

3-2 カルシウムイオン光周波数標準

3-2 $^{40}\text{Ca}^+$ Ion Optical Frequency Standard

松原健祐 李 瑛 長野重夫 小嶋玲子 梶田雅稔 伊東宏之
早坂和弘 細川瑞彦

MATSUBARA Kensuke, LI Ying, NAGANO Shigeo, KOJIMA Reiko, KAJITA Masatoshi,
ITO Hiroyuki, HAYASAKA Kazuhiro, and HOSOKAWA Mizuhiko

要旨

イオントラップを用いた光周波数標準は 1980 年代に H. Dehmelt 博士により提案され、NICT では電波研究所(RRL)の頃よりこれに着目した基礎研究を行ってきた。2004 年には次世代の周波数標準としてカルシウムイオンを用いた開発に着手し、並行して光コム周波数カウンターと狭線幅クロックレーザーの開発を行って、2009 年には 1.2×10^{-14} の周波数確度と約 5×10^{-15} @100 秒のアラン標準偏差で周波数計測した。その後、確度と安定度の向上を目指して環境磁場を遮断する磁気シールド付きのイオントラップを開発した。2010 年にそれまでの 1/5 程度となる約 60 Hz の半値全幅で時計遷移のスペクトルを観測し、現在は 10^{-15} 台の確度を目指した周波数測定を行っている。

Optical frequency standard using ion traps was proposed for the first time by H. Dehmelt in the 1980's. NICT started investigations using this technique at the age of the Radio Research Laboratory (RRL), and the development of an optical frequency standard using calcium ions was started in 2004. As a result of simultaneous successful developments of an optical comb frequency counter and an ultra-narrow linewidth clock laser system, we attained a frequency uncertainty of 1.2×10^{-14} and an Allan deviation about 5×10^{-15} at 100 seconds in 2009. We have recently developed an ion trap system equipped with a magnetic shield in order to decrease the environmental magnetic field fluctuation. We have measured the clock transition spectrum with the linewidth of about 60 Hz, which is the fifth part of the previously measured linewidth. We are presently focusing on measurements of the clock transition frequency with the aim of achieving uncertainties of the 10^{-15} level.

【キーワード】

光周波数標準, イオントラップ, カルシウムイオン, 電気四重極子遷移

Optical frequency standard, Ion trap, Calcium ion, Electric quadrupole transition

1 まえがき

捕獲単一イオンあるいは光格子中の中性原子を利用した光周波数標準が世界的に開発されている。その主な目的は、セシウム原子のマイクロ波遷移(約 9.2 GHz)を用いた現在の一次周波数標準器の確度を超える新しい周波数標準を構築する事である。同時にその究極的な正確さを利用した、物理定数の極めて僅かな時間変化を測る研究にも興味注がれている。測位技術の高度化にも応用できる光周波数標準は現在世界中で競って開発が

進められている。

単一イオンによる光周波数標準器は 1980 年代初めに Dehmelt 博士が提唱した[1]。その利点は、(1)レーザー冷却を用いて、1次のドップラー広がりがない高精度な周波数測定ができる事。(2)電磁波とイオンの相互作用時間を長くして、フーリエ限界によるスペクトル広がりを十分に小さくできる事。(3)真空中の1個あるいは少数個のイオンを利用して、外界との相互作用を十分制御した測定ができる事である[2]。近年発展著しい光格子型の光周波数標準器に比べて、イオントラップ

型には同時に観測できる粒子数が少ないという不利がある。しかし特に(3)の利点から、本稿作成の時点では世界最高の正確さの周波数が得られる方法として、イオンを用いた光周波数標準の研究が続けられている[3]。近年はスペクトル広がりやを1 Hz レベルに狭くした高性能なレーザーが出現し、さらに光コムによる従来よりも簡易で高精度な光周波数計測が普及して、イオンを用いた周波数測定が様々な応用に向けて研究されている。

イオントラップ型の周波数標準には、従来 Ca^+ 、 Sr^+ 、 Yb^+ 、 Hg^+ といったアルカリ金属電子配置のイオン[4]-[7]が用いられた。これらはレーザーあるいはその第2高調波を使って容易にレーザー冷却されて、電気四重極子遷移を用いて比較的簡便に周波数標準を構築できる。近年には In^+ 、 Al^+ などアルカリ土類金属電子配置のイオン[8]も利用される。これらをレーザー冷却するには工夫が要するが、黒体輻射等による遷移周波数の変動が非常に小さいことから、精度が 10^{-18} 台という究極的な周波数標準を実現できる。2つの Al^+ の遷移周波数を比較して、 8.6×10^{-18} という世界最高の周波数精度が報告されている[3]。

情報通信研究機構(NICT)では、マイクロ波域の一次周波数標準器を開発した時代から、イオントラップの基礎研究とその周波数標準への応用に取り組んできた。近年はカルシウムイオン($^{40}\text{Ca}^+$)による光周波数標準を開発している。2009年には、その周波数標準に用いる周波数を 10^{-14} 台の不確かさで国際度量衡委員会の下に設置されている時間周波数諮問委員会に報告した。その結果、同委員会による推奨周波数リストへの掲載に貢献した[9]。

本稿ではイオントラップの原理から光周波数標準器の構築、さらに現在の進捗を報告する。

2 イオントラップ

2.1 イオントラップの原理

イオントラップは電磁場でイオンを微小空間に閉じ込める装置である。条件を揃えれば周波数標準に用いる光の波長より十分狭い範囲にイオンを閉じ込められる。いくつかのタイプの内ここでは Paul トラップを説明する[2][10]。基本的な Paul トラップは図1のように回転双曲面の表面を持つ

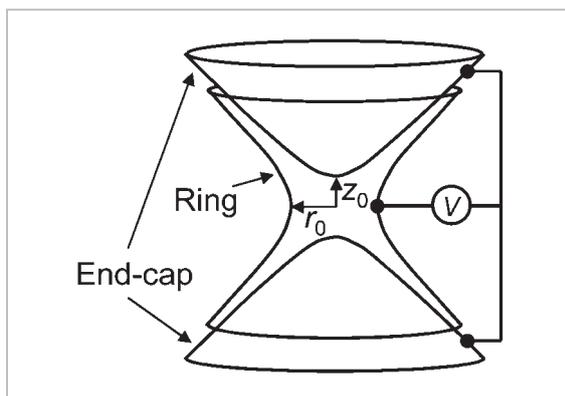


図1 イオントラップ

トラップ電極はZ方向を軸とする3枚の回転双曲面からなり、電極間に高電圧が加えられる。

1つのリング電極と2つのエンドキャップ電極から成る。

リング電極とエンドキャップ電極間に静電圧 V_{DC} を印加すると、トラップ内には

$$\phi = \frac{V_{DC}}{r_0^2 + 2z_0^2} (r^2 - 2z^2) \quad (1)$$

で示されるポテンシャル ϕ が生じる。ここでは円筒座標系 (r, z) を使い、 $r_0 (= \sqrt{2}z_0)$ はリング電極の内半径である。静電圧のみによるポテンシャルに極小点は無く(Earnshawの定理)、式(1)のポテンシャルではイオンをトラップできない。代わりに交流電圧 $V_{AC} \cos \Omega t$ を加えると、イオンには r と z の各方向で、内向きと外向きの力が時間的に交互に生じる。これを1周期で積分すると、イオンは内向きに力を受けて、

$$\Phi = \frac{Q_{ion} V_{AC}^2}{m\Omega^2 (r_0^2 + 2z_0^2)^2} (r^2 + 4z^2) \quad (2)$$

で示される疑似ポテンシャル Φ に捕獲される事になる。 Q_{ion} と m はイオンの電荷と質量である。

より正確なイオンの運動は Mathieu 方程式で書かれる。これは、電極間に $V = V_{DC} + V_{AC} \cos \Omega t$ の電圧を加えて、 $\tau = \Omega t / 2$ として、

$$\begin{aligned} \frac{d^2 u_i}{d\tau^2} &= (a_i - 2q_i \cos 2\tau) u_i = 0, \quad (i = r, z) \\ a_z &= -2a_r = -\frac{16Q_{ion} V_{DC}}{m\Omega^2 (r_0^2 + 2z_0^2)}, \quad q_z = -2q_r = \frac{8Q_{ion} V_{AC}}{m\Omega^2 (r_0^2 + 2z_0^2)} \end{aligned} \quad (3)$$

で示される。式(3)の解は、 a_z と q_z がある範囲にある場合に束縛運動となり、特に $a_z < q_z \ll 1$ の時は、運動を示す解は

$$r_i(t) = r_i \cos(\omega_i t + \phi_i) \left\{ 1 + \frac{q_i}{2} \cos(\Omega t) \right\} \quad (4)$$

$$\omega_i = \beta_i \frac{\Omega}{2}, \quad \beta_i = \sqrt{a_i + \frac{q_i^2}{2}}, \quad (i = r, z)$$

と近似できる。式(4)で、イオンの運動は、振幅が大きく振動数が ω_i の調和振動(永年運動)に、振幅が小さく振動数が Ω の調和振動(微細運動)が付加した運動と見なせる。

2.2 イオンのレーザー冷却

捕獲された直後のイオンは大きな運動エネルギーを持つので、ドップラー広がりが大きくて、高い周波数分解能で遷移測定できない。そこでレーザー冷却を用いる。レーザー冷却の詳細は他書[2]に譲り、ここではその内のドップラー冷却について、エネルギーの視点から簡単に説明する。まず2つの状態からなるエネルギー準位系を考えて、光照射によりイオンは基底状態から唯一の励起状態に励起され、励起状態からは基底状態のみ自然放出するとする。一般的な電気双極子遷移では、イオンは毎秒 10^8 回程度、励起と自然放出を繰り返す。イオンの運動方向に反対に進行するレーザーを使えば、ドップラー効果により、イオンが励起される光子のエネルギー(周波数)は、静止するイオンが励起される光子のそれよりも小さくなる。このイオンが自然放出により光子を放出する時、その光子のエネルギーは、同じくドップラー効果によって、イオンと光子の運動方向に依存して変化する。自然放出では光子はランダムな方向に放出される。そこで多数回の自然放出で平均すると、放出される光子のエネルギーは、静止するイオンが励起される光子のエネルギー(周波数)に一致する。従って平均すれば、イオンは1回の励起と自然放出によって、照射するレーザーの周波数と、静止するイオンが励起される周波数との差に相当するエネルギーを失う。これを繰り返す事でイオンは極低温まで冷やされる。ただし極低温では、1回ごとの光子の吸収と放出によるイオンのエネルギー変化(反跳エネルギー)が無視

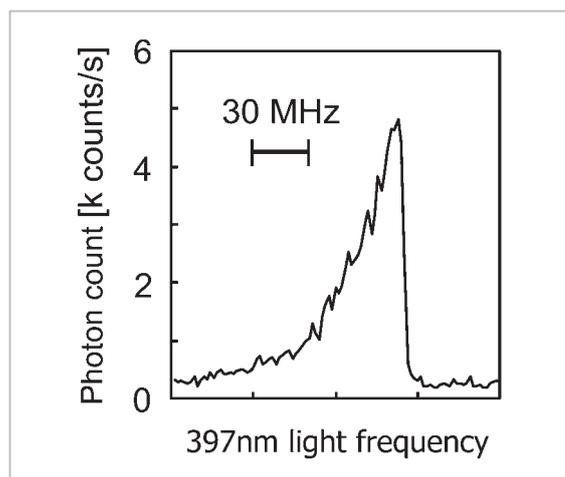


図2 単一Ca⁺イオンのレーザー冷却

レーザー冷却されるイオンは、共鳴周波数より僅かに長波長側で強い蛍光を発する。

できなくなり、それによって到達温度は1 mK程度に制限される。

トラップ中のイオンは式(4)に示すように r と z のそれぞれの方向で往復運動している。そのためイオンの場合、 r と z の両方の成分を持つ1方向からのレーザー入射だけでレーザー冷却でき、原則6方向からの光入射が必要な中性原子の場合に比べてはるかに容易に冷却できる。そして冷却によりイオンが殆ど静止すると、スペクトルのドップラー広がりは無くなり、特定の周波数で強い蛍光を発する。電気双極子遷移によるレーザー冷却では飽和強度程度の光をイオンに照射すると、1個のイオンから毎秒 10^8 程度の光子が放出される。そこで市販のレンズを使って 10^{-4} 程度の効率で蛍光検出しても、毎秒 10^4 程度の光子を検出できる。そのため唯1個の捕獲イオンからでも十分な S/N で、遷移による蛍光を検知できる。トラップされた単一の $^{40}\text{Ca}^+$ イオンのレーザー冷却のスペクトルを図2に示す。ここでは、共鳴周波数(静止状態のイオンが励起される周波数)より低い周波数側のみで、イオンはレーザー冷却されて蛍光を発する。高い周波数側では、イオンは逆にレーザーからエネルギーを与えられて加熱されるため、大きなドップラー広がりが生じて、蛍光強度は殆ど無くなる。そこで図2のように非対称なスペクトルになる。図2の測定では、冷却されたイオンの温度は、スペクトル線幅から数 mK と推測できる。

3 時計遷移と計測装置

3.1 カルシウムイオンの時計遷移

図3は $^{40}\text{Ca}^+$ イオンのエネルギー準位を示す。ここで $^2S_{1/2} - ^2D_{5/2}$ 遷移は電気四重極子遷移と呼ばれ、光波長より十分小さい $^{40}\text{Ca}^+$ イオンが、それでも空間での光の位相の違いから生じる電場勾配と相互作用して励起される。その確率は通常の光遷移(電気双極子遷移)の10億分の1程度で、 $^2D_{5/2}$ 状態は準安定状態として約1秒の寿命を持つ。一般に高精度で高安定な周波数標準には、十分に狭線幅な遷移を利用する必要がある。 $^{40}\text{Ca}^+$ の $4^2S_{1/2} - 3^2D_{5/2}$ 遷移の自然幅は0.1 Hz程度である。そこで我々はこれを周波数の標準に利用する遷移、すなわち時計遷移としている。このイオンの場合、 $^2D_{5/2}$ 状態に遷移したイオンを速やかに $^2S_{1/2}$ 状態に戻すために、 $^2D_{5/2} - ^2P_{3/2}$ 遷移が利用される。

時計遷移を狭い線幅で観測するために、 $^{40}\text{Ca}^+$ では、 $^2S_{1/2} - ^2P_{1/2}$ 遷移を用いたレーザー冷却を行う。 $^2P_{1/2}$ 状態からは $^2D_{3/2}$ 状態にも遷移するので、波長866 nmの $^2D_{3/2} - ^2P_{1/2}$ 遷移も同時に励起する。十分冷却されたイオンは、イオントラップのポテンシャルの極小にある最低振動状態に近い、非常に狭い領域に閉じ込められる。これが光波長より十分小さい場合(ラム・ディッケ条件)、イオンの運動による光電場の位相変調は非常に小さくなって、線幅の1次のドップラー広がりが無くなる。ラム・ディッケ条件が満たされたイオンの遷移の線幅は、自然幅が十分に小さければ、

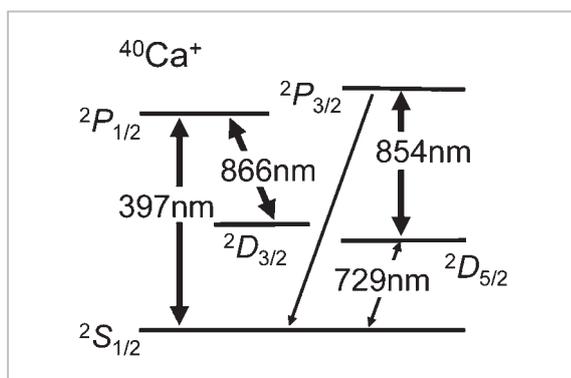


図3 Ca^+ エネルギー準位図

図の何れの波長でも、半導体レーザーを利用して光励起できる。

レーザーのスペクトル幅、飽和幅、電場や磁場の揺らぎ等で決まる。これらを適切に制御して十分狭い線幅が得られれば、そのスペクトルを周波数標準に利用できる。

3.2 実験装置

実験配置を図4に示す。主にイオントラップ、レーザー冷却用光源、クロックレーザーがあり、図4では省くが他に、Ca原子の光イオン化光源、フェムト秒光コム周波数カウンター、マイクロ波周波数標準を利用している。クロックレーザー、光コム周波数カウンター、マイクロ波周波数標準については本特集号にそれぞれ記事がある。イオントラップは真空チャンバー中に設置され、 $5 \times 10^{-8} \text{Pa}$ 程度の真空度が維持されている。トラップは直径1 mmの穴のリング電極と2本のロッド電極から成り、リング電極に周波数23 MHz、電圧600 V_{p-p}のRF電圧を加える。カルシウム原子の光イオン化には、波長846 nmの半導体レーザーから、周期分極反転KTP結晶を使った第2高調波発生で得られる423 nm光と、紫外半導体レーザーから得られる376 nm光とを用いる[11]。イオンを2個以上捕獲した時は、トラップのポテンシャルを一時的に浅くする等して1個まで減らす。またトラップ近くに設置した補正電極で電場を補正する。この補正により電場歪によるイオンの微細運動を除いてイオンを十分冷却し、ラム・ディッケ条件が満たされるようにする。そして冷却されたイオンに波長729 nmのクロックレーザーを照射して、イオンの時計遷移を観測する。

3.3 レーザー光源

本計測に用いるレーザーを幾つか説明する。レーザー冷却には波長397 nmと866 nmの半導体レーザー(LD)をリトロー型の外部共振器配置で用いた。866 nmでは市販品(Toptica)を用い、397 nmではLD素子(日亜化学)から自作した。これらの光を、安定化He-Neレーザー(メレスグリオ)の光と共にファブリーペロー共振器に入射して、ファブリーペロー共振器をトランスファーキャビティとして用いて、He-Neレーザーの波長を基準にLDの波長を安定化した。この方法でLDの短期の周波数ジッターを2 MHz以下に抑え、 10^{-10} @ $1 \sim 10^3 \text{s}$ のアラン標準偏差を確認した[12]。

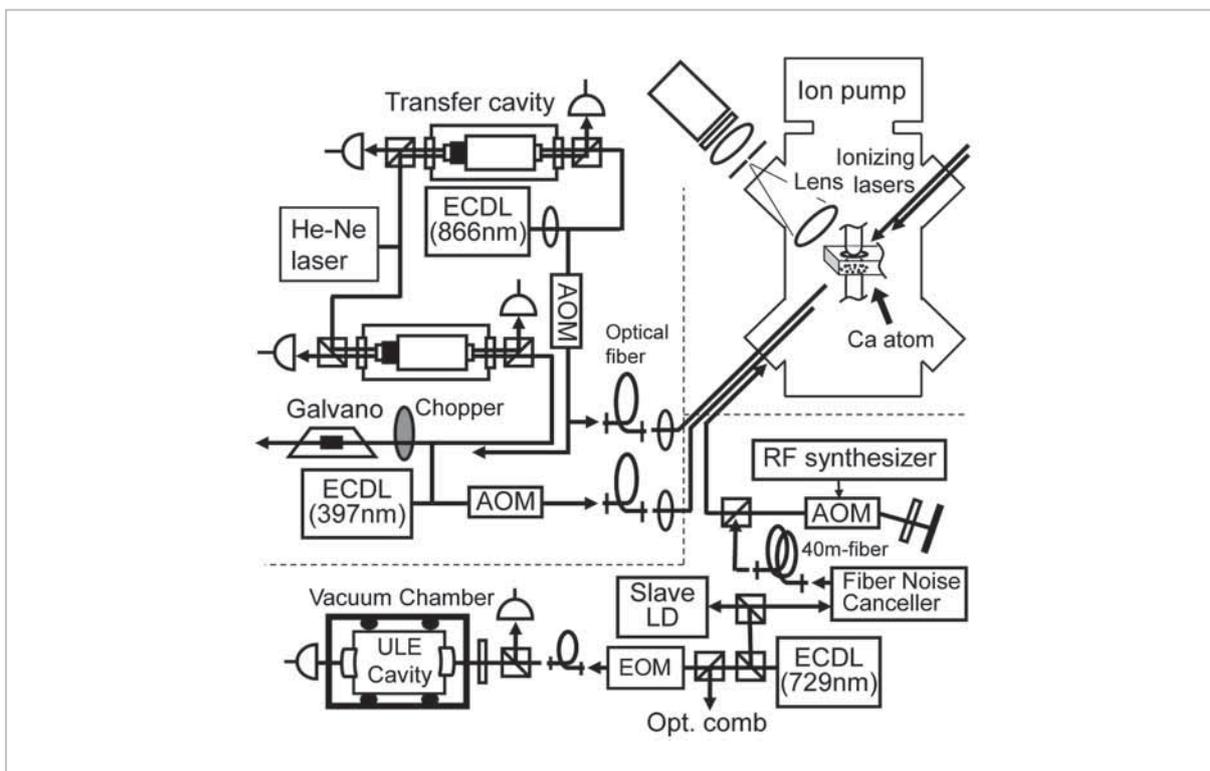


図 4 実験配置図

ECDL: 外部共振器型半導体レーザー、AOM: 音響光学素子、EOM: 電気光学素子、ULE cavity: 超低熱膨張キャビティ、Galvano: 光ガルバノチューブ、PMT: 光電子増倍管。

レーザー冷却には自然幅が数 MHz 以上の電気双極子遷移を用いるので、十分な安定度である。

時計遷移を観測する 729 nm のクロックレーザーについては、本特集号の李他による報告[13]に詳しいので、ここでは概略のみを説明する[14]。市販の LD 素子をリットマン型の外部共振器配置で用いた。スレーブ LD への注入同期で出力を 18 mW まで増幅する。同時に、狭線幅と高安定を得るために、高フィネスの Ultra-Low-Expansion (ULE) 光共振器で、光周波数を安定化する。ULE 光共振器は共振器長の経年変化と熱膨張係数が非常に小さい。加えて温度・気圧の変化と振動の影響を防ぐため、ULE 共振器を 2 層の金コート銅パイプに入れ、真空度 10^{-6} Pa のチャンバー内に置いた。チャンバーを防振台 (Minus-K) 上に置き、全体を遮音箱内に置く。ULE 共振器には熱膨張係数がゼロになる温度 (ゼロ膨張温度) があり、その温度では温度が変化しても共振周波数が変化しない。我々はこれを実測して、ペルチェ素子により温度を 1.50 ± 0.01 °C に保った。Pound-

Drever-Hall 法でレーザー周波数を ULE 共振器に安定化させている。独立な 2 台のクロックレーザーの周波数ビートから 3 Hz 以下のスペクトル幅を確認し、冷却サファイア発振器 (CSO) を基準に用いた測定によって 10 秒で 10^{-15} 台の周波数安定度を確認した。

ULE 共振器で安定化された光は、長さ 40 m の偏波面保存シングルモードファイバーでイオントラップに伝送される。この時、ファイバーの振動と温度変化で光に位相雑音が入る。これを除去するためファイバーとクロックレーザーの間に音響光学素子 (AOM) を入れて、ファイバーの出力の一部を部分反射鏡で戻した。ファイバーを往復する前と後での光の周波数差 (ビート) を測定して、それを 2 分周して AOM の駆動周波数を制御するエラー信号とした[15]。この方法で約 2 kHz 以下の帯域のノイズを抑えた。またファイバー往復の前と後との光周波数のビートをフィードバックループ外で測定した結果、その変動は装置の分解能 (1 Hz) 以下となり、十分なノイズ除去を確認した。

4 絶対遷移周波数の計測

4.1 時計遷移スペクトルの測定

時計遷移スペクトルの測定には電子棚上げ法を用いている[1]。レーザー冷却中のイオンは大きな頻度で $^2S_{1/2} - ^2P_{1/2}$ 遷移を繰り返すので、単一のイオンからも十分なS/N比で蛍光を観測できる。ここでクロックレーザーによって時計遷移が起これば、遷移後、単一イオンは暫く $^2D_{5/2}$ 状態に留まり(つまり棚上げされて)、この間は蛍光を検出できなくなる。この方法を使えば、極めて小さい遷移確率の時計遷移をほぼ100%の検出効率で観測できる。棚上げの頻度はクロックレーザーの周波数に依存しており、周波数を変えつつその頻度を測れば、時計遷移の遷移スペクトルを観測できる。

強い $^2S_{1/2} - ^2P_{1/2}$ 遷移が励起される時、 $^2S_{1/2}$ 状態のエネルギーが変化して、その結果、時計遷移の遷移周波数が変動する(つまり周波数が光シフトする)。これを防ぐため、測定では、レーザー冷却を完了した後に冷却光の照射を一時中断して、一定の時間クロックレーザーを照射した。その後再び冷却光を入射して、この時に蛍光を検出できなければ、イオンは $^2D_{5/2}$ 状態に棚上げされており、つまり直前のクロックレーザーの照射で時計遷移が起こった事が分かる。逆に蛍光を検出

できれば、時計遷移が起こらなかった事が分かる。時計遷移の有無を判定した後、イオンを854 nm光でレーザー冷却のサイクルに戻す。ところでここで、商用のAC100 V電圧は50 Hzの周期で磁場環境を変化させる。これは付加的なゼーマンシフトを起こしてスペクトルの線幅を広げる。そこでクロックレーザーの光照射はこの50 Hzに同期させた。これにより変化を抑制した磁場環境で遷移スペクトルを観測した。

測定は外部から安定な静磁場を加えて行う(今回は約80 μ T)。時計遷移には正負に対称なゼーマン分裂が生じるので、分裂の中心周波数を測る事で、1次のゼーマンシフトを補正した遷移周波数を得た。図5にスペクトルの例を示す。遷移確率のデータ(図5の黒丸)を1つ得るためには、クロックレーザーの周波数を固定した後、レーザー冷却、クロックレーザーの照射、時計遷移の判定の3ステップから成るサイクルを100回繰り返した。その中で観測した時計遷移の回数をサイクル数(ここでは100)で割った値を、そのクロックレーザーの周波数での遷移確率とした。サイクル数を増やせばスペクトルのS/N比は良くなるが、その間もクロックレーザーの周波数はドリフトして遷移周波数の不確かさが増す。そこでドリフトの速度を考慮してサイクル数を決めた。そして4.2

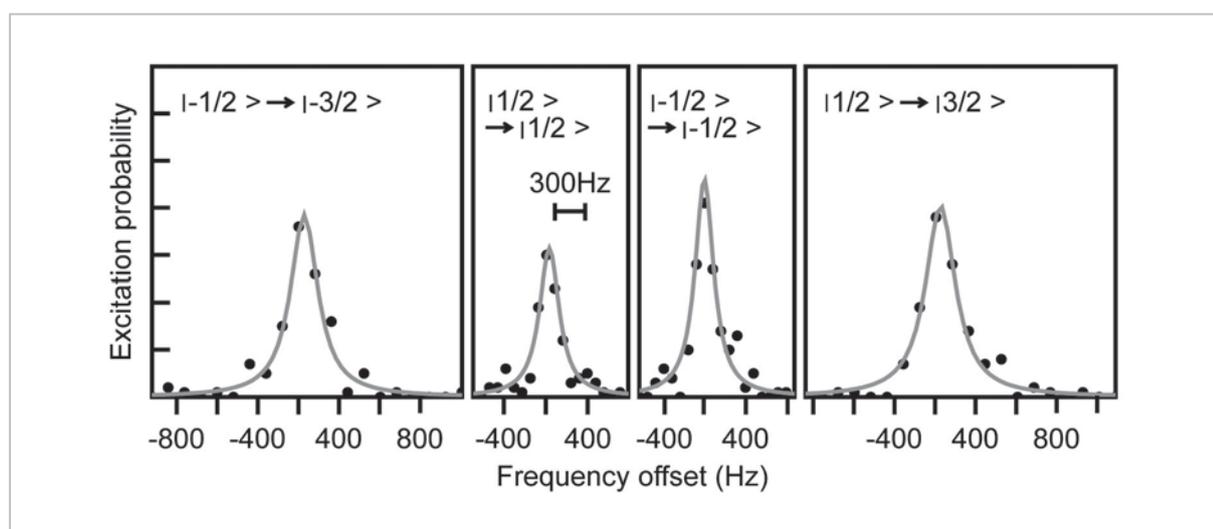


図5 ゼーマンスペクトル

約80 μ Tの安定な磁場中で($^2S_{5/2}, M_j = -1/2 \rightarrow ^2D_{5/2}, M_j = -3/2$)、($^2S_{5/2}, M_j = 1/2 \rightarrow ^2D_{5/2}, M_j = 1/2$)、($^2S_{5/2}, M_j = -1/2 \rightarrow ^2D_{5/2}, M_j = -1/2$)、($^2D_{5/2}, M_j = 1/2 \rightarrow ^2D_{5/2}, M_j = 3/2$)の2対のZeeman成分を観測した。 $| \pm 1/2 \rangle \rightarrow | \pm 1/2 \rangle$ の遷移スペクトルの線幅は約300 Hz。 $| \pm 1/2 \rangle \rightarrow | \pm 3/2 \rangle$ 遷移は、1次ゼーマンシフトの係数が $| \pm 1/2 \rangle \rightarrow | \pm 1/2 \rangle$ 遷移の2倍であるため、約400 Hzの線幅で観測された。

で説明するように、磁気副準位で異なる四重極子シフトを補正するために、(${}^2S_{5/2}, M_j = -1/2 \rightarrow {}^2D_{5/2}, M_j = -3/2$)、(${}^2S_{5/2}, M_j = 1/2 \rightarrow {}^2D_{5/2}, M_j = 1/2$)、(${}^2S_{5/2}, M_j = -1/2 \rightarrow {}^2D_{5/2}, M_j = -1/2$)、(${}^2S_{5/2}, M_j = 1/2 \rightarrow {}^2D_{5/2}, M_j = 3/2$) の4つの遷移スペクトルを各々50回測定した。さらに50回の各測定では、データ(図5の黒丸)を1つ取得しては、($M_j = -1/2 \rightarrow M_j = -3/2$)、($M_j = 1/2 \rightarrow M_j = 1/2$)、($M_j = 1/2 \rightarrow M_j = 3/2$)、($M_j = -1/2 \rightarrow M_j = -1/2$) の順で遷移を変えて、4つのスペクトルのピーク付近をなるべく近い時間に観測した。クロックレーザーの1回の照射時間は4 m 秒とした。この場合200 Hz 程度の線幅がフーリエ限界となる。照射時間をより長くして測定しても、300 Hz 程度より十分に狭い線幅は観測できなかった。クロックレーザーを長く照射しても、照射時間中の環境磁場の変動により線幅が広がったと考えられる。これについては6で説明する。

4.2 周波数シフトの見積もり

遷移の絶対周波数は無摂動の条件で決めなければならない。そこで実験で生じる摂動による周波数シフトを、測定した遷移周波数から補正する必要がある。1次のゼーマンシフトの補正は4.1で説明した。クロックレーザーを照射する時はレーザー冷却を中断したが、シャッターとして使うAOMは遮断時にも僅かに光を透過する。この光による光シフトを補正するため、幾つかの光強度でレーザー冷却を行って時計遷移スペクトルを観測し、レーザー冷却の光の強度がゼロになる時の遷移周波数を推定した。さらに時計遷移に生じる周波数シフトに四重極子シフト(一般に5 Hz 以下)がある。これはイオンが存在する領域の電場勾配と ${}^2D_{5/2}$ 状態との相互作用によるシフトで、理論的に見積もり難く、また実験中も電場勾配の変化によりシフト量が変化する。四重極子シフトの補正には、直交する3つの各方向から磁場を加え、それぞれで測定される時計遷移周波数を平均する方法、または ${}^2D_{5/2}$ 状態の磁気量子数 M_j が異なる準位への遷移周波数を測り、シフトの磁気副準位依存性から補正する方法がある[16]。今回は後者を用いている。すなわち ${}^2D_{5/2}$ 状態の M_j が $\pm 1/2$ と $\pm 3/2$ の4準位への遷移周波数を測り、

次の式で四重極子シフト $\Delta\nu_Q$ を補正した。

$$\hbar\Delta\nu_Q = \frac{J(J+1) - 3M_j^2}{J(J+1)} \times A, A = \frac{1}{4} \frac{dE_z}{dz} \Theta(D, J)(3\cos^2\beta - 1), \quad (5)$$

ここで $\Theta(D, J)$ は四重極子モーメントを、 β は磁場と量子軸がなす角を示す。式(5)から、 ${}^2D_{5/2}$ 状態の $M_j = \pm 1/2$ の準位の四重極子シフトと $\pm 3/2$ の準位のシフトは、大きさの比が4:1であると分かる。四重極子シフトは時間変化するので、短い時間内で測定したスペクトルからシフト量を見積って、それを補正する必要がある。50回測定した各回において、4つの遷移は短い時間内(5分以内)で、スペクトルの半値全幅領域を測定している。そこでまず50回の各回で、 $M_j = \pm 1/2$ への遷移のペアと $\pm 3/2$ への遷移のペアから、それぞれ1次のゼーマンシフトを補正した遷移周波数を計算した。そしてそれら2つ遷移周波数の差は、4:1の大きさの比でシフトする四重極子シフトに因るものとして、シフト量を計算し、それを補正した遷移周波数の測定値を得た。50回測定したので50の測定値を得た。今回測定した ${}^2D_{5/2}$ 状態の $M_j = \pm 1/2$ 準位の四重極子シフトの大きさは、平均で1.9 Hzであった。四重極子シフトの測定値の標準偏差を、測定回数(ここでは50)の平方根で割った値(標準誤差)は3.4 Hzであった。この誤差は主に、およそ300~400 Hzの線幅から推定する測定値のばらつきによる。実験中の四重極子シフトの時間変化は、誤差に対して小さいため、観測できなかった。これら以外に、実験室の標高測定から重力シフトを3.4(± 0.1) Hzと[17]、また理論計算により黒体輻射シフトを0.4(± 0.1) Hzと[18]見積もった。また2次のゼーマンシフト、測定中のコイル電流の変化による静磁場のドリフト、クロックレーザーの周波数ドリフトによる測定周波数の不確かさはそれぞれ0.2 Hz以下と見積もった。2次のドップラーシフト等これら以外による周波数シフトは、今回得られる不確かさのレベルでは十分小さいと見積もった。

4.3 絶対遷移周波数の決定

50回繰り返したスペクトル測定毎に、1次のゼーマンシフト、四重極子シフト、冷却光による光シフトを補正した遷移周波数を計算した。補正後の遷移周波数の値の分布をヒストグラムとして

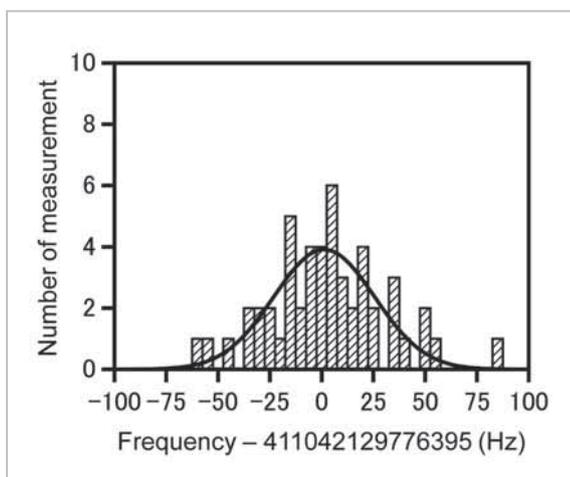


図6 遷移周波数のヒストグラム

スペクトルを50回測定して、各々で周波数補正を行い、絶対周波数の分布とした。標準偏差は28.6 Hz、また中心値の標準誤差は4.1 Hz。

図6に示す。クロックレーザーの周波数はモード同期フェムト秒 Ti:S レーザーを用いて NICT が開発した光コム周波数カウンターで測った[19]。この光コムそしてレーザーの周波数変調に使う発振器の基準周波数には、NICT が維持管理する水素メーザの 10MHz を使った。水素メーザの周波数は NICT の標準時 UTC (NICT) [20] と毎時比較される。さらに国際度量衡委員会から発表される各国の標準時と国際原子時の違いのレポート (Circular T) [21] を利用して、SI 単位系の秒の定義を基準とした周波数決定を行った。図6の周波数データ、UTC (NICT) と Circular T による周波数補正、さらに重力シフト等の補正から時計遷移の絶対周波数を 411 042 129 776 395 Hz と得た。不確かさは ± 4.8 Hz で、遷移周波数との相対比は 1.2×10^{-14} となった。 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの時計遷移の周波数測定については、2008 年に我々のグループが行い[3]、2009 年にオーストリアのインスブルク大学が行った (測定値は 411 042 129 776 393 (± 1) Hz) [22]。これを受けて 2009 年、国際度量衡委員会の時間周波数諮問委員会は、その周波数を 411 042 129 776 393 Hz (不確かさ 4×10^{-14}) と勧告した[9]。2008 年に我々は約 500 Hz の線幅で時計遷移を観測して、遷移周波数の不確かさは 4.4×10^{-14} であった[3]。今回不確かさが小さくなり、加えて、我々の 2008 年の測定値とインスブルク大学の測定値から時間周波数諮問委員会が決めた勧

告値とも、不確かさの範囲で一致した。

5 クロックレーザーの長期の周波数安定化

5.1 レーザーの長期安定化

遷移周波数計測を光周波数標準に応用するには、遷移周波数を基準にレーザー等の光周波数発生器を制御し、その周波数を他の周波数と比較、参照させる必要がある。そこで光周波数標準器としての動作を確認するため、 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの遷移を用いてクロックレーザーの周波数を長期的に安定化して、その安定度を評価した。その概念図を図7に示す。クロックレーザーの周波数 (図7の f_{LD}) は、短期的には ULE 共振器で十分安定化されるが、長期的には共振器長の経年変化によりゆっくりドリフトする。その長期的な変化を補正する AOM (AOM1 とする) を、時計遷移を観測するための AOM (AOM2 とする) に加えて光路に挿入した。ここでは $^2D_{5/2}$ 状態の M_j が $\pm 1/2$ への遷移のみを観測して、四重極子シフトの変動は安定度に殆ど影響しないとして考慮しなかった。AOM2 で光周波数をシフトさせ、2つの遷移のピーク直近の周波数と、加えて、各ピーク直近からスペクトルの半値半幅だけ正負に離れた周波数、合計6つの周波数における遷移確率を繰り返し測定した。半値半幅における遷移確率とピーク直近での遷移確率の比が 1:2 に近づくように、半値半幅は随時調整される。さらにそれぞれの遷移で、半値全幅だけ離れた2つの周波数での遷移確率のバランスを検出して、そこでの遷移確率が等しくなるように[23]、AOM1 と AOM2 による周波数シフトを制御するが、ここで6つの周波数を切り替える AOM2 の周波数シフト (図7の f_{SCAN}) の中心値は固定させた。代わりに AOM1 による周波数シフト (f_{STB}) を調節して、 $f_{LD} + f_{STB}$ と f_{SCAN} の中心値の和を、1次ゼーマンシフトを補正した時計遷移の周波数に一致させた。AOM2 の周波数シフトの中央値は固定されるので、クロックレーザーの周波数 (f_{LD}) の変動は AOM1 の周波数 (f_{STB}) により補正されて、その和が一定になる。その一定の周波数を光周波数コムで測った。

その結果、50 Hz の AC100 V に同期する振幅約 $0.2 \mu\text{T}_{\text{p-p}}$ の磁場変動を観測した。 $0.2 \mu\text{T}_{\text{p-p}}$ の磁場変動は $|\pm 1/2 \rangle \rightarrow |\pm 1/2 \rangle$ 遷移のスペクトルを約 1 kHz 広げる。今回の $|\pm 1/2 \rangle \rightarrow |\pm 1/2 \rangle$ 遷移の約 200 Hz の追加の広がりがある。これは主に実験室から約 1 km 離れた鉄道の影響による。従来の測定では約 $80 \mu\text{T}$ の静磁場を水平方向 (図 9 の X 方向) に加えたので、垂直方向の磁場変動が合成磁場に与える影響はかなり小さくなっている。図 9 の磁場変動は、その不規則さから、約 8 時間の測定実験で決定した従来の遷移周波数に系統的なシフトを与えていないと考えるが、今後より高い確度で周波数計測するために、環境磁場の影響をさらに除く必要がある。

環境磁場の変動の影響を抑えるには一般に 2 つ方法がある。1 つはイオントラップを磁気シールドで囲って環境磁場を遮蔽する方法である。もう 1 つはトラップを 3 軸方向のヘルムホルツコイルで囲い、適切な位置にある磁場センサーからの信号を利用して、変動を打ち消すようにコイルの電流を調整する方法である。これらの内、我々は小さい領域の磁場変動を確実に抑制できる磁気シールドを採用する事にした。

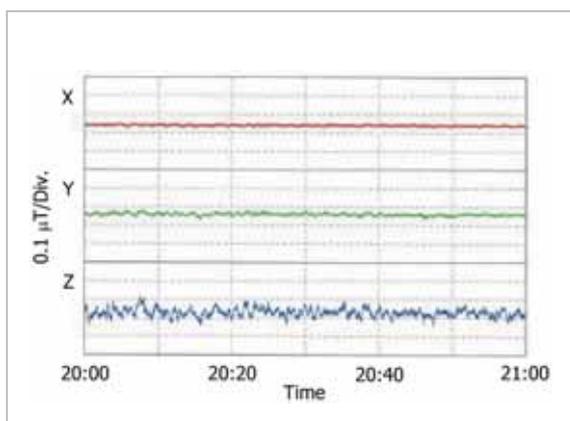


図 9 直流磁場変動

イオントラップ付近の環境磁場変動の例 (20:00 ~ 21:00)。X はイオンに静磁場を加える方向、Z は鉛直方向。電車が運行しない深夜 (2:00 ~ 4:00) は、X、Y、Z 方向で、図の X 方向程度の直流磁場変動が観測された。(株) オータマの測定による。

6.2 磁気シールドの性能と時計遷移の観測

磁気シールド導入の目標として 100 Hz 未満の線幅を観測する事を考えた。例えばクロックレーザーの照射時間を 20 m 秒にすれば、フーリエ限界は約 40 Hz になる。この時、外部磁場による広がりを 50 Hz 程度まで抑えられれば、約 70 Hz の半値全幅での時計遷移観測を期待できる。20 m 秒の照射時間は 50 Hz の 1 周期になり AC100 V への同期では線幅を狭窄できない。50 Hz の広がりは $0.01 \mu\text{T}$ 程度の磁場変動で生じる。実測した $0.2 \mu\text{T}$ の変動をこの程度に減衰させるには、磁場強度を 1/20 以下にする必要がある。

シールドの設計は株式会社オータマと行った。



図 10 磁気シールド写真

写真右側の円筒形のケースが磁気シールド。2 層のシールド内に静磁場用コイルとトラップ用真空チャンバーがある。

表 1 磁気遮蔽係数

freq. (Hz)	2 layer		1layer	
	radius	axis	radius	axis
0.2	325	19	9	2
1	349	20	10	2
55	259	27	8	3
100	155	29	6	3
200	84	29	4	3
500	41	31	3	3

係数は、磁気シールドが無い時の強度を、シールドがある時の強度で割った値で示される。交流磁場の周波数に依存する。2 層にして大きな効果を得た。円筒の軸方向には小さいが、50 Hz 付近でも 25 以上の十分な効果を持っている。

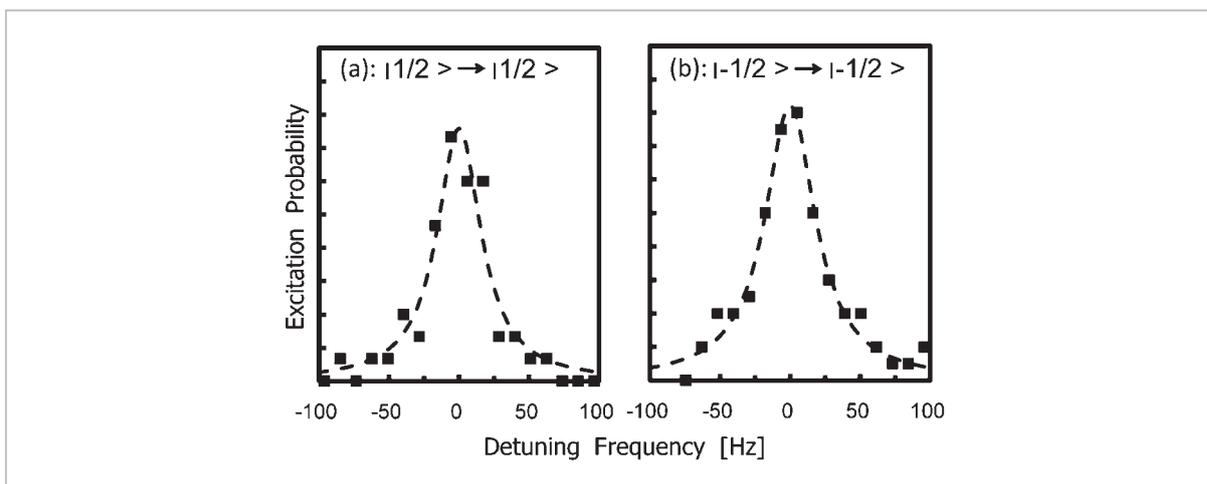


図 11 シールドを用いた遷移スペクトル

磁気シールド内の約 60 μT の安定な磁場で $\Delta M_j=0$ の 1 対の Zeeman 成分を観測した。(a) は ($^2S_{5/2}, M_j=1/2 \rightarrow ^2D_{5/2}, M_j=1/2$) の遷移。(b) は ($^2S_{5/2}, M_j=-1/2 \rightarrow ^2D_{5/2}, M_j=-1/2$) の遷移。半値全幅は約 60 Hz。

真空チャンバーには電気配線、真空配管、光入射と検出用のガラス窓があり、これらを妨げずにシールドを行う。また測定は安定磁場中で行うため、シールド内に 3 対のヘルムホルツコイルを設置する。強度と加工し易さから厚さ 1.5 mm のパーマロイ板で製作する事としたが、1 層では遮蔽効果が不足するため 2 層とした。磁気シールドの写真を図 10 に示す。真空チャンバーは一辺 70 mm の立方体であるが、3 対のコイルと 2 層のシールドで囲うと、シールドは外直径と軸長が共に約 300 mm のやや大きな円筒形になった。

表 1 は磁気シールドの磁気遮蔽係数を示す。2 層にする事で 1 層よりも非常に大きなシールド効果が得られた。遮蔽係数は磁場変動の周波数に依存しており、50 Hz 付近で 25 以上の係数を得て、目標を達成できる仕様となった。さらに円筒形の軸方向よりも軸に垂直な方向で遥かに大きなシールド効果を持っている。そこで軸を水平に向けた現在の設置方法で、図 9 に観測された鉛直方向に大きな直流磁場変動を、非常に効果的に遮蔽できる。

これまでに、シールド内のイオントラップに単一 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンを捕獲して時計遷移を観測する事に成功した。イオントラップの形状はこれまでと同様である。図 11 に観測した ($^2S_{5/2}, M_j=1/2 \rightarrow ^2D_{5/2}, M_j=1/2$) と ($^2S_{5/2}, M_j=-1/2 \rightarrow ^2D_{5/2}, M_j=-1/2$) の時計遷移を示す。クロックレー

ザーの照射時間は 20 m 秒である。半値全幅は約 60 Hz であった。磁気シールドが磁場変動を良く減衰して、従来の 1/5 まで線幅を狭窄できたと考えられる。照射時間によるフーリエ限界は 40 Hz で、追加の広がり 45 Hz 程度と見積もれる。およそ期待した磁場の遮蔽効果が得られて、目標の線幅が得られたと考えられる。

7 むすび

7.1 今後の測定

磁気シールドを備えたイオントラップ装置を新たに開発することにより、時計遷移スペクトルを約 60 Hz の線幅で観測できて、現在は 10^{-15} 台の不確かさを目指した周波数計測を進めている。到達できる不確かさがスペクトルの Q 値 (遷移周波数を線幅で割った値) に反比例するとすれば、従来の 1.2×10^{-14} の 1/5 程度の値が期待できるが、4.2 で説明した周波数シフトの補正の不確かさがあるため、最終的な不確かさを容易に予想する事はできない。また 4.3 で説明した Circular T は 5 日毎の周波数比較を報告するもので、 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの測定と同じ時間で比較されない事から、 5×10^{-15} 程度の不確かさを従来考慮していた。そこでこの値より小さい不確かさを得るには、NICT が運用する Cs 原子泉型一次周波数標準器の周波数を基準にした周波数決定が必要になる。現在これ

らも含め、 10^{-15} 台を目指した計測を検討している。

またイオントラップでは1個のイオンを繰り返し観測する。そこで、例えばクロックレーザーの周波数変更などの時間を極力減らして高速に測定する必要がある。さらに ULE 共振器の長さ変動によるレーザーの周波数ドリフトには、時間に比例する成分が大きいので、過去のドリフトから未来を予測して補正する方法を採れば、より高い周波数安定度が得られると考えられる。

7.2 まとめ

NICT で開発中の $^{40}\text{Ca}^+$ イオン光周波数標準を報告した。 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの時計遷移である $^2S_{1/2} - ^2D_{5/2}$ 遷移の周波数を、SI 単位系の時間の定義を基準に測定して、絶対周波数として

411 042 129 776 395 Hz を得た。相対的な不確かさは 1.2×10^{-14} である。またクロックレーザーの長期的な周波数ドリフトを時計遷移で補正し、その周波数安定度を測定した結果、100 秒以上の平均化時間で 5×10^{-15} 程度の安定度を得た。そして、より短い時間で優れた確度と安定度を得るために、磁気シールドに囲まれたイオントラップを開発した。シールドの遮蔽効果係数は 50 Hz 付近で 25 以上で、それにより時計遷移のスペクトルの半値全幅を 60 Hz 程度まで狭窄できた。現在、 10^{-15} 台の不確かさで、遷移周波数を測定する準備を進めており、また将来にはストロンチウム原子、あるいは他種イオンによる標準との周波数比較を計画している。

参考文献

- 1 H. Dehmelt, "Mono-Ion Oscillator as Potential Ultimate Laser Frequency Standard," IEEE Trans. Instrum. Meas., IM-31, pp. 83–87, 1982.
- 2 大槻義彦編, 占部伸二, 町田茂, 高柳英明, "現代物理最前線 3," 共立出版, pp. 3–65, 2000.
- 3 C.-W. Chou, D. B. Hume, J. C. J. Koelemeij, D. J. Wineland, and T. Rosenband, "Frequency Comparison of Two High-Accuracy Al^+ Optical Clocks," Phys. Rev. Lett., Vol. 104, 070802, 2010.
- 4 K. Matsubara, K. Hayasaka, Y. Li, H. Ito, S. Nagano, M. Kajita, and M. Hosokawa, "Frequency Measurement of Optical Clock Transition of $^{40}\text{Ca}^+$ Ions with an Uncertainty of 10^{-14} Level," Appl. Phys. Express, Vol. 1, 067011, 2008.
- 5 H. S. Margolis, G. P. Barwood, G. Huang, H. A. Klein, S. N. Lea, K. Szymaniec, and P. Gill, "Hertz-Level Measurement of Optical Clock Frequency in a Single $^{88}\text{Sr}^+$ Ion," Science, Vol. 306, pp. 1355–1358, 2004.
- 6 C. Tamm, S. Weyers, B. Lipphardt, and E. Peik, "Stray-field-induced quadrupole shift and absolute frequency of the 688-THz $^{171}\text{Yb}^+$ single-ion optical frequency standard," Phys. Rev. A, Vol. 80, 043403, 2009.
- 7 T. Rosenband, D. B. Hume, P. O. Schmidt, C. W. Chou, A. Brusch, L. Lorini, W. H. Oskay, R. E. Drullinger, T. M. Fortier, J. E. Stalnaker, S. A. Diddams, W. C. Swann, N. R. Newbury, W. M. Itano, D. J. Wineland, and J. C. Bergquist, "Frequency Ratio of Al^+ and Hg^+ Single-Ion Optical Clocks; Metrology at the 17th Decimal Place," Science, Vol. 319, pp. 1808–1812, 2008.
- 8 T. Liu, Y. H. Wang, R. Dumke, A. Stejskal, Y. N. Zhao, J. Zhang, Z. H. Lu, L. J. Wang, T. Becker, and H. Walther, "Narrow linewidth light source for an ultraviolet optical frequency standard," Appl. Phys. B, Vol. 87, pp. 227–232, 2007.
- 9 http://www.bipm.org/cc/CIPM/Allowed/98/REC_CIPM2009_C2_LIST_OF_ST_FREQUENCIES_18_DEC_2009.pdf
- 10 P. K. Ghosh, "Ion Traps," Oxford University Press, 1995.
- 11 石島博, 福田京也, 松原健祐, 細川瑞彦, "pp-KTP 結晶を用いた 423nmSHG 光の発生," レーザー研究, Vol. 35, pp. 273–276, 2007.

- 12 K. Matsubara, S. Uetake, H. Ito, Y. Li, K. Hayasaka, and M. Hosokawa, "Precise Frequency-Drift Measurement of Extended-Cavity Diode Laser Stabilized with Scanning Transfer Cavity," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 44, pp. 229–230, 2005.
- 13 李瑛, 長野重夫, 松原健祐, 小嶋玲子, 熊谷基弘, 伊東宏之, 小山泰弘, 細川瑞彦, "超狭線幅クロックレーザーの開発," *情報通信研究機構季報*, 本特集号, 3–5, 2010.
- 14 Y. Li, S. Nagano, K. Matsubara, H. Ito, M. Kajita, and M. Hosokawa, "Narrow-Line and Frequency Tunable Diode Laser System for S-D Transition of Ca^+ Ions," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 47, pp. 6327–6332, 2008.
- 15 L.-S. Ma, Z. Y. Bi, A. Bartels, L. Robertsson, M. Zucco, R. S. Windeler, G. Wilpers, C. Oates, L. Hollberg, and S. A. Diddams, "Optical Frequency Synthesis and Comparison with Uncertainty at the 10^{-19} Level," *Science*, Vol. 303, pp. 1843–1845, 2004.
- 16 C. F. Roos, M. Chwalla, K. Kim, M. Riebe, and R. Blatt, "Designer atoms for quantum metrology," *Nature*, Vol. 443, pp. 316–319, 2006.
- 17 M. Kumagai, H. Ito, M. Kajita, and M. Hosokawa, "Evaluation of caesium atomic fountain NICT-CsF1," *Metrologia*, Vol. 45, pp. 139–148, 2008.
- 18 M. Kajita, Y. Li, K. Matsubara, K. Hayasaka, and M. Hosokawa, "Prospect of optical frequency standard based on a $^{43}\text{Ca}^+$ ion," *Phys. Rev. A*, Vol. 72, 043404, 2005.
- 19 S. Nagano, H. Ito, Y. Li, K. Matsubara, and M. Hosokawa, "Stable Operation of Femtosecond Laser Frequency Combs with Uncertainty at the 10^{-17} Level toward Optical Frequency Standards," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 48, 042301, 2009.
- 20 <http://www.bipm.org/jsp/en/TimeFtp.jsp?TypePub=publication>
- 21 花土ゆう子, "信頼性と正確さを向上させた日本標準時システム," *応用物理*, Vol. 76, No. 6, pp. 632–635, 2007.
- 22 M. Chwalla, J. Benhelm, K. Kim, G. Kirchmair, T. Monz, M. Riebe, P. Schindler, A. S. Villar, W. Hänsel, C. F. Roos, R. Blatt, M. Abgrall, G. Santarelli, G. D. Rovera, and Ph. Laurent, "Absolute Frequency Measurement of the $^{40}\text{Ca}^+$ $4s^2S_{1/2}$ – $3d^2D_{5/2}$ Clock Transition," *Phys. Rev. Lett.* Vol. 102, 023002, 2009.
- 23 J. E. Bernard, L. Marmet, and A. A. Madej, "A laser frequency lock referenced to a single trapped ion," *Opt. Commun.* Vol. 150, pp. 170–174, 1998.
- 24 梶田雅稔, 小山泰弘, 細川瑞彦, "時間周波数標準の計測と評価の基礎," *情報通信研究機構季報*, 本特集号, 2-1, 2010.



まつばら けんすけ
松原健祐

新世代ネットワーク研究センター
光・時空標準グループ主任研究員
博士(理学)
光周波数標準、レーザー分光



李 瑛(Ying Li)

新世代ネットワーク研究センター
光・時空標準グループ主任研究員
博士(理学)
光周波数標準、レーザー物理

ながの しげお
長野重夫

新世代ネットワーク研究センター
光・時空標準グループ主任研究員
博士(理学)
光周波数標準、精密時空計測

こじま れいこ
小嶋玲子

新世代ネットワーク研究センター
光・時空標準グループ 博士(理
学) イオン光周波数標準



かした まさとし
梶田雅稔

新世代ネットワーク研究センター
光・時空標準グループ主任研究員
博士(理学)
原子分子物理学、周波数標準

いとう ひろゆき
伊東宏之

新世代ネットワーク研究センター
光・時空標準グループ主任研究員
博士(理学)
原子周波数標準、光周波数標準



はやさか かずひろ
早坂和弘

新世代ネットワーク研究センター
量子ICTグループ主任研究員
博士(理学)
量子情報科学、量子光学、量子エ
レクトロニクス



ほそかわ みずひこ
細川瑞彦

新世代ネットワーク研究センター
研究センター長 博士(理学)
原子周波数標準、時空計測