Rb 原子の Rydberg 状態への二光子励起用レーザーの周波数安定化

中川研究室 石橋 裕生

1 序論

1.1 研究背景

現在、超伝導体や量子スピン系に代表される量子多体 問題が注目されている。量子多体問題とは量子もつれ状 態にある多数の粒子が存在するときにどのような振る舞 いをするのかという問題である。「量子もつれ状態」と は多数の粒子が1つの粒子のようにふるまう状態のこと を表しており、量子力学的な重ね合わせ状態を持ってい る。現在の量子力学では1粒子の解は容易に求めること ができるが、2粒子以上の原子に対しては様々な近似を 加える必要がある。しかし原子数が3個以上になると近 似を用いたとしても計算が困難になる。これは量子力学 的な重ね合わせ状態を持っている為である。量子多体問 題をスーパーコンピューターを用いて解析する場合、原 子の個数が増加するにしたがって計算に必要な計算機の リソースや計算時間が指数関数的に増加する。そのため 現在運用されているスーパーコンピューター「富岳」の 性能を用いても原子数 50 個以上の量子多体問題の解析 は不可能とされている。

この量子多体系を解析する手法の一つとして「量子シ ミュレーション」が挙げられる。量子シミュレーション は 1982 年にリチャード・ファインマン氏が提唱した [1] もので、人工的に量子力学的な重ね合わせ状態を作り出 すことで計算するという手法である。捕獲した原子に 対して「量子もつれ状態」を再現することで量子多体系 を人工的に作り出すことでシミュレーションを行うとい うものである。この「量子もつれ状態」を再現する為に リュードベリ状態を利用する。

リュードベリ状態とは原子の最外殻電子を主量子数 nの大きい状態(少なくとも n = 10 以上)に遷移して いることを指しており、リュードベリ状態に励起され た原子は強い双極子モーメントが発生する。この強い双 極子モーメントによって励起された原子の近傍ではエネ ルギー準位に変化が生じる。この結果、同じ波長のレー ザーを照射しても励起されなくなるためリュードベリ状 態に励起された原子からある一定距離以内に存在する原 子はリュードベリ状態に励起されない。これを「リュー ドベリ・ブロッケード効果」と呼ぶ。リュードベリ・ブ ロッケード効果を用いることで人工的に量子もつれ状態 を再現することができ、リュードベリ状態に励起されて いるか励起されていないかをスピンの上向き下向きに対 応させることでシミュレーションを行うことができる。

量子シミュレーションにはいくつかの方式が存在して おり、中川研究室では光マイクロトラップアレーを用い た量子シミュレーションを行っている。この方式を用い た量子シミュレーターは量子スピン系のシミュレーショ ンに適している。先行研究では反強磁性体の再現 [2] や 量子スピン液体の観測 [3] が報告されている。またリュー ドベリ状態を用いた量子シミュレーターを用いて量子計 算の実験も報告されている [4]。



図1 リュードベリ・ブロッケードの模式図。シュタル クシフトが発生するリュードベリブロッケード半径 *R_b* より近い原子はリュードベリ状態に励起されず、*R_b*よ りも遠い場合にはリュードベリ状態に励起される。

1.2 研究目的

中川研究室では、10 個以下の原子を利用して量子ス ピン系のシミュレーションを行っている [5,6]。しかし、 原子の時間的に変化するダイナミクスを観測するといっ た本格的な量子シミュレーションを行うことを考慮する 場合、現状のシミュレーション時間 1 µs では不十分で ありコヒーレンス時間を延長する必要がある。またスー パーコンピューターの性能を超えることを考慮すると 少なくとも 50 個以上の原子が必要であり、原子数の増 加についても同様にリュードベリ状態のコヒーレンス時 間を長くする必要がある。これは、量子シミュレーショ

ンに用いる原子はリュードベリ状態に確率的に励起され るため、原子数を増やすと指数関数的に励起確率が低下 する。これを解決するにはコヒーレンス時間を長くする ことでリュードベリ状態への励起確率を上げ、原子数の 増加に対応する為である。これまでリュードベリ励起に 用いていた中間準位 5P3/2 では、自然幅が 6.0 MHz で あることから二光子励起で中間準位のデコヒーレンスが 無視できなくなる。また離調を付けて励起するためには リュードベリ状態への励起にはレーザーパワーが必要と なり、波長 480 nm レーザーではレーザー・パワーが最 大でも 100mW 程度という技術的な制限が存在する。こ れを改善する方法として自然幅 1.4 MHz の準位 6P3/2 を利用した二光子励起を行うという方法が挙げられてい る。この方法を用いることでコヒーレンス時間を改善し たという報告 [7] もされている。また使用している波長 1013 nm レーザーのパワーを大きくすることができる ことから、原子数を増加することが可能になる。現在、 この手法を用いて 256 個の原子を用いて量子シミュレー ションを行ったという報告 [8] がされている。

我々の研究室でも、先行研究 [7] に倣い中間準位 6P_{3/2} を利用してリュードベリ状態に励起することを目標とし ており、波長 420 nm レーザーと波長 1013 nm レーザー の光源の開発を行っている。これまでに干渉フィルター 型の外部共振器型半導体レーザーの開発が完了してい る。本研究では波長 420 nm レーザーと波長 1013 nm レーザーの周波数安定化およびトランスファー共振器の 共振器長の安定化を目標としている。

周波数の安定化には、量子シミュレーションに用いる ことを考慮して2つの観点で安定化を達成する必要があ る。1つ目に、リュードベリ状態への励起を行うため高精 度に周波数の制御をする必要があるということである。 これを「短期安定度」と呼ぶ。短期安定度を高くする為 には、今回目標としているコヒーレンス時間 1 μs から 10 µs の逆数であるフーリエ周波数 100kHz から 1MHz 程度の範囲で周波数雑音を抑制する必要がある。本研究 では、リュードベリ状態は線幅がおおよそ 1kHz 程度で あることを考慮してレーザーの線幅を1kHz以下にする ことを目標としている。2つ目に量子シミュレーション では 1000 回またはそれ以上の繰り返し測定を行うため、 各測定ごとに同じリュードベリ状態に励起する必要があ る。これには長時間の間安定した周波数の制御を行う必 要がある。これを「長期安定度」と呼ぶ。本研究の長期 安定度の目安として、各リュードベリ状態のエネルギー 準位の差を

 $\Delta E/h \simeq 10 \mathrm{MHz}$

とすることで、この 1% 未満である 100 kHz 以下に周波 数揺らぎを抑える必要がある。これを長期安定度の目標 とする。

以上 2 点の安定度を実現するためにトランスファー 共振器を用いて安定化を行う。トランスファー共振器と は 2 つのレーザーを共通の共振器に周波数ロックをする ことで安定化を行う。2 つのレーザーを共通する 1 つの 共振器に入射するとき、2 つのレーザーのそれぞれの縦 モード周波数間隔 ν_b 、 ν_r を式 (1) で表すことができる。

$$\nu_b = \frac{N_1 c}{2L_{\text{cav}}}$$

$$\nu_r = \frac{N_2 c}{2L_{\text{cav}}}$$
(1)

N₁、N₂ はモード次数、L_{cav} は共振器長、c は光速度を表 している。この2つのレーザーの縦モード周波数間隔に 対して、共通する変数である共振器の共振器長 L_{cav} を 安定化することで、2つのレーザーを安定化することが できるというものである。具体的な方法として短期安定 度を達成するために波長 420 nm レーザーと波長 1013 nm レーザーを Pound-Drever-Hall 法 [9] を用いて安定 化、長期安定度を達成するためにトランスファー共振器 の共振器長を変調移行分光法 [10] を用いて安定化する。 この方法はルビジウムの吸収線という絶対周波数に共振 器長を安定化することで長期安定度を達成するという意 図がある。

2 実験系

本研究に用いた実験系は図2の通りである。波長420



図 2 波長 420 nm レーザーと波長 1013 nm レーザー の安定化に用いた実験系

nm、波長 1013 nm レーザーを Pound-Drever-Hall 法を 用いて安定化した。具体的には、共振器からの反射光ス ペクトルと変調信号をミキサーに通すことで誤差信号を 出力する。この誤差信号にフィードバック回路を作成す ることでレーザーの電流源にフィードバックを行うこと で安定化を行う。また安定化に使用するトランスファー 共振器については、波長 420 nm レーザーの変調移行分 光法を用いて安定化を行う。具体的には飽和吸収分光で 観測されるスペクトルと変調信号をミキサーに通すこ とで誤差信号を観測、観測した誤差信号に対してフィー ドバック回路を作成して、共振器長を変化させている PZT ドライバーにフィードバックを行うことで安定化 を行う。

また本研究に用いたトランスファー共振器はスペー サーとして Ultra-Low Expansion Glass(ULE)を用い ており、共振器自体は真空チェンバーの中に設置するこ とで温度の変化や湿度の変化による影響を最大限抑制 している。またトランスファー共振器に使用しているミ ラーの曲率半径は 50 cm、共振器長を 20cm、反射率は 99.9% となっている。このことから共振器のフィネスは 6350、縦モード周波数間隔 (FSR) は 749 MHz となる。 よって本研究におけるレーザー線幅の目標は 750 kHz とした。これは一般的に PDH 法によって安定化された レーザーの線幅はおよそ 10⁻³ 倍になることが言われて いる [11]。本研究の半値全幅目標の場合、安定化後の線 幅は 0.75 kHz 程度となることから、目標となる 1kHz 以下を達成することができることを意図している。

3 実験結果

ここでは、PDH 法を用いた波長 420 nm レーザーと 波長 1013 nm レーザーの周波数安定化および変調移行 分光法を用いたトランスファー共振器の共振器長安定化 について実験結果と考察を示す。

3.1 波長 420 nm レーザーの周波数安定化

波長 420 nm レーザーをトランスファー共振器に入射 して透過光スペクトルの観測を行った。まず 1FSR 分 の掃引して透過光スペクトルの観測し、図 3(a) の通り となった。黒点線で示しているのがそれぞれ TEM₀₀、 TEM_{01} 、 TEM_{02} である。図 3(a)の TEM_{00} 、 TEM_{01} 、 TEM₀₂の電圧値より結合効率を算出した。結合効率は 76.4% となり、レーザー・パワーが TEM₀₀ モードに十分 入っていると考えられる。次に掃引範囲を狭めることで TEM₀₀ モードのみを観測した。観測した結果は図 3(b) 青線の通りとなり、この TEM₀₀ に対してローレンツ型 関数を用いて近似した結果が図 3(b) 緑線である。近似曲 線より TEM₀₀ モードの線幅 (Δν) とフィネスを算出し、 線幅が 0.729MHz、フィネスは 1027 となった。この結 果は周波数安定化を行う為には最低限の性能を共振器が 有しているものと判断される。また図 3(b) より TEM₀₀ モードが近似曲線に対して裾の部分でフィッティングが 悪化している。これはレーザーダイオード (LD) の線幅 が共振器の線幅よりも広いことによるものと考えられ、 実際の共振器の線幅は今回の測定結果よりもう少し狭い ものと考えられる。 続いて Pound-Drever-Hall 法 (PDH 法) に準じて、反射光スペクトルと変調信号をミキサー に通すことで誤差信号を観測した。観測した誤差信号は 図 3(c) 青線の通りとなり、図 3(c) より誤差信号の中心 付近における傾きを算出して 0.3322 V/MHz となった。 算出された誤差信号の傾きから安定化回路を設計して 安定化を行った。安定化後の誤差信号をスペクトラム・ アナライザで観測したのが図 3(d) である。図 3(d) より フーリエ周波数1 MHz における周波数雑音密度は 1815 Hz²/Hz(図中ピンク線)と推定され、これホワイトノイ ズレベルと仮定すると安定化後のレーザーの線幅は5.7 kHz 相当となった。またフーリエ周波数 100 kHz におけ る周波数雑音密度は 245 Hz²/Hz(図中緑線) となり、こ れをホワイトノイズレベルと仮定とするとレーザーの線 幅は 0.769 kHz 相当となった。これは目標の 1 kHz 以下 に達していると言うことができる。しかし先行研究 [12] と比較すると先行研究 [12] ではフーリエ周波数 1 MHz における周波数雑音密度は 10^4 Hz²/Hz (レーザー線幅 3kHz 相当)となっており、フーリエ周波数 100 kHz で は周波数雑音密度が 100 Hz²/Hz(レーザー線幅 0.3kHz 相当)となっている。このことからリュードベリ励起用 光源として利用するためには、1 MHz 以下の低周波数 帯域での周波数雑音密度を抑制する必要がある。また 図 3(d) について 0.2 MHz と 0.6 MHz(黒点線部分) に ついて周波数雑音密度に盛り上がりが見られることか らこの原因を究明する必要がある。最後に図 3(d) より 1.5 MHz(図中黒点線) において周波数雑音密度が増加し ている部分が観測されている。これは発振を意味してお り、制御帯域が 1.5 MHz であることを意味している。こ れは目標としている制御帯域 100 kHz から1 MHz の範 囲で周波数の制御できているということが言える。この ことからも今後1 MHz 以下における周波数雑音を抑制 するためには回路の最適化を行う必要があることが言え る。特に積分回路のゲインを上げるなどして周波数雑音 を抑制する必要がある。

3.2 トランスファー共振器の共振器長安定化

次に、トランスファー共振器の共振器長を変調移行 分光法を用いて安定化を行った。安定化には吸収線 ⁸⁷Rb5S_{1/2}(F=2)-6P_{3/2}(F'=3)を用いた。まず今回用 いた吸収線とそれに対応した誤差信号を図 4(a) に示す。 図 4(a)の誤差信号に対して共振器長の安定化に用いた 吸収線に対応する誤差信号を出力したものが図 4(b)の 青線で示しており、誤差信号の中心における傾き(緑線)



図 3 (a) 波長 420 nm レーザーを 1FSR 分掃引したときの透過光スペクトル, (b) 波長 420 nm レーザーの TEM₀₀ モードの透過光スペクトル (青線) とローレンツ型関数の近似曲線 (緑線), (c) 波長 420 nm レーザーの反 射光から出力される誤差信号 (青線) と誤差信号の傾きを表した直線 (橙線), (d) 波長 420 nm レーザーの周波数 安定化後の誤差信号をスペクトラムアナライザで観測したもの。ピンク線: フーリエ周波数 1 MHz でのホワイト ノイズレベル, 青線: ホワイトノイズレベル 1000 Hz²/Hz, 緑線: フーリエ周波数 1 kHz でのホワイトノイズレベル

を計算して-2.406 mV/MHz となった。算出された誤差 信号の傾きから安定化回路を設計して安定化を行った。 安定化後の誤差信号を 500 秒間にわたって観測したもの が図 4(c) である。図 4(c) について、縦軸は誤差信号を 利用して出力した周波数を表しており、横軸はトリガー 開始からの経過時間を表している。誤差信号が中心から 2 MHz 以内となっていることから飽和吸収スペクトル の線幅の範囲内に安定化がなされていることが示唆され る。また誤差信号の測定結果からオフセットが付いてい ることが分かる。これは安定化回路や飽和吸収スペクト ル自体のオフセットを反映している可能性があり、今後 設計した回路に対してオフセットを調整する機能を追加 する必要がある。図 4(c) の結果をアラン分散 [13] を用 いて解析し、周波数揺らぎを算出したものが図 4(d) であ る。図 4(d) の結果から周波数揺らぎは 17 kHz(203 秒) となった。これは目標としていた安定度 100 kHz 以下と なっており長期安定度を達成していると言える。また図 4(d) の黒点線は √7 の近似関数を表している。近似直線 と比較すると 200 秒程度でドリフトが発生している可能 性がある。今回行った測定は測定時間が 500 秒であるた め、十分な時間を確保できているとは言えない。今後量

子シミュレーションに用いることを考慮して1時間以上 の長時間での測定を行う必要がある。最後に安定化回路 のゲインを十分に上げた際に発振が確認された。発振し たときの波形をオシロスコープを用いて観測したのが図 4(e) である。図 4(e) より発振周波数は 9.0 kHz 程度と 算出された。これは安定化の制御帯域が 9 kHz 以下であ るを意味しており、PZT の設計上の制御帯域 10 kHz に 近い範囲で制御がされていると判断できる。

3.3 波長 1013 nm レーザーの周波数安定化

最後に波長 1013 nm レーザーを PDH 法を用いて周波 数安定化を行った。まず 1FSR 分掃引を行い共振器から の透過光スペクトルを観測し、図 5(a) の通りとなった。 黒点線で示されているのが TEM₀₀、TEM₀₁、TEM₀₂ である。図 5(a) の TEM₀₀、TEM₀₁、TEM₀₂ の電圧値 から結合効率を算出した。結合効率は 85% となり十分 なレーザーパワーが TEM₀₀ モードに入っていることが 言える。続いて掃引範囲を狭めることで TEM₀₀ モード のみの透過光スペクトルを観測し、図 5(b)(青線) の通り となった。図 5(b)(青線) に対してローレンツ型関数に近 似することで半値全幅 ($\Delta \nu$) とフィネスの算出を行い、 半値全幅は 233 kHz、フィネスは 3215 となった。この



図4 (a) 変調移行分光法を用いて出力した誤差信号 (青線) と相当する飽和吸収スペクトル (緑線), (b) 変調移行 分光法を用いて出力した誤差信号 (青線) と中心付近における誤差信号の傾き (緑線), (c) 変調移行分光法を共振 器長を安定化した後の誤差信号, (d)(c) の誤差信号をアラン分散により算出した周波数ゆらぎ (緑線) と $\sqrt{\tau}$ の近 似関数 (黒点線), (e) 発振時の波形である。縦軸が電圧値を表しており、横軸はトリガーからの経過時間を表して いる。

結果は設計上のフィネスの半分程度であるが安定化を行 う為には十分な性能を有していると判断される。また線 幅については目標となる 750 kHz を下回っていること から十分な線幅が得られていると言える。波長 420 nm レーザーに対して波長 1013 nm レーザーの線幅とフィ ネスが向上した原因として、波長 1013 nm レーザーに ついては一度ファイバーに通した上で共振器に入射して おり、ビーム径が整形されていることによりモードマッ チングが向上したからと考えられる。続いて、PDH 法 に準じて反射光スペクトルと変調信号をミキサーに通す ことで誤差信号の算出を行った。出力した誤差信号を観 測したものが図 5(c) 青線である。また誤差信号の中心付 近における傾きを算出し、-1.250 V/MHz となった (橙 線)。これを利用して安定化回路を設計を行う。

4 まとめと今後の展望

4.1 まとめ

本研究では、トランスファー共振器を用いて波長 420 nm レーザーの周波数安定化と波長 1013 nm レーザー の安定化を行った。波長 420 nm レーザーは半値全幅 が 0.729MHz、フィネスは 1027 となった。また周波数 安定化後の誤差信号を観測し、周波数雑音密度が 1815 Hz²/Hz、レーザーの線幅にして 5.7kHz 相当となり、制 御帯域は 1.5 MHz 程度となった。続いて変調移行分光法 を用いてフィードバックを行うことでトランスファー共 振器の共振器長を安定化した。安定化後の周波数揺らぎ は 200 秒で 17kHz となった。最後に波長 1013 nm レー ザーの周波数安定化を行うため線幅とフィネスの算出と 誤差信号の観測を行った。線幅は半値全幅で 233 kHz、 フィネスは 3215 となり、誤差信号の中心付近における 傾きは-1.250 V/MHz となった。

4.2 今後の展望

まずは波長 1013 nm レーザーの周波数安定化を完了 する必要がある。その後2つのレーザーの安定化が完了 したのちに量子シミュレーションに用いることを考慮し て、安定化後少なくとも1時間以上の長時間の周波数揺 らぎを評価する必要がある。また光コム等を用いた絶対 周波数を用いた安定度の評価を行う必要がある。絶対周 波数安定度については実験的な技術上、波長 1013 nm レーザーのみの評価にとどまると考えられる。そして量 子シミュレーションを行うためマイクロトラップアレー に捕獲された冷却原子を用いて、再キャッチ率の測定を 行うことで単一原子がリュードベリ状態へ励起すること を確認する。最終的には、本研究の目的でもあるコヒー



図 5 (a) 波長 1013 nm レーザーを 1FSR 分掃引したときの透過光スペクトル, (b) 波長 1013 nm レーザーの TEM₀₀の透過光スペクトル(青線)とローレンツ型関数の近似曲線(橙線),(c)波長1013 nm レーザーの反射光 スペクトルから出力される誤差信号 (青線)と中心付近における傾き (橙線)

レンス時間が延長できているかどうかを評価する必要が ある。

Rhine Samajdar, Hannes Pichler, Wen Wei Ho, et al. Quantum phases of matter on a 256-atom programmable quantum simulator. Nature, Vol. 595, No. 7866, pp. 227-232, 2021. [9] RWP Drever, John L Hall, FV Kowalski, J_ Hough, GM Ford,

[1] Richard P Feynman, et al. Simulating physics with computers. Int. j. Theor. phys, Vol. 21, No. 6/7, 1982.
 Pascal Scholl, Michael Schuler, Hannah J Williams, Alexan-

参考文献

- der A Eberharter, Daniel Barredo, Kai-Niklas Schymik, Vincent Lienhard, Louis-Paul Henry, Thomas C Lang, Thierry Lahaye, et al. Quantum simulation of 2d antiferromagnets with hundreds of rydberg atoms. Nature, Vol. 595, No. 7866, pp. 233–238, 2021.
- Giulia Semeghini, Harry Levine, Alexander Keesling, Sepehr Ebadi, Tout T Wang, Dolev Bluvstein, Ruben Verresen, Hannes Pichler, Marcin Kalinowski, Rhine Samajdar, et al. Probing topological spin liquids on a programmable quantum simulator. Science, Vol. 374, No. 6572, pp. 1242–1247, 2021. [4] Dolev Bluvstein, Harry Levine, Giulia Semeghini, Tout T
- Wang, Sepehr Ebadi, Marcin Kalinowski, Alexander Keesling, Nishad Maskara, Hannes Pichler, Markus Greiner, et al. A quantum processor based on coherent transport of entangled atom arrays. *Nature*, Vol. 604, No. 7906, pp. 451-456, 2022. [5] 田村光. 光マイクロトラップアレー中の冷却リュードベリ原子を用いた量
- 子シミュレータ. PhD thesis, 電気通信大学, 2018.
- [6] Hikaru Tamura, Tomotake Yamakoshi, and Ken'ichi Nakagawa. Analysis of coherent dynamics of a rydberg-atom quantum simulator. Physical Review A, Vol. 101, No. 4, p. 043421, 2020.
- [7] Hannes Bernien, Sylvain Schwartz, Alexander Keesling, Harry Levine, Ahmed Omran, Hannes Pichler, Soonwon Choi, Alexander S Zibrov, Manuel Endres, Markus Greiner, et al. Probing many-body dynamics on a 51-atom quantum simulator. Nature, Vol. 551, No. 7682, pp. 579–584, 2017. Sepehr Ebadi, Tout T Wang, Harry Levine, Alexander
- Keesling, Giulia Semeghini, Ahmed Omran, Dolev Bluvstein,

- AJ Munley, and H Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. Applied Physics B, Vol. 31, No. 2, pp. 97–105, 1983. RK Raj, D Bloch, JJ Snyder, G Camy, and M Ducloy. High-[10]frequency optically heterodyned saturation spectroscopy via
- resonant degenerate four-wave mixing. Physical Review Letters, Vol. 44, No. 19, p. 1251, 1980. [11] Julius de Hond, Nataly Cisternas, Graham Lochead, and
- NJ Van Druten. Medium-finesse optical cavity for the stabilization of rydberg lasers. Applied optics, Vol. 56, No. 19, pp. 5436-5443, 2017.
- [12] Sylvain De Léséleuc, Daniel Barredo, Vincent Lienhard, Antoine Browaeys, and Thierry Lahaye. Analysis of imperfections in the coherent optical excitation of single atoms to rydberg states. Physical Review A, Vol. 97, No. 5, p. 053803, 2018.
- [13] D.W. Allan. Statistics of atomic frequency standards. Pro-ceedings of the IEEE, Vol. 54, No. 2, pp. 221–230, 1966.