

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 5 月 29 日現在

機関番号：15301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24654132

研究課題名(和文)二光子レーザー開発を目指した、二光子遷移レート的人為的操作方法の探索

研究課題名(英文)Controlling of two-photon transition rate towards two-photon laser oscillation

研究代表者

植竹 智(Uetake, Satoshi)

岡山大学・自然科学研究科・准教授

研究者番号：80514778

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目標は、原子・分子集団からの二光子放射レートを人為的に増強し、二光子レーザー発振実現に向けた基礎研究を進めることである。研究の鍵を握るのは、原子・分子集団間の共同効果を利用した二光子放射レート的人為操作である。本研究では、1立方センチあたり10の20乗個の密度であるパラ水素分子に高いコヒーレンスを誘起することに成功した。また、このコヒーレンスを用いて二光子遷移レートを増強することに成功し、水素分子の振動励起状態からの二光子放出の観測に成功した。自然放出に比べた二光子放出レートの増幅率は10の18乗以上であり、二光子レーザー発振の実現に向けて研究が大きく進展した。

研究成果の概要(英文)：In this research project, we investigate a way to enhance the two-photon emission rate by using atomic/molecular coherence. Two-photon lasing is difficult because the two-photon emission rate is very small in general. Thus a high two-photon emission rate is required in order to realize the "two-photon laser". In this research, we succeeded to observe the two-photon emission from vibrationally excited state of para hydrogen gas, whose density of 10 to the 20th per cubic centimeters. The spontaneous two-photon emission from vibrationally excited state of para-hydrogen is almost impossible because the emission rate is very small. Thus the observation of two-photon emission means that we succeeded to obtain a high rate enhancement. The enhancement factor is estimated to be 10 to the 18th. These results play an important role for future realization of a two-photon laser.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：二光子放出 マクロコヒーレント

1. 研究開始当初の背景

二光子レーザーのコンセプトは比較的古く、1964年にはそのアイデアが出されていた [IBM J. Res. Dev. 8, 177 (1964)]. 通常の一光子レーザーの概念を拡張したものである。マイクロ波領域では1987年に二光子レーザー発振が実現されたものの、今日に至るまで光領域での二光子レーザー発振は実現されていない。その主な理由として、一般に光領域では二光子放出レートが一光子放出レートに比べて極端に小さく、レーザー発振に必要なゲインを得ることが難しい点が挙げられる。光領域で二光子遷移の誘導増幅に成功した先行研究では、図1(a)のラダー型エネルギー準位構造を持つ原子が用いられた。ラダー型は二光子遷移の仮想準位と中間状態 $|j\rangle$ とのエネルギー差 $\Delta$ が小さいため、図(b)のラムダ型と比べて二光子遷移レートが比較的大きいことが特徴である。しかしながら、ラダー型の利点はそのまま欠点ともなる。すなわち、 $|e\rangle \rightarrow |g\rangle$ への二光子遷移よりも中間状態 $|j\rangle$ への一光子遷移が起こる確率の方が圧倒的に高いため、 $|e\rangle \rightarrow |j\rangle \rightarrow |g\rangle$ とカスケードに一光子でdecayする過程の方が圧倒的に強く起こる。そのためラダー型を用いた先行研究では、カスケード一光子decayに打ち勝つことができず、二光子レーザー発振は観測できていない。

二光子レーザーの実現はその基礎的な物理への興味だけでなく、

- (1) 究極の周波数安定度を持つ、最高性能の光周波数標準レーザーとなり得る
  - (2) エンタングル光子ペアを非常に高効率で生成するソースとして動作
- など従来にない画期的な光源として利用できるように、応用上のインパクトも大きい。

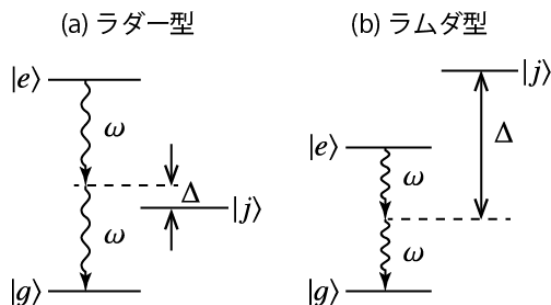


図1: 二光子遷移可能なエネルギー準位

2. 研究の目的

本研究では、ラムダ型のエネルギー準位構造を基本スキームとした。ラダー型は $|e\rangle$ が準安定状態となるため、速いカスケード一光子decayと二光子過程の競合はない。二光子遷移レートはラダー型に比べると数桁小さくなるが、天然の二光子遷移レートに頼るのではなく、原子や分子集団の共同効果によって二光子放射レートを人為的に増強することを研究の目標とした。原子・分子集団の共同効果を用いて一光子自然放出レートを増強

する試みはすでに実験で実現されており、Dickeの超放射として知られている。本研究はこれを二光子放出に応用し、二光子レーザー発振実現に向けた基礎研究を行うことが目的である。

3. 研究の方法

分子間の共同効果を使って二光子放出レートを増強するには、分子同士の量子力学的位相が揃ったコヒーレントな状態を用意する必要がある。分子間コヒーレンスは光子を媒介にして生成・発達する。コヒーレンスの生成には様々な方法が考案されているが、本研究では断熱Raman過程を用いて大きなコヒーレンス生成を行った。断熱Raman過程とは図2に示すようなラムダ型のエネルギー準位構造をもつ分子に、 $|e\rangle$ や $|g\rangle$ それぞれから1光子遷移可能な電子励起状態 $|j\rangle$ に非共鳴となる $\omega_0$ と $\omega_{-1}$ の2色のコヒーレント光を入射し、誘導Raman過程によって $|e\rangle - |g\rangle$ 間のコヒーレンスを生成する手法である。入射パルスの立ち上がりが十分ゆっくりとしている場合、系は断熱的に $|e\rangle + |g\rangle$ の重ね合わせ状態へ移行する。入射パルスエネルギーがピークとなる時 $|e\rangle - |g\rangle$ 間のコヒーレンスは最大となる。図2のようなエネルギー準位をもつ原子・分子は無数にあるが、本研究では液体窒素温度(77 K)に冷却したパラ水素分子気体を用いることとした。パラ水素分子はノーマル水素(オルソ/パラ比 3)に比べてデコヒーレンスが小さいこと、77 K付近でデコヒーレンスが最小となること、そして二光子放出を誘導するトリガ光の波長が約4.8  $\mu\text{m}$ であり、比較的観測しやすい領域にあることなどがその理由である。

パラ水素分子で大きな $|e\rangle - |g\rangle$ 間コヒーレンスを得るために必要なRaman励起光源の性能は以下の通りである。

- (1) パルス幅数 ns 程度
- (2) 狭線幅 (フーリエ限界, 線幅約 100 MHz)
- (3) 5 mJ 以上のエネルギー

水素分子は電子励起状態のエネルギーが高い(約10 eV, 波長110 nm程度に相当する)ため、 $\omega_0$  ( $\omega_{-1}$ )の波長選択には幅広い自由度がある。本研究では、広く普及して入手の容易なNd:YAG (Neodymium doped Yttrium Aluminum Garnet)レーザーの第2高調波(波長532 nm)を $\omega_0$ として用いた。フラッシュ

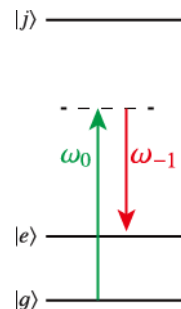


図2: ラマン遷移

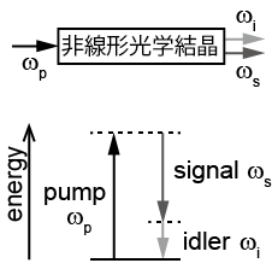


図 3：非線形波長変換技術

ランプ励起でパルス幅 8 ns, 繰り返し 10 Hz, 注入同期により 100 MHz 以下の線幅を持ち, 最大 130 mJ の出力が得られる.  $\omega_0$  として波長 532 nm を選択すると,  $\omega_{-1}$  の波長は 683 nm となる. この波長帯は線幅の狭い高出力光源が市販されていないため, 図 3 に示す非線形波長変換技術を用いた高品質レーザー光源を開発した.

また, 二光子放出レートは非常に小さいため, たとえ分子間の共同効果によりレートを増幅しても, 自然放出により二光子放射が起こる確率はかなり小さい. したがって二光子放射を誘導するためのトリガ光を準備する必要がある. 水素分子の場合トリガ光源に求められる性能は, (1) 波長 4.8  $\mu\text{m}$  付近, (2) パルスエネルギー 1  $\mu\text{J}$  以上, (3) 狭線幅 (フーリエ限界幅) の 3 点である. この性能を満たす光源も市販されていないため, 前述の非線形波長変換技術を用いた高品質光源を開発した.

#### 4. 研究成果

Raman 励起用として開発した波長 683 nm の光源 ( $\omega_{-1}$ ) は, パルスエネルギー 6 mJ 以上, 線幅 95 MHz (ほぼフーリエ限界幅) であり, 要求される仕様を満たす光源開発に成功した. Raman 励起用の  $\omega_0$  (532 nm) と  $\omega_{-1}$  (683 nm) の 2 色の光をパラ水素分子気体に入射すると, 図 4 に示すような多色の光が発生する. すべての光は入射光と同軸に出射するが, これをプリズムで分光し CCD カメラで撮影した. これらの光は Raman 散乱により生じた高次の

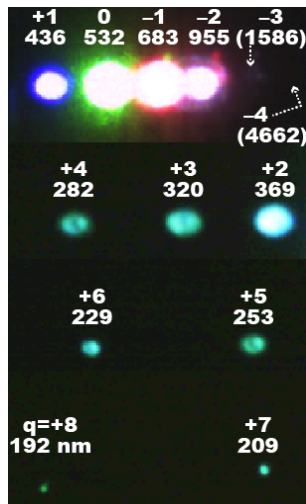


図 4：高次 Raman サイドバンド発生

ストークス光および反ストークス光であり, Raman サイドバンドと呼ばれている. 各 Raman サイドバンドの周波数は,  $q$  を整数として  $\omega_q = \omega_0 + q\omega_{eg}$  という式で与えられる. ここで  $\omega_{eg}$  は  $|e\rangle - |g\rangle$  間の周波数差である. 図にサイドバンドの次数  $q$  と対応する波長を nm 単位で示した. 通常, 分子間のコヒーレンスが小さい場合高次の Raman 過程はほとんど起こらない. ところがコヒーレンスが十分大きいと高次のラマンサイドバンドが容易に発生する. 図 4 に示すように, 深紫外 (192 nm) から中赤外 (4.6  $\mu\text{m}$ ) に渡る高次光の発生は高い分子間コヒーレンスを用意できたことを示している. 生成したコヒーレンスは観測した各 Raman サイドバンドのパワー比 (発生効率) を使って見積もった. 数値シミュレーションと比較したところ, コヒーレンスは約 0.03 (最大値の 6%) と見積もられた.

二光子放出を誘導するためのトリガ光源として, 狭線幅 (線幅 2 MHz) の光源開発に成功し, 平成 25 年度に論文を出版した (発表論文⑥). また, 論文とは別の方法によるトリガ光源の開発も平成 26 年度に行い, 波長 4.55  $\mu\text{m}$ , 出力 100  $\mu\text{J}$  以上の狭線幅光源の開発に成功した. 後者については現在投稿論文を準備している.

図 5 に観測した二光子対のスペクトルを示す. この図は分光器と中赤外検出器 (MCT 検出器) で測定したものである. 二光子放射を誘導するトリガ光として, Raman 散乱の 4 次ストークス光 (波長 4.66  $\mu\text{m}$ ) を用いた場合の結果である. 4 次 Stokes 光の二光子対は波長 4.96  $\mu\text{m}$  であり, 両方の光が観測されている. 観測された信号が確かに 4.96  $\mu\text{m}$  であることを確かめるため, 図のグレーの網掛け部分に示す透過特性を持つローパスフィルタ (LPF) を挿入した. LPF2 枚の場合 (b), LPF4 枚の場合 (c) と, LPF を増やすことで 4.66  $\mu\text{m}$  の光は強く減衰されているが, 4.96  $\mu\text{m}$  はあまり減衰されていない. この結果から, 観測した光は確かに 4.96  $\mu\text{m}$  であることがわかった. すなわち, 4 次ストークス光をトリガとして二光子放出を起こすことに成功した. この成果は発表論文②および学会発表, ホームページ等で公表した. また, 4 次 Stokes 光をトリガとした二光子放射だけでなく, 開発した波長 4.55  $\mu\text{m}$  の中赤外光

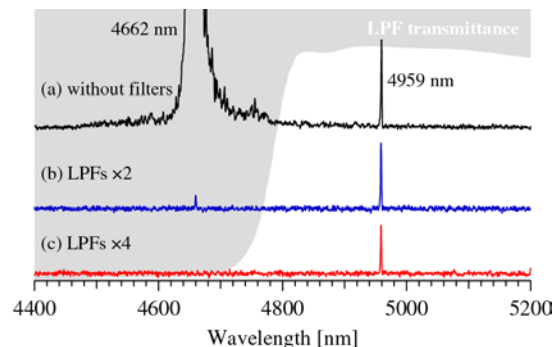


図 5：観測に成功した二光子放射スペクトル

源をトリガ光とした二光子放射にも成功した。この成果については、現在論文投稿中である。

これらの実験結果から自然放出レートに対する放射レートの比を見積もったところ、およそ $10^{18}$ 倍という非常に高い増幅率を得られていることが分かった。以上から、分子間の共同効果を用いて二光子放出レートを人為的に増強する試みは成功し、二光子レーザー発振の実現に向けて研究は大きく前進したと言える。

#### 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 11 件)

- ① N. Sasao, S. Uetake, "Neutrino Mass Spectroscopy with Atoms -Present and future-", Proceedings of 7th International Workshop on Fundamental Physics Using Atoms, 15-25, (2015), 査読無
- ② Y. Miyamoto, H. Hara, S. Kuma, T. Masuda, I. Nakano, C. Ohae, N. Sasao, M. Tanaka, S. Uetake, A. Yoshimi, K. Yoshimura and M. Yoshimura, "Observation of coherent two-photon emission from the first vibrationally excited state of hydrogen molecules", Prog. Theor. Exp. Phys., vol. 2014, 113C01 (1-12) (2014), 査読有, DOI:10.1093/ptep/ptu152
- ③ 植竹智, 吉村太彦, 吉村浩司, 笹尾登, 高エネルギーニュース, 33 巻, 99-107 (2014) 査読有, <http://www.jahep.org/hepnews/2014/14-2-5-SPAN.pdf>
- ④ M. Yoshimura, N. Sasao, and S. Uetake, "Parity violating radiative emission of neutrino pairs in heavy alkaline earth atoms of even isotopes", Phys. Rev. D vol. 90, 013022(1-12) (2014), 査読有, DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevD.90.013022>
- ⑤ C. Ohae, A. Fukumi, S. Kuma, Y. Miyamoto, K. Nakajima, I. Nakano, H. Nanjo, N. Sasao, S. Uetake, T. Wakabayashi, A. Yoshimi, K. Yoshimura, M. Yoshimura, "Production of Ba Metastable State via Super-Radiance", J. Phys. Soc. Jpn., vol. 83, 044301(1-9) (2014), 査読有, DOI:<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.044301>
- ⑥ S. Kuma, Y. Miyamoto, K. Tsutsumi, N. Sasao, and S. Uetake, "4.8  $\mu$  m difference-frequency generation

using a waveguide-PPLN crystal and its application to mid-infrared Lamb-dip spectroscopy", Opt. Lett., vol. 38, 2825-2828 (2013), 査読有, DOI:10.1364/OL.38.002825

- ⑦ A. Fukumi, 他 9 名, S. Uetake, 他 4 名 (ABC 順), "Neutrino spectroscopy with atoms and molecules", Prog. Theor. Exp. Phys., 2012, 04D002 (79pages), DOI:10.1093/ptep/pts066
- ⑧ S. Kuma, Y. Miyamoto, K. Nakajima, A. Fukumi, K. Kawaguchi, I. Nakano, N. Sasao, M. Tanaka, J. Tang, T. Taniguchi, S. Uetake, T. Wakabayashi, A. Yoshimi and M. Yoshimura, "Coherence decay measurement of  $\nu = 2$  vibrons in solid parahydrogen", J. Chem. Phys., vol. 138, 024507 (2013), DOI:10.1063/1.4773893

[学会発表] (計 28 件)

- ① 増田孝彦, 原秀明, 宮本祐樹, 中野逸夫, 笹尾登, 田中実, 植竹智, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦, "SPAN (原子を用いたニュートリノ質量分光実験) のためのマクロコヒーレント増幅機構の詳細研究 I", 2015 年 3 月 22 日, 日本物理学会第 70 回年次大会、早稲田大学早稲田キャンパス (東京都)
- ② 原秀明, 増田孝彦, 宮本祐樹, 中野逸夫, 笹尾登, 田中実, 植竹智, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦, "SPAN (原子を用いたニュートリノ質量分光実験) のためのマクロコヒーレント増幅機構の詳細研究 II", 2015 年 3 月 22 日, 日本物理学会第 70 回年次大会、早稲田大学早稲田キャンパス (東京都)
- ③ 植竹智, 原秀明, 増田孝彦, 宮本祐樹, 中野逸夫, 笹尾登, 田中実, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦, "水素分子振動準位間のコヒーレント 2 光子放出 III", 2015 年 3 月 22 日, 日本物理学会第 70 回年次大会、早稲田大学早稲田キャンパス (東京都)
- ④ 増田孝彦, 原秀明, 桂川眞幸, 久間晋, 宮本祐樹, 中野逸夫, 大饗千彰, 笹尾登, 田中実, 堤康輔, 植竹智, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦, "ニュートリノ質量分光に向けたマクロコヒーレンス生成方法の実証", 2014 年 9 月 19 日, 日本物理学会 2014 年秋季大会、佐賀大学本庄キャンパス (佐賀県)
- ⑤ 植竹智, 原秀明, 桂川眞幸, 久間晋, 増田孝彦, 宮本祐樹, 中野逸夫, 大饗千彰, 笹尾登, 田中実, 堤康輔, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦, "コヒーレント二光子放出観測によるマクロコヒーレント増幅機構の実証", 2014 年 9 月 19 日, 日本物理学会 2014 年秋季大会、佐賀大学本庄キャンパス (佐賀県)

- ⑥ 吉見彰洋, 植竹智, 大饗千彰, 久間晋, 笹尾登, 田中実, 堤康輔, 中野逸夫, 原秀明, 増田孝彦, 宮本祐樹, 吉村浩司, 吉村太彦 “ニュートリノ質量分光に向けた Xe 原子のコヒーレント現象に関する基礎実験”, 2014年9月19日、日本物理学会 2014年秋季大会、佐賀大学本庄キャンパス (佐賀県)
- ⑦ 宮本祐樹, 原秀明, 桂川眞幸, 久間晋, 増田孝彦, 中野逸夫, 大饗千彰, 笹尾登, 田中実, 堤康輔, 植竹智, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦, “水素分子振動準位間のコヒーレント 2 光子放出 I”, 2014年9月9日、日本物理学会 2014年秋季大会、中部大学春日井キャンパス (愛知県)
- ⑧ 原秀明, 桂川眞幸, 久間晋, 増田孝彦, 宮本祐樹, 中野逸夫, 大饗千彰, 笹尾登, 田中実, 堤康輔, 植竹智, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦, “水素分子振動準位間のコヒーレント 2 光子放出 II”, 2014年9月9日、日本物理学会 2014年秋季大会 中部大学春日井キャンパス (愛知県)
- ⑨ S.Uetake, “Observation of Paired Superradiance”, August 4, 2014, ICAP, The 24th International Conference on Atomic Physics, The Mayflower Renaissance Washington DC Hotel (Washington DC, USA)
- ⑩ 久間晋, 宮本祐樹, 植竹智, 大饗千彰, 桂川眞幸, 川口建太郎, 笹尾登, 田中実, 唐健, 堤康輔, 中嶋享, 中野逸夫, 南條創, 福見敦, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦, 若林知成, “マクロコヒーレント増幅機構の検証に向けた水素分子二光子対超放射実験”, 2014年3月28日 日本物理学会第69回年次大会、東海大学湘南キャンパス (神奈川県)
- ⑪ S. Uetake, “Paired super-radiance”, March 14, 2014, FPUA2014, 7th International Workshop on Fundamental Physics Using Atoms 2014, Miraikan, Tokyo
- ⑫ 吉見彰洋, 笹尾登, 植竹智, 久間晋, 中嶋享, 大饗千彰, 宮本祐樹, 川口建太郎, 堤康輔, 唐健, 福見敦, 田中実, 中野逸夫, 若林知成, 吉村浩司, 吉村太彦, “マクロコヒーレンス生成に向けた Xe 準安定状態に関する分光実験”, 2013年9月20日、日本物理学会 2013年秋季大会、高知大学朝倉キャンパス (高知県)
- ⑬ 大饗千彰, 植竹智, 久間晋, 笹尾登, 高橋弘紀, 田中実, 中嶋享, 中島優夢, 中野逸夫, 南條創, バリウム原子準安定状態を用いた対超放射実験 III, 日本物理学会 第 68 回年次大会, 2013年03月26日~2013年03月29日, 広島大学(広島県)
- ⑭ 大饗千彰, 植竹智, 久間晋, 笹尾登, 高

橋弘紀, 田中実, 中嶋享, 中島優夢, 中野逸夫, 南條創, 福見敦, 山口琢也, 湯浅一生, 吉見彰洋, 吉村太彦, バリウム原子準安定状態を用いた対超放射実験 II, 日本物理学会 2012年秋季大会, 2012年09月11日~2012年09月14日, 京都産業大学 (京都府)

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.science.okayama-u.ac.jp/~center-qu/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

植竹 智 (Satoshi UETAKE)

岡山大学・大学院自然科学研究科・准教授  
研究者番号：80514778

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし