

竹内 繁樹

北海道大学 電子科学研究所・教授

「モノサイクル量子もつれ光の実現と量子非線形光学の創成」

## §1. 研究実施体制

### (1)「竹内」グループ

①研究代表者:竹内繁樹 (北海道大学 電子科学研究所、教授)

②研究項目

1. モノサイクルもつれ光源の開発
2. 量子非線形光学の研究
3. 量子メトロロジーの研究

### (1)「栗村」グループ

①主たる共同研究者:栗村直 (独立行政法人 物質・材料研究機構、光材料センター 光周波数変換グループ、主幹研究員)

②研究項目

1. モノサイクルもつれ光源の開発  
(QPM デバイス設計試作)

### (1)「ホフマン」グループ

①主たる共同研究者:Holger F. Hofmann (広島大学 大学院先端物質科学研究科、准教授)

②研究項目

1. モノサイクルもつれ光源の開発
2. 量子非線形光学の研究
3. 量子メトロロジーの研究

## § 2. 研究実施内容

(文中の引用番号等は(3-1)に対応する)

本研究は、「量子もつれ光」と「モノサイクル光」の概念を融合し、極限的な時間相関を有するもつれ光という全く新しい光源を創造、さらに、その光源を用いてこれまで実現不可能な「光」と物質の相互作用をナノフォトニクス技術により実現、新しい超高速現象の観測技術を切り開くとともに、量子メトロロジーへの応用により光計測分野へもイノベーションをもたらすものである。北海道大学(竹内グループ)が評価・計測・検証を、物質・材料研究機構(栗村グループ)がもつれ光を発生する新規非線形デバイス開発を、および広島大学(ホフマングループ)が理論解析を担当し、(1)モノサイクルもつれ光源の開発、(2)モノサイクル量子もつれ光を用いた非線形光学、(3)モノサイクル量子もつれ光を用いた量子メトロロジーの3つのテーマについて研究を進める。中間目標に掲げる数サイクル(20~30フェムト秒程度)の極短時間相関のもつれ光子対光源の実現を目標に、プロジェクト前半は3項目のうち特に(1)モノサイクルもつれ光源の開発に関し重点的に進め、当初計画していた(1-A)ナノ加工電極による擬似位相整合(QPM)デバイスの開発に加えて、従来技術の延長である(1-B)変調光リソグラフィーを用いた QPM デバイスの開発、さらに(1-C)バルク非線形光学結晶を利用した発生方法の3通りについて、並列的に研究を進めている。

平成23年度は、項目(1-A)に関し、栗村グループは、電子ビーム露光による Al ナノ電極を用いて電界印加分極反転を行い、幅 400nm の細線電極を用いて、周期  $8\mu\text{m}$  の周期分極反転構造の実現に成功した。また、項目(1-B)に関し、南京大学との共同研究により超伝導光子検出システムの構築に成功、非同軸条件での超広帯域パラメトリック蛍光対発生(790nm-1610nm)を、広帯域可変バンドパスフィルターを用いた分光測定により確認した。また項目(1-C)に関しては、バルク結晶を用いる広帯域化について引き続きより詳細な検討をおこなった。また、項目(2)に関しては、和周波発生時の光子検出用に前述の超伝導光子検出システムの立ち上げに成功した。また、直径 300nm のナノ光ファイバを実現、その表面に付着させた半導体量子ドットからの発光が、ナノ光ファイバに高効率で結合することを実証した。また、理論的には、時間遅延をもった極短参照パルスによる2光子干渉を用いて光子の時間相関及び時間コヒーレンスの詳細な情報を得られる方法を発案した。さらに項目(3)に関しても、名古屋大学西澤准教授との共同研究により、量子光コヒーレンストモグラフィ(量子 OCT)の実験系を立ち上げ、バルク非線形結晶で発生させた広帯域もつれ合い光子対を利用し、 $2\mu\text{m}$  程度の分解能に相当する量子 OCT 信号を得ることに成功、また群速度分散に対する耐性も確認した。以上のように、研究は順調に進展している。

これらの成果をもとに、来年度は項目(1)に関し、ナノ電極を用いたチャープ構造の設計および試作、超広帯域パラメトリック蛍光対の周波数相関測定、光子対のチャープ補正光学系の構築、項目(2)に関しては光子対和周波発生による時間相関測定、項目(3)に関しては量子 OCT の高分解能化などを行う予定である。

以下、各グループごとに、それぞれの項目における研究進展の詳細を報告する。

竹内グループでは、項目(1)のモノサイクルもつれ光源の開発に関して、平成 22 年度に、栗村グループが既存技術を用いて作成した作製した、10%チャープ QPM デバイス評価実験を行ない、その結果、約 790nm~1640nm(帯域幅 850nm)の超広帯域パラメトリック蛍光発生に成功した。しかし、あまりにも帯域が広いため、この測定は CCD カメラおよび InGaAs フォトダイオードアレイという、2種類の異なる積算型光検出器を、波長ごとに使い分けておこなったものであった。

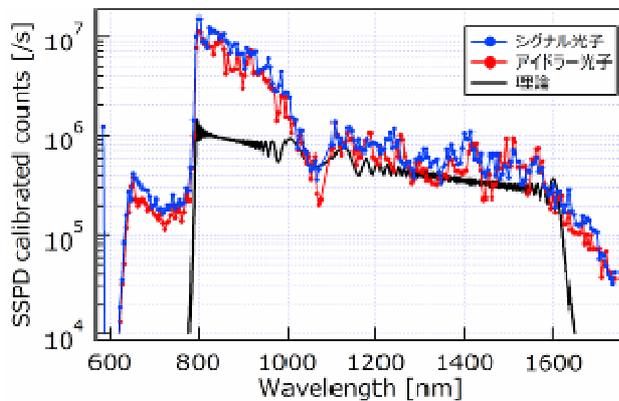


図1. 非同軸超広帯域パラメトリック蛍光対の、超伝導光子検出システムによる分光測定結果

今後、光子対の周波数相関測定や、2光子量子相関測定などの評価を進めるには、積算型検出器ではなく、個々の光子の検出をパルス信号として出力する光子検出器(フォトンカウンティング)を用いた評価が必須である。しかし、市販の光子検出器で、これだけの広帯域をカバーできる光子検出器は存在しないという問題があった。

平成 23 年度、我々は、元々、項目(2)の和周波発生信号用に、南京大学の協力の元で開発を進めてきた、超伝導光子検出器の活用を試みた。一般に用いられている半導体アバランシェフォトダイオードを用いた光子検出器は、バンドギャップ以下のエネルギーの光子は通常検出できないため、その帯域が限られている。一方で超伝導光子検出器は、超伝導ギャップのエネルギーが可視光や近赤外光と比べて極めて小さいため、原理的には広い帯域を有する。この超伝導光子検出器システムと、分光器の一種である広帯域可変バンドパスフィルターを組み合わせる系により、超伝導光子検出システムの検出効率の波長およびバイアス電流依存性を詳細に明らかにした。その結果、長波長域で指数関数的に検出効率が減少するものの、500nm-1650nm という広い波長帯域にわたって、光子検出が可能であることが分かった。また、最大の効率が得られるバイアス電流においても、そのダークカウントは毎秒 2 カウントと、極めて低ノイズであることも分かった。

この超伝導光子検出器システムと、分光器の一種である広帯域可変バンドパスフィルターを組み合わせる系により測定した、非同軸条件で発生させた超広帯域パラメトリック蛍光対のスペクトルを図1に示す。790nm-1610nm という広帯域にわたり発生していることが確認できた。また、理論計算から、光子対の一方に適切に群速度補正を施すことができれば、この蛍光対は最短 5fs の時間相関を持ちうるということが分かった。(Photonics West 招待講演、竹内 G 国際6他、投稿予定)

項目(2)のモノサイクル量子もつれ光を用いた非線形光学に関しては、光子対を非線形光学結晶中に入射し、和周波発生を用いて、ポンプ光と同じ波長(532nm)を持った光子を発生させる必

要がある。この過程は、通常の光では殆ど生じないが、モノサイクル量子もつれ光を用いた場合には、毎秒数個から数百個程度の和周波光子発生が予測されている。この観測のためには、532nm に高い感度を持ち、かつ、ダークカウントができるだけ少ない光子検出器が必要となる。

このような検出器として、平成22年度より南京大学の呉教授、陳教授のご支援を得、共同研究として超伝導光子検出システムの構築を行ってきた。平成23年度は、システムの構築に成功、超伝導光子検出システムの検出効率の波長およびバイアス電流依存性を詳細な評価を行った。その結果、532nm において、検出効率 30%を維持しながら、毎秒 0.01 個という極めて少ないダークカウントを得られることを確認した(Photonics West 招待講演、竹内 G 国際7他、論文投稿中)。

また、モノサイクルもつれ光を用いた2光子吸収実験に関連し、平成22年度までに、ナノ光ファイバの実現について研究を進め、たとえば微小球共振器の極低温下での結合実験について報告してきた。平成23年度は、直径 300nm のナノ光ファイバを実現<sup>1)</sup>、その表面に付着させた半導体量子ドットからの発光が、ナノ光ファイバに高効率で結合することを実証した<sup>4)</sup>(図2)。この実験では、半導体量子ドット(CdSe/ZnS)からの単一光子蛍光を 7.4%という高効率で直径約 300nm の極細の単一モードナノ光ファイバに結合できた。これは SIL(Solid Immersion Lens)と顕微光学系の組み合わせによる結合効率を超える値である。この系を、もつれ光子対による2光子吸収実験への応用することで、2つの光子を、進行方向(時間方向)に加えて、その上下左右方向にも閉じ込めた状態で、単一発光体等と相互作用させることが可能になると期待される。(Nano Lett. 2011, Opt. Exp. 2011 他、論文 1,4,5)

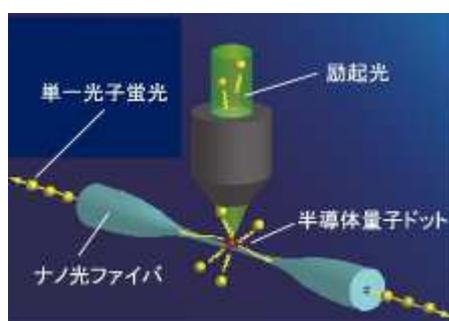


図2. ナノ光ファイバ表面の半導体量子ドットからの単一光子蛍光の結合実験系

項目(3)のモノサイクル量子もつれ光を用いた量子メトロロジーに関しては、平成22年度より、OCT 開発に実績のある、名古屋大学西澤准教授との協力を得て研究をすすめている。平成22年度は、古典 OCT と量子 OCT の性能を、同一装置で比較出来るように工夫した光学系の設計、試作を行い、古典光を用いた、20 μm 程度の低コヒーレント干渉の観測に成功していた。平成23年度は、広帯域なパラメトリック蛍光対をバルク非線形結晶で発生させ、もつれ合い光子対として利用することで、2 μm 程度の分解能に相当す

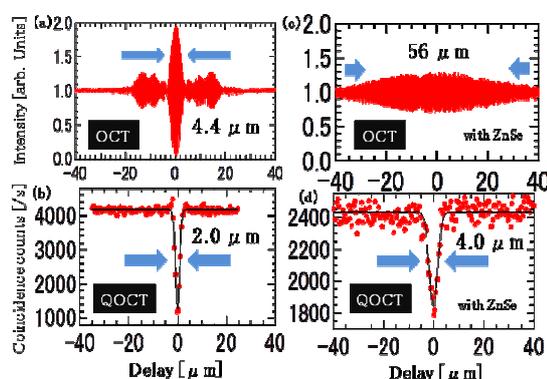


図3. 広帯域光源によるOCTと量子OCTの比較実証実験結果。分解能の比較実験(a),(b)および群速度分散への耐性実験結果(c),(d)。

る量子 OCT 信号を得た(図 3(b))。これは同程度の帯域(約 80nm, 37THz)を持つ SLD 光源による古典 OCT の分解能  $4.4 \mu\text{m}$ (図 3(a))を上回る結果であり、量子 OCT の分解能における優位性を実証できた。さらに、群速度分散は従来の古典 OCT において分解能を悪化させる原因として問題となっているが、その影響を調べるためにサンプル用の経路に分散媒質(ZnSe)基板を挿入して分解能の変化を見た。その結果、古典 OCT では分解能が  $56 \mu\text{m}$  と 10 倍以上悪化した(図 3(c))のに対し、量子 OCT では  $4 \mu\text{m}$ (図 3(d))とその効果が抑制されることが示され、実験的に群速度分散への耐性を実証することに成功した。このような広帯域もつれ光源を利用した量子 OCT 実験で、群速度分散耐性を検証したのは知る限り初めての成果である。平成24年度は、より広帯域な光源による分解能の向上を目指していく予定である。(Photonics West 招待講演、竹内 G 国際6 他)

また、光子の2光子干渉性を利用した光量子回路に関して、巨大な単一光子非線形を持った素子を組み合わせた、光量子回路(KLM-CNOT)の実現に成功した<sup>3)</sup>(PNAS, 論文 3)。他に、空間モード(軌道角運動量)間のもつれ状態の精密な検証にも成功している<sup>2)</sup>。

栗村グループは、項目(1)のモノサイクルもつれ光源の開発に関し、超広帯域擬位相整合デバイスの研究を担当している。平成 23 年度は、項目(1-A)に関し、電子ビーム露光による Al ナノ電極を用いて電界印加分極反転を行い、周期分極反転構造の実現に成功した。分極反転領域は、1)核生成、2)Z軸成長、3)X軸成長、4)安定化の段階を経て周期構造を形成する(図4)が、この際に印加電界は非常に強いパラメータである。従来法では絶縁層をパターンニングした上に全面電極を形成する手法を用いているが、本研究では電子ビーム露光によるナノ細線化に対応するため電気伝導率の高い Al を選定し電極を形成している。構造的および材料的な違いにより電界印加に影響があり、次の2点が大きく異なる:すなわち A) 細線化による電極付近の電界集中度、および B) フェルミ順位の違いによる酸化物誘電体 SLT との間に形成される空乏層、である。前者は印加電界の絶対値に影響し、後者は印加するパルス幅に影響する。そこで今回の新規電極に対して印加電界の最適値を模索すべく3)および4)のプロセスの電界依存性を調査した。

核生成密度を満たす電界印加条件は、震災の復帰直後に比較的早く確定できたため、デバイスとしての効率をきめる3)X軸成長、4)安定化の過程について電界印加条件を検討した。3)X軸成長過程においては最大効率を実現する分極反転比を与える電界を探索し(図5)、4)安定化過

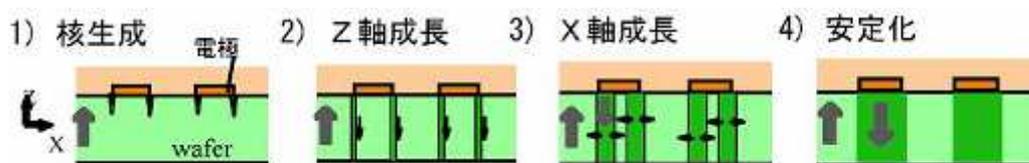


図 4 強誘電体 Mg:SLT における電界印加分極反転過程

程においては、効率の低下要因であるバックスイッチングを抑制する安定化電界を探索した(図 6)。図5では電界集中を反映して分極反転比の電界依存性は傾きが大きく、そのスロープは 4

(mm/kV)と求められた。他方、図6の安定化電界に関しては2次曲線近似において 0.38 (kV/mm)においてバックスイッチ密度が最小と求められた。

印加電界0.715kV/mmにおいて得られた周期8  $\mu$  mの分極反転構造を図7に示す。分極反転比の不均一はみられるものの幅 400nm の細線電極において周期構造が観測されている。電界印加条件の最適化により均一性の改善が見込まれている。

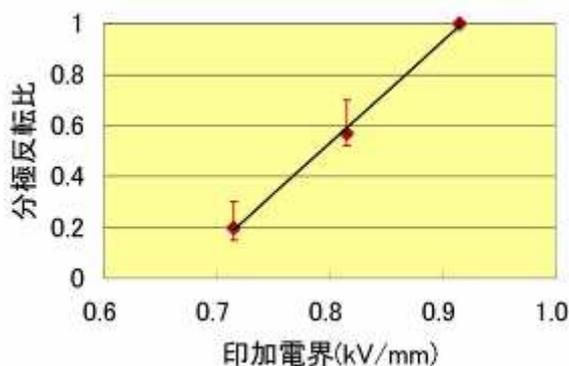


図5 分極反転比の反転電界依存性

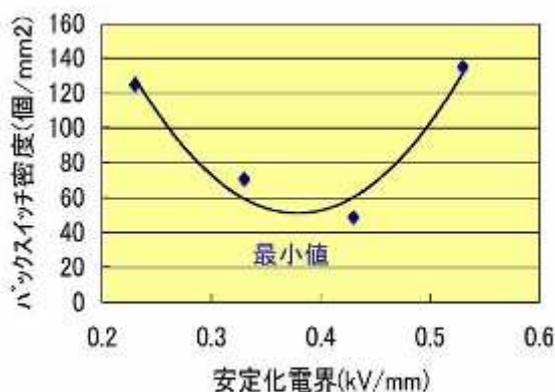


図6 バックスイッチ密度の安定化電界依存性

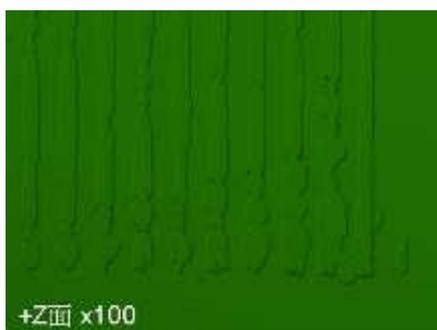


図7 ナノ電極による周期8  $\mu$  m分極反転構造

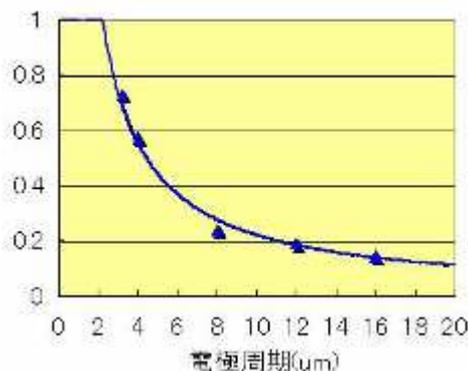


図8 周期と分極反転比の関係

また本プロジェクトの主題である大きく異なる周期が混在するチャープ構造は、それぞれの周期電極においてを3) X軸成長の度合いが異なるため、均一な分極反転比を得ることが極めて困難である。世界的にも過去に成功例がないため、平成 23 年度はナノ電極を設計するための基礎データの取得を行った。図 7 のように構造の不均一が存在するため現時点では平均の分極反転比で表示されているが、同一電界印加条件では周期が短くなるに連れて分極反転比が増大することがわかる。これは複数周期が混在した場合にそれぞれの効率が異なることを意味し、チャープ構造で帯域を拡大する際の本質的な困難と言える。今回これらの基礎データが得られたことでナノ電極を用いたチャープ構造の設計が可能になり、平成 24 年度はこの設計、作製に移行する。項目(1-B)に関し、平成 23 年度では高密度励起の検討を行った。デバイスの周期にチャープをかけたことで、単位周波数あたりのスペクトル輝度は低下するため、チャープデバイスにおいて十分な光子数を得るためには高い励起光パワーが必要になる。数ワットクラスの励起光では Mg:SLT

の微小吸収に起因する発熱が無視できず、発生スペクトル幅に熱的なゆらぎが生じる。すなわち熱的な光子対発生不安定性が量子干渉の再現性を低下させることになる。栗村グループは、高排熱モジュールを開発し(図9)第二高調波発生において励起光波長(0.53 μm)を高出力で発生させ、温度上昇を定量評価した。この結果温度上昇は3°C以内に抑えられ励起光波長への波長変換で19W出力が得られた(図10)。すなわちこの排熱モジュールでは、励起光19Wの高密度励起まで対応できることがわかった。なおこれ以前の単行連続発振緑色光発生の最高出力はスタンフォード大学の18.8Wであり、世界最高レベルの出力が得られていたことがわかる。



図9 高排熱波長変換モジュール

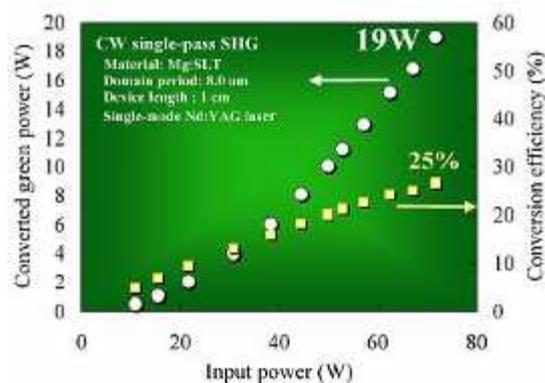


図10 SHGによる励起光波長発生実験

ホフマングループは、昨年度に任昌亮博士研究員が着任し、体制が整っている。項目(1)に関しては、時間分解量子トモグラフィの方法として、時間遅延をもった極短参照パルスによる2光子干渉を用いて光子の時間相関及び時間コヒーレンスの詳細な情報を得られる方法を理論的に考案した。これにより数サイクルもつれ光子対の時間もつれあいを極短の時間スケールで評価可能であると考えられる。また、項目(2)に関し、昨年度までに量子的な性質を持つ光と原子系の相互作用の解析を行ってきたが、今年度はさらに単一原子系における2光子の相互作用を記述する新たなモデルを開発し、非共鳴光により引き起こされる原子系での2光子散乱を評価した。この結果は原子系での数サイクルもつれ光子対とコヒーレント光の相互作用の解析に応用できると考えられる。項目(3)に関しては、昨年度までに量子メトロロジーと弱測定に関する一連の研究を行ってきたが、今年度において弱測定が光子の周波数と時間の情報を結合させることができ、それによって数サイクルもつれ光子対の周波数・時間相関におけるチャープを効率的に評価できることを理論的に示した。さらに量子もつれを用いた時刻同期プロトコルの研究も開始しており、多者間もつれ合いを利用した方法について幾つかの初期的な結果を得ており引き続き研究を行なう予定である。

### §3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

##### 【竹内グループ】

1. M. Fujiwara, K. Toubaru and S. Takeuchi, "Optical transmittance degradation in tapered fibers", OPTICSEXPRESSION(OA), vol.19, No.9, pp.8596-8601, 2011 (DOI: 10.1364/OE.19.008596)

2. Y. Miyamoto, D. Kawase, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi, "Detection of superposition in the orbital angular momentum of photons without excess components and its application in the verification of non-classical correlation", Journal of Optics, vol.13, No.69, pp.064027/1-6, 2011 (DOI: 10.1088/2040-8978/13/6/064027)

3. R. Okamoto, J.L. O'Brien, H.F. Hofmann and S. Takeuchi, "Realization of a Knill-Laflamme-Milburn controlled-NOT photonic quantum circuit combining effective optical nonlinearities", Proc. Natl. Acad. Sci, vol.108, No.25, pp.10067-10071, 2011 (DOI: 10.1073/pnas.1018839108)

4. M. Furuhashi, M. Fujiwara, T. Ohshiro, M. Tsutsui, K. Matsubara, M. Taniguchi, S. Takeuchi and T. Kawai, "Development of microfabricated TiO<sub>2</sub> channel waveguides", AIP Advances, vol.1, No.3, pp.032102/1-5, 2011 (DOI: 10.1063/1.3615716)

5. M. Fujiwara, K. Toubaru, T. Noda, H.Q. Zhao and S. Takeuchi, "Highly Efficient Coupling of Photons from Nanoemitters into Single-Mode Optical Fibers", Nano Letters, vol.11, No.10, pp.4362-4365, 2011 (DOI: 10.1021/nl2024867)

##### 【栗村グループ】

6. S. Kurimura, "Device and Material for High-power Wavelength Conversion", 機能材料 vol.31, No.3, pp5-10, 2011

7. 栗村直 : "波長変換材料の進展" THE REVIEW OF LASER ENGINEERING (レーザー研究) vol.39, No.5, pp319-325,2011.

8. H. Iliev, I. Buchvarov, S. Kurimura, V. Petrov : “1.34-um Nd:YVO<sub>4</sub> laser mode-locked by SHG-lens formation in periodically-poled stoichiometric lithium tantalite” Opt. Express vol.19, No.22, pp21754-21759, 2011.

(DOI: 10.1364/OE.19.021754)

9. H. H. Lim, T. Katagai, S. Kurimura, T. Shimizu, K. Noguchi, N. Ohmae, N. Mio, and I. Shoji, “Thermal performance in high power SHG characterized by phase-matched calorimetry” Optics Express, Vol. 19, No.23, pp22588-22593, 2011.

(DOI: 10.1364/OE.19.022588)

**【ホフマングループ】**

10. C. Ren and H. F. Hofmann, “Time-resolved measurement of the quantum states of photons using two-photon interference with short-time reference pulses”, Phys. Rev. A Vol. 84, 032108 (2011). (DOI: 10.1103/PhysRevA.84.032108)

11. H. F. Hofmann, “On the role of complex phases in the quantum statistics of weak measurements”, New J. Phys. Vol. 13, 103009 (2011).

(DOI: 10.1088/1367-2630/13/10/103009)

12. H. F. Hofmann, “Complex joint probabilities as expressions of reversible transformations in quantum mechanics”, accepted for publication in New J. Phys.

**(3-2) 知財出願**

① 平成 23 年度特許出願件数(国内 0 件)

② CREST 研究期間累積件数(国内 1 件)