

称号及び氏名	博士（工学） 畑 遼介
学位授与の日付	平成 29 年 3 月 31 日
論文名	「Theory of Photoemission of Two-Level Systems Inversely Populated by Auxiliary System」 (補助系により反転分布した 2 準位系の放射特性の理論)
論文審査委員	主査 石原 一 副査 秋田 成司 副査 魚住 孝幸

## 論文要旨

物質の光励起過程の制御は基礎、応用を問わず様々な分野で重要な課題と認識されている。励起過程の制御には通常、コヒーレント光であるレーザー光が用いられる。レーザーの発明以降、物質に照射する光の強度、周波数、時空間制御などが容易となり、高強度な光を必要とする非線形過程も含め、多様な光励起過程が実現可能となった。一方、フォトニック結晶や金属微粒子のような補助系を利用して光励起過程を制御する研究も盛んに行われてきた。これらの補助系はマイクロ・ナノサイズの微小な領域に光エネルギーを閉じ込めることで、励起対象と相互作用する光子密度を増強し、微弱な入射光であっても単一粒子の励起や非線形な励起過程が実現出来る。このような補助系は強い電場増強効果を持つため、補助系に付随したモードと励起対象の相互作用に注目したモデルが扱われ、入射光は微弱なものとして扱われることが多い。しかしながら、「補助系と入射光の相互作用」が「補助系と励起対象の相互作用」と同程度の大きさであるために生じる新奇な光励起過程に関する報告が近年増えてきた。本研究では、このようなコヒーレント光-補助系-物質が対等の三体として相互作用し合うことによって引き起こされる特異な光励起過程、すなわち 2 準位系の定常的な反転分布の生成に着目している。

通常、2 準位系の光励起においては、最大限励起しても定常状態では励起状態への遷移確率と基底状態への遷移確率が均衡するため反転分布は形成されない。そのため、3 準位系や 4 準位系などの多準位を持つ物質が利用されてきた。これら多準位系に反転分布を形成するために入射する光のエネルギーは出力される光エネルギーよりも通常大

きくなる。しかしながら、コヒーレント光-補助系-物質という三体の相互作用を利用することで、2準位系に、その共鳴エネルギーよりも低いエネルギーをもった入射光を用いて反転分布が形成されるとの報告がなされてきた。このような三体の相互作用による反転分布を利用すれば、長波長光を短波長光に変換すること、つまり上方変換を伴ったコヒーレント光源が実現可能と考えられる。しかしながら、このような観点から反転分布した2準位系からの発光特性を解明しようとする研究はこれまで行われてこなかった。

コヒーレント光-補助系-物質という三体の相互作用を利用して2準位系に上方変換的に反転分布を形成する方法については、これまで二種類の報告があった。一つは補助系に強い光を照射し、その補助系で増強した電場を用いて2準位系を励起する補助系介在型がある。もう一つは、2準位系を高強度の電場で直接駆動し、2準位系の特定エネルギーの放射レートを補助系が制御する直接駆動型がある。前者の補助系介在型に関しての議論は少なく、2準位系に反転分布を形成する機構や、放射のエネルギー特性が未解明である。加えて、コヒーレント光生成の応用には多粒子系を扱う枠組みが必要不可欠であるが、単一の2準位系が存在する場合の報告しか無く、議論すべき問題が多く残されている。後者の直接駆動型に関しては、これまでに複数の報告が存在しており、2準位系を複数配置した場合においても定常的に反転分布が形成可能であり、そのときの出力特性について既に報告がある。しかしながら、定常状態においては、2準位系の出力スペクトルは高強度の入射光と2準位系の相互作用によって変調されたものであり、コヒーレント光生成に必要な物質系共鳴エネルギーでの放出が存在せず、波長変換型光源としての機能を持たない系として取り扱われた。

本研究では、上記二種の反転分布形成機構を利用した、上方変換型放射機構の実現可能性を理論的に議論している。具体的には、マルコフ型の量子マスター方程式を利用し、それぞれの系のダイナミクスや出力特性を解析した。結果として、両者の機構において目的に則した出力特性が得られることが明らかになっている。補助系介在型においては、反転分布に必要な条件の同定や、反転分布を伴った上方変換発光が起こること、2準位系を複数配置した場合においても反転分布が形成できることを明らかにした。これらのことをもって、補助系介在型は上方変換コヒーレント光源としての応用可能性を有することを示している。また、後者の直接駆動型においては、反転分布形成後急速に入射光を遮断する非定常過程を利用することを着想し、上方変換的なコヒーレント光放射が実現可能であることを明らかにしている。これらの成果は、全く新奇な機構に基づくコヒーレント光源実現に結びつき、今後のレーザー物理や量子光学の分野に大きく貢献することが期待できる。

本論文では、これらの研究成果を以下の6章にまとめている。

第1章では、本研究の背景と目的についてまとめた。

第2章では、本研究で用いたコヒーレント光-補助系-物質の三体の相互作用が存在す

る系のモデルとその解析手法を紹介している。補助系介在型はその本質的な物理現象を解き明かすために、先行研究と同様の初等的モデルと、より現実性を持たせたモデルの二種類を導入した。直接駆動系においては、反転分布形成後に指数関数的に減衰する入射コヒーレント光を用いた系の導入を行った。これらの両方の系において、2準位系を複数配置した場合を考慮するため、多粒子系の問題を解く手法の一つであるクラスター展開を紹介している。最後に、放射光の解析のために、入出力理論を用いた出力スペクトル解析手法を紹介した。

第3章では、先行研究と同様の初等的なモデルを用いて、補助系介在系の出力特性を解析している。このモデルでは、金属微粒子を補助系として考えた。多くの実験結果から金属微粒子は非調和性を有することが示されているため、補助系の量子モデルを2準位系としている。まず、励起対象である2準位系が単一で存在している場合において、補助系と2準位系それぞれの出力スペクトルを解析している。補助系の出力特性から、2準位系の反転分布には補助系と入射光の量子力学的な重ね合わせによって形成されるドレスト状態が鍵になっていることを明らかにしている。ここでは、励起対象である2準位系と特定のドレスト状態間の遷移エネルギーを共鳴させることで、2準位系に反転分布が形成されることを解明した。また、2準位系の出力スペクトルから、その共鳴エネルギーでの発光を確認している。この事実をもって、反転分布を伴った上方変換的な発光がこの系で実現できることを明らかにしている。これらの結果に加えて、励起対象である2準位系が複数存在している場合においても、2準位系が単一の場合と同様に反転分布が形成できることをはじめて示すことに成功している。

第4章では、前章で利用したモデルをより現実的に即したものにして解析を行っている。前章では、金属微粒子を2準位系として記述したが、最近の研究報告では2準位系には見られない特徴が確認されている。これを反映するためには、量子モデルを2準位系から拡張し、非調和性を持つ多準位構造として金属微粒子を記述することが望ましい。そこで本章では、非調和な三準位系としてモデル化を行っている。加えて、前章での計算は非常に高強度なコヒーレント光が必要となることから、金属微粒子に損傷の恐れがあるため、単位時間あたりの平均入射強度が連続光よりも少ないパルス光で駆動することを想定している。結果として、金属微粒子単独であるとき、非調和三準位モデルは実験の挙動を再現することに成功している。さらに、ここに単一の2準位系を相互作用させた場合においても、前章と同様に反転分布の形成と、上方変換的な発光スペクトルを確認している。前章と本章の結果から補助系介在系は上方変換レーザーという新奇なコヒーレント光源への応用が期待できると考えられる。

第5章では、直接駆動系の非定常過程を利用した放射特性の解析を行っている。ここでは、連続光の入射によって反転分布形成後、急速に照射光を遮断することで、上方変換的な放射が確認できた。また、2準位系の数の増大に伴って、その上方変換した輻射スペクトル幅が増大していることから、協力発光が起こっていると結論づけている。特

に、反転分布が形成されているときの出力光強度の時間依存特性はコヒーレント協力放射、すなわち超蛍光と同様の振る舞いを示すことが分かった。以上のことをもって、非定常過程を利用した場合の直接駆動系が、上方変換的なコヒーレント光源への応用可能性を有することを明らかにしている。

第6章では、以上の成果を総括し、本研究の結論をまとめている。

## 審査結果の要旨

本論文は、光共振器や光アンテナなどの補助系を利用した2準位系の反転分布形成機構、及びそこから上方変換型コヒーレント放射の実現可能性を理論的に研究したものである。通常、2準位系単体では光励起で反転分布を形成することは原理的に不可能であるが、本論文では補助系を組み合わせることでこれが可能となるだけでなく、上方変換や出力光にコヒーレンスを持たせる新奇な機構が実現できることを提案している。マルコフ型の量子マスター方程式に基づき、強く励起された2準位系と光共振器を組み合わせた系（直接励起型）、及び強く励起された光アンテナと2準位系を組み合わせた系（補助形介在型）の、それぞれのダイナミクスと出力特性を解析した。結果として、両者の機構において、励起光より高いエネルギーを持ったコヒーレント発光（超蛍光）出力が得られる可能性が明らかになった。

得られた主な結果は、以下の項目に要約できる。

(1) 補助形介在型において光アンテナを初等的な2準位系で表し、励起対象である2準位系と特定のドレスト状態間の遷移エネルギーを共鳴させることで、2準位系に反転分布が形成されることを明らかにした。

(2) 上記モデルにおいて、励起対象である2準位系が複数存在している場合においても、単一の2準位系の場合と同様に反転分布が形成できることを示した。

(3) 上記モデルをさらに現実的な3準位光アンテナに拡張した場合も、反転分布の形成と上方変換的な発光スペクトルが確認でき、補助系介在型は上方変換レーザーなど新奇なコヒーレント光源への応用が期待できることを明らかにした。

(4) 直接駆動型の非定常過程を利用した放射特性の解析を行い、連続入射光を反転分布形成後、急速に遮断することで、上方変換的な放射が確認できた。

(5) 直接駆動型において、2準位系の数が増大した場合、超蛍光様の協力発光が起こることを明らかにした。このことから、直接駆動型が上方変換的なコヒーレント光源への応用可能性を有することがわかった。

以上の研究成果は、全く新奇なコヒーレント光源実現への道筋を明瞭に示しており、今後のレーザー物理や量子光学の分野に大きく貢献することが期待できる。また、申請者が自立して研究活動を行うのに必要な能力と学識とを有することを証したものである。