

令和 2 年 6 月 16 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2019

課題番号：18K19035

研究課題名（和文）半導体を用いて生成した紫外領域量子もつれ光子による超分解能光計測技術の開拓

研究課題名（英文）Development of a super-resolution optical-measurement technique with ultraviolet entangled photons using a semiconductor

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） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱を光源として発生させた高輝度量子もつれ光子によって、多光子量子干渉を用いた超分解能光計測の実現を目指した。

その成果として、偏光自由度を利用した二光子干渉の実験により、波長195nmに相当する位相分解能を得ることに成功した。またその発展実験である四光子干渉に関しても、位相制御の高精度化や長時間の安定的測定への改善などを図り、実験系を完成させた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子もつれ光を使った量子計測技術は未だ発展途上であるが、現在世界的に注目されており、量子イメージング、量子顕微鏡、量子OCTなど様々な新しい計測技術へとつながることが期待されている。本研究の結果は、従来まで用いられてきた量子もつれ光源ではなく半導体を用いた新しい手法により、量子計測技術に挑戦する新しい取り組みである。そのため、今回得られた研究成果は量子計測分野における今後の発展に対して大きく貢献するものであると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aimed at the realization of super-resolution optical measurement using multi-photon quantum interference with high-intensity entangled photons generated by biexciton-resonant hyper-parametric scattering (RHPS) as a light source.

As a result, we have succeeded in obtaining a phase resolution equivalent to a wavelength of 195 nm by the experiment of two-photon interference using polarization degrees of freedom. Regarding four-photon interference, which is a more advanced experiment, we have completed the experimental system by improving the accuracy of phase control and improving the stable measurement for a long time.

研究分野：量子光学，光物性

キーワード：量子光学 量子もつれ光 励起子分子 量子計測

1. 研究開始当初の背景

近年発展の目覚ましい量子情報通信や量子計算などの研究分野では、「量子もつれ (エンタングルメント)」とよばれる非局所的な量子相関と、その性質を有した光子の研究が盛んに行われている。この分野では、通信や計算過程において、量子もつれの性質が根本的に重要な役割を担っているが、量子情報以外の応用も期待される未開拓な物理的性質である。

そんな中で、量子光学の応用分野では量子もつれ状態にある光子、光子対を巧みに利用することで、位相や位置の測定精度の物理的限界を突破する新しい試みがなされてきている。これは、量子もつれ状態によって発生する新しい光の干渉現象である、Hong-Ou-Mandel (OHM) 干渉や二光子干渉 (biphoton 干渉) を利用するもので、これらの現象を直接利用した研究[1]だけでなく、間接的にこれまでの測定限界を打破する試み、例えば量子光干渉断層法(量子 OCT)[2]等少しずつ提案され、また実証実験に至っているものも出てきており、量子技術を用いた新しい計測手法である、“量子計測”として花開きつつある状況である。

光の量子計測技術では、これまでほぼ例外なく光源として2次の非線形光学過程である光パラメトリック下方変換 (SPDC) によって量子もつれ光子を得る手法で実験や技術開発が行われるが、SPDC を用いて得られる波長は元の励起レーザー波長よりも長波長となることから、例えば回折限界などが大きくなってしまふこと等の欠点があった。

これまで我々は、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研究を行ってきた (図1) [3]。RHPS は、3次の非線形光学過程であることから、SPDC のような長波長化の欠点を避けることができ、これまでの実験では近紫外領域である波長約 390nm の量子もつれ光を得ることに成功してきた。本研究は、この RHPS から得られた量子もつれ光を量子計測に応用する観点から着想を得たものである。

これまでの我々の研究で、RHPS を利用した量子もつれ光子対の観測技術は200倍程度効率を良くすることに成功し、また他の発生手法と比較して約10,000倍以上生成効率が良いことを明らかにしている[4]。さらに、新しく同軸状に量子もつれ光子対を生成させる手法を開発している (図2) [5]。これらの結果より、基礎研究の技術と知見を十分に蓄えて新たな応用研究に進む準備が整ったと考え、以上のような経緯から本研究を提案・開始するに至った。

(※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。

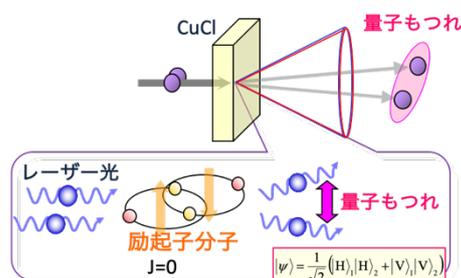


図1：励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱 (RHPS) の概念図

2. 研究の目的

本研究では、固体中電子の典型的な量子もつれ状態である励起子分子と光子対が直接コヒーレントに結合・相互作用を起こす、励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱 (RHPS, 図1参照) に注目する。具体的には、これを光源として発生させた高輝度量子もつれ光子によって、多光子量子干渉 (図3) を成功させ、超分解能光計測の実現を目的とする。ワイドギャップ半導体である CuCl 結晶において RHPS から発生する量子もつれ光子は、波長約 390nm と短波長である。このことから、2光子量子干渉において 200nm 以下の波長の光に対応する実空間における光干渉を発生させることが可能であり、4光子では 100nm を切る波長に対応する超分解能が得られる。本研究は量子イメージングや量子顕微鏡などに直接関係した新しい要素技術を提供するものであり、量子計測の分野を大きく促進する結果を得られると考えられる。

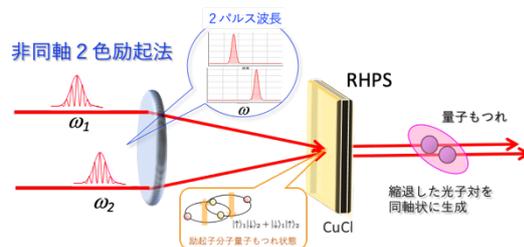


図2：非同軸2色励起法の概略図

3. 研究の方法

我々は最近、非同軸2色励起法なる新しい RHPS を用いた光子対生成技術を提案・実現している (図2)。これは、励起レーザーパルスを、4F 分光光学系を利用してそれぞれ波長の違うパルスを整形し、これを非同軸に試料に当てることにより、同軸状の量子もつれ光子対を得る方法である。これにより量子もつれ光子の空間モード

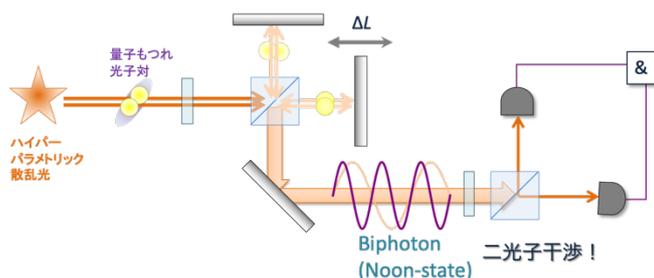


図3：RHPS から生成した量子もつれ光子の二光子 (多光子) 干渉実験の概略図。この図では従来のマイケルソン型の干渉系を示している。

が干渉実験などに対して取り扱いやすい状態となるため、量子もつれ光子の光源としては大きな進展である。また、この手法を用いて、量子もつれ光子対が非常に効率よく生成できることを実験で確認している。本研究は、この手法を基礎として、光子の量子干渉実験を行った。

### (1) SLM と 4F 分光光学系を用いた非同軸二色光源の開発

最初にまず図4で示す方法を用いて励起光パルスの効率化・自由度拡張化を行った。具体的には、4F分光光学系に関して、空間光変調器 (SLM) を用いることにより、2つの非同軸光パルスに対して、それぞれ周波数 (波長) 領域において任意の波形を出力できるようにした。この方法により、光学系を単純化および効率化することが可能であり、また波形を相対位相も含めて自由に変化させることから、本実験への最適化を行える。本手法は、二次元フーリエ分光法など、高度なレーザー分光手法として開発が進んできた技術であるが、近紫外領域では殆ど実施例がなく、光学素子の選定や最適化などにおいてイチからの開発となった。

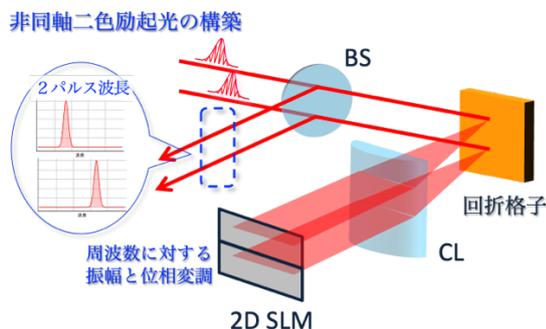


図4：SLM と 4F 分光光学系を用いた非同軸二色 2 励起光源生成の概念図

### (2) 偏光自由度を利用した二光子干渉実験

RHPS から同軸状に生成された量子もつれ光子対は、偏光状態として  $|HH\rangle+|VV\rangle$  (ここで、 $H, V$  は水平、垂直直線偏光を表す) という波動関数 (偏光量子もつれ状態) で生成される。このように、人為的な追加の工夫なく、光子対が自然に偏光量子もつれで生成されるのが RHPS の特徴であり、SPDC 等には無い利点である。この偏光量子もつれ状態を巧みに利用することで安定性の高い同軸上で偏光のみの自由度を利用した干渉系を構築することが可能である。本研究は、図5に示すような偏光自由度を利用した干渉系から、位相に関する超分解能を実現する二光子 (四光子) 干渉の実験を行った。

偏光自由度の干渉系構築に当たり、以下2つの手法を試した。

①複屈折媒質を用いた位相板を通常の軸方向ではなく、光学軸に垂直な方向を軸にして回転させ、水平偏光と垂直偏光について相対位相を附加して干渉実験を行った。これは技術的に容易だが、一方で附加する位相について値の厳密性に欠け、また回転していくに従って光軸がずれていくなど、制御性・拡張性が低いことが欠点であった。

②水平・垂直偏光に対する相対位相を附加するために、液晶リターダーと呼ばれる位相変調器を新たに導入した。液晶リターダーは電氣的に相対位相を精密制御することができることから、単純な位相板の回転より細かい位相変化がつけられる利点がある。また光学系に幾何学的な変化を生じさせないこと等から、安定的な干渉信号の測定を長時間にわたり測定可能であることが期待される。

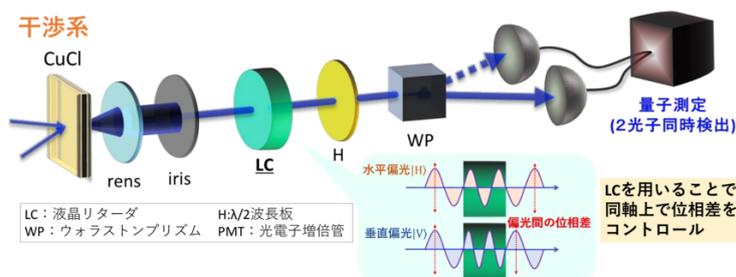


図5：RHPS から生成した偏光量子もつれ光子に対する、偏光自由度の干渉光学系の概念図

本研究では、これら2つの手法で干渉実験を行いそれぞれの結果を得た。

## 4. 研究成果

上に示した実験手法をそれぞれ構築・実行し、段階的に(1)~(4)に示す成果を得た。

### (1) SLM と 4F 分光光学系を用いた非同軸二色励起光源の開発

目的の量子干渉を安定的にかつ高度に生成・制御するための準備として、RHPS の励起光源に関して新たに改良・開発を行った。それが、空間光変調器 (SLM) と 4F 分光光学系を用いた非同軸二色励起光パルスである。従来の手法では、4F系とスリットを用いて独立に励起光パルスの周波数 (すなわちパルス光の色) を制御していたが、今回空間光変調器 (SLM) を新たに導入し安定的でより制御性の高い光学系を構築した。2つのビームは、専用の二次元ビームスプリッターを用い分割し、同一の4F系 (すなわち全て同じ光学素子) に通した上で、SLM によって分割した2種類の光パルスの周波数を独立に制御した (図4)。これによってより安定的で、制御性の高い非同軸二色励起光パルス生成が期待できる。

本研究ではポンプ光の波長が近紫外領域である 390nm を制御する必要があったが、この波長領域でこのような光制御をした例が、これまで殆ど報告されていなかったため、今回手探りの開発となった。特に、この波長領域専用の SLM を新たに検証・導入し、特有のチャープ補正などにも対応する必要があった。

図 6 は、得られた光パルスのスペクトルの一例である。本実験の必要励起強度を保ちつつ、近紫外光パルスの周波数スペクトル制御に成功していることが明らかである。

本研究では結果的に用いなかったが、1パルスに2つの周波数成分を有する重ね合わせパルスも生成に成功し、スペクトル干渉法による測定からこれらの位相制御が可能であることも確認した。この成果は、今後周波数領域の量子もつれ光の生成・制御に役立つ成果であった。

### (2)偏光の二光子干渉 (位相板)

次に、偏光自由度を利用した二光子干渉実験を行った。まず、より簡便な方法として、光ビームの水平偏光と、垂直偏光に対する相対位相を附加する方法として、位相板を用いる方法を試した。これは、位相板の複屈折性を利用するものであり、従来のように偏光を回転させる配置とは違い、位相板に並行な軸で実験系に対して垂直に回転させた。この方法は、素子の準備は難しくないが、回転角度と附加する位相の関係が素子の複屈折媒質など複雑に関係するため、必ずしも厳密な位相制御にはならず、制御性が低いものであった。

図 7 に、本手法を用いたときの古典光源の場合の干渉の結果と、二光子干渉(biphoton 干渉)の結果を示す。古典光源の場合は、 $2\pi$  (rad) で一周期の干渉 (すなわち 390nm の波長に対応する位相分解能) を示すのに対して、二光子干渉では二周期の振動 (干渉) が生じていることが見て取れる。これにより、確かに二光子干渉の測定に成功したということが分かった。これは、言い換えれば 195nm の波長の光に対応する位相分解能を得ることが出来たことを示すものである。また得られた結果の干渉の明瞭度は 95.1% であり、これは以前に我々が行った、従来型の二光子干渉で得られた結果より、遥かに良いものであり、精度良く量子光干渉を生じさせる系を完成させたということができる。

### (3)偏光の二光子干渉 (液晶リターダー)

位相板を用いた手法では、位相制御が二光子干渉実験において、干渉の 1 周期に対して、測定点がわずか 10 点程度である。これは、回転素子の精度にもよるが、このような機械的な制御による限界が先々問題になる可能性があった。

多光子干渉におけるより細かい干渉を測定するために、より詳細な位相制御が必要である。これを、高度にかつ高速に行うため、液晶を用いた位相変調器(液晶リターダー)を新たに導入し、引き続き偏光の 2 光子干渉実験を行った。

図 8 に、古典干渉の結果と二光子干渉実験の結果を並べて示す。結果から明らかなように、より高精度の位相制御と細かい精度での測定が可能となったことが明らかであり、二光子を超える四光子以上の多光子量子干渉の測定に向けて技術的に可能となったことを示している。

### (4)無冷媒低振動クライオスタットを用いた長時間測定

本研究の初年度後半から最終年度において、世界的な He ガスの供給不足が発生し、従来まで行ってきた液体ヘリウムを用いた試料の冷却が困難となった。このような状況の中、当初予定していなかったが、無冷媒低振動クライオスタットを新たに導入し、光学系の大幅な組み換えを行った。最終年度の後半までかかったが、これを用いて二光子干渉実験を行うことに成功した。原理的に液体ヘリウム等による時間的制限がなくなったため、これまで長くても 1~2 日しか測

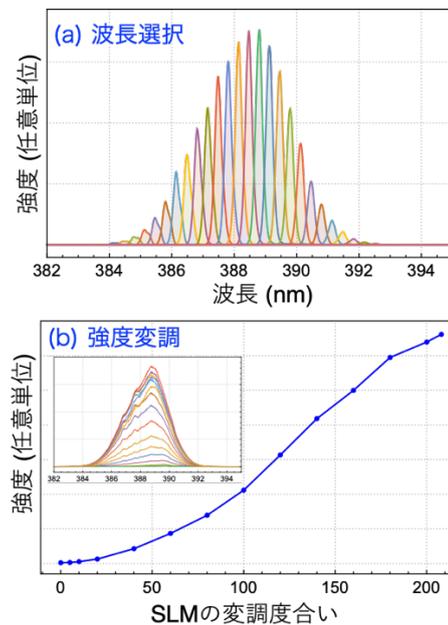


図 6 : SLM と 4F 分光光学系を用いた、周波数変調パルスの測定結果。(a) 波長を細かく切り出した例。(b) 強度変調した例。

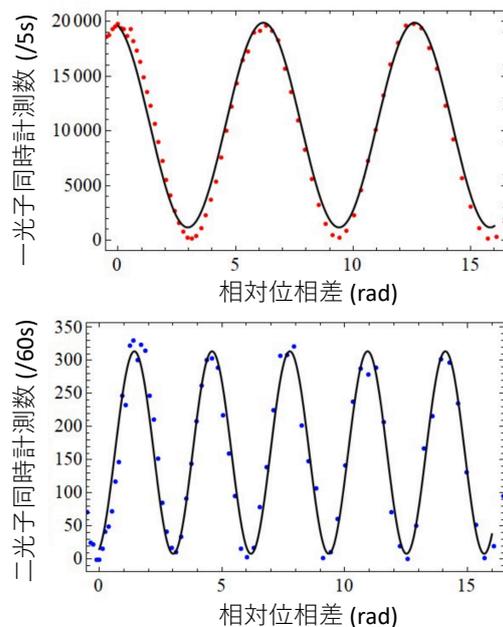


図 7 : 位相板を用いた、古典光源の光子干渉及び RHPS の二光子干渉の測定結果。

定に時間をかけられなかった状況を大幅に伸ばして、2週間以上の長時間の安定的測定が可能となった。

想定外の He ガスの供給不足による実験の一時中断、測定装置の大幅改変などにより、当初目標の四光子干渉実験については結果として明確な結果を得るに至らなかったものの、測定系は完成させ実験を行う段階までには到達した。

<引用文献>

[1] T. Nagata, R. Okamoto, J. L. O'brien, K. Sasaki, and S. Takeuchi, Beating the Standard Quantum Limit With Four-Entangled Photons, *Science* **316**, 726 (2007).

[2] M. Okano, H. H. Lim, R. Okamoto, N. Nishizawa, S. Kurimura, S. Takeuchi, 0.54  $\mu\text{m}$  resolution two-photon interference with dispersion cancellation for quantum optical coherence tomography, *Scientific Reports* **5**, 18042 (2016).

[3] K. Edamatsu, G. Oohata, R. Shimizu, T. Itoh, Generation of ultraviolet entangled photons in a semiconductor, *Nature* **431**, 167 (2004).

G. Oohata, R. Shimizu, K. Edamatsu, Photon Polarization Entanglement Induced by Biexciton: Experimental Evidence for Violation of Bell's Inequality, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 140503 (2007).

[4] Y. Yamamoto, G. Oohata, and K. Mizoguchi, Quantitative characterization of highly efficient correlated photon-pair source using biexciton resonance, *Opt. Exp.* **24**, 6034 (2016).

[5] 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)* **13**, 117 (2016).

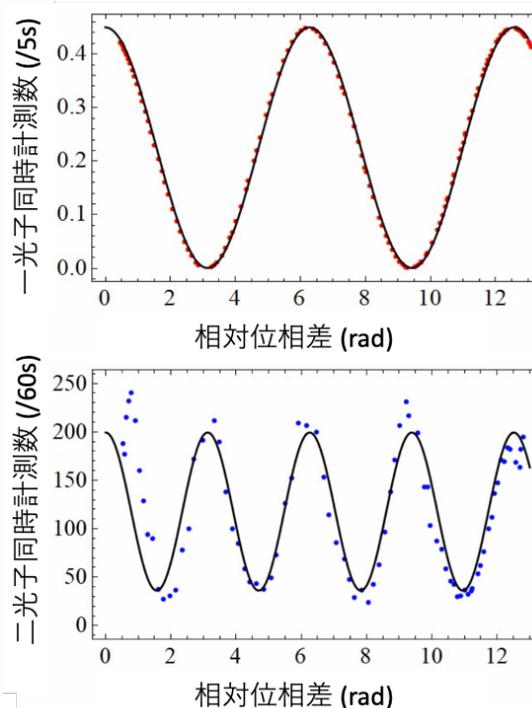


図8 : 液晶リターダーを用いた、古典光源の干渉と RHPS の二光子干渉の測定結果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 T. Yokoyama, T. Nishida, G. Oohata and K. Mizoguchi	4. 巻 1220
2. 論文標題 Q-factor dependence of angle-resolved transmission spectra in CuCl microcavities	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012049/1-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1742-6596/1220/1/012049	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 T. Tsuji, G. Oohata, and K. Mizoguchi	4. 巻 1220
2. 論文標題 Nonlinear polarization optical response to entangled state of biexciton	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012032/1-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1742-6596/1220/1/012032	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 Yasuo Yamamoto, Goro Oohata, Kohji Mizoguchi	4. 巻 36
2. 論文標題 Evaluation of two-photon polarization density matrix of polarization-entangled photon pairs generated through biexciton resonant hyper-parametric scattering	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Optical Society of America B	6. 最初と最後の頁 1581 ~ 1581
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/JOSAB.36.001581	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12件（うち招待講演 1件／うち国際学会 2件）

1. 発表者名 大島悟郎, 辻貴弘, 三宅剛洋, 溝口幸司
2. 発表標題 二光子励起過程における量子状態トモグラフィ：量子もつれの測定
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 辻貴弘, 大島悟郎, 三宅剛洋, 溝口幸司
2. 発表標題 励起子分子の量子もつれ状態に着目したポンプ&プローブ分光III
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大島悟郎
2. 発表標題 光子・励起子・フォノン間の結合状態に起因して現れる非対称スペクトルと非エルミート光応答
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会(2019年) (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 横山大樹, 西田拓哉, 大島悟郎, 溝口幸司
2. 発表標題 様々な共振器構造を持つ CuCl 微小共振器における角度分解透過スペクトルのQ値依存性
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 T. Tsuji, G. Oohata, and K. Mizoguchi
2. 発表標題 Nonlinear polarization optical response to entangled state of biexciton
3. 学会等名 The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (EXCON2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Yokoyama, T. Nishida, G. Oohata, K. Mizoguchi
2. 発表標題 Q-factor dependence of angle-resolved transmission spectra in CuCl microcavities
3. 学会等名 The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (EXCON2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大島悟郎, 辻 貴弘, 三宅剛洋, 溝口幸司
2. 発表標題 量子トモグラフィを用いた量子もつれ分光法の開発
3. 学会等名 レーザー・量子エレクトロニクス研究会 (LQE)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山口佳紀, 大島悟郎, 溝口幸司
2. 発表標題 励起子分子から生成した量子もつれ光子対の偏光相関を利用したbiphoton干渉
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 坂田拓也, 大島悟郎, 溝口幸司
2. 発表標題 複素スペクトル解析によるL0フォノン-プラズモン結合の研究
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 坂田拓也, 大島悟郎, 溝口幸司
2. 発表標題 現象論的非エルミート有効ハミルトニアンによるL0フォノン-プラズモン結合モードの解析
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木村崇彦, 大島悟郎, 溝口幸司
2. 発表標題 4光波混合法を用いた励起子分子に対する偏光密度行列の測定
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口 佳紀, 大島 悟郎, 溝口 幸司
2. 発表標題 励起子分子から生成した量子もつれ光子対に対する偏光biphoton干渉
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
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
---------	---------------------------	-----------------------	----