レーザー解説

コヒーレント過渡光学現象

花 村 榮 一*

(1984年3月12日 受理)

Coherent Optical Transients

Eiichi HANAMURA*

(Received March 12, 1984)

1. はじめに

レーザー技術の進歩によって、極めてコヒーレントで安定な光源が得られるようになり、しかも、それをピコ秒、フェムト秒のオーダーでコントロールできるようになった。このようなレーザー光を用いて、コヒーレント過渡光学現象を観測できるようになったのである。コヒーレントなレーザー光で電子系を照射するとき、その電子系の励起状態は励起準位の分布数と、準位間に誘起される電気分極とで記述される。この誘導分極は照射レーザー光の周波数で振動し、またその位相情報も担うものである。観測にかかる巨視的分極は、多数の固体中素励起の分極の和で記述される。したがって、各素励起の位相が揃っているときは、コヒーレントな巨視的分極を伴い、ランダムของときにはたとえ励起準位に分布数があっても、巨視的分極は消滅した状態となる。誘起された励起準位の分布数と電気分極を熱平衡での値に戻すように緩和が働く。分布数の緩和を縦緩和、あるいは T_1 過程とかエネルギー緩和と呼び、誘起分極の緩和を横緩和あるいは T_2 過程と呼ぶ。この横緩和は、

各素励起の分極の位相を乱す位相緩和と、分極の減衰に伴う分極の緩和からの寄与よりなる。一般に固体中の素励起の縦緩和時間は自然放出によるもので、ナノ秒のオーダーであるのに比して、位相緩和は電子系をとりまく環境との相互作用によってきまり、ピコ秒と極めて短い。このような緩和機構を解明するのに、コヒーレント過渡分光が威力を発揮するのである。コヒーレントなレーザー光とそのレーザー光をナノ秒、ピコ秒のオーダーで制御できるようになって、はじめて、このコヒーレント過渡分光の実験が可能になるのである。

電子系のコヒーレントな分極は、短い横緩和時間で減衰していく。したがって、定常的にレーザー光で電子系を駆動して、定常的なコヒーレント分極を実現させるか、あるいは、外場によってコヒーレントに励起した直後に実現されるコヒーレント分極を横緩和時間内に観測することになる。松岡氏¹⁾にならって、コヒーレント過渡光学現象を次のように分類しよう：

1) 光章動や自己誘導透過のように、励起レーザー光を照射している間か、光が伝播中に生じる現象。

* 東京大学工学部物理工学科 (〒113 東京都文京区本郷7-3-1)

* Department of Applied Physics, University of Tokyo (Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113)

2) フォトンエコーや自由誘導減衰のように、光励起後の外場のないときに起る現象。

3) 超放射のように、自然放出によって巨視的分極が自発的に形成される現象。これは、1), 2) の現象が誘導放出によるのと対照的である。

レーザー技術の進歩とあいまって、ここ10年、上述のコヒーレント過渡分光の実験が多々行なわれてきた。この論文では、これらの過渡分光そのものを解説するのではなく、この過渡分光法、特に2) の自由誘導減衰によって明らかになった一側面にスポットをあててみたい。すなわち、強いレーザー光照射の下においては、熱浴による電子の緩和の様子が、レーザー光強度に強く依存することが期待できる。その様子がコヒーレント過渡光学現象で観測され、理論的にも解明された。これは、電子系がレーザー光源よりエネルギーを供給される開放系であることによる。この電子系の熱浴との結合の度合いがレーザー光源から供給されるエネルギーに強く依存することは、開放系特有の現象として興味がある。

磁気共鳴を始めとして、非線型光学における現象は、縦緩和時間 T_1 と横緩和時間 T_2 を導入したブロッホ方程式で記述されてきた。しかし、最近、超短パルス・レーザー光や極めて安定なレーザー光を光源とする分光法により、特に固体において緩和過程をマルコフ過程として記述できない現象が観測されることが期待されていた。この論文では、電子系をとりかこむ環境の影響をガウス過程に従う2準位系の周波数揺動として記述し、この系のコヒーレント過渡光学現象を論じる²⁾。この場合でも、自然放出による緩和は定数 $2\gamma \equiv 1/T_1$ で記述できる。第一に、周波数揺動の大きさ $\delta\omega$ と相関時間 τ_c は、光エコーの実験から有効に決められることを示す。第二に、このモデルは、レーザー光が弱く($\chi\tau_c < 1$, χ はラビ周波数)、速いか弱い周波数揺動($\delta\omega\tau_c < 1$) のときには、ブロッホ方程式による結果と一致する。レーザー光を強めて $\chi\tau_c > 1$ または $\chi > \delta\omega$ になると、自由誘導減衰現象には位相緩和の効果はおさえられ、効かな

くなる。このことは電子系と熱浴との間のパイプが閉じてしまうことを物語るものである。そのときホール・バーニングのスペクトル幅への位相緩和の寄与が消失していく様子を自由誘導減衰現象においては時間領域で観測するものである。第三に、上記の現象は周波数領域でも観測できることを示す³⁾。強いレーザー光照射下では、ラビ周波数 χ だけ分裂した3本の発光線が観測されるが、特に $\delta\omega\tau_c \ll 1$ のときには、3本の発光線は $\chi > \tau_c^{-1}$ の強いレーザー光照射下で強い尖鋭化を起こす。これは、第二の現象と全く同じ原因によるものである。

2. 周波数揺動モデル

基底状態 $|a\rangle$ と励起状態 $|b\rangle$ よりなる2準位電子系を考えよう。Fig.1に示すようにこの電子系はレーザー光 $E(t) = E_0 \cos \omega t$ の照射をうけ、

Fig.1 Two-level electronic system is coherently excited by the laser field and is also connected with the thermal reservoir and the radiation vacuum.

また他の固体内素励起よりなる熱浴のなかにひたっているとす。熱浴素励起との結合の大きさは電子系が基底状態 $|a\rangle$ に在るときと、励起状態 $|b\rangle$ に在るときとは異なるので、熱浴の効果は一般には励起周波数 ω_{ba} に対する周波数揺動 $\delta\omega(t)$ として記述される。この場合でも、励起状態 $|b\rangle$ からの自然放出の効果は、分布数に対しては $2\gamma \equiv 1/T_1$ で、また分極には γ の横緩和定数への寄与として取りこむことができる。したがって、電子系及び熱浴を含めて系の密度行列 $\rho(t)$ の運動は次式のように書ける：

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{ab} = & -\gamma + i[\Delta + \delta\omega(t)]\tilde{\rho}_{ab} + \frac{i\chi}{2}(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \\ & (1a) \\ \dot{\rho}_{bb} - \dot{\rho}_{aa} = & -2\gamma(\rho_{bb} - \rho_{aa} - w_0) + i\chi(\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ba}). \end{aligned} \quad (1b)$$

ここに、 $\Delta \equiv \omega_{ba} - \omega$ 、 $\chi \equiv \mu E_0$ はラビ周波数、 μ は遷移の双極子モーメント、 w_0 は熱平衡下での分布差である。 $\tilde{\rho}_{ab} = \rho_{ab} = \tilde{\rho}_{ab} \exp(i\omega t)$ とし、周波数 ω で激しく振動する部分をとりのぞいたものである。同時に、回転波近似によって非共鳴の成分からの寄与を落とした。周波数揺動 $\delta\omega(t)$ には、熱浴の沢山の自由度の素励起が寄与するときには、中央極限定理によって、周波数揺動 $\delta\omega(t)$ はガウス過程となり、またそのときには Doob の定理によって、周波数揺動の相関関数は、その強度 $\delta\omega$ と相関時間 τ_c を用いて、

$$\langle \delta\omega(t) \delta\omega(s) \rangle = (\delta\omega)^2 \exp[-|t-s|/\tau_c] \quad (2)$$

と書ける。電子間の相互作用は無視できるので、原点にある電子の運動を求め、その電気分極に電子密度 N をかけて、巨視的電気分極をうることができる。

3. 光エコー

ガウス過程に従う周波数揺動をうける2準位電子系は、ブロッホ方程式に従う電子系とは異なるコヒーレント過渡光学応答を示す。その第一が光エコーであり、またこの現象が周波数揺動を特徴づける $\delta\omega$ と τ_c を最も有効に決める方法と思われる。

$0 < t < t_1$ の時間に $\pi/2$ パルスをし、 $t_2 < t < t_3$ の時間に π パルスを電子系にかけ、 $t \approx 2t_2$ 付近に現われる光エコーを観測する。これらの矩形パルスがかけられる時間は、励起状態の寿命 T_1 や周波数揺動の相関時間 τ_c に比して十分短いとして、これらの時間内では、寿命や周波数揺動の効果は無視できるとする。さらに、 $u = \tilde{\rho}_{ab} + \tilde{\rho}_{ba}$ 、 $v = -i(\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ba})$ 、 $w = \rho_{bb} - \rho_{aa}$ と書きかえと、(1)式は、次のように単純化できる：

$$\dot{u} + \Delta v = 0, \quad \dot{v} - \Delta u - \chi w = 0, \quad \dot{w} + \chi v = 0. \quad (3)$$

$t_1 \leq t < t_2 \equiv \tau$ と $t_3 \leq t$ では入射レーザー光を $\omega \rightarrow \omega'$ とシュタルク・スイッチすることによって $\Delta \equiv \omega_{ba} - \omega \rightarrow \Delta' \equiv \Delta + \Delta\omega$ ($\Delta\omega \equiv \omega - \omega'$ 、 $|\Delta\omega| \gg (T_2)^{-1}$ と大きく非共鳴の状態) にもっていき、

密度行列の運動に対する外場の影響を無視することができる。これらの時間内では、励起状態 $|b\rangle$ の自然放出の定数 $\gamma_b = 2\gamma$ とし、

$$\dot{\tilde{\rho}}'_{ab}(t) = [-\gamma + i(\Delta' + \delta\omega(t))] \tilde{\rho}'_{ab}(t), \quad (4a)$$

$$\dot{\rho}_{bb} - \dot{\rho}_{aa} = -2\gamma(\rho_{bb} - \rho_{aa} - w_0). \quad (4b)$$

[1] $0 \leq t < t_1$: 初期条件 $u(0) = v(0) = 0$ 、 $w(0) = w_0 = -1$ で、方程式(3)を解くと、

$$u(t_1) = \frac{\Delta \chi w_0}{\chi^2 + \Delta^2} (\cos \theta_{10} - 1), \quad (5a)$$

$$v(t_1) = \frac{\chi w_0}{\sqrt{\chi^2 + \Delta^2}} \sin \theta_{10}. \quad (5b)$$

$$w(t_1) = w_0 + \frac{\chi^2 w_0}{\chi^2 + \Delta^2} (\cos \theta_{10} - 1). \quad (5c)$$

$\pi/2$ パルスを考えているので、 $\theta_{10} \equiv \sqrt{\chi^2 + \Delta^2} t_1 = \pi/2$ 。

[2] $t_1 \leq t < t_2 \equiv \tau$: 初期条件 $\tilde{\rho}_{ab}(t_1) = (1/2) \times [u(t_1) + iv(t_1)] = -\Delta \chi w_0 / (2(\chi^2 + \Delta^2)) + i\chi w_0 / (2\sqrt{\chi^2 + \Delta^2})$ 、 $w(t_1) = \Delta^2 w_0 / (\chi^2 + \Delta^2)$ に対して方程式(4)を解くと、

$$\tilde{\rho}'_{ab}(t_2) = \tilde{\rho}_{ab}(t_1) \exp[-(\gamma - i\Delta')(t_2 - t_1) + i \int_{t_1}^{t_2} \delta\omega(\tau) d\tau], \quad (6a)$$

$$w(t_2) = w(t_1) \exp[-2\gamma(t_2 - t_1)]. \quad (6b)$$

[3] $\tau \equiv t_2 \leq t < t_3$: 初期条件 (6a, b) に対して方程式(4)を解き、 $\theta_{32} \equiv \sqrt{\chi^2 + \Delta^2}(t_3 - t_2) = \pi$ なるパルスに対しては、 $|\Delta| \ll \chi$ とし、

$$u(t_3) = u(t_2) = 2 \operatorname{Re} \tilde{\rho}'_{ab}(t_2), \quad (7a)$$

$$v(t_3) = -v(t_2) = -2 \operatorname{Im} \tilde{\rho}'_{ab}(t_2). \quad (7b)$$

[4] $t_3 \leq t$: 初期条件は、(7a, b) 式より

$$\tilde{\rho}'_{ab}(t_3) = \tilde{\rho}'_{ab}(t_2) = \tilde{\rho}_{ab}^*(t_1)$$

$$\times \exp[-(\gamma + i\Delta')(t_2 - t_1) - i \int_{t_1}^{t_2} \delta\omega(\tau) d\tau].$$

ここで、第1パルスに対しては $\sqrt{\chi^2 + \Delta^2} t_1 = \pi/2$ 。第2パルスに対しては $\sqrt{\chi^2 + \Delta^2}(t_3 - t_2) = \pi$ を保ちつつ t_1 と $t_3 - t_2$ を零とし、 $t_2 = t_3 = \tau$ とおいて、(4a) 式を解くと、

$$\tilde{\rho}'_{ab}(t) = \tilde{\rho}^*_{ab}(t_1) \exp[-\gamma t + i\Delta'(t-2\tau)] \\ \times \exp\left[-i\int_0^\tau \delta\omega(s)ds + i\int_\tau^t \delta\omega(s)ds\right]. \quad (8)$$

ここに、 $\tilde{\rho}'_{ab}(t) \exp(i\omega' t) \equiv \rho_{ab}(t)$ 。電気分極密度 $P(t) = \mu N \tilde{\rho}'_{ab}(t)$ をアンサンブル平均したものを源として光エコーの信号はマックスウェル方程式より $E_{ab}(L, t) = -2\pi i k \mu N L \langle \tilde{\rho}'_{ab}(t) \rangle$ 。 L は試料の厚さである。この信号とシュタルク・スイッチで2単位間遷移から大きく非共鳴となった入射電磁波 $E_0 \cos(\omega' t)$ とのビートを観測すると

$$\{E(t)^2\}_{\text{beat}} = E_{ab}(L, t) E_0 + \text{c.c.} \\ = \frac{2\pi k N L \chi^2}{\sqrt{\chi^2 + \Delta^2}} \cos\Delta'(t-2\tau) \\ \times \langle \exp[-\gamma t - i\int_0^\tau \delta\omega(s)ds + i\int_\tau^t \delta\omega(s)ds] \rangle. \quad (9)$$

$\langle \cdots \rangle$ は(2)式を用いて $\delta\omega$ と τ_c を用いて次のように書ける：

$$\langle \cdots \rangle = \exp\{-[\gamma + (\delta\omega)^2 \tau_c] t \\ + (\delta\omega \tau_c)^2 [2 - e^{-\tau/\tau_c} - e^{-(t-\tau)/\tau_c}] \\ + (\delta\omega \tau_c)^2 (1 - e^{-\tau/\tau_c}) [1 - e^{-(t-\tau)/\tau_c}]\} \quad (10)$$

(9)式の $\cos\Delta'(t-2\tau)$ より $t=2\tau$ で光エコーのビートが観測される。 π -パルスの効果は、(9)式が示すように時間 $[0, \tau]$ にうけた周波数揺動の効果の符号を変えて、 $[\tau, t]$ でうける効果を相殺する傾向をもつ。とくに、 $\tau < \tau_c$ のときには、この相殺が有効に働いて光エコーの減衰係数は、自然放出による γ である。 $\tau > \tau_c$ では逆に相殺効果は無視できて、周波数揺動による位相緩和が有効に働き、光エコーの減衰係数は $\gamma + \gamma' \equiv \gamma + (\delta\omega)^2 \tau_c$ となる。結晶中の電子準位では $\gamma + \gamma' = 1/T_2$ は、 $2\gamma \equiv 1/T_1$ に比して2~3桁大きい。そのために、光エコーの信号を τ の関数として描くと、2段の指数関数として減衰し、そのキंकより τ_c が決まり、 $\tau \gg \tau_c$ での減衰指数より $\gamma + \gamma' \equiv (\delta\omega)^2 \tau_c$ が決まる。この理論結果を確認する実験はまだ行なわれていないが、そのきざしはすでに観測されているように思われる⁴⁾。

4. 非線型自由誘導減衰⁵⁾

自由誘導減衰現象は、2単位にほぼ共鳴するレーザー光を $t \leq 0$ で照射し、 $t > 0$ で切って、発光強度の減衰を時間の関数として観測するものである。プロッホ方程式で電子系の運動を記述する場合、発光強度は $\exp(-2t/T_2)$ で減衰し、非共鳴の入射光とのビートを観測するときは $\exp(-t/T_2)$ で減衰する。しかし、入射光が強くと、ラビ周波数 χ が $\delta\omega$ や τ_c^{-1} より大きくなると、位相緩和の効果緩和定数 T_2 では記述できなくなる。ここでは、電子系に働く熱浴の効果をより一般的なガウス過程の周波数揺動として記述する。

初めに、 $\chi < \tau_c^{-1} (\delta\omega \tau_c < 1)$ では、このモデルが、プロッホ方程式の結果に一致することを示そう。

[1] $\chi < \tau_c^{-1}$ のときには、 $\Delta t > \tau_c$ を満たす Δt をとり、(1)式を t と $t + \Delta t$ の間で積分して、(2)式を用いてアンサンブル平均をとって粗視化し、 $\langle \Delta\rho_a / \Delta t \rangle = \langle \dot{\rho}_a \rangle$ と近似すると、次のプロッホ方程式をうる ($\gamma' \equiv (\delta\omega)^2 \tau_c$)：

$$\langle \dot{\tilde{\rho}}_{ab} \rangle = -(\gamma + \gamma' - i\Delta) \langle \tilde{\rho}_{ab} \rangle + \frac{i\chi}{2} (\langle \rho_{bb} \rangle - \langle \rho_{aa} \rangle), \quad (11a)$$

$$\langle \dot{\tilde{\rho}}_{ba} \rangle = -(\gamma + \gamma' + i\Delta) \langle \tilde{\rho}_{ba} \rangle - \frac{i\chi}{2} (\langle \rho_{bb} \rangle - \langle \rho_{aa} \rangle). \quad (11b)$$

この粗視化が許されるのは Fig. 2 のB領域 ($\chi \tau_c < 1$, $\delta\omega \tau_c < 1$) である。それは、密度行列の時定数は $T_1 = (2\gamma)^{-1}$, $T_2 = (\gamma + \gamma')^{-1}$, χ^{-1} によって決まるが、これらの時定数はB領域では熱浴の時定数より長いので、この粗視化は許される。

[2] $\chi > \tau_c^{-1}$ のときには $\tilde{\rho}_{ab}$, $\tilde{\rho}_{ba}$ は χ で振動する部分を含むので密度行列の時定数 χ^{-1} が熱浴の時定数 τ_c より短くなって、[1]の粗視化は許されない。そこで、入射レーザー光を量子化して、 $\hbar\omega$ の光子の数を n とし、次のユニタリー変換で電子系と入射レーザー光との相互作用を対角化する：

Fig.2 Characteristics of the free induction decay are shown against the nature of the frequency modulation ($\delta\omega\tau_c \geq 1$) and the laser intensity ($\chi\tau_c$). Bloch theory is justified in B and stochastic theory in R. I and NE show the intermediate and the non-exponential decay region, respectively.

$$|1, n\rangle = \cos\theta |b, n\rangle + \sin\theta |a, n+1\rangle, \quad (12a)$$

$$|2, n\rangle = -\sin\theta |b, n\rangle + \cos\theta |a, n+1\rangle, \quad (12b)$$

ここに $\tan 2\theta = -\chi/\Delta$ 。Fig. 3 のような状態に対角化される。この変換された座標系で密度行列の運動を追うとき、これを Dressed Atom の描像と呼ぶ。 $\Omega = \sqrt{\Delta^2 + \chi^2}$ 。(1)式に(12)式の変換を施すと、次の方程式をうる：

Fig.3 $|a, n+1\rangle$ and $|b, n\rangle$ states are modified into the dressed states (right) by diagonalizing the laser-electron interaction. $\Omega = \sqrt{\Delta^2 + \chi^2}$.

$$\dot{\rho}_{12} = -\left\{ \gamma + i[\Omega + \cos 2\theta \delta\omega(t)] \right\} \rho_{12} - \gamma \frac{\sin^2 2\theta}{2} (\rho_{12} + \rho_{21}) + \gamma \sin 2\theta (\rho_{11} + \rho_{22})$$

$$+ \frac{\sin 2\theta}{2} [\gamma \cos 2\theta - i\delta\omega(t)] (\rho_{11} - \rho_{22}), \quad (13a)$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{11} = & -\frac{\gamma}{2} (1 + \cos^2 2\theta) (\rho_{11} - \rho_{22}) \\ & - \gamma \cos 2\theta (\rho_{11} + \rho_{22}) \\ & + \frac{\gamma}{2} \cos 2\theta \sin 2\theta (\rho_{12} + \rho_{21}) \\ & - \frac{i}{2} \delta\omega(t) \sin 2\theta (\rho_{12} - \rho_{21}), \end{aligned} \quad (13b)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -\dot{\rho}_{11}, \quad \rho_{21} = \rho_{12}^*. \quad (13c, d)$$

$\rho_{12}(t) = \tilde{\rho}_{12}(t) \exp(-i\Omega t)$ と $\rho_{21} = \tilde{\rho}_{21}(t) \exp(i\Omega t)$ の変換により ρ_{12} と ρ_{21} より時間的に早く振動する部分を分離し、 $\Delta t > \tau_c > \Omega^{-1}$ の時間で、(13)式を積分して、アンサンブル平均をとって、粗視化すると、

$$\begin{aligned} \langle \dot{\tilde{\rho}}_{12} \rangle = \langle \frac{\Delta \tilde{\rho}_{12}}{\Delta t} \rangle = & - \left[\gamma \left(1 + \frac{\sin^2 2\theta}{2} \right) \right. \\ & \left. + \gamma' \cos^2 2\theta + \gamma'' \frac{\sin^2 2\theta}{2} \right] \langle \tilde{\rho}_{12} \rangle, \end{aligned} \quad (14a)$$

$$\begin{aligned} \langle \dot{\tilde{\rho}}_{11} \rangle = & -\frac{1}{2} [\gamma (1 + \cos^2 2\theta) \\ & + \gamma'' \sin^2 2\theta] \langle \rho_{11} - \rho_{22} \rangle \\ & - \gamma \cos 2\theta \langle \rho_{11} + \rho_{22} \rangle, \\ \langle \dot{\tilde{\rho}}_{22} \rangle = & -\langle \dot{\tilde{\rho}}_{11} \rangle, \quad \langle \rho_{21} \rangle = \langle \rho_{12} \rangle^*, \end{aligned}$$

ここで、 $\gamma' = (\delta\omega)^2 \tau_c$ 、 $\gamma'' = \gamma' / [1 + (\Omega \tau_c)^2]$ 。この〔2〕では、非共鳴ラビ周波数 Ω で回転する座標系で密度行列の運動を記述したものである。その結果対角成分 ρ_{12} の運動と、対角成分 ρ_{11} 、 ρ_{22} の運動とを分離することができた。

さていよいよ自由誘導緩和を求めよう。 $t \geq 0$ で入射光を $\Delta \rightarrow \Delta' \equiv \omega_{ba} - \omega' = \Delta + \Delta\omega$ ($\Delta\omega \equiv \omega - \omega'$) と非共鳴にシュタルク・スイッチしたとき、非共鳴電磁波の電子系への効果は無視できる。そのとき密度行列 $\tilde{\rho}_{ab}(t)$ は、 $\tilde{\rho}_{ab}(0)$ を初期条件として、次式に従って緩和していく：

$$\begin{aligned} \langle \tilde{\rho}_{ab}(t) \rangle = & \langle \exp[(i\Delta' - \gamma)t + i \int_0^t \delta\omega(\tau) \cdot \\ & d\tau] \rho_{ab}(0) \rangle \doteq \exp[(i\Delta' - \gamma)t] \end{aligned} \quad (15a)$$

$$\times \langle \exp[i \int_0^t \delta\omega(\tau) d\tau] \rangle \langle \rho_{ab}(0) \rangle. \quad (15b)$$

ここで、我々は $\Delta t > \tau_c$ なる粗視化された時間に興味をもつとする。また(2)式を使うと、

$$\langle \exp[i \int_0^t \delta \omega(\tau) d\tau] \rangle = \exp[-(\delta \omega)^2 \tau_c t + (\delta \omega \tau_c)(1 - e^{-t/\tau_c})]$$

と評価でき、 $\chi < \tau_c^{-1}$ のときには

$$\langle \rho_{ab}(0) \rangle = \frac{\chi \left(\Delta - \frac{i}{T_2} \right)}{2 \left[\Delta^2 + \frac{1}{T_2^2} + \frac{T_1 \chi^2}{T_2} \right]} \quad (16)$$

さらに $\chi > \max(\delta \omega, \tau_c^{-1})$ のときには

$$\begin{aligned} \langle \rho_{ab}(0) \rangle &= \frac{\sin 2\theta}{2} (\tilde{\rho}_{11} - \tilde{\rho}_{22}) \\ &+ \frac{\cos 2\theta}{2} (\tilde{\rho}_{12} + \tilde{\rho}_{21}) + \frac{1}{2} (\tilde{\rho}_{12} - \tilde{\rho}_{21}) \\ &= \frac{\Delta \chi}{2 \left[\Delta^2 + \frac{\chi^2}{2} + \frac{\gamma' \chi^2}{2\gamma(1 + Q^2 \tau_c^2)} \right]} \quad (17) \end{aligned}$$

ところで、2準位原子は結晶中の環境の違いによっていろいろの励起エネルギー $\hbar \omega_{ba}$ をとる。 $\Delta = \omega_{ba} - \omega$ は $\Delta_0 = \omega_{ba}^0 - \omega$ を中心に偏差 σ のガウス分布

$$P(\Delta) = (\sqrt{\pi \sigma})^{-1} \exp \left[- \left(\frac{\Delta - \Delta_0}{\sigma} \right)^2 \right]$$

に従う場合が多い。そのとき電気分極

$$\begin{aligned} P(t) &= N \mu \langle \tilde{\rho}_{ab}(t) \rangle \\ &= N \mu \int_{-\infty}^{\infty} \langle \tilde{\rho}_{ab}(t) \rangle P(\Delta) d\Delta \\ &\doteq N \mu P(0) \exp \left[\left(\frac{-1}{T_2} + i \Delta \omega \right) t \right] \int_{-\infty}^{\infty} d\Delta \\ &\quad \cdot \rho_{ab}(0) e^{i \Delta t} \quad (18) \end{aligned}$$

は次のように評価できる、ただし $\sigma \gg \chi, \delta \omega$,

$\gamma' \equiv (\delta \omega)^2 \tau_c$ を仮定する：

$\chi \tau_c < 1$ では(16)式の1つの極 Δ_0 が、また $\chi \tau_c > 1$ では(17)式の2つの極 $\Delta_{\pm}$ が(18)式の積分に寄し、減衰定数 $\text{Im} \Delta_0$ と $\text{Im} \Delta_{\pm}$ をもたらす。その結果、この巨視的分極を源として、信号電場 E_{ab}

$= -2\pi i k L P(t)$ が発生し、非共鳴振動数 ω' にスイッチされたレーザー場 $E_0 \cos \omega' t$ とのビート信号をとると $(E^2)_{\text{beat}} = \frac{1}{2} E_{ab} E_0 + \text{c.c.}$ と与えられる。この自由誘導減衰の減衰定数には二つの寄与がある。第一は(18)式の $1/T_2$ からの寄与で、巨視的分極の横緩和である。第二は $\text{Im} \Delta_0, \text{Im} \Delta_{\pm}$ からの寄与である。これは、入射光によってホール・バーニングされ、励起された範囲の電子双極子が、互に干渉して自由誘導減衰を早めるためである。入射レーザー光が弱く、 $\chi < (\sqrt{T_1 T_2})^{-1}$ のときはホール・バーニングからの自由誘導緩和への寄与 $\alpha \equiv \text{Im} \Delta_0 = (T_2)^{-1}$ となり、自由誘導減衰定数は $(T_2)^{-1} + (T_2)^{-1} = 2(T_2)^{-1}$ となる。プロット理論では、 $\chi > (\sqrt{T_1 T_2})^{-1}$ では

$$\alpha = \sqrt{T_1/T_2} \chi \quad (T_1 \gg T_2) \quad (19)$$

と増大する。しかし、 $\chi \tau_c > 1$ では、(13)式以下のDressed Atomの描像にのるべきであり、特に $\chi \tau_c > \sqrt{2\gamma'/\gamma} \gg 1$ のときには

$$\alpha = \chi / \sqrt{2} \quad (20)$$

とプロット方程式の結果(19)とは大巾な相違が現われる。この中間領域の詳細な結果は文献(5)で求められているので、興味ある方は参照下さい。

Fig.4 Hole-burning contribution $\alpha \tau_c$ to the free induction decay as a function of the laser intensity $\chi \tau_c$. Bloch and stochastic theories are justified, respectively, in $\chi \tau_c < 1$ and $\chi \tau_c > 1$. The experimental results are denoted by dots (ref7).

* 詳細は文献(5)を参照。

$$\begin{aligned} \Delta_0 &= -i \sqrt{\left(\frac{1}{T_2} \right)^2 + \frac{T_1}{T_2} \chi^2}, \quad \Delta_{\pm} = -\frac{3}{4} \chi^2 - \frac{1}{2} \tau_c^{-2} \\ &\pm \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\chi^4}{4} + \left(1 - \frac{2\gamma'}{\gamma} \right) \chi^2 \tau_c^{-2} + \tau_c^{-4}}, \end{aligned}$$

中間領域の $\alpha\tau_c$ の寄与をラビ周波数 $\chi\tau_c$ 、すなわちレーザー光の強さの関数として図示したのがFig.4である。プロッホ方程式は $\chi\tau_c \ll 1$ で正当化され、またDressed Atomの描像化で求めた現在のストカスティック理論は $\chi\tau_c > 1$ で適用されるものである。Pr³⁺:LaF₃の³H₄と¹D₂の間の遷移に伴う自由誘導減衰のDe VoeとBrewer¹¹⁾による実験結果を実丸印で示した。弱いレーザー光照射下のプロッホ理論から、 $\chi\tau_c > 1$ のストカスティック理論にのり移る様子が理解できると思われる。ここでは、プロッホ方程式で記述できる自由誘導減衰現象に対して、非線型効果が顕著となる $\chi\tau_c > 1$ でのストカスティック理論で始めて記述できる現象を非線型自由誘導減衰と呼んだ。

4. 物理的考察

Fig.2の $\delta\omega\tau_c < 1$ 、すなわち、速いか弱い周波数揺動の場合において、レーザー光強度を増していくとき $\chi\tau_c < 1$ のプロッホ理論で記述される現象から、 $\chi\tau_c > 1$ のストカスティック理論を必要とする自由誘導減衰現象の変化を見てきた。これは実験の行なわれたPr³⁺:LaF₃の³H₄と¹D₂の間の電子遷移は $(\delta\omega\tau_c)^2 = 0.6$ で、この場合をまず解析したためである。 $\delta\omega\tau_c > 1$ 、すなわち、遅いか強い周波数揺動の場合には、Fig.2に示すように、 $\chi = \delta\omega$ のあたりで、非指数関数的減衰から、減衰定数 $\gamma + \chi\sqrt{2}$ の指数関数的減衰に移り変っていく。理論の詳細は文献(2)を参照して下さい。

3節で紹介した現象の物理的な考察を行いたい。一般に τ_c^{-1} は熱浴の素励起のスペクトル巾のオーダーである。レーザー光を強めていき、電子遷移のラビ周波数 χ を $\chi > \tau_c^{-1}$ と増大するとき、熱浴の素励起は、時定数 χ で振動する電子系の運動に追従できなくなる。その結果、熱浴の電子系に及ぼす周波数揺動の効果は減少していき、ついには、電子系と熱浴のパイプが断たれてしまう。Pr³⁺:LaF₃の場合には、基底状態³H₄と励起状態¹D₂は対称性の低い結晶場で分裂している。その結果、Singlet状態間の遷

移の周波数揺動に寄与できるのは、十分低温($T < 20\text{K}$)では、Pr³⁺イオンの核スピンのゆらぎのみである。Pr³⁺イオンの有効核スピンは電子系のゼーマン場と超微細相互作用によって決められるが、それは³H₄と¹D₂の状態で異なり、それが励起エネルギーの周波数揺動をもたらす。この場合の熱浴の素励起はPr³⁺イオンの周囲のF⁻イオンの核スピンの運動である。したがって、F⁻イオンの核スピンの素励起スペクトルは極めて小さいスペクトル巾しかもたない事が予想される。したがって、そのスペクトル巾は格子温度(2K)に比して極めて狭く、第3節の周波数揺動の古典統計力学的取り扱いが正当化される。さらに、 τ_c^{-1} も極めて小さくなり、 $\tau_c = 20\mu\text{sec}$ と周波数揺動の相関時間が長くなることも理解できる。

電子系は格子振動によって揺動される。この場合には、Pr³⁺:LaF₃の電子系と比して次の二つの点で注意が必要である。第一の点は、周波数揺動に寄与する熱浴の素励起であるフォノンが格子系の温度と同程度となるので、第3節のような古典的統計理論は使えない。電子系のフォノンの吸収と放出を区別して取り扱う量子論的取り扱いが必要となる。定量的議論は文献(6)で行なわれている。第二の点は、周波数揺動に関与するフォノンのスペクトル巾はデバイ周波数 ω_D が格子温度のオーダーとなる。したがって、周波数揺動の相関時間 τ_c も短くなる。 $\hbar\omega_D$ または kT が1meVのときには、 τ_c はピコ秒のオーダーになる。したがって、自由誘導減衰を観測するには、サブ・ピコ秒の分解能で時間応答を調べる必要があり、更に非線型効果を観測するため $\chi\tau_c > 1$ にするには1デバイの遷移双極子に対しては1MW/cm²のレーザー光が必要になる。

コヒーレント過渡光学現象の時間領域で観測される効果を周波数領域で観測することも可能である。ラビ周波数だけ分裂した3本の発光スペクトルが、強いレーザー光照射下では強い尖鋭化を示す。これは非線型自由誘導減衰で観測された効果と同じ原因によるものである。詳し

くは論文(3)を参照下さい。

野はますます面白い成果がでてくるものと期待している。

5. 結 語

この論文では、コヒーレント過渡光学応答に関する最近の我々の仕事のみを紹介してきた。しかし、最近は、非コヒーレントなレーザー光源を用いた四波混合の実験で、時間的に早い応答の観測を試みる矢島研の実験や⁸⁾、やはり非コヒーレント光を用いた多重パルスフォトンエコーでフェムト秒の応答を観測しようとする松岡研の仕事がある⁹⁾。また理論面においても、竹内氏の極端に大きな不均一巾をもつ系のフォトン・エコーの振舞の研究や¹⁰⁾、相原氏の非マルコフ過程がいかにコヒーレント過渡光学応答にあらわれるかを示した研究がある¹¹⁾。これらの分

参 考 文 献

- 1) 松岡：応用物理**51**, 404 (1982)
- 2) E. Hanamura: J. Phys. Soc. Jpn. **52** (1983) 2258.
- 3) E. Hanamura: J. Phys. Soc. Jpn. **52** (1983) 3265.
- 4) R. M. Macfarlane, C. S. Yannoni and R. M. Shelby: Opt. Commun. **32** (1980) 811.
- 5) E. Hanamura: J. Phys. Soc. Jpn. **52** (1983) 3678.
- 6) E. Hanamura: J. Phys. Soc. Jpn. **52** (1983) 2267.
- 7) R. G. DeVoe and R. G. Brewer: Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 1269.
- 8) 矢島：ピコ秒分光研究会 (1982)
- 9) 浅香・中塚・藤原・松岡：ピコ秒分光研究会 (1984)
- 10) N. Takeuchi: IEEE **QE-11** (1975) 230.
- 11) M. Aihara: Phys. Rev. **25** (1982) 53.