

量子もつれ光により、分子の「指紋」を見分ける技術を開発 —遠赤外域の分光測定が、シリコン光検出器で可能に—

概要

電子や光子などの量子は、通常の物体とは異なった振るまいをします。その量子の個々の振るまいや相関（量子もつれ^{※1}）を制御することで、飛躍的な計算能力を実現する量子コンピューターや、盗聴不可能な暗号を実現する量子暗号、さらに、従来の計測技術の限界を超える量子センシングなど、「量子技術」の研究が精力的に進められています。特に、量子もつれ光を用いた「量子赤外分光」は、可視域の光源と検出器のみで、赤外域の分光が可能になり、赤外分光装置の大幅な小型化・高感度化・低コスト化が期待される技術として注目されています。しかし、これまでの量子赤外分光は $5\mu\text{m}$ 以下の短い波長域に限られており、物質の鑑別に重要な「指紋領域」^{※2} と呼ばれる波長域（ $7.7\mu\text{m}\sim 16.7\mu\text{m}$ ）での分光は実現していませんでした。

今回、京都大学大学院工学研究科 竹内繁樹 教授、岡本亮 同准教授、向井佑 同特定助教らの研究グループは、赤外分光計測による物質の鑑別に重要な「指紋領域」と呼ばれる波長域に含まれる、波長 $8\mu\text{m}\sim 10.5\mu\text{m}$ での量子赤外分光^{※3} に世界で初めて成功しました。今後、さまざまな物質の鑑別同定が、スマートフォンのカメラなどにも利用されているシリコン光検出器^{※4} を用いた、小型で高性能な量子赤外分光装置により可能となり、医療やセキュリティ、環境モニタリングなどで活用されることが期待されます。

本成果は、2022 年 6 月 7 日（現地時刻）に米国の国際学術誌「Optics Express」にオンライン掲載されました。

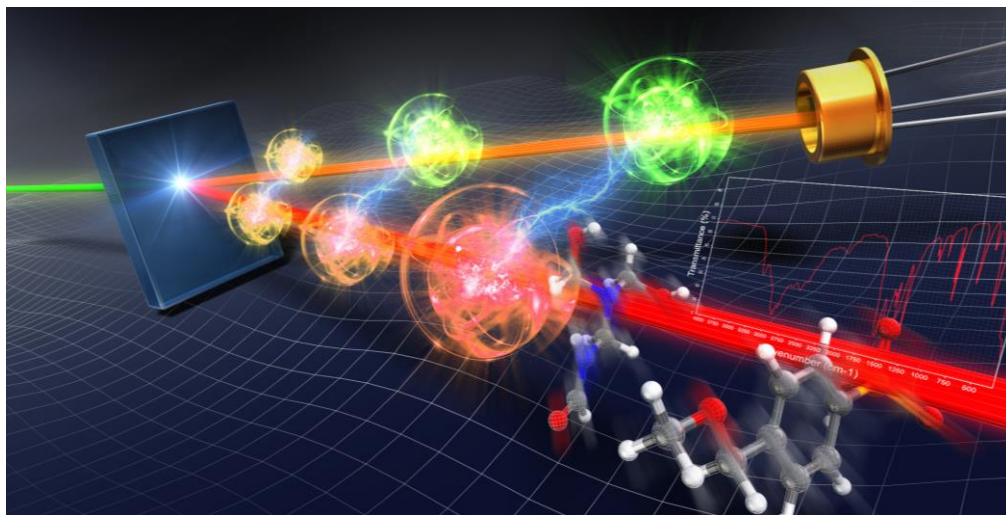


図1 今回実証した、指紋領域での量子赤外分光のイメージ図

1. 背景

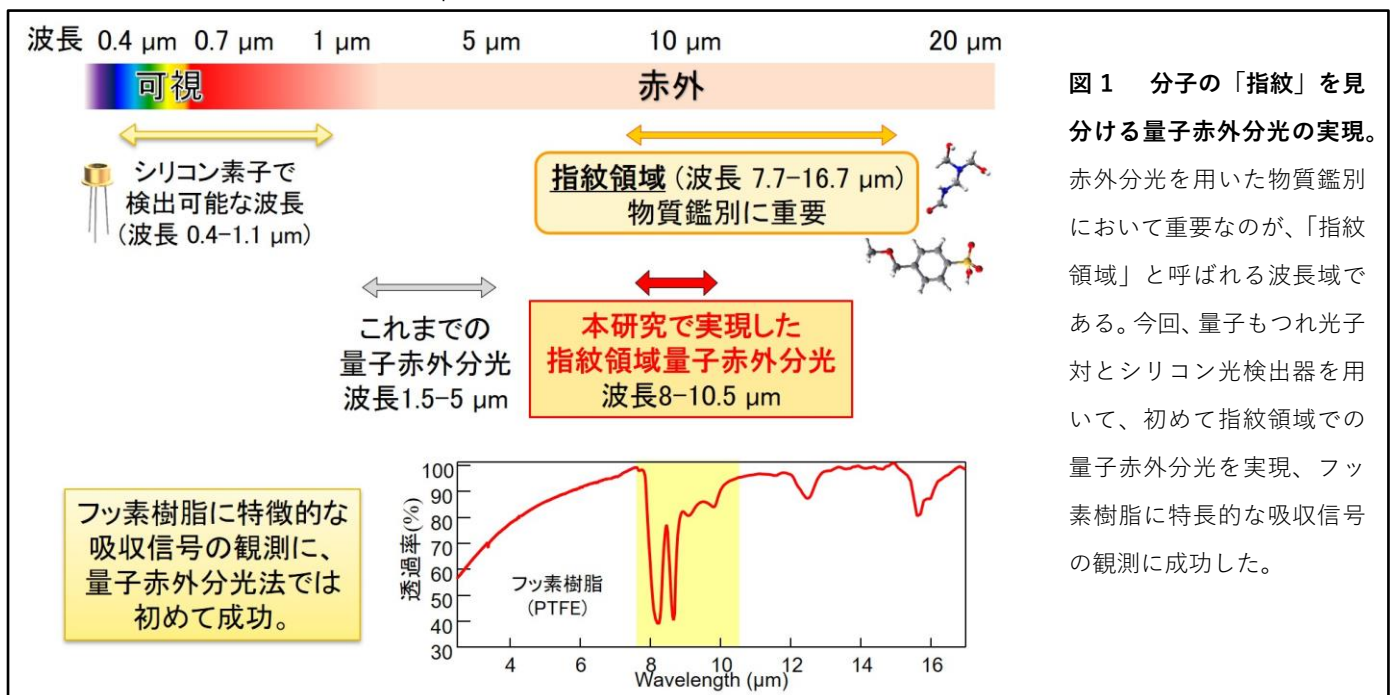
電子や光子などの量子は、通常の物体とは異なった振るまいをします。その量子の個々の振るまいや相関（量子もつれ）を制御することで、飛躍的な計算能力を実現する量子コンピューターや、盗聴不可能な暗号を実現する量子暗号、従来の計測技術の限界を超える量子センシングなど、「量子技術」の研究が精力的に進められています。その中でも、光子は、長距離伝送が可能で、また室温でも量子状態が保存されるため、有力な担体です。特に、さまざまな波長（色）の光子の対からなる「量子もつれ光」を利用した光量子センシング技術である、「量子赤外分光」が注目を集めています。

従来の赤外分光法は、物質中の分子の種類を特定する方法として、化学・生命科学・医療の研究開発や、環境モニタリング・化学プラントなどの産業分野まで、幅広い分野で利用されています。特に、「指紋領域」と呼ばれる波長域（ $7.7\mu\text{m}\sim 16.7\mu\text{m}$ ）では、分光スペクトルに物質（官能基）に特長的な吸収信号が見られることから、物質の鑑別同定に広く用いられています。しかし、その装置は机上を大きく占めるサイズであるため、小型化と、さらなる高感度化が望まれています。他方で、従来の赤外分光装置は効率の低い灼熱体を光源として利用していること、また赤外域の光検出器の信号雑音比^{※5}が低く大型であることなどがネックとなり困難でした。

一方、量子赤外分光法は、シリコン光検出器で検出可能な可視・近赤外域と、赤外域の光子からなる量子もつれ光の発生プロセス間の量子干渉を利用することで、スマートフォンのカメラなどにも利用されているシリコン光検出器を用いて、赤外分光が可能になり、装置の飛躍的な小型化や高感度化が期待されます。しかし、これまでの量子赤外分光は $5\mu\text{m}$ 以下の短い波長域に限られており、物質の鑑別に重要な「指紋領域」では実現していませんでした。その原因として、量子もつれ光子対^{※6}の発生に広く利用されてきた材料（非線形光学結晶^{※7}）が、 $5\mu\text{m}$ 以上の遠赤外域で不透明である事が挙げられます。

2. 研究手法・成果

今回研究グループは、波長 $5\mu\text{m}$ を超えても透明である非線形結晶の、「硫化銀ガリウム(AgGaS_2)」に着目し、量子もつれ光子対生成のための適切な条件を見出しました。その結果、指紋領域に含まれる、波長 $6\sim 12\mu\text{m}$ の赤外光子と、シリコン光検出器で検出可能な波長 $1.1\mu\text{m}$ 以下の可視・近赤外域（Visible and Near InfraRed: VNIR）の光子の対を発生する、量子もつれ光源を実現しました。さらに、その量子もつれ光源を用いて、指紋領域（波長 $8\sim 10.5\mu\text{m}$ ）での量子赤外分光に世界で初めて成功しました（図1）。



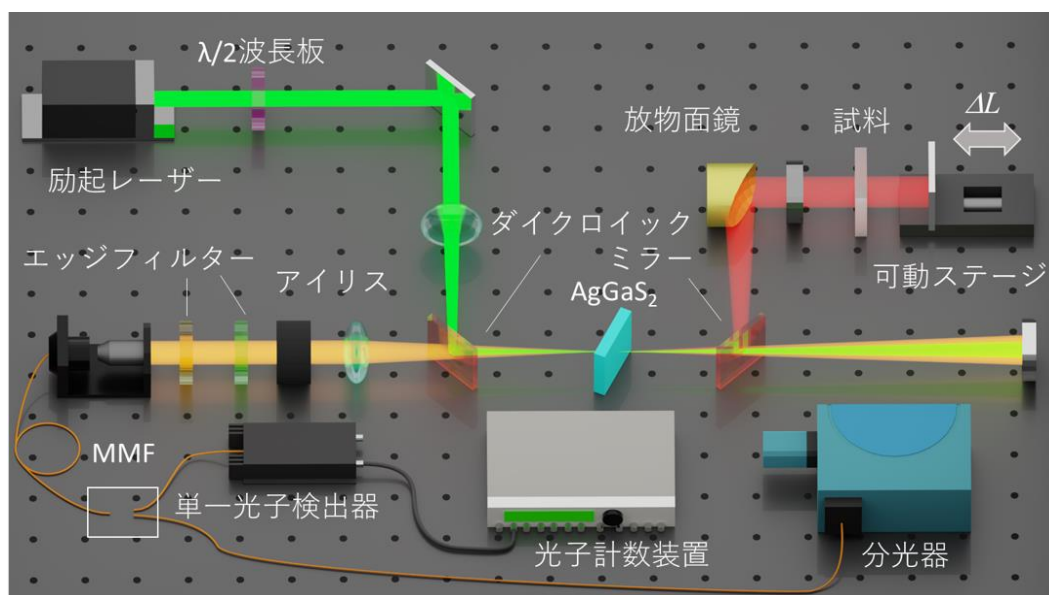


図2 指紋領域での量子赤外吸収分光装置の概要図。励起レーザー光を非線形光学結晶 (AgGaS_2) へ入射し、波長 $1\mu\text{m}$ 以下の可視近赤外(VNIR)と指紋領域の波長を持つ赤外の量子もつれ光子対を発生させる。結晶を透過した励起光と VNIR 光子は、波長フィルターを透過した後、凹面鏡で再度結晶へ入射する。波長フィルターで反射された赤外光子は、被測定試料を通過した後、鏡で反射、再度資料と通過し結晶へ入射する。「光子対の発生過程間」の量子干渉により、VNIR 光子の発生数は、赤外光子の反射鏡の位置により周期的に変化する。その「量子干渉信号」を、VNIR 光子を検出可能な、シリコン光検出器により観測する。

本測定システムは、同グループが提案、実証を行った、単一画素型のシリコン光検出器でも実装可能で、かつ高分解能測定が実現可能な「フーリエ変換型量子赤外分光法」(Quantum Fourier-transform infrared spectroscopy: QFTIR) ^{※8}に基づいています。励起レーザー光を非線形光学結晶 AgGaS_2 に入射すると、VNIR 光子と指紋領域の赤外光子の対が発生します(A)。この光子対を、波長フィルターで分離し、赤外光子を鏡で反射させます。また、可視光子とレーザー光も、別の鏡で反射し、非線形光学結晶に再度入射すると、再度光子対が生成されます(B)。この(A)と(B)の二つの光子対の発生プロセスは、その出力からは、光子対がどちらのプロセスで生じたのかを区別することが出来ないため、量子力学的に干渉します。その2つのプロセス間の「位相差」を、赤外光子の反射鏡の位置を掃引し変化させることで、発生する VNIR 光子は増減し、その結果 VNIR 光子の検出信号をプロットすると、量子干渉縞^{※9}が表れます(図3(a))。この干渉縞をフーリエ変換することで、赤外光子の強度スペクトルが得られます(図3(b))。この量子干渉縞および強度スペクトルは、赤外光子の経路に挿入した試料の、各波長での吸収により変化しますので、試料を挿入していない時のそれと比較することで、赤外域の吸収スペクトルを得ることができます。

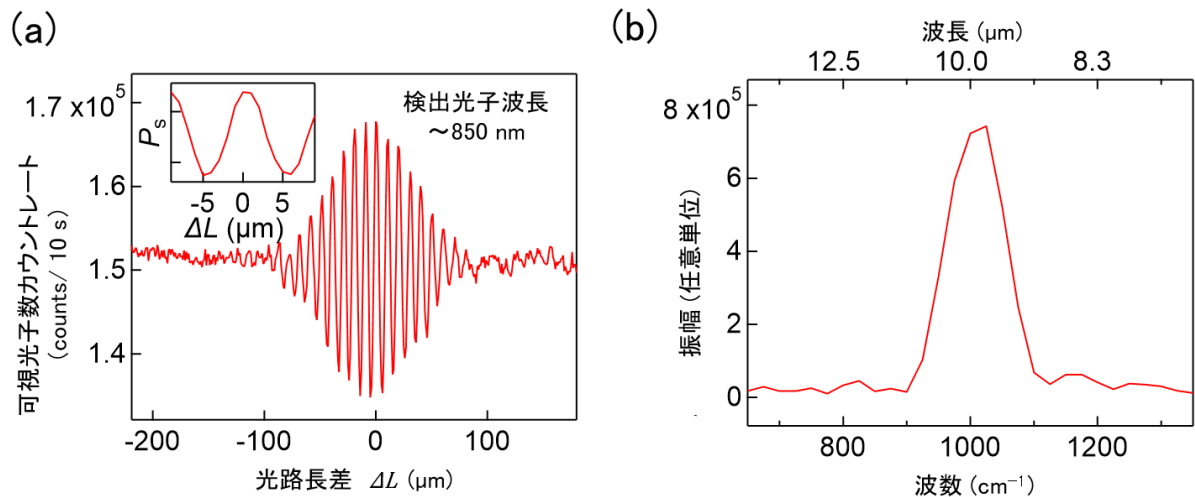


図3 (a) 観測された量子干渉信号。横軸は赤外光子の伝搬距離の変化量、縦軸はシリコン光検出器で測定した波長 850nm の可視光子発生数。左上の干渉信号拡大図では、信号の振動周期が相關する赤外光子波長(~10 μm)に対応していることが確認できる。(b) 量子干渉信号のフーリエ振幅スペクトル。可視光信号(図3(a))のフーリエ変換により相關する赤外光子の強度スペクトルが算出できる。

検証実験として、量子もつれ光のうち、波長約 860nm の VNIR 光子をシリコン光検出器で検出することで、指紋領域である波長 8~10.5 μm の量子赤外分光を、フッ素樹脂 (PTFE シート) ^{*10} をサンプルとして行った結果を図 4(a)に示します。このグラフでは、赤外分光でよく用いられる波数(cm⁻¹、1cm=10000 μm を波長で割った値)を下軸に、また対応する波長を上軸に取っています。波長 8.3 μm、および 8.7 μm 付近に見られる吸収は、フッ素樹脂 (PTFE) の分子に含まれる、炭素-フッ素原子間結合の伸縮振動に起因するものであり、官能基に特異的な吸収を捉えています。また、従来型の FTIR(フーリエ変換型赤外分光計)では観測の困難な、赤外光の位相変化スペクトル (図 4(b)) の計測にも成功しており、物質鑑別や定量評価に新たな情報を提供できるものと考えます。

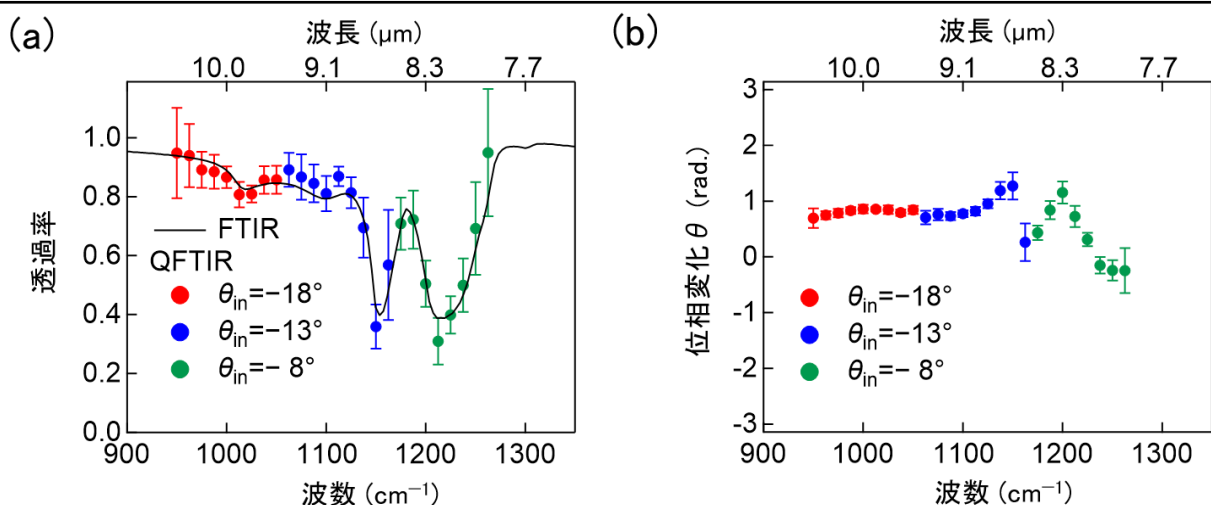


図4 (a) QFTIR により測定した PTFE フィルムの透過率絶対値スペクトル。広帯域測定を行うため AgGaS₂ 結晶への励起レーザー入射 θ_{in} を変えることで、もつれ光子発生波長を掃引している。8-9 μm 帯の透過率減少は有機分子内の C-F 結合部振動による光吸収に由来する。黒線は従来の赤外分光器(FTIR)による測定結果。(b) QFTIR によって測定した位相変化スペクトル。強い光学吸収が存在する波長域(8-9 μm 帯)では試料の屈折率(物質中の光の進行速度の指標)が大きく変動していることを示唆している。

3. 波及効果、今後の予定

本研究結果は、量子赤外分光が物質鑑別などへの応用上非常に重要な波長域である、「指紋領域」で実現できることを実証した成果です。これにより、広範な計測用途に展開可能な量子センシング技術の社会実装のさきがけとなることが期待されます。将来的に、コンパクトで高性能な赤外分光装置の実現により、環境モニタリングや、医療・セキュリティなど様々な分野への波及効果が期待されます。

今後は、本技術の実用化を目指し、より長波長域での赤外量子分光測定の実証や、装置の小型化・高感度化などの研究を推進します。

4. 研究プロジェクトについて

本研究は、主として文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム（Q-LEAP「量子もつれ光子対を利用した量子計測デバイスの研究」）（代表者：竹内繁樹 京都大学教授、JPMXS0118067634）の他、一部、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業（JPMJCR1674）、科学研究費（21H04444）等の支援を受け実施いたしました。

<用語解説>

※1 **量子もつれ**：量子もつれ（Quantum Entanglement）とは、2つの異なるシステム間で相関した状態が2つ以上あり、それらが（量子において複数の状態が同時に成立する）量子重ね合わせ状態にあることを言います。1935年にアインシュタインとボーアが、その存在について議論を闘わせたことが有名ですが、現在ではさまざまな量子技術の重要なリソースとして利用されています。

※2 **指紋領域(Fingerprint region)**：分子による特徴的な吸収が多く表れる領域で、波長 7.7～16.7 μm 程度。この部分に現われる赤外吸収帯は、分子の骨格そのものの振動や、分子の骨格の幾何学的形態に強く影響される振動によるもので、分子の種類の差異によって顕著な違いが現われるため、物質の鑑別同定に最もよく用いられています。なお、指紋領域の波長域は、教科書や文献により異なりますが、ここでは理化学事典第5版（岩波書店）の定義に依っています。

※3 **シリコン光検出器**：シリコンは、代表的な半導体としてパソコンの CPU、メモリなどの集積回路に利用されています。0.4～1.1 μm の波長の光に対する光検出素子としても利用することができ、その例として、今回の研究で利用したフォトダイオードの他、集積回路作成技術を利用してスマートフォンなどに搭載されているカメラに利用される COMS 光センサが挙げられます。ただし、1.1 μm より長い波長の光は検出する事ができません。

※4 **量子赤外分光**：重ね合わせやもつれ合いといった量子力学特有の性質を利用して、古典的計測技術の限界を越える量子センシング技術の一つ。時間・空間的に隔てられた光子対生成過程間の干渉現象を利用することで、量子もつれ光子対（下記項目参照）を形成する光子の一方（測定用光子）に対して生じる光吸収、位相遅延などの情報を、相関を持つもう一方の光子（検出用光子）の発生数変化として読み取ることが可能になります。測定用光子、検出用光子がそれぞれ赤外・可視領域の波長をもつように光子対を発生させることで、可視の光計測を通した赤外分光を行うことができます。

※5 **信号雑音比**：信号の強度を S 、雑音の強度を N とした時、信号強度を雑音強度で割った S/N の事を信号雑音比と呼びます。信号を優位に検出するには、 S/N が 1 より十分大きい必要があります。

※6 **量子もつれ光子対**：2つの光子が、偏光や周波数などに関して特定の相関に関して重ね合わせ状態にあるものです。量子赤外分光法においては、2つの光子のエネルギー(あるいは周波数)の総和が常に一定となる様な、「周波数もつれ」をもつ光子対が利用されます。例として、「一方の光子の波長が 800nm で、他方の光子の波長が 2500nm」という状態と、「一方の光子の波長が 870nm で、他方の光子の波長が 2000nm」という二つの状態が量子かさねあわせ状態にある場合があります。

※7 **非線形光学結晶**：光が入射した際、エネルギー保存則と運動量保存則（位相整合）を満たす際に、他の波長の光へと変換する性質をもった結晶をいいます。

※8 **フーリエ変換型量子赤外分光法 (Quantum Fourier-transform infrared spectroscopy: QFTIR)：**

我々のグループが、2021 年に提案および実証した、量子赤外分光法で、QFTIR と名付けています。それまでの量子赤外分光法では、量子もつれ光子対のうち、可視(VNIR)光子を、可視分光器により分光しその波長を特定することで、対応する赤外光子の波長を推定していましたが、可視分光器が大型であること、また可視分光器の分解能により、量子赤外分光の分解能が制限されるなどの問題がありました。QFTIR は、単一画素のシリコン光検出器で実装ができること、その分解能は QFTIR 装置内の赤外光子の反射鏡の掃引距離を変えることで任意に高めることができること、さらに従来のフーリエ変換型赤外分光(FTIR)では困難であった、屈折率スペクトルも取得可能である、などの特長を有しています。

※9 **量子干渉縞**：

実験装置のところの説明にあるように、量子もつれ光子対の発生する複数の物理過程（プロセス）が、どちらで発生したのかを区別ができない場合、それらの物理過程の間に量子力学的な干渉（量子干渉と呼びます。）が生じます。今回の実験は、赤外光子の反射鏡の位置を掃引すると、その量子干渉が、反射鏡の位置によって強め合う、あるいは弱め合う場合を交互に繰り返すことになり、その結果検出された可視・近赤外(VNIR)光子数をプロットすると、図 3(a)のような特徴的な振動波形がえられ、これを「量子干渉縞」と呼びます。これは、通常の「光の干渉」による干渉縞とは異なります。

※10 **フッ素樹脂(PTFE)**：フッ素樹脂は、耐熱性耐薬品性の高さや摩擦係数の小さいことからさまざまな分野で用いられています。ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)は、デュポン社の商標であるテフロンの商品名でも知られる、代表的なフッ素樹脂です。

<研究者のコメント>

量子もつれ状態は、シュレーディンガーの提唱からまもなく 100 年を迎えます。今後も、量子もつれをはじめとする量子の不思議な性質を利用した、従来の限界を超える技術の研究を、学生、スタッフと共に推進します。
(竹内繁樹)

<論文タイトルと著者>

タイトル：Quantum Fourier-transform infrared spectroscopy in the fingerprint region
(指紋領域におけるフーリエ変換型量子赤外分光法)

著 者：向井佑、岡本亮、竹内繁樹

掲 載 誌：Optics Express DOI：https://doi.org/10.1364/OE.455718