

称号及び氏名 博士（工学） 逢坂 良樹

学位授与の日付 平成 28 年 3 月 31 日

論文名 「Criteria of Building Quantum Systems for Efficient Few-Photon Nonlinearity」

(効率的な少数光子非線形性の実現に向けた量子系の構築指針)

論文審査委員 主査 石原 一

副査 内藤 裕義

副査 堀中 博道

論文要旨

1961年にレーザーが発明されて以来、非線形光学の分野が急速に発展してきた。非線形光学は、入射光電場の大きさに対して非線形に依存する光学応答を対象にした研究であり、幅広い分野で応用されている。第二次高調波や第三次高調波といった現象を利用した波長変換はその代表例である。例えば物質研究では、対象物質の共鳴に合った光波長のレーザーを得るため、非線形光学応答が利用される。天文学分野においても、上空 90 km の中間圏に存在するナトリウム層を波長変換したレーザーで励起・発光させることで、大気ゆらぎを補正するために必要となるガイド星を人工的に作ることもある。また身近な分野の例として光通信では、光ファイバー中を伝搬する光が非線形光学現象を発現するという問題がある。その影響を調べることは技術改善の上で重要であり、また非線形光学応答を積極的に利用した高性能通信技術の研究開発も盛んに行われている。さらには、高感度分光法や高解像度顕微鏡などにも応用されており、非線形光学が幅広い分野の発展に寄与していることがわかる。

上述した非線形光学応答は、物質を媒介とした光子-光子相互作用に基づいており、これを引き起こすためには通常レーザーのような高密度な光が必要となる。一方、非線形光学応答の応用が多様な技術分野へと広がるにつれて、光子数個程度の弱い光による非線形応答実現への期待が高まってきている。例えば、赤外太陽光を太陽電池の吸収に最適な波長に変換することが可能となれば、半導体のバンドギャップ以下のエネルギーしかもたない光子を電気エネルギーに変換でき、太陽光エネルギーの、より高効率な利用につながる。さらに、単一光子で他の光子の伝播を制御する単一光子スイッチや、量子ドットから放出された単一光子を通信帯域へ波長変換することなど、量子情報通信分野での重要な技術応用が期待されている。しかし、このような非線形光学応答は通常高い光子密度を必要とし、光子数個レベルの微弱光で効率的に起こすことは困難である。

少数の光子で効率的な非線形応答を起こすための鍵は、分子や量子ドットなどの離散準位の吸収飽

和を用いることにある。しかし、そのようなナノ物質のサイズは光子の波動関数の広がり比べて2～3桁程度小さく、その小さい吸収断面積を補うことが必要である。そこで本研究では、光アンテナに注目し、光とナノ物質の相互作用を最大限に増強する手法について考察をおこなった。光アンテナとは、金属からなるナノ、或いはマイクロ構造体であり、回折限界を超えて光エネルギーをナノメートル領域に局在化させることができる。これは光子を吸収した金属ナノ構造が、自由電子の集団振動であるプラズモンを生じさせ、金属近傍に局在した近接場を作るためである。そのような金属ナノ構造は、電子線リソグラフィやイオンビーム加工、自己組織化などの手法を用いて作製される。その形状は、ブロックやロッド、球など様々であるが、特に、数ナノメートルの隙間をもつように作製された構造では、その隙間で入射電場強度に対して数万倍も増強された電場が生じることが知られている。このとき、その隙間近傍に分子が配置されれば、強い光-分子相互作用が実現し、分子は効率的に励起されることになる。しかし、プラズモンのコヒーレントな自由電子の集団振動は、電子やフォノン、不純物などとの散乱により数十フェムト秒という速い時間スケールで緩和されてしまう。それは、プラズモンに大きな熱損失をもたらすため、弱い光で強い光-分子相互作用を実現することは素朴な方法では困難であった。

本研究では、プラズモンの散逸を抑制することで安定な光-分子結合を実現し、光の波長スケールに光子が数個程度しかない弱い光で効率的に非線形応答を起こすことを理論的に提案した。具体的には、光アンテナと分子が結合した量子系を想定し、その結合量子系に2光子を照射したときの非線形応答を計算した。その結果、最適な条件では、結合量子系での干渉効果により光アンテナの散逸が抑制され分子が効率的に光と相互作用することを明らかにした。また光子間の量子相関（エンタングルメント）が非常に有用であることも示した。本成果は、少数光子による非線形応答実現に向けた結合量子系を構築する上で重要な指針を与える。またそれにより、1光子レベルの究極の光子制御が可能になるなど、光科学分野に大きく貢献することが期待できる。

本論文では、これらの研究成果を、以下の5章にまとめた。

第1章では、本研究の背景と目的についてまとめた。

第2章では、本研究で用いた光学応答の解析手法を紹介した。申請者は光アンテナと分子が結合した量子系に2光子を照射したときの応答について、初等的な1次元モデルを想定して解析をおこなった。このとき、非線形光学応答の一種である上方変換過程に着目し、その変換確率を算出することで非線形応答の効率を評価した。また、量子相関状態の光子は、その相関を起因とする同時性のために非線形応答を増強することが知られている。そこで本研究でも、光子の相関が非線形応答に与える影響を調べるため、位置の相関状態を表現することができる関数を光子の波動関数として採用した。また、導出した上方変換過程の解析解を示し、その中にアンテナとの結合による増強因子が存在することを確認した。本研究では、上記の1次元モデルによる非線形応答の解析に加えて、具体的な試料構造を想定した線形光学応答の数値シミュレーションも行った。そのシミュレーション法として用いた離散双極子近似（**Discrete Dipole Approximation: DDA**）について紹介し、さらにそのDDAを周期構造に適用できるように行った改良を示した。

第3章では、アンテナ-分子結合系における上方変換確率を算出し、様々なパラメータ依存性を調べた。その結果、入力光子間の相関が非線形応答を増強することがわかった。また、アンテナ-分子間の結合に対しても、最適なパラメータ領域が存在することがわかった。その起源について考察を行い、結合系での量子干渉効果がアンテナの損失を抑制することで分子と光の効率的な相互作用が実現することを明らかにした。また、そのアンテナ-分子間の最適な結合が実験的に実現可能であるかを検証す

るため、具体的な金属ナノ構造を想定した光学応答の数値シミュレーションを行った。そして、金属ナノブロック対と、そのブロック対が作る数ナノメートルの隙間に置かれた分子の光学応答について数値シミュレーションを行い、最適なアンテナ-分子結合が実験的に実現可能であることを示した。

第4章では、アンテナ-分子結合系が集積された構造での光学応答について解析した。実際、周期的に配列された金属ナノ構造は実験的に作製されており、今後のデバイス応用に適した構造であると考えられる。しかし、少数光子の非線形応答にとって、複数の分子の存在は、飽和効果の減退のため物質中での効率的な光子-光子相互作用を妨げることが予想される。そこで、まず初めに、複数の金属ナノブロックと分子が配置された構造での光学応答について数値シミュレーションを行った。その結果、プラズモン増強電場により効率的に励起された分子が複数あるとき、分子の吸収ピークのシフトが起こることがわかった。そのピークシフトの起源は、効率的に励起された分子間の放射場を介した相互作用であると考えられる。以上より、集積されたアンテナ-分子結合系では、分子間の相互作用が顕著に現れることが明らかになった。そこで、次に、分子が複数個ある場合のアンテナ-分子結合系について上方変換過程のモデル解析を行った。このとき、本モデルに分子間の結合を取り入れることで、分子間の相互作用が非線形応答に及ぼす影響を調べた。その結果、分子間の結合がないときは、分子の個数が増加するにつれて上方変換確率は低下していくのに対し、分子間の結合があれば、単一分子のときと同程度の変換確率が得られることがわかった。また、この分子間の結合についても、アンテナ-分子間の結合と同様に高効率な非線形応答にとって最適なパラメータ領域が存在し、ここでは分子が複数個ある場合でも量子干渉効果によるアンテナの散逸抑制が起こっていることを明らかにした。従って、アンテナ-分子間と分子間の両結合を制御することにより、アンテナ-分子結合系を集積した高効率非線形応答デバイスが提案可能であることが実証できた。

第5章では、以上の成果を総括し、本研究の結論をまとめた。

審査結果の要旨

本論文は、微小金属を光のアンテナとして用いた場合の、少数光子による高効率な非線形光学応答について議論している。光子数個程度の弱い光による非線形光学応答は、量子情報分野での情報処理技術に不可欠な光子制御の手法として期待されている。そのような非線形応答を起こすには、分子などの離散準位の吸収飽和を利用することが有効であるが、光の波長に比べて2～3桁小さい分子に光子を直接作用させることは困難である。そこで、光と分子の相互作用を増強するために光アンテナを導入することを考えるが、光アンテナ自体の散逸が大きいため、弱い光を効率的に分子に作用させることはやはり容易ではない。これに対して申請者は、アンテナの電荷振動と分子分極の振動の干渉効果によりアンテナの散逸を抑制させ、分子と光子の効率的な相互作用が実現可能であることを提案した。また、量子情報分野で重要な要素の一つである光子間の相関が非線形光学応答に及ぼす影響についても明らかにしている。得られた主な結果は、以下の項目に要約できる。

(1) アンテナ-分子結合系における2光子との相互作用のモデル解析により、干渉効果により分子と光子の効率的な相互作用を実現することで少数光子でも高効率な非線形光学応答が起こることを提案している。

(2) アンテナの散逸を抑制する干渉効果が起こる条件を明らかにし、その条件の実験的な実現性を具体的な構造を想定した数値シミュレーションにより示している。

(3) アンテナと分子を配列した系における光学応答の数値シミュレーションにより、効率的に励起された分子間の相互作用が増強されることを明らかにしている。

(4) 分子が複数個存在する系での解析を可能にするためにモデルの拡張を行い、分子間の相互作用を制御することにより複数分子の存在下でも高効率な非線形応答が実現することを提案し、将来の応用の可能性を示している。

(5) 空間的に相関状態にある光子対を入射したときの応答を解析し、光子の相関状態が非線形応答を促進することを明らかにしている。

以上の研究は、光アンテナを含む量子系における干渉効果が効率的な少数光子による非線形応答の鍵となることを初めて見出しており、その内容は、関連分野の研究に新しい方策を提示する、価値の高いものである。また、申請者が自立して研究活動を行うのに必要な能力と学識とを有することを証したものである。