量子もつれ光を用いた赤外分光法で、世界最大の広帯域測定を実現
―可視域の光源・検出器で広帯域赤外分光が可能に―

訂正版：2022 年 9 月 29 日　※訂正箇所は赤字

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※2」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、物質や分子の鑑別に幅広く利用されている赤外分光※3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、中赤外域で狭い波長範囲域（1μm 以下）に限られていました。

今回、京都大学大学院工学研究科の荒畑雅也 博士課程学生、向井佑 同**特定助教**、田嶌俊之 同**特定研究員**、岡本亮 同准教授、竹内繁樹 同教授らの研究グループは、中赤外の波長域において、波長 1.9μm～5.2μm という広い波長域に渡る量子赤外分光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 9 月 7 日に米国の国際学術誌「Physical Review Applied」にオンライン掲載されました。

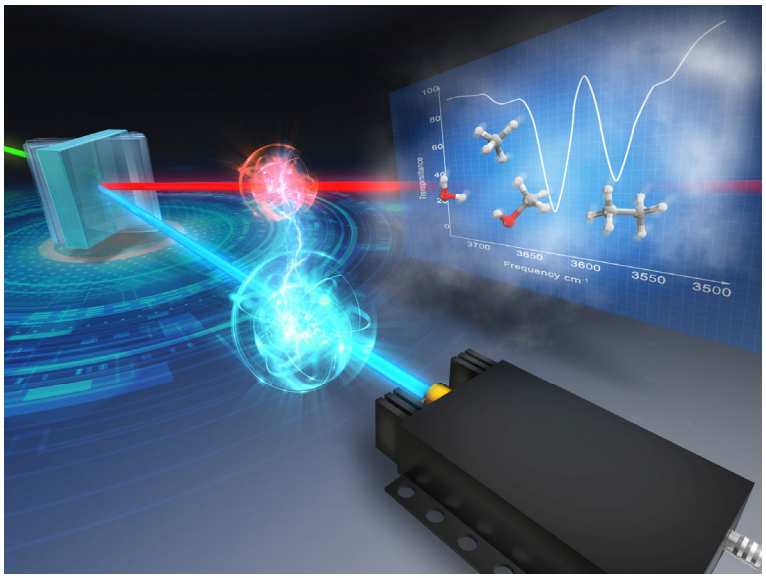

図 1　今回実証した、広帯域での量子赤外分光のイメージ図

訂正箇所

（正）向井佑 同特定助教、田嶌俊之 同特定研究員

（誤）向井佑 同研究員、田嶌俊之 同研究員

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、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。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、光のさまざまな波長（色）の対となった「量子もつれ」光源の活用が注目されています。

最近、その量子もつれ光を利用した、「量子赤外分光」が注目を集め、精力的な研究が進められています。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・医療から環境モニタリングや工業生産など、幅広い分野で利用されています。ただし、従来の装置では、赤外域での検出器や光源の感度や効率などが、装置の小型化の重大な支障となっていました。量子赤外吸収分光法は、可視域と赤外域に発生する「量子もつれ光子対※5」を利用することで、一般に用いられているシリコン光検出器と可視域の光源のみを用いて赤外分光を行うことが可能となり、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、中赤外域で狭い波長範囲域（ 1μm 以下)に限られており、量子赤外分光の実用化にむけて重大な問題となっていました。

2．研究手法・成果

今回我々は、独自に開発した中赤外域で広い周波数帯域にわたり、波長を変化させることのできる量子もつれ光源を用い、1.9μm～5.2μm という広い波長域に渡る量子赤外分光に世界で初めて成功しました。

実験装置の概要を図 2 に示します。可視域のレーザー光を非線形光学結晶※6（酸化マグネシウム添加ニオブ酸リチウム）に入射すると、可視光子と赤外光子の対である量子もつれ光子対が発生します(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、(A)の時と同様に光子対が生成されます(B)。この(A)と(B)の二つの発生事象は、その出力からは区別することが出来ないため、いわゆる量子干渉※7 が生じ、その 2 つの事象の「位相差」を、赤外光子の反射鏡の位置を掃引することにより、発生する可視の光子は増減し、干渉縞※7 を生じます。

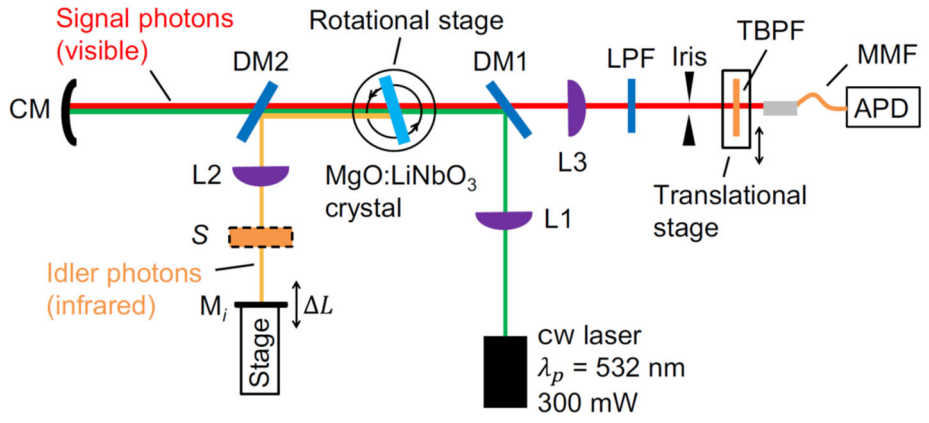

図 2　広帯域量子赤外分光装置の模式図。波長 532nm の緑色レーザー光が、ダイクロイックミラー(DM1)により反射された後、非線形光学結晶（酸化マグネシウム添加ニオブ酸リチウム・MgO:$LiNbO_3$)に入射し（往路)、可視域の光子と、赤外域の光子からなる量子もつれ光子対が生成される。赤外光子は、ダイクロイックミラー(DM2)で反射され、ステージ上に設置されたミラーで反射され、また可視光子と緑色レーザー光は凹面鏡(CM)で反射され、双方とも再び非線形光学結晶に入射される。再び非線形光学結晶に緑色レーザー光が入射する（復路）際にも同様に光子対が生成するが、この実験系では、往路と復路のいずれで光子対が生成したのかを特定することはできず、その結果、これら 2 つのプロセス間で量子干渉が生じ、結果として発生する可視光子および赤外光子の量が増減する。発生した可視光子は、絞り(Iris)と波長可変バンドパスフィルタ(TBPF)を通過した後、シリコンアバランシェフォトダイオード(APD)の光子検出器により検出される。

今回、量子もつれ光子対の波長を、非線形光学結晶の角度を変化させることで掃引しつつ、必要最小限の範囲で干渉縞を取得することで、赤外吸収スペクトルを高速に取得する方法を発案しました（図３）。

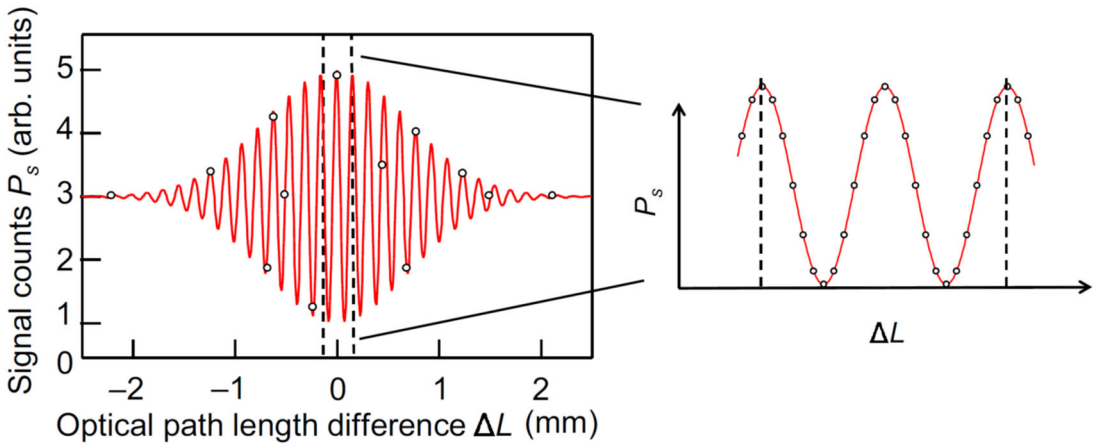

図 3　広帯域でのスペクトル測定を高速で行うための工夫。左図は、図２の実験装置で、赤外光子側の反射鏡の位置を掃引しながら、可視光子の検出数をグラフに描いたものである。赤外経路に置かれたサンプルが、赤外光子を吸収する場合、この干渉縞の振幅が、その吸収量に応じて減少する。今回、量子もつれ光子対の波長を変化させながら、その干渉縞の中央付近の、必要最小限の範囲のみで反射鏡を掃引することで、赤外吸収スペクトルを高速に取得することに成功した。

この結果、溶融石英ガラスの赤外スペクトルを、波長 1.9μm～5.2μm という広い波長域に渡り、4 分間で取得することに成功しました（図４）。さらに、我々の発案した量子フーリエ変換赤外分光法（量子 FTIR）[※8]と組み合わせることで、必要な波長域で高い分解能でのスペクトルを取得可能なことも実証しました（図５）。

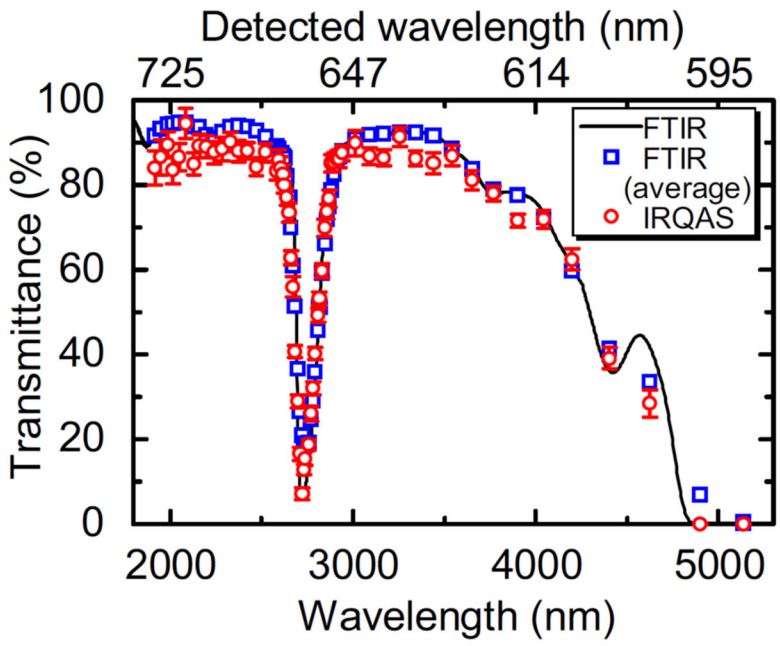

図 4　本量子赤外分光装置で得られた、広帯域赤外吸収スペクトル。サンプルは溶融石英。赤丸が量子赤外分光による測定結果であり、黒線は従来型の赤外分光装置による測定結果を、青四角は、量子もつれ光子（赤外）の帯域幅で黒線を積分した値を示している。量子赤外分光の測定結果は従来法によるものと良く一致しており、また、溶融石英中に含まれる水素原子と酸素原子間の結合による分子振動[※9]による吸収（波長 2.7μm）が明瞭に観察されている。

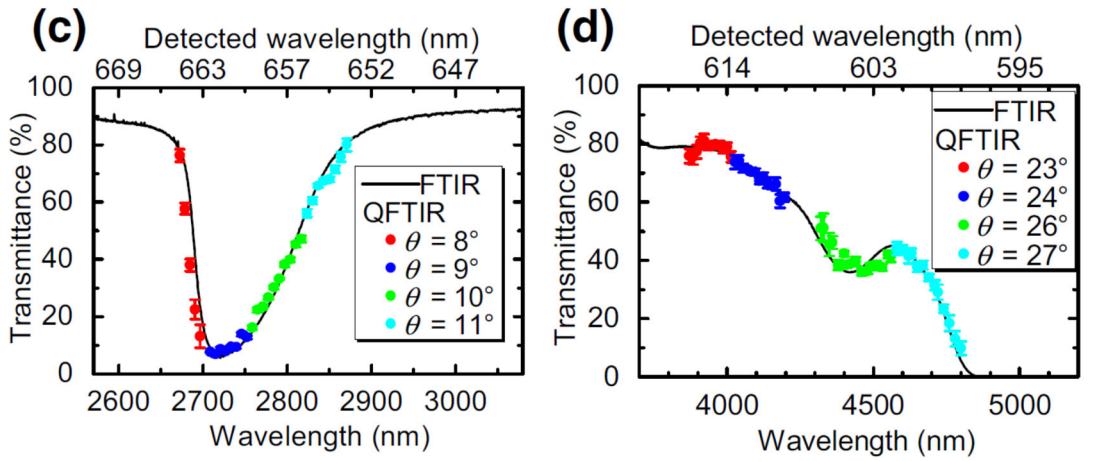

図５　図２に示した実験装置は、必要な波長域で高い分解能でのスペクトルを取得することも可能である。ここでは、非線形光学結晶の角度（図中のθ）を固定し、ある特定の波長で量子もつれ光子対を発生させた状態で、赤外光子の反射鏡を広範囲で掃引することで、量子フーリエ変換赤外分光法（量子 FTIR）により、高い分解能でスペクトルを取得（赤、青、緑、水色の点）している。測定結果は従来分光装置（黒線）とよく一致している。

３．波及効果、今後の予定

本方法を用いることで、スマートフォンなどで用いられているシリコン光検出器によって、赤外吸収スペクトルが取得できるようになり、装置の飛躍的な小型化や高感度化が可能となり、量子センシングの社会実装のさきがけとなることが期待されます。また、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。

今回の、中赤外域で世界最大の広帯域測定を実現した成果は、量子赤外分光の実用化に向けた大きなステップです。今後は、従来不可能であった微量物質の鑑別に向け、装置の小型化・高感度化などに取り組みます。

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、JPMXS0118067634））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 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。

※3 赤外分光：分子による赤外線の吸収波長（スペクトル）は、主としてその分子の固有振動数にもとづくので，分子が異なればその赤外吸収スペクトルも必ず異なります。この事実を利用して，赤外吸収スペクトルによって物質の同定，定性分析などを行なうことができます。化学物質の分析同定に、幅広く様々な分野で利用されているほか、環境モニタリングやセキュリティでも活用されています。

※4 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。0.4～1.1μm 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、1.1μm より長い波長の光は検出する事ができません。

※5 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 677nm 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 725nm 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。

※6 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。

※7 量子干渉、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で量子力学的な干渉（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。

※8 量子フーリエ変換赤外分光法（量子 FTIR）：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 分子振動：分子の中では、それを構成する原子や、その小さな集団（原子団）が、バネのように働く力で結合し、それらは振動しています。この振動数は、結合する力の大きさや、原子・原子団の質量に応じて定まります。

＜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： Wavelength-Tunable Quantum Absorption Spectroscopy in the Broadband Midinfrared Region
（広帯域中赤外領域における波長可変量子吸収分光法）

著　　者：荒畑雅也、向井佑、田嶌俊之、岡本亮、竹内繁樹

掲 載 誌：Physical Review Applied　DOI: 10.1103/PhysRevApplied.18.034015