

1-4 白田チーム Hakuta Team

量子固体と非線形光学：新しい光学過程の開拓

Quantum Solid and Nonlinear Optics: New Perspectives on Quantum/Nonlinear Optics

We explore nonlinear and quantum optical processes in the strong-coupling regime in condensed matter system. Key issue of the idea is to use the quantum solid, solid hydrogen, as the working medium. By working with the solid hydrogen, we open a new class of optical physics that unifies two categories of optical physics independently developed in atomic physics and in condensed matter physics. We have been carrying out the works in two categories: One is the strong-coupling nonlinear optics and the other is the precise spectroscopy of solid hydrogen as the basis of the quantum nonlinear optics.

On the first category, the following subjects are investigated.

- (1) Arbitrary and efficient parametric sideband-generation
- (2) Parametric molecular modulation of a femtosecond optical pulse:
Toward the generation of a single subfemtosecond pulse
- (3) Slow light propagation in solid hydrogen: Normal mode propagation in a far-off resonant Raman system
- (4) Nonlinear optics in a high-Q microsphere: From a liquid-hydrogen-droplet nonlinear optics to nonlinear optics in an evanescent region of a high-Q microsphere
- (5) Realization of a resonant three-level system in solid hydrogen:
Nuclear-Spin manipulation of orthohydrogen

On the latter category, the following subjects are investigated.

- (1) Development of a Raman loss spectrometer with a resolution of 100 kHz
- (2) High-resolution spectroscopy of the vibron Raman transition
- (3) Temporal measurement of the vibron dephasing: Effect of vibron-vibron interaction
- (4) Theory of vibron dephasing: Vibron-phonon interaction

量子固体と非線形光学：新しい光学過程の開拓

研究代表 電気通信大学 白田耕藏

Quantum Solid and Nonlinear Optics: New Perspectives on Quantum/Nonlinear Optics

Kohzo Hakuta, *Research Director of CREST*

Department of Applied Physics & Chemistry, The University of Electro-Communications

研究の概要

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「光学媒質として量子固体である固体水素」を「光学過程として光の場と物質系の強結合状態」を二つのキーワードとして研究を進めている。研究の領域は、本プロジェクトの最大の眼目である量子光学／非線形光学の研究から、量子固体としての基礎的な物理を明らかにするため精密な分光・物性測定に関わる研究を展開している。また、研究の基盤を与える光学結晶として十分な質を持つ結晶作成法及び結晶成長制御法の開発を行っている。

固体水素結晶の光学遷移としては水素分子の分子振動の励起子系であるパイブロン・ラムマン遷移を用いる。パイブロン・ラムマン遷移は、中間状態に対して遠共鳴の Λ 型3準位遷移である。この3準位系について光・物質系の強結合状態を実現する事により、従来不可避の制約とされてきた位相整合の枠を越えたパラメトリック過程が可能になることを既に示した。本年度においては強結合系の光パラメトリック過程の物理を理論的・実験的に発展させ制御性を持った手法へ一般化する試みを行い、時間的・空間的にインコヒーレントな光であってさえも高効率なパラメトリック変換が可能であることを実証した。また、固体水素は可視・紫外領域では完全に透明であるが、そのような透明媒質においてさえ強いレーザー場により屈折率分散を大きく制御できることを理論的に示し、実際にその結果として現われる超低速光伝播を観測した。一方、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た研究も進行している。超高Q値を持つ液体水素ドロプレットにより、超広帯域のラムマンサイドバンド系列を発生できる事を示した。超高Q値光共振器を用いる非線形光学研究は、更に固体水素系への拡張を目指して研究を進展させつつある。

固体水素において近共鳴3準位系を実現すれば、近共鳴強結合3準位系の物理をさまざまに展開できる。3準位系として、核スピン副準位を伴うオルソ水素の振動回転遷移 $Q_1(1)$ (波長 2.4μ) に着目して研究を進めている。

一方、プロジェクトの基礎を与えるものは、固体水素の結晶の作成法の改良と高精度な諸物性測定である。前者については、固体水素薄膜を制御性良く作製する事を目指して気相成長法を開発しつつある。また後者については、ラムマン利得／損失分光法、偏光測定を併用するコヒーレントブリルアン分光、超光分解能赤外分光法等の開発を行い、種々の物性測定を行っている。

研究実施内容

本計画は量子固体・固体水素の非線形光学／量子光学の研究を中心に、固体水素の基礎的分光・物性研究を実施している。以下に平成12年度の研究実施内容を記す。

非線形光学／量子光学：強結合非線形光学

(1) 透明媒質中での超低速光パルス伝播

超低速光パルス伝播は共鳴ラマン 3 準位系で様々なホットな議論がなされている。共鳴系における超低速化の要点は、ラマン遷移の一方を強いレーザー場で結合する事により、他方の遷移の共鳴応答を透明化する (EIT) と共に急峻な分散を実現する事である。この効果は中間状態への離調が大きくなるにつれて弱くなるので遠共鳴系での超低速光伝播は困難と思われていた。しかしながら、固体水素のバイブロンラマン遷移を用いれば遠共鳴系でも超低速伝播を実現できる。かつ、遠共鳴の固体水素系では、近共鳴系の単純な拡張にはならない事を示した。その事情を図 1(a) に示す。超低速化を別の言葉で表現すれば、強いレーザー場 ω_0 の下でプローブパルス光 ω_{+1} の伝播を考えれば、プローブの伝播は準位 a-b 間へのコヒーレンスの生成と生成されたコヒーレンスと強いレーザー場 ω_0 とのビーティングによるプローブ光 ω_{-1} の発生過程と考えられる。観測される伝播遅延はこの過程に要する時間と考えられる。遠共鳴系ではコヒーレンスとの相互作用により ω_{+1} のみならず ω_{-1} も生成する。その結果プローブ光の伝播過程は ω_{+1} と ω_{-1} とのパラメトリックな相互作用となる。このような相互作用の下でパルス伝播を理論的に定式化すると、 ω_{+1} パルスと ω_{-1} パルスそれぞれに対しては群速度は定義できないが、この伝播過程には二つのパルスの線形結合で表されるノーマルモードが存在し、一方は真空中の光速でパルス伝播し、他方は超低速化した群速度で伝播する。群速度はラマン共鳴からの離調に強く依存する。実験スキームを図 1(b) に示す。図 2 に理論計算の結果 (破線) と実験結果 (実線) を示す。結合光強度を上げるに従い群速度遅延が観測され一つのパルスが二つに分裂していく様子が見てとれる。このパルス分裂は二つのノーマルモードの分裂によるものであり、低速伝播モードの群速度は真空中の光速の 10,000 分の 1 に達する。なお、分裂して観測されている低速伝播パルスは光速パルスに比べて弱い。これは、一つには入射時には ω_{+1} パルスと ω_{-1} パルスのどちらかのみ存在し他方はゼロであるという初期条件による。また、低速伝播パルスにはラマン終準位の位相緩和で決まる 2 光子吸収が現われるので、伝播過程で消失していく事になる。この事情は原子の共鳴 3 準位系でラマン共鳴の条件下で Bright State が消失し Dark State に発展していく過程と同質の物理ということができる。(1-4-1)

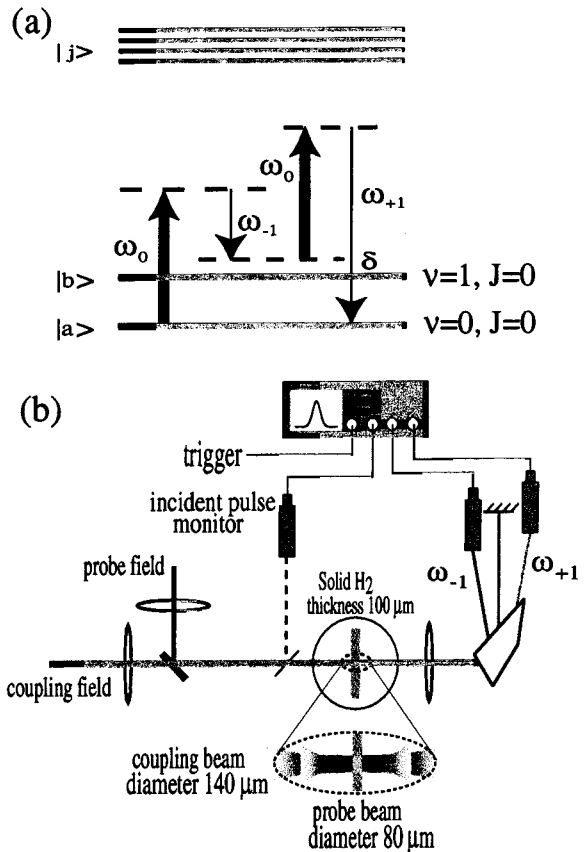


図 1

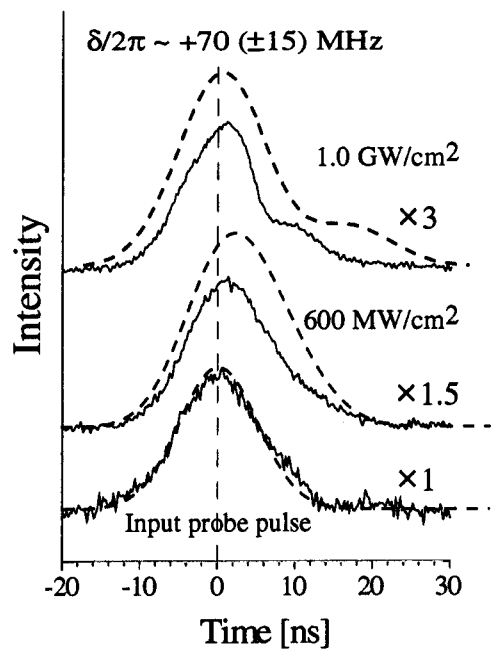


図 2

(2) サブフェムト秒光パルスの発生

固体水素のバイブロン系に準備された大きなコヒーレンスはほぼ任意の光とパラメトリックに相互作用し効率良くサイドバンド光を発生する事は既に実証した。その要点の一つは、バイブロンラマン系は遠共鳴であるためバンド幅が極めて広く実質的に瞬時的な相互作用が実現できる事である。理論的な解析によれば、フェムト秒の光パルスであっても高効率にバイブロンコヒーレンスと相互作用でき、その結果とサブフェムト秒の光パルスの発生（パルス圧縮）が期待できる。図3に模式的にその様子を描く。フェムト秒パルスからサブフェムト秒パルスへのエネルギー変換効率は80%にも達する事が期待される。もちろん、実験的にこの状況を実現するには幾つかの課題がある。第1には発生したサブフェムト秒パルスをナノ秒レーザーの強いバックグラウンドから分離する事である。この点に関しては強結合コヒーレンスを用いる我々の方法は極めて容易でかつ優れた方法を提供できる。また、固体水素結晶や発生光の伝播システムなど、綿密な考察と設計が必要である。(1-4-2)

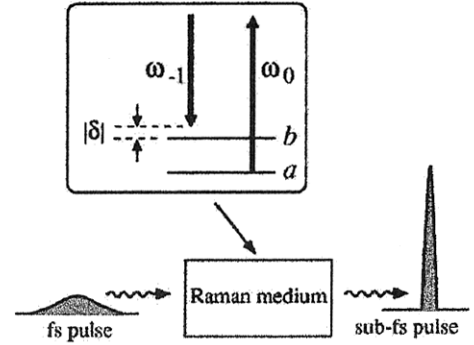


図3

(3) 高Q光共振器と非線形光学

液体水素液滴は非線形光学の作業系としては類例の無い非常に強力なものであることを実証した。現在更に、液体水素液滴系と相補的な系の実現を目指して研究を展開している。液体水素液滴系では高Q共振器と非線形媒質が一体となっており、高次の非線形効果が容易に実現できた。一方、特定の過程を小さなモード体積と定常的な条件で研究する事は量子光学の立場からは極めて重要である。この目的のために開発中の系を図4に示す。系は熔融石英の微小球を液体水素中に設置したものである。熔融石英球は高Q共振器として用い、外部からの入射光を熔融石英球のWhispering Gallery Modeに閉じ込め、そのエバネッセント波と液体水素の相互作用を考えるものである。(1-4-4)

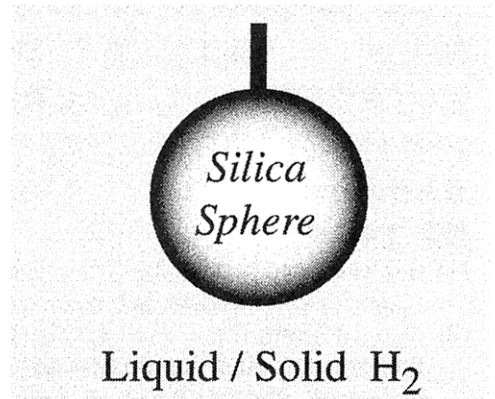


図4

(4) 固体水素における共鳴3準位系の実現

固体水素中に原子/分子等をドープして孤立系の特性を維持した高密度の共鳴3準位系が準備できれば新しい量子非線形光学の作業系が実現できる。これまでの様々な研究・検討の結果、系としてオルソ水素の振動回転遷移 ($v=1-0$, $J=1-1$; 波長 2.4μ) をターゲットにして研究を開始している。要点は、オルソ水素の核スピン $I=1$ の磁気副準位を基底状態の二つの準位として用いる事である。オルソ水素の振動回転遷移は結晶場誘起の遷移で弱い遷移ではあるが、スペクトル線幅が MHz 領域と非常に細いため、単一周波数のレーザー分光を仮定すれば十分に作業できる系である。大雑把にはオルソ水素の NMR 遷移を赤外のラマン遷移を用いて取り扱うものである。(図5参照) 波長 2.4μ の単一波長レーザーとしては PPLN による OPO レーザーを用いる。現在、オルソ水素の濃度を様々に変化させた薄膜固体水素の赤外吸収を高分解能 FTIR により観測し基礎データを収

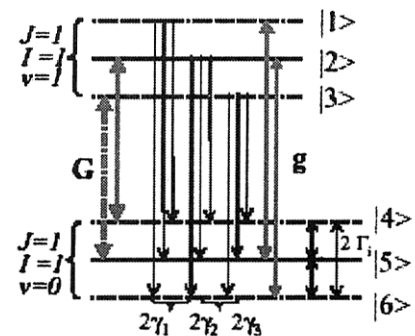


図5

る。

集している。また OPO レーザーについてはオランダトウェンテ大学の Boller 教授のグループと共同で開発している。1 MHz 以下の線幅で 100mW 程度の出力を持つレーザーシステムが作製されつつある。一方、核スピン及び振動回転エネルギーの緩和のデータをもとに数値シミュレーションを行い核スピンを偏極する条件、強結合による EIT 実現の最適条件等を検討している。(1-4-4)

固体水素の基礎的分光・物性計測

パイブロン位相緩和：ラマン遷移の精密測定

固体水素のパイブロン位相緩和は本プロジェクトを実施する上での最重要パラメータの一つであり系統的に測定系を改良し高精度な測定を継続している。

まず、パイブロンラマンスペクトル測定であるが用いている半導体レーザーを高安定共振器にロックする事により kHz 級の安定度を得た。その結果、ラマンロス分光システムの分解能は 100kHz 以下となり、どのような場合についても装置幅が測定限界を決める事は無い状況が実現できた。なお、現状で分解能を決めているのは半導体レーザーと共に用いている YAG-MISER の安定度である。このシステムを用いてラマン計測を系統的に行い、ラマンシフト及び幅について温度・圧力・オルソ濃度依存性を計測した。また、パイブロン位相緩和を支配している主要メカニズムであるパイブロン・フォノン相互作用を定量的に取り扱う理論を確立した。その理論に基づきパイブロン・フォノンの相互作用強さについて定量的で信頼性のある結果を得た。(1-4-3)

また、強結合状態で生成される高密度なパイブロン系について位相緩和を実時間で計測し位相緩和がパイブロン密度で変化することを見出した。この効果はパイブロン同士が何らかの第 3 体と衝突して生じる過程として理論的に記述できる。第 3 体がフォノンであれば温度制御によりパイブロン・パイブロン相互作用を制御できる事になる。実験的には位相緩和時間の温度依存性を確認する作業を行いつつある。(1-4-1)。

関連論文

- (1) S. Uetake and K. Hakuta, "Stimulated Raman scattering of a high- Q liquid hydrogen droplet in ultraviolet region", *Optics Letters*, in press.
- (2) Nguyen Hong Shon, Fam Le Kien, and K. Hakuta, and A.V. Sokolov, "Two-dimensional model for femtosecond pulse conversion and compression using high-order stimulated Raman scattering in solid hydrogen", *Physical Review A*, in press.
- (3) J. Q. Liang, M. Katsuragawa, Fam Le Kien, and K. Hakuta, "Slow light produced by stimulated Raman scattering in solid hydrogen", submitted to *Physical Review A*.
- (4) M. Katsuragawa, J. Q. Liang, Fam Le Kien, and K. Hakuta, "Efficient Frequency Conversion of Incoherent Fluorescence Light", *Physical Review A*, in press.
- (5) Fam Le Kien, Nguyen Hong Shon, and K. Hakuta, "Generation of subfemtosecond pulses by beating a fs pulse with a Raman coherence adiabatically prepared in solid hydrogen", *Physical Review A*, Vol. 64, 051803(R) (2001).
- (6) K. Kuroda, J. Z. Li, M. Suzuki, M. Katsuragawa, and K. Hakuta, "Coherent Brillouin spectroscopy in solid parahydrogen", *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 125, 39-48 (2001).
- (7) 白田耕藏, "固体水素：光を制御する魅力的な場", *固体物理 (トピックス)*, Vol. 36, 343 (2001).
- (8) J. Z. Li, M. Suzuki, M. Katsuragawa, and K. Hakuta, "Measurement of the energy decay for the first vibrational-excited-state in solid parahydrogen", *Journal of Chemical Physics*, Vol. 115, 930 (2001).
- (9) S. Uetake and K. Hakuta, "Nonlinear optics with liquid hydrogen droplet", *SPIE Proceedings*, Vol. 4270, pp. 19-28 (2001).
- (10) 白田耕藏, "量子コヒーレンスによる光学応答の制御", *応用物理 (総合報告)*, Vol. 70, No. 2, 138-148 (2001).
- (11) M. Katsuragawa, J. Q. Liang, and K. Hakuta, "Parametric stimulated Raman scattering with solid hydrogen", *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 122, 359-365 (2001).
- (12) 桂川眞幸、百瀬孝昌、鈴木勝、是枝聡肇、白田耕藏, "固体水素を用いた新しい光学過程", *光学 (解説)*, Vol. 30, No. 2, 111-116 (2001).
- (13) Fam Le Kien and K. Hakuta, "Normal modes and propagation dynamics in a strongly coupled Raman medium", *Physical Review A*, Vol. 63, 023807(6) (2001).