



ルビジウム原子におけるスピンの光制御

守安, 毅

(Degree)

博士 (理学)

(Date of Degree)

2009-03-25

(Date of Publication)

2014-08-08

(Resource Type)

doctoral thesis

(Report Number)

甲4509

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/D1004509>

※ 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

ルビジウム原子におけるスピンの光制御

平成21年1月

神戸大学大学院自然科学研究科

守安 毅

目次

1	序論	1
1.1	はじめに	1
1.2	本論文の構成	7
2	ライトシフト	8
2.1	古典論によるライトシフト	10
2.2	半古典論によるライトシフト	13
3	ルビジウム原子	18
3.1	ルビジウムのエネルギー準位構造	19
3.1.1	超微細構造	20
3.1.2	ルビジウムの吸収スペクトル	21
3.2	磁場に対する磁気副準位の分裂	24
3.2.1	Breit-Rabi の公式	25
3.2.2	ルビジウム原子における磁気副準位の分裂	28
3.3	ルビジウムの遷移確率	29
3.4	スペクトルの線幅	36
3.4.1	自然幅	38
3.4.2	ドップラー幅	40
3.4.3	衝突(圧力)広がり幅	42
4	光誘起磁化	44
4.1	光誘起磁化の生成と検出	45
4.1.1	光誘起磁化の生成(光ポンピング)	45
4.1.2	光誘起磁化の検出	46
4.1.3	ポラリメーター	49
4.2	磁気円偏光二色性と磁気円偏光複屈折の観測	50
4.2.1	磁気円偏光二色性と磁気円偏光複屈折のスペクトル	51
5	光誘起磁化の過渡現象	54
5.1	密度行列によるアプローチ	55
5.1.1	量子ビート	56
5.1.2	光誘起磁化の自由誘導減衰	58
5.2	自由誘導減衰の観測	64
5.2.1	自由誘導減衰の実験配置	64
5.2.2	自由誘導減衰の信号	65
5.3	自由誘導減衰の緩和	68
5.3.1	トランジットタイム(Transit time)による緩和	68

5.3.2	拡散による緩和	68
6	光誘起磁化の純光学的制御	71
6.1	ゼーマンライトシフトによる仮想的な磁場	72
6.2	純光学的制御の実験	77
6.3	純光学的制御の実験結果	81
6.3.1	歳差運動の位相制御	81
6.3.2	任意軸周りの回転	83
6.4	純光学的制御の実験の考察	93
6.4.1	歳差運動の位相制御	93
6.4.2	任意軸周りの回転	94
7	光誘起スピンエコー	100
7.1	磁気共鳴におけるスピンエコー	100
7.2	従来の光誘起スピンエコー	102
7.2.1	実験	102
7.2.2	理論	111
7.3	光誘起スピンエコーの理論	115
7.3.1	再整列能率	117
7.4	光誘起スピンエコーの実験	121
7.4.1	オンレゾナンスの光誘起スピンエコー	121
7.4.2	不均一磁場の生成	122
7.4.3	オフレゾナンスの光誘起スピンエコー	129
7.5	光誘起スピンエコーの実験結果	131
7.6	光誘起スピンエコーの実験の考察	136
7.6.1	ベクトルモデル	136
7.6.2	光誘起スピンエコーの周波数依存性	139
7.6.3	光誘起スピンエコーの制御光パルス幅依存性	141
7.6.4	スピンの任意軸周りの回転	141
8	まとめと展望	143
A	スピンの光制御の応用	145
A.1	量子情報	145
A.2	量子位相	146
A.3	スピントロニクス	147
A.4	高速スピンドYNAMIX	148
	謝辞	149

1 序論

1.1 はじめに

レーザー分光学 [2] や量子光学 [3, 4, 5], 光エレクトロニクス [6] と呼ばれる研究分野において光を使って様々な系を制御する研究が現在盛んに進められている。1960年にレーザー (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation : LASER) が発明され, その性能や技術は大きく向上してきた。光も制御できる電磁波となり, 従来の研究では不可能であったことが次々に可能になってきている。レーザーは, 従来の光源に比べて時間領域 (パルス性), 周波数領域 (単一周波数, 周波数変調, 周波数掃引性), 空間領域 (指向性, 偏光性), エネルギー領域 (高輝度性, エネルギー集中度) などにおいて優れた制御性を備えている。制御に活用されるのは, レーザーを特徴づけるいくつかのパラメーターである波長, 偏光, 位相, スペクトル幅, 光強度, そしてパルスレーザーの場合にはパルスの時間幅およびパルス間のタイミングなどである。これらのパラメーターを適切に制御することによって, レーザーとの相互作用により特定の量子状態を選択的に誘起および制御することができる。

現在, 光を用いた量子状態の制御の研究は, トラップされた原子やイオンの量子状態の制御に光を用いる研究 [7, 8] のような, 光学的な遷移を直接用いた制御が主流である。本研究では, 制御する量子状態としてスピン系をとりあげる。ここでいうスピンとは, 磁気共鳴などで制御されている磁化のことであり, 磁気副準位間のコヒーレンスが関係する。磁化とスピンの間には, $\mu \propto S$ の関係があるため, 磁化の制御はスピンの制御と等価である。

磁化の純光学的な制御は, 高速・広帯域・高感度の磁気測定を可能にする有用な手段として知られているが, スピン系を量子コンピューターに応用する可能性が示唆され, 近年特に, スピン系を光で高速に制御しようとする機運が高まっている。光を用いたスピンの量子状態の制御は, 量子情報や量子位相, スピントロニクス, 高速スピンドYNAMICS等の研究への応用としても重要である。

光学的な遷移を直接用いてもスピンの制御はできない。光学的な遷移を直接用いるとフォトンエコーのように, 磁気共鳴における基底状態の副準位間に生成されたコヒーレンスを光学的なコヒーレンスに拡張した制御になる。この種類の制御は, 光を用いているため非常に高速な制御が可能ではあるが, 励起状態と基底状態間のコヒーレンスを用いているためコヒーレンスの寿命が非常に短く応用が難しい。

本研究では, ライトシフトと呼ばれる効果を用いることによって, 光を用いてスピンの制御の研究を行った。詳しくは後の章で説明するが, ライトシフトとは, 図 1.1(a) のように原子の共鳴周波数から Δ だけ赤方離調された光が入射すると励起状態と基底状態のエネルギー準位が外側に広がるという効果である。一方, 青方離調された光が入射した場合は, ライトシフトによって励起状態と基底状態の

エネルギー準位が内側にシフトするという効果が現れる。ライトシフトの効果を用いると、原子の共鳴周波数から離調させた周波数の円偏光は、光の進行方向の仮想的な磁場として振る舞う。このことは次のように説明することができる。図 1.1(b) のような基底状態と励起状態にそれぞれ $S = 1/2$ を持つ 4 準位系に、赤方離調した σ_+ 円偏光が入射した場合を考える。光電場が偏光しているときは電気双極子遷移が許容された準位のみが相互作用するため、 σ_+ 円偏光が入射されると、その選択則から $S_z = -1/2$ から $S_z = +1/2$ への遷移のみが起こることになる。この時、 σ_+ 円偏光が離調しているとライトシフトの効果が起こり、相互作用している準位のみがシフトを起こすことになる。結果、基底状態と励起状態の縮退が解けて分裂し、仮想的な磁場が原子に印加されたとみなすことができる。この効果を用いると、基底状態の磁気副準位間に生成されたコヒーレンスを光によって制御することが可能である。ライトシフトの効果を用いた仮想的な磁場は、パルスの継続時間だけ印加できる磁場として働く。このため、基底状態のスピンを高速で制御することが可能になる。また、制御対象のスピンは基底状態の副準位間に生成されるものであり、そのコヒーレンスは、光学的なコヒーレンスに比べ寿命が比較的長いから、非常に応用に長けていると考えられる。磁気共鳴の分野では、スピンの制御の研究は良く確立されており、近年では量子コンピューターや量子位相の検証実験なども実現されている。ライトシフトの効果を用いた仮想的な磁場が実用的なものになれば、磁気共鳴で行われている様々なスピン制御を用いた実験をより高速に行えるようになる可能性がある。

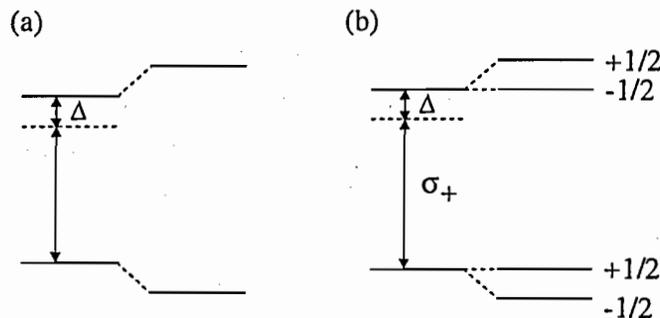


図 1.1: ライトシフトとライトシフトによる仮想的な磁場の発生。(a) 赤方離調した場合のライトシフトの効果。(b) 赤方離調した σ_+ 円偏光による仮想的な磁場の発生。

ゼーマンライトシフトを観測した Skalla らの実験 [9] を紹介する。ゼーマンライトシフトの効果は、図 1.2 に示すような実験によって効果的に観測できる。円偏光のポンプ光によって z 方向に光誘起磁化を生成した後、瞬間的に $(\pi/2)$ rf パルスをかけることによって光誘起磁化を x 方向に倒し、その時間発展を x 方向の検出

光により測定する。この実験は ^{85}Rb ($F=3$) の基底状態に作られた光誘起磁化を観測している。ライトシフトを引き起こさせる光(ライトシフト光)が入射されていない場合、外部磁場によるラーモア歳差運動のみが起こり図 1.2 の下のような FID(Free Induction Decay) 信号が得られる。この信号をフーリエ変換したものを基準とする。その結果が、図 1.3(a) である。次に、ライトシフト光を外部磁場と同じ方向に入射する。この状態で得られた信号をフーリエ変換すると図 1.3(b) のような、シフトを起こさない線と、ライトシフトの効果によってシフトした線が観測される。この結果は、レーザー光のもつガウス型の不均一な光強度の分布を考え、一様にポンプされたサンプルの拡散とスピン交換衝突を仮定することで説明された [9]。スピン交換衝突を仮定しているのは、バッファガスに窒素が使われているからと考えられる。この仮定によって、ライトシフトを受ける光誘起磁化と受けない光誘起磁化があることが説明できる。このことは、これらの原因を取り除くことにより、ルビジウムでは完全な共鳴線のシフトを起こすことが可能であることを示している。しかしながら、このような研究はあまり発展してこなかった。その理由としては、その当時のレーザーが非常に不安定で扱いにくく高価であったことや、レーザーを用いずルビジウムランプなどを用いて実験が行われてきたからだと考えられる。

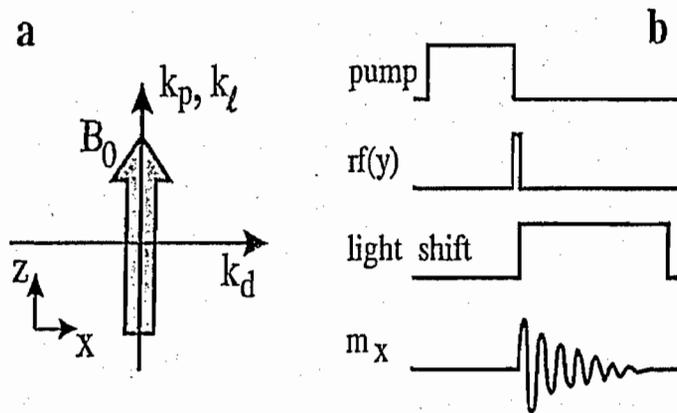


図 1.2: ゼーマンライトシフトの実験。(a) レーザー光と外部磁場の配置図。 k_d, k_p, k_l の波動ベクトルは、それぞれ検出光、ポンプ光、ライトシフト光の方向を表す。 B_0 は外部磁場を表す。(b) 基底状態のスピン共鳴スペクトルを検出するための、制御タイミング。

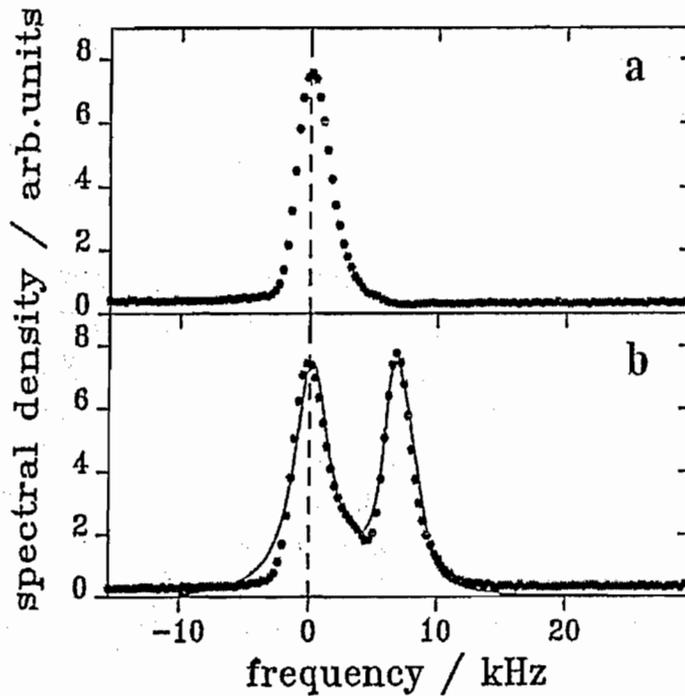


図 1.3: ゼーマンライトシフトの実験結果 [9]. (a) ライトシフト光をブロックした場合の磁場 $B_0 = 133.4\mu\text{T}$ 中の ^{85}Rb ($F=3$) 基底状態の磁気共鳴スペクトル. (b) (a)の状態に加え, FID の起こる間ライトシフト光を, B_0 と同じ方向に入射した場合の磁気共鳴スペクトル. 両方のスペクトルの原点は 623 kHz のラーモア周波数. 実験条件は, $T=70^\circ\text{C}$, バッファガスとして N_2 が 25 mbar (約 19 Torr) 封入されており, 離調 $\Delta = -3$ GHz のライトシフト光の強度は $I_0 \sim 5\text{mW}/\text{mm}^2$ である.

近年, 低温の磁性半導体の伝導電子において, スピンの超高速コヒーレント制御が議論された [10]. この実験は, 図 1.4 に示す方法で行われている. 実験配置は図 1.4 A のようになっている. 磁性半導体 (ZnSe/CdSe/MnSe quantum wells) に, 共鳴する ($\Delta \sim 0$) の生成光 (pump) を入射して, 光誘起磁化を生成すると, それに対して垂直に印加された外部磁場 ($H_0\hat{z}$) によって光誘起磁化が歳差運動を始める. その状態にパルス幅 ~ 150 fs の非共鳴 ($\Delta > 0$) の制御光 (tipping pump) を入射することによって光誘起磁化を制御光周りに回転させる. 光誘起磁化の時間発展の様子は, 検出光の偏光面の回転によって検出している. 光誘起磁化の時間発展の様子は, 図 1.4 B に示すとおりである. この実験の測定結果は図 1.5 のようになる. 実験結果から, 制御光の光強度を上げていくと, 回転角も大きくなっていることがわかる.

この実験は, ライトシフトによって引き起こされる仮想的な磁場を, パルス幅できまる時間の間だけ印加することが可能であることを示している. しかしながら,

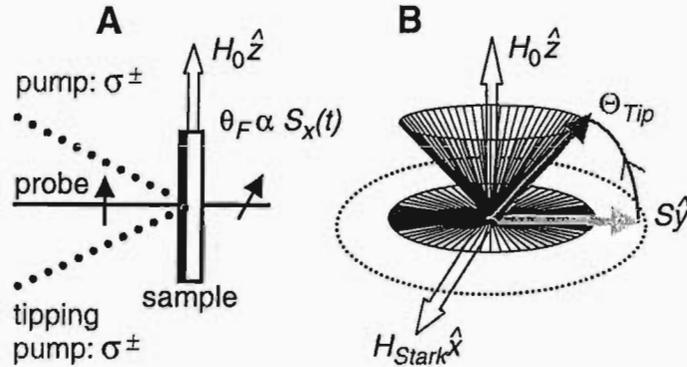


図 1.4: 低温の磁性半導体の伝導電子における、スピンの超高速コヒーレント制御の実験概念図 [10]. A は生成光 (pump) と制御光 (tipping pump), 検出光 (probe) の入射方向, および外部磁場の印加方向. 光誘起磁化の時間発展はプローブ光の偏光の回転によって観測される. 生成光によって光誘起磁化が生成される. 生成された光誘起磁化は, B における $x-y$ 平面の歳差運動を起こす. この状態に, 制御光パルスが入射されると, 光誘起磁化は制御光の周りを Θ_{Tip} だけ回転する.

この実験は, 図 1.5 に示すように, $\pi/2$ -パルス付近までしか実験を行えていない. 理想的なスピン制御には, 磁化を反転させる π -パルスまで必要である. Gupta らはスピンを回転させたことを主張しているが, 吸収によって磁化がつぶれただけの可能性も否定できない.

スピンを純光学的に空間的にも時間的にも制御するためには, 磁化の光による ①生成, ②検出, ③位相の制御, ④任意軸周りの回転が, 最低限必要であると考えられる. 本研究は, ルビジウム原子気体を用いて, これらの制御が可能であることを示し, 純光学的スピン制御を実現することを目的としている. スピン系の量子状態を光によって直接制御する研究に対して, 現在, 様々な試みが行われているが, 理想的な制御という意味ではまだほど遠いのが現状である. 理想的な制御を行うために, また不明確な部分を明確にするためには, 本研究のような基礎研究的なアプローチが必要であると考えられる.

本研究で行う光誘起磁化の純光学的制御の実験では, 完全な共鳴線のシフトによる理想的な仮想磁場の発生を目標とするため, 以下のような条件で実験を行った. スピンをもたないためにスピン交換衝突を起こさない ^4He 原子をバッファガスに用い (^3He の場合はスピン交換衝突が起こる.), その封入量を ~ 5 Torr と下げることによって, 衝突回数も極力減らした. また, レーザー光のビーム径を大きく広げその中心部分を実験に用いることで一様な光強度の分布を得た. その結果, ライトシフト効果による仮想的な磁場の発生を正しく評価することができた.

ライトシフトの効果は, 光照射によるエネルギー準位のシフトとして以前からよく知られており, 最近では, 光双極子トラップ [11] と呼ばれる原子をトラップ

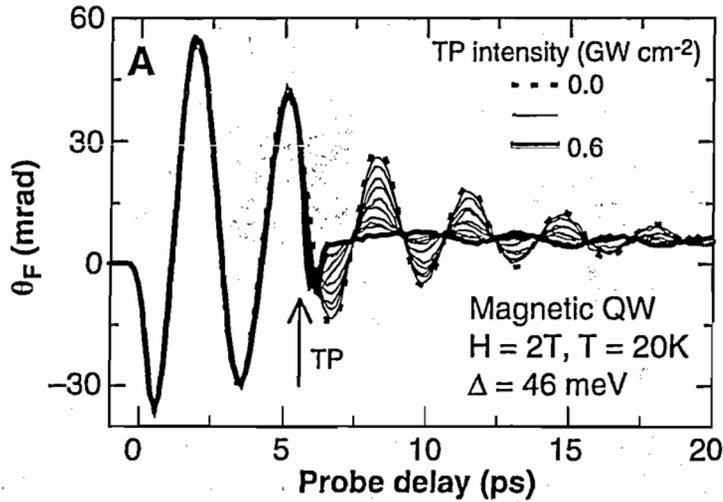


図 1.5: 低温の磁性半導体の伝導電子に対する，スピンの超高速コヒーレント制御の実験結果 [10].

する方法として盛んに利用されている。本研究では，ライトシフトの効果を”仮想的な磁場の発生”という別の視点から捉えてスピン制御に利用するものであり，このような試みはこれまであまり報告されていない。ライトシフトの効果を用いたスピン制御による磁化の時間発展を動的に観測する数少ない例として本研究で取り上げる光誘起スピンエコーの実験がある。光誘起スピンエコーは，主に福田，谷川ら [12, 13] と，Mlynek, Suter, Rosatzin ら [14, 15] によって実現されてきた。福田らと Mlynek らの光誘起スピンエコーの研究は，それぞれ原子の吸収線に対してオンレゾナンスとオフレゾナンスで行われており，その発生の原理は大きく異なっていて，全く別のタイプの研究として独自に発展してきたと考えられる。ライトシフトの効果を用いた光誘起スピンエコーの実験はオフレゾナンスの光誘起スピンエコーである。後に示すように，この実験では，1 台のレーザーによる一つの波長のみを用いており，制御光を離調させると，生成光と検出光の周波数も一緒に動いてしまう。そのため，オフレゾナンスのエコーをどれだけ正しく評価できているか疑問である。本研究では，2 台のレーザーを用いて，生成光と検出光の光周波数を固定し，制御光を任意に掃引することによって，光誘起スピンエコーにおけるライトシフトの効果を正しく評価することができた。

1.2 本論文の構成

本論文の構成について簡単に説明する。本研究はライトシフトと呼ばれる効果を用いたスピン制御の研究であるので、まずはじめに第2章で古典論と半古典論の観点からライトシフトの効果の導出及び説明を行う。第3章では、本研究で用いたサンプルであるルビジウム原子について、実験で必要になってくる光学特性等についてまとめた。第4章で、ライトシフトの効果によって制御される対象である光誘起磁化の生成と検出法について説明し、第5章で実際に検出された光誘起磁化の過渡現象について記す。第6章と第7章に、光誘起磁化の制御の実験について記し、第8章でまとめと展望を記す。最後に、付録として本研究の応用例を記した。

2 ライトシフト

原子と光の相互作用には、光子の吸収放出の他にライトシフトと呼ばれるエネルギー準位のシフトを引き起こす効果がある [16, 17, 18, 19, 20, 21]. ライトシフトは、電磁場中にある原子が光との相互作用により原子中に双極子モーメントが誘起され、ポテンシャルエネルギーがシフトすることから生じる. 一様な外部電場をかけた時に起こるエネルギーシフトをシュタルクシフト (DC シュタルクシフト) と呼ぶ. これと対比して、正弦波の光電場によるシフトであるライトシフトは、AC シュタルクシフトとも呼ばれる. 本研究で行うスピンの光制御には、このライトシフトと呼ばれる効果を用いる.

ライトシフトの効果は、Barrat と Cohen-Tannoudji による光ポンピングのサイクルに関する理論研究の中で予言され、Arditi や Cohen-Tannoudji, Dupont-Roc らによって実際に観測された. ライトシフトの効果は、非常に大きい離調をとった領域で支配的になる. 吸収の効果がほとんど無視できるため、ライトシフトの遷移は仮想的な遷移と呼ばれることがある. この仮想的な遷移によって引き起こされるライトシフトは、(1) すべての基底状態の準位を等しい量でシフトする center-of-mass ライトシフト, (2) アルカリ原子の基底状態の磁気双極子相互作用定数に等しいシフトを起こす hfs ライトシフト, (3) 仮想的な磁場と磁気双極子モーメントの相互作用によるゼーマンライトシフト, (4) 電場勾配と四重極モーメントの相互作用によるテンソルライトシフトがある. 本研究では観測されない(1)と(2)は、光のスペクトル特性に依存するが偏光には依存しない. (4)は、静電場によって引き起こされるテンソルシュタルクシフトに酷似している. 軽いアルカリ原子ではドップラー幅に比べ励起状態の超微細構造が小さいため無視できるが、ルビジウムやセシウムでは、超微細構造準位がよく分離されており無視できない. 本研究では、サンプルにルビジウムを用いたが、円偏光による励起によって双極子モーメントが生成されており、図 2.1 に示すような四重極モーメントまたはアライメントと呼ばれる状態は作らないためにテンソルライトシフトは関係しないと考えられる. 本研究では、離調された円偏光によるゼーマンライトシフトの効果を用いてスピンの制御を行う.

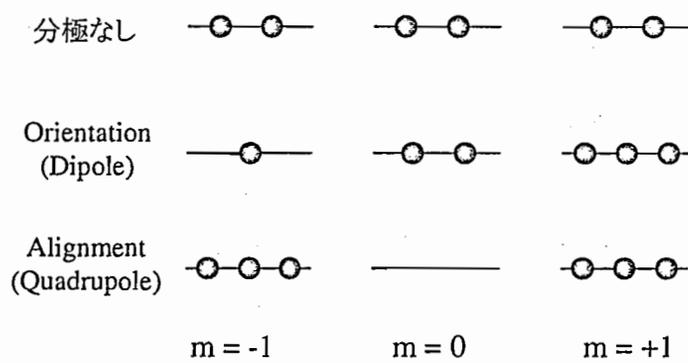


図 2.1: 多重極分極.

2.1 古典論によるライトシフト

ここでは、ライトシフトの効果を古典的に考える。物質を様々な固有振動数を持つ電気双極子の集まりとみなす。一つの電気双極子をバネで束縛された電荷とみなし、速度に比例する摩擦力を受けながら振動する調和振動子として扱うローレンツモデルを考える。外部電場中のもとの運動方程式は、

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} + m\Gamma \frac{d\mathbf{r}}{dt} + m\omega_0^2 \mathbf{r} = -e\mathbf{E}(t) \quad (2.1)$$

と書ける。ここで、 m 、 e 、 ω_0 は、それぞれ荷電粒子の質量、電荷、固有振動数とする。電場がレーザーのように単一の角振動数 ω_L で振動しているとすると、強制振動によって変位 \mathbf{r} も角振動数 ω_L で振動すると考えられる。ただし、摩擦力があるために両者の位相は一致しないため、 $\alpha \neq \beta$ として、

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t) &= \mathbf{E}_0 \cos(\omega_L t + \alpha) \\ \mathbf{r}(t) &= \mathbf{r}_0 \cos(\omega_L t + \beta) \end{aligned} \quad (2.2)$$

のように書き表わせる。複素表示を用いると、

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{E}}(t) &= \mathbf{E}_0 e^{i(\omega_L t + \alpha)} = \tilde{\mathbf{E}} e^{i\omega_L t}, & \tilde{\mathbf{E}} &= \mathbf{E}_0 e^{i\alpha} \\ \tilde{\mathbf{r}}(t) &= \mathbf{r}_0 e^{i(\omega_L t + \beta)} = \tilde{\mathbf{r}} e^{i\omega_L t}, & \tilde{\mathbf{r}} &= \mathbf{r}_0 e^{i\beta} \end{aligned} \quad (2.3)$$

となる。式(2.3)を式(2.1)の \mathbf{E} と \mathbf{r} に代入して計算すると、

$$\tilde{\mathbf{r}} = \frac{-e}{m(\omega_0^2 - \omega_L^2 - i\Gamma\omega_L)} \tilde{\mathbf{E}} \quad (2.4)$$

となる。気体や液体、ガラスなどのように等法的な物質で、しかも電場があまり強くないときは分極はその場所の電場に比例する。分極ベクトルにも複素表示を用いると、

$$\tilde{\mathbf{P}} = \tilde{\chi}_e(\omega_L) \tilde{\mathbf{E}} \quad (2.5)$$

となる。ここで、 $\chi_e(\omega_L)$ は、角振動数 ω_L の電場に対する電気感受率 (electric susceptibility) である。単位体積中の原子の数を N とすると分極ベクトルは、

$$\tilde{\mathbf{P}} = -Ne\tilde{\mathbf{r}} \quad (2.6)$$

と書けるので、式(2.6)に式(2.4)を代入して式(2.5)と比較することによって

$$\tilde{\chi}_e(\omega_L) = \frac{Ne^2}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega_L^2 + i\Gamma\omega_L} \quad (2.7)$$

が得られる。これを実部と虚部に分けると

$$\begin{aligned}\chi_e(\omega_L) &\equiv \Re[\tilde{\chi}_e(\omega_L)] = \frac{Ne^2}{m} \frac{\omega_0^2 - \omega_L^2}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^2 + \Gamma^2\omega_L^2} \\ \chi'_e(\omega_L) &\equiv \Im[\tilde{\chi}_e(\omega_L)] = -\frac{Ne^2}{m} \frac{\Gamma\omega_L}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^2 + \Gamma^2\omega_L^2}\end{aligned}\quad (2.8)$$

となり, $\tilde{\chi}_e(\omega_L) = \chi_e(\omega_L) + i\chi'_e(\omega_L)$ として表される。 $\chi_e(\omega_L)$ と $-\chi'_e(\omega_L)$ には図 2.2 に示すような関係がある。

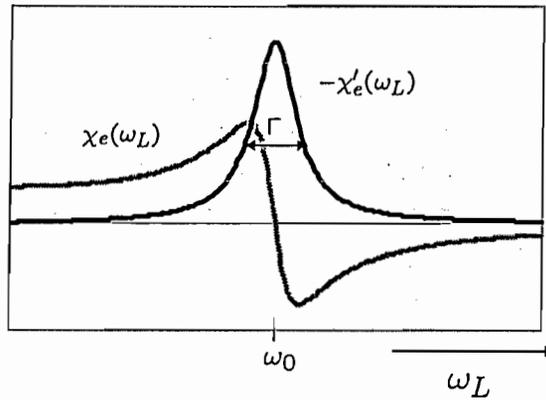


図 2.2: $\tilde{\chi}_e(\omega_L)$ の実部と虚部。

分極ベクトルの実部は,

$$\mathbf{P}(t) = \Re\{\tilde{\chi}(\omega_L)\tilde{\mathbf{E}}(t)\} \quad (2.9)$$

$$= \chi_e(\omega_L)\mathbf{E}_0 \cos(\omega_L t + \alpha) - \chi'_e(\omega_L)\mathbf{E}_0 \sin(\omega_L t + \alpha) \quad (2.10)$$

となる。

電場が電荷に対して行う仕事は, 単位体積, 単位時間当たりで, $W = \mathbf{i}_p(t) \cdot \mathbf{E}(t)$ によって得られる。

$$\mathbf{i}_p(t) = \frac{\partial \mathbf{P}(t)}{\partial t} \quad (2.11)$$

$$= -\omega_L \chi_e(\omega_L)\mathbf{E}_0 \sin(\omega_L t + \alpha) - \omega_L \chi'_e(\omega_L)\mathbf{E}_0 \cos(\omega_L t + \alpha) \quad (2.12)$$

なので,

$$W = \mathbf{i}_p(t) \cdot \mathbf{E}(t) \quad (2.13)$$

$$\begin{aligned} &= -\omega_L \chi_e(\omega_L)\mathbf{E}_0^2 \sin(\omega_L t + \alpha) \cos(\omega_L t + \alpha) \\ &\quad -\omega_L \chi'_e(\omega_L)\mathbf{E}_0^2 \cos^2(\omega_L t + \alpha)\end{aligned}\quad (2.14)$$

となる。第1項は時間と共に正負に振動するので、振動の1周期について平均すると消える。これに対し、第2項を1周期 $T = 2\pi/\omega_L$ について平均すると、

$$\frac{1}{T} \int_0^T \cos^2(\omega_L t + \alpha) dt = \frac{1}{2} \quad (2.15)$$

となるので、電場がする平均の仕事は、

$$\bar{W} = \frac{1}{T} \int_0^T W dt \quad (2.16)$$

$$= -\frac{1}{2} \omega_L \chi'_e(\omega_L) E_0^2 \quad (2.17)$$

として得られ、 $\chi'_e(\omega_L)$ に比例することがわかる。式(2.8)より、 $\chi'_e(\omega_L)$ は負になるので \bar{W} は正になる。これは、電場が分極に対して単位体積、単位時間当たりにする仕事を表している。これは、これだけのエネルギーが分極に吸収されるといってもよい。よって、分極が電場から吸収するエネルギーは、図2.2の $\chi'_e(\omega_L)$ のような共鳴点 $\omega_L = \omega_0$ 付近で大きな値を持ち、 Γ 程度で急に減衰する振る舞いをする。

一方、ライトシフトの効果は、電場と電気双極子のクーロン相互作用によって引き起こされ、分極が電場から吸収するエネルギーに加えられる。電場と電気双極子のクーロン相互作用は、

$$U_{int} = -\frac{1}{2} \mathbf{P}(t) \cdot \mathbf{E}(t) \quad (2.18)$$

$$= \chi_e(\omega_L) \mathbf{E}_0 \cos^2(\omega_L t + \alpha) - \chi'_e(\omega_L) \mathbf{E}_0 \sin(\omega_L t + \alpha) \cos(\omega_L t + \alpha) \quad (2.19)$$

によって得られる。ここで、 $1/2$ は、双極子モーメントが永久的なものではなく誘起されたものであることを示している。分極が電場から吸収するエネルギーを求めた時と同様、振動の1周期 $T = 2\pi/\omega_L$ について平均すると、

$$\frac{1}{T} \int_0^T \cos^2(\omega_L t + \alpha) dt = \frac{1}{2} \quad (2.20)$$

となるので、平均のエネルギーは、

$$\bar{U}_{int} = -\frac{1}{4} \chi_e(\omega_L) E_0^2 \quad (2.21)$$

となり、 $\chi_e(\omega_L)$ の実部に比例することがわかる。この平均エネルギーは、ライトシフトによるエネルギーを表している。よって、ライトシフトの効果は、図2.2の $\chi_e(\omega_L)$ のような振る舞いをし、赤方離調 ($\omega_L < \omega_0$) の時、 $\bar{U}_{int} < 0$ となり、青方離調 ($\omega_L > \omega_0$) の時、 $\bar{U}_{int} > 0$ となる。

吸収とライトシフトの効果は、図2.2の $\chi'_e(\omega_L)$ と $\chi_e(\omega_L)$ のような振る舞いをする。吸収の効果は、 $\omega_0 = \omega_L$ 付近で大きくなり、ライトシフトの効果は、離調を大きくとった $|\omega_L - \omega_0| \gg \Gamma$ の時に顕著に現れるようになる。しかしながら、離調があまり大きくない領域では、吸収とライトシフトの効果の寄与をお互い無視することができないことがわかる。

2.2 半古典論によるライトシフト

一般的なライトシフトの効果は、原子と光の相互作用に、原子の共鳴周波数と光の周波数のズレを考慮することによって簡単に求めることができる。まずはじめに、ハミルトニアン H_0 に対するシュレディンガー方程式

$$H_0\psi = E\psi \quad (2.22)$$

が、固有エネルギー E_n と固有波動関数 ψ_n を持つとする。時間に依存するシュレディンガー方程式は、

$$i\hbar \frac{d\Psi}{dt} = H\Psi \quad (2.23)$$

である。ここで、ハミルトニアン H は、時間に依存しない無擾動系のハミルトニアン H_0 と、時間に依存する摂動ハミルトニアン $H_1(t)$ を考える、

$$H = H_0 + H_1(t). \quad (2.24)$$

無擾動系において、エネルギー E_n をもつエネルギー準位の波動関数は、

$$\Psi_n(\mathbf{r}, t) = \psi_n(\mathbf{r})e^{-iE_n t/\hbar} \quad (2.25)$$

として得られる。二準位系に対して、空間的な波動関数は、

$$\begin{aligned} H_0\psi_1(\mathbf{r}) &= E_1\psi_1(\mathbf{r}) \\ H_0\psi_2(\mathbf{r}) &= E_2\psi_2(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (2.26)$$

を満たす。ここで、 $E_2 > E_1$ とする。これらの原子の波動関数は全ハミルトニアン $H_0 + H_1(t)$ の固有状態ではないが、任意の時間での波動関数は

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = c_1(t)\psi_1(\mathbf{r})e^{-iE_1 t/\hbar} + c_2(t)\psi_2(\mathbf{r})e^{-iE_2 t/\hbar} \quad (2.27)$$

と表現でき、ディラックのケット表記を用いると、

$$|\Psi(\mathbf{r}, t)\rangle = c_1|1\rangle e^{-i\omega_1 t} + c_2|2\rangle e^{-i\omega_2 t} \quad (2.28)$$

のように表現できる。ここで、 $c_1(t)$ を c_1 、 $\omega_1 = E_1/\hbar$ のように省略した。規格化すると、二つの時間に依存する係数は、

$$|c_1|^2 + |c_2|^2 = 1 \quad (2.29)$$

を満たす。

振動する単色光電場を $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \cos(\omega_L t)$ とすると、光と原子の相互作用のハミルトニアンは、電気双極子近似の下で、

$$H_1(t) = -\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (2.30)$$

$$= -(-e\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_0 \cos(\omega_L t) \quad (2.31)$$

$$= \frac{e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}_0}{2} (e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}) \quad (2.32)$$

として書き表わされる。このハミルトニアンは、電場中の電気双極子 $-e\mathbf{r}$ のエネルギーに一致する。ここで、 \mathbf{r} は原子の中心質量に関する電子の位置である。この相互作用は、エネルギー E_1 と E_2 をもつ2つの状態をミックスする。式(2.23)の時間に依存するシュレディンガー方程式に式(2.28)を代入すると、

$$\begin{aligned} i\dot{c}_1 &= c_2 \left\{ e^{-i(\omega_0 + \omega_L)t} + e^{-i(\omega_0 - \omega_L)t} \right\} \frac{\chi}{2} \\ i\dot{c}_2 &= c_1 \left\{ e^{i(\omega_0 + \omega_L)t} + e^{i(\omega_0 - \omega_L)t} \right\} \frac{\chi^*}{2} \end{aligned} \quad (2.33)$$

が導かれる。ここで、 $\omega_0 = (E_2 - E_1)/\hbar$ で、ラビ周波数 χ は、

$$\begin{aligned} \chi &= \frac{\langle 1 | e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}_0 | 2 \rangle}{\hbar} \\ &= \frac{eD_{12} |\mathbf{E}_0|}{\hbar} \end{aligned} \quad (2.34)$$

によって定義される。ここで、 D_{12} は、ベクトル

$$\mathbf{D}_{12} = \langle 1 | \mathbf{r} | 2 \rangle = \int \psi_1^* \mathbf{r} \psi_2 d^3\mathbf{r} \quad (2.35)$$

の大きさである。

電気双極子 \mathbf{p} と光電場 $\mathbf{E}(t)$ の相互作用 $\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}(t)$ は、共にベクトル量であり、光電場が偏光しているときには電気双極子の対応する成分のみが相互作用する。例えば、 x 方向に振動する直線偏光 $\mathbf{E}(t) = |\mathbf{E}_0| \hat{e}_x \cos(\omega_L t)$ に関して、 $p_x E_x$ となり、

$$\chi = \frac{eX_{12} |\mathbf{E}_x|}{\hbar} \quad (2.36)$$

である。ここで、 $X_{12} = \langle 1 | x | 2 \rangle = D_{12}/\sqrt{3}$ である。

式(2.33)の $(\omega_L + \omega_0)$ の形の項は、とても速く振動するので正味の効果はほとんどないと仮定し、無視することができる。これを回転波近似 (rotating-wave approximation) と呼ぶ。回転波近似を行うと、式(2.33)は、

$$\begin{aligned} i\dot{c}_1 &= c_2 e^{-i\Delta t} \frac{\chi}{2} \\ i\dot{c}_2 &= c_1 e^{i\Delta t} \frac{\chi^*}{2} \end{aligned} \quad (2.37)$$

と書き直される。ここで、 Δ は、原子の共鳴周波数 ω_0 とレーザーの周波数 ω_L のズレであり、 $\Delta = \omega_0 - \omega_L$ である。

回転波近似において無視した回転項は、原子の共鳴周波数 ω_0 を $\chi^2/(4\omega_L)$ だけシフトさせる。これは、磁気共鳴におけるブロッホ・ジーガート (Bloch-Siegert) シフトとして知られている [22]。このシフトは、原子と反回転するレーザー光の電場との相互作用に起因する。ライトシフトと同様、正弦波の光電場によるシフトであり、こちらも AC シュタルクシフトに分類される。しかしながら、レーザー周波数 ω_L の逆数に比例するこの非共鳴シフトは、高出力のパルスレーザーを用いるときは重要になってくるが、本研究で行うような連続発振のレーザーを用いる実験では普通無視できる。

新しい変数として

$$\begin{aligned}\tilde{c}_1 &= c_1 e^{i\Delta t/2} \\ \tilde{c}_2 &= c_2 e^{-i\Delta t/2}\end{aligned}\quad (2.38)$$

を定義する。これは、確率振幅の単なる書き換えになる。密度行列

$$|\Psi\rangle\langle\Psi| = \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_1^* & c_2^* \end{pmatrix}\quad (2.39)$$

$$= \begin{pmatrix} |c_1|^2 & c_1 c_2^* \\ c_2 c_1^* & |c_2|^2 \end{pmatrix}\quad (2.40)$$

$$= \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix}\quad (2.41)$$

を考えた場合、この変換は、ポピュレーションに影響を及ぼさないので、 $\tilde{\rho}_{11} = \rho_{11}$ 、 $\tilde{\rho}_{22} = \rho_{22}$ であるが、コヒーレンス $\tilde{\rho}_{12}$ と $\tilde{\rho}_{21}$ に関しては、 $\tilde{\rho}_{12} = \rho_{12} \exp(-i\Delta t)$ と $\tilde{\rho}_{21} = \rho_{21} \exp(i\Delta t) = (\tilde{\rho}_{12})^*$ となる。この $\tilde{\rho}_{12}$ と $\tilde{\rho}_{21}$ は、光電場 ω_L での原子の応答を与える。これは、原子の共鳴周波数 ω_0 から光電場 ω_L の回転系に移ったことを表している。

式 (2.37) と式 (2.38) から、 \tilde{c}_1 と \tilde{c}_2 に関する式

$$\begin{aligned}i\dot{\tilde{c}}_1 &= \frac{1}{2}(-\Delta\tilde{c}_1 + \chi\tilde{c}_2) \\ i\dot{\tilde{c}}_2 &= \frac{1}{2}(\chi\tilde{c}_1 + \Delta\tilde{c}_2)\end{aligned}\quad (2.42)$$

が得られる。初期条件を $c_1(0) = 1$ 、 $c_2(0) = 0$ として、この連立微分方程式を解くと

$$|c_2(t)|^2 = \frac{\chi^2}{W^2} \sin^2\left(\frac{Wt}{2}\right)\quad (2.43)$$

として状態 $|2\rangle$ における存在確率の時間変化を求めることができる。ここで、 $W^2 = \chi^2 + \Delta^2$ である。共鳴条件 $\omega_L = \omega_0$ では、 $W = \chi$ なので、式 (2.43) は、

$$|c_2(t)|^2 = \sin^2\left(\frac{\chi t}{2}\right) \quad (2.44)$$

となり、存在確率がラビ周波数で振動していることがわかる。磁気共鳴などで用いられるブロッホ方程式を光学遷移に拡張した光学的ブロッホ方程式の考え方をを用いると、入射光が共鳴条件にあって、緩和が小さい短時間内を考えた場合、ブロッホベクトルがラビ周波数で回転運動する描像で表現することができる。この回転運動を光章動と呼ぶ。この考え方は、フォトンエコーを考えるときには重要になってくる。本研究は、緩和速度がラビ周波数に対して十分大きい状態を考えており、基底状態の磁化に関する研究なので光学的ブロッホ方程式と光章動について触れないことにする。しかしながら、ラビ周波数は、基底状態のコヒーレンスにも比例係数として現れることになる。ラビ周波数は、電気双極子モーメント p と光の電場 E を知ることができれば求めることができる。 χ はラビ周波数、離調の効果を考慮している W は一般化したラビ周波数と呼ばれる。

式 (2.42) を行列にすると、

$$i \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \tilde{c}_1 \\ \tilde{c}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\Delta/2 & \chi/2 \\ \chi/2 & \Delta/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{c}_1 \\ \tilde{c}_2 \end{pmatrix} \quad (2.45)$$

となる。この一般解は、

$$\begin{pmatrix} \tilde{c}_1 \\ \tilde{c}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} e^{-i\lambda t} \quad (2.46)$$

の形で得られる。固有値 λ に関する固有値方程式は、

$$\begin{vmatrix} -\Delta/2 - \lambda & \chi/2 \\ \chi/2 & \Delta/2 - \lambda \end{vmatrix} = \lambda^2 - \left(\frac{\Delta}{2}\right)^2 - \left(\frac{\chi}{2}\right)^2 = 0 \quad (2.47)$$

である。これを解くと、 $\lambda = \pm(\Delta^2 + \chi^2)^{1/2}/2$ となる。 $\chi = 0$ の時、無摂動の固有値は、 Δ だけ離れた二つのエネルギー準位に一致する $\lambda = \pm\Delta/2$ になる。時間に依存する摂動論のこの結果は、 Δ のエネルギー差を持つ二つの状態の時間に依存しない摂動論に関するものとして考えることができる。これら2つの状態は、 E_2 のエネルギー状態とエネルギー $E_1 + \hbar\omega_L$ でのエネルギー状態にあたる。

一般的にライトシフトは、吸収の効果が無視できる大きい離調周波数で重要になってくる。 $|\Delta| \gg \chi$ で、式 (2.47) の固有値は、

$$\lambda \simeq \pm \left(\frac{\Delta}{2} + \frac{\chi^2}{4\Delta} \right) \quad (2.48)$$

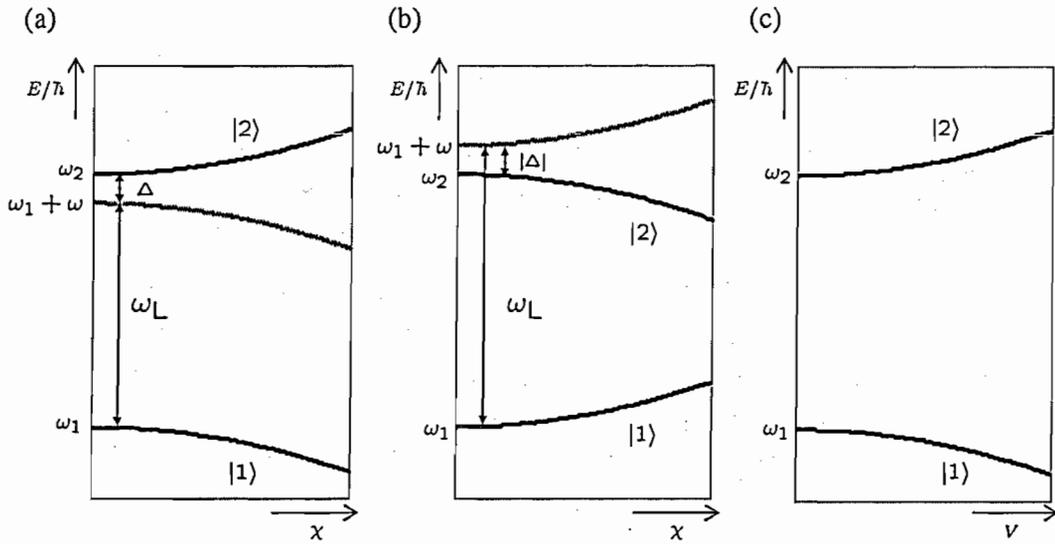


図 2.3: 外部電場と相互作用する二準位原子のエネルギー。 (a) と (b) は、ラビ周波数の関数としての正と負の離調に対する AC シュタルク効果 (ライトシフト) を示す。 (c) は、外部電場の強さの関数としての DC シュタルク効果を示す。

となる。この結果は、 Δ のエネルギー周波数差を持つ二準位が、ライトシフト $\pm \chi^2/4\Delta$ によってシフトする描写で考えることができる。結果、図 2.3 に示すようなエネルギー準位のシフトが起こる。

ここまでの議論から、光の遷移が許されれば、任意の準位について成り立つことがわかる。このことから、先に述べたようにライトシフトには、center-of-mass ライトシフトや hfs ライトシフト、ゼーマンライトシフト、テンソルライトシフトの種類が示されてはいるが、これらは、エネルギー準位の由来によるものであると考えられ、単なる光によるエネルギー準位のシフトと考えることができる。

3 ルビジウム原子

本研究では、試料としてアルカリ金属原子であるルビジウム (Rubidium) 原子気体を用いた。ルビジウムの原子番号は37で元素記号はRb, 原子量は85.4678であり, 自然界において二つの安定な同位体 ^{85}Rb と ^{87}Rb が72.2:27.8の割合で存在する。アルカリ金属原子は分光学的によく研究され, 光学的諸性質がよく知られている。アルカリ金属原子は第I族の原子であり, その基底状態の電子配置は, 最外殻に電子が一個存在し内殻は閉殻という水素原子に類似した構造を持っている。そのため, エネルギー準位が他の原子に比べ単純であり, 分光学の基礎研究において試料としてよく使われる。アルカリ金属原子は近年, ボースアインシュタイン凝縮 (BEC) や電磁誘導透過 (EIT), 原子時計などの研究によく利用されている。

ルビジウムの基本的な性質を表3.1に示す。ルビジウムの融点は, 大気圧において室温に比べて高いため, 室温ではやわらかい銀白色の金属である。実験では, ルビジウム原子とバッファガスとしてヘリウムが5 Torr 封入された長さ1 cmのセルを用いた。

表 3.1: ルビジウム原子の基本的な性質 [23].

原子番号		37
天然存在率	^{85}Rb	72.17 (2) %
	^{87}Rb	27.83 (2) %
原子量	^{85}Rb	84.9117924
	^{87}Rb	86.9091858
	Average	85.4678 (3)
比重		1.532g/cm ³
融点		38.89°C (at 1 atm)
沸点		688°C (at 1 atm)
質量	^{85}Rb	$1.41 \times 10^{-25}\text{kg}$
	^{87}Rb	$1.44 \times 10^{-25}\text{kg}$
	Average	$1.42 \times 10^{-25}\text{kg}$

3.1 ルビジウムのエネルギー準位構造

ルビジウム原子は、D線と呼ばれる強い吸収線をもち、そのエネルギー準位構造は比較的単純である。図3.1にルビジウム原子D線のエネルギー準位図を示す。微細構造作用によるエネルギー準位を $n^{2S+1}L_J$ と表記している。ここで、 n は主量子数を表し、 L は軌道角運動量、 J は電子系の全角運動量を示す。電子系の全角運動量 J は軌道角運動量 L と電子のスピン S を用いて $J=S+L$ と表せる。5p軌道は軌道角運動量 $L=1$ を持つためスピン・軌道相互作用によって $5^2P_{1/2}$ と $5^2P_{3/2}$ のそれぞれに微細構造分裂している。基底状態 $5^2S_{1/2}$ から第一励起状態 $5^2P_{1/2}$ への遷移を D_1 線 (794.8 nm)、第二励起状態 $5^2P_{3/2}$ への遷移を D_2 線 (780 nm) と呼び、それらをまとめてD線と呼んでいる。

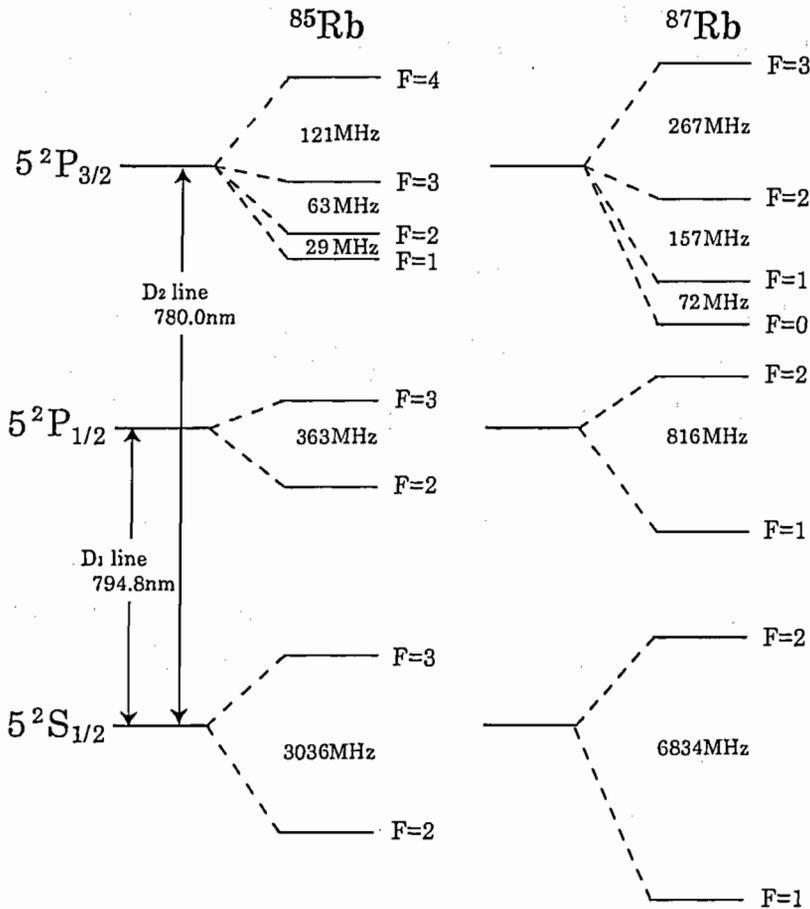


図 3.1: ルビジウム D 線のエネルギー準位構造. 分裂エネルギーの単位は周波数 $\nu = E/h(\text{Hz})$ である.

ルビジウム原子の自然界において安定な二つの同位体 ^{85}Rb と ^{87}Rb は、それぞれ核スピン $I=5/2$ と $I=3/2$ をもつ。そのため、微細構造準位は、超微細相互作用

によって原子全体の全角運動量 $\mathbf{F} = \mathbf{J} + \mathbf{I}$ の量子数 $F(=J+I, \dots, |J-I|)$ で示される準位にさらに細かく分裂する。この分裂を超微細構造分裂とよび、その準位を超微細構造準位と呼ぶ。

3.1.1 超微細構造

超微細構造分裂の大きさは、核スピン-電子スピン相互作用によるアルカリ原子の有効ハミルトニアン [24]

$$\mathcal{H}_{hfs} = hA(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) + hB \left[\frac{6(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})^2 + 3(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \right] \quad (3.1)$$

から得られる固有エネルギーから求まる。ここで、 A は磁気双極子相互作用定数、 B は電気四重極子相互作用定数であり、超微細構造定数と呼ばれる表 3.2 に示す定数である。

表 3.2: ルビジウム原子の超微細構造定数 [25].

同位体	5S _{1/2}	5P _{1/2}	5P _{3/2}	
	A (MHz)	A (MHz)	A (MHz)	B (MHz)
⁸⁵ Rb	1011.910813 (2)	120.72 (25)	25.009 (22)	25.88 (3)
⁸⁷ Rb	3417.34130642 (15)	406.2 (8)	84.845 (55)	12.52 (9)

式 (3.1) から得られる固有エネルギーは、超微細構造作用による微細構造準位からのエネルギーシフトである。式 (3.1) の第一項は核スピンに付随する磁気モーメントと電子の作る磁場との相互作用による分裂であり、第二項は核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る分裂である。電気四重極モーメントは J と I がともに 1 以上の時に起こる。このハミルトニアンにおいて、全角運動量 F と磁気量子数 m_f はよい量子数になっている。

$$\mathcal{H}_{hfs}|F, m_F\rangle = E|F, m_F\rangle \quad (3.2)$$

エネルギー固有値 E は、

$$\begin{aligned} E &= \langle F, m_F | \mathcal{H}_{hfs} | F, m_F \rangle \\ &= hAK + hB \left[\frac{6K^2 + 3K - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \right] \end{aligned} \quad (3.3)$$

で表される。ここで

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

である。

超微細構造をもつ原子にレーザー光をあて、微細構造準位間の電気双極子遷移を起こさせる場合、起こりうる遷移の選択則は、 $\Delta J = 0, \pm 1$ かつ $\Delta F = 0, \pm 1$ 。ただし、ルビジウム原子のD線には存在しないが $J = 0 \rightarrow J' = 0$ と $F = 0 \rightarrow F' = 0$ のときは、禁止遷移である。

3.1.2 ルビジウムの吸収スペクトル

ルビジウム原子D₁線の吸収スペクトルを図3.2に示す。試料にはバッファガス無しのルビジウムセルを用いた。横軸は、吸収線付近でのレーザーの掃引周波数で縦軸は吸収係数である。ルビジウムのエネルギー準位図から実際は計8本ある吸収線が、⁸⁵Rbの励起状態の $F = 2$ と $F = 3$ の周波数分裂間隔 363 MHz がルビジウム原子D₁線の350 Kにおけるドップラー幅 500 MHz より小さいので、ドップラー広がりのために6本に見えている。また、核の質量の違いから⁸⁵Rbと⁸⁷Rbは有効質量が異なり、吸収の重心がずれるアイソトープシフトが起こっている。

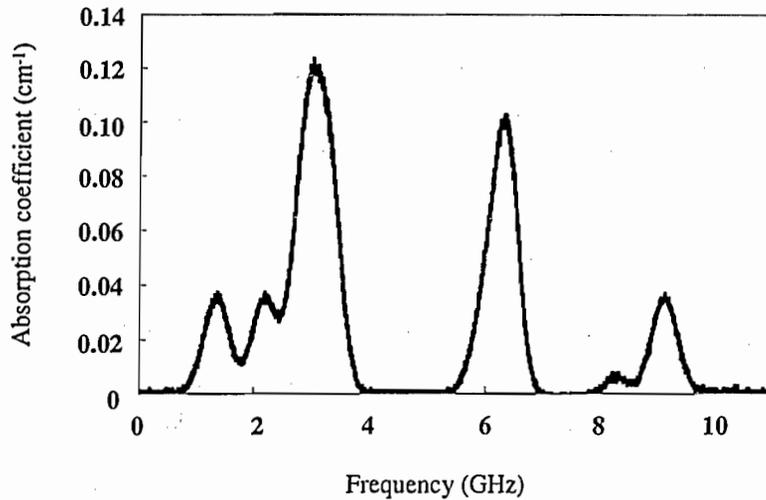


図 3.2: ルビジウム原子D₁線の吸収スペクトル。バッファガス無しの7 cm ルビジウムセルを用いて、室温付近(36°C)で透過光強度を測定して求めた。横軸は、吸収線付近でのレーザーの掃引周波数である。

吸収係数は試料の透過光強度から求めた。入射光が試料中を微小距離 dx だけ進むときの強度の変化分 dI は dx に比例しているので

$$dI = -\mu I dx \quad (3.4)$$

として表せる。ここで比例定数 μ が吸収係数である。式(3.4)を積分すると透過光の強度が

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (3.5)$$

と表せる。ここで I_0 は試料への入射光強度である。式(3.5)を μ について書き直すと、吸収係数を求める式

$$\mu = -\frac{1}{x} \ln \frac{I}{I_0} \quad (3.6)$$

が得られる。ここで、吸収線に共鳴しないときの透過光強度を I_0 とすると、ルビジウム原子の吸収以外で吸収スペクトルに影響する要因を補正することができる。

吸収係数から試料の温度を割り出すことができる。表 3.3 はルビジウム原子の温度 T (K) と飽和蒸気圧 P (mmHg) の関係である。図 3.3 に表 3.3 の値をプロットしたものと、その近似曲線を示す。近似曲線に用いた式は、

$$\log_{10} P_{\text{mmHg}} = a - \frac{b}{T} \quad (3.7)$$

であり、ここでは $a = 7.03$ 、 $b = 4.04 \times 10^3$ とした。吸収係数と飽和蒸気圧は比例の関係にある。このため、吸収係数を測定すれば、図 3.2 の 36°C での吸収係数を基準にして式(3.7)から温度を見積もることができる。

表 3.3: ルビジウム原子の温度と飽和蒸気圧 [26].

$^\circ\text{C}$	$P \cdot 10^6$ mmHg	$^\circ\text{C}$	$P \cdot 10^6$ mmHg	$^\circ\text{C}$	$P \cdot 10^4$ mmHg
40	1.64	55	6.55	74	0.336
47	3.21	65	16.8	82	0.640
50	4.13			93	1.43

$^\circ\text{C}$	$P \cdot 10^4$ mmHg	$^\circ\text{C}$	$P \cdot 10^4$ mmHg	$^\circ\text{C}$	$P \cdot 10^4$ mmHg
96	1.61	91.4	0.520	115.0	2.36
103	2.91	98.2	1.025	122.1	4.86
		104.9	1.59	124.7	5.30
		111.6	2.13	126.9	6.25

$^\circ\text{C}$	mmHg	$^\circ\text{C}$	mmHg	$^\circ\text{C}$	mmHg	$^\circ\text{C}$	mmHg
250	0.06	330	2.66	346	3.67	365	5.51
292	0.98	333	2.95	353	4.25	367	6.14
305	1.46	340	3.29	356	4.57		

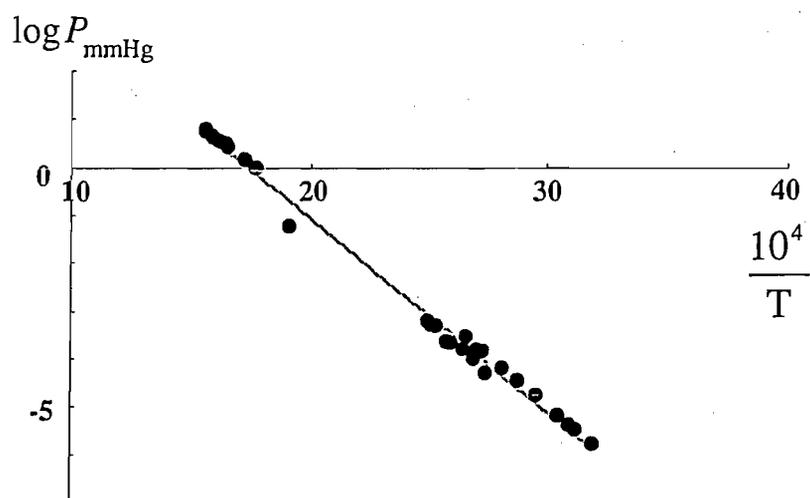


図 3.3: ルビジウム原子の飽和蒸気圧曲線. ● は表 3.3 をプロットしたものであり, 直線は式 (3.7) による近似曲線を示している.

3.2 磁場に対する磁気副準位の分裂

超微細相互作用と外部磁場によるゼーマン効果によって微細構造から分裂する系の有効ハミルトニアンは,

$$\mathcal{H}_{eff} = hA(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) + hB \left[\frac{6(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})^2 + 3(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \right] + \mu_B(g_J\mathbf{J} + g_I\mathbf{I}) \cdot \mathbf{H}_0, \quad (3.8)$$

である。ここで、 μ_B はボーア磁子、 g_I は核スピン I に対する g 因子、 g_J は電子系の全角運動量 J に対する g 因子、 H_0 は外部磁場である。ルビジウム原子 D_1 線の場合は電気四重極子モーメントを持たないので、電気四重極子モーメントによる項を無視することができる、

$$\mathcal{H}_{eff} = hA(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) + \mu_B(g_J\mathbf{J} + g_I\mathbf{I}) \cdot \mathbf{H}_0 \quad (3.9)$$

のようになる。

電子系の g 因子は、

$$g_J \approx 1 + \frac{J(J+1) - L(L+1) + S(S+1)}{2J(J+1)}. \quad (3.10)$$

で与えられる。

g_J と g_I の実験によって求められた値を表 3.4 と表 3.5 に示した。

表 3.4: ルビジウムの基底状態と励起状態の g_J の値.

State	g_J	Reference
$5S_{1/2}$	2.00233113(20)	Arimondo <i>et al.</i> , 1977 [27]
$5P_{3/2}$	1.3362(13)	Arimondo <i>et al.</i> , 1977 [27]
$6P_{1/2}$	0.6659(3)	Feiertag <i>et al.</i> , 1973 [28]
	0.671(20)	Anisimova <i>et al.</i> , 1968 [29]
$6P_{3/2}$	1.3353(12)	Arimondo <i>et al.</i> , 1977 [27]
	1.334(1)	Schüssler, 1965 [30]
	1.337(4)	Anisimova <i>et al.</i> , 1968 [29]
	1.3337(10)	Feiertag <i>et al.</i> , 1973 [28]
$7P_{1/2}$	0.6655(5)	Feiertag <i>et al.</i> , 1973 [28]
$7P_{3/2}$	1.3365(16)	Arimondo <i>et al.</i> , 1977 [27]
$8D_{5/2}$	1.1998(15)	Belin <i>et al.</i> , 1976 [31]
$9P_{3/2}$	1.3335(15)	Belin <i>et al.</i> , 1974 [32]
$9D_{5/2}$	1.1995(15)	Belin <i>et al.</i> , 1976 [31]
$10P_{3/2}$	1.3332(20)	Belin <i>et al.</i> , 1976 [31]

表 3.5: ルビジウムの核の磁気回転比 g_I の値 [27].

同位体	g_I
^{85}Rb	-0.00029364(6)
^{87}Rb	-0.0009951414(10)

エネルギー固有値は,

$$E_{eff} = \langle F, m_F | \mathcal{H}_{eff} | F, m_F \rangle. \quad (3.11)$$

によって求めることができるが, 電子系の角運動量 J が $1/2$ の時は, Breit-Rabi の公式 [33] を用いることにより, エネルギー固有値を容易に求めることができる.

3.2.1 Breit-Rabi の公式

核スピン g_I も考慮した Breit-Rabi の公式 [34] は,

$$E_{eff} = -\frac{\Delta E_{hfs}}{2(2I+1)} + g_I \mu_0 H_z m_F \pm \frac{\Delta E_{hfs}}{2} \left[1 + \frac{4m_F}{2I+1} x + x^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (3.12)$$

$$\text{with } x = \frac{(g_J - g_I) \mu_0 H_z}{\Delta E_{hfs}},$$

である. ここで, m_F は磁気量子数で H_z は加えられた磁場である. ΔE_{hfs} は, 磁場が無い状態での超微細構造分裂の分裂間隔であり, $J = 1/2$ の場合,

$$\Delta E_{hfs} = hA \left(I + \frac{1}{2} \right). \quad (3.13)$$

で表わされる.

周波数シフト

$$\nu_{eff} = \frac{\Delta E_{eff}}{h} \quad (3.14)$$

を式 (3.12) を用いて少し書き直すと.

$$\nu_{eff} = -\frac{A}{4} + \frac{g_I \mu_B m_F H_z}{h} \pm \frac{A}{4} \left[4\eta^2 H_z^2 + 8\eta m_F H_z + (2I+1)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (3.15)$$

$$\text{with } \eta = \frac{(g_J - g_I) \mu_B}{hA}$$

となる。

$F = I + \frac{1}{2}$, $m_F = \pm (I + \frac{1}{2})$ の時,

$$\nu_{eff} = \frac{A}{2}I \pm \left(\frac{g_J}{2} + g_I I \right) \frac{\mu_B H_z}{h} \quad (3.16)$$

である。式(3.16)の H_z 以外は定数なので、 $F = I + \frac{1}{2}$, $m_F = \pm (I + \frac{1}{2})$ における周波数シフトは磁場に対して常に線形であることがわかる。

次に、 $F = I \pm \frac{1}{2}$, $-(I - \frac{1}{2}) < m_F < (I - \frac{1}{2})$ の時を考える。低磁場 ($\mu_B H_z \ll Ah$) の場合は、式(3.15)の第2項を磁場に関する1次の項のみを残して、

$$\begin{aligned} \nu_{eff} &\simeq -\frac{A}{4} + \frac{g_I \mu_B m_F H_z}{h} \pm \frac{A}{4} \left[\frac{8m_F(g_J - g_I)\mu_B H_z}{hA} + (2I + 1)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \\ &= -\frac{A}{4} + \frac{g_I \mu_B m_F H_z}{h} \pm \frac{A}{4}(2I + 1) \left[\frac{8m_F(g_J - g_I)\mu_B H_z}{hA(2I + 1)^2} + 1 \right]^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (3.17)$$

ここで、

$$\xi = \frac{8m_F(g_J - g_I)\mu_B H_z}{hA(2I + 1)^2}$$

としてマクローリン展開

$$(\xi + 1)^{\frac{1}{2}} = 1 + \frac{1}{2}\xi + \dots$$

を ξ に関する1次の項まで用いると式(3.17)は

$$\nu_{eff} \simeq \frac{A}{4} [-1 \pm (2I + 1)] + \left[g_I \pm \frac{g_J - g_I}{2I + 1} \right] \frac{\mu_B m_F H_z}{h} \quad (3.18)$$

となる。式(3.16)と同様、式(3.18)も H_z に関して線形である。式(3.16)と式(3.18)から、外部磁場が低磁場 ($\mu_B H_z \ll Ah$) の場合は磁気副準位の外部磁場による分裂は等間隔であることが分かる。

$^{85}\text{Rb } S_{1/2}$ と $^{87}\text{Rb } S_{1/2}$ における、エネルギー準位の磁場依存性を図3.4と図3.5に示す。図から低磁場では、それぞれの磁気副準位の周波数シフトの間隔は近似的に等しいことがわかる。

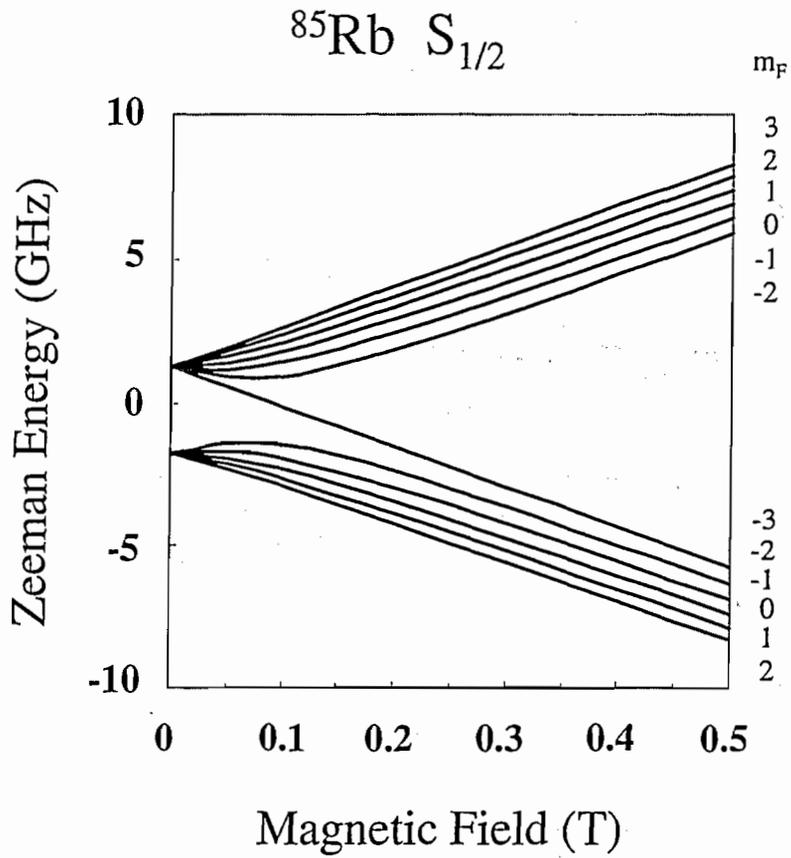


図 3.4: $^{85}\text{Rb } S_{1/2}$ のゼーマン分裂. 低磁場では, それぞれの磁気副準位の周波数シフトの間隔は近似的に等しい.

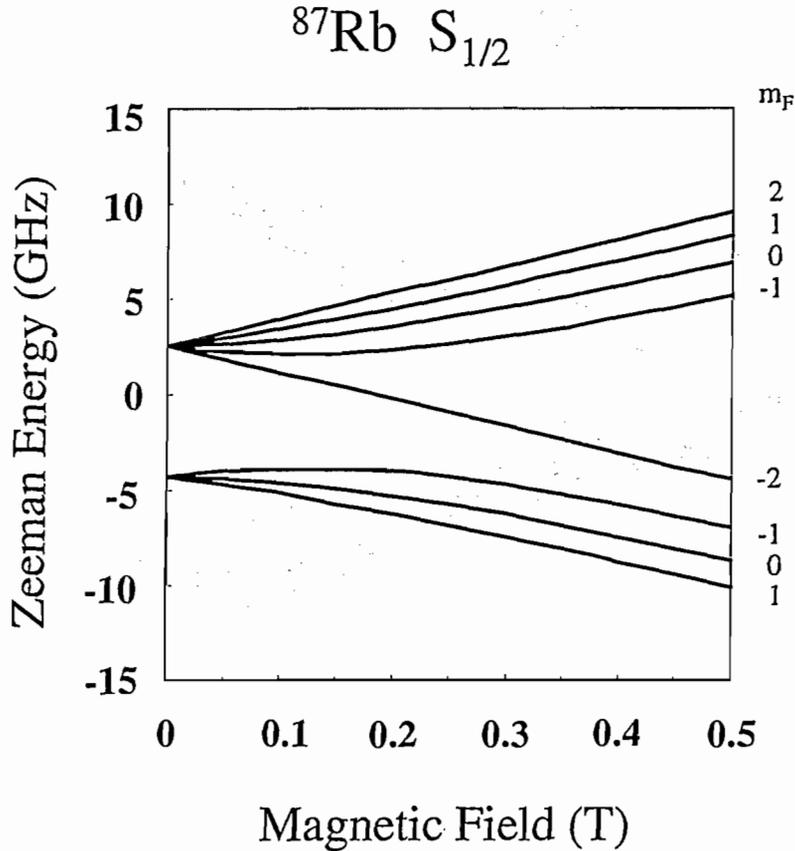


図 3.5: $^{87}\text{Rb } S_{1/2}$ のゼーマン分裂. 低磁場では, それぞれの磁気副準位の周波数シフトの間隔は近似的に等しい.

3.2.2 ルビジウム原子における磁気副準位の分裂

磁気副準位間の間隔 $\Delta\nu_m$ は, $F = I \pm \frac{1}{2}$ の内部で

$$\Delta\nu_m = \left(g_I + \frac{g_J - g_I}{2I + 1} \right) \frac{\mu_B H_z}{h} \quad (3.19)$$

である. ここで, 表 3.4 と表 3.5 を見ればわかるように, $g_I \ll g_J$ なので g_I を無視すると,

$$\Delta\nu_m \simeq \frac{g_J \mu_B}{h(2I + 1)} H_z \quad (3.20)$$

$$\iff \frac{\Delta\nu_m}{H_z} \simeq \frac{g_J \mu_B}{h(2I + 1)} \quad (3.21)$$

となる. 式 (3.21) より, 低磁場の場合, 磁場に対する副準位の分裂が求まる. この値は, ^{85}Rb では 0.5 MHz/Oe, ^{87}Rb では 0.7 MHz/Oe である.

3.3 ルビジウムの遷移確率

超微細構造準位は $(2F+1)$ 個の準位が縮退している。それぞれの準位間の相対遷移確率は Clebsch-Gordan 係数を用いることで求めることができる。自然放出と誘導放出、吸収はアインシュタイン係数によってそれぞれ関係づけられる。

$$\begin{aligned} A_{21} &= \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^3} B_{21} = \Gamma \\ B_{12} &= \frac{g_2}{g_1} B_{21}, \end{aligned} \quad (3.22)$$

ここで、 g_1 と g_2 は準位 1 と 2 の縮重度、 A_{21} は自然放出に関するアインシュタインの A 係数、 B_{12} と B_{21} は吸収と誘導放出に関するアインシュタインの B 係数である。

自然放出に関する Wigner-Weisskopf の理論 [35] によると、自然放出レート Γ は、

$$\Gamma \equiv 2\gamma = \frac{\mu_{eg}^2 \omega^3}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} = \frac{\mu_{eg}^2 k^3}{3\pi\epsilon_0 \hbar} \quad (3.23)$$

である。ゆえに、遷移強度は電気双極子モーメント μ_{eg} の 2 乗に比例する。電気双極子モーメントは、

$$\mu_{eg} = C_{F'M' \rightarrow FM} \left(\frac{6\pi\epsilon_0 \hbar c^3 \gamma}{\omega^3} \right)^{1/2} \quad (3.24)$$

から求めることができる。ここで、 $C_{F'M' \rightarrow FM}$ は Clebsch-Gordan 係数である。Clebsch-Gordan 係数は、

$$|F, m_F\rangle = \sum_{m_J, m_I} C(F, m_F; J, m_J, I, m_I) |J, m_J\rangle |I, m_I\rangle. \quad (3.25)$$

によって定義され、以下の漸化式によってシステムティックに計算できる。 $F = m_F$ の場合は、

$$\begin{aligned} &\sqrt{F(F+1) - m_F(m_F+1)} C(F, m_F+1; J, m_J, I, m_I) \\ &= \sqrt{J(J+1) - m_J(m_J-1)} C_1(F, m_F; J, m_J-1, I, m_I) \\ &\quad + \sqrt{I(I+1) - m_I(m_I-1)} C_2(F, m_F; J, m_J, I, m_I-1) \end{aligned} \quad (3.26)$$

で、 $F < m_F$ の場合は、

$$\begin{aligned} &\sqrt{F(F+1) - m_F(m_F-1)} C(F, m_F-1; J, m_J, I, m_I) \\ &= \sqrt{J(J+1) - m_J(m_J+1)} C_1(F, m_F; J, m_J+1, I, m_I) \\ &\quad + \sqrt{I(I+1) - m_I(m_I+1)} C_2(F, m_F; J, m_J, I, m_I+1) \end{aligned} \quad (3.27)$$

である。

クレブシュゴルダン係数によって、 ^{85}Rb D_1 線の基底状態の波動関数は以下のよう
に書き下される。

$$\begin{aligned}
 |F, m_F\rangle & & C_1 |m_J\rangle |m_I\rangle & & C_2 |m_J\rangle |m_I\rangle \\
 |3, 3\rangle & = & \sqrt{\frac{6}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{5}{2} \right\rangle & & \\
 |3, 2\rangle & = & \sqrt{\frac{5}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{3}{2} \right\rangle & + & \sqrt{\frac{1}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{5}{2} \right\rangle \\
 |3, 1\rangle & = & \sqrt{\frac{4}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{1}{2} \right\rangle & + & \sqrt{\frac{2}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{3}{2} \right\rangle \\
 |3, 0\rangle & = & \sqrt{\frac{3}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{1}{2} \right\rangle & + & \sqrt{\frac{3}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{1}{2} \right\rangle \\
 |3, -1\rangle & = & \sqrt{\frac{2}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{3}{2} \right\rangle & + & \sqrt{\frac{4}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \\
 |3, -2\rangle & = & \sqrt{\frac{1}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{5}{2} \right\rangle & + & \sqrt{\frac{5}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \\
 |3, -3\rangle & = & & & \sqrt{\frac{6}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{5}{2} \right\rangle \\
 \\
 |2, 2\rangle & = & \sqrt{\frac{1}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{3}{2} \right\rangle & - & \sqrt{\frac{5}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{5}{2} \right\rangle \\
 |2, 1\rangle & = & \sqrt{\frac{2}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{1}{2} \right\rangle & - & \sqrt{\frac{4}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{3}{2} \right\rangle \\
 |2, 0\rangle & = & \sqrt{\frac{3}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{1}{2} \right\rangle & - & \sqrt{\frac{3}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{1}{2} \right\rangle \\
 |2, -1\rangle & = & \sqrt{\frac{4}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{3}{2} \right\rangle & - & \sqrt{\frac{2}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \\
 |2, -2\rangle & = & \sqrt{\frac{5}{6}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{5}{2} \right\rangle & - & \sqrt{\frac{1}{6}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{3}{2} \right\rangle
 \end{aligned} \tag{3.28}$$

同様に、 ^{87}Rb D_1 線の基底状態の波動関数は以下のように書き下される。

$$\begin{aligned}
 |F, m_F\rangle & & C_1 |m_J\rangle |m_I\rangle & & C_2 |m_J\rangle |m_I\rangle \\
 |2, 2\rangle & = & \sqrt{\frac{4}{4}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{3}{2} \right\rangle & & \\
 |2, 1\rangle & = & \sqrt{\frac{3}{4}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{1}{2} \right\rangle & + & \sqrt{\frac{1}{4}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{3}{2} \right\rangle \\
 |2, 0\rangle & = & \sqrt{\frac{2}{4}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{1}{2} \right\rangle & + & \sqrt{\frac{2}{4}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{1}{2} \right\rangle \\
 |2, -1\rangle & = & \sqrt{\frac{1}{4}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{3}{2} \right\rangle & + & \sqrt{\frac{3}{4}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \\
 |2, -2\rangle & = & & & \sqrt{\frac{4}{4}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \\
 \\
 |1, 1\rangle & = & \sqrt{\frac{1}{4}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{1}{2} \right\rangle & - & \sqrt{\frac{3}{4}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{3}{2} \right\rangle \\
 |1, 0\rangle & = & \sqrt{\frac{2}{4}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{1}{2} \right\rangle & - & \sqrt{\frac{2}{4}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| \frac{1}{2} \right\rangle \\
 |1, -1\rangle & = & \sqrt{\frac{3}{4}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{3}{2} \right\rangle & - & \sqrt{\frac{1}{4}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \left| -\frac{1}{2} \right\rangle
 \end{aligned} \tag{3.29}$$

励起状態の波動関数もクレブシュゴルダン係数を用いて求めることができる。求められる励起状態の波動関数は、基底状態の波動関数と同じ形をしている。

原子と相互作用するレーザー光の各偏光に対する原子位置での電場の変化は、

$$\begin{aligned} E_{\pi}(t) &= E_0 \hat{e}_z \cos \omega t \\ E_{\sigma_+}(t) &= -\frac{E_0}{\sqrt{2}} (\hat{e}_x \cos \omega t + \hat{e}_y \sin \omega t) \\ E_{\sigma_-}(t) &= \frac{E_0}{\sqrt{2}} (\hat{e}_x \cos \omega t - \hat{e}_y \sin \omega t). \end{aligned} \quad (3.30)$$

として表される。これらは、複素表示を用いて以下のようになる。

$$\mathbf{E}(t) = |E_0| \operatorname{Re}[\exp(-i\omega t) \hat{e}_{rad}] \quad (3.31)$$

ここで、 $|E_0|$ は振幅で \hat{e}_{rad} は電場の振動方向を表す単位ベクトルである。例えば x 軸にそった直線偏光の場合は、 $\hat{e}_{rad} = \hat{e}_x$ で、 $\exp(-i\omega t)$ の実部は $\cos(\omega t)$ なので、 $\mathbf{E}(t) = E_0 \cos(\omega t) \hat{e}_x$ となる。

式(3.31)の電場との相互作用を記述するハミルトニアンは、

$$\mathcal{H}_{int} = e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t), \quad (3.32)$$

として得られる。ここで $-e\mathbf{r}$ は、電気双極子演算子である。この相互作用はレート

$$\text{Rate} \propto |eE_0|^2 |\langle 2|\mathbf{r} \cdot \hat{e}_{rad}|1\rangle|^2 \quad (3.33)$$

で準位1から準位2へ遷移を起こす。

回転波近似のもと、原子と電場の相互作用ハミルトニアンは

$$\mathcal{H}_{int} = e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E} = e \frac{E_0}{2} r_q \exp(-i\omega t), \quad (3.34)$$

として得られる。ここで、

$$r_q = \begin{cases} z = \sqrt{2} J_z (\pi \text{遷移}) & (3.35a) \\ -(x + iy)/\sqrt{2} = J_+ (\sigma_+ \text{遷移}) & (3.35b) \\ (x - iy)/\sqrt{2} = J_- (\sigma_- \text{遷移}) & (3.35c) \end{cases}$$

である。 π 遷移は $\Delta m_F = 0$ 、 σ_+ 遷移は $\Delta m_F = +1$ 、 σ_- 遷移は $\Delta m_F = -1$ の遷移を起こす。相対電気双極子モーメントは、基底状態と励起状態の波動関数を $|F, m_F\rangle$ と $|F', m_{F'}\rangle$ とすると、

$$\mu_{eq} = \langle F', m_{F'} | r_q | F, m_F \rangle \quad (3.36)$$

で得られ、相対遷移確率は、相対電気双極子モーメントの2乗で得られる。ルビジウムのD線に関して得られた相対遷移確率を表3.6、表3.7、図3.6、図3.7に示す。

表 3.6: ^{85}Rb の相対遷移確率. π, σ_+, σ_- はどのような遷移であるかを表す. 空白部分の遷移確率はゼロ. ^{87}Rb

	$ 3, 3\rangle$	$ 3, 2\rangle$	$ 3, 1\rangle$	$ 3, 0\rangle$	$ 3, -1\rangle$	$ 3, -2\rangle$	$ 3, -3\rangle$	$ 2, 2\rangle$	$ 2, 1\rangle$	$ 2, 0\rangle$	$ 2, -1\rangle$	$ 2, -2\rangle$
$\langle 3, 3 $	9π	$3\sigma_+$						$15\sigma_+$				
$\langle 3, 2 $	$3\sigma_-$	4π	$5\sigma_+$					5π	$10\sigma_+$			
$\langle 3, 1 $		$5\sigma_-$	1π	$6\sigma_+$				$1\sigma_-$	8π	$6\sigma_+$		
$\langle 3, 0 $			$6\sigma_-$	0	$6\sigma_+$				$3\sigma_-$	9π	$3\sigma_+$	
$\langle 3, -1 $				$6\sigma_-$	1π	$5\sigma_+$				$6\sigma_-$	8π	$1\sigma_+$
$\langle 3, -2 $					$5\sigma_-$	4π	$3\sigma_+$				$10\sigma_-$	5π
$\langle 3, -3 $						$3\sigma_-$	9π					$15\sigma_-$
$\langle 2, 2 $	$15\sigma_-$	5π	$1\sigma_+$					4π	$2\sigma_+$			
$\langle 2, 1 $		$10\sigma_-$	8π	$3\sigma_+$				$2\sigma_-$	1π	$3\sigma_+$		
$\langle 2, 0 $			$6\sigma_-$	9π	$6\sigma_+$				$3\sigma_-$	0	$3\sigma_+$	
$\langle 2, -1 $				$3\sigma_-$	8π	$10\sigma_+$				$3\sigma_-$	1π	$2\sigma_+$
$\langle 2, -2 $					$1\sigma_-$	5π	$15\sigma_+$				$2\sigma_-$	4π

表 3.7: ^{87}Rb の相対遷移確率. π, σ_+, σ_- はどのような遷移であるかを表す. 空白部分の遷移確率はゼロ.

^{85}Rb

	$ 2, 2\rangle$	$ 2, 1\rangle$	$ 2, 0\rangle$	$ 2, -1\rangle$	$ 2, -2\rangle$	$ 1, 1\rangle$	$ 1, 0\rangle$	$ 1, -1\rangle$
$\langle 2, 2 $	4π	$2\sigma_+$				$6\sigma_+$		
$\langle 2, 1 $	$2\sigma_-$	1π	$3\sigma_+$			3π	$3\sigma_+$	
$\langle 2, 0 $		$3\sigma_-$	0	$3\sigma_+$		$1\sigma_-$	4π	$1\sigma_+$
$\langle 2, -1 $			$3\sigma_-$	1π	$2\sigma_+$		$3\sigma_-$	3π
$\langle 2, -2 $				$2\sigma_-$	4π			$6\sigma_-$
$\langle 1, 1 $	$6\sigma_-$	3π	$1\sigma_+$			1π	$1\sigma_+$	
$\langle 1, 0 $		$3\sigma_-$	4π	$3\sigma_+$		$1\sigma_-$	0	$1\sigma_+$
$\langle 1, -1 $			$1\sigma_-$	3π	$6\sigma_+$		$1\sigma_-$	1π

^{85}Rb ($5^2\text{S}_{1/2} \longleftrightarrow 5^2\text{P}_{1/2}$)

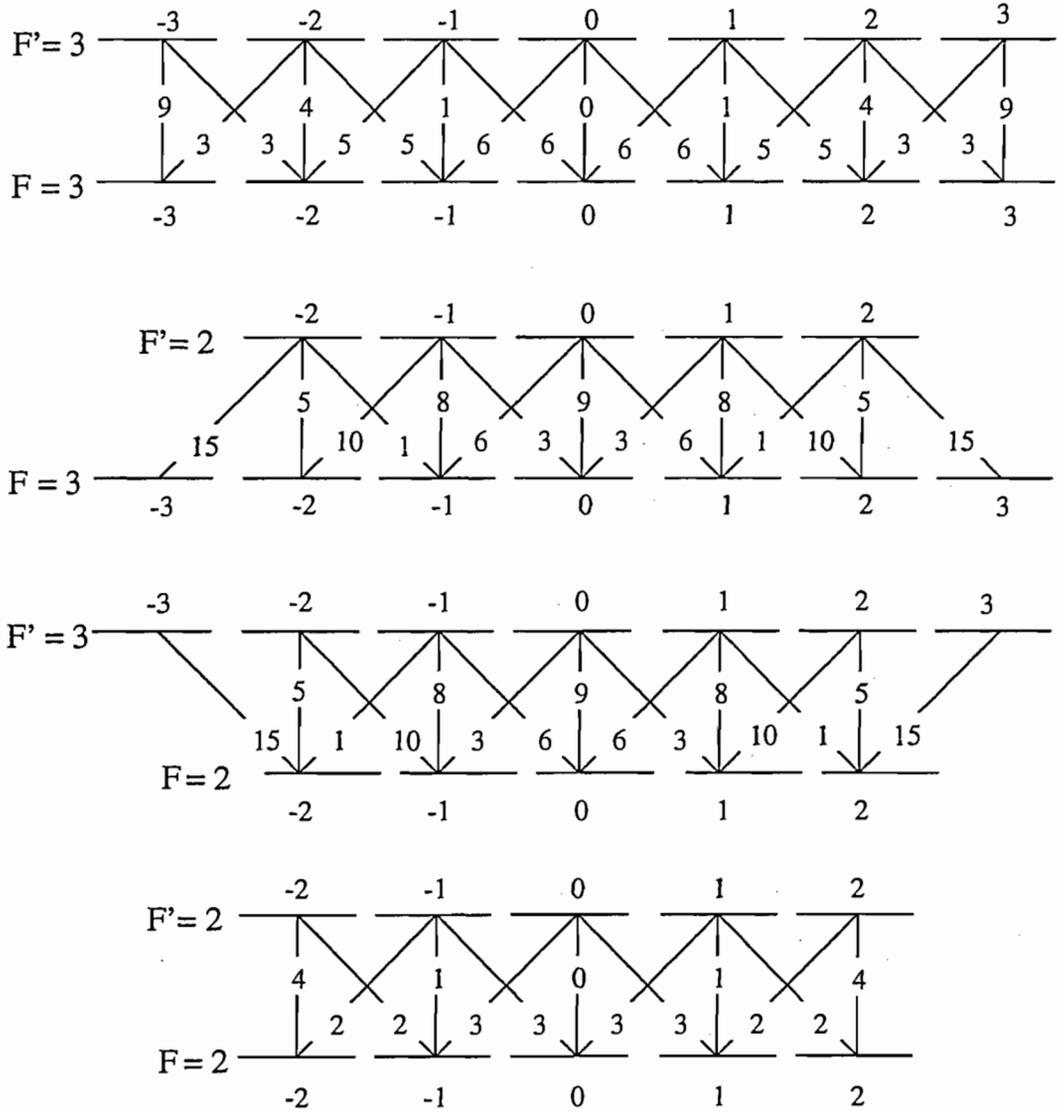


図 3.6: ^{85}Rb の D_1 線におけるゼーマン遷移の相対遷移確率. 励起準位は $5^2\text{P}_{1/2}$ の超微細構造 $F'=3$ および $F'=2$ の磁気副準位であり, 基底状態は $5^2\text{S}_{1/2}$ の超微細構造 $F=3$ および $F=2$ の磁気副準位を表す. 下の準位から右斜めに上がる線は σ^+ 遷移 ($\Delta m_F = +1$) を, 斜め左に上がる線は, σ^- 遷移 ($\Delta m_F = -1$) を, また垂直に上がる線は, π 遷移 ($\Delta m_F = 0$) を表す. 上の準位と下の準位の間記してある数字が相対線強度を表している. 各準位の下と上に記してある符号を持つ数は, 磁気量子数である.

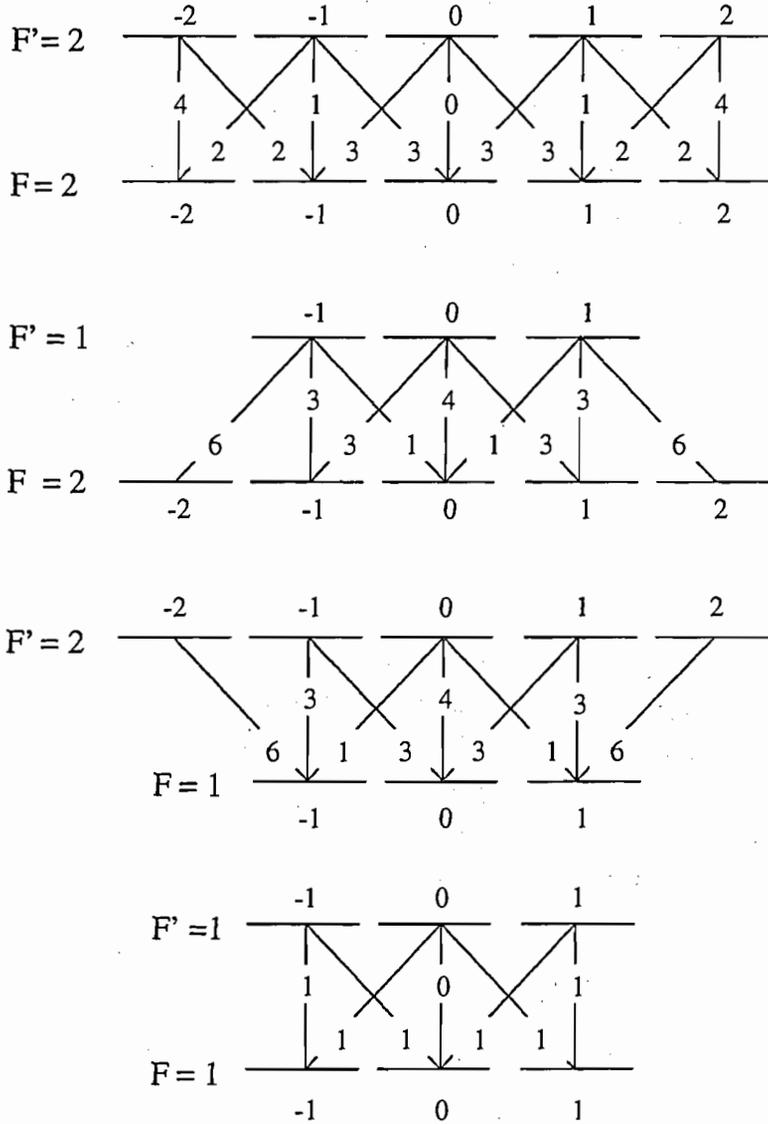
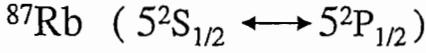


図 3.7: ^{87}Rb の D₁ 線におけるゼーマン遷移の相対遷移確率. 励起準位は $5^2P_{1/2}$ の超微細構造 $F'=2$ および $F'=1$ の磁気副準位であり, 基底状態は $5^2S_{1/2}$ の超微細構造 $F=2$ および $F=1$ の磁気副準位を表す. 下の準位から右斜めに上がる線は σ^+ 遷移 ($\Delta m_F=+1$) を, 斜め左に上がる線は, σ^- 遷移 ($\Delta m_F=-1$) を, また垂直に上がる線は, π 遷移 ($\Delta m_F=0$) を表す. 上の準位と下の準位の間記してある数字が相対線強度を表している. 各準位の下と上に記してある符号を持つ数は, 磁気量子数である.

3.4 スペクトルの線幅

一般に光周波数 ν がエネルギー保存則 $h\nu = E_2 - E_1$ を満たす場合、共鳴吸収をはじめとする光と物質の相互作用が生じる。光と物質の相互作用によって起こる現象を簡単のために2準位系を用いて図3.8に示す。図3.8のような2準位系の場合、

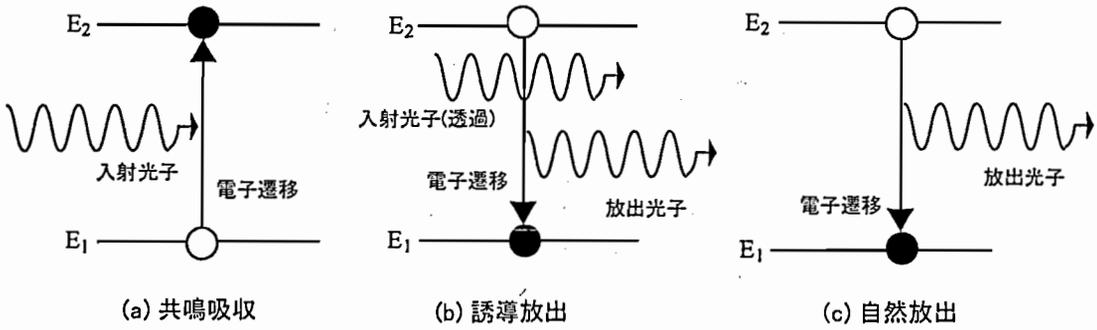


図 3.8: 光と物質の相互作用 [6]. 光との相互作用により電子状態が○から●に変化する。

吸収スペクトルは $\nu = (E_2 - E_1)/h$ の位置にシャープな吸収線ができると考えられる。ルビジウム原子の場合は、エネルギー固有値の計算と σ_+ と σ_- の寄与を足し合わせた遷移確率から図3.9のスペクトルが得られる。このようなシャープな吸収線を線スペクトルと呼ぶ。しかし、現実の物質では線状にならず、有限の広がりを持ち、幅を持つ。広がりの中には、大きく分けると均一広がり (homogeneous broadening) と不均一広がり (inhomogeneous broadening) がある。均一広がりとは、

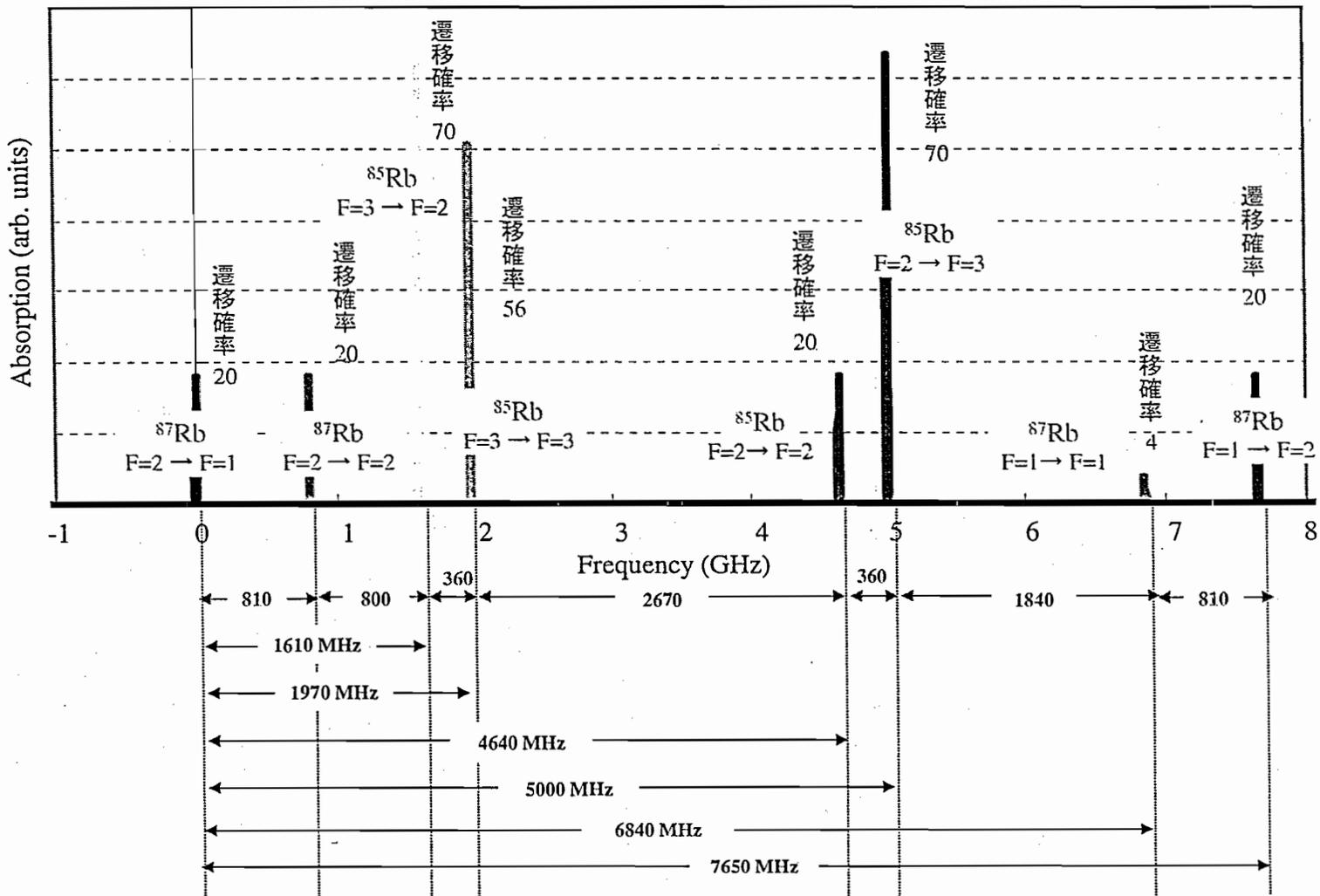
$$g(\nu) = \frac{\Delta\nu}{2\pi\{(\Delta\nu/2)^2 + (\nu - \nu_0)^2\}} \quad (3.37)$$

によって表わされるローレンツ型のスペクトルであり、不均一広がりとは、

$$g(\nu) = \frac{2(\ln 2)^{1/2}}{\pi^{1/2}\Delta\nu_D} \exp\left\{-4(\ln 2)\left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_D}\right)^2\right\} \quad (3.38)$$

で表わされるガウス型のスペクトルを持つ。これらのスペクトル線の広がりとは、発光スペクトルでも同様に生じる。

図 3.9: ルビジウム原子の吸収線の周波数と相対遷移確率.



3.4.1 自然幅

簡単のため、図 3.8 のような 2 準位系を考えた場合、電子は、励起準位 (E_2) の状態に実際には有限時間しか存在できない。エネルギーと時間の不確定性 $\Delta E \Delta t \gtrsim \hbar$ から、エネルギー準位 E_2 の状態に電子が存在する時間 (寿命 τ) が短いと E_2 の値は不確定になる。よって、 E_1 から E_2 へ電子が遷移する際に吸収する光子の周波数も不確定になり、スペクトル線は幅をもつ。この幅のことを自然幅とよぶ。自然幅は、均一広がりでありローレンツ型のスペクトルをしている。ルビジウム D 線に関する励起状態の寿命と自然幅を表 3.8 に示す。

表 3.8: ルビジウム原子気体 D 線に関する励起状態の寿命と自然幅 [36]

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

気体分子間の衝突が増えると、励起状態に電子が存在する寿命 τ が短くなり、励起状態のエネルギーの不確定さが増える。結果、スペクトル幅は、自然幅より広がることになる。衝突の頻度は、試料の温度をあげて試料内の蒸気圧を上げたり、サンプルセル内にバッファガスを注入することによって増やすことができる。この幅は衝突広がり幅や圧力広がり幅と呼ばれる。

また、本研究のように、希薄な気体の可視光の吸収では、吸収線が自然幅よりずっと広いドップラー幅を持っている。ドップラーフリーの飽和分光法という手法を用いることによりドップラー幅を抑え、吸収線の分解能をあげることができ、自然幅に近いスペクトルを得ることができる。

ドップラーフリーの飽和分光法について説明する。図 3.10 のように、速さ v で波数ベクトル k の方向に運動している一つの原子を考える。 ω_0 を原子の遷移の中心周波数とすると、この原子に対して原子の進む方向と同じ方向の光は、 $\omega' = \omega_0 - kv$ を満たす原子と共鳴し、原子の進む方向と逆方向の光は $\omega'' = \omega_0 + kv$ を満たす原子と共鳴する。

ドップラーフリーの飽和分光法では、プローブ光とポンプ光を対向するように試料に入射させる。ここで、バッファガス無しのルビジウム原子におけるドップラーフリーの飽和分光法で得られる透過スペクトルを、プローブ光のみでの透過スペクトルとともに図 3.11 に示す。このドップラーフリーの飽和分光法の測定結果はポンプ光を円偏光、プローブ光を直線偏光にして両方の周波数を掃引して行ったものである。縦軸は規格化した透過率である。

ポンプ光とプローブ光が同じ角周波数 Ω である場合を考える。プローブ光と同じ向きに速度 v で運動する原子を考えると、原子がプローブ光と共鳴するためには $\Omega = \omega_0 - kv$ の関係があり、ポンプ光と共鳴するためには $\Omega = \omega_0 + kv$ の関係

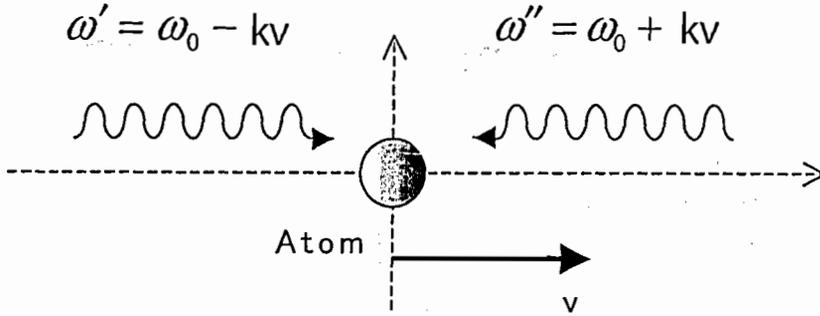


図 3.10: ドップラー効果により原子と共鳴するレーザーの周波数. v は原子の速度, k はレーザー方向の波数ベクトル, ω_0 は原子の遷移の中心周波数, ω' と ω'' はレーザーの周波数である.

が必要である. 原子がポンプ光とプローブ光の両方と共鳴するためには

$$\Omega = \omega_0 + kv = \omega_0 - kv \quad (3.39)$$

の関係を満たす必要がある. 式 (3.39) は, $\Omega = \omega_0$ の時にのみ成り立つ. つまり, レーザーの周波数 Ω が中心周波数 ω_0 と等しい時, プローブ光とポンプ光は, 速度が 0 の原子と共鳴することになる. ここで, 速度が 0 の原子とは, 止まった原子である. ポンプ光の強度が十分強いならば, 速度 v の原子を基底状態から励起してしまうので, 基底状態の密度は小さくなる. 結果, プローブ光は, 吸収 (原子と相互作用) されにくくなり, 透過光強度は通常の場合より強くなる. 一方, レーザーの周波数 Ω が中心周波数 ω_0 から外れていると, プローブ光とポンプ光は異なった速さ成分をもつ原子を励起することになる. 異なった速さ成分を持つ原子はドップラー効果

$$\omega = \omega_0 \left(1 + \frac{v}{c}\right) \quad (3.40)$$

により, 異なった周波数の光を吸収する. よって, プローブ光による吸収はポンプ光による吸収の影響を受けてない. 結果として, 中心周波数の部分で穴をほったようなスペクトルになっている.

飽和分光法を行ったプローブ光の信号からプローブ光のみの透過光を引くことによって, ドップラー広がりを取り除き吸収線の分解能をあげたスペクトルを得ることが出来る. そのスペクトルを図 3.12 に示す. 近接する 3 本のスペクトル線の中の左右の 2 本が実際に存在する吸収線である. それらの中央に位置する線はクロスオーバーと呼ばれる信号で, 実際には存在しない. 図 3.12 では, 各吸収線のスペクトル幅は数十 MHz であった. ビームの強度は, プローブ光が数 μW で, ポンプ光は 300 μW であった. ルビジウムの D_1 線の自然幅は 11.4 MHz なので, さらに条件をよくするとさらに吸収線の分解能が上がることを期待できる.

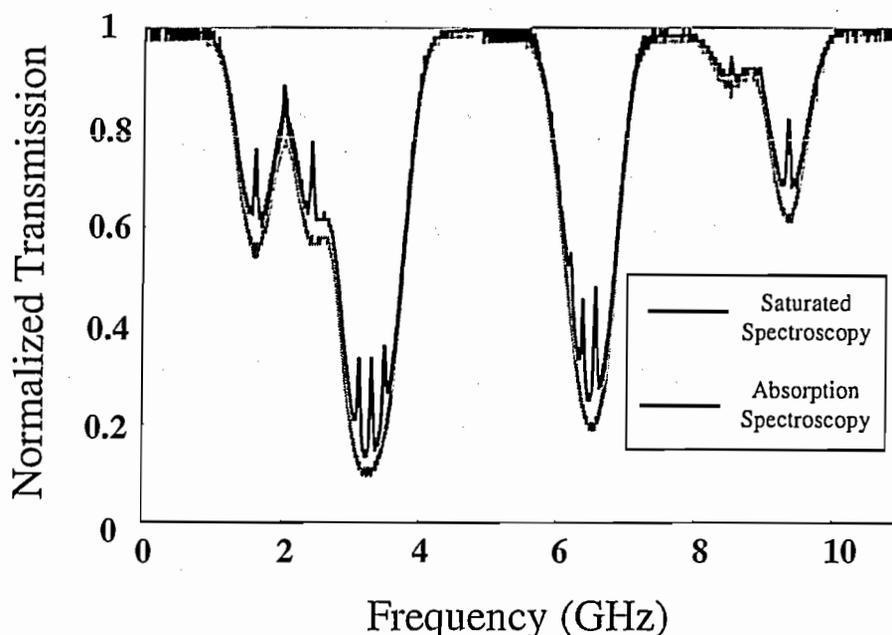


図 3.11: 通常の透過スペクトルと円偏光のポンプ光をプローブ光に対向して入射させたときの透過スペクトル。

3.4.2 ドップラー幅

気体原子では、ドップラー幅とよばれる不均一幅の効果が大きく寄与する。エネルギー準位図 (図 3.1) からは、ルビジウム原子 D_1 線の遷移が $F = 2 \rightarrow F = 2$, $F = 2 \rightarrow F = 3$, $F = 3 \rightarrow F = 2$, $F = 3 \rightarrow F = 3$, $F = 1 \rightarrow F = 1$, $F = 1 \rightarrow F = 2$, $F = 2 \rightarrow F = 1$, $F = 2 \rightarrow F = 2$ の吸収線が計 8 本あることが分かるが、実際測定すると図 3.2 のように 6 本しか観測できない。これは、ドップラー幅による不均一広がり大きさが、 $^{85}\text{Rb } 5^2P_{1/2}$ の $F = 2$ と $F = 3$ の周波数分裂幅より大きいからである。

ビームの伝播方向の速度成分 v をもつ原子がドップラー効果により、受ける周波数のずれは、

$$\begin{aligned}
 \Delta\nu &= \nu_0 \frac{c+v}{c} - \nu_0 \\
 &= \nu_0 \left(1 + \frac{v}{c}\right) - \nu_0 \\
 &= \nu_0 \frac{v}{c}
 \end{aligned} \tag{3.41}$$

である。ここで ν_0 は $v = 0$ の原子の共鳴周波数、 c は光速である。ドップラー幅は、試料内に多数存在する気体原子があらゆる方向に向かって運動しているため

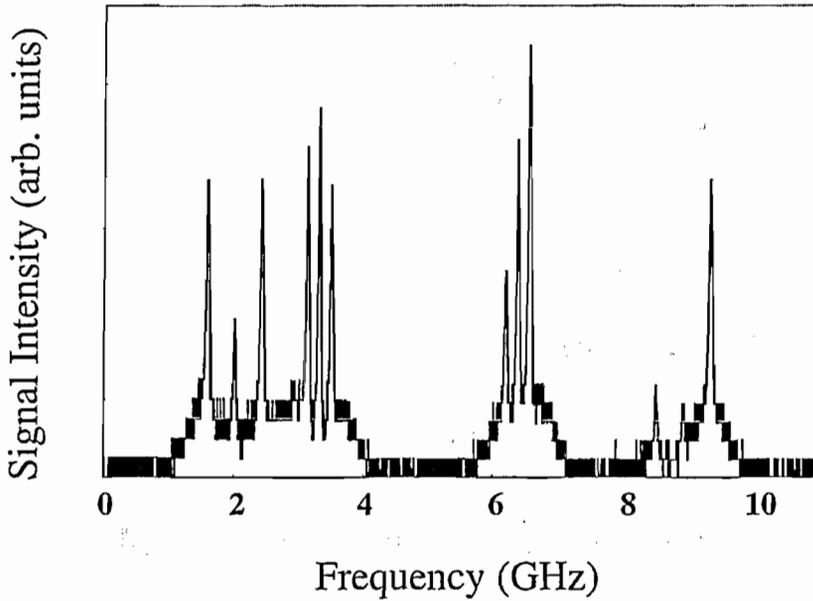


図 3.12: ドップラー広がりを取り除いたスペクトル.

におこる。試料内の気体原子の速度分布は熱運動の速度分布関数によって表現できる。熱運動の速度分布関数は、

$$f(v) = \sqrt{\frac{M}{2\pi k_B T}} \exp\left(-\frac{M}{2k_B T} v^2\right) \quad (3.42)$$

のマクスウェル-ボルツマン速度分布する [37]。ここで、 M は原子質量、 k_B はボルツマン定数、 T は温度である。

ドップラー幅の半値半幅を知るために、式 (3.42) の半値全幅を知りたい。式 (3.42) を $v = 0$ の値で規格化して、

$$G(v) = \exp\left(-\frac{M}{2k_B T} v^2\right) \quad (3.43)$$

を考えると半値全幅は求めやすい。ルビジウム原子 350K に対応する $G(v)$ の速度分布は図 3.13 のようになる:

分布関数 $G(v)$ の値が中心の 1/2 になる時の速度の値は、

$$\exp\left(-\frac{M}{2k_B T} v^2\right) = \frac{1}{2} \quad (3.44)$$

を満たす時であり、

$$v = \pm \sqrt{\frac{2k_B T \ln 2}{M}} \quad (3.45)$$

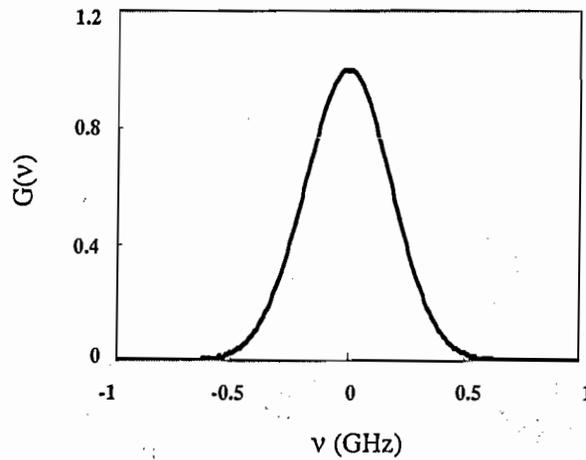


図 3.13: ルビジウム原子 350K における規格化された熱運動の速度分布.

である. よって, 速度分布の半値全幅 Δv は

$$\Delta v = \sqrt{\frac{2k_B T \ln 2}{M}} - \left(-\sqrt{\frac{2k_B T \ln 2}{M}} \right) \quad (3.46)$$

$$= 2\sqrt{\frac{2k_B T \ln 2}{M}} \quad (3.47)$$

ドップラー広がり $\Delta \nu_D$ は, 式(3.41)と式(3.47)から求まり,

$$\Delta \nu_D = \frac{2\nu_0}{c} \sqrt{\frac{2k_B T \ln 2}{M}} \quad (3.48)$$

である. 350K での ^{85}Rb と ^{87}Rb のドップラー幅は, ともに 500 MHz 程度である.

3.4.3 衝突(圧力)広がり幅

本研究では, ルビジウム原子のみが入ったセルと緩衝気体(バッファガス)が数 Torr 封入されたセルとを用いた. 衝突広がり幅はこの緩衝気体によって引き起こされる. 緩衝気体には, 不活性ガスが用いられる. 不活性ガスである希ガスは閉殻構造を持つため, 他の原子と相互作用しにくい. 緩衝気体の圧力が上がるに従ってアルカリ原子と緩衝気体との衝突が増えるため, 励起状態の寿命が短くなり, その結果, 吸収線の線幅は広がる. また, 同時にその位置がシフトしていくことが知られている [38]. 緩衝気体の圧力による吸収線の広がりとしフトを表 3.9 に示す.

表 3.9 で, 広がり半幅としフトの単位になっている ($10^{-20} \text{cm}^{-1}/\text{cm}^{-3}$) を本研究で扱いやすい (Hz/Torr) に直す. 緩衝気体は理想気体として考えることができ, 状

表 3.9: 緩衝気体の圧力による吸収線の広がりとしフト [38].

遷移	緩衝気体	広がり半幅 ($10^{-20}\text{cm}^{-1}/\text{cm}^{-3}$)	シフト ($10^{-20}\text{cm}^{-1}/\text{cm}^{-3}$)	測定温度 (K)
Rb D ₁	He	1.02±0.19		320
	Ne	0.52±0.07	-0.041±0.037	
	Ar	1.00±0.13	-0.78±0.07	
	Kr	1.00±0.09	-0.800±0.056	
	Xe	1.15±0.13	-0.836±0.074	
Rb D ₂	He	1.02±0.19	-0.082±0.037	320
	Ne	0.54±0.09	-0.22±0.037	
	Ar	1.02±0.13	-0.89±0.13	
	Kr	0.89±0.07	-0.89±0.06	
	Xe	1.17	-1.00±0.07	

態方程式が成り立つとし、 1cm^3 、 1Torr あたりの個数 N を求めると、

$$PV = \frac{N}{N_0}RT \quad (3.49)$$

$$\begin{aligned} \Leftrightarrow N &= \frac{N_0PV}{RT} \\ &= \frac{6.02 \times 10^{23} \times 1.013 \times 10^5 (\text{N/m}^2)/760 \times 10^{-6} (\text{m}^3)}{8.31 \times T} \end{aligned} \quad (3.50)$$

$$= \frac{9.66 \times 10^{18}}{T} \quad (3.51)$$

となる。例えば 273K の時、 $3.54 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}/\text{Torr}$ である。これは、

$$1 \text{Torr} = 3.54 \times 10^{16} \text{cm}^{-3} \quad (3.52)$$

と考えることができ。ゆえに

$$1/\text{cm}^{-3} = 3.54 \times 10^{16}/\text{Torr} \quad (3.53)$$

の変換ができる。また、

$$1 \text{cm}^{-1} = 30 \text{GHz} \quad (3.54)$$

なので、式(3.53)と式(3.54)を用いて

$$10^{-20}\text{cm}^{-1}/\text{cm}^{-3} = 1.06 \times 10^7 \text{Hz}/\text{Torr} \quad (3.55)$$

$$= 10.6 \text{MHz}/\text{Torr} \quad (3.56)$$

となる。

4 光誘起磁化

スピンと磁化は比例の関係にあるので、磁化の観測とスピンの観測は等価である。核スピンまで含めると、試料のもつ磁化の総和 μ_{atom} は

$$\mu_{\text{atom}} = -g_J\mu_B\mathbf{J} + g_I\mu_N\mathbf{I} \quad (4.1)$$

である。実際は、 $\mu_N \ll \mu_B$ なので、核スピンによる寄与を無視して

$$\mu_{\text{atom}} \simeq -g_J\mu_B\mathbf{J} \quad (4.2)$$

となる。

光誘起磁化は、副準位間に関して選択的な光励起を行い、試料の基底状態あるいは光励起状態の副準位に熱平衡状態と比べてずっと大きな分布数差をつくることによって生成される磁化である。磁化の生成に光を用いるだけでなく、光誘起磁化の検出にもラジオ波やマイクロ波 ($\leq 10^{10}$ Hz) の代わりに光周波数 ($10^{14} \sim 10^{15}$ Hz) を用いることによって、通常の磁気共鳴に比べて著しく高感度で高速な測定が可能である。

4.1 光誘起磁化の生成と検出

本研究では、磁化の生成と検出に、偏光を利用したポンプ・プローブ法を用いた。円偏光のポンプ(励起)光により光誘起磁化を生成し、生成された光誘起磁化の振る舞いを直線偏光のプローブ(検出)光の偏光の変化により検出する。この検出法により、スピンドYNAMICSを時間領域で観測することが可能である。

光誘起磁化の生成と検出の概略図を図 4.1 に示す。量子化軸 z をプローブ光のビーム方向にとり、右回りの円偏光と左回りの円偏光を、それぞれ σ^+ , σ^- 円偏光とする。光誘起磁化は、ポンプ光のビーム方向に生成される。プローブ光とポン

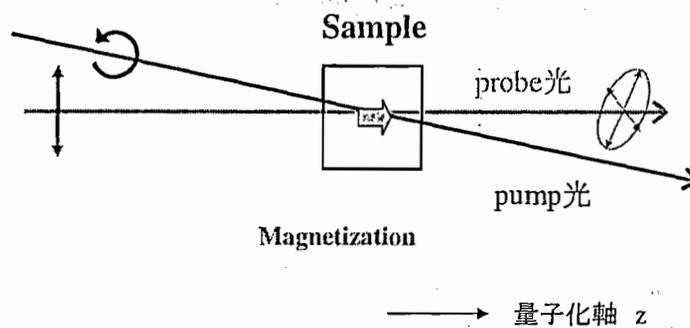


図 4.1: 円偏光による光ポンピングの概念図。

プ光の交わる角度を小さくとると、プローブ光とポンプ光のビームが重なっている微小部分では量子化軸 z とプローブ光、ポンプ光はほぼ平行であると考えてよく、量子化軸方向に光誘起磁化が生成されると考えることができる。

4.1.1 光誘起磁化の生成 (光ポンピング)

光誘起磁化の生成には、A. Kastler によって考案された光ポンピング法を用いる。光ポンピング法は、光遷移(電気双極子遷移)に関する選択則を巧みに利用したものである。光子は角運動量をもっており、光子が吸収あるいは放出される前後では、角運動量保存の制約から系の角運動量は光子の角運動量分だけ変化しなくてはならない。このことから、偏光した光が孤立原子と相互作用する場合における電気双極子遷移の選択則を導くことができる。すなわち、遷移の前後でパリティが反転し、かつ全角運動量 J の変化分が $\Delta J = 0, \pm 1$ である選択則に加え、 J の量子化方向の射影成分に関して、直線偏光(π 偏光)の場合には $\Delta m = 0$, $\sigma_+(\sigma_-)$ 円偏光の場合には、 $\Delta m = +1(-1)$ という選択則に従って遷移が起こる。ただし、量子化軸の方向は π 偏光の場合は偏光方向、 $\sigma_+(\sigma_-)$ 円偏光の場合は光の伝搬方向にとる。

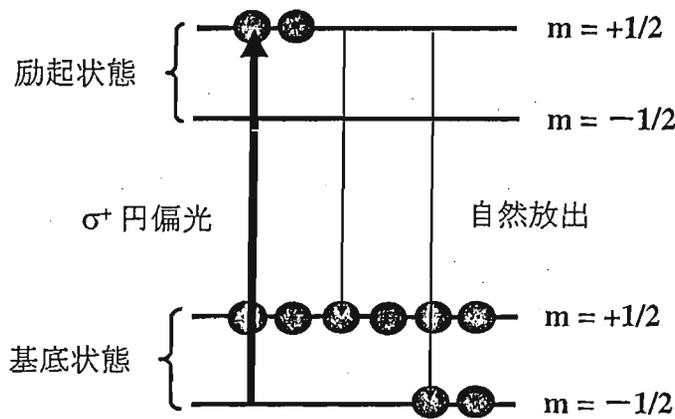


図 4.2: 二準位系での円偏光 (σ_+) による光ポンピング。

簡単のために図 4.2 のような, $J = 1/2$ で核スピンを無視したゼーマン副準位系のモデルを用いて光誘起磁化の生成を考える. 例として, 図のような σ_+ の円偏光で励起する場合を考える. 先に述べた選択則により, σ_+ 円偏光による励起は磁気量子数を $+1$ 変化させる遷移のみが起こる. 励起状態に遷移した電子の寿命 (表 3.8) は, 本研究で観測する現象に比べ短い. そのため, 電子は自然放出によって励起状態からすぐに基底状態に戻ってくることになるが, 自然放出は基底状態の両方の準位に向かって生じる. 結果として, 基底状態の磁気副準位間に大きな分布数差 (population difference) ができ, 光誘起磁化を生成することができる.

4.1.2 光誘起磁化の検出

光誘起磁化の検出には, 直線偏光のプロープ光を用いる. 基底状態の磁気副準位間に分布数差 (population difference) が作られると試料に光学的異方性が引き起こされる. 円偏光によって引き起こされる光学的異方性には,

- 左右円偏光の吸収の違いから引き起こされる, 磁気円偏光二色性 (MCD)
- 左右円偏光の屈折率の違いから引き起こされる, 磁気円偏光複屈折 (MCB)

がある. 光学的異方性が引き起こされた試料を直線偏光が通過すると, 一般に, 試料入射前の直線偏光の振動方向に対して軸が傾いた楕円偏光になる. その様子を図 4.3 に示した.

直線偏光は図 4.3 のように, 左右円偏光の重ね合わせとして考えることができる. プロープ光として, z 方向に伝播し x 方向に振動する直線偏光,

$$E = E_0 e^{i(\omega t - kz)} \hat{x} \quad (4.3)$$

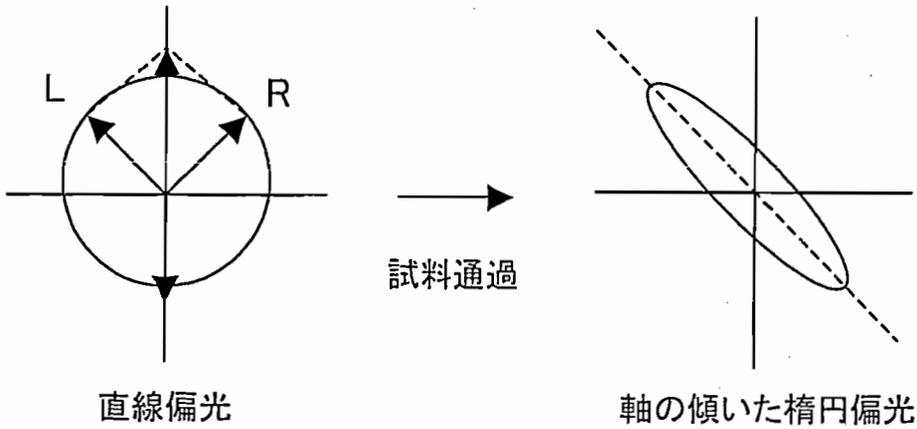


図 4.3: 直線偏光と光学的異方性が引き起こされた試料通過後の偏光。

を考え、これを直交する二つの円偏光 σ_+ と σ_- を基底にした時の成分 E^+ と E^- で分解する。

$$\mathbf{E} = E^+ \sigma_+ + E^- \sigma_- \quad (4.4)$$

$$\begin{aligned} E^+ &= E_0^+ e^{i(\omega t - k^+ z)}; & \sigma_+ &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{x} + i\hat{y}) \\ E^- &= E_0^- e^{i(\omega t - k^- z)}; & \sigma_- &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{x} - i\hat{y}) \end{aligned} \quad (4.5)$$

ここで、 σ_+ 円偏光あるいは、 σ_- 円偏光のポンプ光により上記の左右円偏光に対する吸収係数 α^+ , α^- の差（磁気円偏光二色性）および屈折率 n^+ , n^- の差（磁気円偏光複屈折性）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 σ_+ 円偏光と σ_- 円偏光の電場成分は、

$$\begin{aligned} E^+ &= E_0^+ e^{i(\omega t - k^+ L) - (\alpha^+/2)L} \\ E^- &= E_0^- e^{i(\omega t - k^- L) - (\alpha^-/2)L} \end{aligned} \quad (4.6)$$

と表される. 吸収差を $\Delta\alpha = \alpha^+ - \alpha^-$ とし, 屈折率の差を $\Delta n = n^+ - n^-$ とすると, 2成分の位相差 $\Delta\phi$ と電場振幅の差 ΔE はそれぞれ次のように表わされる.

$$\begin{aligned}\Delta\phi &= (k^+ - k^-)L \\ &= \frac{\omega L}{c}(n^+ - n^-) \\ &= \frac{\omega L}{c}\Delta n\end{aligned}\quad (4.7)$$

$$\begin{aligned}\Delta E &= \frac{E_0}{2}\{e^{-(\alpha^+/2)L} - e^{-(\alpha^-/2)L}\} \\ &= \frac{E_0}{2}\{e^{-\left(\frac{\alpha^+ + \alpha^-}{2}\right)L}\left(e^{\frac{\alpha^-}{2}L} - e^{\frac{\alpha^+}{2}L}\right)\} \\ &\simeq \frac{E_0}{2}\left(\frac{\alpha^-}{2}L - \frac{\alpha^+}{2}L\right) \quad (\alpha^+L, \alpha^-L \ll 1) \\ &= -\frac{E_0}{4}L\Delta\alpha\end{aligned}\quad (4.8)$$

このことより, 左右円偏光の吸収の差と屈折率の差は左右円偏光の電場振幅の差と位相差によって得られることがわかる. 従って, 直線偏光の試料通過後の偏光変化を測定することで, 試料内の磁化の様子を観測することができる

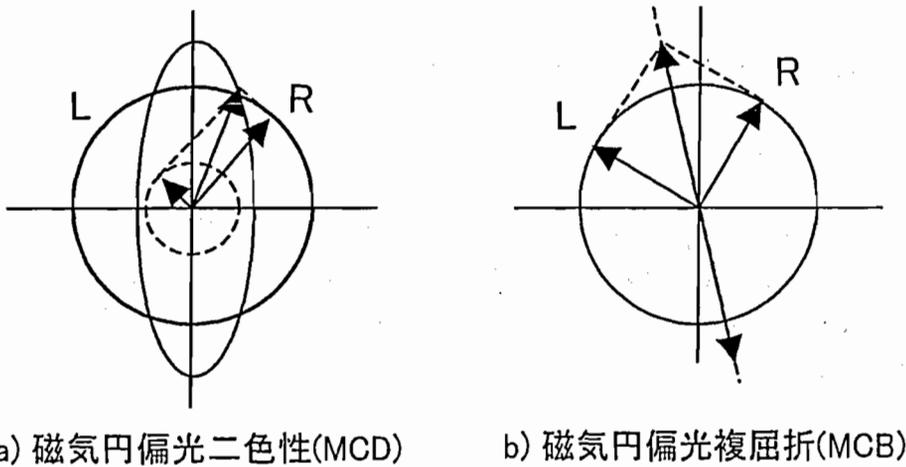


図 4.4: 磁気円偏光二色性 (MCD) と磁気円偏光複屈折 (MCB).

MCD と MCB による直線偏光の偏光の変化の様子を図 4.4 に示す. MCD は左右円偏光の吸収の違いにより左右円偏光の振幅が異なるため, 直線偏光は楕円偏光となる. MCB は左右円偏光の屈折率の違いにより, 左右円偏光の位相がずれるため直線偏光の軸が傾く. 一般に, 磁気円偏光二色性と磁気円偏光複屈折は同時に起こるため, 光学的異方性を引き起こされた試料を通った直線偏光は実際には, 図 4.3 のような軸の傾いた楕円偏光になっている.

4.1.3 ポラリメーター

本研究では、偏光の変化を測定する検出器としてポラリメーター [39] を使用した。検出器に用いたポラリメーターの構成図を図 4.5 に示す。入射した光は偏光ビームスプリッターによって P 偏光成分と S 偏光成分に分解され、それぞれの光を異なるフォトダイオードで受ける形になっている。最終的には、それぞれのフォトダイオードの出力の差を出力する回路になっている。ポラリメーターは試料にポンプ光を入射しない状態で、プローブ光に対して出力のバランスが取れる角度に設定する。こうすることによって、ポンプ光を入射したときにポンプ光による変化のみが測定できることになる。全く偏光の乱れを受けないような理想的な状態では入射前のプローブ光の直線偏光の向きに対してポラリメーターを 45° 傾けて置くことになる。

ポラリメーターを用いると磁気円偏光複屈折の信号のみを検出できる。また、ポラリメーターの直前に $\lambda/4$ 板を置くことによって磁気円偏光二色性の信号のみを検出することができる。従来の偏光変化の測定は、間に試料をはさんで 2 つの偏

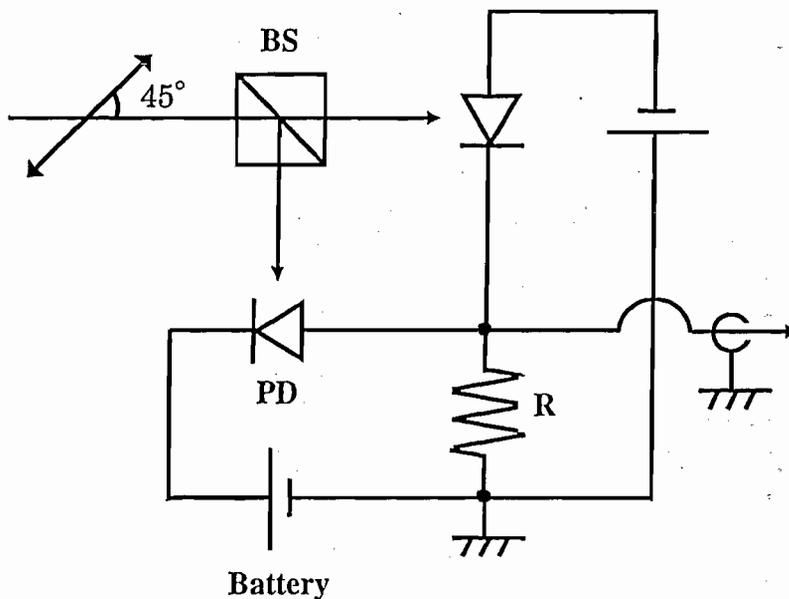


図 4.5: ポラリメーター。

光子を直交させ、偏光の変化によって透過してくるプローブ光をフォトダイオードで受けていた。この方法でも、磁気円偏光二色性と磁気円偏光複屈折の信号を検出できるが、2つの信号は同時に寄与し、片方だけを分離することはできない。

4.2 磁気円偏光二色性と磁気円偏光複屈折の観測

磁気円偏光二色性の周波数依存性を調べる実験配置図を図 4.7 に示す。図 4.7 の実験配置図からポラリメーター直前の $\lambda/4$ 板をとると磁気円偏光複屈折の周波数依存性を調べる実験配置図になる。

光源には、アルゴンイオンレーザー励起の縦直線偏光、連続発振のチタンサファイアレーザー (Ti:Sapphire Laser) を用いた。チタンサファイアレーザーはルビジウムの D_1 線付近を 10 GHz 程度の幅で周波数を掃引する。チタンサファイアレーザーから出たビームはビームスプリッターを用いてポンプ光とプローブ光に分けられ試料に照射される。M4 のミラーによってサンプルへのポンプ光の入射方向をプローブ光の方向に対して同方向と逆方向で切り替えることが可能になっている。ポラリメーターで検出した信号をデジタル・オシロスコープに取り込み、オシロスコープのアベレージ機能を用いて積算したものをコンピューターに転送した。サンプルは、バッファガス無しのルビジウムセルを用いた。吸収線から見積もったサンプルの温度は $\sim 73^\circ\text{C}$ であった。ビーム径は、プローブ光とポンプ光ともに 1 mm 程度である。プローブ光の光強度は $3\ \mu\text{W}$ で、ポンプ光の光強度は、プローブ光に対して同方向入射の 때가 $740\ \mu\text{W}$ で逆方向入射の時は $830\ \mu\text{W}$ であった。プローブ光とポンプ光のなす角度は、同方向入射の 때가約 0.7° で逆方向入射の時は 0.8° であった。

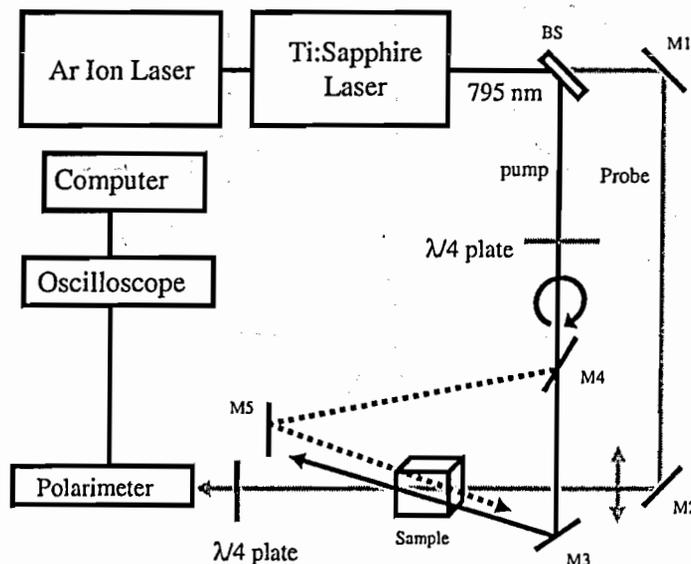


図 4.6: 磁気円偏光二色性の信号を観測する実験配置図。ポラリメーター直前の $\lambda/4$ 板をとると磁気円偏光複屈折の信号を観測する配置になる。

4.2.1 磁気円偏光二色性と磁気円偏光複屈折のスペクトル

磁気円偏光二色性と円偏光複屈折の周波数依存性の実験の結果を図 4.6 に示す。それぞれのグラフのゼロ点はそろえてある。図 4.6(a) は、実験を行った時の透過スペクトルである。図 4.6(b) は、プローブ光に対してポンプ光を同方向に入射の時の MCD スペクトルと MCB スペクトルである。図 4.6(c) は、プローブ光に対してポンプ光を逆方向に入射の時の MCD スペクトルと MCB スペクトルである。逆方向に入射したときは、ドップラーフリーの飽和分光法の原理によって静止している原子のみを検出するためスペクトルが狭くなっている。磁気円偏光二色性、磁気円偏光複屈折ともに共鳴線近傍で信号が現れることがわかる。また、磁気円偏光二色性の信号に対して、磁気円偏光複屈折の信号が分散型の形をしていることがわかる。これは、吸収と屈折には、クラマース・クローニッヒの関係 (Kramers-Kronig relations) があり、磁気円偏光二色性と磁気円偏光複屈折がそれぞれ吸収と屈折に付随する信号であることから説明がつく。

それぞれの遷移における吸収の効率は、図 3.9 に示した遷移確率に比例する。磁気円偏光二色性と透過スペクトルを比較すると、スペクトルのピーク位置は等しい。しかしながら、かならずしも吸収の効率と磁気円偏光二色性のスペクトルから得られる光誘起磁化の生成効率が等しくないことがわかる。光誘起磁化の生成の効率は、基底状態の F 値が励起状態の F' 値より大きい場合である。実際、磁気円偏光二色性のスペクトルも ^{87}Rb ($F=2 \rightarrow F'=1$) の部分で効率がいいことがわかる。このため本研究では、生成光と検出光には ^{87}Rb ($F=2 \rightarrow F'=1$) を用いた。

図 4.8 に、 σ_+ と σ_- 円偏光励起による磁気円偏光二色性のスペクトルを示す。 σ_+ 円偏光励起と σ_- 円偏光での磁気円偏光二色性のスペクトルは、ゼロ点で折り返した形になっている。ポンプ光の入射の向きを z 方向とすると、光誘起磁化は、 σ_+ 円偏光励起の時は $+z$ の向きに、 σ_- 円偏光励起の時は $-z$ の向きに生成される。このため、ポラリメーターを用いた検出は磁化の位相も検出できることになる。

図 4.9 に吸収スペクトルと磁気円偏光二色性のスペクトルの温度依存性を示した。吸収スペクトルから、温度の上昇とともに吸収が増すことが読み取れる。一方、磁気円偏光二色性のスペクトルは、 ^{87}Rb ($F=2 \rightarrow F'=1$) の遷移周波数に注目すると、48°C から 59°C 付近までは、光誘起磁化の生成効率がやや増えているようにみえるがそこから 78°C 付近まで目立った変化がない、しかし温度が 85°C の時に光誘起磁化の生成効率が減っていることがわかる。これは、温度が低い時は ^{87}Rb ($F=2 \rightarrow F'=2$) の遷移による生成効率を無視することができるが、高温になると無視できなくなるからである。以上より、光誘起磁化の実験に適したサンプルの温度は 50°C から 80°C の間である。このスペクトルはバッファガス無しのルビジウムセルを用いたものであり、バッファガスが封入されたセルを用いると吸収が増えるため、そのまま適用することができないが、本研究で用いたバッファガスにヘリウムが 5 Torr 封入されたセルは、吸収線の形も衝突広がりによる変化も確認できないためほぼこの条件で実験できる。

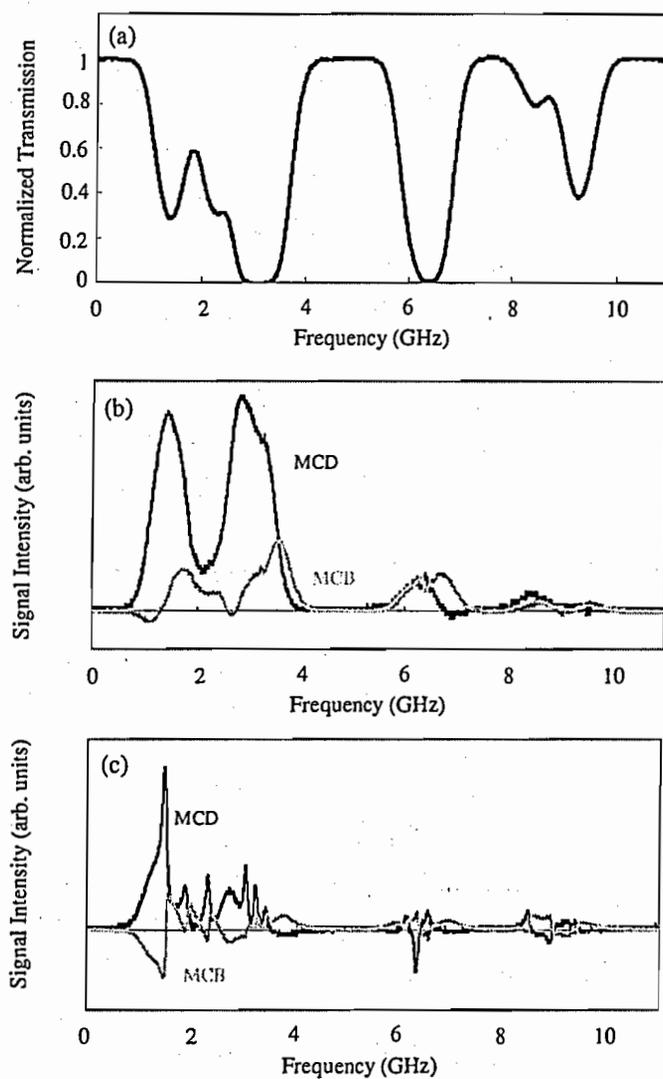


図 4.7: (a) 透過スペクトル. サンプル位置でポンプ光とプローブ光の入射方向が (b) 同方向と (c) 逆方向の場合の磁気円偏光二色性 (MCD) と磁気円偏光複屈折 (MCB) の信号.

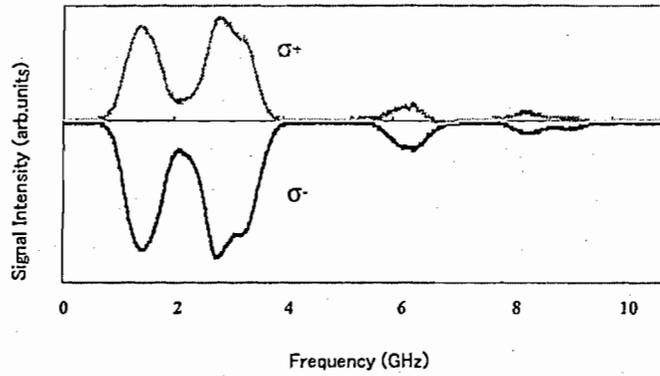


図 4.8: σ_+ 円偏光と σ_- 円偏光励起による磁気円偏光二色性のスペクトル. サンプルにはバッファガス無しのルビジウムセルを用いた.

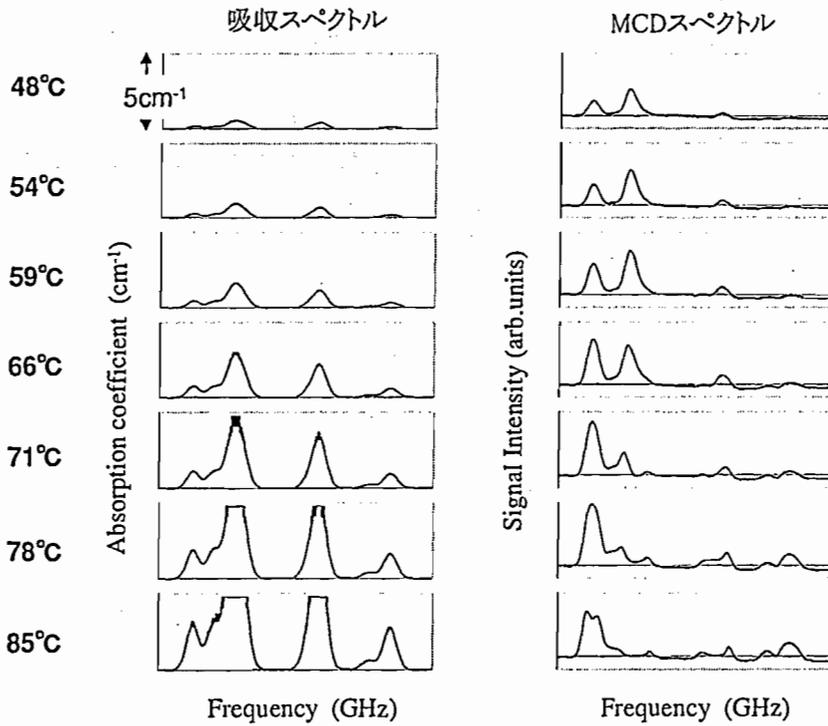


図 4.9: 吸収スペクトルと磁気円偏光二色性のスペクトルの温度依存性. サンプルにはバッファガス無しのルビジウムセルを用いた.

5 光誘起磁化の過渡現象

ポンプ・プローブ法により、光誘起磁化の過渡現象を時間領域で観測することができる。熱平衡状態にある原子に、パルス化された強い円偏光ポンプ光を照射することにより、瞬間的に基底状態あるいは励起状態に熱平衡状態と著しく異なった占有数差を作り、その後の時間発展を直線偏光のプローブ光を用いて検出する。

占有数差が磁気副準位間に生成された場合には、その分裂に一致した rf 磁場を加えることにより、通常の磁気共鳴を行うことができる。磁気共鳴には核磁気共鳴、電子スピン共鳴、ミューオンスピン共鳴等がある。通常、核磁気共鳴とミューオンスピン共鳴にはラジオ波が用いられ、電子スピン共鳴にはマイクロ波が用いられる。本研究では、ラジオ波やマイクロ波を用いずに光を用い、検出にも純光学的な手法による高感度な方法を用いた。この方法を光誘起磁気共鳴法と呼ぶことにする [40]。この方法は、光パルスのパルス幅で決まる時間分解能を持っているため、高時間分解能の特性も持ち合わせている。

光誘起磁気共鳴法は、量子ビート [41] と呼ばれる過渡現象に基づいている。本来、量子ビートとは、原子のもつ複数の副準位が十分時間の短いパルスで励起された時に、副準位の間に作られたコヒーレンスによって放出される蛍光強度やプローブ光に量子的な干渉を反映した振動が現れる現象をいう。ここでは一般化した意味で、光誘起磁気共鳴法によって誘起された副準位間のコヒーレンスそのものを量子ビートと呼ぶことにする。

この量子ビートは、副準位間のエネルギー差に対応する振動数を持ち、ある時定数をもって減衰する。この減衰振動はパルス磁気共鳴法で観測される自由誘導減衰 (Free Induction Decay: FID) と本質的に同じものである。

5.1 密度行列によるアプローチ

コヒーレンスは、密度行列を考えたときの密度行列の非対角成分にあたる。簡単のために、二準位系の密度行列を考える [42]。二準位系で時間に依存するシュレディンガー方程式

$$i\hbar \frac{d\Psi(\mathbf{r}, t)}{dt} = \mathcal{H}\Psi(\mathbf{r}, t) \quad (5.1)$$

を解くと、

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = c_1(t)\psi_1(\mathbf{r})e^{-\frac{iE_1 t}{\hbar}} + c_2(t)\psi_2(\mathbf{r})e^{-\frac{iE_2 t}{\hbar}} \quad (5.2)$$

式を見やすくするために、ブラケットを用い、 $c_1(t)$ を c_1 、 $\omega_1 = \frac{E_1}{\hbar}$ などとする、

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = c_1|1\rangle e^{-i\omega_1 t} + c_2|2\rangle e^{-i\omega_2 t} \quad (5.3)$$

となる。ここで、時間に依存する係数 c_1, c_2 を

$$|c_1|^2 + |c_2|^2 = 1 \quad (5.4)$$

と規格化しておく。

密度行列 ρ は $|\Psi\rangle\langle\Psi|$ で定義される。

$$\rho = |\Psi\rangle\langle\Psi| \equiv \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_1^* & c_2^* \end{pmatrix} \quad (5.5)$$

$$= \begin{pmatrix} |c_1|^2 & c_1 c_2^* \\ c_2 c_1^* & |c_2|^2 \end{pmatrix} \quad (5.6)$$

$$= \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix} \quad (5.7)$$

諸状態が完全規格直交系をなしている場合、基底ベクトルを $|\psi_f\rangle$ とすると、

$$\sum_f |\psi_f\rangle\langle\psi_f| = 1 \quad (5.8)$$

を満たす。今の場合、

$$|\Psi\rangle\langle\Psi| = 1 \quad (5.9)$$

ということである。

2準位系を取り扱う場合は、スピン行列

$$S_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad S_y = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad S_z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (5.10)$$

を用いて密度行列を表現することが可能である。時間に依存する係数 $s_x(t)$, $s_y(t)$, $s_z(t)$ を用いると、2準位系の密度行列は

$$\rho(t) = s_x(t)S_x + s_y(t)S_y + s_z(t)S_z \quad (5.11)$$

として表現される。

状態 $|r\rangle$, $|s\rangle$, $|t\rangle$, からなる3準位系を考え、そのうち $|r\rangle$ から $|s\rangle$ への遷移のみが許される場合は、

$$S_x^{(rs)} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, S_y^{(rs)} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i & 0 \\ i & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, S_z^{(rs)} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (5.12)$$

という演算子を用いて密度行列を表現することが可能になる。この演算子は、single-transition operator と呼ばれている [43]。

一般に密度行列は、密度行列の運動方程式 (Liouville 方程式)

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}, \rho] \quad (5.13)$$

に従って時間発展する。密度行列を用いる利点は、いろいろな物理的要素を直接、運動方程式に取り入れることができることである。

5.1.1 量子ビート

量子ビートの原理を図 5.1 に示すような3準位原子系を光パルスで励起するモデルで考える。系の全ハミルトニアンは、 \mathcal{H}_0 を三準位系の原子のハミルトニアン、 \mathcal{H}_1 をゼーマン相互作用のような時間に依存しない摂動ハミルトニアン、そして \mathcal{H}_2 を原子と光の相互作用ハミルトニアンとすると、

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2, \quad (5.14)$$

によって得られる。

無摂動系において、円偏光のような特別な偏光をもつ光が $|1'\rangle$ と $|3\rangle$ の間の遷移のみを引き起こすとする。基底状態の二重縮退は、 \mathcal{H}_1 によって縮退がとかれ、図 5.1 (b) に示すような、二つの固有状態 $|1\rangle$ と $|2\rangle$ に分裂する。これらの状態は、

$$(|1'\rangle, |2'\rangle, |3\rangle) = (|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle)U \quad (5.15)$$

によって関係づけられる。ここで、

$$U = \begin{pmatrix} \cos \frac{\theta}{2} & -\sin \frac{\theta}{2} & 0 \\ \sin \frac{\theta}{2} & \cos \frac{\theta}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (5.16)$$

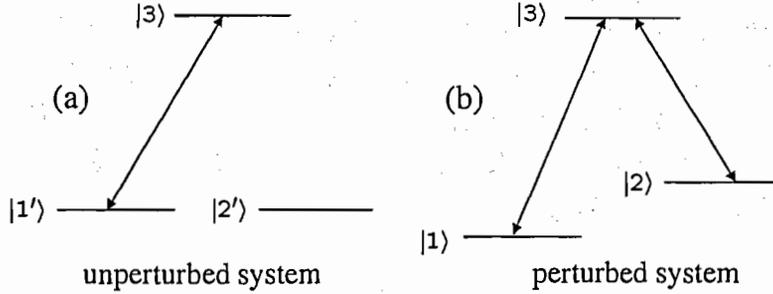


図 5.1: 3 準位系モデル.

である. よって, 無摂動ハミルトニアン \mathcal{H}_0 に関する密度行列 ρ' と摂動ハミルトニアン $\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$ に関する密度行列 ρ は,

$$\rho = U\rho'U^{-1} \quad (5.17)$$

の関係によって関連付けられる.

光吸収による遷移の割合を η とすると, 励起直後の系の状態は密度行列を用いて

$$\rho'(0) = \begin{pmatrix} 1-\eta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \eta \end{pmatrix} \quad (5.18)$$

となる.

この無摂動系における密度行列を式 (5.17) によって摂動系に変換すると,

$$\rho(0) = \begin{pmatrix} (1-\eta)\cos^2(\theta/2) & (1-\eta)\cos(\theta/2)\sin(\theta/2) & 0 \\ (1-\eta)\cos(\theta/2)\sin(\theta/2) & (1-\eta)\sin^2(\theta/2) & 0 \\ 0 & 0 & \eta \end{pmatrix} \quad (5.19)$$

となる. ここからの副準位系の自由な発展は,

$$\rho_{12}(t) = \rho_{21}^*(t) = \rho_{12}(0) \exp(-i\omega_{12}t) \quad (5.20)$$

であることを考慮し, 更に緩和の効果を入れて求められる. 縦緩和速度を γ_1 , 横緩和速度を γ_2 とし, 一般化したブロッホベクトル

$$(u, v, w) = (\rho_{12} + \rho_{21}, i\rho_{12} - i\rho_{21}, \rho_{11} - \rho_{22}) \quad (5.21)$$

を用いて表すと,

$$u = 2(1-\eta)\cos(\theta/2)\sin(\theta/2)\cos(\omega_{12}t)\exp(-\gamma_2t) \quad (5.22)$$

$$v = 2(1-\eta)\cos(\theta/2)\sin(\theta/2)\sin(\omega_{12}t)\exp(-\gamma_2t) \quad (5.23)$$

$$w = (\cos^2(\theta/2) - \sin^2(\theta/2))(1-\eta)\exp(-\gamma_1t) \quad (5.24)$$

である。この (u, v, w) は、 $|1\rangle, |2\rangle$ が、有効スピンのゼーマン準位であれば $(u, v, w) \propto (\langle S_x \rangle, \langle S_y \rangle, \langle S_z \rangle)$ の関係によりスピンの期待値と対応付けられるものである。このことから、密度行列が式 (5.11) のようにスピン行列によって書き表すことが可能であることがわかる。 w 成分は縦磁化の時間変化を与える。 u と v は、副準位間のエネルギー差に対応する振動数 ω_{12} で振動しており、横緩和 γ_2 で減衰することが分かる。この減衰振動が自由誘導減衰 (Free Induction Decay : FID) である。

5.1.2 光誘起磁化の自由誘導減衰

円偏光パルスを用いた光ポンピングによって、パルス磁気共鳴法で観測される FID と本質的に同じものが得られる。簡単のために、図 5.2 に示すような、基底状態と励起状態の角運動量 J と J' がともに $1/2$ である 4 準位系のモデルを σ_+ 円偏光で励起する場合を考える。

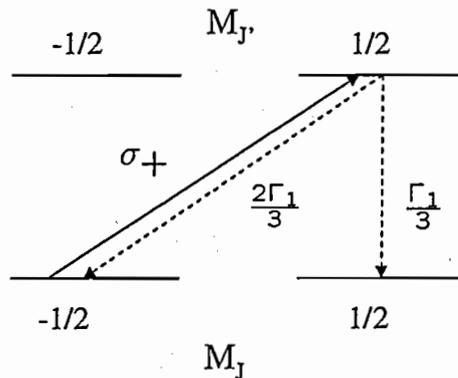


図 5.2: 4 準位系のモデル。

光の進行方向を量子化軸にとると角運動量の選択則により、 $|J = \frac{1}{2}, M_J = -\frac{1}{2}\rangle$ から $|J' = \frac{1}{2}, M_{J'} = \frac{1}{2}\rangle$ への遷移のみが起こる。十分励起が弱く励起状態のポピュレーション及び光学コヒーレンスが小さいと仮定すると、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。このとき、光ポンピングは、

$$\dot{m}_z = \frac{d}{dt}(\rho_{22} - \rho_{11}) = 2\dot{\rho}_{22} = 2P_+(1 - m_z(t)); \quad (5.25)$$

$$P_+ = \Gamma_2 \frac{\Gamma_1^{3 \rightarrow 2}}{\Gamma_1^{3 \rightarrow 1} + \Gamma_1^{3 \rightarrow 2}} \frac{\chi^2}{2(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \quad (5.26)$$

に従ってポピュレーションを変化させる。ここで、 P_+ は光ポンピングレート、 χ はラビ周波数、 Δ は離調周波数、 Γ_2 は光学コヒーレンスの位相緩和レート、 $\Gamma_1^{r \rightarrow s}$ は自

自然放出レートである。今の系の場合、自然放出レート $\Gamma_1^{3 \rightarrow 1}$ と $\Gamma_1^{3 \rightarrow 2}$ は 2:1 の比である。しかし、光ポンピングの実験が、バッファガスを含む場合、衝突の効果により励起状態のミキシングがおり、二つの自然放出レートが等しくなる、 $\Gamma_1^{3 \rightarrow 1} = \Gamma_1^{3 \rightarrow 2}$ 。この時、光ポンピングレートは、

$$P_+ = \Gamma_2 \frac{\chi^2}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \quad (5.27)$$

となる。 P_+ は、 $\Delta = 0$ で最大となり、ローレンツ型の吸収線を考えたとき吸収の共鳴中心で光ポンピングレートが最大になることを示している。ジャストレゾナンスでの光ポンピングレートは

$$P_+ = \frac{\chi^2}{4\Gamma_2} \quad (5.28)$$

である。光ポンピングでは、図 5.3(a) のような、入射する光の方向に対して平行に磁場をかける縦磁場の配置と、図 5.3(b) のような、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。

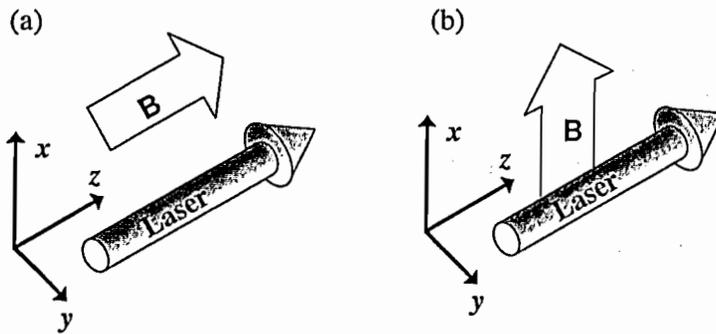


図 5.3: 三準位系のモデルにおける光と磁場の向き。

ラビ周波数は式 (2.34) で示したように、

$$\chi = \frac{eD_{12}|E_0|}{\hbar} \quad (5.29)$$

によって得られる。ここで、

$$\begin{aligned} \chi^2 &= \frac{e^2 D_{12}^2 |E_0|^2}{\hbar^2} \\ &= \frac{d^2 |E_0|^2}{\hbar^2} \end{aligned} \quad (5.30)$$

であり, $d^2 = e^2 D_{12}^2$ は, 電気双極子モーメントである. 2準位系を考えると, アイ
ンシュタインの A 係数すなわち自然放出レート Γ_1 が

$$\Gamma_1 = \frac{\omega_0^3 d^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \quad (5.31)$$

であることから,

$$\begin{aligned} d^2 &= \Gamma_1 \frac{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3}{\omega_0^3} \\ &= \Gamma_2 \frac{6\pi\epsilon_0 \hbar c^3}{\omega_0^3} \end{aligned} \quad (5.32)$$

となる. ここで, 2準位系なので $\Gamma_2 = \Gamma_1/2$ の関係を用いた. 式(5.30)に式(5.32)
を代入すると,

$$\chi^2 = \Gamma_2 \frac{6\pi\epsilon_0 c^3}{\hbar\omega_0^3} |\mathbf{E}_0|^2 \quad (5.33)$$

となる. これを式(5.28)に代入すると,

$$P_+ = \frac{3}{2} \frac{\pi\epsilon_0 c^3}{\hbar\omega_0^3} |\mathbf{E}_0|^2 \quad (5.34)$$

となる. ここで, 光強度 I が

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c |\mathbf{E}_0|^2 \quad (5.35)$$

であることを使うと最終的に,

$$P_+ = \frac{3\pi c^2}{\hbar\omega_0^3} I \quad (5.36)$$

となり光ポンピングレート P_+ は, 光強度 I に比例する.

縦磁場中の光ポンピング

図 5.3(a) のような, 縦磁場中の光ポンピングを考える. この場合, 相互作用ハ
ミルトニアンを \mathcal{H}_L とすると, 密度行列の運動方程式は

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}_L, \rho] - \gamma_{eff} \rho + P_+ J_z \quad (5.37)$$

として得られる. ここで, $\gamma_{eff} = \gamma_0 + P_+$ であり, γ_0 は光以外の効果による緩和
レートを表す. \mathcal{H}_L はゼーマン相互作用を記述する $\mathcal{H}_L = -\hbar\Omega_L J_z$ であり, $\Omega_L =$
 $-g_J \mu_B B$ ある. ここで, g_J はランダウの g 因子で, μ_B はボーア磁子, B は磁場で
ある.

熱平衡状態を初期条件とすると,

$$\rho(t) = m_z^{eq}(1 - e^{-\gamma_{eff}t})J_z \quad (5.38)$$

と解ける. これは, 図 5.4 に示すように, 密度行列は定常状態

$$m_z^{eq} = \frac{P_+}{\gamma_{eff}} = \frac{P_+}{(\gamma_0 + P_+)} \quad (5.39)$$

に向かって時間発展を行う. 縦磁場中で $\rho(t)$ は, J_z のみで構成され, $[\mathcal{H}_r, \rho] = 0$ とハミルトニアンと交換する. ゆえに縦磁化は系の発展に影響しない.

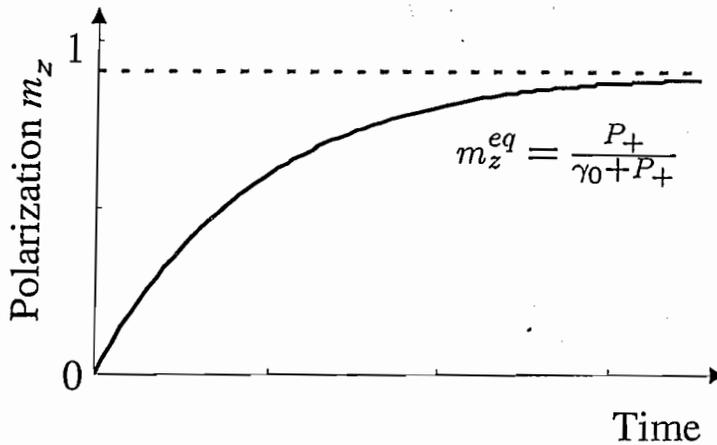


図 5.4: 縦磁場中の光ポンピングによる磁化の z 成分 m_z の時間発展.

横磁場中の光ポンピング

図 5.3(b) に示すような横磁場中の光ポンピングについて考える. 重ね合わせの原理により, 量子化軸を磁場方向にとった場合の固有関数の線形結合によって量子化軸をレーザー方向にとった場合の固有関数を表すことができる. 新たな基底で見たときコヒーレンスが誘起されると見ることができる. このコヒーレンスは, 磁場中の磁化の運動として考えることができる. 相互作用ハミルトニアンは $\mathcal{H}_T = -\Omega_L J_x$ と書け, 式 (5.37) において緩和と光ポンピングを表す第 2 項と第 3 項は同じになる. この時, 磁化ベクトルの運動方程式は,

$$\dot{\vec{m}} = \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\gamma_{eff} & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma_{eff} & \Omega_L \\ 0 & -\Omega_L & -\gamma_{eff} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ P_+ \end{pmatrix} \quad (5.40)$$

となる.

$\vec{m} = 0$ として得られる連立方程式を解くことによって定常解を求めることができ,

$$\vec{m}_\infty = \frac{P_+}{\Omega_L^2 + \gamma_{eff}^2} (0, \Omega_L, \gamma_{eff}) \quad (5.41)$$

となり, その大きさは,

$$|\vec{m}_\infty| = \frac{P_+}{\sqrt{\Omega_L^2 + \gamma_{eff}^2}} \quad (5.42)$$

である.

式(5.40)の一般解は, 固有関数 $\vec{\xi}_i$ と固有値 λ_i ,

$$\begin{aligned} \vec{\xi}_0 &= (1, 0, 0), & \lambda_0 &= -\gamma_{eff} \\ \vec{\xi}_{\pm 1} &= \frac{1}{\sqrt{2}}(0, \pm i, -1), & \lambda_{\pm 1} &= \pm \Omega_L - \gamma_{eff} \end{aligned} \quad (5.43)$$

を用いて

$$\vec{m}(t) = \sum_{i=-1}^1 c_i \vec{\xi}_i e^{\lambda_i t} + \vec{m}_\infty \quad (5.44)$$

として得られる [43].

始めに系が熱平衡状態にあり光誘起磁化が全く存在していない状態 $\vec{m}(0) = 0$ であるサンプルに関して, 光誘起磁化の時間発展は,

$$\vec{m}(t) = \vec{m}_\infty (1 - \cos(\Omega_L t)) e^{-\gamma_{eff} t} + \vec{m}_s \sin(\Omega_L t) e^{-\gamma_{eff} t} \quad (5.45)$$

として得られる. ここで, \vec{m}_s は, 系の終状態と直交するベクトル,

$$\vec{m}_s = \frac{P_+}{\gamma_{eff}^2} (0, -\gamma_{eff}, \Omega_L) \quad (5.46)$$

である.

横磁場中では, 図 5.5 に示すように, 光誘起磁化がラーモア周波数で磁場の周りを歳差運動しながら熱平衡状態に緩和していく描写で考えることができる. しかしながら, 式(5.45)が示すように, 光ポンピングの最中の光誘起磁化の振る舞いは, ラーモア歳差運動だけでなく, ポンプ光による磁化の生成と光による減衰効果も考慮しなくてはならず非常に複雑である. この現象を無視するためには, 非常に強く短い光パルスで瞬間的に光誘起磁化を生成するか, 弱い光であっても十分長い時間照射することによって定常状態の磁化を生成すればよい.

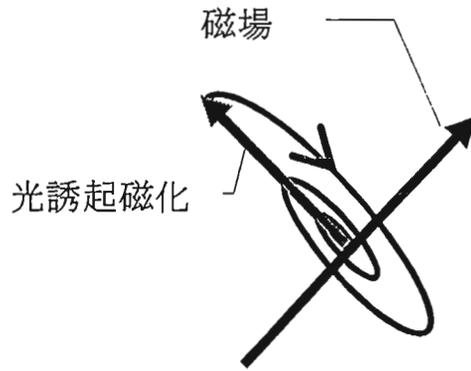


図 5.5: 横磁場中における光誘起磁化の振る舞い. ラーモア周波数で歳差運動しながら熱平衡状態へ緩和していく.

5.2 自由誘導減衰の観測

横磁場中でポンプ光に円偏光、プローブ光に直線偏光を用いたポンプ・プローブ法を行うことによって磁気副準位間のコヒーレンスの時間発展に相当する磁化の歳差運動の信号を得ることができる。自由誘導減衰は、円偏光パルスによる光の進行方向に平行な磁化の生成とその磁化の静磁場周りのラーモア歳差運動(図 5.5)として説明できる。

5.2.1 自由誘導減衰の実験配置

磁気円偏光二色性を利用する方法を用いて光誘起磁化の生成と検出を行った。光誘起磁化の過渡的現象の観測に用いた実験配置図を図 5.6 に示す。 ^{87}Rb $F=2 \rightarrow F'=1$ の遷移での磁気円偏光二色性の信号が、比較的大きいため、レーザーの発振周波数はこの遷移に共鳴する周波数にあわせた。Ti:Sapphire Laser から出た光をビームスプリッターで 2 本に分け、それぞれポンプ光とプローブ光として使用する。ポンプ光とプローブ光はそれぞれ、音響光学変調器 (AOM) によってパルスに切り出される。プローブ光は、 $20\mu\text{s}$ の矩形波、ポンプ光は半値半幅で約 100ns のパルスに切り出した。サンプル位置でのビーム径はプローブ光、ポンプ光ともに直径 1mm 程度であり、光強度は CW (Continuous wave) 光の状態、プローブ光は $3\mu\text{W}$ でポンプ光は $700\mu\text{W}$ であった。試料の温度は、自由誘導減衰測定時の吸収係数から見積もり、約 77°C であった。サンプルは、ヘルムホルツコイルの中におかれ、レーザー光に対して垂直に均一な磁場を印加できるようになっている。

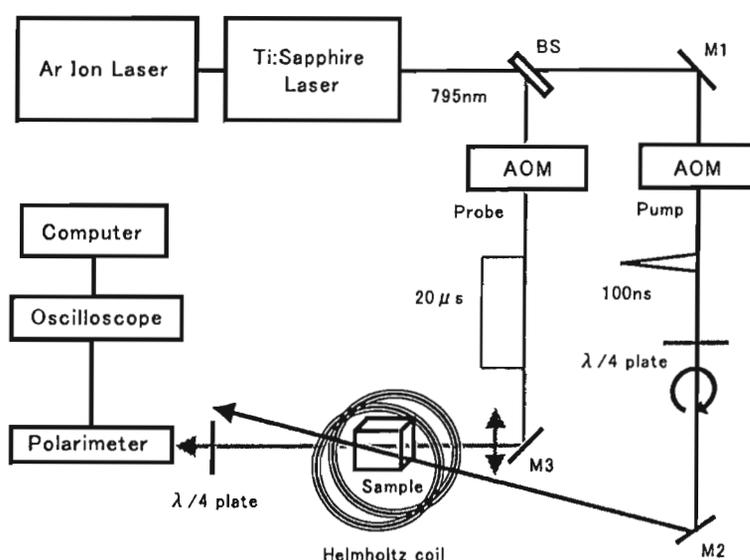


図 5.6: FID の実験配置図.

5.2.2 自由誘導減衰の信号

バッファガス無しでの ^{87}Rb の基底状態 ($F=2$) における光誘起磁化の自由誘導減衰の磁場依存性とそのフーリエ変換を図 5.7 に示す. 測定は, 残留磁場 (residual magnetic field) の時と, ヘルムホルツコイルによって作られる横磁場が 0.32 Oe, 0.65 Oe, 0.87 Oe, 1.31 Oe の時について行った.

図 5.7(b) から横磁場の強さを増加させると, 振動数が増加していていることが読み取れる. これは, 外部磁場が増えることによって, 磁気副準位のゼーマン分裂が大きくなり, 光誘起磁化がそれに対応したラーモア歳差運動をするからである. 低磁場の場合の ^{87}Rb における磁気副準位のゼーマン分裂は ^{87}Rb の 0.7 MHz/Oe であり, 実験の結果によく一致していることから, 光誘起磁化の生成と検出ができていていることがわかる.

サンプルにバッファガスが含まれていない場合の自由誘導減衰の緩和時間はトランジットタイムと呼ばれる原子がビームをよぎる時間できまる. ビーム径が 0.5mm 程度, 試料の温度が 77°C の時のトランジットタイムは $\sim 3\mu\text{s}$ と予測され, 実験で観測された緩和時間をよく説明する.

サンプルにバッファガスが含まれると, 図 5.8 (a) や図 5.9 に示すように自由誘導減衰の緩和時間が伸びる. これは, バッファガスの影響で, サンプル原子の平均自由行程が短くなり, サンプル原子が長くプローブ光内にとどまることにより観測時間が伸びるモデルで説明できる. このタイプの緩和は, もはやトランジットタイムでは説明がつかず, 拡散方程式にしたがう緩和が支配的になる. この場合, レーザー光のガウシアン特性など様々な要因から非常に複雑な現象になるが, 定性的には, 1 つないしは 2 つの指数関数的な減衰でフィッティングできる. 図 5.8 (a) や図 5.9 にそれぞれフィッティングすることによって緩和時間を求めた. 図 5.8 (a) は一つの指数関数でフィッティングでき, その緩和時間は $15\mu\text{s}$ であった. 図 5.9 は二つの指数関数のフィッティングを用いて, 早い緩和時間は $\sim 10\mu\text{s}$, 遅い緩和時間は $\sim 80\mu\text{s}$ であった. これらの違いはビーム径やその重なりによる違いと考えられる.

図 5.8 (a) と図 5.9 にバッファガス (He ~ 5 Torr) を封入したルビジウムセルを用いて観測した ^{87}Rb ($F=2$) の自由誘導減衰の信号を示した. 図 5.8 (a) は, 横磁場中の信号であり, 図 5.9 はゼロ磁場中での信号である. ラーモア歳差運動の周期は磁気副準位間の分裂幅に対応しているため, 図 5.8 (a) のフーリエ変換からサンプルに印加されている磁場を読み取ることができる. 図 5.8 (a) のフーリエ変換を図 5.8 (b) に示す. ^{87}Rb の基底状態の磁場に対する分裂は 0.7 MHz/Oe なので, ~ 0.13 Oe の磁場が印加されていることがわかる. 図 5.9 の信号は, ポンプ光の方向に生成された光誘起磁化が周りに磁場がないので, その方向を保ったまま減衰していくことを表している.

(a) Free Induction Decay Signals

(b) Fourier Spectra

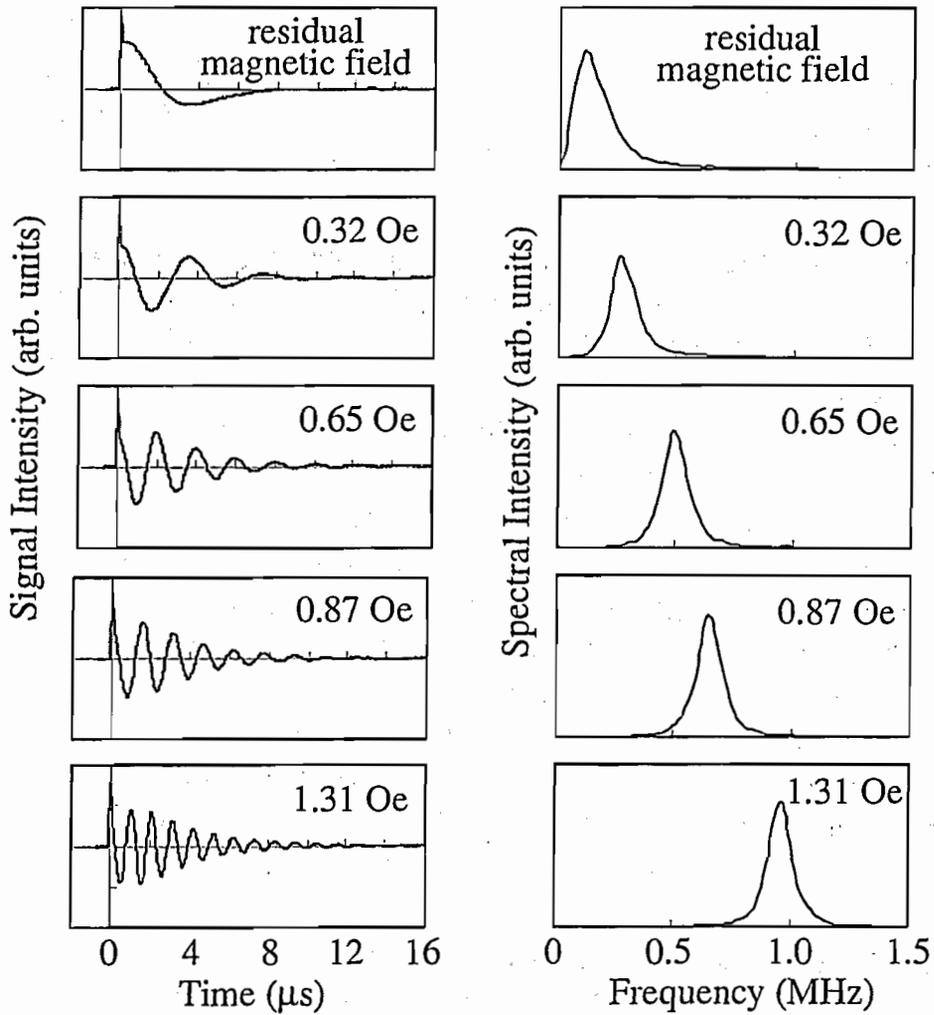


図 5.7: (a) ^{87}Rb の基底状態において観測された自由誘導減衰信号の磁場依存性. 測定は, 残留磁場 (residual magnetic field) の時と, ヘルムホルツコイルによって作られる横磁場が 0.32 Oe, 0.65 Oe, 0.87 Oe, 1.31 Oe の時について行った. (b) (a) の自由誘導減衰信号のフーリエ変換.

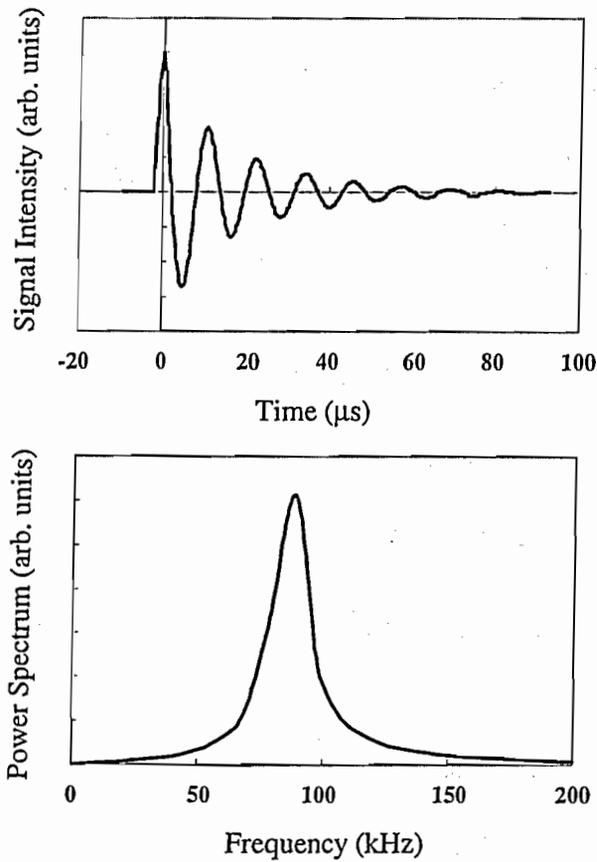


図 5.8: (a) バッファガス He 5 Torr を封入したセルを用いて観測された ^{87}Rb ($F = 2$) の基底状態における自由誘導減衰信号. (b) そのフーリエ変換.

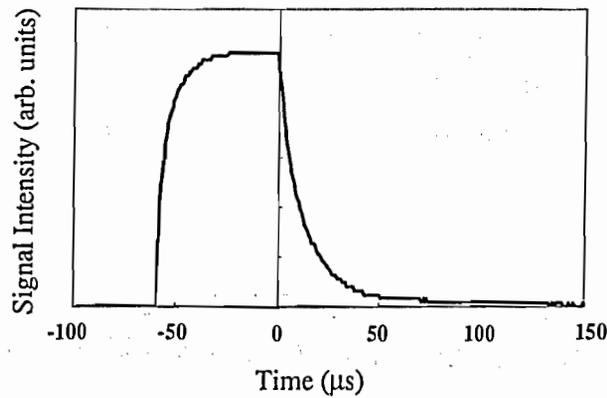


図 5.9: (a) バッファガス He 5 Torr を封入したセルを用いて観測された ^{87}Rb ($F = 2$) の基底状態におけるゼロ磁場中での自由誘導減衰信号.

5.3 自由誘導減衰の緩和

5.3.1 トランジットタイム (Transit time) による緩和

原子がレーザー光の有限の直径をよぎる時間をトランジットタイムとよぶ。トランジットタイムには原子のレーザーの進行方向に垂直な速度成分が寄与する。気体が熱平衡にあれば、気体原子の速度分布はマクスウェル・ボルツマン分布となる。一つの方向についての速度分布は、

$$f(v_z) = \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(-\frac{mv_z^2}{2k_B T} \right) \quad (5.47)$$

と表せる。この分布速度の二乗の平均は

$$\langle v^2 \rangle = \frac{k_B T}{m} \quad (5.48)$$

になる。トランジットタイムの逆数は、基底状態の緩和速度 γ_{ground} に相当する。 γ_{ground} は L をビーム径として、

$$\gamma_{\text{ground}} \sim \frac{\sqrt{\langle v^2 \rangle}}{L} \quad (5.49)$$

である。よってトランジットタイム τ_{transit} は

$$\begin{aligned} \tau_{\text{transit}} &\sim \frac{L}{\sqrt{\langle v^2 \rangle}} \\ &= L \sqrt{\frac{m}{k_B T}} \end{aligned} \quad (5.50)$$

で求まる。

緩和には、準位間の占有数差が変化した状態から熱平衡状態に戻るまでの時間の縦緩和時間 T_1 とスピンの位相がそろった状態から位相がバラバラの状態になる時間の横緩和時間 T_2 がある。ビームを通りぬけた原子はセルの壁との衝突で熱平衡に達する。励起された原子に対して壁との衝突で決まる緩和時間が T_1 であり、トランジットタイムで決まる緩和時間が T_2 であると考えられ、 $T_1 \geq T_2$ である。

5.3.2 拡散による緩和

バッファガスが封入された気体の緩和は、拡散方程式に従う。まず、1種類の分子からなる場合を考える。空間位置 \mathbf{r} 、時間 t における拡散物質の濃度を $u(\mathbf{r}, t)$ とすると、拡散方程式は、

$$\frac{\partial u(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = D \nabla^2 u(\mathbf{r}, t) \quad (5.51)$$

で与えられる。ここで、 D は、自己拡散係数と呼ばれる拡散物質の種類や温度によって決まる係数である。この方程式の解は、

$$u(\mathbf{r}, t) = \left(\frac{1}{4\pi Dt} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{\mathbf{r}^2}{4Dt} \right) \quad (5.52)$$

によって得られる。このように、自己拡散係数を求めることができれば、拡散による現象を記述できるようになる。自己拡散係数は、 λ_l を平均自由行程、 \bar{v} を原子の平均の速さとする、

$$D = \frac{\lambda_l \bar{v}}{3} \quad (5.53)$$

として与えられる。

次に粒子1と粒子2の2種類の分子からなる場合を考える。この場合の拡散方程式は

$$\frac{\partial u(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = D^* \nabla^2 u(\mathbf{r}, t) \quad (5.54)$$

で与えられる。ここで D^* は、

$$D^* = \left(\frac{n_1}{n_1 + n_2} D_1 + \frac{n_2}{n_1 + n_2} D_2 \right) \quad (5.55)$$

$$= \left(\frac{p_1}{p_1 + p_2} D_1 + \frac{p_2}{p_1 + p_2} D_2 \right) \quad (5.56)$$

によって得られる粒子1と粒子2に対して同じ値をとる相互拡散係数と呼ばれるものである。ここで、 n_1 と n_2 、 p_1 と p_2 、 D_1 と D_2 はそれぞれ粒子1と粒子2の分子密度と圧力、自己拡散係数である。

式(5.54)の方程式の解は、

$$u(\mathbf{r}, t) = \left(\frac{1}{4\pi D^* t} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{\mathbf{r}^2}{4D^* t} \right) \quad (5.57)$$

によって得られる。この拡散係数を求めることができれば、2種類の分子の拡散による現象を記述できるようになる。

2種類の分子が半径 r_1 と r_2 の剛体球であり、気体分子の速度分布がマクスウェル分布であると仮定すると、粒子1の平均自由行程は、

$$\lambda_1 = \left\{ \sqrt{2} \frac{p_1}{k_B T} \sigma_{11} + \frac{p_2}{k_B T} \left(1 + \frac{m_1}{m_2} \right)^{1/2} \sigma_{12} \right\}^{-1} \quad (5.58)$$

で得られる。同じ成分同士の衝突が拡散に影響しないと考えると、

$$\lambda_1 = \left\{ \frac{p_2}{k_B T} \left(1 + \frac{m_1}{m_2} \right)^{1/2} \sigma_{12} \right\}^{-1} \quad (5.59)$$

として得られる。同様に、粒子2の平均自由行程は、

$$\lambda_2 = \left\{ \frac{p_1}{k_B T} \left(1 + \frac{m_2}{m_1} \right)^{1/2} \sigma_{21} \right\}^{-1} \quad (5.60)$$

として得られる。ここで、 $\sigma_{12} = \sigma_{21}$ である。一方、それぞれの粒子の平均速度は、

$$\bar{v} = \left(\frac{8k_B T}{\pi m} \right)^{1/2} \quad (5.61)$$

によって得ることができる。異なった2種類の分子の衝突断面積 σ_{12} は、粒子1と2の半径をそれぞれ r_1 、 r_2 とすると $\pi(r_1 + r_2)^2$ によって得られる粒子1と2の半径をそれぞれ r_1 、 r_2 とすると、速さ v で運動している粒子1が静止している粒子2に衝突するのは球の中心から $(r_1 + r_2)$ の範囲内に限られ、運動している粒子1は、半径 $r_1 + r_2$ の大きさを持ち粒子2は点と考えて良いことになる。この幾何学的な断面積 σ_{12} は、衝突断面積と呼び、 $\pi(r_1 + r_2)^2$ で得られる。衝突断面積は粒子2の立場で考えても同様の結果が得られるため $\sigma_{12} = \sigma_{21}$ となる。

以上の議論を使うと、温度70℃の時の相互拡散係数は $0.006 \text{ m}^2/\text{s}$ であった。ルビジウムの圧力は、式(3.7)によって得られる。ヘリウムの圧力は、 $\sim 5 \text{ Torr}$ である。ルビジウムの半径には、金属結合半径の $2.47 \times 10^{-10} \text{ m}$ を、ヘリウムの半径にはファンデルワールス半径である $1.4 \times 10^{-10} \text{ m}$ を用いた。ここで求めた相互拡散方程式を使って光誘起磁化の緩和の様子をシュミレーションすることが可能であるが、拡散方程式に従う緩和は非常に複雑であり上手くフィッティングすることが困難である。そこで、本研究で得られたFID信号に対しては、定性的に1つの指数関数もしくは、2つの指数関数の和を仮定してフィッティングを行った。2つの指数関数を用いた理由は次の通りである。生成光がサンプルセルを通過しているすべての部分で光誘起磁化が生成される。生成光と検出光の同軸性が増すと、サンプルセルのビームが通った領域すべてに光誘起磁化を生成し、またそれを検出することになる。この時、最も単純なモデルとしては、長い円筒形の領域に光誘起磁化が生成されることになる。ここで生成された光誘起磁化がプローブ光の領域から拡散することを考えると、本実験の場合、ビーム断面方向には1 mm程度、ビームの伝播方向には1 cm程度となり、長い緩和と短い緩和が考えられるからである。

6 光誘起磁化の純光学的制御

離調された円偏光は、ゼーマンライトシフトと呼ばれる効果によりレーザー光方向の仮想的な磁場として働く。本研究では、光誘起磁化を純光学的に任意軸周りの回転や位相制御を行うためにこの効果を用いた。共鳴励起による光ポンピングの効果はポピュレーションを変化させるが、非共鳴励起によるゼーマンライトシフトは仮想的な遷移によって引き起こされるためポピュレーションを変化させないので、光誘起磁化を断熱的に制御できる。この磁場は、光のパルス幅で決まる時間で働く高速にスイッチ可能な磁場であり、非常に有用である。

6.1 ゼーマンライトシフトによる仮想的な磁場

ゼーマンライトシフトの効果を用いた仮想的な磁場の発生を簡単に説明する。一般的な説明は序論ですでに述べたとおりである。ライトシフトは、図 1.1(a) に示すように、赤方離調された光が原子に入射されると、電気双極子遷移が許容されたエネルギー準位のみが外側に広がり、逆に青方離調された光が原子に入射されるとエネルギー準位が内側に狭まる現象である。原子に離調した σ_+ 円偏光が入射される場合を考える。この場合、選択則によって遷移が許される準位のみがシフトが起こる。結果、図 1.1(b) に示すように、離調された σ_+ 円偏光の入射によってゼーマン副準位の縮退が解ける。ゼーマン副準位の縮退が解けたことは磁場を印加したことに等しいため仮想的な磁場が発生したと考えることができる。

離調した円偏光励起による仮想的な磁場の発生を、密度行列を用いて詳しく説明する。図 6.1 に示すような、基底状態に $|1'\rangle$ と $|2'\rangle$ の縮退した二準位を持ち、励起状態に $|3\rangle$ を持つ三準位系を考える。 \mathcal{H}_0 を三準位系の原子のハミルトニアン、 \mathcal{H}_1 をゼーマン相互作用のような時間に依存しない摂動ハミルトニアン、そして \mathcal{H}_2 を原子と光の相互作用ハミルトニアンとする。光パルスの間、 \mathcal{H} に摂動ハミルトニアン \mathcal{H}_2 が加えられる。衝撃励起の条件 $\omega_{21}t_p \ll 1$ が満たされるならば、言い換えると、光パルスの照射時間の逆数が副準位間の分裂周波数に比べて非常に大きい場合、摂動ハミルトニアン \mathcal{H}_1 を、光パルスの間無視することができる。

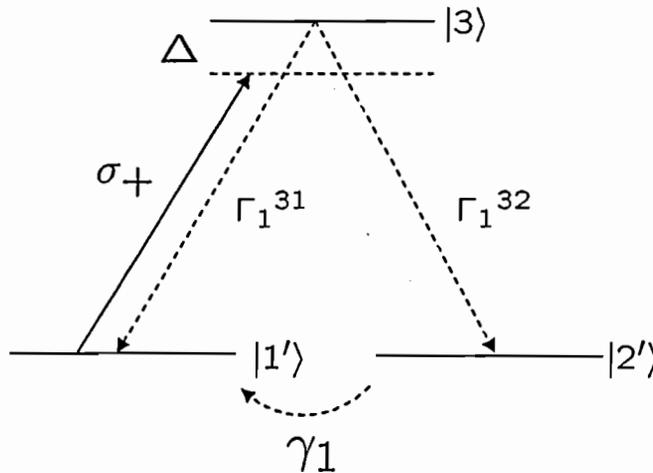


図 6.1: 三準位系

無摂動系において、円偏光のような特別な偏光をもつ光が $|1'\rangle$ と $|3\rangle$ の間の遷移のみを引き起こすとす。量子ビートで考えた時と同様、基底状態の二重縮退は、 \mathcal{H}_1 によって縮退が解かれ、図 5.1 (b) に示すように、二つの固有状態 $|1\rangle$ と $|2\rangle$ に

分裂する。これらの状態は、

$$(|1'\rangle, |2'\rangle) = (|1\rangle, |2\rangle)T \quad (6.1)$$

によって関係づけられる。ここで、

$$T = \begin{pmatrix} \cos \frac{\theta}{2} & -\sin \frac{\theta}{2} \\ \sin \frac{\theta}{2} & \cos \frac{\theta}{2} \end{pmatrix}. \quad (6.2)$$

である。よって、無摂動ハミルトニアン \mathcal{H}_0 に関する密度行列 ρ' と摂動ハミルトニアン $\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$ に関する密度行列 ρ は、 $\rho = T\rho'T^{-1}$ の関係によって関連付けられる。

基底状態のエネルギーがゼロならば、三準位系の原子のハミルトニアン \mathcal{H}_0 は、

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\omega_{31}|3\rangle\langle 3|, \quad (6.3)$$

で表現される。ここで、 $\hbar\omega_{31}$ は、基底状態と励起状態の間のエネルギー差を表している。原子と光の相互作用は、

$$\mathcal{H}_2 = \frac{\hbar\chi}{2}(|1'\rangle\langle 3| + |3\rangle\langle 1'|)(e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}), \quad (6.4)$$

として表現される。ここで、 χ は、光学的なラビ周波数で、 ω_L はレーザーの周波数である。回転波近似を使うことによって、全ハミルトニアン $\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_2$ は、回転系におけるハミルトニアン \mathcal{H}_r として書き直せる。

$$\mathcal{H}_r = \hbar\Delta|3\rangle\langle 3| + \frac{\hbar\chi}{2}(|1'\rangle\langle 3| + |3\rangle\langle 1'|), \quad (6.5)$$

ここで、 $\Delta = \omega_{31} - \omega_L$ は光学的遷移の共鳴周波数からのレーザー周波数の離調を示す。

系の運動方程式は、

$$\frac{d\rho'}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\mathcal{H}_r, \rho'] + \Gamma_1(\rho')_{diagonal} + \Gamma_2(\rho')_{off-diagonal} \quad (6.6)$$

として得られる。 ρ' は回転系での密度行列で、 Γ_1 は光学的なポピュレーションの減衰レート、 Γ_2 は、光学的な位相緩和レートである。これらの緩和に加えて、基底状態の副準位 $|1'\rangle$ と $|2'\rangle$ に関する副準位の減衰レート γ_1 と位相緩和レート γ_2 を

考慮すると、以下の微分方程式がえられる。

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}\rho'_{11} &= \frac{i\chi}{2}(\rho'_{13} - \rho'_{31}) + \gamma_1(\rho'_{11} - \rho'_{22}) + \Gamma_1^{31}\rho'_{33} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{12} &= -\frac{i\chi}{2}\rho'_{32} - \gamma_2\rho'_{12} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{13} &= \frac{i\chi}{2}(\rho'_{11} - \rho'_{33}) + (i\Delta - \Gamma_2)\rho'_{13} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{21} &= \frac{i\chi}{2}\rho'_{23} - \gamma_2\rho'_{21} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{22} &= -\gamma_1(\rho'_{11} - \rho'_{22}) + \Gamma_1^{32}\rho'_{33} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{23} &= \frac{i\chi}{2}\rho'_{21} + (i\Delta - \Gamma_2)\rho'_{23} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{31} &= -\frac{i\chi}{2}(\rho'_{11} - \rho'_{33}) + (-i\Delta - \Gamma_2)\rho'_{31} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{32} &= -\frac{i\chi}{2}\rho'_{12} + (-i\Delta - \Gamma_2)\rho'_{32} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{33} &= -\frac{i\chi}{2}(\rho'_{13} - \rho'_{31}) - \Gamma_1\rho'_{33},
 \end{aligned} \tag{6.7}$$

ここで、 $\Gamma_1 = \Gamma_1^{31} + \Gamma_1^{32}$ である。自由原子の場合は、 $\Gamma_2 = \Gamma_1/2$ によって、光学的な位相緩和レートが得られる。 Γ_1^{31} と Γ_1^{32} の間には、わずかな差があるが、簡単のために Γ_1^{31} と Γ_1^{32} が同じ値として、 $\Gamma_1^{31} = \Gamma_1^{32} = \Gamma_2$ とする。

ここで、パルス照射時間に比べて基底状態の緩和が非常に遅いとすると、 γ_1 と γ_2 の項を無視することができる。コヒーレンスを表す

$$x_{ij} = \rho_{ij} + \rho_{ji} \quad y_{ij} = i(\rho_{ij} - \rho_{ji}) \tag{6.8}$$

を導入すると、式(6.7)は、

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}\rho'_{11} &= -\frac{\chi}{2}y'_{13} + \Gamma_1{}^{31}\rho'_{33} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{22} &= \Gamma_1{}^{32}\rho'_{33} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{33} &= \frac{\chi}{2}y'_{13} - \Gamma_1\rho'_{33} \\
 \frac{d}{dt}x'_{12} &= -\frac{\chi}{2}y'_{23} \\
 \frac{d}{dt}y'_{12} &= \frac{\chi}{2}x'_{23} \\
 \frac{d}{dt}x'_{13} &= \Delta y'_{13} - \Gamma_2 x'_{12} \\
 \frac{d}{dt}y'_{13} &= -\Delta x'_{13} + \chi(\rho'_{11} - \rho'_{33}) - \Gamma_2 y'_{13} \\
 \frac{d}{dt}x'_{23} &= \frac{\chi}{2}y'_{12} + \Delta y'_{23} - \Gamma_2 x'_{23} \\
 \frac{d}{dt}y'_{23} &= \frac{\chi}{2}x'_{12} + \Delta x'_{23} - \Gamma_2 y'_{23}
 \end{aligned} \tag{6.9}$$

と書き換えられる。

十分励起が弱く励起状態のポピュレーション及び光学コヒーレンスが小さいという仮定の下では、

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}x'_{23} = 0 &= \frac{\chi}{2}y'_{12} + \Delta y'_{23} - \Gamma_2 x'_{23} \\
 \frac{d}{dt}y'_{23} = 0 &= \frac{\chi}{2}x'_{12} + \Delta x'_{23} - \Gamma_2 y'_{23}
 \end{aligned} \tag{6.10}$$

となり、準定常的な光学的なコヒーレンス

$$\begin{aligned}
 x'_{23\infty} &= \chi \frac{\Delta x'_{12} + \Gamma_2 y'_{12}}{2(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \\
 y'_{23\infty} &= \chi \frac{\Gamma_2 x'_{12} + \Delta y'_{12}}{2(\Delta^2 + \Gamma_2^2)}
 \end{aligned} \tag{6.11}$$

が得られ、光学的なコヒーレンスを基底状態のコヒーレンスのみで記述できるようになる。この準定常解を用いると、基底状態のコヒーレンスの時間発展は、

$$\frac{d}{dt}x'_{12} = -\gamma x'_{12} + \delta y'_{12} \quad \frac{d}{dt}y'_{12} = -\delta x'_{12} - \gamma y'_{12} \tag{6.12}$$

として得られる。ここで、

$$\delta = \Delta \frac{\chi^2}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \quad \gamma = \Gamma_2 \frac{\chi^2}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \tag{6.13}$$

である。

式(6.12)の微分方程式を解くと、一般解は、

$$x_{12} = A \cos(\delta t - \phi) e^{-\gamma t} \quad y_{12} = A \sin(\delta t - \phi) e^{-\gamma t} \quad (6.14)$$

として得られる。ここで、 A と ϕ は初期条件によって決定される振幅と位相である。 δ はライトシフトを表し、 γ は光による減衰を表す。ライトシフトは光の場によって引き起こされる歳差運動の角周波数に対応する。図6.2に示すようにライトシフト δ は離調に対して分散型の依存性を持ち、減衰効果 γ は、吸収型の依存性を持つ。

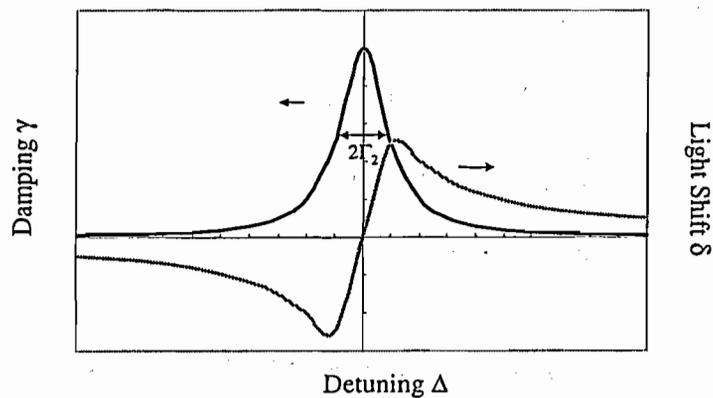


図 6.2: 離調周波数に対するライトシフト δ と光による減衰 γ の振る舞い。

6.2 純光学的制御の実験

ライトシフトの効果による仮想的な磁場を用いて光誘起磁化の任意軸周りの回転と歳差運動の位相制御を純光学的に行った。その実験配置図を図 6.3 に示す。両実験とも、生成光の光ポンピングにより光誘起磁化を生成し、生成された光誘起磁化を制御光がつくるライトシフトによる仮想的な磁場によって制御し、それらの様子を検出光によって観測する。それぞれの光の入射タイミングは図 6.4 に示すとおりである。

実験には、直線偏光の半導体レーザーとチタンサファイアレーザーの 2 台を用いた。半導体レーザーの発振周波数は、MCD が比較的大きい ^{87}Rb ($F=2 \rightarrow F'=1$) の遷移に固定した。チタンサファイアレーザーの発振周波数を掃引することによって ^{87}Rb ($F=2 \rightarrow F'=1$) の遷移からの離調の大きさを変えることができる。

半導体レーザーから出た光をビームスプリッターで 2 本にわけ、それぞれ生成光と検出光として使い、チタンサファイアレーザーから出た光を制御光として用いる。生成光と制御光は、音響光学変調器 (Acousto-Optic Modulator; AOM) によって任意のパルス幅のパルスに切り出された後、 $\lambda/4$ 板を通して円偏光にされてからサンプルに入射される。

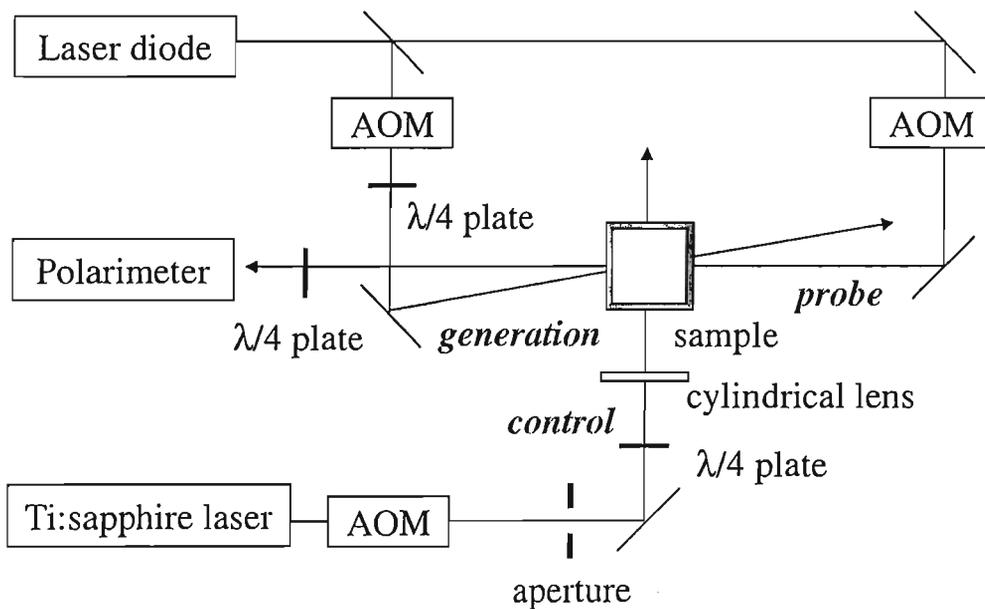


図 6.3: 光誘起磁化の純光学的制御の実験配置図。

AOM は、rf が印加されている時に図 6.5 に示すような回折光を発生する。この効果を用いて印加する rf をパルス化することによって、CW 発振のレーザーからパルスを切り出している。実験に用いるパルスは、AOM による +1 次の回折光を用

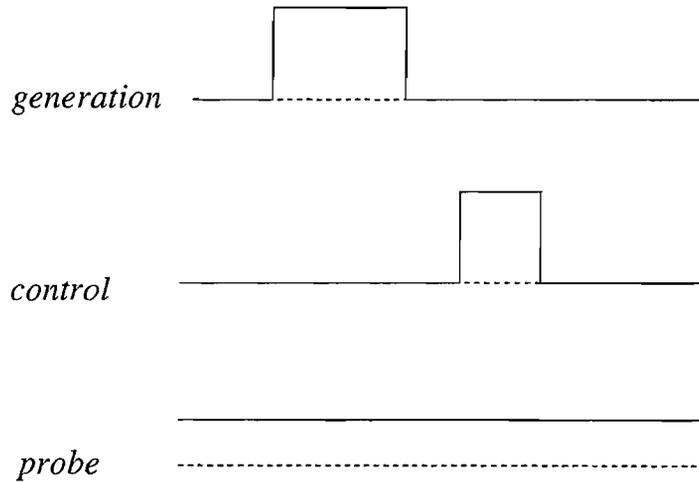


図 6.4: 光誘起磁化の純光学的制御の実験における光パルスの制御タイミング。

いており、+1 次の回折光は図 6.5 に示すような周波数シフトを引き起こす。本研究で用いた AOM の場合は 80 MHz のシフトを引き起こす。本研究では、検出光にも AOM の回折光を用いて、生成光と検出光による周波数のズレを無くした。

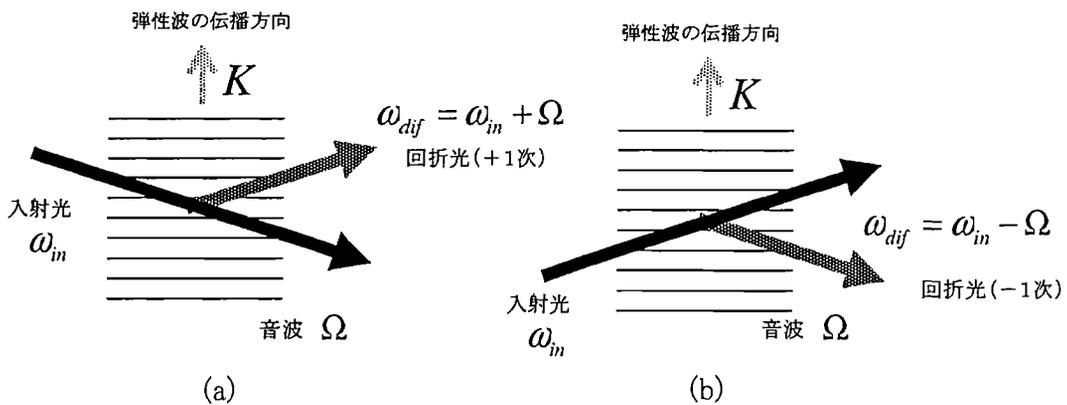


図 6.5: 音響光学変調器 (Acousto-Optic Modulator; AOM) による回折の原理図。

本研究で制御、観測しているのは、個々のスピン(磁気モーメント)ではなく、検出光の中にある個々の原子の磁気モーメントを足し合わせた巨視的な磁化である。レーザー光はガウス型の不均一な光強度の空間分布を持っている。ライトシフトの効果は、光の強度に依存するので、光制御にレーザーを用いると仮想的な磁場の強さも不均一な空間分布を持ってしまう。このため、制御光の中で、磁気モーメントの回転にバラつきが出ることになりコヒーレンスを壊す結果を招いてしま

う。断熱的な純光学的制御を行うためには、光強度の空間的分布が均一である必要がある。本研究では、制御光のビーム径をレンズによって2 cm程度に広げてからアパチャーによって周りを削り、 ~ 1 cmのビーム径にして、不均一な効果を極力抑えた。

生成光と検出光は、 $\sim 0.5^\circ$ の角度で交わっており、そのビーム径は ~ 1 mm程度なので、二つのビームはほぼ同軸、かつ1 cmセルの中で十分重なっていると考えられる。制御光が、生成された光誘起磁化の一部分だけに照射される状態であると、制御光の影響を受けない部分ができる。このため、垂直方向から入射する制御光は、サンプル直前のシリンドリカルレンズによって生成光と検出光の重なりをすべて照射できる $1 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ のビーム径に絞った。

光誘起磁化の任意軸周りの実験と歳差運動の位相制御の実験は、サンプル位置の磁場環境を変えることによって切り替えることができる。それぞれの実験におけるサンプル位置での実験概念図を図6.6に示す。

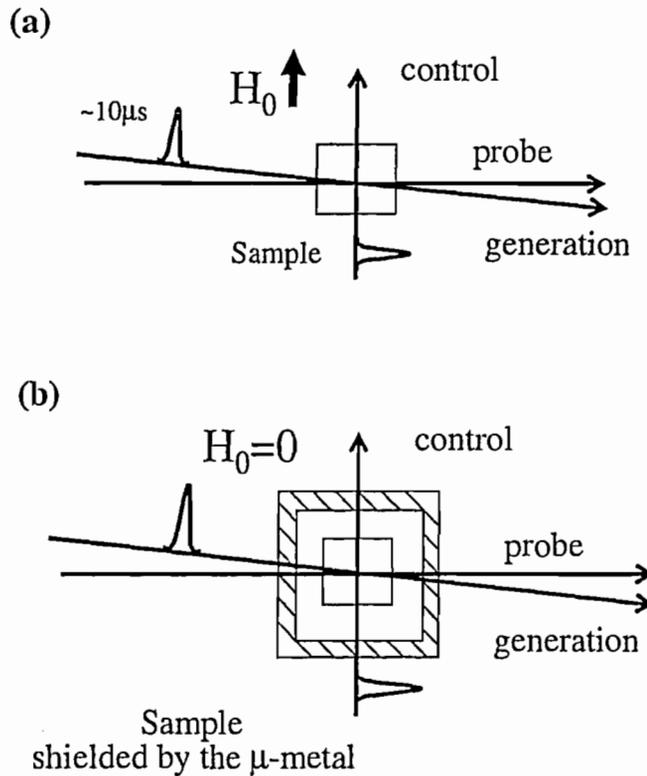


図 6.6: (a) 光誘起磁化の歳差運動の位相制御の実験概念図。(b) 光誘起磁化の任意軸周りの回転の実験概念図。

光誘起磁化の歳差運動の位相制御の実験は、図 6.6 (a) のように生成光と検出光に対して垂直に磁場 H_0 が印加され、磁場と同じ方向に制御光が入射される。磁

場 H_0 は、ヘルムホルツコイルによって作られておりサンプル位置では均一磁場である。

一方、光誘起磁化の任意軸周りの回転の実験でも、図 6.6 (b) のように、生成光と検出光に対して垂直に制御光を入射した。この実験では、サンプルは μ -metal の中に置かれ磁気遮蔽される。残留磁場が残るようであれば、周りの磁場環境を微調してサンプル位置でゼロ磁場になっている。ゼロ磁場が実現できているかどうかのチェックは、検出光の方向以外にも、ポンプ・プローブ法を行って FID 信号を検出し、FID の信号が振動を起こさないことを調べることによって行った。

6.3 純光学的制御の実験結果

6.3.1 歳差運動の位相制御

光誘起磁化の歳差運動の位相制御の実験結果を図6.7と図6.8に示す. これらの信号は, 生成光によって生成された光誘起磁化が外部磁場の周りを歳差運動している状態に, 制御光パルスを外磁場と同方向に入射し, 制御光パルスの仮想的な磁場の効果によって歳差運動の周波数を制御し, 歳差運動の位相をずらす実験である. 両結果とも, σ_+ の制御光パルスが入射されている間, 光誘起磁化の歳差運動の速さが速まり, σ_- が入射されている間には, 光誘起磁化の歳差運動の速さが遅くなっていることがわかる.

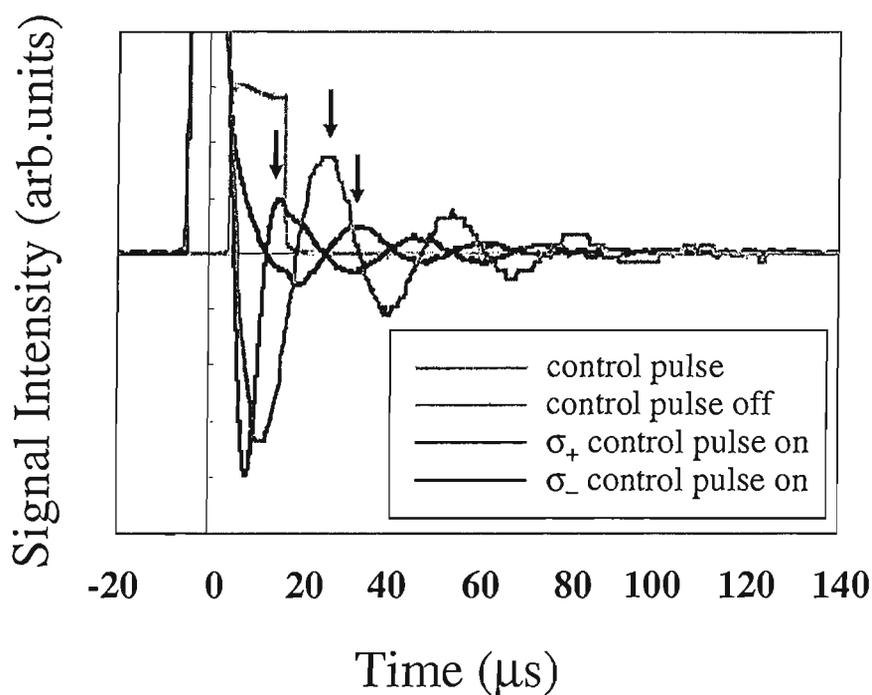
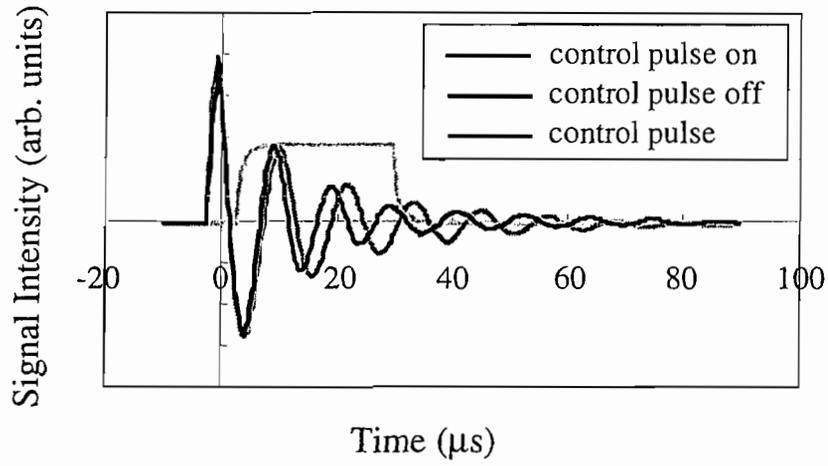
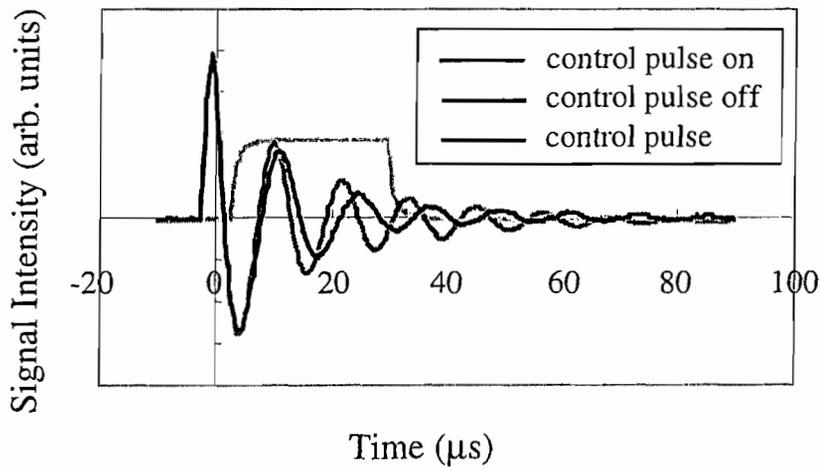


図 6.7: 光誘起磁化の歳差運動の位相制御の実験結果. 離調は, -2.43 GHz.

(a) σ_+ control(b) σ_- control図 6.8: 光誘起磁化の歳差運動の位相制御の実験結果. 離調周波数は, -6.5 GHz .

6.3.2 任意軸周りの回転

図 6.9 に、典型的な光誘起磁化の任意軸周りの回転の実験結果を示す。図から、制御光が入射されている間、光誘起磁化の信号が振動していることがわかる。制御光を切っている時の信号は、生成光の入射方向に生成された光誘起磁化が、そのままの方向を保ちながら、拡散によって減衰していく信号であり、制御光が入射されている時の信号は、制御光を入射している間、制御光の周りを生成された光誘起磁化が歳差運動している信号である。

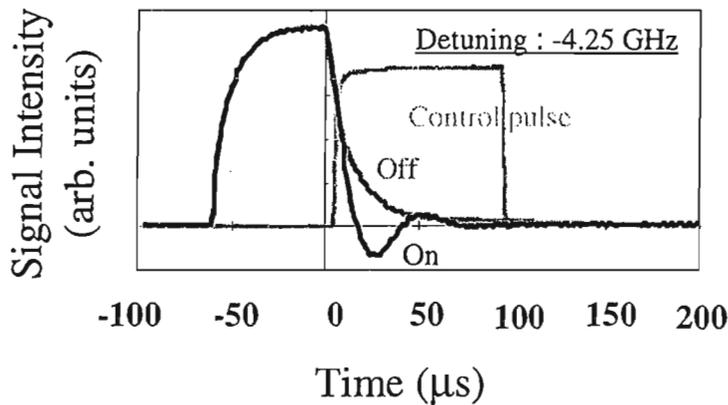


図 6.9: 典型的な光誘起磁化の任意軸周りの回転の実験結果。

図 6.10 は、光周波数を -3.5 GHz 離調させた制御光パルスの入射タイミング依存性の実験結果である。制御光の光強度とパルス幅が一定の条件で、入射する時間をずらして測定を行った。光誘起磁化は、制御光パルスを入射した瞬間から変化し始め、制御光パルスを入射している間中変化し、入射パルスが切れると光誘起磁化の変化が止まることがわかる。また、十分熱平衡状態に達し、コヒーレンスが存在しない状態では、制御光パルスを入射しても変化は起こらない。

図 6.11 は、光周波数を -3.5 GHz 離調させた制御パルスのパルス幅依存性の実験結果である。制御光の光強度と入射タイミングは一定で、パルス幅を、 $2, 7, 10, 22, 33 \mu\text{s}$ と変化させて測定を行った。測定結果から、制御光パルスのパルスが入射している間、光誘起磁化を変化させていることがわかる。

ゼロ磁場中での光誘起磁化における制御光パルスの σ_+ と σ_- 偏光の効果の効果を図 6.12 に示す。ゼロ磁場中では、 σ_+ と σ_- の偏光によって信号にあまり違いはない。わずかなズレは、 $\lambda/4$ 板の精度による円偏光の乱れによるものと考えられる。制御光パルスの光周波数が原子の共鳴周波数から離調されている時は、図 6.12 (a) のように、制御光パルスが入射されている間に 0 点をよぎる光誘起磁化が歳差

運動する振る舞いをする。しかし、離調周波数が小さい場合は、図 6.12 (b) に示すような、光による減衰効果によって激しい減衰が引き起こされ光誘起磁化が制御光パルスの方向の周りを歳差運動する振る舞いは起こさない。

光誘起磁化の任意軸周りの回転の離調周波数依存性を図 6.13 と図 6.14, 図 6.15 に示す。図 6.13 (a) と図 6.14 (a), 図 6.15 (a) は、時間領域での測定結果である。制御光 ON の時の信号は、 $[A \exp(-\gamma_1 t) + B \exp(-\gamma_2 t)] \cos(\omega t) \exp(-\gamma t)$ によってフィッティングすることができる。ここで、 $[A \exp(-\gamma_1 t) + B \exp(-\gamma_2 t)]$ の部分は制御光 OFF の時の FID であり、 $\cos(\omega t) \exp(-\gamma t)$ の部分は、制御光パルスの効果を表す。よって、制御光 ON の時をフィッティングしたものを制御光 OFF の時をフィッティングしたもので割ることによって、光誘起磁化に対する制御光パルスの効果のみを抜き出すことができる。制御光パルスの効果のみを抜き出したものをフーリエ変換したものを図 6.13 (b) と図 6.14 (b), 図 6.15 (b) に示す。制御光パルスの効果をフーリエ変換して得られたフーリエスペクトルの中心周波数を歳差運動周波数として離調周波数に対してプロットしたものを図 6.16 に示す。制御光パルスによる仮想的磁場の効果は、吸収線付近では 0 kHz であり、吸収線の両側で最大値をとり、そこから離調周波数の絶対値が大きくなるにつれて小さくなっていく。

光誘起磁化の任意軸周りの回転の振る舞いは、離調周波数が原子の共鳴線付近の場合は、光による減衰効果が非常に大きく、光誘起磁化の制御光パルスによる歳差運動が検出できない。共鳴励起の場合は、光強度が変化しても、光誘起磁化の歳差運動周波数は、0 kHz のままで、変化しない。離調周波数の絶対値が大きくなるにつれて、光による減衰効果が小さくなっていく。これは、図 6.13 (b) と図 6.14 (b) において、離調周波数が小さい時には広がってスペクトル強度が小さかったフーリエスペクトルが、離調周波数が増加していくごとにスペクトル強度が大きくなり、またその形がシャープになっていくことから読み取れる。最終的に、離調周波数の絶対値が非常に大きい部分では、フーリエスペクトルの形はあまり変わらない状態になっていることがわかる。

図 6.17 に、-1, -2, -3, -4, -5 GHz におけるライトシフトの効果によって引き起こされる光誘起磁化の歳差運動周波数の光強度依存性を示す。ライトシフトの効果によって引き起こされる光誘起磁化の歳差運動周波数は光強度に比例することがわかる。

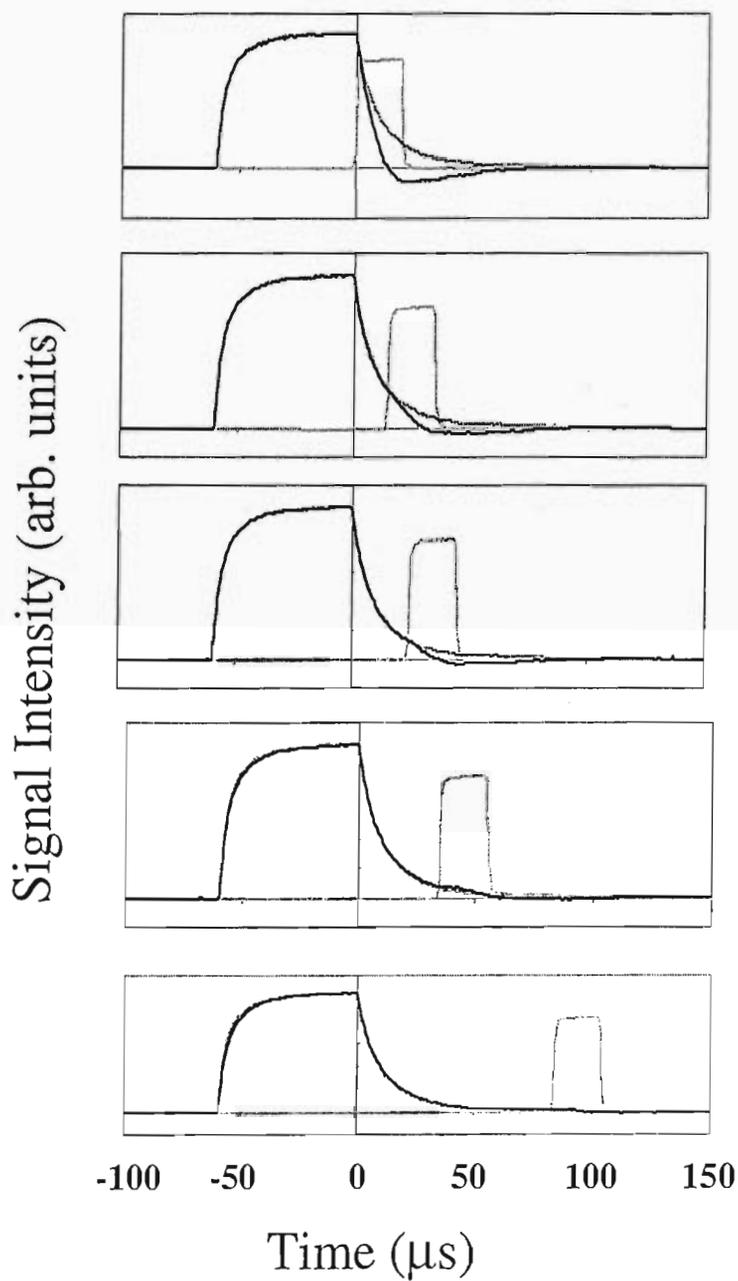


図 6.10: 制御光パルスの入射タイミング依存性. $\Delta/2\pi = -3.5 \text{ GHz}$.

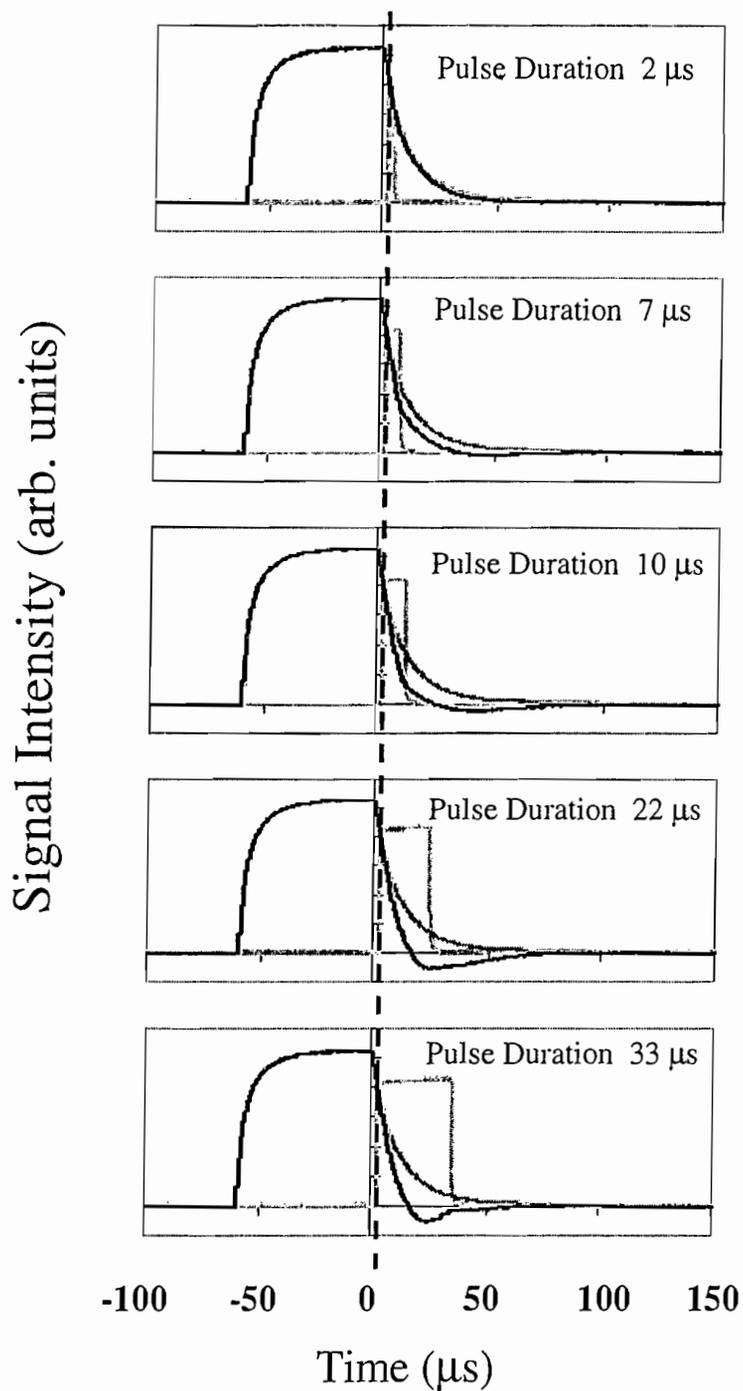
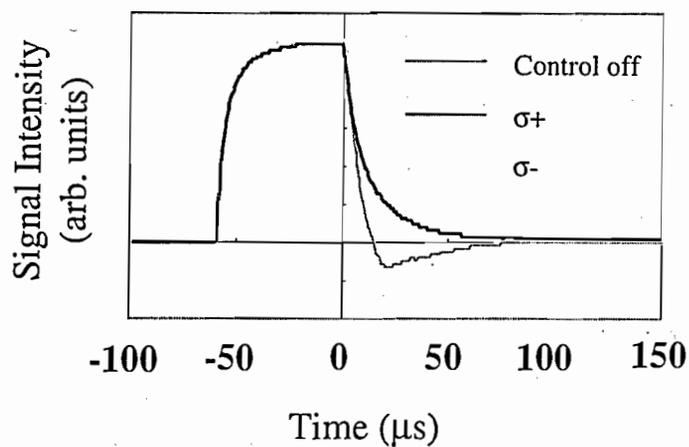


図 6.11: 制御光パルスのパルス幅依存性. $\Delta/2\pi = -3.5 \text{ GHz}$.

(a) Detuning -3.5 GHz



(b) Detuning 0 GHz

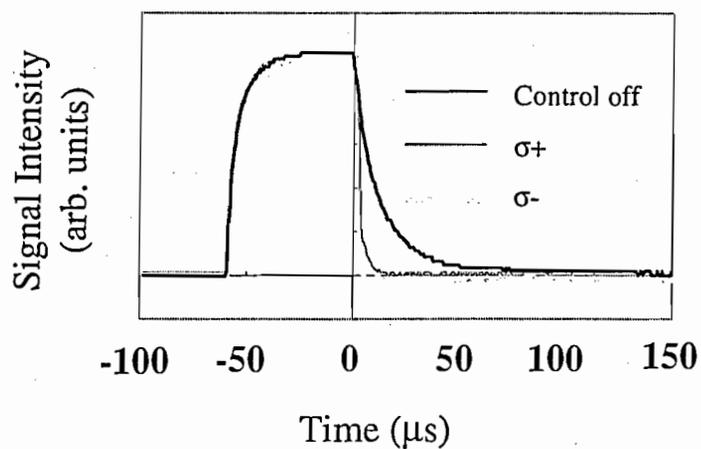


図 6.12: ゼロ磁場中での光誘起磁化における制御光パルスの σ_+ と σ_- 偏光の効果.
(a) 離調周波数 -3.5 GHz. (b) 離調周波数 0 GHz.

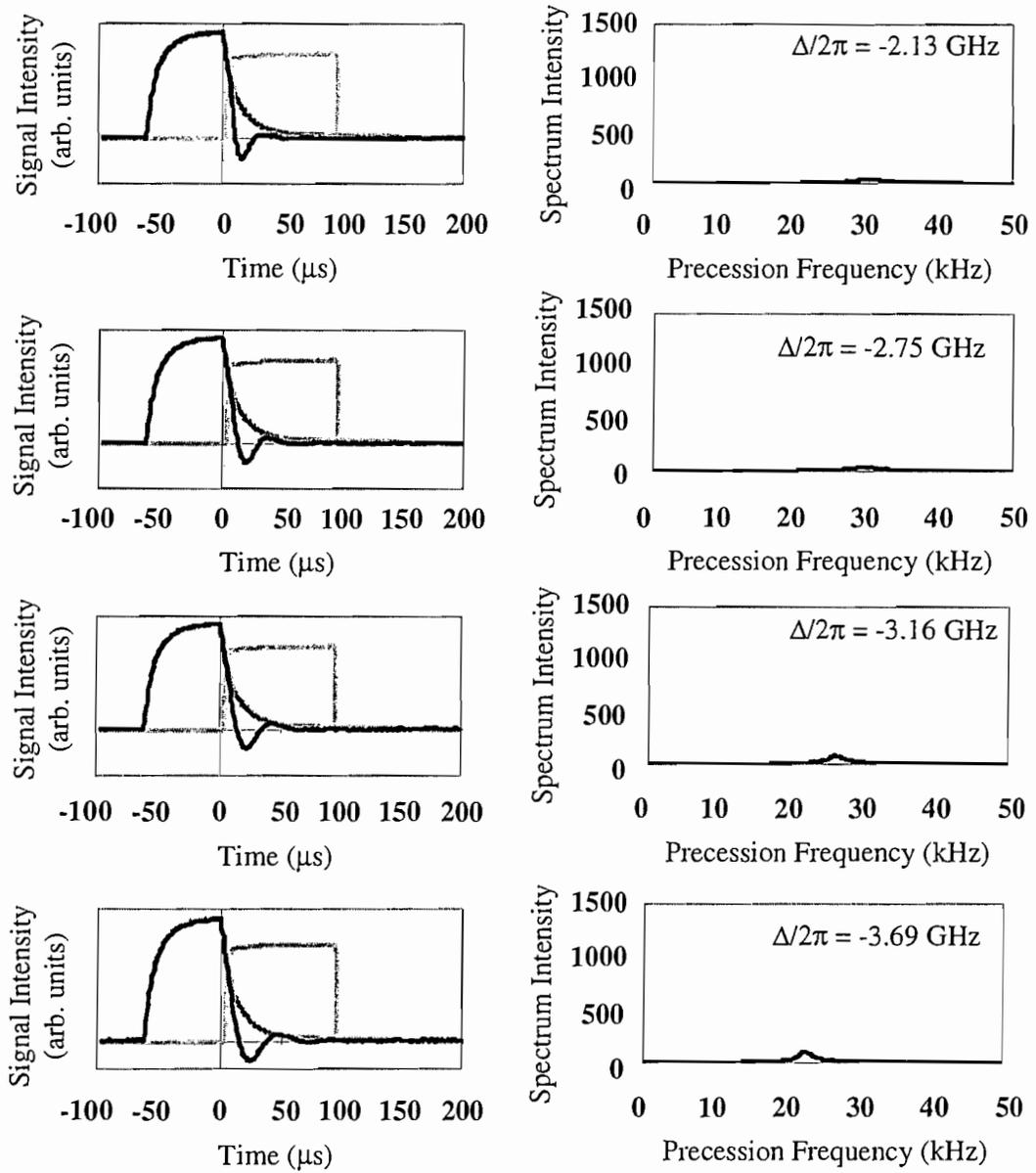


図 6.13: (a) 光誘起磁化の任意軸周りの回転の実験結果. (b) フーリエ変換. 離調は, $\Delta/2\pi = -2.13, -2.75, -3.16, -3.69$ GHz.

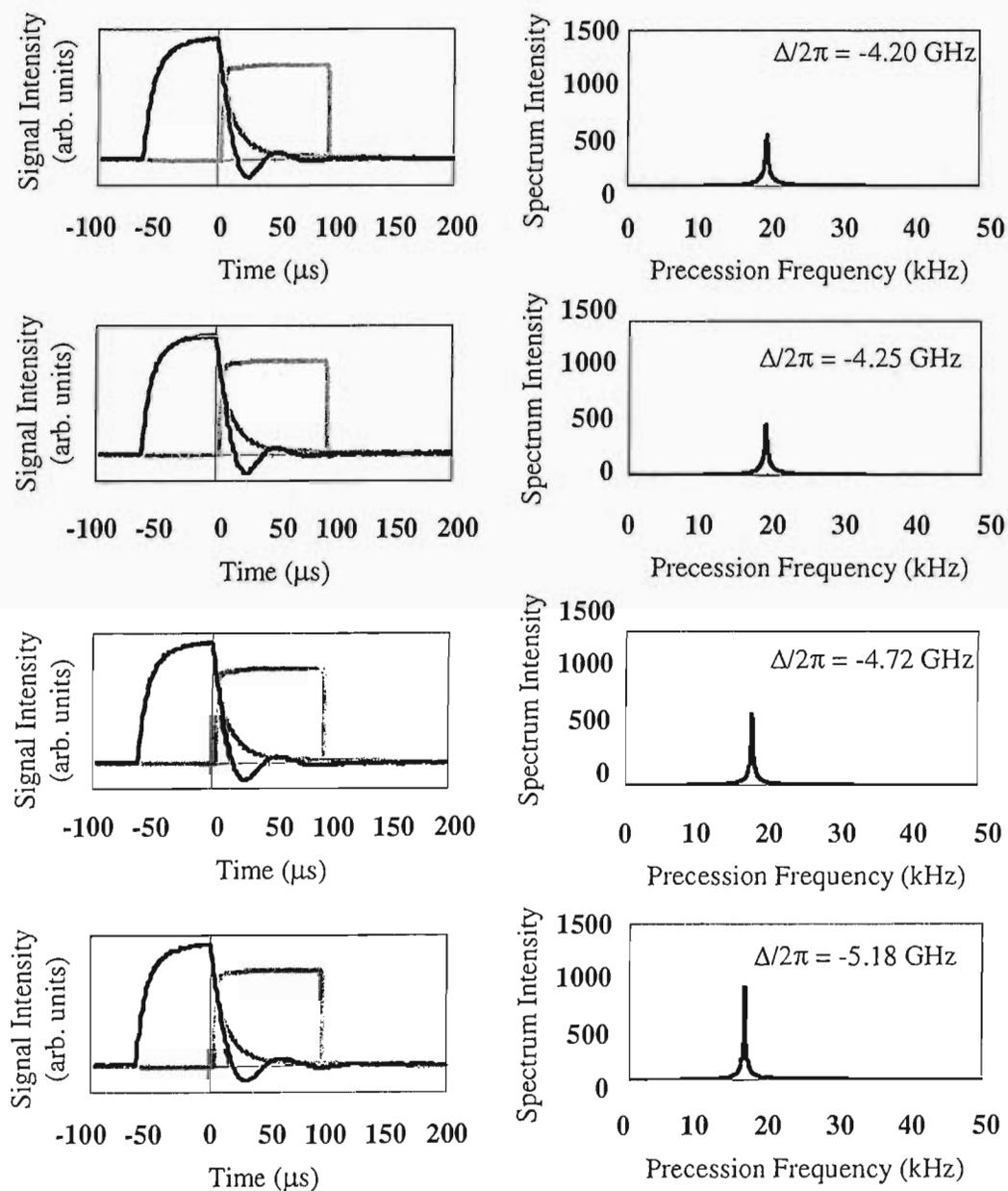


図 6.14: (a) 光誘起磁化の任意軸周りの回転の実験結果. (b) フーリエ変換. 離調は, $\Delta/2\pi = -4.20, -4.25, -4.72, -5.18$ GHz.

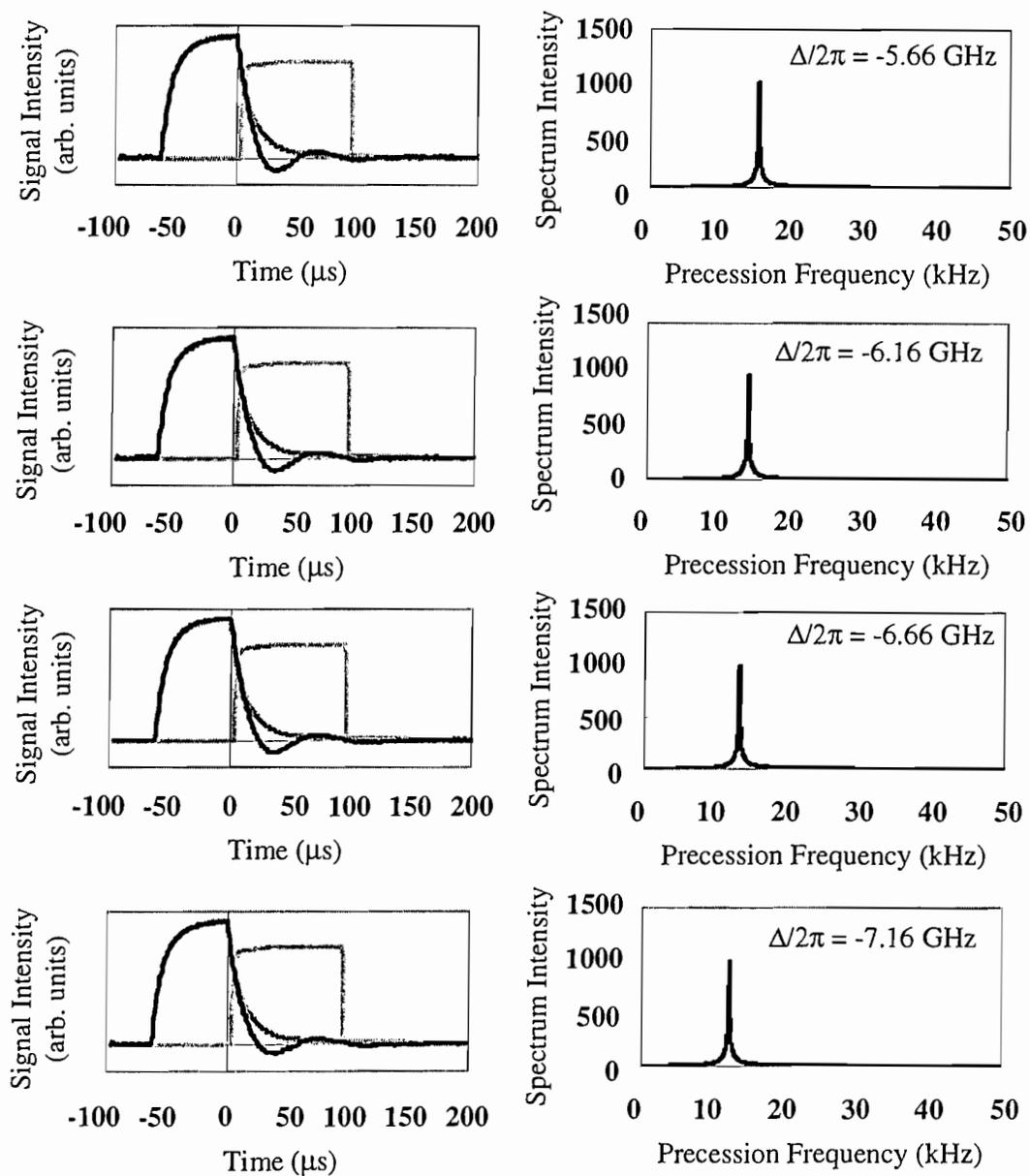


図 6.15: (a) 光誘起磁化の任意軸周りの回転の実験結果. (b) フーリエ変換. 離調は, $\Delta/2\pi = -5.66, -6.16, -6.66, -7.16$ GHz.

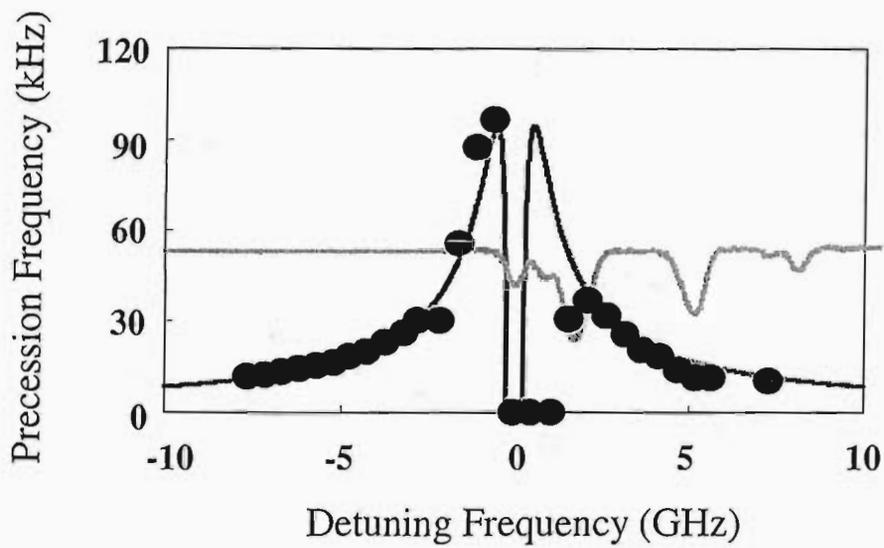


図 6.16: ライトシフトの効果によって引き起こされる光誘起磁化の歳差運動周波数の離調周波数依存性.

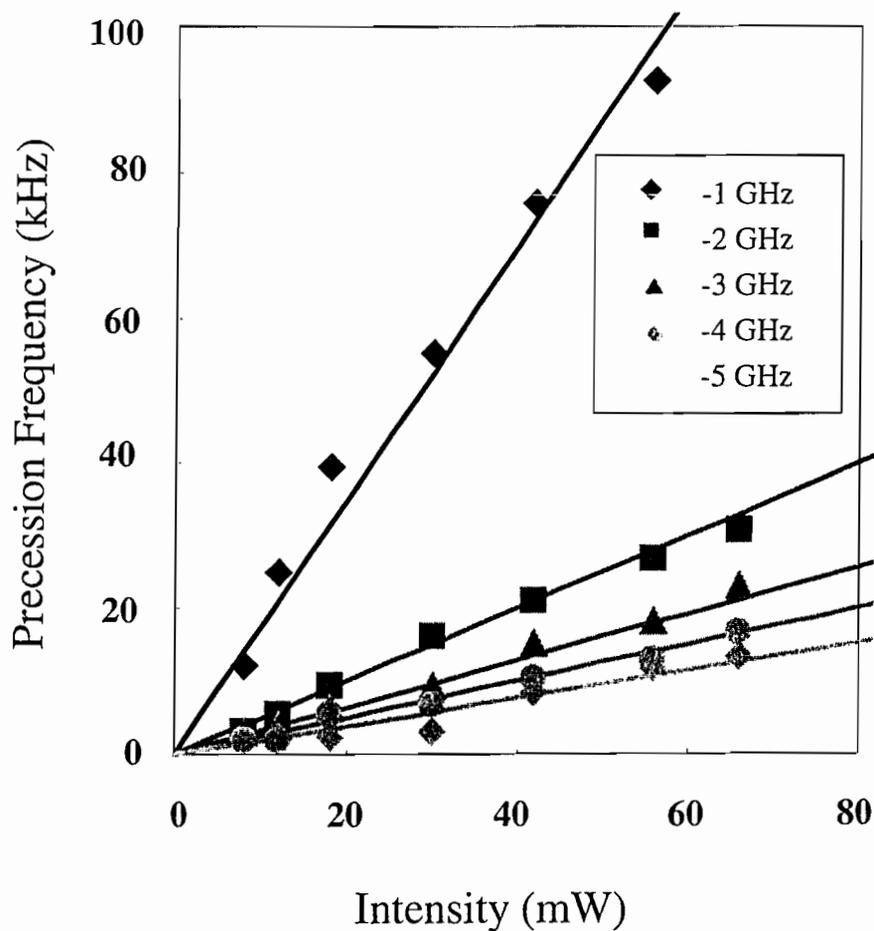


図 6.17: 離調周波数 -1, -2, -3, -4, -5 GHz におけるライトシフトの効果によって引き起こされる光誘起磁化の歳差運動周波数の光強度依存性.

6.4 純光学的制御の実験の考察

光誘起磁化の純光学的制御において、多少の修正は必要であるが、光誘起磁化の制御光パルスによる制御は式(6.14)によってよく説明することができる。式(6.14)によると、ライトシフトの効果によって引き起こされるエネルギー準位のシフトと光による減衰効果は同時に起こることがわかる。その振る舞いは、吸収線付近では、光による減衰効果が支配的であり、十分に離調周波数をとったところではライトシフトの効果が支配的であり、その間の状態は、両方の効果の兼ね合いによって決まる。以下、光誘起磁化の純光学的制御に関する実験の考察をしていくが、これらの振る舞いによる効果は随所で見受けられる。

6.4.1 歳差運動の位相制御

図6.7と図6.8の光誘起磁化の歳差運動の位相制御の実験において、光誘起磁化の歳差運動の速さが、 σ_+ の制御光パルスが入射されている時には早くなり、 σ_- の制御光パルスが入射されている時には遅くなることは、図6.18に示すような簡単なエネルギー準位のモデルで説明することができる。図6.18の(a), (b)共に、外部磁場が印加されているため、励起状態と基底状態の縮退が解けているとする。この状態に、 σ_+ の制御光パルスが入射される場合、 σ_+ の光が選択則を満たす準位のみがライトシフトを引き起こすため、図6.18(a)のように基底状態と励起状態の副準位間隔が広がり、歳差運動の速さが速くなることわかる。 σ_+ の制御光パルスが入射される場合も同様に、選択則を満たす準位のみがシフトし、結果、副準位間隔が狭まり、歳差運動の速さが遅くなる。

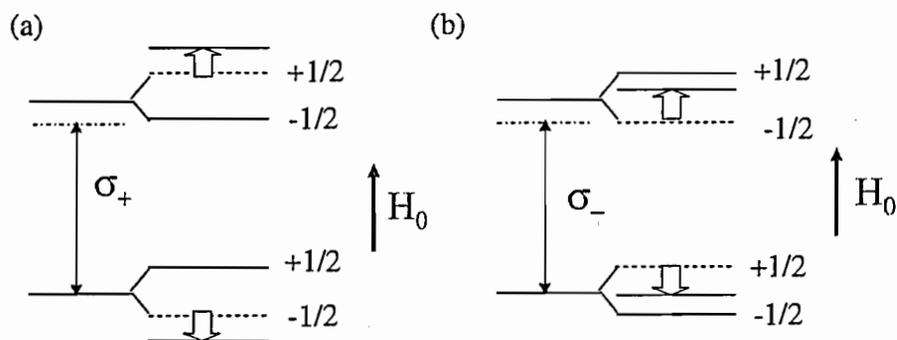


図 6.18: 磁場中での円偏光励起に対するエネルギー準位のライトシフト効果. (a) σ_+ 円偏光の時. (b) σ_- 円偏光の時.

図6.7と図6.8の比較から、離調周波数が、あまり大きくない場合は、図6.7のように、ライトシフトの効果が大きく素早く光誘起磁化の歳差運動の位相をずら

すことができるが、光による減衰効果によって光誘起磁化が減衰してしまう。一方、図 6.8 の (a) と (b) のように、大きく離調周波数をとった場合は、光による減衰効果が小さく光誘起磁化の減衰が顕著には表れないが、仮想的な磁場の強さが弱くなるため、位相をずらすのに時間がかかることになる。

6.4.2 任意軸周りの回転

図 6.9 に示した典型的な光誘起磁化の任意軸周りの回転に関する信号は、ライトシフトによる仮想的な磁場の効果が光の吸収による減衰効果より支配的であり、ある方向に生成した光誘起磁化が磁化に対して垂直に入射された制御光の周りを回転し、反転したあと、また元の場所に戻ってきている信号である。そのことは、図 6.9 の $20 \mu\text{s}$ 付近の振動の谷の部分に制御光 off の FID と同じ振幅だけ負の向きに行っておりそこからさらに制御光 off の FID と同じ場所に戻ってきていることから推測される。

図 6.12 (a) に示すように、光誘起磁化の制御光周りの回転の実験において信号には、制御光パルスの σ_+ と σ_- による違いはない。このことは、位相制御の実験と同様、図 6.19 に示すような簡単なエネルギー準位を用いて説明することができる。図 6.19(a),(b) 共に、ゼロ磁場中なので、励起状態と基底状態は縮退しているが、 σ_+ と σ_- の制御光パルスが入射されると選択則を満たす準位のみがシフトする。シフト量は、どちらの偏光でも変わらないので、光誘起磁化は同じ周波数で制御光の周りを歳差運動することになる。ただし、図から推測できるように、回転の方向は、逆であると考えられる。図 6.12 (b) のように、離調周波数が 0 GHz の時に、光誘起磁化が歳差運動しないのは、光による減衰効果によるものである。

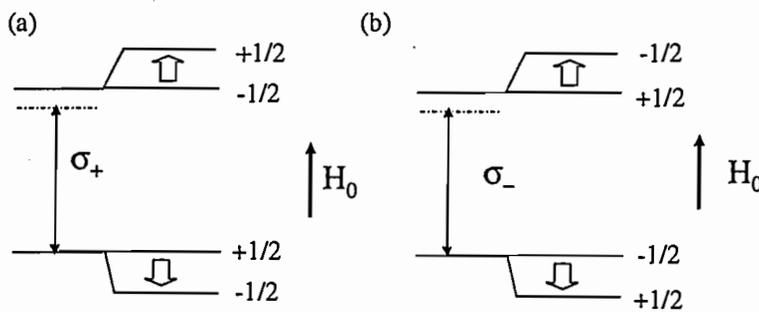


図 6.19: ゼロ磁場中での円偏光励起に対するエネルギー準位のライトシフト効果。(a) σ_+ 円偏光の時。(b) σ_- 円偏光の時。

図 6.10 と図 6.11 に示した制御光パルスの入射タイミング依存性とパルス幅依存性から、制御光パルスが入射されている間、光誘起磁化を駆動することができる

ことがわかる。これは、位相制御の実験において位相を変化させることができるのが制御光パルスが入射している間であったこと同様である。任意軸周りの回転の実験は、外部磁化の方向と生成光、検出光、制御光のビーム方向に敏感であり、軸が著しく傾いている場合などには、磁化が反転している信号が出るにも関わらず、反転していなかったり、制御光 off の信号より大きく磁化信号が回復したりする信号がとれてしまう。

図 6.13 と図 6.14, 図 6.15 に示した制御光パルスによる光誘起磁化の時間発展と、その制御光パルスの効果のみをフーリエ変換した結果から、吸収の効果とライトシフトの効果の兼ね合いを定性的に説明できる。共鳴線付近では、吸収の効果が大きく光誘起磁化を潰す効果が強いので、素早い減衰を伴う。離調を増やしていくと、吸収の効果が少なくなり、ライトシフトの効果が顕著に現れ、光誘起磁化が制御光の周りを回転する様子が観測できるようになってくる。吸収の効果は、パルス照射時間で無視できるようになってくると、光誘起磁化を制御光の周りに反転させてから、吸収の効果でつぶされることなく元の状態に戻すことが可能であることが示された。

図 6.16 は、横軸に離調周波数、縦軸に図 6.13 と図 6.14, 図 6.15 のフーリエスペクトルの中心周波数をプロットしたものである。ここで、中心周波数は光誘起磁化の制御光周りの回転の中心周波数に相当する。光誘起磁化の歳差運動の周波数を ^{87}Rb の低磁場に対する磁気副準位のシフト 0.7 MHz/Oe で割ることによってライトシフトによる仮想的な磁場の有効的な磁場の強さを求めることができる。

周波数に対するライトシフト効果は、式 (6.13) の δ で得られる。本実験で行った検出法では、図 6.12 (a) のように σ_+ と σ_- 円偏光でに対して同じ形になるので、 δ をゼロ点で折り返した形で図 6.16 の光誘起磁化の歳差運動の離調周波数依存性をフィッティングすることができる。しかし、このフィッティング法では、吸収による減衰効果が無視され吸収付近で理論曲線からずれることが考えられる。そこで、吸収による減衰効果を考慮し、以下の方法でフィッティングを行った。

図 6.1 のモデルを考えると、密度行列の運動方程式は式 (6.7) のように得られた。光学的な緩和レート Γ_1 と Γ_2 は、 χ, γ_1, γ_2 に比べてはるかに大きいので、励起状態と光学的なコヒーレンスに関する密度行列の光学的要素の準定常状態が、光パルスの入射後すぐ達せられることになる。このため、式 (6.7) で得られる方程式の 5 つが定常状態の条件、

$$\frac{d}{dt}\rho'_{13} = \frac{d}{dt}\rho'_{23} = \frac{d}{dt}\rho'_{31} = \frac{d}{dt}\rho'_{32} = \frac{d}{dt}\rho'_{33} = 0. \quad (6.15)$$

を満たす. 式(6.7)のセットの中のこの条件に関係する式から,

$$\begin{aligned}
 \rho'_{13} &= -\frac{2(\Delta\chi - i\chi\Gamma_2)}{4\Delta^2 + \chi^2 + 4\Gamma_2^2}\rho'_{11} \\
 \rho'_{31} &= -\frac{2(\Delta\chi + i\chi\Gamma_2)}{4\Delta^2 + \chi^2 + 4\Gamma_2^2}\rho'_{11} \\
 \rho'_{23} &= -\frac{\chi}{2(\Delta + i\Gamma_2)}\rho'_{21} \\
 \rho'_{32} &= -\frac{\chi}{2(\Delta - i\Gamma_2)}\rho'_{12} \\
 \rho'_{33} &= -\frac{\chi^2}{4\Delta^2 + \chi^2 + 4\Gamma_2^2}\rho'_{11}, \tag{6.16}
 \end{aligned}$$

が得られる. ここで, 制御光パルスの照射時間に比べてはるかに遅い現象である γ_1 と γ_2 , そして, 制御パルスの中の副準位コヒーレンスの時間発展を無視した.

式(6.16)を式(6.7)の残りのセットに使うことによって, 式(6.7)の残りのセットから密度行列の光学的な要素を除去することができる. このような手順は, Adiabatic elimination of optical coherence (光学的なコヒーレンスの断熱的な除去) と呼ばれる [43]. 光学的な要素が除去された式は,

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}\rho'_{11} &= -\frac{\chi^2\Gamma_2}{4\Delta^2 + \chi^2 + 4\Gamma_2^2}\rho'_{11} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{12} &= \frac{i\chi^2}{4(\Delta - i\Gamma_2)}\rho'_{12} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{21} &= -\frac{i\chi^2}{4(\Delta + i\Gamma_2)}\rho'_{21} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{22} &= \frac{\chi^2\Gamma_2}{4\Delta^2 + \chi^2 + 4\Gamma_2^2}\rho'_{11}. \tag{6.17}
 \end{aligned}$$

のような, 基底状態のポピュレーションと副準位コヒーレンスのみに関する微分方程式になる.

パルス照射前の密度行列は,

$$\rho_0 = \begin{pmatrix} 1 - \eta & 0 \\ 0 & \eta \end{pmatrix} \tag{6.18}$$

であるとする. 光誘起磁化の信号 $S(t)$ は, ポピュレーション $\rho_{11} - \rho_{22}$ によって得られる. 制御光の方向が生成光の方向に対して垂直であるときは, 式(6.2)の θ は $\pi/2$ となる. これらの条件を用いると, 式(6.17)から結果として,

$$S(t) \propto (1 - 2\eta) \exp\left\{-\frac{\chi^2\Gamma_2 t}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)}\right\} \cos\left\{\frac{\chi^2\Delta t}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)}\right\} \tag{6.19}$$

となり, 比例定数 A を用いて

$$S(t) = A \cos(\delta t) \exp(-\gamma t) \tag{6.20}$$

として表現される。ここで、 δ と γ は、式(6.13)で定義した、

$$\delta = \Delta \frac{\chi^2}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \quad \gamma = \Gamma_2 \frac{\chi^2}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \quad (6.21)$$

である。よってライトシフトの効果は、制御光が垂直に入射された場合でも引き起こされることがわかる。 δ は、光誘起磁化が制御光によって制御光の周りを歳差運動する周波数に相当する。

式(6.2)を用いて、任意軸周りの回転の実験をよく説明することができる。 $S(t)$ のフーリエ変換は、

$$S(\omega) = \frac{A}{2} \left(\frac{1}{i(\omega + \delta) + \gamma} + \frac{1}{i(\omega - \delta) + \gamma} \right), \quad (6.22)$$

として得られる。 $S(\omega)$ もしくは、スピンの歳差運動のスペクトル密度は、

$$|S(\omega)| = \sqrt{\frac{A^2(\gamma^2 + \omega^2)}{(\gamma^2 + \delta^2 - 2\delta\omega + \omega^2)(\gamma^2 + \delta^2 + 2\delta\omega + \omega^2)}}. \quad (6.23)$$

と表現される。

フーリエスペクトルのピーク値 ω は、微分方程式 $d|S(\omega)|/d\omega = 0$ によって得られ、5つの解

$$\omega = 0, \quad \pm\sqrt{-\gamma^2 - \delta\sqrt{4\gamma^2 + \delta^2}}, \quad \pm\sqrt{-\gamma^2 + \delta\sqrt{4\gamma^2 + \delta^2}} \quad (6.24)$$

を得る。

ω が正数になる場合を抜き出すと、フーリエスペクトルのピーク値 ω は、

$$\omega = \begin{cases} 0 & (|\delta/\gamma| < a) \\ \sqrt{-\gamma^2 - |\delta|\sqrt{4\gamma^2 + \delta^2}} & (|\delta/\gamma| \geq a) \end{cases} \quad (6.25)$$

$$= \begin{cases} 0 & (|\Delta/\Gamma_2| < a) \\ \frac{\chi^2 \sqrt{|\Delta|\sqrt{\Delta^2 + 4\Gamma_2^2} - \Gamma_2^2}}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} & (|\Delta/\Gamma_2| \geq a) \end{cases} \quad (6.26)$$

によって得られる。ここで、 a は、定数 $a^2 = \sqrt{5} - 2$ である。図6.16は、この理論式を用いてフィッティングを行った。+1 GHz 付近の理論曲線からのズレは、検出光に用いた $^{87}\text{Rb}(F=2 \rightarrow F'=1)$ と基底状態が等しい $^{87}\text{Rb}(F=2 \rightarrow F'=2)$ の遷移があるため、吸収の効果による減衰を受けていることで説明できる。

式(5.27)で得られた離調を考慮した光ポンピングレートを用いると、式(6.26)の $|\Delta/\Gamma_2| \geq a$ の式は、

$$\omega = \frac{\sqrt{|\Delta|\sqrt{\Delta^2 + 4\Gamma_2^2} - \Gamma_2^2}}{\Gamma_2} P_+ \quad (6.27)$$

と光ポンピングレートに比例する形になり、ライトシフトの効果が吸収の効果を含めても光強度に比例することがわかる。実験においても、図 6.17 で得られた光誘起磁化の歳差運動周波数が-1,-2,-3,-4,-5 GHz の其々の離調について光強度に対して線形に増加していることからライトシフトの効果は光強度に比例することがいえる。

式 (5.40) の磁場に対して横方向のポンピングを修正することによって、ライトシフトによる光誘起磁化の運動方程式を求めることができる。簡単のために 2 準位系を考え、式 (5.40) の相互作用ハミルトニアン $\mathcal{H}_T = -\Omega_L J_x$ にライトシフトによるレーザー光方向にかかる仮想的な磁場を加える。この時、ハミルトニアンは、

$$\mathcal{H}_{LS} = \bar{\Delta} P_+ J_z - \Omega_L J_x \quad (6.28)$$

となる。ここで $\bar{\Delta} = \Delta/\Gamma_2$ はノーマライズした光学的な離調である。

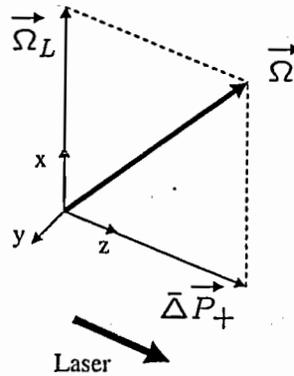


図 6.20: 基底状態の光ポンピングにおける外部磁場と仮想的な磁場による有効磁場。

光誘起磁化は、図 6.20 に示すような外部磁場 $\vec{\Omega}_L$ と仮想的な磁場 $\bar{\Delta} \vec{P}_+$ によってつくられる有効的な磁場 $\vec{\Omega}$ の周りを歳差運動することになる。本研究のように、磁場に対して垂直に制御光が入射される場合の有効磁場の方向は、 $\vec{\Omega} = (-\Omega_L, 0, \bar{\Delta} P_+)$ となる。この時、磁化ベクトルの運動方程式は、

$$\vec{\dot{m}} = \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\gamma_{eff} & -\bar{\Delta} P_+ & 0 \\ \bar{\Delta} P_+ & -\gamma_{eff} & \Omega_L \\ 0 & -\Omega_L & -\gamma_{eff} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ P_+ \end{pmatrix} \quad (6.29)$$

として得られる。ここで、 $\gamma_{eff} = \gamma_0 + P_+$ であり、光誘起磁化の光による緩和 P_+ と光以外による緩和 γ_0 からなる。式 (6.29) の定常解は、磁化の時間変化を 0 とし、つまり $\vec{\dot{m}} = 0$ とし、連立方程式を解くことによって得られ、

$$\vec{m}_\infty = \frac{P_+}{\gamma_{eff}(\Omega_L^2 + \bar{\Delta}^2 P_+^2 + \gamma_{eff}^2)} (-\bar{\Delta} P_+ \Omega_L, \gamma_{eff} \Omega_L, \Delta^2 P_+^2 + \gamma_{eff}^2) \quad (6.30)$$

となる.

本研究で行った実験から, 離調が非常に大きい時 ($\bar{\Delta} \gg 1$) は, 吸収による光の減衰を無視することが可能であり, 式(6.29)は,

$$\dot{\vec{m}} = \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\gamma_0 & -\bar{\Delta}P_+ & 0 \\ \bar{\Delta}P_+ & -\gamma_0 & \Omega_L \\ 0 & -\Omega_L & -\gamma_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} \quad (6.31)$$

となる. この運動方程式は, もはや定常解をもたず, ライトシフトの効果による制御光周りの回転のみを表わしている. このような制御が可能なのは, スピンを制御している時間内で十分吸収の効果が無視できる領域である. このような領域は, 図6.9に示したような, 光誘起磁化が制御光の周りを回転して元の位置に戻って来た時に光による減衰が起こっていない時である.

7 光誘起スピンエコー

7.1 磁気共鳴におけるスピンエコー

緩和には縦緩和と横緩和と呼ばれる2つの緩和過程がある。縦緩和の緩和時間を T_1 、横緩和の緩和時間を T_2 と呼ぶ。一般に、縦緩和は熱緩和とも呼ばれ熱平衡状態に戻る緩和であり、横緩和は、位相緩和とも呼ばれ生成されたコヒーレンスが崩れていく緩和時間である。

測定の対象となる原子集団が不均一な場の中にある場合、それぞれの原子が不均一な場によって場所によって異なった共鳴周波数を持つため、エネルギー準位の間隔が平均値の周りに有限の幅をもって分布する。不均一幅が大きい場合には、自由誘導減衰の信号は不均一幅の逆数程度に短くなる。この短くなった緩和時間を、不均一な場の影響を受けていないより本質的な T_2 と区別するため T_2^* と表記する(図 7.1)。ある意味で、この T_2^* は自由誘導減衰の緩和時間ともいえる。

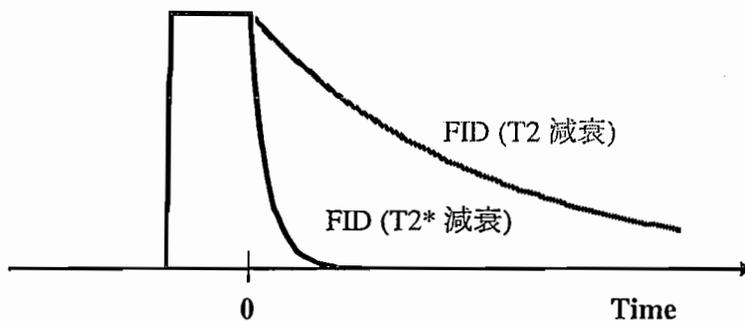


図 7.1: 横緩和時間 T_2 と FID 緩和時間 T_2^* .

副準位間隔の不均一分布の影響を除いて緩和現象を研究する測定法として、パルス磁気共鳴の分野でよく知られるスピンエコー法がある。スピンエコー (Spin Echo) という現象は、1950年に E. L. Hahn によって核磁気共鳴の新しい現象として発見された [44]。スピンエコーの信号は第1のパルス ($t=0$) による FID が不均一磁場の効果により消えた後に2つ目のパルス ($t=\tau$) を加えると時刻 $t=2\tau$ にエコー信号が現れる現象である(図 7.2)。

スピンエコーの現象は図 7.2 のような説明図を用いて理解できる。z 方向の静磁場中で磁化したスピン系 ($S=1/2$) に共鳴回転磁場を時刻 $t=0$ と $t=\tau$ にパルス的に加える。第1パルスは $\pi/2$ パルス、第2パルスは π パルスと呼ばれるもので、 H_1 の周りに磁化 M を 90° と 180° 回転させる働きをする。図 7.2 の座標系は回転磁場 H_1 が x^* 軸方向に静止してみえるようにした回転系である。第一のパルスにより z^* 方向から、 $-y^*$ 方向に倒される ($A \rightarrow B$)。場の不均一性により共鳴周波数の異なる

磁化成分は、 $-y^*$ 方向からそれぞれの角速度で離れていき、全体の磁化は減衰して消える (B→D). 時間 τ の間に θ_i だけ回転した成分は、第2パルスで $\pi - \theta_i$ の位置に移る (D→E). 以後、同じ角速度で回転を続けるので、丁度、時刻 $t = 2\tau$ にはどの周波数の成分も y^* 方向に揃い、最初と同じ大きさの磁化が再生される (E→G). これがスピネコーである. ベクトルモデルによりスピネコーの信号が、まさにスピネが制御された結果現れる信号であることがよく理解できる. スピネコーの信号は、コヒーレンスを回復させる現象なので T_2 緩和内で現れる.

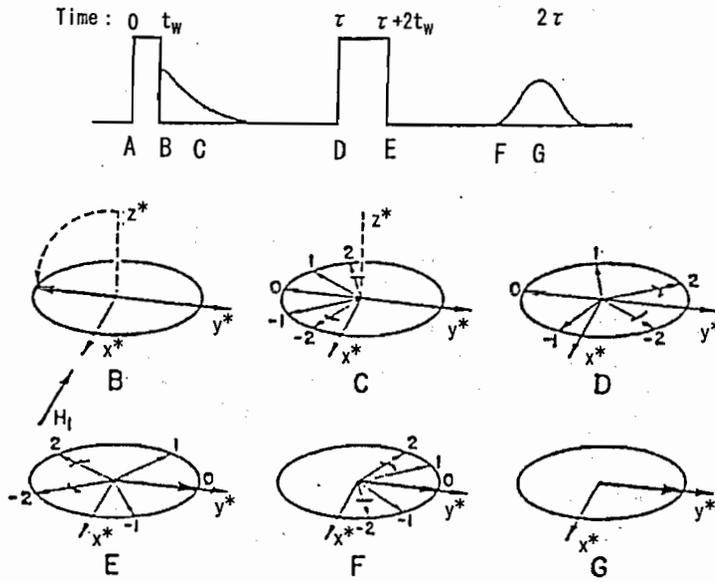


図 7.2: 磁気共鳴におけるスピネコーの説明図 (回転座標系)[45]. z^* 方向に静磁場が加えられている. H_1 は振動磁場を表す.

自由誘導減衰同様、パルス磁気共鳴法のスピネコーについても、純光学的な手法が可能である. これを、光誘起スピネコーと呼ぶことにする.

7.2 従来の光誘起スピンエコー

7.2.1 実験

光誘起スピンエコーも磁気共鳴法によるスピンエコーと同様、時刻 0 に第一のパルスを入射し、時刻 τ に第二のパルスを入射すると時刻 2τ でエコー信号が現れる現象で、横緩和によって失われたコヒーレンスを復活させることができる。観測される典型的な光誘起スピンエコーの信号を図 7.3 に示す。図は、第一のパルスも第二のパルスも吸収線に共鳴させて作られるパルスである。共鳴線から外れていくと、つまり離調していくと自由誘導減衰の信号も弱まっていく。

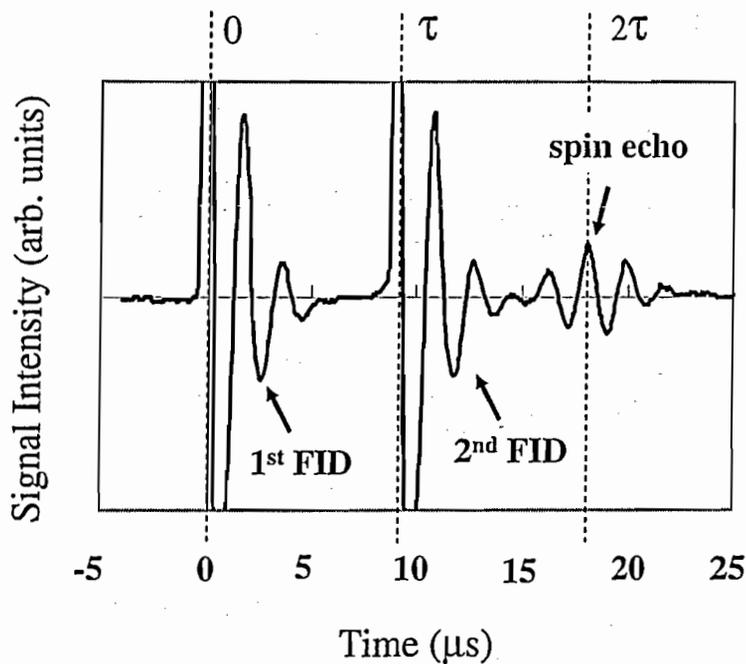


図 7.3: 観測される典型的な光誘起スピンエコーの信号。

光誘起スピンエコーは、第一のパルスで生成した光誘起磁化を第二のパルスの効果でスピンを再整列の状態に制御して現れる信号である。光誘起スピンエコーを発生するメカニズムとして、第二のパルスの光ポンピングの効果を用いるオンレゾナンスの光誘起スピンエコーとライトシフトの効果を用いるオフレゾナンスの光誘起スピンエコーの二つがある。歴史的に、これらの光誘起スピンエコーは互いに言及することなく独自に発展してきたと考えられる。

オンレゾナンスの光誘起スピンエコーは、サンプルの吸収線に共鳴する発振波長の第二のパルスの光ポンピングの効果で現れ、オフレゾナンスの光誘起スピン

エコーは、第二のパルスの発振周波数を吸収線から離調したときに現れるライトシフトの効果を用いて現れる。

昔から行われてきた方法は、一台のレーザーを用いて検出法をMCDとMCBで切り替えることによって行える。MCD検出を用いるとオンレゾナンスの光誘起スピンエコーになり、MCB検出を用いるとオフレゾナンスの光誘起スピンエコーになると考えられる。MCD検出で得られる光誘起スピンエコーの信号に関しては本研究で取り扱うオンレゾナンスの光誘起スピンエコーである。磁気副準位の遷移によるローレンツ型の吸収線を考えると、MCD検出は、吸収線で最大になり、MCB検出は、分散型の検出感度を持つため大きく離調をとった場所での検出を許す。ルビジウムについて、一台のレーザーを用いたMCD検出とMCB検出の光誘起スピンエコーの信号と、光誘起スピンエコーの信号強度の 2τ 依存性を調べた。

一台のレーザーを用いたMCD検出の光誘起スピンエコーの信号を一つ目のパルスと二つ目のパルスを入射する時間間隔を変化させて測定したものを図7.4に示す。レーザーの波長は、MCDスペクトルの信号の大きい ^{87}Rb ($F=2 \rightarrow F=1$)の遷移に合わせた。一つ目のパルスが入射された瞬間から二つ目のパルスが入射されるまでの時間を τ とすると、 2τ のところでスピンエコーの信号が現れる。この挙動は、本研究のどのエコーにも共通する。これらの信号を用いて横軸に 2τ 、縦軸に光誘起スピンエコーの信号の大きさをとったグラフを図7.5に示す。スピンエコーの信号は、単一の緩和時間で減衰すると仮定して、

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{2\tau}{T_2}\right)$$

の形でフィッティングを行った。フィッティングに実際用いた式は、

$$I = 70 \exp\left(-\frac{2\tau}{5.2}\right)$$

であり、よって緩和時間 T_2 は $5.2 \mu\text{s}$ である。

次に一台のレーザーを用いたMCB検出の光誘起スピンエコーの信号を一つ目のパルスと二つ目のパルスを入射する時間間隔を変化させて測定したものを図7.6に示す。レーザーの波長は、MCBスペクトルの信号の大きい ^{87}Rb ($F=2 \rightarrow F=1$)の遷移から約 0.5GHz 離調した部分で一つ目のパルスと二つ目のパルスの間隔 τ をかえて測定を行った。これらの信号を用いて横軸に 2τ 縦軸に光誘起スピンエコーの信号の大きさをとったグラフを図7.7に示す。フィッティングに用いた式は、

$$I = 53 \exp\left(-\frac{2\tau}{7}\right)$$

であり、よって緩和時間 T_2 は $7 \mu\text{s}$ である。

図5.8 (a)によると、バッファガス $\text{He} \sim 5 \text{ Torr}$ を封入したルビジウムの基底状態 ^{87}Rb ($F=2$)における光誘起磁化の自由誘導減衰による緩和は、 $\sim 15 \mu\text{s}$ 程度なので、オーダー的には、近い値が得られていることがわかる。しかし、FIDにく

らベスピンエコーの方が緩和時間が短くなっていることに関して幾つかの理由が考えられる。(1) 一つ目のパルスで生成された光誘起磁化すべてに2つ目のパルスが当たらず一部だけが再生してしまっている可能性がある。つまり、これは光誘起スピンエコーの信号は、ごく一部でも再整列できる成分が作られればエコー信号が得られることを示している。(2) 核磁気共鳴などで起こる、不均一な静磁場中を核が体積拡散した時に起こるスピンエコーの減衰と同様の理由で試料の拡散がエコー信号の減衰を招いている。(3) サンプルの吸収の効果がエコー信号の減衰を招いていると考えられる。これに加えて、(4) オンレゾナンスのエコーの場合は、後で示すベクトルモデルから、どれだけ精度を上げてても正確な緩和時間の測定は不可能だと考えられる。

図 7.8 (a) に一台のレーザーを用いた MCB 検出の光誘起スピンエコーの周波数依存性を示した。図 7.8 (b) に、この測定を行った時の吸収スペクトルと MCB スペクトルを測定したものを示す。この実験では、ポラリメーターを用いたため、光誘起磁化の歳差運動の位相も測定しているが、一般に行われている直交偏光子法では、この実験で得た信号の0点で折り返した信号になっていることが考えられる。そのことを考慮すると、吸収線のピークからずれた両側で光誘起スピンエコーの信号が強いオフレゾナントの光誘起スピンエコーの離調依存性の特徴が出ている。図 7.8 (a) と (b) を比較すると、一台のレーザーを用いた MCB 検出の光誘起スピンエコーの周波数依存性と MCB の光誘起磁化の周波数依存性が酷似していることがわかる。このことから、一台のレーザーを用いた MCB 検出の方法は、MCB の検出感度の影響を受ける可能性があることが考えられる。

Mlynek らの行ったオフレゾナンスの光誘起スピンエコーの実験は、サンプルに同位体がないためルビジウムよりもっとエネルギー構造が単純なセシウムにバッファガスを大量に入れて超微細構造より圧力広がり幅を増やして一本の吸収線にしたセルを使用し、温度をさげて、吸収を減らした状態で実験を行っている。このため、ある程度離調したところから MCB の検出感度があまり変化しないようになっている。

本研究の実験では、バッファガスとして He が ~ 5 Torr 含まれサンプルの温度が 350 K の時の ^{87}Rb の D_1 線の衝突広がり幅が 42 MHz 程度なので、その線幅に対して 0.5 GHz という離調は十分であると考えられるが、本研究でおこなった2台のレーザーを用いた光誘起スピンエコーの実験から、パワーブロードニングやドップラー広がりも考慮した線幅に対してエコーの再整列能率が決まっているようなので、その線幅に関しては、オンレゾナンス付近で信号が出ている可能性がある。また、Mlynek らの実験結果から、エコーのピークはもっと離れた所にあるため、このデータは、オンレゾナンスとオフレゾナンスの効果が混ざった非常にあいまいなところで測定している可能性もある。福田らと Mlynek らの実験は、基本的には同じ直交偏光子法が使用されていたため、このあたりの区別がはっきりつかず、この曖昧なところで現れる光誘起スピンエコーの説明が不可能になる。

以上のことから、従来の検出方法では、オンレゾナンスの光誘起スピンエコー

は、吸収のピーク付近で、オフレゾナンスの光誘起スピネコーは大きく離調をとった部分でしかその効力をなさないことが伺える。このため、オフレゾナンスの光誘起スピネコーの実験に関して、従来の方法ではなく、離調したときに検出感度が変わらない測定をする必要がある。

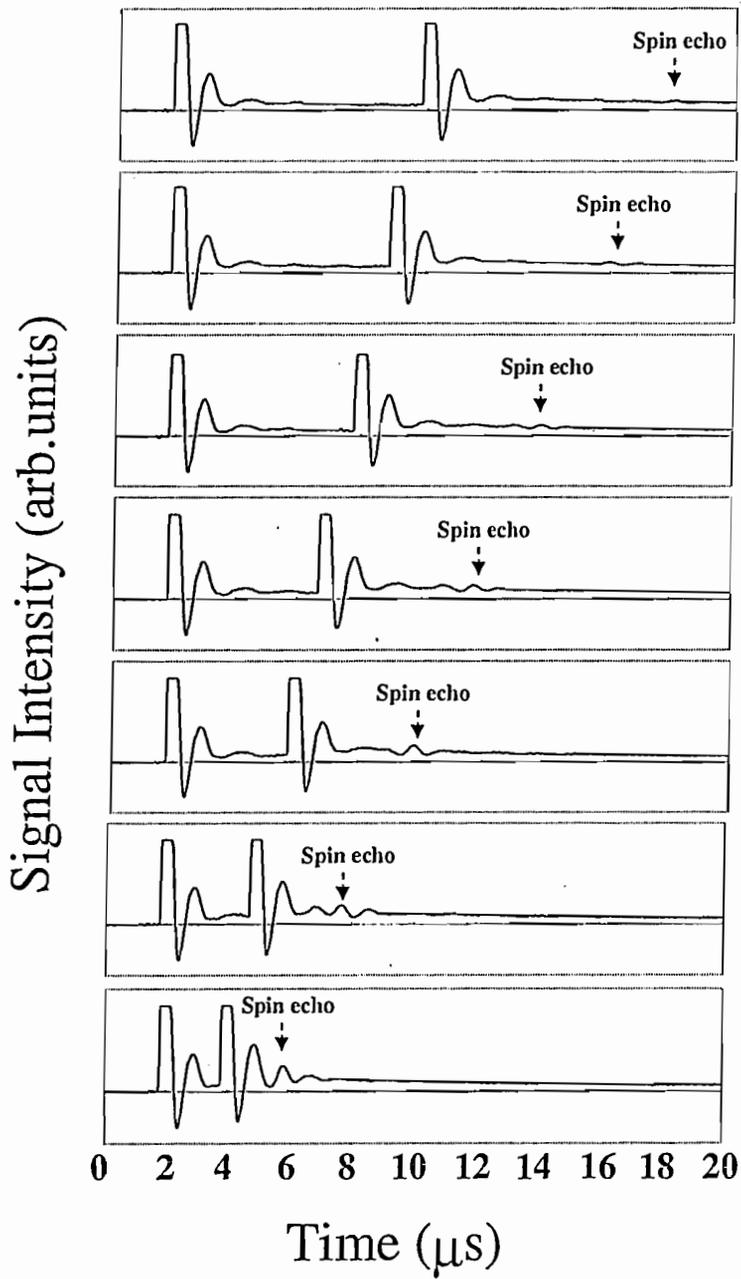


図 7.4: 一台のレーザーを用いた MCD 検出の光誘起スピンエコーの信号。オンレゾナンスの光誘起スピンエコーに属する。

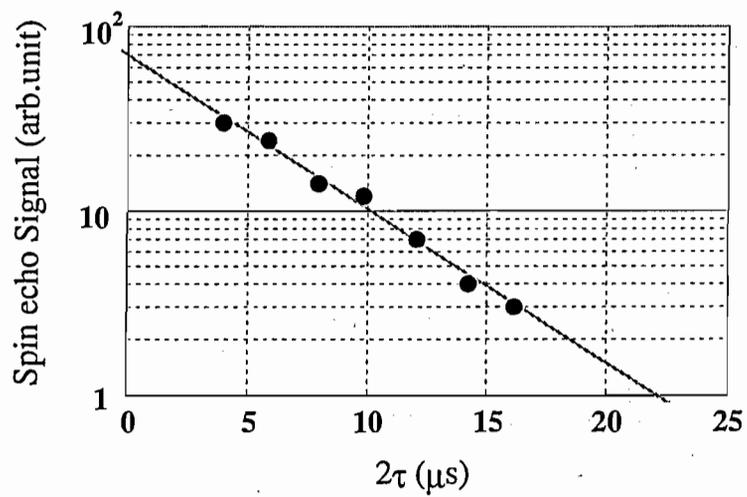


図 7.5: 一台のレーザーを用いた MCD 検出の光誘起スピンエコーによる緩和時間 T_2 の測定. ●は測定値であり, 直線は指数関数を用いたフィッティングである. フィッティングから求めた T_2 は $5.2 \mu\text{s}$ である.

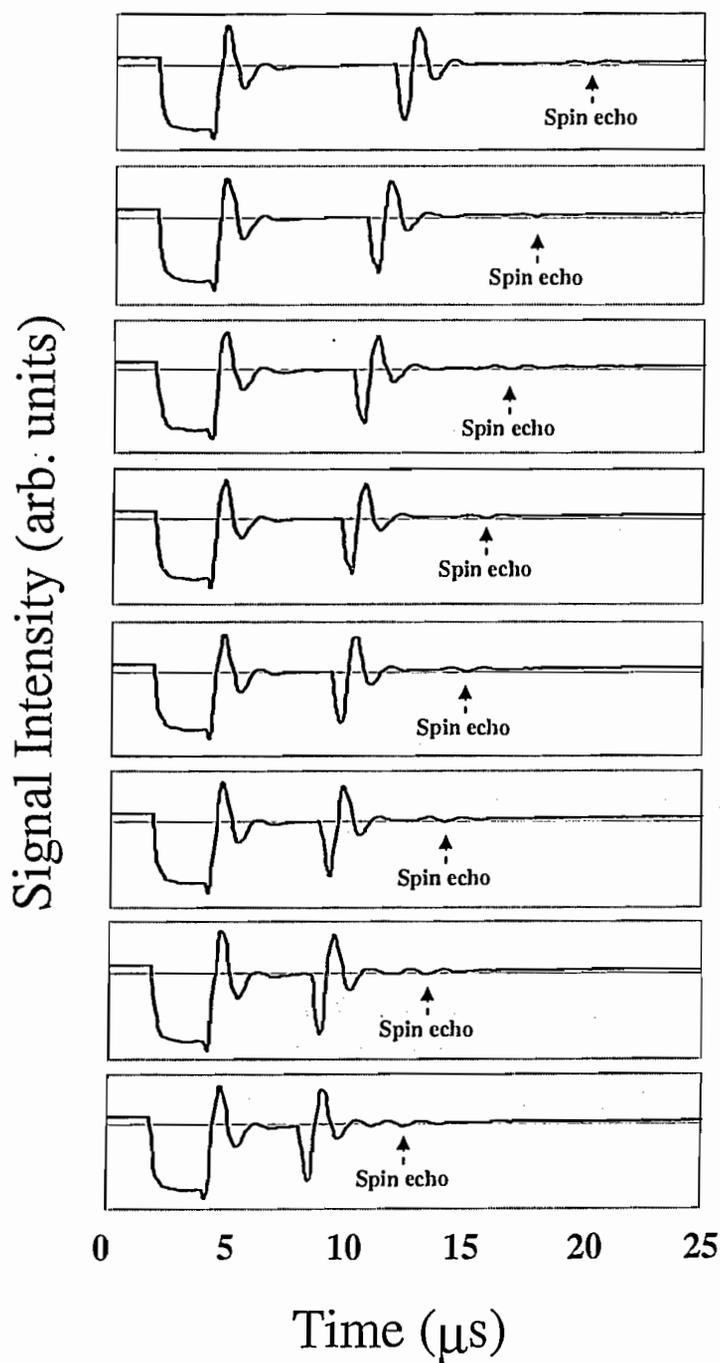


図 7.6: 一台のレーザーを用いた MCB 検出の光誘起スピンエコーの信号. オンレゾナンスの光誘起スピンエコーに属する.

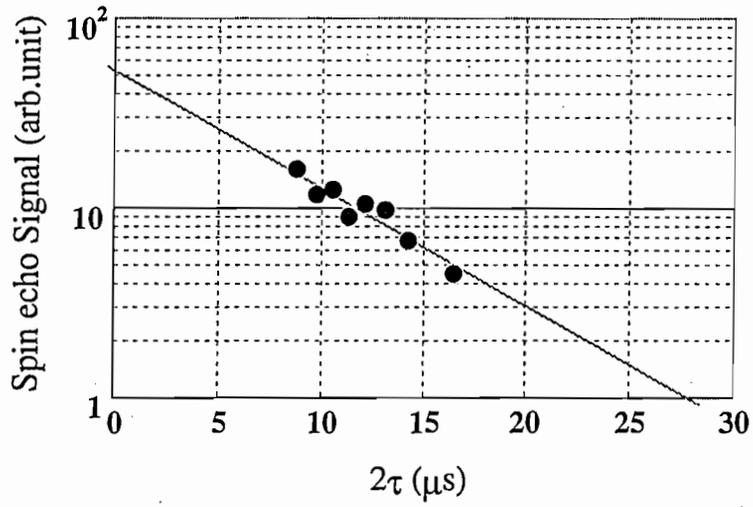


図 7.7: 一台のレーザーを用いた MCB 検出の光誘起スピンエコーによる緩和時間 T_2 の測定. ●は測定値であり, 直線は指数関数を用いたフィッティングである. フィッティングから求めた T_2 は $7 \mu\text{s}$ である.

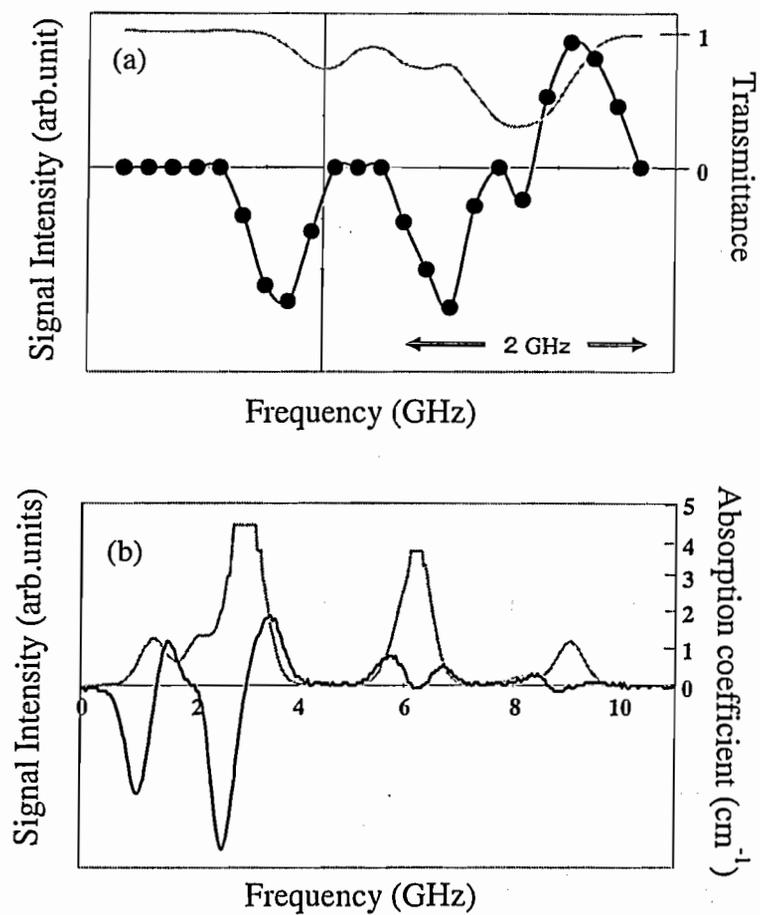


図 7.8: (a) 一台のレーザーを用いた MCB 検出の光誘起スピンエコー信号の周波数依存性. (b) (a) の測定を行った時の吸収スペクトルと MCB スペクトル.

7.2.2 理論

オンレゾナンス

実験と同様、理論においても、オンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピンエコーは、それぞれ吸収のピーク付近と大きく離調をとった部分でしか光誘起スピンエコーを説明できない。

まず、オンレゾナンスの光誘起スピンエコーの理論を紹介する [12]. 出発点として、ハミルトニアン $\mathcal{H}_a = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2$ を持つ 4 準位系のアンサンブルを考える。ここで、 \mathcal{H}_0 は、4 準位系の原子のハミルトニアンで、 \mathcal{H}_1 はゼーマン相互作用のような時間に依存しない摂動、 \mathcal{H}_2 は光と原子の相互作用ハミルトニアンとする。無摂動のハミルトニアン \mathcal{H}_0 は、図 7.9(a) に示すように基底状態と励起状態の固有状態は 2 重に縮退している。ここで、それぞれの時間に依存する固有関数は $\exp(-i\Omega_0 t)|1'\rangle$, $\exp(-i\Omega_0 t)|2'\rangle$, $|3'\rangle$, $|4'\rangle$ として表わせる。図 7.9(b) に示すように時間に依存しない摂動 \mathcal{H}_1 によって、これらの縮退はとかれ、その固有関数は $\exp\{-i(\Omega_0 + \omega_1)t\}|1\rangle$, $\exp\{-i(\Omega_0 + \omega_2)t\}|2\rangle$, $\exp(-i\omega_3)|3\rangle$, $\exp(-i\omega_4)|4\rangle$ として表せる。

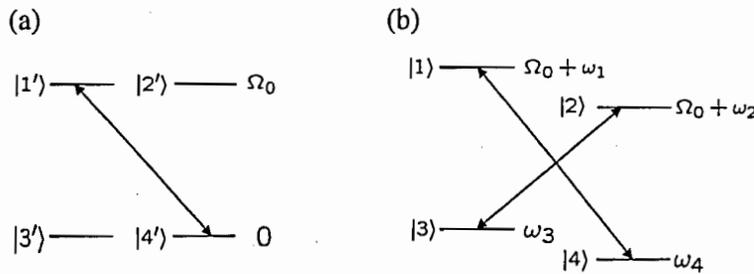


図 7.9: 4 準位系の図. 矢印は起こりうる遷移を表す。

無摂動ハミルトニアン \mathcal{H}_0 に関する密度行列 ρ' と摂動ハミルトニアン $\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$ に関する密度行列 ρ は、 $\rho = T\rho'T^{-1}$ によって関係付けられる。ここで、

$$T = \begin{pmatrix} \cos \frac{\theta'}{2} & -\sin \frac{\theta'}{2} & 0 & 0 \\ \sin \frac{\theta'}{2} & \cos \frac{\theta'}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos \frac{\theta}{2} & -\sin \frac{\theta}{2} \\ 0 & 0 & \sin \frac{\theta}{2} & \cos \frac{\theta}{2} \end{pmatrix} \quad (7.1)$$

である。

矩形のエンベロープを持つパルス幅 δ_1 と δ_2 の共鳴光パルスが $t=0$ と τ でサンプルに照射されるとする。光遷移の横緩和時間 $T_2 = 1/\gamma$ がパルス幅と歳差運動の周期に比べて非常に短い場合、パルス照射の間の密度行列 $\rho'(t)$ の時間発展は以下

の運動方程式から求めることができる。

$$\left(\frac{d}{dt} \rho'_{ij}(t) \right) = \begin{pmatrix} -\frac{i\chi}{2}(\rho'_{14} - \rho'_{41}) & \frac{i\chi}{2}\rho'_{42} & \frac{i\chi}{2}\rho'_{43} - \gamma\rho'_{13} & -\frac{i\chi}{2}(\rho'_{11} - \rho'_{44}) - \gamma\rho'_{14} \\ -\frac{i\chi}{2}\rho'_{24} & 0 & -\gamma\rho'_{23} & -\frac{i\chi}{2}\rho'_{21} - \gamma\rho'_{24} \\ -\frac{i\chi}{2}\rho'_{34} - \gamma\rho'_{31} & -\gamma\rho'_{32} & 0 & -\frac{i\chi}{2}\rho'_{31} \\ \frac{i\chi}{2}(\rho'_{11} - \rho'_{44}) - \gamma\rho'_{41} & \frac{i\chi}{2}\rho'_{12} - \gamma\rho'_{42} & \frac{i\chi}{2}\rho'_{13} & \frac{i\chi}{2}(\rho'_{14} - \rho'_{41}) \end{pmatrix} \quad (7.2)$$

初期条件として, $\rho_{11} = \rho_{22} = 0$, $\rho_{33} = \rho_{44} = 1/2$, $\rho_{ij} = 0$ ($i \neq j$) を考え, 式(7.2)を解くと $\rho'_{ij}(\delta_1)$ がもとまる. これを用いると一つ目の光パルス照射後(二つ目の光パルス照射直前まで)の無摂動系における原子のアンサンブルの密度行列が次式で得られる.

$$\rho'_{ij}(\tau) = T^{-1} \exp(-i\mathcal{H}_1\tau) T \rho'_{ij}(\delta_1) T^{-1} \exp(i\mathcal{H}_1\tau) T \quad (7.3)$$

さらに, これを初期条件に, 式(7.2)を解いて $\rho'_{ij}(\delta_2)$ を求める., これを用いると二つ目の光パルス照射後の無摂動系における原子のアンサンブルの密度行列が次式で得られる.

$$\rho'_{ij}(t) = T^{-1} \exp(-i\mathcal{H}_1 t) T \rho'_{ij}(\delta_2) T^{-1} \exp(i\mathcal{H}_1 t) T \quad (7.4)$$

ρ'_{11} を構成する多数の振動項の中からエコーに関係する部分を抜き出し, $\chi/\gamma \ll 1$ と $\Gamma\delta_j \gg 1$, $\omega_j\delta_j \ll 1$ とすると, $t = 2\tau$ で信号が復活する項

$$\rho_{11}^{echo}(t) = \frac{1}{64} K_1 (4A - K_2) \sin^4 \theta' \cos\{\omega_{12}(t - 2\tau)\} \quad (7.5)$$

が得られる. これがエコー信号である. ここで, $K_{1,2} = 1 - \exp(-\chi^2\delta_{1,2}/\gamma)$, $A = 1 - \exp(-\chi^2\delta_2/4\gamma)$ である. $\rho_{44}^{echo}(t)$ は, 式(7.5)の ω_{12} と θ' を ω_{34} と θ に置き換えることによって得られ, $\rho_{22}^{echo}(t) = -\rho_{11}^{echo}(t)$ と $\rho_{33}^{echo}(t) = -\rho_{44}^{echo}(t)$ の関係がある. 信号は副準位間のコヒーレンスに比例する. 副準位間のコヒーレンスは $\rho_{11} - \rho_{22}$ ($\rho_{33} - \rho_{44}$) で得られる. よって基底状態のエコー信号は,

$$S^{echo}(t) = -\frac{1}{32} K_1 (4A - K_2) \sin^4 \theta \cos\{\omega_{34}(t - 2\tau)\} \quad (7.6)$$

である. これは共鳴光パルスによって光誘起スピンエコーの信号が現れることを示している. 式(7.6)は, 1になることはなく, それゆえこのタイプのエコーは100%の再生能力がないことがわかる. この理論では, $t = 2\tau$ で現れるエコー以外に $t = \tau + |\omega_{34}/\omega_{12}|$ もしくは $t = \tau + |\omega_{12}/\omega_{34}|$ で復活する項があり, $t = \tau + |\omega_{34}/\omega_{12}|$ もしくは $t = \tau + |\omega_{12}/\omega_{34}|$ で現れるエコーの存在も予想していたが本研究でも観測することができなかつたので $t = \tau + |\omega_{34}/\omega_{12}|$ と $t = \tau + |\omega_{12}/\omega_{34}|$ の項は省略し

た. このような, 離調を含まない理論を使って三品らによって, オンレゾナンスの光誘起スピンエコーの第二のパルスによる再整列能率が, パルス幅の逆数と励起状態の緩和が光ポンピングレートに比べて非常に大きい時に,

$$\eta = \frac{P_+^2 t_p (\Gamma' t_p + 4) \sin^2(2\theta)}{16(2\Gamma + \Gamma')} \quad (7.7)$$

で得られることが示された [13]. ここで, P_+ は, $\Delta = 0$ での光ポンピングレート, t_p は第二パルスのパルス継続時間, Γ は励起状態から基底状態への緩和で, Γ' は励起状態から基底状態以外の準位への緩和である. この式は, エコーの再整列能率が光の強度に比例することを説明している. 現に, 吸収の飽和が起こらない低い光強度領域では非常によく一致している. しかしながら, 離調による効果が考慮されていないため, オンレゾナンスの光誘起スピンエコーの理論は, オンレゾナンスにおけるエコーに対して非常によく説明ができるが, オフレゾナンスの光誘起スピンエコーの議論には用いることができない.

オフレゾナンス

次に, オフレゾナンスの理論を紹介する [46]. まず, 時刻0で, x 方向の磁場に垂直な方向 z に光誘起磁化を生成し, コヒーレンスが生成されたとする. この状態を, スピン系が均一分極の状態にあるとし,

$$\rho(0) = J_z \cos \phi - J_y \sin \phi \quad (7.8)$$

という密度行列を仮定する. 光誘起磁化は, z 方向の磁場周りをラーモア周波数 Ω_L で歳差運動し,

$$m_z(t) = A \cos(\Omega_L t + \phi) e^{-\gamma_0 t} \quad (7.9)$$

のように時間発展する. 時刻 T での密度行列は,

$$\rho(T) = e^{-\gamma_0 T} \{J_z \cos(\Omega_L T + \phi) - J_y \sin(\Omega_L T + \phi)\} \quad (7.10)$$

と書き表わせる. ここで, ライトシフトの効果により仮想的な磁場として振る舞う第二のパルスを長さ τ の時間入射するとする. 光誘起磁化は, τ の時間, 外部磁場と仮想的な磁場による有効磁場 $\Omega = \{\Omega_L, 0, \bar{\Delta} P_+\}$ の周りを回転し, 同時に光ポンピングと減衰効果によって系は平衡点へ駆動される. ここで, $\bar{\Delta} = \Delta/\Gamma_2$ は光学遷移でノーマライズ離調で, P_+ は光ポンピングレートであり, それらの積で表わされる $\bar{\Delta} P_+$ は, ライトシフトによる仮想的な磁場を表している. パルス照射直後の密度行列を

$$\rho(T+) = \rho_{eq} + e^{-\gamma_{eff} \tau} U_p (\rho(T) - \rho_{eq}) U_p^{-1} \quad (7.11)$$

とすることで, これらの効果を要約する. ここで, ρ_{eq} は平衡点, $e^{-\gamma_{eff} \tau} = \gamma_0 + P_+$ である.

$$U_p = \exp\{-i\tau(\Omega_L J_x + \bar{\Delta} P_+ J_z)\} \quad (7.12)$$

は、有効磁場によって誘導される回転を記述している。理想的な z 軸周りの 180° の回転は密度行列の位相反転が可能である。 $\rho(T)$ の Ω_L を $-\Omega_L$ に置き換えることによって、密度行列

$$\rho_{inv} = e^{-\gamma_0 T} \{ J_z \cos(\Omega_L T - \phi) + J_y \sin(\Omega_L T - \phi) \} \quad (7.13)$$

が得られる。この位相反転させた ρ_{inv} に結果として生じる密度行列の射影成分を計算することによって、第二のパルスの再整列の能率 η が

$$\eta = \left(\frac{\bar{\Delta} P_+}{\Omega} \right)^2 \sin^2(\Omega \tau / 2) e^{-\gamma_{eff} \tau} \quad (7.14)$$

として得られる。ここで、 $\Omega = \sqrt{\Omega_L^2 + \Delta^2 P_+^2}$ であり、ラーモア歳差運動 Ω_L とライトシフトの効果 $\bar{\Delta} P_+$ に依存する歳差運動周波数である。この式の最初の因子 $\left(\frac{\bar{\Delta} P_+}{\Omega} \right)^2$ は、静磁場と有効磁場の間のサインの角度の二乗、であり、静磁場に対する有効磁場の傾きを表している。第二の因子は、磁化ベクトルの回転を記述しており、完全な再整列を得る条件は $\Omega \tau = \pi$ である。最後の指数関数因子は、パルス照射の間の減衰を表わしている。理想的なエコーパルスは、大きなライトシフト $\bar{\Delta} P_+ \gg \Omega_L, \gamma_{eff}$ のもとで、回転角が n を整数として $\Omega \tau = (2n + 1)\pi$ の時に得られる。

この理論は、十分離調したオフレゾナンスの光誘起スピンエコーに関してエコー強度の第二のパルスに関するパルス幅依存性をよく説明できる。しかしながら、離調依存性に関して、吸収線付近で一致なくなっている。特に、式7.14に関して、 $\bar{\Delta} = 0$ の時を考えると、再整列能率が0になり、吸収線付近で現れるエコーを説明できない。このようなことが起こる理由は、パルス照射後の密度行列を式(7.13)の第二のパルス周りに起こる回転によって起こる位相反転のみを考慮して密度行列への射影成分を再整列能率として考えているためであり、第二パルス周りの回転による位相反転以外の効果で現れるオンレゾナンスの光誘起エコーがここで抜け落とされ考えられるからである。

本研究では、密度行列を用いてオンレゾナンスとオフレゾナンスの両方の光誘起スピンエコーを説明することができる理論を考察した。

7.3 光誘起スピネコーの理論

ここでは、オンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーの両方に適応できる理論を再構築する。

まず始めに、図 6.1 に示すような基底状態に $|1'\rangle$ と $|2'\rangle$ の縮退した二準位を持ち、励起状態に $|3\rangle$ を持つ三準位系のアンサンブルを考える。

系の全ハミルトニアンは、 \mathcal{H}_0 を三準位系の原子のハミルトニアン、 \mathcal{H}_1 をゼーマン相互作用のような時間に依存しない摂動ハミルトニアン、そして \mathcal{H}_2 を原子と光の相互作用ハミルトニアンとすると、

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2, \quad (7.15)$$

によって得られる。

無摂動系において、円偏光のような特別な偏光をもつ光が $|1'\rangle$ と $|3\rangle$ の間の遷移のみを引き起こすとする。基底状態の二重縮退は、 \mathcal{H}_1 によって縮退がとかれ、図 5.1 (b) に示すような、二つの固有状態 $|1\rangle$ と $|2\rangle$ に分裂する。これらの状態は、

$$(|1'\rangle, |2'\rangle) = (|1\rangle, |2\rangle)T \quad (7.16)$$

によって関係づけられる。ここで、

$$T = \begin{pmatrix} \cos \frac{\theta}{2} & -\sin \frac{\theta}{2} \\ \sin \frac{\theta}{2} & \cos \frac{\theta}{2} \end{pmatrix}. \quad (7.17)$$

である。よって、無摂動ハミルトニアン \mathcal{H}' に関する密度行列 ρ' と摂動ハミルトニアン $\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$ に関する密度行列 ρ は、 $\rho = T\rho'T^{-1}$ の関係によって関連付けられることになる。 $|1\rangle$ と $|2\rangle$ の固有値を E_1 , E_2 とすると、 $|1\rangle$ と $|2\rangle$ の間の分裂周波数 ω_{21} は、 $(E_2 - E_1)/\hbar$ になる。この分裂周波数は、ラーモア周波数に対応しており、本研究では、サンプルが不均一磁場中に置かれているため、分裂周波数 ω_{12} は不均一に分布している。

原子に生成光パルスと制御光パルスが $t=0$ と τ で照射されるとする。生成光パルスによって生成される光誘起磁化が大きくなれば、光誘起スピネコーの信号も大きくなる。しかし、これは、位相緩和によってバラけたスピンを再び戻してくるという意味での再整列能率には関係していない。光誘起スピネコーの再結合能率に関するのは制御光パルスなので、以降、制御光パルスについて考えていく。簡単のために、図 7.10 に示すような、制御光パルスが、パルス幅 $t_p = \tau' - \tau$ の矩形のエンベロープの電場を持つと仮定する。ここで、 τ と τ' をそれぞれ、制御光パルスの照射開始と照射終了の時間とする。

一般に、系の物理量 O のアンサンブルの期待値 $\langle \bar{O} \rangle$ は、

$$\begin{aligned} \langle \bar{O} \rangle &= \text{Tr}\{\rho(t)O\} \\ &= \sum_{n,m} \langle n|\rho(t)|m\rangle \langle m|O|n\rangle \end{aligned} \quad (7.18)$$

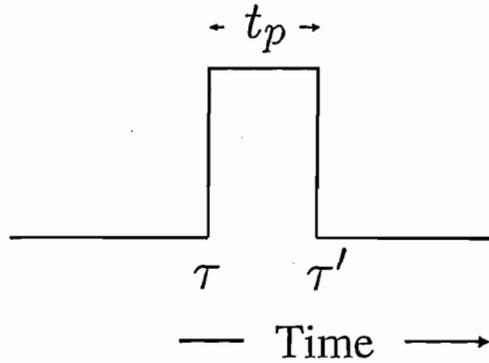


図 7.10: 制御光パルス.

によって得られる. ここで, $\langle m|O|n \rangle$ は, アンサンブル中は共通の因子なので, $|1\rangle$ と $|2\rangle$ の副準位が共鳴条件を満たしているとする信号は,

$$O_{12} \langle \rho_{21}(t) \rangle \quad (7.19)$$

の実部によって単純に表現でき, 信号が, 密度行列の非対角成分の時間発展から得られることがわかる. よって, 副準位コヒーレンスの信号は, 密度行列の非対角要素

$$\rho_{21}(t) = \tilde{\rho}_{21}(t) \exp(-i\omega_{21}t) \quad (7.20)$$

のアンサンブル平均に比例する.

$$S(t) \propto \langle \exp(-i\omega_{21}t) \tilde{\rho}_{21}(t) \rangle. \quad (7.21)$$

ここで, $\tilde{\rho}_{21}(t)$ は $\rho_{21}(t)$ のゆっくり変化する因子 (slowly varying factor) である.

制御光パルスによる光励起後のどんな密度行列の要素 $\tilde{\rho}_{jk}(\tau')$ も光励起前の密度行列の要素 $\tilde{\rho}_{ab}(\tau)$ の線形結合によって表現でき,

$$\tilde{\rho}_{jk}(\tau') = \sum_{ab} C_{jk}^{ab} \tilde{\rho}_{ab}(\tau) \quad (7.22)$$

のように書き表わすことができる. 今考えている系の場合は,

$$\tilde{\rho}_{21}(\tau') = \sum_{ab} C_{21}^{ab} \tilde{\rho}_{ab}(\tau) \quad (7.23)$$

となる.

式(7.20)の振動因子を含む密度行列に関して、式(7.22)は、

$$\rho_{21}(\tau') = \sum_{ab} c_{21}^{ab} \rho_{ab}(\tau), \quad (7.24)$$

として書きなおされる。ここで、

$$c_{jk}^{ab} = \exp(-i\omega_{jk}\tau' + i\omega_{ab}\tau) C_{jk}^{ab} \quad (7.25)$$

であり、 c_{jk}^{ab} は、摂動系における制御光パルスの照射前での密度行列の行列要素 $\rho(\tau)$ と照射後の密度行列の行列要素 $\rho(\tau')$ を結びつける係数である。

式(7.22)の $\tilde{\rho}_{jk}(\tau')$ を、係数 c_{jk}^{ab} を使って書きなおすと

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{21}(\tau') &= \exp(i\omega_{21}\tau' - i\omega_{12}\tau) c_{21}^{12} \tilde{\rho}_{12}(\tau) \\ &\quad + \exp(i\omega_{21}\tau' - i\omega_{21}\tau) c_{21}^{21} \tilde{\rho}_{21}(\tau) \\ &\quad + \exp(i\omega_{21}\tau' - i\omega_{11}\tau) c_{21}^{11} \tilde{\rho}_{11}(\tau) \\ &\quad + \exp(i\omega_{21}\tau' - i\omega_{22}\tau) c_{21}^{22} \tilde{\rho}_{22}(\tau). \end{aligned} \quad (7.26)$$

となる。

これを式(7.21)に代入することによって、制御光パルス後の副準位コヒーレンスの信号が得られる。

$$\begin{aligned} S(t) &= c_{21}^{12} \langle \exp[-i\omega_{21}(t - \tau - \tau')] \tilde{\rho}_{12}(\tau) \rangle \\ &\quad + c_{21}^{21} \langle \exp[-i\omega_{21}(t + \tau - \tau')] \tilde{\rho}_{21}(\tau) \rangle \\ &\quad + \langle \exp[-i\omega_{21}(t - \tau')] \sum_a c_{21}^{aa} \tilde{\rho}_{aa}(\tau) \rangle. \end{aligned} \quad (7.27)$$

この式の第一項は、制御光のパルス幅 $t_p = \tau' - \tau$ が τ に比べて非常に小さい時、 $t = \tau + \tau' \simeq 2\tau$ でゼロにならない値を持つ。よって、光誘起スピンエコーの再整列能率は、 c_{21}^{12} から得ることができる。第二項と第三項はそれぞれ、生成光パルスと制御光パルス後のFID信号を表す。

7.3.1 再整列能率

ここでは、制御光パルス間の密度行列の時間発展を考え、光誘起スピンエコーの再整列能率を導き出す。パルス照射間の密度行列の時間発展は式(6.7)によって得られる。第6章の4.2節のところで行った光学的コヒーレンスの断熱的な除去

法を行うと光学的な要素が除去された基底状態の密度行列は、

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}\rho'_{11} &= -\frac{\chi^2\Gamma_2}{4\Delta^2 + \chi^2 + 4\Gamma_2^2}\rho'_{11} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{12} &= \frac{i\chi^2}{4(\Delta - i\Gamma_2)}\rho'_{12} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{21} &= -\frac{i\chi^2}{4(\Delta + i\Gamma_2)}\rho'_{21} \\
 \frac{d}{dt}\rho'_{22} &= \frac{\chi^2\Gamma_2}{4\Delta^2 + \chi^2 + 4\Gamma_2^2}\rho'_{11}.
 \end{aligned} \tag{7.28}$$

のような、基底状態のポピュレーションと副準位コヒーレンスのみに関する微分方程式として得られた。

制御光パルス後の密度行列の要素 $\rho'_{ab}(\tau')$ は式(7.28)の微分方程式を解くことによって得られる。

$$\begin{aligned}
 \rho'_{11}(\tau') &= A_{11}\rho'_{11}(\tau) \\
 &= \exp\left[-\frac{\chi^2\Gamma_2 t_p}{4\Delta + \chi^2 + 4\Gamma_2^2}\right]\rho'_{11}(\tau) \\
 \rho'_{12}(\tau') &= A_{12}\rho'_{12}(\tau) \\
 &= \exp\left[\frac{i\chi^2 t_p}{4(\Delta - i\Gamma_2)}\right]\rho'_{12}(\tau) \\
 \rho'_{21}(\tau') &= A_{21}\rho'_{21}(\tau) \\
 &= \exp\left[-\frac{i\chi^2 t_p}{4(\Delta + i\Gamma_2)}\right]\rho'_{21}(\tau) \\
 \rho'_{22}(\tau') &= (1 - A_{11})\rho'_{11}(\tau) + \rho'_{22}(\tau),
 \end{aligned} \tag{7.29}$$

ここで、 $\rho'_{ab}(\tau)$ は、制御光パルス入射前の密度行列の要素で、 $t_p = \tau' - \tau$ は制御光パルスの継続時間である。

再整列能率 c_{21}^{12} を得るためには、摂動系における $\rho_{21}(\tau')$ と $\rho_{ab}(\tau)$ の間の関係が必要である。 $\rho(\tau') = T\rho(\tau)T^{-1}$ の関係により、制御光パルスの終わりでの摂動系における $\rho_{21}(\tau')$ は、無非摂動系における $\rho'_{ab}(\tau')$ の線形結合によって表わせる。

$$\begin{aligned}
 \rho_{21}(\tau') &= \sin\frac{\theta}{2}\cos\frac{\theta}{2}\{\rho'_{11}(\tau') - \rho'_{22}(\tau')\} \\
 &\quad - \sin^2\frac{\theta}{2}\rho'_{12}(\tau') + \cos^2\frac{\theta}{2}\rho'_{21}(\tau')
 \end{aligned} \tag{7.30}$$

式(7.29)のセットを式(7.30)に代入することによって、制御光パルスの始まりでの密度行列の要素 $\rho'_{ab}(\tau)$ と終わりでの密度行列の要素 $\rho'_{jk}(\tau')$ の関係、

$$\begin{aligned}
 \rho_{21}(\tau') &= \sin\frac{\theta}{2}\cos\frac{\theta}{2}\{(2A_{11} - 1)\rho'_{11}(\tau) - \rho'_{22}(\tau)\} \\
 &\quad - \sin^2\frac{\theta}{2}A_{12}\rho'_{12}(\tau) + \cos^2\frac{\theta}{2}A_{21}\rho'_{21}(\tau).
 \end{aligned} \tag{7.31}$$

が求まる. ここで, $\rho'(\tau) = T^{-1}\rho(\tau)T$ の関係を使って, 式(7.31)の中の無摂動系における密度行列の要素 $\rho'_{ab}(\tau)$ を, 摂動系における密度行列の要素 $\rho_{ab}(\tau)$ に戻す. こうして得られる $\rho_{21}(\tau')$ の中で $\rho_{12}(\tau)$ に比例する項の比例定数が再整列能率 c_{21}^{12} である.

$$c_{21}^{12}\rho_{12}(\tau) = (2A_{11} - A_{12} - A_{21})\rho_{12}(\tau) \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos^2 \frac{\theta}{2}. \quad (7.32)$$

よって, 式(7.27)における, 光誘起スピンエコーの再整列能率 c_{21}^{12} は,

$$\begin{aligned} c_{21}^{12} &= (2A_{11} - A_{12} - A_{21}) \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos^2 \frac{\theta}{2} \\ &= \left[\exp \left\{ -\frac{\chi^2 \Gamma_2 t_p}{4\Delta^2 + \chi^2 + 4\Gamma_2^2} \right\} \right. \\ &\quad \left. - \cos \left\{ \frac{\Delta \chi^2 t_p}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \right\} \exp \left\{ -\frac{\chi^2 \Gamma_2 t_p}{4(\Delta^2 + \Gamma_2^2)} \right\} \right] \\ &\quad \times 2 \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos^2 \frac{\theta}{2}. \end{aligned} \quad (7.33)$$

として得られる.

Suterらによって求められた式(7.14)のオフレゾナンスの光誘起スピンエコーの再整列能率は, 吸収線近傍で一致なくなり, 特に $\Delta = 0$ では値を持たなくなり, ジャストレゾナンスでもエコー信号が現れるオンレゾナンスの光誘起スピンエコーが説明できなくなってしまう. 一方, ここで求めた式(7.33)の光誘起スピンエコーの再結合能率は, $\Delta = 0$ で,

$$c_{21}^{12} = \left[\exp \left\{ -\frac{\chi^2 \Gamma_2 t_p}{\chi^2 + 4\Gamma_2^2} \right\} - \exp \left\{ -\frac{\chi^2 t_p}{4\Gamma_2} \right\} \right] 2 \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos^2 \frac{\theta}{2} \quad (7.34)$$

という値を持つ. オンレゾナンスでの光ポンピングレート式(5.28)を用いて書き直すと,

$$c_{21}^{12} = \left[\exp \left(-\frac{P_+ \Gamma_2 t_p}{P_+ + \Gamma_2} \right) - \exp(-P_+ t_p) \right] 2 \cos^2 \frac{\theta}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (7.35)$$

となる. $P_+ \ll \Gamma_2, 1/t_p$ の極限を考えると, 式(7.35)は,

$$c_{21}^{12} \sim \frac{2P_+^2 t_p}{\Gamma_2} \cos^2 \frac{\theta}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (7.36)$$

となる. これは, 光が弱い領域では, 光誘起スピンエコーの再整列能率が光強度の二乗に比例することを示している. この光が弱い領域での比例関係は, 三品らによる, 従来のオンレゾナンスの光誘起スピンエコーの理論と矛盾していない[13].

光の強度が増加していくと、従来のオンレゾナンスの理論では、光誘起スピンエコーの再整列能率は、ある一定の値に向かって光強度の2乗で増加していき、飽和するという結果になっている。しかしながら、本研究で導いた理論のシミュレーションでは、図7.11に示すように光強度の二乗で増加していきあるところでピークを持つと減衰していくという結果になっている。本研究では、スピンの純光学的手法による断熱的なスピン制御に注目している。吸収による効果はむしろ取り去りたいため、光強度の弱い部分を取り扱うとし、ここでは深くは追求しないことにする。三品らは、オンレゾナンスの光誘起スピンエコーの光強度依存性を測定して、従来の再整列能率でフィッティングを行っているが、十分な光強度まで測定していないため、再整列能率の増加に飽和が起こっているかどうか判断できない。本研究で導いた再整列能率でも十分にフィッティングできると考えられる。

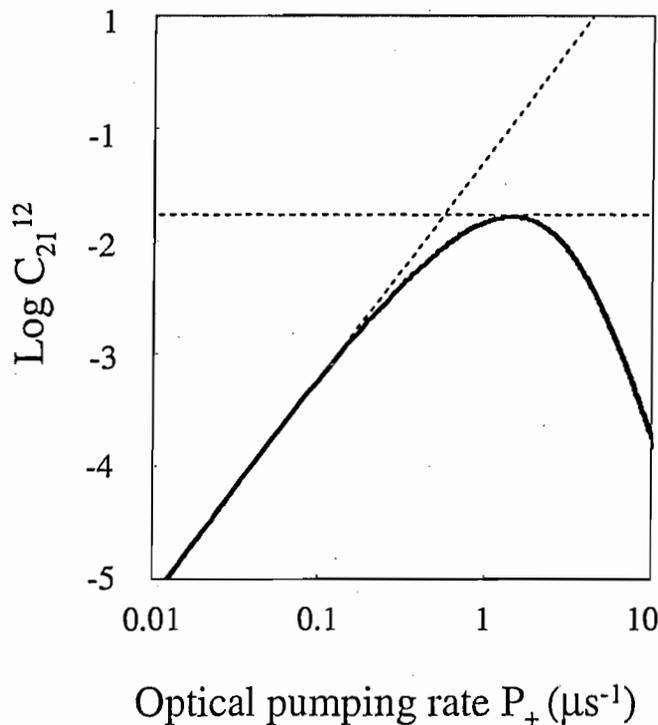


図 7.11: オンレゾナンスの光誘起スピンエコーに対する光強度依存性のシミュレーション。

7.4 光誘起スピネコーの実験

7.4.1 オンレゾナンスの光誘起スピネコー

オンレゾナンスの光誘起スピネコーの実験配置図を図 7.12 (a) に示す. オンレゾナンスの光誘起スピネコーの実験は, チタンサファイアレーザーの光を AOM でパルス化して生成光パルス, 制御光パルス, 検出光として使う. チタンサファイアレーザーの発振周波数を ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) 付近で掃引する. 検出に MCD 検出を用いたため, ローレンツ型の吸収線を考えると, それぞれの光の周波数の関係は図 7.12 (b) のようになっている.

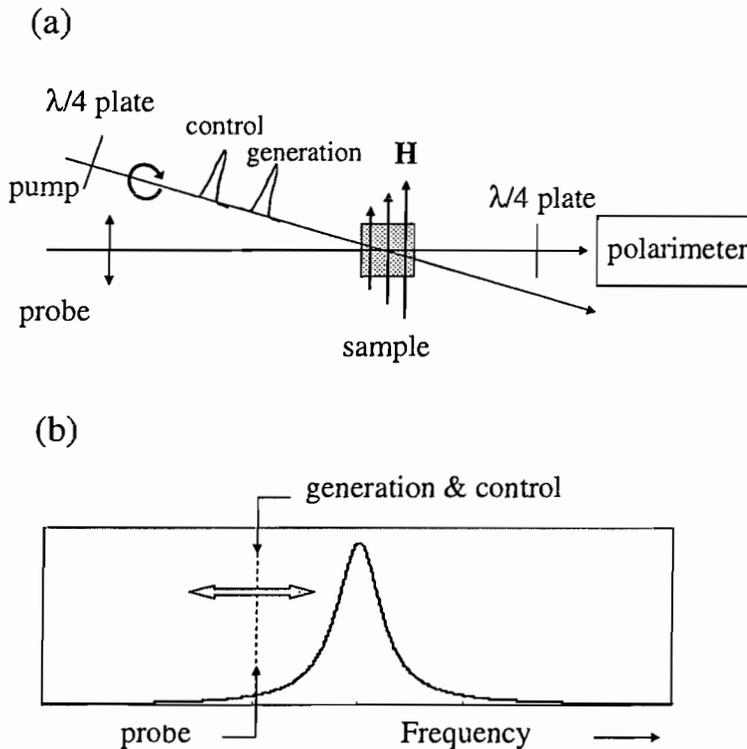


図 7.12: (a) オンレゾナンスの光誘起スピネコーの実験配置図. (b) ローレンツ型の吸収線に対するオンレゾナンスの光誘起スピネコーの生成光, 検出光, 制御光の周波数の関係.

光誘起スピネコーの信号を効率よく測定するために, 試料位置で不均一磁場を外部から印加することによって FID の緩和を早めてある. 不均一磁場を印加していない状態での FID の信号がサンプルの拡散による緩和時間にほぼ等しいことから, 不均一磁場を印加しない状態では $T_2^* = T_2 = T_1$ であることが考えられ, このままでは光誘起スピネコーの信号が観測されないからである.

不均一磁場には、磁場勾配電磁石によって作られる空間的な不均一磁場と、さらにヘルムホルツコイルにホワイトノイズ型の電流を流すことによって揺動磁場をつくり、オシロスコープのアベレージ機能を用いて512回積算することによって作られる時間的に不均一な磁場を補助的に用いた。

不均一磁場の磁場分布は、図7.13(a)に示すような、不均一磁場によって緩和を早められたFIDの信号をフーリエ変換することによって得ることができる。そこで得られたフーリエスペクトルを、低磁場の ^{87}Rb の基底状態において、磁場に対する副準位の分裂が0.7 MHz/Oeであることを用いることによって横軸を磁場に変換することが可能である。この変換によって得られた不均一磁場の強さの分布を図7.13(b)に示す。図7.13(b)から不均一磁場の磁場分布の半値半幅が2 Oe程度であることが読み取れる。

7.4.2 不均一磁場の生成

不均一磁場の生成について詳しく説明する。ここで、作った不均一磁場は、次小節のオフレゾナンスの光誘起スピンエコーでも使われる。

磁場勾配電磁石とヘルムホルツコイルが図7.14のように配置される。磁場勾配電磁石とヘルムホルツコイルが作る磁場は、それぞれ図7.14の(a)と(b)のようになっている。お互いの作る磁場を打ち消す向きに磁場を発生することができるようになっている。こうすることによって、ゼロ磁場付近で大きい磁場勾配が得られるようになっている。

磁場勾配電磁石は、サンプルから少しずれた位置に配置され、図7.14(a)に示すような磁場勾配をつくる。磁場勾配電磁石の作る不均一磁場の広がりを図7.15に示す。其々のグラフの上を示した2つの値は、磁場勾配電磁石に流した電流と磁場勾配電磁石の距離である。測定は、2つの磁場勾配電磁石の中心で行った。図7.15の(a)と(c)から、2つの磁場勾配電磁石の距離を固定して流す電流を変えると磁場の強さが上がり、作られる不均一性も強くなることがわかる。一方、2つの磁場勾配電磁石の距離を変化させると、距離が離れるほど生成される磁場の不均一性が弱くなることがわかる。このことから、本研究で作成した磁場勾配電磁石だけでは、大きな不均一を得るためには、磁場の強さが大きくなってしまふ。このため、ヘルムホルツコイルにより磁場勾配電磁石の作る磁場とは逆向きに空間的に均一な磁場を印加できるようになっており、磁場勾配の空間的な分布を保持したまま任意の磁場を印加できるようになっている。

ヘルムホルツコイルは、磁場勾配電磁石の磁場を打ち消すだけでなく、ホワイトノイズ型の電流を流すことによって揺動磁場をつくり、オシロスコープのアベレージ機能を用いて512回積算することによって作られる時間的に不均一な磁場を作る。ヘルムホルツコイルに流れる電流は、図7.16のように一定周期で変化する。生成光パルスと制御光パルスは、一周期にそれぞれ一度だけ入射される。入射タイミングは、図7.16の下に示すように流れる電流が変化してから流れる電流値

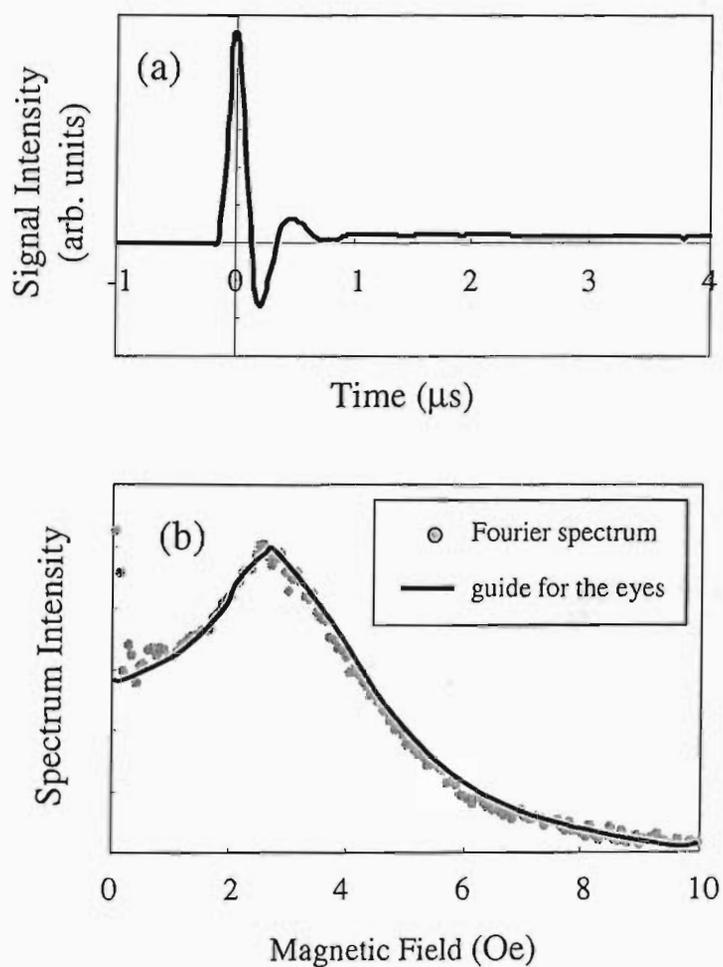


図 7.13: 不均一磁場の磁場分布. (a) 不均一磁場中での ^{87}Rb 基底状態の FID 信号. (b) (a) をフーリエ変換し横軸を磁場に換算して得た不均一磁場の分布.

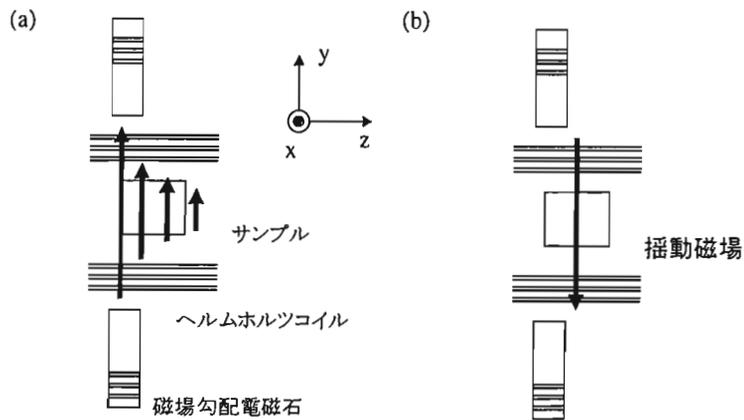


図 7.14: 不均一磁場の生成. (a) 磁場勾配電磁石の作る磁場. (b) ヘルムホルツコイルの作る磁場.

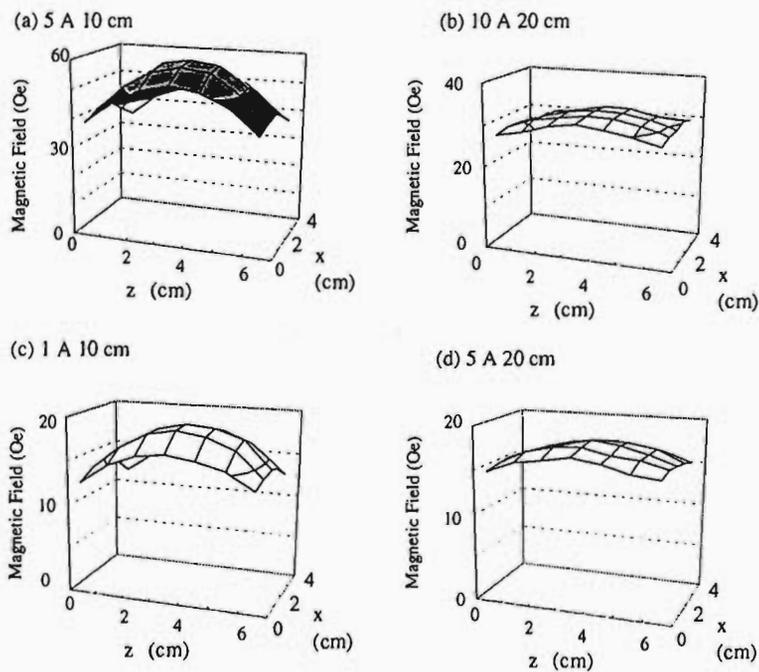


図 7.15: 磁場勾配電磁石の作る磁場の不均一分布. (a) 磁場勾配電磁石を 10 cm 離して配置し, 電流を 5 A 流した時. (b) 距離 20cm 電流 10 A. (c) 距離 10cm 電流 1 A. (d) 距離 20cm 電流 5 A.

が一定のになってからである。揺動磁場のみを使って光誘起スピンエコーの信号を得ることが可能である。バッファガスにヘリウム 5 Torr を封入したルビジウムを用いた揺動磁場のみのオンレゾナンスの光誘起スピンエコーの結果を図 7.17(a) に示す。図 7.17(b) は、図 7.17(a) の信号を得たときの揺動磁場の不均一分布である。この分布は、ヘルムホルツコイルに流した電流値を磁場に換算したものである。ここから得られる、不均一分布の半値半幅は 1 Oe 程度であり、磁場勾配電磁石と揺動磁場を組み合わせた不均一磁場の不均一分布の半値半幅に近い。このことから、バッファガスにヘリウム 5 Torr を封入したルビジウムの光誘起スピンエコーを観測するために必要な不均一磁場の不均一幅は数 Oe 程度である。

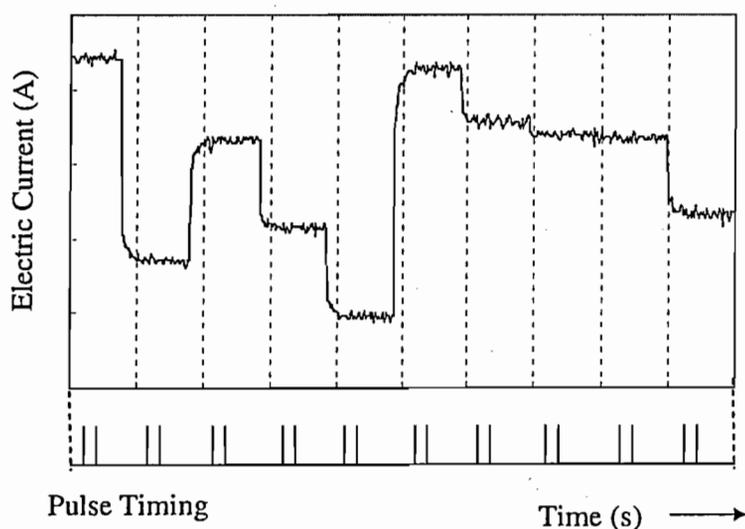


図 7.16: 揺動磁場を作るためにヘルムホルツコイルに流す電流。下は、生成光と制御光のパルス列の入射タイミング。

揺動磁場のみによる不均一磁場の不均一分布は、ガウス関数でフィッティングが可能であり、磁場勾配電磁石と揺動磁場がつくる不均一磁場の不均一分布に比べ非常に綺麗な不均一分布を作ることができる。揺動磁場のみを使うと磁場勾配電磁石のみでは、測定することが不可能であったバッファガス無しのルビジウムセルを用いて光誘起スピンエコーを測定することができる。図 7.18 はバッファガス無しのルビジウムセルを用いたオンレゾナンスの光誘起スピンエコーである。パルス間隔を狭めるにつれエコーが大きくなっていることがわかる。図 7.18 からエコーのピークを見積もることで、バッファガス無しのセルについて図 7.19 のようにプロットすると緩和時間を見積もることもできる。ここで得られた位相緩和時間 T_2 は $0.8 \mu\text{s}$ であった。この実験での、ビーム径は 1.5 mm 程度、温度は 75°C 程度であり、この時のトランジットタイムの計算値は $\sim 8 \mu\text{s}$ であり一致しない。こ

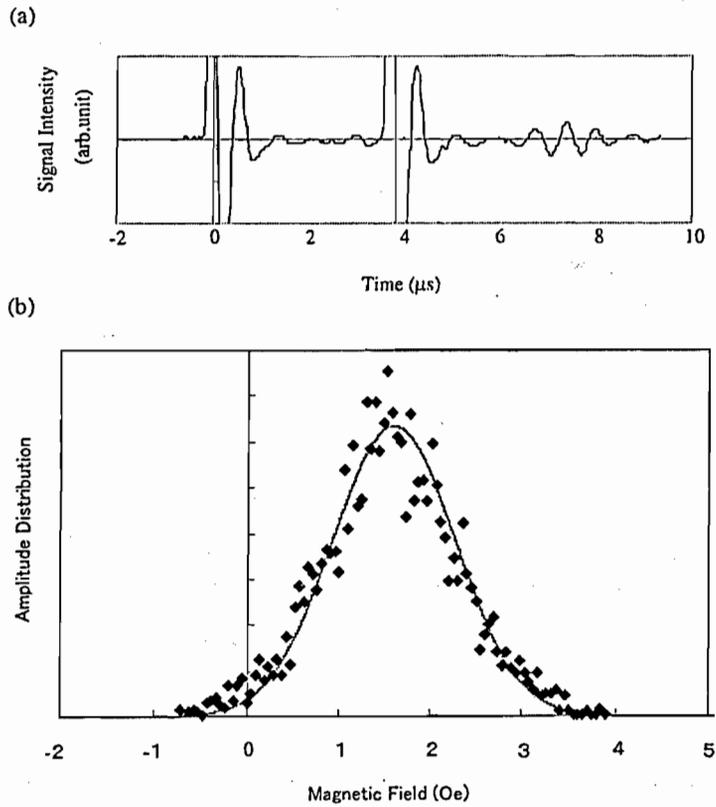


図 7.17: (a) バッファガスにヘリウム 5 Torr を封入したルビジウムを用いた揺動磁場のみのオンレゾナンスの光誘起スピンエコー. (b) (a) を得たときの磁場の不均一分布. 横軸は, ヘルムホルツコイルに流した電流を磁場に換算することによって得られる. ガウス関数でフィッティングした.

れは、得られたデータ点が少なかったため、緩和時間を正しく見積もれなかったためと考えられる。

図7.18の光誘起スピンエコーが得られた時の揺動磁場による不均一磁場の不均一広がりには図7.20のようにになっている。バッファガスにヘリウムが5 Torr封入されたセルを用いた時に比べ、不均一性が増していることがわかる。バッファガス有りのセルの拡散方程式に従う緩和に比べバッファガス無しの場合はトランジットタイムによるものになるため緩和が速くなる。光誘起スピンエコーが現れるのは位相緩和時間内なので、緩和時間が短くなった分FIDを大きく潰さなくてはならないので揺動磁場の不均一性が増した。

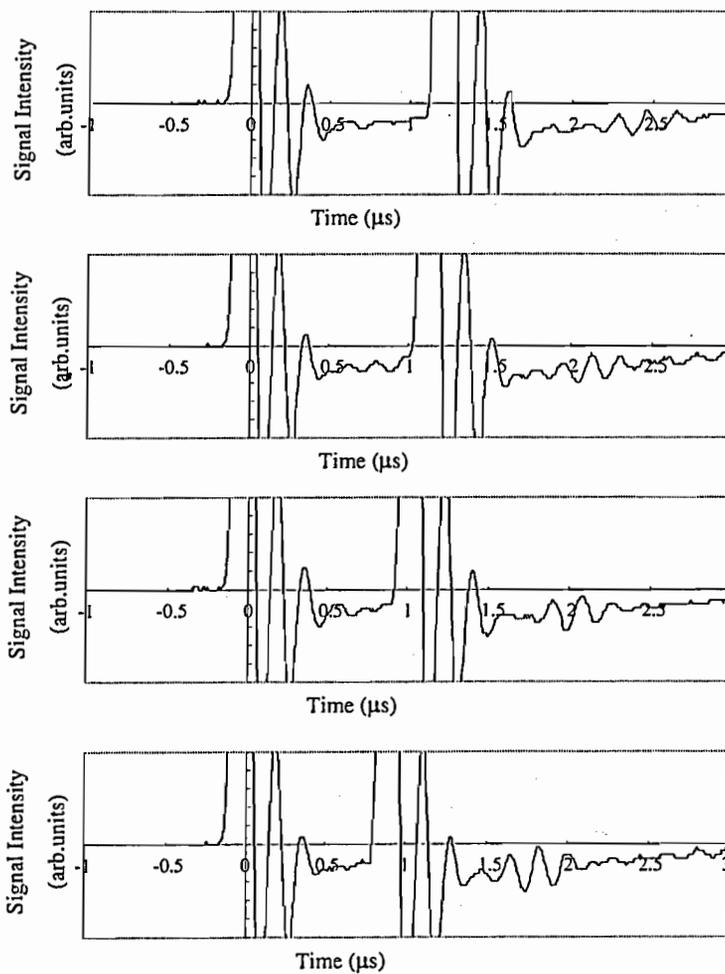


図 7.18: バッファガス無しのルビジウムセルの揺動磁場のみを用いたオンレゾナンスの光誘起スピンエコー。

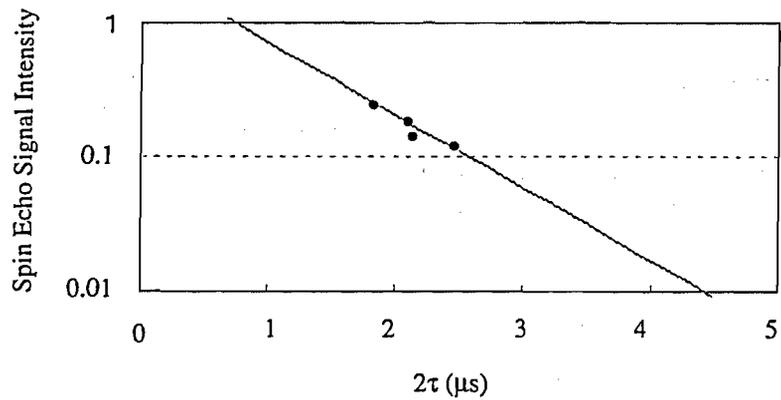


図 7.19: バッファガス無しのルビジウムセルにおいて揺動磁場のみを用いたオンレゾナンスの光誘起スピンエコーの緩和時間の測定.

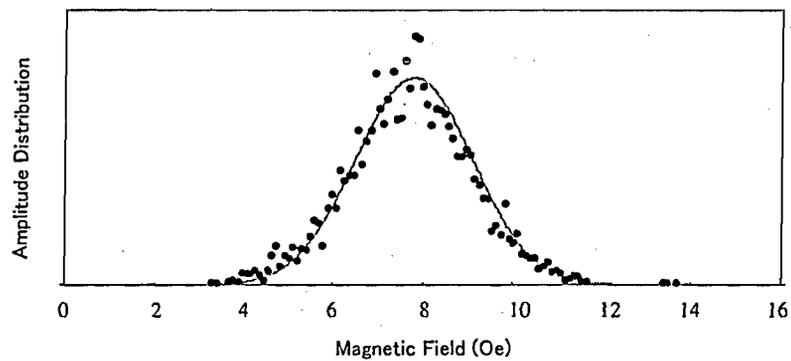


図 7.20: 図 7.18 を得たときの揺動磁場の不均一分布. 横軸は, ヘルムホルツコイルに流した電流を磁場に換算することによって得られる. ガウス関数でフィッティングした.

7.4.3 オフレゾナンスの光誘起スピンエコー

オフレゾナンスの光誘起スピンエコーの実験配置図を図 7.21 (a) に示す. オフレゾナンスの光誘起スピンエコーの実験は, 半導体レーザーの光を AOM でパルス化して生成光パルスと検出光パルスとして, またチタンサファイアレーザーの光を AOM でパルス化して制御光パルスとして使う. 半導体レーザーの発振周波数を ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) の遷移に固定し, チタンサファイアレーザーの発振周波数を ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) 付近で掃引する. 2 台のレーザーを用いて, MCD 検出を行うことによって光誘起磁化の検出感度を固定することができる. ローレンツ型の吸収線を考えると, それぞれの光の周波数の関係は図 7.21 (b) のようになっている. 試料位置での磁場環境は, オンレゾナンスの光誘起スピンエコーと同様, 空間的な不均一磁場と時間的な不均一磁場によって不均一磁場をつくっている. 検

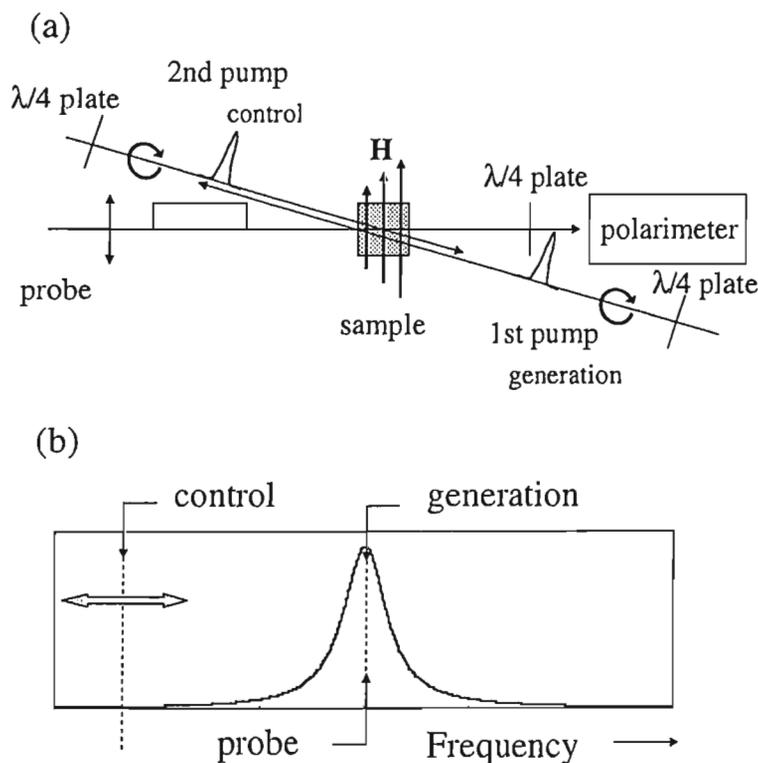


図 7.21: (a) オフレゾナンスの光誘起スピンエコーの実験配置図. (b) ローレンツ型の吸収線に対するオフレゾナンスの光誘起スピンエコーの生成光, 検出光, 制御光の周波数の関係.

出光を ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) の遷移に固定して, 生成光を掃引することによって得られる FID 信号の振幅を測定することによって検出感度を調べることができる. 図 7.22 に横軸に生成光の離調周波数, 縦軸に FID の振幅の大きさをプロット

したグラフを示す。図から ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) と ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 2$) の遷移で信号が現われていることがわかる。これは、この二つの遷移の基底状態が同じなので、励起状態が違っても同じ基底状態に磁化を生成していて、それを検出しているからである。

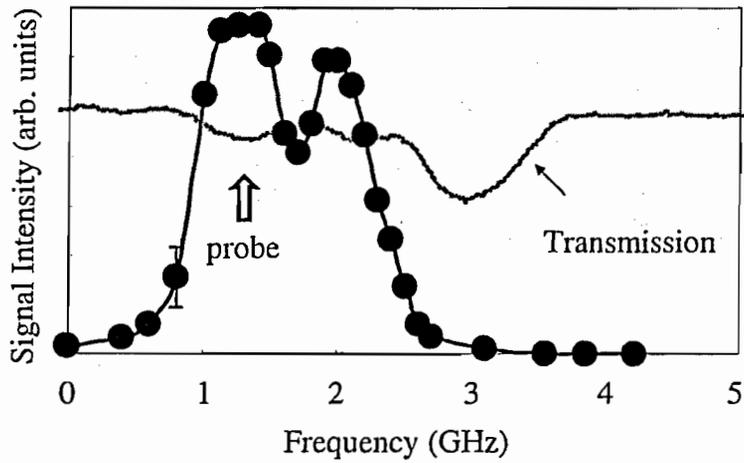


図 7.22: 検出光を ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) に固定して生成光を掃引した時に得られる FID 信号の振幅。レーザーの周波数安定性と検出系の電氣的なノイズに起因する特性上のエラーバーを、測定データの一つに示す。

7.5 光誘起スピネコーの実験結果

オンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーの信号強度の周波数依存性を図 7.23 と図 7.24 に示す。

オンレゾナンスの光誘起スピネコーの実験において、生成光パルスと検出光、制御光パルスは、すべて 1 台のレーザーからつくられ、それらの光の周波数は同時に掃引される。オンレゾナンスの光誘起スピネコーの信号は、それぞれの吸収線のピーク付近で現れていることがわかる。一方、オフレゾナンスの光誘起スピネコーの実験において、生成光パルスと検出光は、一台のレーザーから作られ、制御光パルスはもう一台のレーザーによって作られる。生成光パルスと検出光の光周波数は、 ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) の遷移に固定され、制御光パルスの光周波数がその周りを掃引される。オフレゾナンスの光誘起スピネコーの信号は、吸収線の外側でピークを持つことがわかる。また、+1 GHz 付近に理論曲線から大きく外れる部分があることがわかる。

次にオンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーの信号強度の制御光パルス幅依存性をそれぞれ図 7.25 と図 7.26 に、生成光パルス幅依存性を図 7.27 に示す。オンレゾナンスの光誘起スピネコーは、 $\Delta = 0$ で、オフレゾナンスの光誘起スピネコーは、レーザーの光周波数を ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) の遷移から $\Delta = -5$ GHz 離調させて測定を行った。オンレゾナンスの光誘起スピネコーの信号強度は、最大値をとった後、単調に減少し、オフレゾナンスの光誘起スピネコーの信号強度は振動する振る舞いを示す。光誘起スピネコーの信号強度の生成光パルス幅依存性は、パルス幅の増加とともにある値に向かって漸的に増加していく。

最後に、任意軸周りの回転の実験の結果を図 7.28(a) と (b) に示す。y 軸方向に不均一磁場が印加されているとする。生成光と検出光は不均一磁場に対して垂直な方向 (z 軸) に入射される。図 7.28(b) は、制御光を生成光と検出光、および不均一磁場の方向に対して垂直な方向 (x 軸) に入射した場合のスピネコーの信号である。比較のために、生成光と検出光、制御光のすべてを同方向 (z 軸) に入射した場合のスピネコーの信号を図 7.28(a) に示す。両方の光誘起スピネコーともに、時刻 0 で生成光が、時刻 τ に制御光が入射されると、時刻 2τ のところでエコーの信号が現れている。すべて同方向に入射した場合は、時刻 0 の生成光による FID の位相と時刻 2τ にあるエコーのピークの位相が同じであるが、垂直に制御光を入射した場合は、生成光の FID の位相と光誘起スピネコーの位相が反転している。

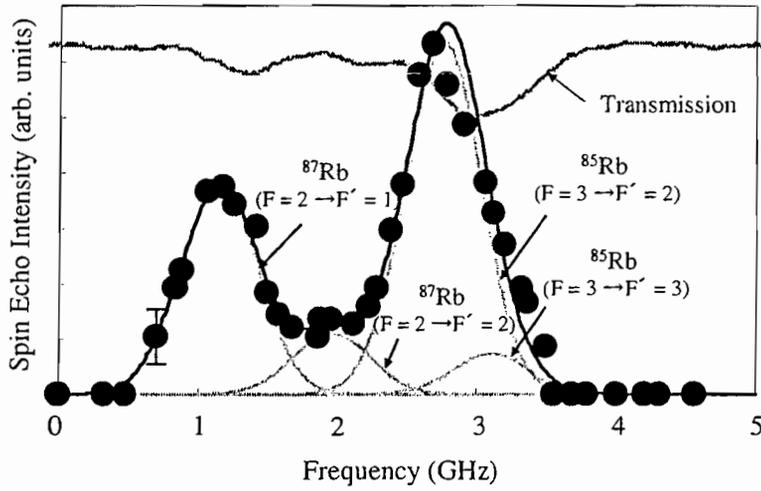


図 7.23: オンレゾナンスの光誘起スピンエコーの信号強度の周波数依存性. レーザーの周波数安定性と検出系の電氣的なノイズに起因する特性上のエラーバーを, 測定データの一つに示す.

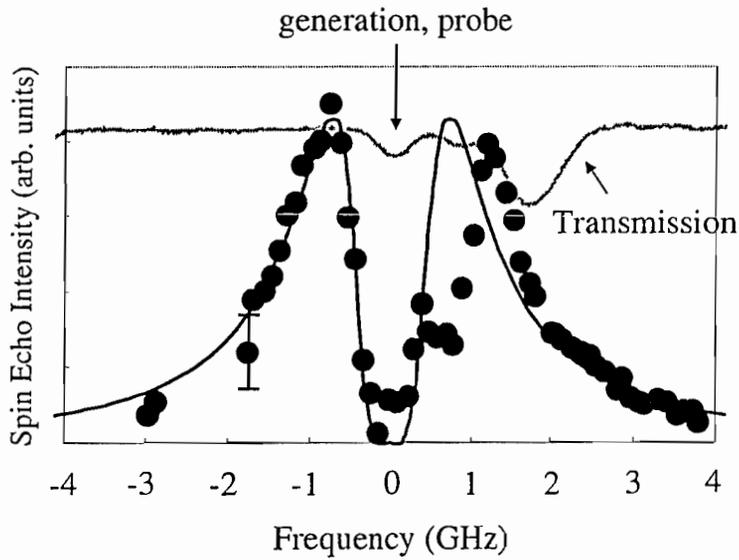


図 7.24: オフレゾナンスの光誘起スピンエコーの信号強度の周波数依存性. レーザーの周波数安定性と検出系の電氣的なノイズに起因する特性上のエラーバーを, 測定データの一つに示す.

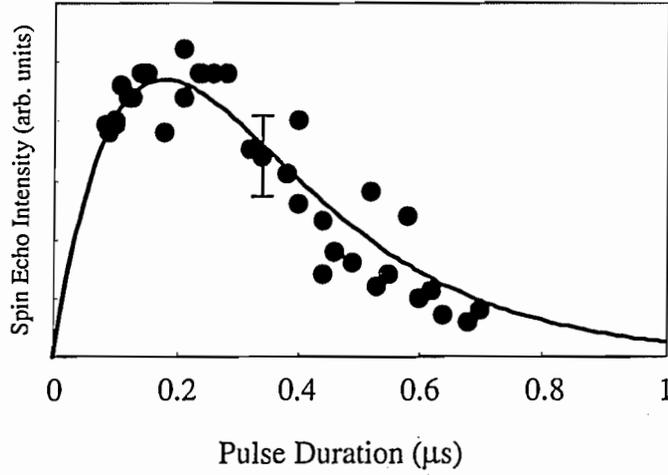


図 7.25: オンレゾナンスの光誘起スピネコーの信号強度の制御光パルス幅依存性. レーザーの周波数安定性と検出系の電氣的なノイズに起因する特性上のエラーバーを, 測定データの一つに示す.

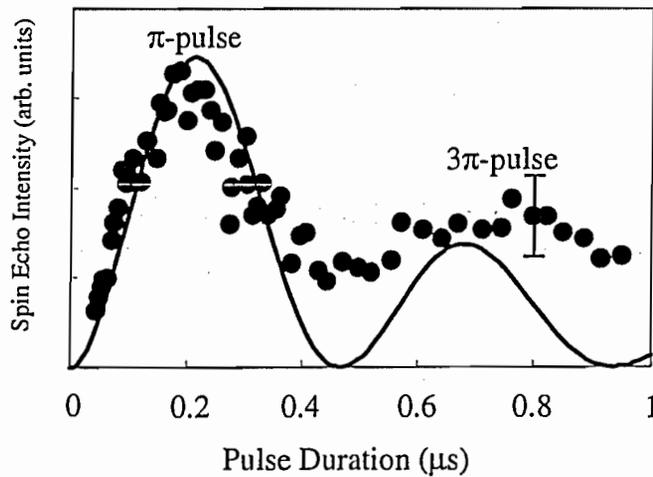


図 7.26: オフレゾナンスの光誘起スピネコーの信号強度の制御光パルス幅依存性. レーザーの周波数安定性と検出系の電氣的なノイズに起因する特性上のエラーバーを, 測定データの一つに示す.

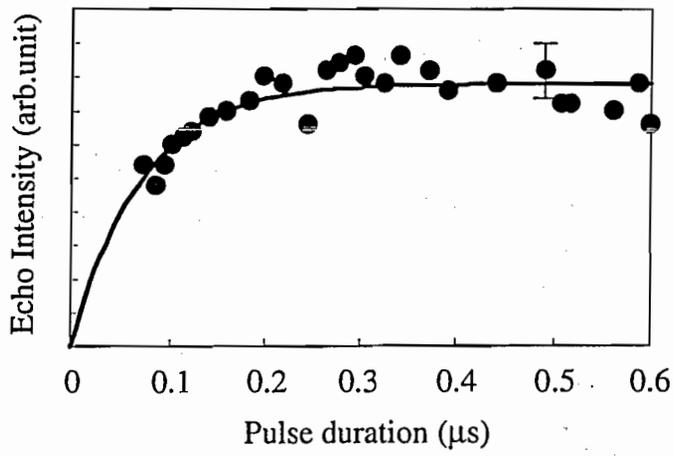


図 7.27: 光誘起スピリエコーの信号強度の生成光パルス幅依存性. レーザーの周波数安定性と検出系の電氣的なノイズに起因する特性上のエラーバーを, 測定データの一つに示す.

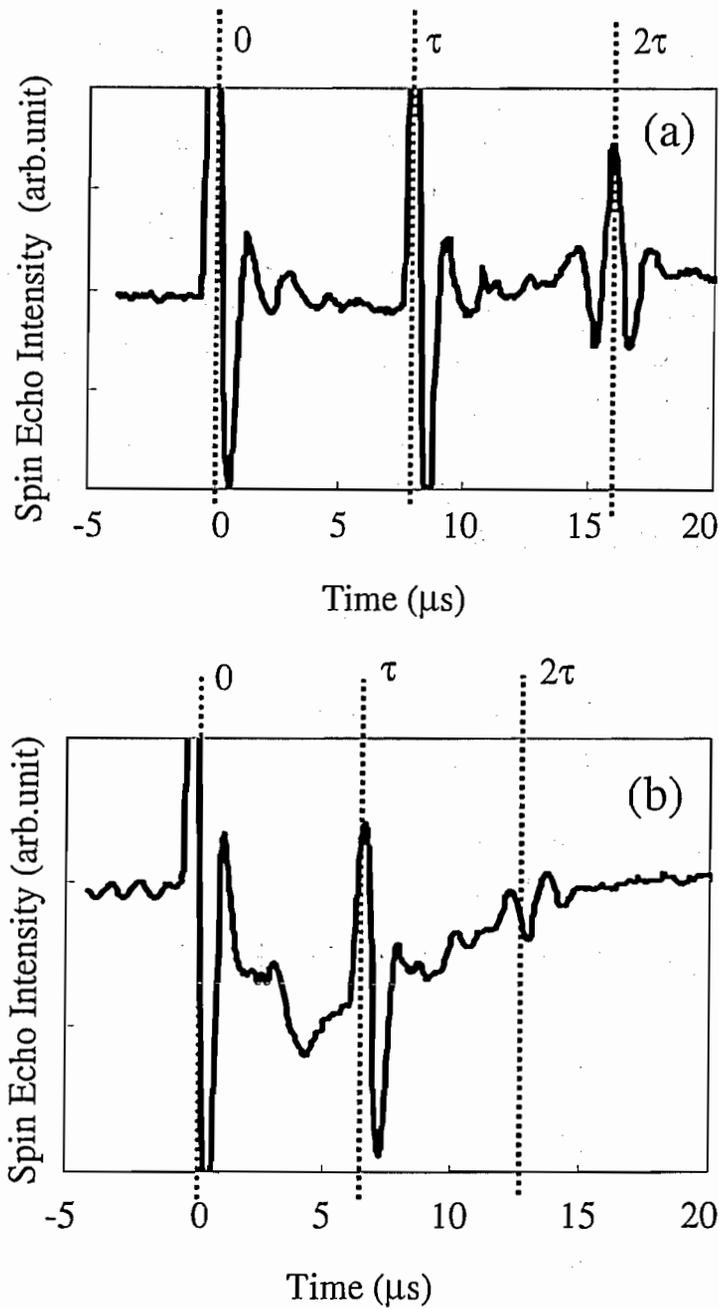


図 7.28: 任意軸周りの回転. 生成光と検出光は, 印加磁場に対して垂直な方向に入射される. (a) 生成光と検出光に対して同方向に制御光を入射した場合の光誘起スピンエコー信号. (b) 生成光と検出光の方向および印加磁場の方向に対して垂直に制御光を入射した場合の光誘起スピンエコー信号.

7.6 光誘起スピネコーの実験の考察

光誘起スピネコーは、生成光パルスによって光誘起磁化を生成し、制御光パルスの効果によって生成された光誘起磁化を制御することによって現れる。制御光パルスの効果の違いから、発現の原理の異なるオンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーの二つのタイプに分けることができる。

オンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーは、それぞれ、制御光パルスの光ポンピングの効果とライトシフトの効果を用いて発現する。従来の光誘起スピネコーの実験において、オンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーは、同時に起こっていると考えるのが妥当である。しかしながら、ジャストレゾナンスでは光ポンピングの効果が顕著になり、大きく離調をとったところではライトシフトの効果が顕著になるため、オンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーは、ジャストレゾナンスと大きく離調をとった領域では、お互いの寄与を無視できる。この章では、オンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーの振る舞いについて議論していく。

7.6.1 ベクトルモデル

図 7.29 と図 7.30 に示すような、オンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピネコーのベクトルモデルを考えた。先に述べた理由から、ジャストレゾナンスと大きく離調をとった領域では、それぞれ、このベクトルモデルのように磁化が発展しエコー信号が現れると考えられる。

これらのベクトルモデルは、簡単のために、

1. 励起状態の寿命が基底状態のコヒーレンスの位相緩和時間に比べて非常に短い。
2. 熱平衡状態では磁化が存在しない。
3. y 軸方向に不均一磁場が印加されたサンプル中を、レーザー光が z 軸方向に伝播する。
4. 実験室系のベクトルモデルである。
5. 基底状態が $J = 1/2$ 。

のような条件のもとで考えた。

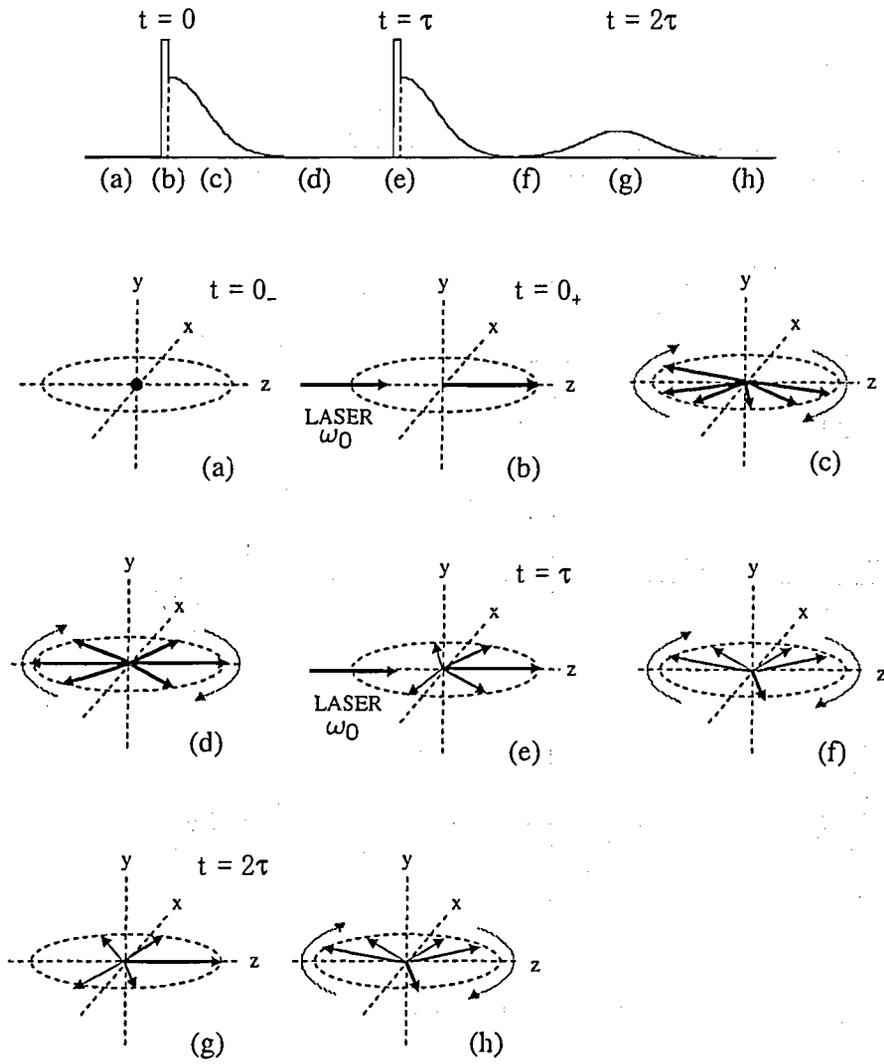


図 7.29: オンレゾナンスの光誘起スピンエコーのベクトルモデル.

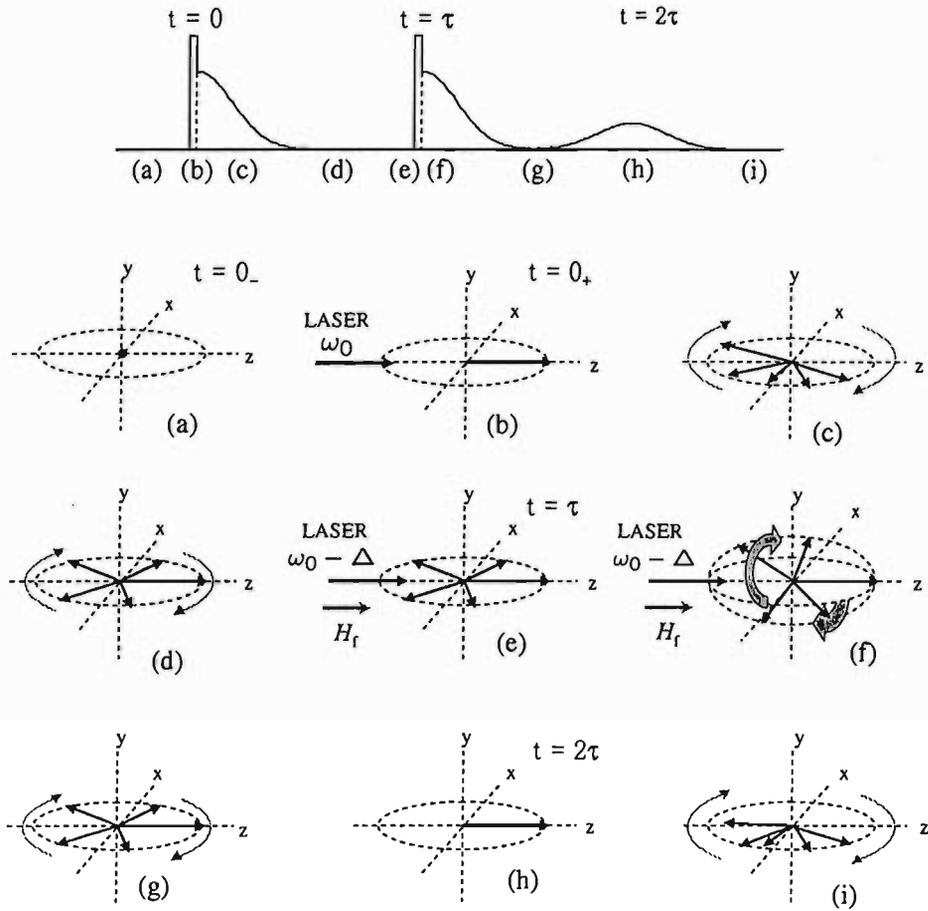


図 7.30: オフレゾナンスの光誘起スピンエコーのベクトルモデル.

両ベクトルモデルとも、以下のように時間発展を行う。(a) 熱平衡状態では光誘起磁化は存在しない。(b) $t = 0$ で入射される生成光パルスによって、 $+z$ 方向に、光誘起磁化が生成される。(c) 生成光の後で、サンプルに印加された不均一磁場の効果により、各々のスピンは、異なるラーモア周波数 ω_L で歳差運動する。(d) 見掛け上、巨視的なスピン分極が消える。ところまでは、同じである。(e) $t = \tau$ で、オンレゾナンスでは原子の共鳴周波数 ω_0 の周波数の光が、オフレゾナンスでは原子の共鳴周波数から離調した $\omega_0 - \Delta$ の光が入射され、その後のスピンの時間発展が異なってくる。

オンレゾナンスの制御の場合、 $t = \tau$ で入射される光は、円偏光励起の光ポンピングの効果によって、基底状態の副準位のスピンの選択的に減らされる。その結果、図 7.29 (e) に示すような、 $-z$ 方向のスピンを $+z$ 方向のスピンより多く抜き去るもしくは、コヒーレンスを壊すような効果をもつ。制御光パルスの後、不均一磁場によって再びスピンの位相が乱されるが、 $t = \tau$ で $+z$ 方向を向いている磁化

は、 $2\pi n/\tau$ (n は整数)の角速度を持っているので、図7.29 (g)のように $t = 2\tau$ で再び、 $+z$ 方向に揃う。 $2\pi n/\tau$ 以外の角速度を持っている磁化は、より早く回るかより遅く回るので、制御光パルスによって抜き去られたスピンを無視しても、 $t = 2\tau$ で、図7.29 (e)の形は再現はされない。これが、オンレゾナンスの光誘起スピネコーの信号が、100%磁化を復活できない理由の一つであると考えられるが、図7.29 (e)の状態より乱れても、図7.29 (g)のように巨視的には $+z$ 方向の磁化が多いためエコー信号は観測される。一方、オフレゾナンスの制御の場合、 $t = \tau$ で入射される制御光パルスは、ライトシフトの効果による仮想的な磁場の効果を持つ。このため、ライトシフトの効果による仮想的な磁場の大きさが外部磁場より十分大きいとし、掛けられるパルスが、 z 軸周りにスピンを 180° 回転させる π パルスであるとすると、図7.29 (e)のように、スピンは制御光の周りを回転して位相反転することになる。位相反転したスピンは、もともと持っていた角速度を維持して回転するため、 $t = 2\tau$ で再び揃うことになりエコー信号として現れる。

制御光パルスによる制御は、磁気共鳴による制御と似ており、任意軸周りの回転という意味では、オフレゾナンスの効果を用いるのがよいことがわかる。

7.6.2 光誘起スピネコーの周波数依存性

図7.23のオンレゾナンスの光誘起スピネコーに関する信号強度の周波数依存性のスペクトルは、同じ波長の励起光と検出光を用いたMCD検出によるFID信号の信号強度の周波数依存性に酷似している。これは、上記のようなFID信号は磁化の生成効率を表わす信号であり、遷移確率と光ポンピングの効果に密接に関係しているため、光ポンピングの効果によって発現するオンレゾナンスの光誘起スピネコーとその効率なども似たような振る舞いをすると考えられる。瞬間的に磁化が生成され、それぞれの準位が縮退してるような簡単な場合を考えると、図7.31のようなモデルで光ポンピングによる光誘起磁化の生成効率を考えることができる。図から基底状態の F 値が励起状態の F' 値より大きい場合は、分布数差が出来やすいが、逆に F が F' 値より小さい場合は、 σ_+ 偏光によって、すべての準位からの励起が可能であり分布数差がでにくいことがわかる。 $F=F'$ の場合は、その中間の状態である。

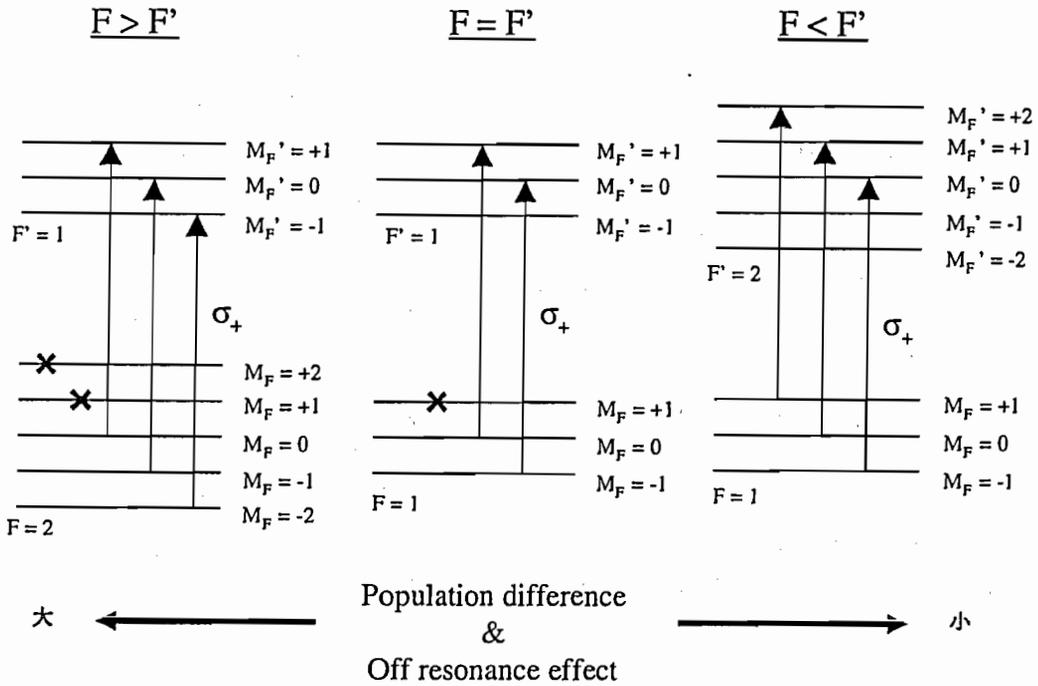


図 7.31: 吸収による効果とオフレゾナンスによる効果.

これらを考慮して、図 7.23 のオンレゾナンスの光誘起スピンエコーに関する信号強度の周波数依存性のスペクトルに対して、図 3.9 に示した吸収の線スペクトルにドップラー広がりによる不均一幅が残っているとして、ガウス型の線幅を考えそれぞれを足し合わせてフィッティングを行った。これにより、それぞれの周波数に対する、オンレゾナンスの光誘起スピンエコーの信号強度への、それぞれの吸収線からの寄与がわかる。同じ波長の励起光と検出光を用いた MCD 検出による FID 信号の信号強度の周波数依存性と同様、 $F = F'$ の時より、 $F < F'$ の遷移の方がオンレゾナンスの光誘起スピンエコーに大きく寄与していることがわかる。

図 7.24 に示した曲線は、式 (7.33) から得られる、オフレゾナンスの光誘起スピンエコーの信号強度に対する理論的な周波数依存性である。ここで、用いたフィッティングパラメーターは、 $t_p = 100$ ns, $\Gamma_2 = 2\pi \times 150$ MHz, $\chi = 2\pi \times 105$ MHz であり、実験値とよく一致する。自然幅より広い Γ_1 の値は、パワーブロードニングによって説明することができる。

+1 GHz 付近の理論曲線からのズレは、その部分に ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 2$) の遷移があり、この遷移は、観測している ^{87}Rb ($F = 2 \rightarrow F' = 1$) と同じ基底状態を持つため、観測している基底状態からポピュレーションを抜き去る、もしくは、コヒーレンスを壊す効果がおこり、エコー信号の減衰を引き起こしていると考え

られる。

7.6.3 光誘起スピンエコーの制御光パルス幅依存性

図 7.25 と図 7.26 はオンレゾナンスとオフレゾナンスに対するスピンエコー強度の制御光パルス幅依存性とその理論曲線である。理論曲線は、式 (7.33) から得られる。図 7.25 に用いたフィッティングパラメーターは、 $\Delta = 0$, $\Gamma = 2\pi \times 17$ MHz として、 $\chi = 2\pi \times 8$ MHz である。この理論曲線は、実験結果によく一致している。一方、図 7.26 に用いたフィッティングパラメーターは、 $\Delta = 2\pi \times 0.8$ GHz, $\Gamma = 2\pi \times 120$ MHz として、 $\chi = 2\pi \times 82$ MHz である。理論の結果から、磁気共鳴における π -パルス、 3π -パルスに対応する振動が予想される。 2π -パルスが無い理由は、実験配置によるもので、 2π -パルスの回転を受けた磁化は、再び元の位置に戻り、位相反転しないからである。理論的に予想される振動の振る舞いは、実験でも観測されている。しかしながら、 $0.5 \mu\text{s}$ と $0.9 \mu\text{s}$ 付近で理論曲線と一致しない部分がある。これは、エコー信号として現れるのは最低でも、 $\pi/2$ -パルス以上回転したスピンであり、レーザー光の光強度の空間的な不均一分布によって、レーザー光周りをスピンが回転をするときに回転速度にバラつきがあるためであると考えられる。

図 7.27 は、オンレゾナンスの光誘起スピンエコーにおけるスピンエコー強度の生成光のパルス幅依存性であるが、このような振る舞いは、オフレゾナンスの光誘起スピンエコーにおいても同様の結果が得られると考えられる。本研究においては、生成光パルスの光周波数は MCD 信号の比較的大きかった $^{87}\text{Rb}(F = 2 \rightarrow F' = 1)$ という遷移に固定し、光誘起磁化の生成効率を変えずに実験できるようになっている。生成光パルスが生成する磁化の増加は、単純に制御光パルスによって制御される磁化が増える効果しかないため、スピンエコー強度の生成光のパルス幅依存性は、単純に光ポンピングの効果に関係する。よって、光ポンピングの効果と同様、 $f(t) = A(1 - e^{-\gamma t})$ という式でフィッティングできる。

7.6.4 スピンの任意軸周りの回転

ここでは、スピンの任意軸周りの回転について議論する。図 7.28(a) で得られた生成光と光誘起スピンエコーの位相が同位相になることは、図 7.30 に示したオフレゾナンスの光誘起スピンエコーのベクトルモデルによって説明することができる。このベクトルモデルによると、生成光の方向と同じ方向にエコーのピークが現れることがわかる。図 7.28(b) で得られた生成光と光誘起スピンエコーの位相が反転していることも、オフレゾナンスの光誘起スピンエコーのモデルを用いることによって説明することができる。ただし、図 7.30(e) における制御光パルスの入射方向を z 軸から x 軸方向に変える必要があり、さらに制御光入射後の発展も変える必要がある。光誘起磁化は、制御光の周りを回転することになるので、制御光

の入射方向を x 軸に変えると、図 7.30(f) の磁化の回転も x 方向になる。制御光が π パルスであったとすると、図 7.30(h) の時刻 2τ で、光誘起磁化の揃う方向はこの時 $-z$ 方向になり、生成光の FID とスピネコーの位相が逆位相であることが説明できる。図 7.29 のオンレゾナンスのベクトルモデルを考えた場合は、生成光と検出光に対して垂直に制御光を入射すると光誘起スピネコーの信号は観測されないことがわかる。ここで行った制御光を同軸と垂直に入射した場合の光誘起スピネコーと光誘起磁化の純光学的制御で行った任意軸周りの回転から、 x 軸、 y 軸および z 軸すべてについて光誘起磁化を制御光の周りに回転できたことになる。任意軸周りの回転は、この x 軸、 y 軸、 z 軸方向の回転の重ね合わせで表現できる。このことより、純光学的手法を用いてスピンの任意軸周りの回転が可能になったと考えられる。

8 まとめと展望

本研究は、ルビジウム原子において、ポンプ-プローブ法と偏光分光法を用いたスピンコヒーレンスの光制御を実現し、これまで実現されてなかったライトシフトによる仮想的磁場の発生を利用したスピンの純光学的制御によって、磁気共鳴におけるスピンの制御と同様な制御が可能であることを示したものである。本研究により、以下のことが実現された。

1. 自由誘導減衰 (FID) 信号を観測することにより、磁化の生成を確認し、磁場中のスピンの位相を検出した。
2. 有効磁場の大きさや方向を光でスイッチすることによりスピン歳差の周波数や位相の制御を実現した。
3. スピンの任意軸の周りの回転を確認した。

光によるスピン制御を理想的に行うためには、次のパラメーターあるいは条件を適性に調節することが必要不可欠である。

- ビームの重なり
- ビームの光強度の空間的な均一性
- 離調周波数
- 光強度

さらに本研究では、光誘起スピンエコーの実験を行った。密度行列によるアプローチにより、いままで全く別のものとして発展してきたオンレゾナンスとオフレゾナンスの光誘起スピンエコーを統合する理論を考察した。オンレゾナンスとオフレゾナンスの両方に対して、パルス幅依存性や光強度依存性などの実験を行い、本研究で求めた理論でよく説明できることを示した。また、2種類の光誘起スピンエコーに対してベクトルモデルを考え、磁気共鳴のような理想的なスピン制御には、オフレゾナンスの効果を用いなければならないことを示した。

磁気共鳴で行われるスピンエコーは、主に T_2 緩和を測定するために利用される。以前に行われてきた光誘起スピンエコーの実験は、本文で述べたように、吸収や検出感度の影響を受けて、 T_2 緩和の測定は困難であったが、本研究で行った実験により、以下の条件が確立されたため、純光学的手法によって T_2 緩和を測定できる可能性があると考えられる。

- 光による制御によって理想的な $\pi/2$ -パルス、 π -パルスのスピン制御が可能である。
- 2台のレーザーを用いることで、光誘起磁化の生成効率と検出感度を固定できる。

- スピンの任意軸周りの回転が可能である.

純光学的手法によって T_2 緩和の測定が可能になれば、磁気共鳴では測定不可能であった、広帯域で速い緩和を持つ試料の T_2 も測定できるようになり、種々の物質の構造解析やダイナミクスの解明に応用できる可能性があると考えられる。

試料にルビジウム原子を用いた本研究では、連続発振のレーザーから切り出したパルスを用いてスピン制御の実験を行ったが、もちろんパルスレーザーを使った実験にも適用できる。従来のライトシフトによる仮想的な磁場の実験ではシャープな吸収線を使い、吸収の効果は全く無視できる大きな離調をとって実験が行われてきたが、超短パルスレーザーを用いた実験の場合は、試料などの制約から、吸収の影響の存在を常に考慮しなければならない。パルスレーザーの場合、パルス幅や、ビームの重なり等の制御に関わると考えられるパラメーターを容易に変化させることが困難なため、スピン制御の実現にはまだ克服すべき問題が残っている。

ルビジウム原子のエネルギー準位構造は、比較的簡単ではあるが、超微細構造により非常に隣接した準位による吸収や同位体の吸収が存在する。近年、このライトシフトによる仮想的な磁場の効果に注目して、磁性半導体における超短パルスレーザーを用いた純光学的なスピン制御の実験が行われた。そこで行われた実験は、時間領域や波長領域は異なるが用いられた原理は、基本的に本研究で用いた原理と同じものになっている。このため本研究で得られた結果は、定性的に超短パルスレーザーを用いた純光学的なスピン制御の実験に移行できると考えられる。

A スピンの光制御の応用

A.1 量子情報

近年、量子状態を制御し情報に応用する量子情報の分野に関心が高まってきている [47]. スピン制御もこの中の一つである. 量子情報の分野の中核をなすものに量子計算によって動作する量子コンピューターがあげられる. 量子計算では、量子状態間の位相関係が量子力学的相関を持った「重ね合わせ状態」を利用して計算を行なう. 本研究で行った光パルスによって生成される基底状態のコヒーレンスは $S=1/2$ 系で実験を行えば 1 量子ビットに相当する. 量子計算の間にはこの「重ね合わせ状態」を保持している必要がある. しかし、実際の物理系では、コヒーレンスを乱すデコヒーレンス要因（緩和現象）によって、重ね合わせ状態が崩される. 従って、位相緩和時間の十分長い系を選ぶと共に、位相緩和時間に比べて十分短い時間で量子計算を行なう必要がある.

光を用いた量子状態の制御によって、トラップされた原子やイオンを用いたエンタングルされた量子ゲートや配列された原子を用いた原子キュービットのレジスターなどが実現されている. 最近では、量子ゲートや量子レジスターの実現に伴い、量子コンピューターの研究も盛んに進められるようになった. 現在、図 A.1 に示すようにトラップされた原子やイオンの量子状態の制御に光を用いる研究は、光学的な遷移を用いた制御が主流である [7, 8]. 近年では、トラップされた原子やイオンに関して、エンタングルメントや量子ゲートが実現され [48, 49, 50, 51], 配列された原子に関しては、原子キュービットのレジスターが実現している [52, 53]. これらは、量子演算に必要不可欠なものである.

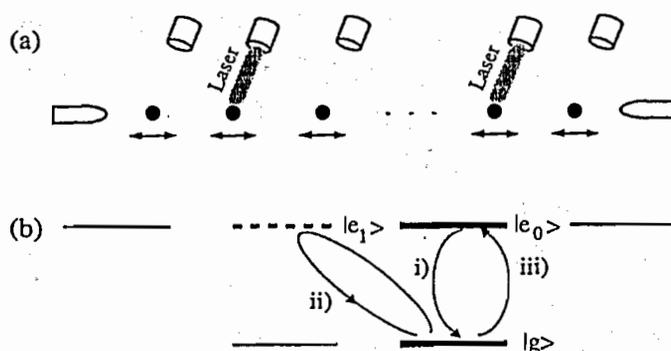


図 A.1: トラップされた原子のレーザー光による制御. (a) N 個のレーザー光と相互作用する線形トラップにおける N 個のイオン. (b) 原子の準位図.

現在提案されている量子計算の設計法として、上記のトラップされた原子やイオンの量子状態をレーザー光で制御するのとは異なる方法として、スピンをラジオ波で制御する方法があげられる. 近年、スピン系を用いた量子コンピューター

が核磁気共鳴を用いた核スピンの制御によって実現された [54, 55]. このタイプの量子コンピューターは、現存する量子コンピューターの中で最も量子ビット数が多く、一番進んだ量子コンピューターである. 核磁気共鳴による量子計算は、核磁気共鳴がスピン系を空間的にも時間的にも制御できることによって可能になっている. しかしながら、核磁気共鳴によるスピン制御は、制御速度の点で実用的な価値は低い. スピン制御を純光学的手法を用いて行うことができるならば、磁気共鳴を発展させ、より高速なスピン制御が可能になると考えられる.

低温の磁性半導体の伝導電子において、スピンの超高速コヒーレント制御が議論されているが、コヒーレンスの緩和時間が短い室温付近では実用的応用は困難である [10]. 本研究でルビジウムに対して行った研究は、固体中のスピン系に対しても応用できると考えられる. 液体ヘリウム温度で秒のオーダーの緩和時間をもつ希土類イオン ($\text{Tm}^{2+}:\text{CaF}_2$ など) [56, 57, 58], 室温でもナノ秒を超えるスピン緩和時間をもつ遷移金属イオン ($\text{Cr}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$) [59, 60, 61, 62, 63] などに対して、同様の原理が適用できると考えられるため、本研究は基礎研究として非常に重要な役割を持つ.

A.2 量子位相

ベリーは1984年に、パラメーター空間においてハミルトニアンに対する断熱的变化を行うと幾何学的位相が現れることを示した (ベリー位相) [64]. その後より一般化され、アハラノフとアナンダンは、ハミルトニアンではなくヒルベルト空間の射影である量子系そのものの状態ベクトルに対して、非断熱的な場合でもやはり幾何学的位相が現れることを示した [65]. 現在、量子位相 (断熱的ベリー位相や非断熱的アハラノフ-アナンダン量子位相) は、量子力学の基本的な興味の一つとなっている. 量子位相によって引き起こされる現象としてアハラノフボーム効果 [66] がよく知られているが、それ以外にも核磁気共鳴 [67, 68, 69], 分子 [70], ファイバーにおける偏光 [71], 中性子分極 [72] などの物理系で観測されてきた.

最近になって、電子スピン系におけるアハラノフ-アナンダン量子位相が光学的に検出できることが理論的に示された [73]. アハラノフ-アナンダン量子位相とは、例えば、図 A.2 に示すような、ブロッホベクトル空間において、(I) 有効磁場 $(B_x, 0, B_z)$ のもとで180度回転 ($A \rightarrow C \rightarrow B$), 続いて、(II) x 成分を反転させた有効磁場 $(-B_x, 0, B_z)$ のもとで180度回転 ($B \rightarrow D \rightarrow A$) させてもとの状態に戻す. この過程でブロッホベクトルは元に戻るが、波動関数は経路の幾何で定まる位相因子 $e^{i\gamma}$ (ここで、 $\gamma = 4 \arctan(B_x/B_z)$) だけ変化する.

Li 等の理論 [73] によれば、円偏光の励起光で占有数差 Δn を作り、ポンプ光による幾何学操作を行った後の検出光のファラデー回転角は $\Delta n \cos(\alpha - 2\gamma)$ に比例する. ここで、 α はポンプ光とプローブ光のなす角度、 γ はアハラノフ-アナンダン量子位相である. 位相は経路の詳細には依らず立体角のみで定まる. そのため、コーン型、トライアングル型、スライス型、等の幾何学操作を行って量子位相を

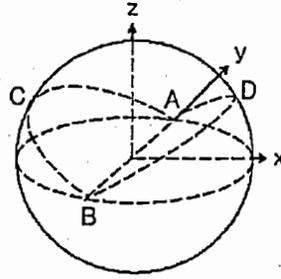


図 A.2: アハラノフ - アナンダン量子位相の説明図 [73].

系統的に観測することによってアハラノフ - アナンダン量子位相が検証できる可能性がある [69].

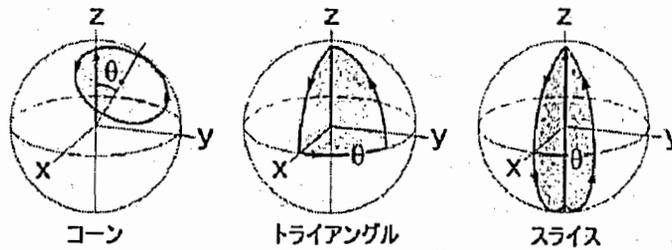


図 A.3: 幾何学操作の例 [69].

電子スピン系におけるアハラノフ - アナンダン量子位相を検証するためには、スピンの光学的制御が必要であるが、特に、任意軸周りの回転において、光による制御がスピンは回転させるが、その状態を変化させないことが重要になってくると考えられる。光によるスピンの制御は数多く行われているが、吸収などの効果によって、上記の条件を満たすような制御の例は少ない。本研究では、ルビジウム原子におけるスピン制御の実験を行い、理想的な光による制御が可能であることを示す。

A.3 スピントロニクス

スピンは様々な方向を向く自由度があるため、エレクトロニクスにおける電子の電荷のみの自由度の利用に対し、電子スピンの自由度の利用は大きな可能性を秘めている。スピンの自由度を利用して電子技術を飛躍させようとするスピント

ロニクス [74] と呼ばれる分野においても、光を用いると高速にスピンを制御できる可能性があるため、スピンの制御に光を利用しようという機運が高まってきている。現在のところ、スピントロニクスにおいて、素子の制御に光を利用する方法としては、円偏光のレーザーを用いてスピンを生成もしくは整列させることによって電流の制御に利用しようとするものが主流である。スピンを光学的に生成するだけでなく、位相や回転を制御することができれば、スピントロニクスへの応用も大いに期待できると考えられる。

A.4 高速スピンドイナミクス

光ポンピング (optical pumping) を用いた電子スピン偏極は、本研究で用いるような気体原子の研究から始まった [16]。しかし、パルスレーザーの出現により、気体原子のみならず、ルビー ($\text{Cr}^{3+} : \text{Al}_2\text{O}_3$) のような固体中の磁性イオンに対して、ボルツマン分布による分布数差が小さい高温・低磁場においてもパルスレーザー光を用いた光ポンピング法によって大きな分布数差を誘起することが可能となった [59, 60, 61, 62, 63]。それ以来、従来の磁気共鳴法のような低温・高磁場の制限を受けず、室温下の固体中及び液体中の磁性イオンにおいて光誘起磁化の研究を行うことが可能になった [75, 76]。

さらに、超短パルス光励起による磁化の変化を時間遅延したプローブ光によって検出する測定も行われ [77]、検出器に高速応答を要しない高時間分解の測定法であるポンプ-プローブ法が磁気測定においても用いられるようになった。このような光パルスによる純光学的手法を用いることにより、従来の測定法では困難であった超短時間領域の高速スピンドイナミクスの直接的な観測が可能となった [78]。近年では、超短パルスレーザーによるポンプ-プローブ法を用いて、金属 [79, 80, 81, 82]、バルク半導体 [83, 84, 85, 86]、希薄磁性半導体 [87, 88, 89, 90, 91] などを対象とした超高速スピンドイナミクスも研究されている。これらは、パルスレーザーを用いることによって光誘起磁化のスピンドイナミクスの観測が原子気体と同様の原理を用いて固体へ応用でき、高速化が可能になったことを示している。近年、序論に示したように低温の磁性半導体の伝導電子において、スピンの超高速コヒーレント制御が議論された [10]。これによると、本研究で行うライトシフトによる純光学的手法を用いたスピン制御も光ポンピング同様、原理は変えることなく固体に応用できると考えられる。この実験は、ライトシフトによって引き起こされる仮想的な磁場をパルス幅で可変する時間の間だけ印加できることを示している。しかしながら、この実験は、図 1.5 に示すように、 $\pi/2$ -パルス付近までしか実験を行っていない。理想的なスピン制御には、磁化を反転させる π -パルスまで必要である。Gupta らはスピンを回転させたことを主張しているが、吸収によって磁化がつぶれただけの可能性も否定できない。本研究では、ルビジウム原子気体において、純粋なスピン回転を実現し、スピンを反転させることに成功した。

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。本研究全般にわたり、多数のご助言と適切なお指導を賜りました神戸大学理学部 福田行男教授、河本敏郎准教授に心より感謝致します。中山和之さん(現 東京大学ポスドク)には、学会やメールを通して色々とお教え頂き感謝いたします。兒山友香さんをはじめとする電波物性物理学研究室の方々には、日々の研究生活だけでなく私生活に関しても数々のご協力を頂きありがとうございました。特に、本研究を通して共に実験を行ってきた、鬼塚雄次さん(現 新日鉄ソリューションズ)、古西一貴君(現 東京大学 M2)、野元大輔君(現 電波物性物理学研究室 M1)、山内崇弘君(現 電波物性物理学研究室 B4)達のおかげで楽しい実験生活を送ることができました。大変感謝致します。また、中園和貴君、阪口元規君達、研究室の卒業生には、在学中だけでなく卒業後も色々な相談にのって頂き感謝致します。最後になりましたが、ここまで温かくご支援いただいた家族に感謝いたします。

参考文献

- [1] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy* 3rd Printing, Springer-Verlag (1988).
- [2] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy* 3rd Printing, Springer-Verlag (1988).
- [3] P. L. Knight, and L. Allen, *Concepts of Quantum optics*, Pergamon press (1983).
- [4] P. Sargent, and M. Sargent, *Elements of Quantum Optics* Second Edition, Springer-Verlag (1991).
- [5] 松岡 正浩, 量子光学, 裳華房 (2006).
- [6] 神保 孝志, 光エレクトロニクス, オーム社出版局 (1997).
- [7] J. I. Cirac and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4091 (1995).
- [8] C. Monroe, *Nature* **416**, 238 (2002).
- [9] J. Skalla, S. Lang and G. Wäckerle, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 772 (1995).
- [10] J. A. Gupta, R. Knobel, N. Samarth, and D. D. Awschalom, *Science* **292**, 2458 (2001).
- [11] C. J. Foot, *Atomic Physics*, (Oxford, 2005).
- [12] Y. Fukuda, K. Yamada and T. Hashi, *Optics Commun.* **44**, 297 (1983).
- [13] T. Mishina, M. Tanigawa, Y. Fukuda, and T. Hashi, *Optics Commun.* **62**, 166 (1987).
- [14] M. Rosatzin, D. Suter, and J. Mlynek, *Phys. Rev. A* **42**, 1839 (1990).
- [15] D. Suter, and M. Rosatzin, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 34 (1991).
- [16] W. Happer, *Rev. Mod. Phys.* **44**, 169 (1972).
- [17] C. Cohen-Tannoudji, *Compt. Rend.* **252**, 394 (1961).
- [18] L. D. Schearer, *Phys. Rev.* **127**, 512 (1962).
- [19] C. W. White, W. M. Hughes, G. S. Hayne, and H. G. Robinson, *ibid.* **174**, 23 (1968).
- [20] B. Cagnac, A. Izrael, and M. Nogaret, *Compt. Rend.* **267**, 274 (1968).
- [21] B. S. Mathur, H. Tang, and W. Happer, *Phys. Rev.* **171**, 11 (1968).

- [22] L. Allen, and J. H. Eberly, "Optical Resonance and Two-Level Atoms", Wiley, New York (1975).
- [23] 理科年表 国立天文台編 平成12年, 鈴木信夫, 丸善株式会社 (2000).
- [24] W. Happer, Phys. Rev. Mod. 44, 169 (1972).
- [25] E. Arimondo, M. Inguscio, and P. Violino, Phys. Rev. Mod. 49, 31 (1997).
- [26] A.N.Nesmeyanov, *Vapor pressure of the chemical elements*, (Elsevier, New York, 1963).
- [27] E. Arimondo, M. Inguscio, and P. Violino, Rev. Mod. Phys. 49, 31 (1977).
- [28] D. Feiertag, G. zu Putlitz, Z. Phys. 261, 1 (1973).
- [29] G. P. Anisimova, V. D. Galkin, and R. I. Semenov, Opt. Spektrosk. 25, 322 (1968).
- [30] H. A. Schüssler, Z. Phys. 182, 289 (1965).
- [31] G. Belin, L. Holmgren, and S.Svanberg, Phys. Scr. 13, 351 (1976).
- [32] G. Belin, S. Svanberg, Phys. Lett. A 47, 5 (1974).
- [33] G. Breit and I. I. Rabi, Phys. Rev. 38, 2082 (1931).
- [34] T. J. Beahn and F. D. Bedard, Phys. Rev. A 16 2203 (1977),
- [35] E. P. Wigner, V. Weisskopf, Z. Physik 63, 54 (1930).
- [36] M. Tanigawa, Y. Fukuda, T. Kohmoto, K. Sakuno, and T. Hashi, Opt. Lett. 8, 620 (1983).
- [37] 國友 正和, 基礎熱力学, 共立出版株式会社 (2000) p.82.
- [38] N. Allard and J. Kielkopf, Phys. Rev. Mod. 54 1103 (1982).
- [39] T. Kohmoto, Y. Fukuda, M. Kunitomo, and K. Isoda, Phys. Rev. B 62 579 (2000).
- [40] 福田 行男, 月刊 "フィジクス" レーザー光誘起磁気共鳴", 6, 680 (1983).
- [41] S. Haroche, High-Resolution Laser Spectroscopy, ed.KShimoda (Springer, Heidelberg, 1976) p.253.
- [42] C. J. Foot, *Atomic Physics*, (Oxford, 2005).

- [43] D. Suter, in *The Physics of Laser-Atom Interactions*, edited by P. L. Knight, and A. Miller, (Cambridge University Press, New York, 2005).
- [44] E. L. Hahn, *Phys. Rev.* **80**, 4 (1950).
- [45] 福田 行男, 光学 第22卷 第5号 p.262 (1993).
- [46] D. Suter, and J. Mlynek, in *Advances in Magnetic and Optical Resonance*, edited by W. S. Warren (Academic, New York, 1991), Vol. 16, p.61.
- [47] 佐川 弘幸, 吉田 宣章, "量子情報理論", シュプリンガー・フェアラーク東京 (2005).
- [48] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, S. R. Jefferts, W. M. Itano, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4011 (1995).
- [49] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, W. M. Itano, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4714 (1995).
- [50] C. A. Sackett, D. Kielpinski, B. E. King, C. Langer, V. Meyer, C. J. Myatt, M. Rowe, Q. A. Turchette, W. M. Itano, D. J. Wineland and C. Monroe, *Nature* **404**, 256 (2000).
- [51] B. Julsgaard, A. Kozhekin and E. S. Polzik, *Nature* **413**, 400 (2001).
- [52] R. Dunke, M. Volk, T. Mütther, F. B. J. Buchkremer, G. Birkl, and W. Ertmer, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 097903 (2002).
- [53] D. Schrader, I. Dotsenko, M. Khudaverdyan, Y. Miroshnychenko, A. Rauschenbeutel, and D. Meschede, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 150501 (2004).
- [54] L. M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood, and I. L. Chuang, *Nature* **414**, 883 (2001).
- [55] L. M. K. Vandersypen, I. L. Chuang, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 1037 (2005).
- [56] T. Kohmoto, Y. Fukuda, M. Tanigawa, T. Mishina, and T. Hashi, *Phys. Rev. B* **28**, 2869 (1983).
- [57] T. Kohmoto, Y. Fukuda and M. Kunitomo, *Phys. Rev. B* **62**, 579 (2000).
- [58] T. Kohmoto, Y. Fukuda and M. Kunitomo, *EPR in the 21th Century: Basics and Applications to Material, Life and Earth Sciences*, (Elsevier Science, Amsterdam, 2002) pp.700-705.
- [59] G. F. Hull Jr., J. T. Smith, and A. F. Quesada, *Appl. Optics* **4**, 1117 (1965).

- [60] J. P. van der Zeil and N. Bloembergen, *Phys. Rev.* **138**, A1287 (1965).
- [61] Y. Fukuda, Y. Takagi, and T. Hashi, *Phys. Letter* **48A**, 183 (1974).
- [62] Y. Fukuda, Y. Takagi, K. Yamada, and T. Hashi, *J. Phys. Soc. Japan* **42**, 1061 (1977).
- [63] T. TAMAKI and K. Tsushima, *J. Phys. Soc. Japan* **45**, 122 (1978).
- [64] M. V. Berry, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **392**, 45 (1984).
- [65] Y. Aharonov and J. Anandan, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1593 (1987).
- [66] D. J. Griffiths, *Introduction to Quantum Mechanics* second edition, p. 384, PEARSON Prentice Hall (2005).
- [67] R. Tycko, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2281 (1987).
- [68] D. Suter, G. Chingas, R.A. Harris, and A. Pines, *Mol. Phys.* **61**, 1327 (1987).
- [69] D. Suter, K. T. Mueller, and A. Pines, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1218 (1988).
- [70] G. Delacretaz, E. R. Grant, R. L. Whetten, L. Woste, and J. W. Zwanziger, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2598 (1986).
- [71] R. Y. Chiao and Y. S. Wu, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 933 (1986); T. Tomita and R.Y. Chiao, *ibid.* **57**, 937 (1986).
- [72] T. Bitter and D. Dubbers, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 251 (1987).
- [73] X. Li, C. Hu, L. Cen, H. Zheng, and Y. Yan, *Phys. Rev. B* **66**, 235207 (2002).
- [74] 大野英男、松倉文礼、大野裕三、*応用物理* **70**, 265 (2001) .
- [75] Y. Takagi, Y. Fukuda, and T. Hashi, *Opt. Commun.* **55**, 115 (1985).
- [76] Y. Takagi, *Opt. Commun.* **59**, 122 (1986).
- [77] D. D. Awschalom and J. Warnock, *IEEE J. of Quantum Electron* **25**, 2570 (1989).
- [78] T. Kohmoto, Y. Fukuda, M. Kunitomo, and K. Isoda, *Phys. Rev. B* **62**, 579 (2000).
- [79] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).

- [80] A. Y. Elezzabi, M. R. Freeman, and M. Johnson, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3220 (1996).
- [81] Ganping Ju, A. Vertikov, A. V. Nurmikko, C. Canady, Gang Xiao, R. F. C. Farrow, and A. Cebollada, *Phys. Rev. B* **57**, R700 (1998).
- [82] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge, *J. Appl. Phys.* **87**, 5070 (2000).
- [83] A. V. Kimel, F. Bentivegna, V. N. Gridnev, V. V. Pavlov, and R. V. Pisarev, and Th. Rasing, *Phys. Rev. B* **63**, 235201 (2001).
- [84] Yu. D. Glinka, T. V. Shahbazyan, I. E. Perakis, N. H. Tolk, X. Liu, Y. Sasaki, and J. K. Furdyna, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 220 (2002).
- [85] D. J. Hilton, and C. L. Tang, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 146601 (2002).
- [86] D. Marshall, M. Mazilu, A. Miller, and C. C. Button, *J. Appl. Phys.* **91**, 4090 (2002).
- [87] D. D. Awschalom, J. -M. Halbout, S. von Molnar, T. Siegrist, and F. Holtzberg, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1128 (1985).
- [88] S. A. Crooker, J. J. Baumberg, F. Flack, N. Samarth and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2814 (1996).
- [89] S. A. Crooker, D. D. Awschalom, J. J. Baumberg, F. Flack, and N. Samarth, *Phys. Rev. B* **56**, 7574 (1997).
- [90] R. Akimoto, K. Ando, F. Sasaki, S. Kobayashi, and T. Tani, *Phys. Rev. B* **57**, 7208 (1998).
- [91] B. Koopmans, J. E. Haverkort, and W. J. M. de Jonge, *J. Appl. Phys.* **85**, 6763 (1999).