

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 24 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25620001

研究課題名(和文)量子光を用いた1分子光吸収スペクトル測定の実現

研究課題名(英文) Realization of absorption spectrum measurement for a single molecule using quantum light

研究代表者

岡本 亮 (Okamoto, Ryo)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：10435951

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、1分子の光吸収スペクトル測定の実現を目指し、量子的な光を用いた計測法に着目、研究を進めた。まず、量子光源を構築、量子光のファイバーへの高いカップリング効率を実現した。また、古典/量子ハイブリッド系の実現に向けて、吸収顕微鏡を構築、非蛍光分子の光吸収検出に成功した。さらに、光子検出器の検出効率の影響を受けない新しい手法の提案に至った。以上のように、1分子の光吸収スペクトル測定の実現に向けた様々な研究成果を得ており、今後は、構築した量子光源と吸収顕微鏡を組み合わせることでさらに研究を発展させる予定である。

研究成果の概要(英文)：Toward the realization of absorption spectrum measurement for a single molecule, we studied on the spectrum measurement method using quantum light. First, we constructed the quantum light source and realized the high coupling efficiency to the optical fiber. Then, we constructed an absorption microscope for classical/quantum hybrid system and successfully observed non-fluorescent molecules. We also found a new method which can remove the effect of the non-unity detection efficiency of photon detectors. These results are important steps for the realization of the absorption spectrum measurement for a single molecule using quantum light. We will further expand this study by combining our quantum light source and absorption microscope.

研究分野：量子光学、量子計測、量子計算

キーワード：吸収分光測定 量子光学

## 1. 研究開始当初の背景

単一分子分光法はアンサンブル平均に隠れた1分子の持つ物性情報を取り出す事が可能であり、物質科学から生命科学の広範な領域に極めて大きな進展をもたらしてきた。一方、現在の単一分子分光法は蛍光検出を用いるために1分子の光吸収特性や非蛍光分子の観察が不可能であった。1分子の光吸収強度は室温で $\sim 10^{-6}$ と極めて小さいため、ノイズに隠れて観測する事が通常不可能であるが、最近、優れたノイズ除去技術を駆使する事で、単一分子の吸収が室温でも観測可能である事が示された (Celebrano et al. Nat. Photonics 5, 95 (2011))。しかしながら、レーザー光由来の量子ゆらぎによりこれ以上の信号雑音比の向上は不可能であり、1分子の光吸収スペクトル測定は実現されていなかった。従って、1分子光吸収スペクトル測定を可能にするには、全く異なるアプローチにより光源の量子ゆらぎを克服する必要がある。

上記の課題について、量子光を用いた精密計測技術を有する研究代表者(岡本)(例: Science 323, 483 (2009))と単一分子分光技術を有する研究分担者(藤原)(例: Nano Lett. 11 4362 (2011))が議論を行い、量子光制御技術を「光強度の量子ゆらぎ抑制」に対して用いることで、1分子光吸収スペクトル測定法を切り拓くという本課題の着想に至った。

量子光を用いた光吸収スペクトル測定では、古典的なシステムを用いた場合に対する信号雑音比の向上率は、吸収が小さければ小さいほどより大きくなる。従って、光吸収スペクトル測定を行った際、吸収が小さくなっていく裾の部分でよりその効果を発揮することとなり、測定帯域全体に渡って高いS/N比を保ったままそのスペクトルを明らかにすることができる。従って本研究課題は、吸収量の低下に応じてノイズ抑制効果が高くなるという新しい原理に基づく光吸収スペクトル測定を提案するものである。

## 2. 研究の目的

量子光源を利用した新しい分光装置を開発することで光源由来の量子ゆらぎを取り除く。これにより、室温での1分子光吸収スペクトル測定に挑戦する。

上述の最先端1分子光吸収計測実験では、レーザーの強度ゆらぎの影響を最小にするために、「平衡光検出」という方法が用いられている。この方法では、レーザー光をビームスプリッターで分岐し、片方はサンプルに入射し、もう片方はその強度ゆらぎの参照光として用いる。それらの光はレーザーの強度ゆらぎに対して、同じだけ変化するため、その差分をとることでレーザーの強度ゆらぎの影響をほぼ0にすることができる。しかしながら、この方法でもレーザー光の量子ゆらぎ

については全く減少させることができない。そこで、本研究課題では、光子数の量子ゆらぎに相関がある光源を用いることでこの問題を解決する。量子相関の効果により、この量子光源は二つの光路で光子数が同じになる。そのため、光子数検出結果の差分をとると、光子レベルでその値は必ず0になる。従って、この量子光源を用いることで理想的には、光源由来のノイズを完全に除去することができるようになる。

## 3. 研究の方法

以下の3つの方法で研究を進めた。

### (1) 量子光源の構築と評価

量子光源として、非線形光学結晶にポンプ光を入射し、パラメトリック下方変換過程によって発生した光子対を用いた。検討の結果、ポンプレーザーには、中心波長351nmのND:YLFレーザーを用いた。ポンプレーザー光の中心波長が351nmであるため、パラメトリック下方変換によって発生する量子光の中心波長は702nmになる。この波長は、本研究の原理検証実験で用いる予定の量子ドットの吸収スペクトルの測定に適している。また、本レーザーはナノ秒のパルスレーザーであるため、量子光の発生強度を高くすることができる。さらに、発生した量子光の時間領域が多モード化するために、サーマルノイズ成分を除去することが可能である。発生した量子光を光ファイバーにカップルさせ、その収集効率を評価した。

### (2) 吸収顕微鏡の構築

透過型の光吸収顕微鏡を構築し、1分子の光吸収検出を目指した研究を行った。ただ、色素1分子の場合、褪色や明滅が観測される。そこで装置の動作検証には、より化学的に安定な金ナノ粒子を標準試料として用いた。光吸収顕微鏡としては、レーザー光源を用いた水平型透過顕微鏡を構築した。また、光吸収検出にはバランス型フォトダイオードを用いた。

### (3) 理論的な検討、及び新しい手法の提案

本提案手法をモデル化し、理論的な検討を行った。実験系の各光路における光損失や、測定試料の吸収量をパラメータとして変化させながら、量子的な手法と、古典的な手法での信号雑音比を比較した。具体的には、光源から発生した光子に量子的な相関がある場合と、ない場合を計算した。それぞれの理論的な検討の結果、本提案の手法では、量子光源による恩恵が、光学素子や、検出器などによる損失によって減少してしまうことが分かった。そこで、研究計画にはなかったが、それらを克服することが可能な新しい手法の探索を行った。

#### 4. 研究成果

本研究において、下記の成果を得た。

##### (1) 量子光源の構築と評価

量子光源を構築し、本研究に適した条件を模索した。その結果、TYPE の位相整合条件を用いることで、空間的な観測領域の選択のみで量子光の波長域 (FWHM) を約 2nm 程度まで狭めることが可能になったことが分かった。これにより、干渉フィルタが不要になるため、より高い効率で光子を収集することが可能になる。実際に、生成した量子光のファイバーへのカップリング効率は約 60%と高い値であった。また、吸収スペクトル測定を行うには、量子光の発生波長を変化させなければならない。パラメトリック下方変換過程では、結晶角度を変化させることで、位相整合条件が変化し、中心波長がシフトする。そこで、この効果を実際に分光に用いることができるかを確認するために、結晶角度を走査しながら、ファイバーにカップル後の量子光を分光器で測定した。実験の結果、上記波長幅を保ったまま中心波長を変化させることができたことを確認した(図 1)。

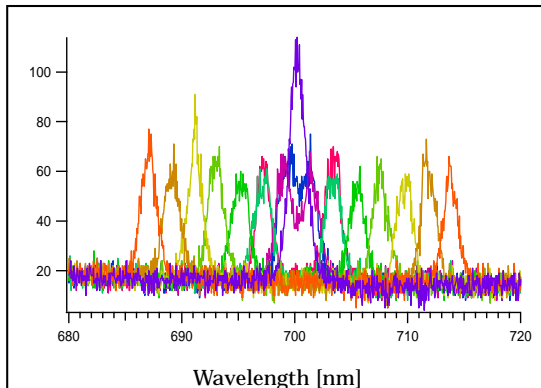


図 1. 結晶角度を 0.1 度ずつ変化させていった時の、光ファイバーカップル後の量子光のスペクトル分布。

##### (2) 吸収顕微鏡の構築

超高感度に試料の光吸収を検出できる透過型顕微鏡を構築した。図 2(a)に構築した装置の概略図を示した。本装置は、図に示した

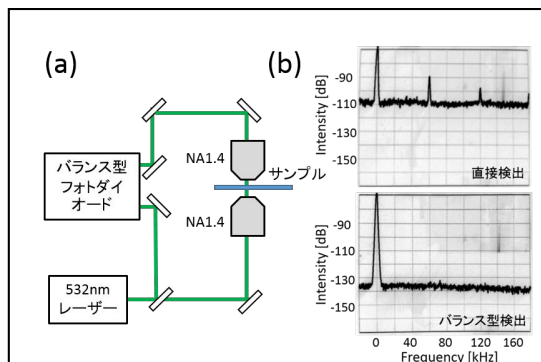


図 2: (a)装置の概略図。(b)検出器出力のノイズスペクトル

ように、水平型透過顕微鏡であり、開口数 1.4 の対物レンズを付き合わせた構造を有する。波長 532nm のレーザーを 2 分割し、参照光とする。信号光は対物レンズを通り、それぞれをバランス型フォトダイオードに入力した。まず、構築した装置の性能を評価するために、サンプルを用いずにノイズスペクトルを評価した。図 2(b)にフォトダイオードからの出力のノイズスペクトルを示した。バランス型検出ではノイズフロアが -138 [dB/ Hz] に達した。この時のショットノイズは -143 [dB/ Hz] であり、ほぼショットノイズ限界までのノイズ低減化が実現できた。この顕微鏡で 532nm に吸収があり退色等のない標準試料として 10 nm の単一金ナノ粒子の検出を行った。図 3(a)は単一金ナノ粒子の散乱光画像で、(b)はその光吸収検出である。散乱光画像で、中心付近に見える単一金ナノ粒子が、同じように光吸収検出でも捉えられている事が分かる。

今後積算数を増やして SN 比を向上させ、2 つの対物レンズの焦点距離を独立して制御するなどの工夫を入れる事で、十分、色素一分子の光吸収が捉えられると考えられる。その後、構築した量子光源を本装置に組み込んでいく予定である。

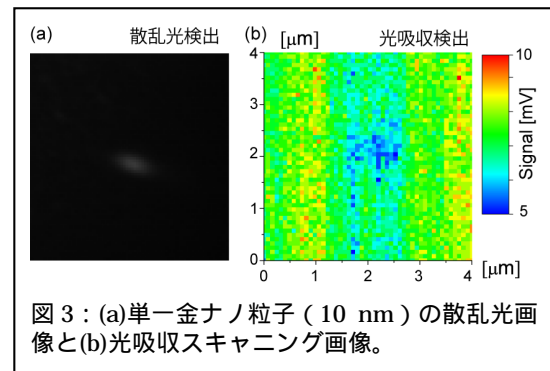


図 3: (a)単一金ナノ粒子 (10 nm) の散乱光画像と(b)光吸収スキャン画像。

##### (3) 理論的な検討、及び新しい手法の提案

本研究の手法の理論的なモデルを構築し、様々な実験パラメータの影響を解析した。具体的には、発生した量子光が伝搬するそれぞれの光路の損失、二つの検出器のそれぞれの損失、測定試料の吸収量を考慮した。その結果、光学系の損失が、(従来の)古典的な手法に対する、量子的な手法の信号雑音比の向上率を減少させることが分かった。上記の量子光源の構築の結果、光子の損失の中で最も大きいのは、光子検出器の検出効率によるものであることが分かっていった。そこで、光子検出器の損失の影響を受けない新しい手法を考案、計算の結果、従来法に比べて最大 10 倍の信号雑音比の向上が得られることが分かった。現在、この新手法の提案とその計算結果について成果としてまとめているところである。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計3件)

1. Masazumi Fujiwara, Hong-Quan Zhao, Tetsuya Noda, Kazuhiro Ikeda, Hitoshi Sumiya, and Shigeki Takeuchi, "Ultrathin fiber-taper coupling with nitrogen vacancy centers in nanodiamonds at cryogenic temperatures", Opt. Lett. **40**, 5702-5705 (2015).

2. Andreas. W. Schell, Hideaki Takashima, Shunya Kamioka, Yasuko Oe, Masazumi Fujiwara, Oliver Benson, and Shigeki Takeuchi, "Highly Efficient Coupling of Nanolight Emitters to a Ultra-Wide Tunable Nano Fibre Cavity", Sci. Reports **5**, 9619 (2015).

3. Mohamed Almokhtar, Masazumi Fujiwara, Hideaki Takashima, and Shigeki Takeuchi, "Numerical simulations of nanodiamond nitrogen-vacancy centers coupled with tapered optical fibers as hybrid quantum nanophotonic devices", Opt. Express **22**, 20045-20059 (2014).

〔学会発表〕(計1件)

岡本 亮、竹内繁樹、「量子もつれ光を用いた標準量子限界を超える光位相計測技術」、2014年電子情報通信学会 ソサエティ大会、徳島大学、徳島、2014年9月25日

〔図書〕(計2件)

1. 岡本 亮、岡野真之、竹内繁樹、O plus E、「量子もつれ光の光計測への応用」、アドコム・メディア社、2015年9月号

2. 岡本 亮、竹内繁樹、光学、「量子もつれ光子を用いた光位相計測技術」、応用物理学会分科会日本光学会、2013年42巻、500-505

〔その他〕

研究室ホームページ：

<http://qip.kuee.kyoto-u.ac.jp/index.htm>

個人ホームページ：

[http://researchmap.jp/qi\\_w-a/](http://researchmap.jp/qi_w-a/)

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

岡本 亮 (OKAMOTO, Ryo)  
京都大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号：10435951

### (2)研究分担者

藤原 正澄 (FUJIWARA, Masazumi)  
関西学院大学・理工学部・助教  
研究者番号：30540190

### (3)連携研究者

なし