

発表番号

3-2

## 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光学結晶として十分な質を持つ結晶作成法及び制御法の開発を行っている。また、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。

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・ラマン遷移を用いる。パイブロン遷移について光・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、固体水素中では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て超高Q値を持つドロプレットの非線形光学の研究も展開しつつある。現在は液体水素で研究を行っているが、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大きく凌駕する結果を既に得ている。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、ラマン利得／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等の開発から種々の物性測定を行っている。

今後の展開としては、上記研究の更なる発展とともに固体水素系に原子を制御性良く導入することなどにより新たな自由度を付加することが重要である。また、量子固体の最も基礎的な特性である基底状態の量子トンネル効果を超高分解能光散乱法で検出する事も極めて重要である。これは、基礎物理の面から重要である事のみならず、成功すれば超低周波の非線形光学を開拓する場が提供される事にもなる。

### 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。計画第3年度である平成11年度においては、双方の研究は着実に進展し

つつある。以下に平成 11 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

### 大きなコヒーレンスとサイドバンド発生

厚さ  $250\ \mu\text{m}$  の固体水素結晶を用いてサイドバンド発生の実験を行った。図 1 にそのスキームとコヒーレンス生成の数値シミュレーション結果を示す。2 本の単一周波数パルスレーザー  $\omega_0^{(p)}, \omega_{-1}^{(p)}$  を用いてコヒーレンスを生成する。2 光子離調をマイナスにとることにより断熱的に大きなコヒーレンスが準備できる。励起レーザーと共に別のパルスレーザー  $\omega_0$  を同軸に入射し準備されたコヒーレンスとのビートによるプラス、マイナス双方のサイドバンドを観測する。ここで重要なことはコヒーレンスとビートするレーザー光として  $300\text{cm}^{-1}$  ものスペクトル幅を有するマルチモードのレーザーを用いたことである。位相整合で制限される通常の 4 光波混合過程で考えれば単一周波数レーザー 2 本と広帯域のマルチモードレーザーで高効率な波長変換など考えられない。また、近共鳴の条件下では最大コヒーレンスを用いても不可能である。実験結果は極めて明快であり、サイドバンドは全て同軸上に観測され、 $\rho_{ab} \approx -0.05$  の条件下ではプラス、マイナスの各サイドバンドへの変換効率は 25-30% にも達し、その効率は共鳴系の場合と同様に  $\omega_0$  の強度にはよらない。全サイドバンドへの変換効率は 50% を上回るものであった。

図 2 に得られたサイドバンドのスペクトルを示す。 $\alpha$  のシリーズは準備されたコヒーレンスと励起レーザー自身とのビートによるサイドバンドである。 $\beta$  のシリーズは準備されたコヒーレンスとマルチモードレーザーとのビートによるシリーズである。

(c) に示されるように  $\beta$  の各サイドバンドは入射レーザーと全く同一のブロードなスペクトル形を示している。このことは固体水素に生成したパイブロン大きなコヒーレンスは伝統的な位相整合の枠組みを越え、任意のどのような光をも高効率で波長変換できることを示している。今回は更に時間的にも空間的にもインコヒーレントな光であっても全く同等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、コヒーレンス時間としてはフェムト秒の領域でも、光の強度としては単一光子レベルであっても単一周波コヒーレント光と同等な変換ができることを示した。

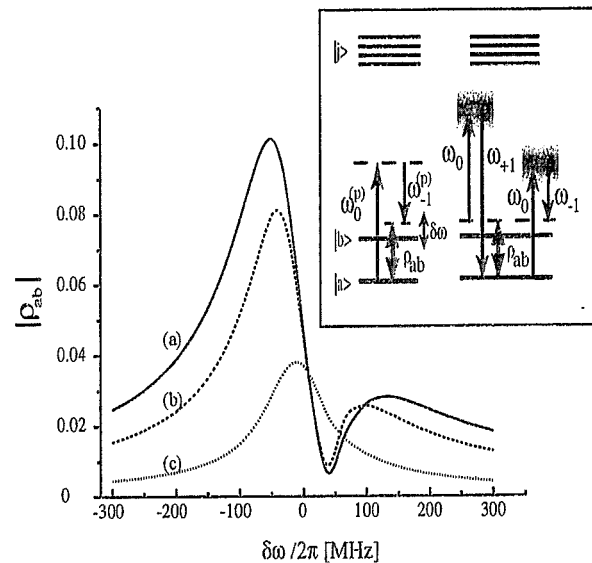


図 1

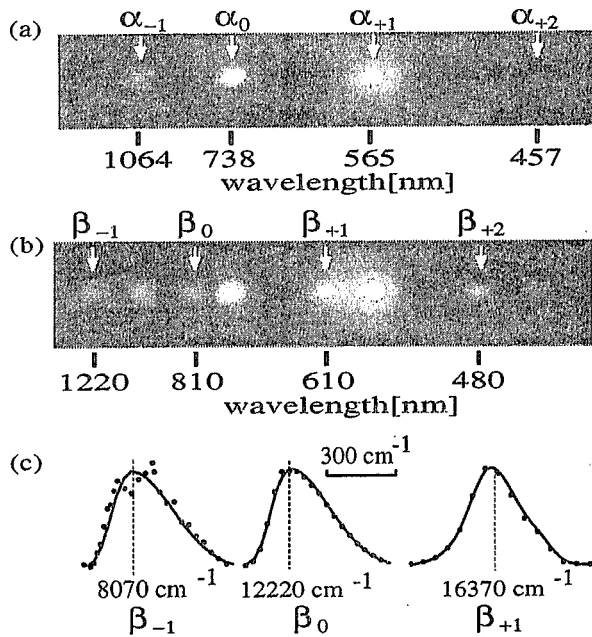


図 2

## 透明媒質中での低群速度光伝播

冷却原子の共鳴ラマン準位系を用いて超低群速度での光伝播が実証され様々な展開がなされている。超低群速度は理想的な条件下では透明な遠共鳴 3 準位系にも拡張できる。我々は、固体水素中に強いレーザー光を導入することによりそれとラマン共鳴するプラス及びマイナスのサイドバンド光の分散は大きく変化し、その結果としてサイドバンド光の群速度は超低速化できることを理論的に示した。図 3 はそのスキームである。強い Dress 光  $\omega_0$  の下で弱いプローブ光の伝播を考える。共鳴系との本質的な違いは生成された  $\rho_{ab}$  と Dress 光とのビート過程である。遠共鳴系の場合はプラスサイドバンドのみでなくマイナスサイドバンドについても同等に扱わねばならない。その結果、初期的に強い Dress 光  $\omega_0$  の下で弱いプ

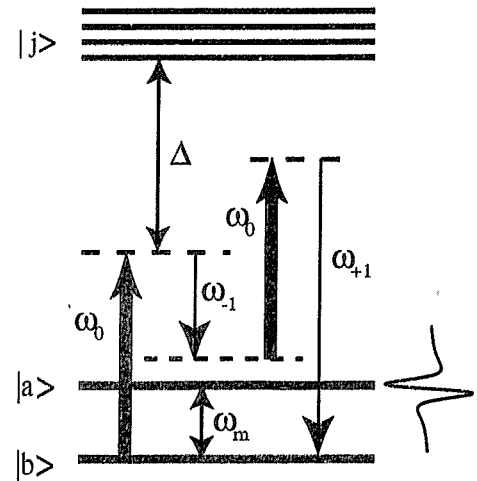


図 3

ラスサイドバンドパルス  $\omega_{+1}$  を入射すると断熱的に生成された  $\rho_{ab}$  を介するパラメトリック相互作用を経てマイナスサイドバンドパルス  $\omega_{-1}$  が発生する。  $\omega_{+1}$  と  $\omega_{-1}$  の双方はパラメトリックに結合し Dress 光の下で増幅されて同じ群速度で伝播することになる。このため、遠共鳴系でのパルス伝播については初期的に入射するパルスはプラスサイドバンドでもマイナスサイドバンドでも良い。

我々は厚さ  $100 \mu\text{m}$  の薄い固体水素結晶を用いて強い Dress 光の下での光パルス伝播の実験をバイブロンラマン遷移について行った。結果は理論の予測を良く裏付けるものであり、固体水素中での群速度は真空中での値の  $10,000$  分の  $1$  にもなることが実証された。固体水素のような透明媒質系で群速度が大きく制御できることは様々な光学過程に新しい視点を提供できるものと思われる。

## 超高 Q 値球状光共振器

きわめて狭いスペクトル線幅を有する固体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。また、QED 効果等の実験的検証にも理想的な状況を提供できる。第 1 段階として液体水素のドロプレットを作成しその誘導ラマン過程について研究を展開している。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。直径  $100 \mu\text{m}$  以上のドロプレットについては、その光共振器としての Q 値として  $4 \times 10^9$  にも達する巨大な値が容易に得られる事を示した。この値は従来の液体のドロプレットの誘導ラマンで得られた Q 値より 2 桁以上も大きいものである。また、波長  $200 \text{nm}$  で  $100 \text{MW}/\text{cm}^2$  程度の励起により  $200 \text{nm}$  からほぼ  $1 \mu\text{m}$  (より長波長は検出不能) の広い範囲に水素分子の振動と回転による多数の誘導ラマンサイドバンドが発生する事を見出した。また、今年度において誘導ラマン過程を連続動作領域に拡張した。  $10 \text{mW}$  のレベルでの励起により 3 次までのサイドバンドが発生できる事を見出した。

## 固体水素の基礎的分光・物性計測

### バイブロン位相緩和：ラマン遷移の精密測定

固体水素のバイブロンラマン遷移の中心周波数及び線幅の温度依存性を  $3 \text{MHz}$  以内の分解能で測定した。中心周波数は温度上昇とともに高エネルギー側に  $T^4$  に比例してシフトする。また、線幅は

温度 5 K で 5 MHz HWHM であり温度上昇とともに  $T^2$  に比例して広がってゆく。

(図 4) 観測された温度依存性はパイブロン系と音響フォノン系の相互作用として極めて良く説明できる。この研究の要点は、分子数密度一定の条件下で温度依存性を精密に計測したことである。同様の研究は多くの固体系で数多くなされているが、それらの研究では熱膨張とフォノンの効果が不可分の状況となっておりが理論との定量的な比較の意味で困難があった。今回の測定はフォノンだけの効果を定量的に取り扱ったという意味でも極めて重要である。

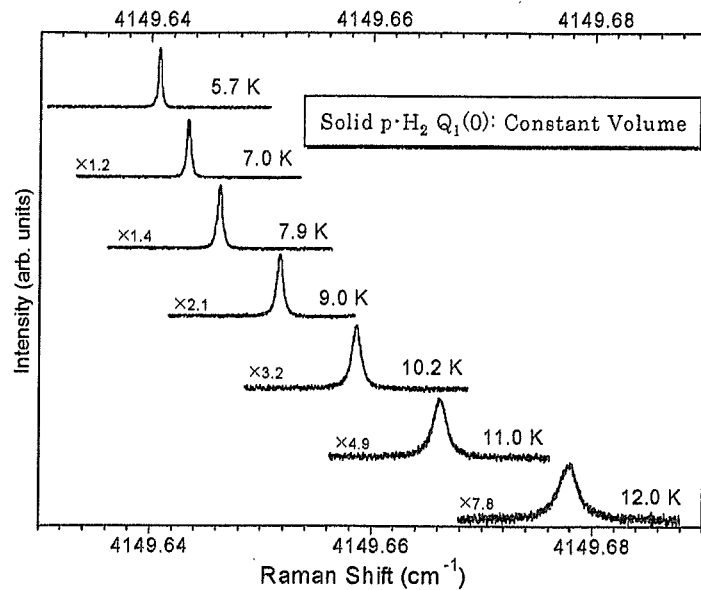


図 4

### パイブロン熱緩和：熱レンズ分光

パイブロン熱緩和は最終的には熱緩和によって支配される。熱緩和の限界を定量的に把握するため、パイブロン熱緩和の測定を行った。用いた方法は熱レンズ分光法である。532nm のパルスレーザーにより誘導ラマン過程でパイブロンを励起し、緩和により発生する熱レンズ効果を連続レーザーによりモニターして熱緩和の速度を決定する。熱緩和の時定数は 5 K で約  $40 \mu s$  であり温度を 10 K に上昇させることにより 3 倍程度速くなることが見出された。

### 固体水素の光散乱計測

固体水素の結晶評価の視点からコヒーレントブリルアン分光測定を行った。また、固体水素結晶は hcp 構造を有する一軸性結晶であるので c 軸の方向を決定する目的で偏光回転の測定を併用した。複数のグレインが存在する結晶ではそれに対応するブリルアンスペクトルが観測された。それぞれのブリルアン線幅は 10 MHz 以内であった。ブリルアンシフトの c 軸に対する角度依存性を系統的に測定し弾性定数等を決定した。一旦、信頼できる弾性定数が求めれば、ブリルアン計測により容易に結晶の c 軸の方向を推定することができる。

### 今後の展望

現状まで本計画はほぼ順調に進展している。計画の骨格をなす強結合非線形光学の研究は、より一般的で任意性のある大きなコヒーレンスを用いる光学過程にその物理的質を高めつつある。この過程の任意性は、長波長領域は THz 領域から短波長は真空紫外領域までの様々なコヒーレント光を任意に発生できる可能性を示している。また、固体水素中での超低速光を用いて新しい非線形光学過程をデザインするのも重要である。液体水素液滴の示す超高 Q 値は共振器非線形光学に新しい可能性を提示している。今後の重要な課題は第 1 に液滴共振器サイズ精密な制御でありまた第 2 に固体水素への拡張である。電子励起状態が共鳴的に関わる光学過程については、固体水素中への原子のドーピング技術を早急に確立することが必要である。