# 単一光子発生に向けた<sup>87</sup>Rb原子のRydberg励起

#### 丹治研究室 櫻井明彦

平成31年3月8日

## 1 序論

#### 1.1 光の量子状態の制御の必要性

日常目にする光は古典的な波として理解される が、強度の弱い光の場合、波の性質と粒子として の性質の両方が現れる。このような光が持つ量子 力学的性質を利用する、量子計算[1]や量子計測 [2]、量子リソグラフィー [3] などの技術が世界中 で提案されている。中でも量子暗号通信は実用化 が近い技術で、インターネット等の通信技術が普 及している現代において重要性が増しているもの である。量子暗号通信の1方式として一つの光子 を1量子ビットとして暗号化する鍵を乗せること で安全に暗号鍵を配布するものがある [4]。安全で ある理由は単一光子をそれ以上分割することがで きず、盗聴などにより観測された場合に量子状態 に痕跡を残すためである。この例に見る通り、量 子暗号の実用化や量子情報処理技術の発展のため には単一光子発生は非常に重要なものである。単 一光子発生とは、その中に1個の光子のみが存在 する光パルスを発生させることであり、特に全て のパルスにおいて確実に光子を発生させるオン・ デマンドな単一光子源の実現が望まれている。暗 号鍵生成レートは単一光子発生純度に敏感に依存 性をもつため [5]、オン・デマンドであるかどうか は単一光子源の性能を評価する上で重要な指標と なるからである。

本研究室では cavity QED の系において、中性 原子にも関わらず原子間に非常に大きな相互作用 を生じさせられるリュードベリ原子を用いたオン・ デマンドな単一光子発生を目指している。リュー ドベリ原子を用いることで励起される原子数を制 限できるため、高いレートでの単一光子発生が期 待できる。

#### 1.2 研究の目的

本研究はリュードベリ原子を用いたオン・デマ ンドな単一光子発生の実現を目指した<sup>87</sup>Rb 原子 のリュードベリ状態の観測を目的として行ったも のである。<sup>87</sup>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 2 つのレーザーを用 いた 2 光子励起により実現される。本研究ではま ず波長 960 nm のチタンサファイアレーザーを基 本波とした第 2 高調波発生により発生させた波長 480 nm の光源の作製を行った。さらに 3 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) を利用して<sup>87</sup>Rb 原子のリュー ドベリ状態の観測を行った。

# 2 リュードベリ原子を用いた単一 光子源

本節では、私たちの研究室で実現を目指してい るリュードベリ原子を用いた単一光子源の原理に 付いて説明する。リュードベリ原子が持つ巨大な 双極子モーメントにより近傍の原子のリュードベ リ状態への励起が抑制されるリュードベリブロッ ケイドという現象がある。これを利用することに より、強い励起光に対しても励起される原子の個 数を1個に制限することができる。このようにし て、励起させた1個の原子を脱励起させることで 単一光子を発生させられるため、高効率な単一光 子源の実現が期待できる。まず光共振器中に<sup>87</sup>Rb 原子を3次元的な不均一磁場とレーザー冷却によっ て実現される磁気光学トラップ (MOT) によって 冷却し、捕捉する。さらに光双極子トラップを利 用してブロッケイド半径内に原子をトラップする。 その後 cavity モードに波長 780 nm のレーザー光、 cavity に垂直に波長 480 nm のレーザー光を図 1 のように入射し、図2のように原子を2光子励起 させる。リュードベリブロッケイドにより複数原子 の励起が抑制されるため、十分強い光強度のレー ザー光で励起させることによって、ほぼ確実に1 個の原子のみが励起された状態を作ることができ る。そこに波長 480 nm のレーザー光を入射させ、 脱励起させることで cavity モードから単一光子を 取り出すことができる。これまでに2光子遷移過 程ではなく、基底状態からリュードベリ状態ヘレー ザー光を用いて直接励起させるスキームが提案・実 証されている。しかしながらこのために必要な光 源は一般的に紫外領域になってしまうため、レー ザー光源の高出力化は容易ではない。そのため私 たちの研究室では2光子遷移過程を用いてリュー ドベリ励起を行う。



図 1: 単一光子源概略図



図 2:2 光子励起の遷移図

## 3 リュードベリ励起用光源の開発

#### 3.1 波長 480 nm のレーザー光源の開発

中間状態からリュードベリ状態へ励起させる波 長 480 nm のレーザー光は第 2 高調波発生により 発生させた。第 2 高調波発生は、周波数 $\omega$ の光が 非線形光学材料に入射すると、2 倍の周波数 2 $\omega$ の 光が発生する現象である。本研究では、波長 960 nm 付近での出力がおよそ 1 W、線幅 50 kHz 未満 の M Squared Lasers Ltd の SolsTis Ti:sapphire Laser を用いて、第 2 高調波発生を行い、リュー ドベリ状態へ励起させる波長 480 nm のレーザー 光を発生させた。

基本波をそのまま非線形光学媒質に入射させて も倍波は発生するが、倍波の発生効率をより向上 させるために4枚のミラーで構成される bow-tie cavity を作製した。作製した bow-tie cavity を図 3 に示す。



図 3: Bow-tie cavity 概略図

本実験で用いた非線形光学媒質は PPKTP 結 晶、すなわち、周期反転分極した (periodicallypoled)KTP(KTiOPO<sub>4</sub>:リン酸チタン酸カリウム) である。PPKTP 結晶のサイズは $1 \times 1 \times 10 \text{ mm}^3$ 、 ドメイン幅 6.4  $\mu$ m で両面に 960 nm および 480 nm 用の AR コートが施されている。結晶の温度 はWAVE-LENGTH ELECTRONICS 社の温度コ ントローラー (HTC1500)を用いてペルチエ素子に 流れる電流に対しフィードバック制御を行うこと により安定化させている。倍波のパワーをモニタ しながら温度の最適化を行った。最適化した結果、 結晶の温度は主量子数 n=41 の時 46 °C、n=50 の とき 28.4 °C となった。

#### 3.2 Hansch-Couillaud 法

Cavity 長とレーザー周波数を相対的に安定化さ せる方法として、Hansch-Couillaud 法 [6] がある。 これは cavity 内の結晶の複屈折性により、直交す る偏光成分が cavity に対して異なる共鳴周波数を 持つことを利用して誤差信号を作成し、安定化を 行う方法である。

図4は実際に構築した Hansch-Couillaud 法の 実験系である。この実験系において bow-tie cavity の2枚目のミラーに取り付けたピエゾ素子の電圧 を掃引し、cavity 長を変化させた結果、実際に得 られたエラー信号を図5に示す。また、このエラー 信号を用いて bow-tie cavity の cavity 長を安定化 したときの信号を図6に示す。



図 4: Hansch-Couillaud 法の実験系



図 5: 得られたエラー信号



Cavity 長安定化後に 417 mW の倍波出力が得 られた。このとき基本波の出力は 0.85 W であっ たので変換効率は 577 mW/W<sup>2</sup> と求まった。ただ しこの結果は bow-tie cavity 出射後のミラー反射 率や PD 前のバンドパルフィルタの透過率を考慮 し、bow-tie cavity 出射直後の値に換算したもの である。

変換効率の理論値は bow-tie cavity のフィネス を用いて計算することができる。先行研究 [7] より bow-tie cavity のフィネス F は以下のようになる。

$$F = \frac{\pi \sqrt[4]{R_1 R_2 R_3 R_4}}{1 - \sqrt{R_1 R_2 R_3 R_4}}$$
(3.1)

シングルパスでの倍波の発生効率の理論値は、9.6 mW/W<sup>2</sup> と計算でき、Bow-tie cavity の場合の倍 波の発生効率の理論値は基本波のパワーが  $F/2\pi$  倍になるとして、同様に求めると 1.26 W/W<sup>2</sup> と なった。本実験で得られた倍波の発生効率は理論

値よりは小さい値となったが、今後基本波の周波 数安定化に用いるパワーや単一光子発生に用いる パワーとして十分であるため、このまま用いるこ とにした。発生効率が理論値よりも小さい原因は、 結晶の温度、bow-tie cavity のアライメント、結晶 に入射する際のビーム径が最適化されていなかっ たことが考えられる。

# 4 電磁場誘起透明化を用いたリ ュードベリ状態の観測

#### 4.1 電磁場誘起透明化

電磁場誘起透明化 (electromagnetically induced transparency:EIT) は、3 準位系において2つの2 励起過程が干渉することにより、原子が電磁波を吸収せず透明化したように見える現象である。光 強度の大きいカップリング光を照射すると、量子 干渉効果により光強度の小さいプローブ光の吸収が抑制される。EIT は 1991 年に Λ 型の3 準位系 において初めて観測された [8]。



図 7: Λ型の3準位系

EIT における吸収の抑制は、暗状態 (dark-state) という光の吸収のない安定な状態に起因するため、 暗状態の概念について述べる。図7のような3準 位系のハミルトニアンは  $H = H_0 + H_{int}$  と書け る。この時、 $H_0$  は裸原子のハミルトニアンであ り、 $H_{int}$  は原子と光の相互作用ハミルトニアンで ある。電気双極子近似において、相互作用ハミル トニアン  $H_{int} = \mu \cdot \mathbf{E}$  はラビ周波数  $\Omega = \mu \cdot \mathbf{E}_0/\mathbf{h}$ を用いて表される。この時、 $\mathbf{E}_0$  は電場振幅、 $\mu$  は 遷移電気双極子モーメントである。回転波近似の 下で3準位系の相互作用ハミルトニアンは以下の ように表すことができる。

$$H_{int} = -\frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} 0 & 0 & \Omega_p \\ 0 & -2(\Delta_1 - \Delta_2) & \Omega_c \\ \Omega_p & \Omega_c & -2\Delta_1 \end{bmatrix}$$
(4.1)

 $\Omega_p$ はプローブ光のラビ周波数、 $\Omega_c$ はカップリン グ光のラビ周波数である。また、 $\Delta_1 = \omega_{31} - \omega_p$ と $\Delta_2 = \omega_{32} - \omega_c$ はプローブ光とカップリング光 の角周波数 $\omega_p$ 、 $\omega_c$ とそれぞれの準位間の共鳴周波 数との離調である。式 (4.1)の相互作用ハミルトニ アンの固有状態は混合角 $\theta$ 及び $\varphi$ を用いて表すこ とができる。2 光子共鳴の場合 ( $\Delta = \Delta_1 = \Delta_2$ )、 混合角は以下のようになる。

$$\tan\theta = \frac{\Omega_p}{\Omega_c} \tag{4.2}$$

$$\tan 2\varphi = \frac{\sqrt{\Omega_p^2 + \Omega_c^2}}{\Delta} \tag{4.3}$$

また相互作用ハミルトニアンの固有状態は以下 のように書ける。

 $|a^{+}\rangle = \sin\theta \sin\varphi |1\rangle + \cos\varphi |3\rangle + \cos\theta \sin\varphi |2\rangle$ 

 $|a^0\rangle = \cos\theta |1\rangle - \sin\theta |2\rangle$ 

 $|a^{-}\rangle = \sin\theta\cos\varphi |1\rangle - \sin\varphi |3\rangle + \cos\theta\cos\varphi |2\rangle$  $|a^{\pm}\rangle$ は裸原子状態の全ての要素を含んでいるが、  $|a^{0}\rangle$ は状態  $|3\rangle$  への励起確率及び、その後の自然 放出確率は 0 である状態である。この状態は状態  $|3\rangle$ からの寄与がなく、暗状態と呼ばれる。このよ うにコントロール光の存在により、暗状態という 光の吸収のない安定な状態が実現することからプ ローブ光の吸収が抑制され、透過率が上昇する。

EIT 観測のために図8の光学系を構築した。



ガスセルを透過したプローブ光を APD で観測 することで EIT スペクトルを得る。この時、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 くなるようにすることで、S/N よく信号を観測す ることができる。プローブ光のビーム径がコント ロール光のビーム径より大きい場合、プローブ光 の重なっていない部分では EIT は起こらずノイズ となってしまうためである。

図8の実験系を用いて得られた EIT 信号が図9 である。プローブ光の周波数を原子に対して安定 化させ、コントロール光の周波数を掃引すること で得られたものである。



図 9: 得られた EIT 信号

この時、プローブ光とコントロール光のラビ周波 数は、それぞれ $\Omega_{780}/2\pi = 13.5$  MHz、 $\Omega_{480}/2\pi = 4.3$  MHz であった。EIT 信号の幅は計算より数 MHz 程度と見積もれるので、得られた EIT 信号 の線幅は見積もりと同程度であることが分かる。

# 4.2 EIT 観測に必要なパワーとラビ周 波数の見積もり

EIT 観測に必要なコントロール光のパワーを見 積もる。本実験で用いたリュードベリ準位  $41D_{3/2}$ の双極子モーメント、 $w_{780} = 150 \,\mu\text{m}$ 、 $w_{480} = 500 \,\mu\text{m}$ として見積もったものである。 まず APD のノイズ等価電力 (noise equivalent power:NEP)をより、プローブ光に必要なパワーを 見積もる。本実験で用いる ADP は THORLABS の APD110A/M であり NEP は 0.20 pW/√Hz、 バンド幅は 50 MHz であるから、プローブ光の観 測に最低限必要なパワーは

$$0.20 \,\mathrm{pW}/\sqrt{\mathrm{Hz}} \times \sqrt{50 \,\mathrm{MHz}} = 1.41 \,\mathrm{nW}$$
 (4.4)

となる。さらに S/N をよくするために 10 倍の  $P_{780} = 14.1 \text{ nW}$ のパワーを入射することにする。 その時のラビ周波数  $\Omega_{780}$  は  $I = \frac{c}{n} \frac{1}{2} \epsilon E^2$ 、 $\Omega = -\mu \cdot E/\hbar(\mu:$ 双極子モーメント)を用いると

$$\Omega_{780}/2\pi = 4.5 \,\mathrm{kHz}$$
 (4.5)

となる。EIT による中間状態からの自然放出の抑 制を十分に利用するため $\Omega_{480} \gg \Omega_{780}$ である必要 があるため、 $\Omega_{480}/2\pi = 450$  kHz とすると $P_{480}$  は

$$P_{480} = 12.3 \,\mathrm{mW}$$
 (4.6)

となる。Bow-tie cavity の cavity 長安定化後の倍 波のパワーは 417 mW であるから十分パワーが足 りていることが分かった。

## 4.3 EIT を用いた波長 960 nm のレー ザー光の周波数安定化

この節では EIT を用いた基本波の周波数安定化 [9] について述べる。図 10 に実際に周波数安定化 のために構築した光学系を示す。



図 10: EIT を用いた周波数安定化の光学系

この周波数安定化の方法では FM 分光のロック イン検波によりエラー信号を生成する。プローブ光 が電気光学変調器 (electro-optic modulator:EOM) により位相変調されることでサイドバンドが発生 する。それぞれのサイドバンドとキャリアとビート 信号が変調周波数の信号として検出され、それを 復調することで周波数安定化を行うためのエラー 信号を得ることができる。

実際にロックイン検波により得られた信号を図 9 に示した EIT 信号と合わせて図 11 に示す。



図 11: ロックイン検波により得られた EIT 信号

ロックイン検波により、EIT 信号のピークで急 峻なスロープを持つ信号が得られていることが分 かる。この信号を用いて、基本波の周波数の安定 化を行うことができる。

# 5 まとめと今後の展望

本研究ではリュードベリ原子を用いた単一光子 発生を目指し、単一光子発生に用いる<sup>87</sup>Rb原子を リュードベリ状態にするための光源の開発と高励 起 Rydberg 準位の室温ガスセル中での観測を行っ た。リュードベリ励起させる波長 480 nm の光は 第2高調波発生により発生させた。第2高調波発 生を行う上で倍波の発生効率を向上させるために bow-tie cavity を組んだ。Bow-tie cavity の cavity 長を基本波に対して安定化した後の倍波のパワー は417 mWであり、基本波のパワーが0.85 Wで あることから、倍波の発生効率は577 mW/W<sup>2</sup> と 求まった。これはラビ周波数から求めた EIT 観測 に必要なパワーよりも十分に大きいことを確認し た。次に、リュードベリ準位の観測は3準位系に おいて量子干渉効果により引き起こされる EIT を 利用して行った。室温のガスセルに EOM を用い て周波数変調をかけた波長780 nm と波長480 nm のレーザー光を対向させて入射させることで EIT 信号のロックイン検波を行った。この方法により、 EIT のピークで急峻なスロープを持つエラー信号 を作製した。この信号を用いて、基本波の周波数 安定化を行うことができる。

今後の展望として、実際に単一光子発生に用い る主量子数 n=70 でのリュードベリ状態の観測を 行い、得られた信号を用いて基本波の周波数安定 化を行う。また、真空中にトラップした原子集団 にこのレーザー光を入射させ、EITの観測や高効 率な単一光子源の実現を行う。

# 参考文献

- Michael A. Nielsen et.al., American Journal of Physics, 70, 558-560(2002).
- [2] Vittorio Giovannetti et.al., Nature Photonics, 5, 222-229(2011).
- [3] Agedi N. Boto et.al., Phys. Rev. Lett., 85, 2733-2736(2000).
- [4] C.H. Bennett et.al., Theoretical Computer Science, 560, 7-11(1984).
- [5] 末宗幾夫 et.al., 半導体光源の最前線, 40, 472-477(2011).
- [6] T.W.Hansch et.al., Optics Communications, 35, 441-444(1980).
- [7] HirotakaShimizu et.al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 745, 63-72(2014).
- [8] K.-J. Boller et.al., 66, 2593-2596(1991).
- [9] R. P. Abela et.al., Appl. Phys. Lett., 94, 071107(2009).