

解説

量子干渉効果による光学応答の制御

白田 耕藏・桂川 眞幸

電気通信大学電気通信学部電子物性工学科, レーザー極限技術研究センター
〒182 調布市調布ヶ丘 1-5-1

(1995年5月22日受理)

Control of Optical Responses with Quantum Interferences

Kohzo HAKUTA and Masayuki KATSURAGAWA

Department of Applied Physics and Chemistry, and Institute for Laser Science, University of
Electro-Communications, 1-5-1, Chofugaoka, Chofu 182

1. はじめに

近年, 原子系に生ずるコヒーレンスもしくは量子力学的干渉効果を用いることにより光と原子系の相互作用に新しい可能性が生じることが指摘され, 様々な研究が展開されている. この着想の基本は, 原子系を強い外場でコヒーレントに修飾し, その固有状態が dressed state となる状況を実現することにより, その光学応答に従来とは異なる特性を付与することである. なお, このとき dressed state が関与する光学過程に量子干渉効果が導入されることが必須の要件である. 物質系の光学応答に強い外場という制御可能な新しい自由度がつけ加わることになり, 従来の“光学応答は物質系固有の特性のみで規定される”という考えから本質的な限界とされてきた困難を取り除くことも可能となる.

このような研究が本格的に開始されたのは1988年の短波長レーザーについての国際会議でスタンフォード大の Harris¹⁾ が提案した反転分布のないレーザー作用の可能性についての議論からといってよい. それ以降この提案に触発されたかたちで世界の各所で研究が開始され, 反転分布のないレーザー作用にとどまらず量子干渉効果の光学過程へ適用という立場から様々な理論的提案・解析など数多くの研究が公表されている. 1992年からは毎夏に関連する分野の研究者を集めた国際ワークショップも開催されるなど研究は多様な広がりをもって展開されつつある.

本稿は, 量子干渉効果により物質系の光学応答を制御

するという着想の基本, とりわけ electromagnetically induced transparency (EIT) について解説し, EIT をキーワードとしてレーザー過程・非線形光学過程およびパルス光伝播過程について述べる. なお, 筆者らは非線形光学の立場から本分野の実験的研究を進めているが, 本稿ではスペースの関係もあり関連する最近の実験結果について細かく紹介することはせず, 代表的文献を示すにとどめることとする.

2. Electromagnetically induced transparency (EIT)

光学遷移を考えると始状態から終状態にいたる道筋が複数あれば, 光学遷移の遷移確率振幅は複数の道筋からの寄与の和として表され, それぞれの確率振幅の間の位相関係により, 全体としての遷移確率振幅には様々な量子的干渉効果が現れる. 典型的な例として良く知られているのは, 原子の光イオン化に伴う連続スペクトル中に現れる, ゼロ光吸収ウィンドウ (Fano 共鳴²⁾) である. この光吸収ウィンドウは, 直接の光イオン化と自動イオン化準位を経由する2つの道筋の間に生じる相殺的干渉効果の結果として理解できる. Fano 共鳴は原子固有の特性に起因する干渉効果であるが, 外場という新しい自由度を導入することによりこの種の干渉効果を制御することも可能となる. 本稿で議論する光学過程の制御は, いわば Fano 共鳴を外場を通して人為的につくりだす試みであるということもできる.

Fano 共鳴を人為的につくりだすことの意味を図1(a)

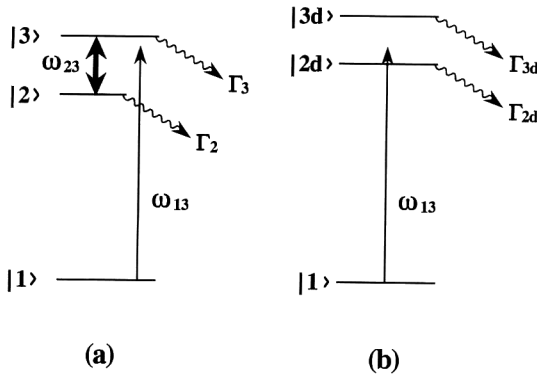


図1 (a)励起二準位系が dress された三準位系のスキーム, (b)dressed state を用いて描いた等価なスキーム.

に示す3準位からなる原子系を例に示す^{3,4)}. ここで, 2つの励起状態のうち状態3は状態2および基底準位1に対して光学的に許容である. Γ_2, Γ_3 は準位2および3の緩和レートである. この三準位原子を準位2-3間に共鳴するレーザー場中においた場合, 励起二準位系についての固有状態は dressed state 2d, 3dとなり, 図1(a)は等価的に図1(b)のように表すことができる. Dressed stateの波動関数 $|2d\rangle, |3d\rangle$ はそれぞれ $|2\rangle$ および $|3\rangle$ の対称および反対称の線形結合で表される.

この励起準位系と基底準位との間の光学遷移の振舞いは, dressed state を基底関数系としてハミルトニアンを表し, シュレディンガー方程式を書き下すことにより以下のような確率振幅間の結合方程式として記述できる⁵⁾.

$$\frac{db_1(t)}{dt} = \frac{j}{2} \left[\Omega_{12}^{(g)} b_{2d}(t) + \Omega_{13}^{(g)} b_{3d}(t) \right] \quad (1)$$

$$\frac{db_{2d}(t)}{dt} + j\Delta\tilde{\omega}_{2d} b_{2d}(t) = \frac{j}{2} \Omega_{21}^{(d)} b_1(t) + \chi b_{3d}(t) \quad (2)$$

$$\frac{db_{3d}(t)}{dt} + j\Delta\tilde{\omega}_{3d} b_{3d}(t) = \frac{j}{2} \Omega_{31}^{(d)} b_1(t) + \chi b_{2d}(t) \quad (3)$$

ここで $\Delta\tilde{\omega}_{id}$, $\Omega_{ij}^{(d)}$ はそれぞれ基底状態から2つの dressed state への光学遷移に対する離調およびラビ周波数を表す. 上式で重要なことは dressed state 2d, 3dの確率振幅間にパラメーター χ を介したクロスカップリングが生じることである. χ は励起状態の緩和レートと, レーザー場による励起準位間の混合の程度で表現されるパラメーターであり, 励起二準位系がレーザー場により完全に混合している場合は $\chi = -1/4(\Gamma_3 - \Gamma_2)$ となる. このカップリングが基底準位と励起状態間の遷移に対し干渉効果をもたらすことになる. クロスカップリングによる干渉効果は χ の符号によりその様相は異なってくる.

状態2dと3dの中央部での光吸収を考えてみよう. パラメーター χ が負の値をとる場合は式(2), (3)より, 状態2dの確率振幅が減衰すれば, 状態3dはそれにつれてドライブされる事情になっている. 一方, 2dと3dの中央では, その波動関数は $|2d\rangle$ と $|3d\rangle$ が同等の重みをもつ線形結合で表現されるので, その状態では緩和とドライブが相殺されることになる. すなわち, 中央では緩和はいわば凍結されてしまうことになり, このため光吸収スペクトルには, 2dと3dの中央部で Fano 共鳴と同様なゼロ光吸収ウィンドウが生ずるのが予測されるわけである. 一方, 符号が正の場合は干渉は相乗的に生ずることになり光吸収ウィンドウは現れないことになる. 相殺的な干渉効果を生ずるには理想的には, $\Gamma_2=0$ すなわち準位2が準安定準位であることが必要となるが, 準位3はどのような大きな緩和レートをもって相殺的な干渉効果を阻害することはない.

基底状態に原子が存在するという初期条件の下に式(1)~(3)を解き, 数値的に求めた光吸収および分散のスペクトルを図2(a), (b)に示す. ここで準位2は準安定とし, 準位2-3間の結合のためのレーザーは完全共鳴としてある. 図2(a)より, スペクトル中央での光吸収は予測されたようにゼロとなるのが明瞭にみとれる. 中央の位置は, 励起状態間の結合がない場合は基底状態から準位3への共鳴吸収ピークに対応する周波数であり, 干渉効果により共鳴吸収が消え去り透明化したわけである. このゼロ吸収が人為的に生じた Fano 共鳴であり, EIT とよばれている.

種々の原子系において EIT は実験的に観測され理論との定量的な比較検討がなされている. 準位3の緩和過程としては自動イオン化, 自然放出, 圧力広がりに伴う衝突緩和等様々な系が取り扱われている⁶⁻⁸⁾.

ここでは準位の広がりとして均一幅のみを考え, 現実の系では不可避的に存在する不均一広がりも考慮していない. しかし, 不均一広がりガウス分布をするため, dress のためのラビ周波数を不均一幅を十分に越えるように大きくとれば, 基底状態からの吸収スペクトルはラビ周波数だけ分離した2本のピークとなり (Autler-Townes 効果), 中心での吸収は均一幅をもつローレンツプロファイルの裾で決まることになるので本質的な議論に変更はないことになる. この意味で, EIT は現実の系では必然的に不均一幅を越えるような強結合を要求するものであり, EIT は干渉効果と Autler-Townes 効果の複合効果といってよい.

なお, EIT の概念は基底準位と励起準位を結びつけ

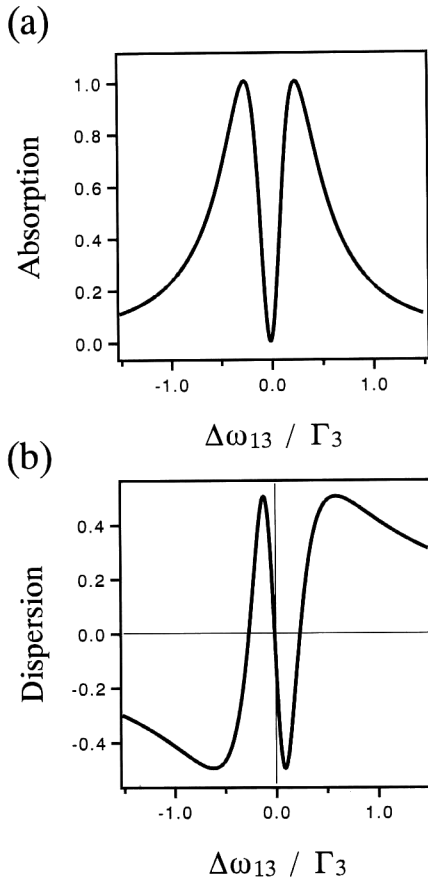


図2 原子が基底準位にある場合の強結合三準位系の線形光学応答プロファイル (光吸収(a)および分散(b))
準位 2-3 間の結合のためのラビ周波数は 3-1 遷移の均一幅の半幅に固定してある。

る光学遷移を摂動として取り扱う立場からのものであるが、基底準位からの遷移が強いコヒーレント遷移となった場合にも中心でのゼロ吸収は維持される。この状況はいわば EIT が三準位系のコヒーレントトラッピング*1の状態に漸近していくものとして理解できる。

*1 図 1(a)の三準位系で 3-1 間のコヒーレント遷移に対するラビ周波数が 3-2 間のラビ周波数と同程度となると、励起二準位間の結合による dressed state という表現は不適切となる。2つの強いコヒーレント光で結合された三準位系の固有状態系は厳密に求められ、そのひとつは $|1\rangle$ および $|2\rangle$ の反対称な線形結合で表され、励起状態 $|3\rangle$ を含まないものとなる。この反対称な線形結合で表される状態に遷移した原子は励起状態に光遷移できず、また緩和もできないのでその状態にとどまり続けることになる。このような状態をコヒーレントトラッピング状態という。詳細は文献 9) およびその引用文献を参照されたい。

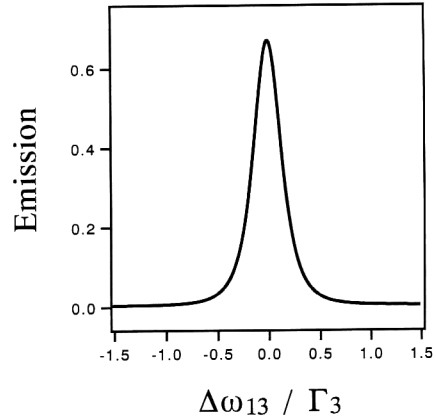


図3 原子が励起準位にある場合の強結合三準位系の線形光学応答プロファイル (誘導放出過程)
準位 2-3 間の結合のためのラビ周波数は 3-1 遷移の均一幅の半幅に固定してある。

3. EIT とレーザー過程

図 1 の dress された三準位原子が示す誘導放出の振舞いについて考えよう。初期条件として励起状態に存在する原子を考え、プローブ光で基底状態から励起状態をモニターし、その振舞いを調べれば誘導放出に関する利得スペクトルが求められる。励起状態 2 に原子を準備した場合に得られる利得スペクトルを図 3 に示す。励起状態 2 を励起することは、dressed state でいえば 2d, 3d の両者の重ね合わせ状態を励起したことに対応する。図 3 からわかるように、利得スペクトルは吸収スペクトルと全く異なり、中央には相殺的干渉効果は現れず利得はピークを示している。このことは、dress された三準位系では、励起状態に原子を準備できれば、基底準位からの光吸収過程に邪魔されることなく利得を得ることができることとなり、通常レーザー作用には不可欠とされている反転分布は必要ないことを示している^{3,4,10)}。

通常レーザー作用に反転分布が不可欠となる事情は、二準位系では吸収と誘導放出が逆過程で時間反転の関係にあることに起因する。しかしここで議論している反転分布なしのレーザー作用は時間反転が成り立たないことを示しているものではない。図 2(b) で考えれば光吸収過程は緩和により 2d, 3d とは別の状態に遷移することも含んだ過程であり、その終状態は緩和した先の状態である。一方、誘導放出の始状態は準位 2 であり吸収過程の終状態とは異なり、ここでの誘導放出過程は吸収過程の逆過程とはなっていない。

反転分布なしのレーザー作用については、その原理的

な意味でのインパクトの大きさのためもあり、多様なスキームの提案^{11,12)}をはじめ数多くの理論的研究が展開されており、実験的研究¹³⁻¹⁷⁾も行われている。実験の立場から考えるとレーザー作用から反転分布の必要性が取り除ければ、反転分布を得るのが必ずしも容易ではない真空紫外からさらに短波長領域のレーザー作用に新しい可能性を与えることが期待されきわめて重要な意味をもつ。しかし、現状までの実験的研究の結果からは、原理的な重要性とは別に、現実の系での反転分布のないレーザー作用が従来のレーザースキームに比べて大きなメリットを生ずるかどうかは、必ずしも明らかではない。

4. EIT と非線形光学過程

量子干渉効果は非線形光学過程にも新しい可能性をもたらす。非線形波長変換過程について考えれば、その効率の指標は非線形感受率と線形感受率の絶対値との比で表され、その値が大きくとれることが非線形媒質としての評価の基準となる。すなわち、非線形感受率を最大にする条件下で発生したコヒーレント光の吸収を最小にしかつ位相整合条件も同時に満たすことが、非線形媒質が満たすべき理想的な条件である。しかしながら通常の場合は、非線形感受率を大きくするため共鳴条件を用いると、発生するコヒーレント光に対する吸収も増大するため、いわば非線形感受率と線形感受率の間にはトレードオフの関係が存在し、上記の理想的な条件を満たすことは不可能となる。しかし、量子干渉効果を用いることにより非線形光学過程からこのトレードオフの問題を原理的に取り除くことが可能となる¹⁸⁾。

図1(a)の強結合のスキームに基底準位1から励起準位2への2光子励起過程を導入し3-1遷移に共鳴するコヒーレント光を発生する波長変換(和周波混合)過程を考えよう。強結合系の非線形感受率の表現は、定常状態の近似のもとに式(2),(3)から b_{2a} , b_{3d} を求め3-1遷移に対応するコヒーレント分極を計算することにより得られる。図4にこのようにして求めた非線形感受率の絶対値の2光子励起周波数の離調に対する振舞いを示す。線形感受率(吸収・分散)とは全く異なり、3-1遷移の中心で非線形感受率が共鳴的に増大される様子がみとれる。

和周波発生過程も2d, 3dを経由する2つの道筋からの寄与があるわけであるから非線形感受率にも干渉効果は当然現れる。しかしながら和周波発生過程はパラメトリック過程であり、その道筋は基底準位とdressされた励起準位系を2光子過程で結びつけ、また1光子過程で

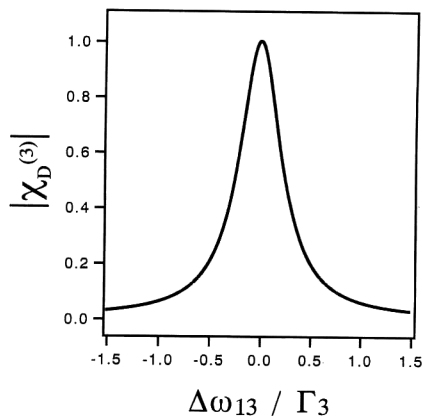


図4 強結合三準位系の非線形光学応答特性
2-1遷移に2光子励起遷移を導入した場合の和周波光発生に対する非線形感受率のプロファイル。準位2-3間の結合のためのラビ周波数は3-1遷移の均一幅の半幅に固定してある。

基底準位にもどる過程として表現できる。このため状態2dおよび3dを経由する道筋にはそれぞれ2光子許容の $|2\rangle$ および1光子許容の $|3\rangle$ の成分についての係数の積が現れる。対称および反対称な $|2d\rangle$, $|3d\rangle$ ではその係数の積の符号が逆となり、結果として干渉効果は相殺的でなく相乗的に現れることになる。この事情が非線形感受率の振舞いを線形感受率のそれと全く異なるものにするわけである。

以上のことから、3-1遷移の中心では共鳴的に増強された非線形感受率とともに、図2(a), (b)で示したように、相殺的干渉効果によるEITにより吸収はゼロとなり、かつ分散曲線がゼロをよぎることから位相整合条件も成立し、非線形光学過程として理想的な条件が満たされることになる。すなわち、従来原理的困難とされてきたトレードオフの問題はここで扱う系には現れないことになる。

干渉効果を用いた非線形光学の研究は種々の原子系で系統的な研究が実施され、ここで述べた基礎特性は実験的にも実証され、真空紫外からさらに短波長のコヒーレント光を得る手法として種々の実験的な研究が展開されている^{5,19-24)}。

5. EIT とパルス光伝播

以上の記述は基本的に定常状態についてのものであり、レーザー光としては連続光が仮定されていた。しかしながら、レーザー光としてパルス光を考えるとEITは光パルス伝播特性にきわめて興味深い特性を付与する

ことになる。一方、現実の媒質系の不均一広がりを克服するため dress のためのレーザーに課せられる要求はパルス光を必要とせざるを得ない状況を生み出すことにもなる。とりわけ非線形光学過程では、現状ではパルス光を仮定せざるを得ない。この意味でもパルス光伝播特性の解析はきわめて重要である。以下に、最近盛んに議論されている EIT 条件下でのパルス光伝播の問題について紹介する。

5.1 分散特性と群速度

媒質が強結合により EIT の条件を満たすとき、図 2(b) に示されたように分散曲線は分裂した吸収ピークの中央でゼロをよぎり、そこでの光の位相速度は真空中の光速となる。一方パルス光の伝播を考えると、パルス伝播速度としては位相速度のみでなく様々な物理量の伝播速度を考えねばならない。中でも最重要なものは波束の伝播速度に対応する群速度である。群速度 V_G は良く知られているように

$$\frac{1}{V_G} = \frac{1}{c} + \frac{\pi}{\lambda} \left(\frac{\partial \kappa}{\partial \omega} \right)$$

と伝播する媒質の分散曲線の傾きで表される。図 2(b) から明瞭にわかるように、中央部での分散曲線の傾きは急峻であり、透明媒質であるにもかかわらず、その群速度はきわめて遅くなる。実際の系で準備可能な条件下で数値計算した結果によると、EIT 条件下での群速度は容易に真空中の光速の 1/200 以下になることが示され、様々な応用の可能性が議論されている²⁵⁾。このきわめて遅い群速度は最近実験的にも確認されている²⁶⁾。

5.2 伝播パルス光の固有状態

前項の議論は dress のためのレーザー場は定常的に存在しかつその周波数は単一であることを仮定し、その条件下で生じた EIT に対する弱いプローブパルス光の応答として成り立つものである。Dress のためのレーザー光もプローブ光と同様にパルスの場合はその事情は異なってくる。図 1(a) に示す三準位系をパルスレーザー光で dress し、弱いパルスレーザー光でプローブする過程を考える。理論的解析によれば、この場合はプローブレーザーパルスは媒質中を伝播するにしたがってそのパルス波形を結合レーザーのパルス波形と一致するよう時間発展し同一の時間波形のパルス (matched pulse) を生成し、生成された matched pulse 対は減衰することなく媒質中を伝播することが示される²⁷⁾。Matched pulse 対のロスレスの伝播はパルスのフーリエ成分を考えれば容易に理解できる。すなわち、パルス波形が同一であれば、2つの光パルスは搬送波の周波数が異なるのみで同

一のフーリエ成分をもつわけであるから、搬送波間で EIT の条件 (図 1(a) の 1-2 準位間の 2 光子共鳴条件) が満たされれば、対応するフーリエ成分の間でも EIT の条件が満たされることになるからである。

2つのパルスの強度が同程度である場合は、EIT よりむしろコヒーレントトラッピングの状況となり事情はやや複雑であるが、より一般的な結論が理論的に示されている。この場合は2つのパルス対は時間発展の過程で間断ないエネルギーのやりとりを行う。しかし、通常は原子系の状態として理解されている相互作用系の固有状態であるコヒーレントトラッピング状態の表現を、2つの光パルスの場の反対称な線形結合の状態 (Ω_-) と解釈し、それとともに Ω_- に直交する状態 (Ω_+) を考えると時間発展の状況はきわめて明白になる。 Ω_- および Ω_+ についての時間発展を数値計算すると、その結果は Ω_- の状態は急速に立ち上がり一定値に到達し、一方 Ω_+ の状態はそれに対応して急速に減衰し消え去っていくことが示される。このことは、入射光パルスが同程度の強度の場合は、原子系の固有状態がコヒーレントトラッピング状態となるように、光パルスの固有状態もそれぞれの光パルスではなくコヒーレントトラッピングに対応する線形結合の状態 (dressed-field pulse) となることを示している。2つの光パルスの時間発展はその固有状態への時間発展として理解できることになる²⁸⁾。

最後に結合レーザー光が準連続でプローブパルス光が結合レーザー光と同程度の強度の場合について簡単に述べる。この場合は前節では無視した結合光とプローブ光との間の相互作用が重要となり、その相互作用を通して結合およびプローブ光は伝播光パルスの固有状態となるよう時間発展する。この系は最近理論的に解析され、その固有状態は準連続の結合レーザー場中に生成するディップとそれと同時に同形のパルス光の組合せとなることが示されている²⁹⁾。準連続場中のディップと光パルスは互いに時間波形が同じであればフーリエ成分も同じくなる。この意味でこの対が媒質中を減衰なく伝播するのは matched pulse の場合と同等である。この対の伝播はいわばソリトンのことであることから adiabaton と名付けられており、また最近実験的にも観測されている²⁶⁾。

6. おわりに

レーザー場により物質系を修飾しその光学応答を制御する方法を、EIT をキーワードとして紹介した。現状は未だ理論的研究が全体をリードする形となっており、実験は原子系を用いた原理実証が主流の段階であるとい

える。今後も様々な理論的アイデアが提案されることと思われるが、実験家としての筆者らの立場からは原理実証を越えたインパクトのある実験結果の提示が最も重要に思える。そのためには、原子系では媒質系の運動量制御も含めた自由度の制御がきわめて重要である。また固体系への拡張もきわめて重要であろう。実際、固体系の中にはここで述べた手法の適用対象として有望な物質もあるように思われ、今後の研究の展開に期待がもたれる。

文 献

- 1) S. E. Harris : OSA Proceedings, **2** (1988) 414-417.
- 2) U. Fano : Phys. Rev., **124** (1961) 1866-1878.
- 3) A. Imamoglu and S. E. Harris : Opt. Lett., **14** (1989) 1344-1346.
- 4) A. Imamoglu, J. E. Field and S. E. Harris : Phys. Rev. Lett., **66** (1991) 1154-1157.
- 5) G. Z. Zhang, M. Katsuragawa, K. Hakuta, R. I. Thompson and B. P. Stoicheff : Phys. Rev., **A** (in press).
- 6) K.-J. Boller, A. Imamoglu and S. E. Harris : Phys. Rev. Lett., **66** (1991) 2593-2596.
- 7) J. E. Field, K. Hahn and S. E. Harris : Phys. Rev. Lett., **67** (1991) 3062-3065.
- 8) M. Xiao, Y. Q. Li, S. Z. Jin and J. Gea-Banacloche : Phys. Rev. Lett., **74** (1995) 666-669.
- 9) P. M. Radmore and P. L. Knight : J. Phys., **B15** (1982) 561-573.
- 10) S. E. Harris : Phys. Rev. Lett., **62** (1989) 1033-1036.
- 11) O. A. Kocharovskaya and P. Mandel : Phys. Rev., **A42** (1990) 523-535.
- 12) L. M. Narducci, M. O. Scully, C. H. Keitel, S. Y. Zhu and H. M. Doss : Opt. Commun., **86** (1991) 324-332.
- 13) A. Nottelmann, C. Peters and W. Lange : Phys. Rev. Lett., **70** (1993) 1783-1786.
- 14) E. S. Fry, X. Li, D. Nikonov, G. G. Padmabandu, M. O. Scully, A. V. Smith, F. K. Tittel, C. Wang, S. R. Wilkinson and S. Y. Zhu : Phys. Rev. Lett., **70** (1993) 3235-3238.
- 15) W. E. van der Veer, R. J. J. van Diest, A. Donszelmann and F. B. van Linden van den Heuvell : Phys. Rev. Lett., **70** (1993) 3243-3246.
- 16) J. Y. Gao, H. Z. Zhang, H. F. Cui, X. Z. Guo, Y. Jiang, Q. W. Wang, G. X. Jin and J. S. Li : Opt. Commun., **110** (1994) 590-594.
- 17) J. A. Kleinfeld and A. D. Streater : Phys. Rev., **A49** (1994) R4301-4304.
- 18) S. E. Harris, J. E. Field and A. Imamoglu : Phys. Rev. Lett., **64** (1990) 1107-1110.
- 19) J. E. Field, K. H. Hahn and S. E. Harris : Phys. Rev. Lett., **67** (1991) 3062-3065.
- 20) K. Hakuta, L. Marmet and B. P. Stoicheff : Phys. Rev. Lett., **66** (1991) 596-599.
- 21) K. Hakuta, L. Marmet and B. P. Stoicheff : Phys. Rev., **A45** (1992) 5152-5159.
- 22) G. Z. Zhang, K. Hakuta and B. P. Stoicheff : Phys. Rev. Lett., **71** (1993) 3099-3102.
- 23) M. Jain, G. Y. Yin, J. E. Field and S. E. Harris : Opt. Commun., **18** (1993) 998-1000.
- 24) S. J. van Enk, J. Zhang and P. Lambropoulos : Phys. Rev., **A50** (1994) 3362-3365.
- 25) S. E. Harris, J. E. Field and A. Kasapi : Phys. Rev., **A46** (1992) R29-32.
- 26) A. Kasapi, M. Jain, G. Y. Yin and S. E. Harris : Phys. Rev. Lett., **74** (1995) 2447-2450.
- 27) S. E. Harris : Phys. Rev. Lett., **70** (1993) 552-555 ; Phys. Rev. Lett., **72** (1994) 52-55.
- 28) J. H. Eberly, M. L. Pons and H. R. Haq : Phys. Rev. Lett., **72** (1994) 56-59.
- 29) R. Grobe, F. T. Hioe and J. H. Eberly : Phys. Rev. Lett., **73** (1994) 3183-3186.