

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 17 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26610088

研究課題名(和文)量子もつれ光子対を用いた量子光ポンプ&amp;プローブ分光測定

研究課題名(英文)Quantum pump &amp; probe optical spectroscopy by using entangled photon pairs

## 研究代表者

大畠 悟郎(Oohata, Goro)

大阪府立大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10464653

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文): 本研究では、半導体中の励起子分子と量子もつれ光子対の間にはたらく非線形相互作用に着目し、励起子分子に対する光子対の生成および共鳴吸収に関してその量子状態を詳しく調べた。

その結果、励起子分子から直接生成される光子対はその周波数に関して結合スペクトルにおいて反相関の関係を示しており、これにより周波数の量子もつれ状態となっていることを本研究で初めて明らかにした。さらに、二光子吸収過程における励起二光子の偏光基底を系統的に調べた結果、励起子分子の二光子吸収過程においても明確に量子相関を示す事が判明した。

研究成果の概要(英文): In this study, I have investigated the non-linear optical interaction between the biexcitons in semiconductors and the entangled photon pairs. In particular, the photon-pair generation and resonant absorption processes were precisely observed.

From the result of the joint spectroscopy for the two-photon emission, the frequency entanglement of the two photons from the biexciton are clearly observed for the first time. Furthermore, the quantum (polarization) correlation in the absorption process is also demonstrated by the systematic measurement of the variation of the biexciton two-photon absorption with polarization basis of the excitation photons.

研究分野：数物系科学

キーワード：光物性 ミクス 量子光学 励起子 励起子分子 量子もつれ ポンプ&amp;プローブ 光学非線形性 量子ダイナ

### 1. 研究開始当初の背景

近年、超短パルスレーザーを用いて高速・高精度な非線形光応答の測定が可能になってきている。しかし、これらの測定(ポンプ&プローブ法や4光波混合法など)から得られる結果は、光(物質)の量子状態に対して限定的な値(振幅、位相、偏光角などの変化)に落とし込んだ情報に留まっており、量子状態を完全には測定できていない。ところが一方で、量子情報科学の分野では、光子や原子などに対して射影測定を巧みに組み合わせて行なう事により、量子状態(特に密度行列)を実験的に測定することが一般的になりつつある。そこで今回、量子もつれ光子対の操作及び量子状態測定の手法を利用した新しい分光測定、「量子光ポンプ・プローブ分光法」を着想するに至った。本研究代表者は、これまでの研究で、半導体におけるRHPSを用いた高強度の量子もつれ光子の生成実験に成功しており[Ref.1]、現在では複数光子対の生成・観測を可能にしている。本研究は、この量子もつれ光子対について、今度は分光測定の光源として利用することを目指したものであり、本研究代表者の研究グループではこの実験的準備が既に整っていた。

[Ref.1] K. Edamatsu, *et al.*, Nature **431**, 167 (2004); G. Oohata, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 140503 (2007).

### 2. 研究の目的

本研究では、単一光子に対する量子状態の変化(量子ダイナミクス)を直接観測する新しい分光測定手法である「量子光ポンプ・プローブ分光法」を提案し、これを実験的に実現することを目的とする。そこで、励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱<sup>※1</sup>(RHPS)によって生成された量子もつれ光子対に着目し、そこから得られる伝令付き単一光子<sup>※2</sup>をプローブ光源として用いる。また、ポンプ光パルスによって状態変化した単一光子状態に対して、量子状態トモグラフィ<sup>※3</sup>を行なうことにより、光子の密度行列の時間変化を測定結果として得る。このように得られた測定結果は、純粋に量子力学な状態とそのダイナミクスであり、個体分光の新たな測定手法を生み出すとともに、測定で得られた結果は量子情報科学における量子演算として発展可能と考えられる。

(※1)励起子分子の2光子共鳴励起により、コヒーレンスの揃った励起子分子がそのまま位相整合条件を保って2光子散乱する現象。

(※2)光子対の片方の光子を伝令(トリガー)光子として用いることで、到着時刻が決定して制御可能な単一光子のこと。

(※3)複数基底の射影測定を何度も行うことで、その結果から密度行列を再構成して量子状態を明らかにする手法。同様に状態変化を測定する手法を量子プロセストモグラフィと呼ぶ。

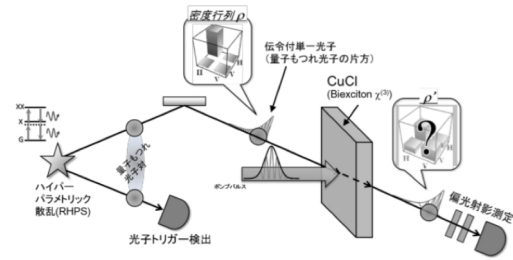


図1：量子もつれ光子を用いた、量子光ポンプ・プローブ分光法概念図

### 3. 研究の方法

以上に提案した目的を実現するためには、まず RHPS から生成された光子対を光源として利用できるようにする必要がある。このため、最初に従来のポンプ・プローブ分光で古典的ではあるが微弱光を用いても測定出来る光学系を立ち上げた。また並行して、光源として発生させた光子対に関する基礎的な性質の観測を行った。さらに、量子光学・情報において行われている2光子偏光射影測定の測定手法を用いることにより、これら新しいポンプ・プローブ測定から励起子分子の量子状態(および量子ダイナミクス)を議論することを目指した。

### 4. 研究成果

#### (1) 励起子分子における非線形偏光回転の測定

本研究では、まずはじめにCuCl単結晶における励起子分子の非線形応答について透過型EOサンプリング法の測定配置により光誘起偏光回転の測定を行った。この際、繰り返し約80MHzの超短パルスチタンサファイアレーザーの第二高調波をポンプおよびプローブパルスに用いた。この光源(モード同期型のパルスレーザー)はQスイッチレーザーなどに比べてパルス繰り返しが多く、1パルス当たりに関する微弱光における非線形応答の測定に適している。また、今回、さらに光源に対して波長分解の機能を有した4F光学系を用いることにより、ポンプ光およびプローブ光による波長スキャンを実現した。

図2が、実験で得られたCuCl単結晶(8K)における励起子分子を利用した光誘起偏光回転(偏光変調)の結果である。まず図2の(a)から明らかのように、3次の非線形感受率に対応した非線形応答(偏光回転)のプローブ波長依存性が得られていることが明らかである。本研究では、励起・プローブ強度:99,10 kW/cm<sup>2</sup>にて、非常にきれいな微分形の非線形応答スペクトルを得ることができた。また、図2の(b)は非線形応答(偏光回転)の励起強度依存性である。本研究では、励起パルスに関して平均強度においてμWを有意に下回る微弱励起による偏光回転を観測することに成功した。しかしながら一方で本結果は、目標

であった単一光子レベルでの観測には至っていない。これはレーザーの安定性、結晶の平坦性、用いた偏光素子の精度の限界などによる実験の不完全性が目標に届かなかった原因であると考えられる。これを打開するには更に高精度の偏光素子を用いることや、サニャック干渉系などを利用した超高精度偏光変化測定系を構築する必要があると考えられる。

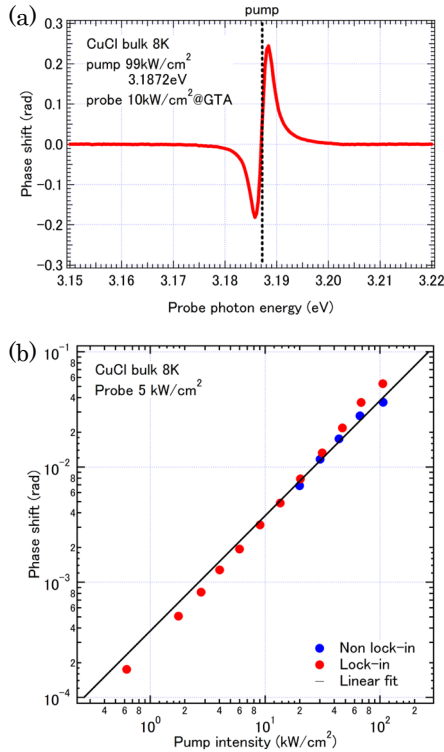


図2：励起子分子に対する光誘起偏光回転のプロープエネルギー依存性(a)とポンプ強度依存性(b)。

### (2) 周波数量子もつれ光子対の生成・観測

これまでの研究代表者の研究で、非同軸二色励起法によって励起子分子のハイパーパラメトリック散乱過程(RHPS)から同軸状に光子対を生成することが示された。本研究では、この方法で得られた光子対を分光光源に発展させることが1つの目標であった。そこで、本研究では、光子対の生成のみ実証されていたこの現象について、光子対の性質を明らかにした。図3(a)は、同軸状に生成された光子対の片方ずつを分光した後に同時検出したものであり、光子対の結合スペクトルを示している。この結果から明らかなように、RHPSから生成された光子対は負の周波数相関を有していることがわかる。このことは、本方法で得られた光子対が一種の周波数量子もつれ状態(もしくはエネルギー量子もつれ状態)を有していることを示す明確な証拠である。この状態は以下の式に示されるような量子もつれ状態であることが考えられるが、励起子分子から生成された光子対についてこのような状態を示したのは本研究が世界で初

めの例である。

$$|\psi\rangle = \int d\omega \phi(\omega) |\omega_0 + \omega\rangle_a |\omega_0 - \omega\rangle_b,$$

( $\phi(\omega)$ ):スペクトル関数)

このような状態となるのは、励起子分子の状態に由来するエネルギーの保存則が起源であり、他の物理量(偏光や運動量、角運動量)の量子もつれと類似の性質を持つと考えられる。また、さらに得られる光子対は周波数の量子もつれを保持しつつ、同時に偏光の量子もつれを有することが実験から明らかとなった(図3(b)参照)。これは、複数物理量が同時に量子もつれ状態となるハイパー量子もつれ状態(Hyper entangled state)として知られる状態であり、励起子分子から生成された量子もつれ光子状態にかんしては本研究が初めて明らかにした。

以上で明らかにした光子対状態は、従来から用いられていたレーザーなどの古典光源では得られない特殊な状態である。このことから、新しい分光光源として有力であることが示された。また、本実験で得られた光子対はCuClの励起子分子と非常に効率よく相互作用することが予想される。

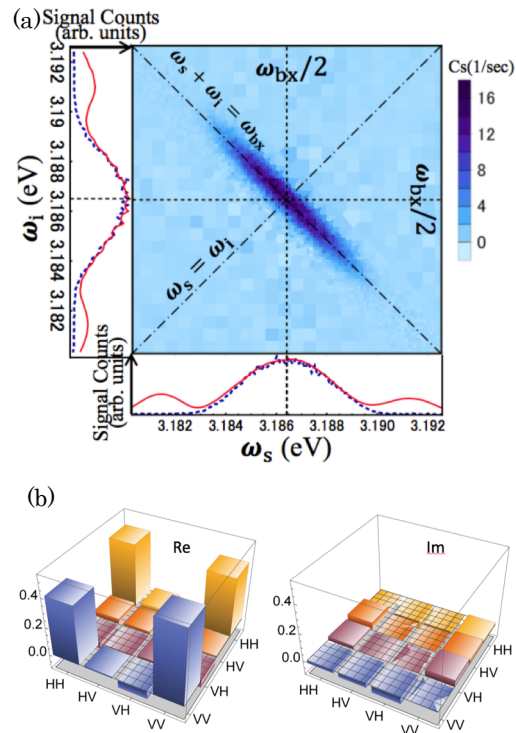


図3：励起子分子からRHPSにより同軸状に生成された量子もつれ光子対の結合スペクトル(a)と、偏光密度行列(b)。これらの結果はそれぞれの物理量(周波数と偏光)において量子もつれ状態であることを直接示すものである。

### (3) 励起子分子の二光子吸収に対する二光子偏光射影測定

本研究では、量子もつれ光子対を用いた単一光子レベルでの非線形分光の実現に関して

は現段階では困難であると判断し、励起子分子の二光子吸収過程に関しての偏光射影測定に注目し、その実験を行った。従来の EO サンプルング法などのポンプ・プローブ分光においては、励起子分子の量子状態とその光との遷移過程において一部の射影測定のみに着目し、古典的な情報に限定して観測を行なうものであった。これは、主にポンプ光の状態を固定し、プローブ光の変化を測定するものであった。今回、量子光学(情報)の実験において量子状態を直接測定(推定)する量子状態トモグラフィにヒントを得て、ポンプ光のみならずプローブ光についても射影状態を変化させることにより、励起子分子の状態を明らかにする実験を行った。

図4は、励起子分子の二光子励起散乱(RHPS)における2つの励起光の偏光による励起子分子生成の変化を示している。この図から明らかのように、励起光の偏光をそれぞれ変えると、偏光量子もつれ光子対への2光子偏光射影測定の結果と同様の結果が得られることが判明した。これは、吸収過程に関して偏光密度行列への状態トモグラフィが可能である事を示唆するものであり、本研究で初めて明らかになった。

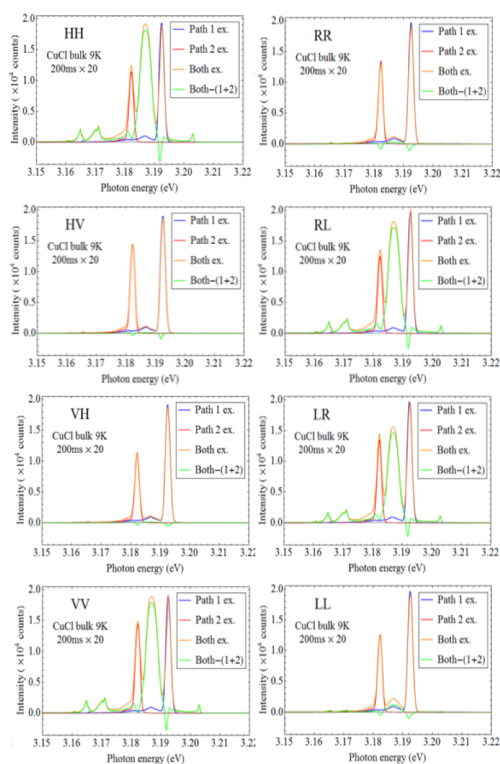


図4：励起子分子の二光子励起散乱スペクトルにおける励起二光子の各偏光基底に対する変化。緑線が散乱スペクトルから各励起光スペクトルを引いた差分を表す。H, V, R, Lはそれぞれ水平、垂直直線偏光および、右回り、左回り円偏光基底を表す。

以上ここに挙げた全ての結果は、当初に目標としていた結果から少し外れているが、世界に先駆けた新しい実験結果を多く含むもので

あり、量子光学を完全に取り入れた新しい分光手法の確立に向けて大きく前進したと考えられる。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

[1] Y. Yamamoto, G. Oohata, and K. Mizoguchi, Quantitative characterization of highly efficient correlated photon-pair source using biexciton resonance, Opt. Express, 査読有, 24 巻, 2016, 6034-6040, DOI:10.1364/OE.24.006034

[2] H. Shimizu, G. Oohata, Y. Yamamoto, and K. Mizoguchi, Collinear and degenerate polariton pair emission via biexciton-resonant hyper-parametric scattering, Phys. Stat. Sol. (C), 査読有, 13 巻, 2016, 117-120, DOI:10.1002/pssc.201510150

[3] T. Go, H. Okamura, G. Oohata, T. Nagata, T. Moriwaki, Y. Ikemoto, S. Mori, N. Ikeda, and K. Mizoguchi, Pressure dependence of far-infrared reflectance spectra in layered iron oxide LuFe2O4, Trans. Mater. Res. Soc. Jpn., 査読有, 41 巻, 2016, 109-112, DOI:10.14723/tmrj.41.109

[4] S. Yoshino, G. Oohata, and K. Mizoguchi, Dynamical Fano-Like Interference between Rabi Oscillations and Coherent Phonons in a Semiconductor Microcavity System, Phys. Rev. Lett., 査読有, 115 巻, 2015, 157402/1-5, DOI:10.1103/PhysRevLett.115.157402

[5] S. Matsuura, Y. Mitsumori, H. Kosaka, K. Edamatsu, K. Miyazaki, D. Kim, M. Nakayama, G. Oohata, H. Oka, H. Ajiki, and H. Ishihara, Observation of bound and antibound states of cavity polariton pairs in a CuCl microcavity, Phys. Rev. B, 査読有, 89 巻, 2014, 035317/1-6, DOI:10.1103/PhysRevB.89.035317

[学会発表] (計 19 件)

[1] 清水 颯, 太皇悟郎, 山本康男, 溝口幸司, 励起子分子から同軸上に生成された光子対における周波数相関, 第 26 回光物性研究会, 2015 年 12 月 11 日, 神戸大学六甲台第 2 キャンパス 百年記念会館 (兵庫県神戸市)

[2] 松田拓也, 太皇悟郎, 石原一, 金属 CuCl 薄膜構造における励起子光プラズモン結合系の固有状態, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 18 日, 関西大学 千里山キャンパス (大阪府吹田市)

- [3] 藤井健太, 大島悟郎, 溝口幸司, 対称/非対称 CuCl 微小共振器における Rabi 振動・コヒーレント LO フォノン間結合ダイナミクス, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 18 日, 関西大学 千里山キャンパス (大阪府吹田市)
- [4] G. Oohata, S. Miyaake, Y. Yamamoto, and K. Mizoguchi, Cavity-polariton formation at room temperature in  $(\text{C}_4\text{H}_9\text{NH}_3)_2\text{PbI}_4$  microcavities with metal mirrors, EXCON2015, 11th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials, 2015 年 5 月 19 日, Polytechnique Montreal (Montreal, Canada)
- [5] H. Shimizu, G. Oohata, Y. Yamamoto, and K. Mizoguchi, Collinear and Degenerated Polariton Pair Emission via Biexciton-Resonant Hyper-Parametric Scattering, EXCON2015, 11th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials, 2015 年 5 月 19 日, Polytechnique Montreal (Montreal, Canada)
- [6] 清水颯, 大島悟郎, 山本康男, 溝口幸司, ハイパーパラメトリック散乱から同軸上に生成された光子対における周波数相関測定, 日本物理学会 第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 23 日, 早稲田大学 (東京都新宿区)
- [7] 山本康男, 大島悟郎, 溝口幸司, 励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱光によって生成された多光子量子状態に対する偏光相関測定, 日本物理学会 第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 23 日, 早稲田大学 (東京都新宿区)
- [8] 大島悟郎, 荻野心平, 溝口幸司, 全反射を利用したプリズム上 CuCl-Ag 片面微小共振器における特異なポラリトン状態, 日本物理学会 第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 21 日, 早稲田大学 (東京都新宿区)
- [9] 清水颯, 大島悟郎, 山本康男, 溝口幸司, 非同軸二色励起法によるハイパーパラメトリック散乱を利用した同軸量子もつれ光子の発生, 第 25 回 光物性研究会, 2014 年 12 月 13 日, 神戸大学六甲台第 2 キャンパス 百年記念会館 (兵庫県神戸市)
- [10] 山本康男, 大島悟郎, 溝口幸司, 励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱光における二光子偏光密度行列の励起強度依存性, 第 25 回 光物性研究会, 2014 年 12 月 13 日, 神戸大学六甲台第 2 キャンパス 百年記念会館 (兵庫県神戸市)
- [11] 宮明峻矢, 大島悟郎, 山本康男, 沈用球, 溝口幸司, 有機無機複合半導体  $(\text{C}_4\text{H}_9\text{NH}_3)_2\text{PbI}_4$  微小共振器における共振器ポラリトンの光学特性, 第 25 回 光物性研究会, 2014 年 12 月 12 日, 神戸大学六甲台第 2 キャンパス 百年記念会館 (兵庫県神戸市)
- [12] Y. Yamamoto, G. Oohata, and K. Mizoguchi, Excitation power dependence of degree of entanglement of photon-pair from biexciton, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 2014 年 11 月 13 日, Kobe University (Kobe, Hyogo)
- [13] G. Oohata, R. Fujihara, S. Yoshino, Y. Shim, H. Ishihara, and K. Mizoguchi, Optical property of cavity polaritons in CuCl microcavities with Ag mirrors, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 2014 年 11 月 13 日, Kobe University (Kobe, Hyogo)
- [14] H. Shimizu, G. Oohata, Y. Yamamoto, and K. Mizoguchi, Generation of Collinear and Degenerated Entangled Photons via Biexciton-Resonant Hyper-Parametric Scattering, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 2014 年 11 月 13 日, Kobe University (Kobe, Hyogo)
- [15] 荻野心平, 大島悟郎, 溝口幸司, プリズムと Ag 薄膜を用いた CuCl 微小共振器の全反射領域に現れる共振器ポラリトンの光学特性, 第 75 回 応用物理学会秋季学術講演会, 2014 年 9 月 20 日, 北海道大学 (北海道札幌市)
- [16] 山本康男, 大島悟郎, 溝口幸司, 励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱光における多光子偏光相関測定, 第 75 回 応用物理学会秋季学術講演会, 2014 年 9 月 19 日, 北海道大学 (北海道札幌市)
- [17] 清水颯, 大島悟郎, 山本康男, 溝口幸司, 二色励起法によるハイパーパラメトリック散乱からの同軸量子もつれ光ビームの生成, 第 75 回 応用物理学会秋季学術講演会, 2014 年 9 月 19 日, 北海道大学 (北海道札幌市)
- [18] 安食博志, 松浦心平, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 宮崎健一, 金大貴, 中山正昭, 大島悟郎, 石原一, CuCl 微小共振器における励起子分子の輻射緩和: Z12 励起子の影響, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 8 日, 中部大学 (愛知県春日井市)
- [19] K. Mizoguchi, S. Yoshino, G. Oohata, Dynamical Coupling of Rabi Oscillation to Coherent Phonon in Semiconductor Microcavities, 19th International Conference on Ultrafast Phenomena, 2014 年 6 月 7 日, Okinawa Convention Center (Ginowan-City, Okinawa)

〔図書〕（計 0 件）

〔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 なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大島 悟郎 (OOHATA, Goro)

大阪府立大学・理学系研究科・准教授

研究者番号：10464653

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし