

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 22 日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17651

研究課題名(和文)量子固体を用いた固体マクロコヒーレント増幅の検証

研究課題名(英文)Verification of macro-coherent mechanism in quantum solid

研究代表者

宮本 祐樹 (Miyamoto, Yuki)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・特任講師

研究者番号：00559586

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：ニュートリノの未知の性質を原子分子過程によって明らかにしようという新しい試みであるニュートリノ質量分光にとって、その基本原理の一つであるマクロコヒーレント増幅を高密度環境下で実現することは重要なステップである。本研究では、量子固体である固体パラ水素中で二光子放出過程をコヒーレント増幅することに成功した。高密度かつデコヒーレンス時間が長いという固体パラ水素の特性により観測された二光子放出は、励起過程が終了した後も強度が増大するという特徴ある振る舞いを示した。

研究成果の概要(英文)：Realization of “macro-coherent amplification” in high density environment is an important step for “neutrino mass spectroscopy”, which is a newly proposed method aiming to reveal unknown properties of neutrinos. In the present study, I succeed in observing the coherent amplification of two-photon emission in solid parahydrogen, known as a quantum solid. The intensity of the two-photon emission develops even after excitation. This is probably due to high density and long decoherence time of the solid parahydrogen.

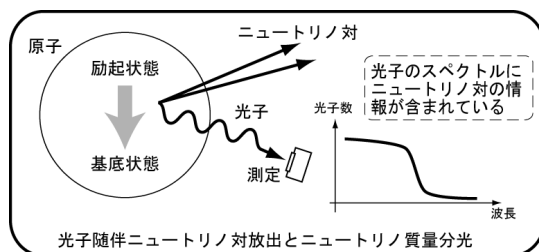
研究分野：分子科学

キーワード：コヒーレンス 固体水素 二光子放出

### 1. 研究開始当初の背景

近年、振動実験による混合角の決定などニュートリノの性質は次々と解明されてきた。しかし未解決の「質量絶対値」や「質量様式(マヨナラ/ディラック)」といった問題は、標準理論をこえる物理を構築するための重要課題であり、今なお世界中で盛んに研究が行われている。

これらニュートリノ物理に残る課題を解決しうる手法として、吉村らは原子過程を利用する「ニュートリノ質量分光」を提案した[1]。この手法では、励起された原子からニュートリノ対と光子が同時に放出される過程(光子随伴ニュートリノ対放出)において、光子スペクトルに、ニュートリノの「質量絶対値」や「質量形式」などの豊富な情報が含まれることを利用する(下図)。観測の難しいニュートリノに比べ、光子のスペクトルは分光学的手法により容易に測定できるため、この手法は上記の未解決課題に対する有力な手法となりうる。一方で、光子随伴ニュートリノ対放出はレートが小さいという欠点を持つ。この欠点を原子系のコヒーレンスを利用することによって克服することがニュートリノ質量分光の戦略である(マクロコヒーレント増幅)。このレート増幅は、コヒーレントなN粒子系のイベントレートが $N^2$ に比例することを用いたもので、ニュートリノ質量分光の実現にとって必須の機構である。



光子随伴ニュートリノ対放出は標準理論の枠内で存在が確実であるが、マクロコヒーレント増幅が理論通りに機能するかは不明であった。そこで研究代表者らはその検証のために、比較的観測が容易と考えられた二光

子放出の増幅を試み、水素分子の振動準位間の二光子放出レートを $10^{18}$ 以上増幅することに成功した[2]。これはニュートリノ質量分光に向けた最初の実験的成果である。しかしながら、よりレートの小さい光子随伴ニュートリノ対放出を観測するには、さらに大きな増幅率が必要である。

[1] Prog. Theor. Exp. Phys. 2012, 04D002 (2012).

[2] Prog. Theor. Exp. Phys. 2014, 113C01 (2014).

### 2. 研究の目的

コヒーレント増幅はターゲット数の二乗で決まるため、増幅率を上げるにはターゲット数を大きくすることが効果的である。しかし大きな体積の全体にわたってコヒーレンスを維持することは困難であり、ターゲットの密度を大きくすることが現実的な解決法である。その行き着くところはターゲットを凝縮体にするのである。現実的なニュートリノ質量分光のターゲットは凝縮体にならざるを得ないため、凝縮相中でのマクロコヒーレント増幅を実際に観測すること、また、そのような高密度下でのコヒーレント増幅のふるまいを定量的に知ることはニュートリノ質量分光の実現にとって重要である。そこで本研究では固体中で二光子放射のマクロコヒーレント増幅を観測し、その定量的評価から高密度領域でのマクロコヒーレント増幅について知見を得ることを目標とする。

### 3. 研究の方法

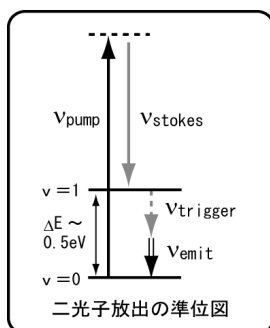
ターゲットを固体にした場合の問題点はそのコヒーレント時間の短さである。一般的に固体中の原子は周囲と強く相互作用しているため、コヒーレントの緩和が非常に早く(ナノ秒以下)、コヒーレント増幅の観測は難しい。コヒーレント現象を観測するには現象の時間スケールがコヒーレント時間より短くな

なければならないため、本実験のようにレートに小さい過程（ナノ秒以上）を観測する場合には特に困難である。

そこで本研究では固体パラ水素をターゲットとして用いる。パラ水素は、核スピンゼロの水素分子であり、その特異な性質から量子固体と呼ばれる。本研究における利点としては

- ・振動状態が一光子遷移禁制であり、二光子放射実験のターゲットとして優れている
- ・固体としてはデコヒーレンス時間が長いことが上げられる。固体パラ水素では、振動状態のデコヒーレンス時間は100ナノ秒程度あり、これはドップラー広がりによりデコヒーレンス時間が制限される気体水素のものより長い。本実験の時間スケールはナノ秒程度であるため十分な長さである。

具体的な実験スキームを下図に示す。作成した固体パラ水素ターゲットの振動状態間に、誘導ラマン散乱によりコヒーレンスを生成する。生成されるコヒーレンスの大きさは入射光（pump, stokes）の強度と線幅によって決まるが、本実験では高強度と狭線幅を同時に達成できる可視光ナノ秒パルスを用いる。二光子放出強度は非常に小さいため、コヒーレンスを生成するだけでは二光子放出は起こらないが、ターゲットに、振動準位間エネルギー以下の中赤外光（トリガー光、trigger）を入射することで二光子放出を起こすことができる。二光子放出は振動エネルギーと trigger 光のエネルギーの差を持つ中赤外光（emit）を観測することで観測することが出来る。

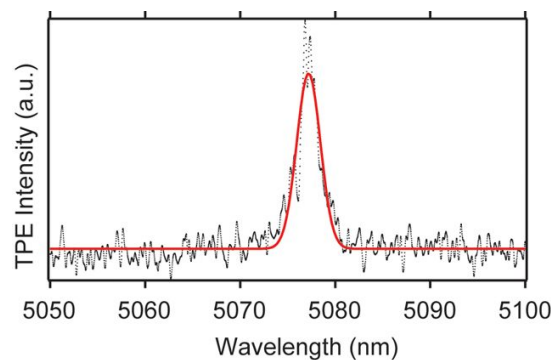


本研究では、発生する二光子放出光強度が結晶温度や不純物濃度などの実験パラメータに対し、どのような依存性を示すかを詳細に測定した。

#### 4. 研究成果

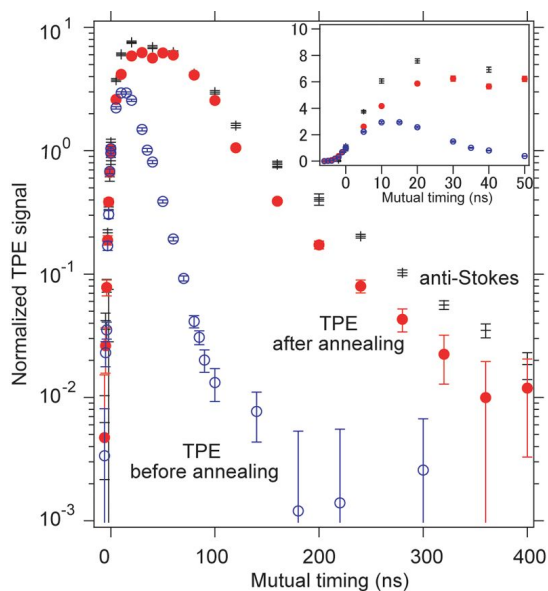
二光子放出実験に先立ち、トリガーに使う波長可変高強度狭線幅中赤外ナノ秒パルスレーザーを開発した。可視光領域に比べ、レーザー技術が発展していない中赤外領域においては、高強度かつ狭線幅という条件を同時に満たすシステムはこれまであまり研究されていなかった。本研究では一般的なナノ秒パルス Nd:YAG レーザーを励起光とした差周波システムにより、線幅 $\sim 1$  GHz かつ出力パルスエネルギー $\sim 1$  mJ の中赤外光発生を達成した。この成果は Japanese Journal of Applied Physics より発表した（主な発表論文等〔雑誌論文〕）。この光源は中赤外光によるラダー型の振動状態コヒーレンス生成に用いることもでき、今後の研究においても重要な光源である。

下図に観測された二光子放出光（emit）のスペクトルを示す。トリガー光の波長は4586 nm であり、観測された光子の波長は5077 nm であった。二つの光子のエネルギー和は誤差の範囲内で水素分子の振動エネルギーに一致し、観測された光子が二光子放出によるものであることがわかる。



前述のように固体パラ水素のデコヒーレンス時間は100ナノ秒近くあるため、本実験に用いているパルス幅（数ナノ秒）に比べて

充分長い。この長いデコヒーレンス時間により、生成されたコヒーレンスは励起パルスがターゲット固体中を通過したあとにも残ることが予想される。そこでトリガー光を励起パルスから遅らせて入射させた。下図に励起パルスとトリガー光の時間差に対する二光子放出強度の依存性を示す。

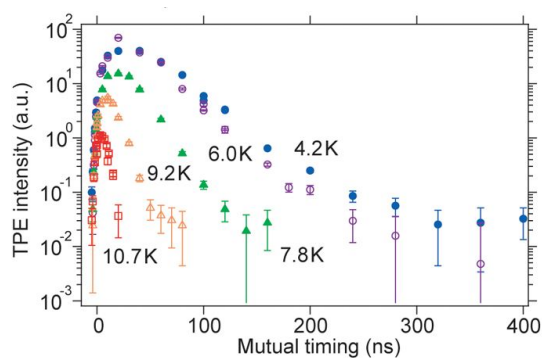


図より明らかなように、励起パルス電場消失後、数百ナノ秒にわたり二光子放出が観測された。また、結晶のアニーリング（ターゲット結晶作成後、1 ターゲット温度を昇温し結晶の不均一性を取り除くこと。本研究では 10K を 30 分維持した。）によりデコヒーレンス時間が劇的に長くなることもわかった。

本研究が明らかにした興味深い点の一つが、上図において、二光子励起強度が励起パルス消失後に増大している点である。本研究で用いている励起レーザーの光強度はピークから 10 ナノ秒後には 1/100 以下になっていくことが測定からわかっている。励起光電場がほとんど存在しないにもかかわらず二光子放出強度が増大する、つまり振動準位間のコヒーレンスが発達することは単純な光学的プロッホ方程式からは考えにくい。超放射による自発的コヒーレンス発達を起こすには本研究における励起パルスは弱いというえに、そのような発達には光子の発生が不可欠

であるが、そのような光子は観測されていないためである。今回観測された自発的発達に類似の現象がこれまでいくつか報告されているが[3, 4]、その物理的な原因は明らかになっていない。光学的プロッホ方程式からは導出できないため、方程式にあらわに含まれていない、たとえば分子間相互作用が原因であると考えられる。今後のより詳細な実験的、理論的研究が望まれる。

固体パラ水素のデコヒーレンス時間は、前述のアニーリングのほか、ターゲットの温度や不純物として含まれるオルソ水素濃度などに依存している。一例として下図に二光子放出強度のトリガー光タイミング依存性がターゲット温度によってどのように変化するかを示す。ターゲット温度が高くなるにつれ、信号強度が短い時間で消失することがわかる。これはフォノンによるデコヒーレンスが高温ほど早いと考えられる。同様の現象はターゲット中のオルソ水素濃度を上昇させることでも観測された。



以上の成果をまとめて Journal of Physical Chemistry A より発表した（主な発表論文等〔雑誌論文〕）。本研究は、固体環境でのマクロコヒーレント増幅を実証したのみならず、増幅機構がデコヒーレンス時間に大きく影響されることを示した。さらに励起電場が存在しない状況下でもコヒーレンスが発達するという現象を観測した。この現象は、単純な理論的考察からは導き出せない現象であり、原子・分子物理における非常に興味深い現象であると言える。

本研究では二本の励起パルスを同方向から入射し、ラマン散乱によりコヒーレンスを生成しているが、質量をもつニュートリノを発生させるニュートリノ質量分光では、逆方向に進むパルスによりラダー型で励起する必要がある。今後は、そのような励起ジオメトリにおけるマクロコヒーレント増幅の実証およびその性質の研究を行っていく予定である。

[ 3 ] Status Solidi B 206, 65 (1998).

[ 4 ] J. Chem. Phys. 138, 024507 (2013).

## 5 . 主な発表論文等

( 研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線 )

[ 雑誌論文 ] ( 計 2 件 )

Yuki Miyamoto, Hideaki Hara, Takahiko Masuda, Noboru Sasao, Satoshi Uetake, Akihiro Yoshimi, Koji Yoshimura, and Motohiko Yoshimura, “Vibrational Two-photon Emission from Coherently Excited Solid Parahydrogen.” Journal of Physical Chemistry A [査読あり], accepted (2017).

DOI: 10.1021/acs.jpca.7b02011

Yuki Miyamoto, Hideaki Hara, Takahiko Masuda, Takahiro Hiraki, Noboru Sasao and Satoshi Uetake, “Injection-seeded tunable mid-infrared pulses generated by difference frequency mixing”, Japanese Journal of Applied Physics [査読あり], 56, 032101 (2017).

DOI:10.7567/JJAP.56.032101

[ 学会発表 ] ( 計 2 件 )

Yuki Miyamoto, Hideaki Hara, Takahiko Masuda, Satoshi Uetake, Noboru Sasao, Akihiro Yoshimi, Koji Yoshimura, Motohiko

Yoshimura, “Observation of coherent vibrational two-photon emission from solid parahydrogen”, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016/9/16 ( 金沢 )

Yuki Miyamoto, “Coherent frequency conversion using quantum solid”, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015, 2015/12/15-2015/12/20, (Honolulu, USA) .

[ その他 ]

ホームページ等

<http://www.xqw.okayama-u.ac.jp/>

<https://sites.google.com/site/yukimiyamoto00/>

## 6 . 研究組織

(1) 研究代表者

宮本 祐樹 (Miyamoto, Yuki)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・講師

研究者番号 : 00559586