

超広帯域コヒーレント過渡現象の研究

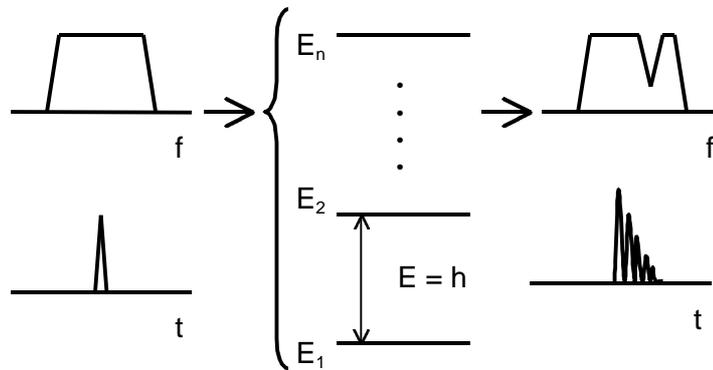
西岡研究室 神鷹 太康

1. はじめに

物質に光を照射すると、物質にはコヒーレントな分極が誘起される。このとき各準位間の分極は時間と共に位相が乱れてきて、その過渡的な応答の組み合わせが時間領域の応答として現れる。このような現象をコヒーレント過渡現象という。この現象を応用したものとして、コヒーレント過渡分光や光エコーメモリーなどが挙げられるが、今までは分極がどれだけ長い時間続いて光と相互作用するかという点を中心に極低温で研究が行われてきた。これを常温で行おうとするとモノサイクル程度(1fs, 1PHz)の時間分解能が必要となる。

このような光源で物質を励起すると、物質の持つほとんど全てのエネルギー準位を直接励起することができる。物質の持つ全てのエネルギー準位からの応答であるため、そこに含まれる情報は物質本来の性質によるものであるということになる。つまり、物質のインパルス応答を見ていることになり(図1)、時間は数fsという非常に速い領域の現象となる。このような超高速現象を測定するためには、各周波数間の位相を精密に測定することが重要となる。

本研究では超広帯域な周波数分解相関計測により物質の超高速現象を測定することを目的とする。



試料のエネルギー準位

図1 インパルス応答

2. 周波数分解相関計測

超高速現象を測定しようとするとき、時間領域測定での時間分解能は光源のパルス幅によって決まる。パルス幅が短ければ短いほど時間分解能は上がるが、あまりに短いとオシロスコープやストリークカメラなどの、実時間測定を行う測定器の時間応答が追いつかなくなる。しかし、相関計測を行うことによってその時間分解能は光の持つ相関時間程度になり、パルス幅には関係なくスペクトル幅の逆数程度となる。しかし相関時間が 1fs という領域まで短くなると、光はモノサイクルとなりフリッジはひとつしか現れない。これでは時間掃引をしてもその分解能は 1 となってしまう、位相を正確に測定することができない。モノサイクル

現象では広いスペクトルに渡ってフーリエ位相を正確に求めることが重要となる。そこで、光を帯域分割して測定を行う。帯域分割することによって各周波数成分のコヒーレント長は長くなる。そのためフリンジが帯域の逆数の時間だけ持続することになり、フリンジ分解能を上げることができる。このように、各周波数成分ごとに相関計測を行うのが周波数分割相関計測である。図 2 にその原理図を示す。

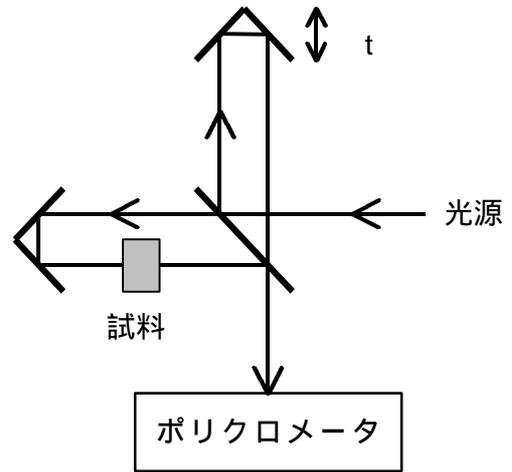


図 2 周波数分解相関計測

3. ポピュレーショントラッピング^[3]

本研究において使用する光源は GW/nm の高いスペクトル強度を持つ。多準位系においてこのような高強度の光と強結合をした場合、異なるエネルギー準位間で干渉を起こすようになる。これを量子干渉効果という。コヒーレント光による原子の励起過程において、複数個のエネルギー準位が別の共通の準位と結合している場合、2光子共鳴条件下で量子干渉効果により、一部の原子は複数個の準位のコヒーレントな重ね合わせの状態にトラップされたままとなる。この重ね合わせの状態と共通の準位との間の光学的遷移は禁制であり、光学的に結合しなくなる。この現象を(コヒーレント)ポピュレーショントラッピング (coherent) population trapping : CPT) という。

図 3 において、準位 1-3 間で2光子共鳴状態となっている場合、すなわち準位 1-2 間および準位 2-3 間の遷移を駆動するレーザー光の光子エネルギーの差が、準位 1-3 間のエネルギー差に等しい場合には、原子は準位 1 と 2 のコヒーレントな重ね合わせの状態にトラップされる。共通準位 3 から準位 1 あるいは 2 への緩和が大きく、系外への緩和が無視できる場合、原子はすべて下準位にトラップされ、まったく励起されなくなる。つまり、光を吸収しなくなり透明になる。この現象を電磁波誘起透明化 (electromagnetically induced transparency : EIT) という。しかし、高強度の光が入射したときは物の緩和よりもラビ振動のほうが速いのでトラップされることはない。

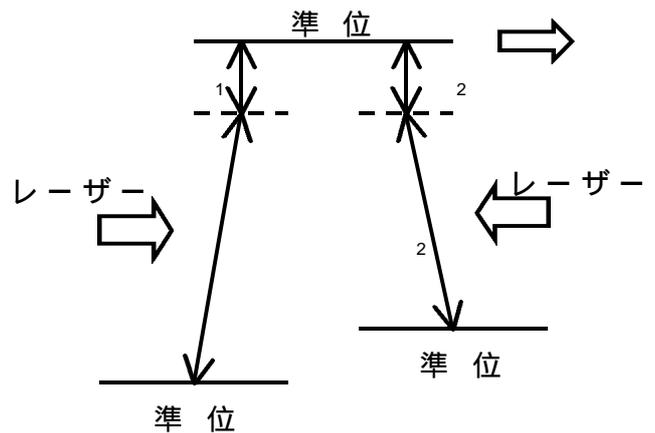


図 3 ポピュレーショントラッピング

4. 時間軸の決定

超広帯域コヒーレント過渡現象の観測において重要なのは、各周波数間の位相を測定することである。位相とは時間によって変化するものである。すなわち、正確な位相を求めるためには、正確な時間を知らなければならない。ここでは、2パルスの干渉波形から時間軸を

決定する方法を説明する。

図 4-1 はポリクロメーターによって測定された干渉波形のマップである。見やすくするため、強度はログスケールで表示してある。この時点では、横軸は測定した時系列に沿ったデータポイントとなっている。二つのパルスの遅延時間を作るためのピエゾ素子が線形な動作をしていないため、図 4-1 を見て分かるように、フリンジの間隔が一定とならず、データポイントが増えるにつれて間隔が広がっている。これでは、各データポイントにそのまま線形に時間を割り当てることはできない。そのため、 $t=0$ からのフリンジの位置から、そのデータポイントにおける正確な時間を求める。精度としては、 $\lambda/10$ 以下であることが求められる。時間軸決定の手順としては、まず 2 パルスの干渉マップから $t=0$ となる点を求め、次に各波長ごとのフリンジの数をカウントする。ポリクロメーターによって波長は分かっているので、各波長ごとのフリンジの数から時間を求めることができる。

・フリンジのカウント

図 4-1 より、波長方向に積分して時間波形を求め、その最大値の点を $t=0$ とした(図 4-2)。フリンジが歪み無く現れている 550-780nm の各波長において、それぞれの強度の平均値を出し、強度がその値と交差する数を数えてフリンジをカウントした。カウントは $t=0$ としたデータポイントを起点として、時間軸の正方向および負方向の二つの方向にカウントを進める。ノイズにより波形がひずんで、1 フリンジに満たない部分で強度が平均値と交差してしまっているものをカウントするのを防ぐため、現在のフリンジの幅が、ひとつ前のフリンジの幅の半分よりも大きいものをカウントした。

・各点における時間の決定

1 フリンジは半波長であるので、時間を t 、波長を λ 、光速を c とすると、 $t=(1/2)(\lambda/c)$ となる。これが 1 フリンジ進むのにかかる時間になる。これを 1 フリンジ内に含まれるデータポイント数で割って、各点の時間を決定していく。つまり、1 フリンジ内の各点の時間間隔

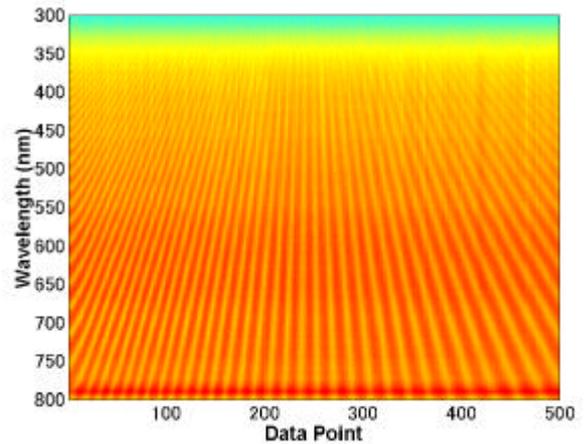


図 4-1 ポリクロメーターによる測定データ

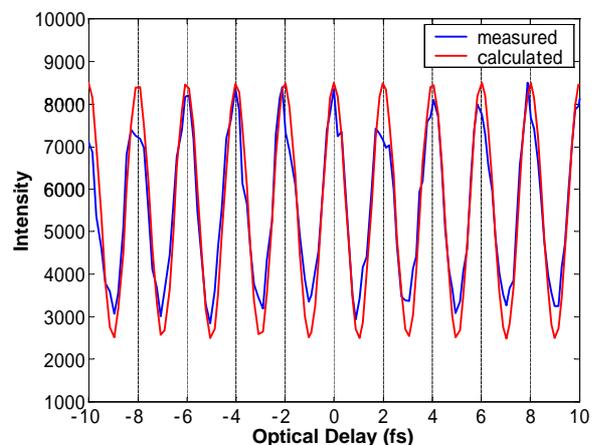


図 4-2 測定値と計算値の比較

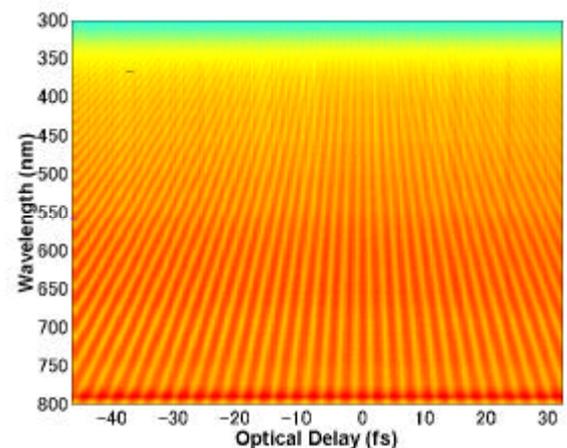


図 4-3 決定した時間軸による描画

は等間隔として近似した。これを $t=0$ を起点として正負両方向へ進めていくことにより時間を決定した。

時間軸の両端では、幅が 1 フリンジに満たない部分が出てくる。このような部分では、そのひとつ前のフリンジで使用した時間間隔を用いて各点における時間を決定した。これらの作業を、550-780nm のそれぞれの波長について行い、そのすべての平均を取ることで時間軸とした。

以上の作業を、波長 550-780nm の各波長について行い、すべての平均をとって時間軸とした。この時間軸を用いて描いた 600nm の波形と理論値を $\pm 10\text{fs}$ の範囲を拡大したものを図 3-14 に示す。測定値と理論値がほぼ重なり、 $1/10$ 以下の精度で時間が正しく決定できていることが分かる。また、この時間軸を用いて描いた干渉マップを図 4-3 に示す。図 4-1 と違い、フリンジの間隔が一定となっていることが分かる。

このように、波長軸の較正をし、正しい波長の値とフリンジのカウントから、 $1/10$ 以下の精度で正確な時間を決定することができた。

5. 超広帯域コヒーレント過渡現象の観測

5.1 超広帯域コヒーレント過渡現象の観測実験方法

紫外から赤外域で GW/nm のスペクトル強度を持つフェムト秒白色光を、2 ビーム完全同軸配置で用いて試料を励起し、照射後の飽和スペクトルを第 3 のプローブビームで観測した。試料として、型 3 準位システムをもつフェムト秒緩和材料（ローダミン 6G、DODCI）を用いた。超広帯域かつ高強度のレーザービームであるため、実験系には干渉効果を利用した誘電体多層膜鏡や偏光子は使用できない。ビームスプリッターには面平行度、絶対厚さを 100nm 以下の精度で研磨し、相互位相補償した石英薄板対を用いた。この石英板対をブリュスター角で配置し、S 偏光のみを高い反射率で取り出すよう配置した。超広帯域実験では、回折角の波長依存性により焦点付近のビームサイズも異なる。本実験では、アパーチャーの実像を試料表面に凹面鏡により結像して空間的分散を防いだ。フラットな反射特性を得るため、ミラーはすべてアルミコートされたミラーを用いた。測定系の持つ周波数帯域幅 625THz（波長帯域幅 300-800nm）で制限された励起光の時間コヒーレンスは、可視域のモノサイクル時間分解能に相当する 1.4fs であった。検出器としてポリクロメーターを用い、これで実時間観測して、フーリエ位相差、時間遅延直読した。波長を 1024ch に分解して検出することにより広い帯域に渡ってフラットな感度で検出をしている。

5.2 フェムト秒量子干渉

完全同軸の励起 2 パルスでローダミン 6G に入射させ、第 3 のパルスで観測したところ図 5-1 のような応答が得られた。図 5-1 は透過率で示したものである。580THz 付近に吸収帯が、530THz 付近に放出帯が見られる。 $t=0$ 付近になると吸収・放出ともに振動をしている様子が分かる。特に吸収帯と放出帯の境界部分では時間と共に吸収・放出が入れ替わるほど激しく振動していることが見て取れる。ここで、ローダミン 6G のエネルギー準位を考えると図 5-2 のようになる。吸収帯は下準位のバンドの下部から上準位のバンドへの遷移となり、

放出帯は上準位のバンドから下準位のバンドの上部への遷移となる。

次に、励起光強度高強度のときの境界部分における時間波形を図 5-3 に示す。低強度のときは励起光によって誘起された分極は $\pm 10\text{fs}$ の間に単調に減衰していく様子が観測された。しかし、入射光強度が高くなると低強度時のような単純な減衰振動ではなく、ビートが現れてくる。 $t=0$ ではディップとなり、遅延時間 5.1fs となったときに吸収飽和が最大となった。

5.1fs のとき、励起光のフーリエスペクトルの 1 フリンジ (2) は 196THz である。よって、吸収帯と放出帯の周波数差 45THz は、励起光のフーリエ位相差 $\pi/2\text{rad}$ に相当することが分かる。

まず第 1 パルスによって ν_1 , ν_2 それぞれに分極が誘起されるわけであるが、 $t=0$ においては 2 パルス励起ではなく強い単一パルスによる励起となる。このとき、これら二つのラビ振動はビートを起こす。さらに、吸収帯と放出帯に分極が互いに干渉を起こし、図 4-2 に示すように下準位のバンド間に第 3 の分極が誘起される。このためポピュレーションはこの 3 つの準位に分散することになる。 ν_3 は ν_2 と干渉して上準位への励起を打ち消す働きをするが、吸収が完全になくなるためには下準位へのポピュレーショントラッピングが起こらなくてはならない。しかし、ローダミン 6G の位相緩和時間よりもラビ振動のほうが速いので、トラップされることはない。そのため特定の準位が選択励起されることはなく、インコヒーレント状態の励起とあまり変わらず強い吸収飽和を起こさない。

一方、遅延時間 5.1fs のときには、先に述べたように吸収帯と放出帯の周波数差 45THz は励起光のフーリエ位相差 $\pi/2\text{rad}$ に相当する。つまり、第 1 パルスによって吸収帯と放出帯に誘起された分極は 5.1fs 後に位相差が $\pi/2$ となり、この状態で第 2 パルスを迎えることになる。第 2 パルスが来たとき、 ν_1 は励起光と同相となり強め合うが、 ν_2 は励起光と位相が

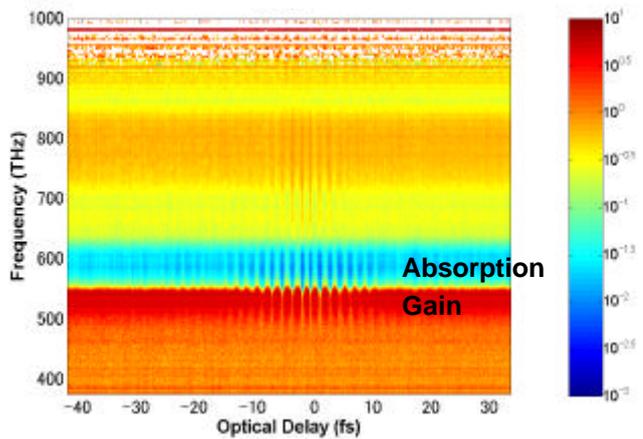


図 5-1 基底状態吸収の時間変化(Rh6G)

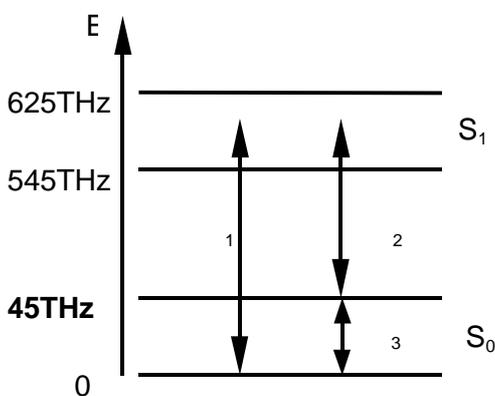


図 5-2 ローダミン 6G に誘起される分極

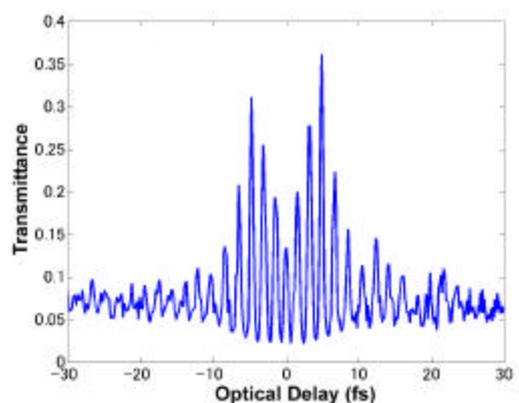


図5-3 基底状態吸収飽和の時間変化
Rh6G ($\nu_R/2 = 30\text{THz}$)

直交するため相互作用を起こさない。当然、下準位間に誘起された ω_3 も励起光と直交するため相互作用することはない。よって、5.1fs の時点では独立2準位系と等価となり、 ω_1 のみが励起されることになって吸収飽和が最大となる。DODCI についても同様に測定したところ、同じような結果が得られた。DODCI の吸収飽和の様子、エネルギー準位および時間波形を図 5-4, 5,6 に示す。DODCI では 5.6fs のときに最も強く吸収飽和が起きた。このときの励起光のフーリエ位相の1フリッジは 179THz である。吸収帯と放出帯の周波数差が 40THz であったので、こちらも放出帯と第2パルスとの位相差が $\pi/2$ となる条件のときに吸収飽和が最大となることが分かった。

6. まとめ

超広帯域コヒーレント励起・計測法を開発した ($\omega = 600\text{THz}$, $t = 1.4\text{fs}$)。位相敏感吸収飽和、量子干渉効果を観測した。吸収飽和は、試料に誘起された3つの分極のフーリエ位相差が $\pi/2$ となる条件で励起したとき最大となることが分かった。光位相制御によるフェムト秒位相緩和材料の吸収・放射制御の方法を示した。

また、ローダミン6G以外の有機色素についても同様の制御が可能であることが分かった。

参考文献

[1] M. Nisoli, S. de Silvestri, O. Svelto, R. Szipocs, K. Ferencz, Ch. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz, "Compression of high-energy laser pulses below 5fs", Opt. Lett. **22**, pp.522-524 (1997).

[2] H. R. Gray, R. M. Whitley, and C. R. Stroud, Jr., "Coherent trapping of atomic populations", Opt. Lett. **3**, 218 (1978).

[3] 仁木秀明・井澤靖和：ポピュレーショントラッピングとその応用, 応用物理 **61**, 927 (1992).

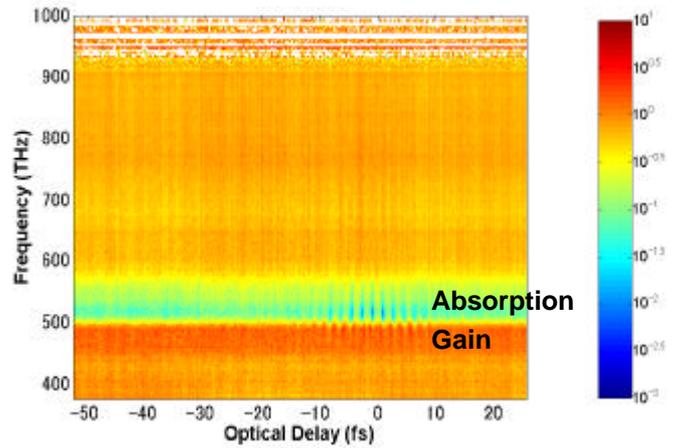


図 5-4 基底状態吸収の時間変化(DODCI)

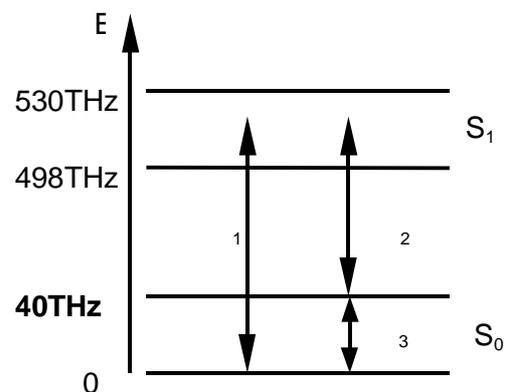


図 5-5 DODCI に誘起される分極

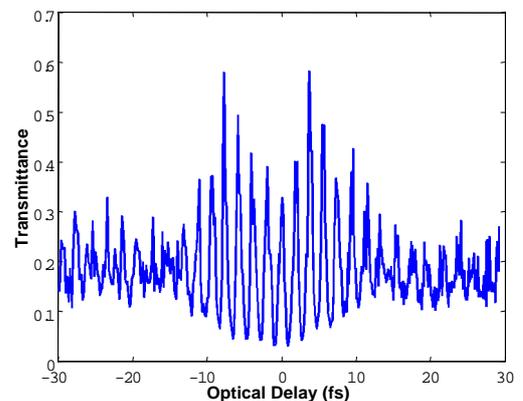


図5-6 基底状態吸収飽和の時間変化
DODCI ($\omega_R/2 = 30\text{ THz}$)