

## 複数の励起子からの対消滅によるアンチバンチングに対する理論

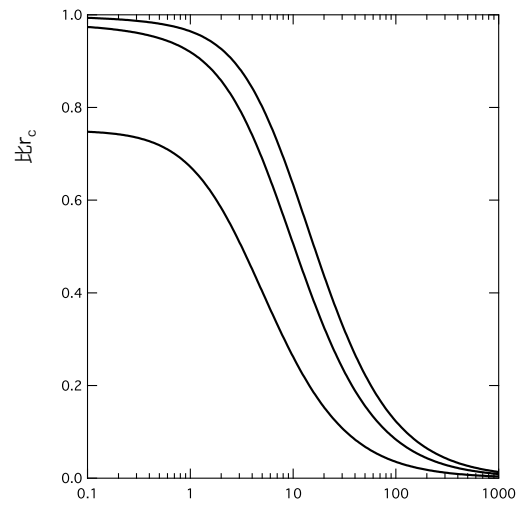
産業技術総合研究所、 ○ 関和彦、立矢正典

[序] 量子情報および量子通信技術の進歩により、単一光子源に対する研究が盛んに行われるようになってきている。最近では、複数の色素を含んだ dendrimer、有機結晶や複数の励起サイトを持った共役高分子を用いた研究が行われている。多数の励起サイトを持っていることから効率良く光子を吸収し単一光子を発生することができると期待される。ある時間間隔にたかだか単一の光子が発生している事をアンチバンチングと呼ぶ。複数の励起サイトを持った分子がアンチバンチングを示すには、励起子間の対消滅が励起子の発光に比較して効率良く起こる必要がある。本研究の目的は効率良く単一光子を発生する条件を理論的に求めることである。

[結果] アンチバンチング計測では同一パルスにより発生した光子の相関と異なるパルスにより発生した光子の相関が計測されていると解釈できる。パルス励起により  $m$  個の光子がサンプルから放出された場合、同一パルスで発生した光子はそれ自身とは相関を持たないので相関は  $m(m-1)$  となる。一方、異なるパルスで発生した光子の相関は  $m^2$  である。観測量はこれらの比であり  $r_c = 1 - 1/m$  である。複数の励起サイトを持った共役高分子からの発光では励起子対消滅と励起子の単分子的な失活が競合し、発生する光子数は平均  $\langle m \rangle$  で分布している。この分布はマンデル変数  $Q = -1 + (\langle m^2 \rangle - \langle m \rangle^2) / \langle m \rangle$  で特徴付けられる。マンデル変数を用いると比  $r_c$  は  $r_c = 1 + Q / \langle m \rangle$  となる。どのパルス励起でも厳密に  $m$  個の光子が発生している場合には  $m^2$  の平均  $\langle m^2 \rangle$  は  $m^2$ 、平均  $\langle m \rangle$  は  $m$  となり  $Q = -1$ 、そして先程の  $r_c = 1 - 1/m$  を再現する。厳密に一個の光子が発生する場合は比  $r_c$  はゼロとなり、発生する光子数  $m$  の増加に従い 1 に近づく。一方ゆらぎが大きく平均  $\langle m \rangle$  のポアソン分布となる場合には  $Q = 0$  であり、平均光子数  $\langle m \rangle$  の値に関わらず比  $r_c$  は常に 1 である。以下で示す様に励起子対消滅と励起子の単分子的な失活が競合する場合には  $-1 < Q < 0$  (サブポアソン分布) となる。この場合には、平均光子数が 1 の場合でも比  $r_c$  はゼロとはならない。従って、比  $r_c$  の平均光子数依

存性は厳密に  $m$  個の光子を発生している場合に比較して弱くなる。言い換えると、励起毎に発生する光子数がゆらぐ場合には比  $r_c$  が厳密にゼロでなくても単一光子を発生している可能性がある。

共役高分子がパルス励起され複数の励起子が生成すると、励起子対消滅と単分子的な失活が競合する。単分子的な失活では発光と非発光の両方の過程を考慮する。比  $r_c$  は対消滅の速度と単分子的な失活の速度の比のみに依存し、単分子的な非発光と発光の速度の比には依存しない。単分子的な失活の速度は発光速度と非発光速度の和として表される。右図によると、励起子対消滅の速度が同じであれば、単分子的な非発光の速度が発光速度に対して大きくなる程比  $r_c$  は増大する。単分子的な非発光の速度が大きくなると発光効率は当然低下するが比  $r_c$  は増大する。この結果は直感と反するかも知れないが厳密な結果であり、比  $r_c$  は発光光子数のゆらぎに関係した量であるためである。



対消滅の速度と単分子的な失活の速度の比

図 1: 縦軸は同一パルスにより発生した光子の相関と異なるパルスにより発生した光子の相関の比、横軸は対消滅の速度と単分子的な失活の速度の比を表す。実線は下から初期に生成した励起子の数が 4、50、500 に対応する。

**[結論]** 対消滅と単分子過程が競合する場合に単一光子が発生する理論的な条件を求めた。その結果、直感とは反するかも知れないが、励起子対消滅の速度が同じであれば、単分子的な非発光の速度が発光速度に対して大きくなる程比  $r_c$  は増大することを示した。この結果は、最近の実験結果と定性的に一致している。1)

1) S. Masuo, T. Tanaka, S. Machida, and A. Itaya, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 233114 (2008).