

励起子ポラリトン凝縮のコヒーレンス

江崎 ひろみ*

Coherence of Exciton-polariton condensates

Hiromi Ezaki*

A second-order coherence function of an exciton-polariton condensate is calculated in the time domain by the quantum Monte-Carlo wavefunction method. We fully consider polariton-polariton interactions within the five lowest quantized exciton-polariton branch in a one-dimensional model.

Our calculated second-order coherence function qualitatively agrees with the experimental results obtained by H. Deng et. al,¹⁾ and it approaches to one at well above threshold like an ideal photon laser. However, the polariton number distribution is broad compared with Poissonian distribution, which indicates that the polariton condensate is different from a coherent state.

はじめに

半導体に適当な波長のレーザー光を照射すると、価電子帯の電子は伝導体へ励起され、励起電子とその抜け穴である正孔はクーロン力により束縛状態を形成する。これが励起子である。励起子は光を放出して再結合し、その光がまた励起子を生成する。このようにして光子と強く結合した複合粒子は励起子ポラリトンと呼ばれる。励起子ポラリトンは低密度領域ではボーズ粒子とみなすことができ、そのため、低温でボーズ・アインシュタイン凝縮(BEC)²⁾を起こすことが予想される³⁾。

ボーズ・アインシュタイン凝縮はボーズ粒子がその統計性のため、基底状態に凝縮する現象で、1924年にボーズとアインシュタインによって提唱された⁴⁾。後に、液体ヘリウムの超流動現象や金属の超伝導現象によって実験的にも確認された⁵⁾。近年では、レーザー冷却技術などにより、アルカリ原子気体においても実現されている⁶⁾。アルカリ原子系では粒子数密度を上げ、原子を冷却するために磁気トラップや蒸発冷却法などの手法が必要であるが、励起子ポラリトンでは、その質量がアルカリ原子に比べて約10桁も軽いので、原子系に比べ高温、低密度で凝縮相を実現できる¹⁾。

しかし、ポラリトンは数ピコ秒から数十ピコ秒という短い寿命を持つため、液体ヘリウムやアルカリ原子のボーズ・アインシュタイン凝縮が熱平衡下で実現するのに対し、ポラリトン系では非平衡開放系での凝縮である点が大きく異なる。そのため、ポラリトンの凝縮現象はボーズ・アインシュタイン凝縮というよりは半導体レーザーに近いように思われるが、半導体レーザーでは反転分布が必要であるのに対し、励起子ポラリトン凝縮では基底状態の励起子ポラリトンへの誘導散乱が凝縮のメカニズムとなる点

が異なる。ただし、最近の研究では強励起では励起子ポラリトン凝縮は半導体レーザーへ連続的に移行することがわかってきている⁶⁾。

励起子ポラリトンの凝縮は、GaAs¹⁾、CdTe⁸⁾、GaN⁹⁾、ZnO¹⁰⁾、有機半導体など様々な系で実験が行われ、量子凝縮が観測されている。さらに最近では、音波的な線形分散を持つボゴリューボフ励起スペクトル¹¹⁾、量子渦¹²⁾、超流動輸送現象¹³⁾の観測など、目覚ましい進展を遂げている。

しかしながら、その一方で励起子ポラリトンの凝縮にはいまだ未解決の問題も多い。たとえば、励起光の強度を上げていくと、第1閾値、第2閾値があることが観測されており¹⁴⁾、第1閾値で励起子ポラリトンの凝縮が起きていることが観測されている。その凝縮相では、2次と3次のコヒーレンス関数が $g^{(2)}(0): 1.4$ 、 $g^{(3)}(0): 2.5$ に収束することが実験で報告されている¹⁵⁾。コヒーレント状態では、すべての高次のコヒーレント関数は1となるから、凝縮相の状態は通常のレーザー光のようなコヒーレント状態とは異なるということになる。これは励起子ポラリトン間の相互作用と励起子ポラリトンとフォノンとの相互作用に起因すると考えられているが^{15), 16)}、まだ十分に解明されているとは言えない。これまでの理論的取り扱いでは、励起子ポラリトン間の相互作用について様々な近似が用いられており^{16), 17)}、相互作用を厳密に取り扱った研究は筆者の知る限りではまだ試みられていない。この論文では、量子モンテカルロ波動関数法^{18), 19), 20)}を用いることにより、励起子ポラリトン相互作用を厳密に取り入れ、基底状態のコヒーレンス関数について明らかにする²¹⁾。

モデル

* 東京工芸大学工学部基礎教育研究センター教授
2014年9月26日 受理

実験はおもにプレーナマイクロ共振器中の励起子ポラリトンについて行われている。量子井戸励起子と共振器光子が強結合することにより、エネルギー対運動量の分散関係は上方 (UP) および下方 (LP) 励起子ポラリトンと分岐する。レーザー光で励起された LP はボーズ粒子特有の誘導散乱現象により基底状態への凝縮が起こる。このため、閾値は基底状態の平均粒子数が 1 を超えるという条件で決まる。本論文では、LP の基底状態、第一励起状態、第二励起状態までの限られたモードを考えるかわりに、励起子ポラリトン間の相互作用については厳密に扱うことによってコヒーレンス関数に及ぼす LP-LP 相互作用の効果について数値的に明らかにする。出発点となるハミルトニアンは²¹⁾

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{ph} + \hat{H}_{int} , \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \hat{H}_0 = & \sum_{k=0,\pm 1,\pm 2} \hbar \omega_k \hat{c}_k^\dagger \hat{c}_k + \sum_{k=0,\pm 1,\pm 2} \hbar V_k \hat{c}_k^\dagger \hat{c}_k^\dagger \hat{c}_k \hat{c}_k \\ & + \hbar V (\hat{c}_0^\dagger \hat{c}_{-1}^\dagger \hat{c}_{-1} \hat{c}_0 + \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_1^\dagger \hat{c}_1 \hat{c}_0) \\ & + \hbar V' (\hat{c}_1^\dagger \hat{c}_2^\dagger \hat{c}_2 \hat{c}_1 + \hat{c}_1^\dagger \hat{c}_2^\dagger \hat{c}_2 \hat{c}_1) \\ & + \hbar V_B (\hat{c}_1^\dagger \hat{c}_{-1}^\dagger \hat{c}_0^2 + \hat{c}_0^{\dagger 2} \hat{c}_1 \hat{c}_{-1}) \\ & + \hbar V'_B (\hat{c}_2^\dagger \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_1^2 + \hat{c}_1^{\dagger 2} \hat{c}_0 \hat{c}_2 \\ & + \hat{c}_{-2}^\dagger \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_{-1}^2 + \hat{c}_{-1}^{\dagger 2} \hat{c}_0 \hat{c}_{-2}) \end{aligned} \quad (2)$$

$$\hat{H}_{ph} = \sum_{\mathbf{q}} \hbar v_s |\mathbf{q}| \hat{b}_{\mathbf{q}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{q}} , \quad (3)$$

$$\hat{H}_{int} = \sum_{k,\mathbf{q}} \hbar g_{ph}(k, \mathbf{q}) \hat{c}_{k+\mathbf{q}}^\dagger \hat{c}_k (\hat{b}_{\mathbf{q}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{q}}) . \quad (4)$$

ここで、 $\hat{c}_k^\dagger (\hat{c}_k)$ はモード k の励起子ポラリトンの生成 (消滅) 演算子、 v_s は媒質の音速、 $\hat{b}_{\mathbf{q}}^\dagger (\hat{b}_{\mathbf{q}})$ はフォノンの生成

(消滅) 演算子である。ハミルトニアン \hat{H}_0 の最初の項は励起子ポラリトンの自由エネルギーを表し、第二項は自己位相変調に対する自己エネルギー補正、第三項、第四項はモードが異なる位相変調に対する自己エネルギー補正を表す。ここでは、スピン偏極したポラリトン系を想定し、これらの相互作用 V 、 V' 、 V_k は正とする。(2)式の最後の2つの項は LP-LP 散乱過程を表し、これが凝縮後のコヒーレンスに強く影響を及ぼすと考えられる。(4)式はポラリトンとフォノンの相互作用を表し、 $g_{ph}(k, \mathbf{q})$ は変形ポテ

ンシャルである。

ボルン・マルコフ近似のもとでフォノン系を消去すると励起子ポラリトンに対するマスター方程式が得られる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = & -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\rho}(t)] \\ & -\frac{1}{2} \Gamma_1 (\hat{c}_2^\dagger \hat{c}_1^\dagger \hat{c}_2 \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{c}_2^\dagger \hat{c}_1^\dagger \hat{c}_2 - 2 \hat{c}_1^\dagger \hat{c}_2 \hat{\rho} \hat{c}_2^\dagger \hat{c}_1) \\ & -\frac{1}{2} \Gamma_1 (\hat{c}_{-2}^\dagger \hat{c}_{-1}^\dagger \hat{c}_{-2} \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{c}_{-2}^\dagger \hat{c}_{-1}^\dagger \hat{c}_{-2} - 2 \hat{c}_{-1}^\dagger \hat{c}_{-2} \hat{\rho} \hat{c}_{-2}^\dagger \hat{c}_{-1}) \\ & -\frac{1}{2} \Gamma_2 (\hat{c}_1^\dagger \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_1 \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{c}_1^\dagger \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_1 - 2 \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_1 \hat{\rho} \hat{c}_1^\dagger \hat{c}_0) \\ & -\frac{1}{2} \Gamma_2 (\hat{c}_{-1}^\dagger \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_{-1} \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{c}_{-1}^\dagger \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_{-1} - 2 \hat{c}_0^\dagger \hat{c}_{-1} \hat{\rho} \hat{c}_{-1}^\dagger \hat{c}_0) \\ & -\frac{1}{2} \sum_{k=0,\pm 1} \gamma_k (\hat{c}_k^\dagger \hat{c}_k \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{c}_k^\dagger \hat{c}_k - 2 \hat{c}_k \hat{\rho} \hat{c}_k^\dagger) . \end{aligned} \quad (5)$$

ここで、 $\Gamma_1 (\Gamma_2)$ はフォノン放出により $k = \pm 2$ ($k = \pm 1$) ポラリトンが $k = \pm 1$ ($k = 0$) モードへ緩和する割合を表し、最後の項はそれぞれのモードが共振器の外へ漏れ出る割合を表す。このマスター方程式は多体系のため、厳密に解くことはできないが、量子モンテカルロ波動関数法を用いることにより、LP-LP 相互作用について厳密に取り入れることができる。レーザー光による励起の効果はモード $k = \pm 2$ の初期分布として取り入れた。

計算結果

図 1 に量子モンテカルロ・シミュレーションで求めた 2 次のコヒーレンス関数 $g^{(2)}(0)$ を示す。 $g^{(2)}(\tau)$ は

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle}{\langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle^2} , \quad (6)$$

で定義される。ここで、 $\hat{E}^{(-)}(t)$ 、 $\hat{E}^{(+)}(t)$ は共振器の外に放出された電場の負、および正の振動数部分である。数値計算では、H. Deng らの実験条件との比較を考慮し、

$$g^{(2)}(j) = \frac{\langle n_1(i) n_2(i+j) \rangle}{\langle n_1 \rangle \langle n_2 \rangle} , \quad (7)$$

を計算した。ここで、 $n_1(i)$ と $n_2(i+j)$ は 2 つのトラジェクトリー i と $i+j$ においてそれぞれカウントされた光子

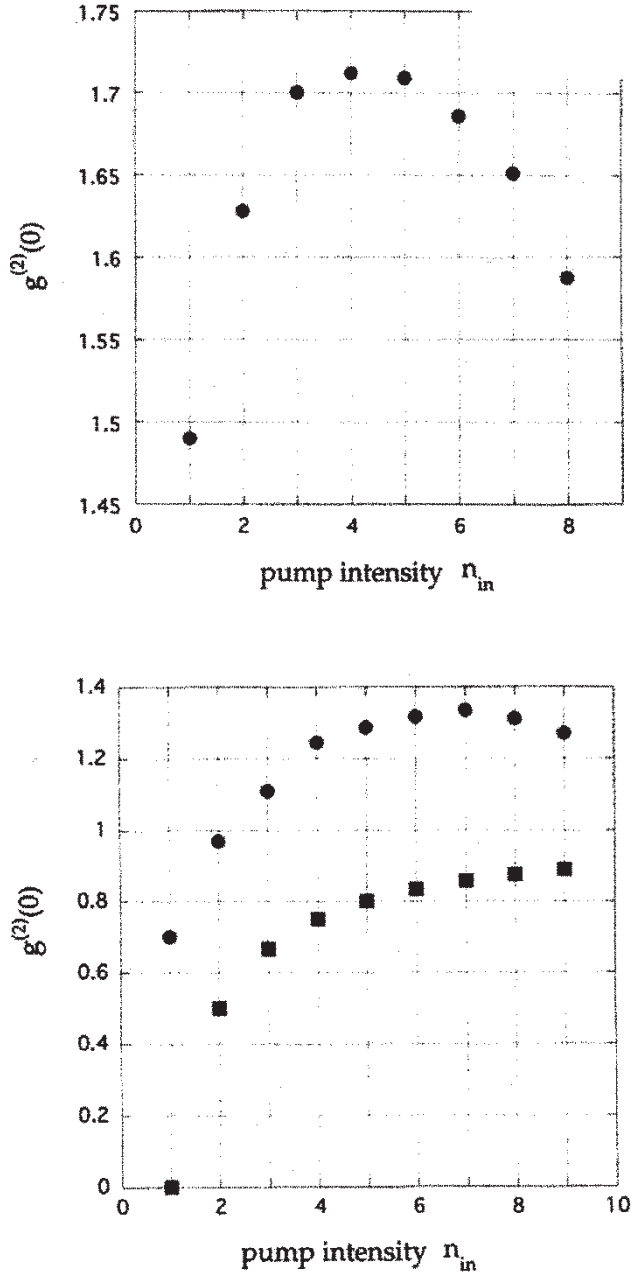


図1. 2次コヒーレンス関数。初期状態は(a) ポアソン状態、(b)フォック状態。(b)の四角はフォック状態に対する計算値 $g^{(2)}(0) = 1 - 1/n_{in}$ を表す。

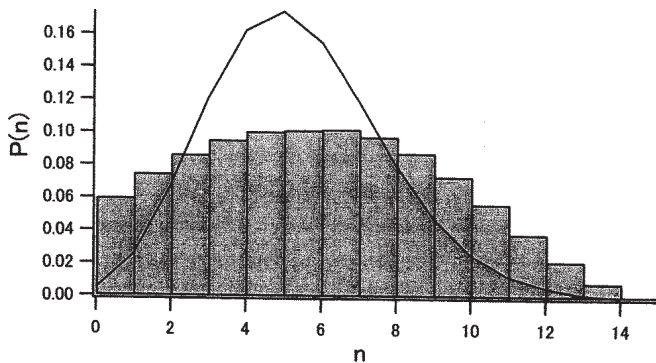


図2. 凝縮相のポラリトン数分布 ($p/p_{th}=1.3$)。実線はポアソン分布、棒グラフは計算値。

数を表す。図1(a)と(b)は $k = \pm 2$ の初期分布がそれぞれポアソン状態とフォック状態の場合に対する2次のコヒーレンス関数 $g^{(2)}(0)$ の計算結果である。図1(a)では、閾値付近 ($n_{th} : 3.7$) に極大が見られるが、これは励起の仕方によると考えられる。実験がパルス励起で行われていたため、それと比較するために、シミュレーションでは $t=0$ で励起モード $k = \pm 2$ に作られた初期分布が散乱過程によって $k = \pm 1, k = 0$ へ緩和していく過程を計算している。閾値より低い励起においては、フォノンによる熱化過程 $\Gamma_1(\Gamma_2)$ よりも共振器の外への散逸 γ_0 の方がずっと大きいために、初期分布が線形過程でそのまま基底状態で緩和していく過程が支配的と考えられる。そのため、 $g^{(2)}(0)$ の値は熱平衡状態の2ではなく、1に近い値となっている。閾値に近づくと、ボソン特有の誘導散乱過程が働き始め、 $g^{(2)}(0)$ の値は2へと近づいていく。閾値を超えてさらに励起していくと、 $g^{(2)}(0)$ は減っていくが、これは $g^{(2)}(0)$ の計算過程で、パルス全体について積算しているためと考えられる。基底状態の時間変化を追っていくと、励起モードからの緩和を受けて、はじめ基底状態の粒子数はゼロであるが、時間とともに増加していき、励起モードの粒子数が減るにつれて、基底状態の粒子数も徐々に減少していく。閾値は $\langle n_{k=0} \rangle = 1$ で与えられるが、たとえば閾値よりも強い励起であっても、 $\langle n_{k=0} \rangle = 1$ を越えるのは、基底状態の時間変化の中のごく一部であり、 $\langle n_{k=0} \rangle = 1$ 以下の状態も過渡的に存在しているということになる。図1(b)では、比較のため、初期状態がフォック状態の場合について、同様に計算を行った。フォック状態では、 $g^{(2)}(0) = 1 - 1/n_{in}$ となるため (図の四角)、励起が弱い場合の振る舞いはポアソン分布の場合と異なるが、閾値付近で極大となっており、定性的な振る舞いは同様である。

図1の計算結果では、閾値を超えて励起を強くしていくと $g^{(2)}(0)$ は1へ近づいていくように見える。しかし、 $g^{(2)}(0) = 1$ であることはコヒーレント状態であることを保証するわけではない。たとえば、フォック状態では粒子数が大きい極限で $g^{(2)}(0) = 1$ となる。

図 2 は閾値より強い励起光の場合の分布を示したものである。この計算はパルス励起ではなく、連続光による励起下で行ったものである。折れ線は励起子ポラリトンの平均値に等しいポアソン分布を表し、棒グラフは数値計算の結果である。この図から明らかなように、2 次コヒーレンスの値は 1 に近いが、分布はポアソン分布とは大きく異なっていることがわかる。励起子ポラリトンの相互作用を弱くしていくと、分布はポアソン分布に近づいていくことから、この差は主に励起子ポラリトン相互作用に起因すると考えられるが、詳細は今後の課題である。

議論

本論文では、運動量空間については 1 次元として扱い、さらに、LP の量子化された 5 つの低エネルギーモードに限り計算を行った。しかし、この範囲内ではあるが、LP-LP 相互作用は近似なく厳密に取り扱うことによって、励起子ポラリトン凝縮に対する LP-LP 相互作用の効果を明らかにした。実験は量子井戸で行われているため、実験と比較するためには 2 次元に拡張すべきであるが、計算で得られた 2 次のコヒーレンスの振る舞いは実験とよく一致しており、定性的には 1 次元モデルでも実験を説明できることがわかった。しかし、パルス励起では閾値より上の強度においても、閾値以下の状態が混ざってしまうため、凝縮相の状態を調べるには限界がある。より詳しく調べるためには、連続光による励起下での計算が必要である。また、フォック状態でも粒子数が大きければ $g^{(2)}(0) \rightarrow 1$ となるように、 $g^{(2)}(0)$ はあまりよい指標とは言えない。凝縮相の状態を明らかにするためには、より高次のコヒーレンス関数 $g^{(3)}(0)$ を調べる必要がある。「はじめに」でも述べたように、連続光による励起下の実験において、 $g^{(2)}(0): 1.4$ 、 $g^{(3)}(0): 2.5$ に収束することが報告されている¹⁴⁾。本論文の手法を連続光励起に用いて、この収束値が何に起因するのか明らかにしたい。

本稿では系は十分低温にあるとし、フォノン系は熱浴として取り扱った。励起子ポラリトンとフォノンとの相互作用の効果も考慮する必要があるが、フォノンの全利得に対する寄与は 1 割以下という研究もあり²²⁾、対象とする系では、励起子ポラリトンとフォノンの相互作用に比べ、励起子ポラリトン間の相互作用が支配的であるといえる。

おわりに

本論文では、量子モンテカルロ波動関数法を用いて励起子ポラリトン凝縮のコヒーレンスについて調べた。量子モンテカルロ波動関数法は多体系の相互作用を厳密に取り扱うことができるため、励起子ポラリトン系について最適

な手法といえる。今後は、この手法をさらに拡張して凝縮相のコヒーレンスについて、さらに詳しく調べていきたい。

最後に、多くの貴重な議論と示唆を頂いた山本喜久氏に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) H. Deng, et al., Science **298** (2002) 199.
- 2) A. Griffin, D. W. Snoke and S. Stringari, (1995). (Eds.) Bose-Einstein condensation, (Cambridge Univ. Press, Cambridge).
- 3) A. Imamoglu et al., Phys. Rev. A **53** (1996) 4250. F. Tassone and Y. Yamamoto, Phys. Rev. B **59** (1999) 10830.
- 4) S. N. Bose, Z. Phys. **26**, (1924) 178. A. Einstein, Sitzungsberichte der Preussischen Akademie der Wissenschaften, Physicalisch-mathematische Klasse (1924) 261, (1925) 3.
- 5) L. Tisza, Nature, **141** (1938) 913. J. Bardeen et al., Phys. Rev. **108** (1957) 1175.
- 6) M. H. Anderson et al., Science **269** (1995) 198. K. B. Davis et al., Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 3969. C. C. Bradley et al., Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 1687. C. C. Bradley et al., Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 985.
- 7) M. Yamaguchi, et al., New J. Phys. **14** (2012) 186402. M. Yamaguchi, et al., Phys. Rev. Lett. **111** (2013) 026404.
- 8) J. Kasprzak, et al., Nature (London) **443** (2006) 409.
- 9) S. Christopoulos et al., Phys. Rev. Lett. **98** (2007) 126405.
- 10) L. Sun, et al., arXiv: 1007.4686 (2010).
- 11) S. Utsunomiya, et al., Nature Phys. **4** (2008) 700.
- 12) K. G. Lagoudakis, et al., Nature Phys. **4** (2008) 706.
- 13) A. Amo, et al., Nature Phys. **5** (2009) 805.
- 14) G. Roumpos, et al., Phys. Rev. Lett. **104** (2010) 126403.
- 15) T. Horikiri, et al., Phys. Rev. B **81** (2010) 033307.
- 16) P. Schwendimann and A. Quattropani, Phys. Rev. B **82** (2010) 205329. P. Schwendimann and A. Quattropani, Phys. Rev. B **78** (2008) 073404.
- 17) J. Keeling et al., Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 016402. D. Sarchi and V. Savona, Phys. Rev. B **75** (2007) 115326. M. Wouters and I. Carusotto, Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 140402.
- 18) H. J. Carmichael, (1993). An Open Systems Approach to Quantum Optics, (Springer, Berlin)
- 19) J. Dalibard et al., Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 580.
- 20) C. W. Gardiner et al., Phys. Rev. A **46** (1992) 4363.
- 21) H. Ezaki and Y. Yamamoto, Nonlinear Optics and Quantum Optics **35** (2006) 313.
- 22) D. Sarchi et al, Phys. Rev. B **78** (2008) 073404.