

# 近赤外領域光周波数コムを用いた量子位相制御

金 森 英 人

## Quantum Phase Control by Using Optical Frequency Comb

Hideto KANAMORI

The phase control of electromagnetic wave has been developed as a fundamental technology of transmitting information on radio waves. The highest frequency of this technology reached up to microwave of 1 THz by the end of 20th century. However, the self-referenced optical frequency comb developed by Hänsch and Hall in 2002 has made it possible to extend the frequency in the region from 100 to 600 THz, which corresponds to near-infrared to visible region. By using optical heterodyne technique with the optical frequency comb, lasers in this region can get a phase-stabilization same as the microwave. This development brings in not only increase of transmitting information, but also opens new frontier in quantum phase control of matters. Generally, the optical frequency comb attracts the attention of precision in metrology, however, this paper describes it from a point of view of the quantum phase controlling tools for matters.

**Key words:** optical frequency comb, optical heterodyne, phase control of matter, quantum computing, optical-optical double resonance

電磁波の位相制御技術は、FM ラジオやアナログテレビ放送に代表されるように、情報伝達手段を支える基盤技術として発展してきた。より高い周波数に対応する電子素子の開発に伴い、前世紀末までに、1 THz までのマイクロ波については位相安定化した電磁波の光源が確立されている。この最先端技術を実用化した例としては、南米チリのアタカマ砂漠で観測を開始した大型サブミリ波干渉計 (ALMA) のヘテロダイン受信システムが挙げられる。さらにテラヘルツ以上の周波数領域においても位相安定化光源の実現を目指した研究は続けられてきたが、2002 年に Hänsch と Hall が発表したオクターブ光周波数コムの登場によって、従来の開発路線を一気に飛び越えて、100~600 THz の近赤外-可視光領域に飛躍した。これを可能とした基本技術は光ヘテロダイン法を用いたレーザーの位相安定化技術であり、光周波数コムを光波の周波数と位相の標準とすることによって、従来のレーザーにマイクロ波と同等の位相安定化を付与することができるようになった。このことはちょうどラジオが AM 放送から FM 放送に変

わったときのインパクト (筆者には幼少の頃、地方都市でも実用化が始まった FM ステレオ放送の音を聴いて、それまでの AM ラジオの音とは比べ物にならない音質の向上に感動した記憶が残っている) に相当する革新的技術が光領域にもたらされたともいえるが、実は光領域の位相安定化技術の確立は単に伝達情報量の増大のみならず、質的にまったく新しい世界を実現できる可能性を秘めているのである。それは、位相を制御した光との相互作用を通して、物質の量子状態、すなわち波動関数の位相を制御することが可能となるからである。量子状態の位相制御は、量子コンピューティングに代表される量子情報処理や化学反応のコヒーレント制御のための基盤技術と位置づけられているものである。このように、位相が制御できる電磁波光源の新たな重要性に注目が集まっている。

### 1. 位相が制御された電磁波光源

従来の技術を使ってマイクロ波帯の標準信号を基準に光領域の位相安定化光源を構築するためには、レーザーと非

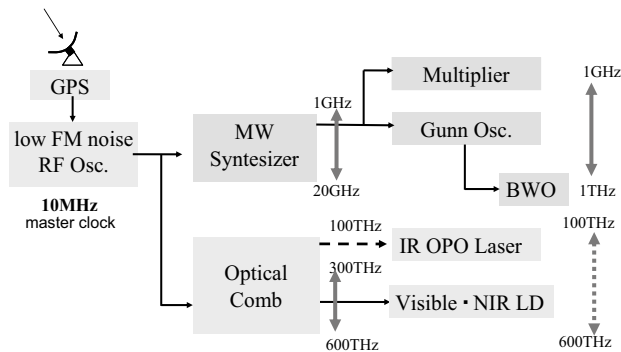


図1 実験室における位相安定化光源の周波数チェーン。GPSを基準とする狭帯域発振器をマスタークロックとし、マイクロ波領域（1 GHz～1 THz）と赤外・可視領域（100～600 THz）の位相安定化が実現されている。

線形光学素子を用いた周波数チェーンを10段近く積み重ねる必要があった。それを光周波数コムは、GPSのRF標準から1ステップで可視領域の位相安定化光源を実現するのである。その結果、共通のマスタークロックに位相安定化したマイクロ波から可視光の光源をコンパクトに納めることができるようになった。実験室における位相安定化光源を確立する手段の概念図を図1に示す。

- ① 1 THz までのマイクロ波の位相安定化光源としては、10 GHz 帯のマイクロ波シンセサイザーを基準とし、その通倍および高調波ミキサを介して、Gunn 発振器、さらに BWO 発振器を位相安定化する周波数チェーンを構築する。
- ② 300-600 THz の近赤外～光領域の位相安定化光源としては、オクターブ光周波数コムを基準として、外部共振器半導体レーザーを直接位相安定化する。
- ③ 中赤外領域については、赤外 OPO レーザーを用い、非線形結晶内でパラメトリック過程と同時に発生する可視領域の和周波光を使って、光周波数コムとの位相安定化を行う。
- ④ 以上のマイクロ領域と光領域の位相同期光源群は、図1に示すように、GPS 周波数標準（10 MHz）をマスタークロックとする周波数チェーンを構成している。このように、電磁波シンセサイザーともよぶべき広帯域な位相安定化光源を支える光周波数コムの役割が認識できる。

## 2. 光の位相

本稿では光の位相に焦点を当てて解説していくが、まず周波数と位相について整理しておく。振動運動を単位円上の回転運動の1軸への射影として考えることができるが、回転運動の回転角  $\theta$  が位相とよばれる量に対応する。位相

の時間微分に相当する角周波数  $\omega$  と初期位相  $\phi$  を用いれば、位相は

$$\theta(t) = \int_0^t \omega dt + \phi$$

と表せる。ここでは初期位相  $\phi$  と明確に区別するために、 $\theta$  を広義の位相としておく。 $\omega$  および  $\phi$  が時間的に不変であれば理想的な単振動となるが、現実の系では時間による変動が存在するので、それらを考慮するために時間の関数  $\omega(t)$ 、 $\phi(t)$  として表す。すなわち、 $\omega$  の時間揺らぎを少なくすることが狭義の周波数安定化であり、 $\phi$  の揺らぎを少なくすることが狭義の位相安定化である。光周波数コムの繰り返し周波数は狭義の  $\omega$  に、オフセット周波数は  $d\phi(t)/dt$  に相当し、Hänsch & Hall の光周波数コムでは、それぞれを別途 RF 周波数標準に安定化することによって広義の位相の安定化を実現している。高精度の周波数確度を保証するためには、この広義の位相の揺らぎを抑えることが必要であることはいままでのまではない。その意味で、高精度周波数測定に求められる光源スペクトルの狭窄化を追求することと、位相制御実験に用いる光源に対して位相安定化を追求することは同義といえる。一方、電磁波工学では一般的に  $\phi$  のことを、「初期」を略して単に位相とよぶことが多い。量子状態を表す波動関数においても同様の慣習があるので、本稿でも以下では  $\phi(t)$  の「初期」を省略する。

ここであらためて電磁波の電場成分を複素表示で示すと

$$E(t) = E_0 \exp(i\omega t + i\phi) = E_0 \exp(i\phi) \exp(i\omega t)$$

である。多くの分光スペクトル測定では、測定対象に照射する入力電磁波の  $\omega$  を変えながら、対象から出力される電磁波の  $|E|^2$  に比例する物理量を検出している。したがって、絶対値の二乗量を検出するような測定においては、位相の情報は観測結果に反映されない。測定対象のもつ位相情報を引き出すためには、いわゆる位相敏感検出が必要となる。

光領域で位相情報を積極的に用い、物質の量子状態の位相を測定した従来の研究例として、サイドバンド光-光二重共鳴分光の実験がある<sup>1)</sup>。単一モード発振レーザーを RF 領域で周波数変調してサイドバンド光を発生させ、 $\pm 1$  次の両サイドバンド光を原子・分子の三準位系に二重共鳴させるものである。サイドバンド周波数を固定し、原子・分子側のエネルギー準位を可変磁場でゼーマンシフトさせて共鳴条件を満たす磁気共鳴型の分光である。サイドバンド間の位相安定度はキャリア光のスペクトル揺らぎの影響を受けないので十分高いが、差周波数の範囲はレーザーの変調帯域が制限し、10 GHz が上限である。次章で述べるように、光周波数コムによって、この制限が300 THz まで拡張されることになった。

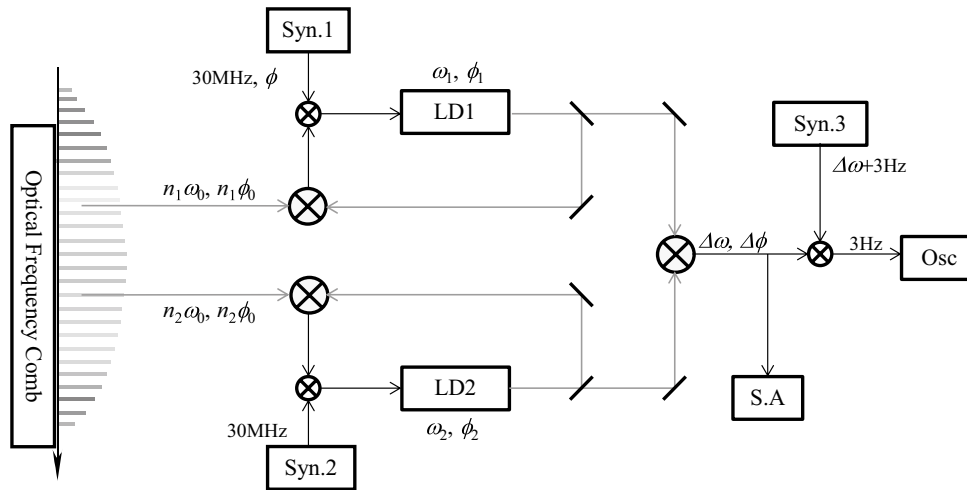


図2 光周波数コムを用いた2台の半導体レーザーの位相安定化. ⊗: ミキサー, Syn: RF シンセサイザー, LD: 半導体レーザー, SA: スペクトラムアナライザー, Osc: オシロスコープ.

### 3. 外部レーザーの位相制御

前章で述べたように、光周波数コムは繰り返し周波数とオフセット周波数を絶対周波数標準に安定化することで完全に制御され、狭義の周波数と位相が確定した100万本のモードからなる光波集団として、近赤外から可視光にわたって高い周波数・位相標準を提供してくれる。しかしながら、モード1本あたりの光強度は $10^{-8}$  W程度しかないため、物質との相互作用を飽和領域で実験するためには不十分である。そのため、別のより大きなパワーで発振するシングルモードレーザーを光周波数コムに位相安定化させ、光周波数コムと同等の位相安定性を付与することが必要となる。光周波数コムの発振波長領域を同じくする近赤外・可視領域の半導体レーザーの場合は、光周波数コムとのビートを直接取ることができ、またエラー信号として注入電流にフィードバックすることができるので、広帯域の直接安定化制御が容易である。本研究で用いたレーザーは市販の780 nmのファブリー・ペロー半導体レーザー素子を金属管のままリトロ型外部共振器に組み込み、フリーランニング時の周波数ジッターを数MHz以下に抑えたもので、出力は単一モードで60 mWである。図2にあるように、2台の外部共振器半導体レーザーシステムを光周波数コムの異なる別のモードにそれぞれ位相同期安定化し、2台のレーザー間のビートをとることでスペクトルを評価した。一般のRFスペクトルアナライザーでは周波数分解能が足りないため、光ミキサーで検出したレーザービートを3 Hzまで下方周波数変換し、時間軸の信号として大容量メモリのデジタルオシロスコープでサンプリングし、フーリエ変換でスペクトル解析を行った。結果は図3のようにスペクトル線幅が0.001 Hzとなっていること

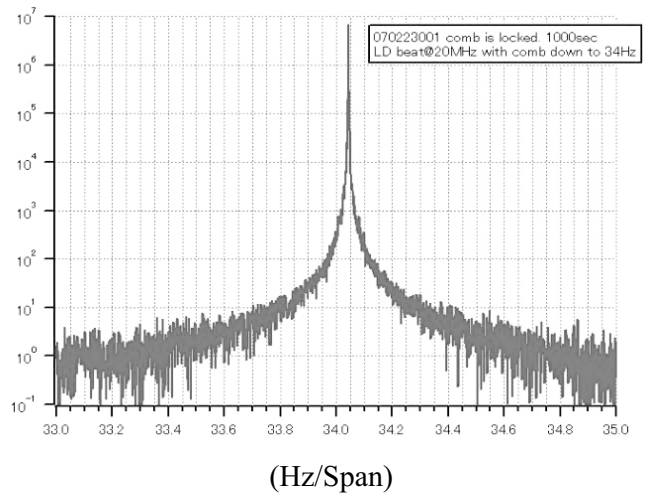


図3 光周波数コムに位相安定化した2台の半導体レーザーのビートスペクトラムを34 Hzに下方周波数変換して表示。線幅は観測時間の逆数の1 msとなっている。

が確認できた。この線幅測定の限界は観測時間1000秒によって決まっている。この実験では、レーザービートを光ミキサー（帯域<1 GHz）で直接観測する方法をとるため、2台の半導体レーザーの差周波を光周波数コムのモード間隔2本分の404 MHzに設定したが、オクターブ光周波数コムのすべてのモードの間には同等の安定度のあることが確かめられている<sup>2)</sup>ので、この差周波数を300 THzまで広げても、差周波ビートに対して今回と同等の安定性が保証されており、その実用・応用性はきわめて高いといえる。

次に図4で位相スイッチングの実験結果を示す。図3と同様に、光周波数コムに安定化した2台の半導体レーザービートを3 Hzに周波数下方変換したときの時間軸信号をオシロスコープで記録したもので、1台目の半導体レーザーと光周波数コムとの位相安定化ループにおける参照周

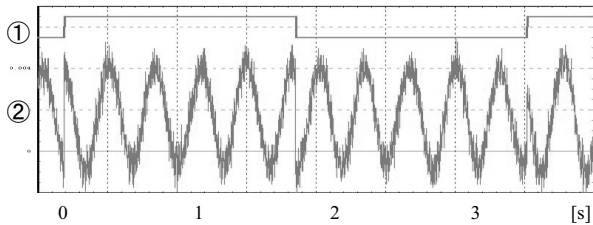


図4 光周波数コムに位相安定化した2台の半導体レーザーの位相スイッチング実験。ビートは3.0 Hzに下方周波数変換されている。①位相を反転するための0.3 Hzの矩形波。②矩形波に同期して光コムに位相安定化した2台の半導体レーザーのビート信号の位相が180度シフトしている。

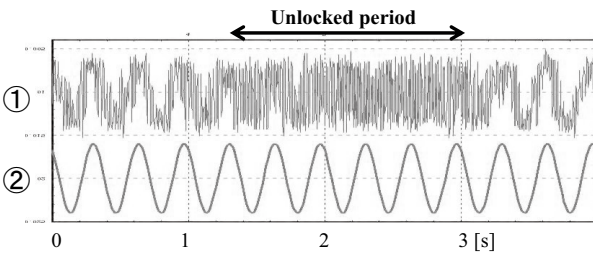


図5 光コムに安定化した2台のLDのビート信号の位相再生。①位相同期回路を時刻1.2秒に外し、3.2秒に回路を閉じたときのビートの様子。②位相の参照用の正弦波。位相同期再生後の位相が元に戻っている様子。

波数の位相を3秒の周期で(図中①の矩形波)180度変えたときのものである。結果は、それにしたがって半導体レーザー間のビートの位相が180度スイッチされている様子を示している。

さらに、図5に、時刻1.2秒～3.2秒までの1秒間、一方の半導体レーザーと光周波数コムの位相安定化を外したときの両半導体レーザー間のビートの様子を示す。位相安定化の復帰前後の光ビートの位相のずれ具合をわかりやすくするために、人工的な3 Hzの正弦波(図中②)を書き込んだ。明らかに、光ビートは位相安定化が再現した後も、外す前の位相を記憶するがごとく再生している様子がわかる。

これらの結果は、 $10^{14}$  Hzで振動している光波に対して、任意の位相シフト量を任意のタイミングでスイッチングする制御技術が実現されたことを示している。

#### 4. 光位相の物質の量子位相への転写とそのモニター(理論)

2章で述べたように、位相が確定しているレーザー光は

$$E(t) = E_0 \exp(i\omega t + i\phi)$$

と表される。これを原子・分子の二準位系と相互作用させることによって誘起される量子状態 $|\psi\rangle$ の時間発展は、時間を含む摂動論を使うと

$$|\psi\rangle \exp(i\omega t + i\phi(\omega))$$

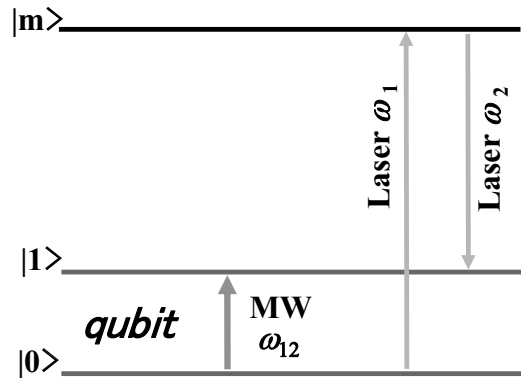


図6 qubitへの位相情報の書き込みと読み取りに用いる三準位系と2つの光学遷移。

と表すことができる。これが光の位相を物質に転写したという意味である。ここで $\phi(\omega)$ としたのは、励起光の位相に加えて、物質の応答による位相シフトの存在を考慮するためである。

次の段階では波動関数に書き込まれた位相情報を読み取る手段が必要となるわけであるが、波動関数の位相を直接観測することは難しいので、観測しやすい物理量の期待値に変換して観測することになる。ここでは物理量として光誘起分極 $P$ を選択し、この振動分極から放出される電磁波の時間項

$$E_p(t) = E_p \exp(i\omega t + i\phi(\omega))$$

に含まれる位相項を検出することによって、波動関数の位相情報を間接的に引き出すこととする。以上の議論は物質側を理想的な二準位系としたときのもので、きわめて狭い均一広がりをもつ共鳴振動数 $\omega_0$ を前提としている。しかしながら、実際の実験においては検出感度の都合上、測定対象は単一の原子・分子ではなく、多数の集合体とせざるを得ない。集合体のスペクトルは一般に不均一広がりが存在するので、分極輻射の位相を検出することは容易ではない。不均一広がりの影響を排除する実験手段としては飽和分光の手法があるが、ここではそのひとつである二重共鳴分光法を用いた場合の理論を示す。

図6において、位相を制御したい二準位系は $|0\rangle$ と $|1\rangle$ であるが、その間の直接遷移 $\omega_{12}$ を用いるのではなく、共通準位 $|m\rangle$ への遷移に、周波数と位相がそれぞれ $\omega_1, \phi_1$ および $\omega_2, \phi_2$ の2本のレーザーを同時に共鳴させることによって、 $|0\rangle, |1\rangle, |m\rangle$ の3つの準位の重ね合わせの量子状態 $|\psi\rangle$ を生成する。この光との相互作用の結果、物質系に誘起される分極 $P$ は3次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ による分極 $P^{(3)}(\omega)$ として表され、密度行列を使ってその期待値を計算すると次の式になる<sup>3)</sup>。

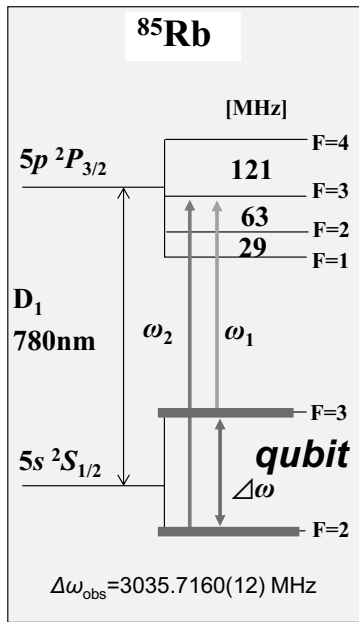


図7 二重共鳴に用いた Rb 原子のエネルギー準位. 二次微分波形はゼーマン変調による.

$$\text{tr}[\rho, \hat{P}^{(3)}] = \chi_1^{(3)} E_1 E_2^2 \exp(i\omega_1 t + i\phi_1) + \chi_2^{(3)} E_1^2 E_2 \exp(i\omega_2 t + i\phi_2)$$

この3次の非線形分極による輻射と、そのまま透過してきたレーザー光をフォトミキサーでヘテロダイン検出されるビート信号  $I_{\text{ODR}}$  は複素感受率の実部  $\chi_{\text{Re}}^{(3)}$  と虚部  $\chi_{\text{Im}}^{(3)}$  を使って、

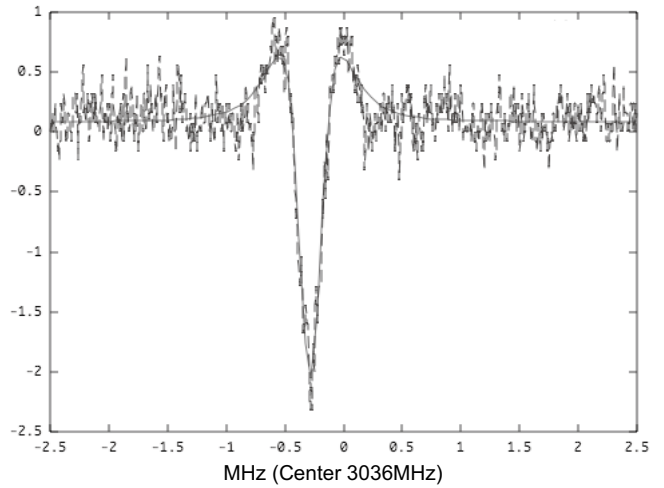


図8 分布数変化を検出した Rb 原子の二重共鳴スペクトル.

$$\begin{aligned} I_{\text{ODR}}(t) &\propto \text{Re}[(-i\chi_1^{(3)*} E_1 E_2^3 + i\chi_2^{(3)} E_1^3 E_2) \exp(i\Delta\omega t + i\Delta\phi)] \\ &= \text{Re}[\{-i(\chi_{\text{Re}}^{(3)} - i\chi_{\text{Im}}^{(3)}) E_1 E_2^3 + i(-\chi_{\text{Re}}^{(3)} + i\chi_{\text{Im}}^{(3)}) E_1^3 E_2\} \\ &\quad \times \exp(i\Delta\omega t + i\Delta\phi)] \\ &= (E_1 E_2^3 + E_1^3 E_2) [\chi_{\text{Im}}^{(3)} \cos(\Delta\omega t + \Delta\phi) \\ &\quad + \chi_{\text{Re}}^{(3)} \sin(\Delta\omega t + \Delta\phi)] \end{aligned}$$

と表せる. ここで,  $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$ ,  $\Delta\phi = \phi_1 - \phi_2$  である. この式からわかるように, このビート信号をさらに  $\Delta\omega$  でホモダイン検波すれば、

$$I_{\text{ODR}}(t) \propto \chi_{\text{Im}}^{(3)} \cos(\Delta\phi) + \chi_{\text{Re}}^{(3)} \sin(\Delta\phi)$$

とすることができ, 実験者が  $\Delta\phi$  をゼロと設定したときには  $\chi_{\text{Re}}^{(3)}$  の実成分,  $\pi/2$  としたときには虚数成分を選択的に

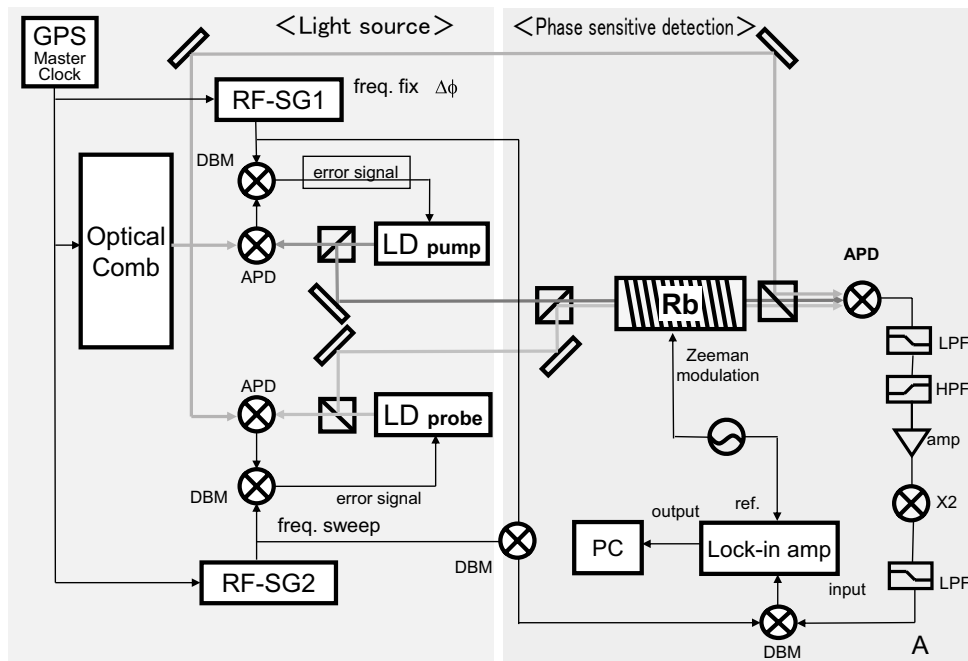


図9 光-光二重共鳴実験装置のダイアグラム. 左が位相安定化光源部, 右が位相敏感検波部を表す.

抽出することが可能となることわかる。逆に、 $\chi_{\text{Im}}^{(3)}$  と  $\chi_{\text{Re}}^{(3)}$  のスペクトル線形をそれぞれローレンツ関数とその分散型を仮定すると、実験で得られた  $I_{\text{OODR}}$  信号のスペクトルプロファイルを解析すれば、 $\Delta\phi$  項を直接決定することができる。次章では以上の理論を実験で検証する。

## 5. 光位相から物質の量子位相への転写とそのモニター (実験)

実際の実験では、物質系として気相の  $^{85}\text{Rb}$  原子を用いた。図7に示すように、 $|0\rangle$ ,  $|1\rangle$ ,  $|m\rangle$  状態として、それぞれ  $^2S_{1/2}F=2$ ,  $^2S_{1/2}F=3$ ,  $^2P_{3/2}F=3$  状態を選び、3章で紹介した、光周波数コムに位相安定化した2台の半導体レーザーを用いた光-光二重共鳴実験を行った。試料は室温蒸気圧の Rb セルで外部磁気を遮蔽するために、三重のミュンメタルで磁気シールドした。

まず、図8に示すのは一般的な二重共鳴分光の手法を使ったスペクトルで、分布数の変化、すなわち波動関数の絶対値の二乗に相当する量を測定したものになる。ここでは検出感度を高めるために、試料にわずかな交流磁場を印可するゼーマン変調法を用いて  $2f$  検波しているので、スペクトル線形は二次微分型になっている。観測されたスペクトル線幅は 500 kHz となっているが、その主たる要因はレーザー光のビーム径で決まる原子と光の相互作用時間となっている。

次に、位相敏感検出の実験ダイアグラムを図9に示す。図9の左半分は位相安定化光源系を表しており、図2に対応する。2台の半導体レーザーの位相差は光源部の位相安定化回路で電氣的に制御している。図9右半分は位相敏感検出部であり、ポンプ光とプローブ光に加えて光周波数コムの光を1台の光ミキサーに入れている。この光ミキサーで検出された2つのビート信号をさらに RF ミキサーを通

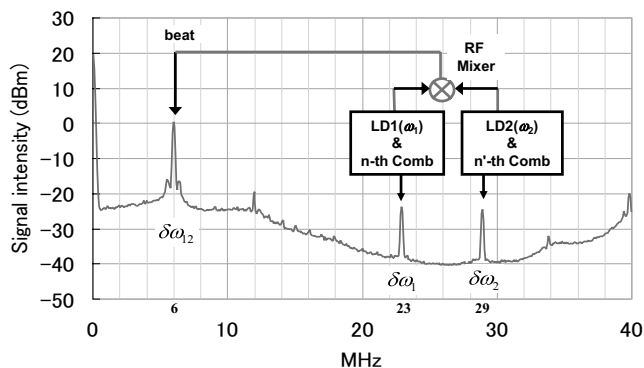


図10 二重共鳴実験時のビートスペクトル. 図9 A点での信号をスペクトルアナライザーで観測したもので、LD1のビートが23 MHzに、LD2のビートが29 MHzにあり、その差周波数が6 MHzに表れている。

したときの信号 (図9の右下 A点) をスペクトラムアナライザーでモニターしたものを図10に示す。 $\Delta\omega_1$  はポンプ光と光周波数コムの  $n$  次モードとのビートであり、 $\Delta\omega_2$  はプローブ光と光周波数コムの  $(n+5)$  次モードのビートである。さらに、 $\Delta\omega_{12}$  は両者のビートに相当する。

光周波数コムの繰り返し周波数は 200 MHz なので、光ミキサーとしては周波数帯域が 100 MHz のアバランシェフォトダイオード (APD) で、レーザー差周波数として 300~600 THz の帯域すべてに対応できるようになっている。

この  $\Delta\omega_{12}$  を光源系で設定する  $\Delta\omega_{12}$  を基準とするホモダイン検波を行うことによって、目的の位相情報を引き出すことが可能となる。図11はポンプ光をドップラー効果によって 500 MHz の不均一広がりをもつスペクトルの中心付近の適当な周波数に固定し、プローブ光の周波数を掃引した際の二重共鳴信号で、差周波成分の位相差  $\Delta\phi$  を  $0 \sim 3\pi/2$  まで  $\pi/2$  ごとに覚えて測定したときのものである。観測された 1 MHz 幅の共鳴構造はサブドップラーの条件で観測された3次の分極による信号であり、 $\Delta\phi$  を変えた

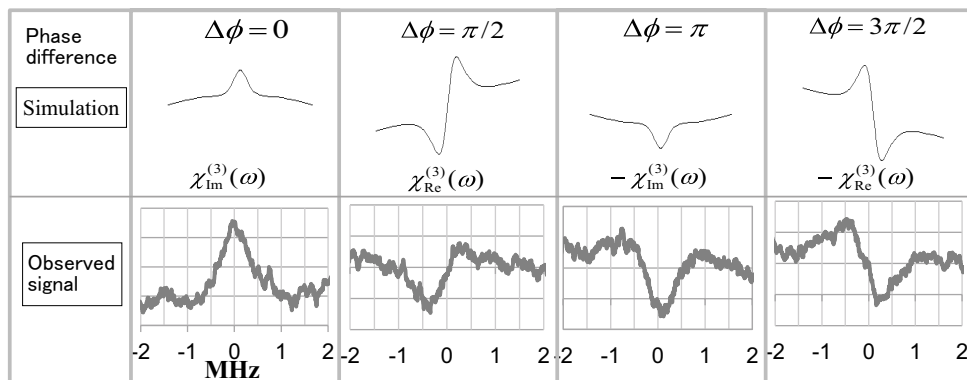


図11 位相敏感検出による二重共鳴信号のスペクトル波形の位相差依存性. 位相差  $\Delta\phi$  を  $\pi/2$  ごとに変えたときの理論と実験スペクトルの結果。

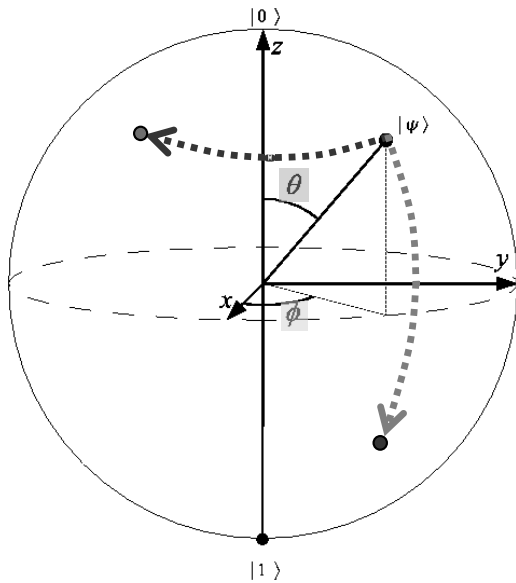


図 12 ブロッチ球上での基本量子演算操作.  $\phi$  方向の回転が位相操作に相当する.

ときの共鳴信号のスペクトルプロファイルは 4 章で示した理論によるモデルスペクトルとよい一致を示している. このように励起に用いる 2 本のレーザー光の位相差を変えることによって分極の位相が変わることを直接観測できたことは, 原子系の波動関数の位相を制御し, またその位相の状態をモニターする手段を確立したことを意味する.

量子コンピューティングの分野では, 量子演算の対象となる最小単位の二準位系のことを qubit とよび, その量子状態は式

$$\psi_{\text{qubit}}(t) = \cos \frac{\theta}{2} |0\rangle + e^{i\phi} \sin \frac{\theta}{2} |1\rangle$$

あるいは, 図 12 のブロッチ球面上の点の座標  $(\theta, \phi)$  として表すことができる. 量子情報処理における基本演算操作はすべてユニタリー変換であり, ブロッチ球面上での点の移動として表わすことができる.  $\theta$  を回転させる操作はラビ振動に相当するもので, すでに多くの実験例があった. 今回の図 11 の実験結果は相対位相  $\phi$  を回転させる量子位相ゲート操作に対応するものであることから, 本実験によって気相原子 qubit に対応するブロッチ球面上での任意

の移動が可能であることが示された. すなわち量子基本演算操作を実現するために要求される 1 qubit に対する任意のユニタリー変換が, 光コムによって制御されたレーザー光を用いることによって可能となることが実証された<sup>4,5)</sup>.

量子コンピューティングの研究はまだ黎明期であり, 現状では有力な qubit 候補を探している段階ではあるが, 光周波数コム の出現によって qubit の対象を 100~600 THz に遷移をもつ量子系にまで拡大できたことは, この分野の研究の可能性を大きく広げたといえよう. われわれの研究室では次の段階として, 量子系の対象を原子から, より内部自由度の豊富な分子に移行すべく研究を進めている.

物質の量子状態の位相は量子系が有する基本物理量であるにもかかわらず, 観測にかかりにくいという理由で十分に認識されることなく見過ごされてきた感がある. 今世紀の物理学では, この自由度を積極的に利用すべく研究が進められるであろう. したがって, 物質の量子状態の位相を制御するための位相安定化電磁波光源の重要性は, 今後ますます増大するものと思われる.

## 文 献

- 1) M. McCarthy, H. Kanamori, T. Steimle, M. Li and R. Field: "Sideband optical-optical double resonance Zeeman spectroscopy. II. Studies of NiH, PdD, and PtH," J. Chem. Phys., **107** (1997) 4179-4188.
- 2) L. S. Ma, Z. Bi, A. Bartels, L. Robertsson, M. Zucco, R. S. Windeler, G. Wilpers, C. Oates, L. Hollberg and S. A. Diddams: "Optical frequency synthesis and comparison with uncertainty at the  $10^{-19}$  level," Science, **303** (2004) 1843-1845.
- 3) H. R. Schlosseberg and A. Javan: "Saturation behavior of a Doppler-broadened transition involving levels with closely spaced structure," Phys. Rev., **150** (1966) 267-284.
- 4) A. Barenco, C. H. Bennett, R. Cleve, D. P. DiVincenzo, N. Margolus, P. Shor, T. Sleator, J. A. Smolin and H. Weinfurter: "Elementary gates for quantum computation," Phys. Rev. A, **52** (1995) 3457-3467.
- 5) 細谷暁夫: "量子コンピュータの基礎", 数理科学 SGC ライブラリー 4 (サイエンス社, 1999).

(2012 年 4 月 12 日受理)