

# 全反射法を利用した、新しい量子赤外分光装置を実現

## —小型でポータブルな、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<sup>\*1</sup>）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<sup>\*2</sup>」は、可視域の光源と検出器のみで赤外分光<sup>\*3</sup>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。しかし、従来の量子赤外分光法では、表面がきわめて平滑なサンプルを準備する必要があるなどの問題がありました。

今回、京都大学大学院工学研究科 栗田寅太郎 特定研究員（研究当時）、向井佑 同助教、田嶋俊之 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、島津製作所の徳田勝彦 主任研究員らの研究グループと共同で、表面が平滑でないサンプルをプリズムに押しつけることで測定が可能な、全反射法<sup>\*4</sup>による量子赤外分光を実現しました。本手法は、様々な試料を簡便に測定でき、また従来困難であった厚みのあるサンプルの測定も可能となるため、より幅広い用途で利用可能な小型でポータブルな量子赤外分光システムの実現が期待されます。

本成果は、2025年1月28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。

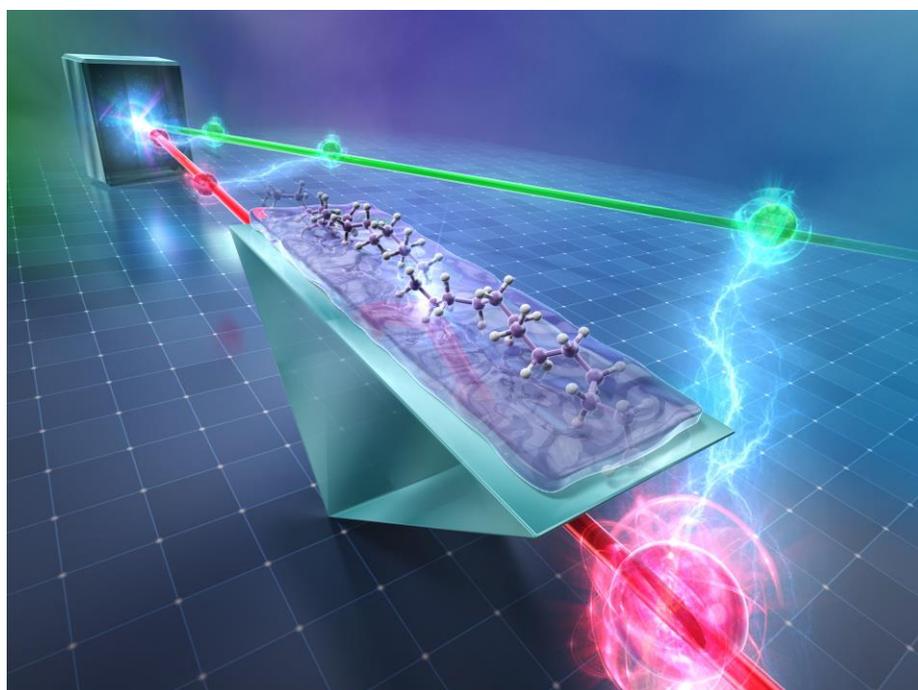


図1 全反射型量子赤外分光のイメージ

## 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る技術として注目されています。既存の赤外分光装置で利用されている赤外光源はセラミックヒーターを高温に加熱して赤外線を放射していることや、赤外域の検出器の高感度化には液体窒素冷却などを利用するなどの問題があります。量子赤外分光では、スマートフォンなどにも利用されているシリコン製光センサーや可視域の光源のみを利用するため、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、量子赤外分光は、従来の量子赤外分光法では、量子干渉<sup>\*5</sup>計の内部にサンプルを設置するため、サンプルの表面の影響を受けやすく、表面がきわめて平滑なサンプルを準備する必要があるなどの問題がありました。より詳しくは、表面が平滑でなかったり、内部に複雑な屈折率分布を有するようなサンプルを測定しようとすると、赤外光子がサンプルを通過する際に、赤外光子の波面が乱されてしまい、その結果量子干渉が生じなくなってしまうという問題がありました。

## 2. 研究手法・成果

今回私たちは、プリズムの表面で光が全反射する際にわずかにプリズムの表面からしみ出す全反射現象を量子赤外分光に応用した、「全反射型量子赤外分光 (Attenuated Total Reflection Quantum InfraRed Spectroscopy, ATR-QIRS)」を実現しました。全反射法(ATR法)<sup>\*4</sup>は既存の赤外分光法でも活用されており、サンプルをプリズムに押しつけるだけで簡便に測定出来ることや、透過型の測定では赤外光がほとんど吸収されてしまい測定できないようなサンプルにも適用できるため、広く活用されている技術です。今回実現した ATR-QIRS は、従来の量子赤外分光の弱点を補い、表面が平滑でないサンプルもプリズムに押しつけることで測定が可能になり、様々な試料を簡便に測定が行えると期待されます。また従来困難であった厚みのあるサンプルの測定も可能となるため、より幅広い用途で利用可能な小型でポータブルな量子赤外分光システムの実現が期待されます。

図 2(a)に構築した ATR-QIRS の実験系を示します。励起用の、波長 532nm の CW レーザーを非線形結晶であるニオブ酸リチウム(LN)へ入射すると、可視光子と赤外光子の対である量子もつれ光子対<sup>\*6</sup>が生成されます。本実験では、非線形結晶への励起光入射角度を調整することで、量子もつれ光子対の波長を可視光子で 700-620nm、赤外光子で 2.2-3.8 $\mu$ m の範囲で変化させています。その後波長フィルターにより赤外光子と、可視光子と励起光を別々の経路に分離します。励起光はレンズで平行光にした後、鏡で反射されます。また可視光子は放物面鏡で平行光にした後、微動ステージ上の鏡で反射されます。赤外光子は、放物面鏡で平行光にした後、短波長成分をカットするシリコンを透過した後、フッ化カルシウム(CaF<sub>2</sub>)製のプリズムに入射(図 2(b))、プリズムの上面で全反射を生じさせます。この時、赤外光子はプリズムの表面からわずかな距離(数ミクロン程度)浸みだし、そこに設置されたサンプルを通過し再度プリズム内に戻ります。プリズムから射出された後、鏡で反射します。これらの反射された励起光、可視光子、赤外光子は再び非線形結晶に入射しますが、その際にこの 2 度目の励起光の入射により可視光子・赤外光子の量子もつれ光子対が発生するプロセスと、最初のもつれ光子対発生プロセスが量子干渉を起こします。本装置では、可視光子の反射鏡の位置を掃引することによ

り、量子干渉を制御し、結果として出力される可視光子（量子干渉信号<sup>※5</sup>）を、シリコン製のアバランシェフォトダイオード(APD)で検出しています。

図3は、量子フーリエ変換赤外分光法(QFTIR)<sup>※7</sup>を用いて取得した、ATR-QIRSによる水試料の吸収スペクトル測定結果を示しています。図3(a)は赤外光子の中心波長を2.87 $\mu\text{m}$ （可視光波長653nm）に設定した場合に、可視光子の経路長を変化させて取得した量子干渉信号の形状を示しています。プリズム上に水を滴下した際には、試料の赤外光吸収を反映して、信号振幅が大きく減少しています。

図3(b)はこれらの量子干渉信号のフーリエ振幅スペクトルを示しており、各波長での赤外吸収の度合いを見積ることができます。もつれ光子対の発生波長を変化させながら、同様の測定を繰り返すことで、図3(c)に示すように、広帯域にわたる水のOH振動吸収スペクトルを取得することに成功しました。同図の実線は、私たちが今回構築した、全反射型の量子赤外分光の理論に基づいて、水の屈折率の文献値から算出したスペクトルの予想値を示しています。今回の実験結果が理論予想と高い精度で一致していることが分かります。

### 3. 波及効果、今後の予定

今回の成果は、プリズム-試料界面のしみ出し光（近接場）を利用した全反射法が量子赤外分光に適用可能であることをはじめて実証したものです。従来の量子赤外分光法では、表面がきわめて平滑なサンプルを準備する必要があるなどの問題がありましたが、今回実現した全反射型量子赤外分光法では、表面が平滑でないサンプルをプリズムに押しつけることで測定が可能となります。また、微量な液体サンプルなどもプリズム表面に滴下するだけで測定出来るなど、簡便な測定が可能になります。さらに、従来困難であった厚みのあるサンプルの測定も可能となります。このように、より幅広い用途で利用可能な小型でポータブルな量子赤外分光システムの実現が期待できます。特に、屋外での環境モニタリングやセキュリティへの応用などが期待されます。

### 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))、科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業（ERATO「竹内超量子もつれ」(代表者：竹内繁樹 京都大学教授、JPMJER2402))、日本学術振興会科学研究費等の支援を受け、株式会社島津製作所と共同で実施しました。

#### <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 **全反射法**：全反射減衰法(Attenuated Total Reflection: ATR)とも呼ばれる、高屈折率のプリズムと試料を密着させ、プリズム-試料界面での全反射光を用いて試料光学特性を評価する方法です。赤外光測定の場合、反射光は数  $\mu\text{m}$ ~サブ  $\mu\text{m}$  のわずかな距離だけ試料内部にしみ出すため、反射界面近傍の微小領域の光学特性を測定することになります。これにより、試料形状が変形しやすい、あるいは表面に凹凸がある様な場合でも、プリズムに密着させることで波面歪や散乱を抑制した測定を行うことができます。

※5 **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になります。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。

※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、量子赤外分光法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装置内の量子干渉経路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。

#### <研究者のコメント>

「国際連合は、2025年を「国際量子科学技術年」と宣言しました。量子科学技術の中でも、光量子センシングは早期の社会実装が期待できる技術として注目されています。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：Quantum infrared attenuated total reflection spectroscopy

（全反射型量子赤外分光）

著者：栗田寅太郎、向井佑、岡本亮、荒畑雅也、田嶋俊之、太田宏、徳田勝彦、竹内繁樹

掲載誌：Physical Review Applied DOI：(未定)

< 参考図表 >

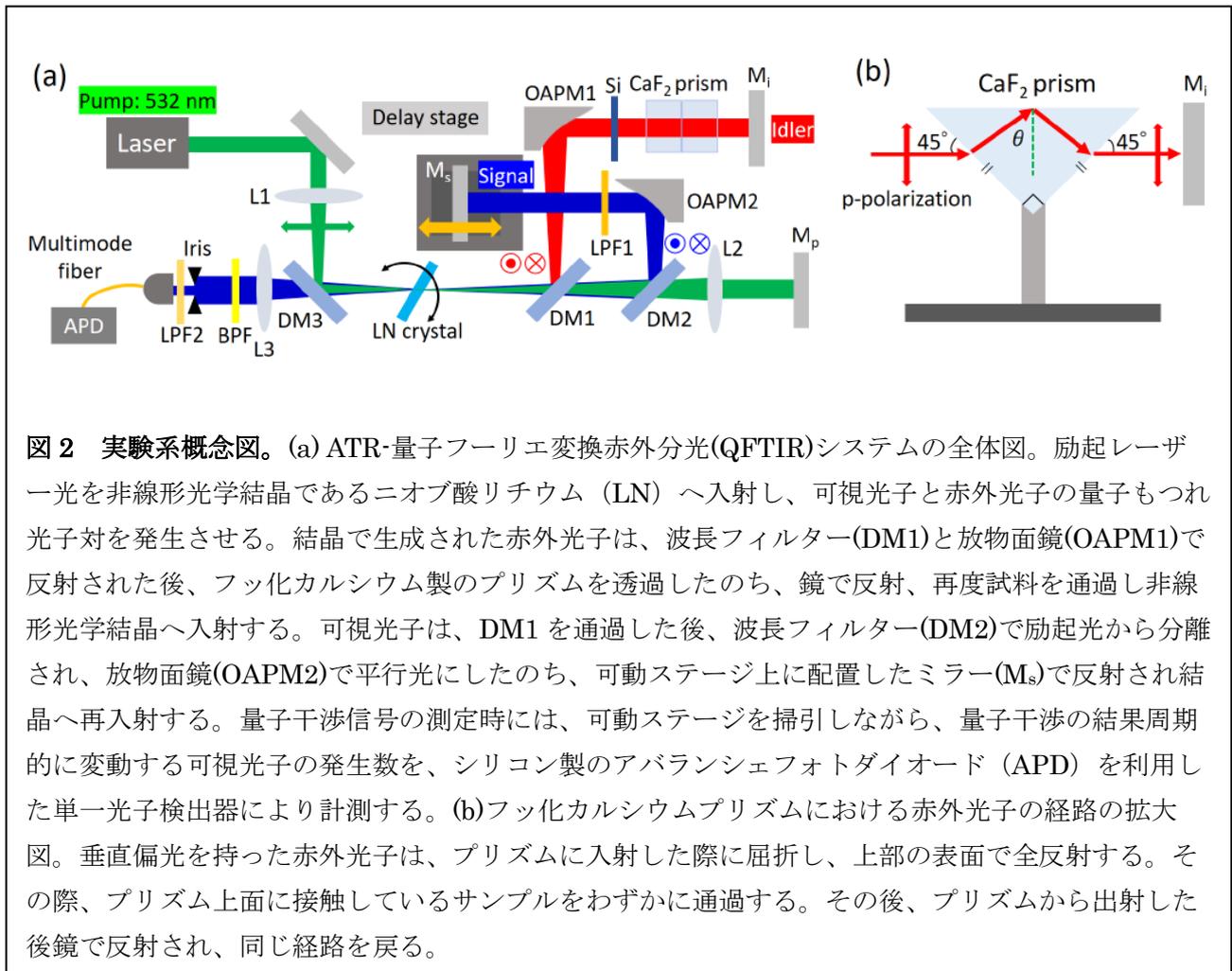


図 2 実験系概念図。(a) ATR-量子フーリエ変換赤外分光(QFTIR)システムの全体図。励起レーザー光を非線形光学結晶であるニオブ酸リチウム (LN) へ入射し、可視光子と赤外光子の量子もつれ光子対を発生させる。結晶で生成された赤外光子は、波長フィルター(DM1)と放物面鏡(OAPM1)で反射された後、フッ化カルシウム製のプリズムを透過したのち、鏡で反射、再度試料を通過し非線形光学結晶へ入射する。可視光子は、DM1 を通過した後、波長フィルター(DM2)で励起光から分離され、放物面鏡(OAPM2)で平行光にしたのち、可動ステージ上に配置したミラー(M<sub>s</sub>)で反射され結晶へ再入射する。量子干渉信号の測定時には、可動ステージを掃引しながら、量子干渉の結果周期的に変動する可視光子の発生数を、シリコン製のアバランシェフォトダイオード (APD) を利用した単一光子検出器により計測する。(b)フッ化カルシウムプリズムにおける赤外光子の経路の拡大図。垂直偏光を持った赤外光子は、プリズムに入射した際に屈折し、上部の表面で全反射する。その際、プリズム上面に接触しているサンプルをわずかに通過する。その後、プリズムから出射した後鏡で反射され、同じ経路を戻る。

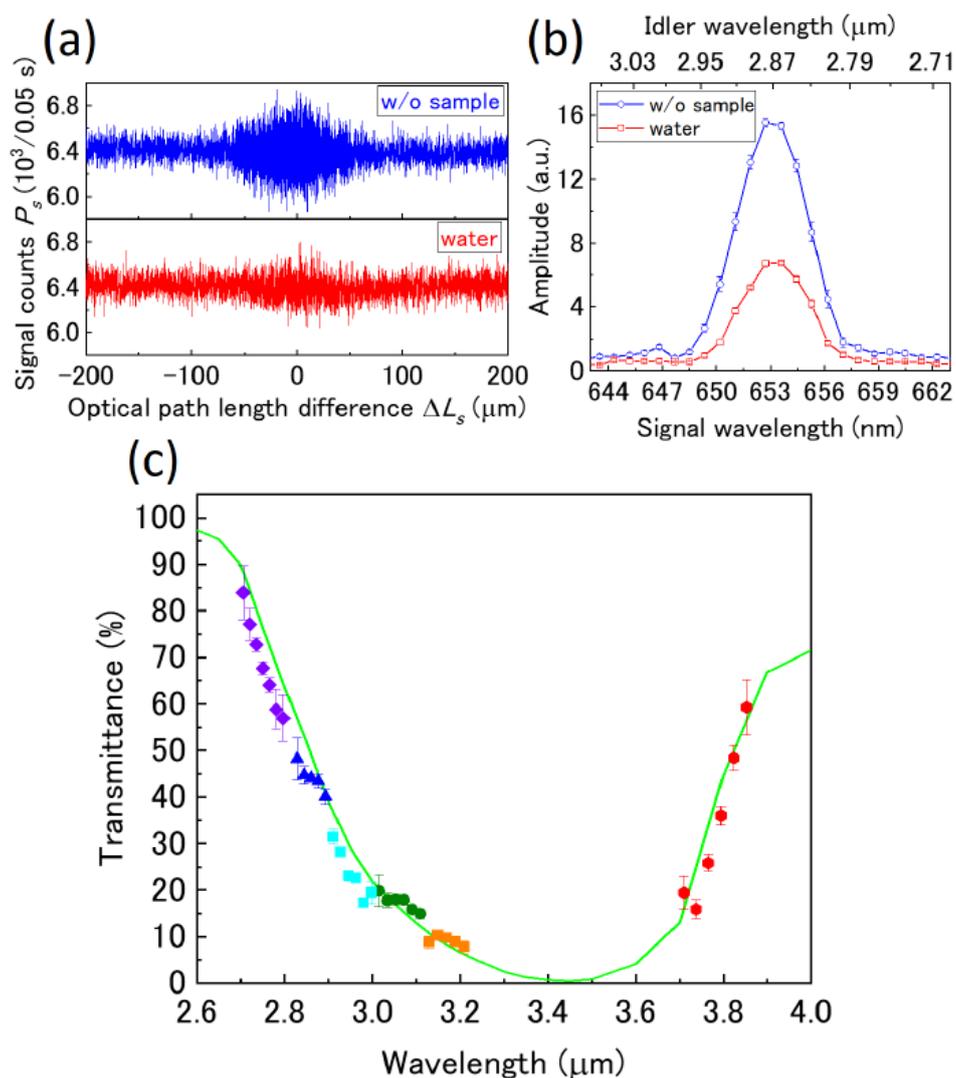


図3 水の中赤外吸収スペクトルの測定。(a)ATR-QIRS システムにより測定した(a)量子干渉信号と(b)フーリエ振幅スペクトル。青線が試料を配置しない際の参照信号、赤線が試料を配置(プリズム上に水を滴下)した場合の試料信号。QFTIRでは、これらの比をとることで、各波長における透過率が見積る。(c)水をサンプルとして、非線形光学結晶の傾きを変化させながらATR-QIRSにより測定した、赤外域の透過率スペクトル。図3(b)で得た透過率は、青▲印に対応している。黄緑の実線は、今回構築した全反射型量子赤外分光の理論に基づいて、水の屈折率の文献値から算出したスペクトルの予想値であり、実験結果とよく一致している。