

Nonlinear Optics in Solid Hydrogen

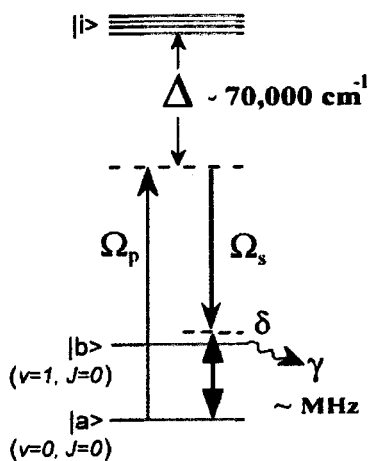
University of Electro-Communications, Department of Applied Physics and Chemistry, and CREST, JST
 M. Katsuragawa, J. Q. Liang, M. Suzuki, and K. Hakuta

固体水素は最も単純な分子性結晶で、量子固体として知られている。その際だった特徴は、固体水素を構成する水素分子があたかも孤立分子であるかのように自由に振動、回転し、それらが良い量子数を形成することにある。固体の密度と孤立した分子としての狭い線幅の両立は、従来の光学媒質にはみられなかった特徴である。固体水素の光学媒質としての新しい可能性を示唆している。

図に、ここで取り扱う非線形光学過程のスキームの基本形を示す。状態 $|a\rangle$ 、 $|b\rangle$ は互いにラマン遷移許容の二準位を形成し、状態 $|i\rangle$ はそのラマン過程の中間準位に対応する。ここで、状態 $|a\rangle$ に固体パラ水素の基底状態、状態 $|b\rangle$ に $v=1, J=0$ の振動励起状態を当てはめる。この時、中間状態 $|i\rangle$ は電子励起状態に対応し、入射光として可視域の光を仮定すると中間状態への離調は $70,000 \sim 80,000 \text{ cm}^{-1}$ となり、極めて離調の大きなラマン過程を形成することがわかる。このスキームのポイントは、状態 $|b\rangle$ の振動励起状態の線幅が極めて狭い (<数 MHz) 点にある。このことは、このラマン過程において、電磁場と媒質が互いに容易に強結合されることを意味する。電磁場と媒質の強結合の条件は、励起光とストークス光のラビ周波数をそれぞれ Ω_p, Ω_s 、また、ラマン遷移のスペクトル線幅を γ 、及び中間状態への離調を Δ とすると、 $\Omega_p \Omega_s > 2\gamma\Delta$ と表される。今、 Δ は $70,000 \sim 80,000 \text{ cm}^{-1}$ と極めて大きい値を持つが、 γ がそれを補ってさらに狭い値 (<数 MHz) を持つので、強結合条件が数 MW/cm^2 の光強度で容易に実現されることになる。以上まとめて繰り返すと、固体水素では、「凝縮系の高密度性をもつ媒質中で、かつ、極めて大きな離調をもったラマン過程に対して、電磁場と媒質が強結合される非線形光学過程」が容易に実現される。

図の系を用いて固体透明媒質中で、光の超低群速度伝搬を実現することが可能である。入射光の強度を $\Omega_p \gg \Omega_s$ と設定し、ストークス光 Ω_s とこのラマン過程で同時に発生するアンチストークス光を観測するとストークス光及びアンチストークス光のある成分が真空中の光速の $1/48,000$ に減速され、媒質中を伝搬することが観測された。ストークス光とアンチストークス光の線形結合状態で新たに定義される対の一方が、状態 $|b\rangle$ のシャープな分散を感じた結果、超低群速度伝搬が実現されたと理解される。超低群速度伝搬は、光と媒質の相互作用長が実質的に極めて長くなることと同等である。別の言い方では、超低群速度伝搬を通して、このラマン過程の非線形性は巨大にエンハンスされる。その結果、光は超低群速度で媒質中を伝搬しつつ、状態 $|a\rangle$ - $|b\rangle$ 間に効率よくラマンコヒーレンスを蓄積し、同時に、さらに高次のラマン過程を誘導していく。

初期に、 $\Omega_p \Omega_s \gg 2\delta\Delta$ (δ : 二光子離調) の条件を満たす光強度を励起光に与えると、このプロセスを通して一コヒーレント長内で「効率良く」高次の誘導ラマン過程を発生させることも可能である。通常の誘導ラマン過程と異なるのは、効率の良い変換が一コヒーレント長内で起こるため位相整合条件を必要としない点にある。このことは、誘導ラマン散乱の高次系列がすべて励起光と同軸に同じガウス強度分布をもって放射された様子に明瞭にみとれる。



このプロセスで状態 $|a\rangle$ - $|b\rangle$ 間に形成された大きなラマンコヒーレンスは、それ自体を高周波 ($4150 \text{ cm}^{-1} = 125 \text{ THz}$) のオシレーターのようにみなすこともできる。つまり、様々な光のサイドバンド発生器として応用することも可能である。 300 cm^{-1} の線幅をもったマルチモードレーザー光や 1800 cm^{-1} の線幅をもったインコヒーレント光 (色素の蛍光) を変調し、入射光の特徴をもったサイドバンド光を 4150 cm^{-1} 高周波、及び低周波側に効率よく発生させた。また同様の手法を 200 nm の単一周波数のレーザー光に応用し、 186 nm の真空紫外域での単一周波数波長可変レーザー光を実現した。