

パルスレーザーで生成した量子もつれ光を用いて 高分解能の量子赤外分光を実証 —超高速現象を、小型・高感度で観察する新装置へ—

概要

電子や光子といった個々の量子の振るまいや、複数の量子間の相関（量子もつれ^{*1}）を制御することで、従来の計測技術の限界を超える量子センシング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分光^{*3}が可能になり、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。励起光源にパルスレーザーを用いることで、非常に高速に変化する現象に対しても量子赤外分光が適用できますが、これまでは量子赤外分光の分解能が、パルスレーザー光源の帯域幅^{*4}によって制限されると考えられていました。

今回、京都大学大学院工学研究科 Kaur Jasleen 博士課程学生、向井佑 同助教、岡本亮 同准教授、竹内繁樹 同教授らの研究グループは、同グループが提案した「量子フーリエ変換赤外分光法^{*5}」では、その分解能が励起光源の帯域幅によって制限されず、高分解能測定が可能であることを理論的に明らかにし、検証実験に成功しました。今後、化学反応などで時間的に高速に変化する赤外吸収スペクトルを、可視域の光源と検出器を用いたコンパクトで高感度に測定する新たな手法として期待されます。

本成果は、2024年10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 パルスレーザー励起による高分解能量子赤外分光のイメージ

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、さらには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。

これまで、量子赤外分光に用いる量子もつれ光子対^{*6}の生成には、狭い帯域幅をもつ連続波(CW)レーザーが使用されてきました。これは、量子赤外分光において高い波長分解能を得るためには、可視-赤外もつれ光子対間の明確な周波数相関が必要と考えられていたためです。一方でパルスレーザーを用いて時間的に局在した量子もつれ光を生成することで、フェムト秒(10^{-15} 秒)スケールの時間分解能をもつ高速赤外分光が可能になると期待されます。しかしながらパルスレーザーを使用した場合、励起光の大きな帯域幅の影響でもつれ光子対間の周波数相関が不完全となるため、一般に量子赤外分光の分解能は劣化するものと考えられていました。

2. 研究手法・成果

今回私たちは、励起光源として大きな帯域幅を持つパルスレーザーを使用した場合にも、高い波長分解能で量子赤外分光が実行可能であることを、理論、実験の両面から明らかにしました。

量子赤外分光法の一形態である「量子フーリエ変換赤外分光法」(Quantum Fourier-transform infrared spectroscopy: QFTIR)の測定理論を、大きな線幅をもつ励起光を使用した場合に拡張したところ、波長分解能が励起光源の影響を受けず、量子干渉信号^{*7}取得時の干渉経路の掃引距離によってのみ決定されることを見出しました。この理論予想を実験により実証するため、微細なスペクトル構造を持つ試料を対象にQFTIR測定を行い、励起光源として狭線幅のCWレーザーを用いた場合と、パルスレーザーを使用した場合の分光結果を比較しました。

図2は構築したQFTIR測定システムを示しています。本装置は励起光源として、中心波長532nmのCWレーザーとパルスレーザーが切り替えられるようになっています。挿入図はパルスレーザーの出力スペクトルを示しています。可視励起光を非線形結晶へ入射することで可視光子と赤外光子の対である量子もつれ光が生成されます。本セットアップでは、可視光子の波長が810nm、赤外光子の波長が1550nmとなるよう設計しています。この量子もつれ光を、波長フィルターにより赤外光子と可視光子および励起光に分離したのち、それぞれ鏡で反射させ、再び非線形結晶へ入射します。このとき量子干渉^{*7}により、それらの2つの経路長に応じて発生する可視光子の量が増減します。QFTIR法では、赤外光子側の反射鏡の位置を変化させながら得られた干渉信号をフーリエ変換することで、赤外域のスペクトルを算出します。

図3はQFTIRにより測定した厚さ400 μm のシリコン板状試料の透過率スペクトルを示しています。本試料は表面反射した赤外光の干渉(エタロン効果)により、赤外域で波数 3.5cm^{-1} 周期のフリンジ構造があらわれます(図3(a))。図3(b)はCWレーザーによる分光測定結果を示しています。量子干渉測定時の経路掃引距離は2cmに設定しており、分解能は掃引距離の逆数 0.5cm^{-1} となるため、フリンジ構造が明確に観測できています。一方で、帯域幅が 21cm^{-1} のパルスレーザーを用いた測定結果(図3(c))においても、CWレーザーでの測定と遜色の無い高分解能のスペクトルが得られています。

次に非常に狭い線幅の吸収を持つアセチレン(C_2H_2)ガスの吸収スペクトルを分解能 1cm^{-1} で測定したところ、数値計算によるスペクトルの予想形状(図4(a))と非常に近い結果が、CWレーザー使用時(図4(b))とパルスレ

ーザー使用時(図 4(c))のいずれにおいても確認できました。

これらの実験結果は、QFTIR の分解能が励起光源の線幅に依らず干渉信号の測定条件のみで決まるという理論予想と整合しており、パルスレーザーを用いた量子赤外分光においても、任意の波長分解能で測定が可能であることが実証されました。

3. 波及効果、今後の予定

本成果は、高い時間分解能と波長分解能を兼ね備えた量子赤外分光装置の開発に向けた重要な一歩です。従来、実装コストが非常に高かった時間分解赤外分光システムが、小型の可視パルスレーザーと安価な光検出器によって構築可能となることで、フェムト秒領域での高速化学反応や物理過程の計測がより容易に実行できるようになります。これにより、さまざまな基礎研究の進展や高度なセンシング技術の社会実装が期待されます。具体的な応用例としては、太陽電池や光触媒における光エネルギー変換プロセスの解明が挙げられます。これにより、高効率な太陽電池の開発や、太陽光を利用して水素を生成する光触媒の効率向上といった研究分野への貢献が期待されます。

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、科学研究費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（※6 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 **帯域幅**：レーザー等の光源におけるスペクトルの広がり。波長や周波数、波数等の関数として光の強度を測定した際の分布幅で評価できます。時間領域波形とスペクトル領域の信号形状は互いにフーリエ共役の

関係にあるため、パルスレーザーは時間幅の逆数に比例する広い帯域幅を持ちます。

※5 量子フーリエ変換赤外分光法 (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。

※6 量子もつれ光子対: 2つの光子が、偏光や周波数など特定の相関に関して重ね合わせ状態にあるもの。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。

※7 量子干渉、量子干渉信号 : 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となります。これを「量子干渉信号」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。

<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。

<論文タイトルと著者>

タイトル : High spectral resolution quantum Fourier-transform infrared spectroscopy with pulsed laser excitation (パルス励起光を用いた高分解能量子フーリエ変換赤外分光)

著者 : Kaur Jasleen、向井佑、岡本亮、竹内繁樹

掲載誌 : *Physical Review Applied* DOI : (未定)

< 参考図表 >

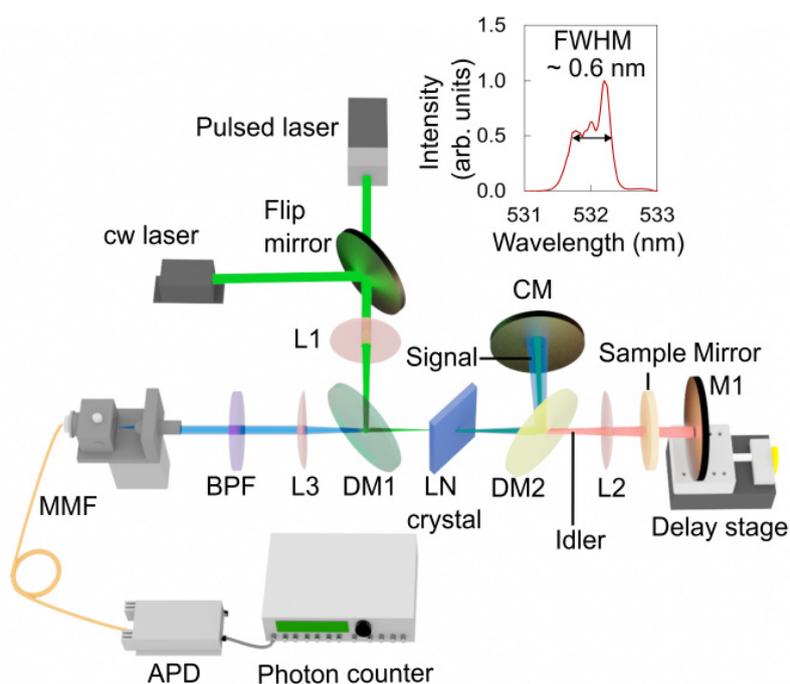


図2 実験系概念図。CW レーザーとパルスレーザーを切り替え、量子フーリエ変換赤外分光 (QFTIR)測定が可能。励起レーザー光を非線形光学結晶 LiNbO_3 (LN) へ入射し、可視光子と赤外光子の量子もつれ光子対を発生させる。結晶を透過した励起光と可視光子は、波長フィルターで反射された後、凹面鏡で再度結晶へ入射する。波長フィルターを透過した赤外光子は、被測定試料を通過した後、鏡で反射、再度試料を通過し結晶へ入射する。「光子対の発生過程間」の量子干渉により、可視光子の発生数は、赤外光子の反射鏡の位置により周期的に変化する。その「量子干渉信号」を、可視光子を検出可能な、シリコン光検出器により観測する。

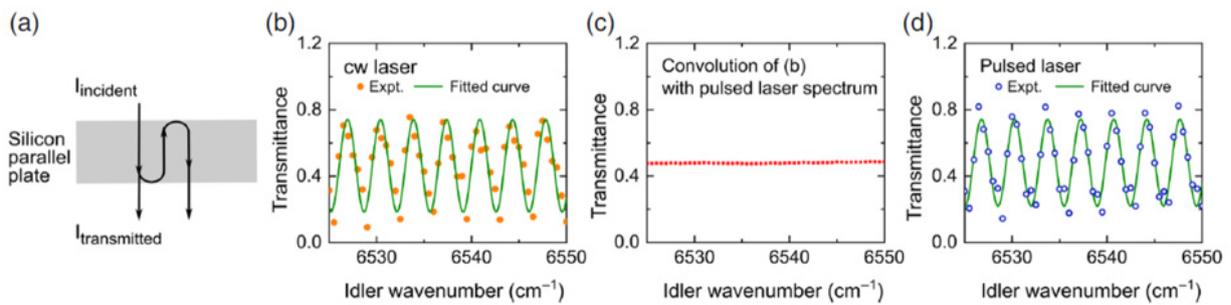


図3 アセチレンガスの透過率スペクトル。(a) シリコン板状試料のエタロン効果。試料内部で反射される光の干渉効果により透過率スペクトルには周期的な干渉構造（フリンジ）が生じる。(b) CWレーザーを用いたQFTIRにより測定したシリコン試料の透過率スペクトル。前述のエタロン効果による干渉構造が確認できる。(c) パルスレーザーの帯域幅(21 cm^{-1})分の畳み込みを行ったシリコン試料の透過率スペクトル。従来の予想では、本図の様に励起光帯域幅による分解能の劣化が生じる。(d) パルスレーザーを用いたQFTIRにより測定したシリコン試料の透過率スペクトル。QFTIRによる実際の実験結果では、パルスレーザーの帯域幅(21 cm^{-1})に比べ微細なスペクトル構造、3.5 cm^{-1} 周期のフリンジ、を明瞭に観測できている。

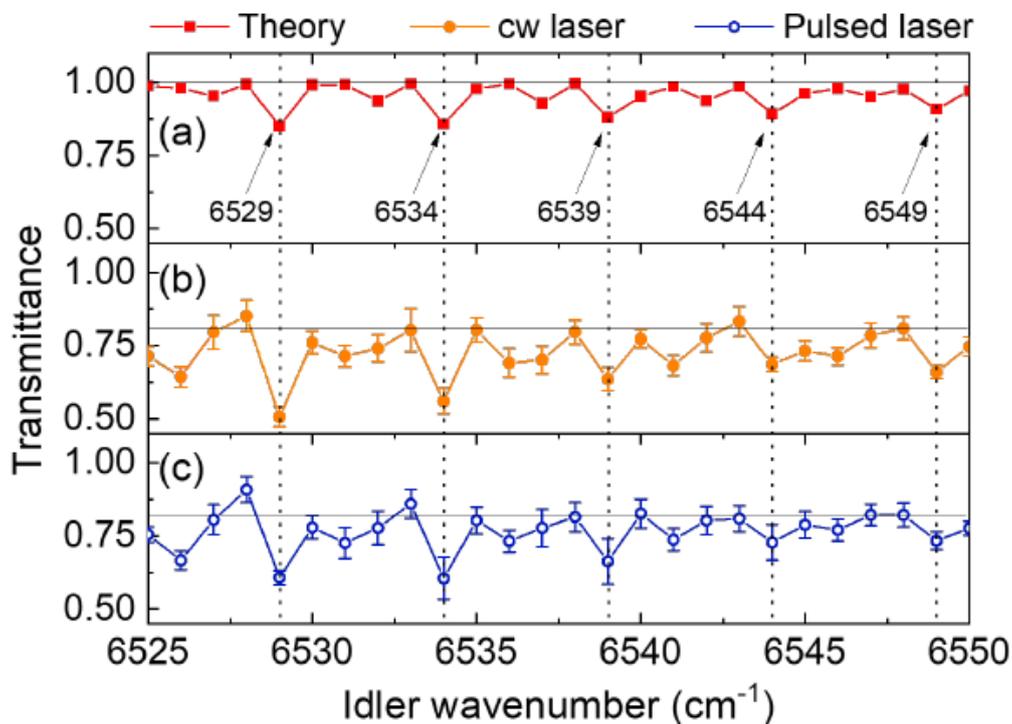


図4 アセチレンガスの透過率スペクトル (a) 数値計算によるスペクトル予想形状。HITRANデータベースを基に、実際のQFTIR測定条件での装置分解能(1 cm^{-1})での畳み込みを行ったアセチレンガスの吸収スペクトル。図中の破線は複数の吸収ピークを中心波数を示す。(b) CWレーザーを用いたQFTIRにより測定したアセチレンガスセル試料の透過率スペクトル。(c) パルスレーザーを用いたQFTIRにより測定したアセチレンガスセル試料の透過率スペクトル。