

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22340113

研究課題名（和文） 簡便な単一光子源の開発と量子状態制御

研究課題名（英文） Development of simple single photon source and its application to quantum state manipulation

研究代表者

久我 隆弘 (KUGA TAKAHIRO)

東京大学・大学院総合文化研究科・教授

研究者番号：60195419

研究成果の概要（和文）：従来のもの比べてはるかに簡便かつ安価な単一光子発生装置を開発した。化学的に多量に合成できる半導体ナノ粒子(直径数 nm 程度)をポリマー薄膜中に固定し、その中の 1 個に着目してレーザー光を照射する。1 個のナノ粒子からは、量子閉じ込め効果により一度に 1 個の光子しか放出されないため、この系はそのまま単一光子源となる。1 秒あたり 1 万個を超える光子を光ファイバーに導き、単一光子の証であるアンチバンチングを確認した。

研究成果の概要（英文）：We constituted a much more simple and inexpensive single photon source than conventional ones. Semiconductor nanoparticles are embedded in a thin film of polymer and one of those particles are illuminated by a laser radiation. Because of the quantum confinement effect in nanoparticles, a single nanoparticle cannot emit multiple photons at one time, i.e. this system can work as a single photon source. We have obtained more than 10 thousand photons per second in a single mode fiber and confirmed the antibunching property, which is the clear evidence for a single photon source.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	6,800,000	2,040,000	8,840,000
2011 年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
2012 年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
年度			
年度			
総計	14,300,000	4,290,000	18,590,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：単一光子源、半導体ナノ粒子、1 粒子計測、量子情報処理、量子暗号、アンチバンチング、ナノファイバー、ポリマー薄膜

## 1. 研究開始当初の背景

単一光子状態は古典論では表すことのできない純量子論的な状態であるため、基礎学的、応用技術的な高い関心を集めていた。すでに 1980 年代から単一光子の発生を目的とした研究が盛んに行われようになっており、研究開始当初においてもいくつかの方法で

単一光子発生は確認されていた。しかし、いずれの手法も大掛かりな実験装置と高度な技術を必要とするものであったため、現実の量子演算・情報処理を遂行するためには不向きであった。

そこで申請者は、量子情報処理の分野で必要不可欠な単一光子を、可能な限り簡便に、

そして安価に発生させる装置を開発しようと思いついた。

## 2. 研究の目的

本研究は、申請者自らが行ってきた過去の先端的な研究で得られた知見をもとに、より現実的で簡便な単一光子発生装置、すなわち、発生効率がよく、任意の時刻に単一光子を発生でき(任意時性)、軽量コンパクトで操作性も良く、低環境負荷の装置の開発を目的とした。さらに、光源のウィグナー分布関数等の測定による量子特性の吟味、量子演算に向けた複数光子のエンタングル状態発生なども、研究開始当初は目指した。

## 3. 研究の方法

### (1) 単一光子源としての半導体ナノ粒子

これまで実現された単一光子源に用いられている発光体としては、単一原子(イオン)、エピタキシャル量子ドット、パラメトリック下方変換による光子対がある。しかし超高真空装置、極低温冷却装置、高性能レーザーなどの大型装置・施設を必要とするものばかりであった。本研究では、簡便性という点に重点を置き、すでにブリンキング(点滅)と呼ばれる現象が報告されている、半導体ナノ粒子を発光体として用いることにした。

半導体ナノ粒子は、図1にあるような直径数nm程度のナノ粒子であり、その大きさを制御することで量子閉じ込め効果が発現し、発光波長の制御が可能である(図2)。また、化学的に合成するため、安価で大量に作成でき、表面にアミノ基やカルボキシル基などを修飾することも可能であり、生命科学の分野ではタンパク質等のトレーサーとして幅広く用いられている。

半導体ナノ粒子中の電子が光励起により伝導体に励起された際、その波動関数は半導体ナノ粒子全体に広がっているため、二番目の電子が励起された場合はクーロン反発によってイオン化が起こり、片方が半導体ナノ粒子から飛び出し、もう一方は価電子帯へ戻る(オーグエイオン化)。すなわち、半導体ナノ粒子では、電子が1個励起された場合は発光するが、2個励起された場合はオーグエイオン化過程により発光しない。そしてイオン化した半導体ナノ粒子は光を吸収しない、あるいは無輻射過程による脱励起が支配的になるため、励起光を照射しても発光しなくなる(off状態)。この現象はブリンキングと呼ばれる(図3)。これらのメカニズムにより、on状態にある1個の半導体ナノ粒子は一度に1個の光子しか放出しない。

本研究では、半導体ナノ粒子の廉価性、取り扱いの容易さ、そして単一光子性(ブリンキング)に着目し、簡便な手法で単一光子源を作成するための最適な素材であると判断し

た。

### (2) 導波路法

研究当初は、図4のように長さ1mm程度、直径1 $\mu\text{m}$ 程度のガラス(低屈折率)の中空管(キャピラリー)中に、半導体ナノ粒子を懸濁したポリマー(高屈折率)を導入した導波路構造を作成し、単一光子を選択的に導波路モードに放出させる計画だった。半導体ナノ粒子の濃度を適切に設定することにより、キャピラリー内に1個しか半導体ナノ粒子が入っていないものがある一定の確率で作成できるはずであり、それを選び出して単一光子源にする方針だった。そしてその選別を効率的

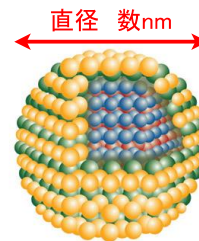


Figure 5. CdSe/ZnS core-shell quantum dots have an inner spherical CdSe semiconductor crystal surrounded by a shell of ZnS semiconductor. Core diameters typically range from 2 to 10 nm, and shell thickness may vary from 0.5 to 4 nm. Courtesy of Evident Technologies Inc.

Photonics Spectra, May 2007

<http://www.photonics.com/Article.aspx?AID=29421>

図1 CdSe/ZnS コア/シェル半導体ナノ粒子

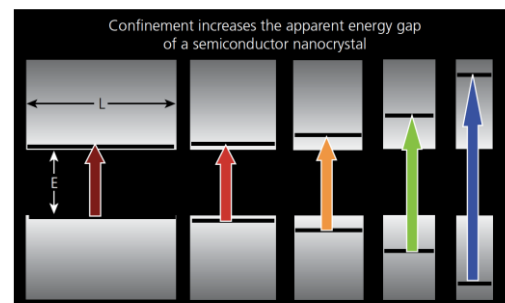


Figure 2. Schematic of the effect of the decreased size of the box on the increased energy gap of a semiconductor quantum dot, and the resultant luminescent color change from bulk materials (left) to small nanocrystals (right).

[http://www.sigmaaldrich.com/etc/medialib/docs/Aldrich/Brochure/al\\_material\\_matters\\_v2n1.Par.0001.File.tmp/al\\_material\\_matters\\_v2n1.pdf](http://www.sigmaaldrich.com/etc/medialib/docs/Aldrich/Brochure/al_material_matters_v2n1.Par.0001.File.tmp/al_material_matters_v2n1.pdf)

図2 量子閉じ込め効果

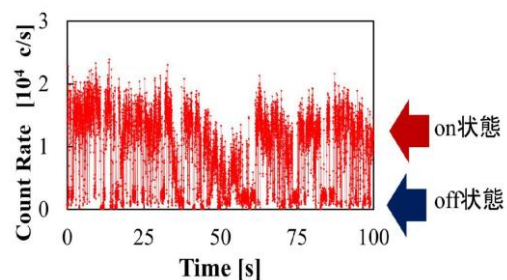


図3 ブリンキング

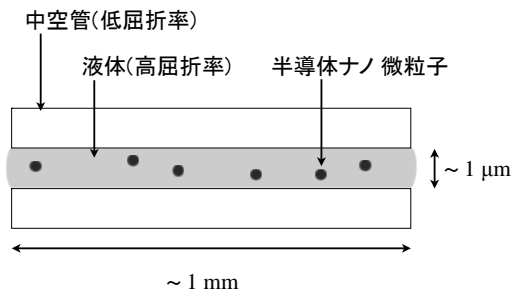


図4 導波路構造

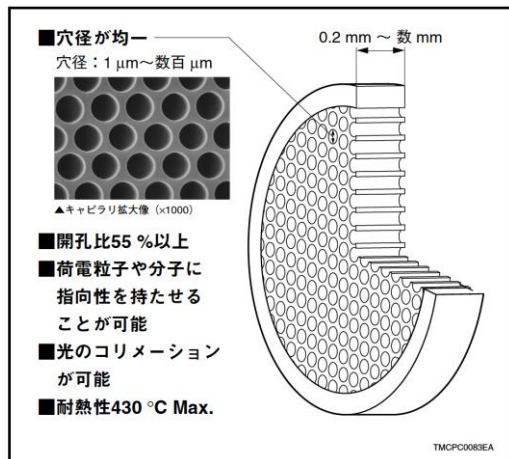


図5 キャピラリープレート  
(浜松ホトニクス社カタログより)

に行うために、キャピラリーが束となっている浜松ホトニクス社製のキャピラリープレート(図5)に注目し、使用することにした。

### (3) ポリマー薄膜を使う方法

導波路法は単一光子を発生させた後の集光効率を向上させる上では有用であるが、単に単一光子状態であることを確認するだけで

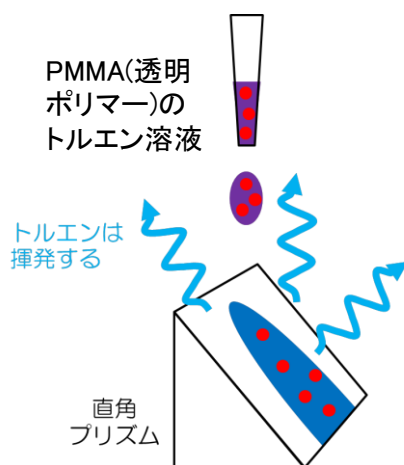


図6 PMMA 薄膜の作成

あれば、単純に半導体ナノ粒子を1個だけ、空間のある特定の場所に固定するだけで良い。したがって、容易に手に入り、可視域における透明性の高いポリマー(PMMA: ポリメタクリル酸メチル樹脂)薄膜中に半導体ナノ粒子を希薄に分散させ、それをガラス(プリズム)基板上に固定させる方法(図6)で単一光子の発生を試みた。

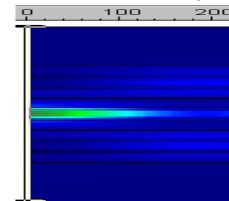
## 4. 研究成果

### (1) 導波路法

当初計画の導波路法においては数々の問題がもち上がり、結論から言うと、導波路法はとりあえず棚上げすることにした。以下に、その問題点を記す。

まず、浜松ホトニクス社から市販されているキャピラリープレートについて、導波モードの計算機シミュレーションを行った。通常の市販品は、開口率を高くするため、キャピラリーの間隔は極力近づける努力がなされている。しかし、私たちの用途(キャピラリーを導波路にする)を考えた場合、導波路間隔が近いということは、導波モード間に結合が起こる可能性が出てくる。そこで導波路解析ソフトウェア(オプトデザイン社 FIMMWAVE)を用いてシミュレーションを行った(図7)。図7(a)は、浜松ホトニクス社のカタログに載っているキャピラリープレート(ガラスの屈折率: 1.66、穴径:  $1\mu\text{m}$ 、穴間隔:  $1.7\mu\text{m}$ )中に屈折率 1.71 のポリマーを充填したときの光の伝播の様子である。入口から  $100\mu\text{m}$  程度で隣のモードにエネルギーの大部分が移ってしまっていることが分かる。一方、図7(b)は穴間隔を倍の  $3.4\mu\text{m}$  にして計算したものであり、この条件では隣のモードにはほとんど結合せずに  $1\text{mm}$  の長さを伝播できる

(a) 穴間隔  $1.7\mu\text{m}$



(b) 穴間隔  $3.4\mu\text{m}$

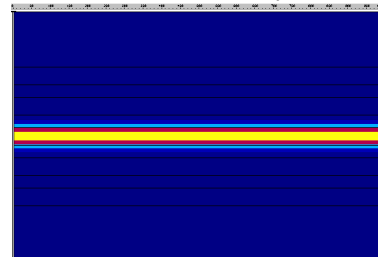


図7 導波モードのシミュレーション

ことが分かる。このシミュレーションをもとにし、さらに実験のしやすさも考慮して、穴間隔  $10\mu\text{m}$  のキャピラリープレートを浜松ホトニクス社に特注した。

次の問題は、どのようにして高屈折率ポリマーを直径  $1\mu\text{m}$  のキャピラリー中に導入するのかといった点である。この点に関しては、数人のポリマーの専門家とも相談し、いくつかの方法を試してみたが、結局、ガラスとポリマーの「濡れ性」があまり良くないことから、キャピラリー中にはきれいには導入できなかった。特に、キャピラリープレートに使われているガラスの屈折率が 1.66 と、通常のガラスに比べても高めであることもあり、単一モード条件を満たすためには、ポリマーの屈折率は 1.71 程度のもが必要となる。世の中には、ブロムを含むポリマーに屈折率が 1.7 以上のものもあり、いくつか購入して試してはみたが、単価が高いこと (0.5 g で 3 万円程度) と、多少黄色みがかっていることもあり、条件の最適化までは追求していない。このように、キャピラリー中にポリマーを導入することに関しては、困難と判断されたため、発想を少し転換して、ポリマー導波路を作成している研究者にも相談してみた。コア部に用いるポリマー中に半導体ナノ粒子を混ぜ込んだうえで、ファイバーの線引きをする方法である。ただ、先方も当方もマンパワーが不足しており、現在は作業が中断している。

以上のように、導波路法を使うのであれば、コア部に半導体ナノ粒子を分散させたポリマー導波路を設計し、一から作成する方法が有力である。しかし、この技術は私たちの研究室にはない技術であり、独自の力ではこれ以上の進展は期待できない。研究期間の制約もあるため、導波路法は今回は棚上げすることにした。

### (2) ポリマー薄膜を使う方法

PMMA 薄膜中の半導体ナノ粒子は図6に示した方法で容易に作成できる。半導体ナノ粒子からの発光が単一光子であることを確認するために、強度相関測定の実験系を組み上げた(図8)。超高感度な CCD カメラを用いて薄膜中のある1個の半導体ナノ粒子の位置を確認し、その粒子からの発光を開口数の大きな対物レンズ (NA = 0.73) で集め、励起光がファイバーに入らないようにバンドパスフィルターを介して単一モード光ファイバーへと導く。ファイバー内に入った光子を 50:50 の分配器で分割し、それぞれを単一光子計数モジュール (SPCM) で検出する。各検出器に光子が到着した時間を時間分解能 50 ps の時間デジタル変換器 (TDC) で記録した後、コンピューター処理により、各検出器に光子が到着した時刻の差をヒストグラムにすれば、半導体

ナノ粒子の発光の強度相関を知ることができる。この測定により、単一光子の証であるアンチバンチングを確認することができた(図9)。

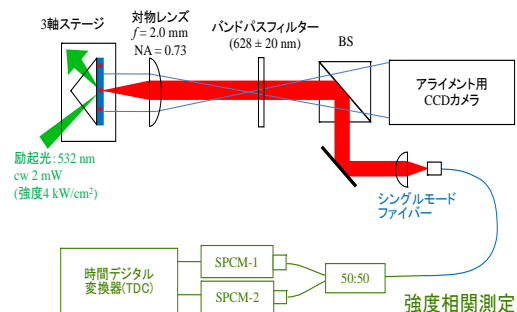


図8 測定のセットアップ

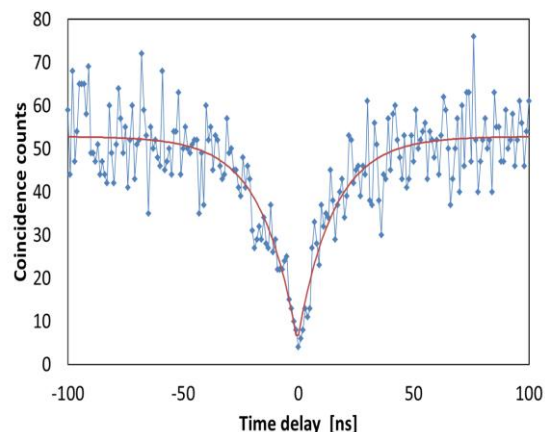


図9 アンチバンチングの観測

### (3) 今後の展望

今回の研究課題のうち、「単一光子源開発」だけをみるならば、非常に簡便かつ安価な手法で単一光子源を完成させており、高い成果が挙げられたものと思われる。しかし、単一光子の集光効率が 0.1% 程度と悪かったため、ウィグナー分布関数の測定など、光源のコヒーレンスや量子論的な性質を確認する研究は行えなかった。今後は、集光効率を向上させる研究開発を進めていく予定である。具体的には、他の化学系の研究者と協力したポリマー導波路の作成である。また、薄膜を利用する方法には利点も多くあり、当研究室で技術的な蓄積もある共振器量子電気力学的効果を駆使する方法が有力である。発光体の周囲に、Q 値の高い微小共振

器長がある場合、発光体からの発光はその微小共振器の共鳴モードに引き込まれる。つまり、発光は等方的ではなく共振器の光軸方向に強く発光する(パーセル効果)。これを実現するには、図 10 にあるような形をとるのが良いと考えられ、今後はこの方向で研究を進めていく。

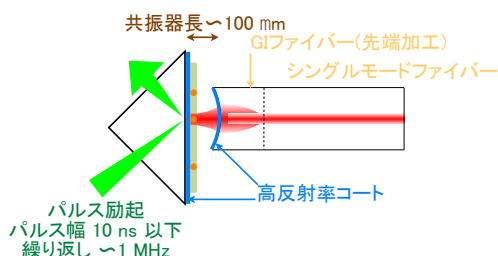


図 10 集光効率の向上(パーセル効果)

## 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 2 件)

- ① Bo Xu, Mika Omura, Masato Takiguchi, Amos Martinez, Takaaki Ishigure, Shinji Yamashita, Takahiro Kuga, Carbon nanotube/polymer composite coated tapered fiber for four wave mixing based wavelength conversion Optics Express, 査読有、21 巻, 2013、3651-3657、<http://www.opticsinfobase.org/oe/abstract.cfm?URI=oe-21-3-3651>。
- ② Masato Takiguchi, Yutaka Yoshikawa, Takayuki Yamamoto, Kazuyuki Nakayama, Takahiro Kuga, Saturated absorption spectroscopy of acetylene molecules with an optical nanofiber, Optics Letters, 査読有、36 巻, 2011、1254-1256、<http://www.opticsinfobase.org/ol/abstract.cfm?URI=ol-36-7-1254>。

[学会発表] (計 4 件)

- ① 竹内誠, 豊浜弘海, 久我隆弘, 波面制御による半導体ナノ粒子への光アドレッシング、日本物理学会、2012 年 9 月 19 日、横浜国立大学(横浜)。
- ② Amos Martinez, Mika Omura, Masato Takiguchi, Bo Xu, Takahiro Kuga, Takaaki Ishigure, Shinji Yamashita, Multi-solitons in a Dispersion Managed Fiber Laser using a Carbon Nanotube-Coated Taper Fiber, Signal Processing in Photonic Communications, 2012 年 6 月 19 日、Colorado Springs,

Colorado United States。

- ③ 芥川嘉成、竹内誠、久我隆弘、半導体ナノ粒子を用いた簡便な単一光子源の光子統計測定、日本物理学会、2011 年 9 月 23 日、富山大学(富山)。
- ④ 芥川嘉成、室屋海晴、滝口雅人、中山和之、竹内誠、久我隆弘、半導体ナノ粒子を用いた簡便な単一光子源の開発、日本物理学会、2010 年 9 月 25 日、大阪府立大学(大阪)。

[その他]

ホームページ等

<http://kuga-lab.c.u-tokyo.ac.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

久我 隆弘 (KUGA TAKAHIRO)

東京大学・大学院総合文化研究科・教授

研究者番号：60195419

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし