

# ドレスト光子の高励起状態と非対称性

三宮 俊(株式会社リコー)

E-mail: suguru.sangu@jp.ricoh.com

ドレスト光子が引き起こす興味深い現象の一つとして、ドレスト光子-フォノン(DPP)援用アニールと呼ばれる現象(デバイス作製方法)が知られている[1]。シリコンのような間接遷移型半導体にドーパント(ボロン)を熱拡散させる工程を光照射下で行うと、ドーパントが自律的に位置固定される。この現象は、2個のドーパントが原子スケールの所定距離に収まったところで熱エネルギーからDPPを介した光エネルギーへの変換を経て、系外に誘導放出されることでドーパントの熱拡散が抑制するためと解釈されている。光エネルギーを誘導放出する状態に切り替わる機構において、ドレスト光子の局在が重要な役割を演じるものと推察される。

ところで、上述のようにドーパント配置(欠陥位置)が光エネルギー散逸の起点となると考えた場合、この欠陥位置にドレスト光子が次々と流れ込むこととなり、結果、ドレスト光子の個数が増大するはずである。我々はこれまで、量子密度行列を用いた数値シミュレーション手法を開発し、光エネルギーの散逸を含む系におけるドレスト光子のダイナミクスの議論を進めてきた。開発初期において、あらかじめ用意したドレスト光子の有限個のノードのうち1つのノードのみにドレスト光子が励起された弱励起状態を扱い、ドレスト光子の局在性やエネルギー移動の高速性を説明してきた。しかし、DPP援用アニールを表現する場合、外部に光エネルギーを放出するよりも速く、ドレスト光子が欠陥位置に流れ込む可能性があり、人為的に系内のドレスト光子の個数を制限するモデルはその成立性が怪しくなってくる。そこで、数値計算はタイトになるものの、系内に含まれるドレスト光子の個数制限を取り払い全ての取り得るドレスト光子の基底状態を用いるように数値シミュレーションを拡張したところ、何やら興味深いドレスト光子の占有状態の出現が明らかとなった[2]。例えば、6ノードからなる一次元チェーン構造を仮定した場合、系内にドレスト光子を3個含む基底状態の占有確率が選択的に高まり、また、2つの欠陥ノードの間にその他の背景ノードを1つ介した「1つ飛ばしの系」が内部にドレスト光子を多く蓄える最良構成となる。欠陥位置が最近接する場合ではなく、1つ飛ばしの構造が現れる点が興味深く、これは実験事実[1]にも定性的に対応している。

ドレスト光子を3個含む基底状態の占有確率が増大する理由であるが、これには幾つかの物理的要因があると考えている。一つは、ドレスト光子の個数ごとに見た基底状態の数の影響である。上述の例の6ノードの場合、基底状態の数は ${}_6C_m = \{1, 6, 15, 20, 15, 6, 1\}$  ( $m = 0, 1, \dots, 6$ )となり、ドレスト光子の個数 $m = 3$ の場合に最多の20個の基底状態が存在しており、ドレスト光子を蓄える器の大きさが伺える。そして、二つ目として、ドレスト光子3個を含む基底状態の寿命が長くなるメカニズムがあれば、励起の反転分布状態が保持され、誘導放出による光エネルギーの散逸が顕著になると推察される。冒頭に述べた誘導放出をともなう欠陥位置固定のメカニズムについても、このシナリオに基づいて説明できるのではないかと著者は考えている。

ここで新たに生まれる疑問は、この主要な基底状態において寿命が長くなる基本原理は如何なるものかという点である。この理解のために、ドレスト光子の空間分布に着目し、以前より提案している基底変換の方法の応用を試みた。基底変換の方法は、ドレスト光子の外部への散逸が顕著に表現されるように、量子密度行列の定常解をドレスト光子の個数ごとにブロック化し、各ドレスト光子個

数に対応したブロックを対角化するようにユニタリ行列を定義するものである。つまり、新しく得られる基底状態は、これまで使用していたノードに束縛されたドレスト光子の重み付け線形和として記述される。このように表現された基底状態であるが、著者にとって何やら見覚えのあるもので、それは、Dicke の超放射を表わす基底状態である[3]。ドレスト光子を介在する系において超放射現象は、量子ドット(ノード)を一次元チェーン構造や周回チェーン構造をもつドレスト光子結合系で先行して議論されており、パルス発光などの特殊な光放射を引き起こすことが小路口らの論文で報告されている[4]。Dicke の超放射との類似性を 3 ノードからなる系で説明すると、ノードごとの基底状態( $g$ )および励起状態( $e$ )をブラ・ベクトルで表現すると、完全反転分布からの光子の自然放出は、 $|e, e, e\rangle \rightarrow (|e, e, g\rangle + |e, g, e\rangle + |g, e, e\rangle)/\sqrt{3} \rightarrow (|e, g, g\rangle + |g, e, g\rangle + |g, g, e\rangle)/\sqrt{3} \rightarrow |g, g, g\rangle$  のような経路を辿ることになる。このとき、独立した 1 ノードの緩和定数を $\gamma$ と表わすと、3 ノード系の遷移確率は $3\gamma \rightarrow 4\gamma \rightarrow 3\gamma$ のように変化し、完全反転分布からの緩和が進むにつれ緩和が「加速」し、再び減速する様子が伺える。つまり、独立した原子系における指数関数にしたがう緩和曲線から、共鳴的に強く結合した原子系ではパルスの発光が観察されることになる。ここで留意すべき一つは、中間の励起状態が励起ノード数の等しい基底状態の線形結合で記述されていることであり、先述した著者らのモデルの重み付き線形和と類似した表記となっている点である。Dicke の超放射の意味するところは全てのノードにおいて電気双極子が同相となり、強い発光を示すということであるが、別の視点で見ると、パリティ選択制があり、(上には記載していない)空間分布が反対称となる基底状態への遷移が禁制されることで、緩和経路に選択制が生じることが緩和の加速を促しているとも言える。一方、著者らが定義した基底状態に含まれる重み係数には負値も虚数値も含まれている。ここで、欠陥構造を含むドレスト光子の系において推測される主要な基底状態の長寿命化(緩和の「減速」)の起源が、空間的に反対称性を有する基底状態への遷移の許容化にあり、欠陥配置さらには系全体の非対称性がこれを引き起こしているという推察に至る。

以上は、かなり雑な推論であり、より詳細な議論は必須であるが、それは今後の課題に預けるとして、上述のような現象の定性的理解が成り立つならば、幾分面白そうな応用展開が見えてくるように思える。ドレスト光子を系内に溜め込む機構があり、それを系のもつ非対称性により制御できる可能性があるならば、所望のエネルギー準位におけるドレスト光子の存在確率を高め、反転分布に類する励起状態を形成することができるかもしれない。つまり、共振器を持たない構造で効率の良いレーザー発振が可能となるかもしれない。冒頭で述べた欠陥配置の自律的形成についても、何かしらの人為的な制御を介在させることができるようになるかもしれない。本パラグラフの考察はかなり希望的推論であるが、ドレスト光子の高励起状態とナノ物質系ないしその欠陥配置による非対称性との関連性を理解することは、物理現象の解釈に留まらず、新たな光学機能の創出につながる可能性を感じさせる。今後、さらなる検討を進めていく所存である。

## 参考文献

- [1] M. Ohtsu, *Silicon Light-Emitting Diodes and Lasers* (Springer Cham, 2016).
- [2] 三宮・他, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会 (2023) 16a-A201-5.
- [3] M. Gross and S. Haroche, *Phys. Rep.* 93 (1982) 301.
- [4] A. Shojiguchi, et.al., “A phenomenological description of optical near fields and optical properties of N two-level systems interacting with optical near fields”, M. Ohtsu (ed.): *Progress in Nano Electro-Optics III* (Springer-Verlag, Berlin 2003) 145-220.