

# 研 究 報 告 書

## 「多光子波束による物質の非線形光学応答」

研究期間：平成19年10月～平成22年3月

研究者：清水 亮介

### 1. 研究のねらい

物質の内部状態を量子論で扱う一方で、光は古典的な物理量として扱う半古典論の枠組みでは、光と物質との非線形光学応答を実験的に調べるために超短パルス光が使用されてきた。光を波として扱う古典的波動光学の枠組みにおいて、超短パルス光の特性を決定するためにはそのスペクトル分布が重要であるが、光の量子性が顕著になる極微弱光領域ではスペクトル分布だけでなく、光パルス内部の光子数(光子統計性)や、光子間の量子相関といった自由度の制御を行うことも重要となる。光の量子性を扱う量子光学の分野では、これまでに量子情報通信技術への応用を目的として、光子統計性の制御や偏光自由度における量子相関制御が主として取り組まれてきているが、光計測技術において重要である周波数自由度の量子相関制御技術はほとんどなされてこなかった。

本研究では周波数自由度における光子－光子間の量子相関を制御した光(以後、「周波数量子もつれ光子」と呼ぶ)を用いることで、半古典近似を超えた単一光子レベルでの光と物質との相互作用を明らかにすることを目的とし、その制御手法の開発に取り組んだ。さらに、開発した光源を用いて周波数量子もつれ光子と物質との相互作用で期待される特異な非線形光学応答を実験的に観測することを目指した。

### 2. 研究成果

#### (1) 制御された周波数量子もつれ光子対光源の開発

本研究で着目した周波数量子もつれ光子対について簡単に説明する。まず、角周波数 $\omega_0$ を中心に対称なスペクトル分布を持つ光パルス进行想定し、さらに光パルス中には2つの光子のみを含む2光子状態を考える。この際、特徴的な二つの状態を考えることが出来る。第一に、2光子が $\omega_0$ を中心に対称に分布する状態(図1(a))。このような2光子状態を周波数反相関状態と呼ぶ。次に考えられるのは、2光子が同一周波数上に存在する状態である(図1(c))。このような2光子状態を周波数相関状態と呼ぶ。これらの2光子の周波数分布を2つの光子の角周波数の関数として表すと図1(b)および(d)のように $\pm 45^\circ$ 方向に傾いた楕円形の分布として表される。ここでは、2光子の周波数分布を表すスペクトルを2光子スペクトルと呼ぶ。2光子スペクトルの長軸方向の分布は通常の(古典的な意味での)スペクトル分布を表し、短軸方向の分布は2光子間の周波数相関の強さを表す。これら二つの状態は2次のコヒーレンス関数によって説明される2光子検出によってのみ識別可能であり、1次のコヒーレンス関数によって説明される従来の分光計測では識別不可能である。つまり、これら二種類の光源の性質の違いは古典的波動光学では説明できない。そこで、このような特徴を持つ二種類の光源を光計測へ適用し、光学応答に違いが現れれば、その光学応答の違いは光の非古典的性質である周波数量子もつれの性質の違いに由来する。これにより、光計測における周波数量子もつれの役割を実験的に明らかにすることが期待できる。そこで、この様な対照的な周波数量子相関をもつ2光子状態の生成方法の提案と開発を行った。

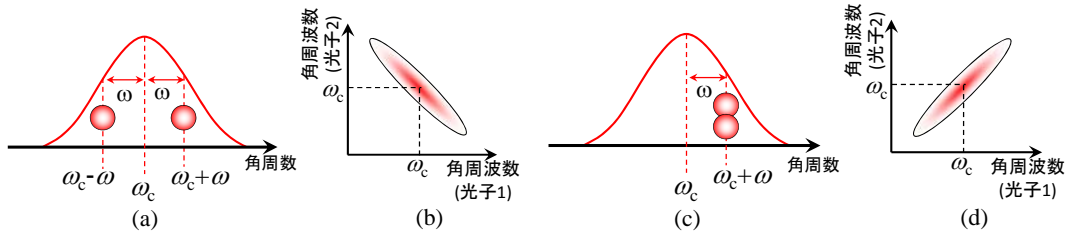


図1 周波数量子もつれ光子対の概念図。(a)、(b)周波数反相関状態および(c)、(d)周波数相関状態。

自発パラメトリック下方変換過程では一つのポンプ光(角周波数 $\omega_p$ 、波数ベクトル $k_p$ )の入射に対し、位相整合条件を満たすようにシグナル光子(角周波数 $\omega_s$ 、波数ベクトル $k_s$ )とアイドラー光子(角周波数 $\omega_i$ 、波数ベクトル $k_i$ )の対が発生する。そのため、周波数反相関状態を伴った量子もつれ光子対は、2光子状態を構成する2つの光子の周波数とが一定になるように発生させれば良い。このような状態はCWレーザーをポンプ光として用いることで、容易に生成することができる。しかし、本研究では光計測技術への展開を目的としているため、光源の開発に当たっては、以下の三点を考慮した。①量子もつれ光子の操作を容易にするためtype-IIの位相整合条件を利用すること、②量子もつれ光子の生成効率を向上させるために素子長をできるだけ長くすること、③光計測における周波数量子もつれの役割を明らかにするために広帯域なスペクトルを伴った量子もつれ光子を発生させること。従来の非線形光学素子では、三つの条件を同時に満たすことは困難であるが、周期分極反転が可能かつ複屈折性の弱いLiTaO<sub>3</sub>結晶では全ての条件を満たすことができる。そこで、我々はPPMgSLT (Periodically Poled MgO-doped Stoichiometric LiTaO<sub>3</sub>)素子を採用し、その評価を行った。

一方で、周波数相関状態の生成には拡張位相整合条件を利用した。拡張位相整合条件では通常の位相整合条件に加え、群速度の整合条件が含まれる。2つの条件を満たした上で、超短パルスレーザーにより励起することで周波数相関状態の生成が可能になる。KTP結晶ではtype-IIの位相整合条件のもとで、ポンプ光波長 792nm、シグナル光、アイドラー光波長 1584nmにおいて群速度整合条件を満たす。そこで、群速度整合条件を満たす波長において位相整合条件を同時に満足させるために、分極反転周期 46.1 $\mu$ mを持つPPKTP素子を使用した。また、我々はフェムト秒Ti:sapphireレーザーをポンプ光源とし、過去に報告されている結晶長(10mm)よりもさらに長い結晶長(30mm)を持つ群速度整合PPKTP (Periodically Poled KTiOPO<sub>4</sub>)素子による量子もつれ光子対の生成実験を行った。

図2に測定結果を示す。一般に、CWレーザーをポンプ光としてtype-II位相整合条件を利用して光子対を生成すると、相互作用長が長くなるにつれ、スペクトル分布は狭帯域化する。しかし、前述したように、複屈折性の弱いLiTaO<sub>3</sub>結晶では 40mm長の結晶を使用しているにもかかわらず、広帯域スペクトル( $\Delta\lambda \sim 30$ nm)を伴った、負の周波数相関を持つスペクトルを生成可能なことが実験的に初めて観測された(図2(a))。また、図2(b)はPPKTP素子より発生した光子対の二光子スペクトルであり、正の周波数相関を伴った二光子が生成されていることを直接的に示した初めての実験結果である。

以上の実験により、波長 1584nm 付近で周波数量子もつれを制御した光源の作製に成功したことが確認できた。この光源はバルク型の type-II 位相整合による量子もつれ光源としては世界最高レベルの2光子生成レート( $\sim 60000$  pairs/mW/sec.)を持つことや、生成された2光子が 90%を超える高い明瞭度を伴った量子干渉を示すことも確認した。また、開発した周波数量子もつれ光子光源を利用して偏光量子もつれ光子生成実験を行うことで、偏光量子もつれ光子対生成には2つの光子の交換に対して対称な2光子スペクトル形状が必要であることを実験、理論の両側面から明らかにした。

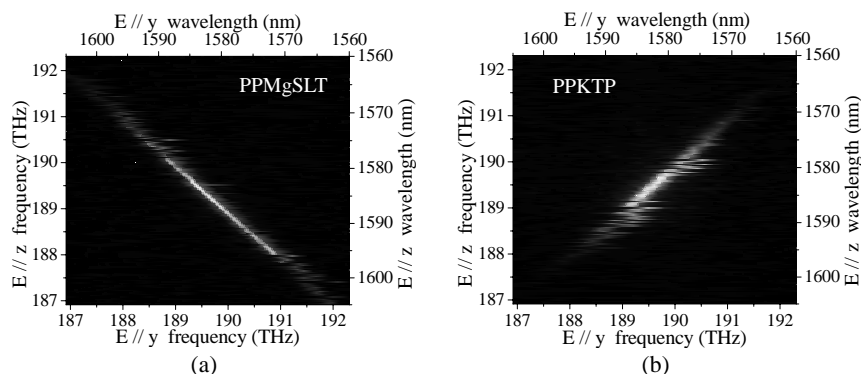


図2 (a)PPMgSLT 素子および(b)PPKTP 素子から生成された光子対の2光子スペクトル。

## (2) 量子情報通信技術に向けた光源開発:周波数無相関状態の生成

周波数相関を持たない周波数無相関状態を生成することは、3光子以上を必要とする多量子ビットの量子情報通信プロトコルを実証するためには非常に重要な技術である。従来、このような状態の生成には、適当な周波数相関を持つ2光子状態を生成した後に、スペクトルフィルターを用いて観測する周波数帯域を制限することにより達成されていた。しかし、この方法では、スペクトルフィルターの帯域外に存在する光子を捨てることになるため、多光子生成効率の向上には難点があった。そのため、直接周波数無相関状態を生成する方法が切望されていた。

本研究では当初、周波数量子もつれ状態の制御を目指したが、研究を進めるにつれ、周波数無相関状態を持つ2光子状態を生成することも可能であることが分かった。群速度整合 PPKTP 素子により生成した周波数相関状態は長軸方向の分布は使用するポンプ光のスペクトル分布により決定される一方で、短軸方向の分布は結晶長によって決まる。つまり、長軸方向と短軸方向の分布は独立に決定することが出来る。そのため、結晶長で決まる短軸方向の分布とうまく整合するように、ポンプ光のスペクトル分布を決めることで、周波数無相関な円形の2光子スペクトル分布を持つ、2光子状態が得られるはずである。そこで、PPKTP の素子長30mmと整合するように、ポンプ光のバンド幅を0.4nmとして、2光子スペクトル計測の実験を行った。この実験から、周波数無相関状態に近い状態が得られていることが分かった。

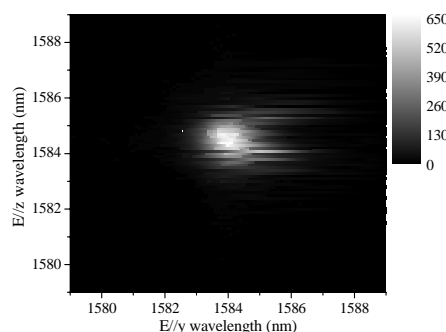


図3 PPKTP素子による周波数無相関状態の2光子スペクトル。

## (3) 波長多重偏光量子もつれ光子対生成手法の提案

偏光量子もつれ光子対を生成させる従来の方法では、挟帯域のパラメトリック光子対を利用するために、任意の中心周波数を持つ透過帯域フィルターを使用することによりパラメトリック光子対のスペクトル帯域を制限していた。誘電体多層膜構造による干渉フィルターでは構造の設計により任意の中心波長、帯域幅の光を透過させることができるが、一度に透過できる波長帯は一種類に限られてしまう。そのため、透過帯域外のパラメトリック蛍光はフィルターによりブロックされ、偏光量子もつれ光子対の生成には使用されていなかった。しかし、フィルターによってブロックされ、従来利用されていなかったパラメトリック光子対も波長分割多重(WDM:

Wavelength Division Multiplexing)技術を用いることにより、偏光量子もつれ光子対として利用可能であり、偏光量子もつれ光子対の波長分割多重伝送技術へ応用できる。これにより、波長分割多重伝送技術を用いた偏光量子もつれ光子対の伝送に向けた周波数多重偏光量子もつれ光子対光源を作製する手法の提案を行った。

### 3. 今後の展開

古典光学では取り扱うことの出来ない非古典光を使うことで、単一光子レベルでの光と物質との相互作用において半古典近似を超えた光と物質との相互作用を実現させる取り組みはこれまでに行われている。しかし、従来の取り組みは光の非古典的性質のうち、光子統計性の違いを取り扱ったものばかりである。これら従来の研究では単一モード理論に基づいた研究が主体的であった。一方で、本研究で目指した光子間の量子相関により発現する現象は多モード理論を必要とする。そのため、本研究が多モード理論に立脚した、単一光子レベルでの光と物質との相互作用を取り扱う新たな実験研究分野の「さきがけ」となることが期待できる。本研究で開発した周波数量子もつれ光子光源は、現時点では世界最高レベルの2光子生成レートを持つものの、平均光強度に換算すると10pW 程度が限界である。そこで、光源をより高強度化することにより、周波数量子もつれ光子を利用した光計測技術の適用範囲が広がるものと考えられる。実際に、擬似位相整合素子の導波路化や 100GHz 程度の高い繰り返しレートを持つポンプ光レーザーを導入することで、10nW 程度まで平均光強度を向上することが可能である。

本研究の光源開発は通信波長帯を中心に行った。従来、通信波長帯では、光子検出器の性能の問題から、3光子以上を必要とする多量子ビットの実験は現実的ではなかった。しかし、単一光子検出器の進展が近年めざましく、通信波長帯においても超伝導体を利用した高い性能を持つ検出器が登場している。本研究で開発した周波数無相関光源と上述の検出器とを組み合わせることで、通信波長帯における多量子ビット実験が実現し、従来、可視帯域で行われてきた実験の精度の向上や、実験時間の大幅な短縮が可能になる。これにより、これまで6光子までに限られていた実験をさらに拡張することが期待出来る。

### 4. 自己評価

擬似位相整合素子の持つ波長分散とポンプ光のスペクトル分布を注意深く選択することで、パラメトリック下方変換過程より生成される2光子間の周波数相関を制御し、古典なスペクトル計測識別できないが量子的には対照的な性質を持つ周波数相関状態と周波数反相関状態を生成することには成功した。さらに、開発した光源の狭帯域化を行い、目標としていた非線形光学応答を計測するための準備を進めたが、実際の観測にまで至らなかった点は残念である。しかし、開発した光源を利用して2光子スペクトル形状と2光子干渉波形との関係を明らかに出来たことで、これまでの量子光学実験に数多く利用されてきた Hong-Ou-Mandel 干渉や Franson 干渉といった2光子干渉現象に統一的な理解を与えることが出来た点は、当初の研究計画にはなかった大きな成果であった。また、周波数無相関状態を直接生成する手法の提案と実証や、偏光量子もつれ光子生成の波長多重化に関する提案が出来たことも、複雑・高度化することが予想される今後の量子情報処理技術の原理実証実験を発展させるための有用な成果であったと考えている。

### 5. 研究総括の見解

光子－光子間の量子相関を周波数自由度においても制御した光(「周波数量子もつれ光子」)を用いることで、半古典近似を超えた単一光子レベルでの光と物質との相互作用を明らかにするための制御手法開発を目標に研究を行なった。周波数量子もつれ光子と物質との相互作用で生ずる特異な非線形光学応答を実験的に観測することに成功し、下記実験成果を得ている。

1)パラメトリック下方変換過程より生成される2光子間の周波数相関を制御し、量子的

に対照的な性質を持つ周波数相関状態と周波数反相関状態を生成することに成功。

- 2) 波長 1584nm 付近で周波数量子もつれを制御した光源の作製に成功し、量子もつれ光源としては世界最高レベルの2光子生成レート( $\sim 60000$  pairs/mW/sec.)と、90%を超える高い明瞭度を達成。
- 3) 偏光量子もつれ光子対生成には、2つの光子の交換に対して対称な2光子スペクトル形状が必要であることを実験、理論の両面から明らかにした。

これらの成果から、2光子スペクトル形状と2光子干渉波形との関係を明らかにし、これまでの量子光学実験に数多く利用されてきた Hong-Ou-Mandel 干渉や Franson 干渉といった2光子干渉現象に統一的な理解を与えた。また、周波数無相関状態を直接生成する手法の提案と実証や、偏光量子もつれ光子生成の波長多重化に関する提案も行なった。波長分割多重伝送技術を用いた偏光量子もつれ光子対の伝送に向けた周波数多重偏光量子もつれ光子対光源を作製する手法の提案を行なったことは、複雑・高度化することが予想される今後の量子情報処理技術の原理実証実験を進展させるための有用な成果であったと言える。これらは主に2本の原著論文に纏められ1件の特許出願に結びついている。

今後、通信波長帯における多量子ビット実験に、本研究で開発した周波数無相関光源を組み込むことで、従来可視帯域で行われてきた実験の精度の向上や、実験時間の大幅な短縮が見込まれる。本研究が多モード理論に立脚した、単一光子レベルでの光と物質との相互作用を取り扱う新たな実験研究分野の「さきがけ」となることを期待する。

## 6. 主要な研究成果リスト

### (1) 論文(原著論文)発表

1.	R. Shimizu and K. Edamatsu, "High-flux and broadband biphoton sources with controlled frequency entanglement," <i>Optics Express</i> <b>17</b> , 16385–16393 (2009).
2.	M. Nakatani, R. Shimizu, and K. Koshino, "Multimode theory of up-conversion of two photons," <i>J. Phys. Soc. Jpn.</i> <b>78</b> , 054401/1–7 (2009).

### (2) 特許出願

研究期間累積件数: 1件

発 明 者: 清水 亮介、枝松 圭一

発明の名称: 偏光量子もつれ光子対の生成装置及びその生成方法

出 願 人: 科学技術振興機構

出 願 日: 特願 2009-134293 号 (2009.6.3)

### (3) 招待講演

清水亮介: 周波数量子もつれ光子の生成と制御. 第14回 N2RC 拠点セミナー(最先端ナノ光科学による異分野融合と次世代技術の創出)、大阪府立大学、2010年6月。