Kobe University Repository : Kernel

PDF issue: 2024-09-12

再帰励起による超自然幅分光法

中山，和之

(Degree)
博士（理学）
(Date of Degree)
2003-09-30
(Date of Publication)
2016-02-18
(Resource Type)
doctoral thesis
(Report Number)
甲2916
(URL)
https://hdl.handle.net/20.500.14094/D1002916

※ 当コンテンツは神戸大学の学術成果です。無断複製・不正使用等を禁じます。著作権法で認められている範囲内で、適切にご利用ください。

博士論文

再帰励起による超自然幅分光法

平成 15 年 9 月

神戸大学大学院自然科学研究科

中山 和之

目 次

第1章　序論

1.1　研究の背景

1960年代初頭にレーザー（light amplification by stimulated emission of radiation）が発明された。レーザーとは、原子や分子による光の誘導放出過程を利用した光の発振、増幅器であり、その出力光は単色性、指向性、収束性、制御性に優れ、エネルギー密度が高いといった性質を持つ。これらの優れた性質を持つレーザー光を用いることにより、分光学の分野に革新がもたらされた。特にそれまでは観測が困難であった非線型光学効果を用いたレーザー分光法の分野が開拓された。以来、レーザー・ラマン分光法、レーザー誘起蛍光分光、飽和吸収分光、偏光分光、二光子分光、量子ビート分光など様々なレーザー分光法が開発され、レーザー分光は物理現象や物質の構造を解明する手段としてなくてはならないものとなった。

物質のエネルギー準位構造の高精度な分光測定は個々の物質について詳細な情報を与え、また、量子電磁力学の検証等、基礎物理の検証に有力な手段を提供する。分光測定で得られる原子のエネルギー準位構造を反映した光学スペクトル線は様々な要因よる広がりを持ち、原子の共鳴周波数の測定精度はスペクトルの線幅によって制限される。スペクトル線の広がりはその物理的な要因により、不均一広がりと均一広がりに分けられ、これらのスペクトル線の広がりをできるだけ狭くして観測する様々なレーザー分光法が開発されてきた。不均一広がりとは、原子、分子等の系のパラメータが統計的な分布を持つことにより生じる線の広がりである。不均一広がりの代表的なものは、気体試料における分子運動によるドップラー広がりである。ドップラー広がりは、原子ビームを用いた手法 [1]、レーザー冷却法 [2]、イオントラップ [3, 4] などにより狭めることができる。また対向するレーザービーム対を用いた分光学的手法 [5, 6] によってもドップラー広がりを取り

除くことができる。一方、均一広がりとは、有限な相互作用時間によって決まる広がりである。時間と周波数の不定性関係に基づく均一広がりを取り除くことは一見不可能なように思えるが、均一広がりの要因が、レーザー光と相互作用する時間が有限なために生じるトランジットタイム広がりである場合、ラムゼイ共鳴法 [7] を用いて実効的な相互作用時間を増加させることによって線幅を狭くすることができる。光学遷移の線幅を決める主要な要因の一つに、真空場のゆらぎによる自然放出で決まる励起状態の寿命がある。この幅は自然幅と呼ばれ、量子力学的に決まる線幅であり、通常の分光測定で得られる最も狭い線幅であると考えられている。自然幅よりも狭いスペクトルを持つ信号を得る分光法として、寿命よりも長くレーザーと相互作用する原子を選択するというアイデアに基づく超自然幅分光法の報告がある [8, 9]。

本研究では、これらの複雑な手法とは異なり、より簡便で容易にスペクトル線幅を狭くすることのできる再帰励起分光法 [10] の基礎研究を行い、これを励起状態の分光に応用した新しいタイプの超自然幅分光法について研究を行った。再帰励起分光の実験概念図を図 1.1 に示す。再帰励起分光法とは、

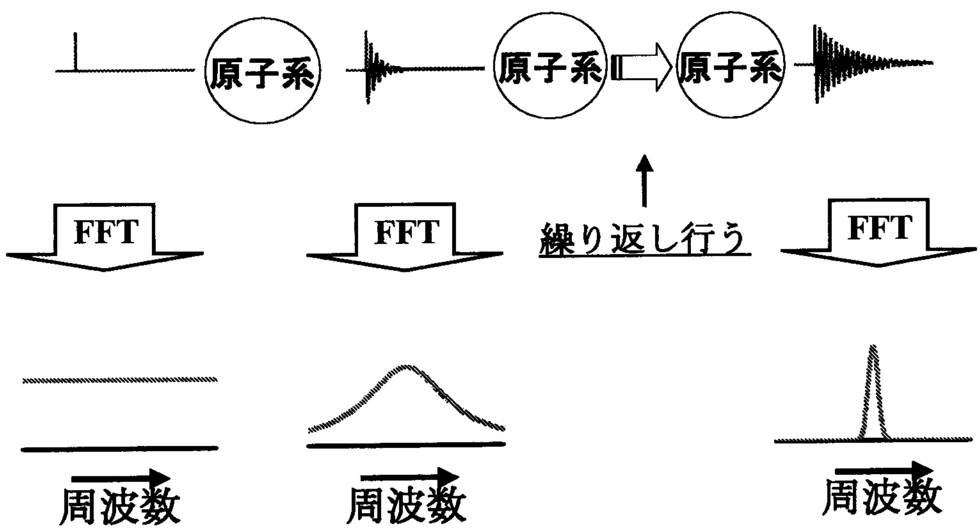

図 1.1: 再帰励起分光の実験概念図

(1) レーザー光に強度変調を加えて周波数成分が周波数に依らず一定な励起光をつくり、原子を励起する。

(2) 励起光に対する原子の応答を観測する。

(3) 応答波形をフーリエ変換し分光スペクトルを得る。

(4) 観測した原子の応答と同じ時間波形を持つように励起光を強度変調する。

(5) 再度、強度変調した励起光を原子に入射させ、その応答を観測する。

(6) 応答波形をフーリエ変換し分光スペクトルを得る。

(7) 観測した原子の応答と同じ時間波形を持つように励起光を強度変調する。

という操作を行い、以後 (5)~(7) の操作を繰り返して行う分光法である。繰り返しの結果得られるスペクトルは、通常の分光法で得られるスペクトルの形を再帰励起の回数だけかけ合わせたものになる。そのため、再帰励起を繰り返し行うにつれてスペクトル幅は狭くなる。この分光法を基底状態の自由誘導減衰信号の観測に適用した例が報告されている [11]。この分光法は、自然幅にも制限されないため、いわゆる超自然幅分光が可能である。この方法を利用すると、大きな自然幅を持つ原子の励起状態のエネルギー準位構造をより精度良く測定できることが期待される。

本研究は、再帰励起分光法を Na 原子、Rb 原子の基底状態および励起状態の副準位に適用し、再帰励起分光による超自然幅分光法の基本的特性を明らかにし、超微細構造準位間の共鳴周波数を精度良く測定することにより、超微細構造定数を精密に決定することを目的としている。

再帰励起分光を用いた超自然幅分光は、以下に述べるような特徴をもつ。

- 周波数分解能が測定時間の逆数のみで決まり、(レーザーの周波数を掃引する分光法のように) レーザー光のスペクトル幅に依らない。これは測定信号が coherent 分光法によって得られる信号であることに起因する。

- 副準位間の coherence を基礎にした分光法であるので、ドップラー広がりに埋もれた微細な副準位構造を分離できる。

- 自然幅よりも狭いスペクトルを得ることができ、より高分解能の精密測定を行うことができる。

- これまで報告されている超自然幅分光法とは異なり、信号強度を犠牲にすること無しに線幅を狭くすることができる。

本研究では、理論的な考察として線型応答理論に基づいて再帰励起分光スペクトルの解析を行う。周波数軸で解析を行った後、副準位 coherence に基づく時間波形の解析を行い、これが周波数軸での解析と等価なスペクトルを与えることを述べる。実験では、Na ランプ等で良く知られている遷移強度の高いアルカリ原子の D 線と呼ばれる遷移を用いる。まず、再帰励起分光法の特性を明らかにする予備的実験として、分裂周波数が小さく信号寿命が長く測定が比較的容易な、Na 原子の D_1 線基底状態 $F = 2$ のゼーマン副準位間のコヒーレンスを観測する実験を行った。実験の結果磁場の不均一性によって決まる幅よりも格段に狭いスペクトルを得て、再帰励起分光法によるスペクトル幅の尖鋭化を示すことができた。次に Rb 原子の基底状態 $^2S_{1/2}$ から励起状態 $^2P_{3/2}$ への遷移である D_2 線を採用し、より測定の困難な高周波で短寿命の励起状態の超微細構造準位間の量子ビート信号に対して再帰励起分光を行った。励起状態の超微細構造定数を決定するために、超微細構造間の共鳴周波数を複数測定する必要がある。そこで Rb 原子の超微細構造準位間の複数の共鳴周波数に対して再帰励起分光による超自然幅分光測定を行い、^{85}Rb、^{87}Rb 原子の励起状態の超微細構造定数を精度良く求めることに成功した。

1.2 本論の構成

第 2 章では、再帰励起分光法の議論に必要な理論的背景について述べる。まず、光学システムの解析に有効な線形定常システムの取り扱いを中心に、線形応答理論の基本概念と数学的概念について述べる。インパルス応答は線形応答理論の重要なポイントであるが、本研究のインパルス応答に相当するものは原子系の副準位 coherence の振動減衰である。まず、線形応答理論による周波数軸での解析に基づいて再帰励起分光法を説明し、周波数スペクトルの解析について述べ、次に

系に誘起される副準位 coherence に時間発展を時間軸上で直接取り扱う方法でこの分光法を解析する。またバックグラウンドとして白色雑音が加わった場合の、スペクトル幅の限界と S/N 比について述べる。

第3章では、試料として用いたNa原子及びRb原子等のアルカリ金属原子の分光学的性質について述べる。アルカリ金属原子は水素に類似したモデルとして取り扱え、系の状態が比較的簡単なハミルトニアンで記述できるため、本研究のような分光法の基礎的過程の研究には適当な試料である。また各種物理定数も詳しく調べられている。アルカリ原子の基底状態 $^2S_{1/2}$ と励起状態 $^2P_{1/2}$、$^2P_{3/2}$ との間の遷移に関するエネルギー準位構造について述べ、ゼーマン分裂、原子気体の持つスペクトル線幅について述べる。

第4章では、optical pumping について説明した後、再帰励起分光の実験方法とNa原子の基底状態のゼーマン副準位に対して行った実験について述べる。実験系は、光源である連続発振の色素レーザー、電気光学変調器による強度変調系、データを取り込む測定系からなっている。光源によって原子系を励起し、測定系で応答波形を取り込み、次段の励起光として強度変調系で再現した応答波形を使う。このプロセスを再帰的に行う。静磁場を加えたNa原子の基底状態 $3^2S_{1/2}$ のゼーマン副準位の coherence 信号について実験を行い、磁場の不均一性によって決まる幅よりも格段に狭いスペクトルを得ることができた。n 回の再帰励起による測定で線幅が $1/\sqrt{n}$ に比例して狭くなることが確認でき、理論の予想と良く一致する結果が得られることを示す。

第5章では、まず量子ビートについて紹介し、再帰励起分光を励起状態の量子ビートに適用した実験について述べる。Rb原子の D_2 線励起状態の超微細構造分裂に対する再帰励起分光の実験を行った結果、coherence 信号の協力的な重ね合わせによる長く伸びたビート信号が観測され、超自然幅を持つスペクトルが得られた。この実験で得られたスペクトルを2章で考察した理論と比較する。スペクトル幅は、再帰励起回数に対して理論から予測される結果とよく一致する振る舞いを示した。その後実験で得られた共鳴周波数から求めた超微細構造定数と過去の文献値との比較を行う。また初回の励起光が短パルスと同様なスペクトルを持つ擬ランダムピンクノイズと呼ばれる有限長、有限帯域における理想的な白色雑音を用いた実験についても述べる。

第6章では、本論の総括と今後の展望について述べる。

第2章　再帰励起分光法の理論

この章では、本研究に必要な理論の基本について述べる。ここではもっぱら再帰励起分光法に特有な理論について述べ、レーザー分光における原子系と光の基本的な取り扱いについては、付録 A で述べる。

巨視的な系に入力を与えたときの系の応答が入力の強さに比例するとみなせる場合、系の入力に対する出力の解析をインパルス応答関数を用いた線形応答理論によって行うことができる。原子系と光の相互作用は一般には非線型現象である。本研究で行われているポンプ-プローブ法自体もポンプの電場に対して 2 次、プローブの電場に対して 1 次の 3 次の非線型分光法 [12, 13] である。入射光の強度を大きくすると原子の応答にあらわな飽和効果が現れて、透過光の強度は入射光の強度に比例しなくなる。本研究の実験においても出力光は飽和の影響を受けている。しかし、インパクト励起に対する原子系の応答という意味では線型現象と見なすことができる。つまり励起光に変調を加え、それに対する透過光の変化を観測する本研究の実験は、線形応答系とみなした解析を行うことができる。この章では、線形応答をする系を解析する線形応答理論、線形定常システム論にもとづいて周波数応答に着目した再帰励起分光法の理論について説明する。また、副準位 coherence に基づく時間軸の波形応答に着目したもう一つの取り扱いによる再帰励起分光法の理論について説明する。

2.1 線形応答理論

本節では線形応答理論で重要な線形定常システム、システムの特性をあらわすインパルス応答関数もしくは周波数応答関数による入出力関数の記述について述べる。

2.1.1 線形定常システム

いまある演算子 $\mathcal{L}$ で記述される系（システム）があり、二つの入力信号（関数）$f_1(t)$ と $f_2(t)$ に対して、それぞれ出力信号（関数）$g_1(t)$ と $g_2(t)$ が得られるとする。

$$\mathcal{L}[f_1(t)] = g_1(t) \tag{2.1}$$

$$\mathcal{L}[f_2(t)] = g_2(t) \tag{2.2}$$

このとき適当な定数 α_1 と α_2 を用いて、加法とスカラー倍に関し、

$$\begin{aligned}
\mathcal{L}[\alpha_1 f_1(t) + \alpha_2 f_2(t)] &= \mathcal{L}[\alpha_1 f_1(t)] + \mathcal{L}[\alpha_2 f_2(t)] \\
&= \alpha_1 \mathcal{L}[f_1(t)] + \alpha_2 \mathcal{L}[f_2(t)] \\
&= \alpha_1 g_1(t) + \alpha_2 g_2(t)
\end{aligned} \tag{2.3}$$

という性質（線形性）をもつとき、演算子 $\mathcal{L}$ で記述される系を線形システム（linear system）と呼ぶ。また入力信号 $f_n(t)$ の時間軸を任意の時間 τ だけずらして入力信号が $f_n(t-\tau)$ としたとき、出力関数 $g_n(t)$ も同様に $g_n(t-\tau)$ となるとき、

$$\mathcal{L}[f_n(t-\tau)] = g_n(t-\tau) \tag{2.4}$$

システムはシフト不変システム（shift-invariant system）と呼ばれる。特に上で述べた時間的現象に対するシフト不変システムは、「定常システム」あるいは「時間不変システム」と呼ぶ。

2.1.2 インパルス応答と線形システム

演算子 $\mathcal{L}$ で記述される線形定常システム

$$\mathcal{L}[f_n(t)] = g_n(t) \tag{2.5}$$

において単位インパルス $\delta(t)$ を加える。単位インパルスは理想的にはデルタ関数である。

$$\mathcal{L}[\delta(t)] = h(t) \tag{2.6}$$

このとき得られる応答をインパルス応答 $h(t)$ と言う。線形定常システムのすべての特性はこのインパルス応答から求めることができる。重ね合わせの原理により入力信号をインパルス列によって表現する。インパルス間隔を T として、

$$f_{nT}(t) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} f_n(t)\delta(t - mT) \tag{2.7}$$

ここで、インパルス間隔 T を無限に細かくした極限状態を考えると、

$$f_n(t) = \int_{-\infty}^{\infty} f_n(\tau)\delta(t - \tau)d\tau \tag{2.8}$$

が得られる。式 (2.8) を式 (2.5) に代入すると、式 (2.9)

$$\begin{aligned} g_n(t) &= \mathcal{L}[\int_{-\infty}^{\infty} f_n(\tau)\delta(t-\tau)d\tau] \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} f_n(\tau)\mathcal{L}[\delta(t-\tau)]d\tau \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} f_n(\tau)h(t-\tau)d\tau \end{aligned} \tag{2.9}$$

が得られる。つまり線形定常システムでは、時刻 t における出力信号（関数）は重ね合わせの原理により、式 (2.9) のようにいろいろな時刻 τ における入力信号をインパルス応答関数との畳み込み積分によって表現できるという性質を持つ。また時刻 t における応答はそれ以前の入力に依存するが、t よりあとの入力には依存しないこと（因果律）により、通常インパルス応答 $h(t)$ には

$$h(t) = 0 \qquad (t < 0) \tag{2.10}$$

のような条件を満たす。また因果律を考慮し、式 (2.9) を式 (2.11) のように積分範囲をかえても同じである。

$$g_n(t) = \int_{-\infty}^{t} f_n(\tau)h(t - \tau)d\tau \tag{2.11}$$

2.1.3 周波数応答

ここでは、系の入出力関係を周波数空間で考える。入力信号 $f_n(t)$、出力信号 $g_n(t)$、及びインパルス応答 $h(t)$ のフーリエ変換を $F_n(\omega)$、$G_n(\omega)$、$H(\omega)$ とすると、

$$F_n(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f_n(t)\exp(-i\omega t)dt \tag{2.12}$$
$$G_n(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} g_n(t)\exp(-i\omega t)dt \tag{2.13}$$
$$H(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} h(t)\exp(-i\omega t)dt \tag{2.14}$$

と表される。(2.9) 式の両辺をフーリエ変換して、(2.12) 式、(2.13) 式、(2.14) 式を用いると

$$\begin{aligned} G_n(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} f_n(\tau)h(t-\tau)d\tau\cdot\exp(-i\omega t)dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} f_n(\tau)[\int_{-\infty}^{\infty} h(t-\tau)\exp(-i\omega t)dt]d\tau \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} f_n(\tau)H(\omega)\exp(-i\omega\tau)d\tau \\ &= F_n(\omega)\cdot H(\omega) \end{aligned} \tag{2.15}$$

の関係式が得られる。$H(\omega)$ は線形定常システムの周波数応答関数と呼ばれている。(2.15) 式より出力関数のスペクトル $G_n(\omega)$ は、入力関数のスペクトル $F_n(\omega)$ と周波数応答関数 $H(\omega)$ の積になる。つまり、周波数応答関数 $H(\omega)$ は、各周波数 ω において入力関数のスペクトル $F_n(\omega)$ に対する系の応答の大きさを与えている。次節では以上のように導入した線型応答理論を用いて再帰励起分光法の理論について述べる。

2.2 再帰励起分光法

再帰励起分光法の概念図を図 2.1 に示す。再帰励起分光における重要な要素は、

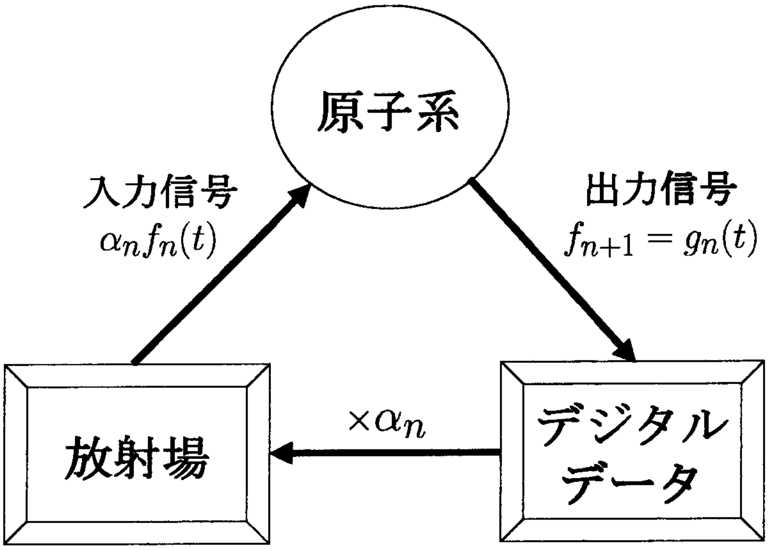

図 2.1: 再帰励起分光法

デジタルデータと放射場 (レーザー) 、そして原子系である。これらを用いて再帰的な測定を行う。まず用意したデジタルデータに基づいて、放射場を発生させる。これを用いて原子系を励起し、原子系の応答を記録する。そしてこの応答波形を用いて次段の測定を行う。この再帰的な過程によって得られる応答波形のスペクトルは原子系の共鳴周波数に収束していき、それゆえ精密な中心周波数測定を行うことができる。ここでは、2.1 節で扱った線形定常システムにおけるフーリエ解析に基づいて、再帰励起分光法の説明を行う。また本実験で得られるスペクトルについても述べる。

2.2.1 再帰励起分光法の原理

原子系を線形定常システムとみなし、はじめの入力信号を $f_0(t)$ とし応答信号を $g_0(t)$ とする。本研究の実験では入力信号はポンプ光であり、応答信号はプローブ光によって検出する。また以下で述べる入力信号の作成は、ポンプ光を強度変調することにより実現する。ここで原子系のインパルス応答 $h(t-\tau)$ を、2.1 節と同

様実数とし、2.1より応答信号$g_0(t)$は

$$g_0(t) = \alpha_0 \int_{-\infty}^{t} f_0(\tau) h(t-\tau) d\tau \tag{2.16}$$

のようにかくことができる。ここでα_0は適当な増幅 (規格化) 係数である。フーリエ変換を行うと、式(2.16)は、

$$G_0(\omega) = F_0(\omega) \cdot H(\omega) \tag{2.17}$$

のようにかけ、パワースペクトルは、

$$|G_0(\omega)|^2 = |F_0(\omega)|^2 |H(\omega)|^2 \tag{2.18}$$

のようになる。得られた応答信号を用いて2回目の入力信号を作成する ($F_n(t) = G_{n-1}(t)$)。n番目の増幅係数をα_nとし、以下周波数スペクトルで考える。2回目の応答信号$G_1(t)$は、

$$\begin{aligned} |G_1(\omega)|^2 &= \alpha_1^2 |F_1(\omega)|^2 |H(\omega)|^2 \\ &= \alpha_1^2 |G_0(\omega)|^2 |H(\omega)|^2 \\ &= \alpha_0^2 \alpha_1^2 |F_0(\omega)|^2 |H(\omega)|^4 \end{aligned} \tag{2.19}$$

となり、初回の入力信号のパワースペクトルに系の周波数応答関数のパワースペクトルの2乗をかけたものに比例する。以下再帰的な操作を行いn番目のデータについて考えると一般的に、n番目の応答信号は

$$|G_{n-1}(\omega)|^2 = |F_0(\omega)|^2 (\prod_{j=0}^{n-1} \alpha_j^2) |H(\omega)|^{2n} \tag{2.20}$$

のように導かれる。初回の入力信号のパワースペクトルが短パルスやホワイトノイズのように周波数に依存せず一定な場合、n回の再帰励起分光によって得られるパワースペクトルは、一度の測定で得られるスペクトルのn乗に比例する。ここで$|H(\omega)|^2$が、半値半幅γを持つローレンツ型の共鳴スペクトルである場合を考えてみる、

$$|H(\omega)|^2 = \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} \tag{2.21}$$

ピーク周波数ω_0付近でテーラー展開を行うと、1回目の応答信号は

$$|G_0(\omega)|^2 \propto |H(\omega)|^2 = 1 - \left(\frac{\omega - \omega_0}{\gamma}\right)^2 + O\left[\left(\frac{\omega - \omega_0}{\gamma}\right)^3\right] \tag{2.22}$$

のように展開される。そして n 回の測定によって n 番目の応答信号は

$$|G_{n-1}(\omega)|^2 \propto |H(\omega)|^{2n} = 1 - n\left(\frac{\omega-\omega_0}{\gamma}\right)^2 + O\left[\left(\frac{\omega-\omega_0}{\gamma}\right)^3\right] \tag{2.23}$$

のようになる。$|G_{(}\omega)|^{2n}$ は、中心周波数が ω_0 のままでスペクトル幅が $\sqrt{1/n}$ に比例して狭くなることを示唆している。

2.2.2 再帰励起分光スペクトル周波数解析

インパルス応答関数を第4章、第5章のように

$$h(t) = \begin{cases} (1 + a\cos\omega_0 t)\mathrm{e}^{-\gamma t} & (t \geq 0) \\ 0 & (t < 0) \end{cases} \tag{2.24}$$

として解析を行う。周波数応答関数は式 (2.24) をフーリエ変換することで求めることができ、

$$\begin{aligned} H(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} h(t)\exp(-i\omega t)dt \\ &= \int_{0}^{\infty} (1 - a\cos\omega_0 t)\exp\left[-(i\omega+\gamma)t\right]dt \\ &= \frac{1}{i\omega+\gamma} + \frac{a}{2}\frac{1}{i(\omega-\omega_0)+\gamma} + \frac{a}{2}\frac{1}{i(\omega+\omega_0)+\gamma} \end{aligned} \tag{2.25}$$

となる。ここで、$\omega, \omega_0 \gg \gamma$ とし、ω_0 の共鳴付近に注目すると、応答波形に対するパワースペクトルの具体的な形が求められる。

$$\begin{aligned} |G_0(\omega)|^2 &\propto |H(\omega)|^2 \\ &\simeq \left|\frac{a}{2}\frac{1}{i(\omega-\omega_0)+\gamma}\right|^2 \end{aligned} \tag{2.26}$$

$$\propto \frac{1}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma^2} \tag{2.27}$$

というローレンツ形のスペクトルが実験で得られることとなる。スペクトルの半値全幅 $\Delta\omega$ は

$$\Delta\omega = 2\gamma \tag{2.28}$$

と表される。これが一回の分光法で得られるスペクトルの幅である。n 回の測定を行ったときのパワースペクトルは、式 (2.20) より

$$|G_{n-1}(\omega)|^2 \propto |H(\omega)|^{2n}$$

$$\propto \left(\frac{1}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma^2}\right)^n \tag{2.29}$$

となる。このスペクトルの幅 $\Delta\omega$ は、この場合具体的な $|H(\omega)|^2$ の関数形がわかっているので、

$$\left(\frac{1}{(\Delta\omega/2)^2+\gamma^2}\right)^n = \frac{1}{2} \tag{2.30}$$

より、

$$\frac{\Delta\omega}{2\gamma} = \sqrt{2^{1/n}-1} \tag{2.31}$$

で表される。n が十分大きいときには

$$\frac{\Delta\omega}{2\gamma} \simeq \sqrt{\frac{1}{n}\log 2} \tag{2.32}$$

と近似できる。よって中心周波数を中心として $\sqrt{1/n}$ に比例してスペクトル幅が狭くなり、寿命で制限されるスペクトル幅を持つ励起状態においても、超微細構造分裂の大きさを精度良く測定できることが期待される。

2.2.3 時間波形解析

ここでは、再帰励起分光法における副準位 cohernce (付録 A) の時間発展について述べる。単パルスを用いる代わりに周期的なパルス列を用いた高分解能な同期量子ビート分光の報告がある [14, 15]。これは量子ビートの重ね合わせとして信号を得る方法で、副準位間の共鳴周波数がパルス列の繰り返し周波数の整数倍に等しいとき、副準位 coherence が共鳴的に増大することを利用した分光法である。任意の周期性を持つ励起光では、系に誘起された副準位 coherence は干渉の結果強めあったり打ち消しあったりする。ところが本実験のように、単パルスによって得られた coherence の周波数と一致した信号を用いて原子系を励起すると、励起光の周期性が原子の coherence の周波数と完全に一致しているため、共鳴的な増大が起こる。これを再帰的に繰り返せば、多段階的に共鳴の増大が起こると考えられる。

これを $|1\rangle$ と $|2\rangle$ 副準位、$|3\rangle$ を光学遷移で結ばれた準位とする 3 準位系のモデルで説明する。単一パルスによって原子の固有状態 $\{|2>, |1>, |0>\}$ の副準位 coherence ρ_{21} は、$\rho_{21}(0) = \rho_{12}^{*}(0) = \epsilon$ のようになる。ここで ϵ は 1 より十分小さい量である。副準位間隔を ω_0、緩和時間を γ とすると、インパクト励起後の coherence は、

$$\rho_{21}(t) = \rho_{12}^{*}(t) = \epsilon \exp[-(i\omega_0 + \gamma)t] \tag{2.33}$$

のように書くことができる。副準位 coherence を光学的に検出する場合、測定方法によって coherence の実部や虚部を反映する信号を得ることができる。ここでは、測定によって実部の測定を行ったとする。

$$\begin{aligned} g_0(t) &= \alpha_0 h(t) \\ h(t) &= K\,Re[\rho_{21}(t)] = \begin{cases} K\epsilon \cos\omega_0 t \exp(-\gamma t) & (t \geq 0) \\ 0 & (t < 0) \end{cases} \end{aligned} \tag{2.34}$$

ここで K は検出器などによって決まる比例係数である。線型応答理論により i 回目の出力 $g_i(t)$ は i 回目の入力 $f_i(t)$ とインパルス応答関数 $h(t)$ との畳み込みで書くことができる。

$$g_i(t) = \alpha_i \int_{-\infty}^{t} f_i(\tau)\, h(t-\tau) \mathrm{d}\tau \tag{2.35}$$

2 回目の応答 $g_1(t)$ は

$$\begin{aligned} g_1(t) &= \alpha_1 \int_{-\infty}^{t} f_1(\tau)\, h(t-\tau)\mathrm{d}\tau = \int_{-\infty}^{t} \alpha_1 g_0(\tau)\, h(t-\tau)\mathrm{d}\tau \\ &= 2\alpha_0\alpha_1 \left(\frac{K\epsilon}{2}\right)^2 t\, \cos\omega_0 t\, \exp(-\gamma t) \end{aligned} \tag{2.36}$$

となる。計算では信号に大きく寄与する共鳴項だけを残した。式 (2.36) における因子 t は実効的な coherence 時間が長くなり、ビートが長く伸びることを示唆する。この計算を繰り返し行うことにより、n 回目の応答 $g_{n-1}(t)$ は

$$g_{n-1}(t) = \begin{cases} 2\left(\prod_{j=0}^{n-1} \alpha_j\right) \left(\frac{K\epsilon}{2}\right)^n \frac{t^{n-1}}{(n-1)!} \cos\, \omega_0 t\, \exp(-\gamma t) & (t \geq 0) \\ 0 & (t < 0) \end{cases} \tag{2.37}$$

となり、coherence 時間は再帰励起回数が n を増加させると因子 t^{n-1} に比例して長くなることがわかる。そのため吸収率または屈折率などの時間変化を測定すると強度の振動の減衰はなだらかになり、通常自然幅に制限される分光法より狭いスペクトル幅が得られ、より高分解能な分光測定を行うことができる。また、n 回の再帰励起によって得られるスペクトル R_{n-1} は、$\omega, \omega_0 \gg \gamma$ とし、$\omega = \omega_0$ 付近に注目すると式 (2.37) より

$$\begin{aligned} R_{n-1}(\omega) &\propto \int_{0}^{\infty} t^{n-1}\, \cos\omega_0 t\, \exp(-\gamma t)\, \exp[i\omega t]\mathrm{d}t \\ &\propto \left\{\frac{1}{i(\omega-\omega_0)-\gamma}\right\}^n \end{aligned} \tag{2.38}$$

$$|R_{n-1}(\omega)|^2 \propto \left(\frac{1}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma^2}\right)^n \tag{2.39}$$

のように計算され、パワースペクトルは

$$|R_{n-1}(\omega)|^2 \propto \left(\frac{1}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma^2}\right)^n \tag{2.40}$$

となり式 (2.29) の周波数応答から考えた再帰励起分光のスペクトルと一致する。上式に基づいてシミュレーションしたものを図 2.2 に示す。このように副準位 coherence を再帰励起分光に適用することは、coherence 時間の共鳴的な増大という現象であることがわかる。この分光法は、coherence の協力的な干渉効果を利用した、磁気共鳴 (ラーモア再差運動)[16] での実験例や前述の同期量子ビート分光 [14, 15] などに適用することができる。

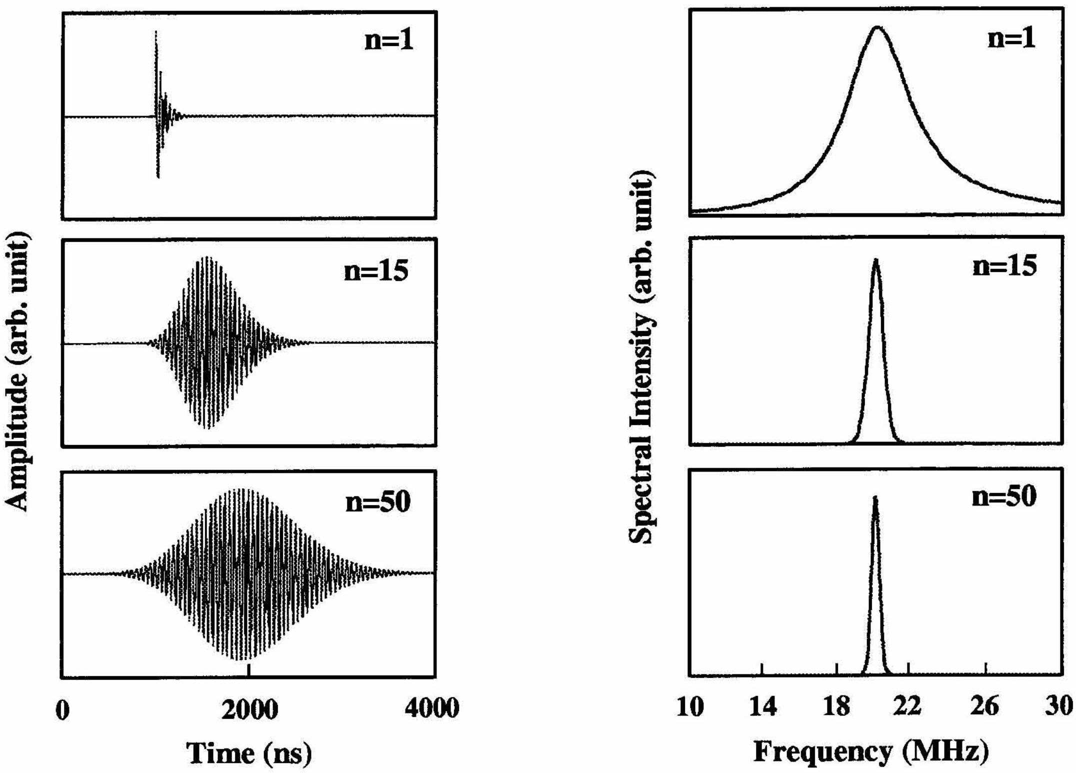

図 2.2: 再帰励起分光で得られる波形とそのスペクトルのシミュレーション。原子の中心周波数は 20MHz、緩和レート γ は 4.2MHz で行った。

2.2.4 線幅の限界と S/N 比

本分光法によって、スペクトル幅をどこまで狭くできるかという問題がある。線幅を制限する要因として、大きく分けて 2 種類の要因が考えられる。1 つは物理系の時間的な揺らぎによるもので、例として磁場の時間的な揺らぎなどがある。もしくは物質系との相互作用による応答の飽和効果なども考えられる。これらの評価は一般には難しいが、逆に最終的に得られたスペクトルの幅からこれらの物理系の揺らぎの大きさをみつもる方法として利用できる。もう 1 つは測定値に加わる加算的な雑音が考えられる。再帰励起分光法を用いるとスペクトルが尖鋭化される。しかし測定値にバックグラウンドとして白色の雑音が加わわると、次段の励起ではその成分から新たに応答信号が生じる。このような状況で再帰励起分光を行うと線幅にある限界が生じることになる。

ここでは白色雑音が毎回の測定後に加算的に加わり、一般の波形で再帰励起分光を行った場合のスペクトルの幅の限度と S/N 比について考える。増幅係数 α_n を用いることにより、$n+1$ 番目の入力スペクトルと n 番目の入力スペクトルは

$$F_{n+1}(\omega) = \alpha_n[H(\omega) + H^*(-\omega)]F_n(\omega) + B_n(\omega) \tag{2.41}$$

と書くことができる。ここで $B_n(\omega)$ は白色雑音のスペクトル成分を表す。式 (2.41) の絶対値の 2 乗を取ると、

$$|F_{n+1}(\omega)|^2 = |\alpha_n F_n(\omega) H(\omega)|^2 + |B_n(\omega)|^2 + 2\mathrm{Re}[\alpha_n F_n(\omega) H(\omega) B_n(\omega)^*] \tag{2.42}$$

と書くことができる。さらに表式を簡単にするため、アンサンブル平均を取る。ここで α_n、F_n、$B_n(\omega)^*$ はお互いに相関が無いので、第 3 項は消え、

$$\langle |F_{n+1}(\omega)|^2 \rangle = \langle |\alpha_n|^2 \rangle \langle |F_n(\omega)|^2 \rangle |H(\omega)|^2 + B^2 \tag{2.43}$$

と書くことができる。ここで $\langle\rangle$ はアンサンブル平均を表し、$B^2 = \langle |B_n(\omega)|^2 \rangle$ はバックグラウンドの白色雑音のパワースペクトル密度である。逐次的に式 (2.43) を解けば、$n+1$ 番目の入力もしくは n 番目の応答が求まる。増幅係数 α_n を大きく取れば、大きい信号が得られるが非線型効果も顕著になる。そこで毎回の増幅

係数を決める一つの条件として、原子が吸収する放射場のエネルギーが毎回の再帰励起分光測定で等しくなるように規格化する。

$$S = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |\alpha_n F_n(\omega)|^2 |H(\omega)|^2 \tag{2.44}$$

この条件は、磁気共鳴法 [17] などの磁場、電場の一次量を摂動量とする実験では妥当である。$H(\omega)$ をローレンツ型として、

$$H(\omega) = \frac{\Delta\omega_0}{(\omega - \omega_0) - i\Delta\omega_0} \tag{2.45}$$

とし、さらに信号部が吸収するエネルギーとノイズ部が吸収するエネルギーの比 β を

$$\beta = \frac{\langle|\alpha_n|^2\rangle \displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \langle|F_n(\omega)|^2\rangle |H(\omega)|^2}{\displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega B^2 |H(\omega)|^2} = \frac{S}{\Delta\omega_0 \pi B^2} \tag{2.46}$$

のように定義する。式 (2.43) を再帰的に用いることにより、n 番目のパワースペクトルのアンサンブル平均は、

$$\langle|F_n(\omega)|^2\rangle = \left(\prod_{k=0}^{n-1} \langle|\alpha_k|^2\rangle\right) \left[|F_0(\omega) H(\omega)^n|^2 + B^2 \sum_{k=0}^{n-1} \frac{|H(\omega)|^{2(n-k-1)}}{\displaystyle\prod_{j=0}^{k} \langle|\alpha_j|^2\rangle} \right] \tag{2.47}$$

のようになる。$\langle|F_n(\omega)|^2\rangle$ を求めるためには、$\langle|\alpha_n(\omega)|^2\rangle$ の n に対する依存性を求める必要があり、これは式 (2.44) の中身を再帰的に展開することにより、

$$\begin{aligned}
\langle|\alpha_n|^2\rangle &= \frac{S}{\displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \langle|F_n(\omega)|^2\rangle |H(\omega)|^2} \\
&= \frac{S}{\left(\displaystyle\prod_{k=0}^{n-1} \langle|\alpha_k|^2\rangle\right) \left[|F_0(\omega)|^2 \displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |H(\omega)|^{2(n+1)} + B^2 \sum_{k=0}^{n-1} \frac{\displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |H(\omega)|^{2(n-k)}}{\displaystyle\prod_{j=0}^{k} \langle|\alpha_j|^2\rangle} \right]} \\
&= \frac{\beta}{\left(\displaystyle\prod_{k=0}^{n-1} \langle|\alpha_k|^2\rangle\right) \left[\beta \dfrac{(2n-1)!!}{(2n)!!} + \displaystyle\sum_{k=0}^{n-1} \frac{\dfrac{\{2(n-k)-3\}!!}{\{2(n-k)-2\}!!}}{\displaystyle\prod_{j=0}^{k} \langle|\alpha_j|^2\rangle} \right]}
\end{aligned} \tag{2.48}$$

のように書くことができる。ここでローレンツ分布の積分公式を用いた。

$$\begin{aligned}\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |H(\omega)|^{2m} &= \Delta\omega_0\pi\frac{(2m-3)!!}{(2m-2)!!} \\ &= \Delta\omega_0\pi\frac{(2m-3)(2m-5)\cdots5\cdot3\cdot1}{(2m-2)(2m-4)\cdots6\cdot4\cdot2}\end{aligned} \tag{2.49}$$

式 (2.48) を変形するにあたり初期条件として $\alpha_0 = 1$、$|F_0(\omega)|^2 = 1$ を採用し

$$|\alpha_0 F_0(\omega)|^2 = \frac{S}{\Delta\omega_0\pi} \tag{2.50}$$

とした。最終的なスペクトル幅 $\Delta\omega_\infty$ は、再帰励起回数 $n \geq \beta^2$ で $1/\beta$ に収束することを数値的に示すことができる [10]。アンサンブル平均値の周りのスペクトルの揺らぎ量は、

$$\sqrt{\langle(|F_n(\omega)|^2 - \langle|F_n(\omega)|^2\rangle)^2\rangle} = \left(\prod_{k=0}^{n-1}\langle|\alpha_k|^2\rangle\right) B^2\sqrt{\frac{2|F_0(\omega)H(\omega)^n|^2}{B^2}\xi + \xi^2} \tag{2.51}$$

と定義される。ここで ξ は

$$\xi = \sum_{k=0}^{n-1}\frac{|H(\omega)|^{2(n-k-1)}}{\prod_{j=0}^{k}\langle|\alpha_j|^2\rangle} \tag{2.52}$$

のように定義される量である。スペクトルの 4 次の量のアンサンブル平均 $\langle|F_n(\omega)|^4\rangle$ を求めるため式 (2.41) に戻って計算を行った。これを用いて再帰励起分光法によって得られる S/N 比は

$$\begin{aligned}S/N(n,\omega) &= \frac{\langle|F_n(\omega)|^2\rangle}{\sqrt{\langle(|F_n(\omega)|^2 - \langle|F_n(\omega)|^2\rangle)^2\rangle}} \\ &= \frac{\beta + \xi}{\sqrt{2\beta|H(\omega)|^{2n}\xi + \xi^2}}\end{aligned} \tag{2.53}$$

のように書くことができる。式 (2.44) の規格化条件のもと、再帰励起分光法の S/N 比は、$n^{-\frac{1}{4}}$ に比例して劣化することが式 (2.53) から数値的に示される。S/N 比は $n \geq \beta^2$ のとき漸近的に 1 に近づく。それゆえ β^2 以上の回数測定することは有効ではない。一般に n 個のデータの平均によって 測定値の S/N 比が $n^{1/2}$ に比例して改善されるのは良く知られている。n 回の再帰励起分光法によって得られるスペクトルが単独のスペクトルを n かけ合わせたものであることを考えると、n 回

目の再帰励起分光法スペクトルを $1/n$ 乗すれば単独の測定で得られるスペクトルと比較できることがわかる。信号スペクトルとバックグラウンドの雑音スペクトルの比 x が十分に小さい、つまり十分良い S/N 比を持つ再帰励起分光スペクトルの場合、

$$
\begin{aligned}
(1+x)^{1/n} &\approx 1+x/n \\
&= 1+\frac{1}{n\cdot S/N(n^{-1/4})}=1+\frac{1}{S/N(n^{3/4})}
\end{aligned}
\tag{2.54}
$$

となり、 S/N 比が 測定回数 n の 3/4 乗に比例して改善されることがわかる。これは通常の平均操作による S/N 比 の改善にくらべ $n^{1/4}$ 優れている。

本研究では、初回の変調波形としてパルスを用い、高い S/N 比のもとで実験を行ったため、ここで示した S/N 比の改善効果は確認されていない。しかし将来的には第 5 章で述べるようなノイズ光を初回の励起光として用い、適当な S/N 比で実験を行うことにより、実験的な確認が可能である。

第3章　アルカリ原子の分光学的性質

本研究は、再帰励起分光法を励起状態に適用して、超自然幅分光法の基礎的研究を行ったものである。そのため実験には、構造が単純で分光学的性質の良く調べられているアルカリ原子、Na 原子及び Rb 原子を試料として用いた。Na 原子と Rb 原子は、D 線の波長が波長可変レーザーを容易に同調できる波長（500 ~ 800 nm）にあり、また、室温からそれほど高くない温度 (350 ~ 400K) で実験に十分な原子数密度が得られるなど、実験的にも好都合な試料である。本章では、Na 原子や Rb 原子等のアルカリ金属原子のエネルギー準位構造、超微細構造定数、スペクトル線の線幅について述べる。

3.1 Rb D 線のエネルギー準位構造

アルカリ金属原子は、電子配置が安定な希ガス型電子配置の外側に一個の s 電子加わったものである。単体は、典型的な金属性を示し、銀白色でやわらかく、電気や熱を良く導く。Na 原子は、融点が 97.7 ℃、沸点が 890 ℃であり、自然界においては安定な同位体 ^{23}Na として存在する。Rb 原子は、融点が 311.5K、沸点が 969K であり、自然界においては二つの安定な同位体 ^{85}Rb と ^{87}Rb として存在する。その存在比は 72.2:27.8 である。Na 原子、Rb 原子は気体状態では、その大部分は一原子分子となっている。アルカリ金属の原子構造は水素原子に類似しており、原子系を比較的簡単なハミルトニアンで記述することができる。

ここではアルカリ金属の典型的なエネルギー準位構造を、Rb 原子を例に示す。図 3.1 にエネルギー準位を示す。エネルギー準位は、$^{2S+1}\mathrm{L}_J$ と表記している。ここで L は、電子系の軌道角運動量を表し、S は電子系のスピン、J は電子系の全角運動量を表す。アルカリ原子では電子系の全軌道角運動量 $\mathbf{L}$ と電子系の全スピン角運動量 $\mathbf{S}$ との間の電子スピン・軌道相互作用が存在し、その相互作用ハミルトニアン $\mathcal{H}_{fs}$ は、h をプランク定数として

$$\mathcal{H}_{fs} = h\xi(\mathbf{S}\cdot\mathbf{L}) \tag{3.1}$$

と書くことができる。ここで電子の全角運動量演算子 $\mathbf{J}=\mathbf{L}+\mathbf{S}$ を導入する。$\mathbf{J}^2$、$\mathbf{J_z}$(さらに $\mathbf{L}^2$、$\mathbf{S}^2$) は、$\mathcal{H}_{fs}$ に対して運動の恒量となっており、J、J_z、L、S は良い量子数である。全系のエネルギーは、電子の全角運動量 J とその磁気量子数 M_J で定まる状態を基底にして、固有値方程式を解くことによって求めることができる。ここで $\mathbf{J}^2$、$\mathbf{J_z}$ の同時固有状態を $|J, M_J\rangle$ とする。$\mathcal{H}_{fs}$ の相互作用エネルギーは、

$$\begin{aligned}\langle J, M_J|\mathcal{H}_{fs}|J, M_J\rangle &= h\xi\langle J, M_J|\mathbf{S}\cdot\mathbf{L}|J, M_J\rangle \\ &= h\frac{\xi}{2}\langle J, M_J|\mathbf{J}^2-\mathbf{L}^2-\mathbf{S}^2|J, M_J\rangle \\ &= h\frac{\xi}{2}\left(J(J+1)-L(L+1)-S(S+1)\right) \qquad (3.2)\end{aligned}$$

のようになる。この相互作用エネルギーによって特徴付けられる分裂を微細構造分裂と呼ぶ。Rb 原子の基底状態は $5^2\mathrm{S}_{1/2}$ 状態 $(L=0, S=1/2)$ であり、微細構造分裂はない。励起状態である P 状態は $\mathbf{L}$ と $\mathbf{S}$ の結合の仕方により、第一励起状態

は $5^2P_{1/2}$ 状態 ($J = 1/2$)、第二励起状態は $5^2P_{3/2}$ 状態 ($J = 3/2$) と二つ存在する。基底状態から第一励起状態 $5^2P_{1/2}$ への遷移を D_1 線、第二励起状態 $5^2P_{3/2}$ への遷移を D_2 線と呼び、2 つをまとめて D 線と呼んでいる。Rb 原子 D 線の励起状態の微細構造分裂は、約 238.7 cm^{-1}、Na 原子 D 線の励起状態の微細構造分裂は、約 17.3 cm^{-1} 程度となる

さらに原子核は核スピン $\mathbf{I}$ を持っており、核スピン $\mathbf{I}$ と電子系の全角運動量 $\mathbf{J}$ との間に超微細相互作用が存在する。超微細相互作用のハミルトニアン $\mathcal{H}_{hfs}$ は、

$$\mathcal{H}_{hfs} = hA(\mathbf{I}\cdot\mathbf{J}) + hB\left[\frac{6\,(\mathbf{I}\cdot\mathbf{J})^2 + 3\,(\mathbf{I}\cdot\mathbf{J}) - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)}\right] \tag{3.3}$$

のように記述することができる [27]。ここで A は磁気双極子相互作用定数、B は電気四重極相互作用定数である。全角運動量 $\mathbf{F} = \mathbf{J} + \mathbf{I}$ を導入すると、微細構造のときと同様の論理で、F、M_F は良い量子数であり、同時固有状態 $|F, M_F\rangle$ を用いて $\mathcal{H}_{hfs}$ の相互作用エネルギーは、

$$\langle F, M_F|\mathcal{H}_{hfs}|F, M_F\rangle = hA\cdot K + hB\cdot\frac{6K^2 + 3K - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \tag{3.4}$$

となる。ここで、

$$K = \frac{F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)}{2} \tag{3.5}$$

である。全角運動量 $\mathbf{F}$ で示されるエネルギー準位は、この相互作用エネルギーにより細かく分裂する。これを超微細構造と呼ぶ。全角運動量 $\mathbf{F}$ は、$\mathbf{I}$ と $\mathbf{J}$ の結合により

$$F = I + J, I + J - 1, ..., |I - J| \tag{3.6}$$

の値をとる。^{85}Rb と ^{87}Rb の核スピン I はそれぞれ 5/2、3/2 である。D_1 線では、電子系の全角運動量 J は基底状態、励起状態とも $J = 1/2$ であるため、原子全体の全角運動量は基底状態、励起状態ともに ^{85}Rb が $F = 3, 2$、^{87}Rb が $F = 2, 1$ と準位が分裂する。D_2 線の場合まず基底状態は 、^{85}Rb が $F = 3, 2$、^{87}Rb が $F = 2, 1$ と分裂し、励起状態は ^{85}Rb が $F = 4, 3, 2, 1$、^{87}Rb が $F = 3, 2, 1, 0$ と準位が四つに分離する。また ^{23}Na の核スピン I は 3/2 であり、図 3.2 のように ^{87}Rb と同一のエネルギー準位構造をとる。次節では、^{87}Rb、^{85}Rb 原子の D_2 線の励起状態の超微細構造定数と分光測定の関係と過去の文献値について触れる。

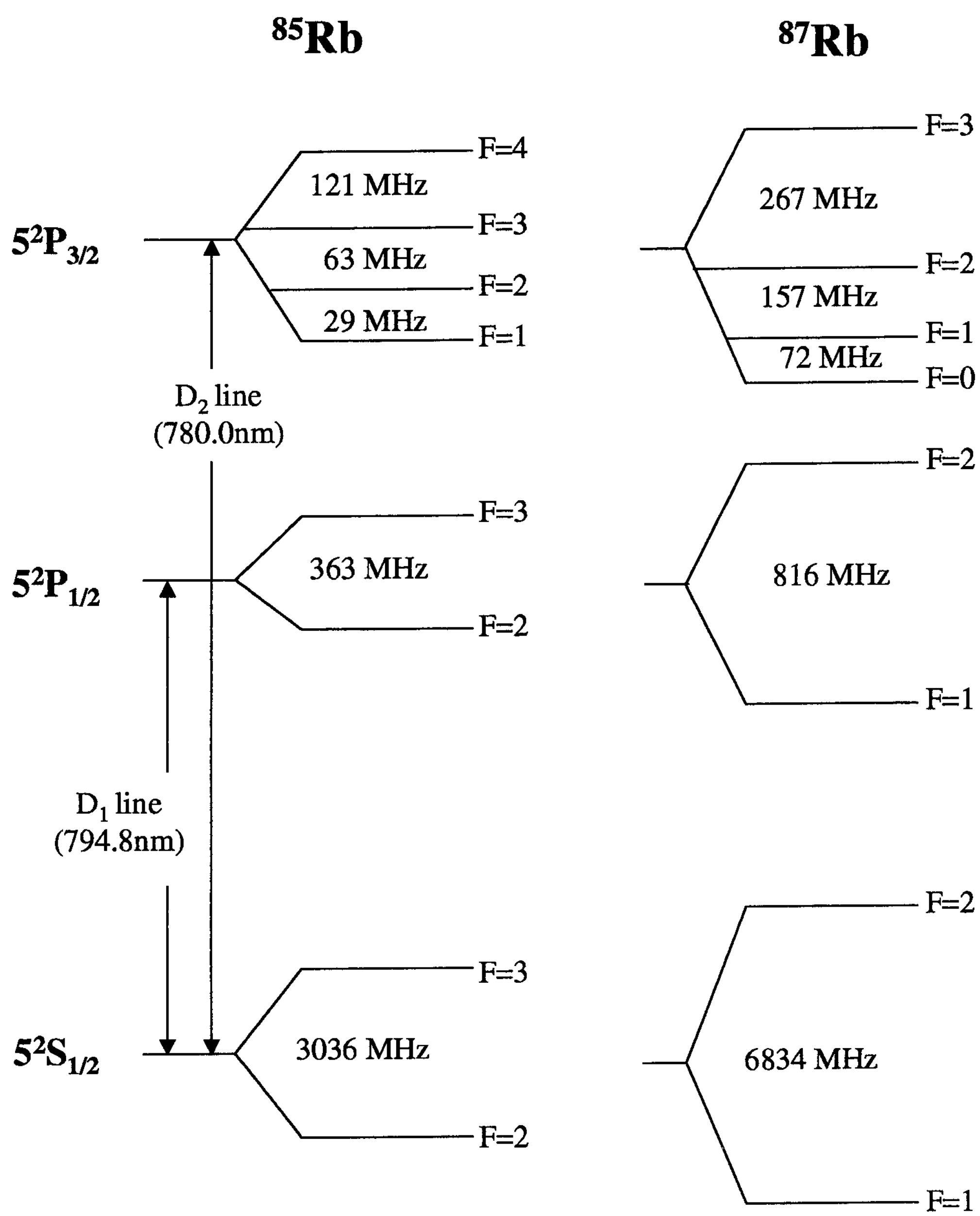

図 3.1: Rb D 線のエネルギー準位構造

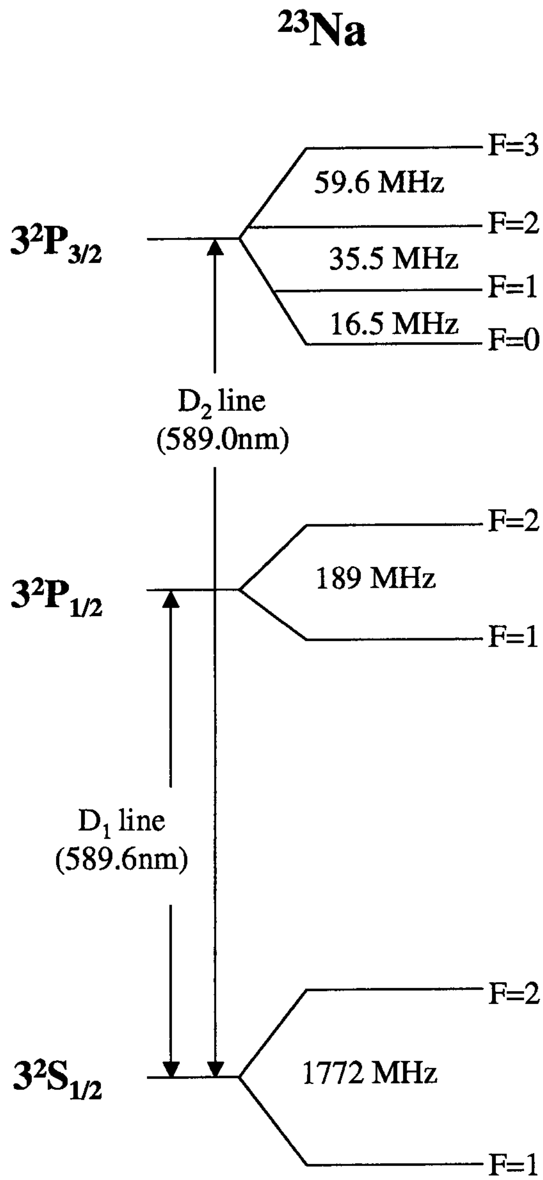

図 3.2: Na D 線のエネルギー準位構造

3.2 超微細構造分裂と超微細構造定数

本論文第 5 章では、励起状態の超微細分裂周波数の精密な測定を行うことにより、超微細構造定数のより精密な値を決める実験を行った。ここではそれに関連して Rb の超微細構造の分裂周波数と超微細構造定数の関係について述べる。また過去の文献の測定値を参照する。前節より超微細構造のエネルギーは

$$\langle F, M_F|\mathcal{H}_{hfs}|F, M_F\rangle = hA\cdot K + hB\cdot\frac{6K^2+3K-2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)}$$

のようにあらわされる。アルカリ原子のエネルギー準位は、このように核スピンに付随する磁気モーメント、核の有効電荷の電気四重極モーメントと電子の作る磁場との相互作用によって分裂した超微細構造を持つ。これらの相互作用の寄与の大きさを表すのは磁気双極子相互作用定数 A、電気四重極相互作用定数 B であり、この式から例えば ^{87}Rb 原子の $5^2P_{3/2}$ 状態の各準位間のエネルギー差を計算すると

$F=0$ と $F=1$ の間が

$$h(A-B) \tag{3.7}$$

$F=1$ と $F=2$ の間が

$$h(2A-B) \tag{3.8}$$

$F=2$ と $F=3$ の間が

$$h(3A+B) \tag{3.9}$$

のようになる。これらの共鳴周波数を測定することにより ^{87}Rb 原子の $5^2P_{3/2}$ 状態の超微細構造定数 [18] を求めることができる。さらに ^{85}Rb 原子の $5^2P_{3/2}$ 状態の各準位間のエネルギー差は、

$F=1$ と $F=2$ の間が

$$h(A-\frac{4}{5}B) \tag{3.10}$$

$F=2$ と $F=3$ の間が

$$h(3A-\frac{9}{20}B) \tag{3.11}$$

$F=3$ と $F=4$ の間が

$$h(4A+\frac{4}{5}B) \tag{3.12}$$

となる。Rb 原子の基底状態および D_1 線の励起状態についても同様の計算を行うことができるが、現在のところ本実験で測定できない帯域の信号であり、実験でも取り上げなかったので割愛する。表 5.1 に過去に測定された ^{87}Rb 原子の超微細構造定数 A、B を、そして表 5.2 に ^{85}Rb 原子の超微細構造定数 A、B を示す。

表 3.1: ^{87}Rb 原子 $5^2P_{3/2}$ 状態の超微細構造定数

A (MHz)	B (MHz)	文献
85.8±0.7	11.8±0.6	[19]
84.845±0.055	12.61±0.13	[20]
84.55±0.58	12.6±1.4	[21]

表 3.2: ^{85}Rb 原子 $5^2P_{3/2}$ 状態の超微細構造定数

A (MHz)	B (MHz)	文献
25.010±0.022	25.89±0.10	[20]
24.99±0.01	25.88±0.03	[22]
26.19±0.20	18.9±1.0	[21]

3.3 ゼーマン副準位の分裂

超微細構造分裂によりできた準位は一般に縮退しているが、磁場を加えるとゼーマン（Zeeman）効果によりさらに $2F+1$ 本の準位に分裂する。本節ではゼーマン副準位に対する実験を行った ^{23}Na 原子を例にゼーマン効果について説明する。

超微細相互作用と外部磁場との相互作用による、基底状態或いは励起状態の有効ハミルトニアンについて考える。有効ハミルトニアン $\mathcal{H}_{eff}$ は、μ_B をボーア磁子、g_Iを核スピン$\mathbf{I}$ の g 因子、g_J を電子系の全角運動量$\mathbf{J}$ の g 因子、$\mathbf{H}$ を磁場とすれば、

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_{eff} &= hA(\mathbf{I}\cdot\mathbf{J}) + hB\left[\frac{6(\mathbf{I}\cdot\mathbf{J})^2 + 3(\mathbf{I}\cdot\mathbf{J}) - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I+1)2J(2J+1)}\right] \\ &\quad + \mu_B(g_J\mathbf{J} + g_I\mathbf{I})\cdot\mathbf{H} \end{aligned} \tag{3.13}$$

で与えられる。g_J は、

$$g_J = 1 + \frac{J(J+1) - L(L+1) + S(S+1)}{2J(J+1)} \tag{3.14}$$

のように記述され、原子の角運動量状態によって異なった値をとる。第 2 項は $J, I \geq 1$ の時のみ存在し、$^2P_{1/2}$、$^2P_{3/2}$ のように $J = 1/2$ のときには第2項は考えなくて良い、磁場の方向に量子化すると (3.13) 式は

$$\mathcal{H}_{eff} = hA(\mathbf{I}\cdot\mathbf{J}) + \mu_B H_0(g_J J_z + g_I I_z) \tag{3.15}$$

となる [23]。全系のエネルギーは、全角運動量 F とその磁気量子数 M_F で定まる状態を基底にして、再び固有値方程式を解くことによって求めることができる。電子系あるいは核スピンの角運動量が 1/2 のときには Breit-Rabi の公式 [24] によりエネルギー固有値が容易に得られ、特に電子系の角運動量が 1/2 の場合には、

$F = I + 1/2,\ M_F = \pm(I + 1/2)$ のとき、

$$E = \frac{A}{2}I \pm (\frac{g_J}{2} + g_I I)\frac{\mu_B H_0}{h} \tag{3.16}$$

$F = I \pm 1/2,\ -(I - 1/2) < M_F < (I - 1/2)$ のとき、

$$\begin{aligned} E &= -\frac{A}{4} - \frac{g_I\mu_B M_F H_0}{h} \\ &\quad \pm \frac{A}{4}\sqrt{4\eta^2 {H_0}^2 + 8\eta M_F H_0 + (2I+1)^2} \end{aligned} \tag{3.17}$$

$$\eta = \frac{(g_J - g_I)}{Ah}\mu_B$$

となる。この計算式から求めた ^{23}Na の基底状態（$F=1$）と励起状態（$F=2$）のエネルギー準位の磁場依存性を図 3.3 に示す。

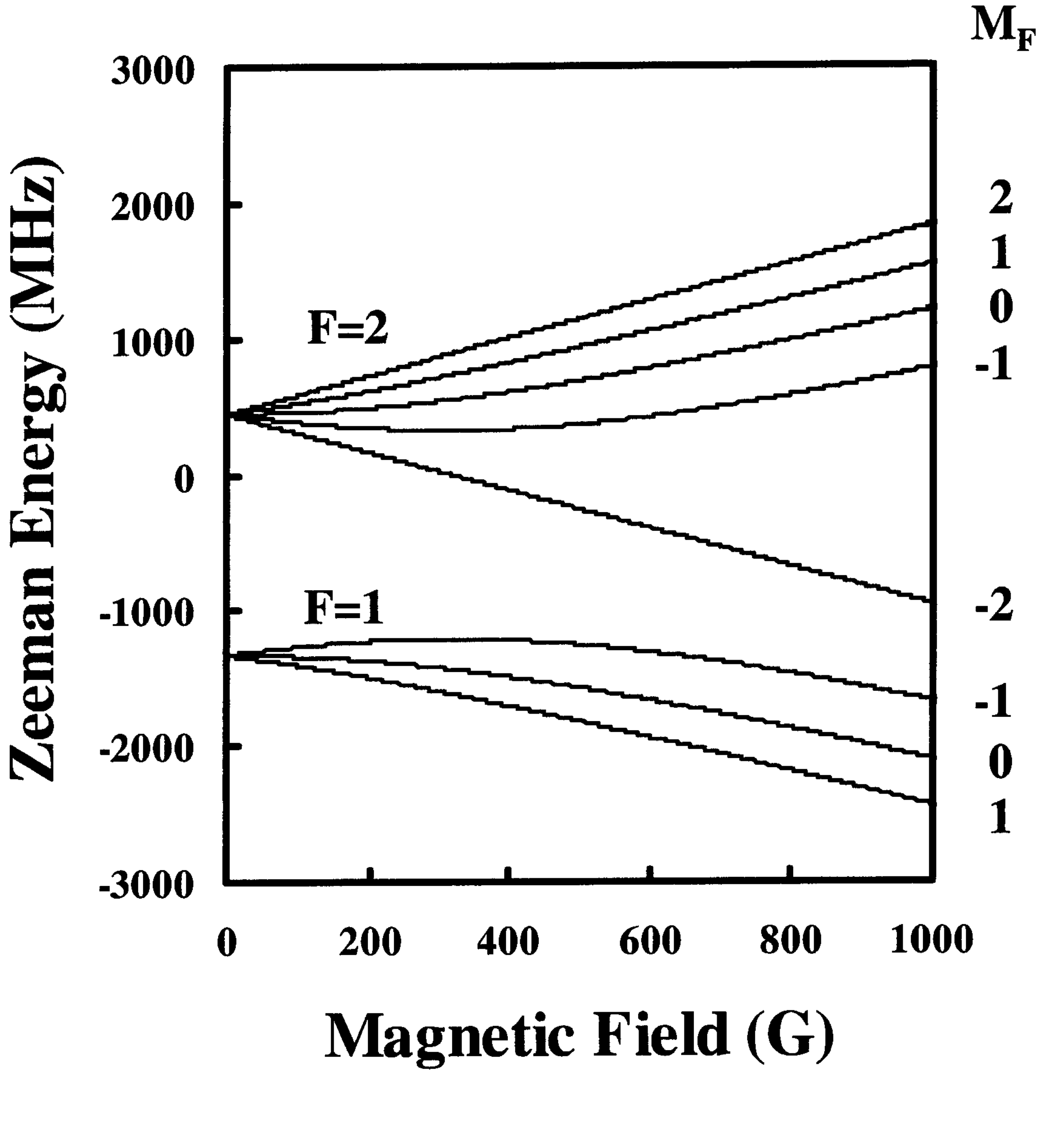

図 3.3: Na D_1 線の $S_{1/2}$ のゼーマン分裂

この図によれば、低磁場ではゼーマン効果により、磁場に比例した間隔をもつ分裂が起こるが、高磁場においては、磁場に比例しないような間隔をもつ分裂に

なっていることがわかる。低磁場の場合、(3.16) 式、(3.17) 式において磁場に対して１次の効果のみを残した近似式として、

$$E \cong \frac{A}{4}[-1 \pm (2I+1)] + [g_I \pm \frac{(g_J - g_I)}{(2I+1)}]\frac{\mu_B M_F H_0}{h} \tag{3.18}$$

が得られる。ここで複号の $+$ および $-$ はそれぞれ $F = I + 1/2$ と $F = I - 1/2$ の超微細準位に対応する。(3.18) 式の第１項は、超微細相互作用による分裂であり、超微細構造定数 A によって決められる。第２項はゼーマン相互作用による分裂を表わしている。ゼロ磁場における超微細構造分裂の大きさは $A(I + 1/2)$ で与えられることになる。一般に、核スピンの g 因子は電子系の g 因子に比べて３桁程度小さいので、(3.18) 式の中で磁場に依存する部分は主に電子系の g 因子で決まり、$F = I \pm 1/2$ の準位に対してほぼ等しい大きさで符号が $\pm$ となっている。この超微細構造のゼーマン分裂に対応するエネルギー固有値間隔 ΔE は、

$$\Delta E = \left| \frac{(g_J - g_I)}{2I+1} \Delta M_F \frac{\mu_B H_0}{h} \right| \tag{3.19}$$

となる。低磁場の場合は、分裂はほぼ等間隔である。

磁場と平行に進む円偏光で選択的に励起する場合は、$\Delta M_F = 1$ の準位間に占有差が生成され、直線偏光の場合には $\Delta M_F = 2$ の準位間に占有差が生成される。横磁場中では、$\Delta M_F = 1$ の場合はゼーマン分裂によるエネルギー準位間隔の１倍の周波数で、また $\Delta M_F = 2$ の場合は２倍の周波数で磁気的異方性が歳差運動することを意味する。

3.4 スペクトル線の線幅

高分解能な測定を行うと原子のスペクトル線は、単純な線ではなくある周波数範囲に広がった強度分布を持っている。これをスペクトル線の広がりという。スペクトル線はその線広がりをもたらす要因によって、ローレンツ型とガウス型形そしてより一般的にはそれらの混合したフォークト型の形状を取り、その幅は、不均一幅、均一幅に分類される。

不均一幅は、遷移の周波数を決めるパラメーターが統計分布をしていることから生じる。特に気体原子においては、ドップラー幅と呼ばれる不均一幅が大きい。ドップラー幅は、遷移周波数が原子の速度に依存して変化し、原子が速度分布を持つことによって生じる。つまり光の進行方向を z 方向とし、原子の z 軸方向の速度成分 v_z を考えればドップラー効果により原子からみた周波数は、

$$\nu = \nu_0 \left(1 - \frac{v_z}{c}\right) \tag{3.20}$$

で与えられる。ここで、ν_0 は静止原子の共鳴周波数、c は媒質中の光速度である。気体原子の速度は、熱運動のため式 (3.21) で表されるガウス型のマックスウェル（Maxwell）の速度分布をとる。

$$f(v) = \left(\frac{m}{2\pi k_B T}\right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{m}{2k_B T}v^2\right) \tag{3.21}$$

ここで、m は原子の質量、k_B はボルツマン定数、T は温度、v は原子の速度であり 3 つの速度成分 v_x, v_y, v_z に対して $v^2 = v_x^2 + v_y^2 + v_z^2$ の関係を満たす。式 (3.20) を式（3.21）に代入し規格化すると、ドップラー効果によるスペクトル分布関数は

$$g(\nu) = \frac{c}{\nu_0}\left(\frac{m}{2\pi k_B T}\right)^{\frac{1}{2}} \exp\left\{-\left(\frac{m}{2k_B T}\right)\left(\frac{c^2}{\nu_0^2}\right)(\nu - \nu_0)^2\right\} \tag{3.22}$$

のようになる。またドップラー効果による線幅（半値全幅）は、

$$\Delta\nu_{FW} = 2\nu_0\sqrt{\frac{2k_B T \log 2}{mc^2}} \tag{3.23}$$

となる。

本論文で行った実験では、Na 原子の温度 430K であり D_1 線に対するドップラー効果による線幅 $\Delta\nu_F W$ は約 1.0GHz となる。また Rb 原子で行った実験では、温度 350K として、Rb D_1 線に対するドップラー効果による線幅 $\Delta\nu_{FW}$ は約 500 MHz

となる。ところで本実験は、原子の準位間（100MHz 程度）の coherence による信号を検出しているので、一次のドップラー効果による検出信号の線広がりは数 100Hz 程度に抑えられ自然幅に比べて無視できる。またドップラーの二次の効果による線広がりは、一次のドップラー効果に比べさらに 6 桁低いので無視できる。

均一幅は、相互作用時間が有限なために生じる線幅である。均一幅の支配的な要因は実験で観測する信号の種類によって異なる。まず Rb 原子の励起状態の超微細構造を観測した実験の場合について述べる。励起状態に遷移した電子は真空場の揺らぎのため、励起状態から基底状態へ自然放出する。励起状態にとどまる有限の平均時間を寿命と呼ぶ。系のエネルギーの緩和定数 γ は寿命 τ の逆数で与えられる。

$$\gamma = 1/\tau \tag{3.24}$$

分光学的にこれは、スペクトル線の広がりを与え、これを自然幅と言う。表 3.3 に Rb 原子の D_1 線と D_2 線の励起状態の寿命と自然幅を示す。

表 3.3: Rb 励起状態の寿命と自然幅 [14]

遷移	**波長 (nm)**	**寿命 (ns)**	**半値全幅 (MHz)**
D_1 線	794.8	28	11.4
D_2 線	780.0	26	12.2

系を乱す他の要因として他に、衝突による効果がある。上記の自然放出と同じように衝突による量子状態間の遷移によってスペクトル線の広がりをもたらす。また遷移を引き起こさなくても、位相を乱す効果があり、平均自由飛行時間を τ_0 とするとその逆数で緩和速度への寄与がありスペクトル線を広げる。しかしこれらは、気体の圧力を下げてやることにより減じることができる。Rb 気体を用いた実験では、緩衝気体もなく 10^{-4}Torr 程度と十分低い圧力で実験を行っているため、衝突による広がりは数 10kHz 程度で無視できる。

他に有限時間で原子が有限のビーム径をもったレーザー光を横切るために生じる、スペクトル線の広がりもある。この観測時間による広がりは、トランジットタイム（transit time）広がりと呼ばれている。式 (3.21) から原子の二乗平均速度

$< v^2 >$ は、

$$< v^2 >= \frac{3k_BT}{m} \tag{3.25}$$

であり、トランジットタイムの逆数に相当する緩和定数 γ は ℓ をビームの直径として、

$$\gamma = \frac{\sqrt{< v^2 >}}{\ell} \tag{3.26}$$

で与えられる。これは、寿命による線幅の広がりがない基底状態においても寄与がある。トランジットタイムによる線幅への寄与は、レーザービームの直径を 2 mm として約 0.15 MHz である。線幅を広げる要因としては、他にも光の強度によるものが考えられ、これをパワーブロードニング（power broadening）と呼ぶ。実験では、広がりがでないような十分弱い光強度 (数 mW) を用いた。以上のことから本実験において、Rb 原子の D_2 線の励起状態の超微細構造分裂信号の測定において支配的な線幅の要素は、励起状態の寿命による自然幅 (12.2 MHz) となる。

Na 原子で行った実験のように基底状態を考える場合、自然放出による緩和の効果はない。Na セルには緩衝気体 (He:10Torr) が封入されており、衝突の影響の大きい励起状態がからむ光学遷移の線幅は 100MHz 程度に広げられが、基底状態間の coherence は、衝突による影響は少なく本実験には影響しない [27]。またトランジットタイム広がりは、緩衝気体により 10Hz 程度に抑えられる。結局次節で述べる、 Na 基底状態の実験でスペクトル幅を決める主要な要因は磁場の不均一性による広がりであり、その大きさは 1~2MHz 程度である。

第4章　Na 原子 D_1 線基底状態の再帰励起分光

ここでは、^{23}Na 原子の基底状態の超微細構造の F = 2 のゼーマン分裂準位に対して行った、再帰励起分光法によるスペクトル線幅の尖鋭化の実験について述べる。本実験ではポンプ光、プローブ光の方向に対して横方向に磁場をかけた状態で行い (transverse optical pumping[25, 26])、基底状態の coherence を生成した。円偏光のポンプ光によって誘起された基底状態の超微細構造 F = 2 のゼーマン準位間の coherence の時間発展により系の光学的な性質が変動する。この系に生じた円偏光二色性 (付録C) の時間的な変動を原子系に入射した弱いプローブ光の強度の変動信号として検出 (ポンプ-プローブ法) する。測定によって得られた応答波形を用いて再帰励起分光の次段のポンプ光の強度を変調し、再びプローブ光の強度信号を検出する。これを繰り返し行うことで再帰励起分光測定を行った。この実験を適当な不均一幅を持つ複数の磁場について行った。この章では磁場中での optical pumping と測定系について述べ、ゼーマン分裂のスペクトル線の尖鋭化の結果について述べる。

4.1 optical pumping

光を用いて物質の性質の変化させる研究でもっともよく知られたものの一つに optical pumping がある。optical pumping[27, 28] とは、偏光した光を用いて原子の角運動量状態を選択的に励起する手法であり、原子系を熱平衡状態から遠くはなれた状態に準備することができる。ここでは基底状態と励起状態の角運動量 J と J' がともに $\frac{1}{2}$ であるようなモデルを考える。この状態はアルカリ原子の微細構造 $^2S_{1/2}$、$^2P_{1/2}$ に対応している。光の進行方向を量子化軸にとり、σ^+ 偏光の共鳴光が原子に入射して吸収されると角運動量の選択側により、$|J=\frac{1}{2}, M_J=-\frac{1}{2}\rangle$ から $|J'=\frac{1}{2}, M_{J'}=\frac{1}{2}\rangle$ の遷移だけが許される。励起状態から基底状態へは自然放出過程で緩和する。2 つの基底状態への遷移強度に差は有るものの、時間がたてば図 4.1 のように基底状態の副準位間に population difference が生じる。optical

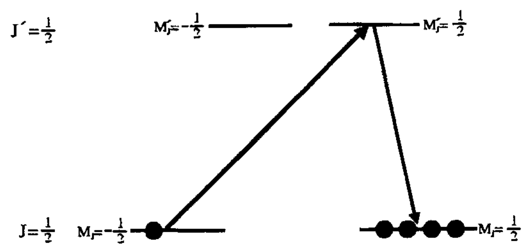

図 4.1: optical pumping のモデル

pumping を考えている系は実際には 4 準位系（σ^+ 励起では実際にかかわっているのは 3 準位系）である。しかし十分励起が弱く励起状態の population 及び optical coherence が小さいと言う仮定をすると、基底状態の準位だけで構成された密度行列で系を記述することができる。基底状態の $|J=\frac{1}{2}, M_J=\frac{1}{2}\rangle$ 準位を $|2\rangle$、$|J=\frac{1}{2}, M_J=-\frac{1}{2}\rangle$ 準位を $|1\rangle$ としと実効的な pumping rate P_+ を導入すると

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -\frac{d\rho_{11}}{dt} = P_+\rho_{11} \tag{4.1}$$

のように書くことができる。optical pumping では入射する光の進行方向に対して平行に磁場をかける縦磁場の配置、進行方向に対して垂直に磁場をかける横磁場の配置での実験がよく行われる。これらは、付録 A で導入した、擬スピンベクトル

で記述すると見通しが良い。ここではベクトルとして磁化の 3 つの成分 m_x、m_y、m_z を考え、磁場中の磁化の運動という描像を与える。

4.1.1 縦磁場中の optical pumping

まずはじめに図 4.2 の縦磁場の配置を考えよう。光の進行方向 z を量子化方向

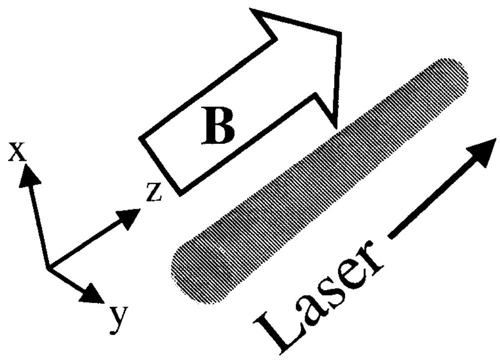

図 4.2: 縦磁場中の optical pumping

にとると、基底状態の密度行列及び、相互作用ハミルトニアン $\mathcal{H}_L$、ポンピングの効果は、スピン演算子の基底 (付録 A) では、

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar}[\mathcal{H}_{\mathrm{L}}, \rho] - \gamma_{\mathrm{eff}}\rho + P_+\sigma_z \tag{4.2}$$

のように書くことができる。ここで簡単のため緩和レート $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma_{eff}$ とした。$\gamma_{eff} = \gamma_0 + P_+$ であり、γ_0 は光以外の効果による緩和レートを表す。この仮定はバッファガスを封入した試料で妥当である [62]。ここで $\mathcal{H}_L = -\hbar\Omega_L\sigma_z$ であり熱平衡状態を初期条件とすると、

$$\rho(t) = m_z^{eq}(1 - e^{-\gamma_{eff}t})\sigma_z \tag{4.3}$$

のように解ける。これは、図 4.3 のように定常状態 $m_z^{eq} = \frac{P_+}{\gamma_0 + P_+}$ に向かって密度行列は時間発展を行う。縦磁場中では $\rho(t)$ は、σ_z だけで構成され、ハミルトニアン $\mathcal{H}_L$ と交換し密度行列の時間発展に寄与しないことが特徴である。

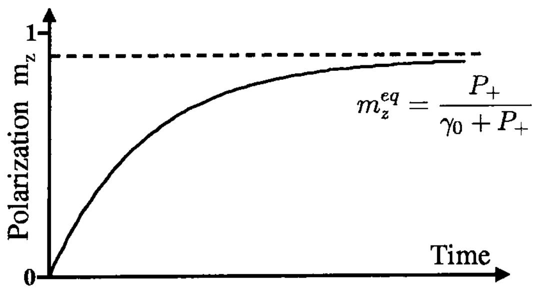

図 4.3: 縦磁場中の optical pumping における m_z 成分の時間発展

4.1.2 横磁場中の optical pumping

次に図 4.4 のような配置を持つ横磁場中での optical pumping について考える。横磁場中で量子化方向を磁場に対して垂直にとれば、固有関数は球対称もしくは

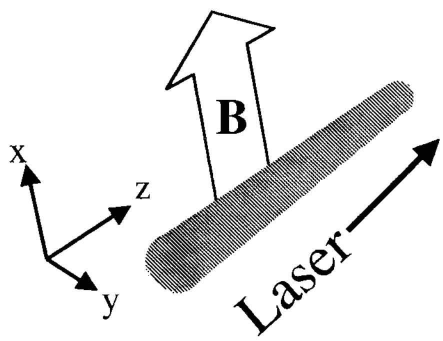

図 4.4: 横磁場中の optical pumping

軸対称のもとでの角運動量状態とは異なる。重ね合わせの原理より元の固有関数の線型結合によって、横磁場中の固有関数が表すことができ新たな基底で見た時 coherence が誘起されると見ることができる。これはまた磁場中の磁化の運動として眺めることができる。量子化軸を再び光の進行方向にとるとハミルトニアンは、$\mathcal{H}_T = -\Omega_L \sigma_x$ のように書ける。磁化ベクトルの運動方程式は、

$$\dot{\boldsymbol{m}} = \frac{d}{dt}\begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\gamma_{\text{eff}} & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma_{\text{eff}} & \Omega_{\text{L}} \\ 0 & -\Omega_{\text{L}} & -\gamma_{\text{eff}} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ P_+ \end{pmatrix} \tag{4.4}$$

のようにかけ、横磁場中の実験では、光によって誘起された磁化が磁場の周りをラーモア周波数で最差運動を行う描像で考えることができる。この系の 3 つの固有値と固有関数

$$
\begin{aligned}
\lambda_0 &= -\gamma_{eff}, \quad \xi_1 = (1,0,0) \\
\lambda_{+1} &= -\gamma_{eff} + i\Omega_L, \quad \xi_{+1} = \frac{1}{\sqrt{2}}(0,i,-1) \\
\lambda_{-1} &= -\gamma_{eff} - i\Omega_L, \quad \xi_{-1} = \frac{1}{\sqrt{2}}(0,-i,-1)
\end{aligned}
\tag{4.5}
$$

となりこの基底を用いて、磁場中の磁化の一般解は、$\boldsymbol{m}(t) = (m_x(t), m_y(t), m_z(t))$ 定常状態の解を $\boldsymbol{m}_\infty = (m_x(\infty), m_y(\infty), m_z(\infty))$ と表して、

$$
\boldsymbol{m}(t) = \boldsymbol{m}(\infty) + \sum_{j=-1}^{1} C_j \xi_j e^{\lambda_i t} \tag{4.6}
$$

のようにかける。初期条件として熱平衡状態 $\boldsymbol{m}(0) = 0$ を選ぶと、

$$
\boldsymbol{m}(t) = \boldsymbol{m}_\infty(1 - \cos(\Omega_L t)e^{-\gamma_{eff}t} + \boldsymbol{m}_s \sin(\Omega_L t)e^{-\gamma_{eff}t} \tag{4.7}
$$

ここで $\boldsymbol{m}_s$ は、終状態と直交するベクトルである。以上が cw 的なレーザー照射のもとでの横磁場中 optical pumping の一般論である。

基底状態のゼーマン副準位を扱った本実験では、瞬間的に生成された磁化が $P_+ = 0$、$\gamma_{eff} = \gamma_0$ のもと自由に最差運動を表す式 (付録 A) が、インパルス応答関数となる。これを第 2 章で扱った再帰励起分光法の理論の形式に合わせると、

$$
h(t) = \begin{cases} (1 + a\cos\omega_0 t)\mathrm{e}^{-\gamma t} & (t \geq 0) \\ 0 & (t < 0) \end{cases} \tag{4.8}
$$

のようになる。次節では、実験方法について述べる。

4.2 基底状態のゼーマン信号測定

再帰励起分光の実験配置図を図 4.5 に示す。光源には、アルゴンレーザー励起の、縦直線偏光、連続発振の色素レーザー（Dye Laser）を用いた。まずレーザー光を音響光学 (Acousto-Optic; A/O) 変調器で繰返し周期 60Hz、パルス幅 15 μ s のパルスに切り出す。これは、連続光による Na の D_1 線遷移の飽和効果を抑えるためである。また A/O 変調器で切り出された光は、音波による光子の回折を利用しているため光の周波数がシフト（80MHz）する。そのため切り出した後の光を Na 原子の D_1 線の共鳴周波数に同調するようにレーザー光の波長を調整する。

次にビーム・スプリッターで光をポンプ光とプローブ光に分ける。ポンプ光は、電気光学 (Electro-Optic; E/O) 変調器を通して強度変調を加える。入射光の偏光方向と E/O 結晶（$LiTaO_3$）の光軸との角度を 45° にし、その出力光を $\lambda/4$ 波長板とグランプリズムに通すことにより、強度変調光を発生させる (付録 B)。電気光学結晶にかける電場は、任意波形発生器 (Arbitrary Waveform Generator; AWG) で発生させ、パワーアンプで増幅したものを用いる。また強度変調をかけるとき、線形性を保ちつつ変調度が大きくなるように、AWG の電場の振幅と $\lambda/4$ 板の回転角で調整する。E/O 結晶の帯域は 140MHz、AWG のサンプリングレートは 1GHz/s でアナログ帯域は 230MHz、パワーアンプの帯域は 400MHz である。強度変調を加えたポンプ光は、$\lambda/4$ 波長板で円偏光にしたあと Na セルに入射させる。実験では、初回の励起光として単パルス状に強度変調したものを用いて測定を行った。

プローブ光は、直線偏光のままセルに入射させる。励起光とプローブ光の交差角は約 3° で、交差位置でのビーム径は、励起光、プローブ光とも約 1mm であった。Na セルに入射する直前で励起光の強度は 20mW、プローブ光の強度は 1.7mW であった。また Na セル内に緩衝気体として 7Torr の He が含まれており Na セル内の温度はおよそ 420K であった。Na セルに入射したプローブ光は、ポンプ光によって Na 原子に生じた円偏光二色性を反映して楕円偏光になる。Na セル内を透過してきたプローブ光を $\lambda/4$ 波長板に通し、ポラリメーター (付録 D) によって円偏光二色性の検出を行う。ポラリメーターを用いた検出法は零位法であり Na 原子と相互作用した光を高感度で検出できる。ポラリメーターの PD(フォトダイオード) は受光面の直径が 3mm、帯域が 30MHz のものを使用した。

ポラリメーターで検出した強度波形を帯域 500MHz のアンプで増幅し、高域通過フィルターで 2.5MHz 以下の振動成分を取り除きデジタル・オシロスコープに取り込む。フィルターを通すことによって、現在興味のある帯域にある複数の準位間 coherence を反映する信号以外に低周波成分として測定される縮退したゼーマン準位間の coherence 信号を取り除いた。

得られた強度波形をデジタル・オシロスコープに取り込み、波形データを 10000 回積算したものをコンピューターに転送した。波形データを高速フーリエ変換 (FFT) して再帰励起分光第 1 回目の強度波形のパワースペクトルを得る。また今興味のある周波数領域外の周波数成分をカットした強度波形を AWG に転送した。この波形を次段の測定において E/O 変調器を駆動する電圧波形として使い、励起光を変調する。再帰励起分光第 2 回目の測定では、この励起光を用いて先ほどと同じ方法で分光を行い、得られた波形データを FFT して再帰励起分光第 2 回目のパワースペクトルを得る。そして得られた波形データを AWG から出力し第 3 回目を行うための励起光を作る。この操作を n 回繰り返し n 回目のパワースペクトルを得る。

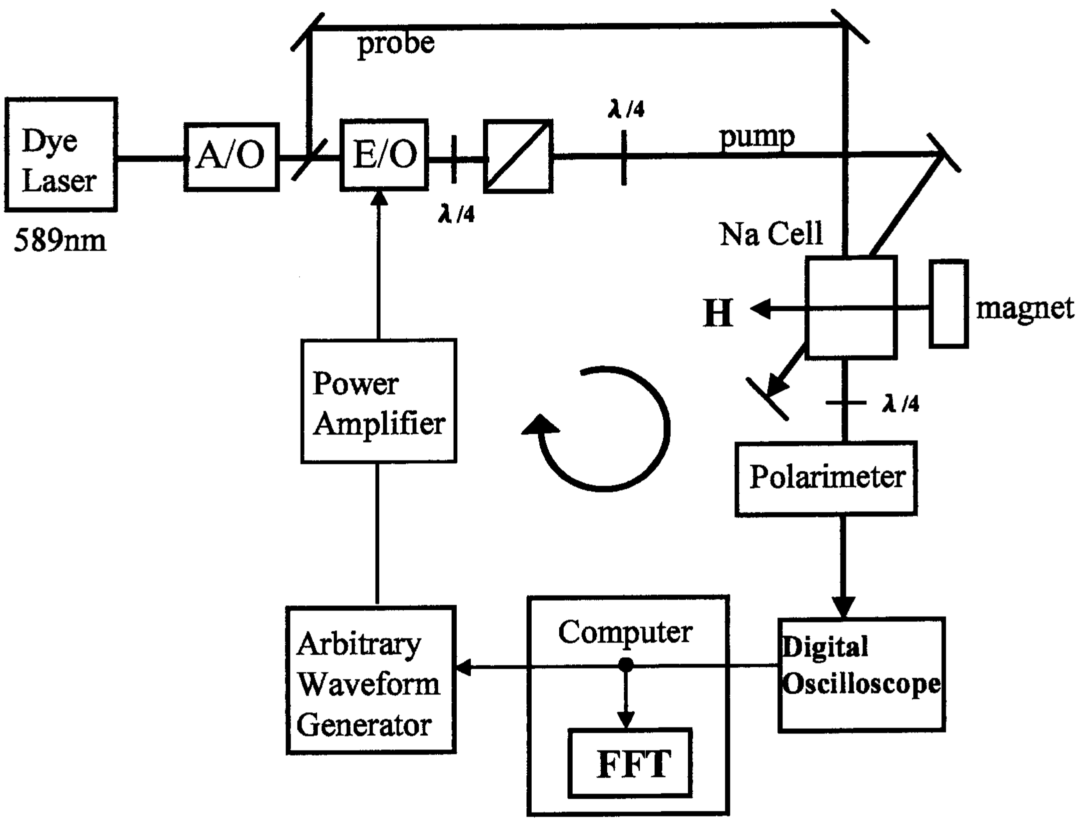
probe
Dye
Laser
589nm
A/O
E/O
λ/4
λ/4
pump
Na Cell
H
magnet
λ/4
Power
Amplifier
Polarimeter
Arbitrary
Waveform
Generator
Computer
FFT
Digital
Oscilloscope

図 4.5: 実験配置図

4.3 スペクトル線の尖鋭化

ここでは、パルスを初回励起光に用いた再帰励起分光による ^{23}Na 原子 D 線の基底状態の超微細構造 F=2 のゼーマン分裂周波数についての測定実験の結果について述べる。

まず、約 8 ガウスの横磁場のもとでのゼーマン分裂周波数 (5.7MHz) の場合に、再帰励起分光測定によって得られた結果を示す。このゼーマン分裂周波数信号に対して、再帰励起回数 50 回の測定を行った。1 から 50 回目の応答波形を図 4.6 に示す。一回目の応答波形は、パルス励起による応答波形であり、量子ビートそのものである。再帰励起回数を増やしていくにしたがって、応答波形のビート部分が長く伸びていくのがわかる。これは、ポンプ光による励起がビート周波数と同期していることにより生じている。ビート部分の伸びは、スペクトル幅が狭くなっていることを示している。それぞれの応答波形より計算したパワースペクトルを周波数領域 3.5MHz から 8.5MHz の範囲で図 4.7 に示す。再帰励起回数を増やしていくにしたがって、スペクトル幅が狭くなっていくことがわかる。

第 2 章で議論したように本実験の再帰励起分光によって得られるパワースペクトルは、式 (4.9) の形状を持つことが期待される。

$$|G_n(\omega)|^2 \propto \left(\frac{1}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma^2}\right)^n \tag{4.9}$$

実験データに対するフィッティングパラメーターを ω_0、γ として、理論式へのフィッティングを行った。その結果求まったスペクトルの半値全幅の再帰励起回数に対する依存性を次項の図 4.8 に示す。縦軸がスペクトル幅 $\Delta\omega/2\pi$(MHz) であり、横軸が再帰励起の繰り返し回数 n で、いずれも対数表示で示している。実線は理論曲線である。式 (5.9) のスペクトルの半値全幅は、2 章で求めたように十分大きい再帰励起回数 n では近似的に

$$\frac{\Delta\omega}{2\gamma} \simeq \sqrt{\frac{1}{n}\log 2} \tag{4.10}$$

と記述される。実験で得られたスペクトルの半値全幅は、繰り返し回数の増加に対して理論と良く一致した振る舞いを示している。

つぎにそれぞれ約 14 ガウス (9MHz) 約 20 ガウス (14MHz) 約 28 ガウス (20MHz) の横磁場のもとで、再帰励起分光測定によって得られた結果を示す。図

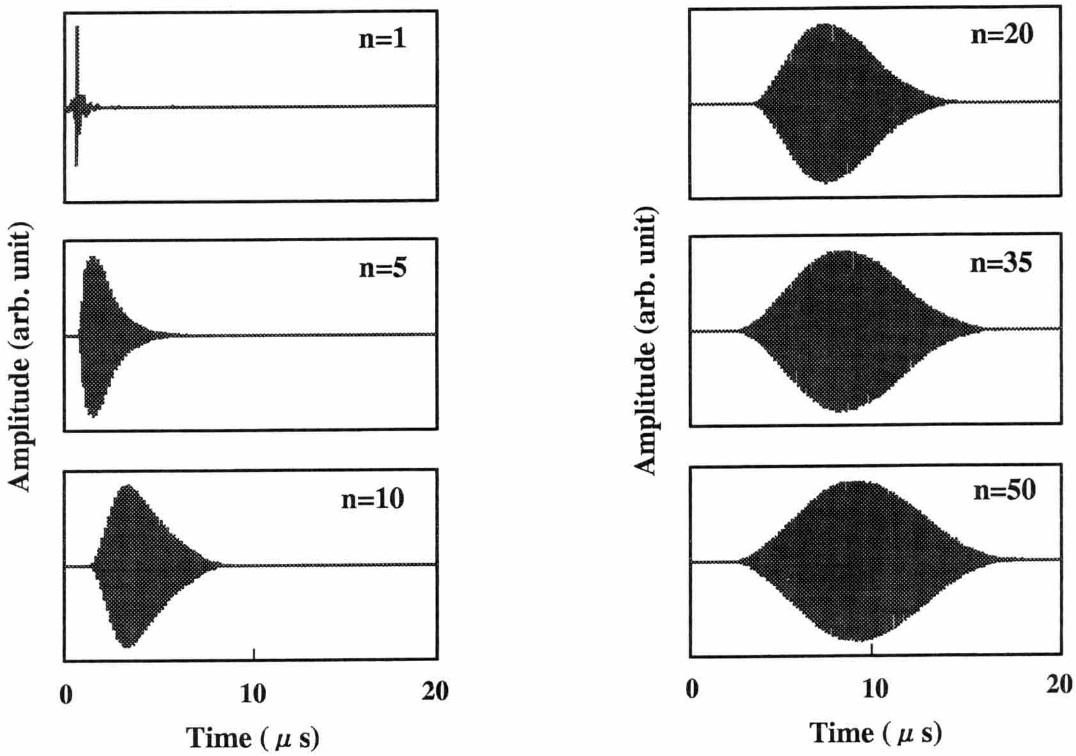

図 4.6: 応答波形 (5.7MHz)

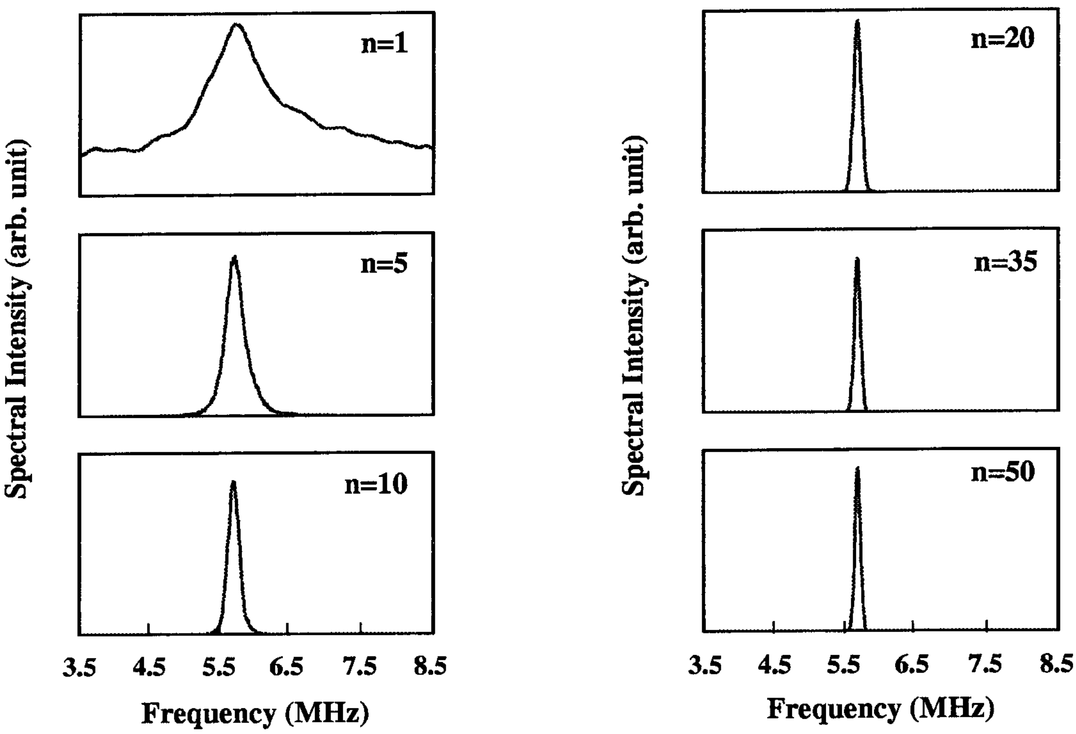

図 4.7: パワースペクトル (5.7MHz)

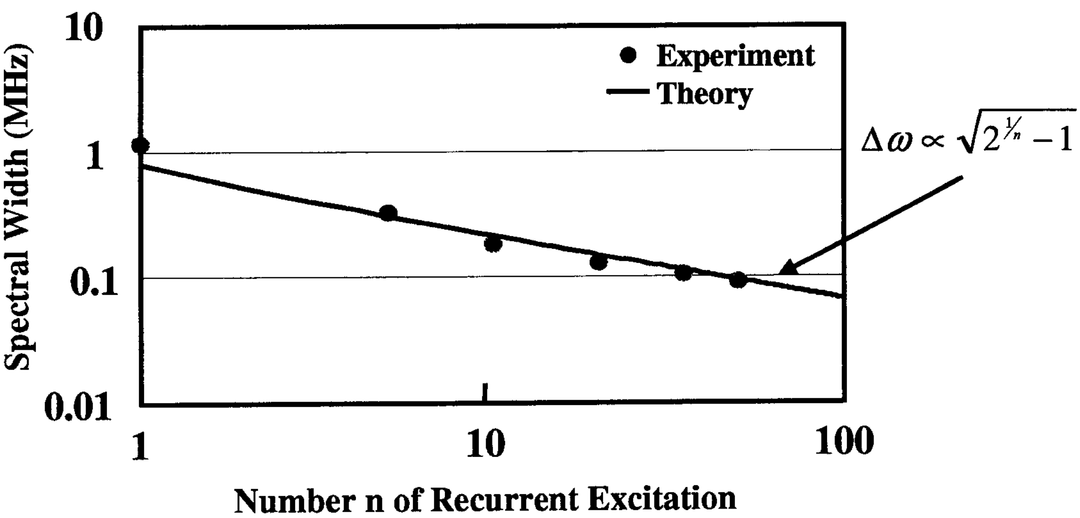

図 4.8: 再帰励起回数への依存性 (5.7MHz)

4.9は3つの異なる磁場のもとで再帰励起分光によって得られた1回目と50回目のパワースペクトルを示す。これらも同様に再帰励起回数を増やしていくごとにスペクトル幅が狭くなっていくことがわかる。また各磁場における波形の時間スケールが異なっている。これは磁場を高くするとより磁場の不均一性が増していくことに加え、2次のゼーマン効果が現れてくることからの寄与である。

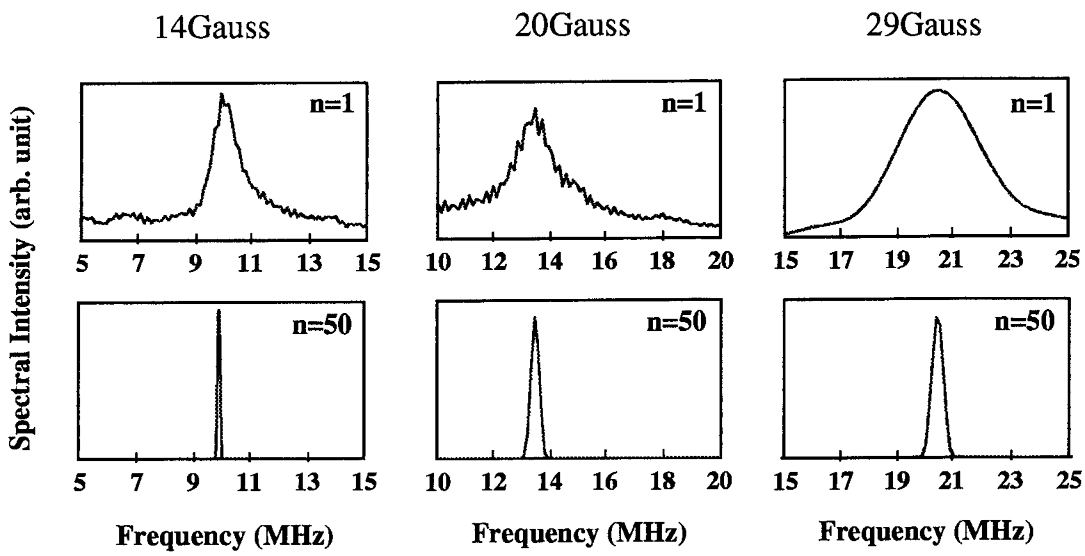

図 4.9: 3つの異なる磁場条件での応答 (14Gauss、20Gauss、28Gauss)

本節では、ゼーマン副準位の信号に対して、再帰励起分光法によるスペクトルの尖鋭化の実験を行った。実験は理論と良く一致した振る舞いをしスペクトル線の尖鋭化を確認することができた。本実験において最終的な線幅は、線型応答理論による解析が困難になる要因となる磁場の時間的な揺らぎによって決まるものと思われる。次章では、Rb原子で行った超微細構造の分裂信号への超自然幅分光についての実験の報告を行う。超微細構造の測定実験では、実験機器としてより広帯域のものが必要となる。Rb原子で行う実験の波長領域 (~800nm) では、広帯域の E/O 変調器が使用でき、高周波測定により適している。

第5章　Rb 原子 D_2 線励起状態の再帰励起分光

ここでは、Rb 原子 D_2 線の励起状態の超微細構造分裂に対して行った再帰励起分光の実験について述べる。実験では ^{87}Rb 原子の第二励起状態 $5^2P_{3/2}$ の $F=0$ 、$F=1$、$F=2$ 準位間と、^{85}Rb の第二励起状態 $5^2P_{3/2}$ の $F=2$、$F=3$、$F=4$ 準位間の超微細構造分裂に対して再帰励起分光による測定を行った。本実験では円偏光のポンプ光によって原子系の励起状態の超微細構造準位間に coherence を作り、原子系に弱いプローブ光を入射し、誘導ラマン過程によるヘトロダイン信号 [29] としての強度の変動信号として検出する。測定によって得られた応答波形で次段のポンプ光を強度変調し、測定を行う。そして再びプローブ信号の強度変調として副準位分裂信号を検出をする。このプロセスを繰り返し行うことで再帰励起分光測定を行った。

はじめの節では、本実験におけるインパルス応答関数に対応する量子ビート [30, 31] 現象について述べる。次に実験系について触れた後、得られたデータを示し、その解析を行う。また初回の励起波形としてパルスではなく、擬ランダムピンクノイズ [32] と呼ばれる有限長における理想的な白色ノイズを用いておこなった予備実験について紹介する。

5.1 量子ビート

5.1.1 量子ビート

本実験の場合、インパルス応答に相当するものは量子ビートである。量子ビートとは、励起状態がある周波数で小さく分裂した副準位を持つ系に対して、分裂周波数よりも広い周波数幅を持つパルス光で励起すると、副準位間に coherence が生成され、系の蛍光やプローブ光に量子力学的な干渉を反映したビートが現れる現象である。図 5.1 のような、単純な三準位系を光パルスで励起するモデルを

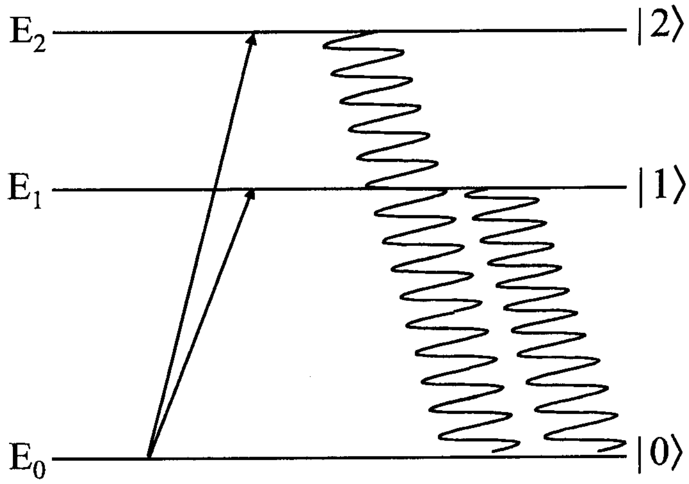

図 5.1: 量子ビート

考える。ここで基底準位 $|0>$ はエネルギー $e_0 = \hbar\omega_0$ を持ち、光励起状態副準位 $|1>$、$|2>$ は、それぞれエネルギー $e_1 = \hbar\omega_1$、$e_2 = \hbar\omega_2$ を持ち、光との相互作用では $|1> - |0>$ 間遷移と $|2> - |0>$ 間の遷移が許されるとする。このとき励起パルス光の周波数広がりが両励起準位にまたがり、副準位の両方に共鳴する偏光特性をもつなら、$|1>$ と $|2>$ のコヒーレントな重ね合わせ状態ができる。この状態から自然放出により原子が基底状態に緩和すると、放出された光はどちらの励起状態から放出されたのか区別することができない。このため $|1> - |0>$ と $|2> - |0>$ の経路の不定性のため量子力学的干渉が現れ、放出される光には周波数 $\omega_{21} = (e_2 - e_1)/\hbar$ のビートが観測される。これを量子ビートと呼んでいる。干

渉現象は物理学において普遍的なものである。これは、ある系が時間発展するとき、2 つまたはそれ以上の可能な道筋があって、実際にどの道筋を進んでいくか区別できないときはいつでも起こる。

5.1.2 coherence の生成と検出

以下では密度行列に基づいて、系の副準位 coherence の生成、検出過程を調べる。再び図 5.1 であらわされる 3 準位系について考える。実験で用いる偏光に対して、3 準位系の相互作用ハミルトニアン h の行列要素の相対値を $<2|h|0>:<1|h|0>=a:b$ とし、簡単のため、a, b は実数で $a^2+b^2=1$ を満たすとする。現象の解析を簡単にするため、ユニタリー行列 u を導入する。

$$u=\begin{pmatrix} a & -b & 0 \\ b & a & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \tag{5.1}$$

u によってもとの三準位系 $\{|2>,|1>,|0>\}$ は新たな三準位系 $\{|2'>,|1'>,|0'>\}$ に式 (5.2) にしたがって変換される。

$$\begin{pmatrix} |2> \\ |1> \\ |0> \end{pmatrix}=u\begin{pmatrix} |2'> \\ |1'> \\ |0'> \end{pmatrix} \tag{5.2}$$

よって三準位系 $\{|2'>,|1'>,|0'>\}$ は、三準位系 $\{|2>,|1>,|0>\}$ によって、

$$\begin{pmatrix} |2'> \\ |1'> \\ |0'> \end{pmatrix}=\begin{pmatrix} a|2>+b|1> \\ -b|2>+a|1> \\ |0> \end{pmatrix} \tag{5.3}$$

変換した系では、$<2'|h|0'>=a^2+b^2=1$、$<1'|h|0'>=ab-ba=0$ となり $|2'>-|0'>$ 間の遷移だけが許されるので、二準位系の $\{|2'>,|0'>\}$ 光励起を考えればよい。

ある時刻 $t=0$ に δ 関数的に短い光パルスで励起する。$t=0_-$ における系の密度行列が、$\rho_{0'0'}=(\rho_{00})=1$ で他の行列要素は 0 とする。パルス励起直後 $t=0_+$ では $\rho_{0'0'}(0_+)=1-\delta$、$\rho_{2'2'}(0_+)=\delta$、$\rho_{1'1'}(0_+)=0$ と書くことができる。δ は光吸収による占有数の変化を表し、吸収された光子数に比例する。光パルスによる励

起の効果はこのように単純な形で表現できる (インパクト励起近似)。一般に光学的 coherence に対応する $\rho_{2',0'}(0_+) \neq 0$ が現れ、光学的自由誘導減衰 (optical free induction decay) を与えるが、ここで取り扱うのは、副準位間の coherence による量子ビートであるので、いまはこの項には興味がない。

励起パルスの切れた後の系の時間発展を調べるために、系の固有状態 $\{|2>, |1>, |0>\}$ について見直すと、

$$\rho_{n,m} = \sum_{n'm'} u^{-1}_{nn'} \rho_{n',m'} u_{m'm} \tag{5.4}$$

の関係式を用いて、

$$\begin{aligned}
\rho_{21}(0_+) &= \rho^*_{12}(0_+) = -ab\delta \\
\rho_{22}(0_+) &= a^2\delta \\
\rho_{11}(0_+) &= b^2\delta \\
\rho_{00}(0_+) &= 1-\delta
\end{aligned} \tag{5.5}$$

が得られる。$|1>$ と $|2>$ の占有数の緩和定数をともに γ_1、$|1> - |2>$ 間の coherence の緩和定数を γ_2 とすると、$t>0$ の密度行列要素の時間発展は、

$$\begin{aligned}
\rho_{21}(t) &= \rho^*_{12}(t) \\
&= -ab\delta \exp[-(i\omega_{21}+\gamma_2)t] \\
\rho_{22}(t) &= a^2\delta' \\
\rho_{11}(t) &= b^2\delta' \\
\rho_{00}(t) &= 1-\delta'
\end{aligned} \tag{5.6}$$

とかくことができる。ここで、$\delta' = \delta \exp(-\gamma_1 t)$ である。 coherence ρ_{21} は減衰振動を示す。

ここで蛍光による coherence $\rho_{21}(t)$ の検出について考える際には、再び $\{|2>', |1>', |0>'\}$ 系で見直すと便利である。量子力学的干渉効果を観測するため副準位の分裂周波数よりも広い帯域の光検出器を用意する。式 (5.4) の逆変換を用いて、系の時間発展は、

$$\begin{aligned}
\rho_{2'2'}(t) = \; &\delta\,[(a^4+b^4)\exp(-\gamma_1 t) \\
&+2\,a^2\,b^2 \cos\omega_{21}t \,\exp(-\gamma_2 t)]
\end{aligned}$$

$$
\begin{aligned}
\rho_{1'1'}(t) &= 2\,\delta[\,a^2\,b^2\,\exp(-\gamma_1 t) \\
&\quad -a^2\,b^2\,\cos\,\omega_{21}t\,\exp(-\gamma_2 t)] \\
\rho_{2'1'}(t) &= \delta\,ab[(a^2-b^2)\,\exp(-\gamma_1 t) \\
&\quad -a^2\,\exp\{-(i\omega_{21}+\gamma_2 t)\} \\
&\quad +b^2\,\exp\{+(i\omega_{21}-\gamma_2 t)\} \qquad (5.7)
\end{aligned}
$$

のようになる。ここで、例えば、励起光と同じ偏光または直交する偏光の蛍光の成分を観測することを考えれば、蛍光の強度はそれぞれ式(5.7)の $\rho_{2'2'}(t)$、$\rho_{1'1'}(t)$ に比例するので、その時間変化から ω_{21}、γ_1、γ_2 の測定を行うことができる。この蛍光強度の振動が量子ビートの導入で述べた、副準位 coherence に起因する $|2>-|0>$、$|1>-|0>$ 遷移（$\{|2>,|1>,|0>\}$ 系で見た場合）の量子力学的干渉効果である。

また適当な偏光の短パルスのプローブ光を用いて $\rho_{0'0'}(t)-\rho_{2'2'}(t)$、$\rho_{0'0'}(t)-\rho_{1'1'}(t)$ に対する吸収率または屈折率の時間変化を測定することによっても ω_{21}、γ_1、γ_2 の測定が可能である。一方副準位間にまたがらない狭帯域なプローブ光を用いる場合、$\{|2>,|1>,|0>\}$ 系で考えると現象を把握しやすい。$|2>-|0>$ 間の遷移とプローブ光が共鳴に近いとすると光と原子系の相互作用により、インパクト励起によって生じた $\rho_{21}(t)$ が、$\rho_{10}(t)$ に移換する (coherence transfer)。このように $\rho_{10}(t)$ によって生じた分極とプローブ光が干渉する、つまりラマンヘテロダイン的な検出を行っていると考えることができる [29]。

励起状態を扱った本実験においては、量子ビートをデルタ関数的な入力励起に対する応答信号、つまりインパルス応答として扱うことができる。副準位の占有数の緩和 γ_1 が副準位間の coherence の緩和 γ_2 を引き起こす支配的な要因である、つまり $\gamma_2 \approx \gamma_1 = \gamma$ であるとすると、原子系の単純化されたインパルス応答は一般に次のようにかける。

$$
h(t) = \begin{cases} (1+a\cos\omega_0 t)\mathrm{e}^{-\gamma t} & (t \geq 0) \\ 0 & (t < 0) \end{cases} \qquad (5.8)
$$

5.2 再帰励起測定系

再帰励起分光の実験配置図を図 5.2 に示す。大まかな構成はNaで行った基底状態の測定実験と同様である。光源には、アルゴンレーザー励起の、リングキャヴィティーチタンサファイアレーザー (899 Ring Cavity Ti:S) を用いた。まずレーザー光を A/O 変調器で繰返し周期 60Hz、パルス幅 5 μ s のパルスに切り出す。これは、連続光による Rb の D_2 線遷移の飽和効果を抑えるためである。また A/O 変調器で切り出された光は、音波による光子の回折を利用しているため光の周波数がシフト（200MHz）する。そのため切り出した後の光を Rb 原子の D_2 線の共鳴周波数に同調するようにする。また本実験で用いた Rb 原子気体のドップラー幅はNa 原子ドップラー幅の約半分であり、レーザーの長期的なドリフトが気になったためレーザーの周波数を原子線にロックした (付録E) 。

切り出されたレーザーは、ビーム・スプリッターでポンプ光とプローブ光に分ける。ポンプ光は、電気光学変調器を通して強度変調をかける。入射光の偏光方向と E/O 結晶（$LiTaO_3$）の光軸との角度を 45° にし、その出力光を $\lambda/4$ 波長板とグランプリズムに通すことにより、強度変調光を発生させる。電気光学結晶に加える電場は、AWG で発生させ、パワーアンプで増幅したものを用いる。また強度変調を加えるとき、線形性を保ちつつ変調度が大きくなるように、AWG の電場の振幅と $\lambda/4$ 板の回転角で調整する。色素レーザーを用いた前章の実験よりもチタンサファイアレーザーを用いた本実験では広帯域の E/O 結晶を使用でき、その帯域は 500MHz である。AWG のサンプリングレートは 1GHz/s でアナログ帯域は 230MHz、パワーアンプの帯域は 400MHz であるので、本実験で扱う二つの超微細分裂信号（72MHz と 156MHz）の観測には問題ない。強度変調を加えたポンプ光は、$\lambda/4$ 波長板で円偏光にしたあと Rb セルに入射させる。実験では、初回の励起光としてパルス状に強度変調したものを用いて測定を行った。

プローブ光は、直線偏光のままセルに入射させる。励起光とプローブ光の交差角は約 3° で交差位置でのビーム径は、励起光プローブ光とも約 2mm であった。Rb セルに入射する直前で励起光の強度は約 1mW、プローブ光の強度は約 0.1mW であった。また Rb セル内に緩衝気体は含まれておらず Rb セル内の温度はおよそ 350K であった。Na 原子のゼーマン信号の実験と比べ、Rb 原子の励起状態の超微

細構造分裂信号の周波数は高く一般的にポラリメーターを用いた検出は困難である。そこで本実験ではRbセル内を透過してきたプローブ光をグランプリズムに通して、元の偏光と直交する成分を通し、高速なアバランシェ・フォトダイオード(Avalanche Photo Diode; APD)で検出する(付録C)。Rbセルに入射したプローブ光はセル内でRb原子の分極と干渉し、グランプリズムを通すことによりバックグラウンドの影響を減らしRb原子と相互作用した光を効率よく検出できる。APDは受光面の直径が1mm、帯域が700MHzのものを使用した。APDで検出した強度波形を帯域500MHzのアンプで増幅し、高域通過フィルターで5MHz以下の振動成分を取り除きデジタル・オシロスコープに取り込む。デジタルフィルターを通すことによって、現在興味のある帯域にある複数の準位間coherenceを反映する信号以外の縮退したゼーマン準位間のcoherence信号を取り除いた。

得られた強度波形をデジタル・オシロスコープに取り込み、波形データを10000回積算したものをコンピューターに転送した。波形データを高速フーリエ変換(FFT)して再帰励起分光第1回目の強度波形のパワースペクトルを得る。また今興味のある周波数領域外の周波数成分をカットした強度波形をAWGに転送した。この波形を次段の測定においてE/O変調器を駆動する電圧波形として使い、励起光を変調する。再帰励起分光第2回目の測定では、この励起光を用いて先ほどと同じ方法で分光を行い得られた波形データをFFTして再帰励起分光第2回目のパワースペクトルを得る。そして得られた波形データをAWGから出力し第3回目を行うための励起光を作る。この操作をn回繰り返しn回目のパワースペクトルを得る。

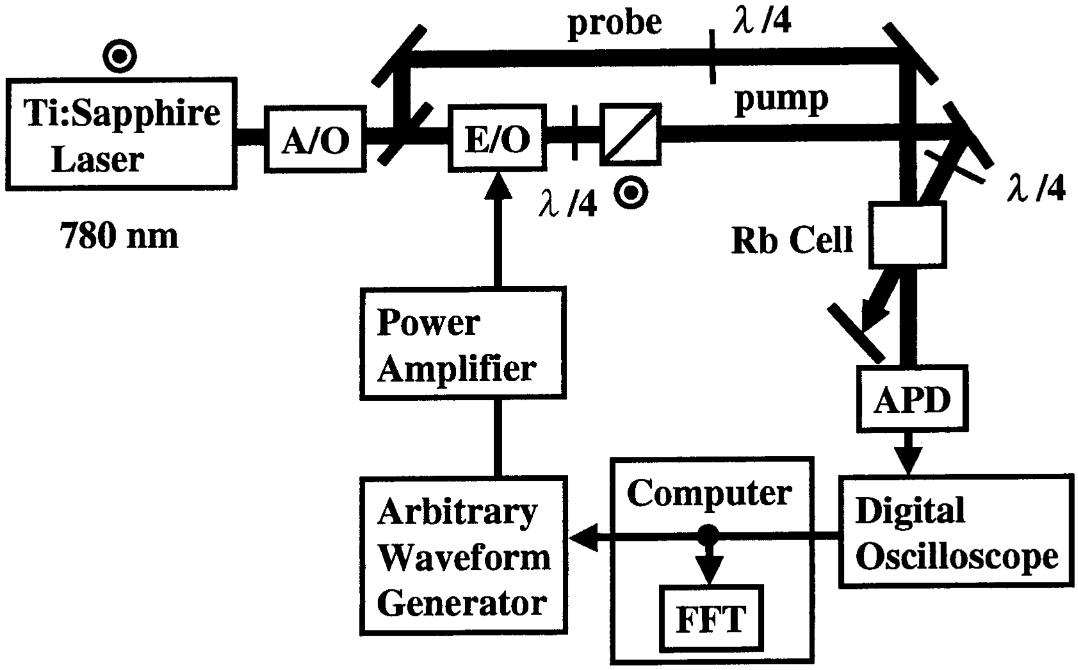

図 5.2: 実験配置図

5.3 共鳴周波数の測定結果

ここでは、パルスを初回励起光に用いた再帰励起分光による ^{87}Rb の第二励起状態 $5^2P_{3/2}$ の $F=0$、$F=1$、$F=2$ 準位間と ^{85}Rb の第二励起状態 $5^2P_{3/2}$ の $F=0$ 、$F=1$、$F=2$ 準位間超微細構造分裂周波数の測定実験の結果について述べる。

まず ^{87}Rb 原子の励起状態 $F=0$、$F=1$ 準位間の超微細構造分裂に対して、再帰励起分光測定によって得られた結果を示す。この超微細構分裂信号に対しては、25 回測定を行った。1、5、25 回目の応答波形とそれぞれの応答波形より計算したパワースペクトルを周波数領域 50MHz~100MHz の範囲で示したものを図 5.3 に示す。1 回目の応答波形は、パルス励起による応答波形であり、量子ビートそのものである。再帰励起回数を増やしていくにしたがって、応答波形のビート部分が長く伸びていくのがわかる。これは、ポンプ光による励起がビート周波数と同期していることによる協力的な干渉効果により生じている。ビート部分の伸びは、スペクトル幅が狭くなっていることを示している。

つぎに励起状態 $F=1$、$F=2$ 準位間の超微細構造分裂に対して、再帰励起分

光測定によって得られた結果を示す。ここでも 25 回の再帰励起測定を行った。1、5、25 回目の応答波形と周波数領域 130MHz~180MHz の範囲で、応答波形をフーリエ変換して得られたパワースペクトルを図 5.4 に示す。こちらも同様に再帰励起回数を増やしていくごとにスペクトル幅が狭くなっていくことがわかる。ここで測定した二つの共鳴周波数より励起状態の超微細構造を計算することができる。

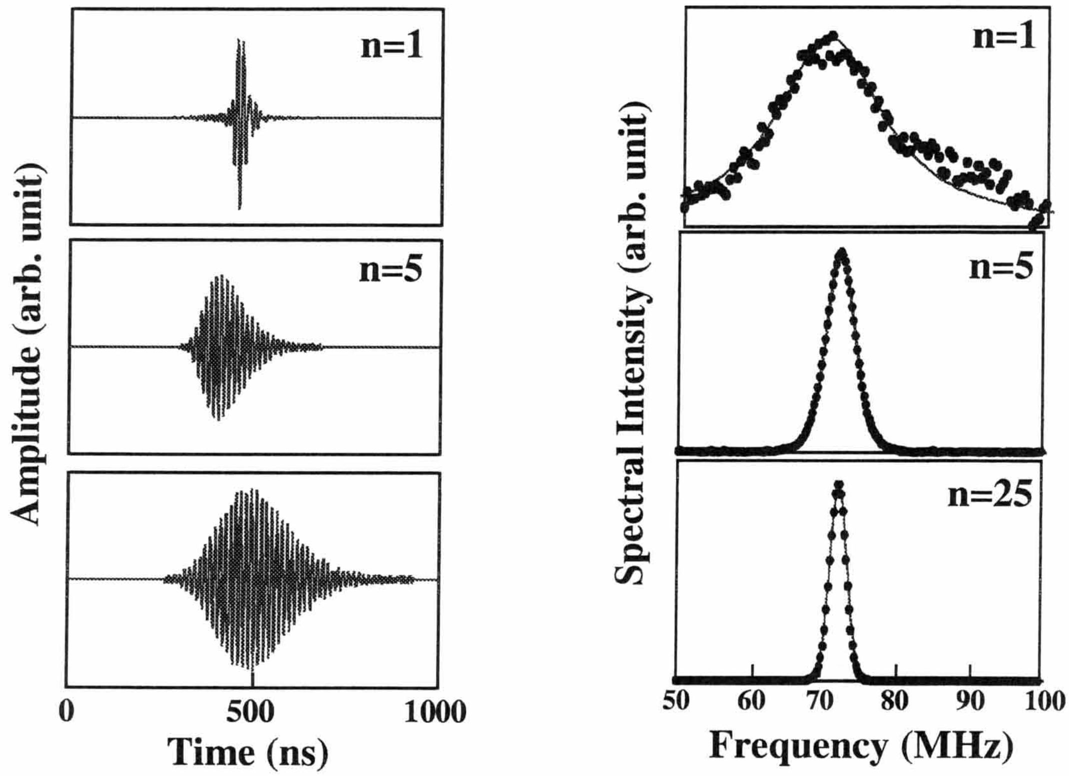

図 5.3: ^{87}Rb 原子 D_2 線励起状態 $F=0$、$F=1$ 準位間の超微細構造分裂に対応する 72MHz の応答波形

同様に ^{85}Rb 原子に対して行った、超微細構造分裂周波数の測定実験について述べる。ここでは ^{85}Rb の第二励起状態 $5^2P_{3/2}$ の $F=1$、$F=2$、$F=3$ 準位間超微細構造分裂周波数について測定を行った。まず ^{85}Rb 原子の励起状態 $F=1$、$F=2$ 準位間の超微細構造分裂に対して、再帰励起分光測定によって得られた結果を示す。この超微細構分裂信号に対しては、25 回測定を行った。1、5、25 回目の応答波形とそれぞれの応答波形より計算したパワースペクトルを周波数領域 40MHz~90MHz の範囲で示したものを図 5.5 に示す。先に述べた ^{87}Rb 原子について行った実験と

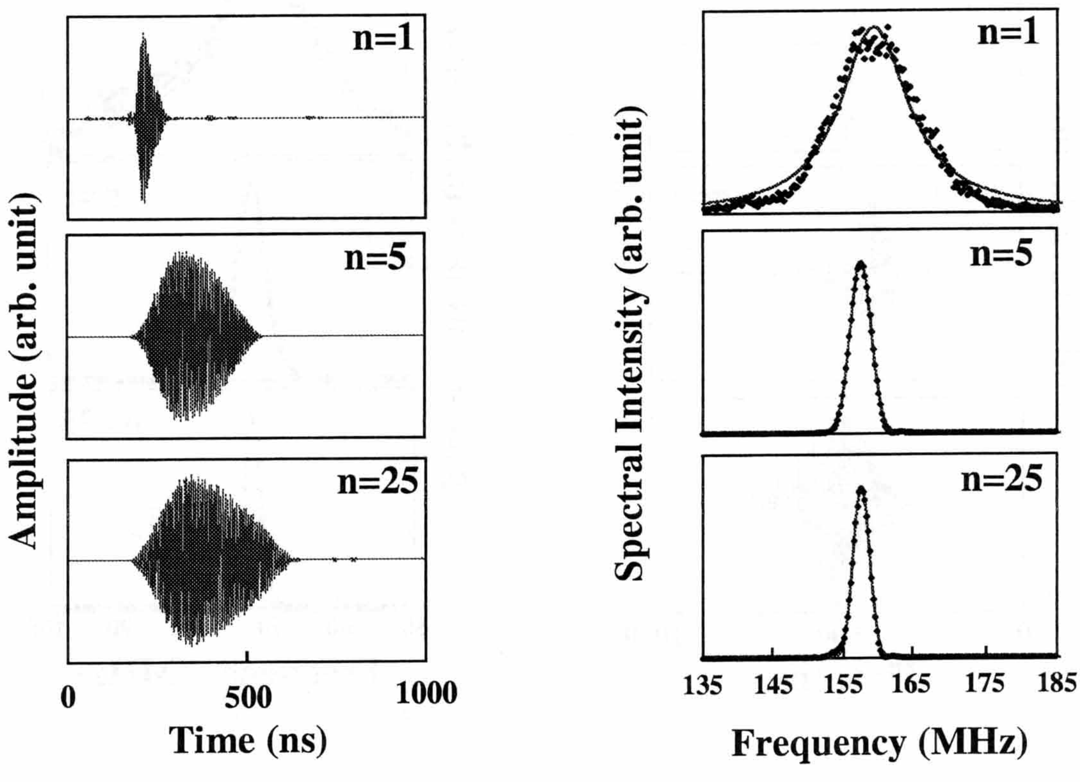

図 5.4: ^{87}Rb 原子 D_2 線励起状態 $F=1$、$F=2$ 準位間の超微細構造分裂に対応する 156MHz の応答波形

同様に振動成分が長くなり、スペクトルの尖鋭化の様子を示している。

つぎに励起状態 $F=2$、$F=3$ 準位間の超微細構造分裂に対して、再帰励起分光測定によって得られた結果を示す。ここでも 25 回の再帰励起測定を行った。1、5、25 回目の応答波形と周波数領域 95MHz~145MHz の範囲で、応答波形をフーリエ変換して得られたパワースペクトルを図 5.6 に示す。こちらも同様に再帰励起回数を増やしていくごとにスペクトル幅が狭くなっていくことがわかる。

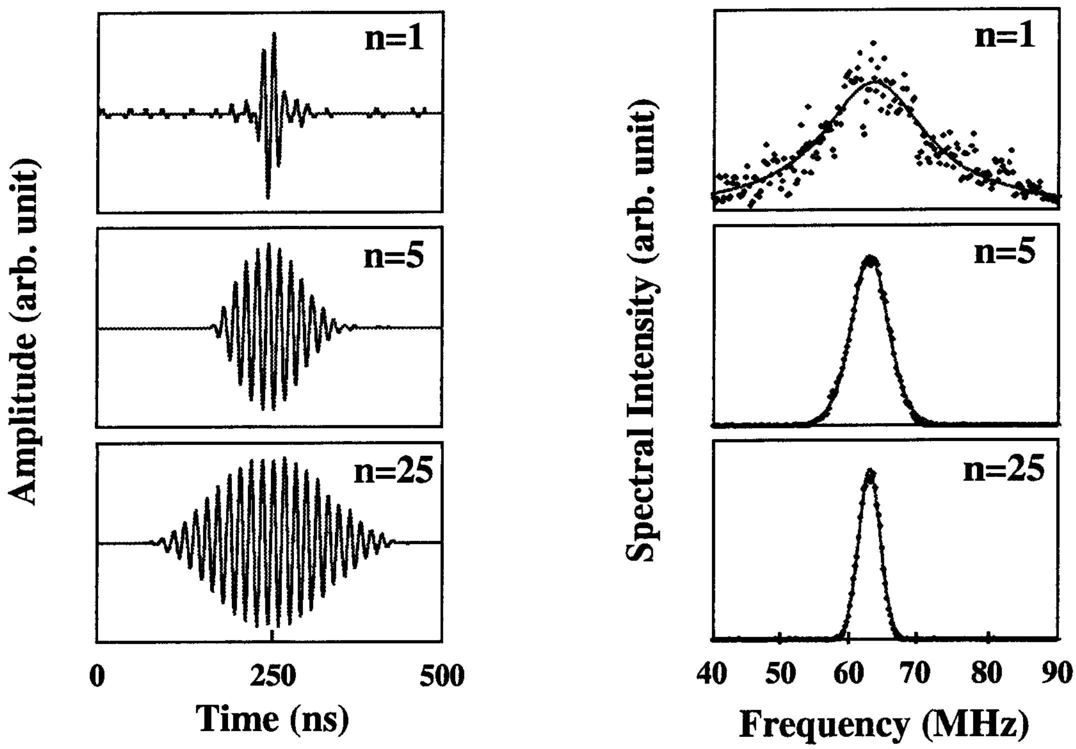

図 5.5: ^{85}Rb 原子 D_2 線励起状態 $F=1$、$F=2$ 準位間の超微細構造分裂に対応する 63MHz の応答波形

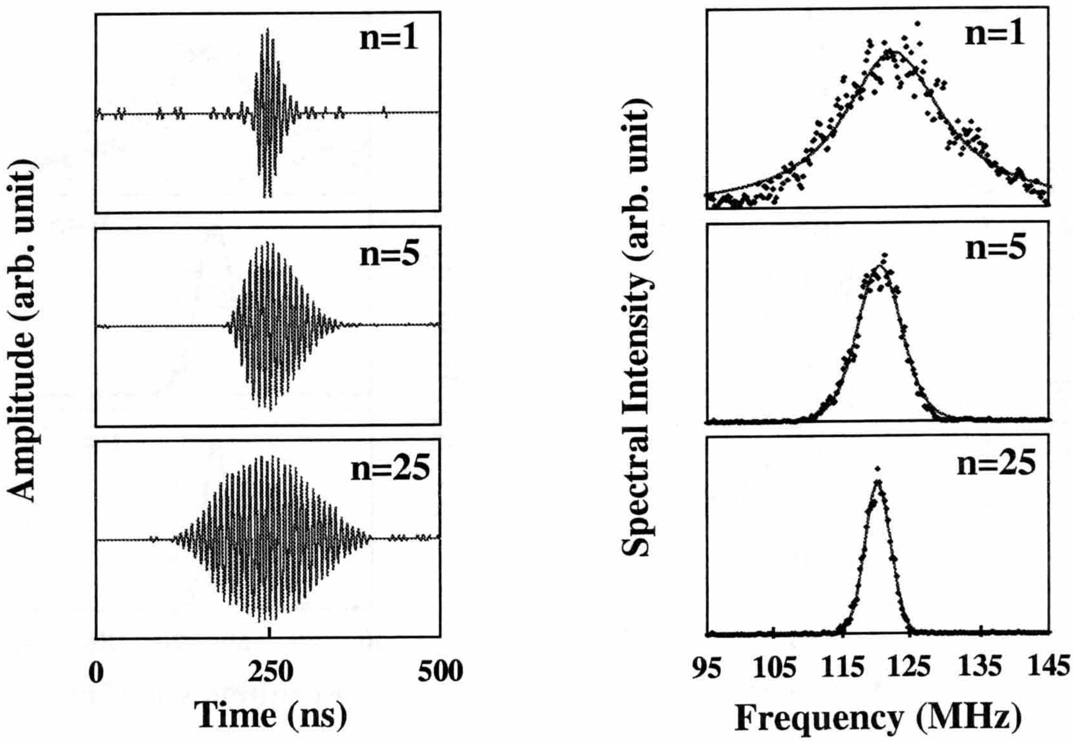

図 5.6: ^{87}Rb 原子 D_2 線励起状態 $F=2$、$F=3$ 準位間の超微細構造分裂に対応する 120MHz の応答波形

5.4 解析と考察

この節では、前節で得られた超微細構造分裂信号のパワースペクトルを2章で述べた理論と比較して解析する。実験データを Levenberg-Marquardt 法 [33] により理論曲線へフィティングし、スペクトル幅と中心周波数を求める。得られたスペクトル幅の再帰回数に対する依存性を調べ、二つの共鳴周波数より超微細構造定数を決定した。最後に残った問題と今後の課題について述べる。

5.4.1 RbD_2 線励起状態の超微細構造分裂周波数

2章で議論したように本実験の再帰励起分光によって得られるパワースペクトルは、式 (5.9) の形状になることが期待される。

$$|G_n(\omega)|^2 \propto \left(\frac{1}{(\omega-\omega_0)^2+\gamma^2}\right)^n \tag{5.9}$$

まず D_2 線励起状態の $F=0$ と $F=1$ の間の超微細構造分裂信号について述べる。実験データに対するフィッティングパラメーターをスペクトルの高さ、ω_0、γ として、最小二乗法による理論式へのフィッティングを行った。その結果求まったスペクトルの半値全幅の再帰励起回数に対する依存性を図 5.7 に示す。縦軸がスペクトル幅 $\Delta\omega/2\pi$(MHz) であり、横軸が再帰励起の繰り返し回数 n で、いずれも対数表示で示している。実線は理論曲線で、破線は自然幅である 12.2MHz を示している。式 (5.9) のスペクトルの半値全幅は、2章で求めたように十分大きい再帰励起回数 n では近似的に

$$\frac{\Delta\omega}{2\gamma} \simeq \sqrt{\frac{1}{n}\log 2} \tag{5.10}$$

と記述される。実験で得られたスペクトルの半値全幅は、繰り返し回数の増加に対して理論と良く一致した振る舞いを示している。実験の結果、25回の再帰励起によって 2.7MHz のスペクトル幅を持つスペクトルが得られた。これを図 5.8 に示す。この幅は自然幅の 1/4 以下である。実験結果をフィッティングすることにより求まった中心周波数は、72.59 ± 0.01MHz となった。

同様に D_2 線励起状態の $F=1$ と $F=2$ の間の超微細構造分裂信号についても、スペクトル幅の再帰励起回数依存性を図 5.9 に、また 25回の再帰励起によって得

られたパワースペクトルを図 5.10 に示す。25 回に再帰励起により 3.0MHz のスペクトル幅を持つスペクトルが得られた。フィッティングにより $F=1$ と $F=2$ の間の超微細構造分裂の中心周波数は、157.50 ± 0.01MHz となった。

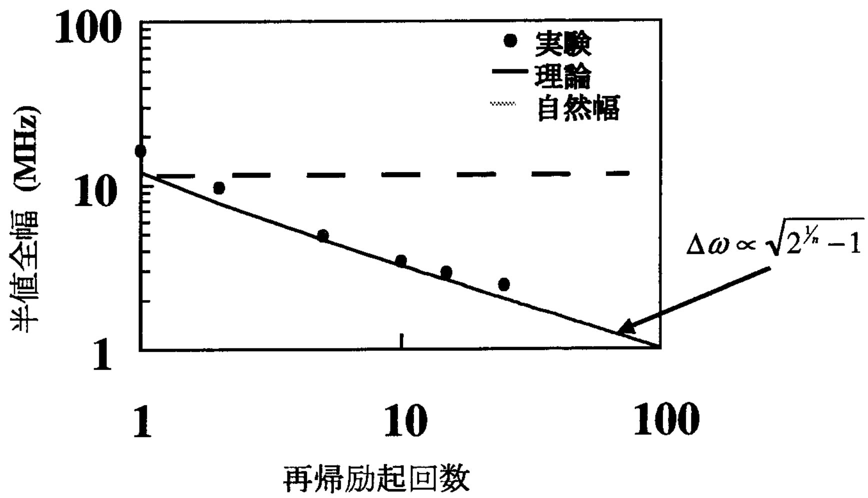

図 5.7: RbD_2 線の励起状態の超微細構造分裂信号（F=0↔F=1）に対するスペクトル幅の再帰励起回数依存性。

以下に ^{85}Rb 原子について行った同様の信号について解析を行う。^{85}Rb 原子 D_2 線励起状態の分裂周波数は 30MHz、60MHz、120MHz 付近にありどれも本実験で十分測定できる帯域にある。大きなDC 成分からの解離及び各周波数間隔の分離という観点から高い周波数を持つ二つの共鳴線を採用した。まず $F=2$ と $F=3$ の間の超微細構造分裂信号についてのスペクトル幅の再帰励起回数依存性を図 5.11 に、また 25 回の再帰励起によって得られたパワースペクトルを図 5.12 に示す。25 回の再帰励起により 3.6MHz のスペクトル幅を持つスペクトルが得られた。フィッティングにより $F=2$ と $F=3$ の間の超微細構造分裂の中心周波数は、62.88 ± 0.01MHz となった。次に $F=3$ と $F=4$ の間の超微細構造分裂信号についてのスペクトル幅の再帰励起回数依存性を図 5.13 に、また 25 回の再帰励起によって得られたパワースペクトルを図 5.14 に示す。25 回に再帰励起により 4.4MHz のスペクトル幅を持つスペクトルが得られた。フィッティングにより $F=3$ と $F=4$ の間の超微細構造分裂の中心周波数は、120.06 ± 0.02MHz となった。

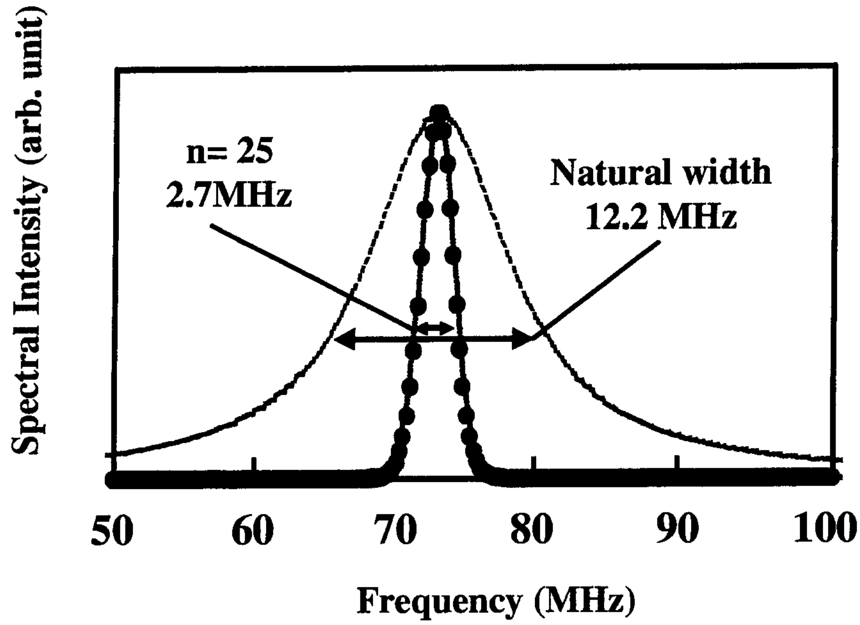

図 5.8: 再帰励起回数 25 回に対するパワースペクトル（F=0↔F=1）。破線は自然幅を示す。

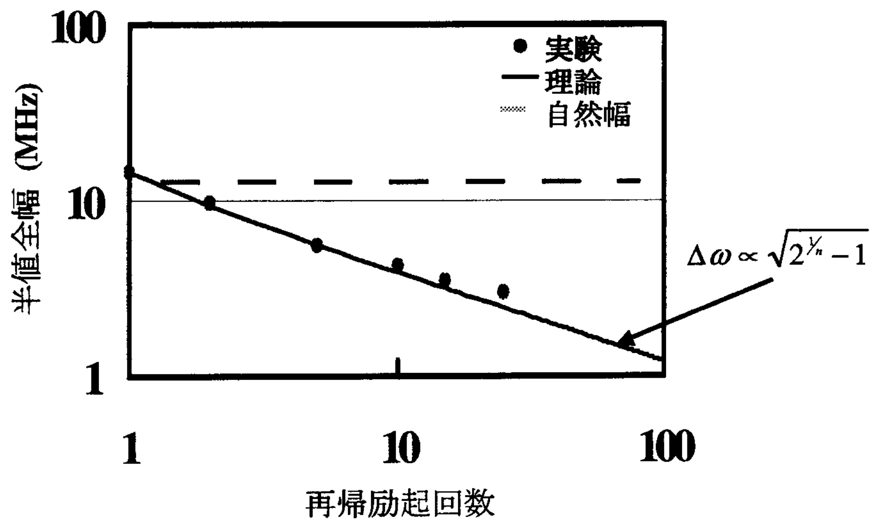

図 5.9: RbD_2 線の励起状態の超微細構造分裂信号（F=1↔F=2）に対するスペクトル幅の再帰励起回数依存性。

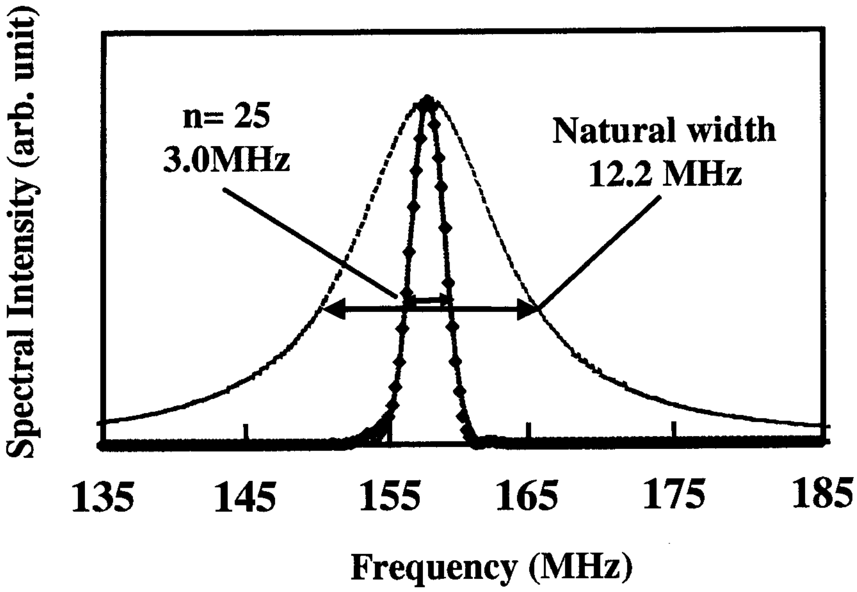

図 5.10: 再帰励起回数 25 回に対するパワースペクトル（F=1↔F=2）。破線は自然幅を示す。

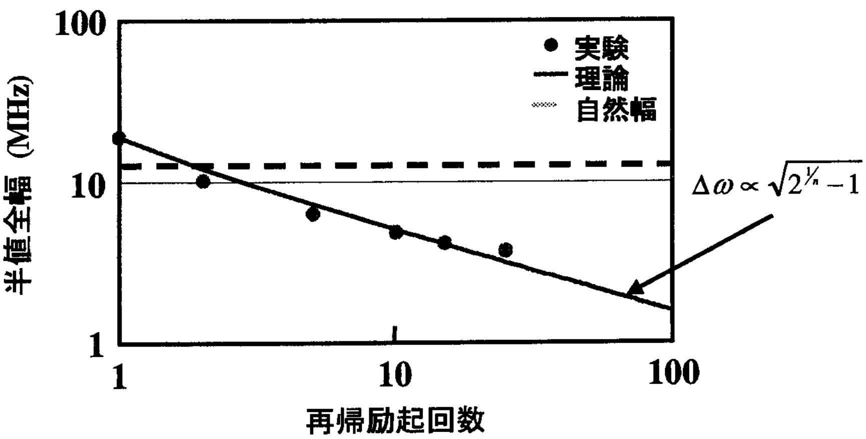

図 5.11: RbD_2 線の励起状態の超微細構造分裂信号（F=2↔F=3）に対するスペクトル幅の再帰励起回数依存性。

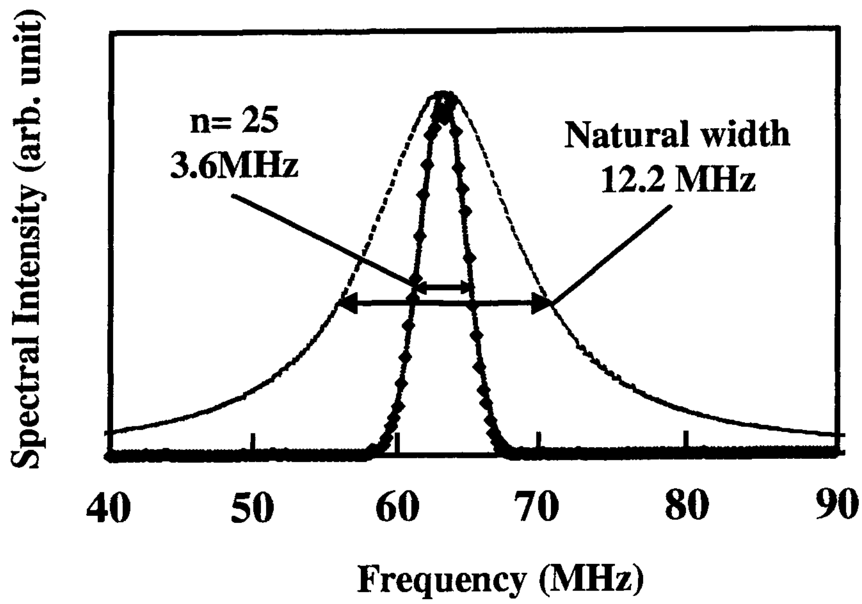

図 5.12: 再帰励起回数 25 回に対するパワースペクトル（F=2↔F=3）。破線は自然幅を示す。

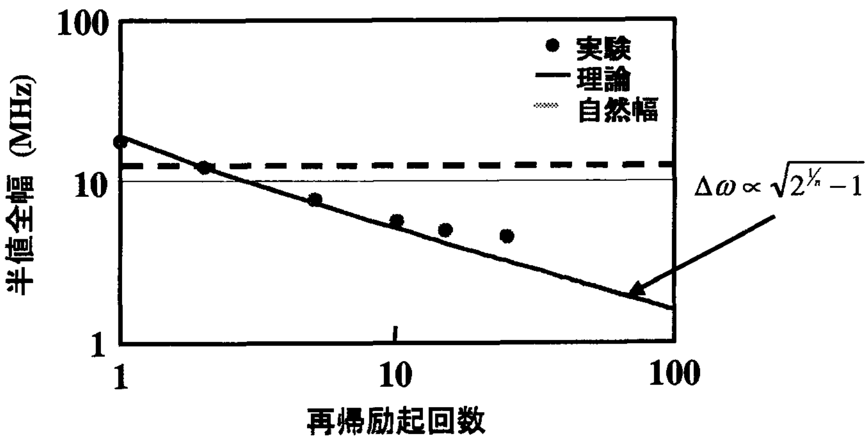

図 5.13: RbD_2 線の励起状態の超微細構造分裂信号（F=3↔F=4）に対するスペクトル幅の再帰励起回数依存性。

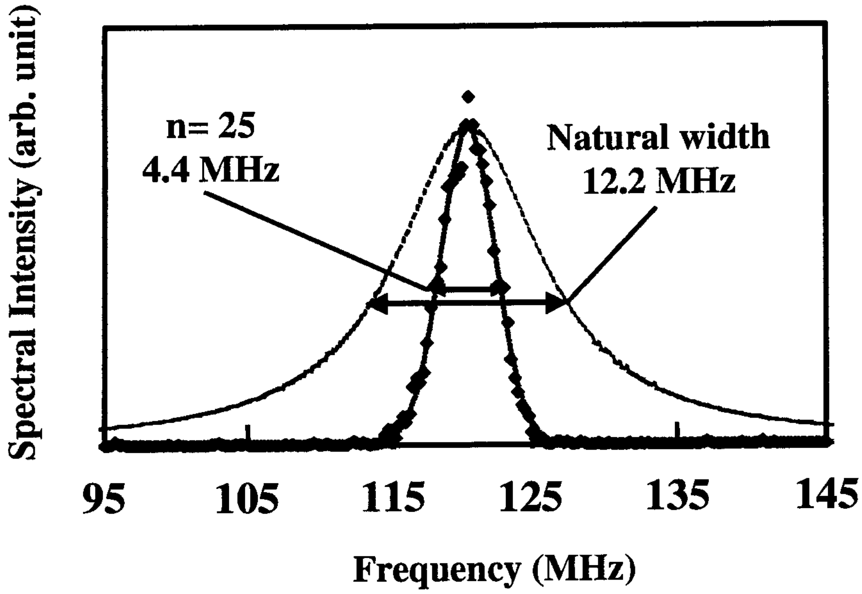

図 5.14: 再帰励起回数 25 回に対するパワースペクトル（F=3↔F=4）。破線は自然幅を示す。

5.4.2 超微細構造定数の計算と考察

3.2 節で述べたように、超微細構造分裂周波数の二つの測定値より励起状態の超微細構造定数 A, B を求めることができる。^{87}Rb の実験から得られた ^{87}Rb 二つの共鳴周波数に対する測定値は超微細構造定数 A、B と

$$\begin{aligned} \mathrm{A}-\mathrm{B} &= 72.59 \pm 0.01(\mathrm{MHz}) \\ 2\mathrm{A}-\mathrm{B} &= 157.50 \pm 0.01(\mathrm{MHz}) \end{aligned} \tag{5.11}$$

の関係がある。これらの関係式から 2 つの超微細構造定数は

$$\begin{aligned} \mathrm{A} &= 84.91 \pm 0.02(\mathrm{MHz}) \\ \mathrm{B} &= 12.32 \pm 0.03(\mathrm{MHz}) \end{aligned} \tag{5.12}$$

と決まる。過去の文献値と今回の実験より得られた値を表 5.1 のようにまとめることができる。

文献 [19] は、Senitzky らによって行われた原子ビームにおける磁気共鳴 [17] の実験である。文献 [20] で Schussler らによって行われたより高精度な実験として

表 5.1: ^{87}Rb 原子 $5^2P_{3/2}$ 状態の超微細構造定数

	A (MHz)	B (MHz)	文献
文献値	85.8 ± 0.7	11.8 ± 0.6	[19]
	84.845 ± 0.055	12.61 ± 0.13	[20]
	84.55 ± 0.58	12.6 ± 1.4	[21]
実験値	84.91 ± 0.02	12.32 ± 0.03	

光励起と磁気共鳴法を組み合わせた 2 重共鳴法 [34] の実験がある。文献 [21] は Beacham らによって純粋に光学的な実験が行われたが、これは Schussler らによって行われた実験よりも低い精度の結果を与えている。過去の文献値間にエラーバーを超えた乖離が見られる。磁気相互作用定数 A に関して本実験の結果は、もっとも精度の良い Schussler らの実験と近い。しかし電気四重極相互作用定数 B に関しては今回の結果は他の文献値と比較すると乖離が大きく、さらに系統的な誤差の再評価が必要と思われる。

同様に ^{85}Rb 原子の信号について解析を行う。測定周波数と超微細構造定数 A、B は

$$
\begin{aligned}
3A - \frac{9}{20}B &= 62.88 \pm 0.01(\mathrm{MHz}) \\
4A + \frac{4}{5}B &= 120.06 \pm 0.02(\mathrm{MHz})
\end{aligned}
\tag{5.13}
$$

の関係がある。これらの関係式から 2 つの超微細構造定数は

$$
\begin{aligned}
A &= 24.841 \pm 0.003(\mathrm{MHz}) \\
B &= 25.871 \pm 0.018(\mathrm{MHz})
\end{aligned}
\tag{5.14}
$$

と決まる。過去の文献値と今回の実験より得られた値を表 5.2 のようにまとめることができる。

^{85}Rb 原子 $5^2P_{3/2}$ 状態に関しては、先ほどの Schussler らと Beacham らの実験に加え、Arimondo らの行った交差分光法 [27] による測定結果を文献 [22] に示す。ここで、Beacham らの行った実験値の乖離が顕著であるが、信頼度は低い [18]。こ

表 5.2: ^{85}Rb 原子 $5^2P_{3/2}$ 状態の超微細構造定数

	A (MHz)	B (MHz)	文献
文献値	25.010 ± 0.022	25.89 ± 0.10	[20]
	24.99 ± 0.01	25.88 ± 0.03	[22]
	26.19 ± 0.20	18.9 ± 1.0	[21]
実験値	24.841 ± 0.003	25.871 ± 0.018	

れを除いて過去の文献値と比較すると、電気四重極相互作用定数については、文献値と誤差の範囲でよく一致している。

過去の文献と比較して、現在のところ同程度の精度の結果は得られているが、さらにより精度の高いデータが必要である。現在精度を制限しているのは、再帰励起回数に対して線幅の狭まりの飽和がおこっているため十分な狭窄化を行うことができないからである。レーザー周波数の長時間スケールでのゆっくりした揺らぎは、FM 分光法によるフィードバック (付録 E) を行うことにより 1 MHz 程度に抑えている。これは現在のレーザーのスペクトル幅と同程度である。基底状態で行ったゼーマン副準位に対して行った実験では、バッファガスを封入しており、飽和分光をおこなってもホールが観測されない程度に、光の遷移の均一幅は広げられドップラー幅は逆に狭められている。このため系の応答に対するレーザーの長期的、短期的な揺らぎは比較的小さいと思われる。一方 Rb 原子の励起状態の超微細構造に対して行った本実験では、バッファーガスを封入していない。これは原子の励起状態はバッファーガスの衝突による影響が大きく、超微細構造間で容易にミキシングが起こってしまい [35, 36]、本来観測したい信号と変わってしまうことを避けるためである。自由な熱気体は各々が狭い均一幅を持ち広い不均一な広がりをもつスペクトルを構成している。本来副準位 coherence を元にしている量子ビート現象は、序論で述べたように、レーザーの線幅に依らないものである。現在その具体的な要因がわかっていないが、本実験のように繰り返し行う実験では、レーザーの短期的な揺らぎが影響する可能性が考えられる。そこで原子線スペクトルとレーザー線幅の相対的なゆらぎ幅を軽減するためレーザーの線幅を広

げて実験を行うことが考えられる。これにはレーザーに位相変調することにより、できれば、ドップラー幅程度まで広げるなどをすればよい。また別の振幅の変調をノイズ的にかけることにより、低パワーで飽和効果を軽減することによりより良いデータが得られる可能性もある。最後にこのために行った擬ランダムピンクノイズを用いた予備実験について述べる。

5.5 擬ランダムピンクノイズを用いた実験

線型定常システムに基づいた再帰励起分光法において、初回の励起光のスペクトルの均一性はとても重要である。また前節で行っていた実験における飽和効果を軽減する方法としても、ノイズ的に振幅変調を行った励起光を用いるのは有用な方法と考えられる。図 5.15 のようにパルスと理想的なホワイトノイズは周波数領域で見ると、同質な均一スペクトルを持つ。本来ノイズはストカスティックな性

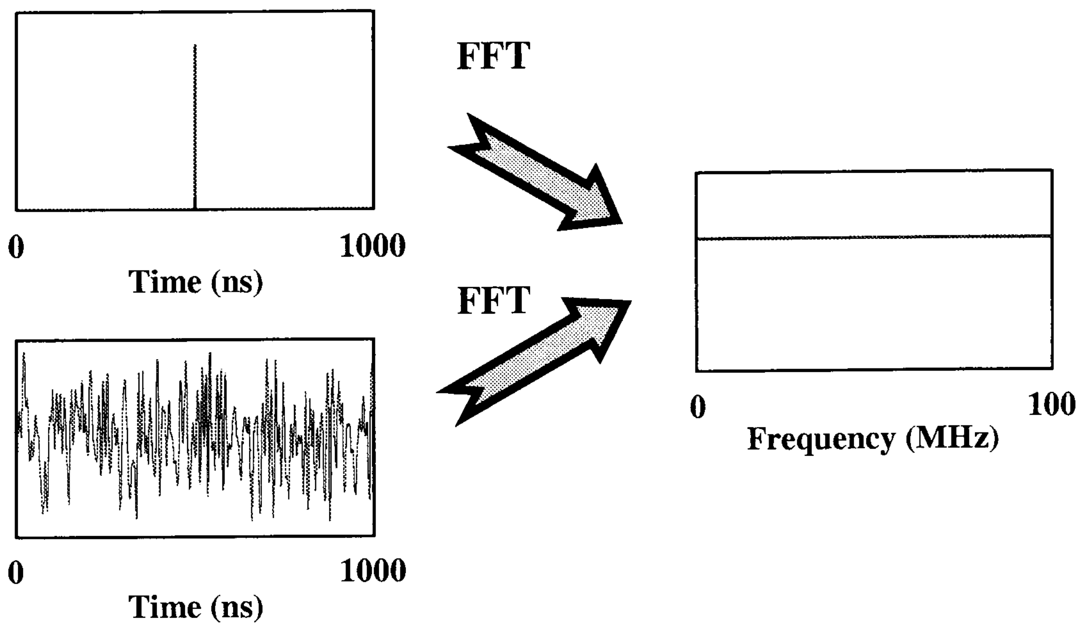

図 5.15: パルスと理想的なホワイトノイズのスペクトル

質を持つためシングルショットでは、毎回スペクトルはばらつき無限長もしくは大量のサンプルのもと均一になると考えられる。そこで有限長、有限帯域で理想的なフラットなノイズを逆に周波数空間で定義し、時間波形に変換するというアイディアが 1970 年代から考案された [37, 38]。特に最近では、擬ランダムピンクノイズの研究が行われている [32]。擬ランダムピンクノイズの定義は、

$$x_{PPN}(t) = A\left[\pm\frac{1}{2} + \sum_{m=1}^{M-1}\cos(\theta_m - m\Delta\omega t) \pm \frac{1}{2}\cos(M\Delta\omega t)\right] \tag{5.15}$$

のようにかける。ここで A は任意定数、$\pm$ は符号のランダムな選択を示し、θ_m は各要素 m の位相を表す。これは周期 $2\pi/\Delta\omega$ で特定の帯域でフラットなスペク

トルを持つ一般的な擬ランダム系列である。スペクトル強度は定義から以下のようになる。

$$|X_{PPN}(m\Delta\omega)|^2 = \begin{cases} A^2/4 & (m = -M, -M+1, \cdots, +M) \\ 0 & (\text{otherwise}). \end{cases} \tag{5.16}$$

擬ランダムピンクノイズの各位相をランダムにとっている cos 関数の重ね合わせであるので、中心極限定理から振幅分布はガウス分布に近づく。統計的性質としてその振幅の平均は $\overline{x_{PPN}} = 0$ となり、分散量は $\sigma = \sqrt{M/2}A$ となる。分散 σ で規格化した 1024 個のデータ点を持つ波形と度数分布を図 5.16 に示す。また乱雑

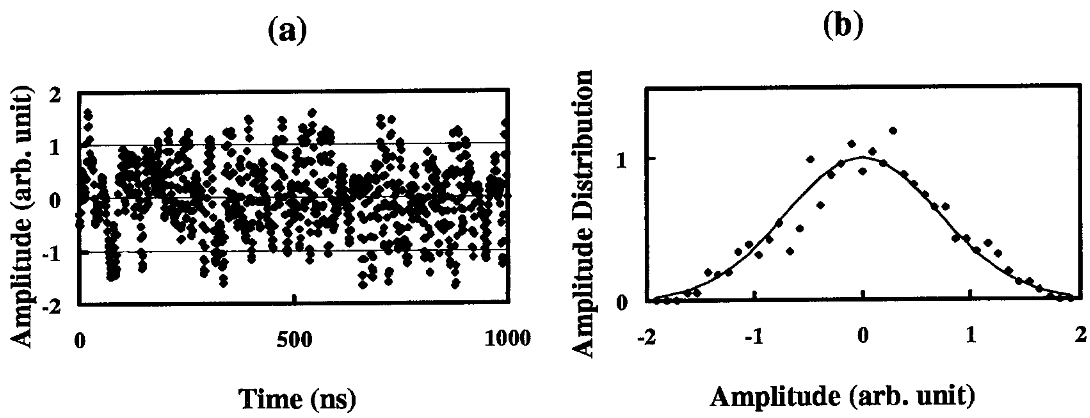

図 5.16: (a) 規格化された擬ランダムピンクノイズの波形。(b) 規格化された擬ランダムピンクノイズの度数分布。

なガウス分布を持つ振幅で作成したノイズと、擬ランダムピンクノイズのスペクトルを並べたものを図 5.17 に示す。

このノイズを用いて E/O で強度変調を行い、157MHz 付近に共鳴周波数を持つ Rb D_2 線励起状態の $F=1$ と $F=2$ の間の超微細構造分裂信号に対して行った実験結果を以下に示す。図 5.18 は入力の波形とスペクトルで図 5.19 は応答の波形とスペクトルである。図 5.18 の (b) のスペクトルは全体になだらかな傾きを持っているのは、E/O 及び実験系の周波数特性のためで、これはガウス的な傾きを想定して規格化を行う。S/N はあまりよくないが応答波形のスペクトルは、157MHz 付近にピークが得られた。S/N を低下させる一つの要因として、前節の実験でも

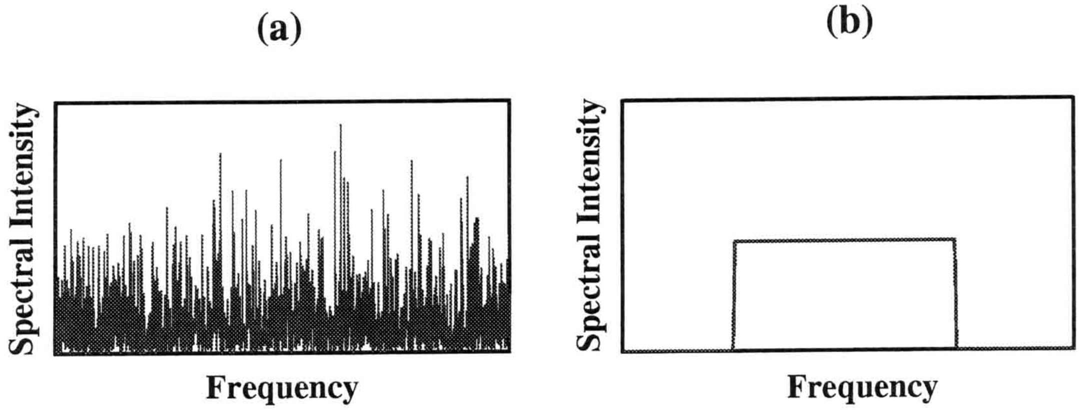

図 5.17: (a) ガウス分布振幅から作成したノイズのスペクトル。(b) 擬ランダムピンクノイズのスペクトル。

述べた短期的な揺らぎが考えられ、特に長いエンヴェロップの信号になると、顕著に影響が現れるものと考えられる。

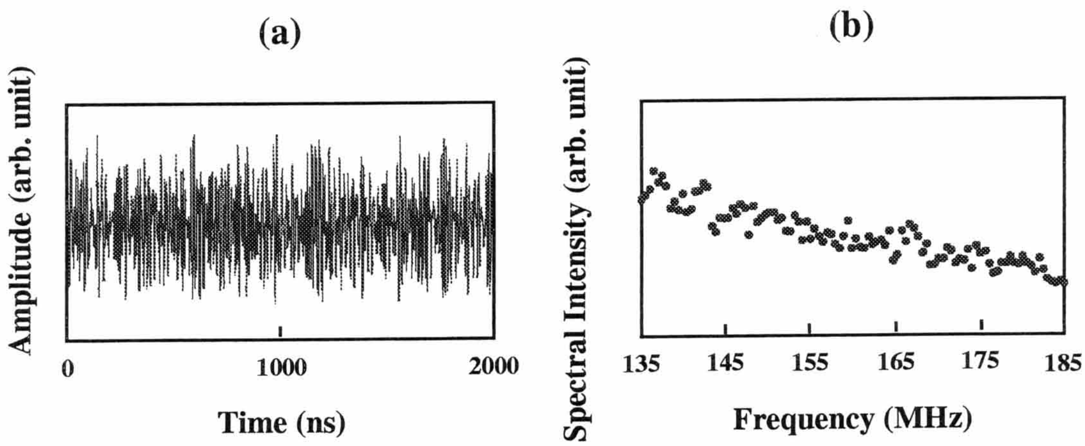

図 5.18: (a) 実験的に得られたピンクノイズの波形。(b) 実験的に得られたピンクノイズのスペクトル。

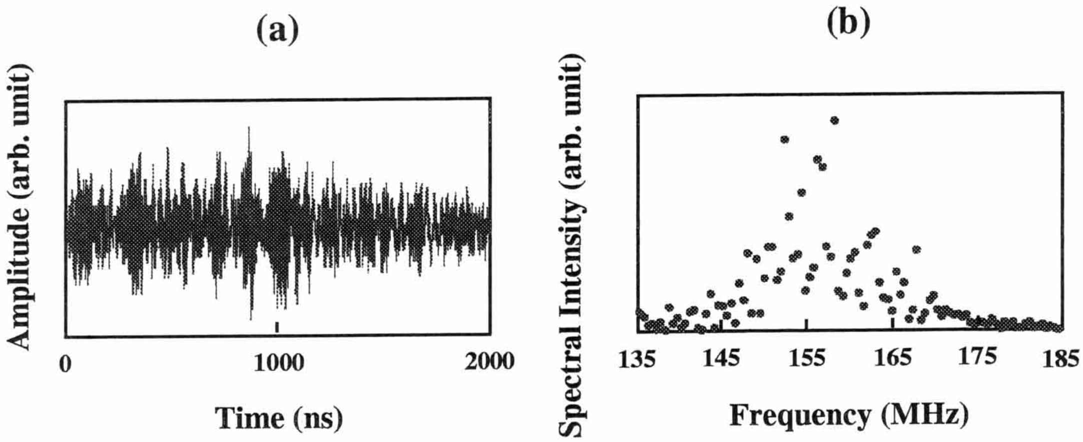

図 5.19: ピンクノイズを用いたノイズ分光実験の結果。(a) 波形。(b) スペクトル。

第6章　まとめと展望

本論文は、再帰励起分光法を用いた超自然幅分光法についての基礎的研究をまとめたものである。理論では線型応答理論に基づいて再帰励起分光の導入を行った後、これまで行われていないなかった、時間軸上の波形解析を行い、周波数軸上での解析と等価な結果が得られることを示した。本研究では、再帰励起分光法の基本的で性質、特徴を調べるための基礎的研究を行うため、試料として光学的性質のよく知られたアルカリ金属原子を採用した。はじめに信号の検出が比較的容易な Na の基底状態 $F=2$ のゼーマン副準位に対するスペクトルの線幅の狭窄化の実験を行い、スペクトル線の尖鋭化の観測に成功した。観測された再帰励起回数に対するスペクトル線の振る舞いは理論の予測と良く一致することがわかった。これを受けて D_2 線励起状態の超微細構造副準位に対して、再帰励起分光の実験を行った。coherence の協力効果により、理論で予測された長く伸びた波形を観測することができ、超自然幅を示すスペクトルを得ることができた。同様にして複数の共鳴周波数に対して再帰励起分光測定実験を行い、超微細構造定数を決定することができた。ただし、スペクトル線幅の狭窄化の飽和効果のため、十分な狭窄化を行うことができず、超微細構造定数の精度は過去の文献値と同程度の結果を得るのにとどまった。

序論で述べたように本分光法の基礎にしているのは、coherent 分光であり短パルスに対する応答はレーザーの線幅に依らない。しかし、現在理由ははっきりとはわかっていないが再帰励起分光法を利用した超自然幅分光法では、信号の波形が長く伸びるにつれ飽和効果が生じている。これは測定系のもつ時間的な揺らぎのため飽和効果が生じている可能性があり、これを取り除く一つ方法として E/O 変調器を用いた位相変調によってレーザーの線幅を広げてやり、レーザーが短時間に揺らぐことによって原子系の感じる光のスペクトルの変動を小さく抑える方法が考えられる。もしくは、逆に原子の線幅に比べはるかに狭いレーザーを用い

ても飽和を抑えることができる可能性がある。またレーザーのパワーをもっと低く抑えるためノイズを用いた実験と組み合わせて行うことも考えられる。

本研究においては、原子の副準位間の共鳴周波数に対する絶対周波数の分光測定について取り上げた。しかし本分光法の適用範囲は副準位間だけにとどまらず、光学遷移にも応用可能である。ただし光周波数の絶対値を測ることのできる測定器は存在しないため、レーザー光とのヘテロダイン的な検出が有効である。Dinseらは分子の特定の速度集団を飽和させた状態（hole burning[5]）に対してノイズ光を用いた相関分光法の実験 [39] を行い、レーザーの周波数と分子系の共鳴周波数との差で信号が検出されている。この実験は再帰励起分光を用いた光学遷移の実験として行うことが可能であり、近い将来このような実験を行う計画がある。

付 録A　原子系と光の相互作用の基本

原子系と光 (電磁場) の相互作用の記述方法は取り扱う物理現象によって様々な段階がある。もっとも単純なものは、原子系を電気双極子の集団として取り扱い光を古典的な電場として扱う古典的モデル [40, 41] である。このモデルでは振動する電場が双極子を誘起し、振動する双極子が新たな電場の波源となる。これらの二つの電場の干渉により、吸収、屈折効果を引き起こすと考えるものである。一方原子系と光を共に量子力学的に記述するモデル [42, 43, 44] がある。この方法より厳密ではあるが一般に原子と光は相関を持ちそれぞれを二つの独立な量子力学的要素として分離できなくなる。また電磁場は無限のモードを持った振動子のように扱われ、このため問題の取り扱いを困難にする。一つの解析的なモデルとして有用なものは、Jaynes-Cummings[45] のものがある。これは、単一の電磁場のモードと原子との相互作用を取り扱ったもので理論的に興味深いものであり、Cavity Quantum Electrodynamics として実験的にも研究されている [46, 47]。また相関した原子と光が結合した一つの量子系を考える dressed state [48] の描像は量子光学においては、物理現象を捉える上で一つの基本的な描像である。

これらの完全に古典的、量子力学的取り扱いとは別に原子系と電磁場の半古典的モデル [49, 50] も広く用いられている。このモデルではハミルトニアンをアンサンブル平均し、原子系は量子力学的期待値そして電磁場は、古典量として取り扱う。これは原子系と電磁場に間には相関がないという仮定をすれば良い [49]。また半古典論は電磁場が coherent state [51] であれば、十分強い電磁場の期待値は古典的な性質を示し、また電磁場の演算子も古典量に置きかわった古典量と同一の型になることからも期待される [52]。ただし電磁場を古典量として扱うため、スクイージング [53]、アンチバンチング [54] などの光の相関実験 [55] 等光の統計性 [56] を取り扱う現象は議論できない。しかし多くの非線型レーザー分光では、光は

coherent state で強度は十分強く、光の非古典性は顕著に現れない。このことから原子系は量子力学的に、電磁場を古典的に扱う半古典論モデルで十分物理現象を記述することができる。

A.1 半古典論

半古典論では実験的に取り扱う多数の原子を個別化せずに、アンサンブル平均で理論の記述を行う。そのため物理系の期待値の発展を記述する密度行列を用いる。また密度行列 ρ [57] を用いれば、波動関数による記述では困難な熱欲との相互作用による緩和現象やドップラー広がりなどの不均一広がりの効果を現象論的に取り込むことができる。半古典論の物理的描像は、古典論とほぼ同一である。ただし原子系を電気双極子を量子力学的な期待値で置き換えなければならない。計算の手順としては、原子系と電磁場の相互作用ハミルトニアンのもと原子系の密度行列を解き、双極子の期待値を求める。この双極子を新たな波源として、Maxwell 方程式を自己矛撞着に解く。この一連の連立させた方程式を一般的に Maxwell-Bloch、Maxwell-Shrödinger 方程式などと呼ぶ [58, 59]。いったん分極が求まれば、Maxwell 方程式を Slowly Varying Envelop and Phase 近似 [60] のもと最終的にレーザー分光で検出される強度は、新たに発生した単独の波源ならば分極量の 2 乗に比例した量であり、本研究で行ったようなプローブ光を用いた検出ならば、$\boldsymbol{E_p}$ をプローブ光の電場、$\boldsymbol{P}$ を原子系の分極とすると、

$$I(t) = 2\epsilon_0 c|\boldsymbol{E_p} + \frac{i\omega l}{2\epsilon nc}\boldsymbol{P}|^2 \tag{A.1}$$

となり、強度の変化分 $\Delta I(t)$ は、

$$\Delta I(t) \approx Im[\boldsymbol{E_p^*} \cdot \boldsymbol{P}] \tag{A.2}$$

となり一定強度のプローブ光なら原子系の分極に比例する。分極は原子系の双極子の期待値に原子数密度 N をかけたものであり、

$$\boldsymbol{P} = N \cdot \langle -e\boldsymbol{r} \rangle = N \cdot Tr[-e\boldsymbol{r}\rho] \tag{A.3}$$

となり、原子系の密度行列を求めれば、検出信号の振る舞いを予測できる。

A.2 マスター方程式

すべてのエネルギー準位を考えて密度行列を解くのは困難であり、有益ではない。レーザー分光においては、2 準位系での解法がよく研究されており [49]、基礎的で汎用性に富むモデルである。今 2 準位を原子の裸の [61] 励起状態 $|2\rangle$ 基底状態 $|1\rangle$ とする。今想定している原子は永久双極子モーメントを持っておらず、電気双極子の行列成分は $\langle 2|-e\boldsymbol{r}|2\rangle = \langle 1|-e\boldsymbol{r}|1\rangle = 0$、$\langle 2|-e\boldsymbol{r}|1\rangle = \langle 1|-e\boldsymbol{r}|2\rangle = -\mu_e$ とする。密度行列は、全系のハミルトニアンを $\mathcal{H}$ とすると、その時間発展は、

$$i\hbar\frac{d\rho}{dt} = [\mathcal{H},\rho] \tag{A.4}$$

のように書くことができる。

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I + \Gamma \tag{A.5}$$

であり、$\mathcal{H}_0$ は原子のハミルトニアン、$\mathcal{H}_I = -\boldsymbol{P}\cdot\boldsymbol{E}$ は相互作用ハミルトニアン、Γ は緩和に関する super operator [62] で、行列表示では、

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\omega_{21}\begin{pmatrix}\frac{1}{2} & 0\\ 0 & -\frac{1}{2}\end{pmatrix} \tag{A.6}$$

$$\mathcal{H}_{\mathcal{I}} = \hbar\begin{pmatrix}0 & -\Omega\cos\omega t\\ -\Omega^*\cos\omega t & 0\end{pmatrix} \tag{A.7}$$

$$\frac{1}{i\hbar}[\Gamma,\rho] = \begin{pmatrix}-\Gamma_1 & -\Gamma_2\\ -\Gamma 2 & \Gamma_1\end{pmatrix} \tag{A.8}$$

と記述することができる。Ω はラビ周波数で、電場の振幅 E と μ_e を用いて、

$$\Omega = \frac{E\cdot\mu_e}{\hbar} \tag{A.9}$$

と定義される。さらに式を展開する前に電場の周波数に乗った回転座標系でハミルトニアンを書き直すため基底の変換より考え出したユニタリー変換 $U(t)$

$$U(t) = \begin{pmatrix}e^{-i\omega t/2} & 0\\ 0 & e^{i\omega t/2}\end{pmatrix} \tag{A.10}$$

(A.11)

を導入する。このユニタリー変換を用いると回転座標系の密度行列 ρ^r は、

$$\rho^r = U^{-1}\rho U \tag{A.12}$$

のように求めることができる。また回転座標系のハミルトニアン $\mathcal{H}^r$ も変換後の基底においても時間発展の生成子であるための条件より、

$$\mathcal{H}^r = U^{-1}\mathcal{H}U + iU^{-1}\cdot U \tag{A.13}$$

となる。回転座標系で光の 2 倍の周波数で回転する成分を落とす。これは回転波近似と呼ばれ、光の領域で妥当な取り扱いである。以下では回転座標系を示す上付きの r を省略し、離調 $\Delta = \omega_{21} - \omega$ 密度行列を成分をあらわに書くと、

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{22} & \rho_{21} \\ \rho_{12} & \rho_{11} \end{pmatrix} \tag{A.14}$$

$$i\hbar\frac{d\rho}{dt} = [\mathcal{H}, \rho] \tag{A.15}$$

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -\frac{i}{2}[\Omega^*\rho_{21} - c.c.] - \Gamma_1\rho_{22} \tag{A.16}$$

$$\frac{d\rho_{11}}{dt} = \frac{i}{2}[\Omega^*\rho_{21} - c.c.] + \Gamma_1(1 - \rho_{11}) \tag{A.17}$$

$$\frac{d\rho_{21}}{dt} = -(i\Delta + \Gamma_2)\rho_{21} - \frac{i}{2}(\rho_{11} - \rho_{22})\Omega \tag{A.18}$$

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = \frac{d\rho_{21}}{dt}^* \tag{A.19}$$

となる。ここで密度行列の対角項を population(grating) 非対角項を coherence と呼ぶ。ところで式 (A.3) に 2 準位系の密度行列を代入すると、

$$\begin{aligned} \boldsymbol{P} &= N\cdot Tr[-e\boldsymbol{r}\rho] \\ &= -N(\Omega^*\cdot\rho_{21} + \Omega\cdot\rho_{12}) \end{aligned} \tag{A.20}$$

となる。つまり原子と電磁場の相互作用は coherence によって支配される。原理的には coherence を式 (A.19) の微分方程式より求めてやれば、2 準位系における

応答が求まる。ここで密度行列の式をレーザー分光でよく用いられる基底の表式に変える。磁化と磁場の相互作用を視覚的に説明する幾何学的モデルがブロッホ[63]によって示され、後にファインマン[64]らによって2準位系一般に成立する描像であることを示した。密度演算子は2準位系では3つの自由度を持つので、3つの直交する基底を選んで表示することができる。2準位系では一般的にパウリのスピン演算子 σ を基底にとると便利である。磁化を取り扱う時スピン演算子の成分をブロッホベクトルと呼ぶ。また取り扱う物理現象がスピンではない場合このスピン演算子を基底にした時の成分を擬スピンベクトルと呼ぶ。パウリのスピン演算子は行列表示では、

$$\sigma_x = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_y = \frac{i}{2}\begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_x = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \tag{A.21}$$

と書くことができる。またこれらは良く知られた交換関係を満たす。

$$[\sigma_x, \sigma_y] = i\sigma_z, \quad [\sigma_y, \sigma_z] = i\sigma_x, \quad [\sigma_z, \sigma_x] = i\sigma_y \tag{A.22}$$

$\mathbf{1}$ を単位行列として密度行列をこの基底で記述すると、

$$\rho' = \frac{1}{2}\mathbf{1} + U\sigma_x + V\sigma_y + W\sigma_z \tag{A.23}$$

のようになる。ここで単位演算子は時間に依存せず観測可能な量に関与しない、それゆえトレースが0となる成分だけで密度行列を表現しよう。

$$\rho = U\sigma_x + V\sigma_y + W\sigma_z \tag{A.24}$$

各基底の係数が擬スピンベクトルの成分となる。次に $\Omega = \Omega^*$ とし、スピン演算子を用いて式(A.8)のハミルトニアンを書き直すと、

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{atom} + \mathcal{H}_{int} = \omega_{21}\sigma_z - 2\Omega\cos(\omega t)\sigma_x \tag{A.25}$$

となる。スピン演算子を基底に密度行列の時間発展、式(A.4)を書くと

$$\begin{aligned} \dot{\rho} &= \dot{U}(t)\sigma_x + \dot{V}(t)\sigma_y + \dot{W}(t)\sigma_z & \text{(A.26)} \\ &= \frac{1}{i\hbar}[\mathcal{H}, \rho(t)] = -i[-\omega_{21}\sigma_z - 2\Omega\cos(\omega t)\sigma_x, U\sigma_x + V\sigma_y + W\sigma_z] & \text{(A.27)} \end{aligned}$$

のようになる。密度行列に係数に関する関係式をまとめると、よく知られた磁場中の磁化の運動を記述するブロッホ方程式を一般化したものが得られる。特にレーザー分光では光学ブロッホ方程式と呼ぶ。

$$\begin{aligned}\dot{U} &= -\gamma_2 U - \omega_{21} V \\ \dot{V} &= \omega_{21} U - \gamma_2 V - 2\Omega(t)\cos(\omega t) W \\ \dot{W} &= 2\Omega(t)\cos(\omega t) V - \gamma_1 (W - \{-1\}) \end{aligned} \tag{A.28}$$

この定式化ブロッホベクトル $\boldsymbol{R} = (U, V, W)$ は図 A.2 のようにスピン演算子によって張られた 3 次元空間上で自由に最差運動、章動運動を行う描像を与える。回転

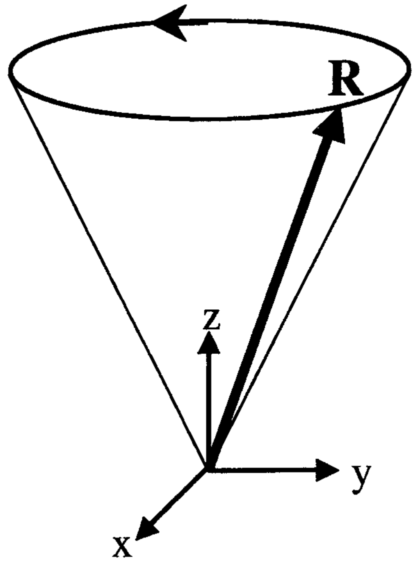

図 A.1: 擬スピンの自由運動

座標系で見た運動方程式は、前述と同様の議論で

$$\begin{aligned}\dot{U} &= -\gamma_2 U - \Delta V \\ \dot{V} &= \Delta U - \gamma_2 V - \Omega(t) W \\ \dot{W} &= \Omega(t) V - \gamma_1 (W - \{-1\}) \end{aligned} \tag{A.29}$$

のようになる。最も簡単な解は相互作用がない時の解で、擬スピンは最差運動を行う。

$$
\begin{aligned}
U(t) &= (U(0)\cos(\Delta t) + V(0)\sin(\Delta t))e^{-\gamma_2 t} \\
V(t) &= (V(0)\cos(\Delta t) - U(0)\sin(\Delta t))e^{-\gamma_2 t} \\
W(t) &= W(0)e^{-\gamma_1 t}
\end{aligned} \tag{A.30}
$$

また cw の単一レーザー光を用いた場合得られる応答である定常解も簡単に得られる。

$$
\begin{aligned}
U(\infty) &= \frac{\{-1\}\Delta\Omega}{\Delta^2 + T_2^{-2} + \Omega^2\gamma_2/\gamma_1} \\
V(\infty) &= \frac{\{-1\}\Omega}{\gamma_2}\cdot\frac{-1}{\Delta^2 + \gamma_2^2 + \Omega^2\gamma_2/\gamma_1} \\
W(\infty) &= \{-1\}\left(1 - \frac{\Omega^2\gamma_2/\gamma_1}{\Delta^2 + \gamma_2^2 + \Omega^2\gamma_2/\gamma_1}\right)
\end{aligned} \tag{A.31}
$$

パルスを用いた過渡分光法は Allen と Eberly の教科書 [49] に多く紹介されている。光学ブロッホ方程式を用いた解法は非常に使いやすいものであるが、複数の光を照射する場合や多準位がかかわる場合は適用することはできない。その場合もとの密度行列に返って摂動的に解く手法が主流である。特に Mukamel の教科書 [65] に多くの実験例に関して理論の適用例が紹介されている。またここで計算した回転座標系における解から実験室系の解を得るには、ユニタリー変換 $U(t)$ を逆に施してやればよい。

A.3 3 準位系における検出

本研究では、ラジオ波領域の周波数分裂を持つ光学禁制遷移の副準位間と、光学遷移で結ばれた準位で構成された 3 準位系を取り扱う。実験では副準位間に生じた coherence を光周波数の coherence の変換することにより (coherence transfer) ラマンビート [29] として検出している。3 準位系一般的には 2 準位系のように解析的に取り扱えない。そこで 3 準位系において副準位間 cohernece が first order (副準位間 cohernece 自体は光の second order で生成する) でどのように optical coherence に変換するか簡単に議論する。図 A.3 のような 3 準位系において副準位を $|1\rangle$ と $|2\rangle$ 光学遷移で結ばれた準位を $|3\rangle$ とする。この時光学遷移間の双極子

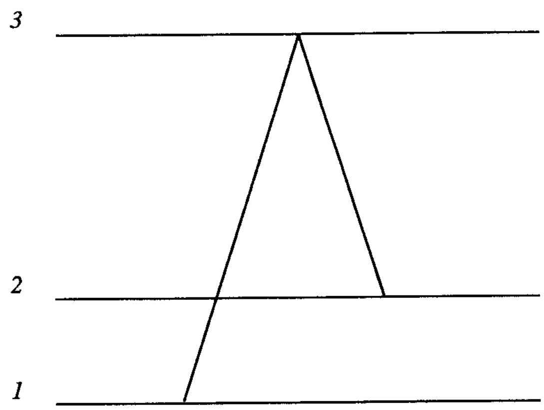

図 A.2: 3 準位系

モーメントをそれぞれ μ_{31}、μ_{32} とし、簡単のため遷移に共鳴しており、first order では特定の光学遷移にしか結びつかない電場 E_{31}、E_{32} を考えると。3 準位系における二つの optical coherence の成分は実験室系では、

$$
\begin{aligned}
\frac{d\rho_{31}}{dt} &= -(i\omega_{31}+\Gamma_2)\rho_{31} - \frac{i}{2}(\rho_{11}-\rho_{33})\frac{E_{31}\cdot\mu_{31}}{\hbar} - \frac{E_{32}\cdot\mu_{32}}{2\hbar}\rho_{21} \\
\frac{d\rho_{32}}{dt} &= -(i\omega_{32}+\Gamma_2)\rho_{32} - \frac{i}{2}(\rho_{22}-\rho_{33})\frac{E_{32}\cdot\mu_{32}}{\hbar} - \frac{E_{31}\cdot\mu_{31}}{2\hbar}\rho_{12}
\end{aligned} \tag{A.32}
$$

のように記述できる。副準位間の coherence ρ_{21} が存在すると仮定する。この時電場 E_{31} をプローブ光として照射すると、本来電場 E_{32} と optical coherence ρ_{32} が共になくとも ρ_{32} の微分方程式における ρ_{21} の項より optical coherence ρ_{32} が生じ E_{32} の波源となり干渉効果により副準位間の分裂周波数のビートが観測されることが分かる。本実験では本質的にこのように副準位分裂の測定実験を行っている。

付 録B　光強度変調

再帰励起分光法では、多段的な励起を実現するために原子系の応答波形を一度デジタルデータとして取り込み、取り込んだ応答波形と同じ強度変化を持つ光を再現することが必要である。ここでは電気光学 (Electro-Optic; E/O) 変調器と、偏光子そして波長板を組み合わせて光の強度変調を行う方法について述べる。強度変調系を図 B.1 に示す。

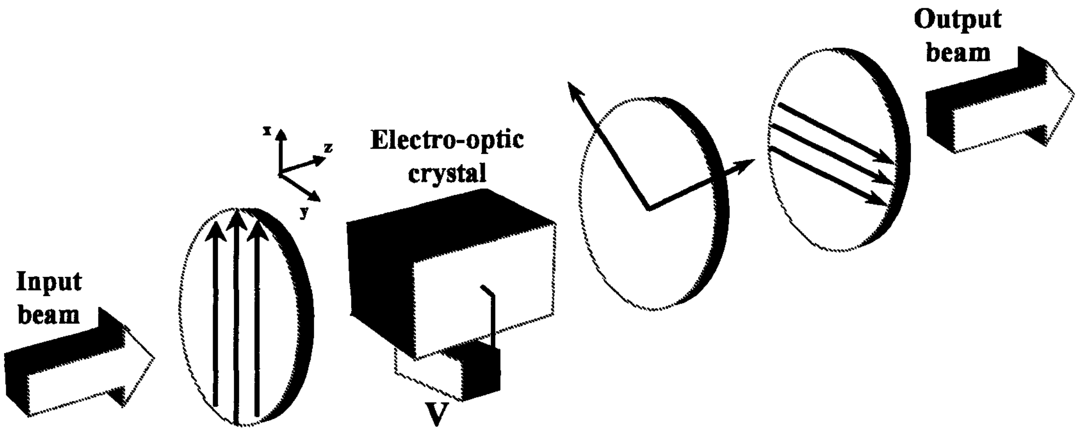

図 B.1: 光強度変調系

E/O 変調器は電気光学を利用したデバイスで、結晶に印加した電場によって物質の屈折率変化を引き起こす。電気光学効果 [66] のうち電場の強さに比例する現象をポッケルス効果，電場の 2 乗に比例する現象をカー効果と呼ぶ。この現象は光エレクトロニクスにおいて、光の変調やスイッチなどに幅広く使われている。E/O 変調器に用いた素子は $LiTaO_3$ 結晶であり、反転対称性を持たず 2 次の電気感受率 $\chi^{(2)}$ を持つ。この結晶を用いることにより光の位相は、印加した電場の振幅によって制御できる。電圧は、結晶の光軸に対して平行にかけられるようになっている。直線偏光の入射光を、結晶の光軸と偏光面を平行にして入射させると、偏

光はそのままで光には位相変調がかかる。一方直線偏光の光を電気光学結晶の光軸に対して 45° 傾けて入射させると、入射軸に対して垂直な2つの方向ではそれぞれ屈折率が違うため偏光が乱れ楕円偏光になる。これを補正するため、同じ結晶素子をもう1つ用意し電圧を加える結晶素子に対して 90° 回転させたものにも続けて光を通す。その結果、電圧を加えないときには2つの方向は等方的であり、偏光は乱れない。

今 E/O 変調器に適当な電場 V を加えることにより、屈折率の異なる直交した軸が生じる。このとき常光軸と異常光軸の位相差を Γ とする。以下、偏光に対する光学素子の作用をジョーンズベクトルとジョーンズ行列 [67] を用いて取り扱う。この手法では二つの直交する電場の共通の時間、空間要素を取り除いて議複素振幅について取り扱う。光の偏光を x、y 平面で考え直線偏光を基底に取ると電場ベクトル E は

$$\boldsymbol{E} = E_x\hat{\boldsymbol{x}} + E_y\hat{\boldsymbol{y}} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} \tag{B.1}$$

のように記述されるとする。ここで、y 軸方向に偏光した光を考える。

$$E = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \tag{B.2}$$

直線偏光が、常光軸に対して偏光面が 45° で入射する場合、光の偏光の基底を一度 E/O 変調器の常光軸と異常光軸に対してとり、位相の相対変化だけを考えてもとの基底に戻すと、E/O 変調器を通った後の電場の偏光変化は変換 W

$$\begin{aligned} W(\Gamma) &= \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} & -\frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-i\frac{1}{2}\Gamma} & 0 \\ 0 & e^{i\frac{1}{2}\Gamma} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \cos\frac{1}{2}\Gamma & -i\sin\frac{1}{2}\Gamma \\ -i\sin\frac{1}{2}\Gamma & \cos\frac{1}{2}\Gamma \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{B.3}$$

を用いて、

$$\boldsymbol{E}^W = W(\Gamma)\boldsymbol{E} \tag{B.4}$$

と表すことができる。その後検光子（グランプリズム）を通すと印加電場によって制御された強度変調（振幅変調）が実現できる。グランプリズムでもとの偏光

と直交する成分（ E_x ）を抜き出すことは今の場合、変換 P

$$P = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{B.5}$$

で表現でき、これを用いて最終的な電場 $\boldsymbol{E}^P$ は、

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}^P &= P\boldsymbol{E}^W \\ &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos\frac{1}{2}\Gamma & -i\sin\frac{1}{2}\Gamma \\ -i\sin\frac{1}{2}\Gamma & \cos\frac{1}{2}\Gamma \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \\ &= -i\begin{pmatrix} \sin\frac{1}{2}\Gamma \\ 0 \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{B.6}$$

となり、その強度は次のようになる。

$$I \propto |\boldsymbol{E}^P|^2 \propto \sin^2\frac{\Gamma}{2} \tag{B.7}$$

$$= \sin^2(\frac{\pi}{2}\frac{V}{V_\pi}) \tag{B.8}$$

ここで、V_π は、光の位相差を半波長分与えるために必要な電圧である。

バイアス電圧を加える代わりに、光を波長板に通して $\frac{\pi}{2}$ だけ位相差を与え、正弦波で適度に小さい振幅で振動する電場で E/O 変調器を駆動する場合を考えると変動位相差 Γ は、次のようにかくことができる。

$$\Gamma = \frac{\pi}{2} + \Gamma_m \sin\omega_m t \tag{B.9}$$

式 (B.9) を式 (B.7) に代入し、ベッセル関数 (J_n) を用いると一般に式 (B.11) のように展開できる。

$$\begin{aligned} I &\propto \sin^2\frac{\Gamma}{2} \\ &= \frac{1}{2}\left[1+\sin\left(\Gamma_m\sin\omega_m t\right)\right] \\ &= \frac{1}{2}\left[1+\sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\Gamma_m)\sin n\omega_m t\right] \end{aligned} \tag{B.10}$$

ここで $\Gamma_m \ll 1$ であれば、式 (B.10) の最低次の項だけを残して

$$I \cong \frac{1}{2}(1+\Gamma_m\sin\omega_m t) \tag{B.11}$$

のように書くことができる。強度変調の線形性が保たれるような位相を、E/O 変調器と偏光子の間にある $\lambda/4$ 或いは $\lambda/2$ 波長板の回転角で調整する。また $\Gamma_m \ll 1$ がみたされるように任意波形発生器（Arbitrary Wave Generator; AWG）の振幅を調整する。このように任意の周波数をもつ強度波形が再現できるので、E/O 変調器の帯域が許す範囲で適度な振幅の波形を再現できる。

付 録C　二色性と複屈折の検出

物質の状態 (population や coherence) を調べる方法として、適当な偏光を持つ弱いプローブ光を試料に通しプローブ光の偏光の変化を測定する方法 (偏光分光法 [68]) がよく用いられる。ここでは、光と物質の相互作用の結果試料に誘起された偏光の二色性や複屈折性 (光学的異方性) を直交グランプリズムを用いたクロスーニコル法について議論する [62, 34]。まず直線偏光の二色性と複屈折性の光検出について述べ次に、回転対称性もしくは円筒対称性を持つ系において有用な円偏光の二色性と複屈折性の検出方法について述べる。

C.1　直線偏光二色性と直線偏光複屈折

プローブ光の偏光面を x 軸方向にとり、それに対して偏光面を $45°$ 傾けたポンプ光を考える。図 C.1(a) にあるように、プローブ光の電場を $\boldsymbol{E}$ としポンプ光に沿った向き $\hat{\boldsymbol{r_1}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{y}})$ の成分とそれに直交する向き $\hat{\boldsymbol{r_2}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\boldsymbol{x}} - \hat{\boldsymbol{y}})$ の成分の和とする。ここで $\hat{\boldsymbol{x}}$、$\hat{\boldsymbol{y}}$ はそれぞれ x 方向 y 方向の単位ベクトルである。ポンプ光による、二つの方向成分に対して吸収係数 $\alpha^{\|}$、$\alpha^{\perp}$ が異なる (直線偏光二色性) ので、透過光の $\hat{\boldsymbol{r_1}}$ 成分と $\hat{\boldsymbol{r_2}}$ 成分に差ができる。これは結果としてプローブ光の偏光面に回転を与える。また一般には、それぞれの成分に対する屈折率 $n^{\|}$、$n^{\perp}$ にも差を生じる（直線偏光複屈折性）ため 2 成分の相対的位相がずれ、これらを合成した透過光の偏光は楕円偏光となる。いずれの場合にも検光子を透過する光強度を通じて光学的異方性が観測される。具体的には図 C.1(a) の状況を考える。

この図では、検光子と偏光子が直交している。試料の長さ L を透過したプローブ光の電場は

$$\boldsymbol{E}(L) = \frac{1}{\sqrt{2}} E_0[\hat{\boldsymbol{r_1}} \exp(i\omega n^{\|} L/c - \alpha^{\|} L/2) + \hat{\boldsymbol{r_2}} \exp(i\omega n^{\perp} L/c - \alpha^{\perp} L/2)] \quad \text{(C.1)}$$

となる。ここで E_0 は入射時のプローブ光の電場の振幅である。また入射プローブ

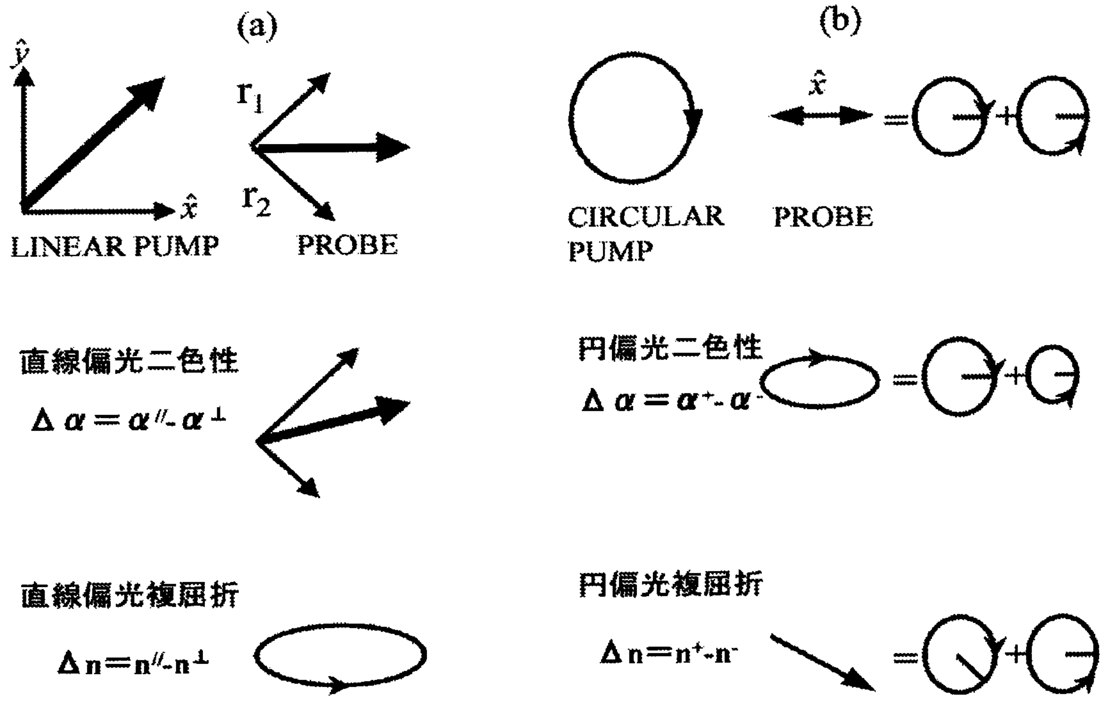

図 C.1: 生成された光学異方性によるプローブ光 (直線偏光) の変化。

(a) 直線偏光励起、 (b) 円偏光励起。

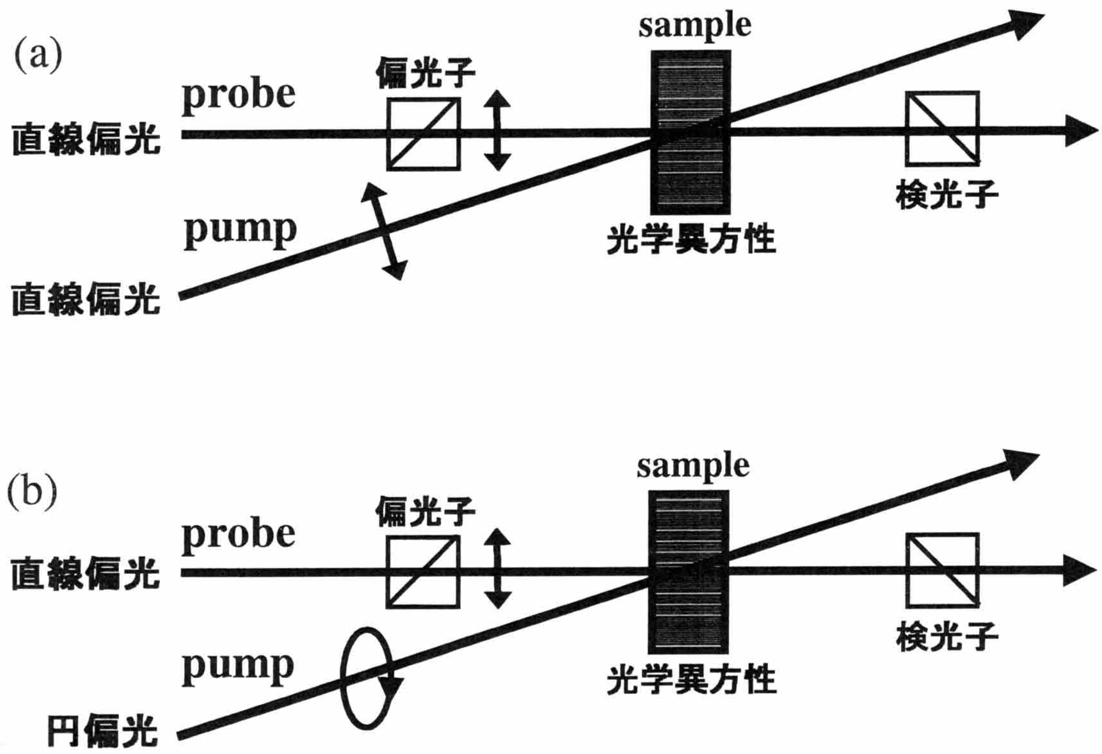

図 C.2: 光学的異方性の直線偏光によるプローブ。

(a) 直線偏光励起の場合、(b) 円偏光励起の場合。

光の電場は次式で表されている。

$$\boldsymbol{E}(0) = \frac{1}{\sqrt{2}}\,E_0[\hat{\boldsymbol{r_1}} + \hat{\boldsymbol{r_2}}] = E_0\hat{\boldsymbol{x}} \tag{C.2}$$

いま、屈折率の平均 $n = (n^{\parallel} + n^{\perp})/2$ 及び吸収係数の平均 $\alpha = (\alpha^{\parallel} + \alpha^{\perp})/2$ を定義すると、この式は

$$\begin{aligned}\boldsymbol{E} = E_0 \exp(i\omega nL/c - \alpha L/2)[\hat{\boldsymbol{x}}(\cos B \cosh A - i \sin B \sinh A) \\ +\hat{\boldsymbol{y}}(-\cos B \sinh A + i \sin B \cosh A)]\end{aligned} \tag{C.3}$$

となる。ここで $B = (n^{\parallel} - n^{\perp})\omega L/2c$ はポンプ光で誘起された複屈折を表し、$A = (\alpha^{\parallel} - \alpha^{\perp})L/4$ はポンプ光で誘起された二色性を表している。また、y 軸から微小角 θ だけ検光子の偏光面を回転させたとすると、検光子を透過するプローブ光の電場は

$$E = E_0[\theta - \frac{1}{4}\,(\alpha^{\parallel} - \alpha^{\perp})L + i\frac{\omega L}{2c}\,(n^{\parallel} - n^{\perp}) + ib] \tag{C.4}$$

と表される。なおこの式では A、B について最低次の項だけ残している。ib は偏光子、検光子の不完全性などによる微少なバックグラウンドの影響を考慮した項である。検出器の信号強度は透過光の電場の 2 乗に比例するため、これらをふまえてプローブ光の信号強度は

$$\begin{aligned} I &= 2\epsilon_0|E|^2c \\ &= I_0[\xi + \theta^2 + b^2 - \theta(\alpha^{\parallel} - \alpha^{\perp})L/2 + b(n^{\parallel} - n^{\perp})\omega L/c \\ &\quad +\{\frac{1}{4}\,(\alpha^{\parallel} - \alpha^{\perp})L\}^2 + \{\frac{\omega L}{2c}\,(n^{\parallel} - n^{\perp})\}^2]\end{aligned}$$

となる。ここで ϵ_0 は真空の誘電率、c は光速、I_0 は入射時のプローブ光の強度、ξ は偏光子の消光比を表している。

C.2 円偏光二色性と円偏光複屈折

次に試料を円偏光で励起した場合に誘起される光学的異方性（円偏光二色性・円偏光複屈折性）を直線偏光のプローブ光で検出することを考える（図 C.1(b)）。

これは本研究で取り扱った実験状況なので少し詳しく検討していく。プローブ光の偏光を x 方向とし、その電場を

$$\boldsymbol{E} = E_0 e^{i(\omega t - kz)} \hat{\boldsymbol{x}} \tag{C.5}$$

とする。これを直交する二つの円偏光 $\boldsymbol{\sigma}^+$ と $\boldsymbol{\sigma}^-$ を基底にした時の成分 E^+ と E^- で分解する（図 C.1(b))。

$$\boldsymbol{E} = E^+ \boldsymbol{\sigma}^+ + E^- \boldsymbol{\sigma}^- \tag{C.6}$$

$$\begin{aligned} E^+ &= E_0^+ e^{i(\omega t - k^+ z)}; \quad \boldsymbol{\sigma}^+ = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\boldsymbol{x}} + i\hat{\boldsymbol{y}}) \\ E^- &= E_0^- e^{i(\omega t - k^- z)}; \quad \boldsymbol{\sigma}^- = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\boldsymbol{x}} - i\hat{\boldsymbol{y}}) \end{aligned} \tag{C.7}$$

このときまた $\boldsymbol{\sigma}^+$ 偏光あるいは $\boldsymbol{\sigma}^-$ 偏光のポンプ光により $\boldsymbol{\sigma}^+$ 偏光と $\boldsymbol{\sigma}^-$ 偏光に対する吸収係数 α^+、α^- の差（円偏光二色性）及び屈折率 n^+、n^- の差（円偏光複屈折性）が生じているとする。試料の長さ L を透過したプローブ光の $\boldsymbol{\sigma}^+$ 偏光と $\boldsymbol{\sigma}^-$ 偏光の電場成分は

$$\begin{aligned} E^+ &= E_0^+ e^{i\{\omega t - k^+ L + i(\alpha^+/2)L\}} \\ E^- &= E_0^- e^{i\{\omega t - k^- L + i(\alpha^-/2)L\}} \end{aligned} \tag{C.8}$$

と表される。吸収係数の差を $\Delta\alpha = \alpha^+ - \alpha^-$ とし屈折率の差を $\Delta n = n^+ - n^-$ とすると、2 成分の位相差と電場振幅の差はそれぞれ次のように表される。

$$\Delta\phi = (k^+ - k^-)L = (\omega L/c)(n^+ - n^-) = (\omega L/c)\Delta n \tag{C.9}$$

$$\begin{aligned} \Delta E &= \frac{E_0}{2}\left\{e^{-(\alpha^+/2)L} - e^{-(\alpha^-/2)L}\right\} \\ &= \frac{E_0}{2}\left\{e^{-(\frac{\alpha^+ + \alpha^-}{2})L}\left(e^{\frac{\alpha^-}{2}L} - e^{\frac{\alpha^+}{2}L}\right)\right\} \\ &= \frac{E_0}{2}\left(\frac{\alpha^-}{2}L - \frac{\alpha^+}{2}L\right) \qquad (\alpha^+ L, \alpha^- L \ll 1) \\ &= -\frac{E_0}{4} L \Delta\alpha \end{aligned} \tag{C.10}$$

プローブ光の経路の試料以外の光学素子が円偏光二色性・円偏光複屈折性を持つ場合その効果を次式の形で表現することができる。

$$b^{\pm} = b_r^{\pm} + i b_i^{\pm}$$

ここで、$b_r^\pm$ は円偏光複屈折性、$b_i^\pm$ は円偏光二色性を表している。試料を透過したプローブ光の電場は、$\boldsymbol{\sigma}^+$ と $\boldsymbol{\sigma}^-$ 成分の和として次式で表される。

$$\begin{aligned}\boldsymbol{E}(L) &= E^+\boldsymbol{\sigma}^+ + E^-\boldsymbol{\sigma}^+ \\ &= \frac{1}{2}\,E_0 e^{i\omega t} e^{-i\{\omega(nL+b_r)/c - i\alpha L/2 + ib_i\}} \\ &\quad \times\{(\hat{\boldsymbol{x}} + i\hat{\boldsymbol{y}})\exp(i\Delta) + (\hat{\boldsymbol{x}} - i\hat{\boldsymbol{y}})\exp(-i\Delta)\} \end{aligned} \tag{C.11}$$

で与えられる。ここで

$$\begin{aligned} n &= (n^+ + n^-)/2,\quad \alpha = (\alpha^+ + \alpha^-)/2,\quad b = (b^+ + b^-)/2 \qquad (\text{C.12}) \\ \Delta n &= n^+ - n^-,\quad \Delta\alpha = \alpha^+ - \alpha^-,\quad \Delta b = b^+ - b^- \\ \Delta &= \omega(L\Delta n + \Delta b_r)/2c - i(L\Delta\alpha/4 + \Delta b_i/2) \end{aligned}$$

である。Δ は複素位相因子である。

いま、検光子の偏光面が y 軸から微小角 $\theta \ll 1$ だけ傾いているとすると、検光子を透過する光の電場は

$$E_t = E_x \sin\theta + E_y \cos\theta$$

である。ほとんどの場合ポンプ光による吸収係数及び屈折率の差 $\Delta\alpha$、Δn はとても小さく、バックグラウンドによる複屈折も技巧的に最小限にとどめることができるため

$$L\Delta\alpha \ll 1,\quad L\Delta k \ll 1,\quad \Delta b \ll 1 \tag{C.13}$$

と仮定することにより、式 (C.11) の $\exp(i\Delta)$ を展開することができる。こうして微小角 $\theta \ll 1(\cos\theta \approx 1, \sin\theta \approx \theta)$ により、透過光の電場は

$$E_t = E_0 e^{i\omega t} \exp\{i\omega(nL + b_r)/c - \frac{1}{2}\,\alpha L - b_i\}(\theta + \Delta) \tag{C.14}$$

となる。検出器の信号強度は透過光の電場の 2 乗に比例するため

$$S(\omega) \propto I_t(\omega) = c\epsilon_0 E_t E_t^*$$

と表すことができる。また $\theta = 0$ の場合においても若干のもれを検出するため、その影響 $(I_t = \xi I_0)$ を考慮すると

$$I_t \;=\; I_0 e^{-\alpha L - 2b_i}(\xi + |\theta + \Delta|^2)$$

$$
\begin{aligned}
= \quad & I_0 e^{-\alpha L - 2b_i}\{\xi + \theta'^2 + (\frac{1}{2}\,\Delta b_i)^2 + \frac{1}{4}\,\Delta b_i L \Delta\alpha \\
& + \frac{\omega}{c}\,\theta' L \Delta n + (\frac{\omega}{2c}\,L\Delta n)^2 + (\frac{L\Delta\alpha}{4})^2\}
\end{aligned}
\tag{C.15}
$$

を得る。ここで、$\theta' = \theta + \omega/(2c)\cdot\Delta b_r$ とした。

付 録D　ポラリメーターによる二色性と複屈折の検出

物質の円偏光の二色性や複屈折性を検出に直交グランプリズムを用いたクロスーニコル法は非常に優れた方法である。プローブ光を用いた光検出は、基本的にはヘテロダイン的な検出方法である。よって直交グランプリズムを用いる時、試料に生じたcoherence の一次に比例する信号を検出するには、プローブ光の偏光成分方向にグランプリズムを傾ける必要がある。プローブ光との干渉により検出信号は増幅されるが同時に大きな直流成分が検出信号に加算される。そこで光検出器を2つ用い、その出力を引き算することによりバックグラウンドを打ち消し(Balanced Detection)、偏光の二色性や複屈折性を高感度に検出するポラリメーター(Polarimeter)と呼ぶ光検出器がある。ポラリメーターの構造を図D.1に示す。

直線偏光のプローブビームはグランプリズムによって2つの互いに直交する直線偏光成分に分けられて、それぞれのフォトダイオードで電流に変えられる。2つの光電流は共通の抵抗で引き算され、その差に対する電位差が抵抗の両端に現れる。グランプリズムとフォトダイオードは回転ホルダーに一緒に固定され、全体を回転させることができる。プローブビームの偏光面に対して、グランプリズムが 45° になるようにすると、2つの光電流は打ち消しあって電位差は生じないが、偏光面が変化するとバランスがくずれて抵抗の両端に電位差が生じ、信号となる。

試料に円偏光複屈折性を持つ時、直線偏光のプローブ光の偏光は回転する。このことは、直線偏光プローブ光を等しい振幅の σ^+ 偏光と σ^- 偏光にわけて考えると、電場の両成分の間に位相差ができたことを意味する。ポラリメーターでは、偏光面の回転を光の強度として検出している。また試料に円偏光二色性を持つ場合、直線偏光のプローブ光の偏光は楕円偏光になる。このことは、同様に σ^+ 偏光と σ^- 偏光の基底で考えると、電場の両成分の間に強度差ができたことを意味する。ポラリメーターの前に $\lambda/4$ 板を配置することにより円偏光の二色性による

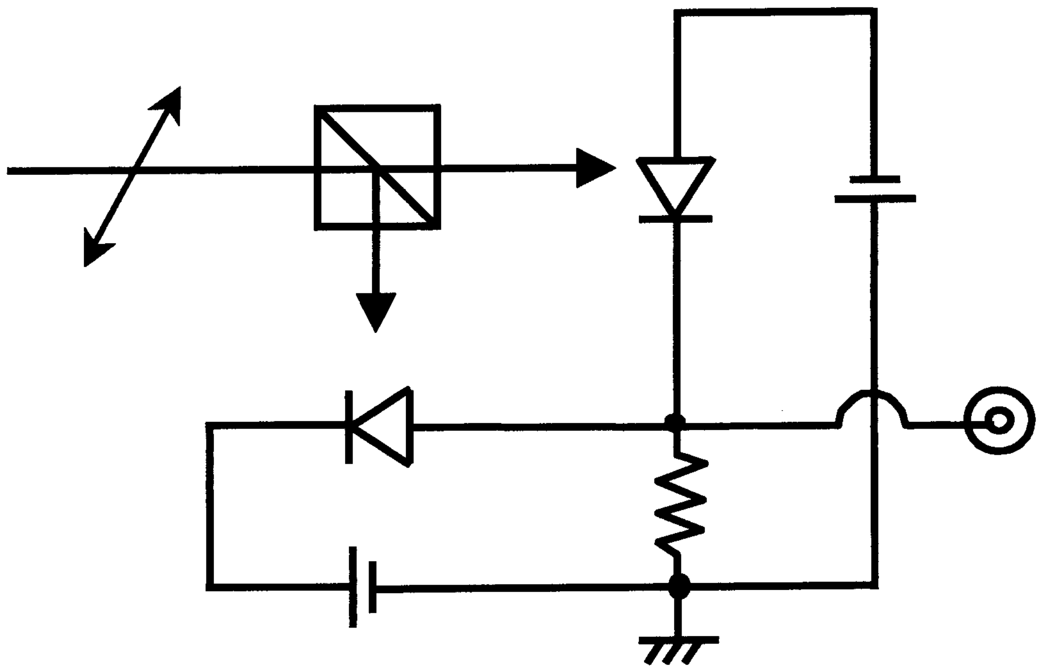

図 D.1: ポラリメーターの構造

偏光への変化を偏光面の回転に変換することにより、ポラリメーターを用いてその差を検出することができる。直線偏光の二色性や複屈折性を検出も同様に、屈折率の異方軸に対して偏光面が 45 度回転した光でプローブすることにより、その直線偏光が複屈折偏光面の乱れがポラリメーターの出力の差として検出される。

直線偏光のプローブが円偏光の二色性や複屈折性の試料を通過したあと電場は直線プローブ光の偏光と 45° 傾いた $\hat{\boldsymbol{r}}_1$、$\hat{\boldsymbol{r}}_2$ 基底では、

$$\begin{aligned}\boldsymbol{E}(L) &= E^{+}\boldsymbol{\sigma}^{+} + E^{-}\boldsymbol{\sigma}^{+} \\ &= \frac{1}{2}E_0 e^{i\omega t} e^{-i\{\omega(nL)/c - i\alpha L/2\}} \\ &\quad \times\{\hat{\boldsymbol{r}}_1(e^{i(\Delta+\frac{\pi}{4})} + e^{-i(\Delta+\frac{\pi}{4})}) + \hat{\boldsymbol{r}}_2(e^{i(\Delta-\frac{\pi}{4})} - e^{-i(\Delta-\frac{\pi}{4})})\} \qquad \text{(D.1)}\end{aligned}$$

のように書くことができる。ここで因子 Δ は以下のように定義する。

$$\begin{aligned} n &= (n^{+}+n^{-})/2, \quad \alpha = (\alpha^{+}+\alpha^{-})/2, \\ \Delta n &= n^{+}-n^{-}, \quad \Delta\alpha = \alpha^{+}-\alpha^{-}, \\ \Delta &= \omega(L\Delta n)/2c - i(L\Delta\alpha/4) \qquad \text{(D.2)}\end{aligned}$$

ポラリメータの二つの検出器の出力 I_1、I_2 はそれぞれ、

$$\begin{aligned} I_1 &= 2\epsilon_0|\boldsymbol{E}(L)\cdot\hat{\boldsymbol{r}}_1|^2 c, \\ I_2 &= 2\epsilon_0|\boldsymbol{E}(L)\cdot\hat{\boldsymbol{r}}_2|^2 c \qquad \text{(D.3)}\end{aligned}$$

のようになる。ポラリメーターを用いた光検出ではこの強度の差 $\Delta I = I_1 - I_2$ が検出される。ここでは簡単のため円偏光の複屈折性と二色性がそれぞれ顕著な領域での検出を考え、それぞれどちらかの異方性だけについて考慮する。ローレンツ型のスペクトル構造をもつ場合、二色性については吸収線の中心で行うことにより、Δ の吸収率の異方性だけを考える。十分異方性が小さいとすると、

$$\begin{aligned}\Delta I = I_1 - I_2 &= -I_0 e^{-\alpha L}\sinh L\Delta\alpha/2 \\ &\approx -I_0 e^{-\alpha L} L\Delta\alpha/2 \qquad \text{(D.4)}\end{aligned}$$

となり、出力強度は吸収率の差に比例する。ここで $I_0 = 2\epsilon_0|E_0|2c$ とする。一方複屈折性は 吸収の十分小さい領域で行うと、Δ の屈折率の異方性だけを考えることができ、

$$\Delta I = I_1 - I_2 = -I_0 e^{-\alpha L}\sin 2\Delta$$

$$\approx \quad -I_0 e^{-\alpha L} 2\Delta = e^{-\alpha L}\omega(L\Delta n)/c \tag{D.5}$$

となり、出力強度は屈折率の差に比例する。複屈折性の測定は一般に吸収小さい領域で行うため検出を行いやすい。また物質がローレンツ型のスペクトル構造をもつ場合、二色性と複屈折性はそれぞれ吸収線とレーザー周波数の離調 δ が十分大きい場合、$1/\delta^2$、$1/\delta$ の依存性を持つため、複屈折性と 2 色性の効果の分離も容易である。

以上よりポラリメーターは偏光面の回転の検出に対して非常に高感度であり、直交グランプリズムの方法に比べて次のような利点をもっている。

1. セルのガラス部分などによる、プローブ光の偏光のみだれの影響を受けない。

2. 偏光回転角が小さいときは、出力が回転角に比例する。

3. プローブの光強度の揺らぎは光電流の引き算で打ち消される。

4. 小さくまとまっていて扱いやすい。

欠点は、出力がプローブ光の入射する位置に敏感であるため、振動や空気の対流によるビームの変動の影響を受けやすいことである。また高周波 (~ 100MHz) 信号は回路のマッチング条件が厳しくなるため作成が困難になる。

付 録E　Ti:Sapphire レーザーの波長安定化

ここでは、Ti:Sapphire レーザーの波長安定化について述べる。本実験で一度の測定は、通常 4~8 時間かかる。そのため、Ti:Sapphire レーザーの長時間的および短時間的な波長変動を数 MHz 以下に抑える必要がある。短期的な変動に対してレーザーは 1~2 MHz の幅に抑えられているが、長期的な変動についてはこれよりも二桁も大きい。そのため Ti:Sapphire レーザーの周波数は数分から数 10 分の間に数 100 MHz シフトしてしまい実験測定中に共鳴線を外れてしまう。

本研究においては、Ti:Sapphire レーザーの波長を原子の吸収線にロックさせる [69] ことによって、この長時間的な波長変動の抑制を行った。ここでは Rb 原子の D_2 線に Ti:Sapphire レーザーの波長をロックすることにした。Rb D_2 線は Ti:Sapphire レーザーで容易に同調可能であるが、約 500 MHz のドップラー幅を持つので、このまま Ti:Sapphire レーザーをロックしても十分な波長の安定度は得られない。しかしながら、飽和吸収分光 [34] を行うことによって、自然幅（12.2 MHz）を持つホールが得られるので、このホールを用いれば十分な波長安定度が得られる。このホールに対して FM 分光 [70, 71] を行うと分散型の信号が得られる。この信号を誤差信号として Ti:Sapphire レーザーに帰還することによって、その波長を Rb 原子にロックすることができる。

図 E.1 は Ti:Sapphire レーザーの波長安定化系を示したものである。Ti:Sapphire レーザーの出力光の一部を分岐し、それを励起光とプローブ光とに分ける。励起光に対しては変調などの操作は行わず、プローブ光と対向するように Rb セルに入射させる。プローブ光に対しては、電気光学変調器（EOM）を用いて位相変調を行い、Rb セルを通過させたあと、アヴァランシェ・フォトダイオード（APD）によってその強度を電気信号に変換する。EOM の変調信号は 10 MHz の正弦波とした。この正弦波はまた、適当に位相を調整してミキサーの Local Oscillator（LO）

端子に入力した。APD の出力は、高域通過フィルターを通過させて変調成分のみ取り出したあと、適当に増幅してミキサーの Radio Frequency（RF）端子に入力した。ミキサーの Intermediate Frequency（IF）出力を低域通過フィルターに通して直流成分のみ取り出した。これを誤差信号として Ti:Sapphire レーザーのコントローラーに入力し、波長の安定化を行った。

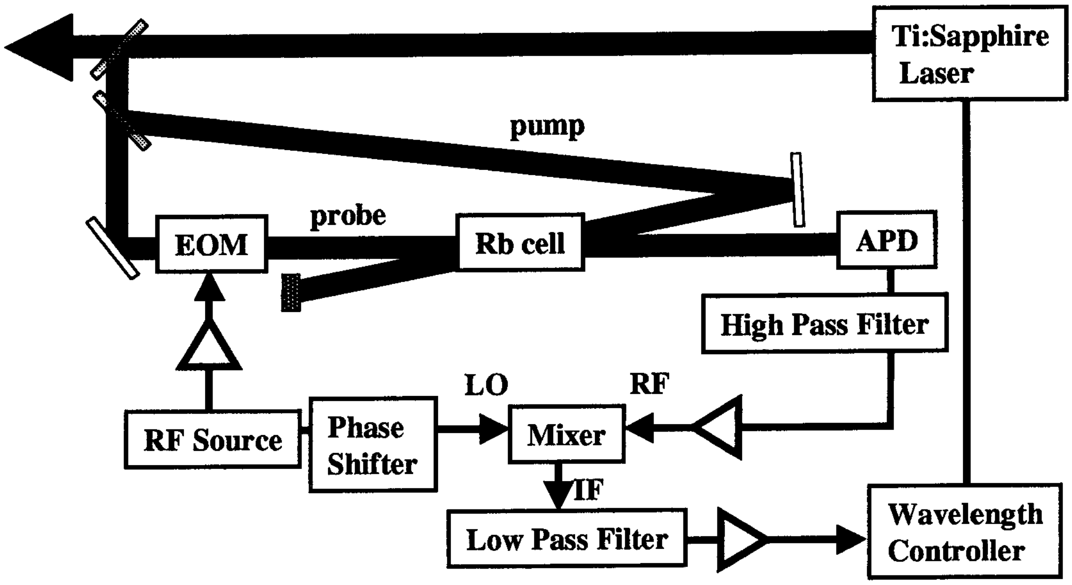

図 E.1: Ti:Sapphire レーザー波長安定化系。飽和吸収分光を行うことによって自然幅を持つホールを得る。このホールに対して FM 分光を行うと分散型の信号が得られる。この信号を誤差信号として Ti:Sapphire レーザーに帰還すれば、その波長を Rb 原子の吸収線にロックすることができる。

図 E.2(a) は、Rb 原子 D_2 線の基底状態の $F = 2$ の準位から、励起状態の $F = 1, 2, 3$ の準位への遷移を測定したものである。図 E.1 の系において帰還ループを閉じずに、Ti:Sapphire レーザーの周波数を掃引して測定した。上に述べた 3 つの遷移と 3 つの cross-over signals、合計 6 つの分散型の信号が得られている。この信号の幅は約 20 MHz であった。

この信号を誤差信号として波長安定化を行った結果を図 E.2(b) に示す。図中の曲線 "Free Run" は帰還ループを閉じていない場合の誤差信号の時間変化を示したものであり、"Stabilized" は帰還ループを閉じた場合のものである。時刻 $t = 0$ に

おいて、Ti:Sapphire レーザーの周波数を図 E.2(a) の矢印で示した値とした。測定は 1 秒ごとに 4000 秒間行った。図 E.2(a) と (b) の縦軸のスケールは等しい。Free Run のときは誤差信号が大きく変動している。(a) と比較することにより、4000 秒間に約 140 MHz 低周波側にシフトしていることがわかる（このシフトの大きさと方向は環境により異なる）。"Stabilized" では、Ti:Sapphire レーザーの波長の長期的な変動は 1 MHz 程度に抑えられていることがわかる。これは再帰励起分光の実験を行うのに十分な値である。

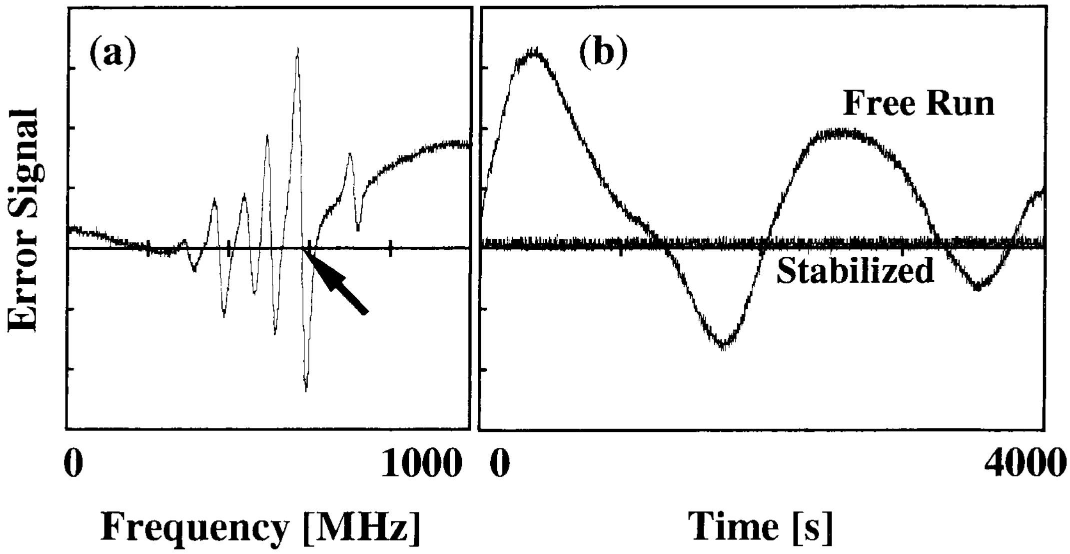

図 E.2: Ti:Sapphire レーザー波長安定化系の誤差信号。(a) Rb 原子 D_2 線の基底状態の $F = 2$ の準位から、励起状態の $F = 1, 2, 3$ の準位への遷移を測定したもの。この信号を波長安定化のための誤差信号として用いる。(b) 誤差信号の時間変化。"Free Run" は帰還ループを閉じていない場合、"Stabilized" は帰還ループを閉じた場合のもの。時刻 $t = 0$ において、Ti:Sapphire レーザーの周波数を (a) の矢印で示した値とした。(a) と (b) の縦軸のスケールは等しい。

謝辞

この場を借りて本研究を行うにあたりお世話になった方々に感謝致します。実験計画、実験において御指導していただいた福田行男教授、河本敏郎助教授に大変感謝致します。ゼミや研究室での生活を通して、適切な御指導、御助言をしていただいた國友正和教授に感謝致します。また研究室で研究をはじめるにあたり、一から教えて頂いた御園雅俊さん (現京都大学電気工学科ポスドク) には、本研究でもお世話になり大変感謝致します。慶応義塾大学の三井隆久先生には関連する論文を送っていただくだけでなく、学会やメールを通していろいろとお教えいただき感謝致します。日々研究室でいっしょに過ごしていた研究室の人たちにも感謝致します。特に古江君、福井君、田中君、速水君には、長い間いっしょに研究生活をすごし、お世話をかけましたが辛抱強くつきあっていただき感謝します。

最後に全てにおいて全面的な支援していただいた家族に特別感謝致します。

皆様のおかげで、本論文を完成させることができました。

参考文献

[1] R. Abjean and M. Leriche, Opt. Commun. **15** 121 (1975).

[2] J. V. Prodan, W. D. Phillips, and Harold Metcalf, Phys. Rev. Lett. **49** 1149 (1982).

[3] W. Paul, M. Raether, Z. Phy. **140** 262 (1955).

[4] R. E. Drullinger, D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. **40** 1639 (1978).

[5] V. S. Letokhov and V. P. Chebotayev, *Nonlinear Laser Spectroscopy* (Springer, Berlin, 1977) .

[6] F. Biraben, B. Cagnac and G. Grynberg, Phys. Rev. Lett. **32** 643 (1974).

[7] N. F. Ramsey, Phys. Rev. **78** 625 (1950).

[8] R. E. Holland, F. J. Lynch, G. Perlow and S. S. Hanna, Phys. Rev. Lett. **4** 181 (1960).

[9] F. Shimizu, K. Umezawa and H. Takuma, Phys. Rev. Lett. **40** 825 (1981).

[10] T. Mitsui, T. Kinugawa and K. Sakurai, Jpn. J. Appl. Phys. **37** 923 (1999).

[11] T. Mitsui, K. Yamashita, and K. Sakurai, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 2395 (1997).

[12] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducing, and P. S. Pershan, Phys. Rev. **127** 1918 (1962).

[13] N. Bloembergen, *Nonlinear Optics* (World Scientific Publ., New York, 1965).

[14] M. Tanigawa, Y. Fukuda, T. Kohmoto, K. Sakuno, and T. Hashi, Opt. Lett. **8**, 620 (1983).

[15] H. Harde and H. Burggraf, Opt. Comm. **40**, 441 (1982).

[16] G. A. Morris and R. Freeman, J. Magn. Reson. **29** 433 (1978).

[17] A. Abragam, *The principles of nuclear magnetism* (Oxford Press, Oxford, 1961).

[18] E. Arimondo, M. Inguscio, and P. Violino, Rev. Mod. Phys. **49**, 31 (1977).

[19] B. Senitzky and I. I. Rabi, Phys. Rev. **103**, 315 (1956).

[20] H. A. Schüssler, Z. Phys.**182**, 289 (1965).

[21] J. R. Beacham and K. L. Andrews, J. Opt. Soc. Am. **61**, 231 (1971).

[22] E. Arimondo and M. Kraińska-Miszczak, J. Phys. **B8**, 1613 (1975).

[23] G. K. Woodgate, *Elementary Atomic Structure*, 2nd Ed. (Oxford Press, New York, 1980).

[24] G. Breit and I.I. Rabi, Phys. Rev. **38**, 2082 (1931).

[25] A. L. Bloom, Appl. Opt. **1**, 61 (1962).

[26] H. G. Dehmelt, Phys. Rev. **107**, 1924 (1957).

[27] W. Happer, Rev. Mod. Phys. **44**, 169 (1972).

[28] A. Kastler, J. Physique Rad. **11**, 255 (1950).

[29] R. G. Brewer, E. L. Hahn, Phys. Rev. A **8** 464 (1973).

[30] J. Macek, Phys. Rev. A **1** 618 (1970).

[31] S. Haroche, in *High-resolved Laser Spectroscopy*, edited by K. Shimoda (Springer, Berlin, 1976).

[32] T. Kinugawa, K. Sakurai, and T. Mitsui, Rev. Sci. Instrum. **69**, 2796 (1998).

[33] William H. Press, Saul A. Teukolsky, William T. Vetterling, Brian P. Flannery, *Numerical Recipes in C++*, 2nd Ed. (Cambridge Press, UK, 2002).

[34] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy*, 2nd Ed. (Springer, Berlin, 1996).

[35] F. A. Franz, and J. R. Franz, Phys. Rev. **148** 82 (1966).

[36] R. H. Dicke, Phys. Rev. **89** 472 (1953).

[37] D. B. Keele, Jr., *Program of the 42nd Convention of the Audio Engineering Society*, (Audio Engng. Soc., Los Angels, 1972).

[38] P. R. Simth, *DECUS Europe 8th Seminar Proceedings*, (Digital Equipment Computer Users Soc., Strasbourg, France, 1972).

[39] K. P. Dinse, M. P. Winters, J. L. Hall, J. Opt. Soc. Am. B **5** 1825 (1988).

[40] H. A. Lorentz, Ann. Phys. Chem. **9** 641 (1880).

[41] L. Lorenz, Wiedem. Ann. **11** 70 (1881).

[42] W. Heitler, *The Quantum Theory of Radiation*, 3rd Ed. (Dover Publ., New York, 1984).

[43] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, 3rd Ed. (Oxford Press, Oxford, 2000).

[44] C. Cohen-Tannoudji, *Atom-Photon Interactions : Basic Processes and Applications*, (Wiley-Interscience, New York, 1977).

[45] E. T. Jaynes, and F. W. Cummings, Proc. IEEE **51**, 89 (1963).

[46] P. Goy, J. M. Raimond and S. Haroche, Phys. Rev. Lett. **50**, 1903 (1983).

[47] S. Haroche and D. Kleppner, Physics Today, 24 (January 1989).

[48] C. Cohen-Tannoudji, in *Frontiers in Laser Spectroscopy*, (Wiley-Interscience, New York, 1975).

[49] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical Resonance and Two Level Atoms*, (Wiley-Interscience, New York, 1975).

[50] R. G. Brewer, in *Frontiers of Laser Spectroscopy* (Les Houches, North-Holland, 1977).

[51] R. J. Glauber, E. L. Hahn, Phys. Rev. **131** 2766 (1963).

[52] H. Haken, *Light*, (North-Holland, Amsterdam, 1981).

[53] R. E. Slusher, L. W. Hollberg, B. Yurke, J. C. Mertz, and J. F. Valley, Phys. Rev. Lett **55** 2409 (1985).

[54] M. Koashi, K. Kono, T. Hirano and M. Matsuoka, Phys. Rev. Lett **71** 1164 (1993).

[55] R. Ghosh and L. Mandel, Phys. Rev. Lett **59** 1903 (1987).

[56] R. J. Glauber, E. L. Hahn, Phys. Rev. **130** 2529 (1963).

[57] U. Fano, Rev. Mod. Phys. **29** 74 (1957).

[58] P. Meystre and M. Sargent 3, *Elements of Quantum Optics*, (Springer, Berlin, 1999).

[59] M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum Optics*, (Cambridge Press, UK, 1997).

[60] M. D. Levenson and S. Kano, *Levenson*, 2nd Ed. (Academic Press, Orlando, Florida, 1988).

[61] P. R. Berman, R. Salomaa, Phys. Rev. A **25** 2667 (1982).

[62] D. Suter, *The Physics of Laser-Atom Interactions* (Cambridge Press, UK, 1997).

[63] F. Bloch W. hansen and M. Packard, Phys. Rev. **69** 127 (1946).

[64] R. P. Feynman, F. L. Veron and R. W. Helwarth, J. Appl. Phys. **28** 49 (1957).

[65] S. Mukamel, *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy*, (Oxford Press, New York, 1999).

[66] M. Born and E. Wolf, *Principle of Optics*, 7th Ed. (Cambridge Press, UK, 1999).

[67] R. C. Jones, J. Opt. Soc. Am. **31**, 488 (1941).

[68] C. Wieman, T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **36** 1170 (1976).

[69] K. An, R. R. Dasari, and M. S. Feld, Appl. Phys. Lett. **66**, 2162 (1995).

[70] G. C. Bjorklund, M. D. Levenson, W. Lenth, and C. Ortiz, Appl. Phys. B **32**, 145 (1983).

[71] M. Gehrtz, G. C. Bjorklund, and E. A. Whittaker, J. Opt. Soc. Am. B. **2**, 1510 (1985).