## 令和4年度卒業論文

## Rydberg 状態励起用レーザーの開発と 電磁誘起透明化信号の観測

Development of lasers for excitation of Rydberg states and observation of electromagnetically induced transparency signal

応用理工系学科 応用物理工学コース

フォトニクス研究室

佐藤一徹

2023年2月7日

# 目次

第1章	序論	2
1.1	研究背景	2
	1.1.1 レーザー冷却	2
	1.1.2 Rydberg 原子	2
1.2	目的	3
<b>第</b> 2章	原理 原理	4
2.1	Rydberg 励起に必要なレーザー	4
2.2	飽和吸収分光(Saturated Absorption Spectroscopy)	6
	2.2.1 ドップラー吸収	6
	2.2.2 飽和吸収分光	6
	2.2.3 クロスオーバー共振	8
	2.2.4 変調移行分光(Modulation Transfer Spectroscopy)	8
2.3	電磁場誘起透明化(Electromagnetically Induced Transparency)	11
	2.3.1 運動方程式の記述	11
	2.3.2         摂動理論を用いた解釈	13
	2.3.3 吸収係数	14
<b>第</b> 3章	実験系の構築	17
3.1	実験系の概要	17
3.2	外部共振器型半導体レーザー (ECDL)	19
3.3	ECDL1 の周波数安定化	20
	3.3.1 Servo 回路	22
3.4	ECDL2 の周波数安定化	23
第4章	電磁誘起透明化信号の観測実験	25
4.1	実験方法	25
4.2	信号の観測	26
4.3	異なる Rydberg 準位への励起	28
第5章	まとめ	30
参考文献		31

### 第1章

## 序論

#### 1.1 研究背景

#### 1.1.1 レーザー冷却

レーザー冷却技術の発展は、量子力学レベルでの原子の制御を可能にし、極低温における物理を進展させ ている。1995 年にはアインシュタインによって予言されていた極低温現象であるボース・アインシュタイ ン凝縮 (BEC) が観測され、2001 年のノーベル物理学賞の対象となった。[1] 極低温で観測される原子間の 新たな弱い結合メカニズムは科学の一分野として注目されており、Feshbach 共鳴 [2]、Efimov 状態 [3] など に加え、極低温分子の生成・応用も進んでいる。例えば、2019 年には極低温分子を用いた精密分光による 電子と陽子の質量比の恒常性実験が行われ、精度がそれまでの 5 倍程更新された。[4] 本研究室では Rb 原 子を用いた研究を立ち上げており、昨年は光格子と呼ばれるレーザー光の定在波から形成される周期的なポ テンシャル中に原子をトラップし、ラマンサイドバンド冷却と圧縮を繰り返すことで高速な BEC の実現を 目指す実験が行われた。[5] 効率的で高速な BEC の実現、そこから極低温分子の生成、精密分光実験を目指 している。

#### 1.1.2 Rydberg 原子

以上のような極低温現象の探究と並行して、Rydberg 原子もまた、レーザー冷却の応用として注目されて いる。Rydberg 原子は、Rydberg 状態と呼ばれる価電子が高い主量子数状態(通常、*n* = 10 ~ 200 程度) に励起された、軌道半径が大きい中性原子である。最外殻電子は基底状態の原子と比較して 100 ~ 1000 倍 も原子の中心から離れているため、分極性が向上している [6]。これはまた、誘導双極子モーメントの増加 や強い長距離双極子-双極子相互作用にもつながる。

Rydberg 原子の顕著な特徴の一つに、Rydberg blockade と呼ばれる効果がある。これは、隣接する Rydberg 原子との相互作用により、原子の Rydberg 準位がレーザーに対して共鳴しないようにシフトさ れ、一定の体積中で Rydberg 励起される原子は一つだけになるという現象である。Rydberg blockade は、 レーザーによる冷却・トラップ技術と併せて量子コンピュータの実現に向けた研究などに応用されている。 [8]

また、イオンと Rydberg 原子間の新たな分子結合 [7] や、数十 mV/cm 程度の電場によって Rydberg 原 子がイオン化されること (field ionization) を利用した Rydberg 分光 [8] など、我々の研究室のテーマであ る極低温分子の生成、精密分光とも相性の良い分野であると言える。

#### 1.2 目的

本研究室では Rydberg 原子を、電場イオン化 (field ionization) を利用した原子の高感度検出に利用する ことを考えている。電場イオン化は図 1.1 に示すように、価電子が感じるクーロンポテンシャルが外部電場 によって傾くことで、価電子が Rydberg 状態から離脱する現象である。電場イオン化に必要な電場は、

$$F_{\rm ioniz.} = \frac{F_0}{16n^{*4}} \tag{1.1}$$

と表せる。[9] ここで、 $F_0$  は電場の原子単位で  $F_0 \simeq 5 \times 10^9 \text{V/cm}$  であり、 $n^*$  は後に説明する実行主量子 数と呼ばれる量である。例えば、実験室で使える電場が 100V/cm だとすると、イオン化に必要な条件は  $n^* \ge 42.04482$  である。



図 1.1 外部電場による Rydberg 状態の選択的なイオン化 青線は価電子の原子核からの距離と水素 様クーロンポテンシャルの関係。 $nD_{3/2}$ の電子配置のエネルギー準位が水平な黒線で引かれている。 F=26V/cm の電場をかけた時、価電子が感じるポテンシャルに変化が起き(図の赤線)、 $n \ge 60$ の状態 がイオン化される。 [9] より引用

本研究では、Rb 原子を Rydberg 励起するためのレーザーシステムの開発を目的とした。周波数調整可 能な光源を2種類用意し、一方を基底状態から中間状態への励起、もう一方を中間状態から Rydberg 状態 への励起に使用する。これらのレーザーの周波数を、原子の共鳴周波数や理論によって求める値に安定化さ せることで、別の実験系に Rydberg 励起用の光を提供できるようにする。また、実際に Rydberg 励起が起 きていることを本システムの中で確認できるようにするために、三準位系と光の相互作用に特有の現象であ る電磁誘起透明化信号を観測できるようにする。さらに、電磁誘起透明化信号が観測できる範囲で、可能な 限り大きな主量子数への Rydberg 励起を目指した。

### 第2章

### 原理

#### 2.1 Rydberg 励起に必要なレーザー

Rydberg 準位に原子を励起するために、適切な波長(周波数)のレーザーを用意する必要がある。水素 原子のエネルギー準位(ポテンシャルエネルギー)は、非相対論的近似において、

$$E_n = -hc \frac{R_\infty}{n^2}, \ \left(R_\infty = \frac{m_e e^4}{8\epsilon_0^2 h^3 c}\right)$$
(2.1)

$$k = \frac{1}{\lambda} = R_{\infty} \left( \frac{1}{n_1^{*2}} - \frac{1}{n_2^{*2}} \right)$$
(2.2)

で表される。ここで  $R_{\infty}$  は Rydberg 定数、 $m_e$  は電子質量、e は電子の電荷、 $\epsilon_0$  は真空の誘電率、h はプ ランク定数である。Rb の Rydberg 原子の場合、エネルギー準位は量子欠損による補正を受けて

$$E_{n,l,j} = -hc \frac{R_{Rb}}{n^{*2}}, \ \left(R_{Rb} = \frac{R_{\infty}}{1 + m_e/m_c}\right)$$
 (2.3)

となる。ここで  $m_c$  は原子核質量、 $R_{Rb}$  は Rb の電子質量が減少した時の Rydberg 定数で  $R_{Rb} \simeq 109,736.605 \text{cm}^{-1}$ 、 $n^* = n - \delta_{n,l,j}$  は実効主量子数である。 $\delta_{n,l,j}$  は量子欠損と呼ばれ、Rydberg 原子が原子核付近に近づいた時に生じる、他の電子からの多体的な効果を現象論的に補正するための量である。 量子欠損の値は、n > 20 程の大きな主量子数において近似的に

$$\delta_{n,l,j} = \delta_0(l,j) + \frac{\delta_2(l,j)}{n - \delta_0(l,j)}$$
(2.4)

と表せる。 $\delta_n$  は Rydberg 準位の分光結果をフィッティングすることで求められる。本実験では、表 2.1 に示す、先行研究 [10] (Millimeter-wave spectroscopy of cold Rb Rydberg atoms in a magneto-optical trap: Quantum defects of the ns, np, and nd series) で測定された量子欠損の値を用いた。

今、二つの準位間(特に基底状態である  $5S_{1/2}$  から中間準位である  $6P_{3/2}$ 、及び  $6P_{3/2}$  から Rydberg 準 位)の遷移に必要な周波数を求めたいが、 $5S_{1/2}$  や  $6P_{3/2}$ のエネルギー準位は量子欠損を含めた計算だと合 わないので文献値 [11](NIST Atomic Spectra Database Levels Data) を参照する。計算に使用した値を表 2.2 に示す。

荷電子を  $5S_{1/2}$  から準位エネルギーがゼロの状態に励起(=イオン化)するのに必要な波数は  $k_{\text{lim}}$  = 33690.81±0.01cm<sup>-1</sup>、 $5S_{1/2}$  から  $6P_{3/2}$  に励起するのに必要な波数は  $k_{6P}$  = 23792.591±0.010cm<sup>-1</sup> である。準位エネルギーは  $E_n = -hk_nc$  と表せるから、 $5S_{1/2}$  から任意の状態への励起に相当する波数  $k_e$  は、

$$k_e = k_{\rm lim} - k_n$$
  
=  $k_{\rm lim} - \frac{R_{Rb}}{{n^*}^2}$  (2.5)

電子配置	$\delta$	波数 (誤差)[cm <sup>-</sup> 1]
$nS_{1/2}$	$\delta_0$	3.1311804(10)
	$\delta_2$	0.1784(6)
$nP_{1/2}$	$\delta_0$	2.6548849(10)
	$\delta_2$	0.2900(6)
$nP_{3/2}$	$\delta_0$	2.6416737(10)
	$\delta_2$	0.2950(7)
$nD_{3/2}$	$\delta_0$	1.34809171(40)
	$\delta_2$	-0.60286(26)
$nD_{5/2}$	$\delta_0$	1.34646572(30)
	$\delta_2$	-0.59600(18)

表 2.1 s,p,d 軌道の量子欠損パラメータ

表 2.2 基底状態からの励起に必要なレーザーの波数 NIST Atomic Spectra Database Levels Data[11] より抜粋

電子配置	波数 [cm <sup>-</sup> 1]	誤差
$5S_{1/2}$	0.000	0.010
$6P_{3/2}$	23792.591	0.010
Limit	33690.81	0.010

と表せる。 $6P_{3/2}$ から任意の準位への励起に相当する波数は、さらに $k_e^{'} = k_e - k_{6P}$ を計算すれば良い。波数 k が求められれば、周波数は  $\omega = ck$ 、波長は  $\lambda = 1/k$  と簡単に求めることができる。

本実験では、二つの外部共振器型半導体レーザー (ECDL)を用いて、中間準位  $6P_{3/2}$ を経由 した Rydberg 励起を目指した。ここまでの式より、 $5S_{1/2}$ から  $6P_{3/2}$ への励起に必要な波長は  $420.2989073(\pm 0.00018)$ nm (= 713.2839338(±0.00030)THz)、 $6P_{3/2}$ から  $30D_{5/2}$ への励起に必要な波長 は  $1024.110876(\pm 0.0021)$ nm (= 292.7343758(±0.00060)THz) である。したがって、本論文では中間準位 への励起に用いた波長 420nm 付近のレーザーを ECDL1、Rydberg 状態への励起に用いた波長 1024nm 付 近のレーザーを ECDL2 と呼ぶ。

#### 2.2 飽和吸収分光 (Saturated Absorption Spectroscopy)

ここでは、ECDL1 を Rb の共鳴周波数に安定化するために用いた、飽和吸収分光とその応用である変調 移行分光の原理を説明する。

#### 2.2.1 ドップラー吸収

レーザー光が進む方向をx軸とする。x方向に速度vで運動する原子から見ると、レーザー周波数 $\omega$ はドップラー効果によって次のように変化する。

$$\omega' = \omega - kv \tag{2.6}$$

ここで、 $k = \omega/c = 2\pi/\lambda$ である。すなわち、速度 v で運動する原子は、原子の共鳴周波数を  $\omega_0$  とする と、 $\delta = \omega - \omega_0 = kv$ の時、共鳴する。これは、

$$\frac{\delta}{\omega_0} = \frac{v}{c} \tag{2.7}$$

と等価である。室温において気体原子は熱運動しており、速度 *v* から *v* + *dv* の範囲に原子が分布している 割合は次のように表せる。

$$f(v)dv = \sqrt{\frac{M}{\pi 2k_BT}} \exp\left(-\frac{Mv^2}{2k_BT}\right) dv \equiv \frac{1}{u\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{v^2}{u^2}\right) dv$$
(2.8)

ここで、 $u = \sqrt{2k_BT/M}$ 、M は原子の質量、T は温度である。式 (2.7) より速度を周波数に変換すると、 光の吸収スペクトルは速度分布を反映したガウス分布となる。

$$g_D(\omega) = \frac{c}{u\omega_0\sqrt{\pi}} \exp\left\{-\frac{c^2}{u^2} \left(\frac{\omega-\omega_0}{\omega_0}\right)^2\right\}$$
(2.9)

この分布の半値全幅 Δω<sub>D</sub> は次のように与えられる。

$$\frac{\Delta\omega_D}{\omega_0} = 2\sqrt{\log 2u/c} \simeq 1.7u/c \tag{2.10}$$

uは速度分布の中央の速度であり、原子の質量と温度に依存する。Rb の時、 $\Delta \omega_D / \omega_0 = 1.37 \times 10^{-5}$ 程度である。すなわち、半値全幅  $\Delta \omega_D \simeq 9.78$ GHz である。詳細な導出は [12] を参照されたい。超微細構造によるスペクトルの分岐は数十 MHz から数 GHz 程度であるため、ドップラー幅に埋もれてしまう。これを回避する手段の一つが、飽和吸収分光である。

#### 2.2.2 飽和吸収分光

飽和吸収分光の概要を図 2.1 に示す。偏光ビームスプリッタ(以下、PBS) によってレーザー光を強い 光 (pump) と弱い光 (probe) に分け、原子のガスセル内で重ね合わせるようにして probe 光を観測する。 pump 光の強度 *I* は、飽和強度 *I*<sub>sat</sub> 程度であるとする。

飽和吸収分光の原理について、簡単のため2準位系  $(N_1, N_2)$  で説明する。pump 光は速度  $v = (\omega - \omega_0)/k$ の原子と作用し、原子を  $N_2$  状態へ励起する。これにより、 $N_1$  状態の原子の速度分布には次のような幅を 持つ穴ができる。[12]



図 2.1 飽和吸収分光の概要



図 2.2 pump 光と probe 光を吸収する原子が重なり、ラムディップができる

$$\Delta\omega_{hole} = \Gamma \left( 1 + \frac{I}{I_{sat}} \right)^{\frac{1}{2}} \tag{2.11}$$

ここで、 $\Gamma$  は励起状態の寿命に依存する自然広がりである。レーザー周波数が共鳴周波数から充分 (( $\omega - \omega_0$ )  $\ll \Delta \omega_{hole}$ )離れている時、pump光と probe光は速度が異なる原子と相互作用するため互いに 影響しない。しかしレーザー周波数が共鳴周波数付近 ( $\omega \simeq \omega_0$ )の時、二つのレーザー光はどちらも  $v \simeq 0$ の原子と相互作用する。すなわち、pump光の吸収によって probe光を吸収できる  $N_1$ 状態の原子数が減少 するため、probe光の透過高強度が大きくなるのである。これを観測すると図 2.1 右下のようにドップラー 広がりの頂点に鋭い窪みができる。このくぼみは、ラムディップと呼ばれ、自然広がり程度のドップラーフ リーな信号である。



図 2.3 クロスオーバー共振

#### 2.2.3 クロスオーバー共振

実際の飽和吸収分光では、超微細構造によるエネルギー準位の分裂によって、ドップラー吸収の範囲内で 複数の共鳴周波数が存在する。この時、二つの共鳴周波数の間にクロスオーバーディップと呼ばれる新たな ピークが現れる現象について説明する。原子が  $E_1, E_2, E_3(E_1 < E_2 < E_3)$ の3つのエネルギー準位を持 ち、各状態の原子数  $N_1(v), N_2(v), N_3(v)$ と表す。この時、 $N_1 \leftrightarrow N_2$ の遷移は $v = (\omega - \omega_{12})/k$ の速度成 分を持つ原子で、 $N_1 \leftrightarrow N_3$ の遷移は $v = (\omega - \omega_{13})/k$ の速度成分を持つ原子で生じる。前節の飽和吸収分 光の原理によると、レーザー周波数  $\omega = \omega_{12}, \omega_{13}$ の時にラムディップが現れる。しかし、図 2.3 にあるよう に、 $\omega = (\omega_{12} + \omega_{13})/2$ の時、pump 光の  $N_1 \leftrightarrow N_2$  遷移は probe 光の  $N_1 \leftrightarrow N_3$  遷移を減少させ、pump 光の  $N_1 \leftrightarrow N_3$  遷移は probe 光の  $N_1 \leftrightarrow N_2$  遷移を減少させる。したがって、 $\omega = (\omega_{12} + \omega_{13})/2$ でピーク が観測されるのである。

#### 2.2.4 変調移行分光 (Modulation Transfer Spectroscopy)

レーザーの周波数をロックするためには、飽和吸収信号を共鳴周波数の前後で正負が異なるようなエラー 信号に変換して ECDL にフィードバックする必要がある。エラー信号を得る技術はいくつか存在するが、 その中でも変調移行分光法は急な信号勾配と高い周波数識別性を持つため、レーザーを狭い周波数にロック することができる。なお、本節の議論は [13][14] を参考にしている。

変調移行分光の概要を図 2.4 に示す。飽和吸収分光の光学系に加えて、pump 光の光路に EOM(電気光学 変調機) が設置されている。PD で得られた信号と変調に用いた RF 信号を mixer で掛け合わせることでエ ラー信号が得られ、Servo 回路を通して ECDL にフィードバックしている。phase shifter は mixer に入れ る RF 信号の位相をきれいなエラー信号が得られるように調整する役割を果たしている。以下、エラー信号 が得られる原理について述べる。

EOM に周波数  $\omega_m$  の RF 信号を入れると、周波数  $\omega$  の pump 光の光電場は変調され、以下のように表せる。



図 2.4 変調移行分光

$$E = E_0 \exp i \left[\omega t + \delta \sin \left(\omega_m t\right)\right]$$
  
=  $E_0 e^{i\omega t} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\delta) e^{in\omega_m t}$   
=  $E_0 \left[ J_0(\delta) e^{i\omega t} + J_1(\delta) e^{i(\omega + \omega_m)t} - J_1(\delta) e^{i(\omega - \omega_m)t} + \cdots \right]$  (2.12)

ここで $\delta$ は変調指数、 $J_n$ はn次の Bessel 関数である。一般に $\delta < 1$ であり、probe 光は周波数 $\omega$ の光 に、周波数 $\omega \pm \omega_m$ の一次のサイドバンドが加わった光となる。変調された pump 光は、変調されていない probe 光と蒸発 Rb セル内で対向して入射し重ね合わされる。ここで、レーザー光が原子の共鳴周波数付近 の時、原子気体の非線形光学現象である四光波混合という現象によって、pump 光の各サイドバンドに対し て probe 光に変調が移行する。四光波混合の詳細な原理については [15] などを参照されたい。変調移行は サブドップラー共鳴条件が満たされる時のみ起こるため、エラー信号のベースラインはドップラー吸収効果 に依存しない平坦な信号となる。偏光、温度、ビーム強度の変動による吸収の変化に影響されないのが変調 移行分光法の大きな利点である。元の probe 光と probe 光のサイドバンドは干渉し、Photo Diode 上で次 のビート信号が検出される。

$$S(\omega_m) = \frac{C}{\sqrt{\Gamma^2 + \omega_m^2}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\delta) J_{n-1}(\delta) \times [L_{(n+1)/2} + L_{(n-2)/2} \cos(\omega_m t + \phi) + D_{(n+1)/2} + D_{(n-2)/2} \sin(\omega_m t + \phi)] + Const + \mathcal{O}(e^{2i\omega_m t})$$
(2.13)

ここで、

$$L_n = \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\Delta - n\omega_m)^2},$$
  

$$D_n = \frac{\Gamma(\Delta - n\omega_m)}{\Gamma^2 + (\Delta - n\omega_m)^2}$$
(2.14)

であり、 $\Gamma$ は自然線幅、 $\Delta$ は共鳴周波数からの離調、 $\phi$ は pump 光にかけた RF 信号に対する位相である。今、 $\delta < 1$ であり 2 次以降のサイドバンドは無視できると仮定すると、式 (2.13) は次のように具体化される。

$$S(\omega_m) = \frac{C}{\sqrt{\Gamma^2 + \omega_m^2}} J_0(\delta) J_1(\delta) \times [(L_{-1} + L_{-1/2} + L_{1/2} - L_1) \cos(\omega_m t + \phi) + (D_1 + D_{-1/2} - D_{1/2} + D_{-1}) \sin(\omega_m t + \phi)] + Const + \mathcal{O}(e^{2i\omega_m t})$$
(2.15)

この信号を位相シフトした RF 信号と共に mixer で掛け合わせることで、sin 項または cos 項に含まれ るエラー信号を復調することができる。定数項と  $\mathcal{O}(e^{2i\omega_m t})$ は Servo 回路がローパスフィルターの働きも するため切り捨てられる。結果として、sin 項、cos 項共にエラー信号は離調  $\Delta$  に依存した奇関数となる。  $\omega_m \leq \Gamma$ の時、信号は共鳴周波数でゼロクロスする急な勾配を持った関数となり、レーザーのロックに理想 的な信号となる。

#### 2.3 電磁場誘起透明化 (Electromagnetically Induced Transparency)

電磁場誘起透明化 (Electromagnetically induced transparency, 以下 EIT) とは、3 つ以上のエネルギー 準位を持つ系に対してその吸収波長を持つ光を入射することで生じる量子干渉効果により、系の固有状態が 見かけ上光の吸収や放出に関与しなくなる、すなわち物質が透明化する現象である。ここでは3準位原子の モデルと2本の光との相互作用を考え、原子がその光に対して透明化するまでの仕組みを説明する。なお、 本節は参考文献 [16][17] の説明を参考にしている。

#### 2.3.1 運動方程式の記述



図 2.5 3 準位系のエネルギー図

図 2.5 のような 3 準位系を持つ原子に対して、 $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$ 間に共鳴する probe 光と、 $|2\rangle$ ,  $|3\rangle$ 間に共鳴する coupling 光を入射する場合を考える。この系に対するハミルトニアンは非摂動ハミルトニアン  $H_0$  とレー ザー光と原子の相互作用ハミルトニアン  $H_{int}$  の和で与えられる。

$$H = H_0 + H_{int}$$

$$= \begin{pmatrix} W_3 & 0 & 0 \\ 0 & W_2 & 0 \\ 0 & 0 & W_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & \mathcal{H}_{32} & 0 \\ \mathcal{H}_{23} & 0 & \mathcal{H}_{21} \\ 0 & \mathcal{H}_{12} & 0 \end{pmatrix}$$
(2.16)

ここで、W は各準位の固有エネルギーであり、

$$\omega_{ij} = (W_i - W_j)/\hbar \tag{2.17}$$

である。また、

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_{12} &= -p_{12}E_p \\
&= -p_{12}\varepsilon_p \cos(\omega_p t) \\
&= -\hbar\Omega_p \cos(\omega_p t) \\
\mathcal{H}_{23} &= -p_{23}E_c \\
&= -p_{23}\varepsilon_c \cos(\omega_c t) \\
&= -\hbar\Omega_c \cos(\omega_c t) \\
&\left(\Omega_p \equiv \frac{p_{12}\varepsilon_p}{\hbar}, \Omega_c \equiv \frac{p_{23}\varepsilon_c}{\hbar}\right)
\end{aligned}$$
(2.18)

である。ここで、 $E_p, E_c$ は probe 光と coupling 光の電場、 $\varepsilon_p, \varepsilon_c$ は電場の振幅、 $p_{ij}$ は双極子モーメントを 表しており、 $\Omega_p, \Omega_c$ は各状態間の遷移のラビ周波数である。ここからは密度行列  $\rho$  の時間変化を求める。

$$\rho = \begin{pmatrix}
\rho_{33} & \rho_{32} & \rho_{31} \\
\rho_{23} & \rho_{22} & \rho_{21} \\
\rho_{13} & \rho_{12} & \rho_{11}
\end{pmatrix}$$
(2.19)

とおくと、密度演算子の運動方程式である Liouville 方程式は、

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}, \rho] \tag{2.20}$$

と書ける。ij 成分については以下のように書ける。

$$\dot{\rho}_{ij} = \frac{1}{i\hbar} \sum_{n=1}^{3} [\mathcal{H}_{in}\rho_{nj} - \rho_{in}\mathcal{H}_{nj}]$$
(2.21)

ここまでの式から密度行列の運動方程式を計算する。

$$\dot{\rho}_{33} = i \left(\Omega_c^* \rho_{23} - \rho_{32} \Omega_c\right) \cos\left(\omega_c t\right) \tag{2.22}$$

$$\dot{\rho}_{22} = i \left(\Omega_c^* \rho_{32} - \rho_{23} \Omega_c\right) \cos\left(\omega_c t\right) + i \left(\Omega_p^* \rho_{12} - \rho_{21} \Omega_p\right) \cos\left(\omega_p t\right)$$
(2.23)

$$\dot{\rho}_{11} = i \left(\Omega_p \rho_{21} - \rho_{12} \Omega_p^*\right) \cos\left(\omega_p t\right) \tag{2.24}$$

$$\dot{\rho}_{12} = i[\rho_{12}\omega_{21} + \Omega_p \cos\omega_p t(\rho_{22} - \rho_{11}) - \rho_{13}\Omega_c^* \cos\omega_c t]$$
(2.25)

$$\dot{\rho}_{23} = i[\rho_{23}\omega_{32} + \Omega_c \cos\omega_c t(\rho_{33} - \rho_{22}) + \rho_{13}\Omega_p^* \cos\omega_p t]$$
(2.26)

$$\dot{\rho}_{13} = i[\rho_{13}\omega_{31} + \rho_{23}\Omega_p \cos\omega_p t - \rho_{12}\Omega_c \cos\omega_c t]$$
(2.27)

ここで、 $\rho_{ij} \ \epsilon \ \rho_{ij}^{'}$ と書き換え、密度行列が回転座標系に乗るとして以下のように変数変換する。

さらにオイラーの公式を用いれば、例えば p<sub>33</sub> は以下のようになる。

$$\dot{\rho}_{33} = i \left(\Omega_c^* \rho_{23} e^{i\omega_c t} - \rho_{32} \Omega_c e^{-i\omega_c t}\right) \frac{e^{i\omega_c t} + e^{-i\omega_c t}}{2} = \frac{i}{2} [\Omega_c^* \rho_{23} - \rho_{32} \Omega_c + \Omega_c^* \rho_{23} e^{2i\omega_c t} - \rho_{32} \Omega_c e^{-2i\omega_c t}]$$
(2.29)

この時、回転波近似によって  $e^{\pm 2i\omega_c t}$  の項は無視できる。ここで、現象論に従って以下のような緩和項を Liouville 方程式に付け加える。

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}, \rho] + \dot{\rho}_{\text{relax}}$$
(2.30)

$$\dot{\rho}_{\rm relax} = \begin{pmatrix} -\Gamma_3\rho_{33} & -\gamma_{32}\rho_{32} & -\gamma_{31}\rho_{31} \\ -\gamma_{23}\rho_{23} & -\Gamma_2\rho_{22} & -\gamma_{21}\rho_{21} \\ -\gamma_{13}\rho_{13} & -\gamma_{12}\rho_{12} & \Gamma_2\rho_{22} \end{pmatrix}$$
(2.31)

ここで、 $\Gamma_2 \ge \Gamma_3$  はそれぞれ状態  $|2\rangle \ge |3\rangle$  からの自然放出による緩和、 $\gamma$  はコヒーレンスの緩和であり、  $\gamma_{ij} = (\Gamma_i + \Gamma_j)/2$  である。 $|1\rangle$ ,  $|3\rangle$  間はパリティが同じため直接緩和が起きず、 $\Gamma_1 = 0$  である。あらため て密度行列の運動方程式を計算すると、

$$\dot{\rho}_{33} = \frac{i}{2} \left( \Omega_c^* \rho_{23} - \Omega_c \rho_{32} \right) - \Gamma_3 \rho_{33}$$
(2.32)

$$\dot{\rho}_{22} = -\frac{i}{2} [\Omega_c^* \rho_{23} - \Omega_c \rho_{32}] + \frac{i}{2} [\Omega_p^* \rho_{12} - \Omega_p \rho_{21}] - \Gamma_2 \rho_{22}$$
(2.33)

$$\dot{\rho}_{11} = \frac{i}{2} \left( \Omega_p \rho_{21} - \Omega_p^* \rho_{12} \right) + \Gamma_2 \rho_{22}$$
(2.34)

$$\dot{\rho}_{12} = \frac{i}{2} [\Omega_p(\rho_{22} - \rho_{11}) - \Omega_c^* \rho_{13}] + (i\delta_p - \gamma_{12})\rho_{12}$$
(2.35)

$$\dot{\rho}_{23} = \frac{i}{2} [\Omega_c(\rho_{33} - \rho_{22}) + \Omega_p^* \rho_{13}] + (i\delta_c - \gamma_{23}) \rho_{23}$$
(2.36)

$$\dot{\rho}_{13} = \frac{i}{2} [\Omega_p \rho_{23} - \Omega_c \rho_{12}] + (i\delta_0 - \gamma_{13}) \rho_{13}$$
(2.37)

となる。ここで、

$$\delta_{p} \equiv \omega_{21} - \omega_{p}$$

$$\delta_{c} \equiv \omega_{32} - \omega_{c}$$

$$\delta_{0} \equiv \omega_{31} - (\omega_{p} + \omega_{c})$$

$$= \delta_{p} + \delta_{c}$$
(2.38)

とおいた。この方程式の解は、摂動論によって近似的に解かれる。

#### 2.3.2 摂動理論を用いた解釈

ここからは probe 光が遥かに弱い  $(\Omega_p \ll \Omega_c)$  ことを仮定し、摂動理論を適用して解を求めていく。定常 状態の解は式 (2.32)~(2.37) において、時間微分を 0 とおくことで求められる。さらに

$$\begin{aligned} \gamma'_{12} &\equiv \gamma_{12} - i\delta_p \\ \gamma'_{23} &\equiv \gamma_{23} - i\delta_c \\ \gamma'_{13} &\equiv \gamma_{13} - i\delta_0 \end{aligned} \tag{2.39}$$

とおくと、

$$\rho_{33} = \frac{1}{\Gamma_3} \frac{i}{2} \left( \Omega_c^* \rho_{23} - \Omega_c \rho_{32} \right)$$
(2.40)

$$\rho_{22} = \frac{1}{\Gamma_2} \frac{i}{2} \left( \Omega_p^* \rho_{12} - \Omega_p \rho_{21} \right)$$
(2.41)

$$\rho_{12} = \frac{1}{\gamma_{12}'} \frac{i}{2} [\Omega_p(\rho_{22} - \rho_{11}) - \Omega_c^* \rho_{13}]$$
(2.42)

$$\rho_{23} = \frac{1}{\gamma'_{23}} \frac{i}{2} [\Omega_c(\rho_{33} - \rho_{22}) + \Omega_p^* \rho_{13}]$$
(2.43)

$$\rho_{13} = \frac{1}{\gamma_{13}'} \frac{i}{2} [\Omega_p \rho_{23} - \Omega_c \rho_{12}]$$
(2.44)

となる。0 次の解は probe 光、coupling 光を入射していない場合なので、状態 |1⟩ の分布数が 1、すなわち  $\rho_{11}^{(0)} = 1, \, \rho_{22}^{(0)} = \rho_{33}^{(0)} = 0$  である。これを代入することによって 1 次の解を求める。ここでは  $\rho_{12}^{(1)}$  のみが解

を持つ。式 (2.42) より、

$$\rho_{12}^{(1)} = -\frac{i}{2} \frac{\Omega_p}{\gamma_{12}'} \tag{2.45}$$

が得られる。この解は  $\Omega_p$  に比例しているので線形吸収を表している。 式 (2.45) を代入することにより、2 次の解である  $\rho_{22}^{(2)}$ ,  $\rho_{11}^{(2)}$ ,  $\rho_{13}^{(2)}$  が求められる。式 (2.41) より、

$$\rho_{22}^{(2)} = \frac{1}{4} \frac{|\Omega_p|^2}{\Gamma_2} \left( \frac{1}{\gamma_{12}'} + \frac{1}{\gamma_{12}'^*} \right)$$
  
$$= \frac{1}{4} \frac{|\Omega_p|^2}{\Gamma_2} \frac{2\gamma_{12}}{\gamma_{12}^2 + \delta_p^2}$$
  
$$= \frac{1}{2} \frac{|\Omega_p|^2}{\Gamma_2 \gamma_{12}} \mathcal{L}_p \qquad (2.46)$$

ただし、

$$\mathcal{L}_p \equiv \frac{\gamma_{12}^2}{\gamma_{12}^2 + \delta_p^2} \tag{2.47}$$

とおいた。 $ho_{11}^{(2)}$  については、 $ho_{11}^{(2)}=ho_{22}^{(2)}$  となるので、

$$\rho_{11}^{(2)} = -\frac{1}{2} \frac{|\Omega_p|^2}{\Gamma_2 \gamma_{12}} \mathcal{L}_p \tag{2.48}$$

となる。式 (2.43) より

$$\rho_{13}^{(2)} = -\frac{1}{4} \frac{\Omega_p \Omega_c}{\gamma_{12}' \gamma_{13}'} \tag{2.49}$$

式 (2.46), (2.48), (2.49) を代入することにより、3 次の解である  $\rho_{12}^{(3)}, \rho_{23}^{(3)}$  が求められる。

$$\rho_{12}^{(3)} = \frac{i}{2} \frac{|\Omega_p|^2 \Omega_p}{\Gamma_2 \gamma_{12} \gamma_{12}'} \mathcal{L}_p + \frac{i}{8} \frac{|\Omega_c|^2 \Omega_p}{\gamma_{12}'^2 \gamma_{13}'}$$
(2.50)

$$\rho_{23}^{(3)} = -\frac{i}{4} \frac{|\Omega_p|^2 \Omega_c}{\Gamma_2 \gamma_{12} \gamma_{23}'} \mathcal{L}_p - \frac{i}{8} \frac{|\Omega_p|^2 \Omega_c}{\gamma_{12}' \gamma_{23}' \gamma_{13}'}$$
(2.51)

同様にして 4 次の解、5 次の解を求め、ρ<sub>12</sub> の摂動項の和をとることで、ρ<sub>12</sub> は以下のように求められる。 [17]

$$\rho_{12} = \frac{i\Omega_p}{8\gamma'_{12}\gamma'_{13} + 2|\Omega_c|^2} \tag{2.52}$$

#### 2.3.3 吸収係数

電磁気学によれば、電気感受率の虚部は誘電体による電場のエネルギーの吸収を表す。[18] したがって、 probe 光の吸収に関する電気感受率を求めることで、probe 光の吸収を表すことができる。

電場 E によって作られる分極 P は以下のように表される。

$$P = \epsilon_0 \chi E \tag{2.53}$$

ここで  $\epsilon_0$  は真空の誘電率、 $\chi$  は電気感受率である。また、単位体積当たり N 個の原子の巨視的な双極子 モーメントの期待値は以下のように表される。

$$P = N\langle p \rangle = N(\rho_{12}p_{21} + \rho_{23}p_{32} + c.c.)$$
(2.54)

probe 光の周波数  $\omega_p$  で振動する成分を考えると、

$$\epsilon_0 \chi \varepsilon_p = N \rho_{12} p_{21} \tag{2.55}$$

という関係が成り立つ。したがって、

$$\chi = \frac{N\rho_{12}p_{21}}{\epsilon_0\varepsilon_p}$$

$$= \frac{N|p_{12}|^2}{\epsilon_0\hbar\Omega_p}\rho_{12}$$
(2.56)

となる。適当な係数を与えることで電場の吸収係数は $\operatorname{Im}[\Gamma_2 \rho_{12} / \Omega_p]$ と表せる。吸収係数  $\alpha$  は、

$$\begin{aligned} \alpha &= \operatorname{Im}\left[\frac{\Gamma_2 \rho_{12}}{\Omega_p}\right] \\ &= \operatorname{Im}\left[\frac{\Gamma_2}{\Omega_p} \frac{i\Omega_p}{8\gamma'_{12}\gamma'_{13} + 2|\Omega_c|^2}\right] \\ &= \frac{\Gamma_2 \left(\Gamma_2 \Gamma_3 - 4\delta_p \delta_0\right)}{8 \left[(\Gamma_2^2 + 4\delta_p^2)(\Gamma_3^2 + 4\delta_0^2) + 2|\Omega_c|^2\right]} \end{aligned}$$
(2.57)

となる。coupling 光の離調がゼロ、すなわち  $\delta_0 = \delta_p$  とすると、probe 光の離調と吸収の関係は図 2.6 のようになる。



図 2.6 ラダー型 EIT 信号  $\delta_c = 0$  の時の probe 光のスペクトルを、 $\Omega_c$  の値によって 5 通り示して いる。実線は密度行列の完全解を表しており、点線はドレスト状態の自然放出による影響を受けた実際 に観測されるスペクトルを表す。 [17] より引用。

EIT は、強い coupling 光による 2 種類の影響によって発生する。ひとつは、原子と光の相互作用によっ て生まれる固有状態のエネルギー準位がシュタルクシフトするためである。この固有状態は原子が光を纏っ ているような状態であることからドレスト状態と呼ばれ、見かけ上 probe 光の吸収や放出が起こらない。も う一つは、ドレスト状態の (への)自然放出の干渉である。この影響によって、実際には図 2.6 の点線で示 すような吸収が起こる。ラダー型 EIT の場合、probe 光の吸収や放出が起こらないドレスト状態が安定で はないため、特に Ω<sub>c</sub> が Γ<sub>2</sub> より小さい時でも吸収や放出がある程度発生する。

### 第3章

## 実験系の構築

この章では、初めに我々が構築した実験系の概要についてまとめる。その後、それらの構成要素である外 部共振器型半導体レーザー、周波数安定化システムについて詳細を述べる。電磁誘起透明化 (EIT) 信号の 観測に関しては、次の章で詳細を述べる。

#### 3.1 実験系の概要

実験系の概要、及び光学系の写真を図 3.1,3.2 に示す。ECDL1 は ( $\lambda \simeq 420$ )nm、ECDL2 は ( $\lambda \simeq 1020$ )nm である。各レーザーから出た光は、戻り光をカットするためアイソレーターに通されている。ECDL1 の方 のアイソレーターの実験スペックは、Transmission:80.4%, Isolation: – 34.4dB であった。ECDL2 の方の アイソレーターの実験スペックは、Transmission:35.8%, Isolation: – 15.4dB であった。少し性能が悪い理 由として、アイソレーターが回転できない固定型の製品だったため、入射する光の偏光に対してアイソレー ターの角度を最適化できていないことが考えられる。また、ECDL1 の方のアイソレーターには、カットさ れた光が外部に放出される穴が開いており、目などにレーザー光が入らないよう遮光シートを被せた。この 遮光シートを被せないと各実験で観測する probe 光に明らかにノイズが増えるので、アイソレーター内で の光の干渉を防ぐために重要な効果があると考える。

ECDL1 から出た光は、アイソレーターを通った後、λ/2 波長板と PBS によって周波数安定化のための 変調移行分光の光学系へと光が分けられる。変調移行分光の光学系については、図 2.4 に示した通りであ る。PBS を真っ直ぐ通過した光はさらに λ/2 波長板と PBS によって分けられ、それぞれ EIT 信号観測実 験の系と、波長系へと繋がる光ファイバーに向かっている。

ECDL2 から出た光は、アイソレーターを通った後、波長板と PBS によって EIT 信号観測実験の系へと 光が分けられ、残りの光は波長系へと繋がる光ファイバーに通されている。



図 3.1 光学系の概要 ISO: アイソレーター、λ/2: 波長板、PBS: 偏光ビームスプリッター、DC: ダイ クロイックミラー、PD: フォトダイオード、EOM: 電気光学変調機



図 3.2 光学系の写真

#### 3.2 外部共振器型半導体レーザー (ECDL)

レーザー (Laser) は、「放射の誘導放出による光の増幅 (Light amplification by stimulated emission of radiation)」の頭文字を集めて作った造語であることからもわかるように、半導体結晶から放出された光を 誘導放出により増幅させた光源である。反射鏡等で光の一部をフィードバックし共振器を形成することで、 特定の波長の光が選択的に増幅され「発振」する。[19]





図 3.3 (左) ECDL の概要 (右) 実際に作成した 420nm ECDL

外部共振器型半導体レーザー (External Cavity Diode Laser: ECDL) とは実効的な共振器長を大きくす ることで線幅を狭くしている半導体レーザー光源である。[20] 本実験で作成した ECDL の概要を図 3.3 に 示す。LD 素子から出力された光は、コリメーションレンズ (f=4.51mm) を通して平行光になり、グレー ティングと呼ばれる回折格子 (2400/mm) によって一部の光が元のパスに戻り、共振器を形成する。グレー ティングに接着された PZT 素子に電圧を加えて共振器長を微調整することで LD で発振する周波数を振る ことができる。また、グレーティング自体の角度を変えることでより大胆に周波数を操作することもでき る。LD は温度や流す電流の大きさによっても周波数が変わる。温度については、サーミスタで測った電圧 を温度コントローラーを介してペルチェにフィードバックすることで安定化している。また、LD のスペッ ク上の動作電圧 (6.8V) 以上の電圧がかかったり、逆向きの電流が流れると LD が壊れる可能性があるた め、LD のアノードとカソードにダイオードでそれらを予防する回路を繋げている。

図 3.4 に、使用した LD(λ=420nm)の電流-出力特性をグレーティングの有無で比較したグラフを示す。 最初に作成したレーザーは、AR(反射防止) コートの無い LD 素子で、グレーティングの角度や温度、電流な どを調整しても波長が最大 418.32nm までしか上がらなかった。これでは Rb の共鳴周波数である 420nm に満たないため、AR コート付きの LD 素子 (NICHIA NDVA416T) で ECDL を作り直している。二つの グラフを見比べると、グレーティングがある場合はレーザー発振が起こる電流はそれぞれ 34mA,30mA 程 度であるが、グレーティングがない場合の発振電流に大きな違いがあることがわかる。AR コート無しの LD は、僅かにグレーティングがある方がレーザー発振する電流が小さい(グラフからはほとんどわから ない程度)が、グレーティングの有無に関わらず 34mA くらいでレーザーが発振してしまっている。これ は、AR コートがないことによって LD 素子が光を自己反射してしまっているからだと考えられる。一方で AR コート付きの LD でグレーティングがない場合、特定の入力電流で急激にレーザー発振するのではな く、50mA あたりでゆるやかに出力が上がっている。これも、AR コートによって自己反射が抑えられてる 影響だと考える。LD 素子が光を自己反射してしまうと、グレーティングで回折した以外の光でも誘導放出 が起こり、レーザーがシングルモードではなくなる。この影響で AR コートの無い LD 素子は波長 420nm の光が得られなかったと考える。AR コート付きの LD は、グレーティングの角度を操作することで波長 420nm から 422nm まで操作可能であることを確認した。また、Rb の共鳴周波数に調整後、レーザーの最 大出力は 57.4mW であった。



図 3.4 グレーティングの有無と P-I 特性 (上) AR コート無し (下) AR コートあり



図 3.5 波長調整後のレーザーの P-I 特性 (上) ECDL1 (下) ECDL2

また、ECDL2 については研究室で既に作成されていたものを利用した。グレーティングの角度を調整す ることで、少なくとも 1000nm から 1036nm まで周波数を操作できることを確認した。性能評価の基準と して、2.1 節より Rb の  $6P_{3/2}$  から  $26D_{5/2}$  への励起に必要な波長が約 1029.05nm、 $6P_{3/2}$  から  $200D_{5/2}$  へ の励起に必要な波長が約 1010.57nm であるので、十分な波長であると言える。レーザー発振に必要な電流 は 1024nm の時、約 26mA であった。こちらの LD は 420nm の LD よりスペック上大きな電流に耐えら れることができ、電源が最大の 130mA の時、レーザーのパワーは 57.5mW であった。図 3.5 に各レーザー の入力電流と出力の P-I 特性を示す。

#### 3.3 ECDL1 の周波数安定化

ECDL1 の周波数安定化には、変調移行分光を用いた。光学系の概要は図 2.4 に示してある。ECDL か ら  $\lambda/2$  波長板と PBS によって分けてきた光を、さらに  $\lambda/2$  波長板と PBS によって強い pump 光と弱い probe 光に分けた。pump 光はおよそ 1mW、probe 光はおよそ 0.3mW 程度のパワーとした。pump 光は EOM を通って PBS で反射し、Rb 蒸発セルで probe 光と重ね合わされる。probe 光はセルを通過したの ち、PBS を透過してそのまま PD へと向かう。また、Rb 蒸発セルには、温度を調節できるようにヒーター を巻きつけた。実際にレーザー周波数のロックに用いた信号を図 3.6 に示す。青いラインは飽和吸収信号を 表しており、上の図は <sup>85</sup> Rb の F = 3 から F' = (2,3,4) の遷移に対応するラムディップ、下の図は <sup>87</sup> Rb の F = 2 から F' = (1,2,3) の遷移に対応するラムディップが見えている。なお、これらの飽和吸収信号は



図 3.6 飽和吸収と変調移行分光の信号 青色は飽和吸収信号、赤色は変調移行分光の信号。上の図は <sup>85</sup> Rb の F = 3 から  $F^{'} = (2,3,4)$  の遷移周波数周辺、下の図は <sup>87</sup> Rb の F = 2 から  $F^{'} = (1,2,3)$  の 遷移周波数周辺を観測している。

先行研究 [22][23] で得られたものと同様の波形であるため、各ラムディップがどの遷移やクロスオーバーに 対応したものかがわかる。また、飽和吸収のラムディップの間隔から、横軸の周波数単位を推定している。 超微細構造間の周波数については、[24] の研究結果から引用した。オシロスコープの横軸の目盛を推定する ため、後に出てくるグラフにも同時に観測した飽和吸収分光のスペクトルが頻繁に登場する。また、赤いラ インは変調移行分光の信号であり、共鳴周波数でゼロクロスする勾配の急な信号が取得できている。

表 3.1 周波数安定化に使用した遷移と、その時の周波数及び波数 周波数は波長計で読み取った値。波数は周波数を光速で割って求めたもの。

遷移	周波数 [THz]	波数 [cm <sup>-1</sup> ]
$^{85}\mathrm{Rb}$ F=3 to F'=4	$713.28283(\pm 5 MHz)$	$23792.554(\pm 0.017)$
$^{87}\mathrm{Rb}$ F=2 to F'=3	$713.28169(\pm 5 MHz)$	$23792.516(\pm 0.017)$



図 3.7 レーザー周波数をロックしたときの波長計

表 3.1 に、ロックに用いた信号が対応する遷移と、その時の周波数及び波数を示す。図 3.7 は、エラー信号を Servo 回路を通してフィードバックし、実際にレーザー周波数を  $^{87}Rb$  の F = 2 から  $F^{'} = 3$  の飽和 吸収信号にロックした時の様子である。時間が経過しても PD で観測される probe 光の電圧が一定であり、周波数が安定化されていることがわかる。エラー信号の幅は飽和吸収信号の線幅と同じくらいであることから、 $\pm 5$ MHz 程度に安定化できている。

ここで、2.1 節の計算に用いた 5*S*<sub>1/2</sub> から 6*P*<sub>3/2</sub> への遷移に相当する波数と、ロックに用いた波数を表 3.2 で比べてみる。

表 3.2 波数の比較

遷移	波数 [cm <sup>-1</sup> ]
NIST[11]	$23792.591 (\pm 0.010)$
$^{85}\mathrm{Rb}$ F=3 to F'=4	$23792.554(\pm 0.017)$
$^{87}\text{Rb}$ F=2 to F'=3	$23792.516(\pm 0.017)$

NIST の値が測定値よりも大きく、我々の波長計の校正がずれている可能性がある。2.1 節の計算に出て くる *k*<sub>6P</sub> には、NIST の値を用いることにした。

#### 3.3.1 Servo 回路

実際に ECDL1 の周波数操作およびエラー信号のフィードバックに用いた Servo 回路を図 3.8 に示した。 Bias の可変抵抗を操作することで、PZT 素子にかける電圧を連続的に操作することができる。Ramp には 5.5V の三角波を入れ、PZT 素子を周期的に動かすことでレーザー周波数を振ることができる。この際、可 変抵抗によって三角波の振幅を操作、スイッチによって Ramp 電圧の on/off ができる。Error in には変調 移行分光などで得られたエラー信号を入れる。Error bias で信号のオフセットを微調整でき、Monitor out で調整後のエラー信号を観測できる。Polarity のスイッチはエラー信号の値を反転させることができる。そ の後、PZT Gain の可変抵抗によってエラー信号の大きさを調整でき、積分回路はローパスフィルターの役 割を果たす。PZT out にて Servo 回路から出力された信号は、PZT Driver に接続され 15 倍に増幅されて PZT 素子に送られる。この際、PZT Driver の入力電圧を制御するため、10V のツェナーダイオードが追 加されている。



図 3.8 上:420nm レーザーのロックに用いた Servo 回路の回路図 下: 実際の Servo 回路の正面写真

#### 3.4 ECDL2 の周波数安定化

ECDL2 は 6P<sub>3/2</sub> から Ryderg 準位への励起に使用するが、周波数安定化の参照として使える信号が無 く、複数の Rydberg 準位への励起も予定している。そのため、柔軟にロックする周波数を設定することが できる波長計ロックを採用した。波長計ロックとは、レーザーの周波数を波長計で計測し、得られたデジタ ル信号とプログラムで設定した任意の周波数との誤差を、電圧として ECDL にフィードバックする手法で ある。ECDL1 同様 Servo 回路を通してフィードバック電圧の大きさを調整し、それを PZT Driver で増 幅して PZT 素子にフィードバックした。図 3.9 にロックした際の周波数と設定値との誤差の時間推移、図 3.10 に作成した Servo 回路の回路図を示す。周波数が、± 4MHz 程度に安定化されているのが読み取れる。



図 3.9 波長計ロックした際の計測周波数と設定値との誤差の時間推移



図 3.10 ECDL2 の Servo 回路

### 第4章

## 電磁誘起透明化信号の観測実験

#### 4.1 実験方法

EIT 信号を観測するために用いた光学系の概要を図 4.1 に示す。各レーザーから PBS で光を分け、Rb 蒸発セル内で重ね合わせた。この時、焦点距離 200mm のレンズを置くことによって ECDL1(=probe 光) のレーザー径を小さくし、完全に ECDL2(=coupling 光) の光に重なるようにしている。レーザー径が小さ くなることで probe 光の電場強度は半径の二乗に反比例して大きくなるため、レンズの焦点はセルよりも 約 8cm ほど奥になるような位置に置いている。また、Rb 蒸発セルには飽和吸収信号の観測実験と同様に温 度を調節するためのヒーターを巻きつけた。実験中のセルの温度は約 130 ℃とした。70 ℃以上で EIT 信号 が観測できたが、セルの温度が高いほど信号強度も大きかった。実験の操作としては、coupling 光を計算に よって求めた特定の周波数付近に波長計ロックし、ECDL1 の PZT 素子に三角波電圧をかけることによっ て周波数を振った probe 光の電圧をフォトダイオードで観測した。



図 4.1 上: EIT 信号観測実験の概要 各レーザーから光を分け、Rb 蒸発セル内で重ね合わせ、420nm の光を PD で観測した。なお、各レーザーの手前に設置したアイソレーターや、PBS の前に設置した波 長板は省略している。DC はダイクロイックミラー

#### 4.2 信号の観測

遷移双極子モーメントは  $1/n^{*3/2}$  に比例するため [8]、ラビ周波数  $\Omega_c \propto 1/n^{*3/2}$  であり、実効主量子数 が小さいほど EIT 信号のピークの強度は大きくなる。まずは ECDL2 のスペックで最もピークが見やすい と考えられる  $26D_{5/2}$  への励起周波数に coupling 光をロックし観測を試みた。EIT 信号の観測にはラビ周 波数  $\Omega_c$  が  $\Omega_p$  に比べて大きいことが重要と考え、coupling 光の強度は周波数が合わせられる最大強度とし た。(周波数によって、約 25mW から 35mW の間であった。)

probe 光は当初はなるべく小さい 20µW 程度の光を入れていたが、いくら coupling 光の周波数を変えて も EIT 信号は観測されなかった。その後、probe 光を 600µW 程度までパワーを上げることによって EIT 信号を観測することに成功した。先行研究 [21] が示すように、probe 光が弱すぎても EIT 信号が小さくな り観測できないことがわかった。ただし、パワーを上げると ECDL の発振周波数が共鳴周波数に合わなく なってしまうため連続的にパワーを上げることが難しく、今回は EIT ピーク強度の最適化は行っていない。



図 4.2 n=26 の EIT 信号 (<sup>85</sup>Rb の共鳴周波数付近) 青は飽和吸収信号、赤は EIT 信号、黄色は EIT 信号のドップラー吸収にフィッティングしたガウス関数



図 4.3 n=26 の EIT 信号(<sup>87</sup>Rb の共鳴周波数付近)青は飽和吸収信号、赤は EIT 信号

図 4.2, 図 4.3 に観測された EIT 信号を、表 4.1 にその時の coupling 光の周波数と 2.1 の計算によって求

表 4.1 EIT 信号が観測された時の coupling 光の周波数 (n=26)

coupling 光の周波数 [THz]	計算值 [THz]	誤差 [THz]
291.3283122	$291.3288723 {\pm} 0.00060$	-0.00056

めた周波数を示す。EIT 信号のディップが、<sup>85</sup>Rb の F' = co(4,3) の吸収線と同じくらいの周波数で表れ ている。この時、同じ coupling 周波数で、<sup>87</sup>Rb の F' = 3 に相当する周波数でもディップが確認された。 EIT 信号の半値幅は飽和吸収分光のディップから推定するに、35 ~ 40MHz である。我々は  $6P_{3/2}$  を中間 準位としているので、 $\Gamma_2 = 2\pi \times 1.4$ MHz に対し、EIT 信号の線幅はおよそ  $25\Gamma_2 \sim 28.6\Gamma_2$  である。EIT の線幅が自然幅よりも太い要因の一つとして考えられるのは、図 2.6 にも示したように  $\Omega_c$  が  $\Gamma_2$  に比べて 大きいことによるドレスト状態のエネルギー準位のシフトが大きいためと考える。

coupling 光の周波数に関しては、計算によって求めた値の中央値より 560MHz とかなり離れているが、 計算値のエラーバーの範囲内である。ただし実際に ECDL1 の周波数を安定化した時の値から coupling 光 の周波数を求めると、1.6GHz も離れてしまう。560MHz も計算値と離れている要因として、計算に用い た量子欠損の値の正確さ、波数  $k_{\rm lim}$  と  $k_{6P}$  の値 [11](NIST Atomic Spectra Database Levels Data) が同 位体シフトを含んでいる可能性、我々の波長計の値がずれていることが考えられる。また、coupling 光を ±100MHz ほど離れたところにロックすると、EIT 信号はその分左右に離れた場所に観測された。このこと から、電磁誘起透明化は本来の共鳴周波数から 100MHz 程度離れた場所でもドップラー効果によって観測 できると言える。

また、試しに probe 光強度を 14.5mW まで上げた時のオシロスコープの様子を図 4.4 に示す。レンズの 位置や温度などを探りながらの観測だったため図 4.2 とパワーの大きさのみの純粋な比較とは言えないが、 probe 光が coupling 光 (25 ~ 35mW) と同じオーダーのパワーにも関わらず、はっきりとティップが見えて いる。線幅に関しては、飽和吸収の  $F' = 4 \ge F' = co(4,3)$ のディップの間隔が 19.63MHz なのを踏まえ てグラフのメモリから読み取るに、約 25MHz である。さらに、中央の大きなディップの左右に別のディッ プが現れている。左側のディップは中央のディップから約 50MHz、右側のディップは中央のディップから 約 20MHz 離れている。<sup>85</sup>Rb の 6 $P_{3/2}$ の超微細構造は、 $F' = 4 \ge F' = 3$ の間が 39.26MHz、 $F' = 3 \ge$ F' = 2の間が 20.667MHz なので [24]、それぞれ左から F' = 4,3,2を中間準位とした Rydberg 励起の EIT 信号の可能性が考えられる。



図 4.4 probe 光強度 14.5mW の時のオシロスコープ CH1 は飽和吸収信号、CH4 は EIT 信号

#### 4.3 異なる Rydberg 準位への励起

続いて、より主量子数の大きい Rydberg 準位へ励起した際の EIT 信号の観測を試みた。n=26 の時の観 測結果を踏まえて、2.1 節の計算によって求められた各周波数から 560MHz を引いた周波数に coupling 光 をロックしたところ、図 4.5~4.8 に示すような信号が得られた。表 4.2 は各 Rydberg 状態に励起した際の coupling 光の周波数である。いずれのグラフでも、n=26 の時と同様に <sup>85</sup>Rb の F' = co(4,3) の吸収線と 同じくらいの周波数で EIT ピークが見られている。ピークの位置は n が大きくなっても変わらないように 見える。したがって 2.1 節の計算結果から 560MHz の差を取ることによって、 $6P_{3/2}$  から任意の Rydberg 状態へ励起する copuling 光の周波数を正確に計算できるといえる。なお、n=45 に関しては EIT 信号が小 さく、実際の実験で coupling 光を遮蔽したりしても信号を読み取るのは難しかった。

EIT 信号の強度は n が大きくなるほど急激に小さくなっている。[22] によれば、EIT 信号強度は  $1/n^3$  に 比例すると述べられているが、今回の実験でもそのような傾向があるように読み取れる。一方で EIT 信号 の線幅に関しては、n=30 と n=40 のグラフを比較しても、少なくとも数十 MHz といった読み取れるほど の変化はないと言える。図 2.6 によれば  $\Omega_c$  が小さくなるほど EIT ピークの強度と共に線幅も狭くなってい くはずであるが、今回の実験では線幅に関してそのような傾向は見られなかった。

表 4.2 EIT 信号が観測された時の coupling 光の周波数

電子配置	ロック周波数 [THz]
$30D_{5/2}$	292.7338158
$35D_{5/2}$	293.8359072
$40D_{5/2}$	294.5387450
$45D_{5/2}$	295.0142370





図 4.6 (青)飽和吸収信号 (赤)n=35 の EIT 信号





### 第5章

## まとめ

本研究では、電場イオン化を行うための Rydberg 励起用レーザーシステムの開発を目的とし、レーザーの開発から Rydberg 励起が成功しているかを確認するための電磁誘起透明化信号の観測までを行った。 レーザーには、AR コート付きの LD 素子を利用した外部共振器型半導体レーザーを作成した。ECDL1 は Rb の基底状態から  $6P_{3/2}$  への励起数波数、ECDL2 は  $6P_{3/2}$  から  $26D_{5/2}$  以上の Rydberg 準位への励起 周波数に対応していることを確認した。ECDL1 の周波数安定化には変調移行分光法を用いて、周波数を ±5MHz 以内に安定化することができた。ECDL2 の周波数安定化には波長系ロックを用いて、周波数を ±4MHz 以内に安定化することができた。電磁誘起透明化信号は、 $26D_{5/2}$  から  $40D_{5/2}$  までの観測に成功 した。周波数が大きくなると信号強度が急激に小さくなるため、それ以上の主量子数の EIT 信号を観測す ることはできなかったが、Rydberg 励起に必要な coupling 光の周波数を少なくともレーザーの線幅である ±5MHz 以内で精密に計算できるようになったため、今後の EIT 信号の観測が格段に簡単になった。

一方で、冒頭で述べたように電場イオン化を行うには、100V/cm の電場を用意しても  $n^* = 42.04482$  の Rydberg 原子が必要である。したがって今後の展望としては、より EIT 信号の強度を高めるための実験系 の改良や最適化が挙げられる。probe 光の強度に関しては、0.6mW と 14.5mW といった非常に離れた値で の観測しか行っていないため、セルの温度も含めまだまだ最適化の余地があるといえる。また、copuling 光 をテーパードアンプなどで増幅したり、アイソレーターをより透過率の高いものに変更したりすることで、 coupling 光の電場強度が上がり、ラビ周波数  $\Omega_c$  を大きくすることができる。これらの改良を加えること で、電場イオン化に十分な主量子数の Rydberg 状態励起用レーザーが用意できると考える。

## 参考文献

- [1] M. H. Anderson et al., Science 269, 198 (1995)
- [2] S. Inouye, M. R. Andrews, J. Stenger, H.-J. Miesner, D. M. Stamper-Kurn, and W. Ketterle., "Observation of Feshbach resonances in a Bose-Einstein condensate" Nature, 392, pp. 151 – 154 (1998)
- [3] Greene, C. H., Giannakeas, P. and Pérez-Ríos, J., "Universal few-body physics and cluster formation" Rev. Mod. Phys. 89, 035006 (2017)
- [4] Jun Kobayashi et al., Nature Comn 10, 3771
- [5] 奥田泰崇 「共振器増幅された 3 次元光格子中でのレーザー冷却実験」 北海道大学 (2022)
- [6] T.Gallagher, "Rydberg Atoms" Cambridge University Press (2005)
- [7] Nicolas Zuber, Viraatt S. V. Anasuri, Moritz Berngruber, Yi-Quan Zou, Florian Meinert, Robert Löw and Tilman Pfau., "Observation of a molecular bond between ions and Rydberg atoms" Nature, 605, pp. 453 – 456. (2022)
- [8] 中村 勇真 「単一イッテルビウム原子を用いた量子計算に向けた光ピンセットアレイシステムの開発と リドベルグ分光」 京都大学大学院 (2022)
- [9] Rucas beguin, "Measurement of the van der Waals interaction between two Rydberg atoms" Appendix B, University of Basel (2013)
- [10] Wenhui Li, I. Mourachko, M. W. Noel, and T. F. Gallagher, "Millimeter-wave spectroscopy of cold Rb Rydberg atoms in a magneto-optical trap: Quantum defects of the ns, np, and nd series", University of Virginia, Bryn Mawr College (2003)
- [11] NIST Atomic Spectra Database Levels Data
- [12] C. J. Foot, "Atomic Physics", OXFORD UNIVERSITY PRESS (2005)
- [13] D. J. McCarron, S. A. King and S. L. Cornish, "Modulation transfer spectroscopy in atomic rubidium", Measurement Science and Technology, Volume 19, Number 10 (2008)
- [14] 池田 幸平 「通信波長帯周波数安定化レーザーと天文コムへの応用」 横浜国立大学大学院 (2019)
- [15] 矢島 達夫 「非線形光学の基礎 II:2 次と 3 次の現象」日本大学 (1998)
- [16] 林 暢仁 「ラダー型及び A 型 3 準位系における量子干渉効果」 熊本大学大学院 (2011)
- [17] Sumanta Khan, Vineet Bharti, Vasant Natarajan, " Role of dressed-state interference in electromagnetically induced transparency", Indian Institute of Science (2016)
- [18] 長岡 洋介 「物理入門コース 4 電磁気学 Ⅱ 変動する電磁場」 10 章, 岩波書店 (1983)
- [19] 陳 軍・山本将史 「らくらく図解 光とレーザー」 オーム社 (2006)
- [20] 鈴木 皓博・井上 慎「光会合用レーザーシステムの開発」 東京大学 (2013)
- [21] HSUAN-JUI SU, JIA-YOU LIOU, I-CHUN LIN, AND YI-HSIN CHEN, "Optimizing the Rydberg EIT spectrum in a thermal vapor" Vol. 30, No. 2, 17 Jan 2022 Optics Express 1499
- [22] 高瀬 直美 「Rydberg 励起用周波数安定化波長 420nm 半導体レーザーの開発」 電気通信大学 (2019)

- [23] Krishnapriya Subramonian Rajasree, Kristoffer Karlsson, Tridib Ray, and Síle Nic Chormaic, "1.6GHz Frequency Scanning of a 482 nm Laser Stabilized Using Electromagnetically Induced Transparency", IEEE PHOTONICS TECHNOLOGY LETTERS, VOL.33, NO.15, AUGUST 1, 2021
- [24] "Hyperfine Structure Measurements of the 85Rb and 87Rb 6P3/2 State" IEEE International Frequency Control Symposium (2019)

謝辞

本論文の提出をもって、私は物理という学問から一度離れることになります。しかしながら、北海道大学 で物理をはじめとする学問を学び、このフォトニクス研究室で過ごした時間は、これで終わってしまうのが 寂しいと感じるくらい、非常に充実した時間でした。

冷却原子グループの指導教官である小林先生には、最初から最後まで常にわからないことだらけだった私 に、実験の方法から読むべき論文まで様々なことを示していただきました。1年という短い研究期間で光や 原子の物理学に触れ、このような論文を執筆するほどの経験ができたのは、小林先生の助力あってのことに 他なりません。

同研究室の長谷川先生、村上先生には、毎週のミーティングや卒論発表の練習期間に特にお世話になりま した。本質的なアドバイスで発表をより改善することができましたし、先生方の思考の速さから物理学者へ の尊敬の念を抱きました。

同じ冷却グループの奥田さんには、実験に関わることから研究生活に関わることまで無数の質問に答えて いただきました。実験が終わった後、研究室について語り合ったのも楽しい思い出です。同期の廣島君とは 1年間隣で作業をし、様々な知識を共有しました。互いにレーザーの開発から実験を始めたということもあ り、良い刺激を貰うことが出来ました。

量子グループの梅村さんと高橋君には、勉強会やレーザー冷却の原理に関する疑問を共有することでお世 話になりました。お二人が一つづつ丁寧に原理を理解していく姿は、結果だけを求めがちな私に多くの学び を与えてくださいました。

天文グループの須藤さん、大平さん、浅野さん、角田君、ジョン君には、ゼミや普段の生活で大変お世話 になりました。皆さんからの研究生活におけるヒントや普段の何気ないコミュニケーションが無ければ、こ こまで充実した1年を過ごせませんでした。

最後に、これまでの学生生活を支えてくれた家族に感謝の念をささげて締めくくりとさせていただき ます。