

令和元年6月4日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K18743

研究課題名(和文)窒素内包C60を用いた相互可干渉単一光子の発生と高性能単一光子源の開発

研究課題名(英文) Generation of mutually-coherent single photons and the development of high-performance single-photon sources using N@C60

研究代表者

枝松 圭一 (EDAMATSU, Keiichi)

東北大学・電気通信研究所・教授

研究者番号：10193997

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：近年の基礎量子物理学および量子情報通信技術に関する実験的研究の飛躍的進展に伴い、高性能単一光子源の開発が切望されている。本研究では、プラズマ法によって合成された窒素原子内包C60 (N@C60)からの相互可干渉単一光子の発生とその高性能単一光子源へ応用を目的とした以下の萌芽的、探索的研究を行った。

(1) 室温における単一光子放出の確認と単一光子源としての性能評価、(2) 低温における単一光子検出のための低温共焦点顕微分光装置の開発、(3) 単一光子源とナノ光ファイバとの高効率結合系の開発、

研究成果の学術的意義や社会的意義

研究期間内には企図したN@C60からの単一光子発光を確認することはできなかったが、本研究で開発した低温下単一光子分光測定システムや単一光子源とナノ光ファイバとの高効率結合に向けた研究成果は、今後の高効率単一光子源の開発や新たな単一光子発生系の研究を促し、基礎量子物理学や量子情報通信技術の実験的研究の発展に寄与するものである。

研究成果の概要(英文)： Along with the recent experimental progress on fundamental quantum physics and quantum info-communication technology, development of high-performance single-photon sources is demanded. In this project, we carried out exploratory research aiming at the generation of mutually-coherent single photons and the development of high-performance single-photon sources using hydrogen-atom endohedral C60 (N@C60) synthesized by the plasma ion irradiation method.

The research subjects are (1) search of single photon emission from N@C60 at room temperature, (2) development of confocal micro-spectrograph to observe single-photons at low temperature, and (3) development of an efficient coupling system between single photon emitters and optical nano-fiber.

研究分野：量子光学，量子計測，量子情報

キーワード：窒素内包フラーレン フラーレン 単一光子 量子光源

### 1. 研究開始当初の背景

光の量子性すなわち光子の発見は、量子力学の誕生と発展を促す原動力であったとともに、近年の基礎量子物理学および量子情報通信技術に関する研究の飛躍的進展にもつながっている。それに伴い、これらの先端的研究に用いられる高性能単一光子光源の開発が切望され、単一の原子、分子、量子ドット、あるいは固体中の単一電子中心（例えばダイヤモンド結晶中の NV 中心）等の単一量子状態から放出される単一光子を高効率で捕集・利用する技術が急速に進展している。しかしながら種々の量子演算、量子操作のために必要な光子間の相互可干渉性を付与するためには特殊な技術が必要であった。

一方、応募者と研究協力者らのグループは、室温において窒素原子内包フラーレン(N@C<sub>60</sub>) (図1) から強い発光が観測されることを初めて見出した。前述したように、N@C<sub>60</sub>では、窒素原子がC<sub>60</sub>分子の籠に包まれて存在するため、安定で高い相互可干渉性(不可識別性)を有する単一光子光源や非常に長いスピンコヒーレンス時間を利用した量子演算素子等への応用が強く期待され、本研究の着想へと至った。

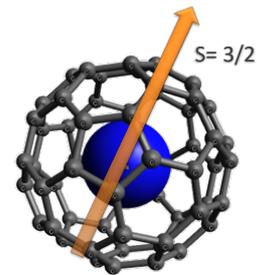


図1. 窒素原子内包フラーレン(N@C<sub>60</sub>)の模式図。

### 2. 研究の目的

本研究では、N@C<sub>60</sub>からの単一光子の検出とその単一光子源としての応用可能性を確認するため、以下の項目を目的とした萌芽的・探索的研究を行う。

- (1) 室温および低温における単一 N@C<sub>60</sub>からの単一光子放出を確認し、単一光子源としての性能評価を行う。
- (2) 低温において N@C<sub>60</sub>から発生した単一光子同士が、高い相互可干渉性(不可識別性)をもつことを検証する。
- (3) 単一 N@C<sub>60</sub>とナノファイバとの高効率な結合系を実現し、N@C<sub>60</sub>から放出された単一光子を高効率で光ファイバに導入可能な、超高性能単一光子源を開発する。

### 3. 研究の方法

#### 【研究試料】

本研究で用いる N@C<sub>60</sub>は、金子(研究協力者)らが開発したプラズマ合成法により作製される。N@C<sub>60</sub>の存在は従前より知られてはいたが、その合成可能量は極めて微量であったため、その物性、特に光学的性質はほとんど調べられていなかった。プラズマ合成法では、イオン化した窒素分子とC<sub>60</sub>とが高速で衝突する際に窒素原子が効率的にC<sub>60</sub>内部に取り込まれ、高い収率でのN@C<sub>60</sub>の生成が可能である。

#### 【研究計画】

本研究においては、N@C<sub>60</sub>に関する単一光子の発生、相互可干渉性の検証、および光ファイバとの高効率結合を実現することを当初の目的とした。以下に、年度毎の研究計画を記す。

#### (1) 平成 29 年度

##### ① 単一光子発生の確認

石英基板上に分散した N@C<sub>60</sub> に関し、室温における共焦点顕微分光測定を行って、単一の N@C<sub>60</sub>からの発光を分離して観測するとともに、CW 励起による強度相関 ( $g^{(2)}$ ) 測定を行い、光子の単一性(アンチバンチング)を計測する。並行して、パルス励起による時間相関単一光子検出法を用いた発光寿命測定を行う。これらの計測結果から、単一光子源としての性能を評価する。

##### ② ナノファイバとの高効率結合

N@C<sub>60</sub>をナノファイバ上に滴下・配置して、単一 N@C<sub>60</sub>・ナノファイバ結合系を実現する。ナノファイバ上の単一 N@C<sub>60</sub>からの発光寿命および強度相関測定を行い、N@C<sub>60</sub>の発光とナノファイバのエバネッセントモードとの結合効率を評価する。

#### (2) 平成 30 年度

##### ① 低温での発光線幅および相互可干渉性の評価

低温(～4 K)における単一 N@C<sub>60</sub>の発光および励起スペクトルの測定を行い、ゼロフォ

ノン線に対応する狭線幅の発光およびその励起準位を確認するとともに、それらの線幅が寿命幅と同等であることを確認する。さらに、単一の N@C<sub>60</sub> から異なるタイミングで発生する光子間についての二光子干渉 (HOM 干渉) 測定を行い、それらの相互可干渉性を計測する。

## ② 低温での N@C<sub>60</sub>・ナノファイバ結合系の実現

He フロー型低温クライオスタット中にナノファイバ系を導入して、低温環境下での N@C<sub>60</sub>・ナノファイバ結合系を構築し、高い相互可干渉性を有する超高効率単一光子源を実現する。

## 4. 研究成果

### (1) 室温における単一光子放出の確認と単一光子源としての性能評価

図 2 に、研究開始当初に N@C<sub>60</sub> 試料において観測された発光スペクトルおよび吸収スペクトルを示す。トルエン溶液中に分散した N@C<sub>60</sub> 試料を室温において光励起すると、2.8 eV 付近に非常に強い発光帯が観測された。その発光スペクトルは、フォノンサイドバンド形状を示し、固体単一光子源として広く研究されているダイヤモンド結晶中の NV 中心と類似していた。時間相関単一光子検出法を用いて測定した発光強度の時間減衰 (図 3) から、発光寿命の時定数は 1.2 ns であると見積もられた。窒素原子を含まない C<sub>60</sub> 試料ではこのような発光が全く観測されないことから、この発光は N@C<sub>60</sub> 試料に固有のものであると期待された。しかしながら、本研究開始後に新たに作製した N@C<sub>60</sub> 試料からは発光が全く観測されなかった。そこで、図 2 の発光の起源についてさらに調査したところ、プラスチック材料を白色化するために用いられる bis-benzoxazolyl-stilbene (BBS) の発光スペクトルおよび発光寿命とよく類似した特性を呈していることがわかった [1]。これらのことから、図 2 のスペクトルを観測した N@C<sub>60</sub> 試料においては、試料を保存していたガラス容器のプラスチック蓋に含まれていた BBS あるいはその近縁物質がトルエン溶液中に微量に溶け出しており、その発光が観測されたものと推測された。

このような経緯から、本研究においては、新たに N@C<sub>60</sub> 固有の発光を発見、検出する必要が生じた。N@C<sub>60</sub> の電子準位の理論計算から、可視域に非常に長寿命 (狭線幅) の準禁制発光があることを予測し、2 光子励起分光法を用いてその検出を試みたが、研究終了時まで N@C<sub>60</sub> 固有の発光と同定できる有意な発光は観測されなかった。

### (2) 低温における単一光子検出のための低温共焦点顕微分光装置の開発

本研究の第 2 の目的である、低温における単一光子を検出・計測するための装置を開発した。XYZ ピエゾステージ (本研究で新規導入) を用いた低温共焦点顕微分光装置を構築し、ダイヤモンド結晶中の単一 NV 中心からの発光を用いてそのシステム性能を評価した結果、回折限界 (0.65 μm) の分解能で単一光子を安定に検出可能な性能をもつことを確認した。N@C<sub>60</sub> 固有の発光が観測されていれば、この装置を用いて低温における単一光子の検出、計測が可能であったと思われる。

### (3) 単一光子源とナノ光ファイバとの高効率結合系の開発

単一光子源からの発光を高効率でナノファイバ中に導入するための有力な手法として、光子源近傍の金属ナノ粒子のプラズモン共鳴を利用することが考えられる。そのため本研究では、ナノ光ファイバと金ナノ球・量子ドット複合系の構築とその評価実験を進め、金ナノ球のプラズモン共鳴散乱とナノファイバ内導波モードの結合による特異な偏光・導波モード依存性を観測した。さらに、半導体量子ドットからの発光がナノ光ファイバ中に導入される際の金ナノ球による増強効果を観測した。今後、その特性をさらに定量的に評価するとともに、成果としてまとめる予定である。

以上をまとめると、本研究の期間内には、当初企図した N@C<sub>60</sub> からの単一光子発光を確認することはできなかったが、本研究で開発した低温下単一光子分光測定システムや単一光子源とナノ光ファイバとの高効率結合に向けた研究成果は、今後の高効率単一光子源の開発や新たな単一光子発生系の研究を促し、基礎量子物理学や量子情報通信技術の実験的研究の発展に寄与

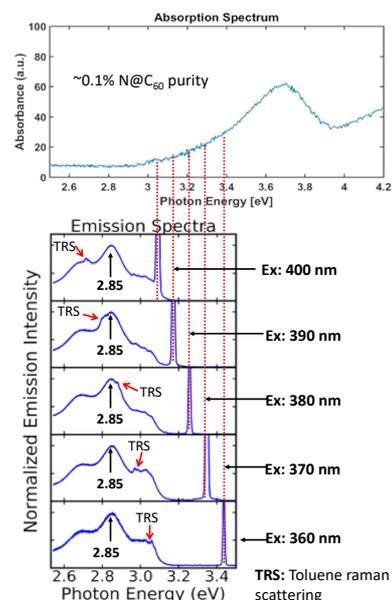


図 2. 当初 N@C<sub>60</sub> 試料で観測された発光スペクトル (下) および吸収スペクトル (上)。

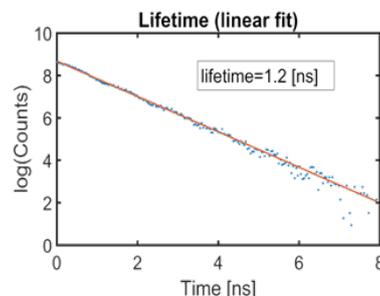


図 3. 図 2 の発光の時間減衰。

するものであると考えられる。

<引用文献>

- ① “Optical Brighteners: Improving the Colour of Plastics”, *Plastics, Additives and Compounding*, vol. **5** (2003)

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① F. Kaneda, H. Suzuki, R. Shimizu, and K. Edamatsu, “Direct generation of frequency-bin entangled photons via two-period quasi-phase-matched parametric downconversion”, *Opt. Exp.* **27**, 1416–1424 (2019) DOI: 10.1364/OE.27.001416 (査読有)
- ② 枝松圭一, “非古典光の基礎,” *光学* **47**, 48 (2018) (査読有)

[学会発表] (計 15 件)

- ① N. Abe, Y. Mitsumori, M. Sadgrove, and K. Edamatsu, “Quantum interference and wave-particle duality of dynamically unpolarized single photons”, *International Conference on Quantum Frontiers and Foundations, Bangalore, India* (2018) 【招待講演】
- ② K. Edamatsu, “Nonlocal two-qubit measurement using spin products”, *3rd International Conference on Quantum Foundations, Patna, India* (2017) 【招待講演】

[図書] (計 1 件)

- ① 枝松圭一, 「単一光子と量子もつれ光子-量子光学と量子光技術の基礎-」 共立出版 (2018), 168 ページ, ISBN 978-4-320-03539-3

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等 <http://www.quantum.riec.tohoku.ac.jp>

## 6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：サッドグローブ マーク

ローマ字氏名：(SADGROVE, Mark)

研究協力者氏名：三森 康義

ローマ字氏名：(MITSUMORI, Yasuyoshi)

研究協力者氏名：金子 俊郎

ローマ字氏名：(KANEKO, Toshiro)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。