

令和 4 年 9 月 13 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02632

研究課題名(和文)量子イルミネーション法による赤外域単一ショット全光学超高速連写イメージング計測

研究課題名(英文)Single-shot ultrafast burst imaging in infrared band by quantum illumination scheme

研究代表者

神成 文彦(Kannari, Fumihiko)

慶應義塾大学・理工学部(矢上)・教授

研究者番号：40204804

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：量子イルミネーション法に単一ショットコマ撮り超高速イメージング法(LA-STAMP)を組み合わせることで、CCDカメラでは計測できない中赤外域における超高速イメージング(量子STAMP)を実現することを目的として研究を行った。高利得な自発光パラメトリック変換(SPDC)を用いても実現できる条件を理論的に明らかにした上で、2台のSPDCにおいて、初段で発生したアイドル光(2400nm)によるプローブ特性を2段目のシグナル光(480nm)に転写させることで、2つのシグナル光の干渉からアイドル光がプローブした位相・振幅イメージをシグナル光の波長で計測できることをはじめてパルスモードで成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

中赤外光は可視・紫外光に比べて散乱係数が低いため生体等の散乱性材料に対し比較的高い透過特性を持つ。一方で、多くの有機化学結合の振動モードに共鳴した吸収を示すため、化学物質のセンシングや生体イメージング等に用いられてきた。この中赤外光を超高速イメージングへ応用し、超高速励起時の分子振動モードやプラズモンモードに起因した光励起吸収の高速過渡特性を、とくに単一イベントに対して連続イメージ撮影したいという要望が近年高まっている。本研究で実現したパルス量子イルミネーションは、中赤外プローブ光の計測結果を可視光に転写できる手法であり、CCDカメラでの中赤外超高速イメージングを可能にする。

研究成果の概要(英文)：By combining the quantum illumination method with the single-shot ultra-fast burst imaging method (LA-STAMP), we conducted research with the aim of realizing ultra-high-speed imaging (quantum STAMP) in the mid-infrared region, which cannot be measured by CCD cameras. After theoretically clarifying the conditions that can be realized even by using high-gain spontaneous parametric down conversion (SPDC), the probe characteristics for both spatial amplitude and phase of the idler light (2400 nm) generated in the first stage of the two SPDCs were successfully recovered in the interference of two signal light (480 nm). This is the first demonstration of the quantum illumination in pulse mode.

研究分野：超高速光科学

キーワード：フェムト秒レーザー 超高速イメージング 量子光学 中赤外イメージング 光パラメトリック変換

1. 研究開始当初の背景

中赤外光は可視・紫外光に比べて散乱係数が低いため生体等の散乱性材料に対し比較的高い透過特性を持つ。一方で、多くの有機化学結合の振動モードに共鳴した吸収を示すため、化学物質のセンシングや生体イメージング等に用いられてきた。この中赤外光を超高速度イメージングへ応用し、超高速度励起時の分子振動モードやプラズモンモードに起因した光励起吸収の高速過渡特性を、とくに単一イベントに対して連続イメージ撮影したいという要望が近年高まっている。

一方、ナノ秒以下の時間窓において、サブピコ秒からサブナノ秒の時間分解を有して単一ショットでコマドリ撮影が可能な手法が開発されている。中でも、筆者らが開発した LA-STAMP (Sequentially Timed All-optical Mapping Photography utilizing Lenslet Array) [1]は、時間的に線形に瞬時周波数がシフトした周波数チャープパルスを探光パルスとして用いた場合、パルスの瞬時周波数と時間の間に一対一の対応を持ちながら撮影できることを利用する。波長分解マルチイメージを個々に空間的に分離しカメラで撮像することで、異なる時刻の透過イメージを単一ショットで撮影することができる優れた手法である。すでに、近赤外フェムト秒レーザーパルスを用いて、ピコ秒からナノ秒の時間窓において高速撮影を実現している。しかし、中赤外域波長の場合、InGaAsなどの撮像素子がCCD/CMOSなどの可視域検出器と比較して検出感度やノイズレベルなどの性能において著しく劣っているのが現状である。よって単一ショット中赤外域超高速度イメージングへの展開は未だなされていない。中赤外探光の空間イメージを維持したまま非線形光学効果を用いて周波数上昇変換しCCDカメラで撮影することは原理的には可能であるが、性能の良い空間イメージ波長変換は実現されていない。

2. 研究の目的

近年、中赤外域検出器の問題を解決できる非線形量子干渉法が提案された。中赤外光探光で捉えた強度および位相の空間情報イメージを、光パラメトリック効果を用いて可視光に転写することが可能であり、間接的に赤外イメージを可視域検出器で撮影できることが報告された[2]。単なる光パラメトリック増幅器によるアイトラ入力光からシグナル光への周波数上昇変換イメージ転写においては位相情報の転写はできないので、非線形量子干渉法と呼ばれる。

我々は、この非線形量子干渉法をフェムト秒レーザーパルスを用いて実現できれば、LA-STAMPが中赤外波長域において可能になることに着目し、探光パルスに求められる条件を理論解析より明らかにし、実際に実験装置を構築して原理実証することを目的として研究を行った。

3. 研究の方法

(1) 非線形量子干渉イメージング法の理論解析

非線形量子干渉を用いたイメージングの動作を、図1を用いて説明する。最初の非線形結晶(NL1)における自発光パラメトリック下降変換(SPDC)によってシグナル光(可視域)およびアイトラ光(中赤外域)を生成する。アイトラ光はオブジェクト(O)を通過後2つ目の非線形結晶(NL2)にシードされ、新たにSPDCでシグナル光を生成する。その際、オブジェクトの空間情報はシグナル光へと転写される。2つのシグナル光をビームスプリッターで干渉させ、一方を光子検出器によって検出することで、オブジェクトの空間的振幅および位相情報が再現できる。

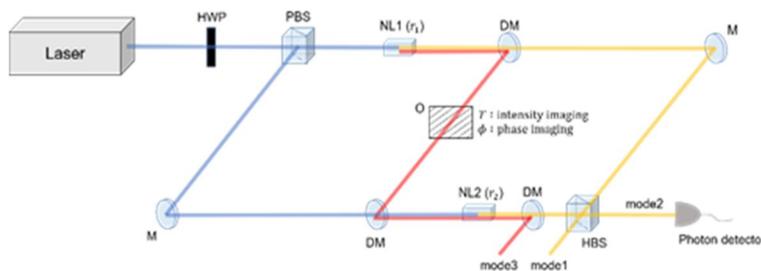


図1 非線形量子干渉イメージングの動作

この手法は、すでに単一光子対を用いた2つのシグナル光の同時検出によって実証されているが、2つの非線形結晶における非線形利得の比率がある条件を満たし、2つのシグナル光の強度が釣り合えば、単一光子性を満たさない高利得領域で非線形結晶を励起した場合においてもシグナル光間の干渉が見られることがその後の研究から示されている[3]。高利得領域では低利得領域の場合と比較して干渉のSN比も向上できる利点がある。

我々は、非線形利得比率がその最適条件を満たした場合には、低利得・高利得に関わらず任意の非線形利得領域において強度・位相イメージングが可能であるかを理論解析から調べた。その

際、非常に簡便な解析手法として、ビームスプリッタによる干渉や2次の非線形効果などをそれぞれに固有なシンプレクティック行列として表すシンプレクティック解析を利用した[4]。この方法では、入力状態の共分散行列にシンプレクティック行列を乗算するだけで出力状態の共分散行列を取得し、平均強度等を知ることができる。量子状態における解析と古典状態における解析は別物として扱われることが多いが、シンプレクティック解析を利用することによって古典と量子をシームレスに捉えることができるという利点を持ち、低利得、高利得と分けることなく統一して解析を行うことができる。

(2) 周波数チャープ励起パルスを用いた LA-STAMP に向けたフェムト秒域での非線形量子干渉イメージング原理実証実験

構築した実験セットアップを図2に示す。励起用レーザーは、中心波長800 nm、スペクトル幅15.7 nm(FWHM)、時間幅59.9 fs(FWHM)、繰り返し周波数1 kHzのパルスレーザーである。これをガラス棒(N-SF11, $3.75 \times 10^4 \text{ fs}^2$)によってチャープさせた後、type-I β -BBO (結晶長2 mm)によって第二高調波を発生し、中心波長400 nm、スペクトル幅5.05 nm(FWHM)、時間幅2.23 ps(FWHM)、平均パワー16 mWのチャープパルスを生成し励起に用いた。励起光をチャープさせたのは、STAM 計測のためである。SPDC 用非線形結晶には、分極反転周期11.8 μm の type-II PPKTP 結晶($1 \times 2 \times 5 \text{ mm}$)を用い、別途計測した JSA (Joint Spectral Amplitude)に従った位相整合より480 nmシグナル光と2400 nmアイドラ光を生成した。励起レーザー強度と生成光子数が比例する低利得領域での動作であることを確認し、理論解析の結果にもとづき強度分岐比は1:2とした。今回はシグナル光とアイドラ光を分波せず、同時に2つ目の結晶に入射させ、結晶内分極干渉により非線形量子干渉を実現した。SPDCにより生成する熱放射状態の微弱シグナル光同士を干渉させることになるが、レーザー光のようなコヒーレント光とは異なり一般的に空間コヒーレンスがない。SPDC発生面に対し干渉面をイメージ面、もしくはフーリエ面の関係にすることで空間コヒーレンスを得られるので、イメージリレー光学系で光子干渉条件を満たすようにした。

2つの結晶間のイメージ面に480 nmに対しては透過し(87%),2400 nmに対して非透過(0%)なガラスフィルタを挿入し、アイドラ光の有無による非線形量子干渉の変化を観測した。この際、干渉路を安定化させるために、干渉信号とピエゾ圧電素子を利用したPID距離制御を行った。

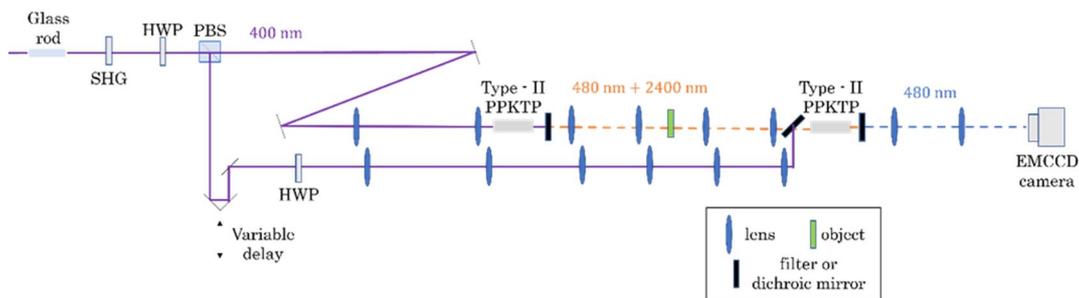


図2 フェムト秒レーザーパルス励起非線形量子干渉イメージングの実験セットアップ

4. 研究成果

(1) 非線形量子干渉イメージング法の理論解析

図1における mode1 から mode3 までの3つのモードについて出力を解析した。シンプレクティック解析において、図1における NL1、Oの透過率と位相変化、NL2、HBSはそれぞれ固有の行列 N_1 、 O_T 、 O_ϕ 、 N_2 、 B として表され、入力・出力状態は正準位置、正準運動量表記における共分散行列 σ_{in} 、 σ_{out} と表される。ここで入力状態は3つのモードについて真空であり、 σ_{in} は単位行列となる。各素子の行列を作用する順番に積算したシンプレクティック行列 $S = BN_2O_\phi O_T N_1$ を用いて、出力状態の共分散行列は $\sigma_{out} = S_{total}\sigma_{in}S_{total}^T = S_{total}S_{total}^T$ と計算できる。共分散行列の定義により、ここから各モードにおける部分行列を取り出し、出力光子数を計算した。今回は2つの結晶において完全に同一の非線形効果が起こっているため、結晶の非線形ゲイン r_1 、 r_2 はレーザーからのパワーに比例する値 p とそのPBSによるパワー分岐比 k によって次のように表すことができる。

$$r_1 = pk \quad (1)$$

$$r_2 = p(1-k) \quad (2)$$

イメージング性能を評価するにあたって、検出光子数のオブジェクト特性変化(振幅および位相: T ,)に対する単調性とビジビリティで評価した。ここでビジビリティは下式で表され、イ

メージのコントラスト比を表している。

$$V = \frac{n_{max} - n_{min}}{n_{max} + n_{min}} \quad (3)$$

ただし、 n_{max} は最大検出光子数、 n_{min} は最小検出光子数である。

まず単調性の解析結果を図3(強度イメージング)と図4(位相イメージング)に示す。

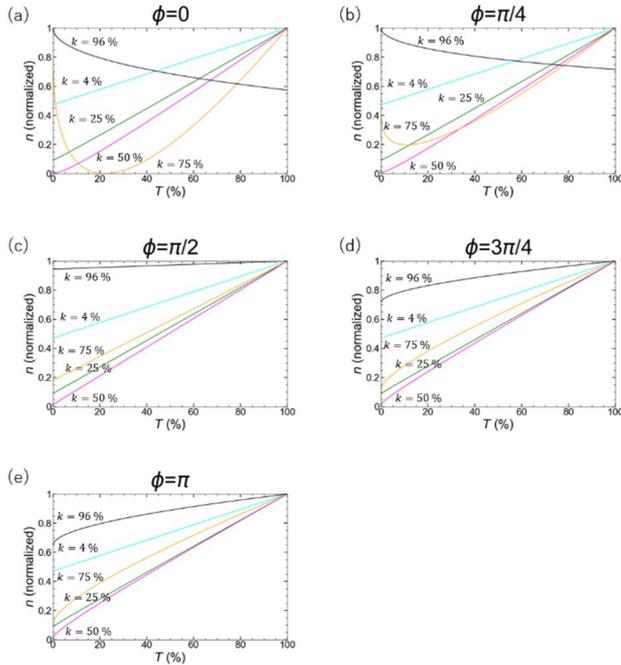


図3 オブジェクト透過率に対する検出光子数(振幅イメージ強度)。励起パワー分岐比 k を4%, 25%, 50%, 75%, and 96%として計算し、位相シフト ϕ は、(a)0, (b) $\pi/4$, (c) $\pi/2$, (d) $3\pi/4$, and (e) π とした。パワー強度に対応するパラメータは $p = 6$ とした。

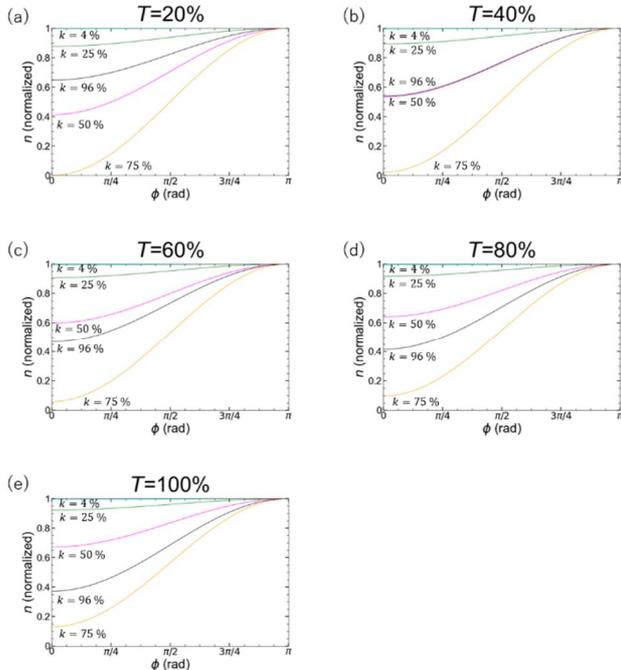


図4 オブジェクト位相変化に対する検出光子数(位相イメージ強度)。励起パワー分岐比 k を4%, 25%, 50%, 75%, and 96%として計算し、透過率 T は、(a)20%, (b)40%, (c)60%, (d)80%, and (e)100%とした。パワー強度に対応するパラメータは $p = 6$ とした。

強度イメージングにおいては、 $\phi = \pi/2$ から $\phi = \pi$ の範囲にあるという条件において、全ての T で単調性が保たれる。この位相条件は遅延操作や位相シフトなどにより容易に実現される。一方、位相イメージングにおいては T による単調性への影響はないが、 $\phi = 0$ から $\phi = \pi$ の範囲に制限される。これ以上の位相差を明確に特定することはできないことが明らかになった。

続いて、図3と図4の結果から最大・最小検出光子数を取得し、ビジビリティを計算した。その結果を図5に示す。ここで $p = 0.5$ とは、分岐比 $k = 0.5$ に設定した場合モード1における平均光子数が0.01となり、単一光子による干渉を想定する上で十分低い値となる。また、 $p = 3, 6, 9$ とは、分岐比 $k = 0.5$ に設定した場合結晶における非線形ゲインがそれぞれ7.4 dB、20 dB、33 dBとなるような値であり、単一光子条件外である。強度・位相イメージング双方において、単一光子性の有無によらず、パワー分岐比 k を適切に設定すれば高いビジビリティを持ってイメージングが実現できることが明らかになった。

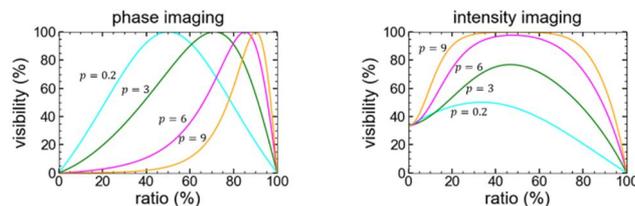


図5 励起パワー分岐比に対する干渉ビジビリティ の変化。 $p = 0.2$ (低利得領域) and $p = 3, 6,$ and 9 (高利得領域)について計算した。 : (a)位相イメージ、 (b) 振幅イメージ。

(2) 周波数チャープ励起パルスを用いた LA-STAMP に向けたフェムト秒域での非線形量子干渉イメージング原理実証実験

図 3 の実験において、アイドラ光を半分隠した時のシグナル光干渉イメージを EM-CCD カメラで計測した結果を図 6 に示す。

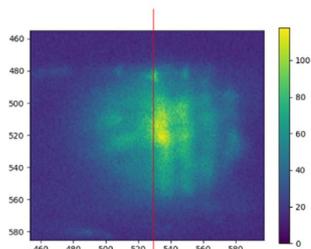


図 6 オブジェクトとしてアイドラ光を遮るガラスフィルタをアイドラ光の左半分にした場合の、シグナル光干渉イメージ。

赤線より左側をガラスフィルタによって覆っている。覆っていない右半分はアイドラシード光のもとでシグナル光が発生しているため非線形量子干渉を起こしている。一方、左半分ではシグナル光子の干渉が生じていない。ガラスフィルタによる光路長の変化を補償するために、シグナル光の遅延をずらしてみたが、フィルタで覆っている方には干渉が観測されなかったため、計測結果は遅延差による影響ではないことは確認した。つまり、アイドラシード光子の有無によってシグナル光子の干渉の有無が明確に切り替わることが確認できた。

次に、ガラスフィルタの位置を $20 \mu\text{m}$ 刻みでずらした時に、非線形量子干渉によってそのイメージが再生される様子を図 7 に示す。干渉が現れる空間が左にシフトしている様子が確認でき、アイドラプローブによるイメージ計測ができていることを確認した。

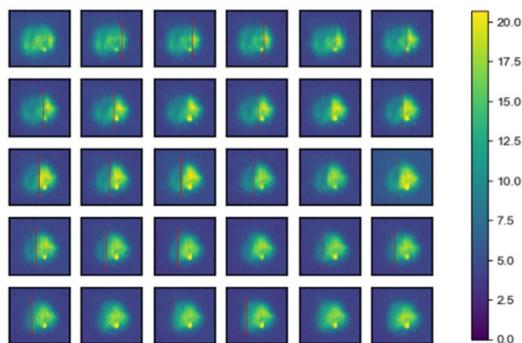


図 7 シグナル光を遮るガラスフィルタの位置を左側に $20 \mu\text{m}$ 刻みで移動させた時のシグナル光干渉イメージ。図中の赤線がガラスフィルタのエッジの位置に対応する。

理論解析により、あらゆる非線形利得領域においてイメージングが可能であることが分かったが、実際には、非線形結晶の光学損傷の問題で励起光強度に限界があり、SPDC で発生できる光子数を大きくできない。 80×80 pixel の EM-CCD で単一ショット撮影した場合、1 ピクセル当たりの最大光子数が 0.2 光子にしかならない計算になるため、本実験では重ね撮りで検出した。従って、シグナル光の干渉イメージを LA-STAMP でスペクトルイメージ撮影する場合、単一ショット撮影は中々困難である。口径の大きな非線形光学素子での高い SPDC 光子数発生が必要となる。

< 引用文献 >

[1] H. Nemoto *et al.*, “Single-shot ultrafast burst imaging using an integral field spectroscopy with a microlens array,” *Opt. Lett.* **45**, 5004 (2020).
 [2] G. B. Lemos *et al.*, “Quantum imaging with undetected photons,” *Nature* **512**, 409 (2014).
 [3] M. I. Kolobov *et al.*, “Controlling induced coherence for quantum imaging,” *J. Opt.* **19**, 054003 (2017).
 [4] S. L. Braunstein and P. van Loock, “Quantum information with continuous variables,” *Rev. Mod. Phys.* **77**, 513 (2005).

5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Hirofumi Nemoto, Takakazu Suzuki, Fumihiko Kannari	4. 巻 45
2. 論文標題 Single-shot ultrafast burst imaging using an integral field spectroscopy with a microlens array	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 5004-5007
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.398036	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5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 高橋和輝, 渡瀬 陸, 保坂 有杜, 神成 文彦
2. 発表標題 単一光子性が満たされない条件下での非線形量子干渉イメージングの理論解析
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第41回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋 和輝, 渡瀬 陸, 保坂 有杜, 神成 文彦
2. 発表標題 単一光子条件外における非線形干渉量子イメージングの実現性に関する理論解析
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kazuki Takahashi, Riku Watase, Aruto Hosaka, Fumihiko Kannari
2. 発表標題 MIR single-shot ultrafast imaging with a combination of SF-STAMP and quantum imaging based on induced coherence with induced emission
3. 学会等名 10th Advanced Lasers and Photon Sources Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hirofumi Nemoto, Takakazu Suzuki, Kazuki Matsushita, Kazuki Takasawa, Fumihiko Kannari
2. 発表標題 Ultrafast single-shot burst imaging in a few-nanosecond window using a spectrally sweeping laser pulse train
3. 学会等名 The Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe and the European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC 2019), CC-3.6, Munich, Germany, (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takakazu Suzuki, Hirofumi Nemoto, Kazuki Takasawa, Fumihiko Kannari,
2. 発表標題 1000-fps consecutive ultrafast 2D-burst imaging with a sub-nanosecond temporal resolution by a frequency-time encoding of SF-STAMP
3. 学会等名 The 15th International Conference on Laser Ablation (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

http://www.kami.elec.keio.ac.jp/ 神成研究室ホームページ
--

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

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------