

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研究分担グループ長: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研究分担グループ長: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研究分担グループ長: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

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

本研究プロジェクトは、最終目標であるモノサイクルもつれ光の実現とその非線形量子光学への展開に向け、(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。なお、研究統括・アドバイザーの先生方のアドバイスにより、この数サイクルもつれ光子源の実現に関しては、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。以下、平成 24 年度の研究経過について各グループごとに説明する。

竹内グループは、項目(1)のモノサイクルもつれ光源の開発に関し、平成 23 年度には、超広帯域(790nm~1610nm)パラメトリック蛍光対の非同軸発生に成功、さらにその波長依存光子検出に、超伝導光子検出器(SSPD)および光電子増倍管を用いて成功した<sup>8)</sup>。また複数のバルク結晶を組み合わせる方法を発案し、160nm(73THz)の広帯域パラメトリック蛍光対の発生にも成功した<sup>2)</sup>。平成 24 年度は次のステップである、もつれ光子対どうしの相関の評価を試みた。その結果、構築した周波数相関測定系を用い、2%チャープ QPM デバイスを利用した、広帯域(970nm~1250nm、周波数 240~310THz)波長相関測定に成功した(図 1)。このような広帯域な光源に対する周波数相関測定の実現は世界初の成果である。本実験では、浜松ホトニクスとの共同研究中の光電子増倍管を利用した。図から、広い帯域にわたって、周波数の和が一定になっていることが分かる。

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、もつれ光子対による和周波発生の子備実験を行った。まず、和周波発生における光子対のチャープ補正光学系に関し、北大名誉教授の山下幹雄先生のご助言をいただきながら検討を進めた。その結果、プリズムペアを用いた第一段補正光学系で大まかな補正を施し、さらに詳細な補正を空間位相変調器により行う方針を策定した。現在、プリズムペアによる補正光学系については、構築を終え、50fs のフェムト秒レーザーパルスを用いて動作確認に成功している。また、微弱と予想される和周波発生信号検出に用いる、SSPD の精密な量子効

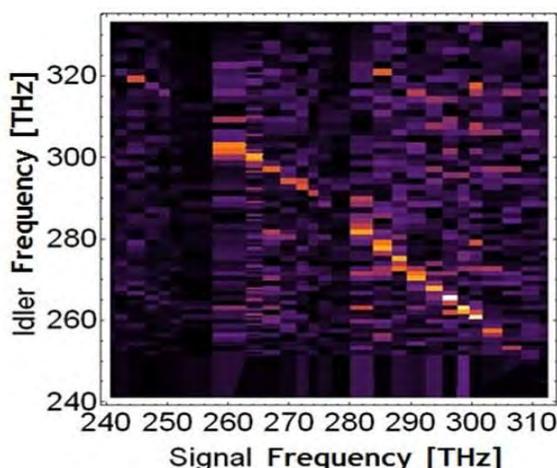


図 1:周波数相関測定結果

率測定系を構築、波長 500nm、1000nm、1550nm での 32%、10%、1%の検出効率を確認した。特に、和周波発生の生成光の波長である 532 nm では、30%の量子効率を確保しつつ、0.0015 cps という超低ダークカウントを実現した。これは、1時間の積算でも数個のダークカウントしかない事を意味する、知る限り最小の値であり、和周波発生光子の高いSN比での検出が期待される。

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 23 年度に、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を高効率に検出することに成功した。平成 24 年度は、さらに単一ダイヤモンド窒素欠陥(NV)中心からの単一光子蛍光を、ナノ光ファイバにより高効率に検出することに成功した<sup>1)</sup>。さらに、NV 中心からのフォノンサイドバンド発光の抑制に成功し<sup>4)</sup>、その温度変化に関する知見も得た<sup>6)</sup>。また、ナノ光ファイバの極低温冷却にも成功しており<sup>5)</sup>、これらはもつれ光子による2光子吸収体を用いた2光子吸収実験への応用にとり重要なステップである。

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、OCT 開発に実績のある名古屋大学西澤教授の協力を引き続き得ながら、高分解能量子 OCT の実現に取り組んだ。平成 23 年度は、従来の古典 OCT と量子 OCT とで比較対照実験を行なったが、異なる光源を用いたため厳密な比較が困難であった。平成 24 年度は、古典・量子 OCT ハイブリッド装置の開発、これにより同一の光源を用いて、量子 OCT の分解能向上と分散耐性という優位性を、高分解能で実証することに成功した(論文準備中)。実験結果を図 2 に示す。中心波長 808nm、帯域約 80nm のガウス型スペクトルを持つパラメトリック蛍光対をバルク非線形結晶で発生させ、量子もつれ光子対光源として用いた。OCT 分解能(4.4  $\mu\text{m}$ 、図2(a))に対して、量子 OCT 分解能(3.0  $\mu\text{m}$ 、図2(b))が約 1.4 倍向上しており、同帯域光源における分解能優位性を実証した。この分解能向上は、我々の理論的考察により得られた、ガウス型スペクトルに対する $\sqrt{2}$ 倍という理論値と一致しており、この比較実証はハイブリッド装置により初めて可能となった。さらに、量子 OCT の重要な利点である「分散耐性」を、高分解能

域で初めて実証した。実験では、眼球と同等の厚みを持つ水をサンプル用経路に挿入、OCT では 37  $\mu\text{m}$  と分解能が 10 倍近く低下している(図2(c))のに対し、量子 OCT では分解能低下が全く見られない(図2(d))。また、平成 23 年度の予備実験の報告では、群速度分散耐性は完全では無かったが、理論的考察から、ポンプ用レーザー光の有限な線幅が原因と判明、今回、

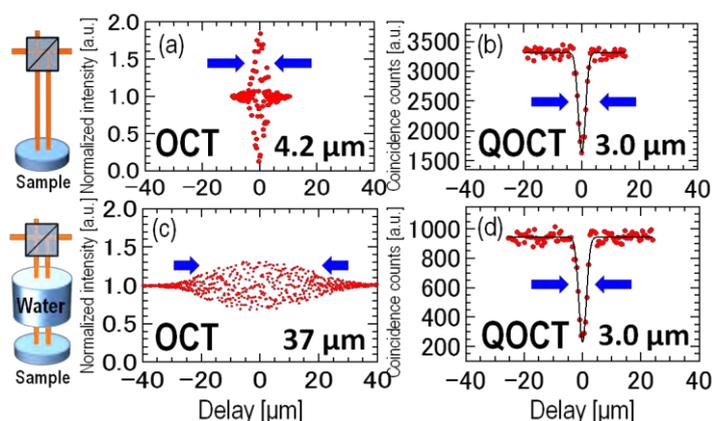


図 2 : OCT と量子 OCT(QOCT)の比較実験結果。  
同帯域光源を用いた場合の OCT(a)と量子 OCT(b)信号。  
サンプル経路中に分散媒質として 25mm 厚の水を挿入  
した場合の OCT(c)と量子 OCT(d)信号。

狭線幅のポンプ用レーザー光源を導入することで、まったく線幅が変化しない、完全な分散耐性を実現することができた。

他に、これらは、モノサイクルもつれ光の評価方法に関連し、単一光子の偏光状態を、適応的測定により、最適に測定する方法の実現<sup>7)</sup>、もつれ光子対間の2光子干渉性の劣化要因の特定と検証実験<sup>3)</sup>にも成功した。

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、超広帯域擬似位相整合デバイスの研究を担当している。平成 24 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、周期の微細化を検討した。竹内グループにおいて波長 404nm 励起の周期分極反転構造が優先的されていることに対応して、平成 23 年度の 532nm 励起用周期 8  $\mu$  m デバイスから短周期への微細化をはかった。平成 23 年度の結果より同一電界では周期 8  $\mu$  m と分極反転比が大きく異なるため、電界印加条件の再検討を行った。波長 404nm 励起のデバイスに対しては、1次QPMで分極反転周期 3.2  $\mu$  m が求められる。竹内研で 404nm 励起光学系の構築を迅速に行うためにまずデバイスが必要であるため、確実に特性が期待できる周期 6.3  $\mu$  m の2次QPMデバイスを作製した。

分極反転後のエッチング写真を図 3 に示す。反転構造には良好な均一性がみられデバイス長 20mm が確保できている。効率は1次QPMの 1/4 であるものの、光学系の構築、動作確認には貢献するものと思われ、竹内研に供給している。従来 404nm 帯励起の光子対発生は試みられているが BBO



図 3:404nm 励起用 2 次 Q P M 分極反転構造

では光子対の空間的な重なりが低下し効率に限界があった。QPMでは同軸上に光子対を発生できるため効率を高くとることができるが、LN (吸収端 315nm)のQPMデバイスでは、材料自体の励起光の吸収のため困難を極めている。他方、吸収端が 260nm と短く可視領域の吸収の小さい SLT は良好なもつれ光子対発生が期待できる。

電界印加条件を精査することにより、周期  $3.2 \mu\text{m}$  の反転構造の形成に成功している(図 7)。周期  $3.2 \mu\text{m}$  で長さ  $20\text{mm}$  にわたり分極反転比  $0.5$  が確保できている。残留マイクロドメインは散見されているため、今後量子もつれ光子対への影響を見極める必要がある。 $404\text{nm}$  励起用1次QPMデバイスとして、竹内研への供給準備を整えている。

また本プロジェクトの課題である大きく異なる周期が混在するチャープ構造は、分極反転比の周期依存性を踏まえて設計を進めている。まずは評価光学系の構築を進めるべく、効率の高いノンチャープデバイスを優先している。

項目(1-B)に関し、平成 24年度は高密度励起時のもつれ光子対発生における熱的安定性を改善すべく、デバイスを格納するモジュールの検討を行った。デバイス周期にチャープをかけた場合に、スペクトルが広がる分、単位周波数あたりのスペクトル輝度は低下する。このためチャープデバイスにおいて十分なスペクトル輝度を得るためには高い励起光パワーが要求される。そこでは Mg:SLT デバイスの微小吸収による発熱が無視できず、熱的な屈折率の変動が発生スペクトルの不安定要因になる。これまで栗村グループは、四面排熱構造をもつ高排熱モジュールを開発し(図

8)、独自に開発した位相整合カロリメトリ(PMC)法で排熱の定量評価を行ってきた<sup>9)</sup>。今回PMCで測定される実効熱容量  $C_{\square}$  (温度上昇のしにくさを表す)を測定し、排熱モジュールの境界条件を改善することで  $C_{\square}$  が50%改善できることがわかった。すなわちデバイス幅を  $0.5\text{mm}$  から  $0.3\text{mm}$  に細線化を行うことで排熱を大幅に改善できた(図 9)。もつれ光子対の熱的安定性向上に寄与するものと考えられる。

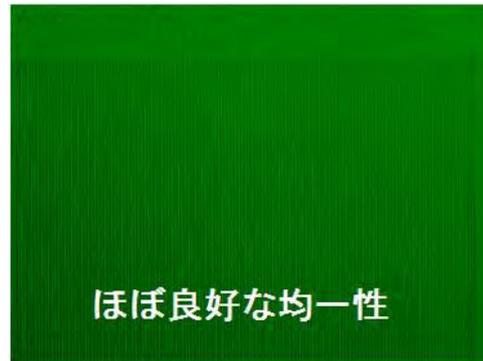


図 7:  $404\text{nm}$  励起用1次QPM分極反転構造

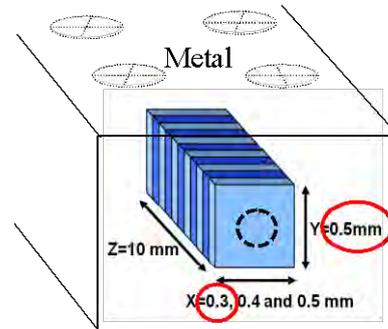


図 8: 高密度励起用四面排熱モジュール

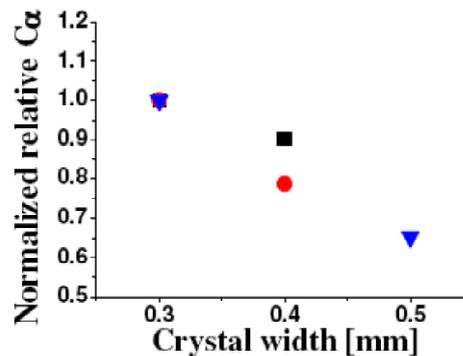


図 9: 実効熱容量のデバイス幅依存性

ホフマングループは、項目(1)のモノサイクルもつれ光源の開発に関し、光源評価のための理論研究を行った。平成 23 年度に、極短パルスレーザー列ともつれ光子との2光子干渉を用いた、時間分解量子トモグラフィ法を提案していた。平成 24 年度は、この時間領域での量子トモグラフィ法をさらに発展させ、周波数領域でのまったく新しい時空間量子トモグラフィ法を提案した<sup>14)</sup>。この方法では、もつれ光子発生用ポンプレーザー光に位相ロックした微弱レーザー光を用い、もつれ光子対のそれぞれに対して光子干渉させることで、2光子波動関数を直接的に測定することが可能である。微弱レーザー光の周波数を掃引しながら、もつれ光子対と量子干渉させることで、もつれ光子対の波動関数の「位相」を読み出すことができる。これは、昨年提案した、4光子同時計数を必要とする2光子干渉を用いた方法に代わる有用な方法になり得る。モノサイクルもつれ光の時間・周波数相関評価に向けた重要な進展と考えている。

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、光と原子系の相互作用の解析を進めた。平成 23 年度に、光と単一原子系との相互作用を量子力学的に記述し、効率的にコヒーレントな 2 光子の効果を記述できる新しいモデルを開発した。平成 24 年度は、そのモデルに基づき、原子の共鳴から十分離れた周波数を持つ光を入射した場合の非線形効果について、理論的な解析を行なった。その結果、単一原子系によって、コヒーレント光に対して、そのショットノイズ雑音よりも十分おおきな、量子的に制御された振幅変調をひき起こすことができることが分かった。最低次の非線形効果は四光波混合であり、入力された2光子に対して、エネルギー保存則を満たすように、原子の共鳴周波数と残りの周波数を持つ、周波数変換された2光子が出力される。この時間反転過程は、モノサイクル光のような広帯域な周波数相関を持つ光と、原子の相互作用にとり重要であり、たとえば、通常の広帯域光と原子の相互作用とは大きく異なる周波数特性などを引き起こすと期待できる。

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、まず弱測定とモノサイクルもつれ合いの関係について、平成 23 年度に引き続き研究を行なった。平成 24 年度においては、簡単な量子回路を用いて、光子の到着時間とエネルギーを連続測定する方法を提案した。特に、光子の到着時間を測定するための、もつれ光子と短パルスレーザー光との相互作用の強さを、偏光自由度を使うことで可変にできることを示した。この到着時間測定では光子は吸収されないため、続いて光子のエネルギーを測定でき、2光子の結合確率を得ることができる。これにより、光子の量子状態の完全な記述を与える Kirkwood 関数を決定できる<sup>11), 13)</sup>。また、時刻合わせプロトコルに関して、平成 23 年度に得られた初期的な結果を発展させ、平成 24 年度においては、多粒子もつれ状態を用いた時刻合わせプロトコルを提案した<sup>12)</sup>。さらに、周波数コムを2光子量子干渉を使って同期させる際に、時間・周波数もつれ合いが有用であるとの初期的な解析も得られており、モノサイクルもつれ光の適用も期待できる。

以上の様に、広帯域(970nm~1250nm、周波数 240~310THz)波長相関測定の成功、量子 OCT の重要な利点である「分散耐性」を、高分解能域(3.0  $\mu$ m)での完全な実証、ナノ電極を用いた周期 3.2  $\mu$ m の反転構造形成の成功、周波数領域でのまったく新しい時空間量子トモグラフィ

一法の発案などの重要な成果を得た。また、単一ダイヤモンド窒素欠陥中心からの単一光子蛍光を、ナノ光ファイバにより高効率検出、ナノ光ファイバの極低温冷却など、2光子吸収観測に向けた基盤技術の開発も進展した。今後は、最終目標であるモノサイクルもつれ光の実現とその非線形量子光学への展開に向け、チーム内部でのグループ間連携をより一層深めつつ、 $1\ \mu\text{m}$ を切る超高分解能量子 OCT の実現、光子対間の第二高調波発生の観測に取り組む所存である。

### §3. 成果発表等

(3-1)

- 論文詳細情報

#### 【竹内グループ】

1. T. Schröder, M. Fujiwara, T. Noda, H.Q. Zhao, O. Benson and S. Takeuchi, “A nanodiamond - tapered fiber system with high single-mode coupling efficiency as key element for integrated quantum technology and nanophotonics”, *Opt. Exp.*, vol.20, No.10, pp.10490-10497, 2012 (DOI: 10.1364/OE.20.010490)
2. M. Okano, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Subashchandran and S. Takeuchi, “Generation of broadband spontaneous parametric fluorescence using multiple bulk nonlinear crystals”, *Opt. Exp.*, vol.20, No.13, pp.13977-13987, 2012 (DOI: 10.1364/OE.20.013977)
3. M. Tanida, R. Okamoto and S. Takeuchi, “Highly indistinguishable heralded single-photon sources using parametric down conversion”, *Opt. Exp.*, vol.20, No.14, pp.15275-15285, 2012 (DOI: 10.1364/OE.20.015275)
4. H.Q. Zhao, M. Fujiwara and S. Takeuchi, “Suppression of fluorescence phonon sideband from nitrogen vacancy centers in diamond nanocrystals by substrate effect”, *Opt. Exp.*, vol.20, No.14, pp.15628-15635, 2012 (DOI: 10.1364/OE.20.015628)
5. M. Fujiwara, T. Noda, A. Tanaka, K. Toubaru, H.Q. Zhao and S. Takeuchi, “Coupling of ultrathin tapered fibers with high-Q microsphere resonators at cryogenic temperatures and observation of phase-shift transition from undercoupling to overcoupling”, *Opt. Exp.*, vol.20, No.17, pp.19545-19553, 2012 (DOI: 10.1364/OE.20.019545)
6. H.Q. Zhao, M. Fujiwara and S. Takeuchi, “Effect of substrates on the temperature dependence of fluorescence spectra of nitrogen vacancy centers in diamond nanocrystals”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol.51, No.9, 090110, 2012 (DOI: 10.1143/JJAP.51.090110)

7. R. Okamoto, M. Iefuji, S. Oyama, K. Yamagata, H. Imai, A. Fujiwara and S. Takeuchi, “Experimental demonstration of adaptive quantum state estimation”, *Phys. Rev. Lett.*, vol.109, No.13, 130404, 2012 (DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.130404)
8. A. Tanaka, R. Okamoto, H.H. Lim, S. Subashchandran, M. Okano, L. Zhang, L. Kang, J. Chen, P. Wu, T. Hirohata, S. Kurimura and S. Takeuchi, “Noncollinear parametric fluorescence by chirped quasi-phase matching for monocycle temporal entanglement”, *Opt. Exp.*, vol.20, No.23, pp.25228-25238, 2012 (DOI:10.1364/OE.20.025228)

**【栗村グループ】**

9. Hwan Hong Lim, Toshio Katagai, Sunao Kurimura, Takahiro Shimizu, Keisuke Noguchi, Noriaki Ohmae, Norikatsu Mio, Ichiro Shoji, “Thermal performance in high power SHG characterized by phase-matched calorimetry”, *Opt. Express*, 19(23), pp.22588-22593, 2012 (DOI: 10.1364/OE.19.022588)
10. Taro Suzuki, Sunao Kurimura, “Low-Dispersion Characteristics of Silica-Based Graded Refractive Index Lens for Laser Display Optical System”, *OPTICAL REVIEW*, 19(6), pp.419-421, 2012 (DOI: 10.1007/s10043-012-0070-2)

**【ホフマングループ】**

11. H. F. Hofmann, “Complex joint probabilities as expressions of reversible transformations in quantum mechanics”, *New J. Phys.*, 14, 043031, 2012 (DOI: 10.1088/1367-2630/14/4/043031)
12. C. Ren and H. F. Hofmann, “Clock synchronization using maximal multipartite entanglement”, *Phys. Rev. A*, 86, 014301, 2012 (DOI:10.1103/PhysRevA.86.014301)
13. H. F. Hofmann, “How weak values emerge in joint measurements on cloned quantum systems”, *Phys. Rev. Lett.*, 109, 020408, 2012 (DOI:10.1103/PhysRevLett.109.020408)
14. C. Ren and H. F. Hofmann, “Analysis of the time-energy entanglement of down-converted photon pairs by correlated single-photon interference”, *Phys. Rev. A*, 86, 043823, 2012 (DOI:10.1103/PhysRevA.86.043823)
15. Y. Suzuki, M. Iinuma, and H. F. Hofmann, “Violation of Leggett-Garg inequalities in quantum measurements with variable resolution and back-action”, *New J. Phys.*, 14, 103022, 2012 (DOI:10.1088/1367-2630/14/10/103022)
16. H. F. Hofmann, M. E. Goggin, M. P. Almeida, and M. Barbieri, “Estimation of a quantum interaction parameter using weak measurements: Theory and experi-

ment”, Phys. Rev. A, 86, 040102(R), 2012 (DOI:10.1103/PhysRevA.86.040102)

(3-2) 知財出願

① 平成 24 年度特許出願件数(国内 0 件)

② CREST 研究期間累積件数(国内 2 件)