

局在光子の視点から見た励起/コヒーレンスの移動

— Excitation/coherence transfer via localized photons —

小路口暁^{*}, 小林潔^A, 北原和夫, 三宮俊^A, 大津元一^{AB}

国際基督教大学理学科, 科学技術振興事業団^A, 東京工業大学大学院総合理工研究科^B

近接場光を介して互いに相互作用する量子点のモデルを提示する。このモデルでは物質の運動方程式は非線形になり、ある条件下で系全体の電気双極子のコヒーレントな振動が生じることを示す。更に、この状態と Dicke の超放射状態を比較検討する。

近接場光の中で我々に最もなじみの深いものは、光の全反射を起こしている誘電体表面上にしみ出しているエバネッセント光である。この光のしみ出し長は光の波長程度である。また、光の波長より微小な誘電体に光を照射すると、散乱光の他に微小誘電体の径程度の領域にまとわりついた近接場光が発生する。近接場光は、その伝搬距離が波長より短く物質系のサイズを反映することから、光の回折限界を超えた光学顕微鏡である近接場プローブ顕微鏡など様々な分野に応用されている。更に、回折限界を越えた精度でナノメートル寸法の量子点や原子を操作したり制御しようという試みもなされている [1]。

一般に光のモードの中には、このような近接場光が含まれている。例えば、アンテナなどからの電磁波の放射を計算する時、非伝搬成分として捨てる項から構成されるものが近接場光である。物質が光と相互作用する時、物質表面近傍には近接場光が発生するが、近接場光による効果は、空間的に分離した2つの物質系が近接場光の広がり程度に隣接する時顕著に現れる。最近の微細加工の技術の進歩により、近接場光を介したナノメートル寸法の物質間の相互作用を調べることが可能になりつつあるため [2]、近接場光をやり取りして相互作用を行う物質間に生じるダイナミクスや平衡状態を解明することが重要課題となっている。本論文では、近接場光を介して相互作用する物質系(量子点)のモデルを提示し、系の双極子モーメントがどのように振舞うか等の動的性質を議論する。

近接場光は伝搬しないという性質を持つため、従来の空間的に広がった平面波で展開した量子化の方法ではその性質をうまく説明できない。そのため、近接場光の生じるような境界条件下における厳密な基準振動を見つけて良い量子化の基底を得ることが必要になる。一方、近接場光の物質に対する一般的な影響を理解する上で、現象論的なモデル化により近接場光が媒介する物質系のダイナミクスを理解することも有効である。ここではそのような立場に立って、近接場光の非伝搬性を現象論的に取り入れることにより近接場光のモデル化を試み、その性質を議論する。

我々のモデルの模式図を図1に示す。物質系は N 個の2準位系からなる量子点としてモデル化し、励起子により記述する。近接場光は各量子点に局在する調和振動子でありかつ、最近接量子点間だけで移動できるとする。そして同一量子点内での励起子の生成消滅により、局在光子の消

^{*} 現在の所属：科学技術振興事業団大津局在フォトンプロジェクト。E-mail: akirasho@ohtsu.jst.go.jp

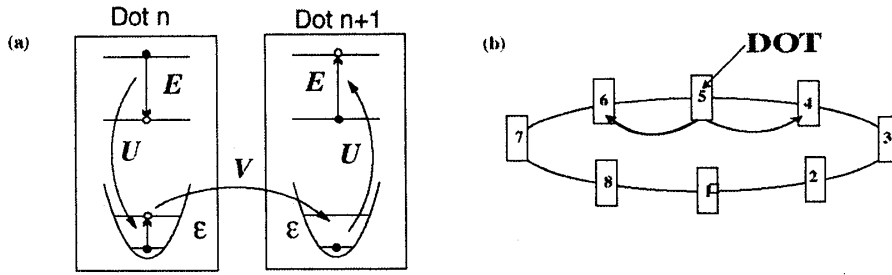


図 1: 近接場光と相互作用する物質のモデル: (a) 量子点同士は近接場光を介して結合する。(b) 量子点は円環状に並んでいる。

滅生成が起こるとする (図 1a)。量子点は円環状に配列してあるとする (図 1b)。以上のことを記述した Hamiltonian は次の 3 つの項からなる。

$$H = H_a + H_b + H_{int}. \quad (1)$$

H_a は局在光子を記述する項、 H_b は励起子を記述する項、そして H_{int} が互いの相互作用を記述する項である。各項は次のように書くことができる。

$$H_a = \sum_{n=1}^N \left\{ \varepsilon a_n^\dagger a_n + V(a_{n+1}^\dagger a_n + a_n^\dagger a_{n+1}) \right\}, \quad H_b = E \sum_{n=1}^N b_n^\dagger b_n, \quad H_{int} = U \sum_{n=1}^N (a_n^\dagger b_n + b_n^\dagger a_n). \quad (2)$$

ここで、添え字 n は量子点のサイト番号をあらわし、 a_n (a_n^\dagger) と b_n (b_n^\dagger) はそれぞれ n 番目の量子点の局在光子と励起子の消滅 (生成) 演算子である。量子点を円環状に配置したことから周期的境界条件をとる。局在光子の演算子 a_n (a_n^\dagger) はボソンの交換関係に従うとする。励起子の演算子は、一つのサイトに励起子が一つしかないとする、次のような交換関係を満たす。

$$[b_{n'}, b_n^\dagger] = \delta_{nn'}(1 - 2b_n^\dagger b_n). \quad (3)$$

励起子は異なるサイト間ではボソン、同一サイト内ではフェルミオンとして振る舞う。

この系の電気双極子に注目してそのダイナミクスを調べるために、2 準位系の電気双極子演算子を遷移双極子モーメント μ を用いて次のように定義する。

$$\mu_n(t) = \mu(b_n(t) + b_n^\dagger(t)) = \mu P_n(t). \quad (4)$$

更に、演算子 $P_n(t)$ と独立な演算子として次の 2 つを導入する。

$$V_n(t) = i(b_n(t) - b_n^\dagger(t)), \quad W_n(t) = b_n^\dagger(t)b_n(t) - b_n(t)b_n^\dagger(t). \quad (5)$$

ここで $W_n(t)$ は 2 準位間の粒子数の差を表している反転分布である。これら 3 つの演算子は単位演算子と合わせて 2 準位系の基底をなしており、ベクトル $(P_n(t), V_n(t), W_n(t))$ は原子の Bloch ベクトルに対応する。

(3) 式に従う励起子の系の Heisenberg 方程式は非線形になる。そこで Heisenberg 方程式を励起子と局在光子の演算子の期待値が分離可能という近似の下で数値的に解いてダイナミクスを調べる (これは両者の結合 U が弱いという近似である)。初期条件として、サイト 1 にのみ双極子を

用意し、局所的に励起した状態 $\langle P_n \rangle = \delta_{n1} \langle P_1 \rangle$ 、 $\langle V_n \rangle = 0$ をとる。更に、サイト 1 以外の全サイトは基底状態にあるとする。つまり $\langle W_n \rangle = -(1 - \delta_{n1})$ である。またサイト 1 は Bloch ベクトル (P_n, V_n, W_n) の大きさが 1 であるという制約から $\langle W_1 \rangle = 0$ とおいた。以上の初期条件の下に双極子分布の時間発展を数値計算した結果が図 2 である。この図から、サイト 1 にあった双極子は相

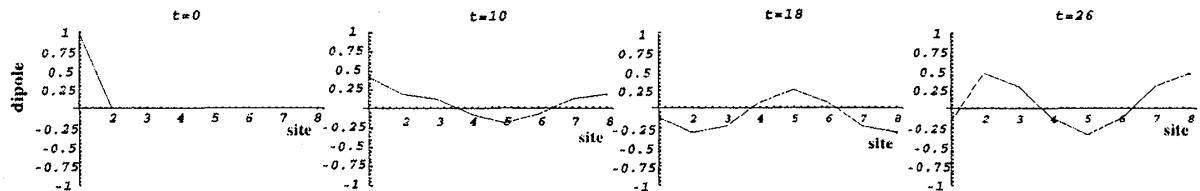


図 2: 双極子の分布の時間発展: 各図の横軸はサイト番号、縦軸は双極子の大きさを表す。初期時刻に 1 以外の全てのサイトを基底状態にとった。

向かいのサイト 5 に移動し、サイト 4, 5, 6 の符号が他のサイトと逆であることが分かる。この要因を理解するために任意のサイト n での双極子の時間発展の 2 次摂動解を求めると

$$\langle P_n(t) \rangle = \delta_{n1} \left(\cos \Omega t - g^2 \sum_j c_j(t) P_{nj}^2 \right) \langle P_1 \rangle + (1 - \delta_{n1}) g^2 \sum_j c_j(t) P_{nj} P_{1j} \langle P_1 \rangle \langle W_n \rangle \quad (6)$$

となる。ここで時間依存性が明示されていない演算子は $t = 0$ での演算子である。また、 H_u を対角化する直行列の要素を P_{ij} 、固有値を $\hbar \lambda$ とし、 $E = \hbar \Omega$ 、 $U = \hbar g$ と置いた。更に、 $c_j(t)$ は

$$\Gamma_j(t) = \frac{e^{-i\Omega t} - e^{-i\lambda_j t}}{(\Omega - \lambda_j)^2} + \frac{ite^{-i\Omega t}}{\Omega - \lambda_j} \equiv c_j(t) + id_j(t) \quad (7)$$

の実部である。(6) 式から、サイト 1 以外の双極子の時間発展の項には、初期条件が $\langle W_n \rangle \langle P_1 \rangle$ という形で寄与している。これは、あるサイト $n (n \neq 1)$ において初期の反転分布 $\langle W_n \rangle$ の符号を変えると、任意の時刻でサイト n の双極子の向きを反転できることを意味している。そこで、サイト 4, 5, 6 の符号が他のサイトと逆であることに着目し、新しい初期条件としてこれらのサイトでの初期条件 $\langle W_n \rangle$ を逆符号にする。その結果が次の図 3 である。結果をみると、(4,5,6) のサイトの

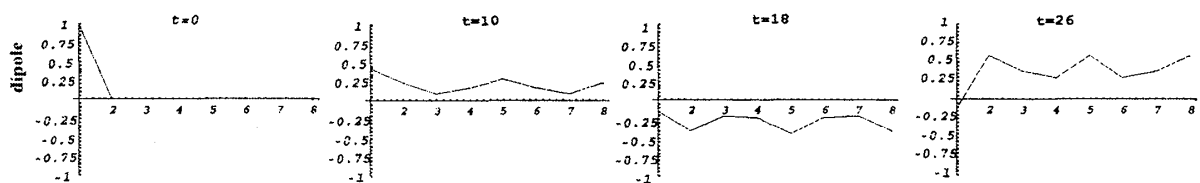


図 3: 双極子の分布の時間発展: 各図の横軸はサイト番号、縦軸は双極子の大きさを表す。初期時刻に (4,5,6) のサイトのみを励起状態にとった。

双極子が反転し、全双極子は振幅は異なるが同じ符号になり、同位相でコヒーレントに振動していることが分かる。即ち、初期に局所的に励起した状態から、コヒーレントに振動する状態に移行しているの、電気双極子が光近接場相互作用により秩序化したと見ることが出来る。従って、この系においては、初期の反転分布をうまく選ぶことで、常に双極子の秩序化が出来ることが分

かる。また、数値計算で用いた近似した Heisenberg 方程式は、その結果である図 2.3 と同様の結果が 2 次摂動解 (6) から得られることから、摂動の 2 次の範囲で有効であることが分かる。

この双極子秩序化の仕組みを理解するために有効 Hamiltonian を導入する。(1) 式の Hamiltonian を対角化可能な非摂動項 $H_0 = H_a + H_b$ と相互作用項 H_{int} に分け、ユニタリー変換 [3] により相互作用項の 1 次の項を消去すると、Hamiltonian \bar{H} が得られる。これは媒介する局在光子の寄与を繰り込んだ励起子-励起子相互作用を記述している。 \bar{H} に対して局在光子の真空での期待値をとると局在光子の自由度を消去できる。それを \bar{H} と置き、Bloch ベクトルで書き直すと、

$$\bar{H} = \hbar \sum_n (\Omega + \Delta\Omega_{nn}) \frac{1 + W_n}{2} + \frac{\hbar}{4} \sum_n \sum_{m \neq n} \Delta\Omega_{nm} (P_n P_m + V_n V_m). \quad (8)$$

となる。ここで次のような置き換えを使った。

$$\Delta\Omega_{nm} = \sum_j \frac{g^2}{\Omega - \lambda_j} P_{nj} P_{mj}. \quad (9)$$

(8) 式の有効 Hamiltonian で駆動される双極子演算子の時間発展の 2 次摂動解を、初期にサイト 1 にのみ双極子が存在する局所的な初期条件の下で求めると、

$$P_n(t) = \delta_{n1} P_1 \cos(\Omega + \Delta\Omega_n)t + (1 - \delta_{n1}) \Delta\Omega_{1n} t P_1 W_n \sin \Omega t \quad (10)$$

となる。この式から、初期時刻の反転分布を一様にした場合には、サイト n の双極子の向きは係数 $\Delta\Omega_{1n}$ の符号で決まることが分かる。そこでこの係数を調べて系を分類する。係数 $\Delta\Omega_{1n}$ はパラメーター E, ε, V によって決まるが、その符号により、すべての系は次のような 4 つのグループに分けることが出来る。

1. $\Delta\Omega_{1n} = (-, -, -, +, +, +, -, -), (+, +, +, -, -, -, +, +)$
2. $\Delta\Omega_{1n} = (-, +, -, -, +, -, -, +), (+, -, +, +, -, +, +, -)$
3. $\Delta\Omega_{1n} = (-, -, -, -, -, -, -, -), (+, +, +, +, +, +, +, +)$
4. $\Delta\Omega_{1n} = (-, +, -, +, -, +, -, +), (+, -, +, -, +, -, +, -)$

これらは n が 1 から 8 をとった時の $\Delta\Omega_{1n}$ の符号を示したものである。例えば図 2 で示した系はサイト 4,5,6 の双極子モーメントの符号が異なるので上の分類でグループ 1 に入る。また、グループ 3 と 4 が特に興味深く、グループ 3 は強磁性体に対応し、グループ 4 は反強磁性体に対応する。何故ならば、グループ 3 の系は初期時刻の反転分布が一様な時に双極子が秩序化することが予測されるからである。そこで実際に、先程用いた近似した Heisenberg 方程式の数値解によりグループ 3 の系のダイナミクスを調べる。図 4 を見ると有効 Hamiltonian から推測されるように双極子が全て揃った秩序状態が実現することが分かる。

電気双極子が秩序化した状態では、系全体としてはサイト数 N オーダーの合成電気双極子が生じていることになる。振動する電気双極子はその双極子の大きさの 2 乗に比例する強度の伝搬光を放射することから、秩序化した状態における放射は、その時の各双極子の振幅の大きさにもよるが、かなり強いものと期待できる。そこでこの系の示す放射強度を調べてみる。図 5 にこの系

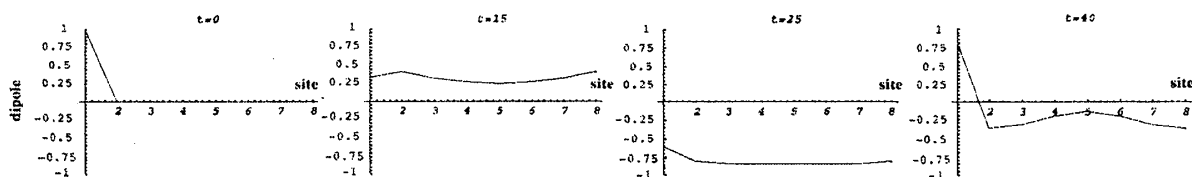


図 4: グループ 3 に属する系の双極子の分布の時間発展: 各図の横軸はサイト番号、縦軸は双極子の大きさを表す。反転分布はサイト 1 以外をすべて励起した初期条件をとった。

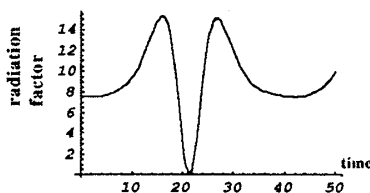


図 5: グループ 3 に属する系の放射強度: 横軸は時刻、縦軸は放射強度を表す。放射強度の最大値は超放射状態の時 20 となる。

の放射強度の時間発展を示した。これによると放射強度が 15 という値を示しているが、超放射状態 [4] の場合が 20 である系を考えているので、それに匹敵する大きさの放射強度が実現していることが分かる。このことから、この秩序化状態は超放射状態に近いと考えられる [5]。

本稿では近接場光を非伝搬光として特徴づけ、近接場光を介して相互作用する 2 準位系を、(1) 式の Hamiltonian で記述される系としてモデル化し、そのダイナミクスを調べた。初期の反転分布を局所的に操作することによって系の双極子を秩序化できることが分かり、励起子のエネルギー E や局在光子のパラメータ ε, V を選ぶと、磁性体に例えると強磁性体に対応するような、電気双極子モーメントが秩序化する系が存在することが分かった。そしてその時の放射強度は超放射状態に近い大きな値を示すことが分かった。

従来、双極子相互作用で放射場と結合する多数の 2 準位系は、初期条件として完全反転分布状態を設定すると、パルスとして巨大放射（超放射）を起こすことが知られている [6]。今後、この現象との違いを明確にし、伝搬光に対する近接場光の特質を明らかにしたい。より現実的な議論のためには、この系を放射場と結合させ散逸系にして放射を議論する必要がある。

この研究を始める上で議論を下さった山梨大学の堀 裕和、坂野 斎、大西 直毅先生に感謝致します。また有効 Hamiltonian の方法に関して助言を頂いたお茶の水大学の柴田 文明先生、発表の場を与えて下さった筑波大学の有光 敏彦先生に感謝致します。

参考文献

- [1] M. Ohtsu (Ed.), Near-Field Nano/Atom Optics and Technology (Springer-Verlag, Tokyo, 1998).
- [2] T. Kawazoe, K. Kobayashi, J. Lim, Y. Narita, and M. Ohtsu, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), 067404.
- [3] C. Kittel, Quantum theory of solids, 2nd revised printing (John Wiley & Sons, NY, 1987) p.148.
- [4] R. H. Dicke, Phys. Rev. **93** (1954), 99.
- [5] A. Shojiguchi, K. Kobayashi, K. Kitahara, S. Sangu and M. Ohtsu, in preparation.
- [6] N. Rehler and J. Eberly, Phys. Rev. A **3** (1971), 1735.