

「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分光・物性測定に関わる研究を展開している。

固体水素を光学媒質として強結合状態を達成する事により、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。本年度においては更に自己誘起位相整合の物理を理論的・実験的に解析し制御性を持った手法へ一般化する試みを行い、「インコヒーレント光による非線形光学」を実現する見通しを得た。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進展しつつある。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つつある。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っている。

今後の展開として、非線形光学過程の量的発展と共に質的発展が重要である。質的発展の第1 の候補として、「光パルスの伝播速度の超低速化とそれに伴う非線形性の著しい増大」の効果を用いる非線形光学過程がある。最近の我々の理論的研究によれば極めて短い相互作用長で大きな非線形効果が期待される新しい光学過程である。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。

2. 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・物性計測を実施している。計画第 2 年度である平成 10 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 10 年度の研究実施内容を記す。

(1) 非線形光学／量子光学

① 強結合非線形光学：固体水素の誘導ラマン散乱

固体水素の誘導ラマン過程では、強結合状態 (Dressed State) が自発的に生成し位相整合が自動的に満たされる。この効果は基本的には固体水素が孤立原子にも匹敵する遅い位相緩和時間を有するため、誘導ラマン過程において大きなラマンコヒーレンスが誘起される事によるものである。今年度においては、このコヒーレンス生成過程を 2 台の単一周波数パルスレーザーで制御し、より広汎な光学過程に拡張する試みを実験的・理論的に行った。また固体水素による定常的なラマン増幅の研究を行った。

①-1 量子クリスタル発振器

2 台のレーザーで制御・生成された固体水素の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 4100cm^{-1} (120 THz) のサイドバンドを高効率に発生できる。その実証としてここでは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た。その結果、固体水素系ではプラス 1 次、マイナス 1 次のサイドバンドがそれぞれ 30% と極めて高い効率で発生できる事を示した。この結果は固体水素に生成したコヒーレンスは理論的に予測されるよう、いわば量子クリスタル発振器とも言える特性を示すものであることが実証された。理論的にはビートする光としては、インコヒーレント光でもまた単一光子レベルでも良い。更なる展開が重要である。

①-2 サブフェムト秒光パルスの発生

2 台の単一周波数のナノ秒のパルスレーザーにより固体水素に生成したラマンコヒーレンスを用いる事により紫外から赤外にわたる位相制御された高次のサイドバンド系列を発生させる事が可能であり、その結果サブフェムト秒の短パルス光が発生できる事を理論的に解析的及び数値計算により示した。この際の要点は、強結合系を共鳴 3 準位系のダークステートに対応する反結合状態に準備する事であり、それは 2 台のレーザーの差周波数をラマン共鳴からマイナス側に 100MHz 程度離調する事により達成できる。入射パワーは 10GW/cm^2 程度が要求される。

①-3 固体水素によるラマン増幅

連続動作の強結合を実現するための基礎実験として連続動作のラマン増幅の実験を行った。励起には単一周波数の cw-YAG レーザーを用いた。3.5W の出力を直径約 100 ミクロンに集光する事により 1 cm の相互作用長の下で波長 683 nm の第 1 ストークス光において 2 倍の増幅率を得た。またラマン増幅の帯域（スペクトル線幅）は半値半幅で 8 MHz とほぼ装置分解能で決まるものである。また求めたラマン分極率は気相の水素分子の値とほぼ一致し、屈折率の対応も含め、固体水素が孤立水素分子の凝縮系というモデルが電子励起状態も含めて妥当である事が示唆された。

② 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。ドロプレットの光共振器としての Q 値として 1.5×10^9 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 532 nm で 100 MW/cm^2 程度の励起により 400 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ラマンサイドバンドが発生する事を見出した。

(2) 固体水素の基礎的分光・物性計測

① 固体パラ水素中の励起状態とその緩和

固体パラ水素中の各種光学過程を理解するうえで、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は重要である。今回、固体パラ水素中に捕捉したメタンの振動回転状態の線幅の温度依存性を高分解能分光の手法で詳細に追跡した結果、変角振動励起状態の緩和はほぼ純粋な位相緩和で起こるのに対して、伸縮振動励起状態の緩和はフォノンへのエネルギー緩和が支配的であることが明らかとなった。それぞれの位相緩和幅は 4.2K でほぼ 600MHz であるが、温度の 4 乗に比例して変化することから、固体の温度の冷却が緩和を押さえるために非常に重要であることが明らかとなった。

② 固体パラ水素の結晶状態

微量に混在させた不純物の振動回転状態の観測から固体パラ水素の結晶状態を評価することができることを明らかにした。常圧・ヘリウム温度における固体パラ水素の安定構造は六方最密充填構造(hcp)であることが知られてい

るが、もう一つの最密充填構造である面心立方構造(fcc)もこれとほぼ同じエネルギー状態にあることから、結晶の作り方によってこれらの混晶となる可能性もある。我々は hcp と fcc で結晶の対称性が異なることに注目し、この中に捕捉したメタンの振動回転状態の違いから部分的な結晶構造の違いをはっきりと区別できることを示した。

③ 固体水素の光散乱計測

サブ MHz の分解能で音響フォノンを含む超低周波数のモードを計測するレーザー分光システムを開発すると共に、タンデム型ファブリーペロー分光器により Brillouin 散乱を系統的に計測した。TA モードと共に LA モードも明瞭に観測した。また逆ラマン散乱、ラマン散乱分光により振動モード・光学フォノン TO モードの特性を計測し、線幅のオルソ水素濃度依存性を明らかにした。

3. 主な研究成果の発表 (論文発表)

- Fam Le Kien and K. Hakuta, "Production of coherence of a nonallowed transition in the stationary regime of a Raman scattering scheme", *Physical Review A*, Vol.59, 2458-2467 (1999).
- M. Katsuragawa, M. Suzuki, R.S.D. Sihombing, J.Z. Li, and K. Hakuta, "Nonlinear Optics in Solid Hydrogen", *Laser and Particle Beams*, Vol 16, 641-648 (1998).
- J.Z. Li, M. Katsuragawa, M. Suzuki, and K. Hakuta, "Stimulated Raman scattering in solid hydrogen: Measurement of coherence decay", *Physical Review A*, Vol. 58, R58-R60 (1998).
- M. Suzuki, M. Katsuragawa, R.S.D. Sihombing, J.Z. Li, and K. Hakuta, "Solid hydrogen for nonlinear optics", *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 111, 463-468 (1998).
- M. Katsuragawa, M. Suzuki, J.Q. Liang, J.Z. Li, R.S.D. Sihombing, and K. Hakuta, "Stimulated Raman scattering with strong-coupling in solid hydrogen", *Journal of Low Temperature Physics*, Vol. 111, 497-502 (1998).
- 黒田圭司、佐藤睦、白田耕蔵：固体水素の低周波固有モードの計測，レーザー学会研究会報告，RTM-98-59, pp. 13-18(1999).

他2件