1998 年度課題研究 P1 卒業論文 (第 1 版)

東武大　古結尚　小又雄一郎　佐藤松夫
高須洋介　常見俊直　寺口俊介　藤田智之

1999 年 03 月 26 日

Abstract

我々は、量子力学の観測問題を調べていて、二粒子以上の系に於いて現れる ” entangled state ” の存在に行き当たった。
これは形式的には自然な状態であるが、そこからはＥＰＲパラドクスのような直感に反する予言が導かれる。
ダウンコンバーターと呼ばれる非線型結晶は、一個の光子を entangled した二個の光子に増幅する。この光子対に対して干渉計を組むことにより、entangled state の存在を実証する。

目 次

1 Introduction **2**

1.1 卒業研究のテーマの背景 . . . 2

1.1.1 量子力学における観測問題 . . . 2

1.1.2 思考実験 . . . 2

1.1.3 entangled state . . . 4

1.1.4 思考実験の再考 . . . 4

1.2 実験の目的 . . . 6

1.2.1 実際に行う実験の概観 . . . 6

1.2.2 実験の際の注意点 . . . 7

2 実験装置について **8**

2.1 YAG laser . . . 8

2.2 Machzender 干渉計 . . . 8

2.3 down converter としての非線形結晶 . . . 8

2.4 可変スリット . . . 10

3 予備実験について **12**

3.1 He-Ne による干渉実験について . . . 12

3.2 type I 結晶 $LiIO_3$ による実験 . . . 13

3.2.1 type I down conversion の実証 . . . 13

3.2.2 $LiIO_3$ による干渉実験 . . . 14

3.3 BBO でのダウンコンバージョン実験 . . . 16

3.3.1 実験の手順 . . . 16

3.3.2 考察 . . . 16

4 結論と反省点 **17**

5 Acknowledgement **19**

A 非線形結晶について **21**

A.1 屈折率楕円体について . . . 21

A.2 index matching condition について . . . 23

A.3 down conversion における ring のでき方の計算方法 . . . 25

A.3.1 type I についての考察 . . . 25

A.3.2 type II の結晶について . . . 26

Chapter 1

Introduction

1.1 卒業研究のテーマの背景

1.1.1 量子力学における観測問題

量子力学は、今日、最も完成された理論の一つである。量子力学の予言は、我々の直感に反することもしばしばあるが、その多くが、実験的に証明されている。(一粒子干渉、AB 効果、ベルの不等式 etc.) しかし、量子力学における観測 (確率解釈、波束の収縮等) をどのように捉えるかについては、昔から多くの議論があり、最終的な結論は未だ出ていないといえる。

1.1.2 思考実験

我々は一つの思考実験を行うことにより、量子力学の観測問題にアプローチすることを試みた。
まず、一度に一つの粒子しか放出しないような source による一粒子干渉を考えよう。今は、理想的に、左上か左下への放出しか起こらないと仮定する。この時、図のようにハーフミラーを用いて二つの粒子の経路を重ね合わせることにより、粒子に干渉を起こさせることができる。ここで、粒子の干渉とは、片方の経路に挿入した位相板を調整してその位相を変えることにより、粒子の見い出される確率を変えることができることを意味する。
次に、back to back に、二つの粒子を放出するような source を考えよう。(例えば、ポジトロニウムで $e^+e^- \to 2\gamma$) 今度も、理想的に二通りの放出、即ち、右上左下あるいは右下左上という放出しか起こらないと仮定する。ここで、左側に出た粒子に着目し、干渉を起こさせる事を考える。この時、右側に出た粒子に対する観測等が、左側の干渉の有無に影響を与えるようなことは起こらないだろうか ?
右側のセットアップとして次のようなものを考えてみた。

- (A) 何も置かない。
- (B) 右上と右下のどちらに来るかを検出。
- (C) 左側と同様の干渉計を作る。
- (D) 壁を置いて吸収させる。

これらのセットアップに対して、どのような答えが予想されるだろうか ?
回答例のいくつかを表にしてみよう。

直感的な理由としては、

- (A) では、左側を見る限り普通の干渉計なので干渉する ? (イ、ロ、ハ)
- (B) では、上にきたか下にきたかがわかるので干渉しない ? (イ以外)
- (C) では、左側の粒子の情報が右側の粒子からはわからないようにしたので干渉する ? (イ、ロ、ホ、ト)

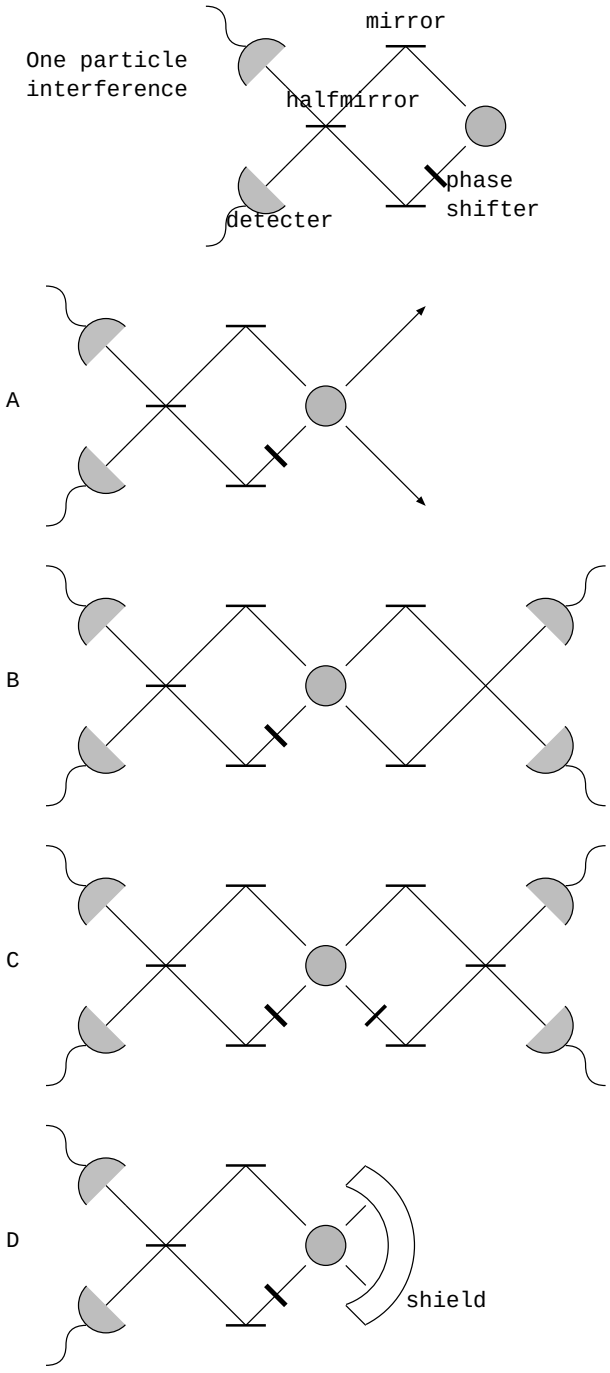


Figure 1.1: 思考実験

	イ	ロ	ハ	ニ	ホ	ヘ	ト
(A)	干渉する	する	する	しない	しない	しない	しない
(B)	する	しない	しない	しない	しない	しない	しない
(C)	する	する	しない	しない	する	しない	する
(D)	する	する	する	しない	しない	する	する

- (D) でも、と同様に干渉する ? (イ、ロ、ヘ、ト)

等が考えられる。

1.1.3 entangled state

この思考実験の答えを正しく考えるうえで、entangled state という概念が必要となる。ここでは、entangled state について簡単にまとめておく。
entangled state とは、多粒子系ではじめて意味を持つ概念である。ここでは、簡単のため、粒子が区別できる場合を考えよう。粒子 A、B、C、$\cdots$ からなる多粒子系があり、各一粒子系の状態が、$|\alpha^A\rangle$、$|\beta^B\rangle$、$|\gamma^C\rangle$、$\cdots$ で記述されるとする。この時、これらの状態の (テンソル) 積は全体系の状態として意味を持つ。

$$|\Phi\rangle = |\alpha^A\rangle \otimes |\beta^B\rangle \otimes |\gamma^C\rangle \otimes \cdots \tag{1.1}$$

このように、全体系の状態が各一粒子系の状態の積としてかけるとき、この状態を unentangled、或いは separable であると言う。一方、全体系の状態として、separable な状態の線形結合も許される。

$$\begin{aligned} |\Psi\rangle &= |\alpha^A\rangle \otimes |\beta^B\rangle \otimes |\gamma^C\rangle \otimes \cdots \\ &\quad + |\alpha'^A\rangle \otimes |\beta'^B\rangle \otimes |\gamma'^C\rangle \otimes \cdots \end{aligned} \tag{1.2}$$

これは各一粒子系の状態の積にはなっていない。このような場合、この状態は entangled していると呼ばれる。
entangled state の身近な例としては、二つのスピン $1/2$ の粒子による一重項状態

$$|S=0, s_z=0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow^A\rangle|\downarrow^B\rangle - |\downarrow^A\rangle|\uparrow^B\rangle) \tag{1.3}$$

がある。これは、Einstein、Podolsky、Rosen によって議論された、いわゆる EPR パラドクスの系でもある。この系では、例えば片方の粒子についてスピン上向きを確認した場合、もう片方の粒子は必ずスピン下向きである。

1.1.4 思考実験の再考

では、思考実験で考えた系について、実際に計算を行なってみよう。
まず、一粒子の干渉について計算してみる。 (粒子の通る経路について図 () のように名前をつけ、そこを通る粒子の状態もその名前で表すことにする。また、状態の位相については、各項の位相差にしか注意を払わない。)

まず、粒子の放出直後の状態を、

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|\alpha\rangle + |\beta\rangle) \tag{1.4}$$

と書く。経路βには、位相板θをおいているので、状態は、

$$\rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}}(|\alpha\rangle + e^{i\theta}|\beta\rangle) \tag{1.5}$$

となる。さらにハーフミラーによって一つの経路が二つに分けられると、

$$\begin{aligned} \rightarrow &\quad \frac{1}{\sqrt{2}}(\frac{1}{\sqrt{2}}(|\delta\rangle + i|\gamma\rangle) + \frac{e^{i\theta}}{\sqrt{2}}(|\gamma\rangle + i|\delta\rangle)) \\ = &\quad \frac{(i+e^{i\theta})}{2}|\gamma\rangle + \frac{(1+ie^{i\theta})}{2}|\delta\rangle \end{aligned} \tag{1.6}$$

となり、γに置かれた検出器によって見出される確率は、左から $\langle\gamma|$ を掛けて絶対値の二乗をとることにより、

$$\begin{aligned} P(\gamma) &= |\frac{(i+e^{i\theta})}{2}|^2 \\ &= \frac{(1+\sin\theta)}{2} \end{aligned} \tag{1.7}$$

となる。δについても同様に、

$$P(\delta) = \frac{(1-\sin\theta)}{2} \tag{1.8}$$

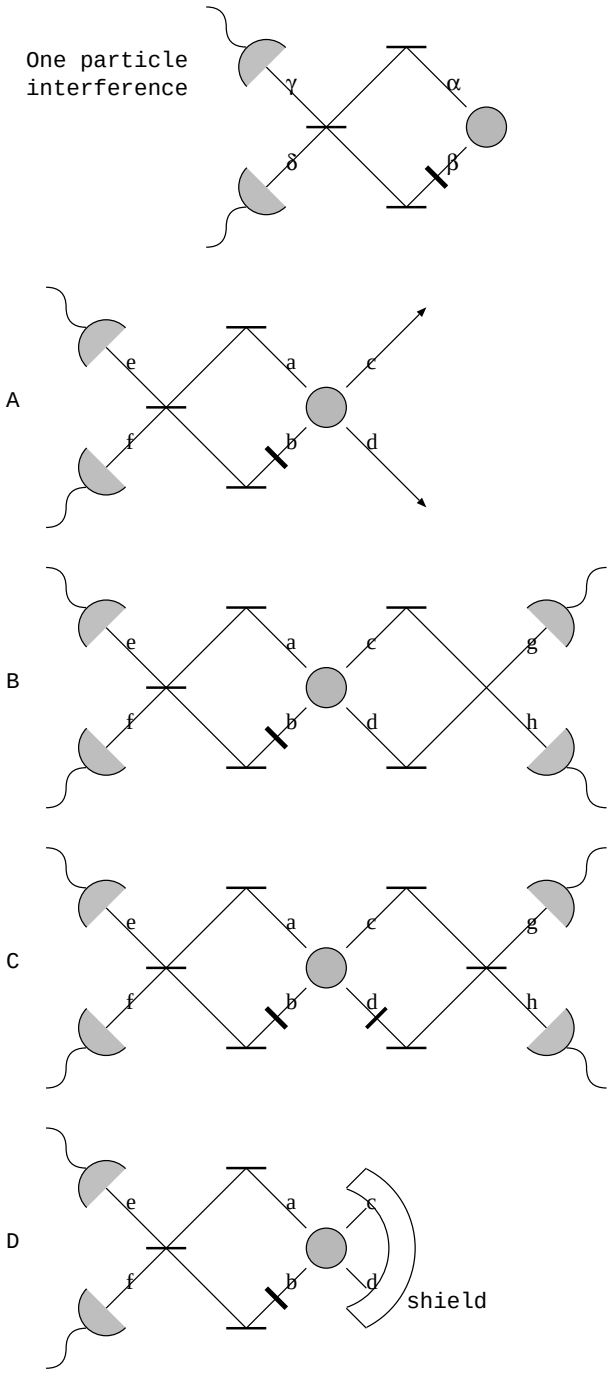


Figure 1.2: 思考実験の再考

と計算され、干渉することがわかる。
つぎに、back to back に粒子を出す source を考えて見よう。 (記法については図 () の通り) 粒子の放出直後の (粒子対の全体系の) 状態は、entangled state を用いて、

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|\alpha\rangle|a\rangle + |\beta\rangle|b\rangle) \tag{1.9}$$

と書ける。位相板を通ると、

$$\rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}}(|\alpha\rangle|a\rangle + e^{i\theta}|\beta\rangle|b\rangle) \tag{1.10}$$

となる。A、B、D では、左側のハーフミラーを通過して、

$$\begin{aligned} \rightarrow & \quad \frac{1}{2}(|\delta\rangle + i|\gamma\rangle)|a\rangle + \frac{e^{i\theta}}{2}(|\gamma\rangle + i|\delta\rangle)|b\rangle \\ = & \quad \frac{i}{2}|\gamma\rangle|a\rangle + \frac{e^{i\theta}}{2}|\gamma\rangle|b\rangle + \frac{1}{2}|\delta\rangle|a\rangle + \frac{ie^{i\theta}}{2}|\gamma\rangle|b\rangle \equiv |\phi\rangle \end{aligned} \tag{1.11}$$

となる。B の場合、左側に出た粒子がγに見い出される確率は、

$$\begin{aligned} P(\gamma) &= P(\gamma;a) + P(\gamma;b) \\ &= |\langle\gamma|\langle a|\phi\rangle|^2 + |\langle\gamma|\langle b|\phi\rangle|^2 \\ &= |\frac{i}{2}|^2 + |\frac{e^{i\theta}}{2}|^2 \\ &= \frac{1}{2} \end{aligned} \tag{1.12}$$

となり、干渉は見えない。C では、両側のハーフミラーを通過して、

$$\begin{aligned} \rightarrow & \quad \frac{1}{2\sqrt{2}}(|\delta\rangle + i|\gamma\rangle)(|d\rangle + i|c\rangle) + \frac{e^{i\theta}}{2\sqrt{2}}(|\gamma\rangle + i|\delta\rangle)(|c\rangle + i|d\rangle) \\ = & \quad \frac{(e^{i\theta}-1)}{2\sqrt{2}}|\gamma\rangle|c\rangle + \frac{i(e^{i\theta}+1)}{2\sqrt{2}}|\gamma\rangle|d\rangle + \frac{i(e^{i\theta}+1)}{2\sqrt{2}}|\delta\rangle|c\rangle + \frac{(-e^{i\theta}+1)}{2\sqrt{2}}|\gamma\rangle|d\rangle \equiv |\Phi\rangle \end{aligned} \tag{1.13}$$

となる。左側に出た粒子がγに見い出される確率は、

$$\begin{aligned} P(\gamma) &= P(\gamma;c) + P(\gamma;d) \\ &= |\langle\gamma|\langle c|\Phi\rangle|^2 + |\langle\gamma|\langle d|\Phi\rangle|^2 \\ &= |\frac{(e^{i\theta}-1)}{2\sqrt{2}}|^2 + |\frac{i(e^{i\theta}+1)}{2\sqrt{2}}|^2 \\ &= \frac{1-\cos\theta}{4} + \frac{1+\cos\theta}{4} \\ &= \frac{1}{2} \end{aligned} \tag{1.14}$$

となり、干渉は見えない。但し今度は、例えば $P(\gamma;c)$ それだけをみると、θ依存性が残っている。これは、左側の粒子を見ているだけでは干渉は起きないが、右側の粒子が c に見出されたという条件のもとで左側の粒子を見ると干渉が見えることを意味している。

結局、左側の粒子だけを見ている限り、干渉は見えないことがわかった。しかし、干渉は起きないという計算結果を得たものの、これらのセットアップは一見普通の干渉計のように見え、いまひとつ納得がいかない。そこで、実際に実験を行い、「干渉は見えない」という結果が本当に正しいのかどうか自分たちで確かめることにした。

1.2 実験の目的

1.2.1 実際に行う実験の概観

思考実験の際には、source として back to back に粒子対を放出するようなものを考えた。しかし、実際に実験をするとなるとそのような source で干渉を起こすのに都合のいいものは見当たらない。そこで、代わりにレーザーと down

converter として働く非線型結晶を用いて上記の思考実験を再現することにした。。down conversion とは、一つの光子が (それとは波長の異なる) 二つの光子に変わる現象である。
この現象をうまく使うと、

$$|V\rangle_\lambda \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}}(|H_1V_2\rangle_{2\lambda} + e^{i\alpha}|V_1H_2\rangle_{2\lambda}) \tag{1.15}$$

という状態が作れる。ここで、λ等の添え字はその状態の光子の波長を、1 と 2 は経路を、H と V は偏光が結晶によって決まるある平面 (principal plane) にそれぞれ平行か垂直かを表す。例えば、$|H_1V_2\rangle_{2\lambda}$というケットは、経路 1 に平行に偏光した光子、経路 2 に垂直に偏光した光子があることを表す。
このようにして作った光源に対し、図のようなセットアップを組む。down converter によって作られた二つの光子はそれぞれ偏光ビームスプリッター (PBS) へと進む。PBS は principal plane に垂直な成分が反射、平行な成分を反射するようにする。反射した波をハーフミラーで再び重ねあわせて検出する。
図のように、PBS で反射した波が、思考実験の左側に飛んだ粒子に対応し、透過して外側へ行った波が右側の粒子に対応する。ここでは、A のセットアップを再現したが、同じようにして、B，C，D も再現できる。

1.2.2 実験の際の注意点

これらの実験 A,B,C,D は、上で行った計算によると干渉が見えないことが期待されている。しかし、それでは、実験を行ない干渉が見えなかったとしても、それが、自然の性質であるのか、実験装置の不備によるのかがわからない。そこで、同じ実験装置を用いて、干渉の見える干渉実験を行ない、自然が干渉の起こることを選びさえすれば干渉が見えるということを保証しなければならない。
実験 C では、一つの detecter を見ているだけでは干渉が起きないが、二つの detecter の相関を見れば、干渉が見えることが期待されている。例えば、右上の detecter に粒子が来た時左上の detecter に粒子が来る確率は、位相板によってつける位相差を変えることにより変化する。
実際の実験装置においては、PBS で反射しなかった波をミラーで反射させ、同じようにハーフミラーで重ね合わせることにより C の実験を再現できる。

Chapter 2

実験装置について

2.1 YAG laser

YAG レーザーの発振波長は、1064nm であり、非線形結晶を用いて高調波 (532nm)、第 3 高調波 (355nm) を発振できるようになる。高調波を発振する機構は、appendix A を参照。

今回の実験では、ダウンコンバージョンで波長が二倍になった光子を使用するため、どちらも可視領域近くの光子を使うとなると、結晶への入射光を 355nm、結晶からの射出光を 710nm とすることにより、あとの光学系の調整が容易になるのではないかと考えた。

今回の実験では、繰り返し回数が 20Hz、強度が 10mW の YAG レーザーを用いた。

2.2 Machzender 干渉計

2.3 down converter としての非線形結晶

Entangled state を実現するための重要な手段として、down conversion と呼ばれる現象がある。down conversion とは、レーザーを非線形結晶に照射させるときに、2 つの photon 対が生じる現象のことをいう。down conversion の現象では、

- 結晶に入射させるレーザービームのことを pump 光と呼ぶ。
- pump 光の入射によって、signal 光と idler 光が生じる。

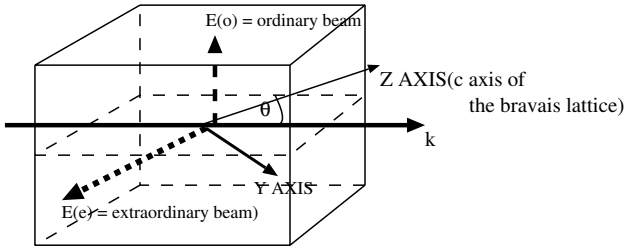
このとき、pump 光、signal 光、idler 光に対する、振動数をそれぞれω_p、ω_s、ω_i、波数ベクトルをそれぞれ $\mathbf{k}_p$、$\mathbf{k}_s$、$\mathbf{k}_i$ であるとする。この時、エネルギー保存則として$\omega_p = \omega_s + \omega_i$が成立する。また、down conversion の効率が最高であるのは、pump → idler+signal で波数ベクトルの和が保存される時、すなわち $\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i$である。Appendix では簡単のため 1 次元の場合にのみ限定して、振動数ωのレーザー光を 2 つ照射させて、振動数 2ωの photon を得る特別な場合についてのみ証明したが、この性質は一般の場合にも成立する。この条件を index matching condition と呼ぶ。

私たちの卒業研究では 2 種類の結晶を使用した。一つは type I の down conversion を起こす $LiIO_3$である。もう一つは type II の down conversion を起こす BBO 結晶である。$LiIO_3$は薮崎研より提供されたものであり、私たちの卒業研究では予備実験のために用いられた。BBO 結晶を用いる理由は、entangled state を起こすための源として優れているからであるが、この点については後述する。これらの結晶の性質は以下の表に示す通りである (説明の都合上、後に回す事柄もこの表に含める)。

私たちの用いる結晶はいずれも Bravais lattice を特徴づける 3 つの結晶軸の中で、他のどの 2 つとも垂直なるような結晶軸が存在する。そのような結晶軸を光学軸 (optic axis) と呼ぶ。さらに、残る 2 つの Bravais lattice の長さが等しいという特徴を持つ結晶を一軸性結晶と定義する。そして、一軸性結晶における photon については、その偏極状態に応じて ordinary、extraordinary の 2 つの状態を定義できる。

	$LiIO_3$	BBO
Bravais 格子	六方晶系 (C_6)	三方晶系 (3m)
一軸 or 二軸	一軸性結晶	一軸性結晶
downconversion	type I	type II
Sellmeiner 方程式 (o)	$n_o^2 = 3.4132 + \frac{0.0476}{\lambda_{\mu m}^2 - 0.0338} - 0.0077\lambda^2$	$n_o^2 = 2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda^2 - 0.01822} - 0.01354\lambda^2$
Sellmeiner 方程式 (e)	$n_e^2 = 2.9211 + \frac{0.0346}{\lambda^2 - 0.0320} - 0.0042\lambda^2$	$n_e^2 = 2.3753 + \frac{0.01224}{\lambda^2 - 0.01667} - 0.01516\lambda^2$

Table 2.1: 実験で用いる非線形結晶の性質



Here, the principal plane contains the Z axis(optic axis), and the wave vector k.
o-beam (ordinary) is the beam whose polarization is parpendicular to the principal plane
e-beam (extraordinary) is the beam polarized in the principal plane.

Figure 2.1: ordinary 光と extraordinary 光の説明

ordinary 光 (o) とは、偏極が principal plane に垂直であるような光である。一方、extraordinary 光 (e) とは、偏極が principal plane 内にあるような光である。それぞれの状態における屈折率は波長依存性を持ち、Sellmeiner 方程式によって決定される。これは結晶によって異なるが、$LiIO_3$とBBOに関しては、上の表に与えたような値をとる。

- ordinary 光に対しては屈折率は、ビームの方向と、結晶の optic axis とのなす角 (以下、θと呼ぶ) に依存しない。ただ、波長に (ひいては振動数に) 依存するのみであり、表中の n_oの値をそのまま適用する。

- 一方、extraordinary 光を考える時には角度θに依存する結果を得る。表中の n_eの値は、ビームの向きと光学軸が平行な時の屈折率の値である。一般には、屈折率楕円体を用いた議論によって、

$$n_e(\theta) = (\frac{\cos^2\theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2})^{-0.5} \tag{2.1}$$

  を得る。屈折率楕円体の議論については Appendix に譲ることにする。

down conversion の起こり方として、type I と type II に分類される。type I down conversion とは、signal 光と idler 光の偏光状態が同一である conversion を指す。例えば、e → o+o のような偏光の conversion をさす。type II down conversion とは、singal 光と idler 光の偏光状態の異なるものを指す。例えば、e → o+e などである。

1995 年に Paul.G.Kwiat や Anton Zeilinger 氏らによって、type II で down convert された photon 対が優れた、偏極の絡まった状態を生成する源であることが報じられた。BBO 結晶で down conversion させたとき、2 つの偏光状態が絡み合って、entangled state を作ることが可能である。この現象は Bell の不等式の破れの実験などにおいて大きく貢献するようになった。

この type II down converter による entangled state は、下の図に示されるような ordinary 光と extraordinary 光によるそれぞれの cone の重なった部分によって実現することが可能になる。2 つの円錐の重なりの部分では本質的に光の

変更状態は o-beam と e-beam の混合した状態であり、それが下式で表せるような entangled state を作る。

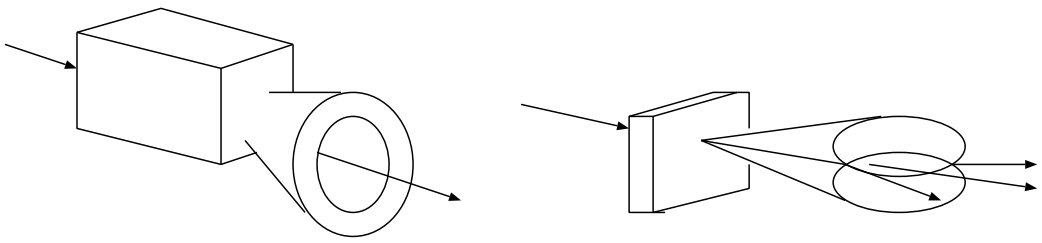
$$|\psi>=\frac{(|H_1,V_2>+e^{ia}|V_1,H_2>)}{\sqrt{2}} \tag{2.2}$$

以下で、Hは horizontal(偏光が principal plane に対して水平な extraordinary 光)、Vは vertical(偏光が principal plane に対して垂直な ordinary 光) を表す。位相差αは結晶の複屈折率から生じるものであり、これは結晶を回転させることによって変えることのできるパラメーターである $(0 \leq \alpha \leq \pi)$。

type II の down conversion を実現する非線形結晶は何種類かあり、それぞれの屈折率がことなる Sellmeiner 方程式によって支配されている。type II の非線形結晶のなかでも、上記のような ring の重なりを実現できるものであれば、entangled state を生成するのに用いることが可能である。Appendix で具体的な計算を記すように、BBO はかかる ring の重なりを起こす結晶の一つである。BBO が他の結晶に比べて優れた点として、以下の事柄があげられる。

- down conversion の効率が大きい。
- damage threshold が大きく、強い laser pulse に対する耐性が高い。
- 潮解性がない。
- 工業的に製作、加工しやすい。

私たちの実験では、予備実験で type I を、本実験で type II のそれぞれについての down conversion 現象を利用する。それぞれの down conversion で下図に示すような、違った様相が見られるが、その計算方法は Appendix に譲ることにする。



type I down conversion (using LiIO3)

type II down conversion (using BBO)

(Where the two cone overlap, we can see the entangled state of the ordinary beam and the extraordinary beam, which is of great use in EPR-Bell experiment.)

Figure 2.2: ordinary 光と extraordinary 光の説明

2.4 可変スリット

この実験において、私たちは微小な間隔で光を通すために、可変 slit を作成した。この slit を作成した目的は、できるだけ可干渉長 (coherence length) を長くして実験を行なうことである。

ここで、可干渉長について説明を加える。干渉計を組むときに 2 つの光が干渉するのは、光が干渉する点において、到着した光の相互の位相からいずれの光路を通ったかを知ることができない時である。干渉計の 2 つの光路差が小さくなればなるほど、干渉は生じやすくなる。可干渉長とは、このように光路差を小さくしていって 2 つの光路のコントラストが消失して干渉が生じるのを可能にするような光路差を指す。よって、できるだけ単色度を高くした方が干渉は生

じやすくなる。この議論を、down converter から出てくる ring に対して当てはめてみたい。可変 slit によって slit を透過したビームの波長分散が$\Delta\lambda$で表されるとする。このとき、可能干渉長を $L_{(m)}$、ほしい波長の中央値を$\lambda_{(m)}$とすると、

$$L = \lambda \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \tag{2.3}$$

で表される。setup を組む際に人間の手では誤差は1mm 程度はどうしても生じてしまうと考えられる。そこで、L=1mm 程度におさえたい。ここでは SHG(2 倍高調波生成) についての実験をしたいので、$\lambda = 710_{(nm)}$である。そこで、$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{1}{1000}$ 程度におさえることが要請される。

そこで、波長 710nm の近傍で、Appendix で行なった type I の ring のでき方のシミュレーションをもとにして$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{1}{1000}$を実現できる角度$\Delta\theta$を計算すれば、$\Delta\theta = 0.016_{(deg)}$となる。これより、仮に結晶と slit を 30cm 程度離して実験を行なうとすれば、0.1mm 程度の slit 幅を実現できれば良い。

そこで、幅 0.1mm 程度の slit を実現するために、以下の図に示すようなデザインで slit を作成した。このように、

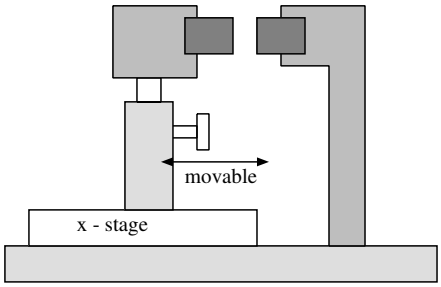


Figure 2.3: 可変 slit のデザイン。微小調整ができるように x-stage によって左右に動かせるようにした。

x-stage を調整することによって、slit 幅を調整できるようにした。その calibration は He-Ne laser を用いての Fraunhofer 回折の手法を用いて行なった。結果として目盛 x(mm) と slit 幅 y(mm) の関係は、

$$y = -1.006x + 19.050 \tag{2.4}$$

である。

Chapter 3

予備実験について

3.1 He-Ne による干渉実験について

He-Ne Laser を光源として、Machzender 干渉計により位相板の屈折率 n を求めた。なお、カタログによると $n = 1.434$ である。

実験はθが-60 ↔から$+60$ ↔まで、0 ↔を除いて 10 ↔おきの場所計 12 個を測った。これを 1 セットとして、計 5 セットを測った。

フィッティングには屈折率 n とフリーパラメーターとして位相板のオフセット値θ_0を用いて最小 2 乗法を用いた。最初の 2 セットと次の 3 セットでは一度位相板を取り外したため、位相板のオフセット値θ_0が異なっていると考え、別々にフィッティングした。

結果を図 (3.1、3.1) に示す。フィッティングから得られた n、θ_0もそこに記しておいた。なおグラフの横軸は光源に対して位相板の角度で単位は度、縦軸は 1 波長分回すのに必要な角度で単位は秒である。

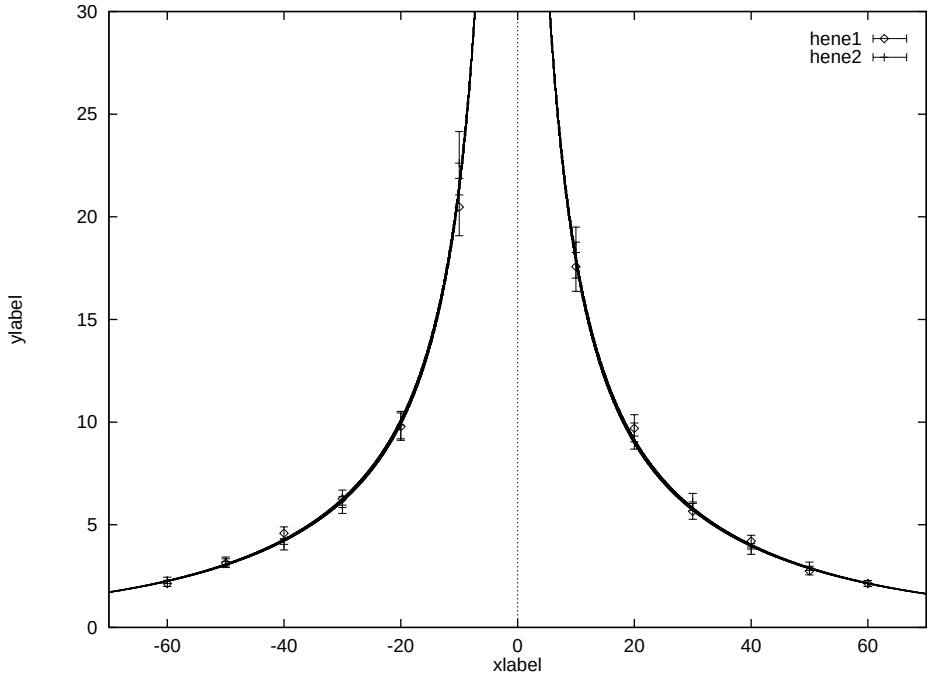


Figure 3.1: $n = 1.449, \theta_0 = 0.8991$(度)

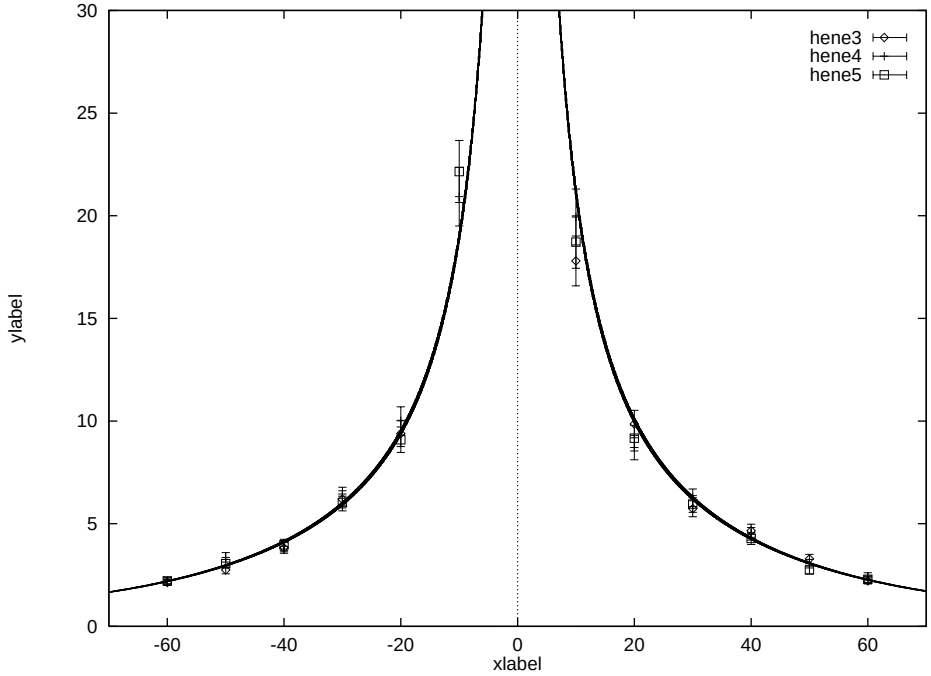


Figure 3.2: $n = 1.434, \theta_0 = -0.5477$(度)

3.2 type I 結晶 $LiIO_3$による実験

今回の本実験を行なうに当たり、予備実験として三酸化沃化リチウムを用いる実験を行なった。type I の結晶を用いたのは、BBO 結晶を発注して手許に届くまでに時間がかかったからであり、その間に手許にある非線形結晶で実験をしたかったからである。この予備実験を行なう目的は、次の 2 点である。

- 非線形結晶の起こす現象に対する理解を深めるため
- 非線形結晶とレーザーを用いた実験のテクニックに習熟するため。特に暗所での実験に習熟すること。今回の本実験は少ない photon 数での測定が要求されるので、実験室を暗くする必要が生じる。そうした環境にあって実験を遂行する上でのテクニック上の問題点についてあらかじめ体感することは、本実験を円滑に実行する上で重要である。

三酸化沃化リチウムは type I の down conversion を起こす結晶である、これを用いての予備実験は down conversion 現象の観察と、干渉計の setup の二種類である。

3.2.1 type I down conversion の実証

私たちは昨年 12/30 に田中研究室の協力のもとで、 type I 結晶による down conversion による ring を観察する実験を行なった。YAG の 3 倍波レーザーを三酸化沃化リチウムに照射させることによって、理論的には虹色のリングを観察することができるはずである。詳細は Appendix A を参照。

実験装置および setup

この実験の set up は下図に示す通りである。

- ここで用いた誘多膜ミラー (dichroic mirror) とは、特定の波長のみを反射させてそれ以外の波長の光と分別するための装置である。YAG laser から出る 3 倍波 (355nm) のレーザー光には 2 倍波の光が若干混ざっている。これを取り除くために誘多膜ミラーで 3 倍波以外を排除する必要があった。この誘多膜ミラーの可視光の透過率は 80 ~ 90% である。このように 2 枚置けば高々数%にまで混ざる可視光を減らすことができる。

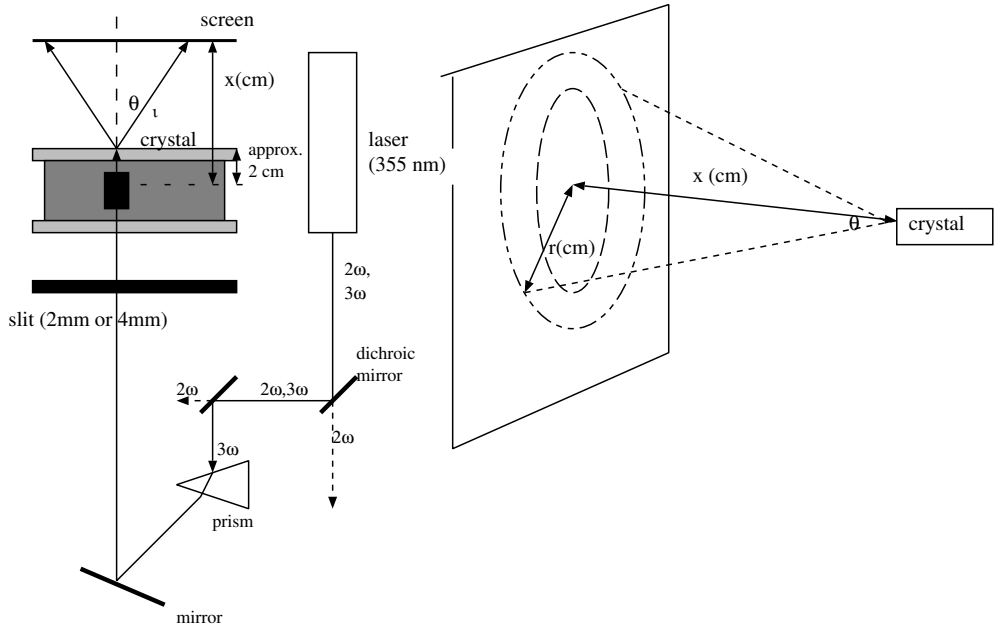


Figure 3.3: 三酸化沃化リチウムを用いた down conversion 実験の setup(左)、およびスクリーンに現れた結果 (右)

- 三酸化沃化リチウムはθ盤の上にマウントされている。θ盤を回転させることによって、ビーム方向と三酸化沃化リチウムの光学軸とのなす角を偏化させることができる。

実験結果

私たちはこの実験において、ビームと結晶の光学軸とのなす角θ_{pm}に関する情報を得る術を持たなかった。ここでは定性的な実験結果に言及することにする。

この予備実験において、私たちは type I における down conversion 現象を確認し、虹色の ring を観察することに成功した。photon がリングの写真は web 上の http://tancho.scphys.kyoto-u.ac.jp/ p1-98/jikken/crystal/picture.html に公開している通りである。現れた ring のパターンとしては、次の 2 通りを見ることができた。

- 緑色 (短波長) の ring のほうが外側に出て、赤色 (長波長) が内側に出ている場合
- 赤色 (長波長) の ring のほうが外側に出て、緑色 (短波長) が内側に出ている場合

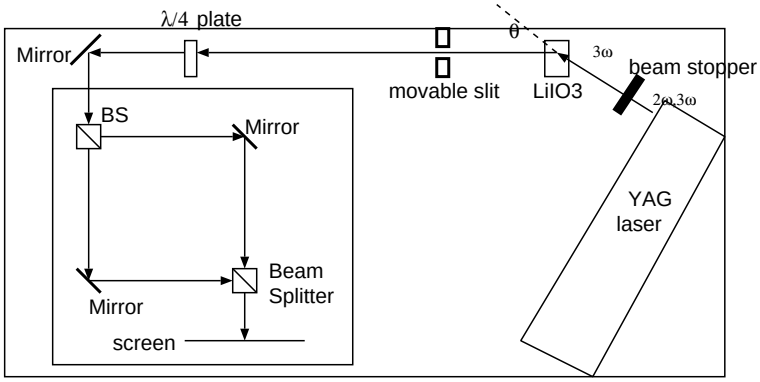
θ盤を回転させるにつれて、ある角度を境に前者の状態から後者の状態に変遷した。その中間段階では、同一半径に ring の色が混ざっているように見えた。このことは、Appendix にも記すように、理論的に予測していたことである。コンピューターによる数値計算の結果 (グラフ A.3参照)、$\theta_{pm} = 56.0$ のときに反転すると見積もれる。

3.2.2 $LiIO_3$による干渉実験

私たちは、$LiIO_3$の ring の光を用いての干渉実験を予定していた。しかしながら、後述するように $LiIO_3$結晶を破損してしまったためにこの予備実験は頓挫してしまい、実行に移すことはできなかった。以下は、私たちの企画していた実験の概要、および結晶の破損した原因について記述する。

干渉実験の目的

今回、$LiIO_3$を用いての干渉実験を行なう目的は、この節の冒頭に触れたこととは別にもう一つある。down conversion 現象による photon を用いた実験において、可干渉長の問題がクリアできるかどうかを見ることである (可干渉長の概念



The setup of the attempted preliminary experiment

Figure 3.4: 今回未遂に終った予備実験の setup

は可変 slit の項を参照)。このことを実験によって確認しようと計画した。

実験装置および **setup**

私たちの予定した実験では、まず YAG laser を用いて $LiIO_3$結晶に 355nm のレーザー光を照射させる。そして、355nm → 710nm+710nm で down convert された photon 対の片一方のみを取り出して、干渉実験に用いることにする。これを可変 slit を通した後で、Machzender 干渉計を用いて 2 つの光路の光が正常に干渉させる。私たちの計画していた実験の setup は次の通りである。各々の装置の説明は以下に述べる。

- 可変 slit:前章の該当する部分参照。そこでも述べたように、これは実験者が手で干渉計をアライメントするときに、1mm 以上の coherent length を出すようにデザインしたものである。
- beam stopper:前節で述べたように、YAG laser から出る 3 倍波のレーザー光には、若干 2 倍波が混ざっている。今回の実験では、誘多膜ミラーを用いる代わりに、まず prism で 2 倍波と 3 倍波を峻別する。そうすると、僅かではあるが 2 倍波と 3 倍波の屈折する方向が異なる。そこで、2 倍波の出る位置に細い筒を置くことによって 2 倍波の光を排除する。

実験の失敗の原因

私たちは $LiIO_3$を用いた干渉実験を行なうことができなかった。それは、前節の予備実験のあと、同じ操作によって ring を出そうとしても失敗したからである。前節の予備実験の段階において、$LiIO_3$にレーザーを照射してすでに結晶を若干焦がしてしまっていた。それによって、beam が結晶を貫通することが困難となった。まだ焦げていないところを狙っていかねばならないからである。実際の実験の段階では pulse を強くすることで ring が出るだろうと認識違いをしていた。そして pulse を強くするにつれ、結晶がさらに焦げてしまい、最終的には内部からひびが入り破損してしまった。

私たちは $LiIO_3$結晶で ring を出すことに失敗し結晶を破損した後に、beam の強さを測定する実験を行なった。そうすれば、実験中の laser の pulse の強さは 0.160W であったことが判明した。私たちの使った YAG laser は pulse 幅 20Hz で、一発あたり pulse は 3ns だけ生じる。よって、pulse の先尖値は

$$0.160_{(W)} \times \frac{1}{3_{(ns)}} \times \frac{1}{20_{(Hz)}} \times (\frac{1}{3_{(mm)}})^2 = 3 \times 10^{11}_{(W/m^2)} \tag{3.1}$$

であった。$LiIO_3$結晶の damage threshold は 355nm の pulse に対しては $1 \times 10^{11}_{(W/m^2)}$以下であることが知られている。このことは、私たちが与えたレーザーが結晶の damage threshold を超えており、結晶が pulse の強さに耐えられず破損したと考えられる。

今回の実験の反省点は、結晶の damage threshold を考慮し laser beam の電場をあらかじめ測定するという作業を怠った点にある。

3.3 BBO でのダウンコンバージョン実験

3mm の BBO 結晶に YAG レーザを当て、ダウンコンバージョンさせる実験を行なった。しかし、計算で考えていたようなリングは目で観測したが、見えなかった。

3.3.1 実験の手順

実験のセットアップは Fig.3.3.1である。

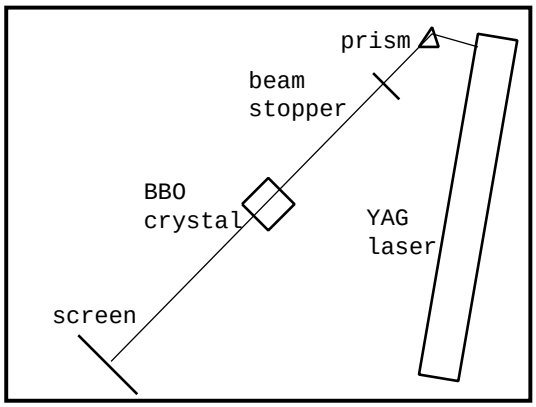


Figure 3.5: 実験の setup

まず、BBO 結晶がレーザーで損傷しないことを確かめるため、レーザーの強度を少しずつあげながら、BBO の結晶の状態を観察した。強度を 0.500W($LiIO_3$損害閾値の 3 倍) まであげたが、$LiIO_3$で受けたような傷はできなかった。

レーザーを強くしても損傷しないことを確かめた上で、BBO 結晶を９０度傾けてセットアップし、レーザーを 0.630W の強度で入射したが、リングは見えなかった。結晶を元に戻して、同じ強度で入射したが、やはりリングは見えなかった。

リングが見えなかった原因について、結晶の仰角がリングが出ないような状態になっていたのではないかと考た。仰角がつけられるような装置をつけ、最大 4.7 度まで仰角がつけらるようにした。

レーザーの強度を最大にし、結晶の仰角を変化させ、さらに鉛直軸に対しての結晶の角度を変化させたが、やはりリングは観測できなかった。

3.3.2 考察

今回の実験において、目測でリングを観測できなかった理由は、ダウンコンバージョンをしているが、目で見えるほど明るくないのではないのかということを考えた。

Chapter 4

結論と反省点

私たちは 1999 年 3 月の段階で、本研究を完遂することができなかった。ここで、これまで私たちが行なってきたことについて整理をしたい。

これまで得られた事柄について

1999 年 3 月の段階で私たちの卒業研究で得られた知見についてまとめる。

- 2 粒子以上の系において現れる、entangled state に対する理解を得た。そして、そこからは EPR paradox のような直感に反する予言が導出せられる。
- entangled state を実現させるための手段として、非線形結晶による type II の down conversion が広く使われていることがわかった。その中で BBO は特に優れた source である。
- BBO の down conversion 現象の観察に先立ち、$LiIO_3$の down conversion に対する知見を得た。これは type I の down conversion であり、BBO とは異なる描像を得た。$LiIO_3$の down conversion は目測で実験的に確認できた。しかしながら、これを用いて干渉系を組むなどの予備実験には頓挫した。
- BBO の down conversion を観察する試みを行なったが、目測には失敗した。そこで、BBO の down conversion の光は非常に微弱なものであると推察している。

以上の段階まで研究を進めたところで、時間切れとなり年度末を迎えるに至った。

本卒業研究の反省点

このような不本意な結果に終った原因としては、実験に必要な道具を購入する際に時間がかかることを考慮していなかった点にある。光学系の setup を組む際に必要な道具の不備は実験を遅らせる原因となった。その結果、実験道具が届くまで、貴重な時間を浪費せざるを得なかったことは甚だ遺憾である。実験の setup については事前に熟考し綿密に計画を立てた上で、schedule を組むといった基本的な姿勢を怠り、その結果大変密度の低い作業 ・研究しかできなくしてしまった我々の非は大きい。

また、三酸化沃化リチウム結晶を破損させたことで、今回の予備実験は頓挫した。このために、私たちは本実験に先だって得るべき知見を得ることができなかった。この事態に至った原因は、結晶の damage threshold 値を実験中に注意を払わなかったことにある。

レーザー関係には不慣れであり、なおかつ本研究に対する背景の基礎知識が学生 ・教官ともに不足していたことが、予定通りに進まなかった原因であった。

将来の展望

以後、本研究を継続する場合の展望を述べる。我々が次になすべきことは BBO 結晶の down conversion を観察することである。そのためには微弱光の観察をできるだけの道具の準備をしたうえで観察に望まなければならない。これができれば、entangled state の beam が実際に作れることを確認したことになる。これは私たちの実験にとって大きな前進である。

その次の作業として、BBO で得られた 2 つの photon 対を用いて干渉系を組む作業を行なう。これまで私たちは He-Ne laser を用いた実験を通して干渉系を組む上でのテクニックを身につけている。しかしながら、ここまで暗所での微弱光を用いた実験を行なうことはできなかった。テクニック上の問題として微弱光を扱う上で困難を伴うことは予測できる。BBO を用いた干渉計を組むうえで、テクニック上の問題で頓挫する可能性は未だ否定できない。

もしこれらの技術上の問題を克服できたならば、私たちは entangled state に関する知見を実験的に導出することに成功するであろう。

Chapter 5

Acknowledgement

我々の卒業研究にあたり、多くの方々の御協力を賜わってきた。彼らの助力なしで、我々は本論文の上梓は不可能であっただろう。

まずは、我々の実験の発案から監督に至るまで御指導を賜わった素粒子物性研究室舟橋春彦助手に感謝したい。浅学非才なる我々の相談や質問に、常に快くつきあって下さった彼の姿勢は今回の実験の立案において、非常に有意義なものであった。また、本卒業研究を目に見えないところで援助して下さった同研究室延輿秀人助教授、そして、本研究とは直接関係しなかったが場の理論の教科書の輪読において御指導を賜わった素粒子論研究室九後汰一郎教授に感謝したい。

本卒業研究において、我々は京都大学物理学第一教室量子光学研究室より YAG laser および三酸化沃化リチウム結晶を提供して頂いた。我々は、同研究室石川潔助手より YAG laser の使用上における御指導を賜わった。また、三酸化沃化リチウム結晶の down conversion 実験において年末の多忙なる時期にもかかわらず御協力を賜り、様々な助言を頂いた同大学光物性研究室田中耕一郎助教授に感謝したい。

我々の計画した実験が 1999 年 3 月の段階で未完成に終わったことは非常に残念である。以後、我々の時間の許す限り本研究を続行し、意味のある結論を導出するために努力する所存である。

Bibliography

[1] V.G.Dmitriev, G.G.Gurzadyan, D.N.Nikogosyam. *Handbook of nonlinear optical crystals 2nd.* Springer Verlag, 1997.

[2] Amnon Yariv. *Quantum Electronics.* John Wiley and Sons, 1967

[3] William R. Leo *Techniques for nuclear and particle physics experiments : a how-to approach 2nd.* Springer Verlag, 1994

[4] 大津元一　『現代光科学 (1,2)』(朝倉書店,1994)

[5] レーザー学会編　『レーザーハンドブック』(オーム社,1982)

[6] Paul G. Kwiat, Klaus Mattle, Harald Weinfurter, and Anton Zeilinger, Phys.Rev. Lett.**75**, 4337(1995)

[7] Paul G. Kwiat, P.H. Eberhard, A.M.Steinberg, and R.Y. Chiao, Phys. Rev. A**49**, 3209(1994)

[8] A. Einstein, B. Podolsky, and N. Rosen, Phys. Rev. **47** 777(1935)

[9] Daniel M. Greenberger, Michael A. Horne ,and Anton Zeilinger (町田茂訳) パリティ Vol.09 No.03 1994-03 p19

[10] Paul G. Kwiat. *Nonclassical effects from spontaneous parametric down-conversion : adventure in quantum wonderland.* DAI-B 55/07 p2815, Jan. 1995(Kwiat 氏の博士論文)

[11] Dik Bouwmeester, Jian-Wei Pan, Matthew Daniell, Harald Weinfurter, and Anton Zeilinger, Phys. Rev. Lett. **82** 1345(1999)

Appendix A

非線形結晶について

A.1 屈折率楕円体について

ordinary 状態と extraordinary 状態の定義でも述べたように、ordinary 光は principal plane に垂直であり、したがって光学軸とは常に 90 ° の角度をなす。故に、その進行方向と光学軸との角度θには依存しない物理量である。

しかし、extraordinary 光の場合は、角度θに依存する。一軸性結晶に対しては、

$$n_e(\theta) = (\frac{\cos^2\theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2})^{-0.5} \tag{A.1}$$

を満たす。

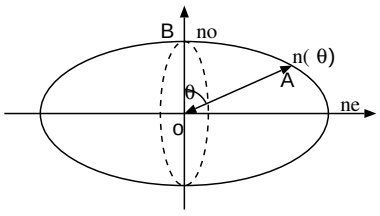


Figure A.1: 一軸性結晶に対する屈折率楕円体の図

以下で、このことの正当性について議論をする。ここでは非等方性結晶について考える。つまり、**E** と **P** の関係が **E** の方向に依存するものとする。それに対して、電束ベクトル **D** の各成分は電界ベクトル **E** の三軸成分の線形重ね合わせで考えることが可能であり、

$$D_i = \sum_{j=1}^{3} \epsilon_{ij} E_j \quad (i = 1, 2, 3) \tag{A.2}$$

をえる。以下、$i = 1, 2, 3$ はそれぞれ x,y,z 成分に対応するものとする。また、この $\{\epsilon_{ij}\}$ は 3×3 の 2 階テンソルであり、これで媒質の誘電率を記述することができる。また、これは$\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji}$を満たすので、これは行列として見た時に、対称行列である。以下この行列を $[\epsilon]$ とよぶ。この行列の固有ベクトルは一次独立なものを 3 つとることが可能である。その 3 つのベクトルを座標軸として設定すると、行列 $[\epsilon]$ を対角化できる。即ち、

$$\begin{pmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_2 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix} \tag{A.3}$$

となる。このような座標系は主軸 (principal axis) と呼ばれる。そして、それぞれの方向に対する屈折率を主屈折率と呼び、次式で定義される。

$$n_i = \sqrt{\frac{\epsilon_i}{\epsilon_0}} \quad (i = 1, 2, 3) \tag{A.4}$$

主屈折率のうち、特に 2 つが等しい結晶 ($n_1 = n_2$として一般性を失わない) を、単軸結晶 (uniaxial crystal) と呼ぶ。また、単軸結晶における z 軸は光学軸 (optical axis) と呼ばれる。

対称な 2 階テンソルの記述のしかたとして、次式で表される楕円体を用いれば良い。即ち、特に主軸で考える時には、

$$\epsilon_1 x_1^2 + \epsilon_2 x_2^2 + \epsilon_3 x_3^2 = 1 \tag{A.5}$$

である。また、$[\epsilon]$ の逆行列に $epsilon_0$ をかけて、

$$[\eta] = \epsilon_0 [\epsilon]^{-1} \tag{A.6}$$

として、$\sum_{i,j=1}^{3} \eta_{ij} x_i x_j = 1$ とすれば、これは屈折率楕円体と呼ばれる。主軸を用いる時、

$$\frac{x_1^2}{n_1^2} + \frac{x_2^2}{n_2^2} + \frac{x_3^2}{n_3^2} = 1 \tag{A.7}$$

を得る。単軸結晶であれば、$n_1 = n_2$より、これは回転楕円体となる。

以下では、上記のような非等方性結晶の中での光の伝播を考える。単位ベクトル $\mathbf{u}$ で表される任意の方向に伝播する平面波を考える。一般に、光学素子を透過しても偏光状態が変わらない時に、その偏光状態は「基準モード (normal mode)」と呼ぶ。その基準モードの偏光方向および屈折率は、図 (A.1) を用いて次の手順に従うことで求めることが可能である。

- 屈折率楕円体の原点を通り、ベクトル $\mathbf{u}$ と垂直方向に平面を描く。この平面と楕円体の交線を屈折率楕円 (index ellipse) と呼ぶ。
- 屈折率楕円の長半径、短半径を 2 つの基準モードの屈折率とする。
- さらに、屈折率楕円体の長軸、短軸の方向を、2 つの基準モードの電束密度ベクトル $\mathbf{D}_a$、$\mathbf{D}_b$の方向である。これらの方向は互いに直交している。
- 電場ベクトル $\mathbf{E}_a$、$\mathbf{E}_b$は式 (A.3) によって求めることが可能である。

以下、上記の主張の正当性を証明する。まず、Maxwell 方程式

$$\nabla \cdot [\epsilon]\mathbf{E} = \rho \tag{A.8}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{d}{dt}\mathbf{B} \tag{A.9}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \tag{A.10}$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} + \mu_0 [\epsilon]\mathbf{E} \tag{A.11}$$

から出発する。これらを用いて変形すれば、とくに電流 $\mathbf{j} = 0$ であるとして、

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \frac{d^2}{dt^2} \mu_0 [\epsilon]\mathbf{E} \tag{A.12}$$

を得る。このとき平面波の時間と空間に依存する部分が $\exp(i(\omega t - \mathbf{k\dot{r}}))$ に比例するとする。そうすれば、

$$\mathbf{k} \times (\mathbf{k} \times \mathbf{E}) + \omega^2 \mu_0 [\epsilon]\mathbf{E} = 0 \tag{A.13}$$

を得る。これは各成分をあらわに表示することで、

$$\begin{pmatrix} n_1^2k_0^2-k_2^2-k_3^2 & k_1k_2 & k_1k_3 \\ k_1k_2 & n_2^2k_0^2-k_1^2-k_3^2 & k_2k_3 \\ k_1k_3 & k_2k_3 & n_3^2k_0^2-k_1^2-k_2^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \tag{A.14}$$

を得る。**E** として、zero でない解を持つためには上記の行列の行列式が 0 でなければならない。これを一軸結晶に関して解けばよく、そうすれば$\omega = \omega(k)$ の分散関係を得る。これは (k_1, k_2, k_3) で表される空間内の曲面を表す。これを k 表面と呼ぶ。$k^2 = k_1^2 + k_2^2 + k_3^2$とすれば、k 表面とベクトル $(\mathbf{u})$ との交点における波数は

$$\sum_{j=1}^{3} \frac{u_j^2 k^2}{k^2 - n_j^2 k_0^2} = 1 \tag{A.15}$$

を得る。この方程式の正の 2 つの解 k_aと k_bが意味を持つ。即ち、屈折率は

$$n_a = \frac{k_a}{k_0}, \quad n_b = \frac{k_b}{k_0} \tag{A.16}$$

を得る。以上の計算は屈折率楕円体を用いて幾何学的に行なうことが可能である。ここで、式 (A.13) を **D** について解く。$\mathbf{E} = [\epsilon]^{-1}\mathbf{D}$ なので、$[\eta] = \epsilon_0[\epsilon]^{-1}$, $\mathbf{k} = k\mathbf{u}$,$n = \frac{k}{k_0}$,$k_0^2 = \omega^2\mu_0\epsilon_0$を用いて、

$$-\mathbf{u} \times (\mathbf{u} \times [\eta]\mathbf{D}) = \frac{1}{n^2}\mathbf{D} \tag{A.17}$$

である。これに 2 つの基準モードの結晶の屈折率 n_a、n_bを上式に代入することで、2 つの基準モードの bfDを求められる。さて、演算 $\mathbf{u} \times \mathbf{u}\times$は、単位ベクトル **u** をベクトル積の形で 2 回かけることを表すが、これは図形的には **u** ベクトルに垂直な平面に射影をとることを意味する。その射影操作を表す演算子を P_uと表せば、式

$$P_u[\eta]\mathbf{D} = \frac{1}{n^2}\mathbf{D} \tag{A.18}$$

で表される。これは演算子 $P_u[\eta]$ の固有方程式である。演算子 $[\eta]$ は屈折率楕円体により表される。よって、式 (A.18) の固有値方程式を解くことは、屈折率楕円体とベクトル **u** に垂直な綿との交線によって形成される楕円の主軸を見つけることと同等である。よって、上記の手続きの正当性が立証された。

ordinary 光については、常に主軸とは垂直な向きに伝播をしているので、屈折率は n_oである。一方 extraordinary 光は、屈折率は、この楕円体における、点 OA の距離に対応している。よって、extraordinary 光に対しては、式 (A.1) が成立する。(証明終)

A.2 index matching condition について

ここでは、非線形結晶の down conversion における効率を最大にするためには index matching 条件を満たしていなければいけないことを立証する。結晶は 2 次の非線形結晶であるとする。この場合、分極ベクトル **P** は、E の 2 次式で表されるので、

$$P_i = \epsilon_0\chi_L\mathbf{E} + d_{ijk}E_jE_k \tag{A.19}$$

で記述できる。$\{d_{ijk}\}$ は感受率テンソル (susceptibity tensor) と呼ばれるものである。また、上式で E_jと E_kを交換しても良いので、当然 $d_{ijk} = d_{ikj}$が成立する。以下、添字を

$$xx = 1, yy = 2, zz = 3, yz = zy = 4, zx = xz = 5, xy = yx = 6 \tag{A.20}$$

であるとすれば、これは次のような行列で表されるはずである。

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_yE_z \\ 2E_zE_x \\ 2E_xE_y \end{pmatrix} \tag{A.21}$$

で表される。

非線形結晶との相互作用を論じるに当たり、Maxwell 方程式から議論を出発する。この系では真電荷は存在しないものとするので、

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0 \tag{A.22}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \tag{A.23}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{d}{dt}(\mu_0 \mathbf{H}) \tag{A.24}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{j} + \frac{d}{dt}\epsilon_0 \mathbf{E}(1+\chi_L) + \mathbf{P}_{NL} \tag{A.25}$$

である。ここで、$(P_{NL})_i = d_{ijk}E_j E_k$ である。よって、σを電気伝導率、$\epsilon = \epsilon_0(1+\chi_L)$ であるとすれば、Maxwell 方程式より次式を得る。

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu_0 \sigma \frac{d\mathbf{E}}{dt} + \mu_0 \epsilon \frac{d^2\mathbf{E}}{dt^2} + \mu_0 \frac{d^2 \mathbf{P}_{NL}}{dt^2} \tag{A.26}$$

が成立する。

ここで、問題を簡単化するために 1 次元 (z 成分のみ) で考える。それに対する電場は次式で表されるとする。

$$E_i^{(\omega_1)}(z,t) = \frac{1}{2}[E_{1i}(z)\exp(i(\omega_1 t - k_1 z)) + c.c] \tag{A.27}$$

$$E_k^{(\omega_2)}(z,t) = \frac{1}{2}[E_{2k}(z)\exp(i(\omega_2 t - k_2 z)) + c.c] \tag{A.28}$$

$$E_j^{(\omega_3)}(z,t) = \frac{1}{2}[E_{3j}(z)\exp(i(\omega_3 t - k_3 z)) + c.c] \tag{A.29}$$

i,j,k は Cartesian 座標であり、x,y のいずれかをとる。ここで、ω_3を pump 光、ω_1を idler 光、ω_2を signal 光の振動数であるとする。また、c.c. は complex conjugate(複素共役) の略とする。こうすれば、まず分極ベクトルは次のように表される。

$$[P_{NL}^{(\omega_1)}(z,t)]_i = \frac{d_{ijk}}{2}E_{3j}(z)E_{2k}^*(z)\exp(i((\omega_3-\omega_2)t - (k_3-k_2)z)) + c.c. \tag{A.30}$$

を得る。式 (A.27) ~ (A.29) を式 (A.26) に代入する。この計算に当たり、Eは z に対する変動が十分小さいので$\frac{dE}{dz}k_i \gg \frac{d^2E}{dz^2}$を満たすと仮定する。そうすれば、$\omega_i \mu_0 \epsilon = k_i^2$を適用して、次式を得る。

$$\frac{dE_{1i}}{dz} = -\frac{\omega_2}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}E_{1i} - \frac{i\omega_1}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}d_{ijk}E_{3j}E_{2k}^*\exp(-i(k_3-k_2-k_1)z) \tag{A.31}$$

$$\frac{dE_{2k}^*}{dz} = -\frac{\omega_3}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}E_{2k}^* + \frac{i\omega_2}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}d_{kij}E_{1i}E_{3j}^*\exp(i(k_3-k_2-k_1)z) \tag{A.32}$$

$$\frac{dE_{3j}}{dz} = -\frac{\omega_3}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}E_{3j} - \frac{i\omega_3}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}d_{jik}E_{1i}E_{2k}\exp(i(k_3-k_2-k_1)z) \tag{A.33}$$

以下、この方程式を用いて、特に SHG の現象について理解する。このとき、$\omega_1+\omega_2$の振動数をもつ 2 つの photon を入射して、振動数ω_3をもったビームを放出させる。 $\omega_1 = \omega_2$、$\omega_3 = 2\omega_1$が成立する。さらに、入射ビームの強度は常に保たれていると考えて良いので、$\frac{dE_{1j}}{dz} = 0$ であると近似しても良い。ここで、

$$\Delta k = k_3^{(j)} - k_1^{(i)} - k_1^{(j)} \tag{A.34}$$

であるとする。また、物質が透明であるとすれば、電気伝導率は 0 であるとみなすことができるので、

$$\frac{dE_{3i}}{dz} = -\frac{i\omega_3}{2}\sqrt{\frac{\omega_0}{\epsilon}}d_{jik}E_{1i}E_{1k}\exp(i\Delta k z) \tag{A.35}$$

である。これを解けば、$E_{3j}(0) = 0$ の条件を課すことで、

$$E_{3j}(L) = -\frac{i\omega_3}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}d_{jik}E_{1i}E_{1k}\frac{\exp(i\Delta k L)-1}{i\Delta k} \tag{A.36}$$

をえる。そうすれば、電場のエネルギーフラックスの放出は、θを j 方向と伝播の方向のなす角として、単位面積あたり

$$P^{(2\omega)} = \frac{1}{2}\sqrt{\mu_0}\epsilon \sin^2\theta\omega_3^2 d_{jik}^2 E_{1i}^2 E_{1k}^2 L^2 \frac{\sin^2(\Delta kL/2)}{(\Delta kL/2)^2} \tag{A.37}$$

を得る。このことは、Δkについてみれば、SHG によってできるエネルギーは Airy 関数的に変化していることが分かる。ここでは特別な場合しか議論をしなかった。一般にも down conversion 現象を最も効率良く起こすためには index matching 条件

$$k_3^{(j)} = k_1^{(i)} + k_1^{(k)} \tag{A.38}$$

が生じていないといけないことが分かる。(証明終)

A.3 down conversion における ring のでき方の計算方法

以下は、Paul G. Kwiat 氏が fax でおくって下さった御自身の博士論文の appendix のページを基にした議論である。まず、index matching condition、つまり pump → signal+idler において波数ベクトルが保存されていることが down

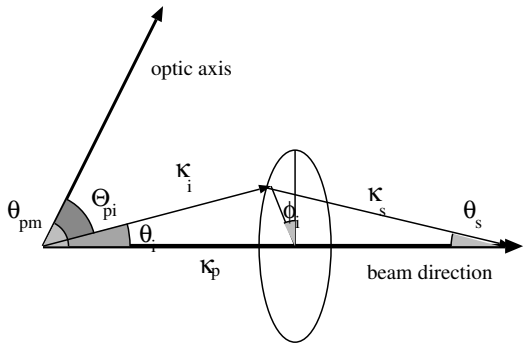


Figure A.2: down conversion における位相整合条件の schematic

conversion の出力を最大にする条件となる (前節参照)。私たちの実験では、pump 光としては YAG laser の 3 倍波を用いたので、$\lambda_p = 355nm$ である、また、以下での屈折率 n_o, n_eの値は、結晶の Sellmeiner 方程式によって得られるものとする。

A.3.1 type I についての考察

縦方向と横方向を考慮することにより、

$$k_p = k_s\cos\theta_s + k_i\cos\theta_i,\ k_s\sin\theta_s + k_i\sin\theta_i = 0 \tag{A.39}$$

を得る。三酸化沃化リチウムは type I の down conversion を起こす、つまり down conversion の光子の偏極は共通であり、e → o+o となる。そこで、屈折率と振動数の関係式は、以下のようになる。

$$k_p = \omega_p\left(\frac{\sin^2\theta_{pm}}{n_e^2(\omega_p)} + \frac{\cos^2\theta_{pm}}{n_o^2(\omega_p)}\right)^{-1/2},\quad k_s = \omega_s n_o(\omega_s),\quad k_i = \omega_i n_o(\omega_i) \tag{A.40}$$

結晶の中でのエネルギー保存則より、$\omega_s = \omega_p - \omega_i$が成立する。よって、まず、横方向、縦方向の index matching condition はそれぞれ、

$$\omega_p\left(\frac{\sin^2\theta_{pm}}{n_e^2(\omega_p)} + \frac{\cos^2\theta_{pm}}{n_o^2(\omega_p)}\right)^{-1/2} = (\omega_p-\omega_i)n_o(\omega_p-\omega_i)\cos\theta_s + \omega_i n_o(\omega_i)\cos\theta_i \tag{A.41}$$

$$(\omega_p-\omega_i)n_o(\omega_p-\omega_i)\sin\theta_s = \omega_i n_o(\omega_i)\sin\theta_i \tag{A.42}$$

を得る。これを用いて、とりあえず θ_sを消去すると、結晶の内部においては、以下の関係式で idler 光の広がりを得ることができる。

$$\theta_i = \arccos\left(\frac{\omega_p^2\left(\frac{\sin^2\theta_{pm}}{n_e^2(\omega_p)} + \frac{\cos^2\theta_{pm}}{n_o^2(\omega_p)}\right)^{-1} + \omega_i^2 n_o^2(\omega_i) - (\omega_p - \omega_i)^2 n_o^2(\omega_p - \omega_i)}{2\omega_p\omega_i n_o(\omega_i)\left(\frac{\sin^2\theta_{pm}}{n_e^2(\omega_p)} + \frac{\cos^2\theta_{pm}}{n_o^2(\omega_p)}\right)^{-1/2}}\right) \tag{A.43}$$

この値は、結晶の内部での idler 光の広がりの角度である。私たちが ring として見えるのは、結晶の外である。よって、屈折角に対しては snell の法則を適用する必要がある。そうすれば、θ_i'を、結晶の外での広がりの角度として、

$$\sin\theta_i' = n_o(\omega_i)\sin\theta_i \tag{A.44}$$

を得る 以下のグラフは、結晶の外で idler 光のなす角と、idler 光の波長との関係をグラフにしたものである。

この中でも、とくに$\omega_s = \omega_i$、つまり放出される 2 つの photon のエネルギーが等しい場合、signal 光と idler 光の photon の波長はいずれも 710nm となる。上のグラフで言えば、$\lambda_i = 0.710_{\mu m}$のときに当たり、$\theta_{pm} = 51.45°$ 以上になって、始めてこの現象が見られる。

A.3.2 type II の結晶について

type II の結晶についても同様の考察を加えることにより、ring のでき具合についての評価をすることが可能となる。今度は type II なので、e → o+e の偏光を仮定する。そうすれば、index matching condition(A.39) はそのまま成立するものの、波数ベクトルは、

$$k_p = \omega_p n_e(\omega_p, \theta_{pm}), \quad k_s = \omega_s n_o(\omega_s), \quad k_i = \omega_i n_e(\omega_i, \Theta_i) \tag{A.45}$$

となる。また、上の図の幾何学的な条件より、

$$\cos\Theta_i = \cos\theta_p\cos\theta_i + \sin\theta_p\sin\theta_i\cos\phi_i \tag{A.46}$$

をえる。これらより、式 (A.39) を用いると、

$$k_{p,\theta_{pm}}^2 - k_s^2 - 2k_{p,\theta_{pm}}k_{i,\Theta_i}\cos\theta_i + k_{i,\Theta_i}^2 = 0 \tag{A.47}$$

をえる。そこで、式 (A.47) と式 (A.46) を連立させて解けば、角度をプロットしていくことができる。手順としては、

- まず、$\theta_s = \theta_i = 0$ であるとして、second harmonic condition、つまり$\omega_s = \omega_i$を仮定して、θ_{pm}の値を求める。このとき、式 (A.46) は、自明な式$\Theta_i = \theta_{pm}$に落ちるので、

$$\frac{4}{\frac{\sin^2\theta_{pm}}{n_e^2(2\omega)} + \frac{\cos^2\theta_{pm}}{n_o^2(2\omega)}} + \frac{1}{\frac{\sin^2\theta_{pm}}{n_e^2(\omega)} + \frac{\cos^2\theta_{pm}}{n_o^2(\omega)}} - \frac{4}{\sqrt{\left(\frac{\sin^2\theta_{pm}}{n_e^2(2\omega)} + \frac{\cos^2\theta_{pm}}{n_o^2(2\omega)}\right)\left(\frac{\sin^2\theta_{pm}}{n_e^2(\omega)} + \frac{\cos^2\theta_{pm}}{n_o^2(\omega)}\right)}} = n_0^2(\omega) \tag{A.48}$$

  を数値的に解けば良い。

- 次に、適当にϕ_iに値を代入していって、上のプロセスでθ_{pm}の値を知った上で、式 (A.46) を式 (A.47) に代入して、数値的にθ_iを求めれば良い。これができれば、式 (A.39) より、θ_sの値は明らかである。これらの情報から、光の出る点を plot していけば良い。

- 私たちが見るリングは、結晶の外に対してである。そこで、同様にして結晶の中から外へ出る時の屈折を考慮する必要がある。これについては、Snell の法則を用いて、

$$\sin\theta_i' = n_e(\omega_i, \Theta_i)\sin\theta_i, \quad \sin\theta_s' = n_o(\omega_s)\sin\theta_s \tag{A.49}$$

  を用いれば良い。

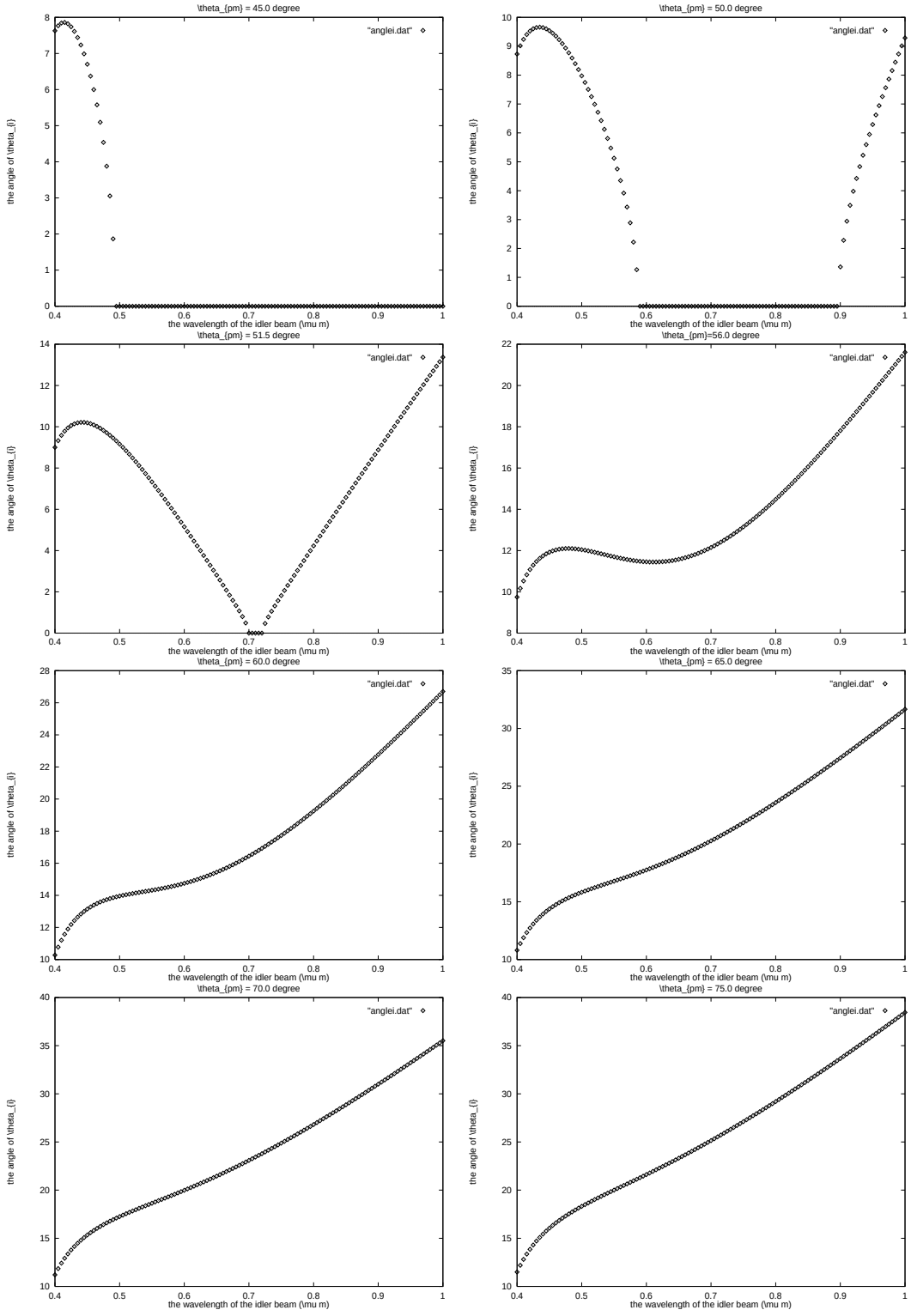


Figure A.3: down conversion における、idler 光波長と、idler 光の角度の関係。光学軸と pump 光のなす角を左上 45.0 °、右上 50.0 °、左中上 51.45 °、右中上 56.0 °、左中下 60.0 °、右中下 65.0 °、左下 70.0 °、右下 75.0 ° とする。緑のリングと赤のリングがどちらが外側に出るかは、56.0 ° を境にかわる。つまり 56.0 ° より小さい角度では緑の方が外側に出るが、56.0 ° より大きい角度では赤の方が外側に出る。

角度ϕ °	0	10	20	30	40	50	60	70	80	90
角度θ'_i=θ'_s	8.390	8.296	8.018	7.579	7.010	6.350	5.643	4.932	4.260	3.657
角度ϕ °	100	110	120	130	140	150	160	170	180	***
角度θ'_i=θ'_s	3.143	2.715	2.396	2.145	1.959	1.825	1.736	1.685	1.668	***

Table A.1: BBO による 355nm → 710nm+710nm における、分散の角度

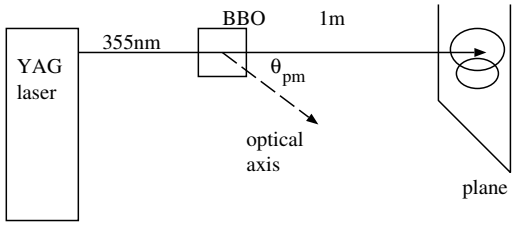


Figure A.4: 以下の虹のでき具合の図は、上図に示されるような setup のもとで実験を行なった時の screen 上の像であるとする。BBO と screen は 1m 離れているとする。

そうすれば、結果として BBO 結晶の down conversion による様相をシミュレートできる。この方針に則って BBO における波長 710nm の光に対して角度を見積もれば図 (A.2) の角度ϕを変化させると、結晶の外に置ける分散角θ'_iとθ'_sは次のような値を得た。SHG であれば、θ'_iとθ'_sは同じ値を持つ。

その他の状況に対しても、down-conversion された光がどのように生じるかを図示することで、本実験に先だって down conversion 現象に対する知見を得る試みを行なった。手段としては、mathematica を用いた数値シミュレーションを用いた。以下で図示するのは、BBO 結晶に 355nm の YAG レーザーを入射させて、結晶から 1m 離れたところにおいた平面に射影した虹模様である。

このとき、以下の条件の下でそれぞれ数値シミュレーションを行なった。θ_{pm}は結晶の光学軸と、レーザーの進行方向のなす角を表す。ここでの波長は、extraordinary 光のものである。対応する ordinary 光の波長は$\frac{355\lambda_e}{lambda_e-355}_{(nm)}$である。それぞれの状態に対する図は、グラフのファイルの一つ一つの容量が大き過ぎて、別紙 (1999/03/15 高須発表分)

θ_{pm}	532nm	600nm	710nm	869nm	1064nm
47.7 °	—	—	(A-3)	(A-4)	(A-5)
48 °	—	—	(B-3)	(B-4)	(B-5)
48.6 °	—	—	(C-3)	(C-4)	(C-5)
48.8 °	—	—	(D-3)	(D-4)	(D-5)
49.62 °	—	—	(E-3)	(E-4)	(E-5)
55 °	(F-1)	(F-2)	(F-3)	(F-4)	(F-5)
60 °	(G-1)	(G-2)	(G-3)	(G-4)	(G-5)
65 °	(H-1)	(H-2)	(H-3)	(H-4)	(H-5)
70 °	(I-1)	(I-2)	(I-3)	(I-4)	(I-5)

に記載せざるを得ない。 これらの図を実際に書いてみることで、BBO による type II の down conversion に関して、以下の事柄を知ることができた。

- まず、θ_{pm}が 49.62 ° より小さい領域では、type II の down conversion で ring はほとんど生じない。type II の計算でθ_iを求める方程式で、解を持たなくなるからである。49.62 ° よりも小さい角度に対する振舞いを詳しく調べると、以下の事柄が分かった。

- 角度θ_{pm}=48.6° で、ordinari cone と extraordinary cone はたがいに接する。そして、それよりθ_{pm}を小さくすると、2 つの cone は離れてしまう。よって、2 つの円錐の重なりはあり得なく、私たちの実験で望むような entangled state を得ることはできない。
- 角度θ_{pm}=47.66° を境に、710nm の波長に対して全く虹模様が見られなくなる。

このように、ring が全く見えなくなるということは、計算の上では式 (A.47) が解θ_iを持たなくなった状況であると理解することができる。

- θ_{pm}を 49.62° より大きくすると、以下の 2 つの特徴が見られた。
  - 710nm から離れた波長で、ring が生じる波長の範囲が広くなった。θ_{pm}=55° では 600nm 程度まで、θ_{pm}=60° 以上では、532nm の ring んまで広がっている。
  - 同じ波長であれば、θ_{pm}を大きくすればするほど、photon の広がりの角度θ_iは大きくなっている。つまり、ここで示した射影図では ring の半径がますます大きくなっている。そして、生じる ring の円 (または楕円) はほぼ同心円になることが数値計算より推測できる。
  - θ_{pm}を大きくして、idler(signal) の波長を 710nm から遠ざけると、同じ波長の idler 光と signal 光による ring が重なるのをやめた。代わりに、idler 光の ring が、signal 光の ring の中に入ってしまう現象が見られると期待できる。
- 710nm より小さい波長領域では、idler 光 (上側) の方が、signal 光 (下側) よりも小さい ring となって生じている。
- 波長$\lambda_s = \frac{\lambda_p \lambda_i}{\lambda_i - \lambda_p}$の down conversion は、波長$\lambda_i$のものとは、x 軸対称に出るとは限らない。また、波長が 710nm から離れるにつれて、idler と signal の大きさの差は広がる。たとえ、355nm → 710nm+710nm であっても x 軸対称にはならないが、これは屈折率が idler 光と signal 光で異なっており、結晶の外に出る時の屈折が効いていると考えられる。

数値シミュレーションから、私たちは以下の BBO の down conversion に対する予測を得ることができる。実際の実験で変化させてみたい parameter は、レーザービームと結晶の光学軸とのなす角である。

また、このシミュレーションより、BBO の Sellmeiner 方程式の値によって、結果が大きく影響されることが分かった。Dmitriev の databook によれば、第一版と第二版とでは Sellmeiner 方程式の値が微妙にことなる。Kwiat 氏は第一版の情報をもとにし、私たちは第二版の値をもとにして計算した。Ar-ion laser 351nm の 702nm の光に対するθ_{pm}=49.62° に関しては、Kwiat 氏が 2 つの cone の重なりが 6.0° 離れていると述べた (これは私も実際に確かめた) が、第二版の Sellmeiner 方程式では 4.4° という値を得ている。

しかしながら、この実験において温度による依存性はほとんどないと考えられる。Dmitriev(2nd ed.) によれば、

$$\frac{dn_o}{dT} = -1.66 \times 10^{-5} K^{-1} \tag{A.50}$$

$$\frac{dn_e}{dT} = -0.93 \times 10^{-5} K^{-1} \tag{A.51}$$

であり、温度が 10° C 違っても、屈折率の式の小数点第 4 位に影響を及ぼすだけのことである。実際、計算をしてもこの程度の誤差に対してはほとんど影響はなかった。

さらに分かったことは、波長の依存性が大きいことである。例えば、710nm における idler 光と signal 光の重なりの角度を比較してみよう。計算は第二版の新しい方の Sellmeiner 方程式を用いる。結晶から見て、2 つの円錐の交点のなす角は、710nm のθ_{pm}=49.62° の状況に対しては、

- 355nm(YAG laser) に対しては 7.3° である。
- 351nm(Ar ion laser) に対しては 4.4° である。

しかしながら、波長の揺らぎの効果は私たちの実験では考慮するに及ばない。現実には私たちの YAG laser の波長の揺らぎは非常に微小である。揺らぎの要素としては以下のものが考えられる。

- 実験室の温度の変化に伴う、cavity の微小な膨張。
- レーザーの振動。特にレーザーを置いている台の振動に起因するもの。

現実には普通に YAG laser を使用している限り、レーザーの波長の揺らぎは$\pm 0.01nm$ 程度でしか生じない。よって、波長の揺らぎの効果は私たちの BBO の down conversion の実験において、分散角θ_iに関して中心値の$\frac{1}{1000}$程度でしか誤差を生じないことが mathematica の計算よりわかる。この効果は実験の setup においてほとんど無視しても良い要素である。