

# 散乱 - 束縛 2 励起子状態が共存する共振器 bipolariton による もつれ合い光子対生成の理論

岡 寿樹<sup>A</sup>, 石原一<sup>A,B</sup>

大阪府立大学大学院工学研究科電子・数物系専攻<sup>A</sup>

科学技術振興機構 CREST<sup>B</sup>

## Theory of entangled-photon generation via cavity bipolariton with bound- and unbound two-exciton states

Hisaki Oka<sup>A</sup> and Hajime Ishihara<sup>A,B</sup>

Department of physics and electronics, Osaka Prefecture University<sup>A</sup>

CREST, Japan Science and Technology Agency (JST)<sup>B</sup>

We investigate effects of unbound two-exciton states on generating entangled photons from cavity bipolariton. The entangled-photon generation are classified into two categories in terms of the ratio between the binding energy of biexciton,  $\Delta_B$  and the exciton-cavity coupling rate,  $g$ . For  $\Delta_B > \hbar g$ , the unbound states have little effect on the entangled-photon generation, and the optimal coupling rate is then given by  $\hbar g \sim \Delta_B$ . For  $\Delta_B < \hbar g$ , however, the unbound states have great impact on the entangled-photon generation. It is shown that the value of  $\Delta_B$  and the interplay between the biexciton and the unbound states plays an important role in realizing the entangled-photon generation with high efficiency.

## 1 はじめに

近年, 量子もつれ合い光子源のデバイス化に向け, 半導体を用いた生成源の開発が盛んに研究されている. これまでに CuCl 結晶 [1] や量子ドット [2] における励起子分子を介したもつれ合い光子対の生成が実験的に観測されており, また理論的にも共振器 QED 効果による光子対生成の増幅 [3] やナノ薄膜構造による生成の高効率化 [4] が議論されている. とりわけ, 共振器モードと強く結合した励起子分子からのもつれ合い光子対生成の研究は, 励起子分子非線形性や共振器 bipolariton 形成など 光学的特性の理解においても極めて重要である.

これまでの励起子系によるもつれ合い光子対生成の理論は, 2 励起子状態を散乱状態のみか束縛状態のみに限ったモデルで議論される場合が多く, 解析の対象となる条件が限定されていた. しかし, 束縛エネルギーが小さい励起子分子を介したもつれ合い光子対生成においては, 散乱状態と束縛状態のインタープレイが生成効率に強く影響する可能性が考えられる. 本研究では散乱 - 束縛 2 励起子状態が共存する励起子モデルを導入し, 一般的な条件下におけるもつれ合い光子対生成の理論を共振器 QED の観点から構築する. 本研究のモデルと束縛状態のみを扱う既存のモデルとを

比較することで, 束縛エネルギーの小さい励起子分子系では散乱 - 束縛状態間インタープレイが生成効率を決定する本質的なファクターとなることを明らかにする. また共振器 bipolariton 状態制御によるもつれ合い光子対生成の高効率化の可能性についても議論する.

## 2 解析モデル

### 2.1 励起子 - 共振器系

励起子系は, 平面共振器に閉じ込められた面に平行な重心運動の自由度を持つ tight-binding 励起子モデルを考える (図 1). 本研究では, 簡単のため励起子の自由度は 1 次元方向に限定するものとする. サイト間距離を  $a$  として周期境界条件を仮定し, 各サイト  $\ell$  における励起子のエネルギー, 生成消滅演算子, サイト間移動エネルギーをそれぞれ  $\epsilon_0$ ,  $b_\ell(b_\ell^\dagger)$ ,  $t$  とおくと励起子系の Hamiltonian は次式で与えられる,

$$\hat{H}_X = \epsilon_0 \sum_{\ell} \hat{b}_{\ell}^{\dagger} \hat{b}_{\ell} - t \sum_{\ell} \left( \hat{b}_{\ell+a}^{\dagger} \hat{b}_{\ell} + \hat{b}_{\ell}^{\dagger} \hat{b}_{\ell+a} \right) + V \sum_{\ell} \hat{b}_{\ell}^{\dagger} \hat{b}_{\ell}^{\dagger} \hat{b}_{\ell} \hat{b}_{\ell} + \Delta \sum_{\ell} \hat{b}_{\ell}^{\dagger} \hat{b}_{\ell+a}^{\dagger} \hat{b}_{\ell+a} \hat{b}_{\ell}. \quad (1)$$

ここで (1) 式の 2 行目は 2 励起子間相互作用を表し, 1 項目は同一サイトに二つの励起子が存在するのを禁

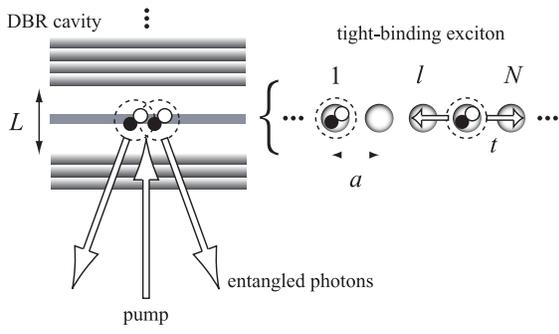


図 1: 励起子 - 共振器系の概念図．励起子は DBR 共振器に閉じ込められた tight-binding 励起子を考える．

止するパウリの排他律 ( $V \rightarrow \infty$ ), 2 項目は近接サイトにおける励起子間引力相互作用 ( $\Delta < 0$ ) を表す．これらによって励起子非線形性および励起子分子の生成を本モデルで議論することが可能となる．1 励起子状態の固有状態を

$$|X_K\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\ell} e^{iK\ell} \hat{b}_{\ell}^{\dagger} |0\rangle \quad (2)$$

と面内波数表示し, その直積状態の重ね合わせで 2 励起子状態を

$$|S\rangle \text{ or } |B\rangle \Rightarrow \sum_K C_K |X_K\rangle |X_{-K}\rangle \quad (3)$$

と定義すると, バンドを形成する 2 励起子散乱状態  $\{|S\rangle\}$  および束縛エネルギーを  $\Delta_B$  とする束縛 2 励起子状態 (励起子分子)  $|B\rangle$  が得られる． $\Delta_B$  は引力相互作用  $\Delta$  およびサイト間移動エネルギー  $t$  によって一意に決定される．本研究ではポンプ光は垂直入射光を仮定し, 2 励起子状態は重心波数がゼロとなる状態だけを考慮する．

共振器系は共振器長を  $L$  とした  $\lambda/2$ -DBR 共振器を考える．Hamiltonian は各面内重心波数  $K$  に対する共振器モードの生成消滅演算子を  $\hat{c}_K (\hat{c}_K^{\dagger})$ , 共振器分散を  $\omega_K$  として次式で与えられる,

$$\hat{H}_C = \hbar \sum_K \omega_K \hat{c}_K^{\dagger} \hat{c}_K, \quad (4)$$

ここで  $\omega_K = \omega_0 \sqrt{1 + (\pi K/L)^2}$ ,  $\hbar\omega_0$  は縦モードの最低次のエネルギーである．このとき, 共振器 - 励起子相互作用 Hamiltonian は励起子 - 共振器結合レートを  $g_K$  として

$$\hat{H}_{XC} = \hbar \sum_K g_K \left( \hat{c}_K^{\dagger} |X_{-K}\rangle \langle X_K X_{-K}| + \hat{c}_K^{\dagger} |0\rangle \langle X_K| + h.c. \right) \quad (5)$$

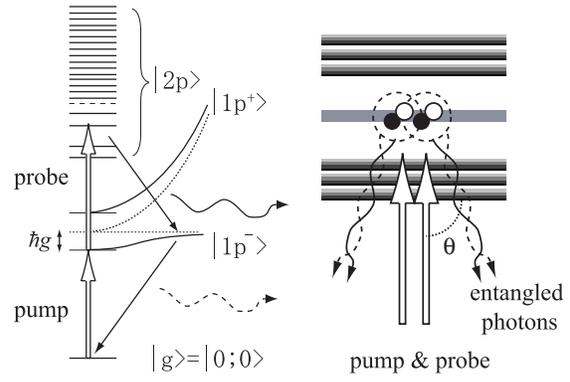


図 2: Pump-probe 励起によるもつれ合い光子対生成の概念図．Pump 光は下枝共振器 polariton に共鳴させる．

と書き下せる．ここで注意したいのは共振器場と 2 励起子状態  $|S\rangle, |B\rangle$  との相互作用は (3) 式で示されるそれぞれの状態を形成する重ね合わせの成分を介して行われることである．これら励起子 - 共振器系の全 Hamiltonian,  $\hat{H} = \hat{H}_X + \hat{H}_{XC} + \hat{H}_C$  を対角化することにより系の固有状態が得られる:

$$|1p\rangle^{\pm} = \alpha_K |X; 0\rangle \pm \beta_K |0; 1\rangle \quad (6)$$

$$|2p\rangle = \eta |XX; 0\rangle + \xi |X; 1\rangle + \zeta |0; 2\rangle. \quad (7)$$

ここで  $|\text{exciton; photon}\rangle$  である． $|1p\rangle$  状態はよく知られた上枝および下枝共振器 polariton であり,  $|2p\rangle$  状態は 2 励起子状態  $|XX; 0\rangle$ , 1 励起子 1 光子状態  $|X; 1\rangle$ , および 2 光子状態  $|0; 2\rangle$  が重なり合った, いわゆる bipolariton 状態である． $|S\rangle, |B\rangle$  状態はこの  $|XX; 0\rangle$  の中に含まれることになる．一般的に  $|2p\rangle$  状態を形成する各状態間の重ね合わせは, 結合レート  $g_K$  と束縛エネルギー  $\Delta_B$  によって決定される．このため, もつれ合い光子対生成効率もこれらのパラメータに強く依存する．

## 2.2 2 次の相関関数

もつれ合い光子対生成の効率は Master 方程式から計算される密度行列を用いて 2 次の相関関数  $G^{(2)}(0)$  を計算することにより評価できる．これは  $|2p\rangle$  状態から同時刻に放出される 2 光子間強度相関に対応する．共振器減衰率を  $\kappa$  とし, また共振器モード以外への励起子の自然放出 ( $\sim \gamma$ ) は無視できるとすると ( $g_K > \kappa \gg \gamma$ ), 外場の入出力 Hamiltonian を  $\hat{H}_{in}$  と

して Master 方程式は次式で与えられる,

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \left[ \hat{H} + \hat{H}_{\text{in}}, \hat{\rho} \right] + \sum_K \kappa \left( 2\hat{c}_K^\dagger \hat{\rho} \hat{c}_K - \hat{c}_K^\dagger \hat{c}_K \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{c}_K^\dagger \hat{c}_K \right) \quad (8)$$

本研究では, 図 2 のような 1 入射光を pump 光として下枝共振器 polariton に共鳴させ, もう一方の入射光を probe 光として周波数を変化させる誘導吸収型の pump-probe 励起の入出力 Hamiltonian,

$$\hat{H}_{\text{in}} = i\hbar\sqrt{2\kappa} \left( \hat{c}_0^\dagger b_1 e^{-i\omega_1 t} + \hat{c}_0^\dagger b_2 e^{-i\omega_2 t} + h.c. \right) \quad (9)$$

により  $|2p\rangle$  状態の密度行列を計算する. このようにして求めた密度行列から相関関数

$$G^{(2)}(0) = 4\kappa^2 \langle \hat{c}_K^\dagger \hat{c}_{-K}^\dagger \hat{c}_{-K} \hat{c}_K \hat{\rho} \rangle \quad (10)$$

を計算し, 高い光子対生成効率を実現する束縛エネルギー  $\Delta_B$  と結合レート  $g_K$  の関係および光子対出射角 ( $\sim \theta$ ) を議論する.

### 3 計算結果

以下の解析では, 励起子分子の束縛エネルギーが小さい, “浅い” 励起子分子を有する系 (例えば GaAs 励起子) を想定し, 散乱 - 束縛状態間のインタープレイがもつれ合い光子対生成にどのように影響を与えるかを, 散乱 - 束縛状態が共存する本研究のモデルと束縛状態のみのモデルとを比較して議論する.

解析結果を図 3 に示す. 図 3(a)-(c) は本研究のモデル, (d)-(f) は束縛状態のみのモデルに対する計算結果である. 励起子分子の束縛エネルギーは  $\Delta_B/E_X = 0.002$ , 共振器減衰率は  $\kappa = 0.15g_0$  とした. ここで  $E_X$  は重心波数  $K = 0$  の 1 励起子エネルギーである. 図 3(a),(d) は  $|2p\rangle$  状態の固有エネルギー  $E_{2p}$  を結合レート  $g_0$  の関数としてプロットしたもので, (b),(e) は光子対出射角  $\theta \sim 4^\circ$ , (c),(f) は  $\theta \sim 17^\circ$  に対する  $G^{(0)}$  を  $g_0$  と  $E_{2p}$  の関数として等高線プロットしたものである. いずれの図も縦軸はバンド端を原点とし, 横軸は結合レート  $g_0$  の大きさを励起子エネルギー  $E_X$  を単位として表している. 出射角の小さな光子対生成 ((b),(e)) に対しては散乱状態がある場合ない場合, いずれも矢印で示された裸の励起子分子と Rabi 分裂によってバンドから剥がれた状態とが交差し準位反撥が生じる結合レート近傍 (図中における円で囲まれた領域) で最大の生成効率を実現される. これは先に安食らによ

て指摘されている, 深い励起子分子系において実現される最適化条件 [3] と定性的に同じ結果である. しかし, 散乱状態がないモデルでは生成効率の高い領域が本来は散乱状態が閉めるバンド内にも存在し, また最適結合レートの値が大きすぎるなどの misestimate が起こる. 出射角が大きな光子対生成 ((c),(f)) に対しては散乱状態の影響が極めて顕著になり, 光子対生成効率が定性的にまったく異なる. 束縛状態のみのモデル (f) では励起子分子が含まれる至る所で高い生成効率を実現されると予測するが, 散乱状態が共存するモデル (c) では, ある結合レート近傍でのみ高い生成効率を実現されることが分かる. 同様の傾向が他の大きな  $\theta$  に対しても確認されている. このように, 浅い励起子分子系に対しては束縛状態のみの解析は一般的に破綻し, 散乱状態を取り入れたモデルによる解析が極めて重要になる.

図 3(c) に示されるように, 大きな出射角  $\theta$  に対する光子対生成の高効率化には大きな結合レートの実現が求められる. しかし, 大きな  $\theta$  では小さな  $\theta$  に見られたような準位反撥は起こらない. この理由は生成される  $|2p\rangle$  状態の違いに起因する. 束縛エネルギーが結合レートよりも大きいとき ( $\Delta_B > \hbar g_0$ ), 励起子分子は共振器場の影響をほとんど受けない. このため  $|2p\rangle$  状態は裸の励起子分子と散乱状態によって形成される bipolariton 状態の重ね合わせとなり, 特に準位反撥が生じる結合レート近傍では

$$|2p\rangle \simeq \frac{1}{\sqrt{2}}|B\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}(\eta|S\rangle + \xi|X; 1\rangle + \zeta|0; 2\rangle) \quad (11)$$

と励起子分子と散乱 bipolariton 状態がほぼ同程度になる. これを“弱い bipolariton 状態”と呼ぶ. このとき高い生成効率を実現する結合レートは励起子分子が支配的となり  $\hbar g_0 \sim \Delta_B$  となる. しかし, 結合レートが束縛エネルギーよりも大きくなると ( $\Delta_B < \hbar g_0$ ), 束縛状態を独立に扱うことはできず, 2 励起子状態全体が共振器モードと強く結合した bipolariton 状態

$$|2p\rangle \simeq \eta_B|B\rangle + \eta_S|S\rangle + \xi|X; 1\rangle + \zeta|0; 2\rangle \quad (12)$$

が生成される. これを“強い bipolariton 状態”と呼ぶ. 一般的に共振器モードとの結合レートは散乱状態の方が大きいため, 強い bipolariton 状態では散乱状態が支配的となる. また一方で,  $\Delta_B$  の大きさによって散乱状態の準位分布も変化するため, 共振器モードとの相対的な位置が変化し, 結合レートも変化する. このように強い bipolariton 状態では,  $\Delta_B$  の大きさと共振器モードを介した散乱 - 束縛状態間のインタープレイが複雑に絡み合っ

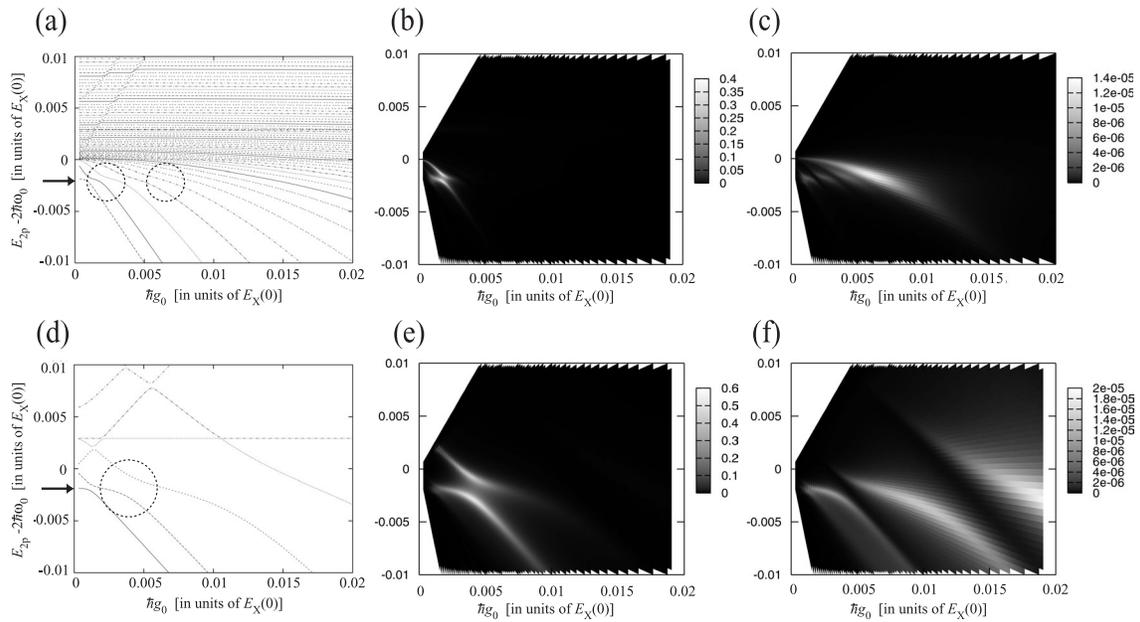


図 3:  $|2p\rangle$  状態の固有エネルギー  $E_{2p}$  の結合レート  $g_0$  依存性および  $G^{(2)}(0)$  の  $g_0$  と  $E_{2p}$  に対する等高線プロット . (a)-(c) は散乱 - 束縛状態が共存する本研究のモデル , (d)-(f) は束縛状態のみのモデルによる計算結果である . (b),(e) は光子対出射角  $\theta \sim 4^\circ$  , (c),(f) は  $\theta \sim 17^\circ$  に対応する .

以上の議論は深い励起子分子に対しても同様に成り立つ .  $\Delta_B$  が充分大きい励起子分子では弱い bipolariton 状態が支配的となるため散乱状態の影響はほぼ無視でき , 安食らの最適化条件に帰着される .

## 4 まとめ

散乱 - 束縛 2 励起子状態が共存する励起子モデルを導入し , 共振器 bipolariton によるもつれ合い光子対生成における散乱状態の影響を解析した . 光子対生成の高効率化は , 結合レート  $g_K$  と束縛エネルギー  $\Delta_B$  の比によって定性的に二つに大別される .  $\Delta_B > \hbar g_K$  では弱い bipolariton 状態が支配的となり , 小さな出射角に対し最適結合レートは  $\hbar g_0 \sim \Delta_B$  で与えられる .  $\Delta_B < \hbar g_K$  では強い bipolariton 状態が形成され , 散乱状態が支配的となり ,  $\Delta_B$  の大きさと共振器モードを介した散乱 - 束縛状態間のインタープレイが複雑に絡み合っ て最適結合レートが一意に決定される . これは散乱 - 束縛状態が共存する本研究のモデルによって初めて得られる知見である .

共振器 bipolariton によるもつれ合い光子対の生成は , 共振器 QED 効果による光子対生成の増幅 [3] により生成源として極めて有用である . しかし本研究の結果が示すように , 生成の高効率化はパラメータに非

常に敏感であり , 適切な励起子 - 共振器系のデザインが重要になる . また , 強い bipolariton 状態では最適結合レートおよびその出射角が大きくなるため , 一般的に生成効率は弱い bipolariton 状態に比べて低くなる . 束縛エネルギーが小さな励起子分子系ほどこの強い bipolariton 状態が支配的になるため更なる高効率化の理論が必要になる . 講演では , 共振器離調による bipolariton 状態の制御ともつれ合い光子対生成の高効率化についても議論する .

謝辞 本研究は、平成 17 年度科学研究補助金（学術創生研究 17GS1204）の助成の下で行われた .

## 参考文献

- [1] K. Edamatsu et al., Nature **431**, 167-170 (2004)
- [2] N. Akopian et al., Phys. Rev. Lett **96**, 130501 (2006); R.M. Stevenson, et al., Nature **439**, 179-182 (2006)
- [3] H. Ajiki and H. Ishihara, Phys. Stat. Solidi (c), **3**, 2440, (2006)
- [4] M. Bamba and H. Ishihara, Phys. Stat. Solidi (c), in press