

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：24403

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760046

研究課題名(和文)量子結合制御を基礎とした高効率非線形光学応答の理論

研究課題名(英文)Theory of efficient nonlinear optical excitations based on manipulation of quantum interferences

研究代表者

余越 伸彦(YOKOSHI, NOBUHIKO)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：90409681

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円、(間接経費) 690,000円

研究成果の概要(和文)：ナノメートル程度の微小金属片を用いたアンテナや、半導体微細構造により作製された共振器を補助系と見立て、有機分子・量子ドットと光子との間の非線形応答の効率を向上させる研究を行った。その結果、空間的に離れた半導体共振器中の量子ドット間に、量子もつれ状態を形成する手法を開発した。また、金属アンテナと分子・量子ドットからなる量子結合系について、その非線形光応答を向上する手法を提示した。これらは全て、系全体を構成する複数の準位間の干渉を考慮し、その連成振動を考えることで合理的に説明できる。また離散双極子近似法と量子マスター方程式を連立させ、具体的な系を想定して非線形応答を計算をする手法を開発した。

研究成果の概要(英文)：We have theoretically studied schemes improving efficiencies of nonlinear responses between photons and organic molecules (quantum dots). We focus on the system where the molecules are coupled with auxiliary systems, e.g., optical antenna using a small piece of metal nanometers and cavity mode in the semiconductor microstructure. As a result, we developed a method to create an entangled state between quantum dots in distant cavities. Besides, considering coupled systems that consists of optical antenna and molecules (quantum dots), we revealed the conditions to enhance nonlinear optical excitations. All of the results can be explained by considering quantum interferences between composition elements of the entire systems. In addition, by combining quantum master equation and the discrete dipole approximation method, a scheme to calculate the nonlinear response on the assumption that specific system was developed.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用光学・量子光工学

キーワード：量子光学

1. 研究開始当初の背景

光エネルギー利用や光情報技術がますます重要となる現在、光と物質間のエネルギー・情報のインターフェースの確立は、将来の社会構築に置ける最も重要なファクターの一つといえる。また、急速な光科学・物質科学技術の進展に伴い、光子1つ、分子や量子ドット1つの単位での制御が可能となっている。このため数個の光子と分子一つの間の高効率インターフェースの実現に期待がかかる。しかしながら、これらの間に働く相互作用は一般に小さく、それを補完する機能が必要となる。

光子-物質間の相互作用を増強する手法として、半導体微細構造による共振器や微小金属構造によって作られる光アンテナの利用が考えられる。共振器内部に発生する共振モードや、金属表面に励起される局在表面プラズモンは、入射光に対して桁違いに大きな増強光電場を発生させることが知られている。従って、その局所電場内に分子を配置することで、入射光が微弱であっても増強場を介して効率的に作用させることができる。一方で、このような増強場による高効率の光子捕捉は、格子欠陥など共振器や金属の内包する様々な要素に起因する散逸・吸収・位相緩和とトレードオフとなる懸念があり、これらを回避する工夫が必要となる。最近この問題に対し、増強場と分子の結合系をある種の結合モードとして捉え、これらの量子力学的干渉効果を積極的に制御することで解決できる可能性が指摘され注目を集めている。しかしこの解析は現在のところ定常レーザー光による線形応答領域に限られており、将来的な太陽エネルギー利用や量子情報技術への応用を視野に入れると、数個の光子による非線形応答について、散逸などを回避しつつ増強できるか否かを明らかにすることが必要である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、半導体共振器や微小金属構造などによる増強場を補助系と見なし、それと有機分子(量子ドット)による量子結合系を舞台に、光子数個のレベルで引き起こされる非線形光学応答を高効率化する手法の開発にある。特に複数の光子間や結合系に働く量子力学的結合に注目し、その積極的な制御により増強電場の散逸・吸収・緩和を回避することで、様々な非線形光学過程の効率について調査する。具体的には、補助系と分子の連成振動を系のパラメータにより制御することで、補助系が光を効率系に捕集しつつも、そのエネルギーをほぼ全て分子に移行し、非線形励起を高効率に引き起こす状況を用意できることを明らかにする。

3. 研究の方法

本研究では、「量子結合制御による光応答の高効率化」をキーワードとし、まず比較的単純なモデル計算により、光応答に関する複数の問題に取りかかる。また、より微視的な視点より入射光子・増強場・分子という複数の自由度を自己無撞着に記述するファーマリズムの構築を目指す。微視的なファーマリズムについては完成次第、具体的なシステムを想定し、量子結合制御による新規なエネルギー・情報のフローとしての性能を評価する。

4. 研究成果

まず空間的に離れた場所に配置した半導体量子ドットに量子もつれスピン状態を生成する手法を提案した。この手法では、概要について図1にまとめる。二つの量子ドットはそれぞれ共振器内部に配置されており、光ファイバーが両者を接続している。この手法によると、量子ドット内の光子-正孔スピン相互作用や正孔スピン-正孔スピン相互作用を制御することで、正孔スピンの量子もつれ状態を高効率に形成することができることが分かった。この系では光子・正孔スピン・共振器モードのほか、電子離脱のための連続準位が連立しており、これら多数の量子力学的結合の制御が量子もつれ配信の効率を決定することを明らかにした。

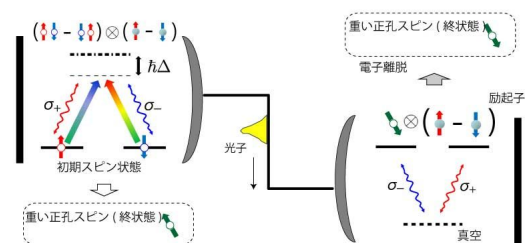


図1 量子もつれスピン対を作成する手法の模式図

また微小金属構造近傍に配置された分子を対象に、量子もつれを起こしている2光子による上方変換の効率を計算した。一次元モデル計算の結果、金属構造に励起される局在表面プラズモンは単純に実効的な光子-分子相互作用を増強するにとどまらず、分子準位との干渉を示すことが分かった。実際、プラズモン-分子間の相互作用について最適なパラメータが存在することが分かり(図2)。このことはプラズモン・分子両者の連成振動を考慮すると合理的に理解できることを示した。また、このような量子干渉の効果は必ずしも光子間の量子もつれ現象を必要とはしないが、量子もつれにより大きく増強されることも明らかにした。また具体的な金属ブロック(Au)と分子(フタロシアニン)を想定

し、離散双極子近似により数値シミュレーションを行なうことで、高効率非線形上方変換を引き起こすパラメータ領域が達成可能であることを示した。

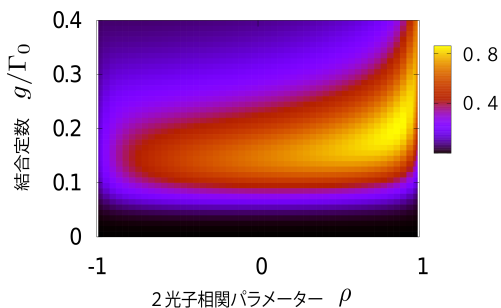


図 2 2光子上方変換確率の関連パラメータ
- 結合定数依存性。

さらに2つの量子ドットが結合した二重量子ドットを想定し、その片方のみを微小金属構造を介して励起することを考えた。このような局所的な励起により、本来は双極子禁制励起であるはずの暗状態励起が可能となる。我々はモデル計算により、高効率に非線形励起を引き起こし、安定な2励起子状態を形成する手法となることを確認した。この非線形励起は入射光子場と二重量子ドットの共鳴準位間の量子力学的干渉を考慮することで、合理的に説明できることを明らかにした。

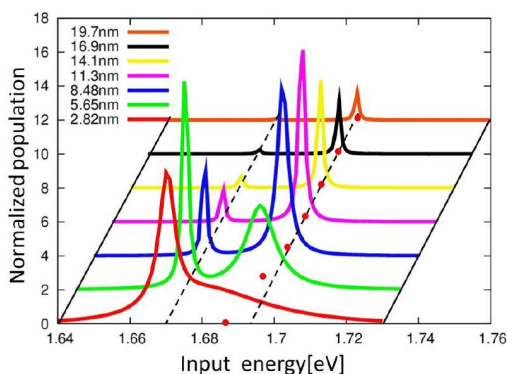


図 3 微小金ブロック対の近傍に配置された2量
体分子の励起占有率。金属ブロックから分子の距離
で色分けしてある。

また、より具体的なシステムを想定するための微視的な数値シミュレーション手法の開発を行なった。これまでシステムを微小領域に分割して、系全体の分極を計算する離散双極子法は多くの分野で成功を収めてきたが、その非線形励起への応用は非常に困難であり、分極の計算しかすることができなかった。そこで我々は離散双極子法と量子マスター方程式を連立させることにより、分子おける非線形励起を計算する手法を新たに開発した。この手法により、ナノメートル程度の金属球や金属ブロックの近くに配置した2準位分子について、今まで計算できなかった

励起占有率を計算することに成功した(図3)。今後はこの手法を、より非線形過程への応用することを試みる。

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 4件)

1. Yoshiki Osaka, Nobuhiko Yokoshi, Masatoshi Nakatani, Hajime Ishihara “Enhanced up-conversion of entangled photons and quantum interference under localized field in nanostructures”, Physical Review Letters, Volume 114, 133601 (1-5) (2014) (査読あり)

2. Nobuhiko Yokoshi, Hiroshi Imamura, Hideo Kosaka “Creation of entangled spin qubits between distant quantum dots”, Physical Review B, Volume 88, 155321 (1-5) (2013) (査読あり)

3. Masatoshi Nakatani, Atsushi Nobuhiro, Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “Model of the photoexcitation processes of a two-level molecule coherently coupled to an optical antenna”, Physical Chemistry Chemical Physics, Volume 15, 8144-8150 (2013) (査読あり)

4. Yoshiki Osaka, Nobuhiko Yokoshi, Masatoshi Nakatani, Hajime Ishihara “Theoretical analysis of wavelength conversion through an antenna-enhanced up-conversion”, physica status solidi (c), Volume 9, 2525-2528, (2012) (査読あり)

[学会発表](計 31件)

1. Takuya Matsuda, Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “Anomalous Photoluminescence of Weakly Confined Excitons including Radiative Correction in Nano-to-Bulk Crossover Regime”, Sixth International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA 2014) (Leeds, UK, 2014年7月27日)

2. Yoshiki Osaka, Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “Induced correlation between distant molecules nearby two-dimensional metal nanoblock array”, Sixth International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA 2014) (Leeds, UK, 2014年7月27日)

3. Ryosuke Hata, Nobuhiko Yokoshi, Hiroshi Ajiki, Hajime Ishihara “Luminescence activity of two-level molecule with population inversion”, 1st Optical Manipulation Conference (OMC'14) (Kanagawa, Japan, 2014年4月23日)
4. Yoshiki Osaka, Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “Theoretical estimation of inter-molecule correlations nearby metallic nanostructures”, 1st Optical Manipulation Conference (OMC'14) (Kanagawa, Japan, 2014年4月23日)
5. Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “Preparation of a two-excitation state in an antenna-coupled double quantum dot”, 1st Optical Manipulation Conference (OMC'14) (Kanagawa, Japan, 2014年4月23日)
6. 逢坂良樹、余越伸彦、石原一 “金属ナノ構造を介した分子間相関についての理論的解析”, 日本物理学会年次大会 (東海大学, 神奈川, 2014年3月29日)
7. 畑遼介、余越伸彦、安食博志、石原一 “非共鳴励起光による駆動 Jaynes-Cummings モデルの発光特性”, 日本物理学会年次大会 (東海大学, 神奈川, 2014年3月27日)
8. 小西裕登、余越伸彦、石原一 “磁気共鳴を応用したカイラル螺旋磁性体のスピン駆動の理論”, 日本物理学会年次大会 (東海大学, 神奈川, 2014年3月27日)
9. Ryosuke Hata, Hiroshi Ajiki, Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “Up-Conversion of Photon Energy by 2-Level Molecule Coupled to Highly-detuned Nano-antenna”, FIRST International Symposium on Topological Quantum Technology (FIRST 2014) (Tokyo, Japan, 2014年1月29日)
10. 榎田雅也、余越伸彦、石川陽、石原一 “ナノ粒子における超蛍光の空間配置依存性の解析”, 第24回光物性研究会, (大阪市立大学, 大阪, 2013年12月14日)
11. 陣駒勇佑、余越伸彦、石原一 “任意形状金属近傍における分子のポピュレーション解析”, 第24回光物性研究会, (大阪市立大学, 大阪, 2013年12月14日)
12. 逢坂良樹、余越伸彦、中谷正俊、石原一 “高効率な2光子上方変換を実現する複合量子系の設計指針”, 第24回光物性研究会, (大阪市立大学, 大阪, 2013年12月14日)
13. 陣駒勇佑、余越伸彦、石原一 “グリーン関数法による任意形状金属-分子結合系の励起確率の解析”, 日本物理学会秋季大会 (徳島大学, 徳島, 2013年9月27日)
14. 榎田雅也、余越伸彦、石川陽、石原一 “空間配置されたナノ粒子群における遅延効果を含む超蛍光の理論”, 日本物理学会秋季大会 (徳島大学, 徳島, 2013年9月26日)
15. 余越伸彦、石原一 “金属アンテナ-2量子ドット結合系における断熱的非線形励起”, 日本物理学会秋季大会 (徳島大学, 徳島, 2013年9月26日)
16. 畑遼介、余越伸彦、安食博志、石原一 “結合モード駆動時における補助系に接続された二準位系の非線形光学応答”, 日本物理学会秋季大会 (徳島大学, 徳島, 2013年9月26日)
17. Ryosuke Hata, Nobuhiko Yokoshi, Hiroshi Ajiki, Hajime Ishihara “Population Dynamics of Two-Level System with an Auxiliary System Driven with Coupled-Mode Frequency”, The 12th Asia Pacific Physics Conference ASEPS3 The third Asia-Europe Physics Summit (APPC12) (Chiba, Japan, 2013年7月13日)
18. Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “Flexible Nonlinearity in an Antenna-coupled Double Quantum Dot”, The 10th Conference on Lasers and Electro-optics Pacific Rim, and The 18th OptoElectronics and Communications Conference/Photonics in Switching 2013 (CLEO-PR & OECC/PS 2013) (Kyoto, Japan, 2013年6月3日)
19. Ryosuke Hata, Nobuhiko Yokoshi, Hiroshi Ajiki, Hajime Ishihara “Control of Population Dynamics by Three-body Self-consistent Interplay”, The 10th Conference on Lasers and Electro-optics Pacific Rim, and The 18th OptoElectronics and Communications Conference/Photonics in Switching 2013 (CLEO-PR & OECC/PS 2013) (Kyoto, Japan, 2013年6月2日)
20. Yoshiki Osaka, Nobuhiko Yokoshi, Masatoshi Nakatani, Hajime Ishihara “High-Efficient Two-Photon Up-Conversion in an Antenna-Molecule Complex System”, The 10th Conference on Lasers and Electro-optics Pacific Rim, and The 18th OptoElectronics and Communications Conference/Photonics in Switching 2013 (CLEO-PR & OECC/PS 2013) (Kyoto, Japan, 2013年6月2日)
21. Ryosuke Hata, Nobuhiko Yokoshi, Hir

oshi Ajiki, Hajime Ishihara “ Study of population control by strongly coupled oscillators ”, The 7th International Conference on Nanophotonics/The 3rd Conference on Advances in Optoelectronics and Micro (ICNP/AOM2013) (Hong-Kong, China, 2013年5月21日)

22. Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “ A diabatic nonlinear excitations in an antenna-coupled double quantum dot ”, 14th Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN2013) (Crete, Greece, 2013年5月13日)

23. Yoshiki Osaka, Nobuhiko Yokoshi, Masatoshi Nakatani, Hajime Ishihara “ Up-conversion dynamics of entangled-photons in a molecule coupled with an optical antenna ”, 14th Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN2013) (Crete, Greece, 2013年5月13日)

24. 畑遼介、余越伸彦、安食博志、石原一 “ 結合モード周波数で外部駆動された共振器中二準位系の発光特性 ”, 日本物理学会年次大会 (広島大学, 広島, 2013年3月29日)

25. 逢坂良樹、余越伸彦、中谷正俊、石原一 “ 分子-アンテナ複合系における量子干渉効果と高効率2光子上方変換 ”, 日本物理学会年次大会 (広島大学, 広島, 2013年3月27日)

26. 逢坂良樹、余越伸彦、中谷正俊、石原一 “ 分子-アンテナ複合系における量子干渉効果と高効率非線形光学応答 ”, 第23回光物性研究会, (大阪市立大学, 大阪, 2012年12月8日)

27. 余越伸彦、石原一 “ アンテナ-分子結合系における非線形光励起と波長変換 ”, 日本物理学会秋季大会, (横浜国立大学, 神奈川, 2012年9月19日)

28. Yoshiki Osaka, Nobuhiko Yokoshi, Masatoshi Nakatani, Hajime Ishihara “ Two-photon up-conversion dynamics in four-level diamond-shaped systems with an optical antenna ”, the 10th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Nanostructured and Molecular Materials (EXCON 2012) (Groningen, Netherlands, 2012年7月5日)

29. Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “ Theoretical analysis for strong nonlinearity of excitations in an antenna-coupled double quantum dot ”, the 10th Int

ernational Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Nanostructured and Molecular Materials (EXCON 2012) (Groningen, Netherlands, 2012年7月5日)

30. Yoshiki Osaka, Nobuhiko Yokoshi, Masatoshi Nakatani, Hajime Ishihara “ Theoretical analysis of wavelength conversion through an antenna-enhanced up-conversion ”, Fifth International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA12) (Nara, Japan, 2012年6月4日)

31. Nobuhiko Yokoshi, Hajime Ishihara “ A nonlinear photoexcitation process for wavelength conversion in antenna-molecule coupled systems ”, Fifth International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA12) (Nara, Japan, 2012年6月4日)

〔図書〕(計 0件)

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

余越 伸彦 (YOKOSHI NOBUHIKO)

大阪府立大学・工学研究科・助教

研究者番号 : 90409681