

Ph.D Thesis

同時非線形過程を用いた量子もつれ光子対発生

Quantum entangled photon pairs
generated via simultaneous nonlinear process

Department of Physics

Graduated School of Science

Kyoto University

北條 真之

Masayuki HOJO

目次

第 1 章	序論	7
1.1	光の量子論	7
1.1.1	マクスウェル方程式	8
1.1.2	量子もつれ光子対	13
1.2	量子もつれ光子対の発生	15
1.2.1	2 次の非線形光学過程	16
1.2.2	自発パラメトリック下方変換過程	17
1.2.3	量子もつれ状態の生成	20
1.3	量子もつれ状態の計測と評価	22
1.3.1	同時計測 (Coincidence measurements)	22
1.3.2	Hong-Ou-Mandel 干渉	24
1.3.3	密度行列と量子トモグラフィ	27
1.3.4	近年の動向	29
1.4	本研究の目的	30
第 2 章	同時 SPDC 過程	32
2.1	背景	32
2.2	理論	33
2.2.1	同時 SPDC 過程の擬似位相整合条件	33
2.2.2	同時 SPDC 過程のスペクトルシミュレーション	40
2.3	実験	41
2.3.1	スペクトルの観測	41
2.3.2	量子効率の見積もり	44
2.4	結論と展望	44
第 3 章	周波数同期レーザーを用いた同時 SPDC 光子対の量子相関測定	45
3.1	背景	45
3.1.1	SFG (和周波発生)	46
3.1.2	赤外上方変換 (UPC)	48
3.1.3	UPC による量子相関ともつれ状態の計測	52
3.2	同期ファイバーレーザーシステムの開発	54
3.2.1	実験原理	54
3.2.2	Yb ³⁺ 添加モードロックファイバーレーザー (YDFL)	55
3.2.3	Er ³⁺ 添加モードロックファイバーレーザー (EDFL)	65
3.2.4	相互位相変調と繰り返し周波数同期	67

3.3	実験原理	70
3.3.1	同時 SPDC 過程による相関光子対の発生および検出	70
3.3.2	TCSPC による同時 SPDC 光子対の同時計測	78
3.4	結論と展望	84
第 4 章	同時 SPDC 過程を用いた偏光・周波数もつれ光子対の発生	85
4.1	背景	86
4.1.1	非線形結晶の複屈折	86
4.2	Type-II 同時 SPDC 過程	87
4.2.1	Type-II の同時位相整合条件	87
4.2.2	Type-II の同時 SPDC 過程における発生波長可変性	90
4.2.3	Type-II の同時 SPDC スペクトルのシミュレーション	93
4.3	実験	94
4.3.1	スペクトル計測	94
4.3.2	非縮退 SPDC 光子対の HOM 干渉測定	100
4.4	結論	103
第 5 章	結論と将来展望	105

概要

光の量子もつれ状態は複数の光子の間に光学的自由度（周波数、偏光、波数ベクトル）における特殊な相関が存在する量子状態であり、古典的描像では記述することのできない特異な現象を示す。ベル不等式の破れの証明 [1] を皮切りに、量子テレポーテーション現象 [2]、もつれ光子対間の Hong-Ou-Mandel (HOM) 干渉 [3] など、多岐にわたる量子力学的現象の実証実験に用いられ、近年では古典限界を克服した伝達距離の量子通信や量子計測に応用されている。一方で光子数レベルで光を制御する量子技術の発展に伴い、量子もつれ光子対の発生機構や検出技術における課題が顕在化してきた。検出においてアバランシェフォトダイオード (APD) に代表されるような光子数計測技術が発展してきた一方で、相関の次元を増やししながら高効率かつ量子状態を損失なく発生させる汎用的な手法の報告は限定的である。また、発生帯域が通信帯域までに制限され、赤外域までの広帯域な範囲をカバーしうる手法に技術的制約が存在した [4, 5, 6, 7, 8, 9]。

光子対においてもつれ状態を形成する代表的な手法に自発パラメトリック下方変換 (SPDC) 過程を用いた手法がある。SPDC 過程は 1 つの光子が偏光、周波数、波数ベクトルの自由度で相関を持つ 2 つの光子にコヒーレントに分裂する非線形現象である。SPDC 光子対の光子相関を用いたもつれ状態の形成を基に、SPDC 過程と干渉計を組み合わせた量子もつれ光子対の発生手法が多く報告されてきた。しかしながら、干渉計は複雑で不安定な光学系であるため、量子効率やもつれ純度を損失するという課題が依然として存在した。特に、周波数領域でのもつれ光子対は量子テレポーテーション、量子通信、量子分光などに用いることができるため、簡便かつ高効率な発生が喫緊の課題であった。

上述の課題を鑑みて、本論文では SPDC 過程の発生機構そのものに注目し、SPDC 過程のみを用いたもつれ状態の形成を可能にする非線形過程の同時発生について調べた。その結果、複数の SPDC 過程が同時に発生する条件によって簡便かつ汎用的なもつれ光子対の発生が実現可能であることを明らかにした。第 1 章では、量子もつれ状態を記述する基礎的な描像を説明し、本論文の目的を述べている。第 2 章では、複数の SPDC 過程が 1 つの結晶において同時に位相整合する理論的条件の考察を導入する [10]。その中で、理論計算とその実証実験から、周期分極型ニオブ酸リチウム (PPLN) 結晶および周期分極型タンタル酸リチウム (PPSLT) 結晶において、光子対の周波数の組み合わせが異なる 2 つの Type-0 の SPDC 過程が同時に発生可能であることを明らかにした。また、この発生の特徴の 1 つとして、同時 SPDC 光子対が結晶の透明領域である可視域から赤外域までをカバーする広帯域光源として有用であることも明らかにした。第 3 章では、第 2 章で示した同時過程によって発生した相関光子対間の時間的相関（発生の同時性）を計測した結果について述べている [11]。また、この実証実験を行うために必要な光源の開発動機と過程についても記述する。本研究では図 1 に示すように、同時に発生しうる 2 つの SPDC 光子対間に時間的相関があることを明らかにした。これにより、同時 SPDC 過程が量子もつれ状態形成に必要な「確率的にどちらかの光子対状態をとる」という光子対発生における必要条件を満たしていることを実証した。第 4 章では、第 3 章の結果を踏まえ、周波数と偏光の自由度で相関をもつ同時 SPDC 発生の条件を見出した過程について説明している [12]。理論計算を精緻に行なった結果、特定の温度範囲内に制御された PPSLT 結晶において

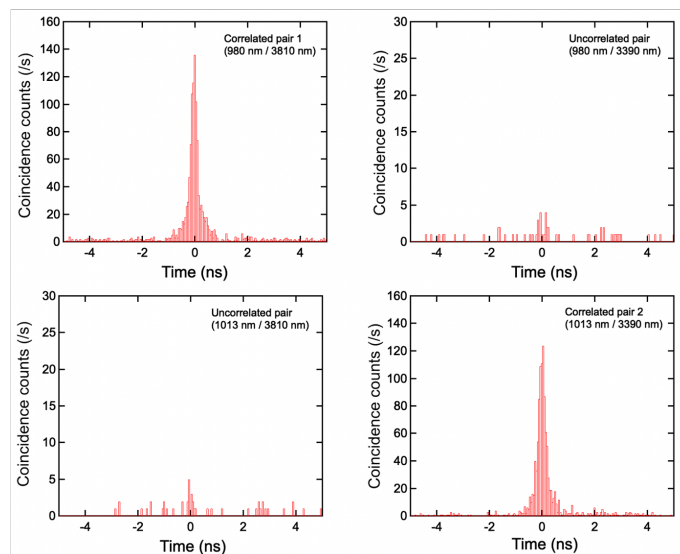


図 1: 同時 SPDC 光子対を構成する 4 光子それぞれの同時計測によるヒストグラム。SPDC 過程に由来する波長の組み合わせのみ、同時イベントが巨視的に発生していることが示された。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

のみ、Type-II の SPDC 過程の同時発生が可能であることを明らかにした。さらに、図 2 に示すように、HOM 干渉波形を測定することでこれらの光子対が周波数量子もつれ状態にあることを実験的に明らかにした。第 5 章では、本論文のまとめと将来の展望を述べている。

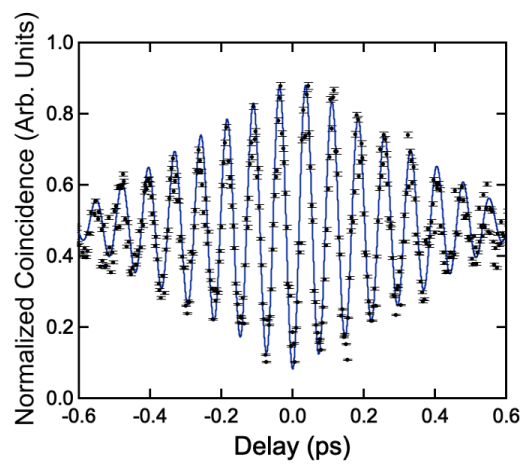


図 2: 公表論文 3 において測定した HOM 干渉波形。光子間の周波数差に応じたビート信号を示した。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

abstract

Quantum entangled states of light are the quantum states that are indistinguishable except for some optical degrees of freedom, and exhibit peculiar phenomena that cannot be described by the classical picture. Since the demonstration of the Bell-inequality violation[1] had been reported, a wide variety of quantum mechanical phenomena such as quantum teleportation[2], and Hong-Ou-Mandel (HOM) interference[3] have been recently demonstrated, which have been applied to quantum computation and quantum measurement. The development of quantum technology to control light at the photon number level has accompanied with the issues in the generation mechanism of quantum entangled photon pairs and detection techniques. While the photon-counting techniques such as avalanche photodiodes (APDs) has advanced, the ways to generate quantum states with high efficiency and high degrees of freedom has lagged behind. In addition, the bandwidth is limited to the telecom region, and there are technical limitations in techniques that can cover a wide bandwidth range up to the infrared region[4, 5, 6, 7, 8, 9].

A typical method to generate the entangled photon pairs is based on the spontaneous parametric down conversion (SPDC) process. The SPDC process is a nonlinear phenomenon in which a single photon coherently split into two correlated photons with degrees of freedom such as polarization, frequency, and wavenumber vector. The combination of the SPDC process and interferometry is an efficient technique for generating of entangled photon pairs. However, interferometry still has the problem of loss of quantum efficiency and entanglement purity due to its complex and unstable mechanism. However, there have been few reports focusing on the realization of simple and efficient generation in the frequency domain, even though it can be used for quantum teleportation, quantum communication, and quantum spectroscopy.

According to the aforementioned issues, this paper focuses on the generation mechanism of the SPDC process itself and investigates the simultaneous occurrence of nonlinear processes that enable the formation of entangled states using only the SPDC process. As a result, we realized a simple and versatile generation of entangled photon pairs by simultaneously generated SPDC processes. In Chapter 1, we describe the basic picture describing quantum entangled states and the purpose of this thesis. In Chapter 2, we introduce a discussion of the theoretical conditions for realizing the simultaneous occurrence of two or more SPDC processes from a single crystal. In this context, theoretical calculations and their empirical experiments show that two SPDC processes with different combinations of photon pair frequencies can be generated simultaneously in periodic poled lithium niobate (PPLN) and periodic poled lithium tantalate (PPLT) crystals. We also found that simultaneous SPDC photon pairs are useful as a broadband light source in the infrared region. In Chapter 3, we discuss the results of coincidence measurement between correlated photon pairs generated by the simultaneous processes described in Chapter 2. We also describe the details of the pulse oscillator source needed to perform this demonstration. As shown in Figure 1, we found that there was a correlation between two SPDC photon pairs that could occur simultaneously.

This has demonstrated that the simultaneous SPDC process satisfies the condition of statistically taking

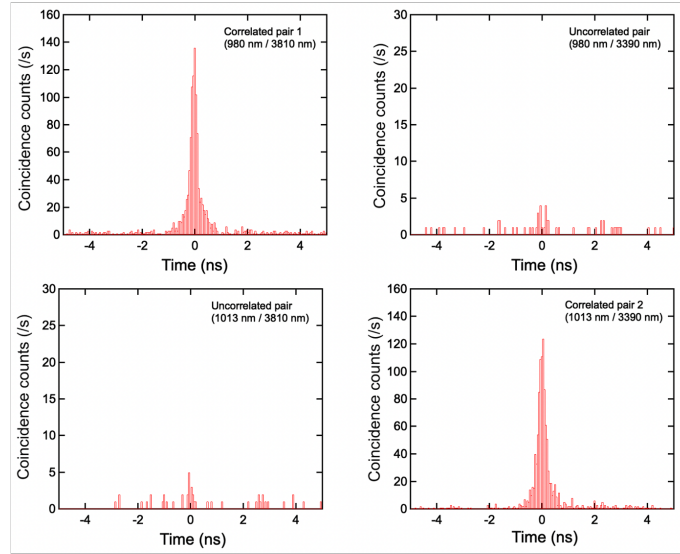


Figure 1: Coincidence histograms of correlated pairs, in which only the combination of the correlated SPDC pair showed the clear peak within a temporal window of 1 ns. Reproduced from [11]. Copyright©2023, Springer Nature Limited.

one of the photon pair states required for the formation of quantum entangled states. In Chapter 4, based on the results of Chapter 3, we describe the process of finding the conditions for the simultaneous SPDC generation correlated in terms of frequency and polarization degrees of freedom. Furthermore, we experimentally demonstrate that these photon pairs are in a quantum entangled state by measuring the HOM interferogram, as shown in Figure 2. In Chapter 5, we described the conclusion and future prospect.

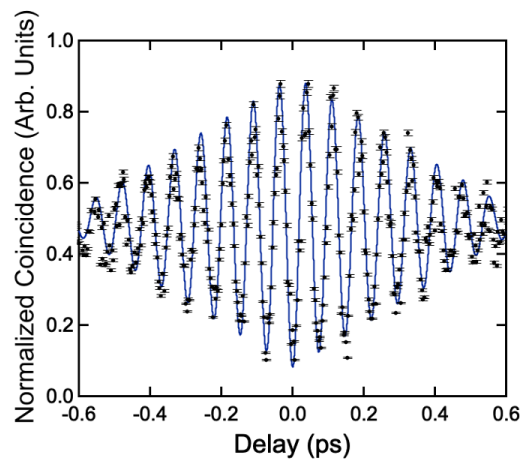


Figure 2: Measured Hong-Ou-Mandel (HOM) interferogram for the type-II s-SPDC frequency-entangled photon pairs in PPSLT. Reproduced from [12]. Copyright©by Optica.

第1章 序論

レーザー光源のような高強度な光の性質は波として理解されている。しかし、その強度が十分小さい領域では波ではなく粒子としての性質、すなわち量子力学的な描像での性質や現象を示す。光の量子力学的な性質や量子性に基づく現象は古典光学における実験的制約を排除する新たな光学技術としての可能性を示す重要分野である。特に、1964年のベル不等式の破れの証明 [1] を皮切りに、古典物理では説明のつかない量子テレポーテーション [2]、HOM 干渉 [3] などの量子現象が実証され、その利用が注目されてきた。一方で、これらの量子現象の解明に伴い、量子技術発展に向けた量子光源の開発、検出および評価手法も多く報告されてきた。その基礎をなす光学現象に非線形光学過程がある。非線形光学過程は量子光源の発生を簡便にし [4, 5, 6, 7]、検出可能な波長範囲を大きく広げた [8, 9]。また、通信や演算などの情報処理だけでなく赤外計測など物性を対象とする基礎技術の物理限界を克服する新規な手法として注目されてきた。近年では、物性測定分野において超短パルス光源を用いた時間分解分光の手法が抱える周波数分解能と時間分解能の古典限界の克服 [13]、ポンプ・プローブ 2 次元分光法において古典的には区別不可能であった複数の遷移過程の分離 [14, 15, 16] あるいは光子対どうしの干渉を用いた赤外光の直接検出を必要としない赤外分光 [17, 18, 19] など光の量子性を用いた多くの量子計測技術が報告されている。本章では序論として光の量子力学的描像を導入し、量子力学でのみ記述可能な性質と現象に焦点を当ててその定式化および評価方法を説明する。1.1 節において、マクスウェル方程式をもとに量子化された光の記述方法を概説する。また、量子化された光の特異な状態である量子もつれ状態を導入し、その記述方法を定義する。1.2 節において、量子光源発生の土台となる自発パラメトリックダウンコンバージョン過程について説明し、その発生条件と特性を明らかにする。さらに自発パラメトリックダウンコンバージョン過程を用いた量子もつれ状態にある光子対発生の先行事例を概説し、現状と課題を精査する。1.3 節において、光子が示す量子力学的現象の計測および評価手法を解説する。特に、量子力学でのみ記述される量子的干渉に言及し、それを用いた量子もつれ状態の評価手法の先行事例について述べる。1.4 節において、本論文が量子もつれ状態生成の手法に対して見出した課題およびそれを克服するために達成されるべき目的を述べる。

1.1 光の量子論

光の量子力学的性質を記述するためには、量子力学的描像を用いて光を量子化した「光子」としての理解が必要である。本節ではクーロンゲージ下でのマクスウェル方程式から出発し、量子力学的立場から光場の定式化を行う。

1.1.1 マクスウェル方程式

電荷密度および電流密度のない真空のマクスウェル方程式は次の連立方程式で表される [20]。

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0 \quad (1.1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (1.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (1.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (1.4)$$

ここで \mathbf{E} および \mathbf{B} は電場ベクトルおよび磁場ベクトルである。ベクトル解析の一般的な性質として、恒等式

$$\nabla \cdot (\nabla \times \mathbf{A}) = 0 \quad (1.5)$$

が成り立つ。このような \mathbf{A} をベクトルポテンシャルと呼び、

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (1.6)$$

のように定義する。式 (1.3) および式 (1.6) から、

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \quad (1.7)$$

である。 \mathbf{E} および \mathbf{B} が1つの新しいベクトルのみで書けることは、 \mathbf{A} に関する条件式を1つ課すことができることを表している。そこで、今後の計算の都合上、

$$\nabla \cdot \mathbf{A} = 0 \quad (1.8)$$

を課す。これはクーロンゲージ（電荷密度および電流密度のない場では放射ゲージ）と呼ばれる。マクスウェル方程式にベクトルポテンシャル \mathbf{A} を代入して整理すると、波動方程式

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \mathbf{A} = 0 \quad (1.9)$$

を満たすことがわかる。

力学変数としてのベクトルポテンシャル

次に、ベクトルポテンシャル \mathbf{A} を用いて電磁場のラグランジアン L を定義することができる。

$$L = \frac{\varepsilon_0}{2} \int d^3r \left[\left(\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}\right)^2 - c^2 (\nabla \times \mathbf{A})^2 \right] \quad (1.10)$$

ここで ε_0 は真空の誘電率である。ラグランジアン¹の正当性はオイラー・ラグランジュ方程式に代入することで確認することができる。すなわち

$$\frac{\partial L}{\partial \mathbf{A}} - \left(\frac{\partial}{\partial t}\right) \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{A}}} = 0 \quad (1.11)$$

を得るが、これを整理すると

$$-\varepsilon_0 c^2 (\nabla \times (\nabla \times \mathbf{A})) - \frac{\partial}{\partial t} \varepsilon_0 \left(\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}\right) = 0 \quad (1.12)$$

となり、これは式 (1.9) の波動方程式と一致する。そのため、ベクトルポテンシャル \mathbf{A} を用いて電磁場のラグランジアン L が記述可能である。また、 \mathbf{A} が位置 \mathbf{r} に対応するベクトル量であるとする、式 (1.10) および (1.11) から、 \mathbf{A} の共役な運動量

$$\frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{A}}} = \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = -\varepsilon_0 \mathbf{E} \quad (1.13)$$

が得られる。これらを踏まえて、ハミルトニアンを計算すると、

$$H = \frac{\varepsilon_0}{2} \int d^3r [E^2 + c^2 (\nabla \times \mathbf{A})^2] \quad (1.14)$$

が得られるが、これはよく知られた電磁波のハミルトニアン

$$H = \frac{\varepsilon_0}{2} \int d^3r [E^2 + c^2 B^2] \quad (1.15)$$

と一致しており、ベクトルポテンシャルを用いた議論の正当性を担保している。また、ハミルトニアン方程式に式 (1.14) を代入すると、マクスウェル方程式が再現されることに留意する。

ベクトルポテンシャルを用いた光の量子化

上述の議論が線形場理論の枠内にあることから、波動方程式 (1.9) のシングルモード（単色平面波）解は各モードごとに独立な変数分離形で記述可能である。すなわち

$$\begin{aligned} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) &= \alpha(t) \mathbf{f}(\mathbf{r}) + \mathbf{c} \cdot \mathbf{c} \\ &= \alpha(0) e^{-i\omega t} \mathbf{f}(\mathbf{r}) + \mathbf{c} \cdot \mathbf{c} \end{aligned} \quad (1.16)$$

のように書くことが出来る。ここで $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ は場の空間的な依存性を表すモード関数と呼ばれ、

$$\int d^3r |\mathbf{f}(\mathbf{r})|^2 = 1 \quad (1.17)$$

を満たす。波動方程式 (1.9) から $\mathbf{f}(\mathbf{r})$ についてヘルムホルツ方程式

$$(\nabla^2 + k^2) \mathbf{f}(\mathbf{r}) = \mathbf{0} \quad (1.18)$$

を得る。ただし、 $k = \omega/c$ を用いた。

シングルモードの場合にはハミルトニアンを簡略化することが可能である。ハミルトニアンの第2項を整理すると、

$$\begin{aligned} \int d^3r [(\nabla \times \mathbf{A})^2] &= \int d^3r \mathbf{A} \cdot [\nabla \times (\nabla \times \mathbf{A})] \\ &= - \int d^3r \mathbf{A} \cdot (\nabla^2 \mathbf{A}) \\ &= k^2 \int d^3r A^2 \end{aligned} \quad (1.19)$$

を得る。ただし、 \mathbf{A} がヘルムホルツ方程式を満たすこと、および積分中の表面積分項が0になることを用いた。式 (1.19) を式 (1.14) に代入すると

$$\begin{aligned} H &= \frac{\varepsilon_0}{2} \int d^3r [E^2 + c^2 k^2 A^2] \\ &= \int d^3r \left[\frac{D^2}{2\varepsilon_0} + \frac{1}{2} \varepsilon_0 \omega^2 A^2 \right] \end{aligned} \quad (1.20)$$

となる。式 (1.20) は周波数 ω 、質量 ε_0 の調和振動子のハミルトニアンと同型である。以下では、調和振動子における量子化の描像を適用することで電磁場の量子化を行う。

調和振動子を用いた量子化

式 (1.20) から、 \mathbf{A} および $-\varepsilon_0 \mathbf{E}$ を擬似的に調和振動子における位置および運動量と見なすことが出来る。これ以降簡単のため、 x 軸の 1 成分にのみ注目して計算する。ただし、3 次元に拡張する場合でも議論の一般性は失われないことに留意する。ここで、

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = -i\omega\varepsilon_0\alpha(t)\mathbf{f}(\mathbf{r}) + \mathbf{c.c} \quad (1.21)$$

であるから、

$$p_x = -\omega\varepsilon_0[\alpha(t) + \mathbf{c.c}] \quad (1.22)$$

$$x = -[i\alpha(t) + \mathbf{c.c}] \quad (1.23)$$

と置くことが出来る。これをハミルトニアン (1.20) に代入すると

$$\hat{H} = \frac{\hat{p}_x^2}{2\varepsilon_0} + \frac{1}{2}\varepsilon_0\omega^2\hat{x}^2 \quad (1.24)$$

となる。ただし、これ以降明示的に演算子としての役割を表すため、 x を \hat{x} などと表示する。それぞれ運動量演算子および位置演算子を表す \hat{p}_x および \hat{x} は、

$$\hat{p}_x = -i\hbar\frac{\partial}{\partial x} \quad (1.25)$$

$$\hat{x} = x \quad (1.26)$$

を満たす。正準交換関係

$$[\hat{x}, \hat{p}_x] = i\hbar \quad (1.27)$$

に注意して、次のようなエルミート共役演算子 \hat{a} および \hat{a}^\dagger を定義する。

$$\hat{a} = \frac{1}{(2\varepsilon_0\hbar\omega)^{1/2}}(\varepsilon_0\omega\hat{x} + i\hat{p}_x) \quad (1.28)$$

$$\hat{a}^\dagger = \frac{1}{(2\varepsilon_0\hbar\omega)^{1/2}}(\varepsilon_0\omega\hat{x} - i\hat{p}_x) \quad (1.29)$$

演算子 \hat{a} と \hat{a}^\dagger は次の交換関係を満たす。

$$[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1 \quad (1.30)$$

これを用いて \hat{x} と \hat{p}_x を書き直すと、

$$\hat{x} = \left(\frac{\hbar}{2\varepsilon_0\omega}\right)^{1/2}(\hat{a} + i\hat{a}^\dagger) \quad (1.31)$$

$$\hat{p}_x = -i\left(\frac{\varepsilon_0\hbar\omega}{2}\right)^{1/2}(\hat{a} - i\hat{a}^\dagger) \quad (1.32)$$

である。式 (1.23) および式 (1.23) と式 (1.31) および式 (1.32) の対応関係から

$$\alpha(t) = i\left(\frac{\hbar}{2\omega\varepsilon_0}\right)^{1/2}\hat{a}(t) \quad (1.33)$$

である。これを各場に代入すると、

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = i \left(\frac{\hbar}{2\omega\epsilon_0} \right)^{1/2} \mathbf{f}(\mathbf{r})\hat{a}(t) + H.c \quad (1.34)$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = - \left(\frac{\hbar\omega}{2\omega\epsilon_0} \right)^{1/2} \mathbf{f}(\mathbf{r})\hat{a}(t) + H.c \quad (1.35)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = i \left(\frac{\hbar}{2\omega\epsilon_0} \right)^{1/2} \mathbf{f}(\mathbf{r})\hat{a}(t) + H.c \quad (1.36)$$

を得る。また、式 (1.31) および式 (1.32) をハミルトニアン の式 (1.24) に代入すると、

$$\hat{H} = \hbar\omega \left(\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2} \right) \quad (1.37)$$

を得る。このハミルトニアンを用いて固有ケット $|\varphi_n\rangle$ および固有エネルギー E_n に対するシュレディンガー方程式

$$\hat{H}|\varphi_n\rangle = E_n|\varphi_n\rangle \quad (1.38)$$

を解くことを考える。式 (1.25) および式 (1.26) を代入し、固有ケット $|\varphi_n\rangle$ を x の関数 $\varphi_n(x)$ として解くと、離散的なエネルギー準位

$$E_n = \left(n + \frac{1}{2} \right) \hbar\omega \quad (1.39)$$

が得られる。 n は場の量子数である。このことから、電磁場は単位エネルギー $\hbar\omega$ を持つ量子として記述することができる。量子化された光電場を光子と呼び、 ω は光子の角周波数に対応する。よって式 (1.38) と (1.39) から演算子 $\hat{a}^\dagger \hat{a}$ は固有値 n を持つ $|\varphi_n\rangle$ の固有演算子であることが分かる。

また、上述の議論はマルチモードの場合に一般化することが出来る。すなわち、

$$\hat{H} = \sum_{\mathbf{k}, p} \hbar\omega_{\mathbf{k}} \left(\hat{a}_{\mathbf{k}, p}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}, p} + \frac{1}{2} \right) \quad (1.40)$$

と拡張することが出来る。ここで $\omega_{\mathbf{k}} = ck$ であり、 p は偏光の自由度を表す。以下の議論では簡単のためシングルモードでの表記に従うが、マルチモードへの拡張が同様に可能であることに留意する。

昇降演算子

次に、演算子 \hat{a} および \hat{a}^\dagger の物理的意義について考える。式 (1.30) の交換関係を用いて $\hat{H}\hat{a}|\varphi_n\rangle$ を計算すると以下ようになる。

$$\hat{H}\hat{a}|\varphi_n\rangle = (E_n - \hbar\omega)\hat{a}|\varphi_n\rangle \quad (1.41)$$

このことから状態 $\hat{a}|\varphi_n\rangle$ は \hat{H} の固有状態で固有値 $(E_n - \hbar\omega)$ を持つ。 \hat{H} の固有状態 $|\varphi_n\rangle$ が固有値 E_n であったことから、演算子 \hat{a} は固有状態 $|\varphi_n\rangle$ の量子数を 1 つ下げる役割を果たしている。つまり、 $\hat{a}|\varphi_n\rangle \propto |\varphi_{n-1}\rangle$ である。 \hat{a}^\dagger についても同様の計算ができて、

$$\hat{H}\hat{a}^\dagger|\varphi_n\rangle = (E_n + \hbar\omega)\hat{a}^\dagger|\varphi_n\rangle \quad (1.42)$$

なので、演算子 \hat{a}^\dagger は固有状態 $|\varphi_n\rangle$ の量子数を上げる役割を果たしている。これらは昇降演算子と呼ばれ、調和振動子におけるエネルギー準位を上下させる演算子であることが分かる。

この計算を繰り返して $|\varphi_n\rangle$ を基底状態 $|\varphi_0\rangle$ まで量子数を下げた場合、固有エネルギーが常に非負であることに注意すると、

$$\hat{a}|\varphi_0\rangle = 0 \quad (1.43)$$

が必要である。式 (1.43) に式 (1.25) と式 (1.28) をそれぞれ代入して微分方程式を解くと、

$$|\varphi_0\rangle = \left(\frac{\varepsilon_0\omega}{\hbar\pi}\right)^{1/4} e^{-\frac{\varepsilon_0\omega x^2}{2\hbar}} \quad (1.44)$$

を得る。また、

$$\hat{H}|\varphi_0\rangle = \hbar\omega \left(\hat{a}^\dagger\hat{a} + \frac{1}{2}\right)|\varphi_0\rangle = \frac{1}{2}\hbar\omega|\varphi_0\rangle \quad (1.45)$$

なので、

$$E_0 = \frac{1}{2}\hbar\omega \quad (1.46)$$

を得る。さらに、 \hat{a}^\dagger を用いて量子数を上げることにより、

$$|\varphi_n\rangle = C_n(\hat{a}^\dagger)^n|\varphi_0\rangle \quad (1.47)$$

を得る。 C_n は規格化定数である。

光子数状態とコヒーレント状態

ここからは光子に焦点を当て、 x の関数ではなく量子状態としてのみの記述に限定する。量子状態を $|\varphi_n\rangle \equiv |n\rangle$ と簡略化し、光子数状態と呼ぶことにする。これはエネルギー $\hbar\omega$ の光子 n 個から構成される状態と見なすことができる。また、演算子 $\hat{n} = \hat{a}^\dagger\hat{a}$ を個数演算子と呼ぶ。各固有状態が規格直交化されていることを要求すると、クロネッカーのデルタ δ_{nm} を用いて

$$\langle m|n\rangle = \delta_{nm} \quad (1.48)$$

となることに注意する。 $\hat{n}|n\rangle = \hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle = n|n\rangle$ および \hat{a} (\hat{a}^\dagger) が量子数を 1 つ下げる (上げる) ことから

$$\hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle \quad (1.49)$$

および

$$\hat{a}^\dagger|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle \quad (1.50)$$

となる。このように、光子の記述における昇降演算子は光子を 1 つ生成または消滅させる役割に対応していることから特に生成消滅演算子とも呼ばれる。基底状態 $|0\rangle$ は光子数が 0 なので真空場に対応する。

次に、古典的な単色レーザー光源などのコヒーレント光源に対応するコヒーレント状態を考える。コヒーレント状態 $|\alpha\rangle$ は光子数状態を用いて次のように定義される。

$$|\alpha\rangle = e^{-|\alpha|^2/2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} |n\rangle \quad (1.51)$$

$|\alpha\rangle$ は個数演算子の固有状態ではないが、消滅演算子の固有状態であるという特徴を持つ。これは

$$\begin{aligned} \hat{a}|\alpha\rangle &= e^{-|\alpha|^2/2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} \hat{a}|n\rangle \\ &= \alpha e^{-|\alpha|^2/2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^{n-1}}{((n-1)!)^{1/2}} \hat{a}|n-1\rangle \\ &= \alpha|\alpha\rangle \end{aligned} \quad (1.52)$$

から明らかである。さらに式 (1.52) から $\langle \alpha | \hat{n} | \alpha \rangle = |\alpha|^2$ と計算され、これはコヒーレント状態における平均光子数に対応する。また、コヒーレント状態に n 個の光子数を見出す確率 $|\langle n | \alpha \rangle|^2$ を計算すると、

$$|\langle n | \alpha \rangle|^2 = e^{-|\alpha|^2} \frac{|\alpha|^{2n}}{(n!)} \quad (1.53)$$

となり、古典論においてコヒーレント光源の光子統計がポアソン分布関数に従うという性質と一致している。

1.1.2 量子もつれ光子対

前節において、昇降演算子を用いて調和振動子下でのシュレディンガー方程式を記述することにより、光子としての量子力学的描像を記述した。ここでは偏光や周波数など、光子の自由度に基づいた量子状態の記述方法について考える。ある自由度において、片方の自由度がもう片方の自由度に影響するような量子状態にある 2 つの光子を相関光子対と呼ぶ。光子対間の量子力学的特性の 1 つである量子相関状態は量子テレポーテーション [2] や量子コンピューティング [21] などの量子情報技術あるいは量子光干渉断層計 (Quantum optical coherence tomography: QOCT) [22, 23] や量子赤外吸収分光 (Quantum infrared spectroscopy: QIS) [17] などの量子センシング技術の基礎をなす重要な光子対の状態である。本節ではその中でも古典的に記述できない特異な相関状態である量子もつれ状態について解説する。

光子の量子状態

周波数 ω_1 の光子が直線偏光 X を持ちながら飛来している状態を $|X, \omega_1\rangle$ と書くことにする。波長板などの偏光素子を用いて斜め 45 度偏光 (Diagonal: D) に回転させた光子 $|D, \omega_1\rangle$ を観測する場合を考える。光子 $|D, \omega_1\rangle$ を縦偏光 (Vertical: V) あるいは横偏光 (Horizontal: H) に射影し、特定偏光成分のみを抽出した場合、V 偏光あるいは H 偏光として観測される確率はそれぞれ 0.5 である。量子論では状態を観測して確定させない限り、規格直交化された量子状態の重ね合わせで構成されるので、

$$|D, \omega_1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|H, \omega_1\rangle + |V, \omega_1\rangle) \quad (1.54)$$

と書くことができる。このとき、係数は確率密度に対応する。このように、単一光子の量子状態は規格直交化された量子状態の重ね合わせで書かれる。

量子もつれ光子対

次に、周波数 ω_1 で偏光 H の光子と周波数 ω_2 で偏光 V の光子 2 つが同時に存在している場合を考える。このとき 2 光子の量子状態 $|\varphi\rangle$ を各量子状態の直積

$$|\varphi\rangle = |H, \omega_1\rangle \otimes |V, \omega_2\rangle \equiv |H, \omega_1\rangle |V, \omega_2\rangle \quad (1.55)$$

で書くことにする。また、3 光子以上の量子状態についても同様に直積を用いて記述する。上述の 2 光子の量子状態を記述する際、独立した 2 光子ではそれぞれの重ね合わせ状態の直積によって記述される。偏光に関して光子 1 が次のような量子状態を形成しているとする。

$$|\varphi_1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|H\rangle + |V\rangle) \quad (1.56)$$

以下では、波長変換などの操作がない限り周波数 ω は不変であり、偏光自由度のみに焦点を当てた議論なので簡易的に $|H, \omega_1\rangle \equiv |H\rangle$ と書くことにする。式 (1.56) は光子 1 が等確率で偏光 H と偏光 V のいずれかの偏光状態にある量子状態である。同様に光子 2 も

$$|\varphi_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle + |V\rangle) \quad (1.57)$$

のように等確率で H と V の偏光が決まるとする。この光子対の量子状態 $|\varphi_{12}\rangle$ は次のように式 (1.56) と式 (1.57) の直積で書ける。

$$\begin{aligned} |\varphi_{12}\rangle &= \frac{1}{2}(|H\rangle + |V\rangle)(|H\rangle + |V\rangle) \\ &= \frac{1}{2}|H\rangle|H\rangle + \frac{1}{2}|H\rangle|V\rangle + \frac{1}{2}|V\rangle|H\rangle + \frac{1}{2}|V\rangle|V\rangle \\ &= \frac{1}{2}|H, H\rangle + \frac{1}{2}|H, V\rangle + \frac{1}{2}|V, H\rangle + \frac{1}{2}|V, V\rangle \end{aligned} \quad (1.58)$$

簡単のため $|H\rangle|H\rangle \equiv |H, H\rangle$ などと書く。式 (1.58) において $|H, H\rangle$ は光子 1 および 2 がそれぞれ横偏光にある状態である。ただし簡単のため規格化定数と周波数 ω_1 および ω_2 は省略した。式 (1.58) から光子対の状態は光子それぞれの状態に対応して独立に決まるため相関がない状態と言える。一方で、特殊な光学操作や特殊な光子対生成方法を用いると式 (1.58) のうち一部の状態のみで記述される量子状態を形成することもできる。

$$|\varphi_{12}\rangle_E = \frac{1}{\sqrt{2}}|H, V\rangle + |V, H\rangle \quad (1.59)$$

式 (1.59) は式 (1.58) の第 2 項と第 3 項のみから構成される量子状態である。ここで特筆すべき点として、光子 1 と 2 はそれぞれ H と V のいずれかの状態を確率的にとることには変わらないが、片方の光子がある偏光にあるともう片方は必ず逆の偏光状態にある。このように光子対全体ではどちらがどの状態を持つかは実際に観測するまでわからないが、ある光子の状態が決まるともう片方の状態が自動的に決まる状態を量子もつれ状態と呼ぶ。量子もつれ状態にある光子対を量子もつれ光子対と呼ぶ。上述の独立光子対全体の状態はそれぞれの光子の量子状態の積で表現されていたのに対し、1 光子の状態の積に因数分解できないような状態を量子もつれ状態と解釈することができる。 $|\varphi_{12}\rangle_E$ は偏光を自由度として用いているので偏光もつれ光子対と呼ばれる。周波数などの他の自由度を用いたもつれ状態形成も同様に可能であり、周波数もつれ状態の場合は

$$|\varphi_{12}\rangle_E = |\omega_1, \omega_2\rangle + |\omega_2, \omega_1\rangle \quad (1.60)$$

と書かれる。ただし、表記として偏光を省略した。

密度行列

光子対の量子状態を明示的に記述する方法として密度行列表示と呼ばれる表示方法を用いる。密度行列はヒルベルト空間における状態ベクトル $|\varphi\rangle$ の外積を計算した行列のことで、 $|\varphi\rangle$ が純粋状態の場合

$$\rho \equiv |\varphi\rangle\langle\varphi| \quad (1.61)$$

と定義される。これを展開すると、正規直交系をなす状態の外積全ての組み合わせの和が得られる。これはある状態に作用させて別の状態と内積をとることでその状態間の関係を定量的に取り出すこ

とができる。その量を行列状に並べたものを密度行列表示と呼ぶ。対角成分は状態の占有確率を、非対角成分は状態間のコヒーレンス（もつれの純度）を表現することができる。このとき、行列のサイズはもつれ状態などの実際の状態を記述するために必要な規格化された状態の数に対応する。偏光を基底として2つの光子からなる光子対の状態を計算する場合、基底状態は $|H, H\rangle$ 、 $|H, V\rangle$ 、 $|V, H\rangle$ および $|V, V\rangle$ の4つである。例として、古典的な相関状態および式 (1.59) で表される量子もつれ状態を密度行列表示した場合を考える。古典的な相関状態は光子対がいくつかの状態をある確率で占有することを意味する。例えば $1/2(|H, V\rangle\langle H, V| + |V, H\rangle\langle V, H|)$ のような行列要素で表される状態を仮定すると、

$$\rho_{classical} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.5 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0.5 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.62)$$

$\rho_{classical}$ は光子対が $|H, V\rangle$ と $|V, H\rangle$ のいずれかである古典的な相関状態を表している。古典的な相関光子対は状態間にもつれ状態などの量子コヒーレンスがないため、対角成分のみを持つ行列要素を持つ。

次に、量子もつれ状態 (1.59) の外積

$$|\varphi_{12}\rangle_E \langle \varphi_{12}|_E = \frac{1}{2}(|H, V\rangle + |V, H\rangle)(\langle H, V| + \langle V, H|) \quad (1.63)$$

を展開すると、密度行列 $\rho_{entangled}$ は

$$\rho_{entangled} = \frac{1}{2}(|H, V\rangle\langle H, V| + |V, H\rangle\langle H, V| + |H, V\rangle\langle V, H| + |V, H\rangle\langle V, H|) \quad (1.64)$$

となる。これを行列で書くと次のような正方行列を得る。

$$\rho_{entangled} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.5 & 0.5 & 0 \\ 0 & 0.5 & 0.5 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.65)$$

ここで、対角要素は $\rho_{classical}$ と同様それぞれ状態を占有する確率を表しており、確率的に $|H, V\rangle$ と $|V, H\rangle$ のいずれかの状態をとることに対応している。一方で、非対角要素は古典的には説明できない要素であり、もつれ状態の純度と相対的な位相差に対応している。非対角要素を表す物理量の詳細は 1.3 節のもつれ状態の評価を述べる際に記述する。

1.2 量子もつれ光子対の発生

前章において、量子もつれ光子対による古典的には説明のつかない現象が新たな量子技術の基礎をなすことについては既に述べた。量子通信技術および量子計測技術を実装するには簡便かつ高性能な量子もつれ光子対発生が不可欠である。そのため、量子もつれ光子対発生の新規手法の開拓は近年最も注目されてきた研究分野の1つである。上述のように、2つの独立した光子を重ね合わせて得られる量子状態は量子もつれ状態になりえない。また、光子がポアソン分布に従うという統計性の観点からも、独立した2つの光源の光子同士を効率よく時空間で重ね合わせる事が困難である。

ある光子から2つ以上の光子を同時に生成する非線形光学過程は光子相関をもった2光子の対生成に非常に適している。先行研究においても、1光子が2光子に分裂する自発パラメトリックダウンコンバージョン (SPDC) 過程 [24, 25, 26, 27] や2光子が周波数や波数ベクトルの異なる2光子に変換される4光波混合 (FWM) 過程 [28, 29, 30, 31] など、非線形光学過程を用いた量子もつれ光子対の発生に関する報告が多く存在する。我々もこの非線形光学過程による発生に注目し、特に3次の非線形過程である FMW と比較して簡便かつ汎用的で高輝度な2次の非線形過程である SPDC 過程に焦点を当てる。本節では2次の非線形光学の基本概念を概説し、非線形光学現象に用いることのできる結晶について言及する。さらに、SPDC 過程の基礎方程式の導出を行い、発生手法の先行事例を概説しながら現状と課題について精査する。

1.2.1 2次の非線形光学過程

光と物質の相互作用による光学現象は入射光の強度に依存して大きく異なる。通常の光電場では物質を構成する原子内の電子は線形応答を示すのに対し、高強度なレーザー光源などの光電場で駆動される分極は線形の領域から外れた挙動を示す。この現象は「非線形光学応答」として知られ、駆動される非線形分極が線形分極よりも十分小さい摂動の範囲では入力電場 E に対して誘導される非線形分極 $P_{nonlinear}$ を次のように書くことで理解されている [32]。

$$P_{nonlinear} = \varepsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E_1E_2 + \dots) \quad (1.66)$$

ここで $\chi^{(n)}$ は n 次の摂動係数で非線形感受率と呼ばれる。このように誘起された分極が再び新しい電磁波を放出するため、もとの周波数とは異なる（線形でない）電場成分が形成される。

非線形光学過程発生が可能な物質（結晶）を非線形光学結晶と呼ぶ。結晶構造に依存した結晶方位や対称性があることおよび電場の偏光方向に自由度があることを考慮すると、式 (1.66) の $\chi^{(2)}$ をテンソル量として2次の項 $P_i^{(2)}$ は

$$P_i^{(2)} = \varepsilon_0 \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_{1,j} E_{2,k} \quad (1.67)$$

のように表記されるべきである。ここで i, j, k は3次元方向の自由度を表す。 $\chi_{ijk}^{(2)}$ は入力電場の偏光に対する非線形分極の駆動されやすさを表す量で非線形感受率テンソルと呼ぶ。 $\chi_{ijk}^{(2)}$ は27成分を持つテンソルであるが、入力電場の順番に区別がないことから明らかに $\chi_{ijk}^{(2)} E_{1,j} E_{2,k} = \chi_{ikj}^{(2)} E_{1,j} E_{2,k}$ なので、18成分にまで限定される。これは2次元の行列形式で書くことでテンソル成分と対応する電場成分を明示的に表示可能なので便利である。

$$\begin{pmatrix} P_x^{(2)} \\ P_y^{(2)} \\ P_z^{(2)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{xxx} & d_{xyy} & d_{xzz} & d_{xyz} & d_{xxz} & d_{xxy} \\ d_{yxx} & d_{yyy} & d_{yzz} & d_{yyz} & d_{yxz} & d_{yyx} \\ d_{zxx} & d_{zyy} & d_{zzz} & d_{zyz} & d_{zxx} & d_{zxy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{1,x}E_{2,x} \\ E_{1,y}E_{2,y} \\ E_{1,z}E_{2,z} \\ 2E_{1,y}E_{2,z} \\ 2E_{1,z}E_{2,x} \\ 2E_{1,x}E_{2,y} \end{pmatrix} \quad (1.68)$$

式 (1.68) において $d_{ijk} = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}$ を非線形光学定数と呼ぶ。非線形光学結晶は d_{ijk} の少なくとも1つの成分が0でない値を持つような結晶である。

2次の非線形光学過程に最も汎用的に用いられている結晶はニオブ酸リチウム (LiNbO₃: LN) 結晶である。LN 結晶は上述の非線形光学定数が他の結晶に比べて大きいかつ可視域や赤外域 (0.28-5.5 μm) において透明である点で有用である。LN 結晶は点群 3m に属しているため、対称性から非線形光学定数のいくつかの成分は 0 となる [32]。また、0 でない成分においても同じ値を持つあるいは符号が反転しているなどの対称性を有する。

$$d = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{xxz} & d_{xxy} \\ d_{yxx} & d_{yyy} & 0 & d_{yyz} & 0 & 0 \\ d_{zxx} & d_{zyy} & d_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.69)$$

d は LN 結晶の非線形光学定数テンソルである。点群 3m の対称性から $d_{yxx} = -d_{yyy} = d_{xxy}$ 、 $d_{zxx} = d_{zyy}$ 、 $d_{yyz} = d_{xxz}$ である。入射面において LN 結晶の光学軸に対して平行な方向を z 、それと垂直な方向を y 、波数ベクトルの方向を x としている。また光学軸と並行な偏光を持つ光を異常光 (extra-ordinary ray)、それと垂直な偏光を持つ光を常光 (ordinary ray) と呼ぶ。

1.2.2 自発パラメトリック下方変換過程

1961 年、W. Louisell らは [33] においてカドミウムヘリウムレーザーをリン酸二水素アンモニウムに照射して分裂した光子対を観測し、分裂光子対の存在を実験的に実証したことを報告した。1 光子が非線形光学結晶内でエネルギーと波数ベクトルを保存しながら自発的に 2 光子に分裂する過程を自発パラメトリックダウンコンバージョン (SPDC) 過程と呼ぶ。また、SPDC 過程で発生した光子対を SPDC 光子対と呼ぶ。SPDC 光子対のうち高エネルギー側をシグナル光、低エネルギー側をアイドラー光と呼ぶ。SPDC 過程では必ず 2 光子がペアを形成しているため、それぞれの光子対において周波数や偏光などの光学自由度に関する相関を見出すことができる。これは SPDC 光子対が量子もつれ状態を形成する光子対源となりうる重要な事実であり、この特性を生かした量子光源としての振る舞いを実証する実験が多く行われてきた。

SPDC 過程の量子描像

ここでは、非線形光学結晶内で 3 つの光子が相互作用する場合を考えることで SPDC 過程の発生を示す方程式を導出する [32]。エネルギー保存則

$$\omega_1 = \omega_2 + \omega_3 \quad (1.70)$$

を満たすような 3 つの光子の生成消滅演算子をそれぞれ \hat{a}_1^\dagger 、 \hat{a}_2^\dagger 、 \hat{a}_3^\dagger 、および \hat{a}_1 、 \hat{a}_2 、 \hat{a}_3 とする。光子それぞれのエネルギーと相互作用を表すハミルトニアンは

$$\hat{H} = \sum_{i=2,3} \hbar\omega_i (\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i + \frac{1}{2}) + 2s\hbar \cos \omega_1 t (\hat{a}_2^\dagger - \hat{a}_2)(\hat{a}_3^\dagger - \hat{a}_3) \quad (1.71)$$

$$s = \frac{dB_1 \sqrt{\omega_2 \omega_3}}{6\sqrt{\varepsilon_2 \varepsilon_3}} \int_V E_1(\mathbf{r}) E_2(\mathbf{r}) E_3(\mathbf{r}) dv \quad (1.72)$$

で与えられる。ここで、 $s[|s|]$ は入力光の強度に比例する相互作用強度を表す量である。また、 $d[m/V]$ は非線形光学定数、 E_i は各電場の振動成分、 $B_1[V/m]$ は電場の振幅成分である。このハミルトニア

ンに対してハイゼンベルグの運動方程式を考えることで演算子の時間発展を得る。すなわち

$$\frac{d\hat{a}_2^\dagger}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{a}_2^\dagger, \hat{H}] \quad (1.73)$$

$$\frac{d\hat{a}_3}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{a}_3, \hat{H}] \quad (1.74)$$

を計算することにより、以下の時間発展方程式

$$\frac{d\hat{a}_2^\dagger}{dt} = i\omega_2\hat{a}_2^\dagger + is\hat{a}_3e^{i\omega_1t} \quad (1.75)$$

$$\frac{d\hat{a}_3}{dt} = -i\omega_3\hat{a}_3 - is\hat{a}_2^\dagger e^{-i\omega_1t} \quad (1.76)$$

が得られる。ここで、生成消滅演算子は交換関係

$$[\hat{a}_l^\dagger, \hat{a}_m] = \delta_{lm} \quad (1.77)$$

$$[\hat{a}_l^\dagger, \hat{a}_m^\dagger] = [\hat{a}_l, \hat{a}_m] = 0 \quad (1.78)$$

を満たすものとし、式 (1.70) を満たさない項（周波数が $\omega_1 + \omega_2$ で振動する項など）は無視した。これを解いて

$$\hat{a}_2^\dagger(t) = [\hat{a}_2^\dagger(0) \cosh st + i\hat{a}_3(0) \sinh st]e^{i\omega_2t} \quad (1.79)$$

$$\hat{a}_3(t) = [\hat{a}_3(0) \cosh st - i\hat{a}_2^\dagger(0) \sinh st]e^{-i\omega_3t} \quad (1.80)$$

が導かれる。光子数は数演算子 $\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i$ の期待値で与えられる。 $i = 2$ の場合、

$$\begin{aligned} \hat{a}_2^\dagger(t)\hat{a}_2(t) &= \hat{a}_2^\dagger(0)\hat{a}_2(0) \cosh^2 st + [1 + \hat{a}_3^\dagger(0)\hat{a}_3(0)] \sinh^2 st \\ &\quad - \frac{i}{2} \sinh(2st)[\hat{a}_2^\dagger(0)\hat{a}_3^\dagger(0) - \hat{a}_2(0)\hat{a}_3(0)] \end{aligned} \quad (1.81)$$

と計算される。時刻0における状態を $|n_{20}, n_{30}\rangle$ とし、状態の規格直交性 $\langle m|n\rangle = \delta_{mn}$ に注意して期待値を計算すると

$$\langle n_2(t) \rangle = n_{20} \cosh^2 st + (1 + n_{30}) \sinh^2 st \quad (1.82)$$

$$\langle n_3(t) \rangle = n_{30} \cosh^2 st + (1 + n_{20}) \sinh^2 st \quad (1.83)$$

を得る。これらの式は、入力光が E_1 のみの場合、すなわち $n_{20} = n_{30} = 0$ の場合であっても2および3の光が生じることを意味する。すなわち3光子が相互作用する過程において入力光子（ポンプ光）が自発的に2光子（シグナル光・アイドラー光）に分裂する過程が存在することが導かれる。

位相整合条件

非線形光学過程は光子間のエネルギー保存則に加えて波数ベクトル保存則も満たす必要がある。これを位相整合条件と呼ぶ。位相整合条件は非線形光学結晶において光子同士が相互作用しながら結晶を伝搬する際、相対的な位相関係を保つ必要性を意味しており、これを満たす光子の組み合わせのみが高効率に発生する。SPDC過程において位相整合条件は結晶周期による補償を含めて次のように表される。

$$\vec{k}_1 = \vec{k}_2 + \vec{k}_3 + \vec{G}_\Lambda \quad (1.84)$$

ここで、 $|\vec{k}_i| = 2\pi n(\lambda_i, T) / \lambda_i$ はポンプ光 ($i = 1$)、アイドラー光 ($i = 2$)、シグナル光 ($i = 3$) の波数ベクトルである。 $n(\lambda_i, T)$ は温度と波長に依存した結晶の屈折率である。

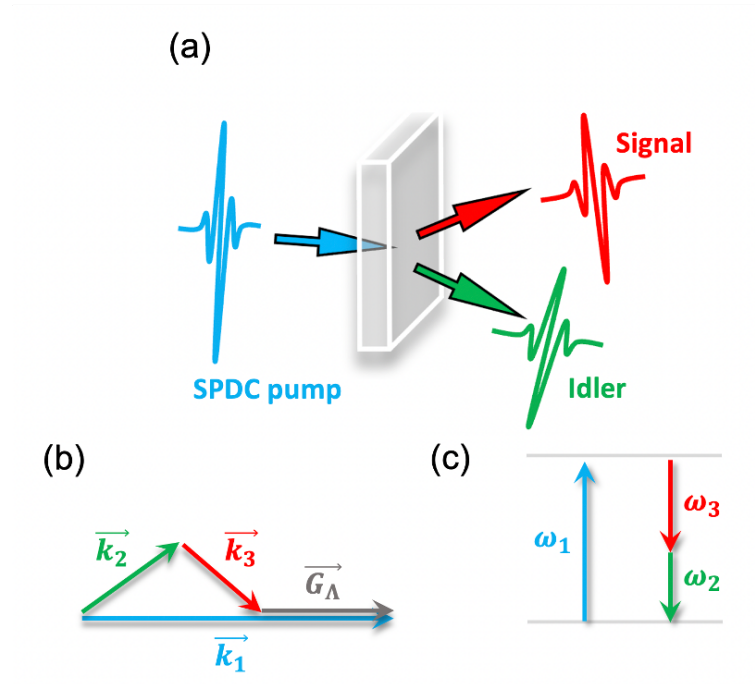


図 1.1: (a) SPDC 過程における擬位相整合の概念図。(b) 光子間の波数ベクトル保存則。結晶周期を反映した逆格子ベクトルが取り込まれる。(c) 光子間のエネルギー保存則。

図 1.1(a) から (c) は分極周期 Λ の周期構造を有する結晶における SPDC 過程の様子および位相整合条件において満たされるべき波数ベクトルとエネルギーのダイアグラムを表している。SPDC 過程の特徴の 1 つとして、1 光子が自発的に 2 光子に分裂することから位相整合する波長や波数の組み合わせ全てが確率的に生成されることが挙げられる。つまり、非線形光学結晶に高強度なレーザー光を入射した場合、レーザー光と同じ方向（同軸方向）だけでなく異なる放射方向（非同軸方向）も含めて位相整合する SPDC 光子対すべてが同時に発生する。この性質を利用して SPDC 光子対を広帯域光源としてあるいは量子相関光子対源として利用するなど、多くの光源技術の基礎となっている。

非線形光学結晶に複屈折が存在することから、偏光の各組み合わせに応じて位相整合条件が異なるためこれらを区別する必要がある。ポンプ光、シグナル光、アイドラー光の偏光が同じ場合、すなわち

$$e \rightarrow e + e, o \rightarrow o + o$$

を Type-0 の位相整合と呼ぶ。シグナル光、アイドラー光のみが同じ偏光を持つ場合、すなわち

$$e \rightarrow o + o, o \rightarrow e + e$$

を Type-I の位相整合と呼ぶ。シグナル光、アイドラー光が異なる偏光を持つ場合、すなわち

$$e \rightarrow o + e, o \rightarrow o + e$$

を Type-II の位相整合と呼ぶ。

1.2.3 量子もつれ状態の生成

非線形過程の発生強度が「結晶構造の対称性」と「入射光と発生光が結晶内を伝搬する際の相対位相」に依存することを導いた。このことは上述のエネルギー保存則と位相整合条件とを同時に満たす光の波長と結晶の組み合わせが非線形過程を利用する上で最も基本的な拘束条件となることを意味する。ある結晶にある波長のポンプ光を入射した場合、この拘束条件を満たす光子対は一意に決まるため、偏光、周波数、あるいは波数ベクトル領域で相関を持ったペアが得られる。このような性質を生かし、量子もつれ光子対の発生は SPDC 過程といくつかの光学的な操作を組み合わせで行われてきた。ここでは偏光や周波数などの自由度を用いたもつれ光子対発生の実例を紹介する。

干渉系を用いた手法

代表的な手法として、Mach-zehnder 干渉系と 2 つの SPDC 結晶を用いた手法がある [24]。図 1.2

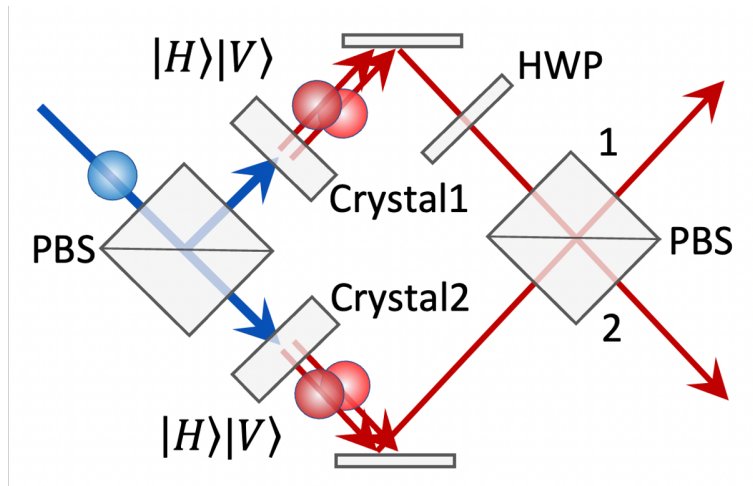


図 1.2: Mach-zehnder 干渉型もつれ光子対発生概念図。

において、SPDC 過程のポンプ光子が HBS によってどちらかのポートに振り分けられ、それぞれのポートの非線形結晶 1 または 2 において Type-II の縮退 SPDC 過程を励起する。発生したシグナル光子およびアイドラー光子は PBS 結晶によって各ポート 1 および 2 に分離される。このとき、結晶 1 および 2 のどちらから SPDC 光子対が生成したとしても PBS の 2 つのポートに光子が 1 つずつ振り分けられる。光子対はどちらかの結晶から確率的に発生した 2 つの重ね合わせ状態になっており、

$$|\varphi_{12}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H, V\rangle + e^{i\theta}|V, H\rangle) \quad (1.85)$$

と書ける。 $|H, V\rangle$ はポート 1 に H 偏光の光子、ポート 2 に V 偏光の光子が飛来した状態である。 $e^{i\theta}$ は結晶 1 と 2 で発生する SPDC 光子対間の相対位相である。干渉系を用いた別の方法として Sagnac 干渉系に非線形結晶を組み込む手法も多くの先行研究 [34] で用いられてきた。

図 1.3 に示すように、この手法では、非線形結晶に対して光が双方向から入射するように結晶を干渉計内に組み込み、Sagnac 干渉系の時計回りと反時計回りの光路でそれぞれ SPDC 結晶を励起することで Type-II の SPDC 光子対をどちらか側に発生させ、それぞれの方向で発生した SPDC 光子対の状態を確率的に取ることで偏光もつれ状態を実現した。

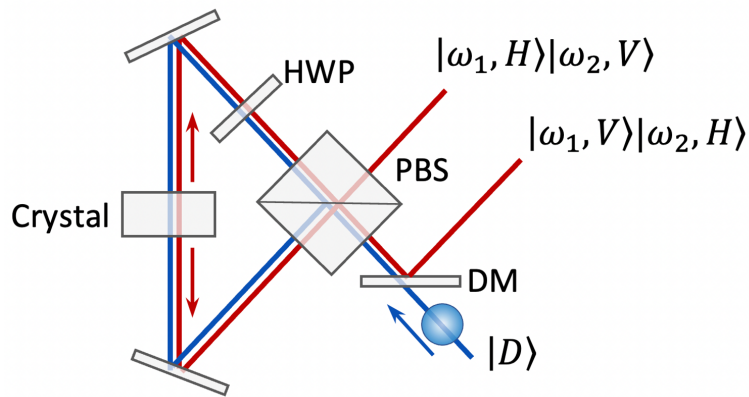


図 1.3: Sagnac 干渉型もつれ光子対発生概念図。

非同軸 SPDC 過程を用いた手法

これらの干渉系を用いた手法では SPDC 結晶から出力までの間に偏光素子などを挟むため光学的ロスが発生しやすく、また HWP により偏光の回転を外部から施すためもつれ純度の低下が大きな課題であった。干渉系を用いない手法の開発が重要である一方で、当時干渉系を用いない手法として非同軸過程を用いる手法があった [35]。図 1.4 は Type-II の非同軸 SPDC 過程によるもつれ光子対発生

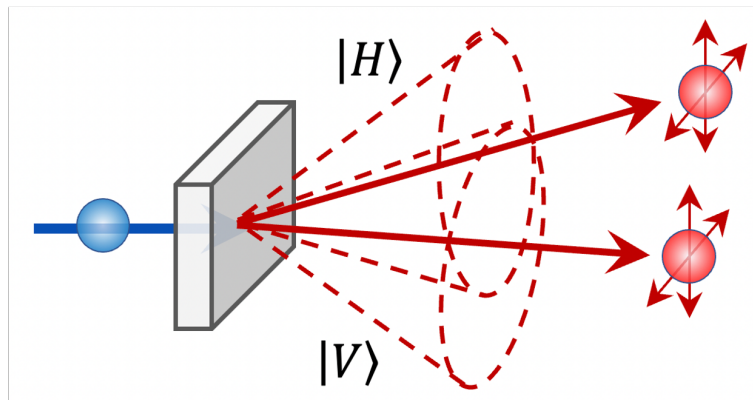


図 1.4: 非同軸 SPDC 過程を利用したもつれ光子対発生概念図。

の概念図である。位相整合条件に SPDC 光子対の発生角度を取り込む場合、結晶の光学軸方向とそれに垂直な方向それぞれに分解した波数ベクトルが過程の前後で保存される。このとき縮退したエネルギーで発生するシグナル光およびアイドラー光は図 1.4 のように円錐方向に放射される。円錐の 2 つの交点方向は H 偏光のシグナル光と V 偏光のアイドラー光および V 偏光のシグナル光と H 偏光のアイドラー光のペア両方が発生しうる光路であり、どちらの光路にどちらの偏光が来ているかは確率的に重ね合わさっている。そのため形成される光子対状態は式 (1.85) のようになる。この手法は干渉系などの複雑な光学系を必要としない一方で光子対そのものがどの方向に飛来するかを特定して集光することが難しい。また、空間的にシングルモードで無くなることからもつれ純度が低下するという問題も依然として残っていた。このような背景から、同軸条件かつ複雑な光学系を用いない簡

便な発生手法の実装が喫緊の課題であった。

2つの結晶周期を用いた手法

上述の課題を鑑みて、K. Uematsu らによって同軸 SPDC 過程かつ干渉系を用いない簡便な手法として結晶周期を2つ重ねる手法が提唱された [36]。図 1.5 はその概念図である。ポンプ光が2種類の

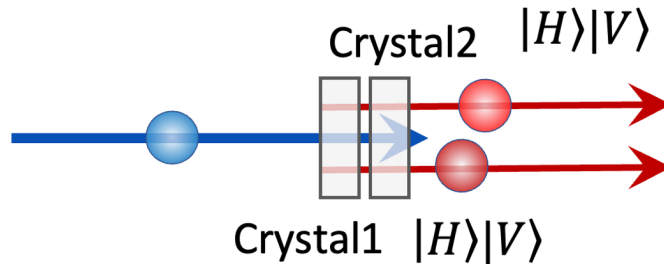


図 1.5: 2つの結晶周期をデザインした結晶を利用したもつれ光子対発生概念図。

結晶周期を伝搬するため、位相整合条件を満たす光子対が2組存在することになる。このとき、1光子はどちらの位相整合条件を満たして光子対に分裂するかを確率的に選択するため、光子対はその重ね合わせ状態となる。そこで、 $|H, \omega_1\rangle|V, \omega_2\rangle$ と $|V, \omega_1\rangle|H, \omega_2\rangle$ となる位相整合条件に合わせて結晶周期を設計すると、偏光と周波数における重ね合わせ状態が形成される。この光子対を ω_1 と ω_2 を空間的に分離するダイクロイックミラー (DM) に入射すると、その量子状態は

$$|\varphi_{12}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle_{\omega_1}|V\rangle_{\omega_2} + e^{i\theta}|V\rangle_{\omega_1}|H\rangle_{\omega_2}) \quad (1.86)$$

となる。これは (1.85) と同様の偏光もつれ状態を形成している。この手法の特筆すべき点は同軸かつ光学干渉系を用いない簡便さにある。さらに、この手法の最大のメリットは偏光だけでなく周波数領域でも重ね合わせ状態となっているため、PBS などの偏光素子で偏光に応じて空間的に分離することで周波数もつれ状態もまた形成可能な点にある。周波数もつれ光子対の詳細は 1.3 節で述べる。

1.3 量子もつれ状態の計測と評価

前節では発生手法の複雑化によってもつれの純度が劣化してしまうことに言及し、その改善を目指した事例を紹介した。もつれの純度はもつれ光子対における量子力学的現象を観測し、その現象の発生に関わるパラメータを評価することで見積もることができる。本節において、光子対を検出する手法および量子もつれ光子対による現象の計測とその評価方法について述べる。

1.3.1 同時計測 (Coincidence measurements)

SPDC 光子対のように2つの光子が相関を持ちながら発生する光子対の同時性やそれによる現象を観測する測定手法に同時計測がある [32]。同時計測は光子数検出器2つによって検出された光子対

の飛来時刻を時間相関単一光子カウンターモジュール（TCSPC）で記録し、光子対の飛来の同時性を確認する測定手法である。図 1.6 に SPDC 光子対を同時計測した典型的なヒストグラムを示す。ヒ

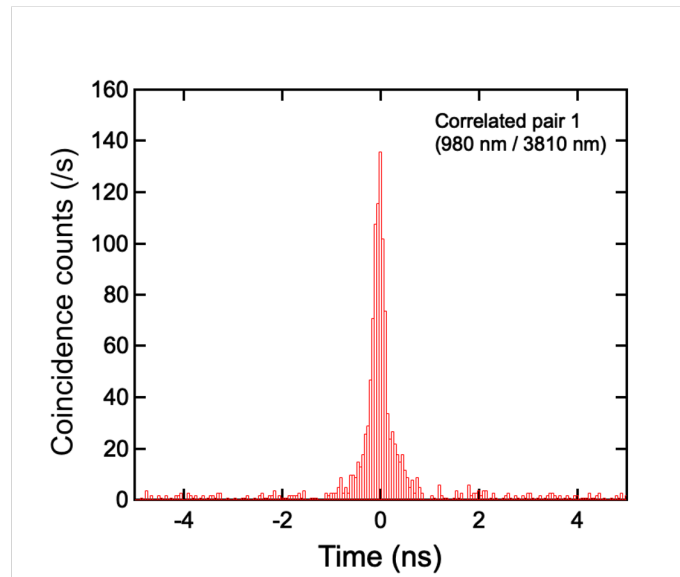


図 1.6: SPDC 光子対の同時計測のヒストグラム。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

ストグラム横軸の原点は時刻差 ± 50 ps 以内で光子対が検出器に飛来した回数を表し、そこから検出系の時間分解能に応じた一定の時間以内に同時カウントが生じている。十分時間の離れたところではペアとしての光子はおらず他のペアの光子がランダムに存在するため、そのランダムな光子の数だけ一定の同時カウントが記録されている。SPDC 過程などの光子が必ずペアを形成している光子状態は同時計測の原点におけるピークを観測することによってその同時性を計測することができる。

このような光子の同時性は 2 次の相関関数 $g^{(2)}(\tau)$ と呼ばれる次の指標で理論的に分類される。

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle n_1(t)n_2(t+\tau) \rangle}{\langle n_1(t) \rangle \langle n_2(t+\tau) \rangle} \quad (1.87)$$

$\langle n_{1(2)}(t) \rangle$ は図 1.7 の検出器 1 (2) において計測される光子数の平均値、 $\langle n_1(t)n_2(t+\tau) \rangle$ は時間差 τ

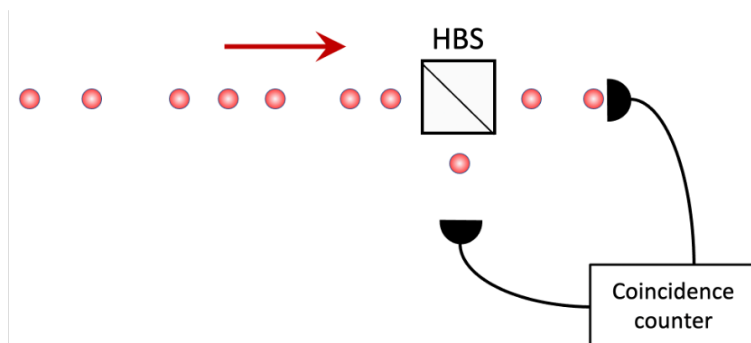


図 1.7: 光子に対して 2 次の相関関数 $g^{(2)}(\tau)$ を測定する観測系の概念図。HBS で光子がどちらかに振り分けられ、2 つの単一光子検出器で同時計測する。

で検出される同時イベント数である。式 (1.87) は次の 3 つの光子の統計分布に応じて特徴的な関数の形状をとる。

$$g^{(2)}(0) = 1 \quad (\text{Coherent light})$$

$$g^{(2)}(0) > 1 \quad (\text{Bunched light})$$

$$g^{(2)}(0) < 1 \quad (\text{Antibunched light})$$

図 1.8 において Coherent light は光子列のどの瞬間を切り取っても含まれる光子数がランダムな状態

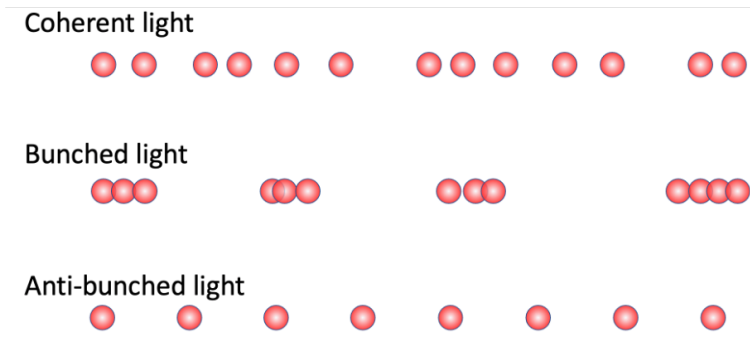


図 1.8: Coherent light、Bunched light、Anti-bunched light それぞれの光子分布の概念図。

である。このようなランダムな分布状態はポアソン分布とも呼ばれる。この場合、同時カウントはどの時間差でも等しくなるので $g^{(2)}(0) = 1$ である。一般的なコヒーレントレーザー光源あるいは減衰フィルターなどの古典的な確率操作を行う光学素子を透過した光などはすべてこれに該当する。それに対し、Bunched light および Anti-bunched light は特殊な光学操作によってのみ発生する。Bunched light ではある時間に光子が固まって分布している (図 1.8)。SPDC 光子対は常に光子が 2 つ固まって生成するので Bunched light の一種である。ただし、「光子対」の分布はポンプ光子を SPDC 過程の確率に応じてランダムに光子対へと変換したものであるためポアソン分布を示す。この場合、原点にピークを持つような $g^{(2)}(\tau)$ スペクトルが観測される。つまり、 $\tau = 0$ において 1 以上の最大値をとり、十分大きい τ に対してはランダムな光子同士のカウントのみになるため 1 になるような関数である。注意点としてパルス光源はパルス幅以内に光子が集約した状態であるが、パルスごとに含まれる光子数はポアソン統計に従ってランダムに分布するため「離散的な Coherent light」として考える。一方で、Anti-bunched light は光子が等間隔に近い分布状態である (図 1.8)。それぞれの光子は検出器のどちらかでしか検出されず、時刻差 0 で同時に光子が飛来することがないため、原点付近での値のみが 0 に近い凹み構造を持つ $g^{(2)}(\tau)$ スペクトルが観測される。

1.3.2 Hong-Ou-Mandel 干渉

光子の同時計測は単なる光子対形成の同時性や単一光子源の Anti-bunched 状態を確認するためだけでなく、光子対間の量子現象を観測することにも用いられる。Hong-Ou-Mandel (HOM) 干渉は相関光子対間に生じる重要な量子現象の 1 つである [3, 37]。HOM 干渉は光子の量子性に基づいてのみ説明可能な干渉現象である。ここでは 2 つの光子が反射率と透過率が 50 % ずつのビームスプリッター (HBS) に入射する場合を考える。通常、光子は BS によって等確率に透過あるいは反射される。このとき光子の出力は図 1.9 に示すような 4 つのパターンのいずれかである。古典的にはそれぞれの光

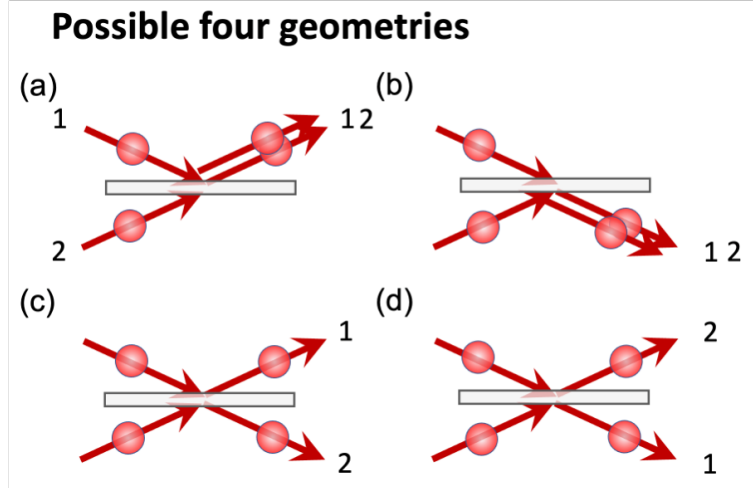


図 1.9: HOM 干渉の概念図。

子が独立に等確率で反射・透過を行うため、4つの過程は等確率で起きる。そのため、それぞれの出射ポートに1つずつ光子を見出す (c) または (d) が起きる) 確率は 0.5 となる。しかし、量子力学的記述ではそれぞれの出射ポートに光子を見出す (同時に検出される) 確率は 0 となる。生成演算子を用いた簡単な計算によりこれを示す。入射モード 1 および 2 の生成演算子をそれぞれ \hat{a}_1^\dagger および \hat{a}_2^\dagger 、出力モード 3 および 4 の生成演算子をそれぞれ \hat{a}_3^\dagger および \hat{a}_4^\dagger とする。このとき、HBS の前後でエネルギー保存が成り立つことから、次のユニタリー変換による関係式

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_1^\dagger \\ \hat{a}_2^\dagger \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{a}_3^\dagger \\ \hat{a}_4^\dagger \end{pmatrix} \quad (1.88)$$

を要求する。(c) の対応する項は反射による位相の反転により符号が逆になっていることに注意する。これにより、入力ポートに 1 光子ずつが入力された場合、すなわち $\hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2^\dagger |0, 0\rangle_{1,2}$ は

$$\begin{aligned} \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2^\dagger |0, 0\rangle_{1,2} &= \frac{1}{2} (\hat{a}_3^\dagger + \hat{a}_4^\dagger) (\hat{a}_3^\dagger - \hat{a}_4^\dagger) |0, 0\rangle_{3,4} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|2, 0\rangle_{3,4} - |0, 2\rangle_{3,4}) \end{aligned} \quad (1.89)$$

となる。式 (1.89) が示すように、出射ポートから 1つずつが検出される場合の行列要素 $|1, 1\rangle_{3,4}$ を持たないことが分かる。言い換えると、(c) および (d) が打ち消しあうことで同時計測の同時カウントが観測されない。HOM 干渉の大きな特徴の 1つに、光子の飛来時刻の差に応じて干渉の波形が決まることが挙げられる。図 1.10(a) は HOM 干渉を実験的に初めて観測した先行研究 [37] における実験概念図である。シグナル光とアイドラー光の波長と偏光が同じ縮退 SPDC 光子対を HBS に入力し、両側にそれぞれ検出器を設置している。HBS を移動させることで HBS に入射する光子間の飛来時刻をずらし、それぞれの時間差において同時計測を行なっている。図 1.10(b) の干渉波形は原点付近において同時カウント数がほとんど 0 になっており、十分入射時間がずれている場合には一定の同時カウント数を示している。その数の比を示す明瞭度は光子の区別のできなさ (Indistinguishability) を示しており、光学系のロスを含めた光子対の相関の純度に対応している。また、干渉が生じている時間幅は SPDC 光子対のスペクトル幅に対応している。

$$N_c = N_0(T^2 + R^2) \left(1 - \frac{2TR}{T^2 + R^2} e^{-(\Delta\omega\delta\tau)^2}\right) \quad (1.90)$$

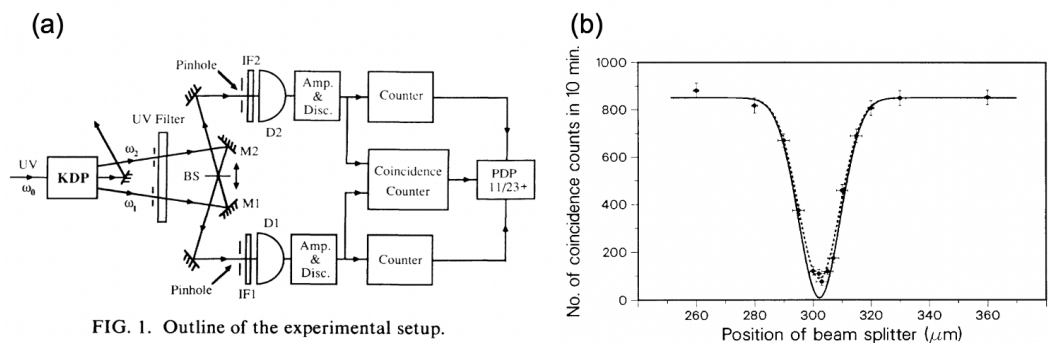


図 1.10: HOM 干渉の概念図。文献 [37] より転載。Copyright©1987 by the American Physical Society.

式 (1.89) は [37] において導出された干渉波形の理論式である。 N_c は同時カウント数、 N_0 は原点から十分離れた干渉がない場合の同時カウント数、 T および R は HBS の透過率と反射率である。また、 $\Delta\omega$ は SPDC 光子対のスペクトル幅、 $\delta\tau$ は HBS の移動による光子間の時間差である。光子対のスペクトル幅に応じて干渉波形の幅が決まるため、広いスペクトル幅を用いることで原理上光子間の飛来時間差を 1 fs 以下の精度で特定可能であることを意味している。そのため、古典的に限界とされている検出器の時間分解能を大いに超える時間分解能を有する測定への応用が期待される重要な現象である。

さらに、光子間のエネルギーが異なる ($\omega_1 > \omega_2$) 場合についても HOM 干渉が観測されることが報告されている [38]。図 1.11 は図 1.10(a) の実験系において非縮退 SPDC 光子対を用いた場合の HOM

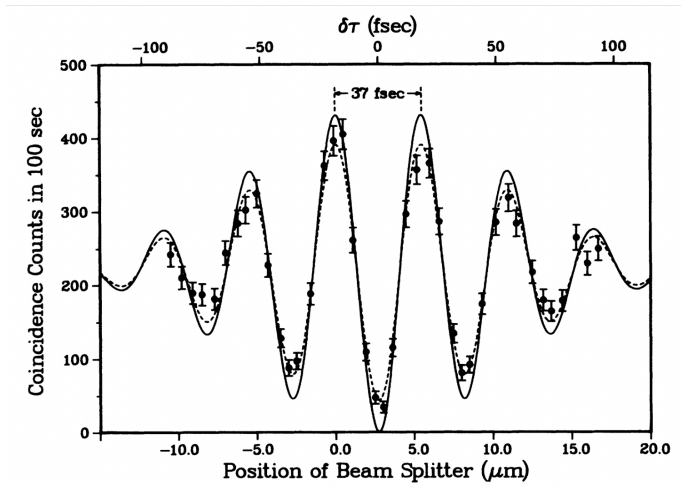


図 1.11: 非縮退 SPDC 光子対の HOM 干渉波形。文献 [38] より転載。Copyright©1988 by the American Physical Society.

干渉波形である。図 1.10(b) とは異なり、エネルギー差 $\omega_1 - \omega_2$ に応じたビート周波数を持つ干渉波形を示している。スペクトル幅は干渉が起きる時間差の範囲を決めており波形の包絡線の半値全幅に対応している。この非縮退 HOM 干渉は後述の周波数もつれ光子対の実証実験に用いられるため重要である。

1.3.3 密度行列と量子トモグラフィ

1.1 節で述べたように量子もつれ状態の密度行列を考えることによって光子対の状態占有確率ともつれの純度を数値化できることに言及した。ここでは密度行列を構成する実験パラメータを計測し、理想状態からの逸脱を評価することで量子もつれ状態の純度を評価する手法を解説する。

偏光もつれ状態の評価

偏光もつれ状態を評価する最も汎用的な方法の 1 つに量子トモグラフィがある [39]。図 1.12 に測

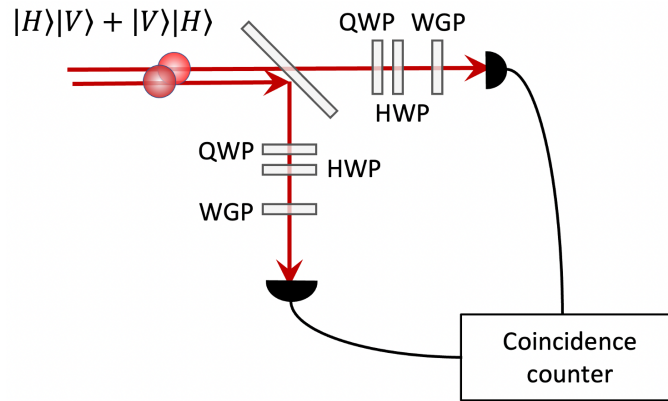


図 1.12: 偏光もつれ状態を評価する量子トモグラフィ測定の実験概念図。

定系の概念図を示す。空間的に分離した偏光もつれ光子対を 1/2 波長板、1/4 波長板およびワイアグリッド偏光子 (WGP) を組み合わせた偏光分解分析システム (Polarization analyzer: PA) に通し、その後 APD などの光子数計測器で同時計測を行う。このとき、PA を通した光子対の偏光は波長板の組み合わせに応じて H 偏光、V 偏光、D 偏光、右回り円偏光 (R) および左回り円偏光 (L) のいずれかのみ成分が取り出される。このとき、光子対の偏光の組み合わせ i に応じて検出した同時カウント数 C_i から

$$\rho = \left(\sum_{i=1}^{16} M_i C_i \right) / \left(\sum_{i=1}^4 C_i \right) \quad (1.91)$$

を計算することにより、密度行列を構築することができる。ただし、 M_i は [39] に記載している変換行列である。表 1.1 および式 (1.91) に従って 16 通りの同時計数を行うことで密度行列が得られ、その行列要素からもつれの純度および光子対間の相対位相が得られる。

周波数もつれ状態の評価

偏光もつれ状態の評価に用いた量子トモグラフィは周波数もつれ状態に用いることができない。上述のように、周波数もつれ状態は非縮退 HOM 干渉測定を用いて評価する [3]。

図 1.13 に測定系の概念図を示す。図 1.11 のような干渉波形を測定するためには光子対間の位相差を掃引する必要がある。そこで、PBS を用いた Michelson 型の干渉系を用いることで式 (1.60) のような重ね合わせ状態間の位相差をつけることができる。その後、HWP を用いて光子対の偏光を D 偏

表 1.1: 偏光もつれ状態の密度行列を構築するための PA の組み合わせ。

i	Photon1	Photon2
1	$ H\rangle$	$ H\rangle$
2	$ H\rangle$	$ V\rangle$
3	$ V\rangle$	$ V\rangle$
4	$ V\rangle$	$ H\rangle$
5	$ R\rangle$	$ H\rangle$
6	$ R\rangle$	$ V\rangle$
7	$ D\rangle$	$ V\rangle$
8	$ D\rangle$	$ H\rangle$
9	$ D\rangle$	$ R\rangle$
10	$ D\rangle$	$ D\rangle$
11	$ R\rangle$	$ D\rangle$
12	$ H\rangle$	$ D\rangle$
13	$ V\rangle$	$ D\rangle$
14	$ V\rangle$	$ L\rangle$
15	$ H\rangle$	$ L\rangle$
16	$ R\rangle$	$ L\rangle$

光に回転し、PBS を 1:1 の BS として用いて空間的に分離し同時計測することで HOM 干渉を測定する。非縮退 SPDC 光子対間の HOM 干渉の波形パターンは次の式で表される [3]。

$$N_c = \frac{N}{N_b} = \frac{1}{2}(1 - V \cos(\delta\omega t + \theta)(1 - |\frac{t}{t_c}|)) \quad (1.92)$$

式 (1.92) において、 N_c は規格化された同時イベント数、 N は実際の同時イベント数、 N_b は干渉が起きない範囲における同時イベント数の平均値（ベースライン）である。また、 V はもつれの純度を表す干渉波形の明瞭度、 $\delta\omega$ はビート周波数、 θ は光子対間の相対位相、 t_c は干渉が起きる範囲を表すコヒーレンス時間である。もつれ状態を特徴づけるパラメータは V と θ である。ここで周波数 $\delta\omega$ は 2 つの非縮退の SPDC 光子対間のピーク波長（周波数）の差から、コヒーレンス時間 t_c は 2 つのピークのスペクトル幅によって決定される。

$$\rho_F = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & p & Ve^{-i\theta} & 0 \\ 0 & Ve^{i\theta} & 1-p & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.93)$$

周波数もつれ状態における基底状態は $|\omega_1\rangle|\omega_1\rangle$ 、 $|\omega_1\rangle|\omega_2\rangle$ 、 $|\omega_2\rangle|\omega_1\rangle$ および $|\omega_2\rangle|\omega_2\rangle$ の 4 つである。 ρ_F は実験パラメータから求められる周波数もつれ光子対の密度行列である。 p は光子対が状態 $|\omega_1\rangle|\omega_1\rangle$ を取る確率である。これにより、周波数領域におけるもつれ状態は式 (1.92) と式 (1.93) から評価することができる。

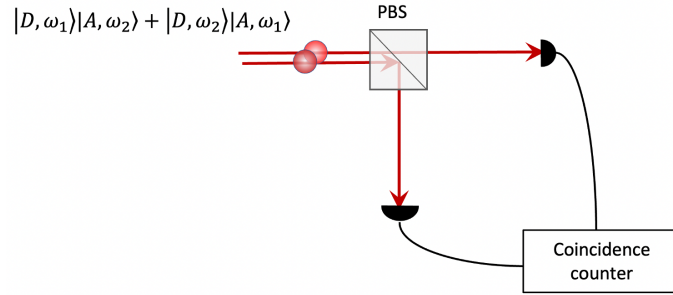


図 1.13: 周波数もつれ状態を評価する HOM 干渉測定の実験概念図。

量子もつれ状態の忠実度

上述の密度行列はもつれ状態を数値的に評価するのに有用であった。一方で、理想的なもつれ状態と実際の測定された密度行列から想定されるもつれ状態の逸脱を評価することも重要である。この逸脱は忠実度 F と呼ばれる指標を計算することにより見積もることができる。忠実度 F は次のように定義される。

$$F = \left(\text{Tr} \sqrt{\sqrt{\rho_e} \rho_t \sqrt{\rho_e}} \right) \quad (1.94)$$

式 (1.92) において、 ρ_e は実験的に決定された密度行列、 ρ_t は理想的なもつれ状態の密度行列である。古典的な状態では $0 < F < 0.5$ であるが、量子もつれ状態では最大値 1 をとり、1 に近いほど理想的なもつれ状態に近いと判断できる。

1.3.4 近年の動向

2019 年、F. Kaneda らは 2 つの SPDC 結晶をレーザーの進行方向に重ねることで偏光と周波数状態の重ね合わせ状態を実現し、周波数および偏光もつれ光子対の生成に成功した [36]。図 1.14 は [36] におけるもつれ光子対発生および検出の実験概念図である。結晶周期を 2 つデザインした周期分極型ニオブ酸リチウム (PPLN) 結晶を用いて 2 つの Type-II の SPDC 過程の擬似位相整合条件を重ね合わせた結果、

$$|\varphi_{12}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|H, \omega_1\rangle|V, \omega_2\rangle + e^{i\theta}|V, \omega_1\rangle|H, \omega_2\rangle) \quad (1.95)$$

で表される量子状態を持つ光子対を生成した。 $e^{i\theta}$ は異なる周期領域 2 つの間で発生する SPDC 光子対間の相対位相である。この光子対は PBS あるいは DM を用いることで周波数あるいは偏光もつれ光子対状態となる。この光子対を PBS を用いた Michelson 干渉系に導入し、重ね合わせ状態にある 2 つの光子対間の位相差を調整している。その後、非縮退 HOM 干渉測定を行うことで図 1.15 のような結果を得た。図 1.15 は [36] において観測された HOM 干渉波形である。図 1.11 と同様の干渉波形が観測されており、スペクトル幅および中心周波数の差に応じた形状となっている。2 つの結晶周期の重ね合わせを用いる手法において干渉波形の明瞭度がほとんど 1 に近く、生成されたもつれ状態が理想的な状態に近いことを報告した重要な結果である。

しかしながら、この手法は従来の干渉系を用いた方法の安定性や簡便化の問題を解決する一方で、位相整合する 2 つの周期がポンプ光波長ごとに異なる。そのため、①発生光子対の波長帯域を自由に選択するには結晶周期を 2 つ有する結晶をその都度デザインする必要があること、②もつれ純度

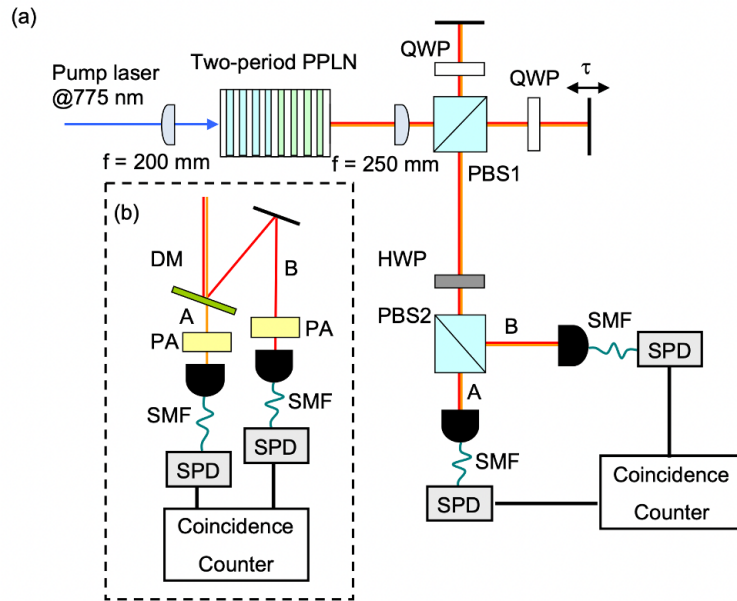


図 1.14: 2つの PPLN 結晶による同軸 SPDC 過程を用いたもつれ光子対発生および HOM 干渉観測の概念図。文献 [36] より転載。Copyright©2019 by Optica.

を高くするためにそれぞれの周期部分の結晶長を同じ長さにする必要があり、精密な結晶工学技術が要求されること、の2点が大きな課題となってきた。このような2つの位相整合条件による重ね合わせ状態の形成をより簡便かつ波長選択性の良い条件で行うためには位相整合条件による制約あるいは結晶光学的制約を解消する必要があった。

1.4 本研究の目的

上述の①および②の問題を解決する手段として、「周期の異なる結晶を2つ用いる」という点に課題があることを見出した。これは位相整合条件を根本から見直す必要があることを意味している。そこで我々は SPDC 過程そのものの拡張に注目した。SPDC 光子対は位相整合条件に従って波長や偏光が一意に決まる。これに対して、我々は特定の結晶および特定のポンプ光波長を用いると、2組の波長や偏光の異なる SPDC 光子対が同じ位相整合条件を満たすことを見出した。我々はこれを同時 SPDC 過程と呼ぶ。特に本研究では Type-0 および Type-II 同時 SPDC 過程の2つを提唱し、それぞれに対して現状の課題を克服する可能性を見出した。Type-0 の同時 SPDC 過程では2組の偏光が全て同じで可視域から赤外域にわたる波長範囲で SPDC 光子対が1つの非線形光学結晶から発生する。そのため、より簡便な光学系による赤外域をカバーする広帯域化や波長可変性の克服が期待される。一方で Type-II の同時 SPDC 過程では、波長と偏光の組み合わせが入れ替わった2組の光子対が発生する。そのため、どちらの光子対が発生するか観測するまで区別できないことから変更と周波数の自由度を用いた量子もつれ光子対の発生手法としての可能性を有する。そこで、本研究では2つの同時 SPDC 過程が生じる結晶とポンプ光源の策定を行い、その妥当性について理論的に検証するとともに実験的にその諸性質を明らかにすることを目指す。さらに、同時 SPDC 過程の量子性を示すことで確率的に生じる複数の非線形光学効果の間にある量子特性を解明し、これまで通信帯域に制限されていた量子技術を赤外域に拡張しうる新規光源として発展させることを目的とする。本論文は

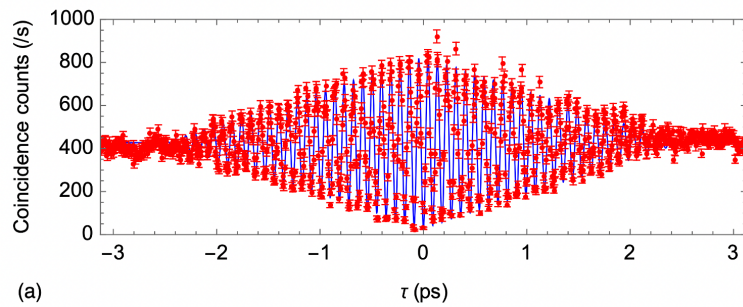


図 1.15: [36] において観測された HOM 干渉波形。文献 [36] より転載。Copyright©2019 by the Optical Society.

公表論文を記述する 3 つの章と結論に分かれている。2 章および 3 章では Type-0 の同時 SPDC 過程に焦点を当て、同時 SPDC 過程の広帯域光源や相関光子対源としての理論的妥当性および実証実験の結果を説明する。2 章において同時位相整合条件を満たす非線形結晶やポンプ光波長を検討する。さらに赤外広帯域光源として有用であることを示す実証実験および理論シミュレーションを行い、光源としての特性を理論と実験の両側面から評価する。3 章において位相整合条件の同時性に注目し、光子対間の相関を実証する実験結果を説明する。さらに赤外域における光子対の相関を示すためファイバーレーザーを用いた自作の UPC 検出器を開発し、実験に組み込んだ背景について詳しく解説する。4 章では Type-II の同時 SPDC 過程に焦点を当て、Type-II での同時位相整合が可能な結晶および結晶温度と周期を検討する。さらに 2 つの非線形過程間の同時性を利用した量子もつれ状態生成の実証実験の結果を記述する。5 章では上記 3 つの内容を踏まえ、同時 SPDC 過程が量子光源としての重要性および過程間の同時性が有する量子力学的特性を解明したことをまとめ、将来展望に言及する。

第2章 同時SPDC過程

本章では本論文の基礎をなす同時 SPDC 過程の概念を導入し、その発生条件について述べる。また、同時 SPDC 過程によって発生した SPDC 光子対の赤外域における広帯域光源としての有用性に焦点を当ててその定式化および実験による評価を説明する。2.1 節において、SPDC 光子対発生 배경を概説する。2.2 節において、同時 SPDC 過程を理論的に検証し、どのような条件下で発生するかを精査するため位相整合条件を計算する。さらに、求めた位相整合条件をもとにどのようなスペクトルが得られるのかを理論的にシミュレーションする。2.3 節において、シミュレーションを実証するような実験系解説および実験結果について概説する。2.4 節において、本論文が見出した課題と次なる目的を述べる。

2.1 背景

SPDC 光子対は量子相関光子対として汎用的に用いられている一方、光源そのものの広帯域化、波長選択性あるいは高輝度化などは依然として課題である。SPDC 過程が自発的であることを利用して、ポンプ光の入射角度と異なる非同軸方向に発生する SPDC 光子対を取り込む [40]、短い非線形結晶を用いることでコヒーレンス長を満たす波長モードを増やす [41] あるいは結晶周期を光の進行方向に連続的に変化させたチャープ型結晶を用いる [42] など SPDC 光子対の広帯域化には多様な手段が存在する。しかし、非同軸過程を利用する場合は有限角度の SPDC 光子対を扱うための複雑な光学系が必要となり、短い結晶やチャープ型結晶を用いる場合は発生効率が低くなるという問題がある。また波長可変な光源として利用する場合、結晶の位相整合条件を構成する結晶の温度、周期、ポンプ光波長のいずれかを調整することで発生波長を変化させることができるが、広帯域赤外域をカバーするために非常に広い範囲でパラメータを掃引する必要がある。例えば $1\ \mu\text{m}$ のポンプ光を PPLN 結晶に入射する場合、 $2\text{-}5\ \mu\text{m}$ の発生帯域を非同軸方向に得るためには結晶温度を 25°C から数 100°C まで変化させる必要がある。また、結晶周期を変化させる場合、 $26\ \mu\text{m}$ から $32\ \mu\text{m}$ までの周期を結晶構造に付与する必要がある。そのためこれらの帯域をカバーするための測定を行う場合、長時間での測定や結晶の交換を要するなどの課題が残る。さらに、QIS のような量子計測技術において相関光子を空間的に分離して利用する場合、縮退過程（シグナル光とアイドラー光が同じ波長で発生する過程）付近ではシグナル光とアイドラー光を空間的に分離することが難しくなるため、QIS への応用においても位相整合条件の選択に制限がある。

我々は同時 SPDC 過程が上記の波長選択制の問題点を克服する新規の光源として利用可能性があることを見出した。図 2.1 に同時 SPDC 過程の概念図を示す。同時 SPDC 過程では特定の波長のポンプ光が同じ位相整合条件で 2 種類の光子対に分裂する。このとき 2 つのシグナル光とアイドラー光はそれぞれ可視域および赤外域に発生する。この過程の大きな特徴としてほとんど非同軸に近い SPDC 過程のみで $2\text{-}5\ \mu\text{m}$ をカバーするアイドラー光が得られるため、赤外域における簡便かつ広帯域な光源となりえることが挙げられる。そのため分子振動などを多く含む $2\text{-}5\ \mu\text{m}$ 帯域において分光や吸収

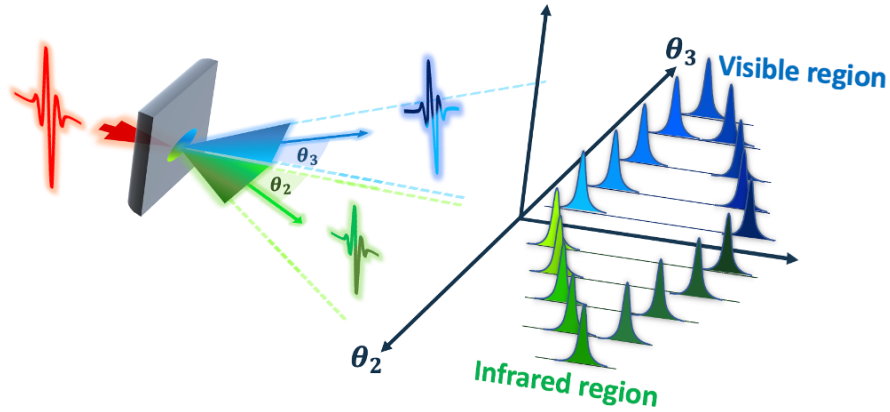


図 2.1: 同時 SPDC 過程の概念図。文献 [10] より転載。Copyright©2021 Springer Nature Limited.

測定に SPDC 相関光子対源を用いることができる。さらに、同時 SPDC 過程における縮退過程では波長が大きく分裂したままシグナル・アイドラーが発生するので、波長による光源の分離も容易である。以下では同時 SPDC 過程に対して広帯域光源としての性能を調べた理論計算および実証実験について詳しく述べる。

2.2 理論

2.2.1 同時 SPDC 過程の擬似位相整合条件

まず、同時 SPDC 過程が実現する条件の導出、対象とする非線形結晶の光学特性、およびそれを用いた擬似位相整合条件の計算結果を示す。位相整合条件では結晶の複屈折を考慮した屈折率を用いる。1章で述べたように、Type-0 位相整合の場合、

$$e \rightarrow e + e, o \rightarrow o + o$$

の 2 通りがある。ここで e と o はそれぞれ異常光および常光を表す。PPSLT および PPLN は異常光を用いた Type-0 に対応する非線形光学定数 d_{zzz} の方が大きいので異常光を用いることが多い [43]。ここでも異常光に関する位相整合を考える。図 2.2 は PPSLT 結晶の異常光屈折率 n_e の波長依存性を示している。ここで屈折率分散はセルマイアの分散方程式

$$n_e^2 = a_1 + b_1 f + \frac{a_2 + b_2 f}{\lambda^2 - (a_3 + b_3 f)^2} + \frac{a_4 + b_4 f}{\lambda^2 - (a_5 + b_5 f)^2} - a_6 \lambda^2 \quad (2.1)$$

およびそれぞれのパラメーターとして表 2.1 の値を用いた [43]。ただし、

$$f = (T - 24.5^\circ\text{C})(T + 24.5^\circ\text{C} + 546.32)$$

であり、 T は結晶の温度である。同時 SPDC 過程を実現するためには同軸の擬似位相整合条件

$$\frac{n_e(\lambda_1, T)}{\lambda_1} - \frac{n_e(\lambda_2, T)}{\lambda_2} - \frac{n_e(\lambda_3, T)}{\lambda_3} = \frac{1}{\Lambda} \quad (2.2)$$

表 2.1: (2.1) における係数 [43]

<i>Parameter</i>	n_e	n_o
a_1	4.5615	4.5082
a_2	0.08488	0.084888
a_3	0.1927	0.19552
a_4	5.5832	1.1570
a_5	8.3067	8.2517
a_6	0.021696	0.0237
b_1	4.782×10^{-7}	2.0704×10^{-8}
b_2	3.0913×10^{-8}	1.4449×10^{-8}
b_3	2.7326×10^{-8}	1.5978×10^{-8}
b_4	1.4837×10^{-5}	4.7686×10^{-6}
b_5	1.3647×10^{-7}	1.1127×10^{-5}

において、あるポンプ光波長、結晶周期および温度に対して、

$$\frac{n_e(\lambda_2)}{\lambda_2} + \frac{n_e(\lambda_3)}{\lambda_3} = \frac{n_e(\lambda_4)}{\lambda_4} + \frac{n_e(\lambda_5)}{\lambda_5} \quad (2.3)$$

を満たすような $\lambda_i (i=2,3,4,5)$ が存在することである。ただし、 λ_2 および λ_4 をアイドラー光波長とし、 $\lambda_2 < \lambda_4$ とする。また、アイドラー光が赤外域 2 から 5 μm 、シグナル光が可視検出器の検出感度範囲 0.4 から 1.1 μm にある場合を考える。ここで、アイドラー光とシグナル光とがエネルギー保存則を満たすことから、 $\omega_i = \frac{2\pi c}{\lambda_i}$ に注意して

$$\frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_4} + \frac{1}{\lambda_5} \quad (2.4)$$

が要求される。式 (2.3) の両辺をそれぞれ式 (2.4) で割ると、

$$\frac{\frac{n_e(\lambda_2)}{\lambda_2} - \frac{n_e(\lambda_4)}{\lambda_4}}{\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_4}} = \frac{\frac{n_e(\lambda_3)}{\lambda_3} - \frac{n_e(\lambda_5)}{\lambda_5}}{\frac{1}{\lambda_3} - \frac{1}{\lambda_5}} \quad (2.5)$$

となる。ここで、関数

$$F(x) = \frac{n_e(1/x)}{1/x} \quad (2.6)$$

を定義すると、式 (2.5) は曲線 $y = F(x)$ 上のある 2 点間の傾きに対応する。PPSLT の屈折率を用いた場合の曲線 $y = F(x)$ のグラフを図 2.3(a) に示す。赤外域 ($0.2 \leq x \leq 0.5$) のある 2 点間および可視域 ($0.9 \leq x \leq 1.6$) のある 2 点間がエネルギー保存則を満たしながら等しい傾きを持つ状態を考えると、このような点の取り方が存在するのは $y = F(x)$ の変曲点が存在すること、すなわち $F(x)$ の導関数が極値を持つことである。図 2.3(b) が示すように $F(x)$ の導関数は極小値をもつ。すなわち式 (2.5) を満たすような組み合わせが存在しうること示している。

次に赤外域と可視域に分裂する条件で同時 SPDC 過程が実現するための屈折率の条件を考える。式 (2.5) において両辺から $n_e(\lambda_4)$ 、 $n_e(\lambda_5)$ をくくると、

$$n_e(\lambda_4) \frac{\frac{n_e(\lambda_2)}{n_e(\lambda_4)} \frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_4}}{\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_4}} = n_e(\lambda_5) \frac{\frac{n_e(\lambda_3)}{n_e(\lambda_5)} \frac{1}{\lambda_3} - \frac{1}{\lambda_5}}{\frac{1}{\lambda_3} - \frac{1}{\lambda_5}} \quad (2.7)$$

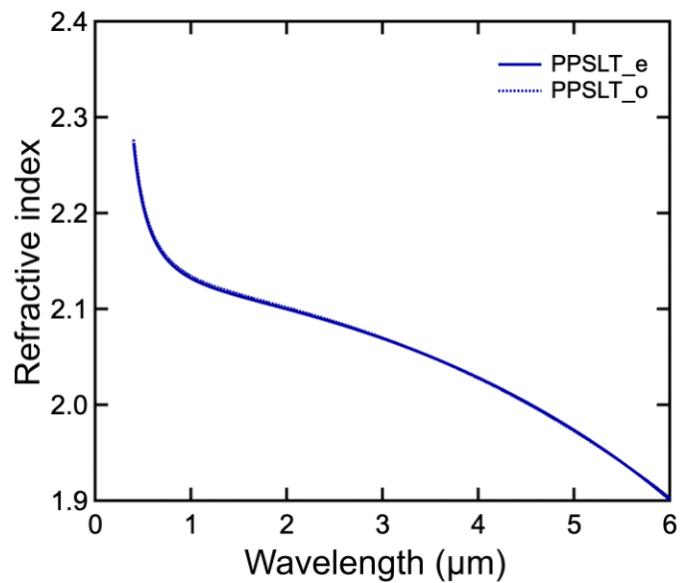


図 2.2: PPSLT 結晶における異常光屈折率の波長依存性。結晶温度 25°C に対してセルマイアの式を用いて計算した。

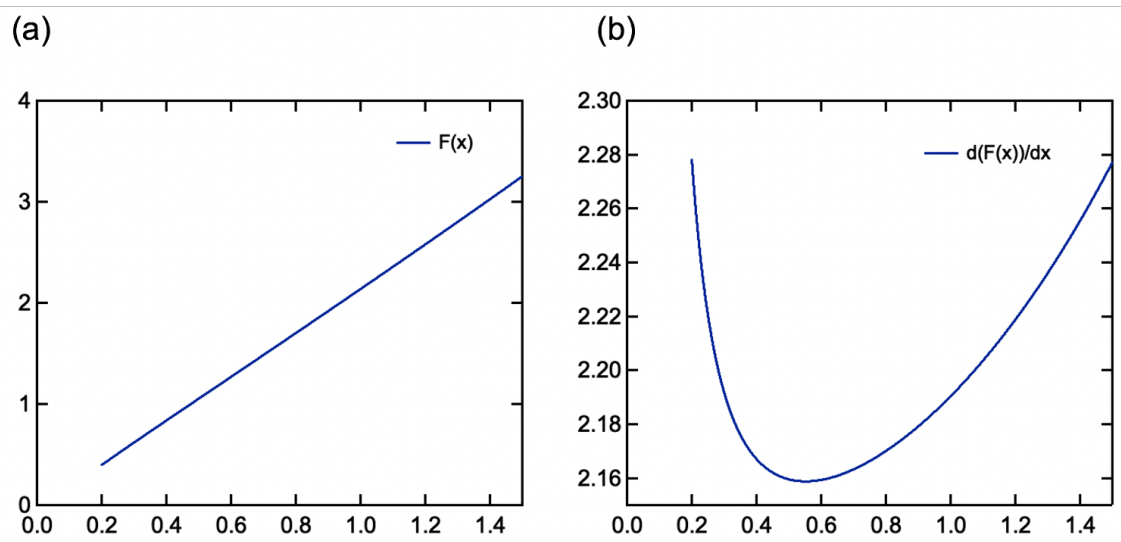


図 2.3: PPSLT を用いた場合の (a) 曲線 $y = F(x)$ のグラフ、(b) $y = \frac{dF(x)}{dx}$ の導関数のグラフ。

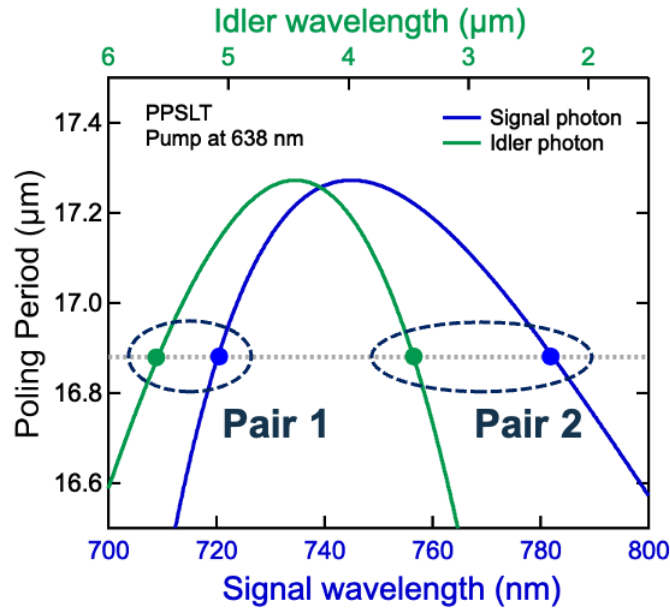


図 2.4: ポンプ光波長 638 nm を用いた際の擬似位相整合条件下における SPDC 波長と結晶周期の関係を表したグラフ。下の横軸はシグナル光の発生波長、上の横軸はアイドラー光の発生波長。周期を 16.88 μm に設定した場合の解を灰色の点線と曲線との交点で表している。文献 [10] より転載。Copyright©2021, Springer Nature Limited.

となる。常分散を有する結晶において屈折率が波長について単調減少であるから $n_e(\lambda_4) < n_e(\lambda_5)$ に注意すると、式 (2.7) が成り立つためには

$$\frac{n_e(\lambda_2)}{n_e(\lambda_4)} > \frac{n_e(\lambda_3)}{n_e(\lambda_5)} \quad (2.8)$$

が必要である。同時過程としてアイドラー光が $\lambda_2 = 2\mu\text{m}$ 、 $\lambda_4 = 5\mu\text{m}$ にそれぞれ発生する場合、シグナル光の幅は 0.1 μm 程度である。このもとで、可視シグナル光同士の屈折率の比よりも赤外アイドラー光同士の屈折率の比が大きいためには、赤外域においても屈折率がある程度大きく変化していることが重要である。すなわち、可視域では長波長に向かうにつれて屈折率分散が小さくなるにもかかわらず、赤外域ではまた変化率が大きくなっているような結晶が同時 SPDC 過程に適していることがわかる。図 2.2 が示すように PPSLT 結晶はこの特徴を満たしている。これらをもとに同軸の擬似位相整合条件における PPSLT の結晶周期

$$\Lambda(\lambda_1, \lambda_2, T) = \left(\frac{n_e(\lambda_1, T)}{\lambda_1} - \frac{n_e(\lambda_2, T)}{\lambda_2} - \frac{n_e(\lambda_3, T)}{\lambda_3} \right)^{-1} \quad (2.9)$$

をポンプ光波長、発生波長、結晶温度の関数として計算した。図 2.4 は温度 25°C の PPSLT 結晶においてポンプ光波長 638 nm を用いた際の計算結果を表している。下軸はシグナル光発生波長（青線）、上軸はアイドラー光発生波長（緑線）に対応している。結晶周期が 16.88 μm の場合、シグナル光アイドラー光の組み合わせが 720 nm と 5.6 μm および 780 nm と 3.5 μm の 2 つの波長の組み合わせで擬似位相整合することがわかった。これら 2 組の光子対は同じ発生条件であるため、PPSLT 結晶によって両方が発生すると考えられる。また、結晶周期を大きくすると 17.3 μm 付近までで 2 つのシグナル光間およびアイドラー光間の全帯域をカバーできることもわかった。これにより結晶周期に

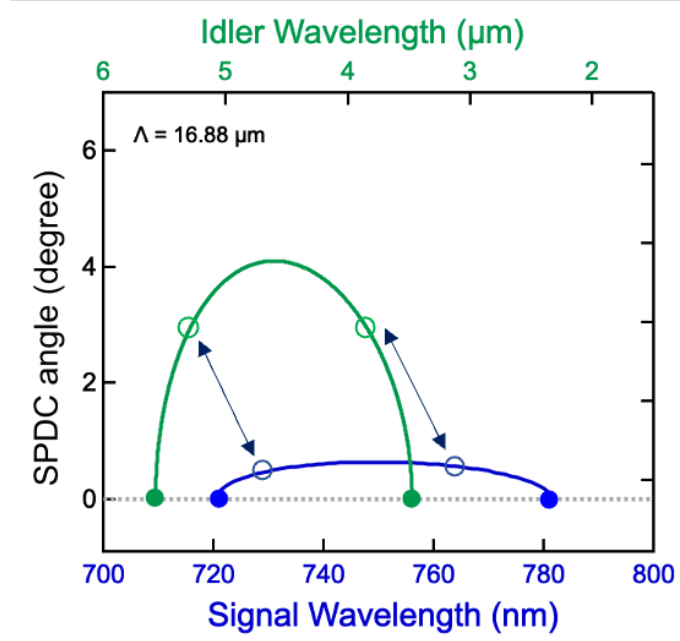


図 2.5: 非同軸過程における SPDC 発生波長と発生角度の関係を表したグラフ。0 度は同軸過程に対応しており、同軸過程による 2 波長の間を埋めるような位相整合の仕方をする事がわかる。文献 [10] より転載。Copyright©2021, Springer Nature Limited.

よる発生波長が制御可能であることあるいは一定幅の周期を有するチャープ結晶を用いることで、対応する 2 組の間全てをカバーした広帯域 SPDC 光子対の発生が可能である [42]。

次に、非同軸過程を考慮した場合の SPDC 光子対の発生角度

$$\theta(\lambda_1, \lambda_2, \Lambda, T) = \arccos \left[\frac{\left(\frac{n(\lambda_1)}{\lambda_1} - \frac{1}{\Lambda} \right)^2 + \left(\frac{n(\lambda_2)}{\lambda_2} \right)^2 - \left(\frac{n(\lambda_3)}{\lambda_3} \right)^2}{2 \left(\frac{n(\lambda_1)}{\lambda_1} - \frac{1}{\Lambda} \right) \left(\frac{n(\lambda_2)}{\lambda_2} \right)} \right] \quad (2.10)$$

をポンプ光波長、結晶周期、発生波長、結晶温度の関数として計算した。図 2.5 は結晶周期 16.88 μm の場合の非同軸過程において擬位相整合するシグナル光とアイドラー光の発生波長と発生角度の関係を表している。点線で囲んだ青丸および緑丸は発生角度 0 度、すなわち同軸過程による発生を意味する。また、点線 (3 度) と緑の曲線 (アイドラー光の QPM 曲線) との交点は発生角 3 度方向に生成されたアイドラー光発生波長 3.8 μm と 5.3 μm に対応している。これらのペアは両矢印で示された青丸に対応しており、角度に応じて同軸過程の 2 つの発生ペア間を埋めるように位相整合することがわかった。ここで、発生角度はポンプ光の伝播方向と垂直な方向に関する波数ベクトル保存則から、対をなすアイドラー光とシグナル光とで発生角度が異なることに留意する。SPDC 過程は自発的に光子対を発生するため、位相整合する光子対が有限角度方向すべてに関して同時に発生する。これはポンプ光 638 nm、周期 16.88 μm に対して 4 度以内の放射光を考えると、3.5 μm から 5.6 μm までのすべての赤外波長が発生可能であることを示している。従来の非同軸 SPDC 過程における発生角度は 10 度以上の角度方向を想定していた [17]。そのため、発生に用いる結晶は 0.5 mm と薄くする必要があり、あるいは発生した SPDC 光を集光する光学系に用いるレンズが半径の大きな長焦点のものに限られるなど複雑な光学系となっていた。しかし、同時 SPDC 過程はほとんど同軸成分のみで発生帯域を広帯域化することができる。これは非同軸過程を用いる場合の光学系の複雑さや

結晶長を長く使えないために発生効率が低いという従来の問題点を解決するだけでなく、結晶周期や角度によって発生波長を容易に選択することも可能にする。

このような条件を最適化するため、非同軸過程がカバーするアイドラー光の波長範囲をポンプ光波長と結晶周期を変えながら調べた。図 2.6(a) は 600 nm から 850 nm の各ポンプ光に対するアイド

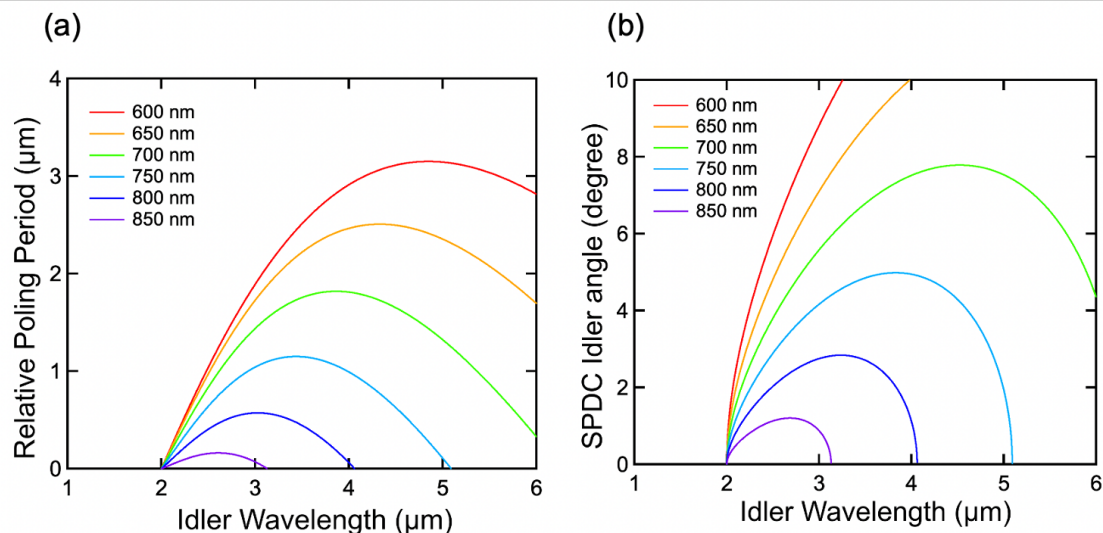


図 2.6: (a)600 nm から 850 nm の各ポンプ光に対する 2 つのアイドラー光のペアの関係性。アイドラー光が $2 \mu\text{m}$ に発生する周期を 0 としたときのアイドラー光発生波長と相対周期の関係を計算。(b)600 nm から 850 nm の各ポンプ光に対する相対周期 0 における非同軸過程の位相整合曲線。文献 [10] より転載。Copyright©2021, Springer Nature Limited.

ラー光波長と周期の関係を表している。周期はアイドラー光の片方が $2 \mu\text{m}$ に発生する周期を 0 とした場合の相対周期としている。図 2.6(a) が示すように PPSLT に対して 2-5 μm を最も効率よくカバーしうる最適なポンプ光はおよそ 750 nm であることがわかった。さらに、図 2.6(b) は各ポンプ光に対して相対周期 0 において非同軸過程を考えた場合の発生波長と発生角度の関係を表している。ポンプ光波長を 750 nm に設定した場合、発生角度 5 度以内でアイドラー光が赤外域 2-5 μm に発生することがわかった。図 2.7 は温度 25°C の PPSLT 結晶において最適なポンプ光波長 750 nm を用いた際の計算結果を表している。図 2.7(a) が示すように周期 $20 \mu\text{m}$ の結晶を用いた場合、シグナル光が 880 nm および 1280 nm に発生し、アイドラー光は $1.9 \mu\text{m}$ および $5.1 \mu\text{m}$ に発生する。また図 2.7(b) が示すように非同軸過程を考慮すると発生角度 5.2 度で同軸に発生する 2 つの解の波長の間をカバーする広帯域な発生が期待できる。

次に、PPSLT と似た性質を持つ PPLN 結晶についても、アイドラー光が赤外域 2-5 μm をカバーするような位相整合条件を計算した。図 2.8 に同様の計算を PPLN 結晶で行なった場合を示す。図 2.8(a) が示すように、ポンプ光波長 800 nm で結晶周期を $21 \mu\text{m}$ に設定するとアイドラー光として $2 \mu\text{m}$ と $5 \mu\text{m}$ とにそれぞれ位相整合し、それに対応するシグナル光は $0.94 \mu\text{m}$ と $1.37 \mu\text{m}$ とに発生する。さらにこの条件で非同軸過程を考えると、図 2.8(b) が示すようにアイドラー光が 5 度以内の放射角で赤外域 2-5 μm に発生する条件を満たすことがわかった。

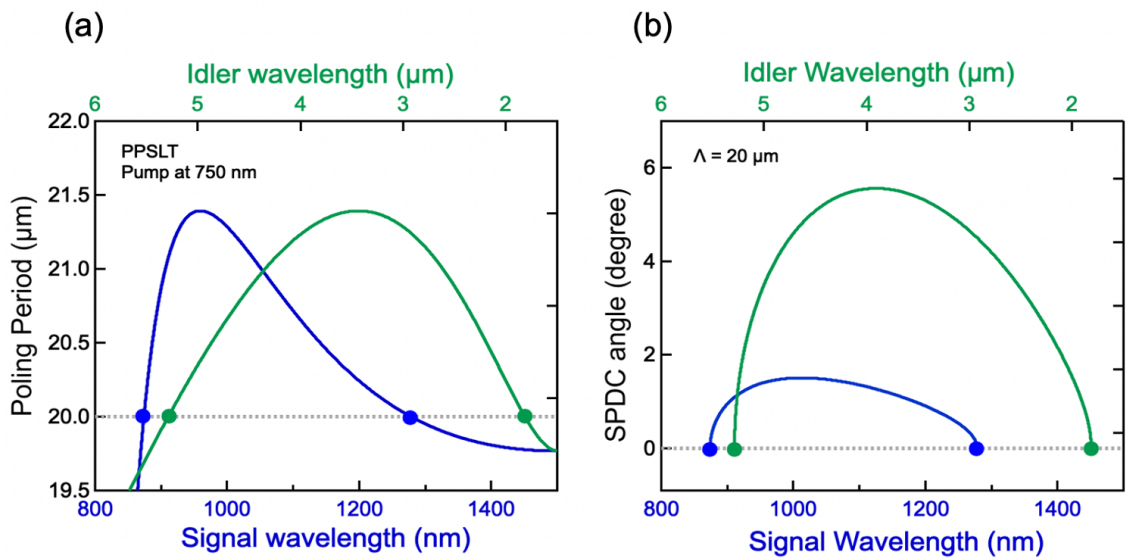


図 2.7: (a) ポンプ光波長 750 nm を用いた場合の擬似位相整合条件下における SPDC 波長と結晶周期の関係を表したグラフ。下の横軸はシグナル光の発生波長、上の横軸はアイドラー光の発生波長。周期を $20 \mu\text{m}$ に設定した場合の解を灰色の点線と曲線との交点で表している。(b) ポンプ光波長 750 nm、周期 $20 \mu\text{m}$ の場合の非同軸過程における発生波長と角度の関係。文献 [10] より転載。Copyright©2021, Springer Nature Limited.

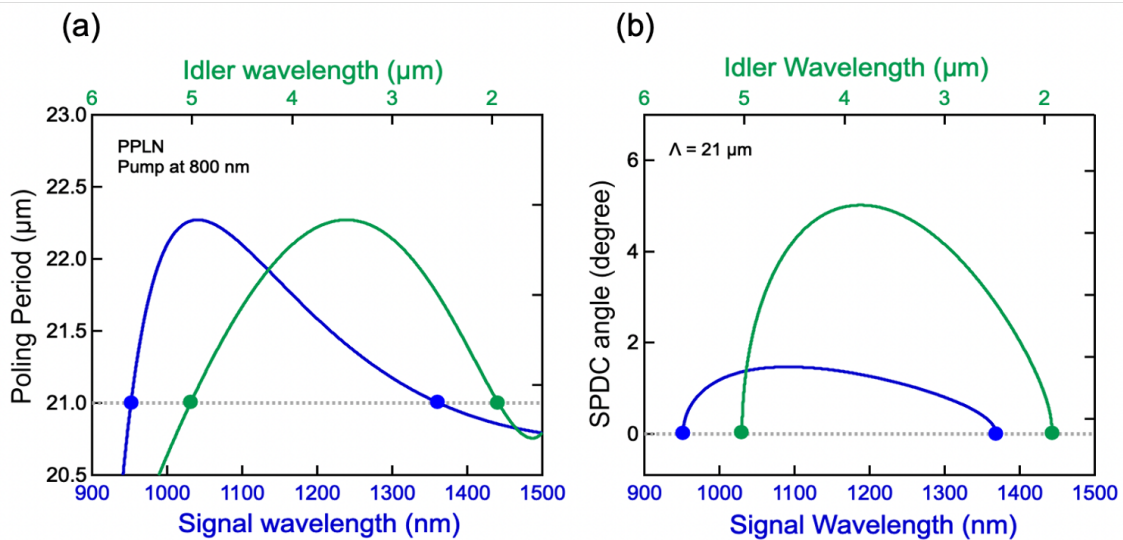


図 2.8: PPLN における (a) ポンプ光波長 800 nm を用いた場合の擬似位相整合条件下における SPDC 波長と結晶周期の関係を表したグラフ。下の横軸はシグナル光の発生波長、上の横軸はアイドラー光の発生波長。周期を $21 \mu\text{m}$ に設定した場合の解を灰色の点線と曲線との交点で表している。(b) ポンプ光波長 800 nm、周期 $21 \mu\text{m}$ の場合の非同軸過程における発生波長と角度の関係。文献 [10] より転載。Copyright©2021, Springer Nature Limited.

2.2.2 同時 SPDC 過程のスペクトルシミュレーション

前節で示したように、ポンプ光波長と周期とを適切に選択することでシグナル光とアイドラー光の発生波長を調整することができることを明らかにした。しかし、実際の非線形過程では位相不整合の量に応じて変換効率が決まるので、実際のスペクトルは有限の幅をもって発生する。光源としての有用性を議論する上で、同時 SPDC 過程の場合の発生スペクトルを理論的に定式化し、シミュレーション計算によって予測することが重要である。先行研究において、ある微小振動数、波数ベクトルに発生するシグナル光強度は次のような式で表される [44]。

$$dP_s = \frac{\hbar\omega_s^2\omega_iL^2d^2P_p}{4\pi^3c^3\varepsilon_0n_pn_s n_i} \text{sinc}^2\left[\frac{\Delta kz}{2}\right]d\omega_s d\mathbf{K}_s \quad (2.11)$$

ここで、 ω_j および n_j ($j = p, s, i$) はポンプ光 ($j = p$)、シグナル光 ($j = s$)、アイドラー光 ($j = i$) の角周波数および屈折率である。 \mathbf{K}_s は光の波面方向における微小波数ベクトル要素であり、円柱座標を用いて $\mathbf{K}_s = k_{r,s}dk_{r,s}d\varphi$ と書ける。光の進行方向を軸とした軸周りの対称性から、 $\int d\varphi = 2\pi$ であることに注意する。さらに、シグナルの発生角度を θ_s とすると、 $\tan\theta_s = k_{r,s}/k_{z,s}$ である。また、 $dk_{r,s}$ は

$$dk_{r,s} = d\theta_s \frac{n_s\omega_s}{c} \frac{1}{\cos^2\theta_s} \quad (2.12)$$

と書ける。これを式 (2.11) に代入すると

$$dP_s = \frac{\hbar\omega_s^4\omega_i n_s L^2 d^2 P_p}{2\pi^2 c^5 \varepsilon_0 n_p n_i} \frac{\sin\theta_s}{\cos^3\theta_s} \text{sinc}^2\left[\frac{\Delta kz}{2}\right] d\omega_s d\theta_s \quad (2.13)$$

を得る。この式をある発生角度の範囲内で積分することで、その角度範囲内のリング上に発生した SPDC 光子のスペクトルを計算することができる。図 2.9 は 638 nm の光を用いて PPSLT 結晶を励起

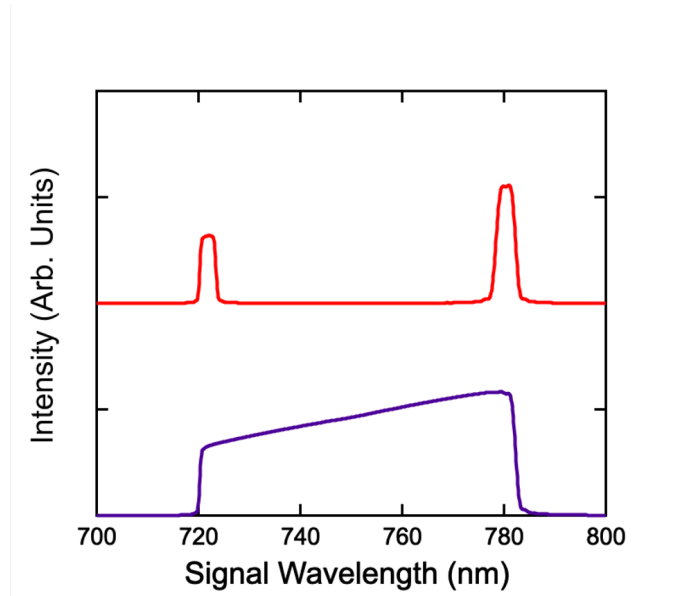


図 2.9: 638 nm のポンプ光を用いた場合の同時 SPDC 過程におけるシグナル光のスペクトルを 0-0.7 度 (紫) および 0-0.3 度 (赤) で計算したシミュレーション。

した場合の同時 SPDC 過程におけるシグナル光のスペクトルシミュレーションである。紫色と赤色

のスペクトルはそれぞれ 0-0.7 度および 0-0.3 度の角度範囲で式 (2.13) を積分したものである。このことから同時 SPDC 光子の発生角度を位相整合するすべての角度で集めると広帯域な光源となり、ある角度範囲に制限すると離散的な 2 つのピークを持つ光源となることが予測される。また、式 (2.13) を周波数について積分した値はシグナル光の強度に対応する。これを $\hbar\omega_s$ で割ると同時 SPDC 過程の光子対生成レートを得る。図 2.10 はポンプ光 638 nm、ポンプ光強度 50 mW に対して角度 0.7 度

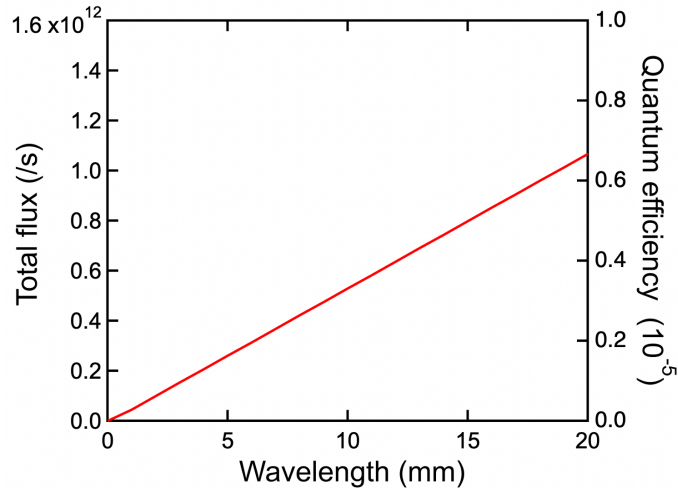


図 2.10: ポンプ光 638nm、角度範囲 0-0.7 度で積分した SPDC シグナル光の光子数と結晶長の関係。従来の SPDC 光子対と同様に、結晶長 L に対して線形の増加を示す。

以内に発生するシグナル光子の光子数を結晶長 L の関数として計算したものである。結晶長に対してほとんど線形の依存性を持つことがわかった。これはポンプ光子 1 つが 1 組のシグナル・アイドラーに分裂する従来の SPDC 過程と同様の性質である [32]。

2.3 実験

2.3.1 スペクトルの観測

理論的シミュレーションで予測される同時 SPDC 過程についてシグナル光を実際に観測することで実験的検証を行なった。以下では、ポンプ光 638 nm を PPSLT 結晶に入射した場合に可視域に発生しているシグナル光を測定した結果について述べる。図 2.11 に実験配置図を示す。ポンプ光として、発振周波数 638 nm、平均出力 50 mW の連続波レーザーダイオード (THORLABS 製) を用いた。このポンプ光を焦点距離 100 mm のレンズを用いて PPSLT 結晶に集光した。PPSLT 内でのポンプ光のビーム径は直径 100 μm 程度であった。PPSLT 結晶は $L=11$ mm、 $d=5$ mm で、ファンアウト型構造を採用しており、結晶をポンプの入射方向と垂直な方向にスライドさせることで、周期が $\Lambda_1 = 16.6\mu\text{m}$ から $\Lambda_2 = 18.3\mu\text{m}$ まで連続的に変化させることができる。また、結晶は温度コントローラにマウントされている。結晶後方では、焦点距離 200 mm のレンズによって平行光に戻され、発生したシグナル光のみを取り出せるように干渉ロングパスフィルター (LPF) を用いてポンプ光を遮断したのち、焦点距離 50 mm のレンズによってファイバー (ファイバーコア径 200 μm) にカップリングさせ、Si ベースの小型 CCD 分光器 (Ocean Optics 製) で検出した。また、結晶後方において結晶の中心から

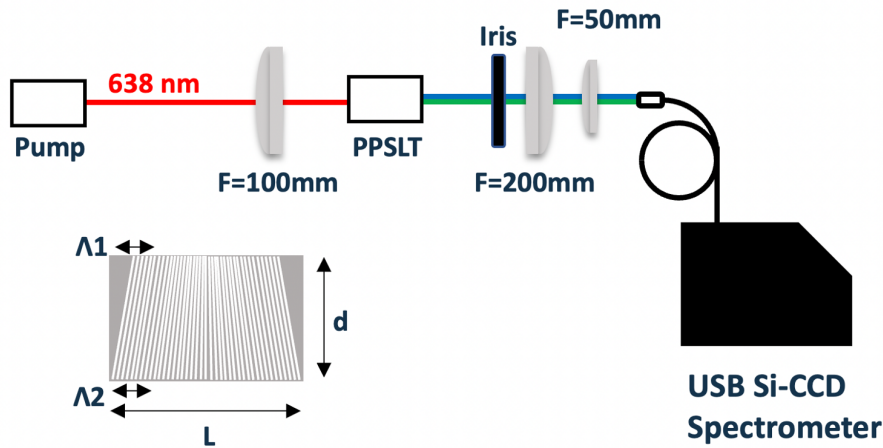


図 2.11: 同時 SPDC 過程によるシグナル光測定の実験配置図。ポンプ光：波長 638 nm、平均出力 50 mW。PPSLT 結晶は Fanout 型（図の挿入参照）を用いており、 $\Lambda_1 = 16.6\mu\text{m}$ 、 $\Lambda_2 = 18.3\mu\text{m}$ 。Iris によって光の発生角度を制御。

150 mm の位置にアイリスを設置し、平行光に戻す前のシグナル光の発生角度を制限可能にした。アイリスの半径を調整することで SPDC 過程の発生角度依存性を調べた。さらに、PPSLT 結晶をスライドさせることで周期依存性を調べた。アイリスの開口半径が r の場合に得られるスペクトル $I(\omega, r)$ に対して、幅 δr のリング状の領域に発生した信号

$$\delta I(\omega, r) = I(\omega, r + \delta r) - I(\omega, r) \quad (2.14)$$

を求めることにより、そのリング領域に含まれる非同軸過程のスペクトルの角度変化を調べた。図 2.12(a) に角度の範囲を変えて観測したスペクトルを示す。角度の制限をつけない場合、可視域 720-780 nm にブロードな放射およびその両端にピークを観測した。これらのピークは理論計算から予測される同軸条件における擬位相整合するシグナル光の波長と一致しており、その間を埋めるブロードなスペクトルは非同軸過程による放射に対応していると考えられる。さらに、アイリスで検出するシグナル光の放射角度を変えていながら同様にスペクトルを計測した。図 2.12(a) のように同軸条件のみ (0-0.3 度) を取り出した場合、2 つの離散的なピークを持つスペクトルが得られた。観測する角度の範囲をずらしていくと、角度を大きくするにつれてピークの間隔が狭くなり、0.66-0.7 度では 2 つのピークの区別がつかない単体のスペクトルへと変化した。これは位相整合曲線の極値の部分に対応し、同時過程の起きない縮退解に相当する。また、得られたスペクトルと理論計算を比較するため、理論シミュレーションの結果を図 2.12(b) に示す。それぞれ実験と同様の角度範囲で式 (2.13) を積分した結果、実験スペクトルとよく一致したピーク位置を有するスペクトルが得られた。このことから、式 (2.13) の妥当性および同時 SPDC 過程の存在を裏づけた。次に、同軸条件に対して、結晶周期を変化させた場合のスペクトルについて同様の実験を行なった。図 2.13(a) は周期を変えた場合に観測したスペクトルである。図 2.12(a) と同様に、周期を変えることで 2 つの離散的なピークを持つスペクトルの間隔が変化した。この周期を用いて同軸条件のみで計算した理論シミュレーションを図 2.13(b) に示す。角度変化の場合と同様に、実験スペクトルとよく一致したピーク位置を有するスペクトルが得られた。

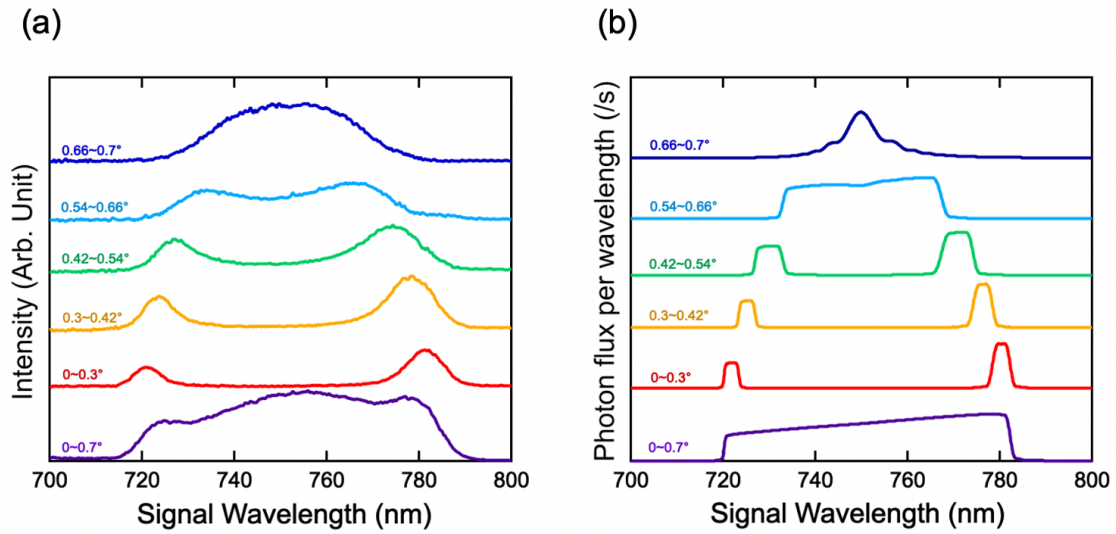


図 2.12: (a) 観測したシグナル光のスペクトルの角度依存性。周期を $16.9 \mu\text{m}$ に設定。0-0.7 度の範囲で角度をつけない場合は広帯域なスペクトルが得られた。(b) 式 (2.13) を用いて計算したシグナル光のスペクトルの角度依存性。文献 [10] より転載。Copyright©2021, Springer Nature Limited.

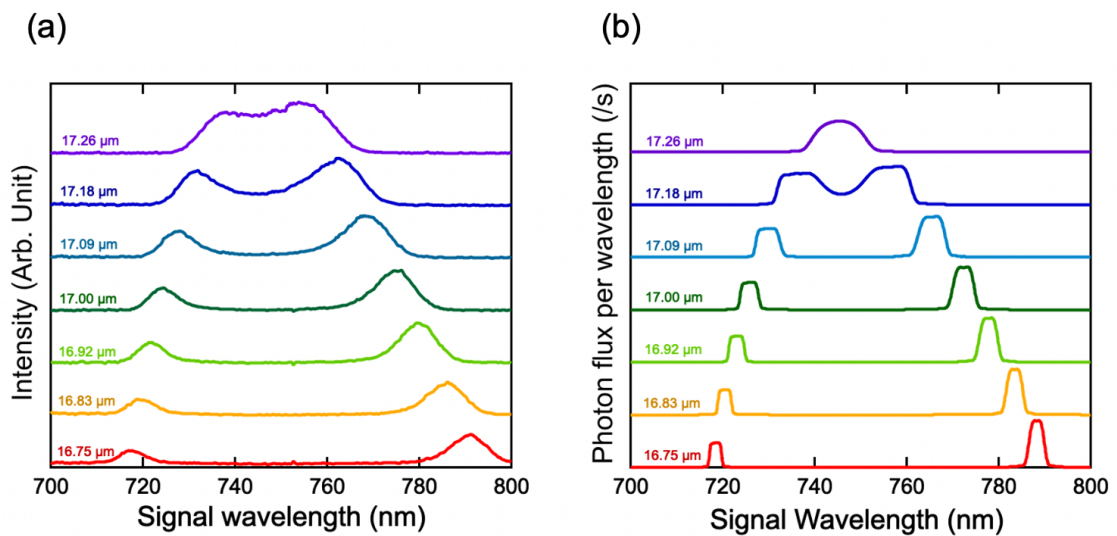


図 2.13: (a) 観測したシグナル光のスペクトルの結晶周期依存性。角度範囲を 0-0.3 度に設定。周期を変えることでスペクトルのピーク位置も変化。(b) 式 (2.13) を用いて計算したシグナル光のスペクトルの結晶周期依存性。文献 [10] より転載。Copyright©2021, Springer Nature Limited.

2.3.2 量子効率の見積もり

本節において、ほとんど同軸方向に発生した広帯域 SPDC 光子対の発生効率 η_{SPDC} について考える。角度制限をつけない場合の広帯域スペクトルに対して、各 CCD アレイで検出されたカウント数の総和 $5.9 \times 10^7/s$ と検出器の効率 80(photon/count) を用いて検出された光子数は $4.48 \times 10^9/s$ と見積もられる。さらに、PPSLT 結晶の透過率 (85%)、フィルターの透過率 (75%)、分光器内の回折格子の回折効率 (45%) から、結晶での発生光子数は $1.4 \times 10^{10}/s$ と見積もられる。次に、式 (2.13) を用いて発生光子数の理論値を計算する。今回用いた実験条件として、入力光 50 mW (光子数 1.6×10^{17})、非線形光学定数 $d = 15 \text{ pm/V}$ [43]、発生角 $\theta = 0.7$ 度、結晶長 $L = 11 \text{ mm}$ を代入すると、 5.82×10^{11} となる。実験と理論を比べると実験で観測された光子数が 1 桁小さいという結果であるが、これは分光器へのカップリングに用いているファイバーへの導入ロス (70%) および Fanout 構造によるロス (40%) などが主な原因と考えられる。これらのロスを考慮に入れると、理論値と桁の良い一致を示している。また、先行研究で高輝度を目的とした SPDC 光子対発生報告 [45, 46] においては導波路を用いて強度を高くポンプ光を閉じ込めることで 10^{11} 程度の SPDC 光子対を発生させており、それに匹敵する高輝度を保ちながら広帯域を両立した結果と言える。

2.4 結論と展望

第 2 章では Type-0 の同時 SPDC 過程の存在を理論的に示し、広帯域赤外光源としての可能性を明らかにした。さらに最適なポンプ光波長を計算した結果、PPSLT に対して 2-5 μm を最も効率よくカバーする最適なポンプ光が 750 nm であることがわかった。この場合、発生角度 5 度以内でアイドラー光が赤外域 2-5 μm に発生することを明らかにした。さらに PPLN の場合についても同様の計算を行い、ポンプ光波長 800 nm で結晶周期を 21 μm に設定するとアイドラー光の 5 度以内の放射角で赤外域 2-5 μm に発生することも明らかにした。このことから先行研究でも重要視されている 2-5 μm の赤外領域をほとんど同軸な過程のみでカバーする高輝度かつ広帯域な光源の可能性を示した。

実験では可視域に発生したシグナル光の発生角度と PPSLT 結晶の周期に焦点を当て、発生スペクトルの角度依存性および周期依存性を観測した。その結果、同軸に制限した場合には 720 nm と 780 nm に離散的な 2 つのピークを持つ特徴的なスペクトル形状を観測し、0.7 度以内の放射角度から集めることでピーク間の成分全てをカバーする広帯域スペクトルを観測した。これにより、対応するアイドラー光として 3.5-5.6 μm が発生可能な過程であることを実験的に裏付けた。また、発生光子数を見積もった結果、先行研究で高輝度化を報告した結果と同じレベルの光子数発生であることがわかった。このことから、広帯域かつ高輝度な光源としての有用性を実験的に裏付けた。

このように第 2 章において同時 SPDC 過程の発生条件の精査や実証実験を行った一方で、光子対間の光子統計などの量子力学的側面に関しては明らかにしていない。次章では同時 SPDC 光子対間の量子相関を測定するための実験に関する詳細を述べる。

第3章 周波数同期レーザーを用いた同時 SPDC 光子対の量子相関測定

前章において Type-0 の同時 SPDC 過程の存在および赤外域をカバーする広帯域光源としての有用性を理論と実験の両側面から示した。しかしながら、光源としての特性だけでなく2つの光子対のいずれかが1つの光子から発生するという「同時性」に由来する量子的特性も重要である。赤外域と可視域に分裂した光子間の同時測定を行うためには、その帯域において高速の光子数計測が必要となる。可視域では APD などの汎用的な検出機が存在する一方で、赤外域においては感度やノイズレベル、応答速度の点で技術的制約が存在する。本実験では赤外上方変換と呼ばれる赤外域から可視域への波長変換技術を用いて、赤外光子を可視光子にコヒーレントかつ高効率に変換することで可視域の検出器のみで同時計測を行う系を構築した。高効率な変換には SPDC 光子対と赤外上方変換用のポンプ光源の両者が高い尖頭値を持つパルス光源である必要があった。そこで、発生と検出を統合的に行うレーザーシステムを開発した。光ファイバーベースのパルスオシレーターとチャープパルスアンプ法を組み合わせることで、市販の光源にはないパルス幅を 5 ps 程度の十分短い幅に保ちながらスペクトル幅もフーリエ限界に近いパルス光源を実現した。これにより変換効率 30 % 程度の高効率な赤外上方変換システムを構築した。さらに、波長の異なるパルスを真空間で重ねるためにオシレーター間の注入同期法を採用し、同時 SPDC 発生と赤外上方変換のそれぞれに用いる発振波長の異なる2つのパルスオシレーターの繰り返し周波数を同期させることに成功した。これにより同時 SPDC 光子対間の量子相関の測定に初めて成功した。本章では 3.1 節において、マクスウェル方程式をもとに赤外上方変換の定式化を行い、高効率変換の一般的な条件を概説する。さらに先行研究の事例として赤外上方変換技術を用いて赤外域に発生した光子対の相関や量子現象を計測した例を紹介する。3.2 節において、赤外上方変換を高効率に行うためのポンプ光源として開発した光ファイバーをベースとしたパルスオシレーターについて詳細を説明する。さらに発生と検出にそれぞれ用いる2つのパルス光源の繰り返し周波数を同期させるための注入同期法をコア技術として紹介する。3.3 節において、実際に発生と検出を組み合わせで行った同時 SPDC 光子対の同時測定における実験原理および実験結果を解説する。特に、量子力学でのみ記述される量子相関に言及し、相関状態の純度を調べる指標を用いて本結果を評価する。3.4 節において、本論文が量子もつれ状態生成の手法に対して見出した課題と目的を述べる。

3.1 背景

上述のように、赤外域において微弱な光を半導体検出器で直接検出することは難しい。また検出器の応答速度の点から飛来時刻を時間分解しての光子数計測が難しいため、赤外域における光子の統計的性質を測定することができなかった。このような課題を解決する手法の1つとして、赤外光を可視光に高効率に変換し、高感度かつ高速な可視域検出器で光子数計測する赤外上方変換 (UPC) 検出器が注目されてきた [8, 9, 47, 48, 49, 50]。UPC による高効率な波長変換は光子の相関や量子性

を保ったままコヒーレントに赤外光子を可視光子の変換するため、赤外光子数計測を可能にする新規の技術として有用である。以下では UPC 技術の基礎をなす 2 次の非線形光学現象である和周波発生について詳細を述べる。

3.1.1 SFG（和周波発生）

本節では SFG に焦点を当てて波動方程式を計算し、どのような条件下で SFG が発生するのかを理論的に導出する。

非線形光学過程の伝搬方程式

以下では Maxwell 方程式

$$\nabla \cdot (\varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(2)}) = 0 \quad (3.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (3.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (3.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \frac{\partial (\varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(2)})}{\partial t} \quad (3.4)$$

から SFG に必要な非線形分極を定式化する [32, 47]。 $\mathbf{P}^{(1)}$ は線形分極、 $\mathbf{P}^{(2)}$ は 2 次の非線形分極である。これらの誘起される分極が空間的に等方である場合、 $\nabla \cdot \mathbf{P}^{(1)} = \nabla \cdot \mathbf{P}^{(2)} = 0$ と書けるので、式は 1 つの波動方程式に帰着できて、

$$(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}) \mathbf{E} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(2)}) \quad (3.5)$$

を得る。ここで、電場および分極のフーリエ変換

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega) e^{-i\omega t} \quad (3.6)$$

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \tilde{\mathbf{P}}(\mathbf{r}, \omega) e^{-i\omega t} \quad (3.7)$$

を波動方程式 (3.5) に代入して、線形の複素感受率 $\chi = \text{Re}[\chi] + i\text{Im}[\chi]$ を $n^2 \simeq 1 + \text{Re}[\chi]$ 、 $\sigma \simeq \varepsilon_0 \omega \text{Im}[\chi]$ とおくと、

$$(\nabla^2 + i\mu_0 \sigma \omega + \frac{n^2 \omega^2}{c^2}) \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega) = -\mu_0 \omega^2 \tilde{\mathbf{P}}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega) \quad (3.8)$$

を得る。非線形効果が摂動の範囲で起きるとすると、その電場振幅の変化は小さい。すなわち、 z 方向に伝播する平面波

$$\mathbf{E}(z, t) = \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega) e^{ikz - i\omega t} + c.c.$$

を解に持つと考え、以下の近似

$$\begin{aligned} \left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega) \right| &\ll k \left| \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega) \right| \\ \left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega) \right| &\ll \mu_0 \sigma \omega \left| \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega) \right| \end{aligned} \quad (3.9)$$

を仮定する。これをもとに、吸収係数 $\alpha_i = (\sigma/\varepsilon_0 cn_i)$ および真空の特性インピーダンス $Z_0 = \sqrt{\mu_0/\varepsilon_0}$ を用いて、式 (3.8) から特定の偏光成分に限定したスカラー場における伝搬の基礎方程式

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{\alpha_i}{2}\right)\tilde{E}_i(z, \omega_i) = i\frac{Z_0\omega_i}{2n_i}\tilde{P}_i^{(2)}(z, \omega_i)e^{-ikz} \quad (3.10)$$

が導かれる。さらに、規格化された電場成分 ($i = 1, 2, 3$)

$$\tilde{A}_i(z, \omega_i) = \sqrt{\frac{n_i}{\omega_i}}\tilde{E}_i(z, \omega_i) \quad (3.11)$$

およびそれらから作られる 2 次の非線形分極成分

$$P_1^{(2)}(z, t) = \varepsilon_0 d_{eff} \tilde{E}_3(z) \tilde{E}_2^*(z) e^{i(k_3 - k_2)z - i\omega_1 t} + c.c. \quad (3.12)$$

$$P_2^{(2)}(z, t) = \varepsilon_0 d_{eff} \tilde{E}_3(z) \tilde{E}_1^*(z) e^{i(k_3 - k_1)z - i\omega_2 t} + c.c. \quad (3.13)$$

$$P_3^{(2)}(z, t) = \varepsilon_0 d_{eff} \tilde{E}_1(z) \tilde{E}_2(z) e^{i(k_1 + k_2)z - i\omega_3 t} + c.c. \quad (3.14)$$

を式 (3.10) にそれぞれ代入することで 3 つの方程式

$$\left(\frac{d}{dz} + \frac{\alpha_1}{2}\right)\tilde{A}_1 = i\gamma\tilde{A}_3\tilde{A}_2^* e^{i\Delta kz} \quad (3.15)$$

$$\left(\frac{d}{dz} + \frac{\alpha_2}{2}\right)\tilde{A}_2 = i\gamma\tilde{A}_3\tilde{A}_1^* e^{i\Delta kz} \quad (3.16)$$

$$\left(\frac{d}{dz} + \frac{\alpha_3}{2}\right)\tilde{A}_3 = i\gamma\tilde{A}_1\tilde{A}_2 e^{-i\Delta kz} \quad (3.17)$$

が導かれる。ここで、 $i = 1$ はポンプ光、 $i = 2$ は入力光、 $i = 3$ はポンプ光と入力光の和周波に対応しており、 $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2$ である。 Δk は位相不整合と呼ばれる。また、

$$\gamma = \frac{d_{eff}}{c} \sqrt{\frac{\omega_1\omega_2\omega_3}{n_1n_2n_3}} \quad (3.18)$$

である。このようにして導出された伝播方程式において、簡単のためポンプ光が入力光に比べて十分強く、SFG 過程の前後でその強度が変化しない ($\tilde{A}_1(z) = \tilde{A}_1(0)$) ことを仮定する。また、いずれの光も非線形結晶の透明領域内にあるとする。このとき 3 つの方程式 (3.15)-(3.17) は以下の微分方程式

$$\frac{d}{dz}\tilde{A}_2 = i\gamma\tilde{A}_3\tilde{A}_1^* e^{i\Delta kz} \quad (3.19)$$

$$\frac{d}{dz}\tilde{A}_3 = i\gamma\tilde{A}_1\tilde{A}_2 e^{-i\Delta kz} \quad (3.20)$$

に簡略化される。両辺を微分し、 \tilde{A}_2 を消去すると、

$$\frac{d^2}{dz^2}\tilde{A}_3 + i\Delta k \frac{d}{dz}\tilde{A}_3 + \gamma^2|\tilde{A}_1|^2\tilde{A}_3 = 0 \quad (3.21)$$

を得る。これを初期条件 $\tilde{A}_3(0) = 0$ 、 $\tilde{A}_2(0) = \tilde{A}_2$ のもとで解くと

$$\tilde{A}_3 = i\gamma\tilde{A}_1\tilde{A}_2 e^{-\frac{i\Delta kz}{2}} \frac{\sin \sqrt{\Delta k^2 + 4\gamma^2|\tilde{A}_1|^2}z/2}{\sqrt{\Delta k^2 + 4\gamma^2|\tilde{A}_1|^2}/2} \quad (3.22)$$

となる。さらに SFG 光の強度

$$I_3(z) = \frac{\omega_3}{2Z_0}|\tilde{A}_3|^2 \quad (3.23)$$

に上記で求めた解を代入して、

$$I_3(z) = \frac{2Z_0\omega_3}{\omega_1\omega_2} \gamma^2 z^2 I_1 I_2 \operatorname{sinc}^2 \left[\frac{1}{2} \sqrt{\Delta k^2 + (8Z_0\gamma^2 I_1/\omega_1)z} \right] \quad (3.24)$$

を得る。ただし、 $\operatorname{sinc} x = \sin x/x$ である。式 (3.24) は SFG の発生強度が非線形結晶内での伝搬距離、ポンプ光と入力光の強度、対応する非線形感受率の大きさおよび位相不整合で決まることを意味している。 $I_3(z)$ は $\Delta k = 0$ において大きな値が取れることから $\Delta k = 0$ を SFG における位相整合条件という。また、 $\Delta k = 0$ が成り立たない光の組み合わせの場合、 $I_3(z)$ の大きさが相互作用長 z に対してある一定値 L_c までは増加するが、その後は減少と増加をある範囲で繰り返す。このような振る舞いは結晶長 L を L_c 以上に長くすることに意味がないことを表しており、 L_c を非線形過程におけるコヒーレンス長と呼ぶ。これらの定式化はエネルギー保存則と波数ベクトル保存則に基づいて対応する光の波長などを入れ替えることにより差周波発生にも適応可能である。また、強度を光子数に変換して変換前と変換後の光子数比をとることにより変換効率の理論式を得られる。

$$\phi(z) = \frac{2Z_0}{\omega_1} \gamma^2 z^2 I_1 \operatorname{sinc}^2 \left[\frac{1}{2} \sqrt{\Delta k^2 + (8Z_0\gamma^2 I_1/\omega_1)z} \right] \quad (3.25)$$

この式から、位相整合条件下においてポンプ光強度および結晶長を大きくすることで高い変換効率を得られることがわかる。

3.1.2 赤外上方変換 (UPC)

高強度なポンプ光によって励起される SFG 過程はその変換効率を 1 に近づけることが可能である。高効率な UPC は赤外光をほとんど損失なく可視光に変換することを意味する。可視光に変換された赤外光は可視域用の検出器で検出可能となるため、高効率な UPC を利用することで赤外域における検出器や光学素子などの技術的制約が解消される [8, 9, 47, 48, 49, 50]。ここでは赤外計測技術の重要性および問題点を精査し、先行研究における UPC の意義や位置付けを説明する。

従来の赤外光検出法

赤外領域は多くの分子の振動モードや回転モードなどが存在することから「分子の指紋」と呼ばれ、この領域における分光法の発展は基礎技術と応用の両側面で重要である。汎用的に用いられてきた赤外分光法としてフーリエ変換型赤外分光法 (FTIR) がある [51]。図 3.1 に FTIR の概念図を示す。熱光源による広帯域赤外光をビームスプリッタで 2 つの進路に分け、片方に時間遅延を与える。もう片方の進路に対象の物質を挿入し、ビームスプリッタで再び合波された赤外光同士の Michelson 干渉波形からパワースペクトルを得ることが可能である。以下に、Michelson 干渉計によって得られる赤外光源の自己相関関数に対してフーリエ変換を用いることでパワースペクトルを導出する過程を示す。サンプルがない場合、時間遅延が τ の電場が干渉して生じる強度信号は

$$\begin{aligned} I(\tau) &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} dt |E(t) + E(t + \tau)|^2 \\ &= \langle |E(t) + E(t + \tau)|^2 \rangle \end{aligned} \quad (3.26)$$

である。ここで、積分 $\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} dt$ は時間平均を表し、 $\langle \rangle$ と書く。 $\langle \rangle$ の中を展開すると

$$\langle |E(t) + E(t + \tau)|^2 \rangle = \langle |E(t)|^2 \rangle + \langle |E(t + \tau)|^2 \rangle + 2\langle E(t)E(t + \tau) \rangle \quad (3.27)$$

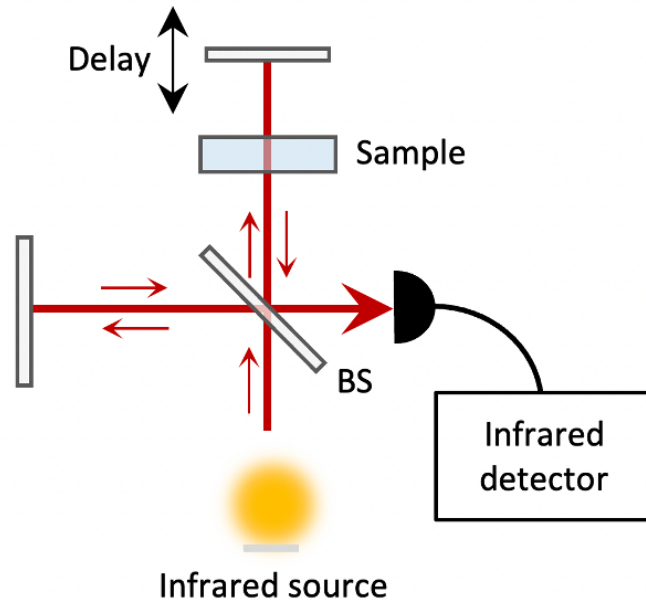


図 3.1: FTIR の概念図。Michelson 干渉計において、赤外光をビームスプリッタによって分けて片方の赤外光の位相を掃引し、残りの赤外光と干渉させたその波形をフーリエ変換することでスペクトルを得る。

となる。電場周期より長い時間平均をとると、第 1 項、第 2 項は定数とみなせる。第 3 項 $\langle E(t)E(t+\tau) \rangle$ は電場の自己相関関数 $C_A(\tau)$ と呼ばれる。この自己相関関数をフーリエ変換

$$\begin{aligned}
 f(t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \tilde{f}(\omega) e^{-i\omega t} \\
 \tilde{f}(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt f(t) e^{i\omega t}
 \end{aligned}
 \tag{3.28}$$

によって変換すると、

$$\begin{aligned}
 \tilde{C}_A(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle |E(t)E(t+\tau)| \rangle e^{i\omega\tau} \\
 &= \langle E(t) \int_{-\infty}^{\infty} d\tau E(t+\tau) e^{i\omega\tau} \rangle \\
 &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} dt E(t) \tilde{E}_T(\omega) e^{-i\omega t} \\
 &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \tilde{E}_T(-\omega) \tilde{E}_T(\omega)
 \end{aligned}
 \tag{3.29}$$

を得る。ここで、電場関数は区間 $[-T/2, T/2]$ でのみ値を持つとし、積分区間を $[-\infty, \infty]$ とした。また、 \tilde{E}_T が実数であることから、 $\tilde{E}_T(-\omega) = \tilde{E}_T^*(\omega)$ に注意すると、

$$\tilde{C}_A(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{|\tilde{E}_T(\omega)|^2}{T}
 \tag{3.30}$$

が導かれる。このように、電場の自己相関のフーリエ変換はパワースペクトルを表す。これをウィナーヒンチンの定理という。片方の経路にサンプルが存在する場合はそのサンプルのスペクトル情報がパワースペクトルに表れることになる。

FTIR では干渉波形を得るための経路差の掃引が分解能を決めており、波長選択を行うことなく広い赤外領域で分光できるというメリットがある。その一方で用いられている赤外光源の集光性が悪い、掃引に時間がかかる、検出器の熱雑音により感度が低い、光子数レベルの検出ができない、応答速度が遅いなど、多くの課題もある。検出器に関する問題は FTIR においてのみならず、赤外計測技術全般における大きな課題であり、高感度化・高速度化が重要な要素である。特に、光子数レベルの赤外光を検出することは黒体輻射や検出器そのもののダークカウントがバックグラウンドノイズとなってその検出を妨げる。これらの問題点はすべて赤外域と可視域での 1 光子あたりのエネルギーの大きさの違いや黒体輻射のようなノイズによる技術的発展の差に起因する。そこで、赤外光を可視光にコヒーレントかつ高効率に変換することによって赤外光を可視光として検出する技術が目ざされてきた。

UPC 赤外光検出法

1968 年、J. E. Midwinter は LN 結晶を用いて $1.6 \mu\text{m}$ の赤外光を可視光に変換して検出したことを報告した [9]。同年、J. Warner は淡紅銀鉱と呼ばれる指紋領域でも透明性の高い非線形結晶を用いて $10.6 \mu\text{m}$ の赤外光を可視光に変換することに成功した [8]。この時点での UPC 変換効率は 10^{-6} 程度であり、微弱な赤外光を検出することや光子統計の性質を測定することは以前課題のままであった。これは第 1 章で述べた変換効率のポンプ光強度依存性が示すように、通常 CW レーザー光を用いた変換過程であったため高効率変換には至らなかった。また、CW 光の場合はインコヒーレントな熱ノイズなども変換してしまうために変換後にもノイズが混ざるといった問題点も依然としてあった。その後、モードロックパルスレーザー光源の発展により変換過程をパルス幅の時間範囲内に限定することで、ノイズを大きく低減しながら大きなピーク強度を用いた高効率 UPC が可能となった。2017 年、S. Wolf らは差周波発生によって発生させた赤外パルス光を高強度なパルス光源によって UPC 変換することで、変換効率 0.8 を達成した [47]。図 3.2(a) は [47] において示された変換効率のパルスエ

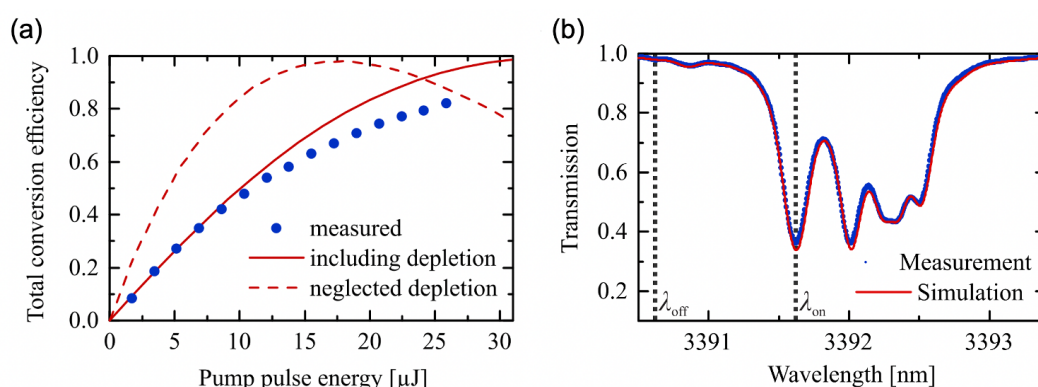


図 3.2: [47] において示された (a) 変換効率のパルスエネルギー依存性および (b) メタンの分光スペクトル文献 [47] より転載。Copyright©2017 by The Optical Society.

ネルギー依存性である。パルス幅 700 ps、繰り返し 1100 Hz の高強度なパルス光を用いて赤外光を変換しているため、理論曲線が示すよりも一致しながらほとんど 1 に近い変換効率まで高めることに成功している。また図 3.2(b) は UPC を用いたメタン (CH_4) の分光結果と既知の分光結果との比較である。測定されたスペクトルは FTIR によって測定された既知のスペクトルと非常にいい一致を示

しており、UPCによる分光の有用性を示す重要な結果である。また、ポンプ光強度を十分高めることで1に近い変換効率が得られることから、赤外光子の光子数計測という量子計測技術の基礎となりうることもわかった。さらに2019年、A. Barhらは非同軸過程を用いて位相整合条件を広帯域に広げ、3.6-4.85 μm の赤外光を分光したことを報告した[52]。図3.3は[52]において示された熱光源の広帯

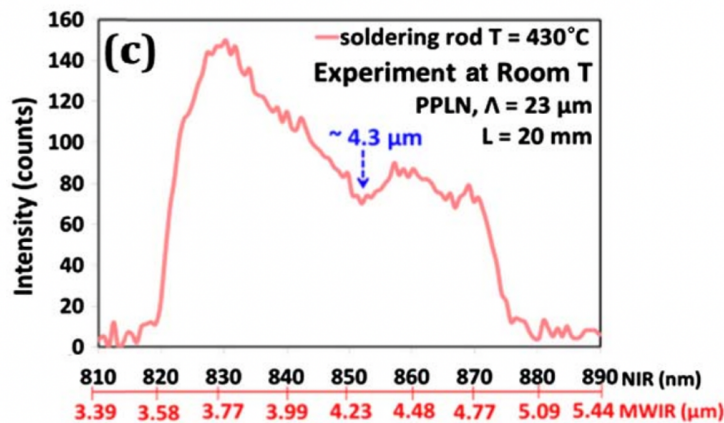


図 3.3: [52] において示された非同軸 UPC を用いた観測された広帯域分光スペクトル。文献 [52] より転載。Copyright©2017 by Optica.

域分光のスペクトルである。[47]では位相整合条件を変えながら測定領域を掃引していたが、[52]は短焦点レンズを用いて入射角度に幅を持たせ、位相整合条件そのものを広げることで UPC 検出器の課題である掃引時間の長さを克服した。2021年にはK. Huangらが光ファイバーベースのレーザーシステムを用いて赤外光の発生と検出を統合した光学系を構築し、世界で初めて光子数レベルの微弱な赤外光子に対して光子数計測を行い、赤外域における光子統計を実験的に観測した[48]。図3.4(a)は

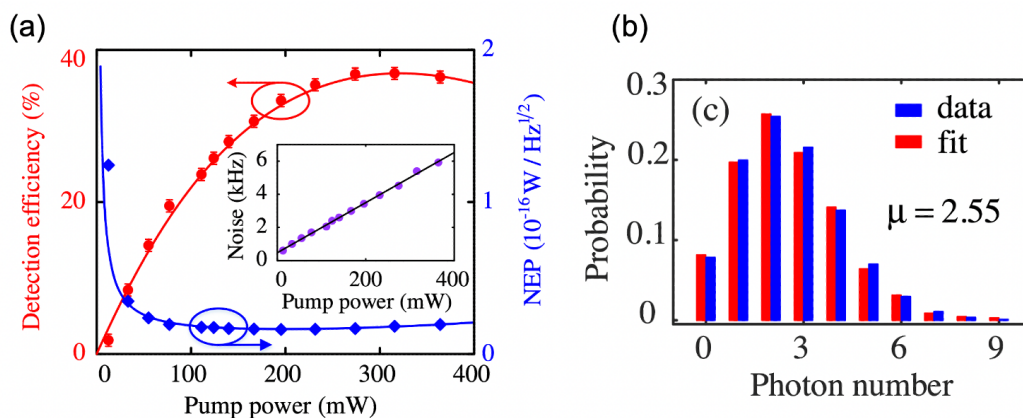


図 3.4: [48] において示された (a)UPC 検出系における検出量子効率のポンプ光強度依存性および (b)赤外光子の飛来数の統計分布。文献 [48] より転載。Copyright©2021 by Optica.

[48]において構築された UPC 検出系における検出量子効率のポンプ光強度依存性である。300 mWのポンプ光を用いることで可視検出器の量子効率などを含めたトータル量子効率が40%近くまで到達したことを報告した。これを用いて赤外光子の統計を測定した結果を図3.4(b)に示す。DFGと減

衰素子によって用意された光子数レベルの赤外光子はポアソン分布を示しており、Fitting とよい一致を示した。このように、従来の赤外光測定手法にとって替わる検出技術として UPC は多くの研究がなされてきた。高い量子効率による UPC 検出系はこのような赤外光の光子としての性質を明らかにするため、量子もつれなどの量子力学的に記述される光子状態の解明などにも有用であることが期待される。

3.1.3 UPC による量子相関ともつれ状態の計測

ここでは UPC による光子数計測の例をいくつか紹介する。2017 年、M. Mancinelli らは赤外域に発生した SPDC 光子対のシグナル光・アイドラー光を空間的に分離し、それぞれを UPC によって可視光子に変換して同時計測を行なった [50]。図 3.5(a) は SPDC 光子対発生と UPC 検出系を組み合わせ

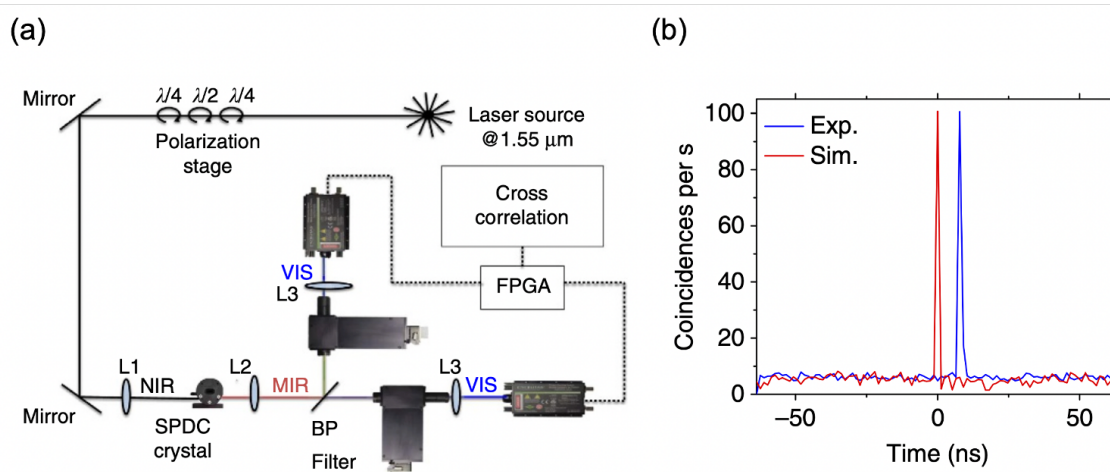


図 3.5: [50] において示された UPC を用いた赤外 SPDC 光子対の同時計測の (a) 実験概念図および (b) ヒストグラム。文献 [50] より転載。Copyright©2017, Springer Nature Limited.

せた赤外同時計測システムの概念図である。1.55 μm のポンプ光を用いて 3.34 および 2.89 μm に光子対を発生させ、それぞれに対して UPC を施すことで可視光子として同時計測した。図 3.5(b) は同時計測によるヒストグラムである。光子対の飛来を示す鋭いピークが観測され、赤外光同士の量子相関を観測した最初の報告として UPC の有用性を示す結果となった。また同年、Y. M. Sua らは可視域にシグナル光、赤外域にアイドラー光が発生するような条件で SPDC 光子対発生を行い、アイドラー光に対して UPC による光子数計測を実装し同時計測を行なった [49]。図 3.6(a) は実験の概念図である。ここでは UPC ポンプ光と繰り返し周波数が同期した SPDC ポンプ光を用意しており、パルスの SPDC 光子対を発生させている。SPDC 光子対 (780nm と 3950nm) を空間分離し、アイドラー光を UPC によって 650nm の可視光子に変換することでシグナル光子との同時測定が行われている。図 3.6(b) はシグナル光と UPC アイドラー光の同時計測のヒストグラムである。図 3.5(b) と同様にある時間範囲内に同時カウント数が得られ、光子対間の同時性を示した。この報告は波長が大きく分裂した光子対間にも量子的相関があることを示しており、赤外域での量子情報処理や量子センシングにおける光子対源としての SPDC 過程の意義を示した重要な結果となった。

さらに、量子もつれを示す重要な現象である HOM 干渉に UPC を用いた報告もある。2022 年、C. Yang らは SPDC 光子対の HOM 干渉実験において、光子数計測器の前に UPC 機構を導入し、SPDC 光

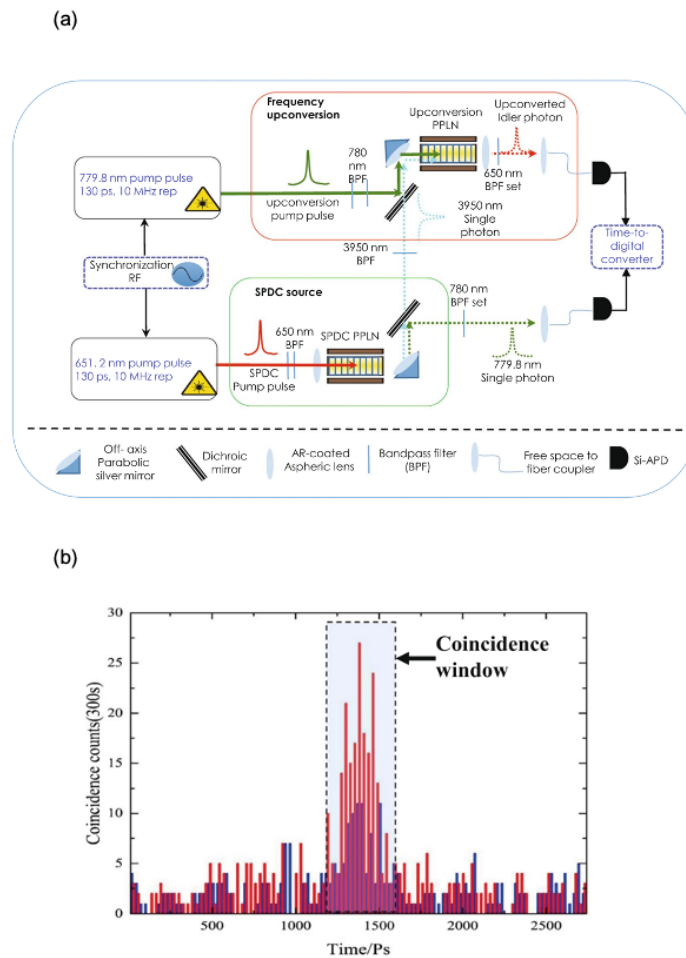


図 3.6: [49] において示された UPC を用いた赤外 SPDC 光子対の同時計測の (a) 実験概念図および (b) ヒストグラム。文献 [49] より転載。Copyright©2017, Springer Nature Limited.

光子対に波長変換を施して変換がない場合の干渉波形と比較した [53]。図 3.7(a) は UPC を用いた HOM 干渉の実験概念図である。シグナル光とアイドラー光を BS に入射したのち、同時計測用の光子数計測器の直前で UPC により短波長側に中心波長をシフトさせてから同時計測している。シグナル光とアイドラー光は縮退しており、UPC を施さない場合図 3.7(b) の a のような HOM 干渉波形を示す。それに対し、UPC によってシグナル光を短波長側に波長変換した場合を 3.7(b) の b に示す。光子対が波長変換によって光子数計測器の量子効率が高い波長領域に変換されたことによる明瞭度の改善だけでなく、UPC で位相整合する波長範囲によってスペクトルが擬似的に制限され干渉のコヒーレント長が大きくなり、測定精度が向上した。これにより、量子計測において UPC は単なる波長変換としてだけでなく量子性を保ちながら波長成形可能なフィルターとしての役割も果たすことが示された。

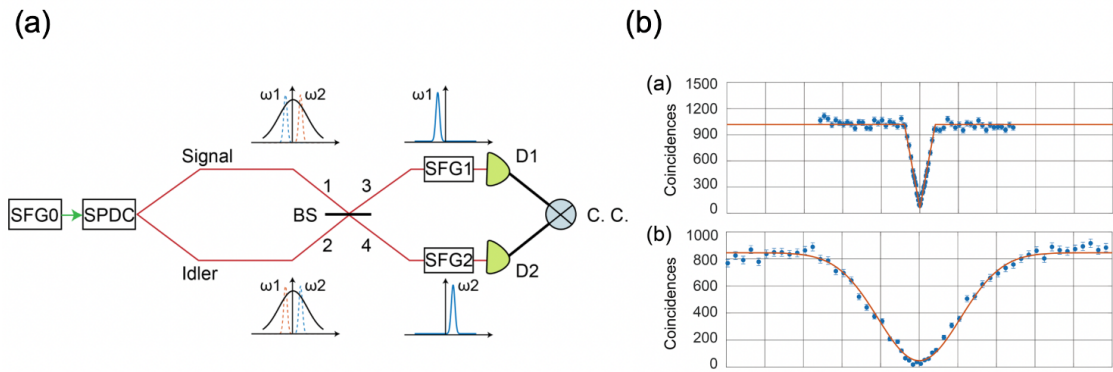


図 3.7: [53] において示された UPC を用いた HOM 干渉の (a) 実験概念図および (b) 観測された干渉波形。文献 [53] より転載。Copyright©2022 by the American Physical Society.

3.2 同期ファイバーレーザーシステムの開発

前述のように赤外光を高効率に可視域に変換するためには高強度なポンプ光が必要である。そのため、UPC ポンプ光としてパルス光源を用いることが有用である。UPC に混ざるノイズを排除するためには赤外光子も UPC のポンプパルス光と同期したパルス光であることが必要である。そこで我々は 2 台のファイバーレーザーを同期させた光源システムを開発した。Yb³⁺ 添加モードロックファイバーレーザー (YDFL) [54] と Er³⁺ 添加モードロックファイバーレーザー (EDFL) [55] を組み合わせ、繰り返し周波数が同期したレーザーシステムを開発することでパルス光源での同時 SPDC 光子対の発生と UPC による赤外光子検出を両立する系を構築した。ファイバーレーザーシステムはチタンサファイアレーザーなどの固体レーザーに比べ、スペクトル成形や光学系設計の自由度が高く、赤外上方変換で必要とされる高強度パルス光源の開発に適している。また、ファイバー長を変えることでレーザーキャビティの繰り返し周波数を調整しやすいという点でもファイバーレーザーは有用である。赤外域に発生した SPDC 光子を UPC によって可視域に変換することで光子数計測を行い、SPDC 光子対間の同時測定を行なった。本節の内容は東京大学物性研究所小林研究室の小林洋平教授、谷峻太郎助教との共同研究によるものである。

3.2.1 実験原理

本節では同時 SPDC 光子対を発生させるためのポンプ光波長および赤外光を赤外上方変換するための条件について述べる。第 1 章で述べたように、PPLN 結晶において小さい発生角度で最も広く赤外域をカバーするポンプ光波長は 750-800 nm である。そこで、Er³⁺ 添加モードロックファイバーレーザー (EDFL) の発生波長が 1560 nm 付近であることから、その 2 倍波をポンプ光として用いることができる。図 3.8 は PPLN 結晶に対して 780 nm のポンプ光を用いた場合の同時 SPDC 過程の位相整合条件である [11]。光子対間の量子相関を調べるには、シグナル光と赤外上方変換されたアイドラー光を光子数計測する必要がある。そのため、光子数計測器として汎用的に用いられているシリコンベースのアバランシェフォトダイオード (Si-APD) の測定可能領域 400-1050 nm にシグナル光の発生波長およびアイドラー光の変換波長を設計した。本研究では Si-APD のみが利用可能だったため測定可能領域は 400-1050 nm に限られるが、超電導ナノワイヤ単一光子検出器 (SSPD) を用いるこ

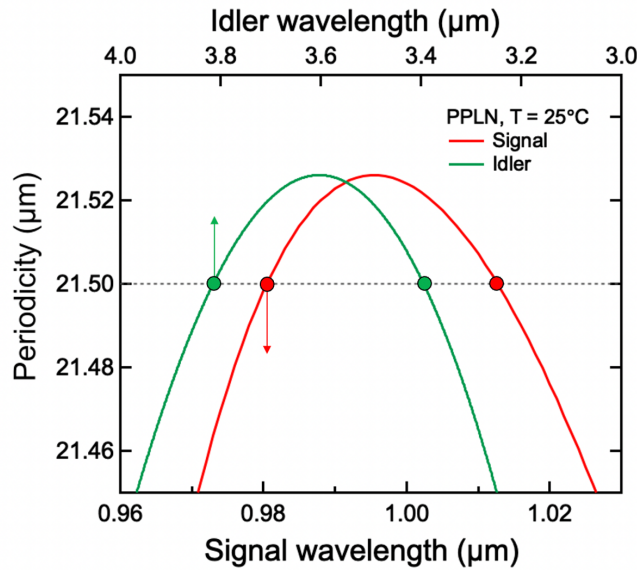


図 3.8: 780 nm のポンプ光を用いた場合の Type-0 同時 SPDC 過程の位相整合条件。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

とで通信帯域などの近赤外領域（1550 nm 付近）の光に対しても光子数計測可能になることに留意する [56, 57]。本実験では図 3.8 において点線と位相整合曲線の交点が示すように、980 nm と 3810 nm（ペア 1）および 1010 nm と 3400 nm（ペア 2）が発生する結晶周期 21.5 μm に設定した。図 3.9 は本実験全体の概念図である。上述のようにポンプ光として EDFL と YDFL の 2 種類があり、それぞれ繰り返しが同期しながらパルス動作している。EDFL の倍波によって励起された同時 SPDC 過程で発生したペア 1 およびペア 2 のシグナル光とアイドラー光はそれぞれダイクロミックミラー（DM）によって空間的に分離される。シグナル光はフィルターによってポンプ光などの余剰光を取り除いてから Si-APD にて光子数計測される。アイドラー光は再度 DM によって YDFL のポンプ光と時空間領域で合波され、UPC 結晶内で可視域に変換される。その後、同様のもう 1 台の Si-APD で光子数計測され、同時計測ではペア 1 かペア 2 のいずれかが同時イベントとして記録される。以下、ファイバーレーザーの仕組みや特性について説明する。

3.2.2 Yb³⁺ 添加モードロックファイバーレーザー（YDFL）

ファイバーオシレータの基礎機構

ここでは YDFL の概要について述べる [54]。図 3.10 に YDFL の構成要素を模式的に示す。中心波長 976 nm の連続波（CW）レーザーダイオード（最大出力 350 mW）を励起光として、反射型合波素子（WDM）を通じてオシレータ内に導入する。励起光は Yb³⁺ イオンが添加されたファイバー（YbDF）を伝搬し、Yb³⁺ イオンを励起する。Yb³⁺ イオンは図 3.11 に示すような吸収スペクトル、および発光スペクトル（THORLABS 社）を有し、その量子効率が 10 % 程度と他の希土類添加ファイバーに比べて高い [58]。このようにして励起された Yb³⁺ イオンは自然放出によって図 3.11 のような発光スペクトルを持つ光を放出する。適切な YbDF の長さはイオンの発光効率と再吸収との兼

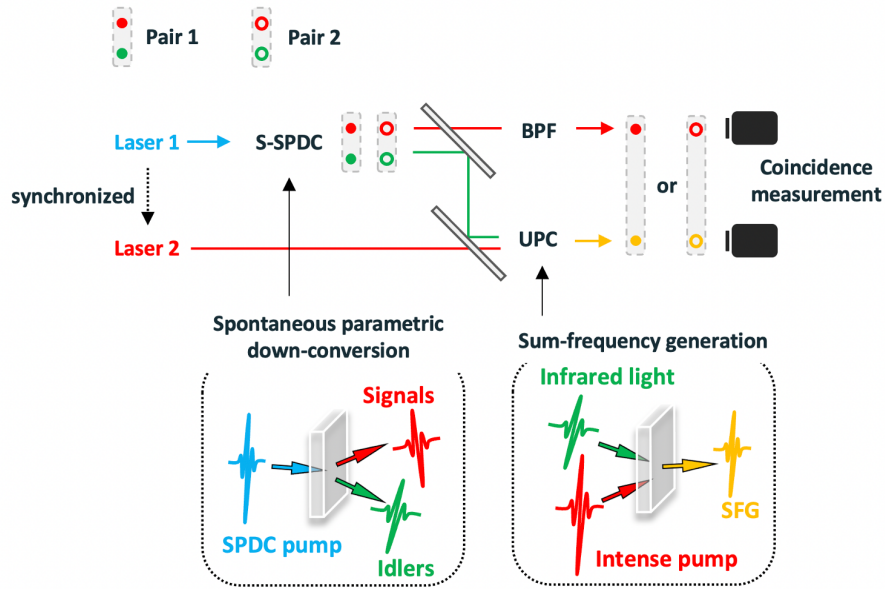


図 3.9: UPC と同時 SPDC 過程を組み合わせた相関光子対の同時計測の実験概念図。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

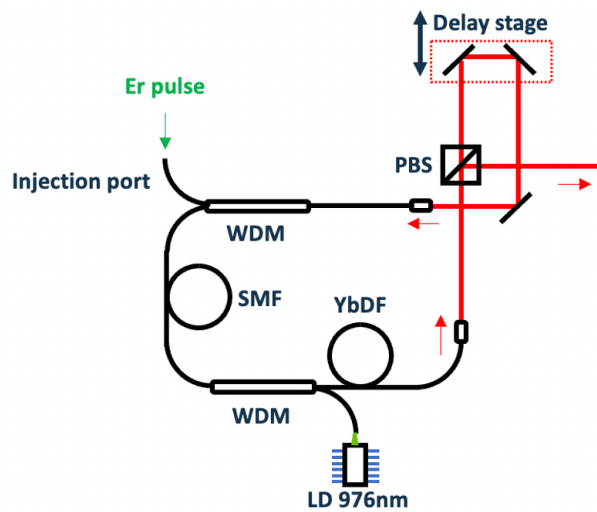


図 3.10: ファイバーオシレータの概念図。LD : レーザーダイオード、WDM : 反射型合波素子、SM : シングルモードファイバー、PBS : 偏光依存型ビームスプリッター。

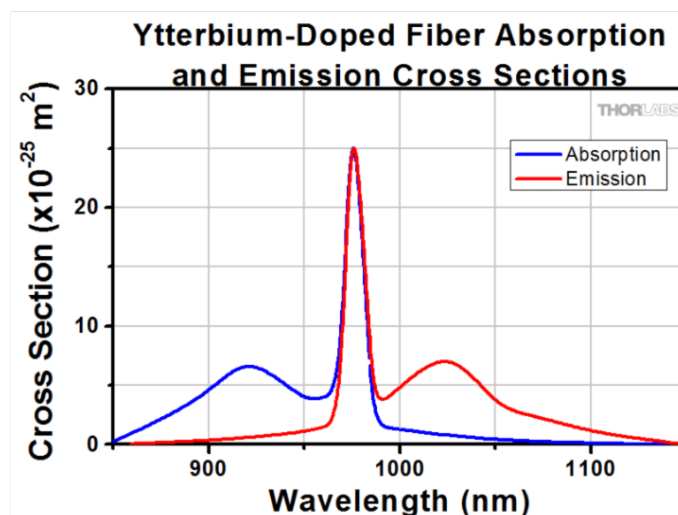


図 3.11: Yb³⁺ イオンの吸収・発光スペクトル。THORLABS 社ホームページより転載。

ね合いで決まり、経験則から 30 cm 程度である。その後、コリメータを通して自由空間に射出された光は偏光依存型ビームスプリッタ (PBS) によって、オシレータ外に出力される光とオシレータ内に閉じ込められる光とに分けられる。閉じ込められた光は再びコリメータを通してファイバーにカップリングされ、WDM の透過側に接続されている。このようにして、WDM、YbDF、コリメータ、PBS によって一連のオシレータが形成される。また、自由空間に直角プリズムと手動ステージからなる Delay ステージを設け、キャビティ長全体の調整を可能にしている。閉じ込められた光が再度 YbDF に入射すると、励起された Yb³⁺ イオンが誘導放出を起こす。これがオシレータ内を周回しながら誘導放出を繰り返すことにより、ある発振波長を有する CW 光が生じる。また、後述の注入同期法のため外部からキャビティ内にパルスを入力するための WDM を接続した。

非線形偏波回転によるモード同期

上述の発振状態では、PBS によって取り出されるのはある波長成分のみである。これは共振条件にあって尚且つコリメータを垂直偏光で出た光のみが PBS から取り出されるからである。このオシレータがモードロックパルスレーザーとして機能するためには 2 つの条件を制御する必要がある。1 つ目は偏光制御である。YbDF から広帯域に放射された光がキャビティを一周した際、同じ偏光で戻ってきた成分のみが共振してオシレータ内で生き残る。ここで、発振状態にある高強度な光はファイバーの非線形効果によって偏光とスペクトルが変化する。これを自己位相変調と呼ぶ。ファイバー内の 3 次の非線形効果により、屈折率が以下の式

$$n(I) = n_0 + n_1(I) \quad (3.31)$$

のように伝播する光の強度 I に比例した項を含んだ形に変化する [32]。これにより強度に応じて位相に変化が生じるため、強度の強い部分で光の偏光状態と振動数が変化する。特にこのような偏光状態の変化を非線形偏波回転と呼ぶ。ファイバーの非線形性を受けて成分ごとに偏光がばらつくことで離散的な一部の成分のみが発振条件を満たす。その結果、周回して同じ偏光をもつ成分のみが離散的に生き残り CW 光として発振する。ファイバーの非線形性による偏波回転に対して 1/2 波長板と

1/4 波長板を導入して偏光状態を精密に制御すると、広帯域の光が同時に偏光が揃うような組み合わせが存在する。2つ目は分散の補償である。モードロックファイバーレーザーのパルスがオシレータを周回する際の正味の分散値が正の場合、波長成分ごとの位相速度の差からパルスが安定に存在できず特定の波長成分のみが残り、結果として CW 発振状態となる。言い換えると、パルスが安定して存在する条件はオシレータを周回した際の正味の分散が 0 または 0 に近い負の値であることである [54, 59]。1030 nm 付近の光に対して SMF や YbDF は正の分散を持つため、オシレータ内に外部的に補償する機構を取り込む必要がある。オシレータ内で分散を補償する代表的な手法は 2 つある。1 つ目はグレーティングを使って波長ごとに光路差をつける方法である [59]。キャビティ内にグレーティングと PBS を組み合わせた分散補償機構を取り入れることで、周回中に適切な補償の条件にある場合にパルスが安定して存在できるというものである。2 つ目はバンドパルフィルタ (BPF) によって分散を大きく受けている中心波長から離れた成分を取り除く方法である [54]。これはパルスがファイバーの分散によってチャープ量が増していくと同時に非線形効果によってスペクトルも広がることを利用している。すなわち、BPF によって強度の強い部分のみが再度ファイバー内で自己位相変調によりそのスペクトルを広げ、時間とスペクトルが広がった部分が BPF によって取り除かれるという一連の操作において、パルスがキャビティを周回した際に同じスペクトル形状に戻る条件にある場合、パルスが安定して存在できるというものである。フィルタの角度を傾け、BPF の透過帯域を変えることで切り出すスペクトル形状の調整も行うことができる。本研究では後者の手法を用いて分散補償を行なった。図 3.12 に波長板と BPF を組み込んだオシレータの模式図を示す。自然放出光の逆流を防ぐため、アイソレータを用いている。この方式のオシレータは励起光強度が一定以上でないとパルス発振しないことが知られている。これはセルフスタートと呼ばれる。そこで、すべてのパーツを組み込んでから励起光強度を最大値の 350 mW まで上昇させ、3 つの波長板を調整することでモード同期する組み合わせを探した。最適な波長板の組み合わせでオシレータ内を周回可能となったパルスは最終的に PBS によって切り出され特徴的なスペクトルを形成する。図 3.13 は本研究で作成したオシレータの典型的なスペクトルを表している。1020 nm から 1050 nm にわたるブロードなスペクトルを有し、両端に 2 つのピークを持つ。このピークの位置やスペクトル幅はファイバーの長さや BPF の傾きで決まっており、ここでは 1030 nm にピークを持つよう調整した。この状態で励起光の出力を下げるとある値を境にモードロック状態が解除され CW 発振状態へと変化した。さらに、十分パワーを下げたのち再び上げていくと 250 mW を閾値にパルス発振した。また、発振状態の平均出力は 100 mW で、パルス幅は 2.5 ps、繰り返しは 79.6 MHz であった。

パルス成形とプリアンプ

Yb パルスを UPC のポンプとして用いるために、オシレータを出た後にいくつかの外的光学操作を追加で施した。UPC ポンプとして最適なパルスを用いるため、スペクトル幅およびパルス幅がそれぞれ十分狭くフーリエ限界に近いおよびポンプの強度そのものが十分高いパルスを形成するような条件を調べた。前述のように高強度なパルスはファイバーの非線形性によってスペクトルが広がるという特徴を有する。この現象はホワイトトレースなど広帯域光源 [60] としての有用性がある一方で、高強度かつ線幅の細かいパルスを利用する場合は抑制する必要がある。そのためファイバーを用いる高強度アンプにおいてはスペクトルの変形が起きないピーク強度の上限が存在する。一方でピーク強度はパルス幅の逆数に比例するため、パルス幅の短いパルスであるほど高い変換効率が期待できる点から、高強度かつスペクトル変形の起きないパルス幅の設計が重要な要素である。また、パルス幅

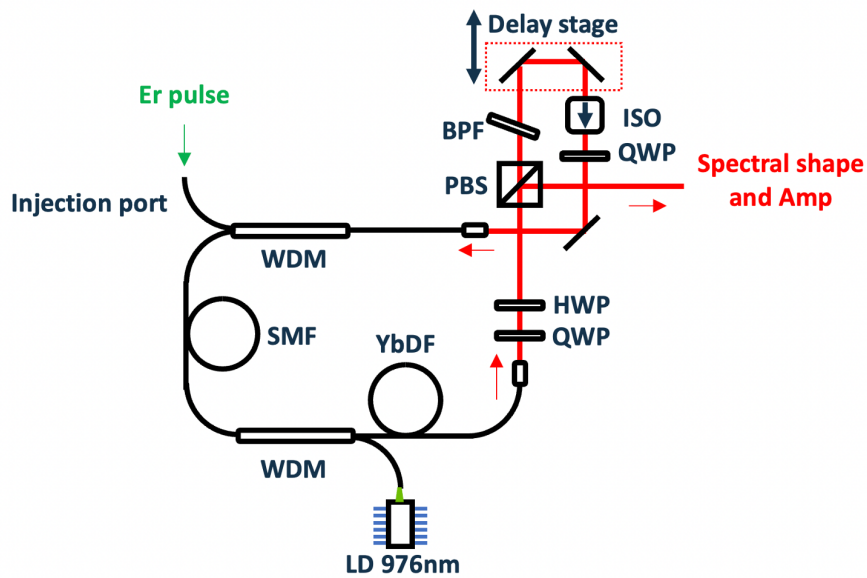


図 3.12: YDFL の概念図。HWP : 1/2 波長板、QWP : 1/4 波長板、BPF : 干渉型バンドパスフィルター、ISO : アイソレータ。

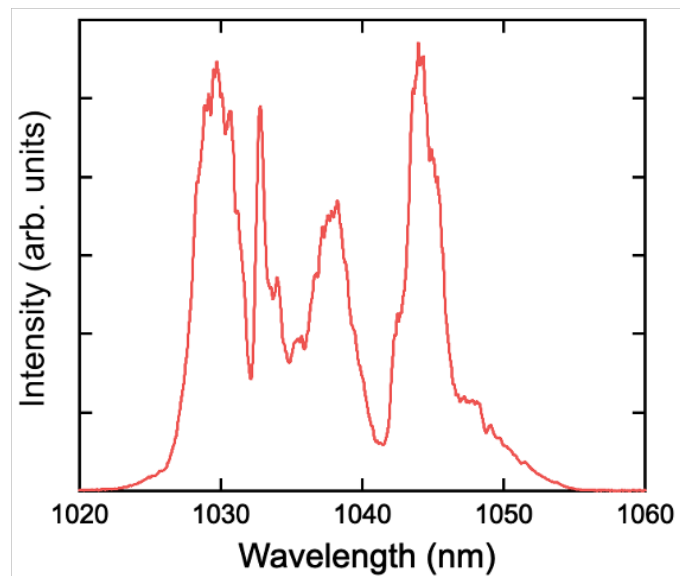


図 3.13: YDFL においてパルス発振した光のスペクトル。

については結晶を伝搬する際の群速度分散による遅延も考慮する必要がある。PPLN 結晶内で想定波長の 1030 nm (UPC ポンプ) と 3810nm (赤外アイドラー光) のパルス光の間にはその屈折率の差から単位相互作用長あたり 0.3 ps/mm の時間遅延が生じる。先行研究では典型的に 10 mm から 40 mm の間の結晶を用いられることが多く、本研究でも 20 mm の PPLN 結晶を採用した [47, 48, 49, 50]。つまり結晶中ではパルス間に ± 3 ps の時間差が生じることに留意する。

これらを踏まえ、ここでは 2 つのモデルを仮定することで最適なパルス幅を検討する。1030 nm (UPC ポンプ) と 3810nm (赤外アイドラー光) のパルスは Gaussian 波形を仮定する。1 つ目は十分長いパルス幅の領域においてパルスエネルギーを一定にする条件である。高強度アンプシステムにおいてパルス光を増強可能な総量が用いる励起光強度によって一意に決まるため、同じアンプ条件で得られるパルスエネルギーが一定となる。このとき Yb パルスのパルス幅 x ps の関数で記述される UPC の変換効率 $\phi(x)$ は次のように書くことができる。

$$\phi(x) \propto \frac{1}{x} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_0^{3ps} d\tau e^{-\log 2 \left(\left(\frac{2t}{x} \right)^2 + \left(\frac{2(t-\tau)}{4.1} \right)^2 \right)} \quad (3.32)$$

τ は結晶内でのパルス間の相対的な時間遅延を表し、結晶内において 3 ps の差がつくことからその畳み込み積分を実行することで結晶内でのパルスの時間的重なるの効果を取り入れている。指数関数の指数第 2 項における 4.1 は赤外アイドラーのパルス幅の実験値 4.1 ps (求めた経緯については後述) である。パルスエネルギーが一定の場合、パルス幅に対してピーク強度が反比例するため $1/x$ の項がつくことに注意する。2 つ目は十分短いパルス幅の領域においてスペクトルの拡張を抑制するためにピーク強度を一定にする条件である。高強度アンプの原理上、パルス幅が短いほど大きいピーク強度が得られるが、スペクトルの拡張が生じることによるロスが無視できなくなるため、拡張の起きないピーク強度を上限とした一定値で考えることが適切である。このとき変換効率 $\phi(x)$ は次のように書くことができる。

$$\phi(x) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_0^{3ps} d\tau e^{-\log 2 \left(\left(\frac{2t}{x} \right)^2 + \left(\frac{2(t-\tau)}{4.1} \right)^2 \right)} \quad (3.33)$$

1 つ目とは異なり、パルス幅に対してピーク強度を不変としているので $1/x$ の項がつかない。これらをそれぞれ数値計算した結果を図 3.14 に示す。図 3.14 は式 (3.32) および (3.33) を用いて計算した $\phi(x)$ のシミュレーション曲線である。それぞれパルス幅が十分短い場合および長い場合の変換効率が 1 になるよう規格化した。図 3.14 の実線が示すように、パルス幅の長い領域ではパルスエネルギーが一定の条件に大きく依存するためパルス幅の増加によって変換効率が減少することがわかった。また破線が示すように、パルス幅の短い領域ではピーク強度が一定の条件に大きく依存するためパルス幅の減少によって変換効率が減少することもわかった。さらに UPC のもう一つの特徴に、パルスと繰り返し周期で決まる時間ゲートによって背景放射とその他の熱ノイズを抑えられるという点がある。そのため長いパルス幅はノイズ増加の原因となることから、トレードオフによるロスが少ない範囲でパルス幅は短い方が良い。

これらを踏まえてパルス幅が数 ps 付近で得られるようなパルス成形を行う光学系を設計した。図 3.15 はオシレータから取り出されたパルス光をスペクトル成形、プリアンプおよび高強度アンプする光学系の概念図を示している [48]。自由空間で取り出されたパルス光を再びコリメータを通してファイバーにカップリングした後、サーキュレータと呼ばれるファイバー素子に入力した。サーキュレータは順方向 (1 \rightarrow 2, 2 \rightarrow 3, 3 \rightarrow 1) にのみ光の通過を許すファイバー素子である。そのため、1 から入力されたパルス光は 2 へと出射された。2 に反射型ファイバーブラッググレーティング (FBG) を融着し、パルス光のうち 1030 nm のピーク部分のみをスペクトル幅約 0.2 nm で反射して切り出し

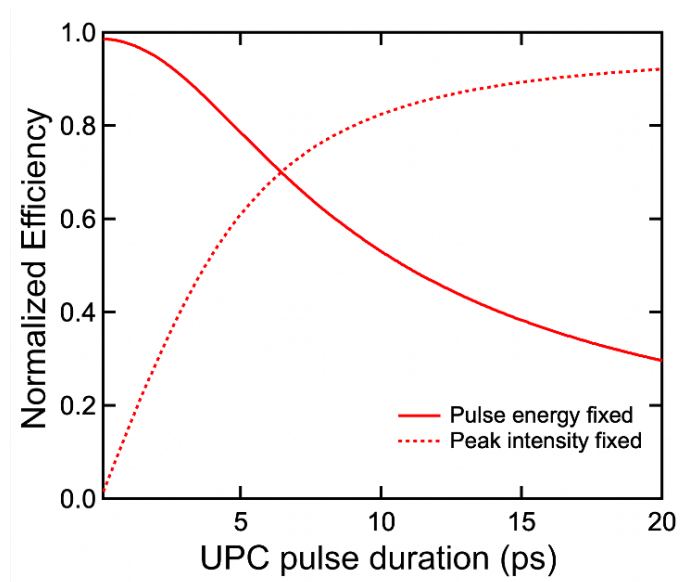


図 3.14: 式 (3.32) および (3.33) を用いて計算した $\phi(x)$ のシミュレーション。

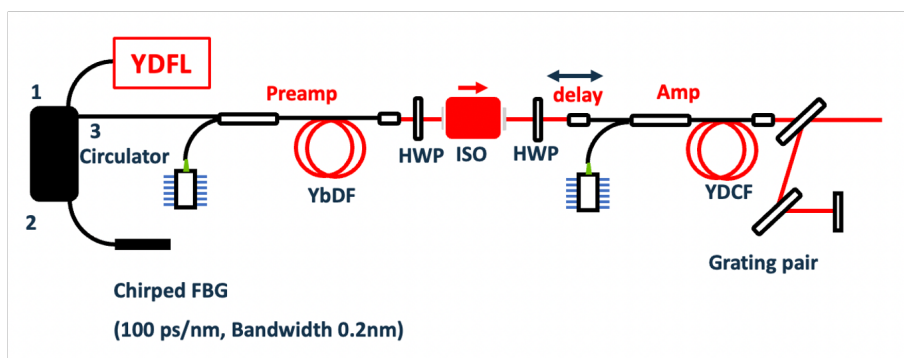


図 3.15: スペクトル成形とプリアンプの光学配置。

た。FBG はスペクトルを切り出す役割の他に、パルスにチャープをつけてパルス幅を広げる性能が付与されたものを用いた。これはチャープパルスアンプ法 (Chirped Pulse Amplification: CPA) [61] と呼ばれる手法に基づいており、パルスの見かけのピーク強度を小さくすることでプリアンプおよび後述の高強度アンプにおけるファイバーの非線形効果によるスペクトルの拡張を防ぐ効果がある。アンプ後に自由空間でチャープを補償することで本来のパルス幅に戻し、ピーク強度を再現することができる。今回用いた FBG によるチャープ量は 100 ps/nm なので、パルスに対して 20 ps のパルス広がりを与えたことになる。反射されたパルス光は再度サーキュレータを介してポート 2 からポート 3 へと出力された。ポート 3 を反射型 WDM の入力ポートと、WDM の出力ポートを YbDF とそれぞれ接続した。WDM のもう一方の入力ポートからオシレータに用いた励起光と同様の CW レーザーダイオード (中心波長 976 nm 、平均出力 350 mW) の光を合波し、 Yb^{3+} イオンを励起した。これはプリアンプの基本設計となっており、YbDF を十分励起した状態でパルス光を通すことで誘導放出によるアンプが可能である。YbDF の長さは入力ポンプの強度と励起光による YbDF の励起効率によって適切な長さが存在し、本実験では 2.5 m であった。プリアンプ後のパルスの平均出力の励起

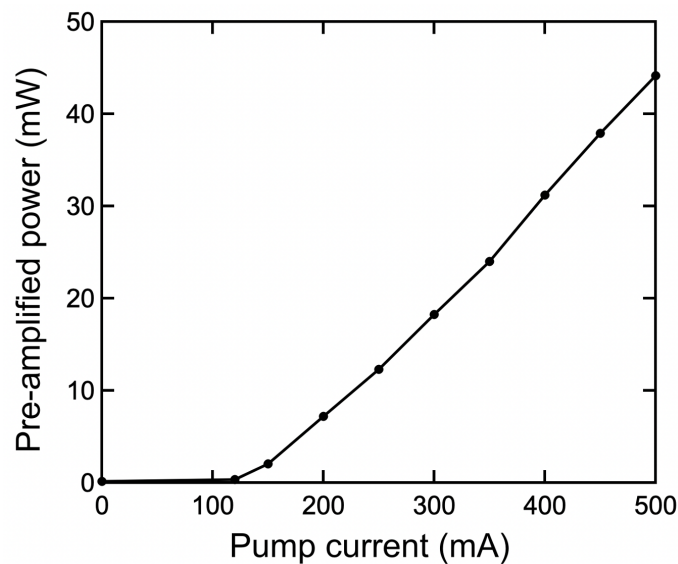


図 3.16: プリアンプ後のパルスの平均出力の励起光強度依存性。120 mA を閾値にほとんど線形で出力が増強された。

光強度依存性を図 3.16 に示す。これによりパルス光を約 45 mW まで増幅した。一度プリアンプ後のパルス自由空間に取り出し、アイソレータを経て再度ファイバーへと戻した。これは光学系のあらゆる箇所でききる正反射によってパルスが逆流した場合、励起された Yb^{3+} 添加ファイバーを逆流パルスが伝搬すると強い誘導放出が起き、結果として逆流した高強度パルスによってファイバー素子やオシレータが壊れてしまうからである。そのため、アンプ 1 箇所につき逆流防止用のアイソレータが安定かつ安全なレーザー光源の実現に不可欠である。また、アイソレータ後のコリメータを電動ステージ上に固定することで Er パルスとの時間的なオーバーラップを合わせる際の調整機構として用いた。前述のように、パルスにチャープをもたらすことでファイバー内での非線形効果を抑え、スペクトルの変形などを抑制する効果に言及した。さらに高強度にアンプする場合はシングルモードに近いラージモードエリア (ファイバーのコア径が $10 \mu\text{m}$ 以上) で、 Yb^{3+} 添加ダブルクラッ

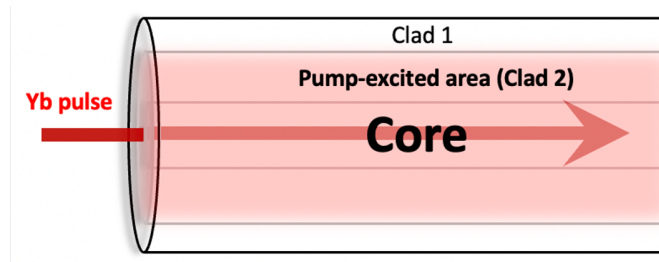


図 3.17: YDCF による高強度アンプの概念図。

ドファイバー（YDCF）と呼ばれる特殊なファイバーを用いることもスペクトル拡張抑制に効果的である [62]。図 3.17 は YDCF による高強度アンプの概念図である。コアに対してクラッドが二重構造になったもので、内側のクラッド 2 を伝搬する高強度なマルチモードのポンプ光がコアに添加された Yb^{3+} イオンを励起する。これによりシングルクラッドのものに比べ低密度で高強度な励起光を利用できるため、ファイバーの非線形効果によるスペクトル拡張などを抑制しつつ効率よくアンプできるというメリットがある。プリアンプ後のパルス光をファイバーにカップリングさせ、ポンプコンバイナ（PC）と呼ばれる合波素子に導入した。PC は WDM と比べて強い光に晒されても壊れにくいファイバー合波素子として高強度アンプに適している。PC の入力ポートには高強度出力可能な CW レーザーダイオード（中心波長 976 nm、最大平均出力 8 W）を励起光として導入した。高強度な励起光で励起された Yb^{3+} イオンが誘導放出を引き起こし、プリアンプの数倍の増強効果が得られた。YDFC はプリアンプの YbDF と同様に適切な長さが存在し、およそ 2 m に設定した場合に最も効率よくアンプした。図 3.18 にアンプ強度の電流特性を示す。このようにしてアンプされたパルス光は

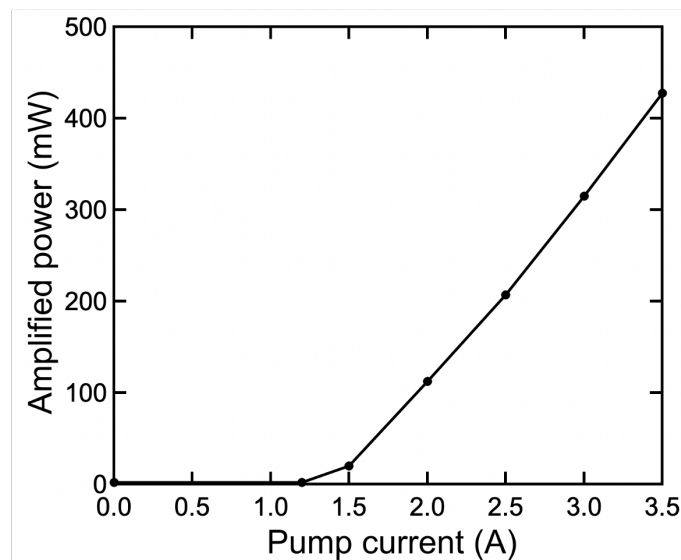


図 3.18: 高強度アンプ後のパルスの平均出力の励起光強度依存性。1.3 A を閾値にほとんど線形で出力が増強された。

スペクトル形状を保った状態で最大平均出力 300 mW 程度までアンプ可能であった。図 3.19 に、300 mW までアンプした後のスペクトルおよび自己相関スペクトルを示す。この時点でのスペクトル幅

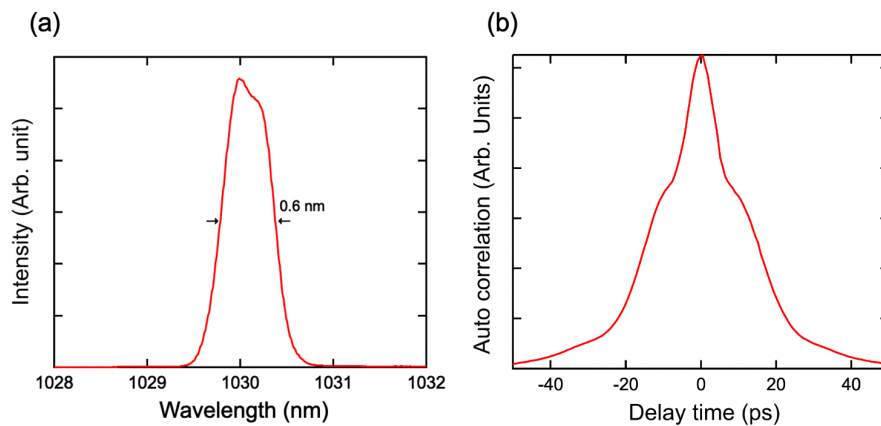


図 3.19: (a) 高強度アンプ後のスペクトル。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited. (b) 高強度アンプ後の自己相関スペクトル。

は 0.6 nm であった。FBG での切り出し幅より 3 倍ほど広がっているが、アンプが機能し始めた平均出力 100 mW の時点でスペクトル幅は 0.5 nm 付近まで広がっていたため、300 mW 時点でのパルスが形状を 1 つのピークで保っている状態の方が UPC のポンプとして利得が高い。また、パルス幅についても前述の FBG のチャープ量に対応する相関幅（およそ 30 ps）を有しており、グレーティングペアによって補償することでフーリエ限界パルスに近づけることができる。パルス光を YDCF から自由空間に出力した後、焦点距離 30 mm のレンズでコリメートした。Yb パルスに伴って自由空間に放出された励起光は干渉型ロングパスフィルタ（LPF）によって遮断した。コリメートされたパルスに対して透過型のグレーティング 2 枚を組み合わせることで波長ごとの光路長を調整することでチャープを相殺した。図 3.20 にグレーティングペアによる分散補償の概念図を示す。入射光

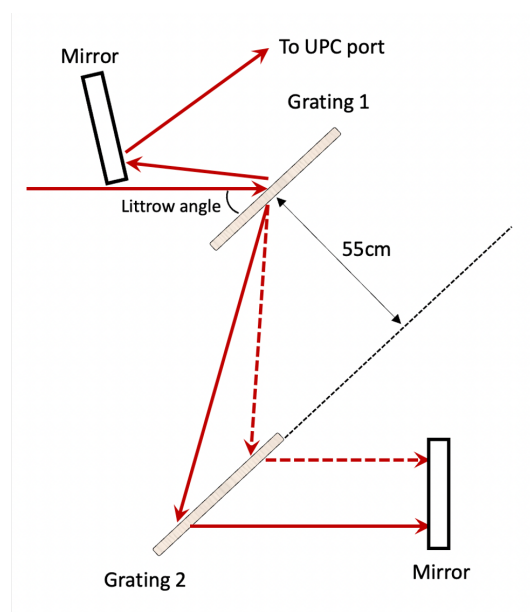


図 3.20: グレーティングペアによる分散補償の概念図。

はグレーティングに対して直進する光（0次光）とある方向に進路を変える光（1次光）とに分かれた。一般的に、入射角度を調整することで1次光が最も効率よく得られる条件が存在する。この角度はリトロ角と呼ばれ、今回用いたグレーティングではリトロ角がおよそ55度で回折効率は約90%であった。回折によって波長ごとに分散された光は一定距離をあけて平行に配置された同種のグレーティングによって再び平行光に戻された。このときの適切なグレーティング同士の距離は垂直距離で55 cmであった。平行光に戻したパルスミラーで反射し再び同じグレーティングを通して逆進させた。このときミラーに対する入射を正反射から少しだけずらすことで、分散補償後のパルスを取り出した。このようにして分散を補償されたパルス光はUPC結晶直前で平均出力200 mWであった。図3.21は分散補償後のYbパルスの自己相関スペクトルである。パルス幅は4.3 psである

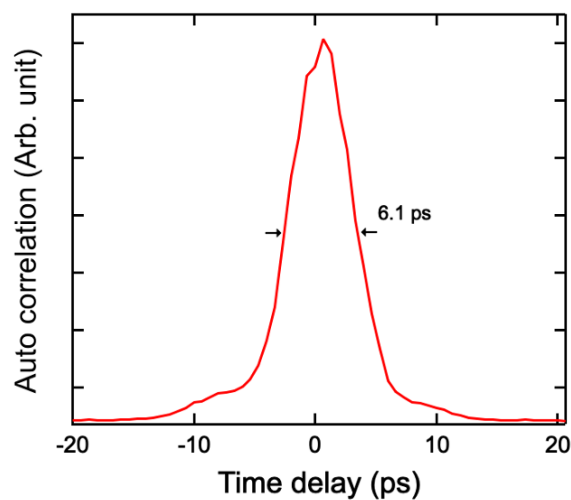


図 3.21: 分散補償後の Yb パルスの自己相関スペクトル。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

と見積もられた。4.3 ps はスペクトル幅 0.6 nm に対してフーリエ限界の 1.7 倍のパルス幅であるが、これは高強度アンプ内でのスペクトル広がりによる高次の分散（線形補償では補償できない成分）が発生しているために単純なグレーティングペアでは補償しきれないからであると考えられる。

3.2.3 Er³⁺ 添加モードロックファイバーレーザー (EDFL)

次に、同時 SPDC 過程のポンプ光に用いる EDFL に関する概要を述べる [55]。図 3.22 に EDFL の概念図を示す。オシレータは YDFL と同様、励起光と周回するパルスとを合波する WDM、ファイバーと自由空間をカップルするコリメータ、出力ポートとして動作する PBS からなる。Er³⁺ 添加ファイバー (ErDF) の励起についても同様、WDM を通じてキャビティ内に導入されたレーザーダイオード（発振波長 976 nm）を用いて ErDF を励起した。ErDF は図 3.23 に示すような吸収スペクトルおよび発光スペクトル（THORLABS 社）を有する。パルス形成する仕組みは ErDF をゲインファイバーとするループ型キャビティである。ただし、分散の補償の方法が YbDF と異なる。1560 nm 帯域ではシングルモードファイバー（SMF）が負の分散を、ErDF が正の分散を持つため、BPF やグレー

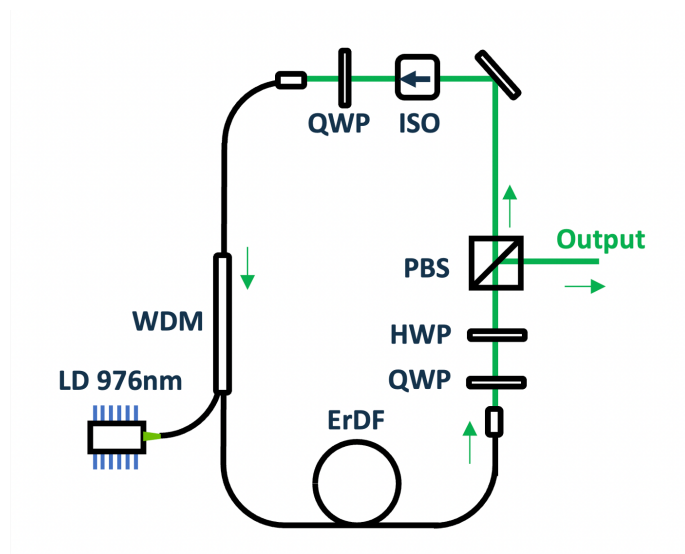


図 3.22: EDFA の概念図。

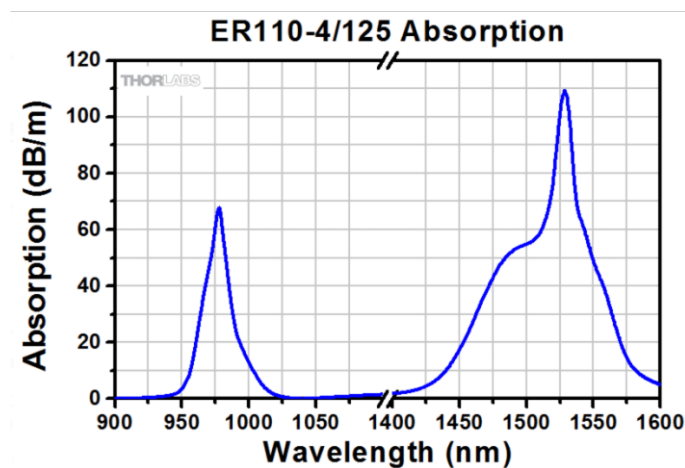


図 3.23: ErDF の吸収スペクトルおよび発光スペクトル。THORLABS 社ホームページより転載。

ティングを用いずファイバー長の比を調整することで正味の分散値を 0 に近づけることができる。分散の値は周回するパルスの強度や温度などの外部環境に大きく依存するため、適切なファイバー長は実験的に決定した。ErDF の長さはパルスがキャビティを周回して再度 ErDF ファイバーを伝搬する際の発光効率と再吸収とのバランスが大きく影響する。本研究で構築したオシレータのファイバー

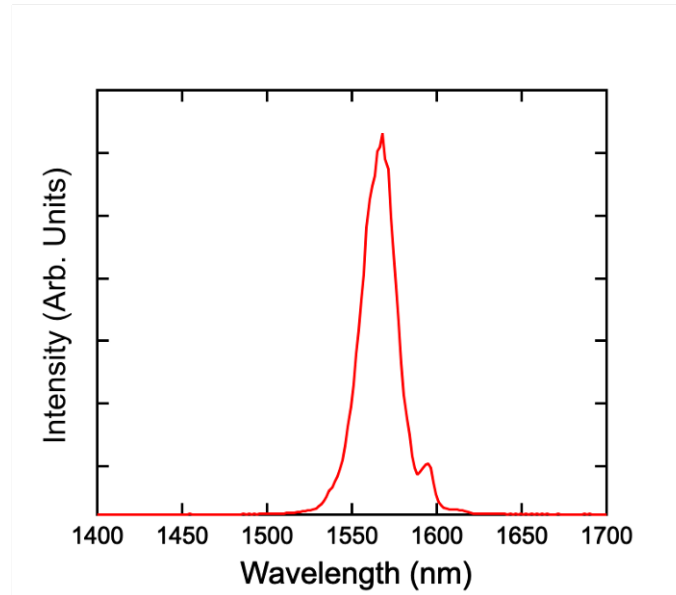


図 3.24: モードロック状態にある EDFL の典型的なスペクトル。

長は SMF = 190 cm および ErDF = 65 cm であった。図 3.24 は構築したオシレータの典型的なスペクトルである。1560 nm にピークを持つブロードなスペクトルを有し、サブピークを持つ。EDFL のスペクトル形状はファイバー全体の正味の分散値で決まっており、今回のような数十 nm 程度のスペクトル幅といくつかのサブピークをもつ場合は 0 に近い負の値を持つモードロック形式の典型的なものであり、ソリトンモード同期と呼ばれる [55]。パルスの平均出力は 20 mW 程度で、繰り返しは 79.6 MHz であった。図 3.25 は Yb パルスと同様のオートコリレーション法により測定した時間領域における自己相関関数の波形である。この半値全幅からパルス幅は 1 ns と見積もられた。

3.2.4 相互位相変調と繰り返し周波数同期

次に EDFL のパルスを YDFL のキャビティ内に外部から注入した場合に生じる繰り返し同期現象について述べる。通常、独立した 2 台のモードロックレーザーはそのキャビティ長が等しくなるように構築しても繰り返し同期が完全に一致することはない。これは環境擾乱によってキャビティ長が時間ごとに変化するためである。波長の異なる 2 つのパルスが SFG (あるいは DFG) 過程によって新たな光を生成するとき、光が高効率に発生するためにはパルス同士が時間領域で一致している必要がある。そのため、波長の異なる 2 つのパルスを用いた実験では 2 台のオシレータが同期した繰り返し周波数を有することが必要不可欠である。ファイバーベースのモードロックレーザーにおいて繰り返し同期させる汎用的な手法に注入同期法がある [63, 64]。これは、オシレータ 1 (マスター) のパルスをオシレータ 2 (スレイブ) に注入することで 1 のパルスが 2 のキャビティ内のファイバーの屈折率を変化させ、その影響を受けた 2 のパルスが 1 の繰り返しに引き込まれる現象を利用している。こ

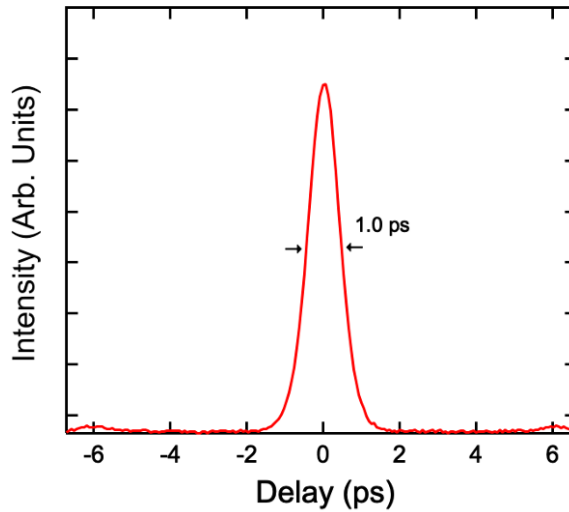


図 3.25: EDFL の自己相関スペクトル。

れを相互位相変調と呼ぶ。図 3.26 に EDFL と YDFL を組み合わせた注入同期を行ったファイバー光学系の概念図を示す。EDFL のパルスの一部をプリアンプを通して 80 mW まで増幅し、WDM を通じて YDFL キャビティに注入した。YDFL キャビティ内に導入したマイクロメータの調整範囲内に、YDFL のキャビティ長が EDFL の繰り返し周波数と一致するようなステージの位置が含まれるようファイバー長などを調整している。ロックしている状態およびロックしていない状態を確認するために 3 つの簡単な測定を行った。1 つ目は繰り返しカウンタを用いた両者の繰り返し周波数の絶対値の計測である。YDFL のキャビティ長を変えながら 0.1 kHz の精度で両者の周波数を計測した結果、あるキャビティ長の範囲にあるとき双方の繰り返し周波数が完全に一致することが確認された。図 3.27 は注入がある場合とない場合の YDFL のキャビティ長を変化させた際の YDFL の繰り返し周波数を示している。このグラフから YDFL のキャビティ長が $-10 \mu\text{m}$ から $14 \mu\text{m}$ の範囲内にある時にロック状態にあることがわかる。この範囲はロックレンジと呼ばれ、本実験で開発されたレーザーでは $24 \mu\text{m}$ であった。このロックレンジは環境擾乱などによる本システムのキャビティ長の変化幅 ($\pm 3 \mu\text{m}$) より大きいため、フィードバック機構なしに繰り返し同期状態を維持することが可能である。2 つめはオシロスコープによるパルストレインの相対的な時間変化の計測である。フォトダイオードなどで Er パルスから得た電気信号パルスにトリガーをかけ、Yb パルスを別のフォトダイオードを通してオシロスコープの別のチャンネルで観測した。ロックしていない状態では YDFL のパルストレインが止まることなく、相対速度でモニター上に映った。それに対し、ロックした状態では完全に飛来タイミングが一致するため、モニター上で両者の電気信号パルスが止まって見えた。このモニターのスナップ写真を図 3.28 に示す。図 3.28 において (a) はパルストレインが相対的に動いている様子を表しており、(b) は相対的に止まっている様子すなわち繰り返し周波数が一致している様子を表す。3 つ目はロックしていない状態およびロック状態における SFG の強度比較である。それぞれの状態において、Er パルスと Yb パルスの SFG ($1030 \text{ nm} + 1560 \text{ nm} \rightarrow 610 \text{ nm}$) の平均出力を計測した。その結果、ロックしていない状態はロックしている状態に比べ発生強度が約 0.2 % 程度まで下がった。これは繰り返し周波数がロックしていない状態において各パルスの時間的かさなりは単位時間にパル

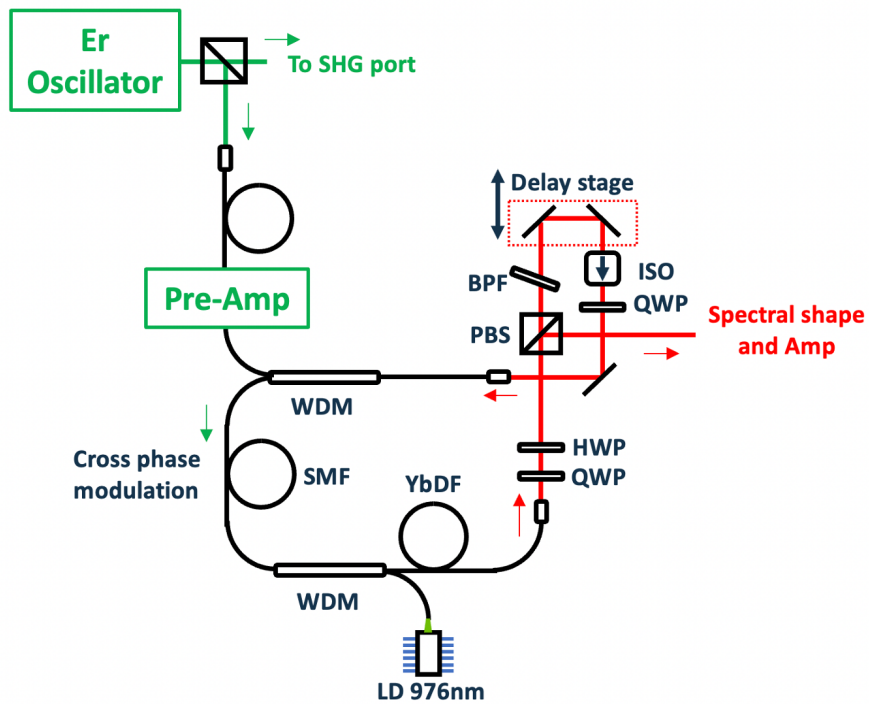


図 3.26: 注入同期を行ったファイバー光学系の概念図。

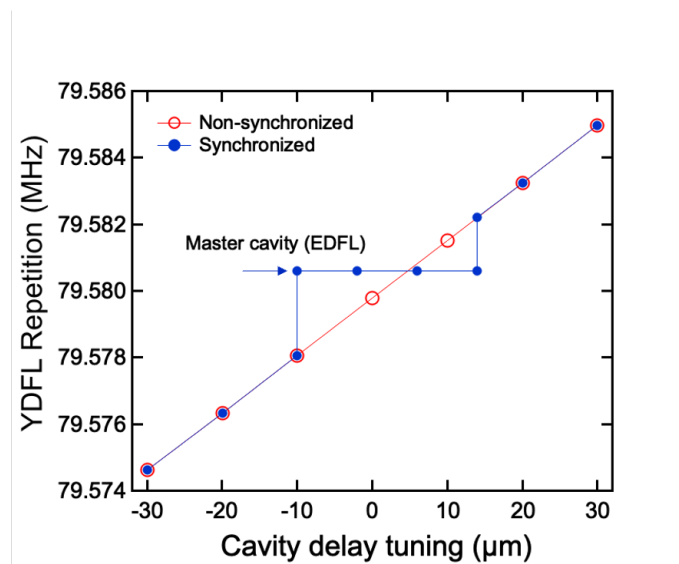


図 3.27: 注入状態および注入がない状態において YDFL のキャビティ長と YDFL の繰り返し周波数の関係。

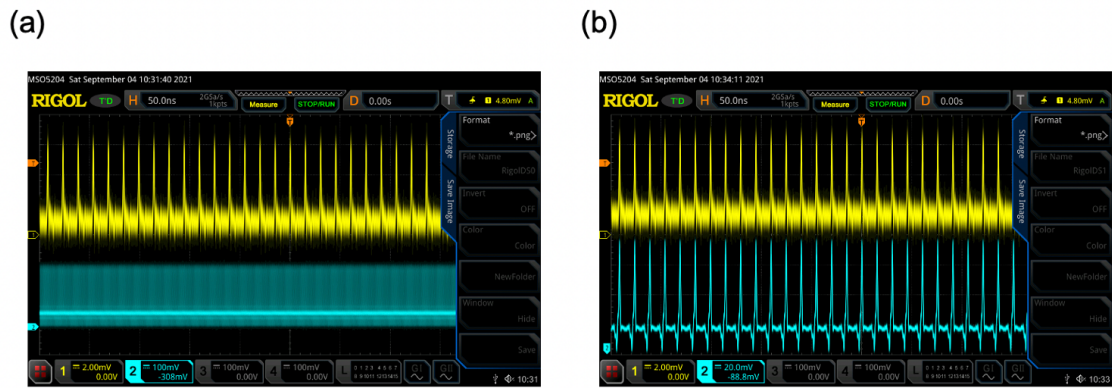


図 3.28: (a) ロックしていない状態および (b) ロック状態におけるオシロスコープの電気信号の波形。

スが占める時間的な幅の割合分だけロスが発生するからである。パルスが 1 秒あたりに存在している時間がパルス幅と繰り返し周波数の積 ($79.6 \text{ MHz} \times 4.3 \text{ ps} = 0.34 \%$) で得られることに注意すると、比較的良い一致を示す結果である。これらの測定結果から注入同期状態を実現し、実験的によって発現や特性を確認した。

3.3 実験原理

3.3.1 同時 SPDC 過程による相関光子対の発生および検出

次に Er パルスの SHG 光をポンプ光とした同時 SPDC 過程による周波数相関光子対の発生について説明する。図 3.29 に同時 SPDC 光子対発生および検出の実験の概念図を示す。Er パルスをファイ

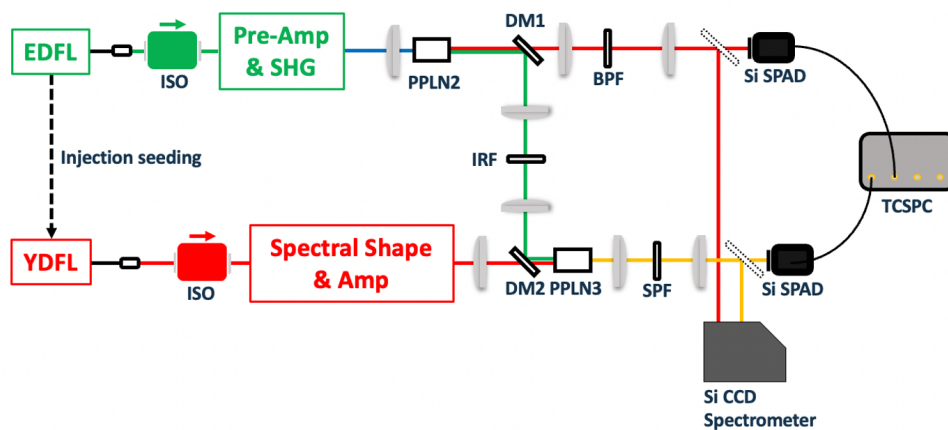


図 3.29: 同時 SPDC 光子対発生および検出の実験全体の概念図。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

バー型 BPF でスペクトル成形後アンプによって増幅してから自由空間に射出した。コリメートしたパルスを温調つき PPLN 結晶 1 に集光し、SHG 過程によって中心波長 780 nm 付近のポンプ光 (ErSHG)

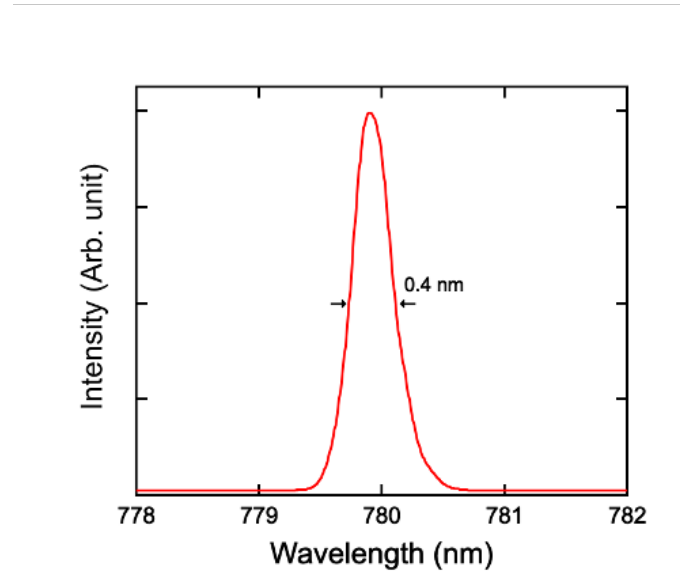


図 3.30: Er パルスの SHG 光のスペクトル。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

を発生させた。図 3.30 は発生した ErSHG 光のスペクトルである。スペクトル幅は 0.4 nm、平均出力は 10 mW であった。その後 ErSHG のみを通す干渉フィルターで EDFL パルスを遮断し、PPLN 結晶 2 に集光した。PPLN 結晶 2 によって発生した同時 SPDC 光子対のうち、ダイクロイックミラー 1 (DM1) を用いて赤外アイドラー光を反射、可視シグナル光を透過することで両者を空間的に分離した。透過したシグナル光を平行光にし、干渉フィルターによってシグナル光以外を遮断した後、そのスペクトルを冷却型シリコンベース CCDarray によって測定した。図 3.31 に観測したシグナル光のスペクトルと式 (2.13) を用いてシミュレーションした理論スペクトルを示す。シミュレーションにおいてほとんど同軸過程（放射角度 0.1 度以内）のみを仮定したにもかかわらず、2 つの同軸の解として想定していた 980 nm および 1013 nm の間を埋めるようなブロードなスペクトルが得られた。これは縮退に近い条件においてピークがほとんど区別できなくなっていた公表論文 1 の結果と同様の発生機構にあると考えられる。これに対し、実験で得られたスペクトルは理論スペクトルと良い一致を示しており、同時 SPDC 過程によるシグナル光であることが確認された。しかしながら、同時計測によってペア 1 およびペア 2 の相関を測定するためには離散的なスペクトルが必要である。放射角 0.1 度以内のほとんど同軸な非同軸過程による SPDC 光子は空間的に取り除くことが難しいため、BPF を用いて擬似的に必要なスペクトル成分のみを取り出した。図 3.32 の (i) から (o) は BPF の切り出し波長を 980 nm から 1013 nm まで連続的に変えた場合のスペクトルである。ここで、スペクトル幅について (i) はスペクトル幅 3.3 nm および (o) はスペクトル幅 2.4 nm であった。スペクトル幅は用いた BPF の性能で決まっており、後述の UPC によって変換されるアイドラー光に対応するスペクトル幅に近い BPF を選んだ。ピークが最も外側 2 つのスペクトル (i) と (o) は同軸のみのスペクトルに相当するため、同時測定では (i) か (o) のいずれかになるよう BPF を調整して用いた。フィルターを用いて 980 nm のみを取り出した状態 (i) で検出器を Si-APD に切り替え、時間相関単一光子検出 (TCSPC) モジュールを用いてパルスの繰り返し周期 12.5 ns 内でのヒストグラムを測定した。図 3.33 は繰り返し周期 12.5 ns 範囲でシグナル光が飛来したタイミングおよびその頻度を示している。

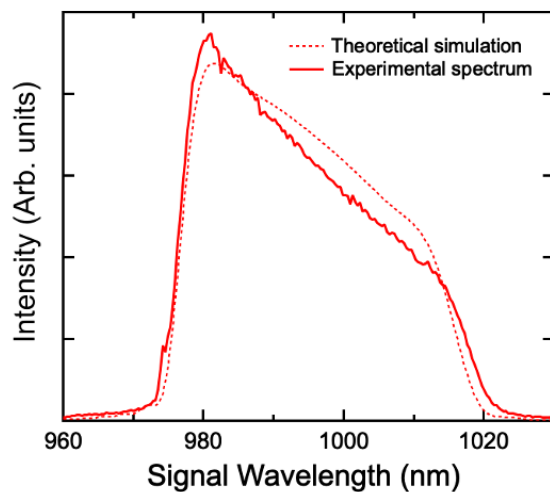


図 3.31: 同時 SPDC シグナル光の実験スペクトル (実線) および式 (2.13) を用いてシミュレーションした理論スペクトル (破線)。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

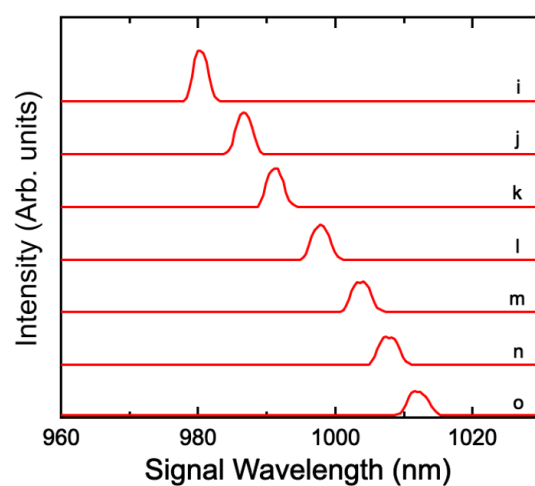


図 3.32: BPF を用いて切り出した同時 SPDC シグナル光のスペクトル。BPF の透過スペクトルの中心波長を 980 nm(i) から 1013 nm(o) まで連続的に変えて切り出した。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

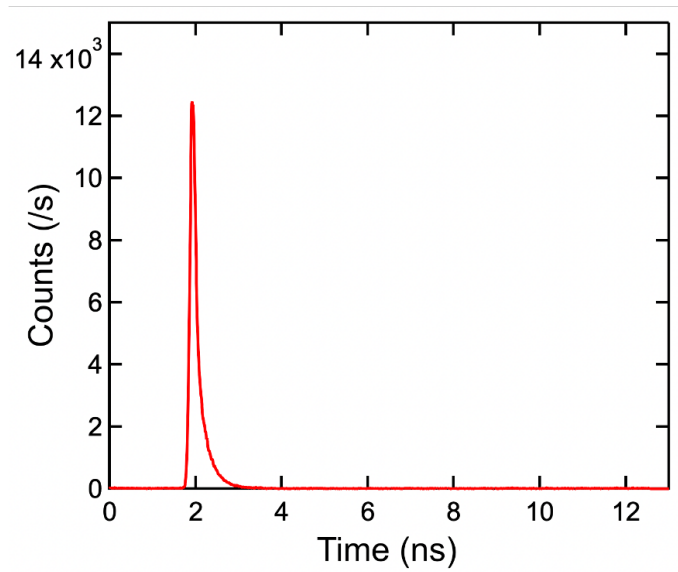


図 3.33: TCSPC による同時 SPDC シグナル光子の繰り返し周期 12.5 ns 内における飛来数のヒストグラム。

ヒストグラムの形状は Si-APD の時間応答性能と TCSPC の時間分解能で決まっているため、同時計測をする際はこのヒストグラムの幅で決まる時間窓 1 ns 以内に光子対が検出された場合を同時イベントとして定義した。

UPC 過程による赤外アイドラーの検出

次に、DM1 に反射されたアイドラー光を放物面鏡を用いて平行光にしてから赤外 BPF によって ErSHG などを取り除き、放物面鏡で UPC 用の PPLN 結晶 3 にビーム直径 $190 \mu\text{m}$ で集光した。このとき、DM1 と同じ DM2 を用いてアイドラー光と UPC ポンプを空間的に合波した。UPC 用のポンプは PPLN 結晶内でビーム直径 $220 \mu\text{m}$ であった。PPLN 結晶 3 として、周期が $20.9 \mu\text{m}$ から $0.3 \mu\text{m}$ 間隔で $23.3 \mu\text{m}$ まで合計 9 個の周期が横並びに書き込まれたマルチグレーティング構造を持つ結晶を用いた。Fanout 型結晶と同様に、この結晶をスライドすることで用いる周期を 9 周期のいずれかに設定することができる。想定しているアイドラーの 1 つである 3810 nm に対して位相整合する結晶の条件は周期 $22.1 \mu\text{m}$ 、温度 100 度と見積もられた。これを踏まえ、UPC によって変換した 3810 nm のアイドラー光のスペクトルをシグナル光と同様冷却型シリコンベース CCDarray によって測定した。図 3.34 は測定したアイドラー光のスペクトルおよび式 (3.25) を用いて理論計算した UPC スペクトルをそれぞれエネルギー保存則から赤外域に換算したものである。縦軸については両者のピーク値が等しくなるよう理論計算にオフセットをつけた。実験で得られたスペクトルは理論と形状においてよい一致を示しており、UPC による変換が実際に起きていることを確認した。また、このとき得られたスペクトル幅に対応するシグナル光を検出することで同時測定が可能である。図 3.34 のスペクトル幅に対応するシグナル光のスペクトル幅は 1.95 nm と見積もられた。ここでシグナル光のスペクトルが広帯域に得られたことを考慮すると、アイドラー光についても UPC の変換範囲を超えて広帯域に発生していることが予想される。これを確認するため、再び式 (2.13) を用いて赤外アイドラーについても同様のシミュレーションした理論スペクトルを下記に示す。図 3.35 が示すように 3400 nm お

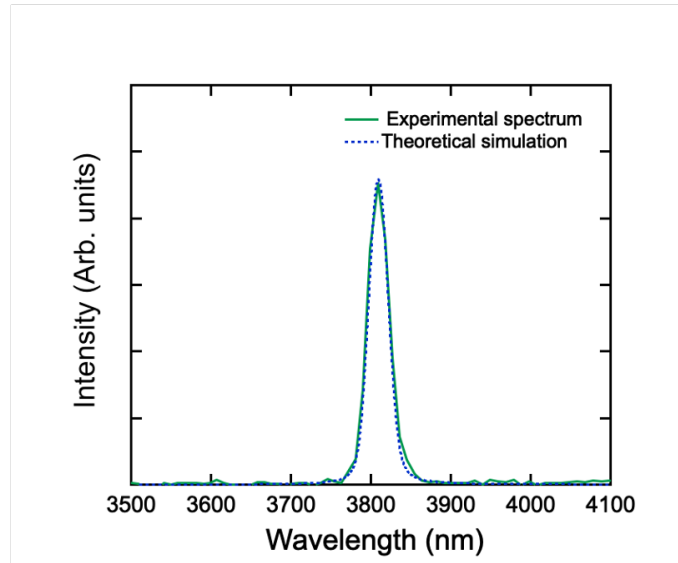


図 3.34: UPC 後のアイドラー光のスペクトル (実線) および式 (3.25) を用いてシミュレーションした理論スペクトル (破線)。

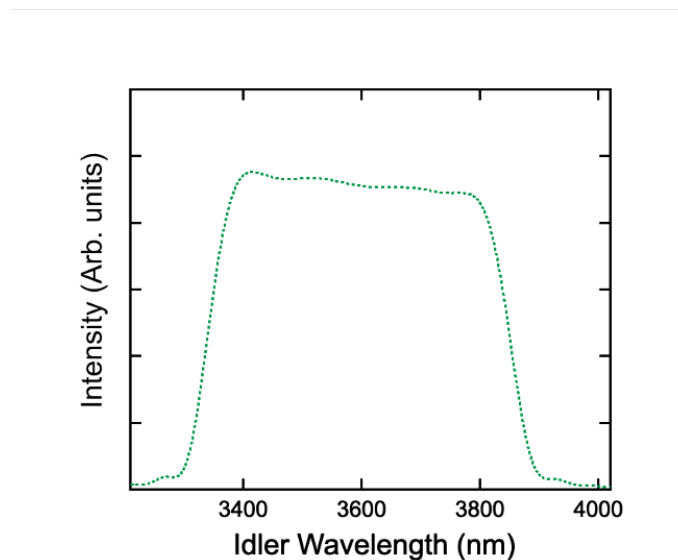


図 3.35: 式 (2.13) を用いてシミュレーションした赤外アイドラーの理論スペクトル。ほとんど同軸の成分のみで 3400 nm および 3810 nm の間を埋める広帯域スペクトルとなっている。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

よび 3810 nm の間を埋めるブロードな成分の発生を考慮に入れる必要がある。そこで、結晶周期および温度を変えて UPC が変換可能な赤外域を調整しながらいくつかの組み合わせで UPC スペクトルの確認を行った。図 3.36 は結晶周期と温度を (a)21.5 μm 、60°C、(b)21.5 μm 、80°C、(c)21.5 μm 、

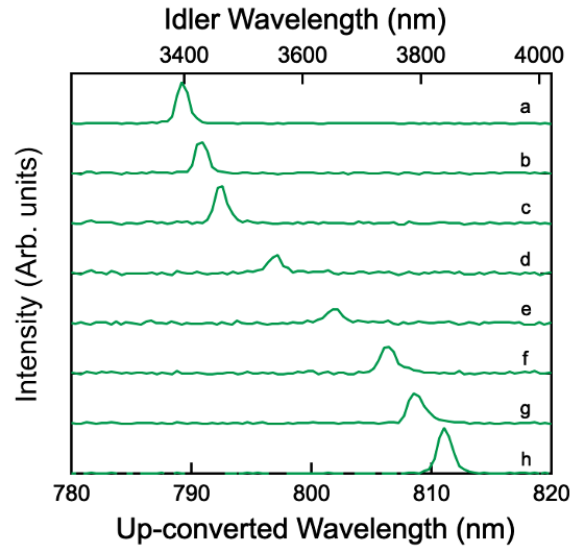


図 3.36: 結晶周期と温度を (a)21.5 μm 、60°C、(b)21.5 μm 、80°C、(c)21.5 μm 、100°C、(d)21.8 μm 、60°C、(e)21.8 μm 、100°C、(f)22.1 μm 、60°C、(g)22.1 μm 、80°C、(h)22.1 μm 、100°C に設定した場合に測定した UPC スペクトル。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

100°C、(d)21.8 μm 、60°C、(e)21.8 μm 、100°C、(f)22.1 μm 、60°C、(g)22.1 μm 、80°C、(h)22.1 μm 、100°C のそれぞれに設定した場合に測定した UPC スペクトルである。結晶周期と温度によって変換する赤外域が変わり、変換中心波長が 3400 nm から 3810 nm の間で離散的に変化していることがわかった。言い換えると UPC がフィルターの役割も果たしており、位相整合条件に応じて透過帯域を変化させていることに相当する。(d) および (e) は他のスペクトルに比べて発生強度が小さいが、これは広帯域アイドラー光の非同軸成分に対応しているため、UPC を行う PPLN 結晶内において空間的なずれが大きくなり変換効率が小さくなっていると考えられる。シグナル光と同様、同時測定を行う際は同軸成分に対応する (a) および (h) の結晶周期と温度に設定した。(h) に設定した場合に Si-APD で光子数計測したイベント数を時間相関単一光子検出 (TCSPC) モジュールを用いて処理し、ヒストグラムを測定した。図 3.37 は典型的な UPC 後のアイドラー光の飛来光子数のヒストグラムを示している。飛来時間幅 1 ns はシグナル光と同様 Si-APD の時間分解能で決まっている。このように、UPC を用いて赤外光子を光子数計測することが可能な系であることを実証した。

次に、UPC の変換効率を実験的に見積もるために、ErSHG 光の平均出力を変えながら 980 nm のシグナル光および 3810 nm のアイドラー光の単位時間あたりの飛来光子数を計測した。図 3.38 は平均出力それぞれに対応するシグナル光とアイドラー光の飛来光子数のプロットである。ワイアグリッド偏光子 (WGP) と PBS を組み合わせたパワー調整機構を PPLN 結晶 2 の前に組み込み、ErSHG の平均出力を可変にした。プロットの増加率はシグナル光とアイドラー光の発生から検出までの量子効率の比に対応する。図 3.38 のプロットを直線でフィッティングした結果、傾きは 0.76 と見積もられた。ここで、量子効率は UPC の変換効率や検出器の検出量子効率すべての積で表される。つまり、検出器の量子効率やフィルターの透過率など既知の値から逆算することで UPC の変換効率を見

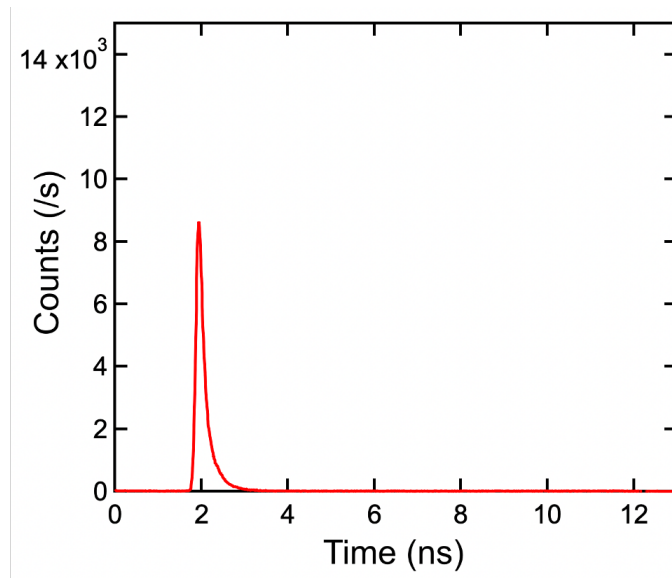


図 3.37: UPC 後のアイドラー光の飛来光子数のヒストグラム。

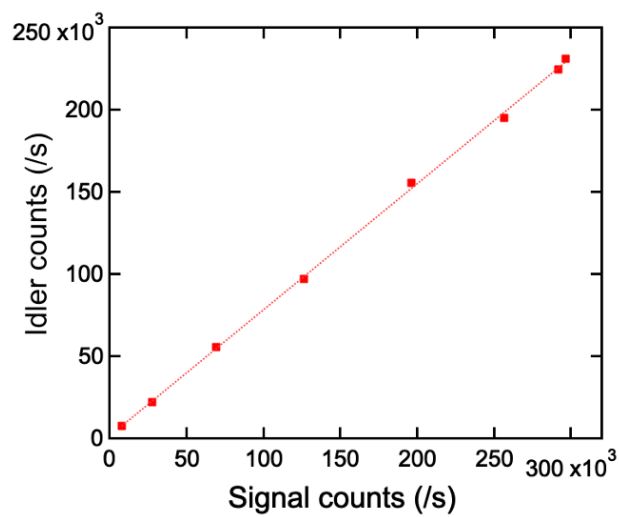


図 3.38: 平均出力を変えながら測定したシグナル光とアイドラー光の飛来光子数。

積もることが可能である。980 nm、および 810 nm における Si-APD の検出効率それぞれ 3 % および 15 % である。また、赤外用 BPF および UPC 後のフィルターの透過率はそれぞれ 70 % および 95 % である。さらにシグナル光の BPF による切り出し幅が 980 nm において 2.4 nm であるのに対し、アイドラー光のスペクトル幅から想定されるシグナル光のバンド幅は 1.9 nm であり、これらの比も効率の比に含まれている。これらを考慮に入れて UPC の変換効率は 29 % と見積もられた。さらに、UPC の変換効率を理論的に計算することで実験的に改善の余地がある点についても議論しておく。式 (3.25) を入力光強度の関数として計算した結果を下記に示す。図 3.39 の破線は 20 mm の

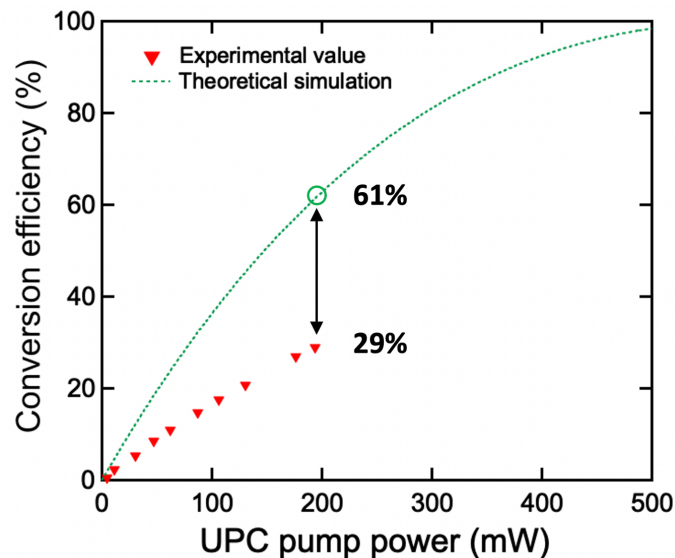


図 3.39: 実験から見積もった UPC の変換効率のポンプ光パワー依存性 (プロット) および式 (3.25) を入力光強度の関数として計算した UPC の変換効率のポンプ光パワー依存性 (破線)。

PPLN 結晶を用いて UPC を行なった場合の変換効率のポンプ光強度依存性である。スペクトル拡張が起きない 200 mW において 61 % の変換効率が見られる結果となった。さらにポンプ光強度を増加させると、500 mW 付近では理想的にほとんど 100 % の変換効率が見られる。そのため、スペクトル拡張なしにさらにアンプするためのシステムの改良が今後の課題である。また、いくつかの UPC ポンプ光強度に対して図 3.38 の測定を行い変換効率を見積もった結果を図 3.39 のプロットに示す。ポンプ光強度に対して実験値と理論値の間で 2 倍以上のズレが確認された。これには主に 2 つの要因が考えられる。1 つ目はパルス間の群速度分散である。式 (3.25) は理想的にパルスが結晶長すべてで完全に重なっている場合を想定したシミュレーションである。前述のように UPC ポンプと赤外アイドラーの間には ± 3 ps の時間遅延が生じるため、パルス幅 4.3 ps に対してそのロスを経験すると 0.71 であった。2 つ目はポンプ光とアイドラー光のパルス幅そのものの重なり割合である。式 (3.25) はアイドラー光がポンプ光に比べて十分パルス幅が細く、ポンプ光の最も強度の強い部分のみで UPC による変換が行われることを想定している。しかし、UPC ポンプと赤外アイドラーはそれぞれ 4.3 ps および 4.1 ps のパルス幅を持つため、実効的に UPC に寄与しているポンプの強度がパルス中心から時間的にずれているほど効率が下がる。これによるロスは 4.1 ps の長方形型のパルスと 4.3 ps の Gaussian 型のパルスの 4.1 ps の範囲の面積の比から計算することができ、0.72 であると見積もられた。これらの積から 0.51 がこの 2 つの要因による損失係数となり、理論変換効率 61 % に対する実験値 29 % の比とよい一致を示している。後述の同時計測におけるノイズ成分の

割合は UPC の変換効率に比例して抑制できるため、理論との乖離を減らすことおよび UPC ポンプ光強度そのもののさらなる増強が今後の課題である。

3.3.2 TCSPC による同時 SPDC 光子対の同時計測

ファイバーレーザーシステムをベースに構築した UPC 赤外検出器により、赤外アイドラー光を変換量子効率 29 % で光子数計測できることがわかった。これを踏まえ、同時 SPDC 光子対ペア 1 およびペア 2 間の量子相関を計測した。測定手法として TCSPC モジュールの T2 イベントタイマー機能を用いた。この機能により飛来光子が各 APD でカウントされたポートと時刻が順に記録された。この時刻の差を各イベント前後で計算し、連続したポートが異なるイベントに対してその差の大きさと頻度を数えることで同時イベントのヒストグラムを構築した。図 3.40 はシグナル側の BPF および

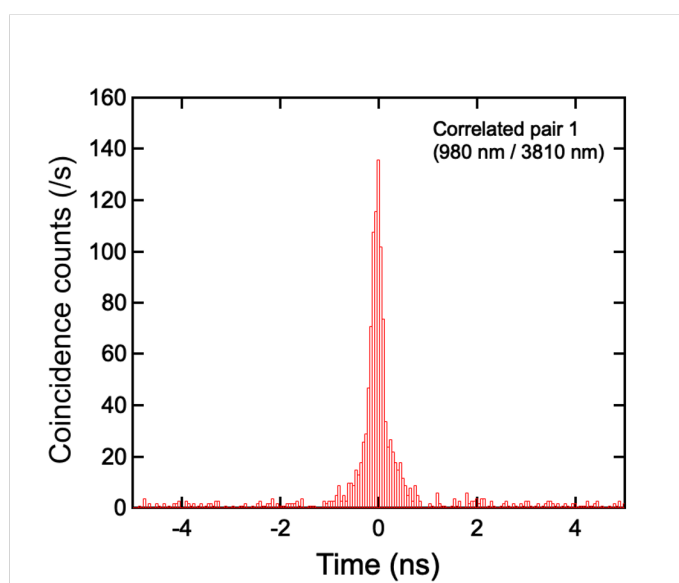


図 3.40: ペア 1 (980 nm と 3810 nm) における同時イベント数頻度を数えたヒストグラム。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

UPC の位相整合条件をペア 1 (980 nm と 3810 nm) に設定し、飛来時間の差を 50 ps 間隔で区切った場合の単位時間あたりのイベント数頻度を数えた典型的なヒストグラムである。前述のように APD 単体の飛来光子数のヒストグラムから ± 1 ns 以内の時間差で飛来した数を同時イベントみなすと、図 3.40 からペア 1 の同時カウント数は 1004 cps と見積もられた。次にペア 2 (1013 nm と 3400 nm) および対応していない組み合わせ (1013 nm と 3810 nm および 980 nm と 3400 nm) のそれぞれについて同様の測定を行なった。図 3.41 はペア 1 を含めた 4 つの組み合わせに対するヒストグラムである。対応するペア 1 および 2 では多くの同時カウント数が記録され、対応しないペアではほとんど記録されなかった。このことから同時 SPDC 過程はポンプ光子がペア 1 あるいは 2 のいずれかに確率的に分裂する過程であることが予想される。この過程の量子状態を理解するため、以下のモデルを構築した。

$$|\psi\rangle = \left(\sum_{k \geq 0} c_k (\mu_1)^k |k\rangle_{s1} |k\rangle_{i1} \right) \left(\sum_{i \geq 0} c_i (\mu_2)^i |i\rangle_{s2} |i\rangle_{i2} \right) \quad (3.34)$$

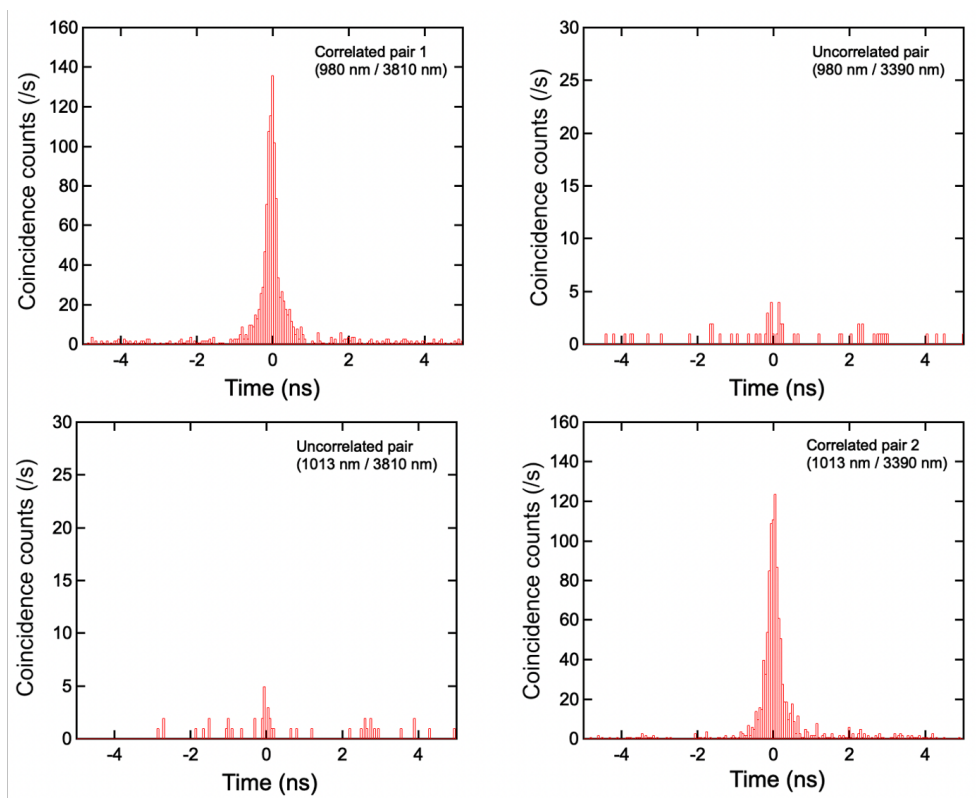


図 3.41: 4つの組み合わせ 980 nm と 3810 nm、1013 nm と 3400 nm、1013 nm と 3810 nm、980 nm と 3400 nm に対するヒストグラム。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

式 (3.34) は各ポンプパルスが同時 SPDC 過程を経て生成される量子状態を表している。 $|n\rangle_{s(i)1(2)}$ は 1 パルスにペア 1 (2) のシグナル光子 (アイドラー光子) が n 個含まれる状態である。 c_n は規格化のための因子を表し、任意の非負整数 m に対して規格化定数 C_n が $C_n = c_m c_{n-m}$ を満たす。また、 $|\mu_{1(2)}|^2$ はポンプ光子 1 つがペア 1 (2) に分裂する確率である。式 (3.34) を展開し、 $k+i$ の次数ごとに整理すると

$$|\psi_0\rangle = C_0|0\rangle_{s1}|0\rangle_{i1}|0\rangle_{s2}|0\rangle_{i2} \quad (3.35)$$

$$|\psi_1\rangle = C_1(\mu_1|1\rangle_{s1}|1\rangle_{i1}|0\rangle_{s2}|0\rangle_{i2} + \mu_2|0\rangle_{s1}|0\rangle_{i1}|1\rangle_{s2}|1\rangle_{i2}) \quad (3.36)$$

$$|\psi_2\rangle = C_2((\mu_1)^2|2\rangle_{s1}|2\rangle_{i1}|0\rangle_{s2}|0\rangle_{i2} + \mu_1\mu_2|1\rangle_{s1}|1\rangle_{i1}|1\rangle_{s2}|1\rangle_{i2} + (\mu_2)^2|0\rangle_{s1}|0\rangle_{i1}|2\rangle_{s2}|2\rangle_{i2}) \quad (3.37)$$

$$\vdots \quad (3.38)$$

と書くことができる。 $|\psi_0\rangle$ はパルスから SPDC 光子対が発生しない状態、 $|\psi_1\rangle$ はパルスにペア 1 あるいは 2 のいずれか 1 組が含まれる状態、 $|\psi_2\rangle$ はパルスにいずれかのペアが 2 つ含まれる状態に対応する。ペアが 3 つ以上含まれる高次の項についても随時展開することで得られるがここでは省略した。ここで、 $|\mu_{1(2)}|^2$ は典型的に 10^{-9} 以下なので、2 次以上の項は 1 次の項に比べて十分小さい。よって 2 次以上を無視できる範囲では $C_1(\mu_1|1\rangle_{s1}|1\rangle_{i1}|0\rangle_{s2}|0\rangle_{i2} + \mu_2|0\rangle_{s1}|0\rangle_{i1}|1\rangle_{s2}|1\rangle_{i2})$ のような相関光子対状態を形成していると考えられる。

最後に、同時 SPDC 光子対における相関の強さを評価した。1 パルスあたりに含まれる SPDC 光子対が 2 つ以上になってしまうと、異なるペア 1 のシグナル光とペア 1 のアイドラー光のような無相関な光子同士も同時に来ているかのようにカウントされてしまう。また、1 パルスあたり 1 光子対以下であっても、SPDC 光子対以外の光子がシグナル光子 (アイドラー光子) と偶然同じタイミングで検出される場合もある。このような相関光子対以外による同時カウントをアクシデンタルカウント C_{ac} と呼ぶ。これに対し、計測した同時カウント C_{to} からアクシデンタルカウントを引いた数を真の同時カウント C_{tr} と呼ぶ。相関光子対の相関の強さは測定された真の同時カウントとアクシデンタルカウントの比 C_{tr}/C_{ac} (CAR) で評価される [49, 50]。 C_{ac} はシグナル (アイドラー) 側で検出されたある光子に対して、各パルスにランダムに含まれた相関のない光子がアイドラー (シグナル) 側で同時に検出された場合に記録される。よって C_{ac} はパルス 1 周期分時間差 12.5 ns をあけた時間の ± 1 ns 範囲内におけるヒストグラムのカウント数から得られる。図 3.42 は図 3.40 の時間軸を 12.5 ns ずらしてペア 1 の条件で計測したヒストグラムである。 C_{ac} は 256 cps と見積もられた。よって $C_{to}=1004$ cps であったから、実際に相関光子対から得られている真の同時カウント C_{tr} は 748 cps であり、CAR=2.9 である。さらにポンプ光の平均出力を変えながら C_{tr} および C_{ac} を測定し、CAR を見積もった。図 3.43 は各ポンプ光平均出力に対する C_{tr} および C_{ac} である。エラーバーはそれぞれシングルカウントがポアソン分布に従うことに基づいて計算した。図 3.43 が示すように C_{tr} はポンプ光パワーに対しておよそ線形に依存していることがわかった。これは SPDC 光子対の生成効率が十分小さいポンプ光領域で線形であることとも一致する [32]。一方で C_{ac} はポンプ光パワーが大きい領域で線形以上の増加を示した。これについてはシミュレーション結果との比較と合わせて次節で後述する。図 3.44 は図 3.43 の値を用いて計算した CAR のポンプ光パワー依存性である。ペア 2 についても同様の測定を行い CAR を評価した。図 3.44 から 0.73 mW において最大値 6.5 (ペア 1) および 6.2 (ペア 2) をとることがわかった。最大値をとるポンプ光パワーは C_{ac} のポンプ光パワー依存性と検出器の量子効率のバランスなどで決まる。これについても次節で説明する。

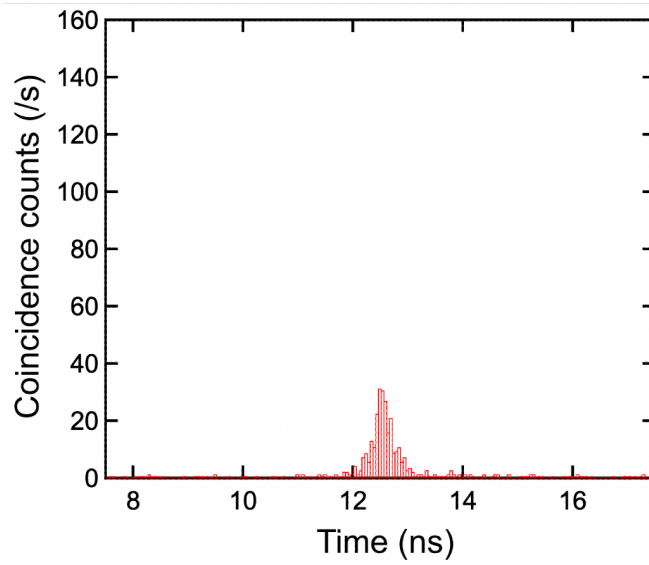


図 3.42: 時間軸を 12.5 ns ずらしてペア 1 の条件で計測したヒストグラム。

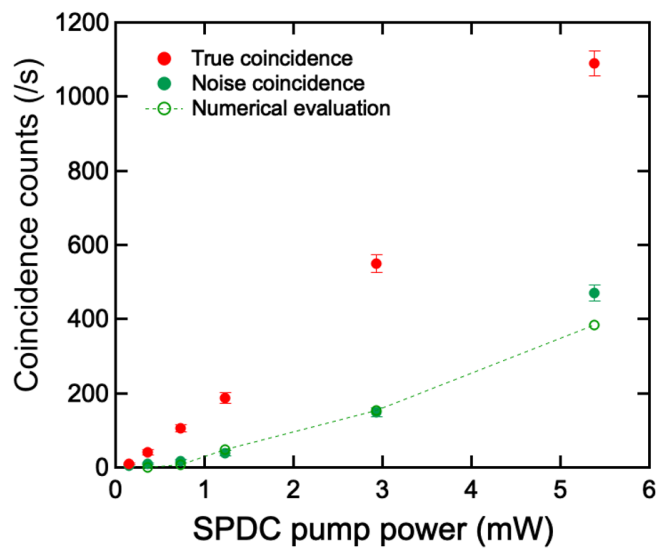


図 3.43: ポンプ光平均出力を変えながら測定した C_{tr} および C_{ac} 。

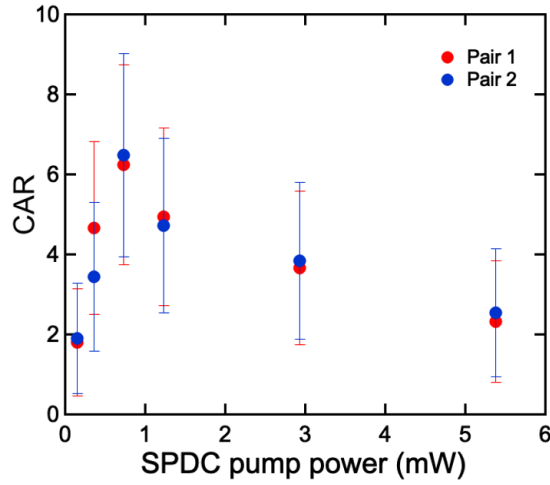


図 3.44: 図 3.43 の値を用いて計算した CAR のポンプ光パワー依存性。文献 [11] より転載。Copyright©2023, Springer Nature Limited.

CAR の改善

先行研究では CAR の値が 54[49]、14[50] など上記の値よりも数倍以上大きい。前述のように CAR は相関の強さを現す指標である。そこで CAR の大きさを改善するために C_{ac} の原因となっている余剰光子の起因およびポンプ光パワー依存性を調べた。今回用いた Si-APD はダークカウントがおおよそ 200 Hz である。これは光子の飛来に関係なく単位時間あたりに含まれるノイズカウントである。さらに、今回 UPC 特有のノイズが含まれていることを確認した [64]。UPC の高強度なポンプ光が偶然 SPDC 過程のポンプ光にもなり得る場合、UPC 結晶内で自発的に赤外光を生成してしまう。これが UPC 過程を経ることで本来のアイドラー光と全く同じ波長でパルス間隔で飛来するノイズとなる。今回 200 mW のポンプ光パワーに対して平均 8000 Hz のノイズカウントを観測した。これらのノイズはアクシデンタルカウントに対して、

$$C_{ac} = \frac{(N_s + n_s)(N_i + n_i)}{79.6 \times 10^6} \quad (3.39)$$

という依存性を示す。ここで $N_{s(i)}$ は単位時間あたりのシグナル (アイドラー) 光のシングルカウント数、 $n_{s(i)}$ はシグナル (アイドラー) ポートにおけるノイズカウントである。簡単な測定から $n_s \approx 200$ Hz および $n_i \approx 8000$ Hz であった。(3.39) に各ポンプ光パワーに対応するシングルカウントおよびこれらのノイズカウントを代入し、計算した結果を図 3.43 の破線で示す。よりつよいポンプ光パワー領域でアクシデンタルカウントが増えることが理論的にも確認された。これは C_{ac} がシングルカウントの 2 乗に比例することからも説明される。次に、同時 SPDC 過程のポンプ光 (ErSHG) の平均出力を変えながら 1 パルスあたりに含まれる SPDC 光子対の平均数 N_p を見積もった。単位時間あたりの同時カウント数を N_c 、単位時間あたりに生成される SPDC 光子対の数を N_o 、シグナル (アイ

ドラー) 光の発生から検出までの量子効率を $\mu_{s(i)}$ とすると、これらは次のような関係にある [65]。

$$N_s = \mu_s N_o \quad (3.40)$$

$$N_i = \mu_i N_o \quad (3.41)$$

$$N_c = \mu_s \mu_i N_o \quad (3.42)$$

これらから量子効率を消去すると以下の式 (3.43) を得る。

$$N_o = \frac{N_s N_i}{N_c} \quad (3.43)$$

さらに、 N_o を繰り返し周波数 79.6 MHz で割ることで 1 パルスあたりに含まれる SPDC 光子対の平均数 N_p が得られる。図 3.45 にポンプ光パワーを変えながら測定した N_p をプロットで示す。一般的

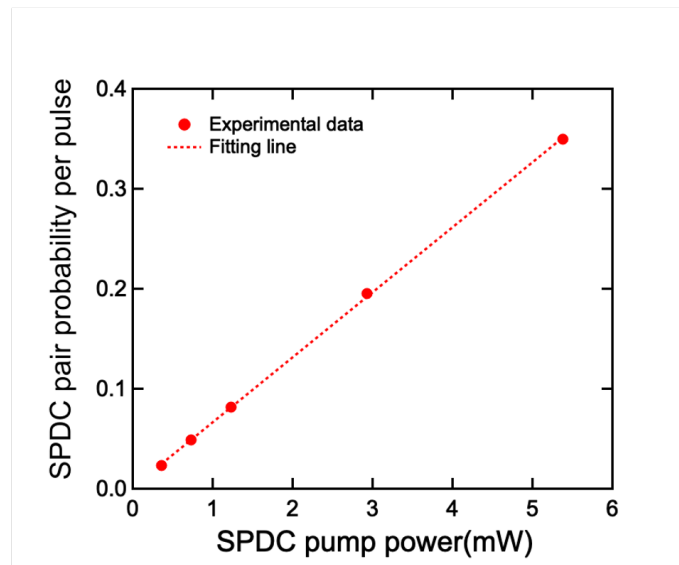


図 3.45: ポンプ光パワーを変えながら測定した N_p 。

に、SPDC 過程のような低効率の光子生成過程においてパルスごとの光子対の分布はポアソン分布関数 $P_{N_p}(n)$ に従う。1 パルスあたりに含まれる SPDC 光子対が 2 以上となるようなパルスがほとんど存在しなくなるまでポンプ光パワーを下げることによってアクシデンタルカウントを低く抑えることができる。図 3.45 の平均光子対レートをポアソン分布に代入し、1 パルスあたりに含まれる SPDC 光子対が 1 および 2 以上となる確率を各パワーごとに計算した。図 3.46 はポアソン分布を用いて計算した 1 パルスあたりに含まれる SPDC 光子対が 1 および 2 以上となる確率である。SPDC 光子対レートの 0.2 以上では確率は 1 桁程度の差であるため、79.6 MHz のパルス列に余剰な光子対が入ってくる割合は無視できない。一方で十分光子対レートを下げた領域ではその差が 2 桁以上となり、余剰光子が少ないことが期待される。よって余剰光子がほとんどなくなるまで光子対レートを下げることが CAR 改善の簡単な解決方法である。しかしながら、ノイズカウントおよび検出器の量子効率の低さという 2 点から、光子対レートに下限が存在することに注意する。量子効率が 1 に近い検出系では光子対レート 0.001 と十分低い値であっても 79.6 MHz のパルスに対して単位時間あたり 10^4 以上の同時カウント数を検出できる。それに対して、1000 nm 付近のシグナル光子および UPC を含めたアイドラー光子は Si-APD の検出効率の低さから合計検出効率が 2 % および 1 % 程度にとどまって

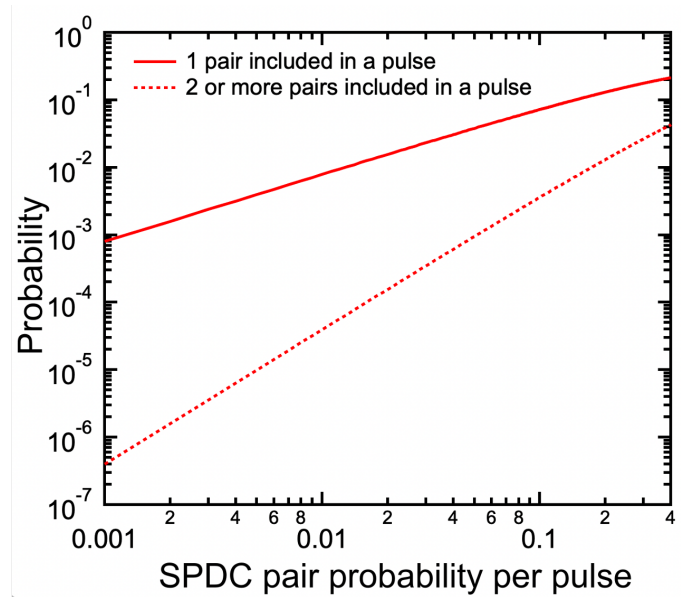


図 3.46: ポアソン分布を用いて計算した 1 パルスあたりに含まれる SPDC 光子対が 1 および 2 以上となる確率。

いる。同時イベント数はそれらの量子効率の積に依存して小さくなるため、光子対レートが 0.001 の場合同時カウント数は平均 10 cps と見積もられる。これは光子対レート 0.001 の場合に式 (3.39) から計算されるアクシデンタルカウントとほとんど等しくなってしまうため、光子対レートを下げるメリットに限度があることと同義である。それゆえ、CAR の改善には系全体の量子効率の改善が最も重要な課題である。Si-APD を現状のものからより長波長側が高感度なもの (15 % @ 1000 nm) に置き換えることや、アンプシステムにおいて固体アンプとの併用による UPC のポンプ光強度のさらなる増強などが改善策として挙げられる。

3.4 結論と展望

本章においてタイプゼロにおける同時 SPDC 過程の同時測定を行い、その量子相関を観測した。これにより、2つの独立した位相整合条件に基づく非線形過程間には相関があり、それに従う同時制を示すことを明らかにした。しかしながら、同時計測による相関の実証が QIS のような赤外可視相関光子対を用いる量子計測手法の広帯域化の可能性を示した一方で、同時非線形過程による光子対間のもつれ状態を示すには至らなかった。これは状態が周波数のみによって重ね合わせられているため、もつれ状態を取り出す測定が難しいことに起因する。先行研究で示されているように、光子対のもつれ状態を評価するには周波数とは異なる自由度も用いて重ね合わされた状態の生成が必須である。そこで次章では、偏光自由度をとりいれるため Type-II の SPDC 過程に注目し、偏光と周波数による重ね合わせ状態を生成することでもつれ状態の発生および評価を目指した。

第4章 同時SPDC過程を用いた偏光・周波数もつれ光子対の発生

第1章で述べたように、量子もつれ光子対を用いた量子情報・量子計測技術の発展が著しいにもかかわらず、SPDC過程を利用した従来の発生手法は複雑な光学操作を必要とするためもつれ純度が低下するといった課題があった。もつれ純度の担保と光学系の安定性を両立する量子もつれ光源の実装には簡便かつ高性能な発生手法の開拓が必要である。先行研究では「結晶を複数用いて擬似的に引き起こした2つの位相整合条件を重ね合わせる」手法を用いて、干渉系や非同軸過程などの複雑な光学系なしにもつれ状態の生成を可能にする手法を報告していた。しかしながら、2つの異なる結晶を用いるため対応帯域の狭い位相整合条件により発生帯域を制限される、あるいは複雑な結晶構造を制御する精密な結晶生成技術が必要とするなど、汎用的な実装に至るには克服されるべき技術的制約が依然として存在する。

我々は第3章で明らかにした同時SPDC過程間の量子相関をもとに、同時SPDC過程が量子もつれ状態にある光子対を形成しうることに着目した。前章ではType-0を用いていたが、Type-IIの同時SPDC過程の場合、単一の結晶周期を持つ非線形結晶1つを用いて量子もつれ光子対発生が可能であることを明らかにした。この手法は、単一の結晶をある波長のポンプ光で励起すると波長の組み合わせが同じで偏光が逆転した2組のType-IIのSPDC光子対が生成されることに基づいており、非常に簡便かつ容易に波長選択可能な量子もつれ光子対の発生が期待される。2つのType-IIのSPDC光子対が同時に位相整合する組み合わせが存在する結晶として、PPSLT結晶のように屈折率分散が異常光と常光でほとんど変わらない結晶が有用であることを見出した。また注目すべき点として、任意のポンプ波長に対して結晶周期と温度を調整することで任意の波長のもつれ光子対を生成することが可能であることが挙げられる。そのため先行研究で実証されている可視域や通信帯域付近の発生だけでなく赤外域においても発生可能となり、赤外量子計測の光源としての利用可能性も示唆される。本章は、PPSLT結晶における同時位相整合条件の理論計算の体系化および実際にHOM干渉を測定し量子もつれを実証した結果を示すことで、同時非線形過程の量子性をもつれ状態の観点から明らかにすることを目的とする。4.1節において、理論を概説する。さらに、光の量子状態で最も重要である光子数状態およびコヒーレント状態を説明する。また、量子化された光の特異な状態である量子もつれ状態を導入し、その記述方法を定義する。4.2節において、実験について説明し、その発生条件と特性を明らかにする。さらに自発パラメトリックダウンコンバージョン過程を用いた量子もつれ状態にある光子対の発生手法の先行研究を概説し、現状と課題を精査する。4.3節において、本論文が実証した量子もつれ状態生成の手法の全体感を総括する。

4.1 背景

4.1.1 非線形結晶の複屈折

公表論文 1 および 2 で用いた PPSLT 結晶および PPLN 結晶は高い非線形光学定数と可視域から赤外域 ($0.28\text{-}5.5\ \mu\text{m}$) にわたる透明性から、2 次の非線形光学結晶として波長変換技術や量子もつれ光子対源に幅広く用いられてきた [43]。PPSLT 結晶と PPLN 結晶には類似した特性を有する一方でいくつか異なる点も存在する。特筆すべき異なる点は屈折率分散の偏光依存性の違いである。基本的に結晶は複屈折を有するため入力する光の偏光によってその値が異なる。図 4.1 が示すように、PPLN 結晶が常光と異常光に間に大きな屈折率差を持つ。しかしながら、PPSLT 結晶は偏光による屈折率差がほとんどない。そのため、ある波長の組み合わせに対して PPLN 結晶では特定の偏光のみが位相整合する一方で、PPSLT 結晶では別の組み合わせの偏光も同時に位相整合してしまう場合がある。これは光子数計測などの高感度な測定を行う測定においてノイズとして計上される余剰光子を生成してしまうため望ましくない。このような背景から、多くの先行研究で PPLN 結晶が用いられてきた。

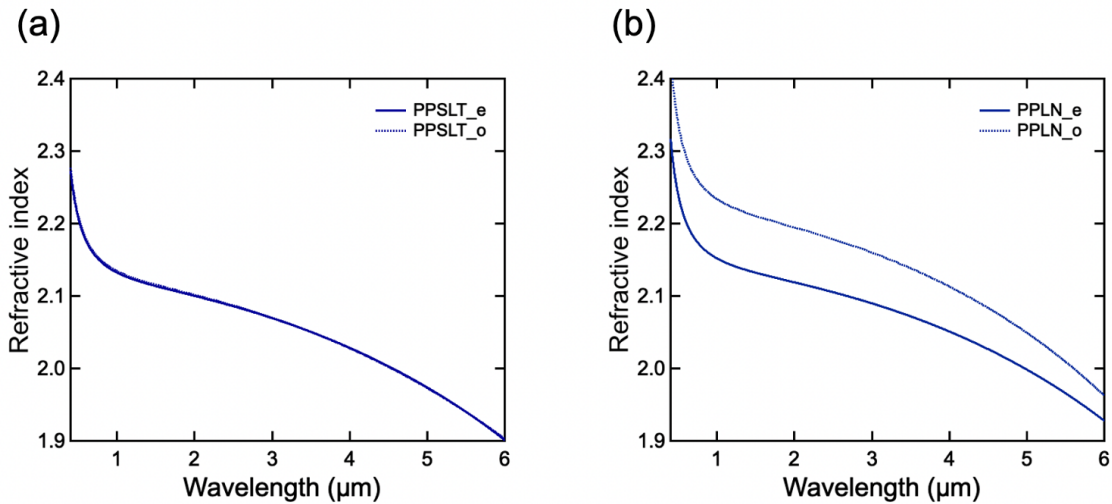


図 4.1: (a)PPSLT 結晶および (b)PPLN 結晶の屈折率分散。

第 3 章の PPLN 結晶を用いた量子相関光子対発生では相関の自由度が周波数領域にのみあるため量子もつれとしての性質を持たせることが困難であった。先行研究にあるように、Type-II の SPDC 光子対を偏光と周波数の両自由度において相関をもつことで量子もつれ状態の生成が可能になる [36]。我々は複屈折の小さい PPSLT 結晶において、ある波長の組み合わせで Type-II の SPDC 過程が位相整合する場合、波長の組み合わせが同じで偏光が逆転している場合でも位相整合する組み合わせが存在することを見出した。このような条件では 1 つの光子が $|\omega_s, H\rangle|\omega_i, V\rangle$ と $|\omega_s, V\rangle|\omega_i, H\rangle$ の 2 つの状態に確率的に分裂することが期待される。この光子対を偏光依存ビームスプリッターや波長依存ビームスプリッターによって空間的に分離することにより、第 1 章で述べたように周波数もつれおよび偏光もつれ状態を形成することが可能となる。以下ではこのような過程の実現可能性を理論的に示す。

4.2 Type-II 同時 SPDC 過程

4.2.1 Type-II の同時位相整合条件

同じポンプ光波長、結晶周期を用いた 2 つの Type-II の SPDC 過程の位相整合条件を以下に示す：

$$\frac{1}{\Lambda} = \frac{n_o(\lambda_p, T)}{\lambda_p} - \frac{n_e(\lambda_s, T)}{\lambda_s} - \frac{n_o(\lambda_i, T)}{\lambda_i} \quad (4.1)$$

$$\frac{1}{\Lambda} = \frac{n_o(\lambda_p, T)}{\lambda_p} - \frac{n_o(\lambda_s, T)}{\lambda_s} - \frac{n_e(\lambda_i, T)}{\lambda_i} \quad (4.2)$$

この 2 つの式 (4.1) および式 (4.2) を両方満たすような波長と結晶の組み合わせが存在することを示す。式 (4.1) から式 (4.2) を引き算して両辺を整理すると、

$$\frac{1}{\lambda_c} = \frac{n_e(\lambda_s, T) - n_o(\lambda_s, T)}{\lambda_s} = \frac{n_e(\lambda_i, T) - n_o(\lambda_i, T)}{\lambda_i} \quad (4.3)$$

を得る。ここで式 (4.3) を特徴づけるパラメーターとして $\frac{1}{\lambda_c}$ を与えた。ここで関数 $F(\lambda)$ を次のように定義する。

$$F(\lambda) = \frac{n_e(\lambda, T) - n_o(\lambda, T)}{\lambda} \quad (4.4)$$

ここで、式 (4.3) を満たす λ_s と λ_i の組み合わせが存在するための必要十分条件はある λ_c に対して、 $F(\lambda)$ が極値をもつことである。今回注目している PPSLT 結晶および PPLN 結晶に対してセルマイアの分散方程式を用いて $F(\lambda)$ を計算した結果を示す。図 4.2(a) のように、PPSLT 結晶において結晶

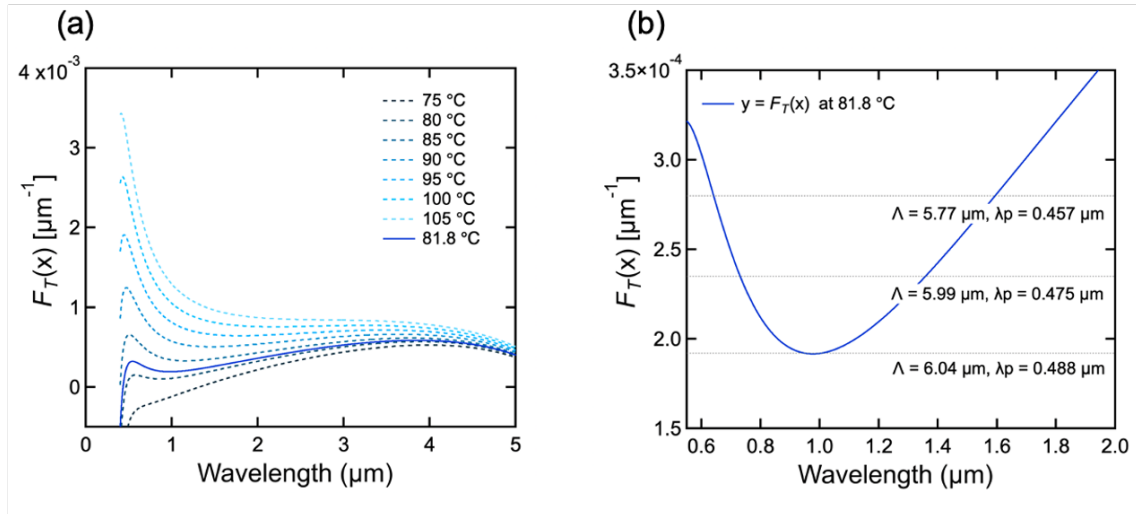


図 4.2: PPSLT 結晶の屈折率分散を用いて計算された $F(\lambda)$ 。(a) 結晶温度が 75-105°C の場合の比較。実線は 81.8°C の場合を表す。(b) 結晶温度が 81.8°C の場合の詳細。ポンプ光波長及び結晶周期を横軸と並行な破線の値になるよう設定すると、シグナル光とアイドラー光がそれぞれ交点に対応する波長に発生。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

温度に応じてある波長で極値が存在すること、すなわち式 (4.3) を満たすシグナル光とアイドラー光の組み合わせが存在することを明らかにした。また、計算から 78°C から 103°C の間では連続的に極値の位置が変化することがわかった。これにより、Type-II の同時 SPDC 過程には温度を 78°C から 103°C の間で精密に制御することで同時 SPDC 光子対発生が可能である。一方で図 4.3 のように、

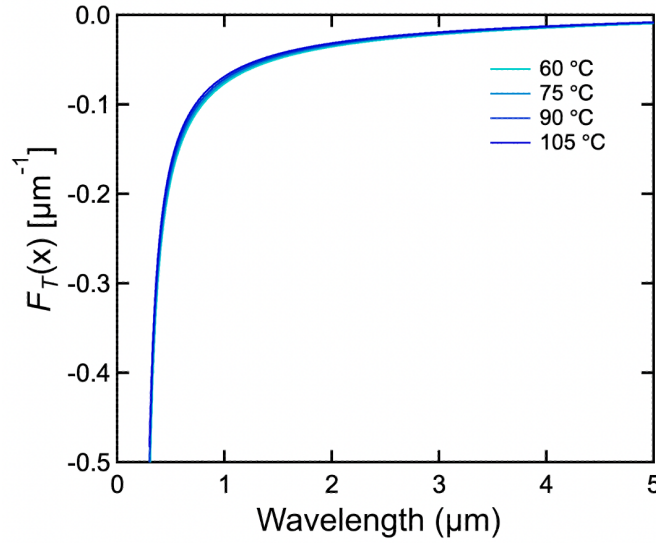


図 4.3: PPLN 結晶の屈折率分散を用いて計算された $F(\lambda)$ 。結晶温度が 60、75、90、105°C の場合の比較。PPSLT 結晶とは異なり $F(\lambda)$ に極値が存在しないため $F(\lambda_s) = F(\lambda_i)$ となるような波長 λ_s と λ_i の組み合わせが存在しない。

PPLN 結晶は結晶温度を変化させても透明領域 0.28-5.5 μm 内の任意の波長域で単調に変化しているため、式 (4.3) を満たすシグナルとアイドラーの組み合わせが存在しない。このことから、複屈折が小さいという PPSLT 結晶の特異な屈折率分散によって両方の式 (4.1) および式 (4.2) を満たす条件が存在することを明らかにした。このとき、同時 SPDC 光子対のどちらかのペアが確率的に生成されるはずなので、量子状態は次のように書ける。

$$|\varphi\rangle = \sqrt{p}|\omega_1, H\rangle|\omega_2, V\rangle + e^{i\theta}\sqrt{1-p}|\omega_1, V\rangle|\omega_2, H\rangle \quad (4.5)$$

式 (4.5) は第 1 章で導入した周波数と偏光自由度を用いて重ね合わせ状態を形成した光子対の量子状態に相当する。ここで、 p は 2 つの状態のうち $|\omega_1, H\rangle|\omega_2, V\rangle$ が生成される確率である。また $e^{i\theta}$ は状態間の位相差である。このようにして発生した光子対状態を PBS および DM に入射した場合、それぞれ偏光および波長に従って空間的に分離される。PBS によって分離された場合、光子対状態は

$$|\varphi\rangle = \sqrt{p}|\omega_1\rangle_H|\omega_2\rangle_V + e^{i\theta}\sqrt{1-p}|\omega_2\rangle_H|\omega_1\rangle_V \quad (4.6)$$

と書ける。これは 2 次元の周波数もつれ状態を表している。一方で、DM によって分離された場合、

$$|\varphi\rangle = \sqrt{p}|H\rangle_{\omega_1}|V\rangle_{\omega_2} + e^{i\theta}\sqrt{1-p}|V\rangle_{\omega_1}|H\rangle_{\omega_2} \quad (4.7)$$

と書け、これは偏光もつれ状態をあらわしている。

パラメーターによる波長可変性

次に、式 (4.3) とパラメーター λ_c を用いて同時 SPDC 過程が生じるようなポンプ光波長、結晶温度、結晶周期および発生波長を具体的に計算する。ここでは可視域から赤外域にわたってさまざまな波長の組み合わせで位相整合しうる温度として 83.41°C の場合を考える。図 4.4 は結晶温度 83.41°C

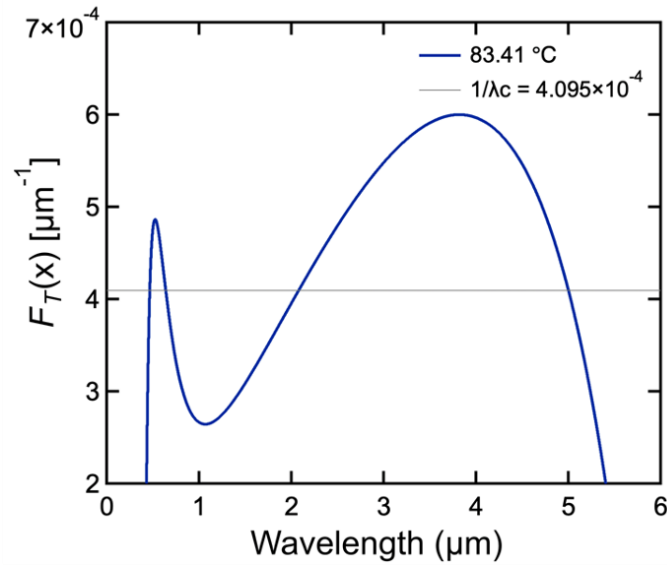


図 4.4: 結晶温度 83.41°C の場合の $F(\lambda)$ 。グレーの破線はパラメーター $\frac{1}{\lambda_c} = 4.095 \times 10^{-4}$ の定数関数。曲線 $y = F(\lambda)$ と破線の交点の組み合わせが 6 通り存在し、それぞれに対して対応する結晶周期とポンプ光波長を設定することで組み合わせの波長が位相整合する。

の場合の曲線 $y = F(\lambda)$ およびパラメーター $\frac{1}{\lambda_c} = 4.095 \times 10^{-4}$ の定数関数である。これらの交点 ($0.4649 \mu\text{m}$ 、 $0.637 \mu\text{m}$ 、 $2.077 \mu\text{m}$ 、 $4.999 \mu\text{m}$) の組み合わせがそれぞれシグナル光とアイドラー光に対応し、6 通り存在する。それぞれの組み合わせに対して対応する結晶周期とポンプ光波長を設定することで組み合わせの波長が位相整合する。表 4.1 は交点の組み合わせおよびそれらを位相整合するために必要なポンプ光波長と結晶周期の一覧表である。留意点としてポンプ光波長が PPSLT 結晶の透明領域外である 1 つ目の組み合わせは考慮外とする。このように、ある温度に対してポンプ光波長に応じて結晶周期を選ぶことで組み合わせの中から発生波長を選択することが可能であり、 $0.4649 \mu\text{m}$ と $4.999 \mu\text{m}$ の組み合わせからも分かるように、対応波長域は透明領域をほとんどカバーしうることがわかる。

表 4.1: 図 4.4 における交点の組み合わせおよびそれらを位相整合するために必要なポンプ光波長と結晶周期。

シグナル光波長 (μm)	アイドラー光波長 (μm)	ポンプ光波長 (μm)	結晶周期 (μm)
0.4649	0.637	0.269	0.605
0.4649	2.077	0.400	3.962
0.4649	4.999	0.425	8.814
0.637	2.077	0.488	7.847
0.637	4.999	0.565	14.48
2.077	4.999	1.467	27.37

また、式 (4.3) を式 (4.1) に代入して整理すると、

$$\frac{1}{\Lambda} + \frac{1}{\lambda_c} = \frac{n_o(\lambda_p, T)}{\lambda_p} - \frac{n_o(\lambda_s, T)}{\lambda_s} - \frac{n_o(\lambda_i, T)}{\lambda_i} \quad (4.8)$$

を得る。式 (4.8) は第 2 章でも扱った Type-0 の位相整合条件と類似した式となっている。ここでパラメーター $\frac{1}{\lambda_c}$ の典型的な大きさは $\frac{1}{\Lambda}$ に比べて 1 桁以上小さいことが計算からわかっている。そのため、パラメーターが $\frac{1}{\lambda_c}$ 式 (4.8) に含まれていることによる効果は相対的に小さくなり、通常の Type-0 の位相整合条件

$$\frac{1}{\Lambda} + \frac{1}{\lambda_c} = \frac{n_o(\lambda_p, T)}{\lambda_p} - \frac{n_o(\lambda_s, T)}{\lambda_s} - \frac{n_o(\lambda_i, T)}{\lambda_i} \quad (4.9)$$

を満たす Type-0 の SPDC 光子対とほとんど同じ波長で発生する可能性を示唆している。Type-0 の SPDC が同時発生する可能性については本章後半にて詳しく述べる。

4.2.2 Type-II の同時 SPDC 過程における発生波長可変性

前節において、PPSLT 結晶は温度を適切に選ぶことによって Type-II の同時 SPDC 過程を発生させることができ、その組み合わせはポンプ光波長と結晶周期で決まることに言及した。一方で、ポンプ光波長、結晶温度、結晶周期の 3 つを (4.3) に対する変数とみなすと、上述の計算は温度を固定して残りを調整パラメーターとして対応させることで発生波長を求めたとも考えられる。このことはどの変数を固定しても成り立つ議論であることから、ポンプ光波長あるいは結晶周期を固定した場合の計算についても同様に考えられることと等価である。以下、それぞれポンプ光波長および結晶周期を固定した場合の計算について示し、発生波長がどの変数を用いても広い波長領域で位相整合可能であることを示す。

ポンプ光波長を固定した場合

図 4.5 はポンプ光波長 (a) 488 nm、(b) 515 nm、(c) 780 nm のそれぞれに対して、発生波長（上部）および結晶温度（下部）を結晶周期の関数として計算した位相整合曲線である。典型的な波長である各ポンプ光波長 488 nm、515 nm、780 nm に対して結晶周期を調整することで縮退した波長から可視域と赤外域に大きく分裂した波長まで任意の波長のペアをカバーすることが可能であることがわかった。

結晶周期を固定した場合

図 4.6 は結晶周期 (a) 6.04 μm 、(b) 10.6 μm 、(c) 20.6 μm のそれぞれに対してポンプ光波長および発生波長を結晶温度の関数として計算した位相整合曲線である。ポンプ光波長を固定した場合と同様、各結晶周期に対してを結晶温度を調整することで縮退した波長から可視域と赤外域に大きく分裂した波長まで任意の波長のペアをカバーすることが可能である。これらの計算から、可能な変数を調整することで PPSLT 結晶の透明領域内の任意の波長を発生可能であることを明らかにした。

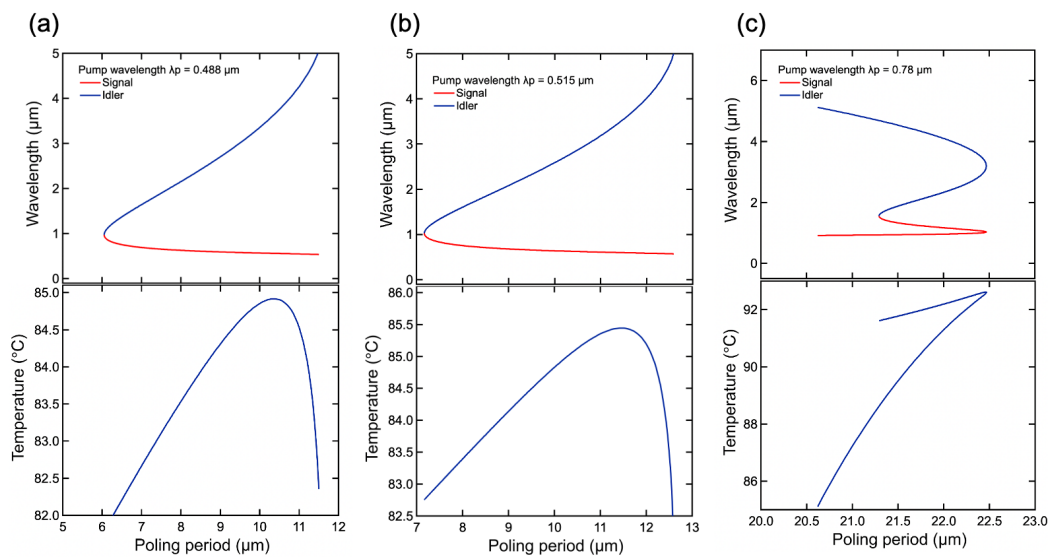


図 4.5: ポンプ光波長 (a) 488 nm、(b) 515 nm、(c) 780 nm のそれぞれに対して発生波長（上部）および結晶温度（下部）を結晶周期の関数として計算した位相整合曲線。各ポンプ光波長に対して結晶周期を調整することで縮退した波長から可視域と赤外域に大きく分裂した波長まで任意の波長のペアをカバーすることが可能である。(c) では同じ結晶周期で位相整合する組み合わせが 2 つ存在することに留意（対応する温度が異なるため同時に発生はしない）。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

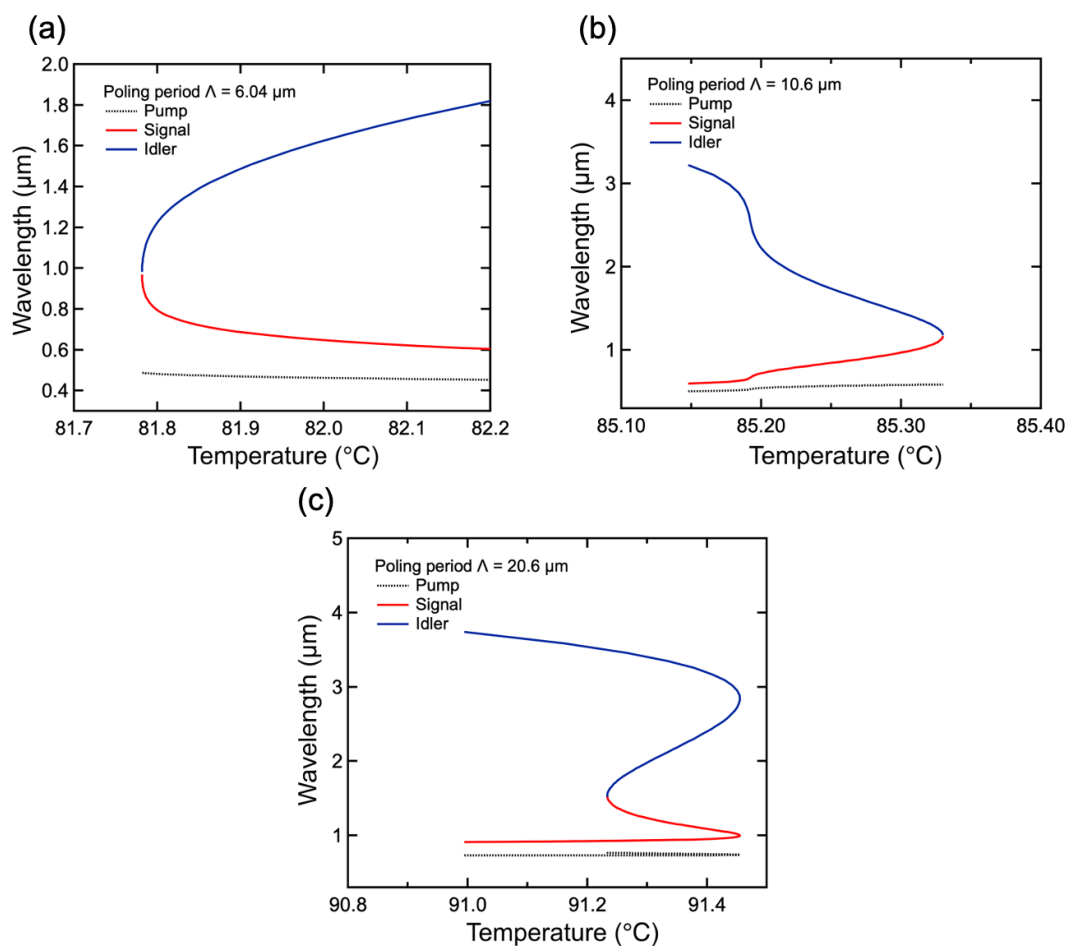


図 4.6: 結晶周期 (a) $6.04 \mu\text{m}$ 、(b) $10.6 \mu\text{m}$ 、(c) $20.6 \mu\text{m}$ のそれぞれに対してポンプ光波長および発生波長を結晶温度の関数として計算した位相整合曲線。各結晶周期に対してを結晶温度を調整することで縮退した波長から可視域と赤外域に大きく分裂した波長まで任意の波長のペアをカバーすることが可能である。(c) では同じ結晶温度で位相整合する組み合わせが2つ存在することに留意 (対応するポンプ光波長が異なるため同時に発生はしない)。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

4.2.3 Type-II の同時 SPDC スペクトルのシミュレーション

次に、PPSLT において同時 SPDC 過程を励起して得られる SPDC のスペクトルをシミュレーションする。ここでは本章後半で述べる HOM 干渉実験の実験条件と同様の値を想定するために、結晶温度を調整パラメータとしてポンプ光波長 488 nm (線幅 1 nm)、結晶温度結晶周期 6.04 μm を用いた。図 4.7 が示すように、線幅 1 nm を想定した場合の位相整合曲線は波長ごとにずれる。ポンプ光波

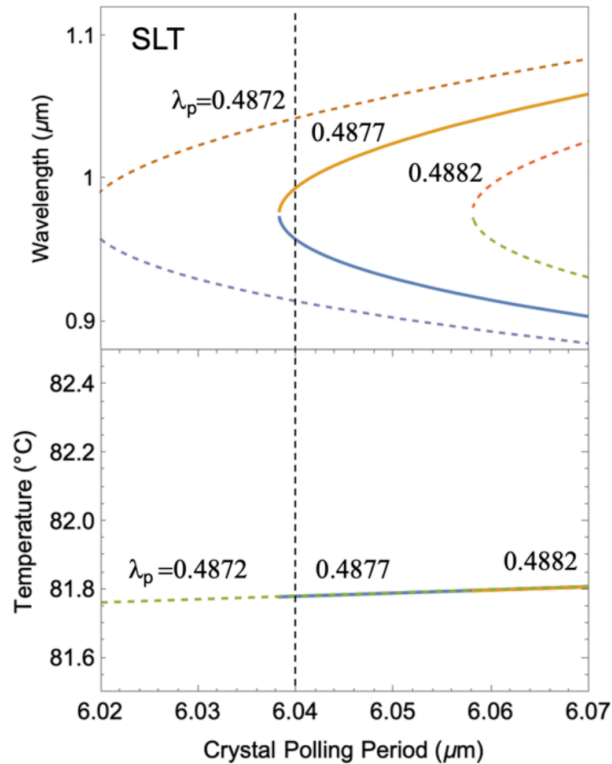


図 4.7: 図 4.5(a) において線幅 1 nm を想定した場合の位相整合曲線のずれ。ポンプ光波長の端および中心を代表的な波長の値として 3 本の曲線を計算している。曲線と破線 (結晶周期 6.04 μm に対応) との交点がすべてカバーされたスペクトルが得られることが予測されるため、0.92-1.04 μm の 120 nm 以上の広帯域な発生が見込まれる。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

長の端および中心を代表的な波長の値として 3 本の曲線を計算した場合、曲線と破線 (結晶周期 6.04 μm に対応) との交点がすべてカバーされたスペクトルが得られることが予測されるため、0.92-1.04 μm の 120 nm 以上の広帯域な発生が見込まれる。位相整合する温度 81.8°C と第 2 章で導入した式 (2.13) を用いて計算したスペクトルを図 4.8(a) の破線に示す。図 4.8(a) の破線は、予測されていたような広帯域スペクトルが得られる可能性を示唆している。理想的には十分細い線幅 (0.1nm 以下) を有するポンプ光を用いることで図 4.8(a) の実線にあるような離散的な 2 つのピークでなければならない。これは、縮退でない光子対間のもつれ現象を測定するためには発生スペクトル幅より広い光子間の波長差を持つ必要があることに起因する [3]。そのためこのようなスペクトルの広帯域化は望ましくない。そこで同軸方向で十分スペクトルの細い単色の光源が単周期の結晶を伝搬した際に発生するスペクトル部分のみを残すような干渉フィルターを導入し、余剰なスペクトル成分を取り除くことを試みた。2 つの離散的な透過波長域を持つフィルターシステムとして、ノッチフィルターと

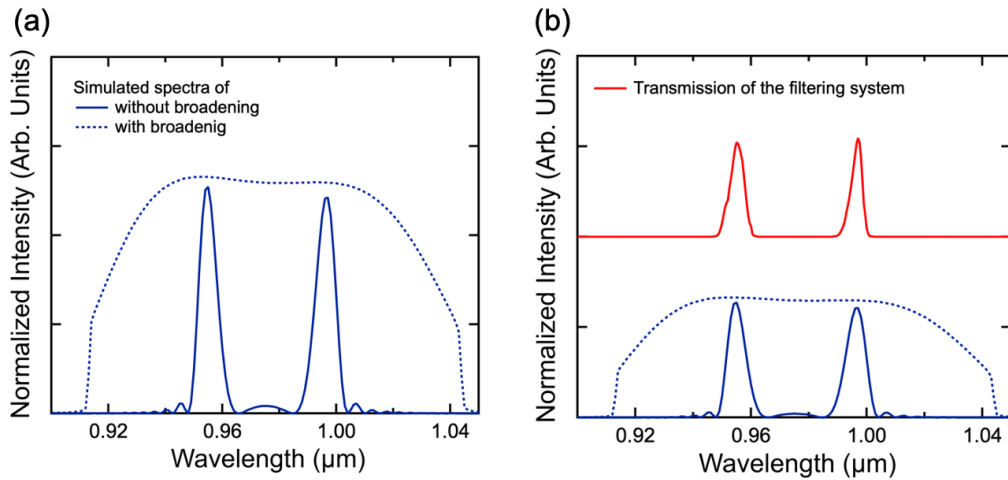


図 4.8: (a) 実線：十分細い線幅 (0.1 nm) のポンプ光と単周期を仮定した場合のスペクトルシミュレーション (図 4.4 に相当)。破線：線幅 1 nm のポンプ光を仮定した場合のスペクトルシミュレーション。(b) 上部：測定したフィルターの透過率。図 4.10 の破線に近い形状および中心波長を透過するフィルタリングシステムとなっている。下部：(a) を再掲。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

呼ばれるフィルターとロングパスフィルターおよびショートパスフィルターを組み合わせると図 4.8(a) の実線のスペクトル形状に類似した透過スペクトルを持つフィルターシステムを構築した。その透過スペクトルを紫外赤外域分析光度計 (UVPC) によって測定した結果を図 4.8(b) の上部に示す。図 4.8(b) の下部 (図 4.8(a) の再掲) と比較した結果、理想的な狭線幅ポンプを用いた場合とほとんど同じスペクトルを持つことを確認した。このことから、HOM 干渉を測定するためのもつれ状態の実証実験ではこのフィルタリングシステムを用いて必要なスペクトル成分のみを抽出して同時計測を行う必要がある。

4.3 実験

4.3.1 スペクトル計測

フィルタリングシステム

まず、上述のフィルタリングシステムを用いた場合に同時 SPDC 光子対のスペクトルが設計通りに抽出されていることを確認した。図 4.9 は同時 SPDC スペクトル測定の実験セットアップである。ポンプ光として平均出力 1 mW、スペクトル幅 1 nm で中心波長 488 nm の連続波レーザーダイオードを用いた。この光源を結晶長 11 mm の Fanout 型 PPSLT 結晶 (OXIDE corporation) に集光した。PPSLT 結晶の Fanout 構造は 5 mm の結晶幅に 5.9 から 6.4 μm の周期が刻まれている。PPSLT 結晶から発生した SPDC 光を平行光にした後、偏光成分分析するため HWP と WGP にて特定の直線偏光成分のみを抽出した。これをマルチモードファイバーにカップリングし、シリコン CCD array にて検出した。ここでスペクトル測定の SN 比を稼ぐため集光量を優先し、マルチモードファイバーを用いた

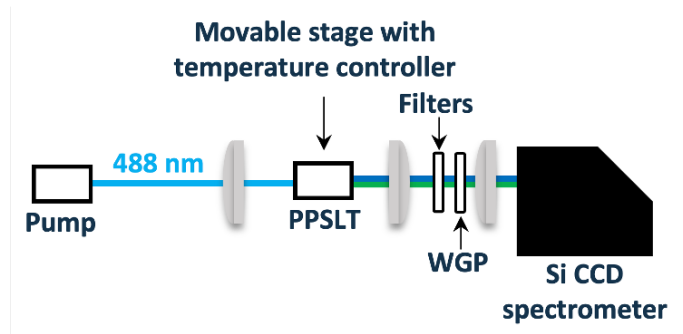


図 4.9: 同時 SPDC 光子対のスペクトル測定系の実験概念図。ポンプ光波長：488 nm。PPSLT：Fanout 構造 (5.9-6.4 μm) Filters：フィルタリングシステム。WGP：ワイアグリッド偏光子。SiCCD detector：シリコンベースの CCDarray 検出器。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

ことに留意する。そのため、フィルタリングシステムのない状態での測定には非同軸過程やその他マルチモード由来の様々な光が入ってしまい、図 4.8(a) の破線の広帯域スペクトル以上に広い帯域をもつスペクトルが得られた。これに対して上述のフィルタリングシステムを導入した結果を図 4.10 に示す。図 4.10 上部の青のスペクトルおよび緑のスペクトルはそれぞれ H 偏光、V 偏光を表す。H 偏光と V 偏光では中心波長が 955 nm および 998 nm となりフィルタリングシステムの透過スペクトルと等しく、発生光子数が異なることを確認した。これは上述の Type-0 の SPDC 光子対によるものであると予測され、後述の議論にて詳細を述べる。図 4.10 下部はポンプ光波長 488 nm に対して結晶温度 81.8°C と結晶周期 6.04 μm を用いたシミュレーションスペクトルを示している。温度の差が 7-8 K ほどあるが、これはセルマイア方程式のずれや集光由来の局所熱による結晶の温度勾配などの系統誤差が考えられる。

発生波長の可変性

次に、PPSLT 結晶を別のものに交換し、結晶周期を 7.83 μm に変更した場合のスペクトルも観測した。ここで、位相整合条件からアイドラー光がシリコンベースの CCDarray 検出器の検出可能領域外にあるため、可視域に発生するシグナル光のみを測定した。図 4.11 上部および下部が示すように、図 4.10 と同様に H 偏光、V 偏光の両方でスペクトルが観測され、中心波長やスペクトル形状がシミュレーションによって再現された。このように、結晶条件などを変数として発生波長を変更可能であることが実証された。

Type-0 の SPDC 過程

前述のように、PPSLT 結晶の複屈折が小さいことから Type-0 の SPDC 過程も同時に発生しうることを理論的に示した。また、SPDC 光子対のスペクトルを測定した結果、H 偏光成分が系統的に多くの光子数を含むことも確認された。これらを踏まえ、ここでは Type-0 の SPDC 光子対の寄与について詳細を調べる。図 4.12 は図 4.11 下部のシミュレーションスペクトルの成分分解である。4 つのスペクトルは Type-0 および Type-II の H および V 偏光成分を示しており、これらの和が図 4.11 下部に対応する。図 4.13 のプロットは図 4.11 上部の測定スペクトルが含む光子数の WGP 角度依存性

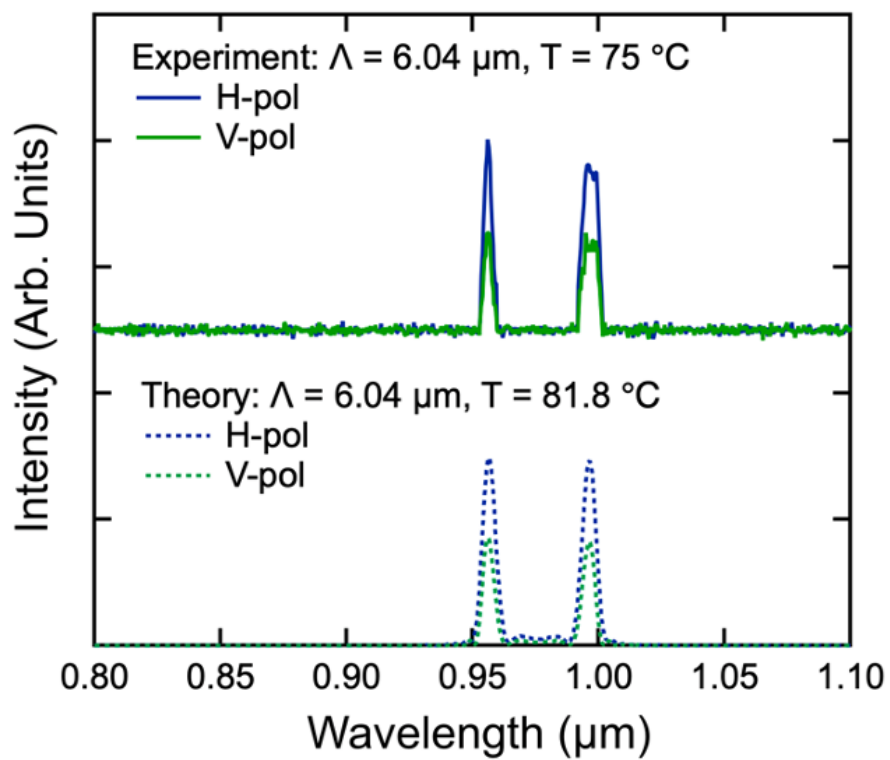


図 4.10: 上部：ポンプ光波長 488 nm に対して結晶温度 75°C と結晶周期 6.04 μm を用いて測定されたスペクトル。下部：ポンプ光波長 488 nm に対して結晶温度 81.8°C と結晶周期 6.04 μm を用いてシミュレーションされたスペクトル。温度の差が 7-8 K ほどあるが、これはセルマイア方程式のずれや集光由来の局所熱による結晶の温度勾配などの系統誤差が考えられる。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

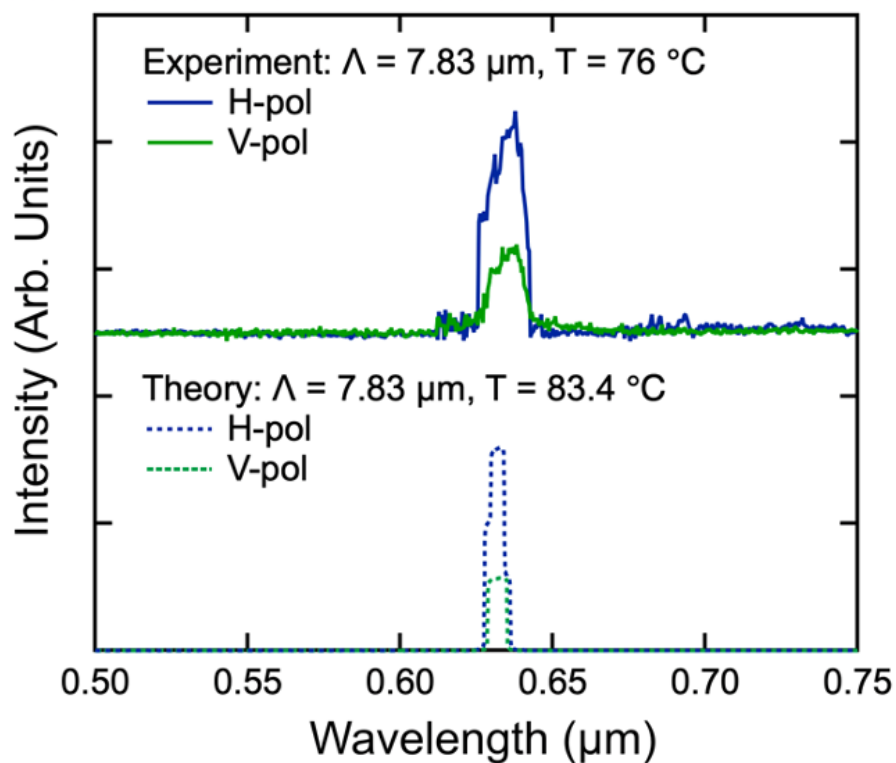


図 4.11: 上部：ポンプ光波長 488 nm に対して結晶温度 76°C と結晶周期 7.83 μm を用いて測定されたスペクトル。下部：ポンプ光波長 488 nm に対して結晶温度 83.4°C と結晶周期 7.83 μm を用いてシミュレーションされたスペクトル。この条件は表 4.1 の 4 番目の解に対応していることに留意する。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

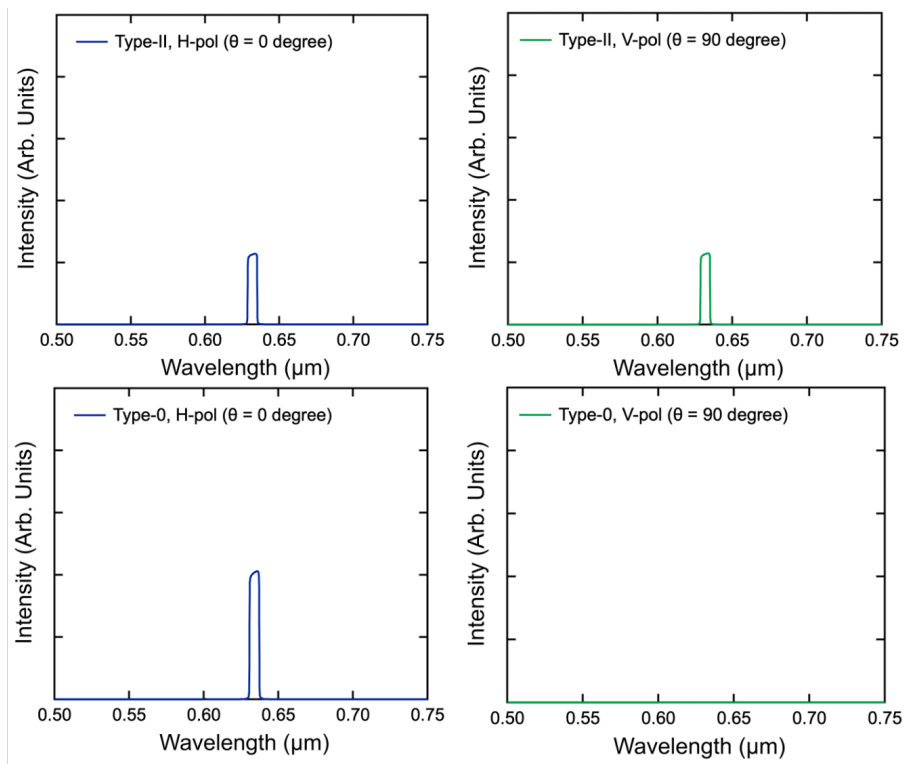


図 4.12: 図 4.11 下部のシミュレーションスペクトルの成分分解。Type-0 および Type-II の各偏光成分を示しており、これらの和が図 4.11 下部に対応する。

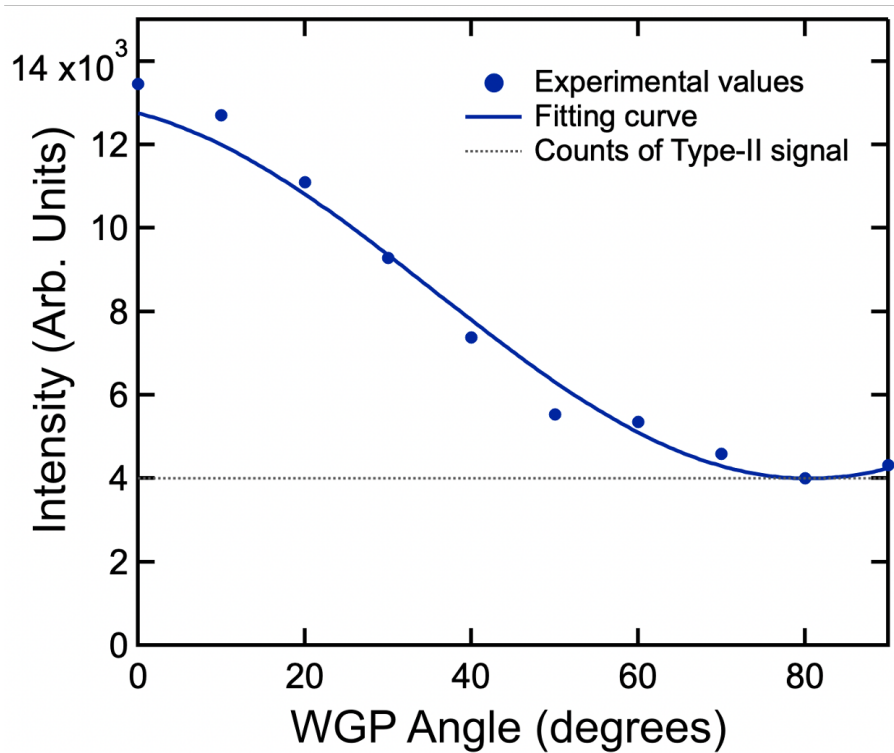


図 4.13: プロット : 図 4.11 上部の測定スペクトルが含む光子数の WGP 角度依存性。ベースライン (グレー破線) は抽出する偏光によらず常に発生している成分であり、Type-II の各偏光成分の射影光子数に対応していると考えられる。一方で、角度に依存して三角関数の形状を示す部分についてはある偏光成分のみの射影が寄与していると考えられるので、Type-0 の H 成分の射影光子数に対応していると考えられる。実線 : 式 (4.10) を用いて図 4.13 のプロットをフィッティングした曲線。

を示している。ベースライン（グレー破線）は抽出する偏光によらず常に発生している成分であり、Type-II の各偏光成分の射影光子数に対応している一方で、角度に依存した三角関数の形状を示す部分についてはある偏光成分のみの射影が寄与していると考えられるので、Type-0 の H 成分の射影光子数に対応していると考えられる。このとき射影成分を表現する式は

$$I = I_0 \cos^2(\theta) + I_{II} \quad (4.10)$$

で与えられる。ここで I は検出光子数、 I_0 は Type-0 の発生光子数、 I_{II} は Type-II の発生光子数である。式 (4.10) を用いて図 4.13 のプロットをフィッティングした結果が図 4.13 の実線である。フィッティングの結果から Type-0 の発生光子数 I_0 と Type-II の発生光子数 I_{II} の比は 2.3 と求めた。これは各 SPDC 過程の偏光に依存した非線形光学定数 $d_{22}=1.7$ pm/V および $d_{24}=1$ pm/V から予測される 2.89 と比べて妥当な値である [43]。

また、Type-0 の光子対は後述の HOM 干渉測定においてシグナル光子とアイドラー光子が両者とも H 偏光のポートのみを通るため、任意の Delay に対して経路差が不変である。このことから、Type-0 の SPDC 光子対は H 偏光のポートのみによる同時カウントを別で計測し、実際の測定からノイズ成分として排除することができる。

4.3.2 非縮退 SPDC 光子対の HOM 干渉測定

図 4.15 は PBS 型 Michelson 干渉系を組み込んだ HOM 干渉測定の実験セットアップである [36]。PPLST から発生した SPDC 光を平行光にした後 PBS1 と QWP を用いた Michelson 型干渉系に導入した。PBS1 によって偏光ごとに空間分離された光を QWP を通過させたのちミラーによって同じ光路を通るよう反射し、再び QWP を通すことで偏光を 90 度回転してから PBS1 に戻した。このとき片側のポートに電動ステージがついており、ポート間の距離の差を最小ステップ 10 nm 刻みで変化させることができる。PBS1 に戻った光子対は QWP によって偏光が 90 度回転したことにより入射したポートとは別のポートから射出し、再び空間内でオーバーラップした。その後 HWP によって斜め方向の直線偏光に回転させ、各ポートに半分の光量ずつ分離する条件で光子対を PBS2 に導入した。このとき、PBS を出た光子対は各ポートに光子が 1 つずつ射出される場合に、どちらのポートにどの周波数をもつ光子が出てくるかで 2 通りあるという HOM 干渉の実験メカニズムを満たすため、周波数領域の HOM 干渉系として機能している。PBS2 から出た光子対をそれぞれシングルモードファイバーにカップリングし、Si-APD で検出した。これらの信号を TCSPC によって処理し、同時計測を行った。このとき検出を同時とカウントする時間ゲートは検出器の時間分解能などから 4 ns とした。1 mW のポンプによる SPDC 光子対生成レートは状態 $|\omega_1, H\rangle|\omega_2, V\rangle$ では 3520 cps、 $|\omega_1, V\rangle|\omega_2, H\rangle$ では 3006 cps であった。

第 1 章で述べたように、非縮退 SPDC 光子対間の HOM 干渉の波形パターンは次の式で表される [3]。

$$N_c = \frac{N}{N_b} = \frac{1}{2}(1 - V \cos(\delta\omega t + \theta)(1 - |\frac{t}{t_c}|)) \quad (4.11)$$

式 (4.11) において、 N_c は規格化された同時イベント数、 N は実際の同時イベント数、 N_b は干渉が起きない範囲における同時イベント数の平均値（ベースライン）である。また、 V は干渉波形の明瞭度、 $\delta\omega$ はビート周波数、 t_c は干渉が起きる範囲を表すコヒーレンス時間である。ここで周波数 $\delta\omega$ は 2 つの非縮退の SPDC 光子対のピーク波長（周波数）の差から、コヒーレンス時間 t_c は 2 つのピークのスペクトル幅のうち細い方からそれぞれ理論的に推測される。図 4.13 から、SPDC 光子対中心周波

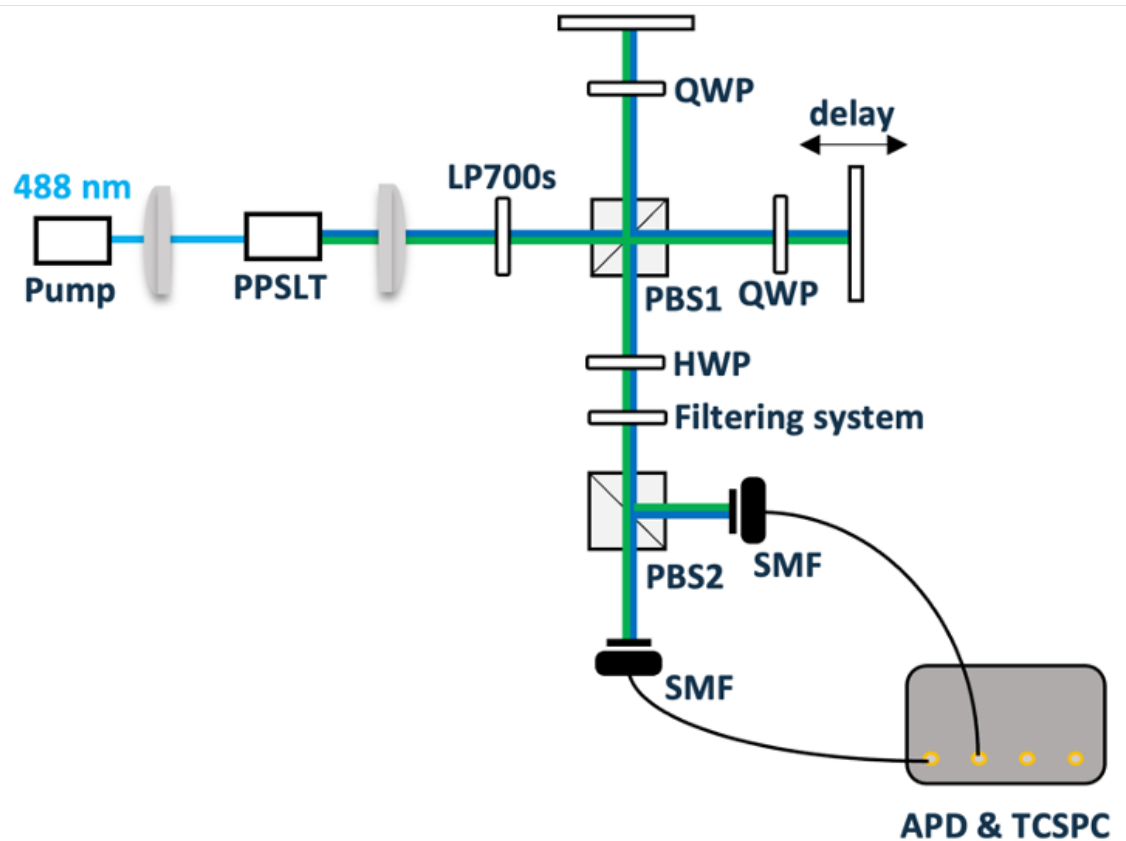


図 4.14: 非縮退 HOM 干渉測定系の実験概念図。ポンプ光波長: 488 nm。PPSLT: Fanout 構造 (5.9-6.4 μm) PBS: 偏光依存ビームスプリッタ。QWP: 1/4 波長板。Filters: フィルタリングシステム。HWP: 1/2 波長板。SMF: シングルモードファイバーカップラー。APD: アバランシェフォトダイオード。TCSPC: 時間相関単一光子検出モジュール。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

数間の周波数差は 13.3THz およびコヒーレント時間は SPDC 光子対のスペクトル幅の逆数より 0.68 ps であった。そこで波形を十分分解できるステージの移動刻み幅は 50 nm、測定すべきステージの移動範囲は $\pm 200 \mu\text{m}$ と見積もられた。これらを踏まえ、HOM 干渉波形を測定した結果を示す。図

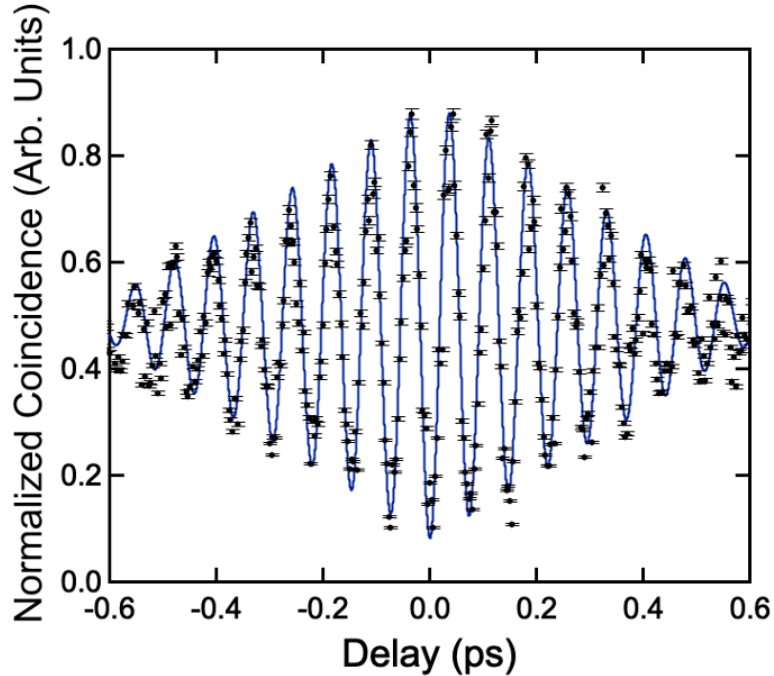


図 4.15: 観測した HOM 干渉波形。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

4.15 のプロットのように、規格化した同時イベント数 N_c がステージの位置ごとに変化し、干渉波形を示していることがわかる。図 4.15 のプロットに対して式 (4.11) を Fitting することにより、実線のような Fitting 曲線を得た。この曲線の Fitting パラメータから $V = 0.82$ 、 $\delta\omega = 13.26 \text{ THz}$ 、 $\theta = 0.205 \text{ rad}$ 、 $t_c = 0.69 \text{ ps}$ と見積もられた。 $\delta\omega$ と t_c はスペクトルから予測される値とよく一致しており、図 4.13 のように抽出された SPCD 光子対のもつれ状態による干渉であることを裏付けている。明瞭度 V については、フィルターを用いて光子を選択しているが、厳密に対応するシグナル・アイドラー光を完全には抽出できていないため、アクシデントカウントが増えてしまうことが起因して下がっていると考えられる。そのため十分スペクトル幅の細いポンプ光で単周期結晶を励起することでフィルターなしに十分離散的なスペクトルを形成することで明瞭度は改善される [53]。また、もつれ状態の純度を調べるために、第 1 章で導入した光子対の量子状態をテンソル化した密度行列 ρ を計算した。

$$\rho = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & p & \frac{V}{2}e^{-i\theta} & 0 \\ 0 & \frac{V}{2}e^{i\theta} & 1-p & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.12)$$

式 (4.12) は先行研究 [3] において用いられた周波数もつれにおける密度行列の基本式である。各行および列に対応する規格直交状態は $|\omega_1\rangle|\omega_1\rangle$ 、 $|\omega_1\rangle|\omega_2\rangle$ 、 $|\omega_2\rangle|\omega_1\rangle$ および $|\omega_2\rangle|\omega_2\rangle$ 対角成分が光子対そのものの発生数の比 p 、非対角成分が光子対間のもつれの純度に対応しており、理想的なもつれ光子

対では4つの成分が等しく0.5を示す。上記で見積もった値を用いて計算した行列要素 ρ_e および視覚化した図を以下に示す。

$$\rho_e = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.462 & 0.4 - 0.082i & 0 \\ 0 & 0.4 + 0.082i & 0.538 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.13)$$

式 (4.13) および図 4.16(a) のように、対角要素と非対角要素の差が小さい行列要素を得た。本実験で

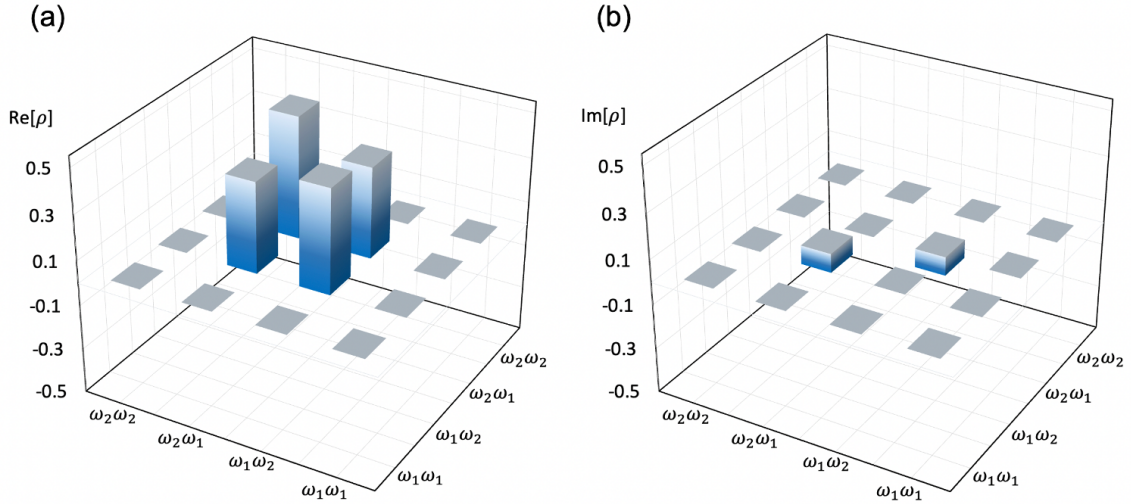


図 4.16: 式 (4.13) を用いて視覚化された行列要素。(a) 実部および (b) 虚部の値がタワーの高さで示されている。文献 [12] より転載。Copyright©2024 by Optica.

は $p = 0.538 \pm 0.002$ と見積もられたためそれを用いている。また図 4.16(b) のように、虚部はもつれ光子対間の位相差を表しており、ほとんど位相差のない光子対であることもわかった。これは1つの単結晶から発生したため、先行研究の2つの結晶の周期と結晶長から想定されていた位相差などを考慮する必要がないためである。また、 V と p の関係に $\frac{V}{2} \leq \sqrt{p(1-p)}$ があることから、光子対生成比を等しくすることもまたもつれ純度を高める重要な要素であることに留意する。さらに、もつれ純度の評価として忠実度 F を計算した結果、 $F = 0.90 \pm 0.001$ と見積もられた [66]。古典的には0.5が上限の忠実度が0.5を大きく上回っていることから本発生手法によって得られた周波数もつれ光子対の量子もつれ状態の実証がなされたことを裏付けている。

4.4 結論

本章では Type-II の SPDC 光子対を2組同時に発生させる位相整合条件を用いて、SPDC 光子対が周波数もつれ状態を形成していることを実証した。理論では、PPSLT 結晶の特異な屈折率分散に注目し、異常光と常光に対する屈折率の差を波長で割った値が極値を持つ場合にのみ同時過程が可能であることを導出した結果、ある結晶温度範囲のみでもつれ光子対発生の可能性を示した。さらに、任意のポンプ光波長に対して結晶温度と結晶周期を調整することで同時過程を利用可能であることを明らかにした。これにより、従来の手法の波長可変性における制約を解決することに加

え、可視域や通信帯域でしか確認されていなかったもつれ光子対を赤外域でも発生可能であることを示唆した。また実験では、同時過程による SPDC 光子対がもつれ状態を形成していることを非縮退 HOM 干渉系によって確認した。HOM 干渉波形を観測するために最小刻み幅 10 nm の高精度の電動ステージを用いて光子対間の位相を変化させながら同時計測を行った。ポンプ光のスペクトル幅などによって生じた光子対のスペクトルの余分な広帯域化を抑えるためにいくつかの干渉フィルターを組み合わせ、十分スペクトル幅の細いポンプ光で単周期結晶を励起した場合に理論的に予測されるスペクトルのみを抽出した。観測した HOM 干渉波形はフィルタリング後のスペクトル形状から予測される波形と良い一致を示しており、光子対間によるもつれ状態が引き起こしている干渉であることを裏付けた。さらにもつれ状態の評価として密度行列を計算し、周波数もつれ光子対としての純度が十分高いことを評価した。フィルターを必要としないポンプ光や結晶に置き換えることでより純度の高いもつれ光子対を生成できる可能性を示した。

本結果は確率的に 2 つ以上発生しうる非線形過程がもつれ状態を形成することを理論、実験の両側面から実証したことになる。任意の波長の光子対が同時 SPDC 過程によってもつれ状態を形成できることから、すでに先行研究で観測されている可視域や通信帯域に加えて赤外域と可視域に光子対が発生したもつれ状態をも形成しうる。これにより、量子通信の分野で主に注目されてきた周波数もつれ光子対を量子赤外分光や量子コヒーレンストモグラフィなどの計測技術においても応用されることが期待され、赤外域における物質の微弱な光学応答や高速現象の解明を、古典的制約を取り除いて行うことを可能にすると考えられる。

第5章 結論と将来展望

本論文では同時に発生する非線形光学過程の量子性に焦点を当て、同時 SPDC 過程という新規の発生手法を提唱し、その量子力学的性質を明らかにした。同時 SPDC 過程は同じポンプ光源および非線形光学結晶に対して位相整合条件が2つ以上満たされる場合に生じる相関光子対発生現象であり、特に赤外域と可視域に大きく分裂したペアは QIS をはじめとする量子赤外計測技術の広帯域化を可能にする。我々は3つの実験により、広帯域光源、同時 SPDC 過程間の量子相関および同時 SPDC 過程によるもつれ状態生成を実証した。前者2つでは、Type-0 の位相整合条件に基づいて赤外域を広くカバーする発生帯域が可能な条件を策定し、赤外上方変換システムを用いて赤外アイドラー光子発生を観測した。さらに同時計測によって赤外と可視に分裂した光子対の量子相関を実験的に観測した。このことから同時に位相整合する SPDC 光子対の量子状態は重ね合わせ状態にあり、光子対間に量子相関があることを明らかにした。一方で後者の実験では、Type-II の位相整合条件に基づいて偏光と周波数による重ね合わせ状態を生成し、世界ではじめて単一周波数の光源および単一周期の結晶のみを用いた量子もつれ光子対の発生を実証した。さらに非縮退 HOM 干渉波形の測定を行うことで量子もつれ状態の実験的観測およびもつれ状態の信頼性評価を行い、同時過程によるもつれ状態生成が極めて汎用的かつ高性能なもつれ光子対源となることを明らかにした。

これらの結果を踏まえ、我々は本研究の飛躍が量子技術の発展および物性物理における量子力学的特性の解明を大きく後押しすることを確信している。特に、今回は実証し得なかった赤外と可視に分裂した相関光子対のもつれ状態生成は喫緊の課題であり、3章で述べた高効率 UPC 検出器と組み合わせることによって報告のない赤外非縮退 HOM 干渉の実験的観測が重要である。波長が大きく分裂したもつれ光子対の実装は通信や演算に限定されてきた量子もつれ状態による古典限界の克服の範囲を拡張し、赤外計測をはじめとする物性分野における光学技術に量子論に基づいた知見を与え、古典的時間分解能などの制約によらない新たな物性を見出すきっかけとなる。

参考文献

- [1] J. S. BELL. on the Einstein Podolsky Rosen Paradox. *John S Bell Found. Quantum Mech.*, Vol. 1, No. 3, p. 195200, 1964.
- [2] Dik Bouwmeester, Jian Wei Pan, Klaus Mattle, Manfred Eibl, Harald Weinfurter, and Anton Zeilinger. Experimental quantum teleportation. *Philos. Trans. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci.*, Vol. 356, No. 1743, pp. 1733–1737, 1998.
- [3] S. Ramelow, L. Ratschbacher, A. Fedrizzi, N. K. Langford, and A. Zeilinger. Discrete tunable color entanglement. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 103, No. 25, pp. 2–5, 2009.
- [4] Changjia Chen, Eric Y. Zhu, Arash Riazi, Alexey V. Gladyshev, Costantino Corbari, Morten Ibsen, Peter G. Kazansky, and Li Qian. Compensation-free broadband entangled photon pair sources. *Opt. Express*, Vol. 25, No. 19, p. 22667, 2017.
- [5] Changjia Chen, Calvin Xu, Arash Riazi, Eric Y. Zhu, Alexander C.B. Greenwood, Alexey V. Gladyshev, Peter G. Kazansky, Brian T. Kirby, and Li Qian. Telecom-band hyperentangled photon pairs from a fiber-based source. *Phys. Rev. A*, Vol. 105, No. 4, pp. 1–9, 2022.
- [6] Muneer Alshowkan, Joseph M. Lukens, Hsuan-Hao Lu, Brian T. Kirby, Brian P. Williams, Warren P. Grice, and Nicholas A. Peters. Broadband polarization-entangled source for C+L-band flex-grid quantum networks. *Opt. Lett.*, Vol. 47, No. 24, 2022.
- [7] S. Ramelow, A. Fedrizzi, A. Poppe, N. K. Langford, and A. Zeilinger. Polarization-entanglement-conserving frequency conversion of photons. *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, Vol. 85, No. 1, pp. 1–5, 2012.
- [8] J Warner. Spatial RESOLUTION MEASUREMENTS IN UP - CONVERSION FROM 10.6 μm TO THE VISIBLE. *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 13, No. 10, pp. 360–362, 1968.
- [9] J. E. Midwinter. Image Conversion from 1.6 μm to the Visible in Lithium Niobate. *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 12, No. 3, pp. 68–70, 1968.
- [10] Masayuki Hojo and Koichiro Tanaka. Broadband infrared light source by simultaneous parametric down-conversion. *Sci. Rep.*, Vol. 11, No. 17986, pp. 1–8, 2021.
- [11] Masayuki Hojo, Shuntaro Tani, Yohei Kobayashi, and Koichiro Tanaka. Coincidence measurements of two quantum - correlated photon pairs widely separated in the frequency domain. *Sci. Rep.*, Vol. 13, No. 8520, pp. 1–10, 2023.
- [12] Masayuki Hojo and Koichiro Tanaka. Single-pass generation of widely-tunable frequency-domain entangled photon pairs. *Opt. Express*, Vol. 32, No. 2, pp. 1902–1913, 2024.

- [13] Oleksiy Roslyak and Shaul Mukamel. Multidimensional pump-probe spectroscopy with entangled twin-photon states. *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, Vol. 79, No. 6, pp. 1–11, 2009.
- [14] Oleksiy Roslyak, Christoph A. Marx, and Shaul Mukamel. Nonlinear spectroscopy with entangled photons: Manipulating quantum pathways of matter. *Phys. Rev. A*, Vol. 79, No. 3, pp. 1–5, 2009.
- [15] M. G. Raymer, Andrew H. Marcus, Julia R. Widom, and Dashiell L.P. Vitullo. Entangled photon-pair two-dimensional fluorescence spectroscopy (EPP-2DFS). *J. Phys. Chem. B*, Vol. 117, No. 49, pp. 15559–15575, 2013.
- [16] Fabiano Lever, Sven Ramelow, and Markus Gühr. Effects of time-energy correlation strength in molecular entangled photon spectroscopy. *Phys. Rev. A*, Vol. 100, No. 5, p. 53844, 2019.
- [17] Dmitry A. Kalashnikov, Anna V. Paterova, Sergei P. Kulik, and Leonid A. Krivitsky. Infrared spectroscopy with visible light. *Nat. Photonics*, Vol. 10, No. 2, pp. 98–101, 2016.
- [18] Anna Paterova, Shaun Lung, Dmitry A. Kalashnikov, and Leonid A. Krivitsky. Nonlinear infrared spectroscopy free from spectral selection. *Sci. Rep.*, Vol. 7, No. 1, pp. 1–8, 2017.
- [19] Chiara Lindner, Sebastian Wolf, Jens Kiessling, and Frank Kühnemann. Fourier transform infrared spectroscopy with visible light. *Opt. Express*, Vol. 28, No. 4, pp. 4426–4432, 2020.
- [20] Daniel Adam Stech. Quantum and Atom Optics. *Book*, pp. 143–147, 283–293,, 2007.
- [21] Andrew Steane. Quantum computing. *Reports Prog. Phys.*, Vol. 61, No. 2, pp. 117–173, 1998.
- [22] Anna V. Paterova, Hongzhi Yang, Chengwu An, Dmitry A. Kalashnikov, and Leonid A. Krivitsky. Tunable optical coherence tomography in the infrared range using visible photons. *Quantum Sci. Technol.*, Vol. 3, No. 2, 2018.
- [23] Masayuki Okano, Hwan Hong Lim, Ryo Okamoto, Norihiko Nishizawa, Sunao Kurimura, and Shigeki Takeuchi. 0.54 M m Resolution Two-Photon Interference With Dispersion Cancellation for Quantum Optical Coherence Tomography. *Sci. Rep.*, Vol. 5, No. November, pp. 1–8, 2015.
- [24] J. G. Rarity, P. R. Tapster, E. Jakeman, T. Larchuk, R. A. Campos, M. C. Teich, and B. E.A. Saleh. Two-photon interference in a Mach-Zehnder interferometer. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 65, No. 11, pp. 1348–1351, 1990.
- [25] Rui Bo Jin, Ryosuke Shimizu, Mikio Fujiwara, Masahiro Takeoka, Ryota Wakabayashi, Taro Yamashita, Shigehito Miki, Hirotaka Terai, Thomas Gerrits, and Masahide Sasaki. Simple method of generating and distributing frequency-entangled qudits. *Quantum Sci. Technol.*, Vol. 1, No. 1, 2016.
- [26] M. V. Jabir and G. K. Samanta. Robust, high brightness, degenerate entangled photon source at room temperature. *Sci. Rep.*, Vol. 7, No. 1, pp. 1–8, 2017.
- [27] Haruka Terashima, Satoshi Kobayashi, Takaho Tsubakiyama, and Kaoru Sanaka. Quantum interferometric generation of polarization entangled photons. *Sci. Rep.*, Vol. 8, No. 1, pp. 1–8, 2018.

- [28] Hiroki Takesue and Kyo Inoue. Generation of polarization-entangled photon pairs and violation of Bell's inequality using spontaneous four-wave mixing in a fiber loop. *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, Vol. 70, No. 3, pp. 1–11, 2004.
- [29] Jun Xin, Jian Qi, and Jietai Jing. Enhancement of entanglement using cascaded four-wave mixing processes. *Opt. Lett.*, Vol. 42, No. 2, p. 366, 2017.
- [30] Ying Wu, M. G. Payne, E. W. Hagley, and L. Deng. Preparation of multiparty entangled states using pairwise perfectly efficient single-probe photon four-wave mixing. *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, Vol. 69, No. 6, 2004.
- [31] Zepei Li, Xiaoli Wang, Chenyu Li, Yufei Zhang, Feng Wen, Irfan Ahmed, and Yanpeng Zhang. Two-mode entanglement of dressed parametric amplification four-wave mixing in an atomic ensemble. *Laser Phys. Lett.*, Vol. 13, No. 2, p. 25402, 2016.
- [32] A. Yariv. *Quantum electronics*. 1989.
- [33] W. H. Louisell, A. Yariv, and A. E. Siegman. Quantum fluctuations and noise in parametric processes. I. *Phys. Rev.*, Vol. 124, No. 6, pp. 1646–1654, 1961.
- [34] Bao Sen Shi and Akihisa Tomita. Generation of a pulsed polarization entangled photon pair using a Sagnac interferometer. *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, Vol. 69, No. 1, p. 4, 2004.
- [35] Paul G. Kwiat, Klaus Mattle, Harald Weinfurter, Anton Zeilinger, Alexander V. Sergienko, and Yanhua Shih. New high-intensity source of polarization-entangled photon pairs. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 75, No. 24, pp. 4337–4341, 1995.
- [36] Fumihiko Kaneda, Hirofumi Suzuki, Ryosuke Shimizu, and Keiichi Edamatsu. Direct generation of frequency-bin entangled photons via two-period quasi-phase-matched parametric downconversion. *Opt. Express*, Vol. 27, No. 2, p. 1416, 2019.
- [37] C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel. Measurement of Subpicosecond Time Intervals between Two Photons by Interference. *Vol. 59, NUMBER 18 Phys. Rev. Lett.*, Vol. 59, No. 18, 1987.
- [38] Z. Y. Ou and L. Mandel. Observation of spatial quantum beating with separated photodetectors. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 61, No. 1, pp. 54–57, 1988.
- [39] Daniel F.V. James, Paul G. Kwiat, William J. Munro, and Andrew G. White. Measurement of qubits. *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, Vol. 64, No. 5, p. 15, 2001.
- [40] Akira Tanaka, Ryo Okamoto, Hwan Hong Lim, Shanthi Subashchandran, Masayuki Okano, Labao Zhang, Lin Kang, Jian Chen, Peiheng Wu, Toru Hirohata, Sunao Kurimura, and Shigeaki Takeuchi. Noncollinear parametric fluorescence by chirped quasi-phase matching for monocycle temporal entanglement. *Opt. Express*, Vol. 20, No. 23, p. 25228, 2012.
- [41] Aron Vanselow, Paul Kaufmann, Helen M. Chrzanowski, and Sven Ramelow. Ultra-broadband SPDC for spectrally far separated photon pairs. *Opt. Lett.*, Vol. 44, No. 19, p. 4638, 2019.

- [42] Magued B. Nasr, Silvia Carrasco, Bahaa E.A. Saleh, Alexander V. Sergienko, Malvin C. Teich, Juan P. Torres, Lluís Torner, David S. Hum, and Martin M. Fejer. Ultrabroadband biphotons generated via chirped quasi-phase-matched optical parametric down-conversion. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 100, No. 18, pp. 1–4, 2008.
- [43] S. Manjooran, H. Zhao, I. T. Lima, and A. Major. Phase-matching properties of PPKTP, MgO:PPSLT and MgO:PPcLN for ultrafast optical parametric oscillation in the visible and near-infrared ranges with green pump. *Laser Phys.*, Vol. 22, No. 8, pp. 1325–1330, 2012.
- [44] Karl Koch, Gerald T. Moore, Stephen H. Chakmakjian, E. C. Cheung, J. M. Liu, and Gerald T. Moore. Hot Spots in Parametric Fluorescence with a Pump Beam of Finite Cross Section. *IEEE J. Quantum Electron.*, Vol. 31, No. 5, pp. 769–781, 1995.
- [45] Marco Fiorentino, Sean M. Spillane, Raymond G. Beausoleil, Tony D. Roberts, Philip Battle, and Mark W. Munro. Spontaneous parametric down-conversion in periodically poled KTP waveguides and bulk crystals. *Opt. Express*, Vol. 15, No. 12, p. 7479, 2007.
- [46] Alexander S. Solntsev, Pawan Kumar, Thomas Pertsch, Andrey A. Sukhorukov, and Frank Setzpfandt. LiNbO₃ waveguides for integrated SPDC spectroscopy. *APL Photonics*, Vol. 3, No. 2, 2018.
- [47] Sebastian Wolf, Tobias Trendle, Jens Kiessling, Johannes Herbst, Karsten Buse, and Frank Kühnemann. Self-gated mid-infrared short pulse upconversion detection for gas sensing. *Opt. Express*, Vol. 25, No. 20, p. 24459, 2017.
- [48] Kun Huang, Yinqi Wang, Jianan Fang, Weiyan Kang, Ying Sun, Yan Liang, Qiang Hao, Ming Yan, and Heping Zeng. Mid-infrared photon counting and resolving via efficient frequency upconversion. *Photonics Res.*, Vol. 9, No. 2, p. 259, 2021.
- [49] Yong Meng Sua, Heng Fan, Amin Shahverdi, Jia Yang Chen, and Yu Ping Huang. Direct Generation and Detection of Quantum Correlated Photons with 3.2 μm Wavelength Spacing. *Sci. Rep.*, Vol. 7, No. 1, pp. 1–10, 2017.
- [50] M. Mancinelli, A. Trenti, S. Piccione, G. Fontana, J. S. Dam, P. Tidemand-Lichtenberg, C. Pedersen, and L. Pavesi. Mid-infrared coincidence measurements on twin photons at room temperature. *Nat. Commun.*, Vol. 8, No. May, pp. 1–8, 2017.
- [51] Michael Jackson and Henry H. Mantsch. The use and misuse of FTIR spectroscopy in the determination of protein structure. *Crit. Rev. Biochem. Mol. Biol.*, Vol. 30, No. 2, pp. 95–120, 1995.
- [52] Ajanta Barh, Christian Pedersen, and Peter Tidemand-Lichtenberg. Ultra-broadband mid-wave-IR upconversion detection. *Opt. Lett.*, Vol. 42, No. 8, p. 1504, 2017.
- [53] Chen Yang, Su Jian Niu, Zhi Yuan Zhou, Yan Li, Yin Hai Li, Zheng Ge, Ming Yuan Gao, Zhao Qi Zhi Han, Ren Hui Chen, Guang Can Guo, and Bao Sen Shi. Advantages of the frequency-conversion technique in quantum interference. *Phys. Rev. A*, Vol. 105, No. 6, pp. 1–7, 2022.
- [54] Andy Chong, Joel R. Buckley, Will H. Renninger, and Frank W. Wise. All-Normal-Dispersion Femtosecond Fiber Laser. *Opt. Express*, Vol. 14, No. 21, 2006.

- [55] J. D. Kafka and T Baer. Mode-locked erbium-doped fiber laser with soliton pulse shaping. *Opt. Lett.*, Vol. 14, No. 22, pp. 1269–1271, 1989.
- [56] Nishant Mohan, Olga Minaeva, Gregory N. Goltsman, Mohammed F. Saleh, Magued B. Nasr, Alexander V. Sergienko, Bahaa E.A. Saleh, and Malvin C. Teich. Ultrabroadband coherence-domain imaging using parametric downconversion and superconducting single-photon detectors at 1064 nm. *Appl. Opt.*, Vol. 48, No. 20, pp. 4009–4017, 2009.
- [57] Alexander Divochiy, Yury Vakhtomin, Pavel Morozov, Konstantin Smirnov, Philipp Zolotov, Marta Misiaszek, and Piotr Kolenderski. Single photon detection system for visible and infrared spectrum range. *Opt. Lett.*, Vol. 43, No. 24, 2018.
- [58] M. R. A. Moghaddam, S. W. Harun, and H. Ahmad. Comparison between Analytical Solution and Experimental Setup of a Short Long Ytterbium Doped Fiber Laser. *Opt. Photonics J.*, Vol. 02, No. 02, pp. 65–72, 2012.
- [59] P. K. Mukhopadhyay. Femtosecond pulse generation and amplification in Yb-doped fibre oscillator - Amplifier system. *Pramana - J. Phys.*, Vol. 75, No. 5, pp. 787–805, 2010.
- [60] John M. Dudley, Goëry Genty, and Stéphane Coen. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 78, No. 4, pp. 1135–1184, 2006.
- [61] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou. Generation of Ultrahigh Peak Power Pulses by Chirped Pulse Amplification. *IEEE J. Quantum Electron.*, Vol. 24, No. 2, pp. 398–403, 1988.
- [62] Luis Zenteno. High-Power Double-Clad Fiber Lasers. *J. Light. Technol.*, Vol. 11, No. 9, pp. 1435–1446, 1993.
- [63] Naoya Kuse, Akira Ozawa, Yutaka Nomura, Isao Ito, and Yohei Kobayashi. Injection locking of Yb-fiber based optical frequency comb. *Opt. Express*, Vol. 20, No. 10, p. 10509, 2012.
- [64] C. Zhou, Y. Cai, L. Ren, P. Li, S. Cao, L. Chen, M. Zhang, and Z. Zhang. Passive synchronization of femtosecond Er- and Yb-fiber lasers by injection locking. *Appl. Phys. B Lasers Opt.*, Vol. 97, No. 2, pp. 445–449, 2009.
- [65] Y. Mukai, M. Arahata, T. Tashima, R. Okamoto, and S. Takeuchi. Quantum Fourier-Transform Infrared Spectroscopy for Complex Transmittance Measurements. *Phys. Rev. Appl.*, Vol. 15, No. 3, p. 1, 2021.
- [66] Shi Jian Gu. Fidelity approach to quantum phase transitions. *Int. J. Mod. Phys. B*, Vol. 24, No. 23, pp. 4371–4458, 2010.

謝辞

本論文執筆にあたり、大学院の4年5か月を支えて下さった皆様に感謝申し上げます。

研究のあるべき姿を提示しながら懇切丁寧に指導して下さった田中耕一郎教授に心より感謝申し上げます。実験・理論の両側面の考察に関する革新的かつ洞察に富んだ議論は私の研究を大きく前進させ、公表論文出版や国際学会での発表など研究の社会への還元に至るまで多大なる御支援賜りました。時にはビジョナリーな意見をいただき、時には細部にまで丁寧な理論の精緻化を遂行していただき、唯一無二の洗練された研究へと発展させて下さいました。また、研究室を離れたにもかかわらず、博士論文の取得に向けて最後まで尽力いただき、田中先生のお力添えなしでは本研究を纏め上げ、博士号を取得するには至りませんでした。

中暢子教授には、物理学に関する幅広い知見を補完していただき、本質的な指摘を多くいただきました。研究室での研究報告では、多角的かつ高い視点から研究を俯瞰した御意見をいただき、発表者としての質を向上させていただく重要な機会を提供して下さいました。有川敬助教（現兵庫県立大学准教授）には、研究の意義を深に考え、位置付けを見直す必要性を教わりました。

内田助教には、光学に関する基礎知識から実験の心得をはじめ全ての側面において、大学院生としての資質を向上させる教育をしていただきました。常に意見を無批判に受け入れることのない研究者としての姿勢を示し、研究前進のきっかけを何度も与えて下さいました。さらには、東京大学物性研究所小林研究室との共同研究にも同行いただき、研究の基礎をなすレーザーシステム開発に多大なる協力をいただきました。

東京大学物性研究所小林研究室の小林洋平教授、谷峻太郎助教授、高橋孝さんには、浅学な私にファイバーを扱った多岐にわたる実験指導をしていただき、共同研究という形でレーザーシステム開発を全面的に支えていただきました。また、2020年以降の自粛期間中、感染リスクも懸念されるなか来研を受け入れて下さり、修士課程で指導いただいた技術をさらに深化させた周波数同期レーザーの開発をご指導いただきました。また、公表論文2では共著としてもご協力いただき、光源についてだけでなく、論文全体についても貴重なご意見をいただきました。先生方との共同研究なしには本研究はなし得ませんでした。心より感謝申し上げます。

秘書の中村さんには私の事務周辺業務を全面的にサポートしていただきました。入学から最後までご迷惑をかける場面が多く、数えきれないほどの助けをいただきました。研究生活を円滑にしていたいただきましたこと、心より感謝申し上げます。

同期の江口君をはじめ、ここに名前を挙げていない光物性研究室の皆様にも、研究生活を送る上で常に支えられました。決してお手本とはいかぬ振る舞いではありましたが、温かく受け入れていただきましたこと、改めてこの場をお借りして皆様に感謝申し上げます。

最後に、ここまで見守り支えてくれた家族にも、この場をお借りして深く感謝申し上げます。