

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：32601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2021

課題番号：18K04984

研究課題名（和文）ヨーク超蛍光の空間ビーム形状を用いた新規非線形分光法の開拓

研究課題名（英文）Development of a nonlinear spectroscopy using a spatial profile of yoked superfluorescence

研究代表者

北野 健太 (Kitano, Kenta)

青山学院大学・理工学部・助教

研究者番号：90586900

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：超蛍光とは励起状態にある原子集団が自然放出過程を介して自発的に量子もつれ状態を形成し、その帰結としてコヒーレントな光を放出する現象である。フェムト秒レーザーに代表される超短パルスで原子集団を励起すると、超蛍光によって多様な非線形光学現象（以下、非線形超蛍光現象）が誘発される事が知られている。本研究では、二光子励起二光子脱励起、一光子励起三光子脱励起の二種類の非線形超蛍光現象に関して研究した。その成果として、前者では基底状態への発光に相当するヨーク超蛍光の時空間プロファイルを解明した。後者では、外部光を用いた非線形超蛍光現象の制御、ならびに二色の輻射場に関する偏光の相関を解明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子多体系には今だ発見されていない新奇な制御状態が数多くあると考えられる。それらが発見する事は量子多体系を用いた量子デバイス開発の基盤となるため重要な社会的意義を有する。本研究対象である非線形超蛍光現象は量子多体系による輻射現象である。一連の過程は、レーザー光源によって原子集団に与えられたコヒーレンスと超蛍光によって自発的に形成されるエンタングルメントとが競合する事によって実現される非線形光学過程であると理解されている。一方で未だ正確な理論が開発されておらず、現時点では未踏の研究領域である。本研究ではガスセルを用いた各種の実験によって、非線形超蛍光現象の新奇な性質を発見する事に成功した。

研究成果の概要（英文）：Superfluorescence (SF) is a coherent pulse emitted from an atomic ensemble which is initially populated on its excited state. It is known that SF can induce a variety of nonlinear optical processes, which we call as SF nonlinear optical processes (SFNOPs). In this research, we have investigated the two types of SFNOPs. One is two-photon absorption followed by two-photon emission, the other is one-photon absorption followed by three-photon emission. For the former case, we clarified spatiotemporal profiles of the yoked SF, which originates in the transition to the ground state. For the latter case, we succeeded in controlling the SFNOPs by using an external laser field. In addition, we observed the polarization correlation in the two fields emitted in the SFNOPs.

研究分野：超高速分光

キーワード：超蛍光 量子多体系 非線形光学

### 1. 研究開始当初の背景

近年、超蛍光によって誘起される非線形光学現象(以下、非線形超蛍光現象)が数多く報告されている。非線形超蛍光現象では、超蛍光による遷移がカスケード的に起こるため、それに伴って二色以上のコヒーレントな輻射場が放出される。特に基底状態への遷移に伴う発光はヨーク超蛍光と呼ばれ、位相整合条件による制約から他の超蛍光と比較して高い指向性を有する事が知られている。本研究開始以前において、我々はヨーク超蛍光が特徴的なリング形状のビーム形状を示す事を発見し、励起過程における二光子ラビ振動に起因する事を実証した。この事は励起過程における電子状態間のコヒーレンスがヨーク超蛍光の電場へと転写させる事を示唆しており、ヨーク超蛍光を用いた新奇非線形分光法を開発する事が期待された。

### 2. 研究の目的

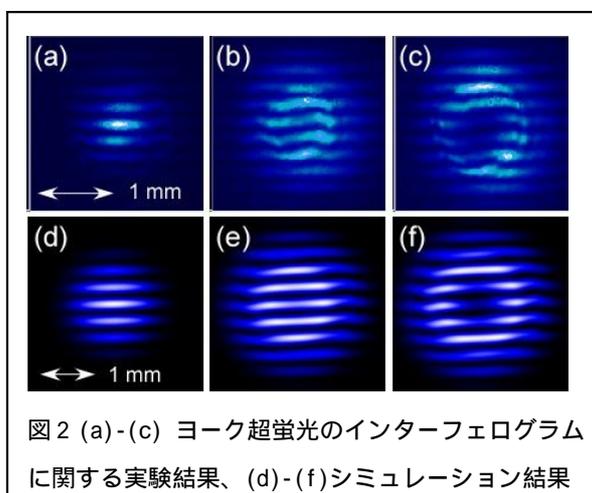
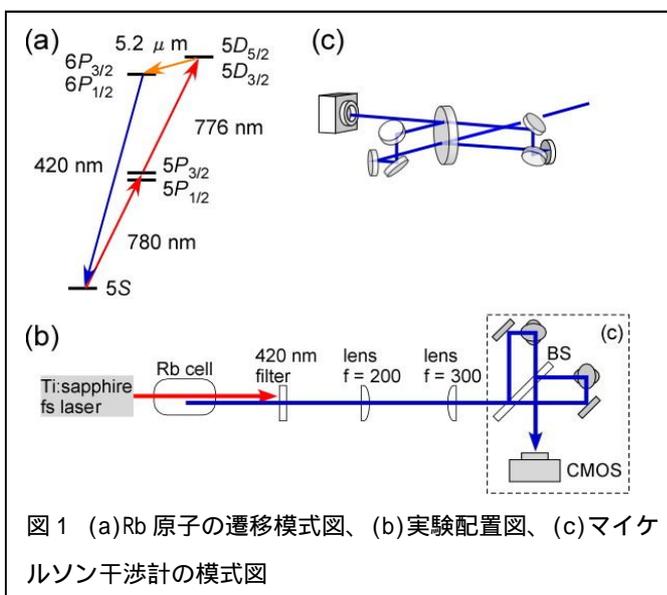
- (1) ヨーク超蛍光のビーム形状、波面を計測する事によって、励起過程における電子状態間のコヒーレンスがヨーク超蛍光の電場へと転写される事を実証する。
- (2) ヨーク超蛍光に加えて、非線形超蛍光現象で放出される全ての輻射場について、時空間プロファイルを計測する事で非線形超蛍光現象の基礎的な性質に関する知見を得る。さらに、シングルショット計測を導入する事によって、超蛍光による量子揺らぎを観測する。

### 3. 研究の方法

研究対象は、ルビジウム原子(Rb)およびセシウム原子(Cs)である。いずれもガラスセル内に封入し、セルを加熱する事によって高い蒸気圧を実現する。セルにフェムト秒レーザーを照射する事によって原子集団をコヒーレントに励起する。非線形超蛍光現象によって放出される輻射場を各種のディテクタならびに分光法によって検出する。解析方法としては、マックスウェル・ブロッホ方程式の数値解によるシミュレーションを実施する。

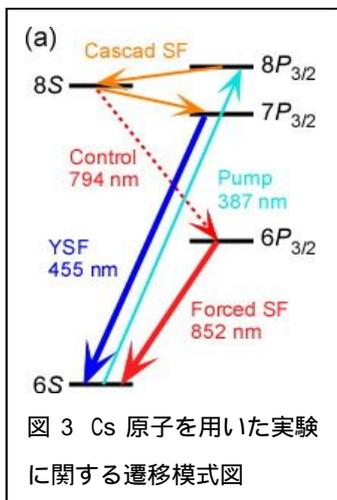
### 4. 研究成果

(1) 中心波長 782 nm のフェムト秒レーザーを用いて加熱したガラスセル内の Rb 原子を励起し、放射される波長 420 nm のヨーク超蛍光を観測した。遷移モード図を図 1(a) に示す。励起光強度を上げていくと、ヨーク超蛍光のビーム形状は特徴的なリング形状となる事が先行研究によって報告されていた。これは 5S-5D 間の二光子ラビ振動によるものであると考えられる。一般的にラビ振動の変曲点の前後では位相が反転する事が知られている。そのため、ヨーク超蛍光のビーム形状がリング形状を示す時、リングの内側と外側では位相が急激に変化し、波面が湾曲する事が期待される。この事を実証するために、図 1(c) のようなマイケルソン干渉計を製作し、ヨーク超蛍光の波面を観測した。実験結果を図 2(a)-2(c) に、シミュレーション結果を図 2(d)-2(f) に示す。励起光強度を上げていくと(図中(a) (b) (c))、ビーム形状がリング形状へと変化し、それと同時に干渉縞が湾曲する。これはヨーク超蛍光の波面が湾曲している事を実証している。さらに実験結果はシミュレーション結果によっても再現された。以上の内容から我々は次の事を結論付けた。第一に非線形超蛍光現象はコヒーレントな現象であり、5S-5D の電子波束の位相がヨーク超蛍光の電場位相に転写される事。第二に 5D-6P の遷移に伴う超蛍光の電場位相はヨーク超蛍光のそれとは対照的に空間的に一様であ



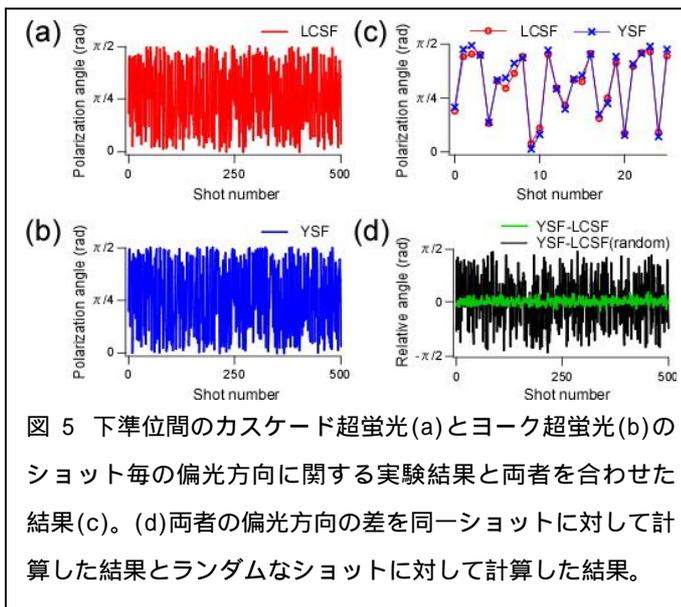
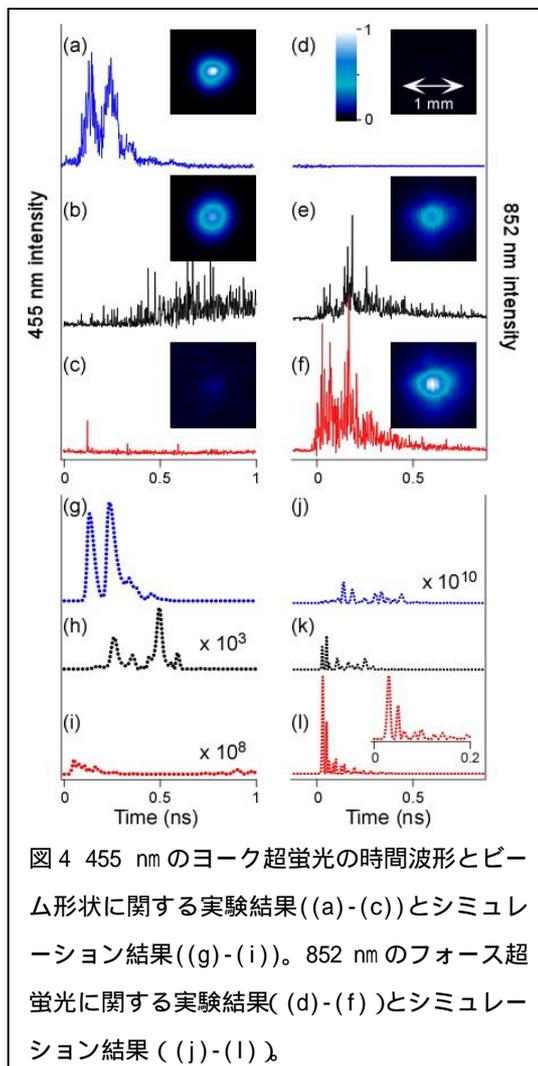
る、という事である。

(2) 図1のRb原子を用いた非線形超蛍光現象では、超蛍光の波長は5200 nmでありガラスセルによる吸収のために観測する事ができない。そこで、Cs原子を用いた非線形超蛍光現象の研究を実施した。図3に遷移模式図を示す。波長387 nmのフェムト秒レーザーをCs原子を封入したガラスセルに



照射し、6Sから8Pへと励起させた。三光子放出に伴って、カスケード超蛍光とヨーク超蛍光が放出される事を確認した。一連の脱励起過程を光を用いて制御する事を試みた。具体的にはフェムト秒レーザーと同期させた波長794 nmの色素レーザーをコントロールパルスとして用いて、フェムト秒レーザーと併せて照射した。その結果、コントロールパルスを照射した場合に限って、波長852 nmのフォース超蛍光を観測する事に成功した。図4(a)-4(f)に実験結果を、図4(g)-4(l)にシミュレーション結果を示す。コントロールパルスの強度を上げていくと(図中(a)(b)(c)あるいは(d)(e)(f))、455 nmのヨーク超蛍光の強度が極端に減衰し、代わりに852 nmのフォース超蛍光の強度が増強する事が分かる。この様子はシミュレーション結果によって定量的に再現された。以上の事から非線形超蛍光現象を光学的に制御する事に成功した。

(3) 図3のカスケード超蛍光とヨーク超蛍光に関して複数ショットを平均した計測法によって偏光を測定したところ、8P-8Sの上準位間のカスケード超蛍光の偏光は励起光と同じ直線偏光であるのに対して、8S-7Pの下準位間のカスケード超蛍光ならびに7P-6Sのヨーク超蛍光の偏光は無偏光である事が分かった。非線形超蛍光現象はコヒーレントな過程である事から、下準位間のカスケード超蛍光とヨーク超蛍光の偏光は相関している事が期待される。この事を実証するために両者の偏光方向をシングルショットで計測した。実験結果を図5に示す。図中(a)、(b)にはそれぞれ下準位間のカスケード超蛍光、ヨーク超蛍光の偏光方向をショット数に対して表示している。図中(c)には両者を合わせて表示した。これらの結果から両者の偏光方向は極めて強い相関をもちつつショット毎にランダムに揺らいでいる事が分かる。図中(d)には同一ショット間およびランダムなショット間の両者の偏光方向の差と表示している。



図中(c)には両者を合わせて表示した。これらの結果から両者の偏光方向は極めて強い相関をもちつつショット毎にランダムに揺らいでいる事が分かる。図中(d)には同一ショット間およびランダムなショット間の両者の偏光方向の差と表示している。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kenta Kitano, Masataka Sato, Yuki Komasa, and Haruka Maeda	4. 巻 102
2. 論文標題 Nonlinear optical processes driven by superfluorescent fields and their controllability with external laser fields	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 301101:1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.102.031101	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kitano Kenta, Maeda Haruka	4. 巻 100
2. 論文標題 Unveiling the mechanism of wave-front distortion of superfluorescent pulses	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 041803:1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.100.041803	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kitano Kenta, Maeda Haruka	4. 巻 97
2. 論文標題 Spatiotemporal profile of yoked superfluorescence from Rb vapor in the strong-excitation regime	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 063418:1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.97.063418	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kenta Kitano, Hajime Tomida, Daigo Takei, Haruka Maeda	4. 巻 46
2. 論文標題 Polarization correlation in the superfluorescent decay process	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 5055-5058
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.436250	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 北野健太、前田はるか
2. 発表標題 ヨーク超蛍光の波面測定
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 北野健太、前田はるか
2. 発表標題 ヨーク超蛍光の時空間強度プロファイル測定
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 北野健太、前田はるか
2. 発表標題 超蛍光による輻射緩和過程おける偏光の相関
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------