

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2019

課題番号：18K18847

研究課題名（和文）スクイズド光と光パルスの遅延合成による量子限界を超えるロックイン検出

研究課題名（英文）Lock-in detection beyond the quantum limit based on the delayed interference of squeezed light and optical pulses

研究代表者

小関 泰之（Ozeki, Yasuyuki）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・准教授

研究者番号：60437374

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）：非線形光学効果とロックイン検出を用いる分子イメージング法のさらなる感度向上に向けて、量子限界感度を超越する光パルスのロックイン検出法を提案・実証することを目的として研究を進めた。その結果、以下の成果が得られた。(1) 光損失がスクイーミングレベルに与える影響を明らかにした。(2) スクイズド光を用いるための超低損失光学系の要素技術として、アキシコンを用いたビーム整形法の検討と実証を行った。(3) パルスのチャープや結晶中の群速度分散がスクイーミングレベルに与える影響を明らかにした。(4) 現存するロックイン検出型顕微鏡を用いてホウ素クラスター化合物や植物試料などの計測実験を進めた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果の学術的意義は、スクイーミングという先端的な量子科学技術の応用を大きく広げ、様々な光学計測手法の性能の向上に貢献できる点である。特に、生体計測技術の高速化が急速に進展し、その計測感度限界が光の量子雑音にある現状を鑑みると、標準量子限界を超越する計測技術の創出は急務である。実際、本研究課題の申請書に記載した振幅スクイーミング法を誘導ラマン散乱顕微法に用いる報告が2020年にデンマーク・オーストラリアの量子光学グループが報告しており、また、同様に申請書記載の量子増強法の研究を研究代表者が継続している。残念ながら本研究提案の実証には至っていないが、今後の研究を通じて実証を図る予定である。

研究成果の概要（英文）：To further improve the sensitivity of molecular imaging methods using nonlinear optical effects and the lock-in detection, we proposed a lock-in detection method with ultrahigh sensitivity beyond the standard quantum limit. We have obtained the following results. (1) The effect of optical loss on the squeezing level was clarified. (2) A beam shaping method using axicons was examined and demonstrated to realize an ultra-low-loss optical system for using squeezed light. (3) The effects of pulse chirp and group velocity dispersion in the nonlinear-optical crystal on the squeezing level were clarified. (4) We conducted imaging experiments of boron cluster compounds and plant samples using the existing lock-in based microscope.

研究分野：光計測

キーワード：光パルス 生体イメージング 誘導ラマン散乱 量子光学 スクイーミング

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、非線形光学効果とロックイン検出を用いる高感度・高速観察可能な光学顕微鏡が相次いで提案・実証されている。特に、2色の光パルスを用いて分子振動を検出する誘導ラマン散乱顕微鏡法は、生体の無標識観察や代謝イメージングなどの新しい応用を生んでいる。しかし、ロックイン検出を用いる光学顕微鏡法の感度は標準量子限界で制限される。標準量子限界を打破するひとつの手法として、量子光学(スクイーミング)を用いる手法が考えられるが、ロックイン検出型光学顕微鏡法への適用可能性は明らかでなかった。

光学顕微鏡法に量子光学を適用する方式として、研究提案時に比較検討した3方式を図1に示す(研究提案書より引用)。(a)は光パラメトリック増幅を用いて振幅スクイズした光を発生させて用いる方式、(b)は非対称ビームスプリッタを用いてスクイズド真空場の平均複素振幅に変位を与える方式である。これらは、スクイーミングレベルを高めようとすると光パワー損失が生じるという課題が残される。とはいえ、これらは2020年にデンマークとオーストラリアの研究グループから誘導ラマン散乱(SRS)顕微鏡法に適用する報告が相次いでなされた。(c)はバランスド検出においてビーム分割部にスクイズド真空場を導入する方式であり、本研究開始後の2018年10月から研究代表者がJST-CRESTで研究を進めている。この方式は、光パワー損失を小さく抑えることができる点で(a)(b)より優れるものの、フォトダイオード(PD)を2個使う必要があることから、(a)(b)と比較して雑音が3dB大きくなる点が課題であると考えられた。

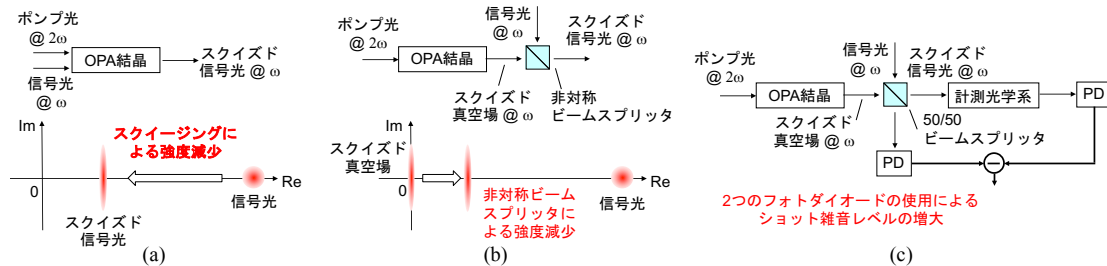


図1. 光学顕微鏡法におけるスクイズド光の使用法。(a) 振幅スクイーミング法。(b) 非対称ビームスプリッタによる真空場と信号光の振幅合成。(c) バランスド検出法。

2. 研究の目的

本研究の目的は、ロックイン型非線形光学顕微鏡への応用を狙い、量子限界感度を超越する光パルスのロックイン検出法を新規提案し、本手法の超低雑音性を実証することである。具体的には、図2に示すように、ビームスプリッタ出力光を直交偏波で遅延合成することでツインパルスを生成する。このツインパルスを受光すると、特定周波数のみにおいて強度雑音が低減されるはずである。雑音が低減される周波数は、ツインパルスの遅延の逆数で決まり、パルスの繰り返し周波数よりも高い周波数、すなわち高次ナイキスト領域での雑音抑制も可能である。この手法は使用するPDが1つで済むことから、光パワー・雑音レベルのいずれの点においても従来手法を凌駕する性能を実現できる可能性がある。

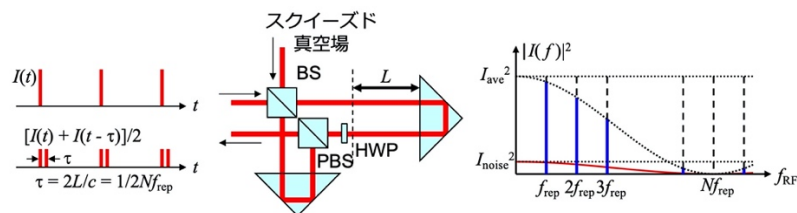


図2. 本課題において提案した高次ナイキスト領域における雑音抑圧法。

3. 研究の方法

図2の提案手法の実現に向けて、以下の研究を進めた。

- (1) 光損失がスクイーミングレベルに与える影響について明らかにするとともに、スクイズドバランスド検出法(図1(a))との比較を行った。
- (2) スクイズド状態を保持するための超低損失光学系を検討した。具体的には、アキシコンを用いてビームを整形することで対物レンズの瞳でのケラレを低減する手法の実証を行った。
- (3) パルススクイーミング系の検討と構築を進めた。特に、非線形光学結晶中の群速度分散や、基本波と第二高調波の群速度差に由来するウォークオフがスクイーミングレベルに与える影響を詳細に調べた。
- (4) SRS イメージング実験。既存の SRS 顕微鏡を用いて様々な試料を観察し、新しい応用を開拓した。

4. 研究成果

(1) 光損失がスクイージングレベルに与える影響の理論検討

スクイーズド光に対して光損失を与えるとスクイージングレベルが低下することが知られている。このことは、光損失をビームスプリッタでモデル化すると、スクイーズド光と真空場が結合するためであることはよく知られている。理論的には、提案手法(図2)において光損失がスクイージングレベルに与える影響は図1(a)の振幅スクイージングと同じである。一方、図1(c)のバランス検出においては、スクイーズド光をビームスプリッタで2分割して一方のみが計測光学系で光損失を受けるため、損失の影響が半分になることがわかった。図1(c)の方式が元々の雑音レベルが3 dB高いこととあわせて考えると、計測光学系の損失によるスクイージングレベルの制限は、提案手法(図2)とバランス検出(図1(c))とでほぼ同じになる。さらに、コヒーレント光、スクイーズド光、真空場の3つのモードの光の量子状態を3次元の波動関数として考えると、ビームスプリッタを波動関数の回転として捉えることで、これらの点を直感的に捉えることができることを見出した。(論文投稿準備中)

(2) 超低損失光学系の検討

SRS顕微鏡においてスクイーズド光を用いるためには、光学系の損失低減が不可欠である。しかし、レーザー顕微鏡ではビームを拡大して対物レンズに入射する必要があり、瞳によってビームのケラレが発生し、光損失が生じる。一方、ビームを縮小するとケラレは低減できるが、空間分解能が低下してしまう。

この問題を解決する方式として、アキシコンを用いたビーム整形法の検討と実証を行った。図3に示すように、2枚のアキシコンを用いてリング状のビームを作り、顕微鏡の対物レンズに導入する。一般的なビーム拡大系を用いた場合と比較して、透過率を1.4倍以上改善できることがわかった。また、本構成を用いたSRSイメージングも行い、一般的なSRSを凌駕する空間分解能と信号強度が得られることを確認した。(J. Opt. Soc. B, 2019)

なお、アキシコンを用いたビーム整形法そのものは広く使われている。しかし、従来のアキシコンを用いたビーム整形では、アキシコン間の距離を離すことで細いリング状のビームパターンを作り、それを対物レンズで集光することで、焦点距離の長い、いわゆるベッセルビームを生成することが多かった。しかし、ベッセルビームでは光のエネルギーが焦点距離内に分散するため、顕微鏡に応用すると信号レベルが著しく低下してしまう。本研究は、アキシコン間距離を適切に設定することで、対物での透過率と信号強度の両立が可能であることを示したものである。

(3) パルススクイージング系の検討と構築

スクイージング実験に先立ち、パルススクイージング系の検討と構築を進めた。まず、SRS顕微鏡で用いるピコ秒パルスが非線形光学結晶の群速度分散や群遅延分散でどのような影響を受けるかについて詳細な検討を行った。その結果、所望のスクイージングレベルを得るための群速度分散の上限を与えるシンプルな関係を見出すとともに、群遅延分散によってスクイーズド光の時間波形が伸長する効果を定量的に明らかにすることができた。(J. Opt. Soc. B, 2020)

さらに、非線形光学結晶の選定を進め、バルクおよび光導波路型周期分極反転 Stoichiometric LiTaO₃ 結晶を入手し、第2次高調波発生(SHG)による評価を進めた。

(4) SRS イメージングの応用

現存するSRS顕微鏡を用いて様々な化合物や生体試料の計測実験を進めた。具体的には、ホウ素クラスター化合物が細胞へ取り込まれる様子をホウ素-水素伸縮振動を用いて検出したり(APEX, 2019)、植物の細胞内代謝物を可視化することに成功している(論文投稿準備中)。また、ロックイン型顕微鏡のひとつである誘導放出顕微鏡用の光検出回路に関して国際共同研究を進めた(Opt. Express, 2019)。

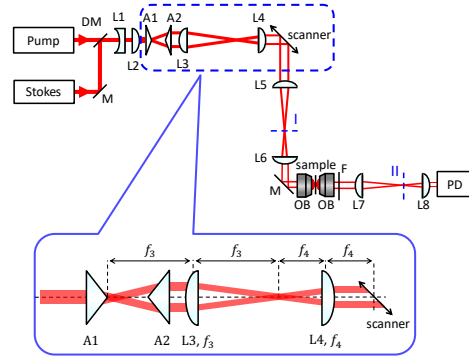


図3. アキシコンによるビーム整形法を用いたSRS顕微鏡の光学系。

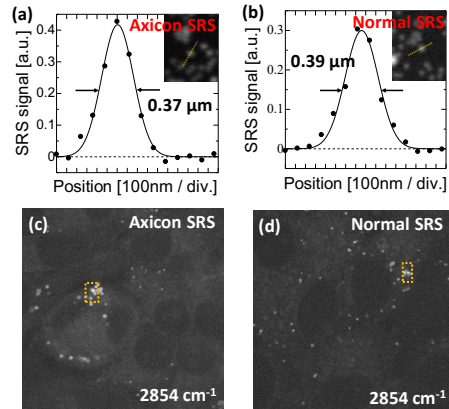


図4. SRSイメージング結果。(a)(b) 直径0.3 μmのポリスチレンビーズの画像とクロスセクション。(c)(d) HeLa細胞のイメージング結果。(a)(c) アキシコンを使用した場合。(b)(d) アキシコンを使用しない、従来のSRSイメージングの場合。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 N. Ochiai, J. Shou, and Y. Ozeki	4. 巻 37
2. 論文標題 Axicon-based beam shaping for low loss nonlinear microscopic optics	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Opt. Soc. Am. B	6. 最初と最後の頁 1535-1539
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1364/JOSAB.36.001342	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 -
1. 著者名 S. Das, Y.-C. Liang, S. Tanaka, Y. Ozeki, and F.-J. Kao	4. 巻 27
2. 論文標題 Synchronized subharmonic modulation in stimulated emission microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 27159-27167
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1364/OE.27.027159	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 該当する
1. 著者名 T. Asai, H. Liu, Y. Ozeki, S. Sato, T. Hayashi, and H. Nakamura	4. 巻 12
2. 論文標題 Imaging of cellular uptake of boron cluster compound by stimulated Raman scattering microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Express	6. 最初と最後の頁 112004
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.7567/1882-0786/ab4a5d	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 -
1. 著者名 Y. Taguchi and Y. Ozeki	4. 巻 37
2. 論文標題 Time-domain analysis on the pulsed squeezed vacuum detected with picosecond pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Opt. Soc. Am. B	6. 最初と最後の頁 1535-1539
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1364/JOSAB.389039	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11件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 落合夏葉、寿景文、小関泰之
2. 発表標題 低損失顕微光学系のためのアキシコンを用いたビーム整形法
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会、9a-W641-7、2019年3月9日
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Natsuha Ochiai, Jingwen Shou, Yasuyuki Ozeki
2. 発表標題 Beam Shaping with Axicons for Low Loss Microscopy Optics
3. 学会等名 CLEO:2918, JW2A.83 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Taguchi and Y. Ozeki
2. 発表標題 Time-domain analysis on the impacts of chirp and walk-off in picosecond pulsed squeezing
3. 学会等名 CLEO:2020, JTh2A.26 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 N. Ochiai and Y. Ozeki
2. 発表標題 Realization of ultra-low-loss microscopic optics for quantum-enhanced imaging
3. 学会等名 CLEO:2020, JW2A.9 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 落合夏葉、小関泰之
2. 発表標題 量子増強イメージングのための低損失顕微光学系の実証
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会、14p-B406-2
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 落合 夏葉、寿 景文、飯野 敬矩、小関 泰之
2. 発表標題 量子増強イメージングのための顕微光学系の透過率評価
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会、21a-E207-3
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田口 富隆、小関 泰之
2. 発表標題 パルススクイーミングにおけるチャープ及びウォークオフの影響
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会、21a-E207-4
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 浅井卓也、劉寒沁、小関泰之、林智広、佐藤伸一、中村浩之
2. 発表標題 ホウ素クラスター化合物の生細胞への取り込みの誘導ラマンイメージング
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会、9a-W641-6
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小関泰之
2. 発表標題 高機能パルスレーザーによる誘導ラマンイメージング
3. 学会等名 超高速光エレクトロニクス研究会第1回研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小関泰之
2. 発表標題 生体分子イメージングにおける量子増強に向けて
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会シンポジウム「光が拓く量子技術の新展開」、19p-E301-3（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小関泰之
2. 発表標題 誘導ラマン散乱による生体の振動分光イメージング
3. 学会等名 フォトニクスイノベーションセミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------	---------------------------	-----------------------	----