

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 25 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：18K19029
研究課題名（和文）LED等インコヒーレント光による高純度・大容量のエンタングルメント光子対発生器

研究課題名（英文）High-purity massive entanglement generator pumped by incoherent light source such as LED

研究代表者
深津 晋（FUKATSU, SUSUMU）

東京大学・大学院総合文化研究科・教授

研究者番号：60199164
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：量子エンタングルメント（量子もつれ）は、量子物理・量子情報の根幹をなす概念であり、古典限界を打破する技術体系構築への鍵を握っている。エンタングルした光子対の生成には、非線形光学効果の一種である自発的パラメトリック下方変換が広く用いられてきたが、光子対の純度と生成レート間のトレードオフのために励起光源はレーザーなど高コヒーレンス光源に限定されてきた。本研究では、LEDなど安価にハイパワーが得られる低コヒーレンス光源を用いた高純度・高効率・大容量のエンタングルメント光源への基礎を形成すべく、LED励起では初めとなる伝令付き単一光子の発生とHong-Ou-Mandel 2光子干渉の検証を試みた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

インコヒーレント光源を用いて量子エンタングルメントを生成することは、それ自体が一大技術革新である一方、従来は看過されてきた励起光の干渉性の高さすなわちコヒーレンスのもたらすエンタングルメントの質に関する学理の解明にもつながる。良質のエンタングルメント生成には高励起パワーに加えて大きな結晶が必要とされるが、本研究が目指すインコヒーレント光励起のエンタングルメント光子対生成によって結晶長と励起光コヒーレンスとの不整合の問題が根本的に解消できれば、光源選択の幅が広がるとともに経済的でコンパクトな大規模並列量子もつれ生成器の実現を初めとしてその恩恵は計り知れない。

研究成果の概要（英文）：Quantum entanglement is relevant in the fields of quantum physics and quantum information processing, which plays a pivotal role in quantum-enhanced technologies that arguably outperform the classical counterparts. One of the established ways to create entangled photon pairs is spontaneous parametric down-conversion in a second-order nonlinear crystal. However, the trade-off between spectral purity and emission rate raises a concern, which practically limits the pump source to a coherent one such as laser. Here we propose an affordable, high-power incoherent light source like light-emitting diode (LED) for use as the pump source for efficient massive high-purity entanglement generation. Building on the successful heralded single-photon generation under LED pumping in the earlier phase of the project, a Hong-Ou-Mandel two-photon interference experiment was attempted. Highly visible HOM dips due to photon bunching were observed, which promises convenient access to entanglement with LEDs.

研究分野：応用量子物理学、物性物理学

キーワード：インコヒーレント光源 LED励起 自発的パラメトリック下方変換 伝令付き単一光子発生 Hong-Ou-Mandel 2光子干渉 エンタングル光子対発生器

1. 研究開始当初の背景

量子エンタングルメント(量子もつれ)は、量子物理や量子情報の根幹をなす概念である。量子計算や量子センシングなど古典限界を打破する技術体系の早期完成に向けてエンタングルした光子対生成の成否が鍵を握っている。なかでも非線形光学結晶における光子分割ともよぶべき自発的パラメトリック下方変換過程(以下、SPDC)は、光励起だけで様々な自由度(偏光、時間、運動量)のエンタングル光子対を生成できる手段としてこれまで盛んに利用されてきた。ところがSPDCは非線形光学効果であるため弱励起条件では光子対生成レートが低い。またスペクトル純度とのトレードオフも問題となる。その一方、高純度のエンタングルメント生成には結晶長と比べて十分な励起光のコヒーレンス長が必要となることはよく知られている。このため従来、励起源には専らレーザを含む高パワー密度のコヒーレント光源が用いられてきた。

黎明期には、近赤外SPDC光子対発生用の連続励起光源としてAr⁺などガスレーザの青色領域(350~450 nm 付近)発光線が多用された。これは線幅がGHz未満にとどまるため一般的な結晶長(数~数十mm)に比べて充分大きなコヒーレント長が確保できるからである。しかし、電力消費、メンテナンス、接地面積などの観点から次第に高効率でコンパクトな半導体レーザに置き換えられるに至った。ただし、この場合も外部共振器などによって線幅狭窄化を行う必要上、高価で専門技術が必要となる。一方、マルチモードの半導体レーザは高出力でありながらコンパクトで入手しやすく、これを検討の俎上に載せることが研究の主な動機である。予備実験を開始した当初は充分なエンタングルメント品質が得られなかったが、同濃縮技術を駆使することによってインコヒーレント光励起でも十分に高い純度のエンタングルメント(Y.-C. Joeng, *et al.*, *Opt. Express* **24**, 1165 (2016))が得られることがわかってきた。ところがこの手法はとても便利である反面、干渉計の調整に高度な実験技術が要求されるとともにコンパクト化に逆行するフットプリントが発生する。また、光子の識別可能性が残されたままなのでHong-Ou-Mandel(HOM)2光子干渉(C. Hong *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2044 (1987))の明瞭度(ディップ深さ)の顕著な改善が期待できない。それでも励起光コヒーレンスの影響を理論・実験の両面からより詳細に調べる過程において現実的なフィルタリング条件の範囲では、当初想定よりもエンタングルメント品質への悪影響が限定的にとどまることがわかってきた。そこでLED等に代表されるインコヒーレント光源の特性を逆手にとることで、その利点をフル活用する方向に研究の舵を切ることを想起した。

2. 研究の目的

本研究では、LED(Light-Emitting Diode)やマルチモード半導体レーザなど民生品のインコヒーレント光源を用いて手軽に高純度・高効率・大容量のエンタングルメント光子対を発生できる非古典光源プロトタイプの開発に向けて、その技術基盤の基礎形成を目指した。

インコヒーレント光源を用いて量子エンタングルメントを生成することは、それ自体が一大技術革新である一方、励起光コヒーレンスのもたらすエンタングルメントの質の学理の究明が課題となる。良質のエンタングルメント生成には高励起パワーに加えて大きな結晶が必要とされるが、本研究の成果によって結晶長と励起光コヒーレンスとの不整合の問題が根本的に解消できれば、光源選択の幅が広がるとともに高純度のエンタングル光子を高効率に同時多発的に生成可能な光源を安価かつコンパクトに実現することへのみちすじがつけられ、今までエンタングル光子源の開発に律速されていた研究・応用開拓が一気に加速することが期待できる。さらにLEDは一般に広帯域であり、LDが不得意な波長や環境に拡張できる付加価値を提供する。

3. 研究の方法

LEDポンプ型のエンタングルメント光子対発生器の開発に向け、技術ノードにしたがって研究を2つの段階に分けた。第一段階では、主にLED励起下における伝令付き単一光子生成の検証、第二段階ではより高難度のLED励起SPDC光子のHOM2光子干渉の検証に取り組んだ。

4. 研究成果

初年度は、第一段階に注力した。単一光子生成は量子光学およびその周辺関連分野において重要となる基幹要素技術である。単一光子発生能を有する物理リソースとしてこれまでに量子ドット、単一分子、格子欠陥、不純物複合体などが検討されてきた。ところがこれらミクロな物理系はマクロなスケールでの発生源の単離を必要とするのに加えて動作の安定性やスペクトル純度、生成レート確保にも課題を抱えている。これに比してSPDCは、非線形結晶を光励起するだけで伝令付きの単一光子が生成できる利便性に優れ、比較的安定した光学実験技術である。

SPDCの実装では、入射光モードと結晶光学方位の配置によって同じ円錐状の異なる空間モードにS2光子が同時発生するように調整できる。LED励起SPDCの検証用にタイプII型位相整合のBBO結晶を用意し、中心波長405nmのLED励起下で結晶の出力端面に発生する2つの交差した円環の直接イメージングを行った。これは後段の光子流補足のために必要な過程である。LED励起のSPDCは過去にも例があるが(G. Tamosauskas *et al.*, *Opt. Express* **18**, 274310 (2010))、入射光をコリメートさせている点、単一光子が未確認の点で異なっている。ここで用いるLEDの非コリメート出力はコヒーレンスが低く、単一モードレーザ励起の光学系を流用しても十分なSN比の確保が難しい。そこでフラットトップ型の光分布をもつ0.6mmコアのマルチモードファイバ

結合型 LED 光源を用意し、結晶と CCD 間に焦点距離が一致する単レンズを挿入することにより SPDC 光子の異なる波数ベクトル (k_x, k_y) を円環の位置によらず撮像面上の 1 点 ($x', y' = f/k(k_x, k_y)$) に投影できる縮退モードマッピング (非同軸のコリメーション) を適用して円環イメージの高輝度化を試みた。なお、円環の同定にとって障害となる自然放出起源の背景オフセット光は、e 偏光励起光と相関する成分のみを抽出することで除去した。対向する円環の交差部から出射する 2 光子を 2 本のマルチモードファイバに結合させ、一方の終端に設置した単一光子検出器 (A) で伝令光子イベントを記録した。もう一方は Hanbury-Brown-Twiss (HBT) 干渉計 (R. Hanbury Brown and R. Q. Twiss, *Philos. Mag.* 745, 663 (1954)) を構成する 1x2 のマルチモードファイバカプラの入力ポートに結合させ、干渉計 2 ポート出力 (B, C) を 2 台の単一光子検出器を用いて光子検出イベントの 3 重同時計数 ($N(ABC)$) を評価した。時間差原点 ($\tau=0$) とゲート幅 (27.1 ns) は 6.4 ns 分解能で取得した同時計数 ($N(AB)$) が最大となるように決定した。2 時間平均単計は $N(A)=9.02(2) \times 10^7$, $N(B)=1.865(4) \times 10^7$, $N(C)=1.542(3) \times 10^7$ に対して同時計数は $N(AB)=4.34(2) \times 10^4$, $N(AC)=3.58(2) \times 10^4$, $N(ABC)=1.0(9)$ であった。2 次同時相関関数 $g^{(2)}(0)$ は条件付き確率にしたがって $g^{(2)}(0) = N(ABC)N(A) / \{N(AB)N(AC)\}$ で与えられ、 $g^{(2)}(0) = 0.06 \pm 0.05$ を得た。これは明確なサブポアソン統計性 $g^{(2)}(0) < 1$ を示すとともに光子数確定状態 (フォック状態) に関して成立する関係 $g^{(2)}(0) = 1 - 1/n(n$ は光子数) で $n=1$ (単一光子状態) とした場合の光の不可分性あるいはアンチバンチング ($g^{(2)}(0) = 0$) の予測と矛盾しない結果である。なお、 g の残渣 0.06 の逆数 (≈ 17) は $N(AB)$, $N(AC)$ の独立性を仮定した 2 時間あたりの偶発的な 3 重同時計数に相当するが、別途評価した偶発同時計数がチャンネルあたり 20% 程度であることを考慮すれば、 $N(ABC)$ の大きな分散はこれらの積 $17 \times 0.2 \times 0.2 \approx 0.7$ とも整合的である。このほか同年度には LED の動作波長を見据えた材料探索を行うとともに量子情報処理分野周辺における LED 励起の伝令付き単一光子発生器の応用展開を積極的に模索した。

最終年度は第二段階の検証に注力した。前年度の成果である伝令付き単一光子のアンチバンチングは、不可分性の必要条件になっているが、逆は必ずしも真ではないことには注意したい。この事情は単一光子源の種類に無関係である。したがって単一光子性を担保するには相補的で独立な追加検証が必要となる。そこで本研究では、これをより明確な形で示すべく LED で励起したモード縮退 SPDC 光子に対して HOM 2 光子干渉実験を行い、ボゾン統計起因の光子バンチングに伴う HOM ディップ ($g^{(2)}(0) = 0$) が発生することの検証を試みた。なお、ここでは HOM 干渉計の動作が、エンタングルメント生成の準備段階としての意味をもつことは重要である。ファイバ結合 405 nm LED 励起源の共通仕様を除き、HOM 2 光子干渉実験系には単一光子評価実験系から大幅な改良が加えられた。まず、SPDC 変換効率が BBO を一桁上回る BiBO 結晶を採用。出射交差リング形状の観点からタイプ I 位相整合仕様を選択した。HBT 干渉計の真空入力ポートを第 2 光子ポートに変更すると HOM 干渉計の構成となるが、シングルモードファイバ仕様の 2x2 カプラおよびパッチケーブルを用いることでコヒーレンスの確保に努めた。さらに第 2 光子の入射タイミングの可変遅延機構を設けた。一方、ここでは超低レートでの光子検出事象の時系列データを事後選択的に処理してトリガーパルスを含む複数の同時計数を行う必要がある。ところが現有の 2 ポート非時間スタンプ型のシングルストップ時間デジタル変換器 (TDC) は、今回の測定には不向きなことが研究途上で判明したため、非 NIM, CAMAC 系スタンドアロン型のオープンソースコードで USB 制御可能な多重ストップ超高速タイムタガーを導入することにした。

可変遅延距離を連続的に変化させながら HOM 干渉計の 2 ポート出力の同時計数を単一光子検出器を用いてモニタしたところ、低計数レートのせいで揺らぎが小さくないものの光路差に対する 2 時間平均同時検出の測定結果 $g^{(2)}(\tau)$ にはほぼ理論予測どおり時間差 0 の位置に HOM ディップ ($g^{(2)}(0) \approx 0$) が観測された。ディップの深さすなわち明瞭度はレーザ励起 SPDC の場合と有効数字 2 桁の範囲で一致した。一方、ディップの幅ないしは相関時間は、ほぼバンドパスフィルタのスペクトル幅 (10 nm) で決まることが確認されるとともに sinc 変調された振動がガウス型の $g^{(2)}(\tau)$ プロファイル全体に $\tau=0$ についてほぼ対称に重畳する様子が見て取れた。なお、単計数、同時計数データとともに $\tau=0$ の前後でデータ自身の反転対称性が失われる結果となったが、光学系のアラインメントやドリフトの問題に帰着可能と考えられる。なお、ファイバーの複屈折にともなう偏光回転の影響が極めて小さくとどまった事実は興味深い。

一方、前年度同様に LED 励起のエンタングルメント光子対の応用展開について模索した。

以上の結果は、バルク非線形結晶を用いた LED 励起のエンタングル 2 光子生成がすでに手の届く範囲にあることを示している。変換効率の点で有利な擬似位相整合結晶を登用することで LED 励起 SPDC の現実味は増すであろう。次の段階には LED の面発光特性を活かした同時並列の光子対の発生、高純度エンタングルメント光子対の生成などが位置するが、エンタングルメント指標の評価法開発など個別要素の改良にとどまらず、本研究の成果は LED 励起の非古典光源の実現と量子情報処理、相関イメージング・分光などへの活用の道筋をつけるものである。

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 3件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yufeng Yang, Masatoshi Ishida, Yuhsuke Yasutake, Susumu Fukatsu, Chihoko Fukakusa, Masa-aki Morikawa, Teppei Yamada, Nobuo Kimizuka, Hiroyuki Furuta	4. 巻 58
2. 論文標題 Hierarchical Hybrid Metal-Organic Frameworks: Tuning the Visible/Near-Infrared Optical Properties by a Combination of Porphyrin and Its Isomer Units	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 4647-4656
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.9b00251	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 該当する

1. 著者名 Neha Manav, Praseetha E Kesavan, Masatoshi Ishida, Shigeki Mori, Yuhsuke Yasutake, Susumu Fukatsu, Hiroyuki Furuta, Iti Gupta	4. 巻 48
2. 論文標題 Phosphorescent rhenium-dipyrirrinates: efficient photosensitizers for singlet oxygen generation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Dalton Transactions	6. 最初と最後の頁 2467-2478
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8DT04540B	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 該当する

1. 著者名 Daiki Nishii, Yoshiki O-oka, Youhei Okawa, and Susumu Fukatsu	4. 巻 115
2. 論文標題 Heralded single-photon source fueled by light-emitting diode	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 211106
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5115252	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19件（うち招待講演 1件/うち国際学会 8件）

1. 発表者名 大岡佳生、藤澤俊祐、深津 晋
2. 発表標題 時間ドメイン圧縮センシングによるヘテロダインビートのゴーストイメージング
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 西井 大生、大岡佳生、深津 晋
2. 発表標題 LED励起によるパラメトリック下方変換光子対発生
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大川洋平, 藤澤俊輔, 深津 晋
2. 発表標題 隠れたエンタングルメントの検出
3. 学会等名 電子通信情報学会 QIT38
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Youhei Okawa, Shiho Morimoto, Yuhsuke Yasutake, Susumu Fukatsu
2. 発表標題 Quantum-Enhanced Magneto-optic Measurements in a Dissipative Medium
3. 学会等名 The 5th Quantum Information and Measurement (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 D. Nishii, Y. O-oka, S. Fukatsu
2. 発表標題 Single-photon source pumped by light-emitting diode
3. 学会等名 The XVI-th International Conference on Quantum Optics and Quantum Information (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 D. Nishii, Y. O-oka, Y. Okawa, S. Fukatsu
2. 発表標題 Generation of heralded nonclassical photons by LED pumping
3. 学会等名 SPIE. Optics + Photonics, (San Diego Convention Center, CA, USA) Paper 11134-30 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. O-oka, S. Fukatsu
2. 発表標題 Ghost imaging boosts ghost diffraction-interference capability
3. 学会等名 SPIE. Optics + Photonics, (San Diego Convention Center, CA, USA) Paper 11134-7 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Okawa, S. Fujisawa, Y. Yasutake, S. Fukatsu
2. 発表標題 Decoherence-free transmission of two-color polarization-entangled photons through single-mode fiber
3. 学会等名 SPIE. Optics + Photonics, (San Diego Convention Center, CA, USA) Paper 1134- (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大岡 佳生、藤澤 俊祐、深津 晋
2. 発表標題 全強度測定によらない時系列データのゴーストイメージング
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会(北海道大学) 19p-E204-11
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大岡 佳生、深津 晋
2. 発表標題 LEDで励起したSPDC光子対のHong-Ou-Mandel干渉
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会(上智大学) 14p-B406-5 (開催中止. 予稿集発行により発表成立)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大岡 佳生、深津 晋
2. 発表標題 パラメトリック下方変換で生成した光子対を用いた時間ドメインゴーストイメージング
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会(上智大学) 14p-B406-4 (開催中止. 予稿集発行により発表成立)
4. 発表年 2020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