

リュードベリ原子を用いた 高効率な単一光子発生に向けた光源開発

丹治研究室 茂木康伸

令和2年3月6日

1 序論

単一の光子をオンデマンドで発生させ、その量子力学的な性質を利用することは量子計算[1, 2]や量子暗号通信[3]などの量子情報処理技術において重要な役割を果たすと考えられている。単一光子状態とは、一つの時空間モードに対して光子が1個励起されている状態を指し、単一光子源の実用化を目指す上では単一光子の純度、同一性、発生効率が全て高いことが必要となる。ここで、純度は光子の単一性(二光子以上の状態に対する一光子状態の割合)、同一性は独立に発生させた二光子の時空間モード及び周波数空間における重なり、発生効率は各試行における光子発生の確率をそれぞれ指す。

光子の単一性を確保するための方法には主に物質の単一励起状態からの脱励起を利用する手法と、光子対を利用する手法がある。前者では原子、分子、量子ドットなど量子系における単一電子遷移に伴う発光が利用されている[4, 5, 6]。また後者では、四光波混合やパラメトリック下方変換などの非線形光学過程によって生成される光子対が利用されており、発生した光子対の一方を伝令信号として

用いている[7, 8]。後者の方法では、光子対の発生レートを上げるために励起光強度を上げると、複数の光子対を生成する確率も上がってしまうというトレードオフの関係が成り立っている。一方、前者の方法においては、量子を励起させるタイミングにより光子を取り出す時間モードを制御することが可能であるものの、光子を特定の空間モードに放出させるために共振器などの利用が不可欠となる。

最近ではマイクロ波共振器と量子ドットを利用した単一光子源で、純度 0.975、同一性 0.975、発生確率 60 %という単一光子源が実現されている[9]。一方で、高効率(>85%)、高忠実度(>99%)の量子メモリ[10]や、50 キロメートルもの長距離での原子集団間のもつれ状態の生成[11]など、量子情報技術の実用化に向けた重要な成果が原子系において次々と報告されている現状においては、原子の吸収スペクトルに対応した単一光子の生成が強く望まれる。

2 研究の目的

我々は、光共振器中の冷却原子のリュードベリ集団励起状態を利用することで、原子の

吸収スペクトルに適合した単一光子の発生を目指している。この手法ではリュードベリ原子の特性を利用することで、強い励起光に対しても励起される原子の個数を一つに制限できるため、高レートかつ高純度な単一光子源を作ることができる。実際、これまでに冷却原子のリュードベリ集団励起状態を利用した単一光子源として、発生レート $1.18 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ 、純度 0.9995、同一性 0.980、発生確率 40 %の単一光子発生が実現されている[12]。しかしながら、高密度な原子集団を利用したことにより、意図せぬリュードベリ励起が発生し[13]、単一光子の同一性および、発生確率が制限されている。そこで我々は、 ^{87}Rb 原子集団に対して光共振器中でリュードベリ集団励起状態を生成することにより、原子集団からの超放射現象と共振器モードへの光子の散乱の増強を併用する。これにより、比較的低密度な原子集団での単一光子発生が可能となり、より同一性が高く、高効率な単一光子源が実現すると期待される。

本研究は、この方法による単一光子発生を実現する上で必要となる各種パラメータを明らかにし、それに基づいて実験系を構築することを目的とする。

3 原理

3.1 リュードベリ原子とリュードベリブロッケード

リュードベリ状態とは、原子中の電子が主量子数 n の大きな軌道に励起された状態のことをいう。特にそのような状態にある原子のことをリュードベリ原子と呼び、大きな電子軌道半径 R や双極子モーメント μ 、長い寿命 τ などのような特徴を持つことが知られており、

それぞれ実効的主量子数 n^* で $R \propto (n^*)^2$ 、 $\mu \propto (n^*)^2$ 、 $\tau \propto (n^*)^3$ のようにスケールされる[14]。実効的主量子数 n^* は $n^* = n - \delta$ で与えられ、 δ は水素原子モデルへの補正を与える量子欠損である。主量子数が大きい場合、電子軌道半径は数マイクロメートルにも達するため、リュードベリ原子は巨大な双極子モーメントを持ち、電場や磁場と強く相互作用する。このような強い相互作用により、リュードベリ原子は周囲の原子のエネルギー準位に摂動を与え、同じ周波数の励起光による他の原子のリュードベリ励起を阻害する。その結果、ある大きさの領域内ではただ一つの原子しかリュードベリ状態に励起されない。このような効果をリュードベリブロッケードと呼び、励起の抑制が起こる領域の半径をブロッケード半径 R_b と呼ぶ。ブロッケード半径 R_b は

$$R_b = \left(\frac{C_6}{\hbar\Omega} \right)^{\frac{1}{6}} \quad (1)$$

で定義される(図 1)。ここで、 C_6 はファンデルワールス係数である。

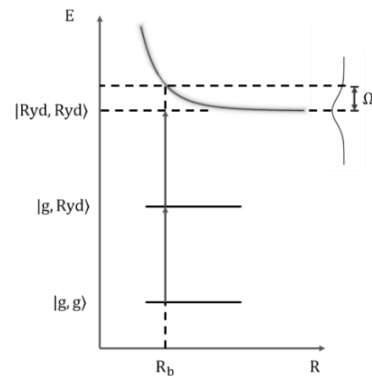


図 1 リュードベリブロッケード概念図

2つの原子を考えた時、2原子が基底状態にある状態を $|g, g\rangle$ 、1原子がリュードベリ状態で他方が基底状態にある状態を $|g, \text{Ryd}\rangle$ 、2原子ともリュードベリ状態にある状態を $|\text{Ryd}, \text{Ryd}\rangle$ と表している。また、 Ω は励起光のラビ周波数である。

3.2 光共振器中における原子のリュードベリ集団励起と超放射

直径がブロッケード半径 R_b と一致する球内に N 個の原子がある時に、この原子集団全体に対して、リュードベリ励起を起こすためのレーザーを一様に照射する場合を考える。すると、この N 個の内1個のみがリュードベリ状態に励起され、それがどの原子なのかは分からない状態、すなわち以下のような重ね合わせ状態を生成することができる[15]。

$$\frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N e^{i\varphi_j} |g_1 g_2 \dots Ryd_j \dots g_N\rangle \quad (2)$$

ここで、 $|g_1 g_2 \dots Ryd_j \dots g_N\rangle$ は j 番目の原子のみがリュードベリ状態に励起された状態、 φ_j は励起光の位相に対応した原子の位相をそれぞれ表す。原子集団内にこのような単一の集団励起状態が生成された場合、原子集団は全体として回折格子のようにふるまい、脱励起のためのレーザー光を照射した際に、特定方向への光子の放出が原子数に比例して増大する(超放射)。

共振器モード中でこのような集団励起状態を生成した場合、原子から共振器モードへの単一光子の放出確率を P_{cav} とすると、

$$P_{cav} = \frac{N\eta}{1 + N\eta} \quad (3)$$

と表される。 η は単一原子協働パラメータであり、共振器の定在波の腹の位置で最大値

$$\eta_{max} = \frac{24\mathcal{F}}{\pi k^2 w_0^2} \quad (4)$$

を取る。ただし、 \mathcal{F} は共振器のフィネス、 k は原子の共鳴光の波数、 w_0 は共振器の中心におけるモード径を表す。

3.3 光共振器中の原子集団のリュードベリ集団励起状態を用いた単一光子源

実際に単一光子発生を行う際には、光共振器中に ^{87}Rb 原子気体を磁気光学トラップ(MOT)によって冷却し、捕獲する。さらに光双極子トラップ(ODT)により、原子をリュードベリブロッケード半径以下の領域にトラップする。そこに共振器モードから780 nmの光を入射し(図2)、リュードベリ状態に二光子遷移させる(図3)。このときリュードベリブロッケード効果によって複数原子の励起が阻害されるため、 π パルスを用いて励起することにより、ほぼ確実に1原子のみが励起された状態を作ることが可能となる。そこに480 nmの光を再び入射し脱励起させることで、共振器モードから780 nmの単一光子を取り出すことができると考えられる。

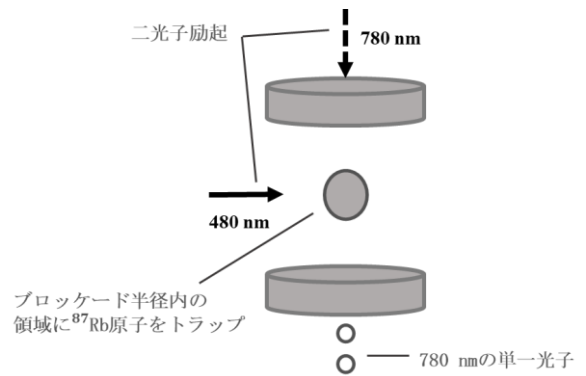


図2 単一光子源概略図

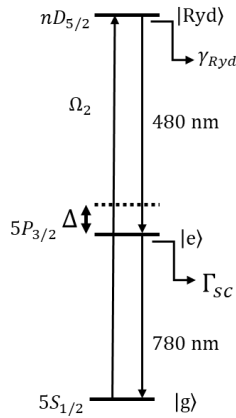


図3 ^{87}Rb のエネルギー準位遷移図

Ω_2 は $|g\rangle \leftrightarrow |Ryd\rangle$ 間の二光子ラビ周波数、 Δ は中間状態からの離調、 $\Gamma_{SC}, \gamma_{Ryd}$ はそれぞれ中間状態および、リュードベリ状態からの散乱レートである。

4 各種パラメータの決定

今回使用する共振器の単一原子協働パラメータは $\eta = 0.346$ [16]であり、光子発生確率の目標を90%とした場合に確保すべき原子数は式(3)より $N = 30$ 個程度と決定される。さらに、cMOTで実現可能な原子密度が $d_{cMOT} \approx 10^{11} / \text{cm}^3$ 程度であることから原子数 N を含むような原子集団の半径を $R \approx 4 \mu\text{m}$ 程度と見積る。ここで、ブロッケード半径は式(1)で表され、 $R_b \propto (n^*)^{25/12}$ でスケーリングされる(図4)。 $\gamma_{Ryd} \approx 100 \text{ kHz}$ であることと $\gamma_{Ryd} \ll \Omega_2$ の条件から $\Omega_2 > 10 \text{ MHz}$ とし、 $2R < R_b$ となる最小の主量子数 n を見積ると、 $n_{min} = 63$ ($R_b \approx 8.4 \mu\text{m}$)となった。

続いて、上記の条件の下でリュードベリ励起に必要な波長480 nm光源のパワーの最小値 P_{min} を見積る。電場 E_{480} 、強度 I_{480} はそれぞれ $E_{480} = \hbar\Omega_C / \mu_{480}$ 、 $I_{480} = c\epsilon_0 E_{480}^2 / 2$ で与えられる。ここで μ_{480} は原子の双極子モーメントであり $\mu_{480} \approx C_D n^{*-3/2}$ ($C_D = 8.475ea_0$; e は電気素量, a_0 はボーア半径)である。また、

ラビ周波数 Ω_C は $\Gamma_{SC} \approx (\Omega_P / \Delta)^2 \gamma \ll \Omega_2$ 及び、 $\Omega_2 = \Omega_P \Omega_C / \Delta > 10 \text{ MHz}$ の二つの条件から $\Omega_C > 25 \text{ MHz}$ となる。ただし、 γ は中間状態からの自然放出レートであり、 $\gamma \approx 6 \text{ MHz}$ である。さらに、ビーム径をブロッケード半径の2倍程度 ($r = 2R_b$)と設定すると、リュードベリ励起用光源のパワーの最小値は $P_{480} = \pi r^2 I_{480} / 2$ より、 $P_{min} = 6.52 \text{ mW}$ と見積られる。

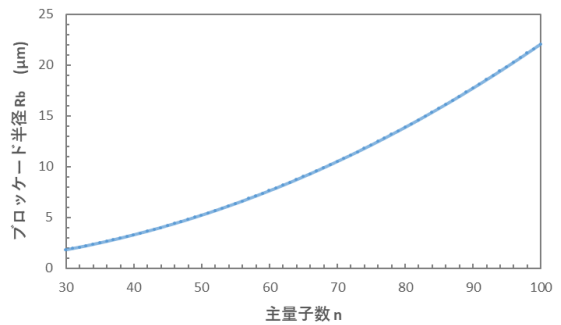


図4 リュードベリブロッケード半径の主量子数依存性

5 リュードベリ励起用光源の作製

^{87}Rb 原子のリュードベリ状態への励起は波長780 nmと480 nmのレーザーを用いた2光子励起により実現される。波長780 nmの光源は、外部共振器型ダイオードレーザー(ECDL)をDoppler-free dichroic atomic vapor laser locking(DAVLL)法[17]により、 ^{87}Rb 原子の $5S_{1/2}|F=2\rangle \rightarrow 5P_{3/2}|F=3\rangle$ 遷移に対して742 kHz程度のゆらぎで周波数安定化することで準備された。また、原子を中間状態からリュードベリ状態に励起させるための波長480 nmのレーザー光は、基本波となるチタンサファイアレーザー(M Squared Lasers Ltd社製 SolsTis Ti:sapphire Laser)を非線形光学結晶(PPKT結晶)に入射させることで第二高調波発生により生成した。このとき、第二高調波発生を行う上で倍波の発生効率を上昇さ

せるために bow-tie cavity を用いた。

実際に測定された倍波のパワーは、基本波が420 mWのとき最大で97 mW、基本波が710 mWのとき190 mWであった(図5)。これらの値は、bow-tie cavity 出射後のミラー反射率および、フィルタ透過率を考慮し、bow-tie cavity 出射直後のパワーに換算した値であり、 $P_{min} = 6.52$ mWを大幅に上回る。また、倍波増強に使用した bow-tie cavity はHansch-Couillaud法[18]による共振器長の安定化を行い(図6)、周波数安定度96.5 kHz程度で安定化されている。

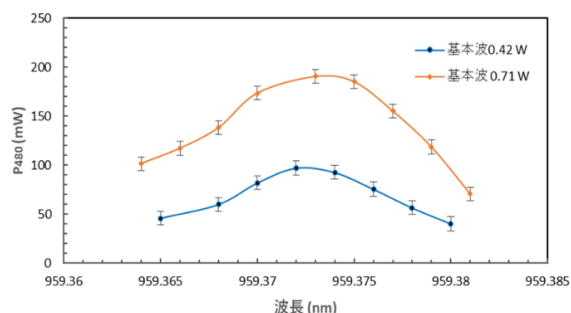


図5 主量子数 $n = 65$ における遷移波長959.373 nm付近でのパワー測定

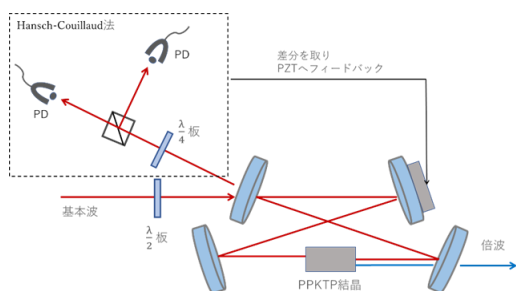


図6 bow-tie cavity による倍波の増強

6 電磁場誘起透明化を利用した

リュードベリ状態の観測

リュードベリ状態の観測には、三準位系において量子干渉効果により引き起こされる電磁場誘起透明化(EIT)[19, 20]を利用する[21,

22]

本研究では、ガスセルを透過したプローブ光をアバランシェフォトダイオード(APD)で観測することで EIT スペクトルを得た(図7)。この際、プローブ光がガスセル中を透過する領域で常にコントロール光が原子に照射されるように、プローブ光のビーム径をコントロール光のビーム径より小さくすることで、S/N よく信号を観測することを目指した。その結果、室温の Rb ガスセル中で、主量子数 $n = 63$ における遷移波長付近にて EIT 信号を観測することができた。(図8)。

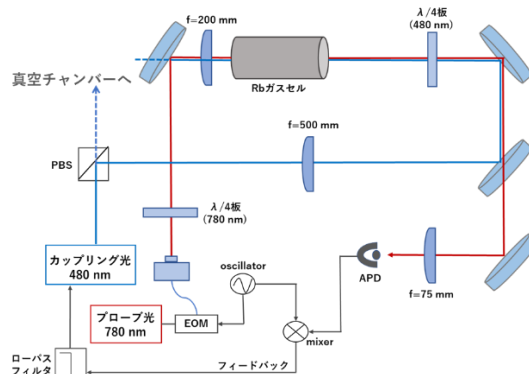


図7 ガスセルを用いた EIT 観測の実験系

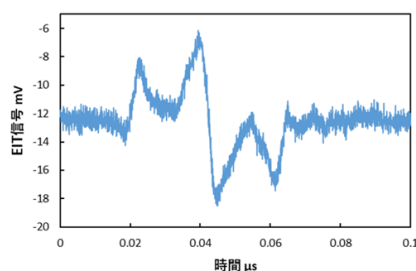


図8 Rb ガスセルを用いて観測した EIT 信号

7 まとめと今後の展望

7.1 まとめ

本研究では、光共振器中の冷却原子のリュードベリ集団励起状態を利用した単一光子発生を実現する上で必要となる各種パラメータ

を明らかにし、それに基づいて⁸⁷Rb原子のリュードベリ励起に使用するレーザーの構築を行った。

単一光子源において高い単一光子発生確率 ($P_{cav} = 90\%$) を得るためには cMOT 中における原子数 $N = 30$ が必要である。この原子数を確保するにはブロッケード半径 $R_{bmin} = 8\ \mu\text{m}$ が必要であり、 $n \geq 63$ のリュードベリ状態を用いることとした。このようなリュードベリ励起にはパワー $P_{min} = 6.52\ \text{mW}$ の波長 $480\ \text{nm}$ 光源が要求される。

波長 $480\ \text{nm}$ 光源は波長 $960\ \text{nm}$ のチタンサファイアレーザーおよび、非線形光学結晶 (PPKTP 結晶) を用いた第二高調波発生により作製した。この際、bow-tie cavity 中に PPKTP 結晶を設置することによりパワーの増強を図った。現在までに、基本波が $420\ \text{mW}$ のとき最大で $97\ \text{mW}$ 、基本波 $710\ \text{mW}$ のとき $190\ \text{mW}$ というパワーが得られた。さらに、Hansch-Couillaud 法により bow-tie cavity の共振器長とレーザー周波数の相対的な安定化を行った。最後に、ladder 型の三準位系における EIT を利用した高励起リュードベリ準位の観測を行った。

7.2 今後の展望

現在までに、原子集団を冷却、捕獲する MOT 用の真空チャンバーの設置および、レーザー光の構築は完了しており、また共振器長 $43.89\ \text{mm}$ 、ミラーの曲率半径 $25\ \text{mm}$ である光共振器の設計が完了し、特性評価を行っているところである。今後は、本研究にて室温のガスセルを用いて得られた EIT 信号により $480\ \text{nm}$ のレーザーの周波数安定化を行う予定である。また、実際に真空中にトラップされた⁸⁷Rb原子集団に周波数安定化されたレ

ーザー光を入射させ、リュードベリ状態の観測を行った上で光共振器を真空中に導入し、高効率な単一光子源の実現を目指す。

参考文献

- [1] R. Feynman, Internat. J. Theoret. Phys. **21**, 467-488 (1982).
- [2] D. Deutsch, Proc. Roy. Soc. London Ser. A **400**, 96-117 (1985).
- [3] C.H.Bennett *et al.*, Theor Comput Sci **560**, 7-11 (1984).
- [4] S. Kko *et al.*, Nature Mater. **5**, 887-892 (2006).
- [5] P. Michle *et al.*, Nature, **406**, 968-970 (2000).
- [6] A. Kuhn *et al.*, Phys. Rev. Lett. **19**, 067901 (2002).
- [7] E. Bimbard *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 033601 (2014).
- [8] Chi Shu *et al.*, Nat. Commun. **7**, 12783 (2016).
- [9] Hui Wang *et al.*, Nat. photonics **13**, 770-775 (2019).
- [10] Y. Wang *et al.*, Nat. Photonics **13**, 346-351 (2019).
- [11] Y. Yu *et al.*, Nature, **578**, 240-245 (2020).
- [12] D. P. Ornelas-Huerta *et al.*, Optica, **7**, 813 (2020).
- [13] Fabian Ripka *et al.*, Science, **362**, 446-449 (2018).
- [14] 中川賢一, Laser Review, 904-909 (2001).
- [15] P Pillet *et al.*, Conf. Ser. **194** 012066 (2009).
- [16] Rolf Heidemann *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 163601 (2007).
- [17] T. Petelski *et al.*, Eur. Phys. J. D, **22**, 279-283 (2003).
- [18] J. M. Boon-Engering *et al.*, Optics Communications, **140**, 285-288(1997).
- [19] K.-J. Boller *et al.*, Phys. Rev. Lett., **66**, 2593-2596 (1991).
- [20] S. E. Harris *et al.*, Phys. Rev. Lett. **64**, 1107 (1990).
- [21] Julio Gea-Banacloche *et al.*, Phys. Rev. A, **51**, 576-584 (1995).
- [22] R. P. Abel *et al.*, Phys. Lett. **110**, 071107, (2009).