

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K19051

研究課題名（和文）ダイヤモンド光学フォノンを用いたTHz量子メモリ

研究課題名（英文）THz quantum memory using optical phonons in diamond

研究代表者

中村 一隆（Nakamura, Kazutaka）

東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授

研究者番号：20302979

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）：アト秒精度で位相制御したサブ10 fsパルス対を用いて、40THzで振動するダイヤモンド光学フォノンのコヒーレント振動を過渡透過率変化として計測した。パルス対の時間遅延を制御することで、生成したフォノンの量子状態の干渉によりフォノン振幅を制御することができた。振動量子状態2準位と電子状態2準位から構成される4準位モデルを用いた量子理論計算を構築し、実験結果をよく再現する不透明領域での光学フォノンのコヒーレント制御理論を構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、アト秒精度で位相制御したパルス対を用いることでダイヤモンドの40THzで振動する光学フォノン量子状態を励起し、フォノン干渉を使って状態の制御を行い、その運動をプローブパルスで計測することができた。これは、ダイヤモンド光学フォノンのゼロフォノン状態と1フォノン状態に、情報を書き込み、書き換え、読み出しを行ったことに対応する。また、透明領域でのフォノン量子状態のコヒーレント制御の量子理論を構築したことは、フォノンを使った量子物理として学術的意義があるとともに、量子制御技術への応用が期待されるものである。

研究成果の概要（英文）：Optical phonons in diamond with 40 THz frequency are measured using relative phase-locked sub-10-fs pulses controlled with attosecond precision. The phonon amplitude is controlled by controlling the pulse delays via interference between the generated phonon states. The quantum mechanical theory of the coherent control of optical phonons in a transparent condition is developed using a four-level model consisting of two vibrational states and two electronic states. The theory well explains the experimental coherent control results of optical phonons in diamond.

研究分野：量子光物性

キーワード：コヒーレント制御 ダイヤモンド 光学フォノン 位相制御パルス 量子メモリ

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

研究開始当初までに申請者は、フェムト秒レーザーパルスを用いた光学フォノンのコヒーレント励起とその動的過程(ダイナミクス)の実時間測定を行ってきた。これはフォノンの振動周期よりも短いパルスのレーザー光を物質表面に照射することで、位相を揃えてフォノンを励起するものである。またその測定には、同じく短パルスの光を用いたフェムト秒時間分解過渡反射率(または透過率)測定を用いている。また理論との比較から、超短光パルス照射で生成する状態は「2つ以上のフォノン数状態の量子力学的な重ね合わせ状態」であることを示した。これらの知見から、「位相の揃ったフォノン状態(コヒーレントフォノン)を THz で動作する量子メモリとして利用できる」ことを思いついた。特にダイヤモンドの光学フォノン(40THz)を用いれば、その振動エネルギーが室温に比べて非常に大きいため、室温で位相まで制御して 40THz で動作する量子メモリとしての活用が期待できる。更に位相制御した光パルス列を用いれば、フォノン量子状態を任意に操作できることに思い至った。

フォノンの量子性を利用した量子光学は、量子力学の基礎実験のみならず量子情報技術や量子コンピュータに応用されている。フォノンはフォトンと同じボゾンであり、フォノンを使った量子技術(量子フォノンクス)の応用が期待できる。フォノン量子状態を光で制御する技術を開発し、量子情報技術の基礎をなしている量子エレクトロニクスとの比較により「量子フォノンクス」という新規分野を創成できると考えられる。新しい量子技術には、コヒーレンスを長く保つことが必要であり、通常は量子メモリとなる対象物質を低温にする必要がある。ダイヤモンドの光学フォノンは、室温でもコヒーレンスを 7ps 程度保持する。この時間はスピンのコヒーレンス時間等に比べると短い、40THz で動作できることから、十分な回数の動作が可能である。ダイヤモンド光学フォノンを量子メモリに活用する研究は、欧米(Oxford大学など)でも開始されており、フォノンの量子干渉性やラマン光とフォノンとの「量子もつれ」が確認されている[Lee et al., Nature Photonics 6 (2011) 41.]. しかし、これまで行われている研究では、フォノン振動周期よりも長いパルス(~100fs)を用いたものであり、フォノンの位相を制御できていない。これに対して、本研究ではコヒーレントフォノンを利用することで、フォノン量子メモリの位相まで完全に制御することに大きな特徴がある。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、ダイヤモンドの光学フォノン量子状態を用いることで、室温において 40THz で動作する量子メモリ技術を開発することである。ダイヤモンドの光学フォノンは高い振動数(40 THz=振動周期 25 fs)をもち、室温でも長い寿命を持つため、量子メモリ効果が期待される。本研究では、光学フォノン振動の周期よりも短い 9 fs 程度の光パルスをダイヤモンドに照射することで、そのフォノン数状態を位相までそろえて励起する。フェムト秒パルス列励起法および過渡透過率計測とラマン散乱光干渉計測を合わせて用いることで、固体ダイヤモンドの光学フォノンの量子状態を位相まで含めて制御する。これにより、光による量子状態の「書き込み」「制御」「読み出し」を可能とする技術を開発することを目的とする。

### 3. 研究の方法

サブ 10fs の近赤外パルスを用いたポンプ・プローブ型の過渡透過光強度検出により、光による量子状態の「書き込み」「読み出し」の実験を行う。サブ 10fs レーザーから発振する超短パルス光(パルス幅~10fs、中心波長 820nm)をダイヤモンド単結晶に照射することで、位相をそろえて光学フォノン(振動周期 25fs)を励起する。本実験では、励起光のエネルギーがダイヤモンドのバンドギャップ(7.3eV)よりも小さいために、フォノンの生成機構は瞬間的誘導ラマン過程(Impulsive Stimulated Raman Scattering: ISRS)である。生成するフォノン状態の分極はポンパルスから時間遅延をつけて照射するプローブパルス光によりラマン光(ストークス光とアンチストークス光)を放射する。この光をプローブ光との合成として、ヘテロダイン検出すると、ポンパルスとプローブパルスの時間遅延に応じて、フォノン振動数に対応する振動(25fs 周期)が観測できる。

次に、アト秒の時間精度で位相ロックしたフェムト秒パルス列を励起パルスに用いることで、フォノン量子状態の制御を行う。第 1 励起パルスが量子状態の「書き込みパルス」、第 2 励起パルスが量子状態の書き換えを行う「制御パルス」である。位相ロックパルス列は、独自に開発した高精度マイケルソン干渉計で発生し、パルス間隔は 300 アト秒の精度で制御する。これにより、ダイヤモンド光学フォノンの量子状態を位相と振幅の両方を制御できるようにする。

理論では、ダブルポンプ・プローブ型 過渡透過光強度計測による、光学フォノン状態への分極生成(量子メモリ書き込み過程)に関する理論の構築を行う。具体的には、フォノン状態を量論的に扱い、光電場を古典的振動として取扱う半古典モデルを用いて、フォノン量子状態の時間発展を密度行列の形式を用いて計算する。

### 4. 研究成果

#### (1)ダイヤモンド光学フォノンのコヒーレント制御実験

パルス幅 8.3fs の近赤外パルスを用いて、室温でポンプ・プローブ法により単結晶ダイヤモンド[100]面の過渡透過率計測を行うと、コヒーレントに励起されたダイヤモンド光学フォノンによる振動が観測され、その周波数は振動数  $39.9 \pm 0.05$  THz と見積もられた。ダイヤモンド光学フォ

フォノンのエネルギーは約 135meV であり、室温においてほとんどはゼロフォノン状態 $|0\rangle$ にある。光パルス照射によりフォノン励起が起こることで $|0\rangle$ 状態と $|1\rangle$ 状態の重ね合わせ状態が生成したためにコヒーレントなフォノン変位振動が起こったものである。従って、ポンプ・プローブ法でコヒーレントフォノン振動が観測されたことは、ポンプパルスでダイヤモンドフォノン状態に情報を書き込み、プローブ光で読み出したことに対応する。

マイケルソン干渉計で生成した位相制御パルス対(パルス1、2)をポンプ光として用い、ダイヤモンド光学フォノン振幅の制御を行った。フォノン振幅はポンプパルスから時間遅延を与えたプローブパルスであるパルス3の過渡透過強度変化から求めた。また、検出感度をあげるために光バンドパスフィルターを用いて透過光強度の測定を行った。

パルス1と2の時間遅延  $t_{12}$  を 0.3fs ステップで 150fs まで変化させ、各パルス間隔  $t_{12}$  において、パルス2照射後にコヒーレントに励起されたダイヤモンド光学フォノン強度を求めた。その結果を図1(a)に示す。

25fs 周期の振動と、約 2.7fs の振動が観測される。前者はダイヤモンド光学フォノン状態の干渉によるものであり、後者は励起光の干渉によるものである。マイケルソン干渉計の別ポートから出射したパルス対の光学干渉(図1(b))の形状は、約 2.7fs の振動の振る舞いとよく似ている。光干渉の影響を除いた、フォノン強度変化は、パルス対の時間間隔を変えることでダイヤモンド光学フォノンの強度をコヒーレントに制御できていることを示している。この結果は、パルス1で光学フォノン量子状態に情報を書き込み、パルス2でその状態を書き換え、パルス3で状態の読み出しを行ったと理解することができる。

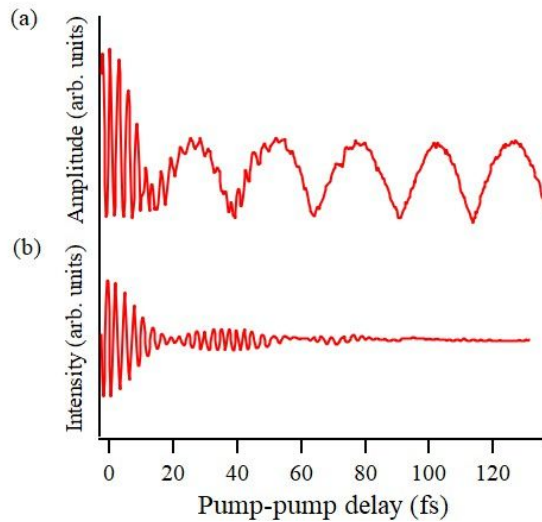


図1 (a)ダイヤモンド光学フォノン強度の励起パルス間隔依存性、(b) 励起パルス対の光学干渉(Fig.4 of the paper. Kimata, K. G. Nakamura et al., Phys. Rev. B 101, 174301(2020))

## (2) 透明領域での光学フォノンのコヒーレント制御理論

電子状態を2順位とするモデルを考え、系のハミルトニアンを

$$H = \hbar\omega b^\dagger b |g\rangle\langle g| + [\epsilon + \hbar\omega b^\dagger b + \alpha(b + b^\dagger)] |e\rangle\langle e|$$

とした。ここで、 $|g\rangle$ は電子基底状態、 $|e\rangle$ はエネルギー $\epsilon$ を持つ電子励起状態であり、 $\omega$ はフォノンの角振動数、 $b^\dagger$ と $b$ はフォノンの生成消滅演算子である。 $\alpha$ は電子フォノン相互作用を表す定数である。光学フォノン光はゼロフォノン状態 $|0\rangle$ と1フォノン状態 $|1\rangle$ の2準位を考えた。パルスとの相互作用は双極子相互作用を考え、2パルス励起でのコヒーレントフォノン生成過程を密度演算子形式の運動方程式を解いて計算した。得られた密度演算子は

$$\rho(t) = \alpha \left(\frac{\mu}{\hbar}\right)^2 e^{-i\omega t} \sum_{j=1}^2 \sum_{k=1}^2 \int_{-\infty}^t dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 E_j(t_1) E_k(t_2) \times e^{-\frac{i}{\hbar}\epsilon(t_2-t_1)} (e^{i\omega t_1} - e^{i\omega t_2}) |g, 1\rangle\langle g, 0| + H.c.$$

である。ここで、 $|g, 1\rangle$ と $|g, 0\rangle$ はそれぞれ1フォノンとゼロフォノンを持つ電子基底状態の状態ベクトルである。また、 $\mu$ は電気双極子モーメント、 $E_j$ はj番目の光パルス電場を表す。ここで、 $j = k$ の場合は1パルスの電場との相互作用だけでフォノンが励起される場合、 $j \neq k$ の場合は両方のポンプパルスとの相互作用でフォノンが励起される場合に対応する。サブ10fsの光パルスでは、スペクトルバンド幅が大きくチャープの影響を受けやすい。ここでは、線形チャープを仮定し、5つのガウス型包絡線を持つパルス電場形状を用いた。

$$E_1(t) = \sum_{k=1}^5 E_k \exp(-t^2/\sigma_k^2) \cos[2\pi(\Omega_k + \theta t)t]$$

ここで、 $E_k$ 、 $\sigma_k$ 、 $\Omega_k$ はそれぞれk番目のガウスパルスに対する電場強度、パルス幅、角振動数であり、線形チャープ $\theta$ は成分によらず同じ値とした。各パラメータは1次光学干渉を再現できるように決定した。フォノン変位の期待値は変位演算子 $Q = \sqrt{\hbar/2\omega}(b^\dagger + b)$ を用いて $\langle Q(t) \rangle =$

$Tr\{Q\rho\}$ で計算される。また、プローブ過程において、同様の2次の摂動計算を用いると透過光強度変化のヘテロダイン検出では、検出強度がフォノン分極とプローブ電場の積の虚数部に比例することから、コヒーレントに誘起されたフォノン振幅と同じ振る舞いを示すことを、ガウスパルスを用いて導くことができた。

フォノン振幅の励起パルス対時間間隔依存性の理論計算結果を図2(b)に示す。

実験結果図2(a)を良く再現することができた。また、 $j \neq k$ の場合を除いたフォノン干渉だけの理論計算結果を図2(c)に示す。この結果は、光干渉成分を除くとフォノン強度が各励起光パルスによって生成したフォノン状態の干渉によって制御されていることを示している。

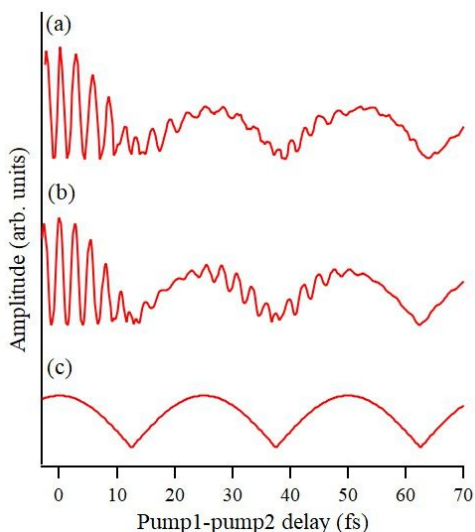


図2 (a)ダイヤモンド光学フォノンの励起パルス間隔依存性の実験結果、(b) ダイヤモンド光学フォノンの励起パルス間隔依存性の理論計算結果、(c)光干渉効果を除いたフォノン強度の理論計算結果 (Fig.5 of the paper. Kimata, K. G. Nakamura et al., Phys. Rev. B 101, 174301(2020).)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sasaki Hiroya, Tanaka Riho, Okano Yasuaki, Minami Fujio, Kayanuma Yosuke, Shikano Yutaka, Nakamura Kazutaka G.	4. 巻 8
2. 論文標題 Coherent control theory and experiment of optical phonons in diamond	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 9609.1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-018-27734-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 T. Kimata, K. Yoda, H. Matsumoto, H. Tanabe, F. Minami, Y. Kayanuma, and K. G. Nakamura	4. 巻 101
2. 論文標題 Coherent control of 40-THz optical phonons in diamond using femtosecond optical pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174301.1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.174301	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 3件/うち国際学会 6件）

1. 発表者名 田邊弘行、木全哲也、松本花菜、萱沼洋輔、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 フェムト秒パルス対を用いた40THzダイヤモンド光学フォノンのコヒーレント制御の理論計算
3. 学会等名 第30回光物性研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. G. Nakamura, K. Yoda, H. Matsumoto, T. Kimata, and Y. Kayanuma
2. 発表標題 Coherent control of optical phonons in diamond with femtosecond infrared pulses
3. 学会等名 30th International Conference on Diamond and Carbon Materials
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazutaka G. Nakamura
2. 発表標題 Coherent control of 40-THz optical phonons in diamond using a pair of femtosecond optical pulses
3. 学会等名 International Conference on Materials for Advanced Technologies (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田邊弘行、木全哲也、松本花菜、萱沼洋輔、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 フェムト秒パルス対を用いた40THzダイヤモンド光学フォノンのコヒーレント制御の理論計算
3. 学会等名 第30回光物性研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. G. Nakamura, K. Yoda, H. Matsumoto, T. Kimata, and Y. Kayanuma
2. 発表標題 Coherent control of optical phonons in diamond with femtosecond infrared pulses
3. 学会等名 30th International Conference on Diamond and Carbon Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazutaka G Nakamura
2. 発表標題 Coherent control of 40-THz optical phonons in a diamond crystal
3. 学会等名 The 9th Shanghai-Tokyo Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazutaka G Nakamura, iroya. Sasaki, Riho Tanaka, Yasuaki Okano, Fujio Minami, Yosuke Kayanuma, Yutaka Shikano
2. 発表標題 Coherent control theory and experiment of optical phonons in diamond
3. 学会等名 International Conference on Challenges in Quantum Information Science (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松本花菜、依田和磨、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 相対位相制御フェムト秒パルス対を用いた40-THzダイヤモンド光学フォノンの制御 (
3. 学会等名 第29回光物性研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 依田和磨、松本花菜、木全哲也、南不二雄、中村一隆
2. 発表標題 フェムト秒パルス対を用いたダイヤモンド光学フォノンのコヒーレント制御
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazutaka G Nakamura
2. 発表標題 Coherent Control of 40-THz Optical Phonons in Diamond Using a pair of Femtosecond Optical
3. 学会等名 10th International Conference on Materials for Advanced Technologies (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木寛弥、田中利歩、岡野泰彬、南不二雄、萱沼洋輔、鹿野豊、中村一隆
2. 発表標題 ダイヤモンド中のコヒーレントフォノンに対する量子制御
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鹿野豊、佐々木寛弥、田中利歩、岡野泰彬、南不二雄、萱沼洋輔、中村一隆
2. 発表標題 コヒーレントフォノンのコヒーレント制御に関する理論
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Okano, H. Sasaki, R. Tanaka, F. Minami, Y. Kayanma, Y. Shikano, and K. G. Nakamura
2. 発表標題 Coherent control of 40 THz optical phonons in diamond
3. 学会等名 QNO 2108 International Conference on Quantum & Nonlinear Optics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 依田和磨、田中利歩、奥田悠貴、加瀬麟太郎、中村一隆
2. 発表標題 フェムト秒パルスを用いたダイヤモンド光学フォノンのコヒーレント制御
3. 学会等名 第28回光物性研究会
4. 発表年 2017年



1. 発表者名 Y. Okano, H. Sasaki, R. Tanaka, F. Minami, Y. Kayanuma, Y. Shikano, and K. G. Nakamura
2. 発表標題 Coherent control of optical phonons in diamond using a pair of femtosecond pulses
3. 学会等名 第37回量子情報研究会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Kazutaka Nakamura	4. 発行年 2019年
2. 出版社 Springer Nature Switzerland AG	5. 総ページ数 142
3. 書名 Quantum Phononics: Introduction to Ultrafast Dynamics of Optical Phonons	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>超短パルス光を用いてダイヤモンドの光学フォノン量子状態を制御  <a href="https://www.titech.ac.jp/news/2018/041803.html">https://www.titech.ac.jp/news/2018/041803.html</a>          透明領域でダイヤモンド光学フォノンの光制御を再現  <a href="https://www.titech.ac.jp/news/2020/047084.html">https://www.titech.ac.jp/news/2020/047084.html</a></p>
---

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	萱沼 洋輔  (Kayanuma Yosuke)	東京工業大学	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	南 不二雄  (Minami Fujio)	東京工業大学	
研究協力者	鹿野 豊  (Shikano Yutaka)	慶應大学	
研究協力者	岡野 泰彬  (Okano Yasuaki)	分子科学研究所	