

量子非線形光学

東京大学工学部物理工学科

花村 榮一

第1節 はじめに

現代の物理学の発展において、輻射場が果たしてきた役割は測り知れないものがある。空洞輻射のエネルギーの振動数分布を記述するために、Planckによって今世紀初頭に量子仮説が提唱された。Einsteinの光電効果の光量子（光子）による理解と、de Broglieの物質波の導入を経て、Schrödingerによって量子力学が波動方程式という形で整えられ、更に場の量子論へと発展してきた。この輻射場と物質系の相互作用も興味ある現象を数多くもたらしてきた。励起状態からの輻射場の放出にも誘導放射と自然放射の素過程がある。前者を最大限に利用したものがレーザー発振であり、Townesらによって提唱され、Maimanによって実現された。それによって、量子エレクトロニクスばかりでなく、分光学から光通信など広い分野の学問の発展に寄与してきた。最近、多くの励起状態からのコヒーレントな自然放射は、超放射として注目を集めている。

半導体や高分子材料の結晶成長や加工技術の最近の進歩によって、電子系や素励起の量子化を任意に操作できるようになった。1970年代より、GaAs-AlGaAs量子井戸が作成され、電子と励起の2次元閉じ込め効果が顕著に観測されるようになった。電気的・光学的応答に、この2次元電子系の量子化が反映され、多くの研究者の興味を引いてきた。更に、最近では1次元、0次元の電子系も作られるようになった。高品位の結晶で低温においては励起子の共鳴励起の下で、超放射による速い応答と大きな非線形光学応答を同時に実現できるようにもなった。他方、1980年代になると、波長オーダーの微小共振器中の電子系と輻射場の相互作用が研究されるようになった。これによって、励起原子の自然放射が自由に制御できるようになった。1994年4月より発足した科学研究費重点領域研究「輻射場と物質系の相互量子制御」においては、上記の2つの量子化を同一基盤の上で実行し、強く輻射場と物質系を相互作用させることによって新しい物理現象を探索すると同時に、デバイスへの応用まで目指すものである。物理学としては非古典光としての特性であるアンチバンチング、サブポアソン分布およびスクイーズド光の発生などもっと深く、そして広く解明されなければならない興味ある現象である。レーザー光は、光子数のゆらぎを表わす分散が光子数の平均値に等しいようなポアソン分布に従う。光子数のゆらぎの縮小したサブポアソン光は、光子数スクイーズド光である。これは、定電流下で発振する半導体レーザーで実現される。また、微小共振器モードへの自然放射が圧倒的に増強された半導体レーザーでは、量子効率100%で、発振の閾値ゼロの理想のレーザーに近づき、情報処理と情報伝送のため

の有効な光源になると期待されている。

第2節においては、非古典光とは何であり、またそれが相互量子制御によってどのように実現されるか、更に、それらはどのような利用価値があるかを解説する。第3節においては、相互量子制御によってどのように閾値ゼロのレーザーが可能になるか、またそれが半導体レーザーでいかに実現されているかを示す。また、非古典光のもう一つの側面である真空Rabi振動の崩壊と再生の現象を解説する。

第2節 非古典光とは

白熱灯の光はBose統計に従う極めて粒子的描像をもった光であり、レーザー光は最も古典的な波動に近い光である。Heisenbergの不確定性原理が、この粒子性と波動性という光のもつ両面性を理解する手がかりを与える。更に、光の示す統計的性質から、この両面性をとらえることができる。白熱電灯からの光は、一つの光子が放射されてから τ 時間後に次の光子が観測される確率を $g^{(2)}(\tau)$ とすると、 $g^{(2)}(0) > g^{(2)}(\tau)$ というバンチング特性を示す。すなわち、白熱灯からの光は、束となって光子を放射する性質を持つ。他方、レーザー光は振幅一定のコヒーレントな波動であるので、 $g^{(2)}(\tau) = g^{(2)}(0)$ である。すなわち、光子は前後の光子と相関をもたずに飛来することを意味する。したがって、光子同士が避け合うという相関 $g^{(2)}(0) < g^{(2)}(\tau)$ 、すなわちアンチバンチングは、通常の光では実現できない非古典光の一つの特性である。また、非古典光としてスクイズド光がある。互いに正準共役な2つの物質量のゆらぎの積は $1/4$ より小さくはできない。しかし、一方のゆらぎを犠牲にして、他方のゆらぎを量子限界以下に抑えることが可能である。後者をスクイズド光と呼び、非古典光の一つである。電場の正弦成分と余弦成分の一方をスクイズしたものが、直交位相成分スクイズド光である。また、位相のゆらぎを増大させて、光子数のゆらぎを量子限界以下に抑えたものが光子数スクイズド光である。ある時間幅に観測器に入る光子数は、レーザー光ではポアソン分布するが、光子数スクイズド光はサブポアソン分布する。すなわち、光子数が決まった状態に近づく。これも一つの非古典光である。2.1小節では、光の統計的性質について概観し、アンチバンチング光とサブポアソン光がどうして非古典光であるかを理解する。2.2小節では、アンチバンチング光と光子数スクイズド光の観測例を示す。2.3小節では、パラメトリック発振をパルス列を用いて行い、アンチバンチング光を得た実験をする。

2.1 光の統計的性質

自然光からの光、レーザー光、そして非古典光の間の違いを最も端的に示すものが光子の統計性である。まず、定常的な光を考える。その光の強度を $I(t)$ と記すと、2次

の相関関数 $g^{(2)}(\tau)$ は、

$$g^{(2)}(\tau) \equiv \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle \langle I(t+\tau) \rangle} \quad (1)$$

ここで、 $\langle \dots \rangle$ はアンサンブル平均、また定常光なら時間平均を示す。光強度 $I(t)$ は光子数に比例するが、もし $I(t)$ を古典量とするならば、 $I(t)$ と $I(t+\tau)$ との間には次の不等式が成立する。

$$\left[\frac{I(t)}{\langle I(t) \rangle} - \frac{I(t+\tau)}{\langle I(t+\tau) \rangle} \right]^2 \geq 0 \quad (2)$$

この式のアンサンブル平均をとると、 $I(t)$ と $I(t+\tau)$ は古典量の場合には可換であるので、

$$g^{(2)}(0) \geq g^{(2)}(\tau) \quad (3)$$

が成立し、古典光はバンチングを示すことが分かる。すなわち、光子は連なって測定器に達する。また、 $I(t)$ が古典量である限りは、相関関数 $g^{(2)}(0)$ は

$$g^{(2)}(0) = 1 + \frac{\langle (\Delta I(t))^2 \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \geq 1 \quad (4)$$

の不等式に従う。これは、 $I(t)$ がc数である限りは、

$$(\Delta I(t))^2 \equiv (I(t) - \langle I(t) \rangle)^2 \geq 0 \quad (5)$$

の関係式が成り立つことにより明らかである。すなわち、古典光である限りは、規格化された2次の相関関数の値は1より小さくはなれない。以上の議論より、 $g^{(2)}(0) < g^{(2)}(\tau)$ ，または $g^{(2)}(0) < 1$ の不等式は非古典光によってのみ満たされる特性であることが分かる。

量子論では $E^{(-)}$ と $E^{(+)}$ は光子の生成および消滅演算子に比例する量で、光の強度 $\hat{I}(t) = E^{(-)}(t)E^{(+)}(t)$ は演算子である。2次の相関強度は、時刻 t と $t+\tau$ に2つの光子が検出器で消滅する過程に対応するので、次のように書ける。

$$\begin{aligned}
 g^{(2)}(\tau) &= \frac{\langle E^{(-)}(t)E^{(-)}(t+\tau)E^{(+)}(t+\tau)E^{(+)}(t) \rangle}{\langle E^{(-)}(t)E^{(+)}(t) \rangle \langle E^{(-)}(t+\tau)E^{(+)}(t+\tau) \rangle} \\
 &= \frac{\langle T: \hat{I}(t)\hat{I}(t+\tau): \rangle}{\langle \hat{I}(t) \rangle \langle \hat{I}(t+\tau) \rangle} \quad (6)
 \end{aligned}$$

ここで、 $T: \cdot$ は、演算子をタイムオーダー、ノーマルオーダーに並べる指示である。また $\langle \dots \rangle = \text{Tr}(P(t)\dots)$ は量子論的平均を意味する。非古典光を特徴づけるもう一つの特徴がサブポアソン分布である。時刻 t から $t+T$ の間に、光子が n 個検出される確率 $p(n)$ は、量子論においては、

$$p(n) = \left\langle T: \frac{1}{n!} \left[\int_t^{t+T} dt' \hat{I}(t') \right]^n \exp \left[- \int_t^{t+T} dt' \hat{I}(t') \right] : \right\rangle . \quad (7)$$

光子分布の分散 $\langle (\Delta n)^2 \rangle$ は、2次の階乗モーメント

$$\begin{aligned}
 \langle n^{(2)} \rangle &\equiv \sum_{n=0}^{\infty} n(n-1)p(n) \\
 &= \int_t^{t+T} dt_2 \int_t^{t+T} dt_1 \langle T: \hat{I}(t_1)\hat{I}(t_2): \rangle \quad (8)
 \end{aligned}$$

を用いて、

$$\begin{aligned}
 \langle (\Delta n)^2 \rangle &= \langle n^{(2)} \rangle + \langle n \rangle - \langle n \rangle^2 \\
 &= \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle^2}{T^2} \int_0^T \int_0^T [g^{(2)}(t_2 - t_1) - 1] dt_1 dt_2 \\
 &\doteq \langle n \rangle + \langle n \rangle^2 [g^{(2)}(0) - 1] \quad (9)
 \end{aligned}$$

と書ける。ここで、観測時間 T は相関関数 $g^{(2)}(t_2 - t_1)$ が変動する時間より十分短いと仮定し、 $g^{(2)}(t_2 - t_1) \doteq g^{(2)}(0)$ と近似した。 $g^{(2)}(0) > 1$ なら $\langle (\Delta n)^2 \rangle > \langle n \rangle$ のスーパーポアソン分布を、 $g^{(2)}(0) = 1$ なら分散 $\langle (\Delta n)^2 \rangle$ が平均 $\langle n \rangle$ に等しいポアソン分布を示すことが分かる。他方、アンチバンチング $g^{(2)}(0) < 1$ のときには、 $\langle (\Delta n)^2 \rangle < \langle n \rangle$ のサブポアソン分布となり、これも非古典光の一つの特性であることが分かる。サブポアソン光とは、光子数状態に近づいた光で、非古典光でのみ実現されるものである。

2.2 非古典光の発生

(1) レーザー光を孤立2準位原子に定常的に照射し、この励起原子からの自然放射で得られる光は、アンチバンチングを示す。DiedrichとWalther¹⁾は、Mg⁺イオンをPaulトラップし、更にレーザー冷却して、このイオンからの蛍光の相関関数 $g^{(2)}(\tau)$ を測定した。図1(a)に示すように、ある時刻 t に第一の蛍光を観測した後、時刻 $t+\tau$ に第二の蛍光を測定する確率 $g^{(2)}(\tau)$ は $\tau=0$ で $g^{(2)}(0)=0$ となり、アンチ・バンチングを確認している。古典的統計性をもつレーザー光で定常的に照射された2準位原子は、一度自然放射によって光子を1個放出して下準位に落ちると、再び上準位に励起されるまでは光子を放出できない。従って、短い時間間隔で光子が2個放出される確率は低くなり、アンチバンチングを示す。図1(a)のa,b,cとdは図1(b)のポンプ強度に対応し、dは弱いポンプ光を、aは強いポンプ光を示す。図1(b)が示すようにポンプ光が強い程Rabi周波数 Ω が増大し、 $g^{(2)}(\tau)$ の回復が短時間で起こる。

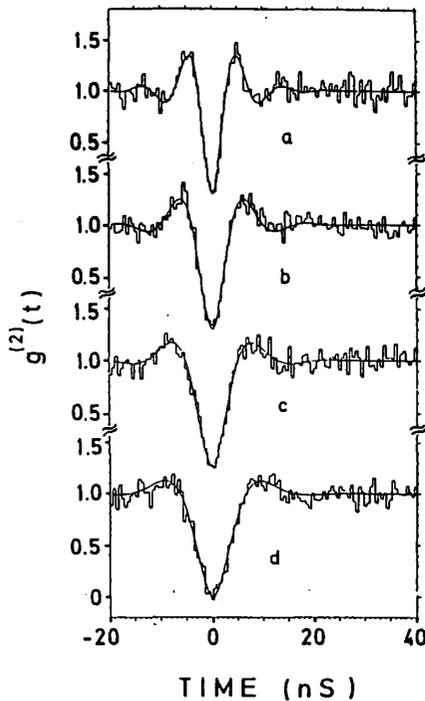


図1(a)

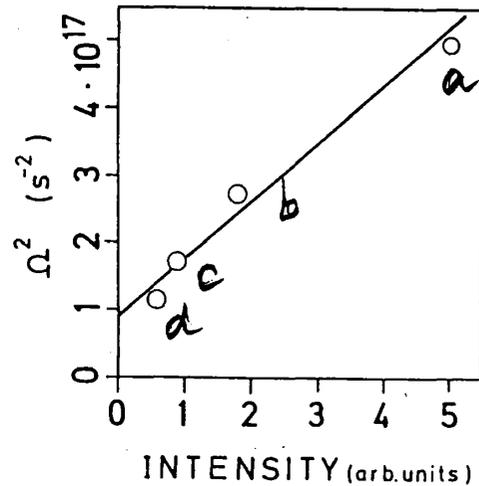


図1(b)

原子数 N が増すと、各原子の自然放射は相関なしで起こるので、 $g_N^{(2)}(0) \rightarrow 1$ とポアソン光に近づいて行くことも観測されている。これを図2に示す。

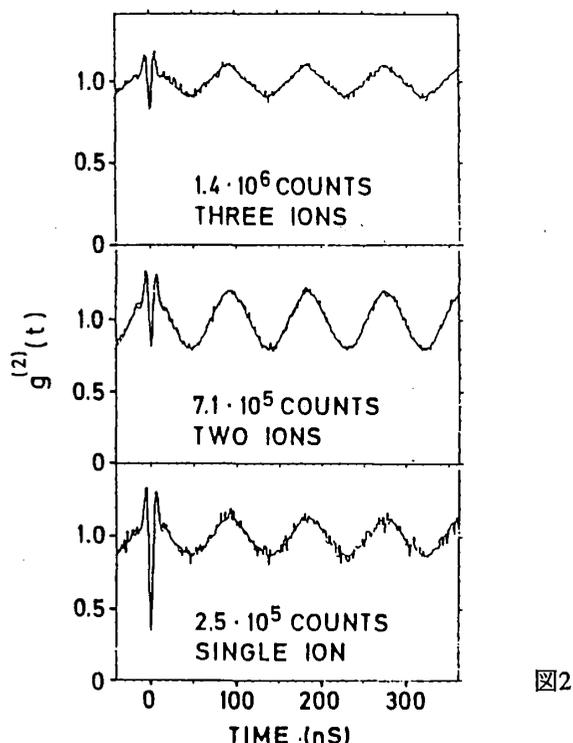


図2

ところで、各原子が独立ではなく、Frenkel励起子として、励起が各原子間をコヒーレントに伝播できるときには、話は別である。原子が規則正しく1次元軸上に配列し、最近接原子間を双極子相互作用 J で伝播するときには、この系の基底状態と励起子の最低エネルギー準位は2準位系として振る舞う。次のエネルギー準位との差が自然放射による自然幅やRabi周波数より十分大きいとき、すなわち

$$o\left(\frac{J}{N}\right) \gg \sqrt{N}\Omega_0, N\gamma_0 \quad (10)$$

(ここで Ω_0 と γ_0 は一原子のRabi周波数と自然放射のレートを表す)が満たされるときには、アンチバンチングが観測されると思われる²⁾。また、3準位の単一イオンや固体中の単一色素分子を用いて光子のアンチバンチングが実現されている。

(2) 励起電子を規則的に供給することによって、規則的な光子の放射を可能にして、サブポアソン光を得る試みもある。第一には、半導体レーザーを定電流で駆動させて、光子数のゆらぎを量子限界以下に抑えることが成功した例がある³⁾。第二には、励起原子を微小共振器に周期的に供給して、サブポアソンを得る試みがある。

Franck-Hertzの電子線との非弾性衝突で励起された原子からの光を考えよう。図3(a)に示すように、2極管の両端にかかる電位差による電子を加速する力と、両極間に存在する電子間に働くCoulomb斥力がちょうどつり合い、一定な電流が流れるようにする。この電流は空間電荷制限電流と呼ばれる。カソードからの電子放出はランダムな

Poisson素過程で、空間電荷層が形成されていない真空管のアノード電流にはショット雑音が通常は存在する。しかし、空間電荷層が形成されると、放出された電子に対してポテンシャルが形成され、これが電子放出レートに比例して変動するため、結果としてアノード電流にフィードバックがかかってショット雑音を抑える。その結果、電子線が励起する原子の数にも規則性が生まれ、原子の自然放射による光子数にも規則性が反映される。このような励起制御法により、光子数のゆらぎがスクイーズされた蛍光放射が得られる。

図3(b)に示すように、空間電荷制限下の低電流電源で励起された発光ダイオードでは、理想的な場合には注入電子1つにつき1つの光子が放出されるので光子数スクイーズド光が実現される。さらに、山本らは、定電流電源で駆動された電流注入型半導体レーザーを発光し、光子数スクイーズド光を発生させた。これは、図3(b)に示すように、更に自然放射の発光機構を誘導放射で置き換えたものである。その結果、図4に示すように、しきい値より十分高いバイアスレベルで、強度雑音、すなわち光子数のゆらぎはコヒーレント状態の雑音レベルの1/10以下に抑圧できた。これは、固体素子を用いて装置を小さくできるばかりでなく、光子を数多く発生でき、更に広い周波数幅で高効率に光子数のゆらぎをスクイーズできる利点を持つ。

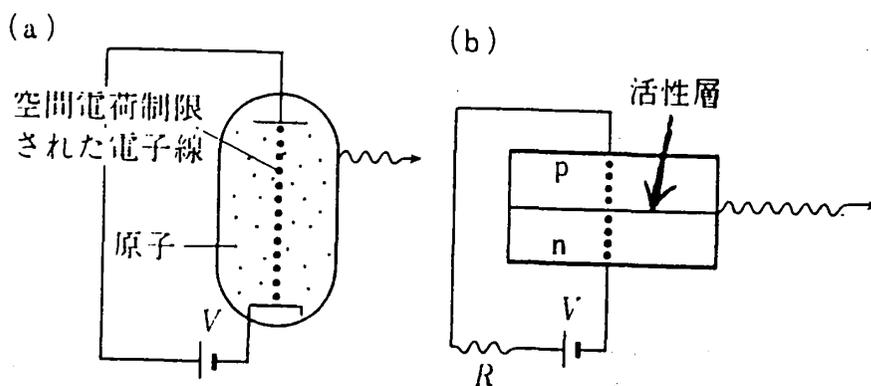


図3 (a) 2極管におけるFranck-Hertzの電子線で励起される原子系からの発光。
 (b) 定電流電源で励起される発光ダイオード。

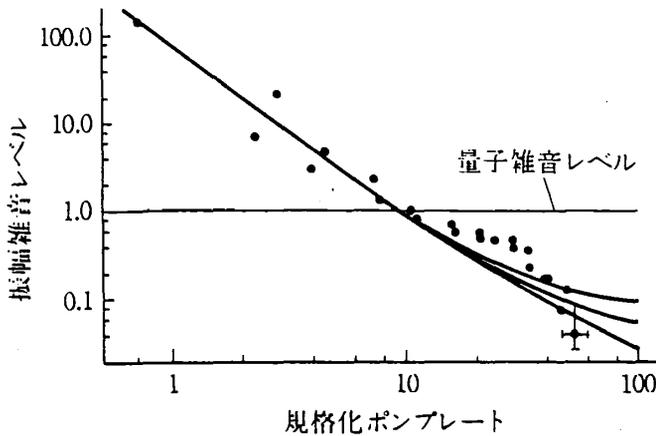


図4 定電流電源で駆動された電流注入型半導体レーザーで実現された光子数スクイズド光、十分に高いポンプレートで、量子雑音レベル以下の光子数スクイズド光が測定されている

(S.Machida, Y.Yamamoto and Y.Itaya: Phys. Rev. Lett. 58 (1987) 1000による)。

第二の励起原子を微小共振器に規則的に供給することによって得られるサブ・ポアソンに関しては、「非線形量子光学」の5.2.1節「1原子メーザー」と5.2.2節の「2光子メーザー — サブポアソン光」を参照されたい。

(3) 前小節に紹介した、電子励起の規則的供給に伴ってサブ・ポアソン光が得られる過程は、外因性の非古典光発光過程と呼ぶことができる。物質が持つ非線形によって得られる非古典光は、内在的性質に因るものである。小節(1)の過程もその一つであるが、本小節ではパラメトリックな非線形光学応答と光カー効果によって非古典光が実現できていることを示す。

縮退パラメトリック過程とは、角周波数 ω_p のレーザー光を非線形媒体に入射し、角周波数 $\omega = \omega_p/2$ の2つの縮退した光に分割する2次の非線形光学現象である。これは次の有効相互作用ハミルトニアン V で記述できる。

$$V = \hbar(x^{(2)}\hat{a}_p^+\hat{a}\hat{a} + x^{(2)*}\hat{a}^+\hat{a}^+\hat{a}_p) \quad (11)$$

ここで、 $x^{(2)}$ は2次の非線形分極率に比例する量であり、 $\hat{a}_p(\hat{a}_p^+)$ と $\hat{a}(\hat{a}^+)$ はポンプ光と信号光の消滅(生成)演算子である。信号光 \hat{a} の相互作用(11)式の下での時間発展を、初期条件として $t=0$ ではレーザー光の(古典光としての)コヒーレント状態にとって解くと、直交位相スクイズド光が得られることが分かる。詳細は「量子光学」1.4節「光のスクイズド状態」を参照されたい。電場の正弦成分と余弦成分の分散 $(\Delta p')^2$ と $(\Delta q')^2$ の間には図5に示すように、 $(\Delta p')(\Delta q') = 1/4$ の最小ゆらぎ状態にありながら、一方のゆらぎを量子限界 $1/2$ 以下に抑えることが可能であることが分かる。

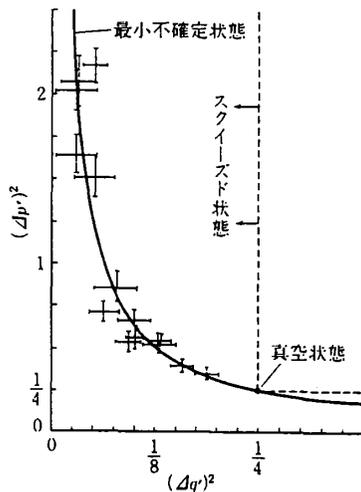


図5 縮退パラメトリック発振器で発生された直交位相成分スクイズド状態の \hat{q}' と \hat{p}' の分散 $(\Delta\hat{q}')^2$ と $(\Delta\hat{p}')^2$ を示す。最小不確定状態にのっていることが分かる。

レーザー光のパルス列をこのパラメトリック応答を示す非線形光学媒質に照射して、アンチバンチング光が得られることが小芦らによって示された⁴⁾。光を周期毎のブロックに区切って、正数 k によって各パルスを番号づける。各ブロック毎の平均強度 $I(k)$ を考えると、この光は、変数 k については定常であるとする。そのとき、第一節の時間 t の代わりに、離散的なパラメーター k が用いられたことにあたり、 $t+\tau$ の代わりに $k+m$ と記すと、2次の強度相関関数 $g_m^{(2)}$ が次のように定義できる。

$$g_m^{(2)} = \frac{\int_k dt_1 \int_{k+m} dt_2 \langle T: \hat{I}(t_1) \hat{I}(t_2) \rangle}{\int_k dt_1 \langle \hat{I}(t_1) \rangle \int_{k+m} dt_2 \langle \hat{I}(t_2) \rangle} \quad (12)$$

古典論では、不等式 $g_0^{(2)} \geq g_m^{(2)}$ と $g_0^{(2)} \geq 1$ が成立する。 $g_0^{(2)} < g_m^{(2)}$ ($m \geq 1$) がアンチバンチングにあたる。

小芦らは音響光学素子で能動モード周期をかけた連続発振YAGレーザーを光源とした。パルス時間幅約100psec、繰り返し周波数82MHz (パルス間隔約12nsec) のパルス列を用いた。パルス1個あたりの光子数が0.3のようなパルス列を用い、 $g_m^{(2)}$ の信号を繰り返し観測したものが図6である。delay 0nsecのピークは、同じパルスの中で2つの光子検出が起こった数を表し、delay mT ($m=1,2,\dots$) のピークは mT 離れた2つのパルスの中で光子検出が起こった回数数を表している。図6より、delay 0nsecののピークが、他のピークに比べ小さいことが分かる。すなわち、異なる2つのパルスの中に光子対を見いだす確率よりも、同一パルスの中に光子対を見いだす確率が小さいことを示している。これは、信号光がアンチバンチングしていることを物語っている。入力光と信号光の相対位相が0のときは上記のようにアンチバンチングを示すが、その位相を180度変えるとバンチングが観測されている。

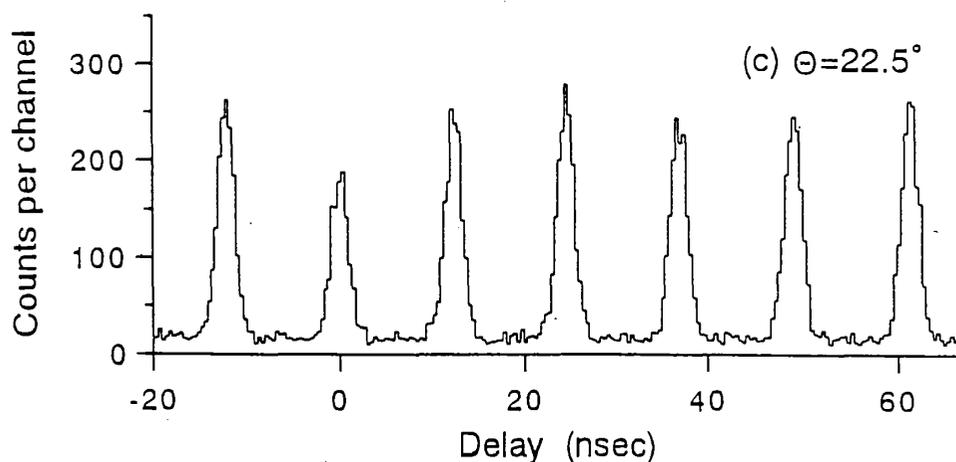


図6

第三節 微小共振器によるレーザー発振

3.1 微小共振器レーザー

前節2.3(2)で、定電流の下で駆動するレーザーはスクイズド光を与えることを示した。本節では、微小共振器中で輻射モードを離散化して、そのモードへの自然放射を増強することができることを示し、量子効率 100%、発振の閾値0の理想のレーザーにいかにか接近できるかを論じる。これについては、「非線形量子光学」5.1.2節「微小共振器レーザー」を参照。

3.2 真空Rabi分裂と真空Rabi振動

半導体微小共振器による同上表題の現象については、「非線形量子光学」5.2.3節「半導体微小共振器」を参照。

文 献

1. F. Diedrich and H. Walther: Phys. Rev. Lett. 58 (1987) 203.
2. H. Ezaki, S. Miyashita and E. Hanamura: Phys. Lett. A in print.
3. S. Machida, Y. Yamamoto and Y. Itaya: Phys.Rev.Lett. 58 (1987) 1000.
4. M. Koashi, K. Kono, T. Hirano and M. Matsuoka: Phys. Rev. Lett. 71 (1993) 1164.