強いコヒーレント外場によって駆動された量子振子の発光過程に対する複素スペクトル解析

片山舞人 [1]、田中智 [1,2]、神吉一樹 [1,2]
大阪公立大学大学院理学研究科物理学専攻 [1]、南部陽一郎物理学研究所 [2]

Photon emission from a driven harmonic oscillator by a strong coherent field with complex spectral analysis

Maito Katayama[1], Satoshi Tanaka[1,2], Kazuki Kanki[1,2]
Department of Physics[1], NITEP[2], Osaka Metropolitan University

We have investigated time-frequency resolved photon emission of an oscillator driven by a monochromatic coherent external field in terms of the complex spectral analysis of the Liouvillian. The incoherent luminescence and coherent scattering components are decomposed into the contribution from the resonance mode in the rigged Hilbert space and that from the continuum modes. Time resolved analysis clearly reveals each contribution.

1　はじめに

励起原子からの自発発光は、電磁場の量子揺らぎおよび励起原子エネルギーと輻射場エネルギーの共鳴特異性による不可逆散逸過程である。古くはWeisskopf-Wigner によって、原子系と輻射場のハイゼンベルグ方程式から寿命幅を持つローレンツ型の発光スペクトルが得られることが示された [1]。一方、豊沢らは、共鳴２次発光過程に対し、入射から発光に至るまでを一連のコヒーレントな量子過程として扱い、入射光と発光のエネルギーが相関する散乱成分と、相関が切れた蛍光成分とが共存することを明らかにした [2,3]。

近年、強いコヒーレント電場駆動による高次高調波発生など、従来の摂動論の理解を超えた新しい発光過程の研究が理論・実験ともに急速に進んでいる [4]。このようなコヒーレント強電磁場下で、コヒーレントな散乱過程とインコヒーレントな自発放射過程がどのように共存するか、駆動場・電子系・発光光子の量子相関がどのように形成されるのかなど、多くの興味深い新しい問題が現れている。これまでの多くの理論解析では、強い駆動場における電子運動については量子ダイナミクスとして扱う一方、放射場に関しては古典的に扱われていたが [5]、電子系の量子運動と放射光子との量子的相関を明らかにするためには、全系を一体の量子系として取り扱うことが必要である。

本研究では、強いコヒーレント外場で駆動される振動子からの光子放射過程を、複素スペクトル解析を用いて明らかにする。ここでは、駆動場・着目振動子系・放射場からなる全系を一つの量子系として考え、その系のハイゼンベルグ方程式の時間発展を司る生成子であるリウビリアンの複素固有モードを求め、コヒーレント強電磁場下での光子放出の素過程を解明する。特に、複素固有値を持つ共鳴モードと連続モードが、それぞれインコヒーレントな自発蛍光放射、コヒーレントな散乱過程の起因となっていることを明らかにする。

2　モデルと方法

本研究では、時間に依存した強いコヒーレント外場によって、振動子 ($\hat{a}$ および $\hat{a}^\dagger$) が励起駆動されるとともに、１次元フォトニックバンド (PhB) で表される自由輻射場 ($\hat{b}_k$ および $\hat{b}_k^\dagger$) へ光子放射が起こる状況を考える。$\hat{a}, \hat{b}_k$ ともにボソンである。系のハミルトニアンは以下のように表される：

$$\hat{H}(t) = \omega_0 \hat{a}^\dagger \hat{a} + f_0 \cos(\Omega t)(\hat{a}^\dagger + \hat{a}) + \int dk \omega_k \hat{b}_k^\dagger \hat{b}_k + \int dk g_k (\hat{a}^\dagger \hat{b}_k + \hat{a} \hat{b}_k^\dagger). \tag{1}$$

ここで、$\hbar = 1$ とし、ω_0、f_0、Ω は、それぞれ振動子の無摂動固有振動数、駆動外場振幅、外部振動数を表す。自由輻射場としては分散が $\omega_k = \omega_{\rm B} - B\cos ka$($B$ は PhB のバンド幅で $B = 1$、a は PhB の格子定数で $a = 1$ とおく) で表される半無限１次元 PhB を考える。g_k は振動子と PhB 光子との結合定数である。ハイゼンベルグ演算子の組みを $|\hat{\Phi}(t)\rangle \equiv (\hat{a}(t), \{\hat{b}_k(t)\}, \hat{a}^\dagger(t), \{\hat{b}_k^\dagger(t)\})^T$ とベクトル表記する。ここで、$\{\hat{b}_k(t)\}$ は全ての k モードを表すが、以下では簡単のため $\hat{b}_k(t)$ あるいは $\hat{b}_k^\dagger(t)$ と代表して記す。

ハイゼンベルグ方程式は、

$$i\partial_t |\hat{\Phi}(t)\rangle = \mathcal{L}|\hat{\Phi}(t)\rangle + |F(t)\rangle \tag{2}$$

と書ける。$\mathcal{L}$ は、ハミルトニアンとの交換関係で定義されるリウビル演算子で、行列形式を用いて以下のように表せる：

$$\mathcal{L} = \left(\begin{array}{cc|cc} \omega_0 & g_k & 0 & 0 \\ g_k & \omega_k & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & -\omega_0 & -g_k \\ 0 & 0 & -g_k & -\omega_k \end{array}\right) . \tag{3}$$

式 (2) の第 2 項は外場による駆動を表し $|F(t)\rangle = f_0 \cos(\Omega t + \delta)(1, 0, -1, 0)^T$ である。以下、式 (3) がブロック対角化されていることに注意し、ブロックリウビリアンの複素固有値問題を解くことにより、ハイゼンベルグ方程式の解を求める。

3 複素固有値問題

式 (3) の左上のブロックリウビリアンを $\mathcal{L}_\mathrm{B}$ とする：

$$\mathcal{L}_\mathrm{B} \equiv \begin{pmatrix} \omega_0 & g_k \\ g_k & \omega_k \end{pmatrix} . \tag{4}$$

よって、式 (3) の全系リウビリアン $\mathcal{L}$ は、$\mathcal{L} = \mathrm{diag}(\mathcal{L}_\mathrm{B}, -\mathcal{L}_\mathrm{B})$ となる。熱力学極限においては PhB のモード k が連続変数となり、ω_k が連続スペクトルとなるため、振動子 ω_0 との間にエネルギー共鳴特異性が生じる。この特異性により複素固有値が現れることを考慮し、以下の複素固有値問題を考える [6,7]：

$$\mathcal{L}_\mathrm{B}|\phi_j\rangle = z_j|\phi_j\rangle \,,\; \langle\tilde{\phi}_j|\mathcal{L}_\mathrm{B} = z_j\langle\tilde{\phi}_j| \;\; (j = a, \{k\}) \,. \tag{5}$$

リウビリアンは非エルミートであり、固有値 z が複素数をとる場合には、$|\phi\rangle$、$\langle\tilde{\phi}|$ は, それぞれ Rigged Hilbert Space に属する右および左固有モードとなることに注意する [8]。

式 (5) の複素固有値問題において PhB との相互作用の効果を、Brillouin-Wigner-Feshbach の射影演算子法を用いて自己エネルギーとして繰り込み、着目モードに対する有効リウビリアンを得る [7]。よく知られているように自己エネルギーを含めた有効リウビリアンの一般形は次のようになる：

$$\mathcal{L}_\mathrm{eff}(z) = \mathcal{PLP} + \mathcal{PLQ}\frac{1}{z - \mathcal{QLQ}}\mathcal{QLP} . , \tag{6}$$

ここで、$\mathcal{P}$ は、着目モードに対する射影演算子で、$\mathcal{Q}$ は、$\mathcal{P}$ に対する相補的な射影演算子である。有効リウビリアン $\mathcal{L}_\mathrm{eff}$ は、着目モードに対する有限次元の非エルミート作用素であるが、重要な点は、相互作用の効果が繰り込まれたため、有効演算子自身が全系の固有値 z に依存する非線形性を有することである。本研究では、この非線形性を考慮し、複素固有値問題を厳密に解く。

振動子を着目モードとし射影演算子法を適用すると、$\mathcal{L}_\mathrm{B}$ に対する固有モードとして共鳴モード $|\phi_a\rangle$ ($\langle\tilde{\phi}_a|$) を得る。複素固有値 z_a は、特性方程式

$$\eta^+(z) := z - \omega_0 - \Sigma^+(z) = 0 \tag{7}$$

の解として得られ、共鳴固有モードは、

$$|\phi_a\rangle = \mathcal{N}_a^{1/2}\left(|\varphi_a\rangle + \sum_k \frac{g_k}{(z-\omega_k)^+_{z=z_a}}|\varphi_k\rangle\right) . \tag{8}$$

と求められる。ここで、$|\varphi_a\rangle = (1, 0)^T$, $|\varphi_k\rangle = (0, 1_k, \{0\}')^T$ で $\hat{a}$, $\hat{b}_k$ に対応する基底ベクトルである。式 (7) 中の $\Sigma(z)$ は、$\Sigma(z) := \sum_k g_k^2/(z - \omega_k)$ で定義される振動子と PhB との相互作用による自己エネルギーである。連続極限において、$\Sigma(z)$ は z の複素平面内で 2 価関数となるが、振動子のエネルギー散逸を表すように、上半面で解析的な分岐を選ぶ。式 (8) 中で $\mathcal{N}_a^{1/2}$ は規格化因子で、

$$\mathcal{N}_a := \left(1 - \frac{d}{dz}\Sigma(z)\Big|_{z=z_a}\right)^{-1} \tag{9}$$

で与えられ、また、第 2 項の $\sum_k$ 中の $+$ 符号は、上半面から解析接続することを意味する [6,7]。以上のようにして、離散的な複素固有値 z_a を持つ共鳴モードを得た。同様にして、実固有値 ω_k を持つ連続的固有モード $|\phi_k\rangle$、$\langle\tilde{\phi}_k|$ を得た。これらの右、左固有モードを用いてリウビリアン $\mathcal{L}_\mathrm{B}$ を対角化する変換行列を

$$(\tilde{\Phi})_{j,l} := \langle\tilde{\phi}_j|\varphi_l\rangle \,,\; (\Phi)_{l,j} := \langle\tilde{\varphi}_l|\Phi_j\rangle \;\; (j, l = a, k) \,, \tag{10}$$

と定義すれば、

$$\tilde{\Phi}\mathcal{L}_\mathrm{B}\Phi = Z \tag{11}$$

となる。ここで、Z は $Z := \mathrm{diag}(z_a, \{z_k\})$ の複素固有値対角行列である。

ハイゼンベルグ方程式 (2) の左から $(\tilde{\Phi})_{j,l}$ をかけることにより、全てのモードが独立した非斉次 1 階微分方程式に帰着させることができる。これにより、ハイゼンベルグ方程式の解を

$$\begin{pmatrix} \hat{a}(t) \\ \hat{b}_k(t) \end{pmatrix} = \Phi \begin{pmatrix} e^{-iz_a t} & 0 \\ 0 & e^{-i\omega_k t} \end{pmatrix} \tilde{\Phi} \begin{pmatrix} \hat{a} \\ \hat{b}_k \end{pmatrix} + \Phi \begin{pmatrix} \frac{e^{-iz_a t} - e^{-i\Omega t}}{z_a - \Omega} & 0 \\ 0 & \frac{e^{-i\omega_k t} - e^{-i\Omega t}}{\omega_k - \Omega} \end{pmatrix} \tilde{\Phi} \begin{pmatrix} f_0 \\ 0 \end{pmatrix} \tag{12}$$

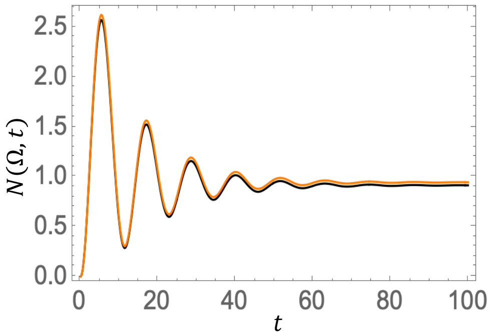

図 1: $N(\Omega, t)$ の時間変化 (黒)。パラメータは $\omega_0 = 10.5, \Omega = 10.0, g = 0.2, f_0 = 1$ である。共鳴モード成分を橙で示した。

として得た。生成演算子に対しても同様である。ここでは、共鳴状況下で良い近似となる回転波近似での結果を示してある。式 (12) では、ハイゼンベルグ演算子が、離散複素固有値 z_a を持つ共鳴モード成分と連続実固有値 z_k を持つ連続モード成分に分解して、厳密に求められている。以下の節では、この結果をもとにして、発光スペクトルを自発蛍光と散乱の発光成分に分解できることを示す。

4 共鳴モードを用いた自発発光、散乱光成分の分離と時間発展

前節で得た解 (12) を用いて、振動子の励起の時間発展を求めてみる。始状態として、振動子は基底状態にあったものとして、$t = 0$ からコヒーレント外場による励起が始まったとする。このとき、振動子の励起数 $N(\Omega, t)$ は

$$N(\Omega, t) := \langle 0|\hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t)|0\rangle$$
$$= \frac{f_0^2}{4}\left|\mathcal{N}_a \frac{e^{-i(z_a-\Omega)t} - 1}{z_a - \Omega} + \frac{i}{2\pi}\int_\Gamma d\omega \frac{1}{\eta(\omega)} \frac{e^{-i(\omega-\Omega)t} - 1}{\omega - \Omega}\right|^2 \quad (13)$$

として求められる。式 (13) の第 1 項は共鳴モードからの寄与、第 2 項は連続モードからの寄与であり、Γ は PhB 端での分岐点効果を表す積分経路を示す。図 1 に、$\omega_0 = 10.5, \Omega = 10.0$ とし、PhB のバンド中心のエネルギー ω_B を $\omega_B = \Omega$ としたときの $N(\Omega, t)$ の計算結果を示した。

励起数 $N(\Omega, t)$ は共鳴モードの固有値実部に対応したラビ振動数 ($\simeq \omega_0 - \Omega$) で振動するとともに、固有値虚部で定められる寿命で減衰し、非平衡定常値に移行していく様子がわかる。振動子のエネルギーが PhB のバンド端から十分離れているとき、式 (13) の第 1 項の共鳴モード成分が支配的となることがわかった。すなわち、無限個の固有モードの中から RHS に属する唯一の共鳴モードが、励起数に実質的に寄与することがわかった。

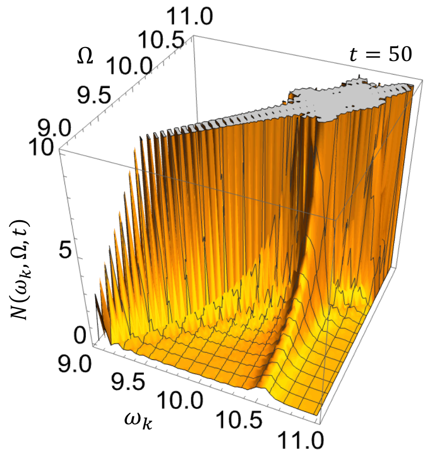

図 2: 非平衡定常領域 ($t = 50$) における駆動振動数 Ω ごとの発光スペクトル。パラメーター値は、図 1 と同じ。

次に、PhB 光子の放射スペクトルを考える。放射光子数密度は

$$N(\omega_k, \Omega, t) := \langle 0|\hat{b}_k^\dagger(t)\hat{b}_k(t)|0\rangle$$
$$= f_0^2 g_k^2 \left|\mathcal{N}_a \frac{e^{-i(z_a-\Omega)t} - 1}{z_a - \Omega} \frac{1}{z_a - \omega_k}\right. \quad (14a)$$
$$+ \frac{e^{-i(\omega_k-\Omega)t} - 1}{\omega_k - \Omega} \frac{1}{\eta^+(\omega_k)} \quad (14b)$$
$$\left. + \frac{i}{2\pi}\int_\Gamma d\omega \frac{e^{-i(\omega-\Omega)t} - 1}{\omega - \Omega} \frac{1}{\eta(\omega)} \frac{1}{\omega - \omega_k}\right|^2 \quad (14c)$$

と求められた。式 (14a) は式 (13) の第 1 項と同じく共鳴モードの寄与、式 (14b,c) は式 (13) の第 2 項と同じ連続モードの寄与である。

図 2 に、非平衡定常状態に相当する $t = 50$ での発光スペクトルを駆動振動数 Ω ごとに示した。発光エネルギー ω_k が駆動振動数 Ω と等しい散乱成分と、Ω に依存しない自発蛍光成分 ($\omega_k \simeq \omega_0 = 10.5$) が現れているのが分かる。

自発蛍光は、式 (14a) で示す共鳴モードからの寄与であり、対称的なローレンチアンピークを与え、ピーク位置は共鳴モードのエネルギー実部に、ピーク幅は固有値虚部によって決まる。駆動振動数 Ω が振動子の共鳴振動数 $\mathrm{Re} z_a$ に近づくにつれて共鳴増大するのがわかる。重要な点は、式 (14a) からわかるように、共鳴モード成分からの寄与は、駆動振動数 Ω と発光エネルギー ω_k とが変数分離し、吸収と発光の間のエネルギー相関が切れることである。

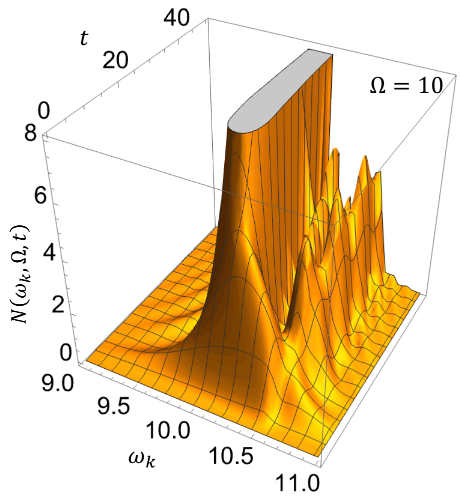

図 3: $\Omega = 10.0$ としたときの時間・発光エネルギー分解スペクトル。パラメーター値は、図 1,2 と同じ。

また、駆動振動数 Ω をもつ散乱光成分は、式 (14b) で与えられる連続モードからの寄与である。散乱成分は、$\omega_k \simeq \Omega$ のエネルギー位置にデルタ関数的なピークを持つが、注意すべきは、(14b) の連続モード成分のグリーン関数 $1/\eta^+(\omega_k)$ が振動子の励起エネルギー ω_0 近傍にピーク構造を持つことである。このため、駆動振動数と発光のエネルギー相関だけをみて散乱成分と自発蛍光成分を分離することはできない。両成分を分離するためには、以下に示すように、時間・振動数分解の挙動を調べる必要がある。

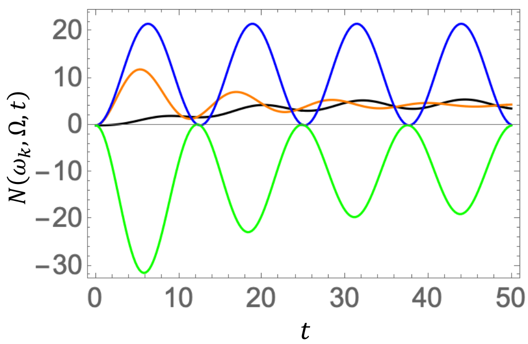

図 4: $\omega_k \simeq 10.5, \Omega = 10.0$ における共鳴モード成分（橙）、連続モード成分（青）、干渉項（緑）、全体（黒）の時間変化。パラメーター値は前図と同じ。

外場振動数を固定した場合の、時間・振動数分解スペクトルを図 3 に示す。また、図 4 では、$\omega_k \simeq 10.5$ の発光の時間変化を、共鳴モード、連続モード、および干渉項の寄与に分離して示した。図 1 に示した励起数と時間的に同じ振る舞いをしているのは共鳴モードの寄与（橙）である一方、連続モードの寄与（青）は駆動場によってラビ振動をし続ける。さらに、これらの間の干渉効果が破壊的に働き、自発発光成分が指数減衰するのと同時に全体の発光光子数が増加することがわかった。

5　おわりに

本研究では、強いコヒーレント外場によって駆動された調和振動子からの発光過程について、駆動場・振動子系・輻射場を一つの量子系とみなし、複素スペクトル解析により励起数、発光スペクトルを厳密に求めた。射影演算子法を用いて有効リウビリアンを導出し、全系の複素固有モードを求め、強いコヒーレント電場駆動下で、インコヒーレントな自発蛍光、コヒーレントな散乱項成分を、それぞれ共鳴モード、連続モードからの寄与に分離した。振動子エネルギー近傍の発光では、共鳴モードと連続モードからの寄与の間に破壊的干渉が生じていることがわかった。ここでの理論手法は、駆動外場との強い相互作用、散逸過程も含めて非摂動論的な取り扱いが行われているが、着目系が線形な調和振動子のため、高次高調波発生など非線形的な振る舞いは現れない。今後、着目系を 2 準位系に変えるなどの改良を行い、高次高調波発生など非線形的発光過程の解析を行う。

References

[1] P. W. Milonni, *The Quantum Vacuum* (Academic Press, New York, 1994).

[2] Y. Toyozawa, J. Phys. Soc. Jpn. **41**, 400 (1976).

[3] A. Kotani and Y. Toyozawa, J. Phys. Soc. Jpn. **41**, 1699 (1976), Y. Kayanuma, J. Phys. Soc. Jpn. **57**, 292 (1988).

[4] O. Schubert, *et al.*, Nature Photon., **8,** 119 (2014), K. Uchida *et al.*, Phys. Rev. B**97,** 165122 (2018).

[5] T. T. Luu and H. J. Wörner, Phys. Rev. B**94,** 115164 (2016), Y. Murakami *et al.*, Phys. Rev. Lett. **121,** 057405 (2018).

[6] T. Petrosky and I. Prigogine, Adv. Chem. Phys. **99**, 1 (1997).

[7] S. Tanaka and K. Kanki, Prog. Theor. Exp. Phys. **2020**,12A107 (2020).

[8] A. Bohm, M. Gadella, and G. B. Mainland, Am. J. Phys. **57**, 1103 (1989).