

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04692

研究課題名(和文) ナノアンテナ構造を用いた時空間制御された紫外域周波数もつれパルス生成の理論

研究課題名(英文) Theory of generation of spectrally-shaped broadband ultraviolet frequency-entangled photons using nanoantenna structure

研究代表者

岡 寿樹 (OKA, Hisaki)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：00508806

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：量子もつれ光は、量子情報通信の担い手として有名であるが、近年、この量子もつれ光を分子科学へ応用する新しい研究が展開されつつある。分子科学への応用においては、従来の量子もつれ光とは異なる、分子励起に適した紫外域周波数もつれと、位相緩和回避のための超短パルス化が必要不可欠となる。本研究では、金属ナノ構造と微小共振器を利用した新しい量子もつれ光生成理論を提案し、ナノ構造のサイズや共振器構造の制御により、上記の条件を満たす量子もつれ光の生成が可能であることを示した。また最大量子もつれ度を実現する最適サイズの条件を明らかにし、更に量子もつれ光の量子相関の制御が可能であることも示した。

研究成果の概要(英文)：Entangled photons have been popularized by quantum information technologies. Recently, however, a new application of the entangled photons to molecular science is burgeoning and attracts much attention. For the application to molecular science, ultraviolet frequency-entangled and ultra-short pulsed entangled photons, different from the conventional ones, are required to efficiently excite a molecule and to effectively avoid relaxation effects. In this study, we propose a new method for generating entangled photons utilizing a nanometal-microcavity system. We show that an ultraviolet frequency-entangled and ultra-short pulsed entangled photons can be generated by properly controlling size of nanometal and structure of cavity. We also show that the optical size of nanometal realizing the maximal degree of entanglement exists and the quantum correlation between two photons can be controlled.

研究分野：量子光学理論

キーワード：量子もつれ ナノアンテナ 局在表面プラズモン 微小共振器 共振器QED効果

1. 研究開始当初の背景

量子もつれ光は、レーザー光には存在しない量子相関をもつことが知られており、量子テレポーションなど量子情報通信の担い手として有名である。しかしここ数年、量子もつれ光を励起光源とした分子科学への応用研究が展開されつつあり、実際、高効率2光子励起や振動電子状態の量子制御、蛍光相関分光法などが報告されている。とりわけ光化学反応は分子内振動電子状態の光励起状態が引き金となるため、振動電子状態制御が実現できれば光化学反応の能動的な制御も可能になる。

このような分子科学への応用においては、量子情報技術が要請してきた従来の通信波長域の偏光もつれ光ではなく、光化学反応誘起に適した紫外域における周波数もつれと、位相緩和の影響を回避するための超短パルス化が必要不可欠となる。しかし、量子光学分野の研究に目を向けると、その多くが量子情報通信技術への応用が主たる目的であるため、既存の量子もつれ光生成法には上述の条件を全て満たしているものではなく、分子科学への応用に適した量子もつれ光源は存在しないというのが現状であった。

一方、分子科学分野ではプラズモニクスと呼ばれる金属ナノ構造近傍に形成される表面プラズモンを光応答増強に応用する研究が盛んに行われている。光励起エネルギー移動やバイオセンサーへの応用がその中心であったが、ここ数年、このプラズモニクスを量子技術へ応用する「量子プラズモニクス」と呼ばれる研究分野が急速に発展している。最近、この量子プラズモニクスの研究において、金属ナノアンテナ構造を用いることで、紫外域周波数もつれ光の超短パルス化が可能であることが報告された。この生成法では、アンテナを構成するナノ構造間の相互作用が光子対に転写され量子もつれが形成される。AlやAgのような金属はプラズモン共鳴波長が紫外域にあり、また非常に速い発光寿命をもつため ~ 10 fs程度の量子もつれ超短パルスの生成が可能であり、励起光源としての応用が期待できる。

2. 研究の目的

金属ナノアンテナ構造を用いた生成法は、分子科学応用に求められる条件を満たしている一方、周波数もつれ度が低く、また光損失の影響が考慮されていないといった解決すべき問題点があった。これらはナノアンテナ形状やサイズ、微小共振器を用いた cavity QED 効果を利用することで大きく改善できる可能性がある。その一方で、共振器構造制御に関する自由度(Q値や mode 体積、弱結合 or 強結合)が加わるため、綿密なデバイスデザイン、更には生成された量子もつれ光の量子相関の制御も重要になる。

本研究の目的は、この cavity QED 効果によ

る量子もつれ度の増強の条件を明らかにすることであり、共振器構造制御に関する自由度(Q値や mode 体積、弱結合 or 強結合)が量子もつれ光生成にどのように影響するかを詳細に解析する。具体的には以下の2つ課題

(1) 最大周波数もつれ度の評価: Cavity QED パラメータ依存性

(2) 量子もつれ光の量子相関の制御

を設定する。アンテナ構造、構成するナノ構造のサイズ等を変化させ、効率的な光応答を実現するアンテナ構造を探求し、高い周波数もつれ度を実現するアンテナ構造および cavity QED パラメータを明らかにする。

3. 研究の方法

本研究では金属ナノ構造は簡単のためプラズモニクスの分野で一般的な球状型(半径 a)とロッド型の2つに限定する。量子もつれ光生成のための解析モデルとしては、量子光学理論で良く用いられる時空間パルス理論を用いる。

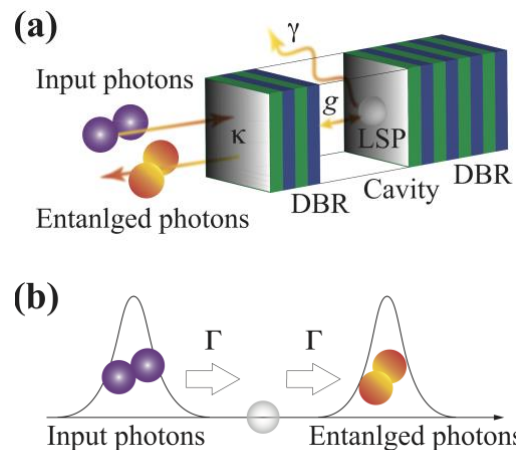


図1. 解析モデルの概念図。(a) 微小共振器-ナノアンテナ構造。(b) 自然放出因子 $\beta \approx 1$ での単純化された2光子入出力モデル。

図1に解析モデルを示す。微小共振器系としては、図1(a)のような DBR 共振器を考える。一般的な cavity QED パラメータは、共振器減衰率(共振器を通した光の入出力) $\kappa = 1/Q$ 、共振器内物質の自由空間への自然放出率 γ 、共振器場と物質の結合率 g で記述され、 $\kappa > g > \gamma$ を満たすとき弱結合領域と呼ばれる。弱結合における共振器の役割は、自然放出増強(パーセル効果)による超短パルス化と光子放出指向性を与えることであり、量子もつれ光のもつれ度やプロファイルに直接関わるパラメータは、主にナノアンテナ構造に起因する。特に高い自然放出因子 β をもつ微小共振器-ナノアンテナ系を実現できれば、共振器場以外からの光子の損失はほとんど無視でき、解析モデルは図1(b)に示すような簡単な入出力モデルに帰着することが可能になり、理論解析も極めて容易になる。これまでの実験結果によれば、一般的にプラズモンの γ は、サイ

ズが小さいほど小さくなることが知られているため、小さなアンテナ構造ほど弱結合の実現は容易になる。しかし一方で、サイズを小さくしすぎると、バンド間遷移の吸収による光損失の影響を無視できない。そのため問題は、高い β を実現する cavity QED パラメータ κ, g, γ および最適ナノアンテナサイズの選定に帰着される。自然放出因子 β は $\Gamma = g^2/\kappa$ として $\beta = \Gamma/(\Gamma + \gamma)$ で定義される。近年の微小共振器の技術の発展により g と κ はある程度の制御が可能である。問題は最適ナノアンテナサイズの選定である。

金属ナノ構造に対しては $a=25$ nm 程度の大きめのサイズから始め、実験結果を参照しつつ解析する。このサイズでは、パーセル増強因子の大きさにもよるが、数 fs 程度のパルス幅の量子もつれ光が期待でき、またバンド間遷移による吸収損失もほぼ無視できる。Cavity QED パラメータは、実際の実験で用いられているものを参照しながら解析する。

また量子もつれ光の生成を解析するため、入出力光子のダイナミクスは量子化された電磁場による解析が必須となり、古典電磁気学を前提とした慣習的な局在表面プラズモン (LSP) のモデルを直接応用することはできない。本研究では、局在表面プラズモン場を量子化する局在量子光学理論の構築する。

量子もつれ度の評価に関しては様々な測度が知られており、entanglement of formation や relative entropy of entanglement などが有名である。relative entropy of entanglement は混合状態におけるもつれ評価に用いられることが多いため、本研究では entanglement of formation を用いて出力光子波動関数の量子もつれ度を評価する。

以上の解析を行い、周波数もつれと量子相関制御を量子もつれ測度で評価しながら、最も高い周波数もつれ度、均一性と対称性の高い量子相関光子波動関数を実現するデバイスパラメータを明らかにする。

4. 研究成果

(1) 最大周波数もつれ度評価の結果

図 2(a) は異なる粒径サイズ a の銀ナノ粒子ナノアンテナに対して、入射パルス幅 σ を変化した時の出力光子の量子もつれ度 E をプロットしたものである。プラズモン共鳴波長は 385nm である。図 2(b) は入力 2 光子パルスの 2 光子結合スペクトル、図 2(c) はナノアンテナとの相互作用の結果生成された量子もつれ光の 2 光子結合スペクトルの一例である。図 2(a) から、どの粒径サイズにおいても、最も大きな量子もつれ度を実現する最適なパルス幅 σ が存在することが分かる。更に粒径サイズ a が大きくなるにつれ、最適パルス幅 σ は小さくなる。この結果から、粒径サイズが大きい方が入射パルス幅 σ が小さくなり (超短パルス化)、高い量子もつれ度をもつ量子もつれ光が生成されることが分かった。例えば、

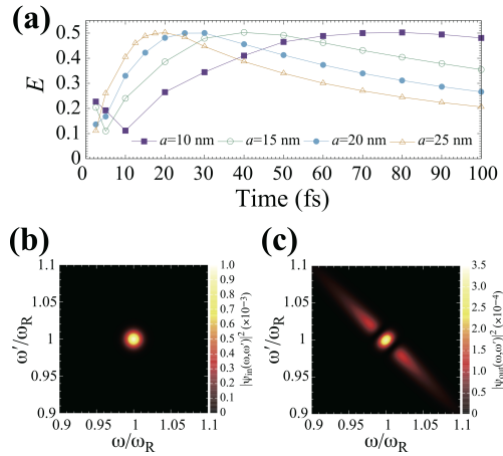


図 2. (a) 異なる粒径サイズの銀ナノ微粒子から得られる量子もつれ度 E の入射パルス幅 σ 依存性. (b) 入射光子の 2 光子結合スペクトル. (c) 出力光子の 2 光子結合スペクトル.

$a=25$ nm では、 $\Gamma = 153$ meV, $\gamma = 34$ meV で最大 $\beta = 0.82$ の自然放出因子が達成され、中心波長 385 nm, 20 fs 程度のパルス幅で、量子もつれ度 $E \approx 0.5$ の紫外域広帯域量子もつれ光の形成が可能になる。

図 3 は異なる粒径サイズ a のアルミニウムナノ粒子ナノアンテナに対して、同様の解析を行った結果である。プラズモン共鳴波長は 215 nm (深紫外領域) である。図 3(b) がナノアンテナとの相互作用の結果生成された量子もつれ光の 2 光子結合スペクトルの一例である。図 3(a) の結果から、銀粒子同様、どの粒径サイズにおいても、最も大きな量子もつれ度を実現する最適なパルス幅 σ が存在し、粒径サイズ a が大きくなると、最適パルス幅 σ は小さくなる。例えば $a=20$ nm では、 $\Gamma = 615$ meV, $\gamma = 308$ meV で最大 $\beta = 0.67$ の自然放出因子が達成され、中心波長 215 nm, 5 fs 程度のパルス幅で、量子もつれ度 $E \approx 0.5$ の深紫外域広帯域量子もつれ光の形成が可能になる。

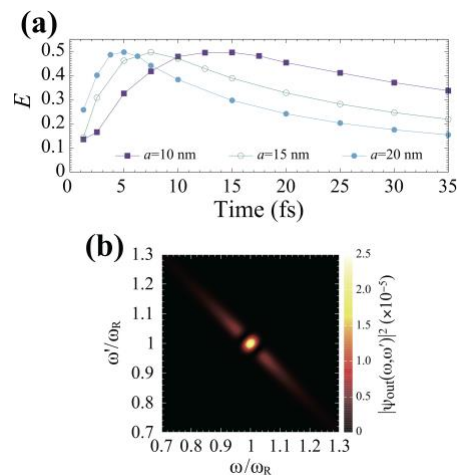


図 3. (a) 異なる粒径サイズのアルミニウムナノ微粒子から得られる量子もつれ度 E の入射パルス幅 σ 依存性. (b) 出力光子の 2 光子波動関数.

(2) 量子もつれ光の量子相関制御

一般的な量子もつれ光は、図2(c)や図3(b)に見られたような“負のエネルギー相関”を示すことが知られている。この負のエネルギー相関は、時間領域への Fourier 変換から、正の時間相関(2光子同時性)に対応し、これが量子もつれ光が2光子吸収などの2光子過程を増強するひとつの要因として知られている。

図4は、図2で解析した量子もつれ度 E の入射パルス σ 依存性において、 E の極小値を与える出力光子の2光子結合スペクトルを図示したものである。図4(a)と(b)いずれの結果からも分かるようにこれらの2光子結合スペクトルは“正のエネルギー相関”を示していることが分かる。これは時間領域において負の時間相関をもつ2光子対であり、2光子間に“時間遅延の量子相関”をもつことを意味する。この時間遅延をもつ量子もつれ光は difference beam (DB) state と呼ばれ、量子もつれの新しい応用が期待されている。このように本研究が提案する微小共振器-金属ナノ構造系を用いれば、共振器パラメータおよびナノ構造の制御により、新しい量子相関をもつ量子もつれ光の生成も可能である。量子もつれ度が $E \approx 0.1$ 程度と小さいため更なる条件の改善が必要であるが、量子相関制御の可能性を示せた点でも重要な結果といえる。

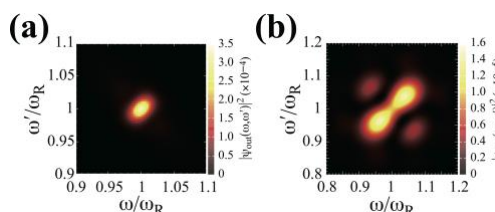


図4. 図3の $a=10$ nm から得られる出力2光子結合スペクトル: (a) $\sigma=10$ fs. (b) $\sigma=2.5$ fs.

(3) 可飽和局在表面プラズモンの量子化法

量子プラズモニクス分野では、表面プラズモンは一般的にボゾン演算子として扱われ、光学非線形性は付加的な効果として導入される。しかし、最近の実験によりプラズモンによる2光子吸収や飽和現象等が報告されており、従来の非線形効果を付加的に取り入れたモデルでは説明できない問題が生じはじめた。元々、ボゾンの取り扱いには十分大きなサイズにおいて成り立つ近似であり、数10 nm程度の金属ナノ構造では良い近似ではない可能性がある。また本研究が提案する金属ナノ構造による広帯域周波数もつれ光も非線形光学効果によって生成されるため、プラズモンの非線形性の取り扱いは重要になる。

そこで当初の研究計画にはなかったが急遽、吸収飽和を取り扱える可飽和局在表面プラズモンの第2量子化理論の構築を行った。量子化の方法としては、古典的な局在表面プラズモンの線形光学応答を、弱励起極限における可飽和量子2準位系から得られる応答と直接

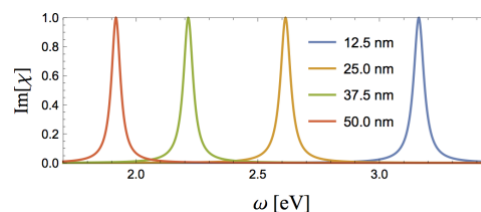


図5. 単一金属ナノ構造に誘起される局在表面プラズモンのスペクトル。

比較するという方法を導入した。ここで第2量子化は古典的な感受率を量子双極子演算子で置き換えることで行う。この方法により厳密性は多少損なわれるが、従来の難解な場の量子論を手続きを経なくても簡単に量子化が行える。本モデルの正当性を示すため、ロッド型ナノ微粒子を例に単一ナノ微粒子の光応答を詳細に解析した。

図5に粒径サイズの異なる微粒子から得られるスペクトル解析結果の一例を示す。横軸 ω はプラズモン共鳴エネルギーを表す。粒径サイズが大きくなるほど ω が減少し、実験結果と非常によく一致する。一方、スペクトル幅に関しては、 $a < 50$ nm の小さなナノ微粒子では線幅はほとんど変化しないという結果が得られた。これはロッド型ナノ微粒子のクラスターから得られる実験結果とは異なる傾向を示している。しかし、サイズのばらつきによる共鳴エネルギーのゆらぎ $\Delta\omega$ を考慮したアンサンブル解析を行うと、提案理論モデルは、実験をよく再現できることが分かった。この解析結果から、実験から得られるスペクトル線幅のサイズ依存性は、微粒子サイズのばらつきに大きく依存する可能性があり、正確なプラズモンスペクトルのサイズ依存性を得るためには、単一ナノ微粒子のサイズ依存性を正確に測る必要があることを示唆している。

更に本研究で構築した可飽和局在表面プラズモンから派生的な研究成果も得られている。実際、光合成系のエネルギー移動をナノ金属微粒子で模倣した光デバイス理論の構築や分子系を選ばない高効率2光子吸収反応場理論、更にはエネルギー移動における量子もつれと熱揺らぎの協力効果の解析など当初の予定にはなかった研究分野への応用へと広がり、これらの成果は研究論文としてまとめ投稿し、採択されている。このように本研究成果は、量子プラズモニクスにおける非線形局在量子光学理論という新しい研究分野を構築し、更に量子デバイスをはじめとする様々な研究分野への波及も期待できる結果といえる。

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 6 件)

① Hisaki Oka, "Two-photon absorption by

spectrally shaped entangled photons,” *Physical Review A*, Vol. 97, pp. 033814-1-6 (2018). 査読有

DOI:<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.033814>

② Hisaki Oka and Yasuo Ohdaira, “Simple model of saturable localised surface plasmon,” *Scientific Reports*, Vol. 8, pp. 2643-1-8 (2018). 査読有

DOI:10.1038/s41598-018-20880-6

③ Hisaki Oka, “Generation of broadband ultraviolet frequency-entangled photons using cavity quantum plasmonics,” *Scientific Reports*, Vol.7, pp. 8047-1-10 (2017). 査読有

DOI:10.1038/s41598-017-08431-x

④ Hisaki Oka, “Role of an elliptical structure in photosynthetic energy transfer: Collaboration between quantum entanglement and thermal fluctuation,” *Scientific Reports*, Vol. 6, pp. 26058-1-9 (2016). 査読有

DOI:10.1038/srep26058

⑤ Hisaki Oka, “Selection rule and entanglement in energy transfer between doubly concentrically arranged nanostructures,” *Physica Status Solidi B*, Vol. 253, pp. 292-299 (2016). 査読有

<https://doi.org/10.1002/pssb.201552183>

[学会発表] (計 5 件)

① Hisaki Oka and Yasuo Ohdaira, “Simple Quantization Method of Localized Surface Plasmon for Quantum Plasmonics,” The 6th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2017), Fukui, Japan, June 2017

② Hisaki Oka, “Enhancement of Two-Photon Absorption in a Molecule by Plasmonic Nanoantenna,” 2016 Global Research Efforts on Energy and Nanomaterials, Taipei, Taiwan, December 2016

③ Hisaki Oka, “Efficient two-photon excitation assisted by plasmonic nanoantenna,” The 5th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2015), Niigata, Japan, June 2015

6. 研究組織

(1)研究代表者

岡 寿樹 (OKA, Hisaki)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：00508806