

# 固体における EIT (電磁波誘起透明化)

Electromagnetically Induced Transparency in Solids

市村 厚一  
ICHIMURA Kouichi

山本 和重  
YAMAMOTO Kazushige

吸収、屈折、発光などの光学特性を劇的に変化させる、EIT (Electromagnetically Induced Transparency) と呼ばれる新物理現象が近年注目を集めている。EIT を利用すると、従来レーザに不可欠と考えられていた反転分布を必要としないレーザが可能となる。そのため、反転分布の実現が困難な短波長での新しいレーザ動作原理として有望である。当社は、固体での EIT 発現に必要なエネルギー準位分布の条件を明確にすることにより、従来は気体でだけ観測されていた EIT を固体で実現することに成功した。固体での EIT を利用することで、小型の紫外レーザ、高密度光メモリなどの新原理素子の実現が期待できる。

Electromagnetically induced transparency (EIT) is a novel process that has been attracting considerable interest in recent years in which the optical properties of materials, such as absorption and refraction, are dramatically modified. It is also known that lasing without population inversion, which is a suitable mechanism for short-wavelength lasers, is possible by using the remarkable characteristics of EIT.

We have realized EIT, which has been studied in gases, in a solid medium by clarifying the essential conditions for achieving a high degree of EIT in solids. EIT in solids is expected to be applied in small ultraviolet lasers and high-density storage devices.

## 1 まえがき

物質の光学的性質は、通常二つのエネルギー単位と一つの電磁波(光)との相互作用でよく説明できる。いろいろな波長の光に対する、複雑なエネルギー準位構造をもった物質の応答であっても、たいていこの基本的な相互作用をもとに理解可能であり、その理解が物質の光学的性質に対するわれわれの常識を形成している。

しかし、いくつかの励起過程が同時に起こり、その過程がお互いに干渉しあうと、すなわち量子力学的な干渉効果がひとたび多単位系にもち込まれると、常識を超えた光学的性質が現れる。人工的にこの量子干渉を物質中で引き起こすもっとも基本的な構成は、二つの光と相互作用する三つのエネルギー単位である。その場合に現れる常識を超えた物質のふるまいが EIT である。

EIT の特徴は、吸収係数や屈折率などの光学特性の大きな変化である。ある波長の光を照射するだけで、もう一つの光に対して、それまで不透明だった物質が透明になる(図1)。従来の光による吸収変化(吸収飽和)では、光を吸収した原子やイオンが上の準位に上がってしまうため、さらに光を吸収できる下準位の原子が減り、吸収減少が生じる。それに対し、EIT は単なる吸収飽和と異なる量子干渉に起因する新現象であり、原子、イオンは下準位にとどまり励起されない。

この EIT は反転分布が不必要なレーザ発振や、吸収、屈

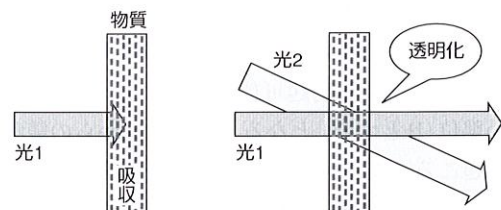


図1. EITによる透明化 光を吸収して通さない物質が、もう一つの波長の異なる光の照射で透明化し、光を通す。  
Electromagnetically induced transparency

折率、非線形感受率、発光などの光学特性の大きな変化などの新しい物理現象、技術実現の基礎として期待されている。さらに、物質のエネルギー準位との共鳴条件を非常に高いエネルギー(周波数)分解能で設定することも可能で、超狭帯域フィルタ、新しいレーザクーリング機構への応用なども提案されている。すなわちこの現象は、物質に固有と考えられていた遷移確率や光学特性を、高い分解能で自由にコントロールする技術の基礎となりうる。

このように魅力的な EIT だが、量子干渉は、エネルギー準位のばらつきや、原子間の相互作用の影響で消失しやすい。そのため、つい最近までそれらの影響の少ない気体でだけ研究が行われ、固体での実現には至っていなかった。

EIT の光素子、レーザなどへのデバイス応用には、扱いやすく原子の密度が高い固体の利用が必須(す)である。ま

た、磁性、誘電性、導電性、準位分布などの点でパラエティーに富む物性を示し、気体とは大きく異なる固体でのEIT実現は、新物理現象の発見に結びつく可能性があり、基礎研究の側面からも非常に興味深い。

こうした状況のもと当社では固体でのEIT実現をねらい、希土類イオンを分散させた結晶を用いて、初めて蛍光測定、および強度依存測定に基づく確固たる証拠を示し、固体EIT実現に成功した。

さらに3準位に三つの電磁波(二つの光と一つの振動電場)を作用させることによって、量子干渉を利用した固体の吸収制御が可能であることを見いだした。

以下の章では、EITについて説明した後、固体でのEIT実現を可能にした独自のアプローチとそれによる固体EITの実現、振動電場による吸収制御、そしてこれらの研究成果の意義について述べる。

## 2 EITの原理と特徴

### 2.1 EITの原理と無反転分布レーザー

EITの原理を図2に示す。三つの準位のうち下の2準位から共通の最上準位にそれぞれ共鳴する二つの光を同時に照射すると、下2準位の量子状態が混ざり合って新しい二つの状態ができる。ただし、もとの下2準位間の緩和は遅いとする。新しくできた二つの準位のうち片方(Aとする)は光を吸収し上準位へ励起可能な準位、もう片方は光を吸収しない準位(Bとする)となる。最上準位からの緩和はA、B両方へ起こるので、Aの原子やイオンはしだいにBに移る。Bは光を吸収しない準位なので、結局物質は光を吸収しなくなり透明になる。これがEITである。

この際Bが光を吸収しないのは、Bから最上準位への励起過程が、準位が混ざり合う前の二つの下準位から上準位への、二通りの励起過程が同時に起こる形となり、お互い

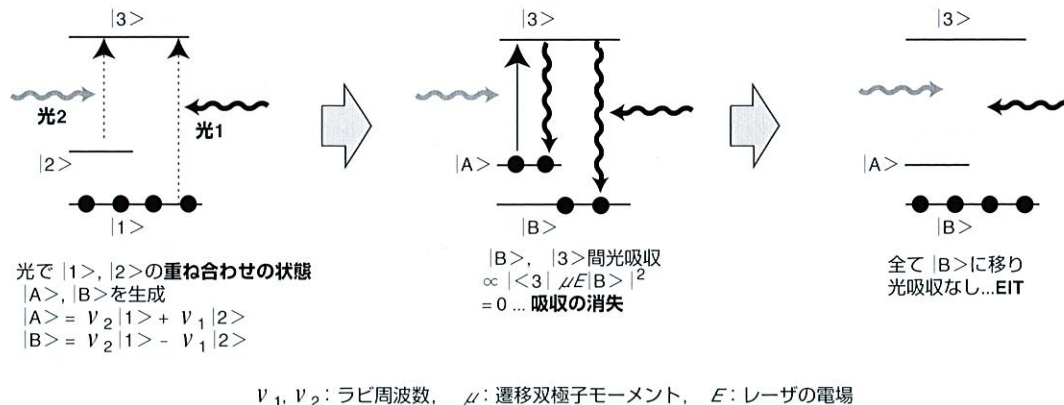


図2. EITの原理 光を吸収しない重ね合わせの状態  $|B\rangle$  に原子が移行し、透明になる。  
Mechanism of EIT

が打ち消しあうように干渉するためである。

EITの起こっているとき、上準位になんらかの方法で原子やイオンの一部を励起したとする。その場合、光を吸収しない下2準位の原子やイオンは光との相互作用において勘定に入れる必要がない。したがって、あたかも上準位の原子やイオンの数のほうが多い反転分布が起こったかのように物質がふるまう。その結果、実際には反転分布でないにもかかわらず、光増幅やレーザー発振が可能となる。

### 2.2 EITの特徴

図3に、EITが起こった場合の光吸収スペクトルのようすを、原子やイオンのエネルギー準位がそろってばらつきがない場合について示す。第2の光を照射することにより、第1の光で測定する吸収スペクトル中に、吸収がなくなってしまう波長(周波数)領域が生じる。2.1節では二つの光がそれぞれの遷移にぴったり共鳴した場合について説明した。しかしEITは、共鳴からずれていても起こる。第1の光の共鳴からのずれが、第2の光の共鳴からのずれに等しくなる(2光子共鳴条件を満たす)周波数を中心に、光と

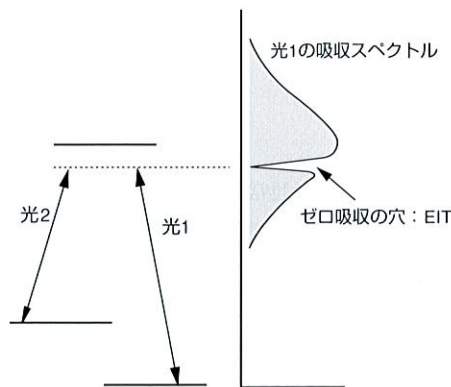


図3. EITの特徴 吸収スペクトル中に、鋭い透明化の穴があく。  
Characteristics of EIT



物質との相互作用の大きさを示すラビ周波数と呼ばれる量の幅を伴ってEITが起こる。ラビ周波数  $\nu_{\text{Rabi}}$  は、遷移双極子モーメント  $\mu$ 、光の電場強度  $E$ 、プランク定数  $h$  を用いて次式で与えられる。

$$\nu_{\text{Rabi}} = \mu E / h$$

EITの際だった特徴は、第一にEITを起こしている原子、イオンの光吸収が完全にゼロになることである。そして第二に吸収がゼロになる領域を、個々の原子やイオンが本来もっている均一幅と呼ばれるエネルギーのほけより狭く設定できることである。透明領域の幅を決めるラビ周波数は、照射する光の強度により設定できる。図3で山型を示す吸収スペクトル全体の幅が、均一幅である。

このように、EITを利用すると、物質の吸収を始めとする光学特性を、自由に、大幅に、非常に高いエネルギー分解能で制御できるようになる。

### 3 固体のエネルギー準位のばらつきとEIT

実際の固体では、各原子、イオンのエネルギー準位に不均一幅と呼ばれるばらつきがある。不均一幅が大きいと、第1の光の吸収に関与する原子、イオンの一部しかEITを起こさず、EITが観測できなくなる。また一般の固体が示す、気体に比べて早い緩和も、EITが起こるのを妨げる。

当社では不均一幅の問題に関して、三つのうちの二つの準位を結ぶ3通りの遷移のうち、光では結ばない遷移、すなわち下2準位の遷移の不均一幅さえラビ周波数より小さければよいことを見いだした。準位間の不均一幅の三つすべてが狭い必要がある(図3のように)と考えがちだが、一つでよいのである。これは光の周波数と準位間の遷移の周波数がずれている場合でも、2光子共鳴条件を満たせば透明化が完全に起こるといふEITの特徴から導きだせる。この特徴は、光と相互作用する物質の吸収スペクトルが予想可能な密度行列を用いた計算により、実験に先立ち確認した。

三つの不均一幅すべてが小さい固体材料を見つけだすのは不可能に近いが、上記のように

- (1) 光で結ばれない遷移の不均一幅が狭い。
- (2) 光で結ばれない遷移の緩和が遅い。

の2点に条件が絞り込まれたために、条件を満たす物質を見つけることができた。それが希土類イオン( $\text{Pr}^{3+}$ )を分散させた酸化物結晶( $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ )である。

### 4 固体EITの実現

$\text{Y}_2\text{SiO}_5$ に分散させた $\text{Pr}^{3+}$ のエネルギー準位を図4に示す。図には、この研究にかかわる下準位 $^3H_4(1)$ の超微細構造と、上準位 $^1D_2(1)$ の超微細構造が示されている。また、二つの光の周波数  $\nu_1$ 、 $\nu_2$ と遷移の関係も示した。下準位間の不均一幅は

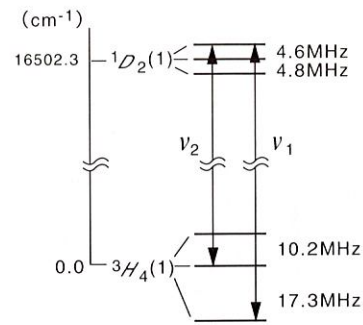


図4.  $\text{Pr}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ のエネルギー準位 17.3MHz離れた下2準位を、不均一幅の狭い2準位として利用した。  
Energy levels in  $\text{Pr}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ .

100kHz程度で、固体では特異的に小さな値である。これは三つの下準位が $\text{Pr}^{3+}$ の核スピンの状態という、外界からの影響を受けにくい量子状態に起因するためである。またこれらの準位間の緩和は、光遷移の緩和( $^1D_2$ と $^3H_4$ の間の緩和)に比べはるかに遅いことが知られている。

リング色素レーザを主体に構成した光源から二つの光を取り出し、クライオスタット中でヘリウム温度に保った $\text{Pr}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ に照射した。低温にしたのは、少しでも下準位間の緩和を遅くし、量子干渉を起こしやすくするためである。二つの光の周波数差  $\nu_1 - \nu_2$ を掃引しながら、上準位からの発光励起スペクトルを測定した。

図5(a)に第2の光の強度を六つの異なる値に設定して測定したスペクトルを示す。17.3MHzに穴が生じている。これは  $\nu_1 - \nu_2 = 17.3\text{MHz}$ の2光子共鳴条件において試料中でEITが起こり、上準位への励起が抑制された結果、励起状態を占めているイオンの数が減少したためである。

透過光をモニタした場合には17.3MHzにピークが現れた。これもEITによる吸収減少による透過光増大である可能性がある。しかし2光子共鳴条件下での透過光強度変化は、誘導ラマン過程などのEITと紛らわしいほかの過程との区別が困難である。それに対し発光測定は、EIT検出にとってより信頼性の高い測定方法である。さらに、穴の形状の強度依存は固体でのEITを示す決定的な証拠となった。

図5(b)に示すように、 $1.0\text{W}/\text{cm}^2$ より低い光強度では穴の幅は変化しないが、深さは光強度とともに増加している。一方、 $5.0\text{W}/\text{cm}^2$ 以上の光強度では、深さは頭打ちになる傾向を示すが、幅は光強度とともに増加している。この強度依存性は、理論的考察による予想と定量的に一致し、固体でEITが起きていることを初めて確認することができた<sup>(1)</sup>。

強度依存の測定結果は、デバイス応用の観点から重要な意味をもつ。光強度の高い領域ではEITによる穴がエネルギーの不均一幅を凌駕(りょうが)し、そこでは穴の幅は不均一幅ではなくラビ周波数で決まっている。これは固体において、EITの穴が不均一幅を凌駕するようすを捕らえた



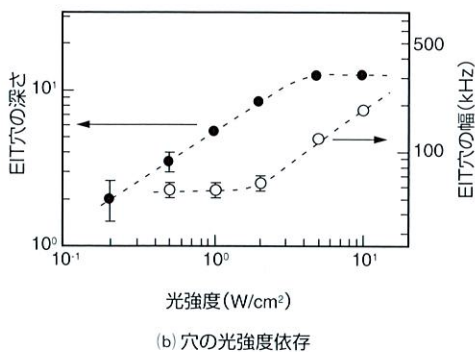
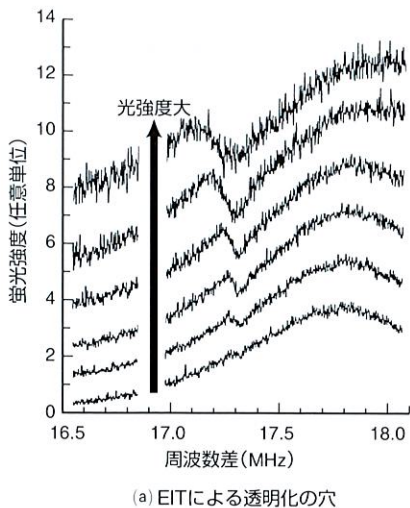


図5. 蛍光励起スペクトル中に生じたEITによる穴 17.3MHzにEITによる穴が生じた(a)。その形状の光強度依存(b)は理論予想とよく一致した。  
Light intensity dependence of dip due to EIT

最初の観測例である。無反転分布レーザーのように、吸収に関与する原子がすべてEITを起こす必要がある光デバイス応用にとって、不均一幅を凌駕するEITの実現は、通らなければならない一つの段階をクリアしたことを意味する。

## 5 振動電場による吸収制御

4章で述べたように、二つの光で固体でのEITを起こすことに成功した。この二つの光を照射しつつ、さらに強度が周期的に変化する電場を印加し、光とその振動電場との位相関係を調節すると、固体の光吸収を制御できることを見出した。

この方法では、二つの光の周波数差に等しい周波数  $\nu_{rf}$  ( $\nu_{rf} = \nu_1 - \nu_2$ ) の振動電場を試料に印加する。周波数  $\nu_1$ 、 $\nu_2$  の二つの光は、リング色素レーザーからの単一周波数の光に変調を加えることで得た。その際、変調を加えるのに用いた発振器の信号を基準に振動電場を発生させた。そうすることで二つの光の位相  $\phi_1$ 、 $\phi_2$  と振動電場の位相  $\phi_{rf}$  の位相関

係を表す  $\phi_{total}$  ( $\phi_{total} = \phi_1 - \phi_2 - \phi_{rf}$ ) を、調整しまた固定することができた。

図6に、 $\phi_{total}$  を変化させた場合の試料の吸収変化を示す。図6(a)では、試料左側から重ねて入射させた二つの光が試料の吸収により途中で途切れているが、 $\phi_{total}$  を  $\pi/2$  変化させた図6(b)では吸収減少により約6mmの試料を通り抜けている。図6に示した  $Pr^{3+} : YAlO_3$  の場合、発光強度変化から見積った吸収変化量は70%以上であった。

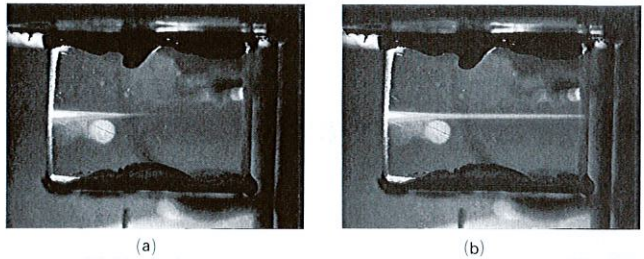


図6. 振動電場による吸収制御 吸収され試料半ばまでしか届かない光が(a)、 $\phi_{total}$  を  $\pi/2$  変化させると試料を通りぬけた(b)。  
Absorption control using high-frequency electric field

この吸収変化は、振動電場と光の位相関係によって、二つの光によるEITが誘起されたり壊されたりすることで起こると基本的には理解できる。しかしEITが観測されない条件でもこの方法による吸収変化は起こる。振動電場を加える方法では、吸収変化が起こる上限温度が通常のEITの場合より10K程度あがる。振動電場は位相によってEITを壊すだけでなく、EIT発現を助けてもいると考えられる<sup>(2)</sup>。

吸収変化量の定量的説明、試料の準位との共鳴条件、振動電場と物質との相互作用の機構など、これから解明すべき点も数多くある。しかし、とにかく大きな吸収変化が誘起できること、緩和に対し強くなる傾向があること、電場での制御が可能であることなどから、新しい光デバイスの動作原理として有望である。

## 6 あとがき

当社では今回、発光によるEITの透明化の穴を観測することに固体で初めて成功した。また光素子応用にとって重要な、EITが不均一幅を凌駕するようすを捕えることもできた。さらに、振動電場を加える方法は、量子干渉を用いた新しい光遷移制御の方法として期待できる。

固体EITの実現により、固体の光遷移を、さらには量子状態を自由に操ることを可能にする技術は、ようやくその第一歩を踏み出したといえる。

固体ならではの応用として、当社では、特異的に高い周

波数分解能と固体中でのエネルギー準位のちらばりを利用した波長多重高密度メモリを提案した<sup>(3)</sup>。またEITを用いた無反転分布でのレーザー発振は、反転分布が困難な紫外～X線領域でのコヒーレント光源実現の手段として有利である。固体EITによる短波長レーザーが実現されれば、小型の短波長レーザーが、現在使われている紫外レーザー、シンクロトロン放射光施設などの大型装置に取って代わることになるであろう。

これらのデバイス応用のためには、メモリ応用においては書込み・読出し方法の確立と最適材料の選択、また光素子応用全般においては動作温度の高温化、吸収変化量の増大など解決すべき課題も多い。しかし、2準位間の遷移に基礎を置く従来の光デバイスの限界を打ち破り、新しい原理によってだけ達成可能な未来の光デバイスを実現するために、研究を加速しこれらの課題を解決していく。

## 文 献

- (1) Ichimura, K., et al. Evidence for electromagnetically induced transparency in a solid medium. *Phys. Rev. A*.58, 5, 1998, p.4116-4120.
- (2) Yamamoto, K., et al. Enhanced and reduced absorption via quantum interference: Solid system driven by a rf field. *Phys. Rev. A*.58, 3, 1998, p.2460-2466.
- (3) 源間信弘, 他. 米国特許 USP5754511 (1998).



市村 厚一 ICHIMURA Kouichi, D. Sc.

研究開発センター 新機能材料・デバイスラボラトリー研究主務, 理博。量子干渉を利用した光デバイスの研究開発に従事。日本物理学会, 応用物理学会, 日本化学会会員。  
Advanced Materials & Devices Lab.



山本 和重 YAMAMOTO Kazushige

研究開発センター 新機能材料・デバイスラボラトリー研究主務。量子干渉を利用した光デバイスの研究開発に従事。日本物理学会, 応用物理学会, 米国物理学会会員。  
Advanced Materials & Devices Lab.