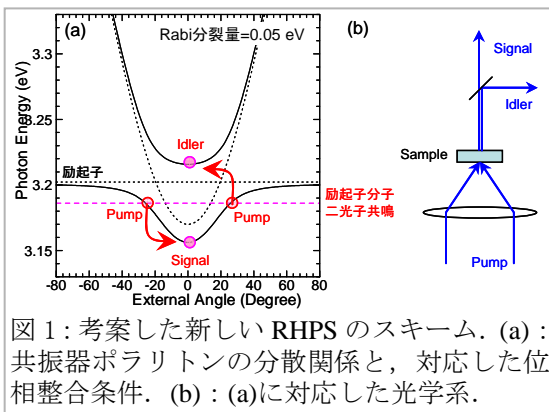


図 1: 考案した新しい RHPS のスキーム. (a): 共振器ポラリトンの分散関係と、対応した位相整合条件. (b): (a) に対応した光学系.

(2) 新スキームに対応する試料の作製法、特に重要なパラメータである Rabi 分裂の大きさの制御の方法を理論的に提案した。本研究で用いている  $\text{CuCl}$  微小共振器は申請者のグループが初めて作製したものであり、各種パラメータ制御などの方法は一切確立されていなかった。この理論的提案により目標の試料作製の指標が明らかとなった。

(3) 実験的に得られた Rabi 分裂の値の変

化を精度良く説明することに成功した。実験結果と理論の比較により実際に Rabi 分裂などのパラメータを制御できることを示した。以上により、実験に必要なパラメータを有する試料を作製できることが証明された。

(4) 実験的にも新スキームに必要なパラメータを有する試料を作製できることを確認した (図 2 参照)。最終的な光子対生成実験に必要な試料を作製することに成功した。

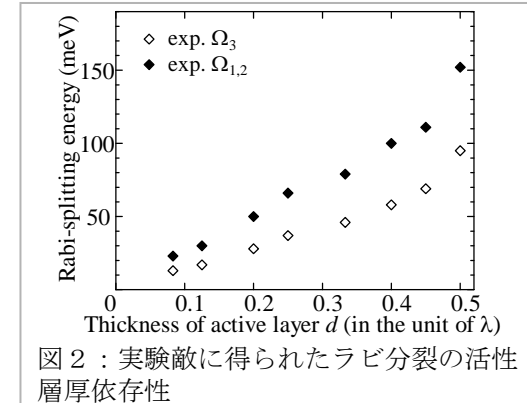


図 2: 実験的に得られたラビ分裂の活性層厚依存性

(5)  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  と  $\text{PbCl}_2/\text{NaF}$  を用いた DBR とそれを用いた微小共振器の開発に成功した。共に、従来の  $\text{PbF}_2/\text{PbBr}_2$  を用いたものよりも、劣化しにくく反射率などの性能も高いものが作製できた。

(6) 試料として用いた  $\text{CuCl}$  微小共振器は真空蒸着とスパッタリング法によって成膜するため、膜厚の場所依存性が大きい。このため、位相整合条件 (共振器の離調度と Rabi 分裂の値によって定まる) の合致する位置を、反射スペクトルの空間スキャンから明らかにし、条件の合致した試料位置において対応する入射角度にてレーザー励起を行った。

(7) 提案したスキームでは、二つのパルスビームを別の角度からタイミングを合わせて入射させる必要がある。このようなパルスレーザー照射を、条件に合わせて空間スキャンおよび波長スキャンをしながら行うためには、光学系の単純化が求められる。これには、アキシコンレンズ等を使う方法などが考えられる。

(8) また、試料作製と精密な光学評価および理論解析の結果から、これまで理論では考慮していなかった膜の境界面に存在する中間的な屈折率を持つ相 (ラフネスなどによる) が、Rabi 分裂の値や共振器の Q 値に大きく関与することが判明した。これにより、量子もつれ光子の生成効率や各種条件決定の計算などにおいては、今後、実際の実験条件に即した正確な物質の空間構造を考慮するべきであることが判明した。

本研究では最終目標である量子もつれ光子の高効率生成の実現には届かなかったが、以上に示す多くの知見が得られた。特に、試料の屈折率等の空間構造を正確に反映した理論計算での検証が必要であること、実験系がまだ複雑で提案スキームの条件を満たすのが困難であり、更なる工夫が求められることなどが判明し、今後より精密な研究の発展につながる結果が得られた。

#### 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)

[1] Hisaki Oka, Goro Oohata, and Hajime Ishihara, Efficient generation of energy-tunable entangled photons in a semiconductor microcavity, Appl. Phys. Lett., 査読有, 94 巻, 2009, 111113/1-3

[2] Goro Oohata, Yuta Yokotsuji, DaeGwi Kim, Hajime Ishihara, and Masaaki Nakayama, Experimental Determination of Excitonic Dispersion Relation from Center-of-Mass Quantization Effect on Excitons in  $\text{PbI}_2$  Thin Films, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, 78 巻, 2009, 024702/1-5

[3] Goro Oohata, Takashi Nishioka, DaeGwi Kim, Hajime Ishihara, and Masaaki Nakayama, Exciton polaritons in bulk CuCl microcavities grown by vacuum deposition, Phys. Stat. Sol. (c), 査読有, 6 巻, 2009, 280--283

[4] Goro Oohata, Takashi Nishioka, Daegwi Kim, Hajime Ishihara, and Masaaki Nakayama, Giant Rabi splitting in a bulk CuCl microcavity, Phys. Rev. B, 査読有, 78 巻, 2008, 233304/1-4

[学会発表] (計20件)

[1] 松浦心平, 三森康義, 小坂英男, 枝松 圭一, 宮崎健一, 大島悟郎, 金大貴, 中山正昭, 岡寿樹, 安食博志, 石原一, CuCl微小共振器の四光波混合II, 日本物理学会 第65回年次大会, 2010年3月22日, 岡山大学

[2] 松浦心平, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 宮崎健一, 大島悟郎, 金大貴, 中山正昭, 岡寿樹, 安食博志, 石原一, CuCl微小共振器の4光波混合, 第20回光物性研究会, 2009年12月12日, 大阪市立大学

[3] 吉野慎吾, 大島悟郎, 沈用球, 石原一, 溝口幸司,  $\text{PbCl}_2/\text{NaF}$ 多層膜をDBRとしたCuCl微小共振器におけるRabi分裂の研究, 第20回光物性研究会, 2009年12月12日, 大阪市立大学

[4] 宮崎健一, 川瀬稔貴, 大島悟郎, 金大貴, 石原一, 中山正昭,  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  DBR型CuClマイクロキャビティにおけるラビ分裂の制御, 第20回光物性研究会, 2009年12月12日, 大阪市立大学

[5] 松浦心平, 三森康義, 小坂英男, 枝松 圭一, 宮崎健一, 大島悟郎, 金大貴, 中山正昭, 岡寿樹, 安食博志, 石原一, CuCl微小共振器の四光波混合, 日本物理学会 2009年秋季大会, 2009年9月27日, 熊本大学

[6] 宮崎健一, 川瀬稔貴, 大島悟郎, 金大貴, 石原一, 中山正昭,  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  DBR型CuClマイクロキャビティにおけるラビ分裂の制御, 日本物理学会 2009年秋季大会, 2009年9月28日, 熊本大学

[7] 吉野慎吾, 大島悟郎, 沈用球, 石原一, 溝口幸司,  $\text{PbCl}_2/\text{NaF}$ 多層膜を用いたCuCl微小共振器におけるRabi分裂の評価, 日本物理学会 2009年秋季大会, 2009年9月27日, 熊本大学

[8] 大島悟郎, 神澤悠輔, 齋藤伸吾, 溝口幸司, 中山正昭, GaAs/AlAs多重量子井戸中におけるコヒーレントLOフォノンからのTHz電磁波のコヒーレント制御, 日本物理学会 第64回年次大会, 2009年3月28日, 立教大学

[9] 宮崎健一, 大島悟郎, 川瀬稔貴, 金大貴, 中山正昭,  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多層膜をDBRとしたCuClマイクロキャビティの作製II, 日本物理学会 第64回年次大会, 2009年3月28日, 立教大学

[10] G. Oohata, H. Oka, H. Ishihara, Phase-matching condition for entangled-photon generation in a semiconductor microcavity, 第19回光物性研究会 (2008), 2008年12月6日, 大阪市立大学

[11] 宮崎健一, 大島悟郎, 川瀬稔貴, 金大貴, 中山正昭,  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多層膜をDBRとしたCuClマイクロキャビティの作製, 第19回光物性研究会 (2008), 2008年12月6日, 大阪市立大学

[12] 奥川陽介, 大島悟郎, 宮崎健一, 金大貴, 石原一, 中山正昭, DBR型CuClマイクロキャビティにおけるRabi分裂の活性層厚依存性,

第 19 回光物性研究会 (2008), 2008 年 12 月 6 日, 大阪市立大学

[13] 神澤悠輔, 大島悟郎, 溝口幸司, 齋藤伸吾, 中山正昭, 室温におけるGaAs/AlAs多重量子井戸中のコヒーレントLOフォノンからのテラヘルツ電磁波の強度, 第19回光物性研究会 (2008), 2008年12月5日, 大阪市立大学

[14] 岡 寿樹, 大島悟郎, 石原一, Entangled-photon generation via a biexciton in a microcavity: A novel phase-matching condition, 第19回量子情報技術研究会 (QIT19), 2008年11月20日, 大阪府立大学

[15] 大島悟郎, 奥川陽介, 宮崎健一, 金大貴, 石原一, 中山正昭, CuCl微小共振器におけるRabi分裂の活性層厚依存性, 日本物理学会2008年秋季大会, 2008年9月23日, 岩手大学

[16] 宮崎健一, 大島悟郎, 金大貴, 中山正昭, HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>多層膜をDBRとしたCuClマイクロキャビティの作製, 日本物理学会, 2008年秋季大会 2008年9月23日, 岩手大学

[17] 大島悟郎, 岡寿樹, 石原一, 半導体微小共振器を用いた高効率量子もつれ光子対生成 ~新しい位相整合条件の提案~, 日本物理学会 2008年秋季大会, 2008年9月23日, 岩手大学

[18] 神澤悠輔, 大島悟郎, 齋藤伸吾, 溝口幸司, 中山正昭, 室温におけるGaAs/AlAs多重量子井戸中のコヒーレントLOフォノンからのTHz電磁波の強度, 日本物理学会 2008年秋季大会 2008年9月22日, 岩手大学

[19] G. Oohata, T. Nishioka, D. Kim, H. Ishihara, M. Nakayama, Exciton polaritons in bulk CuCl microcavities grown by vacuum deposition, 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter (EXCON'08), 2008年6月26日, 京都大学

[20] G. Oohata, T. Nishioka, D. Kim, H. Ishihara, and M. Nakayama, Observation of Giant Rabi Splitting in a Bulk CuCl Microcavity, 8th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN8), 2008年4月9日, 東京大学

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 光子対生成装置

発明者: 大島悟郎, 岡寿樹, 石原一

権利者: 大阪府立大学

種類: 特許

番号: 2008-119854

出願年月日: 2008年5月1日

国内外の別: 国内

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大島 悟郎 (OOHATA GORO)

大阪府立大学・理学系研究科・助教

研究者番号: 10464653

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号:

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号: