

基于 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体的光存储李宗峰¹⁾²⁾ 刘端程¹⁾²⁾ 周宗权^{1)2)†} 李传锋^{1)2)‡}

1) (中国科学技术大学, 中国科学院量子信息实验室, 合肥 230026)

2) (中国科学技术大学, 量子信息和量子科技前沿创新中心, 合肥 230026)

量子存储器是构建未来大规模量子网络的核心器件。由于其超长的量子相干寿命, 稀土掺杂晶体逐渐成为最有希望实现实用量子存储的材料之一。然而掺杂晶体中不可避免的晶格畸变限制了该类材料的吸收深度和存储效率。纯稀土化合物晶体则同时满足了低晶格畸变和高稀土离子密度的需求, 有望实现高存储光效率。 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体是目前研究较多的一种纯稀土化合物晶体, 已经实现了低于超精细能级间距的光学非均匀展宽, 并且理论预测的自旋相干寿命可达1000 s, 是一种颇具潜力的量子存储材料。目前光存储或量子存储功能仅仅在稀土掺杂晶体中实现过, 尚无实验报道纯稀土化合物晶体中的光存储现象。本文报告了在 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体中实现了原子频率梳型光存储。我们通过降温法生长得到了 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 单晶, 实验测得其 $^7\text{F}_0 \rightarrow ^5\text{D}_0$ 跃迁相干时间为55.7 μs , 存储时间1 μs 时的存储效率为1.71%, 展现了这种材料实现光量子存储的原理可行性。通过分析温度依赖的吸收线频率移动, 我们指出在这一材料中实现高效率光存储的主要挑战在于高效率的光谱烧孔。

关键词: 量子存储, 原子频率梳, 六水合氯化铕

PACS: 03.67.-a, 42.50.Ex, 76.30.Kg, 42.50.Ct

1 引言

构建大规模量子网络已成为当代量子信息科学的一个关键主题。由于光纤中指数级的光子损耗, 地面

* 国家重点研发计划项目(批准号: 2017YFA0304100)资助的课题。

† 通信作者. E-mail: zq_zhou@ustc.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: cfi@ustc.edu.cn

纠缠分发的距离当前被限制在百公里量级^[1]。为了实现远距离的纠缠分发和量子态传输，需要基于量子存储器 and 纠缠交换构建量子中继^[2]。到目前为止，已有多种物理系统实现了量子存储功能，具体包括气态原子系综^[3-5]，单原子^[6,7]，NV色心^[8]，和稀土掺杂晶体^[9,10]。由于稀土离子的4*f*电子被外层5*s*和5*p*电子所屏蔽，所以即使在固体中稀土离子仍然保持着近似自由离子的光谱特征和较长的相干时间。因此稀土掺杂晶体作为固态系统已在光存储及量子存储方面展现出诸多优势，如长存储时间^[11-13]，大存储带宽^[14,15]，多模式存储^[16-21]，可集成性^[14,22-24]以及直接支持通讯波段^[25-27]等。

而稀土离子4*f* – 4*f*跃迁有着高相干时间的同时也伴随着与光场的弱相互作用。弱吸收导致的介质低吸收深度限制了稀土掺杂晶体的存储效率上限。而由于杂质稀土离子带来的晶格畸变导致了吸收线展宽的增加和光谱密度的降低，因此通常不能直接增加稀土离子浓度来获得更高的吸收深度。当前基于稀土掺杂晶体的量子存储实验都使用浓度在0.1%以下的低掺杂晶体^[10,24,28-30]，导致了晶体光学吸收深度在较低的1~ 10 cm⁻¹量级。因此在当前众多的基于稀土掺杂晶体的存储演示实验中只有一个实现了超过50%的存储效率，而且使用了长达2 cm的晶体并引入了侧面泵浦的复杂泵浦方案^[10]。

一个解决上述问题的思路是使用全浓度的纯稀土化合物晶体。其晶格环境纯净，没有掺杂导致晶格畸变，而且有着极高的光学密度。EuCl₃·6H₂O晶体是非均匀展宽最窄的稀土材料之一^[31,32]，近年来有关该材料在量子信息中的应用已有一系列研究。Ahlefeldt等人已经在同位素提纯的Eu³⁵Cl₃·6H₂O晶体中观察到⁷F₀ → ⁵D₀跃迁的非均匀展宽为25 MHz，该非均匀展宽已经小于超精细能级间距^[33]。氘化后晶体（EuCl₃·6D₂O）的光学布居数寿命和光学相干时间分别达到了2.6 ms和740 μs^[34]，并且根据哈密顿量预测在特定的磁场大小和方向下，EuCl₃·6H₂O的超精细相干时间可以达到60 s，在氘化后有望达到1000 s^[35]。此外，通过对EuCl₃·6H₂O晶体掺杂少量其他稀土离子，Ahlefeldt等人已经实现了该晶体内邻近Eu³⁺离子的受控光谱操纵，展现出该晶体作为量子处理器的潜力^[36]。这些研究证明了该种材料在量子信息方面的诸多潜在应用，然而至今仍没有在这一类纯稀土化合物晶体中观察到过光量子存储的现象。

本文报道在EuCl₃·6H₂O中实现微秒量级的光信号存储。我们通过降温法晶体生长获得EuCl₃·6H₂O单晶，使用光子回波方法测得了晶体⁷F₀ → ⁵D₀跃迁的相干时间为55.7 μs，并基于原子频率梳（atom frequency comb, AFC）这一量子存储方案实现了经典光的存储，其存储1 μs时的存储效率为1.71%。EuCl₃·6H₂O晶体在低温下⁷F₀ → ⁵D₀跃迁频率偏移量与温度的关系被定量的刻画出来。

2 实验内容及结果

$\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 是一种无色，易潮解，质地较软的晶体，单晶几何外形为扁平的长六边形结构。其属于单斜晶系，具有 C_2 对称性。该晶体生长过程与我们近期报道的 $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体生长方法一致^[37]。图1展示了实验用 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 单晶，厚度约2 mm。图中虚线内区域为存储实验所使用部分，晶体中心为生长初期籽晶附近的缺陷以及悬挂籽晶用的尼龙线。如图所示，晶体的 C_2 轴为垂直于晶体通光面的方向。

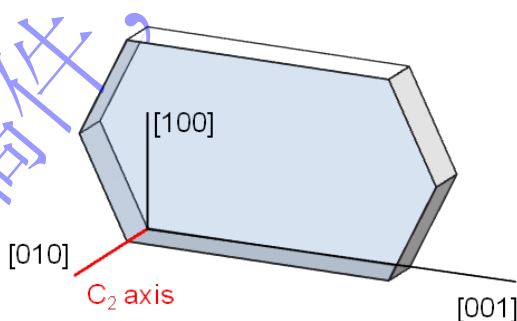
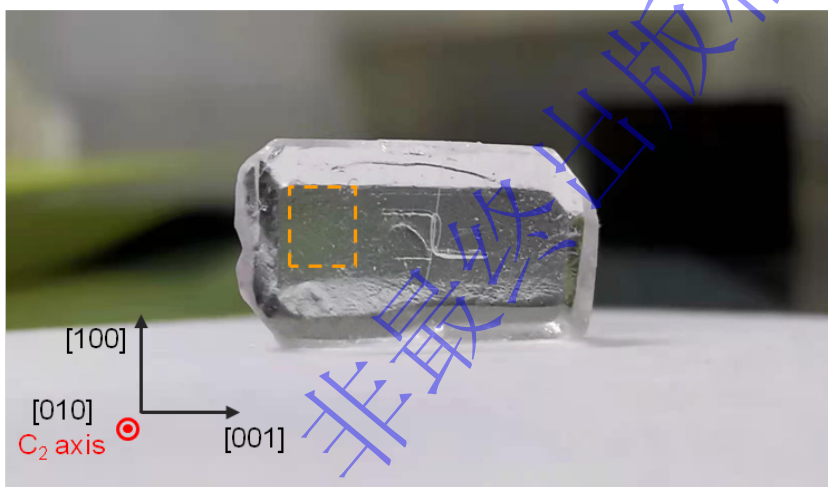


图1 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体，厚度约2 mm，虚线内为存储实验所用区域。晶体的三个轴向标示在示意图中， C_2 轴沿晶体的[010]的方向。

Fig. 1. The $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ crystal used in experiments, with the thickness of 2 mm. The dashed box indicates the area used in the experiment. Crystal's axes are shown in the lower graph, with the C_2 axis along [010] direction.

2.1 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_0$ 跃迁的相干时间测量

实验装置如图2所示。激光源为一台倍频的半导体激光器，其通过一个外部超稳参考腔实现频率稳定，使激光线宽小于10 kHz。晶体被置于温度为3.5 K的低温腔中（Montana Instrument），后续实验均在低温腔的低震动时间周期内完成。一个双通过的声光调制器（AOM 1）被置于样品前的光路中，以实现光开关和频率移动效果。另一个单通过的声光调制器（AOM 2）置于样品之后，用作光开关以阻断

强光进入后面的光电探测器（Thorlabs PDA10A）。两个AOM由一个八通道任意波形发生器（HDAWG，Zuich Instruments）驱动。

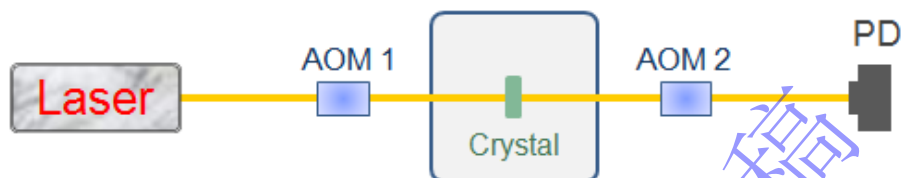


图2 实验装置的示意图。激光器输出的580 nm激光被一个声光调制器（AOM1）所调制，并入射到低温系统内的晶体样品(Crystal)上。输出光场被另一个声光调制器（AOM2）所调制，最终由探测器探测（PD）。

Fig. 2. Illustration of the experimental setup. The 580-nm laser is modulated by an acousto-optic modulator (AOM1) and injected into the crystal sample which is cooled down to 3.5 K by a cryostat. The output laser beam is controlled by another AOM (AOM2) and finally detected by a photodiode (PD).

该实验使用的 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体的吸收深度高达1000 dB/cm量级，当光沿 C_2 轴方向传播时吸收深度最小^[34]。为了获得相对适中的吸收深度，实验中光场在晶体表面的入射角大约 15° （也就是光场传播方向与 C_2 轴夹角）。激光聚焦在晶体上的光斑直径约为 $35\ \mu\text{m}$ 。在3.5 K温度下晶体中 Eu^{3+} 离子的 $^7F_0 \rightarrow ^5D_0$ 跃迁频率为517.148 THz。

光学跃迁的相干时间通过光子回波方法测得。两个持续时间为 $2\ \mu\text{s}$ ，功率密度为 $730\ \text{W}/\text{cm}^{-2}$ 的光脉冲相继进入晶体。记第一脉冲进入晶体的时间为0时刻，第二脉冲进入晶体的时刻为 $\tau/2$ ，则在 τ 时刻晶体将自发产生一同向光脉冲。实验中使用外差方法探测此回波脉冲。在 τ 时刻前后开启AOM 1，输入一束频率相差46.2 MHz的光脉冲，则该脉冲与晶体自发产生的回波脉冲将形成拍频。将光电探测器的信号通过 $46.2 \pm 3\ \text{MHz}$ 的带通滤波器后，送入锁相放大器，从而解调出回波脉冲信号。实验测得回波脉冲幅度衰减如图3所示。对图中数据执行单指数拟合，可以得到晶体中 Eu^{3+} 离子的光学相干时间（ T_2 ）为 $55.7 \pm 2.3\ \mu\text{s}$ 。此处测得相干时间略低于Ahlefeldt等人测得的 $77\ \mu\text{s}$ ^[34]。此处相干时间的差异可能是由于实际测量所处的频率位置不同（相差约1.05 GHz）。

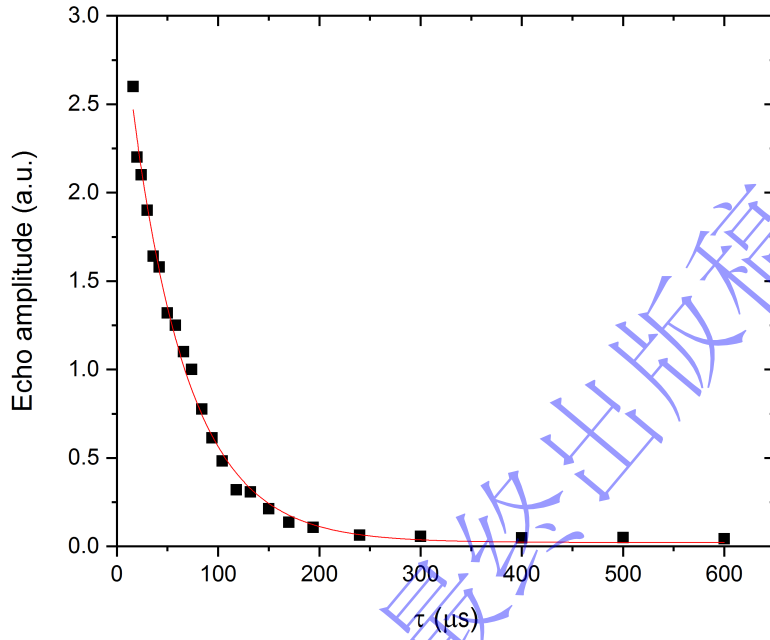


图3 $\text{EuCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ 晶体的光子回波幅度随时间的衰减曲线。拟合得到相干时间 (T_2) 为 $55.7 \pm 2.3 \mu\text{s}$ 。

Fig. 3. The decay curve of two-pulse photon echo amplitude with time in $\text{EuCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$. The optical coherence time (T_2) is $55.7 \pm 2.3 \mu\text{s}$ by fitting the data to a single exponential decay.

2.2 原子频率梳存储

原子频率梳 (AFC) 存储方案是一种基于非均匀展宽调制的系综量子存储方案^[38]。AFC方案是目前稀土离子掺杂晶体中唯一可行的自旋波量子存储方案^[17,29]，具有低噪声和多模式存储的优势。AFC方案通过使用特定频率的光泵浦样品，使其吸收谱特定位置出现吸收减弱（即光谱烧孔技术），从而将样品的吸收谱被制备为由等频率间隔 Δ 的多个吸收峰构成的梳状频谱结构。当一个频率展宽小于AFC展宽的光子输入介质时，该光子被该频率梳吸收，此时离子系综态可以表示为

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{j=1}^N c_j \cdot e^{-i\delta_j t} |g_1 \cdots e_j \cdots g_N\rangle \quad (1)$$

各离子的失谐量为 $\delta_j = m_j \Delta$ (m_j 为整数)。于是当时间达到 $2\pi/\Delta$ 时，各离子随时间演化的相位项 $e^{-i\delta_j t}$ 将重新统一，此时系综将自发形成回波脉冲。

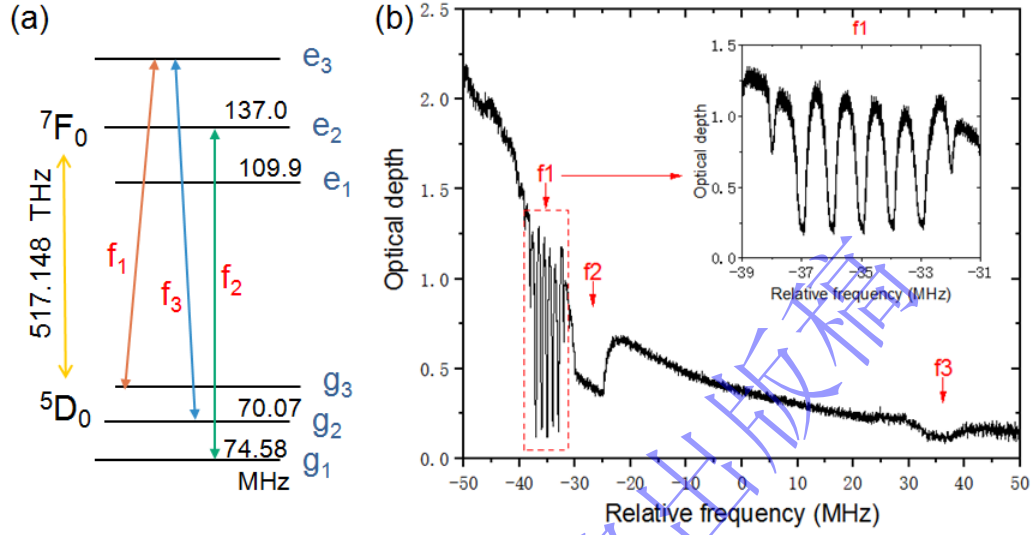


图4 (a) $^{153}\text{Eu}^{3+}$ 离子能级结构。(b)在偏离中心频率位置上制备的AFC结构，其频率中心为517.14873 THz。(b)中插图放大AFC光谱结构。

Fig. 4. (a) The energy diagram of $^{153}\text{Eu}^{3+}$. Three beams with center frequency of f_1 , f_2 and f_3 are applied in a certain sequence to accomplish the spectral-hole burning for AFC preparation (b) The prepared AFC structure with the center frequency is 517.14873 THz. Inset: enlarged view of the AFC structure.

图4(a)所示为 $^{153}\text{Eu}^{3+}$ 离子在 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体中的 $7\text{F}_0 \rightarrow 5\text{D}_0$ 跃迁能级结构^[33]。中心频率为 f_1 ， f_2 和 f_3 的三束激光分别与 $g_3 \rightarrow e_3$ 、 $g_1 \rightarrow e_2$ 、 $g_2 \rightarrow e_3$ 跃迁共振，用来选择非均匀展宽中的一类离子，称为类清空操作。三束激光的平均功率约8 mW，扫频带宽为5 MHz，持续300 ms。完成类清空后，通过扫描 f_2 和 f_3 跃迁（带宽5 MHz，持续时间为220 ms），使得该类离子的电子都处在 g_3 能级上，该步骤被称为自旋极化。类清空和自旋极化完成后，使用并行制梳脉冲^[19]在 $g_3 \rightarrow e_3$ 跃迁上制备带宽为5 MHz的频率梳结构。制梳过程使用的激光功率约5 mW，持续时间共226 ms。

图4(b)展示了目标频率附近的光谱结构。跃迁 f_2 和 f_3 频率处的烧孔效果为类清空和自旋极化的结果， f_1 处为所制得的频率梳结构。由于AFC存储效率受吸收深度影响，因此选择偏离吸收中心以获得合适的吸收深度。光存储的效果如图5(a)所示，黑色曲线为入射光脉冲，红色曲线表示透射光脉冲和存储1 μs 后的再发射脉冲。存储时间为1 μs 时的效率为 $1.71 \pm 0.04\%$ 。AFC理论存储效率可由AFC结构参数计算得到^[39]：

$$\eta_{\text{AFC}} = (d/F)^2 e^{-d/F} e^{-7/F^2} e^{-d_0} \quad (2)$$

其中 F 为梳精细度， d 是吸收深度， d_0 是本底吸收深度。实验中AFC结构参数为 $d = 1.00 \pm 0.08$ ， $d_0 = 0.17 \pm 0.05$ ， $F = 1/0.61$ ，计算得到理论估计的AFC效率为 $1.75 \pm 0.11\%$ ，与实验结果相符。通过调

整泵浦控制的AFC梳间距可以改变AFC存储时间，图5(b)进一步给出了AFC存储效率随存储时间的变化，实际测得的最长存储时间为10 μs 。

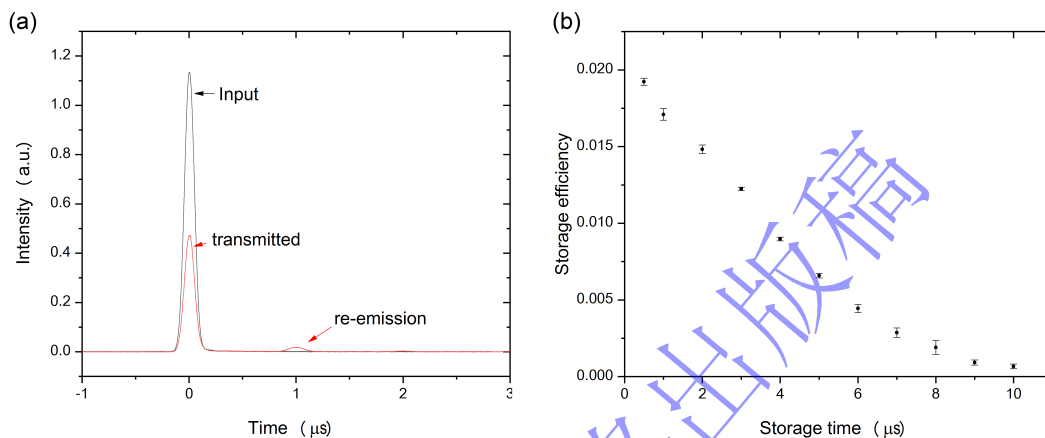


图5 (a)AFC光存储1 μs 结果。存储1 μs 时的效率为 $1.71 \pm 0.04\%$ ，与根据图4(b)中得到的AFC参数理论计算值 $1.75 \pm 0.11\%$ 相符。(b)存储时间为0.5~10 μs 时AFC存储效率变化，由四次测量数据平均得到。

Fig. 5. (a) The AFC memory with a storage time of 1 μs . The storage efficiency at 1 μs is $1.71 \pm 0.04\%$, which agrees with the theoretical efficiency of $1.75 \pm 0.11\%$, estimated from the AFC structure shown in fig.4(b). (b) The storage efficiency with storage time from 0.5 μs to 10 μs . Each data point is averaged by four measurements.

3 ${}^7F_0 \rightarrow {}^5D_0$ 跃迁能级间距与温度的依赖关系

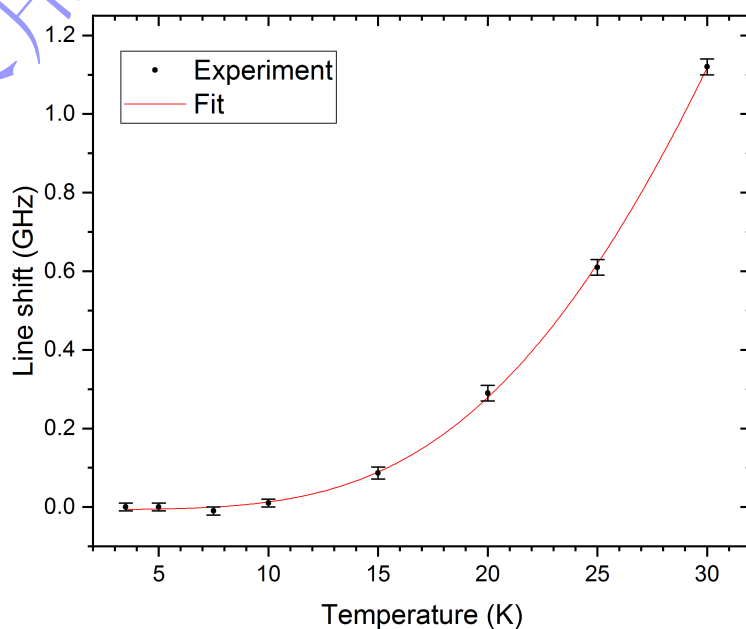


图6 温度导致的 ${}^7F_0 \rightarrow {}^5D_0$ 跃迁频率偏移及理论拟合

Fig. 6. The line shift of ${}^7F_0 \rightarrow {}^5D_0$ depending on the sample temperature.

The curve is fitted using two-phonon Raman-process model^[40,41], giving $\alpha = 4.22 \pm 0.57 \text{ cm}^{-1}$ and $T_D = 144.1 \pm 6.2 \text{ K}$ for this crystal.

实验中烧孔效果不理想导致AFC存储效率不佳。一个可能的原因是烧孔过程中样品升温导致无法实现高效率烧孔。为了分析这一可能原因，我们首先测定 ${}^7F_0 \rightarrow {}^5D_0$ 跃迁的中心吸收频率与样品温度的依赖关系（图6）。在最低工作温度（3.5 K）下，吸收中心位于517.14812 THz。

根据文献[40, 41]，跃迁频率的随温度的变化是由于电子能级与热激发声子发生了耦合。对于单声子过程，只有能级间距与声子能量匹配的跃迁被影响，在本晶体中为 ${}^7F_0 \rightarrow {}^7F_n$ 的跃迁，因此此处忽略。对于更高能级间距的跃迁，可以考虑双声子拉曼过程模型^[40]。在该模型描述下只存在两个自由参数：耦合强度系数和等效德拜温度。等效德拜温度描述了参与相互作用的最大声子能量规模。在该模型下与温度相关的频率偏移量为

$$\Delta E(T) = \alpha \left(\frac{T}{T_D} \right)^4 \int_0^{T_D/T} dx \frac{x^3}{e^x - 1} \quad (3)$$

其中 T 为温度， T_D 为德拜温度， α 为声子耦合强度。使用此公式拟合结果如图7中曲线所示。拟合得到此晶体的耦合强度 $\alpha = 4.22 \pm 0.57 \text{ cm}^{-1}$ ，德拜温度 $T_D = 144.1 \pm 6.2 \text{ K}$ 。与Eu:YSO晶体相比^[41]， $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体有着更低的声子耦合强度和更低的德拜温度。（Eu:YSO中的两个site的数据为： $\alpha = 50 \text{ cm}^{-1}$, 90 cm^{-1} ， $T_D = 420 \text{ K}$, 570 K ）

为理解各参数意义，式(3)在低温和高温下可以近似分别写成^[41]（误差小于5%）：

$$\Delta E(T) = \begin{cases} \frac{\alpha \pi^4}{15} \left(\frac{T}{T_D} \right)^4, & \frac{T}{T_D} < 0.13 \\ \frac{\alpha}{3} \frac{T}{T_D} - \frac{\alpha}{8}, & \frac{T}{T_D} > 1.17 \end{cases} \quad (4)$$

可知 α 为描述频率偏移量随温度变化的快慢的常量因子，而 T_D 描述了频率偏移曲线的横向缩放。频率偏移量在低温下与温度为4次方关系，在高于德拜温度时近似为线性关系。由于声子参与相互作用的模型不同，这里拟合得到的德拜温度与描述热容的德拜温度并不相同^[41]。

实验中观察到持续扫频晶体吸收线将导致其频率整体偏移。使用功率约7 mW的光扫频200 MHz，持续几秒钟，导致频率移动了0.5~1 GHz，这对应晶体的局域温度达到了25 K左右。如此明显的加热效应说明大范围扫频烧孔时大部分光能被晶体吸收，部分通过非辐射跃迁转化为热能从而使晶体局域升温。局部升温后，样品的自旋布居数寿命以及光学能级寿命都将受到显著影响从而限制了烧孔的实际效果。

4 结 论

我们实现了 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 单晶的生长及光存储应用的初步实验探索。实验测得 $^7\text{F}_0 \rightarrow ^5\text{D}_0$ 跃迁的相干时间为 $55.7 \mu\text{s}$ ，在这个相干跃迁上基于原子频率梳方案实现了光信号的存储，存储 $1 \mu\text{s}$ 时的存储效率为1.71%。由于实验中未能实现理想的烧孔效果，因此图4中AFC存在较高的本底吸收，导致了较低的存储效率。通过对晶体吸收线偏移与样品温度依赖关系的分析，我们初步判定实验中用于泵浦烧孔的激光可能导致了样品的显著加热效应，这可能对烧孔效果带来较为本质的限制。本文结果证明了利用纯稀土化合物晶体实现光量子存储的原理可行性，同时也揭示了其中的一个核心技术难点，即高效率的光谱烧孔制备。

致谢

本工作由国家重点研发计划项目（No.2017YFA0304100）支持。

- [1] Sangouard N, Simon C, De Riedmatten H, Gisin N 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 33
- [2] Briegel H J, Dür W, Cirac J, Zoller P 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 5932
- [3] Yu Y, Ma F, Luo X Y, Jing B, Pan J W 2020 *Nature* **578** 240
- [4] Wang Y, Li J, Zhang S, Su K, Zhou Y, Liao K, Du S, Yan H, Zhu S L 2019 *Nat. Photonics* **13** 346
- [5] Corzo N V, Raskop J, Chandra A, Sheremet A S, Gouraud B 2019 *Nature* **566** 359
- [6] Ritter S, Nolleke C, Hahn C, Reiserer A, Neuzner A, Uphoff M, Mücke M, Figueroa E, Bochmann J, Rempe G 2012 *Nature* **484** 195
- [7] Korber M, Morin O, Langenfeld S, Neuzner A, Ritter S, Rempe G 2018 *Nat. Photonics* **12** 18
- [8] Kalb N, Reiserer A, Humphreys P C, Bakermans J J W, Kamerling S J, Nickerson N H, Benjamin S C, Twitchen D J, Markham M, Hanson R 2017 *Science* **356** 928

- [9] De Riedmatten H, Afzelius M, Staudt M U, Simon C, Gisin N 2008 *Nature* **456** 773
- [10] Hedges M P, Longdell J J, Li Y, Sellars M J 2010 *Nature* **465** 1052
- [11] Zhong M J, Hedges M P, Ahlefeldt R, Bartholomew J G, Beavan S, Wittig S M, Longdell J J, Sellars M 2015 *Nature* **517** 177
- [12] Rancic M, Hedges M P, Ahlefeldt R L, Sellars M J 2018 *Nat. Phys.* **14** 50
- [13] Ma Y, Ma Y Z, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2020 arXiv:2012.14605 [quant-ph]
- [14] Saglamyurek E, Sinclair N, Jin J, Slater J A, Oblak D, Bussieres F, George M, Ricken R, Sohler W, Tittel W 2011 *Nature* **469** 512
- [15] Saglamyurek E, Puigibert M G, Zhou Q, Giner L, Marsili F, Verma V B, Nam S W, Oesterling L, Nippa D, Oblak D, Tittel W 2016 *Nat. Commun.* **7** 11202
- [16] Tang J S, Zhou Z Q, Wang Y T, Li Y L, Liu X, Hua Y L, Zou Y, Wang S, He D Y, Chen G, Sun Y N, Yu Y, Li M F, Zha G W, Ni H Q, Niu Z C, Li C F, Guo G C 2015 *Nat. Commun.* **6** 8652
- [17] Yang T S, Zhou Z Q, Hua Y L, Liu X, Li Z F, Li P Y, Ma Y, Liu C, Liang P J, Li X, Xiao Y X, Hu J, Li C F, Guo G C 2018 *Nat. Commun.* **9** 3407
- [18] Sinclair N, Saglamyurek E, Mallahzadeh H, Slater J A, George M, Ricken R, Hedges M P, Oblak D, Simon C, Sohler W, Tittel W 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 053603
- [19] Jobez P, Timoney N, Laplane C, Etesse J, Ferrier A, Goldner P, Gisin N, Afzelius M 2016 *Phys. Rev. A* **93** 032327
- [20] Zhou Z Q, Hua Y L, Liu X, Chen G, Xu J S, Han Y J, Li C F, Guo G C 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 070502
- [21] Usmani I, Afzelius M, De Riedmatten H, Gisin N 2010 *Nat. Commun.* **1** 12
- [22] Zhong T, Kindem J M, Bartholomew J G, Rochman J, Craiciu I, Miyazono E, Bettinelli M, Cavalli E, Verma V, Nam S W, Marsili F, Shaw M D, Beyer A D, Faraon A 2017 *Science* **357** 1392

- [23] Seri A, Lagorivera D, Lenhard A, Corrielli G, Osellame R, Mazzera M, De Riedmatten H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 080502
- [24] Liu C, Zhou Z Q, Zhu T X, Zheng L, Jin M, Liu X, Li P Y, Huang J Y, Ma Y, Tu T, Yang T S, Li C F, Guo G C 2020 *Optica* **7** 192
- [25] Lauritzen B, Minar J, De Riedmatten H, Afzelius M, Sangouard N, Simon C, Gisin N 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 080502
- [26] Craiciu I, Lei M, Rochman J, Kindem J M, Bartholomew J G, Miyazono E, Zhong T, Sinclair N, Faraon A 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 024062
- [27] Puigibert M L G, Saglamyurek E, Tittel W, Jin J, Verma V, Marsili F, Nam S W, Oblak D 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 140501
- [28] Jobez P, Laplane C, Timoney N, Gisin N, Ferrier A, Goldner P, Afzelius M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 230502
- [29] Gundogan M, Ledingham P M, Kutluer K, Mazzera M, de Riedmatten H 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 230501
- [30] Afzelius M, Usmani I, Amari A, Lauritzen B, Walther A, Simon C, Sangouard N, Minar J, de Riedmatten H, Gisin N, Kroll S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 040503
- [31] Binnemans K 2015 *Coord Chem Rev* **295** 1
- [32] Ahlefeldt R L, Hutchison W D, Manson N B, Sellars M J 2013 *Phys. Rev. B* **88** 184424
- [33] Ahlefeldt R, Hush M R, Sellars M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 250504
- [34] Ahlefeldt R, Manson N B, Sellars M 2013 *J. Lumin.* **133** 152
- [35] Ahlefeldt R, Zhong M, Bartholomew J G, Sellars M 2013 *J. Lumin.* **143** 193
- [36] Ahlefeldt R L, Mcauslan D L, Longdell J J, Manson N B, Sellars M J 2013 *Phys. Rev. Lett* **111** 240501

- [37] Li Z F, Liu X, Yang T S, Ma Y, Zhou Z Q, Li C F 2021 *Phys. Lett. A* **399** 127295
- [38] Afzelius M, Simon C, Riedmatten H D, Gisin N 2009 *Phys. Rev. A* **79** 052329
- [39] de Riedmatten H, Afzelius M, Staudt M, Simon C, Gisin N 2008 *Nature* **456** 773
- [40] McCumber D E, Sturge M D 1963 *J. Appl. Phys.* **34** 6
- [41] Könz F, Sun Y, Thiel C W, Cone R L, Equall R W, Hutcheson R L, Macfarlane R M 2003 *Phys. Rev. B* **68** 085109

Atomic frequency comb optical memory in $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ crystal *

Li Zong-Feng¹⁾²⁾ Liu Duan-Cheng¹⁾²⁾ Zhou Zong-Quan^{1)2)†} Li
Chuan-Feng^{1)2)‡}

1) (*CAS Key Laboratory of Quantum Information, University of Science and Technology of China, Hefei, 230026, China*)

2) (*CAS Center For Excellence in Quantum Information and Quantum Physics, University of Science and Technology of China, Hefei, 230026, China*)

Abstract

Quantum memory is a crucial component for the large-scale quantum networks. Rare-earth-ion doped crystals have been a promising candidate for the practical quantum memory because of its very long coherence time. However, doped ions cause unwanted lattice distortion, and consequently reduce the optical depth and the storage efficiency. The stoichiometric rare-earth crystals have low lattice distortion and high rare earth ion density, and thus are expected to enable high-efficiency storage. $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ is a promising material for quantum memory applications because its optical inhomogeneous broadening can be smaller than its hyperfine splitting and the theoretically predicted spin coherence time is up to 1000 seconds. Despite the numerous efforts in solid-state quantum memory based on rare-earth ion doped crystals, optical memory and quantum memory have not been implemented with stoichiometric rare-earth crystals yet. Here, we report the atom frequency comb optical storage using a $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ crystal. A coherence time of $55.7 \mu\text{s}$ is obtained by photon echo measurements on ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_0$ transition. The two-level atom frequency comb storage is demonstrated with a storage efficiency of 1.71% at a storage time of $1 \mu\text{s}$, showing the potential capability of optical quantum storage of this material. Based on the analysis of the line shift of ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_0$ depending on the sample temperature, we highlight the challenge of achieving high-efficiency optical pumping in this material, which imposes a

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No.2017YFA0304100).

† Corresponding author. E-mail: zq-zhou@ustc.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: cfi@ustc.edu.cn

limit on the achievable efficiency.

Keywords: Quantum memory, Atom frequency comb,
Europium chloride hexahydrate

PACS: 03.67.-a, 42.50.Ex, 76.30.Kg, 42.50.Ct

录用稿件，
非最终出版稿