

半導体励起子分子からの量子もつれ光発生の理論

Theory of Entangled Photon Generation from Biexcitons

小菅 美織、石田 邦夫

宇都宮大学大学院地域創生科学

Miori Kosuge ,Kunio Ishida

Graduate school of Regional development and creativity, Utsunomiya University

Abstract

We analyze the generation dynamics of quantum-entangled photon pairs in the cascade emission process of a biexciton on a square lattice. The objective is to rigorously evaluate the interaction between the internal state of the biexciton, which has been previously neglected in conventional measurements, and the quantum state of the emitted photons. Analysis using the time-dependent Schrödinger equation theoretically demonstrates that, even under this dynamic environment, the structure of the emitted light density matrix perfectly preserves the symmetry of the ideal Bell state at all times.

1 はじめに

光励起によって CuCl 半導体中に生成された励起子分子状態は、2 光子の放出によって基底状態に戻るが、これらの光子が量子もつれ状態にあることが知られている [1]。電子系と散乱・放出される光子の間にも量子相関があることから、放出光の量子状態から物質の内部状態に関する情報を得られることが期待されるが、そのための具体的な方策は明らかではない。特に、従来行われてきた量子状態トモグラフィによる密度行列測定 [2] に加えてどのような実験データによる議論が可能であるかを検討する必要がある。

そのための第一歩として、本研究は励起子分子の量子状態と放出される光子対の量子状態との関係を記述する理論モデルを提示することを目指した。具体的には、スピン選択則を考慮した発光過程のモデルを用いて、四次のルンゲクッタ法を用いた時間依存シュレーディンガー方程式の数値計算により系の時間発展を追跡し、放出光の光子数および系全体の密度行列や光の密度行列を示した。

2 モデルと計算手法

本研究で取り扱う量子もつれ光子の生成は、半導体中の励起子分子のカスケード発光過程を通じて起こる。この現象を理論的に記述するためには、放出光子の偏光自由度と励起子分子・励起子のスピン角運動量の相関を考慮することが不可欠である。この過程は、励起子分子 (B) が励起子準位 (X) を経由して基底状態 (G) へと遷移する二段階の量子遷移として記述される。この遷移は、角運動量保存則に基づくスピン選択則に従う。

第一段階の遷移では、励起子分子 (B) が中間状態である励起子 (X) に遷移する際に、一個の光子を放出する。このとき、放出される光子の偏光状態は、残された励起子のスピン状態と強く相関する。例えば、左回り偏光光子が放出された場合、残された励起子は総角運動量 $J = -1$ のスピン状態に偏り、右回り偏光光子が放出された場合、励起子は角運動量 $J = +1$ のスピン状態に偏る。

第二段階の遷移では、励起子 (X) から基底状態 (G) に遷移する際に、さらに一つの光子を放出する。この光子の偏光状態は、第一段階で残された励起子のスピン状態によって一

意に決定される。

励起子分子が、スピンの異なる複数の経路をコヒーレントな重ね合わせとして遷移するとき、放出される光子対は、偏光量子もつれ状態となる。各経路を通る確率が完全に等しいとき、放出される光子対の偏光状態は、以下のようなベル状態として記述される。

$$|\Psi_{bell}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|R_1, L_2\rangle + |L_1, R_2\rangle) \quad (1)$$

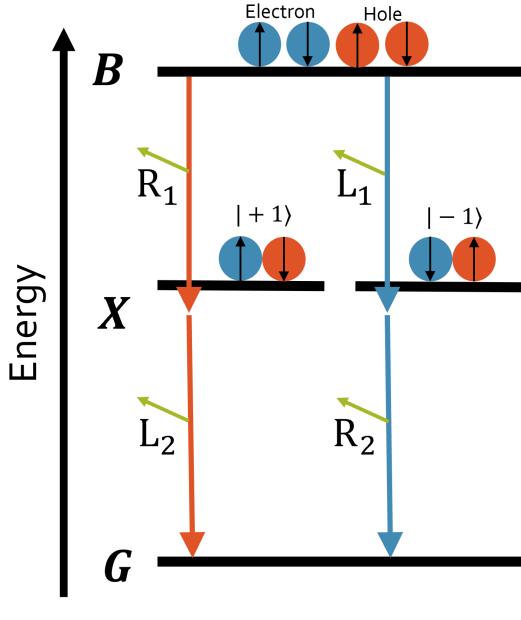


図1: 半導体中励起子分子における量子もつれ光子生成のカスケード発光過程の模式図。励起子分子は、二つの異なる励起子準位 ($J = \pm 1$) を経由して基底状態に遷移し、光子対を放出する。この二つの経路 ($|R_1, L_2\rangle$ と $|L_1, R_2\rangle$) のコヒーレントな重ね合わせにより、偏光量子もつれ光子が生成される。

本研究では、2つのバンド（電子の伝導帯および正孔の価電子帯）のみを考慮した正方格子のタイトバインディングモデルを採用する。また、励起子分子 (B)、励起子 (X)、基底状態 (G) といった物質系と放出・吸収される光

子を含む系全体の量子状態を考慮する。物質系の状態は、励起子分子を構成する二つの電子 (e_1, e_2) と二つの正孔 (h_1, h_2) の占有状態に基づいて定義される。また、添字 n_1, n_2, n_3, n_4 は、図1の右回り偏光 (R_1) の光子と左回り偏光 (L_2) の光子、左回り偏光 (L_1) の光子と右回り偏光 (R_2) の光子の各モードにおける光子数を示している。

励起子分子、励起子、および光を含むシステム全体のダイナミクスは、以下のハミルトニア $\hat{\mathcal{H}}$ によって記述される。

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_p + \hat{\mathcal{H}}_i + \hat{\mathcal{H}}_B \quad (2)$$

$$\hat{\mathcal{H}}_p = \sum_{i=1}^4 \Omega_i b_i^\dagger b_i \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_i = & \mu_1 \sum_r a_{r\downarrow} c_{r\uparrow} b_1^\dagger + \mu_2 \sum_r a_{r\uparrow} c_{r\downarrow} b_2^\dagger \\ & + \mu_3 \sum_r a_{r\uparrow} c_{r\downarrow} b_3^\dagger + \mu_4 \sum_r a_{r\downarrow} c_{r\uparrow} b_4^\dagger + h.c. \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_{Bie} = & \sum_i \left(-t_e \sum_{r,\sigma} a_{r+s_i,\sigma}^\dagger a_{r,\sigma} - t_h \sum_{r,\sigma} c_{r+s_i,\sigma}^\dagger c_{r,\sigma} \right) \\ & + \sum_{r,r',\sigma \neq \sigma'} U(r-r') \left(a_{r,\sigma}^\dagger a_{r,\sigma} a_{r',\sigma'}^\dagger a_{r',\sigma'} \right) \\ & + \sum_{r,r',\sigma \neq \sigma'} U(r-r') \left(c_{r,\sigma}^\dagger c_{r,\sigma} c_{r',\sigma'}^\dagger c_{r',\sigma'} \right) \\ & - \sum_{r,r',\sigma,\sigma'} U(r-r') \left(a_{r,\sigma}^\dagger a_{r,\sigma} c_{r',\sigma'}^\dagger c_{r',\sigma'} \right) \end{aligned} \quad (5)$$

ここで、 b^\dagger や b は光子の生成消滅演算子、 a^\dagger や a は電子の生成消滅演算子、 c^\dagger や c は正孔の生成消滅演算子である。また、 Ω は光のエネルギー、 μ は電子・正孔系と光子場の相互作用を与える双極子モーメント、 t_e と t_h は電子と正孔のホッピングエネルギー、 U はクーロン相互作用エネルギーを示す。

$\hat{\mathcal{H}}_p$ は放出される光のハミルトニアを表し、 $\hat{\mathcal{H}}_i$ は励起子分子から励起子、そして基底状態へのカスケード発光に伴う物質と光の相互作用を表す。また、 $\hat{\mathcal{H}}_B$ は電子・正孔系のハミルトニアである。

全系の時間依存波動関数 $|\phi(t)\rangle$ は、以下の式で記述される。

$$\begin{aligned}
|\phi(t)\rangle = & \sum_{r,n} P_{r_{e1}r_{e2}r_{h1}r_{h2}n_1n_2n_3n_4}(t) |r_{e1}r_{e2}r_{h1}r_{h2}n_1n_2n_3n_4\rangle \\
& + \sum_{r_{e1}r_{h2}n_1n_2n_3n_4} Q_{r_{e1}r_{h2}n_1n_2n_3n_4}(t) |r_{e1}00r_{h2}n_1n_2n_3n_4\rangle \\
& + \sum_{r_{e2}r_{h1}n_1n_2n_3n_4} R_{r_{e2}r_{h1}n_1n_2n_3n_4}(t) |0r_{e2}r_{h1}0n_1n_2n_3n_4\rangle \\
& + \sum_{n_1n_2n_3n_4} S_{n_1n_2n_3n_4}(t) |0000n_1n_2n_3n_4\rangle
\end{aligned} \tag{6}$$

ここで、波動関数 $|\phi(t)\rangle$ の各項における係数 P, Q, R, S は、対応する状態の確率振幅である。

本研究においては、外部からの共鳴パルス光によって、系が励起子分子 (B) 状態を考える。このとき、光子場は真空状態にあると仮定する。したがって、初期状態 $|\phi(t=0)\rangle$ は、励起子分子 (B) で光子場が真空状態に対応する振幅 P のみが非零となる。この初期状態から、ハミルトニアンの作用に従って系が時間発展し、光子対が発生する。

以上のように定義した波動関数とハミルトニアンに基づき、本研究では四次のルンゲクッタ法を用いて以下の時間依存シュレーディンガーエ方程式を数値的に解くことにより、系の時間発展を追跡した。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\phi(t)\rangle = \mathcal{H} |\phi(t)\rangle \tag{7}$$

正方格子のサイズは 16×16 とし、周期的境界条件を仮定して計算を行った。

モデルを構成する主要なパラメータは以下の通りである。電子および正孔のホッピングエネルギー t_e, t_h は 1.0 を採用し、励起子や励起子分子の結合に寄与するクーロン相互作用 U は、8.0 とした。また、電子・正孔系と光子場の相互作用を与える双極子モーメント μ は 0.2 と設定した。

3 結果と考察

励起子分子 (B) から基底状態 (G) へと至る二段階のカスケード発光過程の光子放出と吸収の過程を含むハミルトニアンに基づき計算さ

れた、系の時間発展について述べる。図 2 に全光子数 $\langle \hat{n}(t) \rangle$ の時間変化を示す。

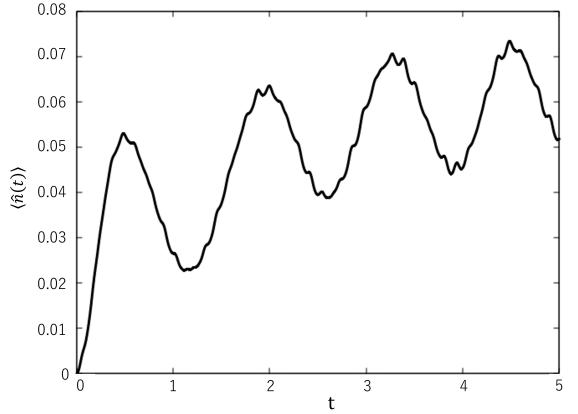


図 2: 全光子数 $\langle \hat{n}(t) \rangle$ の時間発展。

全光子数は時間経過と共に振動を伴いながら増加していくことが確認された。

以下、図 2 における時刻 $t = 4.5$ における結果について述べる。

光子の量子状態を議論するため、系全体の密度行列 $\hat{\rho}_{\text{total}}(t)$ から、観測対象ではない物質系の自由度 (B および X 準位) をトレースアウトすることで時間依存の放出光密度行列 $\rho_{\text{ph}}(t)$ を求めた。

この $\rho_{\text{ph}}(t)$ は、カスケード発光過程における、真空状態 (0 光子)、1 光子状態、2 光子状態の間の動的な遷移とコヒーレンスを全て内包している。本モデルでは光子モードを 4 つ ($|R_2\rangle, |L_1\rangle, |L_2\rangle, |R_1\rangle$) 考慮し、各モードの光子数を 0 または 1 としているため、この $\rho_{\text{ph}}(t)$ は 16×16 の行列として表現される。ここで、行列の基底は、 $|R_2\rangle, |L_1\rangle, |L_2\rangle, |R_1\rangle$ の 4 つの光子モードの占有数を左から順に並べた 2 進数表記 $|n_{R_2}n_{L_1}n_{L_2}n_{R_1}\rangle$ に対応する 0 から 15 のインデックスで定義される。例えば、インデックス 0 は真空状態 $|0000\rangle$ に、インデックス 15 は全てが占有された状態 $|1111\rangle$ に対応する。図 3 に、 16×16 の $\rho_{\text{ph}}(t = 4.5)$ の行列要素の絶対値を示す。

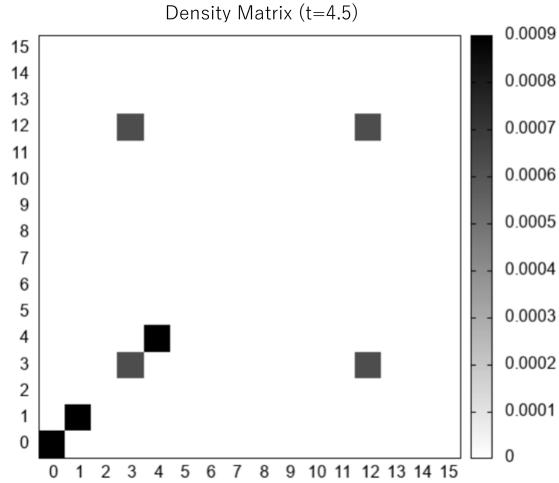


図 3: 時刻 $t = 4.5$ における 16×16 の密度行列 $\rho_{\text{ph}}(t)$ の行列要素の絶対値。

実験で観測されている放出光子対の量子状態を議論するため、 16×16 の $\rho_{\text{ph}}(t)$ を 2 光子部分空間 (4×4) に射影することで最終的に放出された 2 光子対の状態を得た。この操作は、2 光子部分空間への射影演算子 $\hat{A}_{2-\text{ph}}$ を用いて、2 光子密度行列 $\rho_{2-\text{ph}}(t)$ を以下のように導出することに相当する。

$$\hat{\rho}_{2-\text{ph}}(t) = \hat{P}_{2-\text{ph}} \rho_{\text{ph}}(t) \hat{P}_{2-\text{ph}} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \hat{P}_{2-\text{ph}} = & |1100\rangle\langle 1100| + |1001\rangle\langle 1001| \\ & + |0110\rangle\langle 0110| + |0011\rangle\langle 0011| \end{aligned} \quad (9)$$

図 4 に $\hat{\rho}_{2-\text{ph}}(t = 4.5)$ を示す。この 2 光子部分空間に射影された 4×4 の密度行列が、ベル状態の密度行列と同じ行列要素のみ値をもつことがわかった。さらに、要素間に位相差がないことから、この状態はベル状態であることがわかった。これは、量子もつれ生成経路である 2 つの経路の対称性により、 $B \leftrightarrow X$ 間の電子ダイナミクスを考慮した場合にもベル状態が維持されていることを示している。

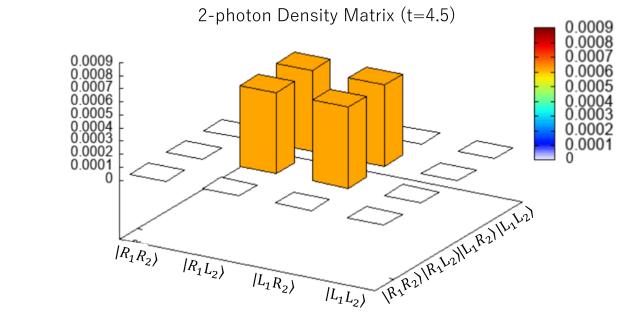


図 4: 時刻 $t = 4.5$ における 4×4 の密度行列 $\rho_{2-\text{ph}}(t)$ の行列要素の絶対値。

4 まとめ

本研究では、半導体励起子分子のカスケード発光過程における量子もつれ光子対の生成を、励起子分子 (B) \leftrightarrow 基底状態 (X) 間の光子放出と逆過程の再吸収を含むコヒーレントな理論モデルに基づいて、量子もつれ光子対の生成機構を解析した。導出された放出光子対の密度行列 $\rho_{2-\text{ph}}(t)$ は、全時間領域においてベル状態と同一の行列構造を保ち、要素間に位相差を持たないことがわかった。この結果は、 $B \leftrightarrow X$ 間で生じるコヒーレントな電子ダイナミクスにおいて、ベル状態が維持されていることを示している。

5 参考文献

参考文献

- [1] K. Edamatsu, G. Oohata, R. Shimizu and T. Itoh, Nature 431, 167-169 (2004).
- [2] Y. Yamamoto, G. Oohata and K. Mizoguchi, J. Opt. Soc. Am. B 36, 1581-1586 (2019).
- [3] D. Huber, M. Reindl, J. Aberl, A. Rastelli and R. Trotta, J. Opt. 20, 073002 (2018).