

「量子効果等の物理現象」
平成9年度採択研究代表者

白田 耕藏

(電気通信大学電気通信学部 教授)

「量子固体と非線形光学：新しい光学過程の開拓」

1. 研究実施の概要

本課題は「孤立原子/分子の量子性と凝縮系の高密度性を併せ持つ」光学媒質を実現する事により「気相の原子/分子系で発展してきた光学過程と凝縮系で発展してきた光学過程の双方の特長を兼ね備える従来の枠組みを越えた新しい非線形光学過程」を開拓する事をそのねらいとするものである。本計画では光学媒質として上記特徴を兼ね備え、量子固体としても知られる固体水素を用いる。光学過程として強い光の場により物質系に生ずるコヒーレンスを第1義的なキーワードとして、非線形光学研究からその基盤を与える分光・物性測定に関わる研究を展開している。

物質中に大きなコヒーレンスを生成する事により、非線形光学過程において不可避の制約とされていた位相整合が自動的に満たされる自己誘起位相整合を既に発見した。本計画ではそれを更に発展させ制御性を持った光エレクトロニクスの手法へ一般化する試みを実験・理論の両面から行っている。また、量子固体を光共振器と組み合わせることにより連続動作で強結合状態を実現することを目的として超高Q値を持つドロプレットの非線形光学の研究も行う。現在は液体水素で研究を展開しているが、共振器Q値・非線形光学の双方で従来のドロプレットの研究を凌駕する結果を得ている。一方、基礎となる固体水素の諸物性を高精度で測定するため、測定法・結晶評価法の開発から種々の物性測定を行う。

更に今後の展開として、上記諸研究の発展強化と共に固体水素が様々な物質のドーピングに対して優れたマトリックスとして機能する側面に着目し、固体水素中の原子の非線形光学・レーザー物理の研究を展開する。

2. 研究実施内容

(1) 非線形光学 / 量子光学

量子クリスタル発振器

大きなラマンコヒーレンスは理論的にはどのような光ともビートできコヒーレンスの周波数を変調周波数とするサイドバンドを高効率に発生できる。その実証として、前年度ではラマン共鳴を満たす2台の単一周波数パルスレーザー（パルス幅10nsFWHM）により固体水素中にコヒーレンスを生成し、ビートす

る光として 300cm^{-1} (10 THz) と極めて広いバンド幅を持ち、通常のパラメトリック過程としては位相整合がみだすことが困難なレーザーを用いてサイドバンド光の発生を実証した。今年度においては、更に発展させビート光としてコヒーレント光ではなく、通常のインコヒーレントな蛍光を用いてサイドバンド発生を試みた。用いた蛍光は全方位に等方的に放射する色素の自然放出蛍光であり、中心波長 500nm でスペクトル幅は 1800cm^{-1} でパルス幅は 7ns である。実験結果は明瞭であり、入射インコヒーレント光と同一のスペクトル形状を持つ変調周波数 4100cm^{-1} (120 THz) のサイドバンド光がストークス・反ストークス成分とも高効率(30%)で発生できる事を示すものであった。この結果は、明確に大きなラマンコヒーレンスが極めて任意性の高い非線形性を持つ事を示している。また、ビート光の強度はサイドバンド発生効率に依存しない事は測定限界の範囲で確認されたが、その強度がどこまで低くできるかは重要な問題である。理論的にはサイドバンド発生はコヒーレントなパラメトリック相互作用である事を考えると、サイドバンド発生に寄与している入射インコヒーレント光の内、コヒーレントな単位波束中の光子数を見積もれば現状でのビートに関わっている最低限界光子数を見積もる事ができる。用いたインコヒーレント光のスペクトル幅及び空間広がり、回折限界との相対比からコヒーレンス時間及び空間的コヒーレンスを求めると、単位コヒーレント波束中の光子数は1光子以下のレベルと言う事になる。この事は、固体水素中に準備した大きなラマンコヒーレンスを用いれば、極めて微弱な光であっても、またその光の性質に関わらず、その光の"レプリカ"がサイドバンドとして高効率に発生できる事を実証するものである。これは通常の伝統的な非線形光学の枠組みを越えた極めて高効率で任意性の高い非線形光学過程を実現したものといえる。

超低速光の伝播

最近、米国のグループが光と物質の共鳴ラマン強結合系においてパルス光の伝播速度(群速度)が真空中の光速の1000万分の1にも超低速化でき、また群速度が超低速化するため物質系との相互作用時間が長くなり非線形光学効果が桁違いに増強される事を報告し大きな注目を浴びている。その着想の要点は、別の見方をすれば制御されたコヒーレンスが極めて小さな場合の非線形光学過程であり、量子クリスタル発振器の対極に位置する過程とも言える。このような効果は中間状態に対して遠共鳴の系であっても、ラマンコヒーレンスの緩和が十分遅くまた相互作用物質の密度が十分あれば生じ得る。今年度において、遠共鳴の場合における超低速光の伝播の可能性を理論的に検討した。結論は、遠共鳴の場合においても超低速光は実現できる。ただし、超低速化の機構は共鳴系と異なり反ストークスとストークスのサイドバンド間のパラメトリック相

相互作用であり、かつ光パルス伝播には2つのサイドバンドの線形結合であらわされる伝播固有モードが存在し、一方は真空中の光速で伝播し他方は超低速群速度で伝播する。この効果は1本のレーザー光による固体水素の自己誘起位相整合の基本機構とも理解できえるものであり、今後実験的検証を進める。

超高Q値球状光共振器

狭いスペクトル線幅を有する凝縮系水素を超高フィネス共振器と組み合わせる事ができれば、非線形光学効果を極めて効果的に制御できる。前年度に引き続き液体水素の液滴を作成しその誘導ラマン過程について研究を展開した。液体水素は固体水素には劣るが、通常の液体・固体に比べて格段に狭いラマン線幅を有する。液滴を吊り下げるガラスキャピラリーの直径を10ミクロン程度まで細くする事よりのサイズとしては直径100ミクロン程度までの制御性は得られるようになった。光共振器としてのQ値として 3×10^9 にも達する巨大な値が容易に得られる。また、波長200 nmで100MW / cm^2 程度の励起により200 nmからほぼ $1 \mu\text{m}$ (より長波長は検出不能) の紫外・可視・近赤外の全波長範囲をカバーする水素分子の振動と回転による多数のラマンサイドバンドが発生できる事を見出した。この事は液体水素による超広帯域の光コム発生の可能性を示唆するものである。

極低温での位相緩和

固体水素の非線形光学のキーとなるパラメータである光学遷移の線幅をできるかぎり鋭くするためには、位相緩和に起因する線幅を取り除く必要がある。位相緩和線幅は温度に対して指数関数的に変化することから、できる限り結晶の温度を下げる事が望まれる。本年度において、 ^3He を冷媒とする光学クライオスタットの製作を行い300mKでの光計測を可能とした。

また、固体内の励起状態およびそのダイナミクスを理解することを目的として、固体パラ水素中に微量混在させたメタン分子の振動回転状態の線幅の温度依存性を高分解能分光を用いて追跡した。その結果、固体水素中の線幅は位相緩和によってほぼ決まっており、温度の4乗に比例して変化することが明らかとなった。この振舞いは固体水素固有の大きなゼロ点フォノン振動によるものと考えられ、現在理論計算を行っている。

3. 主な研究成果の発表 (論文発表)

S. Uetake, M. Katsuragawa, M. Suzuki, and K. Hakuta, "Stimulated Raman scattering in liquid hydrogen droplet", *Physical Review A*, Vol. 61, 011803-011806R (2000).

M. Katsuragawa and K. Hakuta, "Raman gain measurement in solid parahydrogen", *Optics Letters*, Vol. 25, 177-179 (2000).

K. Hakuta, M. Katsuragawa, J. Z. Li, J. Q. Liang, and M. Suzuki, "Stimulated Raman

scattering in the strong coupling regime", in *Frontiers of Laser Physics and Quantum Optics* (Springer Verlag, 2000), pp. 261 - 267.

Fam Le Kien, J. Q. Liang, M. Katsuragawa, K. Ohtsuki, K. Hakuta, and A. V. Sokolov, "Subfemtosecond pulse generation with molecular coherence control in stimulated Raman scattering", *Physical Review A*, Vol. 60, 1562-1571 (1999).

Hiroyuki Katsuki and Takamasa Momose, "Observation of Rovibrational Dephasing of Molecules in Parahydrogen Crystals by Frequency Domain Spectroscopy.", *Physical Review Letters*, Vol. 84, 3286-3289 (2000).

A. Koreeda, M. Yoshizawa, S. Saikan, and M. Grimsditch, "Quasielastic light scattering from rutile", *Physical Review B*, Vol. 60, p. 12730 (1999).

M. Mikami, T. Nishimura, M. Isonaga, D. Kobayashi, and S. Saikan, "Novel method for the derivation of 1-photon function from fluorescence line narrowing spectrum", *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 68, p. 3430 (1999).