# **4-6** インジウムイオン光周波数標準 *4-6* Indium Ion Optical Frequency Standard

大坪 望 李 瑛 松原健祐 Nils Nemitz 蜂須英和 石島 博 早坂和弘 井戸哲也 Nozomi OHTSUBO, Li YING, Kensuke MATSUBARA, Nils NEMITZ, Hidekazu HACHISU, Hiroshi ISHIJIMA, Kazuhiro HAYASAKA, and Tetsuya IDO

NICT ではインジウムイオン (<sup>115</sup>In<sup>+</sup>) 光周波数標準 (光時計)の研究開発を行っている。<sup>115</sup>In<sup>+</sup>の時 計遷移周波数は電場・磁場や黒体輻射などの影響を受けづらく、10<sup>-18</sup>の相対不確かさが達成でき る周波数標準として期待されている。本稿ではリニアトラップ中でカルシウムイオン (<sup>40</sup>Ca<sup>+</sup>) によ り共同冷却した<sup>115</sup>In<sup>+</sup>を用いた光時計について詳説し、研究の進捗について報告する。2017 年に は時計遷移周波数を 5 × 10<sup>-15</sup> の確度で計測し、国際度量衡委員会 (CIPM) 推奨値の改訂に大きく 貢献した。その後の研究において、特定準位への光ポンピングを行うことでより精密な周波数分 光を実現したインジウムイオンでは世界で初めて、時計レーザーの時計遷移への周波数ロック動 作を達成した。

Singly-ionized indium is a candidate for a highly accurate ion clock with uncertainty at the  $10^{-18}$  level owing to low sensitivities to surrounding fields. In this report, we summarize the progress of an optical clock based on an indium ion (<sup>115</sup>In<sup>+</sup>) sympathetically cooled with a calcium ion (<sup>40</sup>Ca<sup>+</sup>) in a linear trap. In 2017, we measured the absolute frequency of the clock transition with an uncertainty of  $5 \times 10^{-15}$ , resulting in an update of the Comite International des Poids et Mesures (CIPM) recommended frequency. Since then the observed linewidth of the spectrum was reduced successfully by optical pumping to specific Zeeman substates, and the stabilization of the clock laser to the transition was demonstrated for the first time in an In<sup>+</sup> system.

# 1 研究背景

### 1.1 光周波数標準

光周波数領域の原子時計(以下光時計)は、イオン トラップ技術を用いた単一イオン光周波数標準(イオ ン光時計)と中性原子の光トラップを利用した光格子 時計に大別される。光時計は、

- レーザー冷却により極低温まで冷却された原子・ イオンを利用しているため、ドップラー効果によ る時計周波数への影響が小さい。
- 2. イオントラップや光格子技術を利用した強い束縛 により、ラムディッケ状態と呼ばれる反跳シフト を抑えた状態を実現できる。
- 3. 数百 THz の光遷移を時計遷移として利用しており、数 GHz のマイクロ波遷移の場合よりも同じ不確かさに対しての相対不確かさが極めて小さい。なお、本章で解説する<sup>115</sup>In<sup>+</sup>時計の利用する時計 遷移周波数は1267 THz で、これは現在知られている光時計の中では最も高い周波数である。

などの性質を持つ。これまでに多くの研究機関に よって現在の秒の定義を担っているマイクロ波セシウ ム (Cs) 原子時計の確度を超えた計測を実現してきた。

光時計は 1980 年代に H. Dehmelt らによってイオ ントラップ方式が提案され [1]、その実現が期待され ていた。2000 年代前半には光領域の絶対周波数を計 測可能とする光周波数コムが発明され、光領域の精密 周波数計測が現実的になった。また同時期には香取ら によって光格子時計が提案され [2]、それ以降各々の 方式・原子種で競争的に開発が進められている。

NICT では、<sup>40</sup>Ca<sup>+</sup>を用いたイオン光時計と、スト ロンチウム原子を用いた光格子時計の開発を行ってき た。第3期中長期計画(2011年~2015年)から、 <sup>40</sup>Ca<sup>+</sup>よりも周波数標準として高い性能を持つ<sup>115</sup>In<sup>+</sup> イオン光時計の開発を始めた。本稿ではこの<sup>115</sup>In<sup>+</sup> イ オン光時計についての解説と報告を行う。

#### 1.2 イオン光周波数標準

イオン光周波数標準はイオントラップで捕捉したイ



図1 電子シェルビング法による時計遷移励起計測方法と、それを用いた時計遷移スペクトルの計測方法

オンを対象に特定の光学遷移の周波数を計測し、その 遷移周波数を標準周波数として利用する。イオント ラップは帯電したイオンを電気的な作用で捕捉する技 術で、開発者の H. Dehmelt・W. Paul らは 1989 年に ノーベル物理学賞を受賞した。

図1にイオンの周波数計測で用いる電子シェルビン グ法について示す。電子シェルビング法で周波数を計 測するためには2つの遷移が必要となる。1つは実際 に周波数の基準となる「時計遷移」で、高確度での周 波数計測に適した線幅が狭い禁制遷移が選ばれる。こ の時計遷移はその線幅の小ささから直接自然放出光を 検出することはできない。そこでもうひとつの強い遷 移を「検出遷移」として用いることで遷移励起の有無 を確認する。照射した時計遷移レーザー周波数が、原 子共鳴周波数から外れていた時、原子は基底状態のま ま維持され、検出光の吸収・放出を行う。しかし、原 子共鳴付近の時計レーザー光を照射すると一定確率で 時計遷移を起こし励起準位に棚上げ(shelving)される。 棚上げされた状態のイオンは検出光との相互作用をし ないので、光子を放出しない。このため検出遷移によ る光子放出の有無で時計遷移励起を検出することがで きる。この試行を100回程度行い、その結果より励起 確率を計算する。時計遷移周波数を掃引しつつ励起確 率を調べることで時計遷移スペクトルを得ることがで

きる。

#### 1.3 イオン光時計の種類

イオン光時計には2族(II族)元素を主とするアル カリ金属型電子配置を持つイオンと、13族(IIIB族) 元素によるアルカリ土類金属型電子配置を持つイオン が広く用いられている(表1参照)。アルカリ金属型 イオンにはCa<sup>+</sup>, Sr<sup>+</sup>などが含まれ、一般的に J=1/2→J=5/2の四重極遷移を時計遷移として利用す る。また希土類元素であるYb<sup>+</sup>もアルカリ金属型イ オンと同様の性質を持ち、また四重極遷移のみならず 八重極遷移も時計遷移として利用することができる。 アルカリ土類金属型イオンにはアルミニウムイオン (<sup>27</sup>Al<sup>+</sup>)やIn<sup>+</sup>が含まれ、スピン禁制のJ=0→J=0遷 移が利用される。

アルカリ金属型イオン時計は必要となる光学遷移の 多くが可視領域にあり、半導体レーザーや第二次高調 波技術で容易に実現できるという利点があるものの、 時計遷移が電場・磁場の影響を受けやすいという性質 があり、精密な周波数計測の際にはこれらに起因する 系統不確かさの取扱いに注意が必要である。

アルカリ土類金属型イオン時計は、その光学遷移波 長が深紫外・真空紫外領域にあり、光源や光学素子の 調達など技術的に困難な部分が多いが、時計遷移は外

$f_0$ は時計遷移の周波数、 $g_g$ 及び $g_e$ はそれぞれ基底準位・励起準位の $g$ 因子、 $\Theta$ は四重極場の大きさ、 $\Delta f_{\scriptscriptstyle BBR}$ は黒体輻射シフトの大きさを示している。						
	$f_0$	${f g}_{ m g}$	$\mathbf{g}_{\mathrm{e}}$	$\Theta / (e a_0^2)$	$\Delta f_{BBR} @300 \text{ K}$	主たる研究組織
<sup>40</sup> Ca <sup>+</sup>	411 THz	2.002	1.200	1.83	0.38 Hz	NICT (日) [3]、 WIPM (中) [4]
<sup>88</sup> Sr <sup>+</sup>	445 THz	2.002	1.2	2.6	0.25 Hz	NPL (英) [5]、 NRC (加) [6]
<sup>171</sup> Yb <sup>+</sup> (E3)	642 THz	1.998	1.145	-0.041	-0.067 Hz	PTB (独) [7]、 NPL (英) [8]
$^{27}Al^{+}$	1121  THz	-0.8 e-3	-2.0 e-3	0	-0.0043 Hz	NIST (米) [9]
$^{115} In^+$	1267 THz	-0.6 e-3	-0.99 e-3	0	-0.017 Hz	NICT(日)

表1 各種イオン時計遷移の性能比較

場からの影響を受けづらく、時計として優れている。 アルカリ土類金属型時計は ${}^{1}S_{0}$ と ${}^{3}P_{0}$ 間の時計遷移は 電子系総角運動量 J=0の二準位間の遷移であること から、四重極電場や磁場による周波数シフト要因が極 めて小さい。これは電気四重極遷移を時計遷移として 用いる、電磁場変動に比較的感度の高いアルカリ金属 型電子配置イオン種とは対照的である。また、遷移周 波数がすべて紫外領域にあることも幸いし、黒体輻射 によるシフトも極めて小さいという性質を持つ。 <sup>115</sup> In<sup>+</sup>の持つアルカリ土類金属型電子配置イオン種の 利点は<sup>27</sup> Al<sup>+</sup> 光時計で活用され、10<sup>19</sup> 台の不確かさを 実現できることが実証されている [9]。

#### 1.4 In<sup>+</sup> イオン光時計

アメリカ国立標準技術研究所 (NIST) で開発された Al<sup>+</sup> イオン周波数標準は、振動モードを介在すること で周波数計測を行うイオンとは異なるイオンに量子状 態 を 転 写 す る「量 子 論 理 分 光 (Quantum Logic Spectroscopy: QLS)」と呼ばれる量子状態検出手法を 用いて実現された。これに対し<sup>115</sup> In<sup>+</sup> の  ${}^{1}S_{0}^{-3}P_{1}$ 遷移 は線幅が 360 kHz とスピン禁制遷移でありながら Al<sup>+</sup> の 530 Hz より比較的大きく、この遷移を利用した量 子状態の検出が可能である。これにより QLS を用い ることなく、より簡易なシステムでの周波数計測を実 現することができる。

<sup>115</sup>In<sup>+</sup>はこれらの特性から、光時計の最初の提案か ら候補に挙げられたイオン種であった。2000年代前 半には光コムの発明に伴って<sup>115</sup>In<sup>+</sup>イオン時計遷移周 波数計測も行われた。しかし NICT が時計遷移周波 数の計測を実現するまで周波数値の報告を行ったのは 2グループのみであった[10][11]。しかもその精度は 10-13にとどまり、なおかつ2つの報告値はその不確か さを超えて1 kHzの差があり、事実上、時計遷移周 波数の絶対値は未決状態であった。2017年にNICT が10<sup>-15</sup>台の新たな計測を行い、これが不確かさの範 囲内で過去の報告値の1つと不確かさの範囲内で一致 した[12]。これに伴って 2003 年以降更新されなかっ た<sup>115</sup>In<sup>+</sup>時計遷移の国際度量衡委員会(CIPM)の定め る周波数推奨値(1267402452901050(20)Hz)が NICTの報告値(1 267 402 452 901 049.1 (6.9) Hz)と ほぼ一致する値で更新がなされた。この詳細について は3.1で解説する。

現在までに開発されているイオン光時計はすべて単 ーイオンを対象にした周波数計測を行っている。複数 回の試行を伴った電子シェルビング法により励起確率 を計測する単一イオン光時計は、多数の原子を用いて 一度に励起率を計測する光格子時計よりも周波数値の 計測に時間がかかり周波数安定度の面で劣る。「複数 イオン光時計」が実現できれば、この安定度の欠点を 補い、イオン時計に新たなブレークスルーを与えるこ とが期待される。<sup>115</sup>In<sup>+</sup> イオンは以下のような理由か ら多数個での周波数計測が可能であり、「複数イオン 光時計」の実現に最も有力な候補である。

- ・電気四重極シフトを受けないため、複数のイオン を同時にトラップしてもお互いのイオンがつくる 電場の影響を受けない。
- 磁場や黒体輻射などの影響が小さいため、計測されるイオンがある程度空間的に広がって分布していても、その位置の違いによる周波数シフトの影響は小さい。
- <sup>1</sup>S<sub>0</sub>-<sup>3</sup>P<sub>1</sub> 遷移を利用した直接量子状態検出が可能 なので、多数化したときの量子状態検出が容易で ある。

### 1.5 Ca<sup>+</sup> イオンとの共同冷却

 $In^+ イオンは {}^1S_0 {}^3P_1$  遷移は線幅が 360 kHz であり、 量子状態検出には利用できるものの、レーザー冷却速 度は線幅数十 MHz の遷移を利用できる原子種と比較 すると2桁ほど低い。特にイオンをトラップにロード するときには、高い初期速度でドップラー広がりを 持った状態を単一周波数のレーザーで冷却するのは困 難である。しかし、前述のとおり  $In^+$  イオンは四重極 シフトに鈍感であることから、他のイオンと同時にト ラップすることが可能である。この性質を利用し、本 研究では  $Ca^+$  イオンと同時にトラップし、レーザー 冷却された  $Ca^+$  イオンによる共同冷却で  $In^+$  を冷却す る。

トラップ電極に関しては次節にて解説するが、ト ラップされた複数個イオンは1次元の線上に並ぶこと になる。トラップされた単一イオンのトラップ周波数 は高周波(RF)場の場合はイオンの質量に反比例して、 静電場の場合は質量の平方根に反比例する。複数のイ オンがトラップされたとき、イオンは各々の質量と配 列に依存した「集団振動モード」で振動する。表2に Ca<sup>+</sup>と In<sup>+</sup>をトラップした場合の集団振動モード周波 数を示した。表で示すとおり、2つの Ca<sup>+</sup>と1つの In<sup>+</sup>をトラップした場合、In<sup>+</sup>の位置に依存してモー ド周波数が異なる。これを利用して特定の配列の時だ けトラップイオンを大きく揺さぶり結晶状態を崩壊さ せることが可能で、この手法を用いて配列の制御を行 うことができる[13]。

# 2 実験装置

#### 2.1 トラップ電極

In<sup>+</sup> イオン光時計では linear-Paul トラップと呼ばれ

表 2	<sup>40</sup> Ca <sup>+</sup> 及び <sup>115</sup> In <sup>+</sup> 混合トラップの集団振動モード周波数比
	単一 <sup>40</sup> Ca <sup>+</sup> のトラップ周波数を基準とした。

集団振動周波数 / Ca <sup>*</sup> トラップ周波数					
Ca <sup>+</sup>	1.000				
$\mathrm{In}^+$	0.577				
$Ca^+ - Ca^+$	1.000	1.732			
$\mathrm{Ca}^{\scriptscriptstyle +}$ - In $^{\scriptscriptstyle +}$	0.684	1.492			
$Ca^+$ - $Ca^+$ - $Ca^+$	1.000	1.732	2.408		
Ca <sup>+</sup> - In <sup>+</sup> - Ca <sup>+</sup>	0.761	1.732	1.869		
$Ca^+$ - $Ca^+$ - $In^+$	0.740	1.434	2.317		

る電極を用いる。イオントラップでは、アーンショー の定理より静電場でポテンシャルの極小点を作ること ができないため、交流場を利用して疑似的な極小点を 実現する。linear-Paulトラップでは動径方向の2次元 を交流電場で閉じ込め、軸方向の1次元を静電場で閉 じ込める。周波数計測への応用を前提とした場合、交 流電場でのトラップは電場鞍点でのみ可能で、それ以 外の場所ではACシュタルクシフトと微細振動による ドップラーシフトを受けるため適切ではない。linear-Paulトラップは交流電場の鞍点が線上に存在するの で、複数のイオンをトラップした状態での計測が可能 で、共同冷却を実現することができる。

図2右は本グループが開発したイオントラップ電極 である。電極は加熱効果を軽減するため熱伝導率の高 いベリリウム銅を使用した。また、ステンレス製ト ラップ電極を使用した際、紫外線ビームの影響で、電 極表面が帯電しトラップイオンの位置がずれるなどの 現象が観測されたが、効果を抑制するため金でコー ティングを施した。時計遷移計測時は RF 電極に 30 MHz の交流電圧を1 kVppで印加し、静電場電極に 500 V の電圧を印加して使用する。この交流・直流電 圧の印加により Ca<sup>+</sup> が受けるトラップ振動周波数は 動径方向で2 $\pi$ × 4.0 MHz、軸方向で2 $\pi$ × 500 kHz であった。前節で記述したとおり、軸方向のトラップ 周波数はイオンの数・質量・配列に依存した集団振動 周波数となるため、表2で示した周波数比を掛けるこ とで実際のトラップ周波数が得られる。

#### 2.2 レーザー光源

In<sup>+</sup>の周波数計測には波長 237 nm の時計遷移光と 波長 230 nm の検出光が必要となる。この2つの光は 共に深紫外領域にあり、これらの波長で周波数計測に 利用できる狭線幅レーザーは無く、第二次高調波発生 (SHG)などの波長変換技術を用いる必要がある。本 研究では各レーザーの周波数安定化及び光周波数コム を用いた周波数計測を行うという理由から、各々の4 倍の波長にあたる 946 nm 及び 922 nm の外部共振器 型半導体レーザー(ECDL)でレーザー光を発振し、 SHG による波長変換を二段階行って該当波長の光を 得る。

図3に各々のレーザー系のセットアップを示す。時 計レーザーは精密な周波数制御が要求されるため、超 低膨張ガラス (Ultra Low Expansion, ULE) を用いた フィネス 320 000 の共振器に対して安定化させる。 ULE は特定の温度で1次の熱膨張係数がゼロとなる 性質があり、その温度で共振器に使用した際に周波数 の変化が極めて小さくなる。ECDL から発振された レーザー光はテーパー型増幅器 (Tapered Amplifier, TA)で1Wに増幅され、そのうち一部を分岐させ周 波数安定化に用いる。周波数安定化を行う ULE 共振 器に光を送る過程で、複数の音響光学素子 (Acousto-Optic Modulator, AOM) を使用し、そのオフセット 周波数を制御することでレーザーの周波数制御に利用 する。周波数計測を行う際、周波数制御には主に(1) 周波数スキャンなどの意図した操作と、(2) 共振器の ドリフトなどの周波数変化を補正するための制御の2 通りが存在する。光周波数コムで計測する際、計測さ れる光は(1)の制御とは独立で、(2)の補正のみを受け ていることが望ましい。そこで図3に示しているとお り、光コムに送るポートを AOM1 透過後に作り、計



図 2 linear-Paul トラップ電極概略図 (side view, front view) 及び実際に作製した電極の写真



図 3 時計遷移光 (波長 237 nm) と検出光 (波長 230 nm)の発生システム

測される周波数は AOM2 の影響を受けるが AOM1 の 影響は受けないような構造にした。本研究で開発した 時計レーザーは、線幅を 1 Hz 程度に抑えることがで きた。また ULE 共振器の経年ドリフトは 0.05 Hz/s 以下であり、これを、AOM2 を利用し打ち消すよう に周波数を動かすことで極めて安定なレーザーとなっ た。

TA で増幅されたレーザー光は、イオントラップ チャンバーと同一の光学定盤内に置かれた波長変換シ ステムに送られる。この波長変換システム内にある Periodically Poled KTP (PPKTP) 結 晶 共 振 器 に 200 mW 入射し、最大で 95 mW の波長 473 nm 光を 得ている。これに続き BBO 結晶共振器に入射させる ことで最大 18 mW の出力を得た。得られたビームは  $\lambda/2$  波長板や偏光ビームスプリッター (PBS) で強度を 調整し、最終的に 2 uW 程度をイオンに照射する。

検出光についても同様に ULE 共振器に対して安定 化している。しかし、この検出に用いる遷移は線幅 が 360 kHz と比較的大きく、時計遷移ほどの精密な 周波数制御は必要とされないうえに、周波数を原子蛍 光から確認することができるので光周波数コムでの確 認も必要ないため、図3のような簡潔な構成となって いる。波長 922 nm の基本波からの波長変換は、時計 遷移光と同様の構成となっているが、初段の第二次高 調 波発生には導波路型 Periodically Poled Lithium Niobate (PPLN)結晶を利用した。波長 230 nm のビー ムは最大で 5 mW ほど得られているが、蛍光強度の 飽和には 100 μW 程度の入射で十分である。それ以上 の入射は電極等からの散乱を増やすことになり、量子 状態検出における背景信号となる。

#### 2.3 時計遷移観測システム

実験装置を図4に示す。イオントラップ電極は 10<sup>8</sup> Paの超高真空槽に設置されており、Ca<sup>+</sup>と In<sup>+</sup> は その中で捕捉する。それぞれロード時に必要となるイ オン化レーザーはフリップミラーで照射の on/off を コントロールし、各々のロードの時のみ照射する。 Ca<sup>+</sup> は波長 397 nm と 866 nm の半導体レーザー光で レーザー冷却され、これが冷媒イオンとなって In<sup>+</sup> を 共同冷却する。レーザー冷却された Ca<sup>+</sup> は波長 397 nm の共鳴蛍光光子を放ちこれを 800 mm 離れた 場所に設置したイメージインテンシファイア CCD カ メラ (ICCD) で結像しその様子を観測する。

In<sup>+</sup>の時計遷移観測には前節で述べた波長 230 nm の検出光と波長 237 nm の時計遷移光が必要になる。 この 2 つのビームは PBS で直交した偏光にて重ね合 わせ、イオンに照射する。直交した 2 つのビームは チャンバー照射直前に置いた  $\lambda/4$  波長板で円偏光に 変換する。本実験装置では 2 通りの偏光の組合せを用 いる。1 つは、リニアトラップの軸方向(図の上下方向) を量子化軸として取ったときの、 $\sigma$ <sup>+</sup>偏光 230 nm ビー ムと $\sigma$ <sup>-</sup>偏光 237 nm ビームで、ここでは偏光 Set+ と 呼ぶこととする。また逆に $\sigma$ <sup>-</sup>偏光 230 nm ビームと



#### 図4時計遷移観測システムの光学系概略図 PMTは光電子増倍管、ICCDはイメージインテンシファイア CCDカメラ、 PDはフォトダイオード、PBSは偏光ビームスプリッターを表している。



図 6 スペクトル計測による絶対周波数の測定 Set+と Set-の偏光で得られたスペクトルの中心値を平均し、それを 36 セット分積算した。Session A,B,C はそれぞれ 3 日間の計測日に対応する。

 $\sigma^+$  偏光 237 nm ビームの組合せを偏光 Set-とする。 偏光 Set+ では 230 nm 光の照射により光ポンピング の効果により m<sub>F</sub>= + 9/2 に初期化した後、 $\sigma^-$ 偏光の 波長 237 nm のレーザーにより図5に示した CL + 遷 移が励起される。また偏光 Set-により CL - 遷移が励 起される。次節で記述するとおり、本計測ではこの2 つの遷移を利用し周波数計測を行う。これらの偏光の 組合せは、 $\lambda/4$  波長板をマウントした自動回転ステー ジの制御で簡単に切り替えることができる。

In<sup>+</sup>の共鳴蛍光光子は ICCD の量子効率の違い及び 焦点距離の違いから Ca<sup>+</sup> 共鳴蛍光光子を撮影する ICCD の像上では検出されず、In<sup>+</sup>は光らないスポッ トとして認識される。そのため、その量子状態は 230 nm の蛍光光子を用いて別に設置した深紫外領域 のみに感度を持つ光電子増倍管 (PMT)で測定する。

## 3 時計遷移周波数の計測

## 3.1 副準位縮退状態でのスペクトル計測

磁気量子数量子化軸射影成分 m<sub>F</sub> がゼロとなるゼー

マン副準位を持つ原子種では、 $m_F=0$ の下準位から  $m_{F'}=0$ の上準位への1つの遷移から時計遷移周波数が 得られる。 $In^+$   $tm_F=0$ の副準位を持たないので、ど の準位も僅かな磁場で周波数シフトを起こしてしまう。 そこで仮想的に定義される時計遷移周波数を中心に対 称に配置する2つの遷移の平均として時計遷移周波数 を得ることができる。2017年に行った NICT におけ る最初の  $In^+$  光時計遷移周波数計測として、前述の Set+ と Set-で得られたスペクトルの中心値を平均す ることでその中心値の決定を行った。この時の計測で は3日間で合計 36 セットのスペクトルを計測し、 図6に示すデータを得た。

図7に過去に報告された<sup>115</sup>In<sup>+</sup> 光時計遷移周波数と 図6のデータを平均して得られた値の比較を示す。本 計測で得られた周波数は1267402452901049.9(6.9) Hzで2007年に参考文献[11]で報告された値と不確か さの範囲で一致した。また、この計測値をもって 2017年にCIPMの推奨値の更新に貢献した。



#### 図7 過去に報告された周波数値と本計測値の比較

Garching, 2000 及び Erlangen, 2007 はそれぞれ参考文献 [10] 及び [11] の報告値を示す。緑の帯は 2003 年に決定された CIPM 推奨値の 1 σ の範囲を示し、青の帯 は改定された推奨値の 1 σ の範囲を示す。

### 3.2 磁場印加による副準位の分離

前節の計測では、<sup>3</sup>P」準位の分裂し光ポンピングが 阻害されることを避けるために、低磁場環境で計測を 行う必要があった。このため、すべての副準位からの 遷移が非分離な状態での観測となった。この方法では 僅かな磁場の影響でスペクトルが広がり、また不完全 な光ポンピングにより、意図しない遷移が重なって観 測されることで、スペクトルの中心値がシフトしてし まう。このため、表3で示すとおり磁場による周波数 シフト(一次ゼーマンシフト)の不確かさが全体の不 確かさを支配していた。より高い分解能で、かつ磁場 による不確かさを減らすためには副準位の分離が不可 欠である。<sup>3</sup>P<sub>1</sub>準位の分裂を伴わずこの問題を解決す るために、磁場のパルス印加を行った。図8に時計遷 移周波数計測時の時計遷移光・検出光・In<sup>+</sup> 蛍光カウ ントゲート・Ca<sup>+</sup> 冷却光・軸方向磁場のタイミング系 を示す。図で示されているとおり、軸方向磁場は時計 遷移光を照射したときのみ印加する。これにより検出 光照射のタイミングでは強い磁場は印加しないので <sup>3</sup>P<sub>1</sub>準位は分裂せず、光ポンピングが行える。図9に

表 3	各要因におけるシフ	トとその系統不確かさ [12]

	シフト /Hz	不確かさ /Hz
一次ゼーマンシフト	0	4.6
二次ゼーマンシフト	0	< 0.1
時計レーザーによる周	0	0.1
波数シフト		
黒体輻射シフト	0	< 0.1
二次ドップラーシフト	0	0.7
(secular 運動)		
二次ドップラーシフト	0	0.4
(micromotion)		
重力シフト	10.5	< 0.1
合計	10.5	4.7

パルス磁場印加によって得られたスペクトルを示す。 各々のスペクトル線幅は80 Hz で、前節で記述した 副準位が非分離な状態での計測における線幅 (500 Hz)と比較すると、1/5以下である。

#### 3.3 ロック動作による周波数の安定化

一般的に光時計は時計レーザーを継続的に時計遷移 に周波数ロックさせることによって安定な光周波数を 生成する。本節では In<sup>+</sup>を用いた初の周波数ロック動 作について述べる。前節で示した遷移 CL ±を周波数 基準として用いる。遷移 CL ±のスペクトル全体を観 測するとフィードバック周期が長くなってしまうため、 スペクトルの肩の2点での遷移確率を観測する。この 2点の励起確率の差を誤差信号として利用し、時計 レーザーのドリフトを検出し制御する。協定世界時に 準拠する UTC(NICT)にリンクした水素メーザー、ま たは光格子時計(NICT-Sr1)を周波数基準としてイッ テルビウム(Yb)ファイバー光コムで周波数安定度と



図8 時計遷移周波数計測システムの timing table。20 ms の時計遷移光 照射に同期して磁場を印加する。



図9 パルス磁場の印加により Zeeman 分裂したスペクトル (左) 及び各々に対応する遷移強度(右)

絶対周波数の評価を行う。

時計レーザー ULE 共振器の周波数ドリフトに起因 する周波数誤差を除くため、時計レーザーの周波数制 御には1000秒ごとの周波数ドリフト補正を付加した。 CL ±の遷移についてそれぞれ2点ずつの合計4つの 周波数について、前節で述べた観測サイクルを100回 行うことにより励起率を算出し時計レーザー周波数へ のフィードバックを行った。フィードバック周期はこ の観測サイクルの総計で与えられ、現在の装置ではお およそ70秒である。光コムで計測した周波数安定度 を図10に示す。フィードバック周期以下の積分時間 での安定度は単独での時計レーザーの安定度を示して いる。水素メーザーを基準とした測定では、短い積分 時間では水素メーザー自身の不安定さが支配的となり、 長い積分時間での測定のみが意味を持つ。フィード バック周期以上の積分時間での測定結果が In<sup>+</sup>時計遷 移に周波数ロックした時計レーザーの周波数安定度を 示す。時計遷移への安定なロック動作は繰り返し行っ た実験で確認されたが、安定度計測では積分時間が



図 10 時計レーザーのアラン分散 赤で示した点が水素メーザーを基準として計測したものを示し、緑の点は Sr 光格子時計を基準にした計測を示す。

1000 秒以上となってようやく安定度が向上するのが 観測された。安定度が向上する積分時間がこのように フィードバック周期より長い問題は、フィードバック 定数の最適化や、励起確率増強によるフィードバック 周期短縮化で改善が期待される。フィードバック定数 の最適化を施さない現在の状態でも測定した安定度は 4000 秒の積算時間で1.5 × 10<sup>-15</sup> に到達している[14]。

## 4 まとめと今後の展望

NICT における<sup>115</sup>In<sup>+</sup> イオン光時計開発について報告した。<sup>115</sup>In<sup>+</sup> イオン光時計遷移周波数の先行研究における報告値は2つのみ(2000年[10]、2007年[11])で、その値が各々の不確かさの5倍ほど離れており、事実上未決状態であったが、本グループの報告した周波数値がその一方と一致することで解決された。この周波数値の報告によって、国際度量衡委員会(CIPM)の定める<sup>115</sup>In<sup>+</sup> イオン光時計遷移周波数の推奨値がそれまでよりも不確かさが1/20以下の値へと改定された。また 2017年の計測に続く時計システムの改良で、10<sup>16</sup>台の計測が可能となった。

現在では参照信号である水素メーザーの安定度に 依存しない計測を行うために、Sr 光格子時計の 時計レーザーと光コムを介した周波数比較を行って いる。より高精度の計測が可能となり 10<sup>-16</sup> 台前半の 確度での計測ができるようになると、In<sup>+</sup>の時計 遷移周波数を「秒の二次表現」の候補となる可能性 が期待される。現在「秒の二次表現」にはイオン 標準で4つ(<sup>27</sup> Al<sup>+</sup>,<sup>199</sup> Hg<sup>+</sup>,<sup>88</sup> Sr<sup>+</sup>,<sup>171</sup> Yb<sup>+</sup>)、中性原子で 3つ(<sup>171</sup> Yb,<sup>87</sup> Sr,<sup>199</sup> Hg)の合計7つの原子の持つ光学遷 移が含まれている。本グループでは In<sup>+</sup>の時計遷移を この「秒の二次表現」に追加することを目指していく。

## 【参考文献】

- H. Dehmelt, IEEE Trans. Instrum. Meas., IM-31, 83, 1982.
   蜂須英和他,情報通信研究機構研究報告, "ストロンチウム光格子時計の 周波数比較及び時系生成への応用," vol.65, no.2, 4–5, 2019.
- 3 K. Matsubara, et. al., Opt. Express, 20, 22034, 2012.
- 4 Y. Huang, et. al., Phys. Rev. Lett., 116, 013001, 2016.
- $5 \quad G. \ P. \ Barwood, \ et. \ al., \ Phys. \ Rev. \ A, \ 89, \ 050501(R), \ 2014.$
- 6 P. Dube, et. al., Metrologia, 54, 290, 2017.
- 7 N. Huntemann, et. al., Phys. Rev. Lett., 116, 063001, 2016.
- 8 C. F. A. Baynham, et. al., Journal of Modern Optics, 65, 2018, 2017.
- 9 S. M. Brewer, et. al., Phys. Rev. Lett., 123, 033201, 2019.
- 10 J. von Zanthier, et. al., Opt. Lett., 25, 1729, 2000.
- 11 Y. H. Wang, Opt. Commun. 273, 526, 2007.
- 12 N. Ohtsubo, et. al., Optics Express, 25, 11725, 2017.
- 13 K. Hayasaka, Appl. Phys. B, 107, 965, 2012.
- 14 N. Ohtsubo, et. al., Hyperfine Interactions, 240, 39, 2019.



石島博(いしじま ひろし)

電磁波研究所 時空標準研究室 有期研究技術員



**早坂和弘** (はやさか かずひろ) 未来 ICT 研究所 量子 ICT 先端開発センター 研究マネージャー 博士 (理学) 量子エレクトロニクス、量子光学、 光周波数標準



大坪 望 (おおつぼ のぞみ) 電磁波研究所 時空標準研究室 研究員 博士 (学術) 量子エレクトロニクス、光周波数標準



井戸哲也 (いど てつや)

電磁波研究所 時空標準研究室 室長 博士 (工学) 光周波数標準、光周波数計測



李 瑛 (り いん)
 電磁波研究所
 時空標準研究室
 有期研究技術員
 博士(理学)
 光周波数標準、レーザー物理



**松原健祐** (まつばら けんすけ) 電磁波研究所 時空標準研究室 研究マネージャー 博士 (理学) 周波数標準、標準時、レーザー分光



Nils Nemitz (にるす ねみっつ) 電磁波研究所 時空標準研究室 主任研究員 Dr. rer. nat. 光周波数コム、光周波数標準、標準時



蜂須英和 (はちす ひでかず) 電磁波研究所 時空標準研究室 主任研究員 博士 (工学) 光周波数標準、光格子時計とその応用