

光格子時計を用いた光周波数標準

安田 正美*
(平成17年11月8日受理)

A survey on an optical frequency standard using an optical lattice clock

Masami YASUDA

1. はじめに

計測標準における周波数標準の役割は、以下の2つに大別される¹⁾。

- 1: 他の物理標準の精度を裏打ちするもの
- 2: 他の標準とは無関係に究極的な精度を追求しうるもの

前者の例としては、光速度（定義量）を介して直結する長さ標準や、ジョセフソン効果を利用した電圧標準などが挙げられる。また、ほとんどの量子標準が、基礎物理定数の恒常性に依存するなかで、後者のアプローチの大きな目標のひとつに基礎物理定数の恒常性（又は非恒常性）の検証がある²⁾。

より安定な発振器を探索してきた周波数標準改良の歴史は、同時に、高周波数化の歴史でもあった。天体の周期運動が時間標準としての役目を終えた1967年以降、セシウム原子の基底状態の超微細構造間マイクロ波遷移（約9.2 GHz）が1秒の定義となっている。現在、このセシウム原子をレーザー冷却技術により極低温まで冷却し、上方に打ち上げることで無摂動状態とした上でプローブする、原子泉方式の原子時計が世界的に主流の方式であり、1次標準としての役割を担っている。2005年現在、この原子時計の精度は 10^{-15} @ 10^8 sである。この標準を凌駕しうるものとして、マイクロ波遷移ではなく光遷移を利用した光周波数標準が提案され、世界各国の標準研究所や大学にて盛んに研究されてきた。さらに、前世紀末に起こった、光コムを用いた光周波数計測技術革新により、光周波数とマイクロ波周波数の直接リンクが可能となり、光周波数計測の精度が一気に向上した³⁾。そして、年代毎のセシウム原子時計と光時計の不確かさをプロットしたグラフ（図1）によれば、2010年ころに、光時計がマイクロ波標準の精度に匹敵するとの予測もあり、将来的に

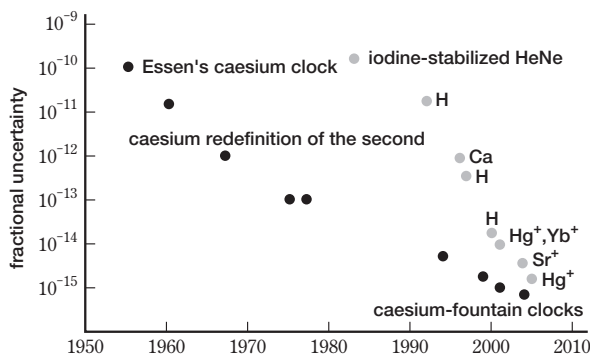


図1 周波数標準の不確かさ向上 (P. Gill 作成)

は光周波数標準への移行が予測される。

光時計の候補としては、従来、次の2種類が挙げられてきた。

- 1: イオントラップ中の単一イオン⁴⁾
- 2: レーザ冷却された中性原子集団⁵⁾⁻¹⁴⁾

前者は、イオントラップ中で強く束縛されており（ラム・ディッケ束縛）、1次のドップラーシフトが除去されている。また、単一のイオンであることから、他原子との相互作用による周波数シフト（衝突シフト）が無いという利点がある。反面、たった1個の原子を観測しなくてはならないので測定のス/N比が小さいという欠点がある。後者は、前者とは逆に約 10^6 個という多数の原子を観測できるので信号強度が強いという利点があるが、完全に束縛されていないので残留ドップラーシフトが存在することや、プローブ光の波面のゆがみに由来するドップラーシフトが存在するという欠点がある。

2. 光格子時計

上記の様に、一長一短のあった従来の光周波数標準の候補に対し、2001年、東京大学の香取はその両者の利点

* 計測標準研究部門 時間周波数科

を両立しうる光格子時計の概念を発表した¹⁵⁾。それから、わずか2年後の2003年にこの原理に基づく原子時計の基礎実験に成功し¹⁶⁾、現時点で最高精度を誇るセシウム原子時計の1桁落ちの精度に到達した¹⁷⁾。光格子時計とは、3次元光格子ポテンシャルに強く束縛された、 10^6 個の極低温中性原子を同時にプローブすることにより、ドップラーシフト、衝突シフトの除去、及び、多数原子による測定のス/N比の向上を同時に実現しうるものである。この条件を実現するために最も重要なことは、光格子レーザに、原子を空間的に強く束縛しながらも、時計遷移周波数には何の影響も及ぼさないという、いわゆるマジック波長が存在することである。この手法は、①熱的原子のレーザ冷却に使用できる強い遷移、②異重項間遷移を用いた弱いレーザ冷却遷移、③非常に弱い時計遷移、の3つの異なる強度の遷移が共存する、多くのアルカリ土類金属やイッテルビウム、水銀などに適用可能な、高い汎用性を持っている(図2)¹⁸⁾。以下では、現在世界で唯一実現されている光格子時計として、ストロンチウム原子を用いた系を例に、その原理と実際について説明する。

2.1 光格子時計の原理

2.1.1 原子の精密分光

自由空間中の原子のスペクトル

自由空間中を速度 \vec{v} で動く原子のスペクトルは、

$$\nu_{abs} = \nu_0 + \frac{\vec{k} \cdot \vec{v}}{2\pi} - \frac{\nu_0}{2} \left(\frac{|\vec{v}|}{c} \right)^2 + \frac{1}{2\pi} \frac{\hbar |\vec{k}|^2}{2m}$$

で表され、原子の無摂動状態でのスペクトル ν_0 に対し、原子の運動による1次のドップラーシフト、2次のドップラーシフト、及び、反跳シフトが加わる。ここで、 \vec{k} は観

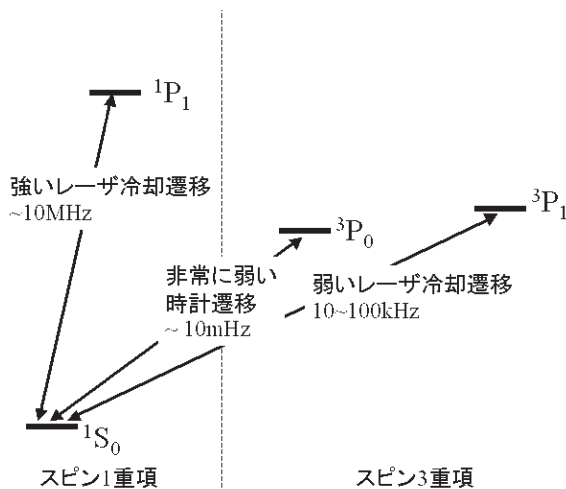


図2 アルカリ土類(様)原子のエネルギー準位図

測光の波数ベクトルである。そのため、原子の無摂動スペクトル ν_0 を観測するためには、これら外部摂動の除去が必要となる。マイクロ波から光周波数へ移行することで、周波数標準の安定度は向上するものの、1次のドップラーシフトも同様に周波数に比例して増大するので、この効果の除去が必要である。レーザ冷却によって、原子を $1\mu\text{K}$ まで冷却したとしても、可視光遷移のドップラー拡がり数は数 kHz にも及ぶ。現在のレーザ周波数安定化技術により、1 Hz 以下の線幅が得られているので、この拡がりを抑えることは極めて重要となる。

原子のラム・ディッケ束縛

原子やイオンが、自身の発する放射の波長よりもずっと小さな大きさの箱に閉じ込められている場合、その放射の波長は1次のドップラー効果の影響を受けない¹⁹⁾。同様に、原子やイオンなどの量子吸収体が、その吸収波長よりもずっと小さな振幅でトラップされている場合、吸収スペクトルのドップラー拡がり数は消失する。(以下、原子やイオンをまとめて原子と呼称する。)

調和ポテンシャル中に捕獲され角周波数 ω_m で振動する原子は、実験室系における無変調の振動電場、 $E(t) = E_0 \sin \omega t$ に対して、位相変調のかかった放射場、

$$E(t) = E_0 \sin(\omega t + \delta \sin \omega_m t)$$

を感じるようになる。この変調電場は、ベッセル関数を用いて展開でき、周波数領域でみると、角周波数の搬送波周波数のまわりに、角周波数 $\omega \pm n\omega_m$ ($1 \leq n \leq \infty$) の側帯波が立ったものとなる。位相変調が弱い場合 ($\delta < 1$)、搬送波だけが生き残る。この条件は以下の様に書き換えられる、

$$\delta \equiv \frac{\Delta\omega}{\omega_m} = \frac{\omega v_{\max}}{\omega_m c} = \frac{\omega x_{\max}}{c} = \frac{2\pi x_{\max}}{\lambda} < 1$$

上式では、ドップラーシフト $\Delta\omega = v_{\max} \omega / c$ と、調和振動子のエネルギーバランス $m v_{\max}^2 / 2 = D x_{\max}^2 / 2 \rightarrow v_{\max}^2 = \omega_m^2 x_{\max}^2$ を用いた。振動の振幅が $d = 2x_{\max}$ に制限されている原子を考えると、この領域の半径が、

$$d < \frac{\lambda}{\pi}$$

の条件を満たしていれば、 $\delta < 1$ が成り立つ。この条件は、ラム・ディッケ条件と呼ばれる。閉じ込めが強くなるにつれて、搬送波周波数の放射が主に吸収されて、側帯波周波数のものは吸収されなくなる。よって、吸収線のドップラー拡がりが無視できる様になる。

また、3次元調和ポテンシャル中の原子のハミルトニアンを考えると、

$$H_i = \frac{\vec{P}^2}{2M} + \frac{M}{2} (\Omega_x^2 x^2 + \Omega_y^2 y^2 + \Omega_z^2 z^2)$$

と表せる。これを演算子表示に直すと、

$$H_i = \sum_i \hbar \Omega_i (N_i + 1/2), N_i = \sum_i a_i^+ a_i$$

となる。ここで、 a_i^+ 、 a_i は各々生成、消滅演算子である。このとき、原子の波動関数は $\Psi = \Psi_x \Psi_y \Psi_z = |n_x\rangle |n_y\rangle |n_z\rangle$ と表せ、正規直交性 $\langle n_i | n_j \rangle = \delta_{n_{ij}} \delta_{ij}$ が成り立つ。シュレーディンガー表示では、

$$|n_x\rangle = (2^{n_x} n_x! \pi^{1/2})^{-1/2} \exp(-M\Omega_x x^2 / 2\hbar) H_{n_x} [(M\Omega_x / \hbar)^{1/2} x]$$

と表せる。ここで、 H_{n_x} は n_x 次のエルミート多項式である。

この原子に対し、運動量 $\hbar\vec{k}$ の光子が入射したとき、原子の散乱断面積は、

$$\sigma \cong \sigma_0 \left| \langle n_i + m | \exp(i\vec{k} \cdot \vec{x}) | n_i \rangle \right|^2 \quad (1)$$

と表せる。ここで、原子がラム・ディッケ束縛されている ($\vec{k} \cdot \vec{x} \ll 1$) とすると、式 (1) の演算子項は、

$$\exp(i\vec{k} \cdot \vec{x}) = 1 + i\vec{k} \cdot \vec{x} - (\vec{k} \cdot \vec{x})^2 / 2 + \dots$$

と展開できるので、

$$\begin{aligned} \sigma &\cong \sigma_0 \left| \langle n_i + m | \left(1 + i\vec{k} \cdot \vec{x} - (\vec{k} \cdot \vec{x})^2 / 2 + \dots \right) | n_i \rangle \right|^2 \\ &\propto \left| \langle n_i + m | n_i \rangle \right|^2 = \delta_{n_i+m, n_i} \end{aligned}$$

以上より、原子がラム・ディッケ束縛されている場合、光子の反跳による他振動準位への励起も抑制され、搬送波スペクトルのみ ($n_i \rightarrow n_i$) の遷移が許容される、すなわち、反跳シフトが除去される。

最終的に、ラム・ディッケ束縛状態にある原子のスペクトルは、

$$\nu_{\text{abs}} = \nu_0 - \frac{\nu_0}{2} \left(\frac{v}{c} \right)^2$$

となり、1次のドップラーシフト、及び、反跳シフトが除去されたものとなる。2次のドップラーシフトは除去できないが、この効果による影響は極低温原子においては極めて小さく ($\approx \mu\text{Hz}$)、また、原子の運動状態が量子化されているため、全原子を振動基底状態に落とし込むことでその大きさを確定し、系統効果として補正することにより、不確定性としては除去が可能である。

2.1.2 光格子による原子のラム・ディッケ束縛

対向する2本のレーザー光による光電場の作る定在波の空間パターンは、

$$E_L(z) = E_0 \{ \cos(kz) + \cos(-kz) \} \quad (2)$$

と表せる。この定在波中で原子は、

$$U(z) = -\frac{1}{2} \alpha |E_L(z)|^2 \quad (3)$$

で表されるシュタルクポテンシャル中にあることになる。ここで、 α は分極率である。この式から分かる様に、分極率 α が正の場合、原子は光強度の強いところに向かって力を受け、その極大が存在する場合、そこに捕獲される。式 (2) を式 (3) に代入すると、

$$\begin{aligned} U(z) &= -\frac{1}{2} \alpha (4E_0^2) \cos^2 kz \\ &= -\frac{1}{2} \alpha \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \cos 2kz \right) = U_0 \frac{1 + \cos 2kz}{2} \end{aligned}$$

ここで、 $U_0 = -\frac{1}{2} \alpha (4E_0^2)$ は、光強度極大の位置でのシュタルクシフトである。これを、原点 $z=0$ の周りで展開すると、

$$U(z) = U_0 - \frac{1}{2} (2U_0 k^2) z^2 + \frac{1}{3} U_0 k^4 z^4 - \dots$$

となり、原点近傍では、調和ポテンシャルで近似できる。このとき振動周波数 (トラップ周波数) は、

$$\Omega = k \sqrt{\frac{2|U_0|}{m}}$$

と表せる。

一方、全ての原子が振動の基底状態にある場合、その振幅は、基底状態の波動関数の広がりから、

$$x_a = \sqrt{\frac{\hbar}{2m\Omega}}$$

となる。よって、ラム・ディッケパラメータ δ は、

$$\delta = kx_a = k \sqrt{\frac{\hbar}{2m\Omega}} = \sqrt{\frac{E_R}{\hbar\Omega}}$$

となる。ここで、 $E_R = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ は反跳エネルギーである。

よって、原子を光格子中でラム・ディッケ束縛するためには、

$$E_R \ll \hbar\Omega = \hbar k \sqrt{\frac{2|U_0|}{m}}$$

の条件を満足すればよい。言い換えれば、観測する光の反跳に対し、十分に強く原子を束縛できる深さを持つポテンシャルを形成できればよい。この条件は、現実的な光強度で実現可能である。

2.1.3 光格子を用いた原子時計システム

光格子時計とは、光格子によりラム・ディッケ束縛された原子を用いる原子時計システムである。原子をラム・ディッケ束縛することにより、原子の熱運動による摂動を受けない精密な分光ができ、原子時計として有利である。さらに光格子を用いる利点として、イオントラップとは異なり、多数の原子をトラップすることにより、一度に多数の原子を参照することができるので、高いS/N比を達成できるということが挙げられる。一方、多数の原子を用いる際に問題となるのが、衝突シフトの影響である。この影響を除去するために、光格子時計システムでは、3次元光格子にトラップされた原子を用いる。図3の様に3次元的な光電場の干渉パターンを作ると、原子は定在波の腹に捕捉され、3次元的な格子状に並ぶ。これを3次元光格子と呼ぶ。このとき、原子は各格子点に束縛され、観測光の波長よりも小さな体積中に閉じ込められ、3次元的ラム・ディッケ束縛条件が達成される。さらに、各格子点においては、原子間斥力相互作用を利用することで、原子数を0個または、1個まで減らすことができる。これにより、原子間衝突シフトを除去できる。

以上により、光格子に捕捉された 10^6 個の原子を用いることにより、高Q値（ドップラーシフト、反跳シフト、衝突シフトの除去）と高S/N比（ 10^6 個の原子）を両立しうる高安定な原子時計システムを構成できる。しかし、光格子中で高精度分光を行うためには、光格子のトラップポテンシャル自身が摂動とならない様、その最適化を施す必要がある。

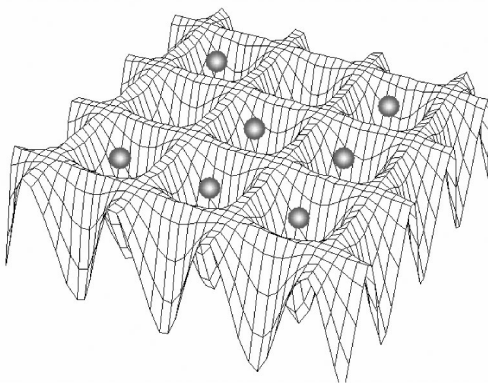


図3 3次元光格子に捕獲された原子の概念図

2.1.4 光格子トラップポテンシャル

光格子中での原子のスペクトルは、2次のドップラーシフトを無視すると、

$$\nu_{\text{abs}} = \nu_0 - \frac{\alpha_e(\lambda_L, \bar{\epsilon}_L) - \alpha_g(\lambda_L, \bar{\epsilon}_L)}{2h} |E(\vec{r})|^2$$

と表せる（図4）。ここで、 α_g 、 α_e は各々、基底、励起状態の分極率、 $E(\vec{r})$ 、 λ_L 、 $\bar{\epsilon}_L$ は各々、光格子レーザー光の電場、波長、偏光である。この式から分かる様に、光格子中の原子を観測したときに得られる原子のスペクトル ν_{abs} には、無摂動状態の原子スペクトル ν_0 に対し、上下準位のトラップポテンシャル（シュタルクシフト）の差に対応した周波数シフト項が加わる（図4）。このトラップポテンシャルはトラップ光の波長 λ_L 及び $\bar{\epsilon}_L$ 偏光に依存する。そこで、これらのパラメータを制御することで、トラップポテンシャル項をキャンセルできれば、光格子中で強く束縛されているにもかかわらず、原子のスペクトルとしては無摂動時と同じもの ν_0 が観測できる。一方、偏光パラメータ $\bar{\epsilon}_L$ の精密制御は使用する偏光子の精度（消光比）で決まってしまう、一般的には難しいので、時計遷移としては偏光依存性の小さな $J=0 \rightarrow J'=0$ 遷移を用いる。（詳細は次節で説明する。）

具体的には、ストロンチウム原子フェルミ同位体 ^{87}Sr の $5s^2\ ^1\text{S}_0$ ($F=9/2$) - $5s5p\ ^3\text{P}_0$ ($F=9/2$)（遷移波長698nm、線幅7.6mHz）を時計遷移として用いる。一方、トラップポテンシャル項のキャンセルのために、光格子レーザー光の波長 λ_L への依存性を利用する。

2.1.5 トラップポテンシャルの波長依存性

光格子のトラップポテンシャルによるスペクトルへの摂動を無くすため、光格子ポテンシャルの波長依存性を利用して、トラップポテンシャル項をキャンセルする。光格子ポテンシャルは、光格子を構成する光電場の作るシュタルクシフトで与えられ、

$$U(z) = -\frac{1}{2} \alpha |E_L(z)|^2$$

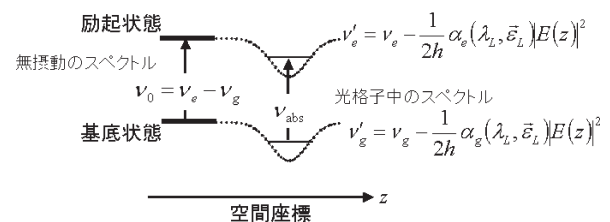


図4 光格子中での原子のエネルギーシフト

$$\alpha = \frac{2}{\hbar} \sum_e \frac{\omega_{eg}}{\omega_{eg}^2 - \omega_l^2} \mu_{eg}^2$$

と表せる。ここで、 μ_{eg} は励起状態と基底状態の間の電気双極子モーメントである。この電気双極子モーメントは、微細構造間の遷移を考えた場合、

$$\begin{aligned} \mu_{eg}^2 &= \left| \langle J_e M_e | D_e | J_g M_g \rangle \right|^2 \\ &= \left(\gamma_e J_e \parallel D \parallel \gamma_g J_g \right)^2 \begin{pmatrix} J_e & 1 & J_g \\ -M_e & q & M_g \end{pmatrix}^2 \\ &= \frac{3\hbar c^3}{4\omega_0^3} W_{J_e, J_g} \left\{ C_{J_e M_e}^{J_g M_g} \right\}^2 \end{aligned}$$

と表せる。ここで、 $C_{J_e M_e}^{J_g M_g}$ はクレプシュ・ゴールドマン係数、 W_{J_e, J_g} は遷移強度を表す。これは、遷移モーメントが純粋に角度依存の項（クレプシュ・ゴールドマン係数）とそれ以外の項の積に因数分解されることを表す、ウィグナー・エッカルトの定理の現れと見ることが出来る^{20), 21)}。

以上の考察を元に、⁸⁷Sr 原子の時計遷移の上下準位 (¹S₀, ³P₀) における光格子ポテンシャルを計算する。微細構造のみを考慮した場合、¹S₀, ³P₀ 準位はそれぞれ上の状態と結合する。このとき、クレプシュ・ゴールドマン係数は、 $J=0 \rightarrow J'=1$ の遷移では、どの偏光に対しても等しくなるので、ポテンシャルは偏光に依存しないことになる。シュタルクシフトのレーザ波長依存性をプロットしたものが、図5である。時計遷移の基底状態と励起状態の受けるシュタルクシフトの値が、波長800nm付近で等しくなることが分かる。光格子レーザをこのマジック波長にあわせることで、レーザ強度依存性が消失し、原子を強く閉じ込めつつ、無摂動時と同一のスペクトルを測定することが可能になる。このマジック波長に対する時計遷移の

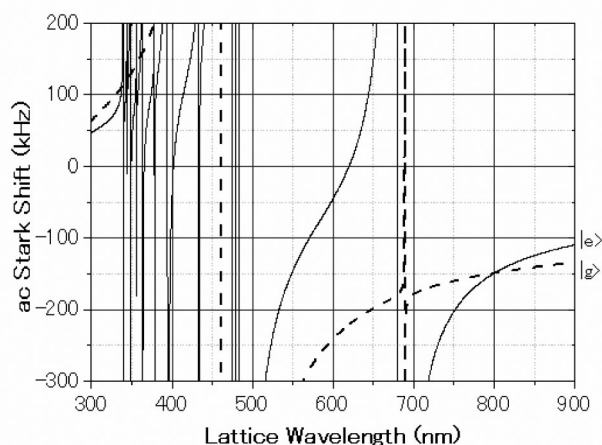


図5 時計遷移上下各準位のシュタルクシフトの光格子レーザ波長依存性

シュタルクシフトの依存性は、 10^9 と計算され、光格子レーザ周波数をGHzの精度でマジック波長に一致させれば、観測される時計遷移の不確かさをHzのオーダーで制御できることとなる。

2.1.6 偏光依存性

前節で説明した様に、時計遷移の光格子レーザ偏光依存性を回避するために、全スピン角運動量がゼロとなる電子状態を用いる。この条件を満足する系として、¹S₀-³P₀ 状態間の電子遷移を利用する。しかし、この遷移は、スピン禁制かつ $J=0 \rightarrow J'=0$ と2重に禁止されたものであり、その線幅は1mHz以下と極めて狭いものである。そこで、現実的に実験が可能となる様な有限な遷移モーメントを持たせるために、核スピン ($I=9/2$) をもつ質量数87のSr原子フェルミ同位体の¹S₀ ($F=9/2$)-³P₀ ($F=9/2$) 遷移を用い、超微細結合により7.6 mHzのスペクトル線幅に相当する双極子遷移強度を得る。つまり、核スピンがゼロのボーズ同位体とは異なり、原子核のもつスピンに由来する偏光依存性がわずかながら存在することとなる。この効果の大まかな見積りとしては、電子スピン由来の効果の3桁程度小さなものとなる。詳細な理論的解析によれば、光格子レーザの偏光を mrad レベルで制御することで周波数の不確かさに換算してmHzレベルに抑えられることが示されている²²⁾。この条件は、特に1次元光格子の場合、実験的に容易に達成できるレベルのものである。

2.1.7 その他の摂動要因

衝突シフト

分光実験での信号のS/N比を向上するためのひとつの方法は、測定対象である原子を高密度に集めて、光学的に濃い状況を実現することである。しかし、平均原子間距離が近づいてくると、相互作用により原子の共鳴周波数（エネルギー）にシフトが生じることとなる。これは衝突シフトと呼ばれる。この衝突シフトには、原子の遷移に対する近共鳴光（プローブ光）の存在の有無に応じて2種類に分類できる。

近共鳴光が存在しないときの相互作用は、基底状態同士のものであり、ファンデルワールス相互作用に由来する近距離力（数nm）である。実際には、ある原子の周りにおける他の原子全体の作る平均場として扱い、その大きさは、

$$\Delta\nu = \frac{2\hbar}{m} n\Delta a$$

で表せる^{23), 24)}。ここで、 n は原子の密度、 Δa は上下準位の散乱長の差である。3次元光格子の場合には、原子を光格

子の各格子点に1個以下しかトラップされないので、このシフトは生じない。

時計遷移のプロープ光の様な、近共鳴光(波長 λ)が存在するときは、原子に双極子モーメントが共鳴的に誘起され、それらの間の相互作用としてシフトが現れる。この共鳴双極子相互作用によるシフトは、

$$h\Delta\nu = \pm\eta\hbar\gamma(\lambda/r)^3 = \pm C_3/r^3$$

で表せる。ここで、 $\lambda=2\pi/\gamma$ は遷移の自然幅を表し、 η は1のオーダーの相互作用に依存した定数である。このシフトは、原子間距離 λ の時に自然幅 γ の大きくなる。光格子中での原子間距離は $\lambda/2 \approx 400\text{nm}$ であり、共鳴双極子相互作用の及ぶ距離 $\lambda \approx 100\text{nm}$ に比べて大きく、かつ、自然幅は $\gamma/2\pi = 7.6\text{mHz}$ と小さいため、この影響はmHz以下に抑えられる。

相互作用時間拡がり

原子と光のコヒーレントな相互作用の時間は有限であり、これは、プロープ光本来の振動電場波形に対して、相互作用時間に対応する幅を持つ包絡線関数を乗じたものと考えられる。その関数形状により、フーリエ変換で得られる周波数領域のスペクトルに幅が生じることとなる。この包絡線関数として最も一般的なものが、矩形波関数である。継続時間が τ の場合、フーリエ変換後のシンク関数(周波数領域)の半値全幅は、 $0.9/\tau$ で与えられる。もうひとつの代表的な例が、ガウス関数である。これは、例えばガウシアンビームを原子が等速で横切の場合に相当する。半値全幅に相当する持続時間が τ の場合、フーリエ変換後のガウス関数(周波数領域)の半値全幅は、 $0.4/\tau$ で与えられ、矩形波の場合よりも狭い線幅が得られる。いずれにせよ、相互作用時間を大きく取れば、より狭いスペクトルを得ることができる。冷却原子を上方に打ち上げて2回プロープする原子泉方式の場合、1mオーダーのサイズの真空装置を用いた場合の滞空時間は1sオーダーとなる。これは、重力の大きさにより制限されているので、より長い相互作用時間を獲得するには、微小重力環境を用意しなくてはならない。イオントラップの場合は、閉じ込めポテンシャルが運動エネルギーに比べてずっと大きいので、超高真空を維持して、残留気体の衝突による損失を抑えることができれば、数ヶ月に渡って同一イオンを捕獲可能である。そのため、いくらでも相互作用時間を長く取れる。光格子の場合のトラップ寿命も、イオンの場合と同様に、真空槽内部の残留気体衝突による損失で制限される。 10^{-8}Pa の真空度を維持できれば、10s程度のトラップ寿命を確保できるので、相

互作用時間を長くできる。

2.2 光格子時計の実際

2.2.1 レーザ冷却・トラッピング

一般に、アルカリ土類金属は、セシウムやルビジウムなどのアルカリ金属に比べて飽和蒸気圧が低く、レーザ冷却・トラッピングを行うためには、試料を 500°C 程度まで加熱し、気体蒸気とする必要がある。この様にして得られる原子ビームの速度は音速程度であり、磁気光学トラップの捕捉可能な最大速度は 50m/s 程度であるので、多数原子を効率よくトラップするためには、強い遷移($^1S_0 \rightarrow ^1P_1$, 波長 461nm , 線幅 30MHz)を用いてレーザ冷却を行う必要がある。標準的には、一定の離調を持たせた減速用レーザ光に対して、空間的に変化する磁場によって原子減速に伴うドップラーシフトの変化をキャンセルすることで、原子とレーザ光の共鳴状態を維持する、ゼーマン減速法が用いられる。この方法で数十 m/s まで減速された原子を、同じく強い遷移を用いた磁気光学トラップによって捕獲、冷却する。この磁気光学トラップ中の原子の温度は数 mK 程度である。この予備冷却された原子を、弱いレーザ冷却遷移を用いた磁気光学トラップにて、さらに冷却する。ストロンチウム原子の $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ 遷移の線幅は 7.6kHz であり、数 μK まで原子を冷却可能である。

2.2.2 光格子ポテンシャル生成

空間的に不均一な光の場における原子は、光シフトの空間的勾配に由来する力を受ける。原子の分極率が正の場合、原子は光電場が強い方向に引かれるので、空間的に光電場の極大点を作れば、そこに原子を捕獲することができる。そのためには、閉じ込めポテンシャル障壁が原子の運動エネルギーよりも大きいことに加えて、捕獲のための力が重力よりも強い必要がある。これを実現する最も簡単な方法は、原子の共鳴周波数から十分負に離調したレーザ光を垂直方向に折り返してできる1次元光格子である。この場合、重力に対向するための光シフトの空間的勾配を決める距離スケールが、光格子レーザ波長の半分となるので、同じ光パワーであっても、より大きな力を持たせることができる。これは、マジック波長に光格子レーザを合わせたときにも残り、かつ、理論的な評価の難しい高次のシュタルクシフトを抑制するためにも有利である。但し、1次元光格子の場合には、原子の閉じ込めポテンシャル形状は、原子1個1個を3次元空間にピン止めする様なものではなく、直径が光格子レーザのビーム径で厚さが光格子レーザ波長の半分のパンケー

キ状となる。そのため、このパンケーキ状ポテンシャル中での原子の衝突は許容されるが、現在の実験レベルではこの影響は問題にならない¹⁷⁾。より理想的な状況である3次元光格子の生成は、1次元のものと比べて理論的にも技術的にも、格段に複雑なものとなるので、ここでは説明を省略し、参考文献を紹介するに留める²³⁾。

2.2.3 光格子への原子装填

光格子ポテンシャル障壁の高さは10 μ Kであるので、それ以下の温度まで冷却された原子は、光格子に捕獲される。一般に光格子中ではレーザー冷却遷移周波数が空間的な変調を受けるため、レーザー冷却後に、その同一位置において、光格子ポテンシャルを断熱的に生成させることで、原子の加熱を防ぎながら高効率で原子装填が可能となる。光格子レーザー波長が、 1S_0 - 3P_1 遷移（弱いレーザー冷却遷移）に対するマジック波長に一致する場合、原子の閉じ込めとレーザー冷却が両立するので、原子装填の効率はさらに向上する。この弱いレーザー冷却遷移に対するマジック波長と、時計遷移に対するマジック波長は、一般には異なる。しかし、前者が840nm^{26), 27)}、後者が800nmと比較的近いので、光格子レーザー波長を時計遷移に対するマジック波長に合わせておけば、比較的効率よく、光格子に原子を装填できる。

2.2.4 時計遷移の観測

時計遷移の線幅は数十MHzと極めて狭いので（いわゆる強い遷移よりも9桁小さい）、その観測には種々の工夫が必要となる。まず、時計遷移のプロープに用いるレーザーの線幅を可能な限り狭くする必要がある。このために、波長698nmの外部共振器半導体レーザーシステムを構築し、光学的帰還によって、元々数十MHzあった線幅を数百kHzの線幅に狭窄化する。さらに、高フィネス共振器へのレーザー周波数安定化のために電氣的帰還を施し、Hzレベルの短期安定度を達成する。共振器のスペーサには、超低膨張ガラス（ULE等）を用い、その熱膨張率がゼロとなる温度付近を維持する様に温度安定化を行うことにより、長期安定度もドリフトHz/s程度まで抑える。このレーザーシステムにおいて、最終的な線幅の限界を与えるものは、共振器への外部からの機械的振動である。その振動周波数に応じて、低周波側においては防振、高周波側においては防音を施す必要がある。

以上の様にして得られた狭線幅のプロープレーザを、光格子中の原子に照射すれば、原理的には分光は可能となる。しかし、現実には時計遷移周波数の正確なデータが存在しないことから、まず実験的に探索しなくてはな

らない。この探索は、GHzの周波数幅の中から7.6MHzの遷移を見つけることであり、極めて困難であるので、以下の様な工夫が必要となる。

1: 十分強いプロープ光により時計遷移に飽和拡がりを生じさせる。

プロープレーザ光（光強度1mW）を光格子用レーザ光と共に重ね合わせて40 μ mまでフォーカスすることで、光強度密度としては、80 W/cm²の高いものが得られる。時計遷移の飽和強度は2.9pW/cm²と極めて小さいものであるので、飽和拡がり40kHzとなる。

2: クエンチングにより線幅を広げる。

3P_0 - 3S_1 の遷移に共鳴したレーザ光（波長679nm）を照射することにより、時計遷移によって 3P_0 準位に励起された原子を、 3P_2 準安定状態に移行させることで時計遷移の実効的線幅を広げる。

3: 電子シェルピングにより、観測効率を上げる。

この手法は、単一イオン観測のために、古くから用いられてきた方法である²⁸⁾。時計遷移は極めて弱い（7.6MHz）ので、プロープ光の散乱や吸収を直接検出することは困難である。一方、基底状態 1S_0 は 1P_1 への強い許容遷移（30MHz）を持つ。そこで、光格子中の原子に時計遷移プロープレーザを照射し、遷移しなかった原子を強い共鳴遷移による散乱光を観測する。原子が時計遷移レーザ光によって 3P_0 準位に励起された場合は、この共鳴蛍光強度は減少することとなる。

以上の工夫により、原子損失スペクトルとして時計遷移を観測することが可能となる。

2.2.5 マジック波長の決定と時計遷移の絶対周波数計測

2.1.5節でのトラップポテンシャルの波長依存性の理論的解析から、マジック波長は800nmと求められた。この計算にはストロンチウム原子の数多くの準位間の遷移波長及び、遷移強度のデータが必要となる。しかし、特に短波長側、すなわち高いエネルギーを持つ準位への遷移に関するデータが不明の場合が多い。これらが、理論予測の不確定性へとつながる。よって、このマジック波長を実験的に決定することが重要となる。

光格子レーザー波長が λ_L のとき、観測される時計遷移周波数は、

$$\begin{aligned} \nu_{\text{abs}} &= \nu_0 - \frac{1}{2h} \{ \alpha_e(\lambda_L) - \alpha_g(\lambda_L) \} |E|^2 \\ &= \nu_0 - \frac{1}{2h} \Delta\alpha(\lambda_L) |E|^2 \end{aligned}$$

となる。キャンセル波長 $\lambda_L = \lambda_c$ においては、 $\Delta\alpha(\lambda_c) = 0$ となるので、遷移周波数 ν_{abs} は、光格子レーザー光強度 $|E|^2$ に

依存しなくなる。一方、 $\lambda_L > \lambda_c$ の場合、 $\Delta\alpha(\lambda_c) = 0$ となり、遷移周波数 ν_{abs} は、光格子レーザ光強度 $|E|^2$ に比例して大きくなる。さらに、 $\lambda_L < \lambda_c$ の場合、 $\Delta\alpha(\lambda_c) > 0$ となり、遷移周波数 ν_{abs} は、光格子レーザ光強度 $|E|^2$ に比例して小さくなる。

以上の考察を踏まえて、時計遷移周波数 ν_{abs} の光格子レーザ光強度 $|E|^2$ 依存性を、種々の光格子時計レーザ波長 λ_L において測定し、その傾きを光格子レーザ波長に対してプロットすることで、ゼロを交差する点として、マジック波長を精密に決定することができる。この結果、マジック波長は 813.420 (7) nm と求めた。この値は理論予測の 2 割増であり、かなり大きなずれであることから、マジック波長の実験的決定が重要であることを示している。

上記の測定によって決定されたマジック波長で光格子を生成することで、閉じ込めポテンシャルの影響を受けない原子のスペクトルを観測できる。観測時間 40ms、プローブ光の線幅と飽和拡がりと同程度となる様な強度のプローブ光を用いてスペクトルを観測した結果、半値全幅で 27Hz と中性原子集団を用いたものでは、最も狭いスペクトルのひとつが得られた。観測時間 40ms に対応するフーリエ限界スペクトル幅は 22Hz であるので、得られた線幅はほぼフーリエ限界にあるといえる。また、観測時間（プローブ光照射時間）を増やしても線幅は狭くならなかったため、プローブ光の周波数ジッター（線幅）が、観測されるスペクトル幅を制限していることが分かる。逆に言えば、プローブ光線幅を狭くすれば、光格子時計の精度はさらに向上しうる。

時計遷移の絶対周波数計測は、上記のマジック波長におけるスペクトルのピークを与える様な、プローブ光周波数を計測することで行われる。このために、フェムト秒モード同期レーザによる光周波数コムを用いて、時計遷移周波数と TAI（世界原子時）をリンクする。その際、絶対周波数の基準として、GPS によって TAI と時刻比較が可能な商用セシウム原子時計を用いる。このセシウム原子時計の短期安定度は 5kHz (@1s) と大きな不確かさを持つので、得られたスペクトル線幅（～10Hz）と同程度の不確かさで時計遷移周波数を計測するには、長時間のデータ積算が必要となる。実際には、 10^6s （～ $10^4\text{s/day} \times 9\text{days}$ ）のデータ積算を行い、 3×10^{-14} の不確かさとする事により、時計遷移周波数（429 THz）を 10Hz レベルの不確かさで計測できる。その結果、時計遷移の絶対周波数は、

$$f_0 = 429,228,004,229,952(15)\text{Hz}$$

と決定された。この絶対周波数計測に伴う、補正及び不確かさの見積りについては、参考文献に詳しい¹⁷⁾。

3. NMIJ における光格子時計（イッテルビウム）

これまで説明してきたストロンチウムと、NMIJ で使用するイッテルビウムの主な違いを表 1 に示す。概念的にはほとんど同じなので、各種パラメータの違いと長所短所を羅列する。

Yb の長所を羅列すると以下の様になる。

- ・各種遷移波長が半導体レーザや、ファイバレーザの倍波などで容易に得られる。
- ・異なる質量数をもつ同位体の天然存在比が、比較的均等に分布しており、実験系の最適化が容易である。
- ・核スピンの小さいので、時計遷移周波数の光格子レーザの偏光依存性や残留磁場による影響が小さい。
- ・蒸気圧が高いため、オープンでの温度を低くできる。これは、オープンからの熱輻射の影響を抑える点でも有利である²⁰⁾。
- ・空気中の酸素や水蒸気との反応性が小さいために、真空槽内への充填作業が容易である。

逆に短所としては、スピン禁制遷移の線幅が Sr の 20 倍あるために、到達可能な温度が高くなる。このため、光格子生成用レーザのパワー密度を上げるために、より強くフォーカスするなどの工夫が必要になる。いずれにせよ、現時点でどの原子種が最適であるかは不明の点多く、実験的に検証するしかない。

表 1 Sr と Yb の各種パラメータの比較

		⁸⁷ Sr	¹⁷¹ Yb
¹ Sr- ¹ P ₁ 強いレーザ 冷却遷移	波長	461 nm	399 nm
	線幅	30 MHz	28 MHz
¹ Sr- ¹ P ₁ 弱いレーザ 冷却遷移	波長	689 nm	556 nm
	線幅	7.6 kHz	182 kHz
¹ Sr- ⁰ P ₀ 非常に弱い 時計遷移	波長	698 nm	578 nm
	線幅	7.6 mHz	8.0 mHz
マジック波長		813 nm	752 nm
同位体天然存在比		7%	14%
核スピン		I=9/2	I=1/2
蒸気圧(700K)		1.5×10^6 Pa	1.5×10^5 Pa

4. 今後の展望、まとめ

光格子時計のアイデアが登場してわずか4年であるが、既に次世代光周波数標準の本命と目される様になり、世

界各国の標準研究所にて猛烈な追い上げが開始された。原理的優位性は既に実証されたといえるので、これからは実際の標準器の立ち上げが必要となり、各研究所の総合力が問われる熾烈な競争状態になると考えられる。

謝辞

本調査研究を行うにあたり、ご指導・ご助言を頂きました大嶋新一時間周波数科科长、大苗敦室長、洪峰雷主任研究員、並びに波長標準研究室の皆様にご感謝いたします。

参考文献

- 1) F. Riehle, "Frequency Standards", WILEY-VCH Verlag GmnH & Co. KgaA, Weinheim (2004).
- 2) S. G. Karshenboim and E. Peik (Eds.), "Astrophysics, Clocks and Fundamental Constants", Springer (2004).
- 3) Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **82**, 3568-3571 (1999).
- 4) H. G. Dehmelt, IEEE Trans. Instrum. Meas. IM-31: 83-87 (1982).
- 5) N. Beverini *et al.*, in *Quantum Electronics and Plasma Physics 5th Italian Conference* (ed. G. C. Righini) 205-211 (Italian Physical Society, Bologna, 1988).
- 6) K. Sengstock *et al.*, Opt. Commun., **103**, 73-78, (1993).
- 7) F. Ruschewitz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3173 (1998)
- 8) T. Kurosu and F. Shimizu, Jpn. J. Appl. Phys. **31**, 908 (1992).
- 9) T. P. Dinneen *et al.*, Phys. Rev. A **59**, 1216 (1999).
- 10) H. Katori, T. Ido, Y. Isoya, and M. K. Gonokami, in *Atomic Physics* (ed. E. Arimondo, P. DeNatale, and M. Inguscio) vol. XVII, pp. 382-396, Woodbury, New York (2001).
- 11) T. Binnewies, U. Sterr, J. Helmcke, and F. Riehle, Phys. Rev. A **62**, 011601 (R) (2004).
- 12) F. Riehle *et al.*, IEEE Trans. Instrum. Meas. **48**, 613 (1999).
- 13) T. Kurosu, G. Zinner, T. Trebst, and F. Riehle, Phys. Rev. A **58**, R4275 (1998).
- 14) G. Wilpers *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 230801 (2002).
- 15) H. Katori in *Proc. 6th Symp. on Frequency Standards and Metrology* (ed. P. Gill) 323-330 (World Scientific, Singapore, 2002).
- 16) M. Takamoto and H. Katori, Phys. Rev. Lett. **91**, 053001 (2003).
- 17) M. Takamoto, F-L Hong, R. Higashi and H. Katori, Nature **435**, 321-324 (2005).
- 18) H. Katori *et al.*, in *17th International Conference on Atomic Physics*, Scotland (2005).
- 19) R. H. Dicke, Phys. Rev. **89**, 472 (1953).
- 20) R. N. Zare, "Angular momentum", Wiley-Interscience (1987).
- 21) D. Budker, D. F. Kimball, and D. P. DeMille, "Atomic Physics", Oxford University Press (2004).
- 22) H. Katori *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 173005 (2003).
- 23) Y. Sortais *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 3117 (2000).
- 24) G. Wilpers *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 230801 (2002).
- 25) H. J. Metcalf and P. van der Straten, "Laser Cooling and Trapping", Springer (1999); Chap. 16.
- 26) H. Katori, T. Ido, and M. K. Gonokami, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 2479 (1999).
- 27) T. Ido, Y. Isoya, and H. Katori, Phys. Rev. A **61**, 61403 (2000).
- 28) W. Nagourney, J. Sandberg, and H. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. **56**, 2797 (1986).
- 29) M. Yasuda and H. Katori, Phys. Rev. Lett. **92**, 153004 (2004).

