

論文の内容の要旨

論文題目	励起子分子発光を用いた量子分光計測の研究
学位申請者	関 浩弥

光と物質の相互作用に着目し、光を介して凝縮系の物性を明らかにしていく研究手法は光物性研究として知られている。光物性研究では、物質中の量子状態を光と物質との相互作用を通じて、周波数や時間自由度の分光計測から取得したデータを基に推定を行う。さらに、電子のスピン角運動量は偏光計測を通じて推定される。一般に、周波数領域では回折格子などを用いた分光器による周波数強度スペクトルの計測が行われ、時間領域では干渉計測から強度スペクトルを取得することも可能である。また、偏光自由度では波長板と偏光子で構成される偏光計測装置による評価が行われる。このような分光計測は、物質内部の電子状態を量子力学によって取り扱う一方で、光源や計測には電磁気学に基づいた波動光学理論が用いられている。この半古典論的な取り扱いは、多くの光と物質との相互作用を説明してきた。一方で、光を量子的に扱う量子光学研究の分野では、量子もつれ光子をはじめとする非古典的な光の生成方法や、その検出技術の開発が行われてきた。量子もつれ状態を形成する2光子は、二つの単一光子検出器からの出力信号に対する同時計数測定により検出され、光子統計性の違いから光子対を選択的に検出することができる。同時計数測定による2光子検出を、干渉計や分光器、偏光計測器を組み合わせることで、従来の波動光学に基づいた光の強度測定では取得することができない、量子もつれ光子特有の指標を用いた光の評価が可能となる。量子もつれ光子の生成は、最初に原子を用いた方法が開発されたが、現在では強誘電体結晶を光励起して生成する手法が確立されている。さらに近年では、非線形結晶以外にも半導体や蛍光たんぱく質などからの量子もつれ光子の生成も確認されており、これらの物質に対して量子光学計測を適用することで、従来の分光計測手法では観測が困難であった物理現象の評価が可能となることが期待できる。本論文では、量子光学計測を光物性研究へ適用し、その分光計測としての可能性を実証する第一歩として、CuCl半導体単結晶中の励起子分子状態を介して生成された光子対に対して量子光学計測を適用し、得られた実験結果と励起子物性との関係を明らかにすることに取り組んだ。

CuCl 半導体単結晶では、超短パルス光を用いた 2 光子共鳴励起により励起子分子が生成される。励起子分子の緩和過程の一つとして、ポラリトン散乱により光子対が生成されるが、この物理過程を通じて生成された 2 光子は偏光の自由度で量子もつれ状態を形成していることが知られている。さらに、励起子分子を介したポラリトン散乱は位相整合条件を満たしたコヒーレントな過程であることから、周波数や波数ベクトルにおいても量子相関を有する光子対が生成されることが想定される。一方で、励起子分子状態の緩和は、位相整合条件を通じて量子相関に影響することが予想される。本研究では、励起子分子から生成された光子対に対し、時間・周波数領域においては 2 光子量子干渉分光と 2 光子スペクトル計測、偏光自由度においては量子状態トモグラフィ計測を行うことで、主として励起子分子状態の位相緩和が量子相関に及ぼす効果の検証を行った。はじめに、2 光子量子干渉分光では Hong-Ou-Mandel (HOM) 干渉と NOON 干渉の二種類の干渉測定を行った。HOM 干渉波形からは周波数自由度の密度行列再構成を行い、算出された量子もつれの度合いから、光子対が周波数の量子もつれ状態にあることを明らかにした。NOON 干渉波形からは励起子分子の位相緩和時間が 17 ps 程度であることを確認した。さらに、二つの干渉波形のフーリエ変換から光子対のエネルギー差・和スペクトルを推定することに成功した。次に、2 光子スペクトル計測では各光子のエネルギーを変数とした、二次元空間中での 2 光子スペクトル分布を測定し、そのスペクトル分布を対角もしくは反対角方向に射影することで 2 光子のエネルギー和および差スペクトルの取得を行った。この結果を、2 光子量子干渉から得られたスペクトルと比較することで、異なる二つの量子光学計測から得られた実験データの整合性を検証した。さらに、試料温度依存性の結果および 1 光子のスペクトルとエネルギー差・和スペクトルを比較することで、光子対のエネルギー和スペクトルが、古典的な分光計測では直接測定することができない、励起子分子状態に由来するスペクトルに対応していることを示した。一方で、偏光自由度の分光である量子状態トモグラフィ計測では、光子対の偏光量子もつれの評価を行った。低温において高い偏光自由度の量子もつれ状態が、試料温度の上昇に伴い劣化する様子を観測し、フォノン散乱による偏光量子もつれへの影響を示すことに成功した。

以上の結果から、量子光学計測により取得できる光子対の特性と既知の励起子物性との対応関係を明らかにし、量子光学計測により従来の分光計測とは異なるアプローチで励起子物性の評価が可能であることを示した。さらに、偏光自由度の量子計測により偏光量子もつれの度合いを指標として、物質中のフォノン散乱の影響について議論を行った。これらの結果を通じて、本論文では量子光学計測から得られた分光データと励起子物性との対応を複数の実験から確認することで、分光計測としての量子光学測定の有用性を示した。

論文審査の結果の要旨

学位申請者氏名 関 浩弥

審査委員主査 清水 亮介

委員 大淵 泰司

委員 奥野 剛史

委員 美濃島 薫

委員 宮本 洋子

委員 鈴木 淳

委員

(*自筆署名の場合に限り、押印省略可)

本論文では、量子光学研究分野において培われてきた光の量子性を反映した計測技術の新たな展開として、励起子物性研究への応用を目指した実験研究の結果が示されている。

第1章では、本論文で対象とする量子光学計測を理解するための前提知識として、量子もつれ光子や2次の相関関数について記載されている。これらの前提知識を基にして、本論文で実施する2光子量子干渉計測、2光子スペクトル計測、量子状態トモグラフィ計測についての説明が展開される。また、本論文で2光子源として用いるCuCl半導体単結晶の基礎特性の説明が行われた後、本論文の目的が示されている。

第2章では、量子分光計測の実証実験の前段階として、最初に主要な実験装置であるレーザー、クライオスタット、単一光子検出器および時間相関測定装置の説明が行われている。続いて、試料作製について述べられたのち、最後に、これらの装置および試料を用いた光子対の発生方法および観測方法について述べられている。

第3章では、周波数領域の分光として実施した2光子量子干渉分光、2光子スペクトル計測および偏光自由度の分光として量子状態トモグラフィ計測の実験結果の議論が行われている。

はじめに、2光子量子干渉による量子分光計測の実証では、励起子分子状態を介して生成される光子対に対してHong-Ou-Mandel型およびNOON型の二種類の2光子量子干渉波形の測定を行い、明瞭な干渉波形を得ることに成功している。さらに、得られた干渉波形のフーリエ変換から光子対のエネルギー差・和スペクト

ルの推定を行った結果が示されている。2光子量子干渉などの量子光学計測では、対生成された2つの光子を一つの状態として2光子のエネルギー差もしくは和のスペクトルとして抽出できることが議論され、特に2光子エネルギー和スペクトルからは、励起子分子の位相緩和時間の推定が可能であることが示されている。

次に、2光子スペクトル計測では、光子対の周波数分布を二次元的にプロットすることで光子対の周波数分布を観測した結果が議論されている。2光子スペクトル分布計測による二次元スペクトル分布では、二次元空間中の任意の方向に射影したスペクトルを利用して励起子物性を評価することが可能となることが提案されている。実際に、 $+45^\circ$ 対角線に対する射影スペクトルは、古典計測では直接的な観測が困難な励起子分子発光スペクトルと対応していることを、光子対の発光角度依存性や試料温度依存性から確認し、2光子スペクトル計測の励起子物性評価への有用性を示した。

最後に、量子状態トモグラフィ計測では、試料温度を変化させることで励起子分子状態に対するフォノン散乱の効果が、偏光量子もつれ状態に及ぼす影響について調べられている。温度上昇に伴う偏光量子もつれの度合いの変化から、フォノン散乱の影響により光子対が偏光自由度において混合状態に近づき、偏光量子もつれが劣化していく様子が観測された。このことから、量子もつれ度合いが分光計測指標としても重要であることが示された。

第4章で本論文のまとめを行い、将来の展望について述べられている。

本論文で得られた知見は、量子光学計測により得られる光の物理情報と励起子物性とを関連付けることで、凝集系物質に対する量子分光計測としての新たな研究の指針を提示することに成功しており、十分な学術的な意義を有している。よって、本論文は、博士（理学）の学位論文として価値を有するものと認める。