

博士論文

秒の再定義に向けた Yb/Sr 時計遷移  
周波数比の測定

Yb/Sr clock frequency measurement  
toward the redefinition of the second

横浜国立大学大学院

理工学府 数物・電子情報系理工学専攻

物理工学教育分野 洪研究室

久井 裕介

Hisai Yusuke

2021 年 3 月

# 目次

第1章 序論.....	1
1.1 時計とは.....	1
1.2 国際単位系 (SI) と物理量の定義.....	5
1.3 研究目的.....	9
1.4 本論文の構成 .....	11
第2章 遅延線を用いた周波数オフセットロックの評価.....	13
2.1 遅延線を用いた周波数オフセットロックの原理.....	13
2.2 実験装置.....	15
2.3 遅延線によるエラー信号 .....	16
2.4 2台の Nd: YAG レーザー間の遅延線ロックと位相同期の周波数安定度の比較.....	17
2.5 小型固体レーザーとファイバーコム間の遅延線ロックの周波数安定度の評価 .....	19
2.6 遅延線ロックの長期周波数安定度と再現性 .....	21
2.7 遅延線ロックの周波数安定度のサーボ回路依存性 .....	23
第3章 Sr・Yb 光格子時計のための 8 ブランチ光周波数コムの開発と応用.....	24
3.1 8 ブランチコム開発の背景 .....	24
3.2 8 ブランチコムの作成.....	25
3.3 8 ブランチコムの光格子時計の実験への応用 .....	30
3.4 考察 .....	33
第4章 Sr 光格子時計の実験装置.....	35
4.1 産総研における光格子時計の配置.....	35
4.2 真空チェンバー .....	36
4.3 光格子時計に用いるレーザー光源.....	38
4.4 Sr 原子の冷却・トラップと時計遷移分光のための光学系 .....	48
4.5 Doppler キャンセルとファイバーノイズキャンセル.....	51
4.6 リロックシステム .....	53
第5章 Sr 原子のレーザー冷却と時計遷移の分光.....	55
5.1 Sr 光格子時計における分光手順 .....	55
5.2 Zeeman slower .....	56
5.3 磁気光学トラップ .....	57
5.4 光格子によるトラップ.....	63
5.5 スピン偏極.....	64
5.6 時計遷移の分光.....	65

5.7 時計遷移への周波数安定化.....	70
第 6 章 Sr 光格子時計の系統不確かさ評価.....	72
6.1 interleave 法.....	72
6.2 光格子による光シフト.....	73
6.3 黒体輻射シフト.....	76
6.4 衝突シフト.....	78
6.5 Zeeman シフト.....	79
6.6 DC Stark シフト.....	80
6.7 時計レーザーによる光シフト.....	80
6.8 サーボエラー.....	81
6.9 Line pulling.....	82
6.10 AOM チャープ.....	83
第 7 章 Yb/Sr 時計遷移周波数比の計測.....	84
7.1 Yb/Sr 時計遷移周波数比の計算.....	84
7.2 Sr・Yb 光格子時計のエラーバジェットと比の補正值の計算.....	86
7.3 時計遷移周波数比計測の安定度.....	87
7.4 Yb/Sr 時計遷移周波数比計測の結果.....	90
第 8 章 まとめと今後の展望.....	93
8.1 まとめ.....	93
8.2 今後の展望.....	94
Appendix 波長 461 nm PPLN の評価.....	97
参考文献.....	104
謝辞.....	115

## 第1章 序論

本章では研究の背景として原子時計と SI 単位系について紹介した後、本研究の目的と本論文の構成について記す。

### 1.1 時計とは

#### 1.1.1 時計の種類と原理

時計は用いている現象によって大きく 2 種類に分けられる。1 つは崩壊現象を用いた時計であり、砂時計や水時計が該当する。例えば砂時計では砂が完全に落ちきるまでの時間が予め分かっており、そのことを用いて測りたい時間を測る。もう 1 つは周期現象を用いた時計である。振り子時計やクォーツ時計など、広く用いられている時計は周期現象を用いているものが多い。例えば振り子時計では振り子の周期は基本的に振り子の腕の長さのみで決まることから、振り子の腕の長さを正確に決めれば正確に時間を測ることが出来る。

周期現象を用いた時計は 3 つの要素により構成される。「基準」、「振動子」、「カウンター」である。人々が腕時計を合わせるときは何か別の「信用できる」基準を用意する。昔は時報を聞いて合わせたかもしれないし、今はスマートフォンの時計を信用して合わせるかもしれない。また、時計が時を刻むことが出来るのは振動子のおかげである。腕時計の中には水晶発振器が入っており、電圧をかけると一定の周波数で振動する。その振動の回数をカウンターによって数え、何回振動したら秒針を 1 つ進めると設定することによってはじめて正確な時計が出来上がる。

#### 1.1.2 原子時計

原子時計は上で述べた時計の 3 要素のうち「基準」の役割を担う装置である。カウンターを備えていないので原子時計単体では時を刻むことは出来ない。原子時計の原理は次のようなものである。原子はその原子種や同位体によって固有な周波数の電磁波に共鳴する。この周波数は無摂動であれば常に一定である。この事実から原子の固有周波数を周波数基準として用いることが出来る。また、周波数は時間の逆数であることから、周波数基準である原子を時間の基準とすることが出来る。

現在の「秒」の定義を実現している装置であるセシウム原子時計は、セシウム原子の基底状態の 2 つの超微細構造準位間の遷移周波数（マイクロ波）を基準に用いた原子時計である [1]。原子時計において時間の基準として用いられる遷移を時計遷移と呼ぶ。

ある原子が原子時計として用いられるためには、時計遷移が狭線幅であることが必要となる。現在の時間の基準を維持している最先端のセシウム原子時計である原子泉型セシウム原子時計 [2] では、Ramsey 分光によって得られる時計遷移の線幅は約 1 Hz である。マイクロ波領域の原子時計は原子泉型セシウム原子時計以外にも、商用セシウム原子時計やチップスケールのセシウム原子時計 [3]、あるいは原子泉型ルビジウム原子時計や商用ルビジウム原子時計 [4,5] などが存在する。

マイクロ波領域の原子時計に対して、ここ 20 年で光を用いた原子時計である光時計が発明され、急速に研究が進んできた。光時計の研究が進展した背景には、光周波数コムの発明が大きな役割を果たしている。次節では光時計の詳細を述べる。

### 1.1.3 光時計

光時計は時計遷移に可視光周辺の領域の電磁波を用いた原子時計である。マイクロ波と異なり、光は周波数が非常に高いので商用の周波数カウンターでは測ることが出来ない。光周波数コムが発明されるまでは、周波数チェーン [6] と呼ばれる方法で光の周波数を測っていた。具体的には、何台もの CO<sub>2</sub> レーザーやガン発振器などを繋ぐことによって光の領域からマイクロ波の領域に落とし込んで測定するといった、複雑で大規模な装置を用いていた。周波数安定化の制御を行っている箇所が多いことから周波数チェーンを用いて光の周波数を測ることは大変な作業であり、当時はまだ光の周波数を容易に扱うことは出来なかった。したがって、この時点では光時計が存在しても実用的なものにはならなかった。2000 年頃に光周波数コムが発明されると、容易に光の周波数をマイクロ波の周波数に落とし込むことができるようになり、光時計が実用的なものとなるきっかけとなった。

光時計には大きく分けて「単一イオン光時計」 [7] と「光格子時計」 [8] の 2 種類がある。他にも自由落下させた中性原子を用いた光時計 [9] も存在するが、衝突シフトの不確かさが大きいため現在はあまり研究されていない。

単一イオン光時計とは、その名の通りイオントラップによって閉じ込められた 1 個のイオンを分光する時計である。イオントラップは電場のゼロ点にイオンをトラップするため、トラップに用いている電場は摂動を与えない。また、ポテンシャル深さが深いため、単一イオン光時計は安定にイオンを保持することが出来る。しかし、イオン 1 個からの信号を用いているため量子射影ノイズが大きくなり、安定度を低減するためには長時間積算する必要がある。

光格子時計とは、多数の中性原子をレーザーの定在波によって形成される光格子ポテンシャルにトラップし、分光する時計である。光格子による光トラップはレーザーの双極子力を用いている。光格子時計では多数の原子からの信号を用いているため、量子射

影ノイズが小さくなり短時間で安定度を向上させることができるという利点がある。しかし、本来レーザーによって光トラップされた原子は Stark シフトを受け、エネルギー準位がシフトしてしまう。そこで東京大学の香取秀俊教授は、原子があたかも Stark シフトを受けないような波長のレーザーでトラップすることを考案した [10]。このような波長を魔法波長と呼び、光格子時計の実現のカギを握っている。

光時計に関する研究が進み、現在では 18 桁の精度を持つものが報告されている [11-17]。高精度な原子時計は単なる時間の基準を実現する装置としての役割にとどまらず、今まで見えなかった現象を周波数という物理量を通して見ることを可能にする。実際にいくつかの光時計の応用が考えられている。例えば、一般相対性理論から導かれる重力赤方偏移の効果を考慮して、重力ポテンシャルが変化すると時間の進みが変わることを利用した測地学への応用が期待されている。具体的には異なる 2 地点に置かれた光時計の周波数を比較することによって、2 地点間のジオポテンシャルの差を cm のオーダーで測ることが出来る [18,19]。また、火山の近くに光時計を置くことによって地表面の隆起による重力ポテンシャルの変化を検出することができ、火山活動のモニタリングに用いることも出来る [20]。一方、基礎物理の研究への応用も考えられている。例えば、現在のところ定数であると考えられている微細構造定数  $\alpha$  や陽子と電子の質量比  $m_p/m_e$  が、時間変化せず本当に「定数」であるのかを高い精度で検証することが出来る [21]。また、高さの異なる 2 地点の間の時間の進みの違いを精密に測ることによる、一般相対性理論の検証も行われている [17]。宇宙物理の分野では  $\alpha$  の変化を見ることによるダークマターの検出 [22,23] や、人工衛星に光格子時計を搭載することによる宇宙空間での重力波の検出 [24] などが提案されている。これらの実験を光時計によって行うためには、光時計の可搬化や、実験室外の環境でも使用できる、あるいは長時間無人で連続運転できるように堅牢化を進めることが必要となる。そのような方向性でも研究が進められており、実際にトラックの内部に構築し運搬可能な光格子時計や [25]、小型化され実験室外の環境でも  $10^{-18}$  台の不確かさでの測定が可能な光格子時計 [17]、80% 以上の稼働率で半年にわたって断続的な長期運転を行った光格子時計 [26] が報告されている。また、人工衛星に光格子時計を搭載することに向けた研究も進んでいる [27,28]。

#### 1.1.4 Sr 光格子時計

光格子時計に用いられる原子はアルカリ土類金属や、アルカリ土類金属に準じた電子配置を持つ原子である。アルカリ土類金属は 2 つの価電子を持ち、スピン一重項状態と三重項状態が存在する。アルカリ土類金属が光格子時計に用いるのに適している主な理由は以下の 4 つである。①スピン禁制遷移であり狭線幅な遷移である  $^1S_0 - ^3P_1$  遷移が存

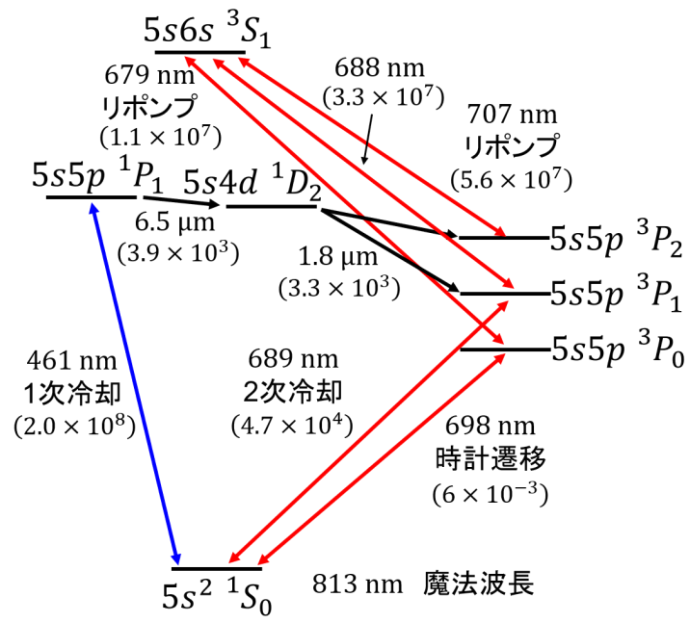


図 1.1 光格子時計に関連する Sr 原子のエネルギー準位図。カッコ内の数字は緩和レートを表す。

レーザー冷却のみで光格子にトラップするのに十分な極低温まで原子を冷却することが出来る。②二重禁制遷移であり非常に狭線幅な遷移である  $^1S_0 - ^3P_0$  遷移が存在し、この遷移を時計遷移として用いることが出来る。③時計遷移である  $^1S_0 - ^3P_0$  遷移は  $J = 0 - J = 0$  遷移で磁気モーメントを持たないため、磁場の影響を受けにくい。④時計遷移に対して魔法波長が存在する。光格子時計に原子を用いるには大前提としてまず②の条件を満たしていることが必要であり、その上で④を満たさなければならない。さらに技術的に実現可能となるには①と③の性質を持っていることが必要になる。

本研究で用いた Sr 原子の安定同位体は質量数が 84、86、87、88 の 4 つのものがある。これらのうち、存在比が最も多いものが  $^{88}\text{Sr}$  であり、約 83 % を占める。光格子時計によく用いられるものはフェルミオンである  $^{87}\text{Sr}$  であり、核スピン  $I = 9/2$  を持ち、存在比は 7 % である。

図 1.1 に Sr 原子のエネルギー準位図を示す [29]。Sr 光格子時計では 2 段階のレーザー冷却を行う。1 次冷却は強い遷移である波長 461 nm の  $^1S_0 - ^1P_1$  遷移を用い、2 次冷却では弱い遷移である波長 689 nm の  $^1S_0 - ^3P_1$  遷移を用いる。時計遷移  $^1S_0 - ^3P_0$  の波長は 698 nm であり、 $^{87}\text{Sr}$  においては超微細構造のカップリングにより二重禁制遷移でありながらも許容される。光格子に用いる魔法波長は 813 nm である。さらに、冷却サイクルを閉じることや脱励起に用いるリポンプレーザーは波長 679 nm と 707 nm であり、それぞれ  $^3P_0 - ^3S_1$ 、 $^3P_2 - ^3S_1$  遷移に対応している。

表 1.1 定義定数

定義定数	記号	数値	単位
Cs の超微細遷移周波数	$\Delta\nu_{\text{Cs}}$	9 192 631 770	Hz
真空中の光速	$c$	299 792 458	$\text{m s}^{-1}$
プランク定数	$h$	$6.626\,070\,15 \times 10^{-34}$	J s
電気素量	$e$	$1.602\,176\,634 \times 10^{-19}$	C
ボルツマン定数	$k$	$1.380\,649 \times 10^{-23}$	$\text{J K}^{-1}$
アボガドロ定数	$N_A$	$6.022\,140\,76 \times 10^{23}$	$\text{mol}^{-1}$
視感効果度	$K_{\text{cd}}$	683	$\text{lm W}^{-1}$

表 1.2 SI 基本単位

基本量		基本単位	
名称	典型的な記号	名称	記号
時間	$t$	秒	s
長さ	$l, x, r$ など	メートル	m
質量	$m$	キログラム	kg
電流	$I, i$	アンペア	A
熱力学温度	$T$	ケルビン	K
物質質量	$n$	モル	mol
光度	$I_v$	カンデラ	cd

## 1.2 国際単位系 (SI) と物理量の定義

国際単位系 (SI) は自然科学だけでなく、社会生活においても世界で統一的に使われる単位として国際度量衡総会 (CGPM) によって確立された単位系である。本節では SI について簡単に紹介し、さらに時間という物理量に焦点を当てる。

### 1.2.1 SI 基本単位

2019 年に行われた SI の改定により、SI は 7 つの定義定数をもとに構成されている。表 1.1 に 7 つの定義定数とその値を示す [1]。これらの定数はかつては被測定対象であったが、現在では不確かさを持たない定義値となっている。そして定義定数を用いて表 1.2 に示す 7 つの SI 基本単位を定義することが出来る。具体的な定義は参考文献 [1] に記載されているのでここでは省略する。また、SI に属するあらゆる単位は SI 基本単位の組み合わせで表すことができ、そのような単位を組立単位と呼ぶ。



## 1.2.2 物理量の定義

SI 基本単位の定義に注目すると、人工物によらない定義であることが分かる。特に、時間を除く 6 つは特定の物質に依らない定義となっている。このような普遍的な定義の仕方は「À tous les temps, à tous les peuples (すべての時代に、すべての人々に)」というメートル条約の精神を反映した理想的なものである。特定の人工物である原器による定義はある 1 つの機関しかオリジナルを所有することが出来ず、他の機関はそのコピーを所有することになる。また、人工物の原器は万が一紛失したり破損した場合完全に失われてしまい、再度全く同じものを作ることは不可能であることや、汚染などによる変化といった問題も抱えていた。実際に、キログラム原器は約 40 年の間に質量が約 50  $\mu\text{g}$  変化したことが報告された。このような事情を踏まえて 2019 年の定義改定では、唯一の原器であったキログラム原器による質量の定義から、プランク定数を用いた定義へと変わった。さらに、これまで物質定数を用いて定義されていた温度 K (水の三重点を用いた) や物質量 mol ( $^{12}\text{C}$  原子の質量を用いた) もそれぞれボルツマン定数とアボガドロ定数を用いた定義となった。基礎物理定数を用いた定義は直感的には分かりにくいだが、科学力があればどこでも実現することが出来るという利点がある。

## 1.2.3 秒の再定義へ向けて

時間の単位である「秒」は現在光時計による再定義が検討されている (1.2.2 節で述べたような基礎物理定数によって時間を定義する方法 [30] も考えられるが、現時点では現実的ではない)。国際度量衡委員会 (CIPM) は、原子泉型セシウム原子時計以外にも国際原子時 (TAI) に貢献することが出来る周波数標準のリストである、秒の二次表現 (SRS) を作成することを 2001 年に提言し、2004 年に実際に  $^{87}\text{Rb}$  原子時計のマイクロ波遷移がこのリストに加えられた。SRS には 2017 年現在、3 つの光格子時計と 5 つの単一イオン光時計、さらにマイクロ波の Rb 時計が含まれている (表 1.3) [31]。勧告値は過去に報告された絶対周波数計測の結果を加重平均して決定している。SRS には TAI への貢献だけでなく、新たな秒の定義の候補リストという側面もある。本研究で用いた Sr 光格子時計も SRS に含まれており、秒の再定義の有力な候補となっている。秒の再定義は現時点では 2030 年頃に行われると見込まれており、それまでに世界の各研究機関が各々の光時計の絶対周波数計測を行って報告する必要がある。

秒の再定義へ向けて CIPM はロードマップを策定し、具体的に次の 5 つのマイルストーンを設定した。①少なくとも 3 つの異なる光時計が、その時の最高の性能を持つセシウム原子時計よりも約 2 桁小さい不確かさを示す。②①を満たす光時計のうち少なくとも 1 つが 3 回他の研究機関の光時計と  $5 \times 10^{-18}$  より小さい不確かさで比較される。③①を満たす光時計が 3 つの別々の原子泉型 Cs 原子時計と Cs 原子時計の不確かさで

表 1.3 秒の二次表現

定義定数	記号	数値
<sup>87</sup> Rbの基底状態の 超微細分裂	$6 \times 10^{-16}$	6834 682 610.904 3126
<sup>87</sup> Sr原子 $5s^2 \ ^1S_0 - 5s5p \ ^3P_0$	$4 \times 10^{-16}$	429 228 004 229 873.0
<sup>87</sup> Sr <sup>+</sup> イオン $5s^2 \ ^2S_{1/2} - 4d \ ^2D_{5/2}$	$1.5 \times 10^{-15}$	444 779 044 095 486.5
<sup>171</sup> Yb原子 $6s^2 \ ^1S_0 - 6s6p \ ^3P_0$	$5 \times 10^{-16}$	518 295 836 590 863.6
<sup>171</sup> Yb <sup>+</sup> イオン(電気八重極子遷移) $^2S_{1/2} - ^2F_{7/2}$	$6 \times 10^{-16}$	642 121 496 772 645.0
<sup>171</sup> Yb <sup>+</sup> イオン(電気四重極子遷移) $6s^2 \ ^2S_{1/2} - 5d \ ^2D_{3/2}$	$6 \times 10^{-16}$	688 358 979 309 308.3
<sup>199</sup> Hg <sup>+</sup> イオン $5d^{10}6s \ ^2S_{1/2} - 5d^96s^2 \ ^2D_{5/2}$	$1.9 \times 10^{-15}$	1064 721 609 899 145.3
<sup>27</sup> Al <sup>+</sup> イオン $3s^2 \ ^1S_0 - 3s3p \ ^3P_0$	$1.9 \times 10^{-15}$	1121 015 393 207 857.3
<sup>199</sup> Hg原子 $6s^2 \ ^1S_0 - 6s6p \ ^3P_0$	$5 \times 10^{-16}$	1128 575 290 808 154.4

制限される測定を行う。④光時計が TAI に定期的に貢献する。⑤少なくとも 5 つの光時計間の周波数比測定をそれぞれ少なくとも 2 回行い、不確かさ  $5 \times 10^{-18}$  以下で一致することが示される。以上 5 つのマイルストーンのうちいくつかは現時点ではかなり挑戦的な課題であり、例えば⑤の条件を達成した報告は現時点ではまだ無い。また、光時計の研究はどこか 1 つのグループがベストデータを出せば良いというものではない。物理量の定義の改定は世界の根本に関わるため、非常に慎重に行われなければならない。したがって、複数の研究機関の間での再現性が確認されることが重要となる。いわば、全てのマイルストーン達成のためには世界の研究機関の競争と協力が欠かせない。

#### 1.2.4 時系

時系とは、時間にとっての座標系のことである。本節では現在の時系について説明する。我々が日常生活で使っている時系は協定世界時 (UTC) である。例えばパソコンの時刻設定の際にタイムゾーンを選択するが、このときに UTC に対して±何時間の差が

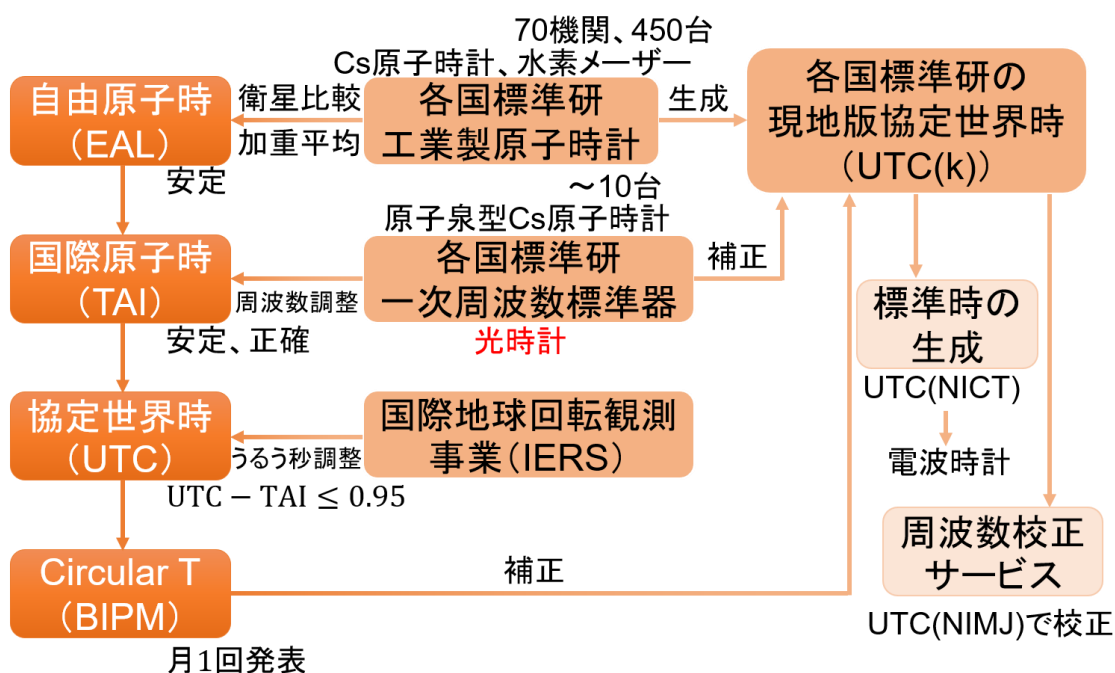


図 1.2 現在の時系。

あるかを選択する。UTC はロンドンのグリニッジ天文台を通る経線上の時間に設定されており、日本は UTC に対して+9 時間となっている。UTC の生成過程をさかのぼっていくと、おおもとは世界各国の標準研究所 (NMI) が所有する、セシウム原子時計や水素メーザーなどの高精度な発振器に行きつく。この世界約 70 機関、約 450 台の発振器による信号は衛星リンクにより比較され、加重平均される。こうして得られた時系は自由原子時 (EAL) と呼ばれる。EAL は非常に安定な時系ではあるが、最も正確な一次周波数標準器を参照していないため正確ではない。そこで、原子泉型セシウム原子時計や SRS に含まれる光時計で EAL に調整を加えることによって正確な時系が生成される。この時系を国際原子時 (TAI) という。TAI は原子時計によって正確に時間が刻まれているが、一方で我々が住む地球の自転は徐々に遅くなっており、TAI における正午と太陽の南中の時刻にずれが生じてくる。TAI を実生活に用いると、やがて体感する時刻と TAI の時刻の間に大きなずれが生じ、生活に支障をきたす可能性がある。そこで、国際地球回転観測事業 (IERS) が TAI とのずれを測り、補正を加えたものが先ほど挙げた UTC である。また、この補正は UTC と TAI の差が 0.95 秒以上になったときに行われ、UTC に 1 秒が加算される。このとき挿入される 1 秒をうるう秒と呼ぶ。

一方、各国の標準研が所有する原子時計や水素メーザーによって生成されるローカルな協定世界時を UTC(k) と呼ぶ。UTC(k) と UTC の間の差は国際度量衡局 (BIPM) が



図 1.3 情報通信研究機構（NICT）によって生成される日本の標準時。写真は JR 中央線武蔵小金井駅の改札前。

取りまとめている Circular T というデータベースで月 1 回公表される。Circular T はいわばそれぞれの UTC(k)の成績表のようなものである。Circular T の結果に基づいて各国の標準時の UTC(k)の管理者は自らの UTC(k)に調整を加える。また、管理者は UTC(k)のデータを毎月 BIPM に報告する。

日本の標準時を維持・管理する役割は情報通信研究機構（NICT）が担っている。例えば電波時計や、スマートフォンに組み込まれている時計は UTC(NICT)をもとに校正される。一方、日本の標準時には直接寄与していないが、産総研は UTC(NMIJ)を用いて民間企業に周波数校正サービスを提供している。このように、原子時計は我々の日常生活につながっている。

### 1.3 研究目的

本研究は秒の再定義に産総研の Sr 光格子時計が貢献するために、1.2.3 節で紹介したマイルストーンのうち④と⑤の達成に向けて行ったものである。産総研では 2009 年に世界で初めて Yb 光格子時計の絶対周波数計測に成功した [32]。また、2014 年には Sr 光格子時計の絶対周波数計測も行い [33]、さらに世界で初めて Yb/Sr 時計遷移周波数比の測定を行った [34,35]。近年では、ロバストで長期運転可能な 2 台目の Yb 光格子時計を開発し、半年にわたる断続的な長期運転に成功したことを 2020 年に報告した [26]。この Yb 光格子時計は TAI にも貢献している。Yb 光格子時計と Sr 光格子時

計の両方を保有している研究機関は世界でも産総研と理研のみであり、ローカルに2種の原子の周波数比較を出来ることは強みである。本研究は、このような産総研における光格子時計の研究の歴史的背景を踏まえて、不確かさを低減して再度周波数比の測定を行う。2014年に報告したSr光格子時計の系統不確かさは $3.8 \times 10^{-16}$ であり [33]、周波数比計測の合計の不確かさは $1.4 \times 10^{-15}$ であった [35]。周波数比計測において統計不確かさは $1.3 \times 10^{-15}$ であり、主に統計不確かさが測定を制限していた。したがって、まずは長期にわたって測定を行うことを容易にするため、光格子時計のロバスト化を図った。また、長期測定が可能になれば interleave 法 (6.1 節参照) による系統不確かさの評価の際の統計不確かさの低減にもつながり、結果的に系統不確かさも小さくできることが期待される。その結果として、2014年に報告した値よりも小さな不確かさで Yb/Sr 時計遷移周波数比の値を報告することを目的とする。

2台の光時計を比較することにはいくつかの意味がある。まず、光時計同士の比較はセシウム原子時計の不確かさで制限されないということである。現在報告されている中で最も小さいセシウム原子時計の系統不確かさは $1.7 \times 10^{-16}$ である [2] (通常は $3 \sim 4 \times 10^{-16}$ )。一方、単一イオン光時計や光格子時計は $10^{-17} \sim 10^{-18}$ 台の系統不確かさのものが多数報告されている [11-13, 17, 25, 36-39]。このような光時計に対してセシウム原子時計を基準とした絶対周波数計測を行うと、測定の不確かさがセシウム原子時計で制限され、光時計の不確かさで測定することが出来ない。したがって、不確かさの小さい光時計同士での比較が近年重要となっている。同種原子同士の比較では、2つの光時計間の周波数比が1であるか、という事を検証することで時計の同等性を検証できる [11]。一方、異種原子間での比較の場合は1ではない周波数比の値が求められる。時計の同等性を検証する場合は、3つの異種原子 A, B, C の間の周波数比を測定し、式(1.1)の恒等式の成立を検証する。

$$\frac{\nu_A}{\nu_B} \times \frac{\nu_B}{\nu_C} \times \frac{\nu_C}{\nu_A} = 1 \quad (1.1)$$

しかし、現時点ではこの検証の結果は Sr, Yb, Hg 光格子時計で行われた $(\nu_{\text{Hg}}/\nu_{\text{Yb}}) \times (\nu_{\text{Yb}}/\nu_{\text{Sr}}) \times (\nu_{\text{Sr}}/\nu_{\text{Hg}}) - 1 = 0.4(1.3) \times 10^{-16}$ にとどまっており [40]、さらなる検証が行われる必要がある。

秒の再定義として採用される光時計は表 1.3 に挙げたものの中から1つが選ばれる予定であるが、異種原子の周波数比が正確に求められていることは秒の再定義後にも恩恵をもたらす。すなわち、仮に A という原子が新たな秒の定義となったときに、 $\nu_A/\nu_B$  の値が分かっているならば比の値を通して B の原子を用いて定義に基づいた測定が出来るようになる。周波数比の値は一度十分精密に決定されれば、他の光時計を介した別の周波数計測を行うときにその光時計の系統不確かさで制限される、一次標準器に基づいた測定を誰でも行うことが出来るようになる。したがって、周波数比をなるべく小さな不確かさで決定することには意義がある。

上で述べたことは主にメトロロジに強く関連することであるが、一方で異種原子の光時計の周波数比を計測することは新たな物理の発見にもつながることが期待される。例えば、原子によって微細構造定数 $\alpha$ の感度が異なることから、2種類の光時計を用いたダークマターの探索が提案されている [41]。ダークマターが $\alpha$ の値にどのようなレベルで影響を与えるかはまだ分かっておらず、少なくとも現時点では光時計によるダークマターの検出は行われていないため、光時計のさらなる高精度化が要求される。

## 1.4 本論文の構成

本論文は8つの章と Appendix から構成される。

第1章では、光時計について簡単に述べると同時に、光時計による秒の再定義へ向けた動きや時系の生成について述べる。

第2章では、魔法波長で光格子レーザーを周波数安定化するための手法として採用した、遅延線による周波数オフセットロックの周波数安定度について評価した。周波数安定化の手法としてよく用いられる位相同期と比較して、本手法は到達できる周波数安定度は位相同期よりは低い、ロックがたいへん堅牢であることが分かった。また、本手法が環境の温度の影響を受けることや、周波数安定度が用いているサーボ回路に大きく依存することも分かった。

第3章では、Yb・Sr 光格子時計の実験のために設計された「8 ブランチ光周波数コム」の開発と応用について述べる。8 ブランチ光周波数コムは1台で Yb・Sr 光格子時計で用いる各種 CW レーザーの周波数安定化基準光源として機能すると同時に、両者の光格子時計の周波数計測も可能である。開発した8 ブランチ光周波数コムの性能評価を行い、さらに8 ブランチ光周波数コムを用いた CW レーザーの周波数安定化と周波数計測も行った。その結果、光格子時計への応用のために十分な性能を持つことが確認された。

第4章では、Sr 光格子時計の装置について述べる。光格子時計は多数の周波数安定化レーザーを必要とすることから、大規模で複雑な装置である。装置の理解を深めるために、それぞれの光学系を用途ごとに細分化して説明し、なるべく詳細かつ実際の装置に忠実に記述する。

第5章では、Sr 光格子時計による時計遷移の分光の方法について述べる。真空チェンバー中に設置された原子オーブンで加熱され、気体の原子ビームとなった Sr 原子は、Zeeman 減速と磁気光学トラップによって数 $\mu\text{K}$ までレーザー冷却された後に光格子にトラップされる。光格子中の原子に時計レーザーの $\pi$ パルス照射し、Rabi 分光を行う。そして分光によって得られたスペクトルに時計レーザーを安定化する。

第6章では、interleave法によるSr光格子時計の系統不確かさの評価について述べる。Interleave法とは、系統不確かさを引き起こす要因となるパラメーターを2つの値の間で交互に変化させて測定することによって、パラメーターの変化に対する系統シフトの依存性を調べる方法である。この依存性から実際に光格子時計を運用した際の周波数の系統シフトとその不確かさを評価した。得られた系統不確かさは産総研のグループで以前評価した際の値の1/3以下となった。

第7章では、Yb・Sr光格子時計の時計遷移周波数比の測定について述べる。Yb/Sr周波数比を測定する際には2台の光格子時計の分光のタイミングを同期することにより、Dick効果と呼ばれる周波数安定度を悪化させる要因の低減を図った。統計不確かさは系統不確かさよりも十分小さい値となり、系統不確かさで制限される測定となった。6日間の測定からYb/Sr周波数比の値を算出し、先行研究との比較を行った。

第8章では、本研究のまとめと今後の展望について述べる。

Appendixでは、1次冷却に用いた波長461nmレーザー光源の改善のため、改良された周期的分極反転ニオブ酸リチウム(PPLN)の特性を調べた。従来我々のグループが用いていたPPLNは2次高調波のパワーがあまり大きく、さらに出力パワーが不安定になるという問題があった。新しいPPLNではこれらの問題が解決されたことを確認した。なお、このとき用いたPPLNは本論文での実験では使用していない。

## 第2章 遅延線を用いた周波数オフセットロックの評価

本章では、光格子時計の実験に使われているレーザーの周波数安定化の手法の1つである、同軸ケーブルによる遅延線を用いた周波数オフセットロックについて述べる。まず2.1節ではこの手法の原理を説明する。2.2節では周波数安定度を評価するための2つの実験の実験装置について説明する。2.3節ではこの手法で得られるエラー信号を示す。2.4節では2台のNd:YAGレーザー間で周波数オフセットロックを行った際の周波数安定度を示す。2.5節では光周波数コムに線幅の広い小型固体レーザーを周波数オフセットロックしたときの周波数安定度を示す。2.6節と2.7節では、この手法の長期安定度や周波数安定度を制限している要因について考察する。本章の内容は原著論文としてApplied opticsにて発表した[42]。

### 2.1 遅延線を用いた周波数オフセットロックの原理

レーザーの周波数安定化には様々な手法がある。最も一般的な周波数安定化の手法は位相同期である。位相同期はレーザーの周波数安定化に限らずRF回路で広く用いられている手法である。特徴としては、参照信号に対して位相を忠実に追従させることができるため高い周波数安定度を達成でき、適切にフィードバック制御のパラメーターが設定されている状態であれば周波数安定化されたレーザーの安定度が参照信号の安定度で制限される。一方、位相同期では広い制御帯域を必要とし、周波数安定度が著しく悪い信号は安定化できないこと、安定化したいRF信号のS/Nが低い（目安としては30dB以下）場合、位相同期が難しくなること、制御がロバストでないこと、参照信号を生成するための発振器が必要であることなどの短所もある。そこで、位相同期以外のレーザーの周波数安定化の手法が開発され、報告されている。例としては、周波数-電圧変換器を用いる方法[43]、フィルターを用いる方法[44-46]、同軸ケーブルによる遅延線を用いた方法[47,48]などがある。本研究では光格子時計の実験において高い周波数安定度を必要としないレーザーに対して、簡便かつ高い制御帯域を必要としない同軸ケーブルによる遅延線を用いた方法（以下、遅延線ロックと呼ぶ）を採用した。そこで、遅延線ロックが光格子時計の実験に十分な周波数安定度を達成できるか評価した。



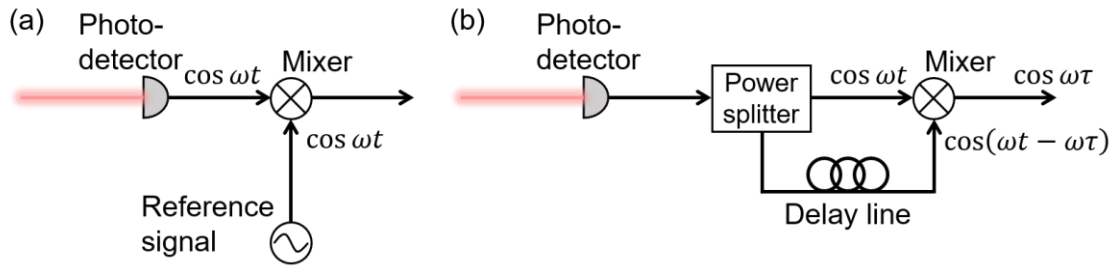


図 2.1 (a)位相同期の原理。(b)遅延線ロックの原理。

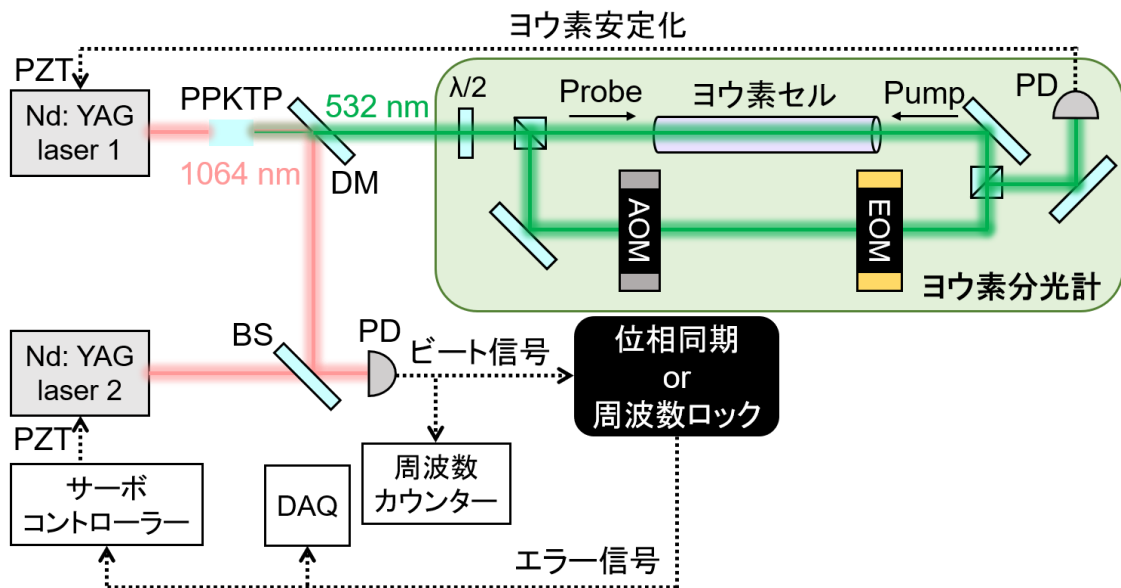


図 2.2 2 台の Nd: YAG レーザー間での周波数安定化の実験の装置図。点線は RF 信号を表す。PZT: ピエゾ素子、PPKTP: 周期分極反転リン酸チタニルカリウム ( $\text{KTiOPO}_4$ )、DM: ダイクロイックミラー、BS: ビームスプリッター、 $\lambda/2$ : 1/2 波長板、PD: 光検出器、AOM: 音響光学変調器、EOM: 電気光学変調器、DAQ: データ収集デバイス。

図 2.1 に遅延線ロックの原理と、比較として位相同期の原理を示す。位相同期では図 2.1(a)のように光検出器によってヘテロダイン検出した 2 台のレーザーのビート信号 (RF) と参照信号の位相差を、ミキサーによってエラー信号として検出して周波数安定化する。一方、遅延線ロックでは図 2.1(b)のようにビート信号をパワースプリッターで 2 つに分け、片方を同軸ケーブルによる遅延線に通し位相の遅れを与える。この位相の遅れは遅延時間  $\tau$  とビート周波数  $\omega$  に依存し、同軸ケーブル 1 メートルあたり  $\tau \approx 5 \text{ ns}$  である。ミキサーによって 2 つの信号の位相差を検出すると、位相差が  $\omega$  に依存するため、この位相差を周波数安定化のためのエラー信号として用いることができる。この過程は次のような式で表される。

$$\cos \omega t \cos(\omega t - \omega \tau) = \frac{1}{2} [\cos(2\omega t - \omega \tau) + \cos \omega t] \quad (2.1)$$

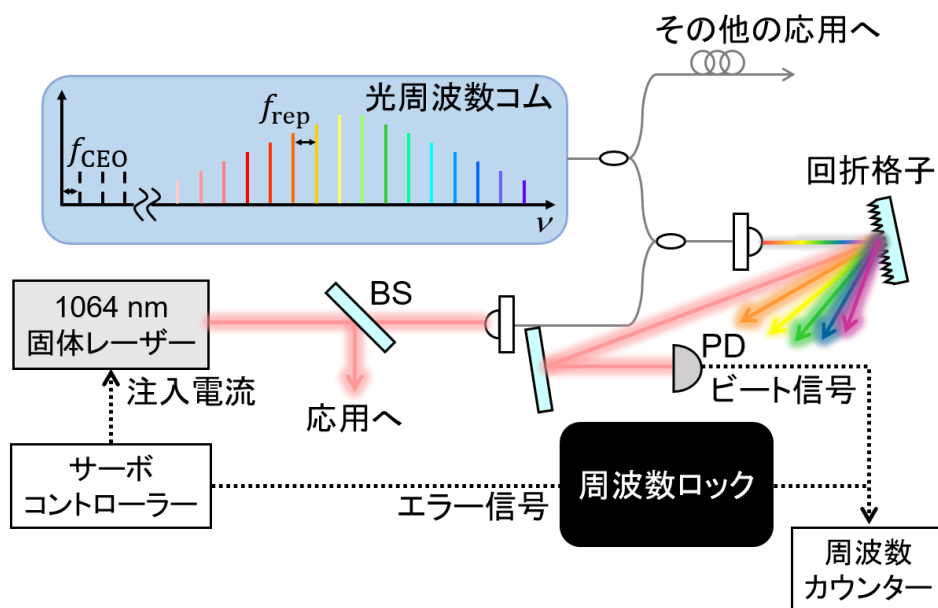


図 2.3 小型固体レーザーの光周波数コムへの周波数安定化の実験の装置図。点線は RF 信号を表す。BS: ビームスプリッター、PD: 光検出器。

なお、高周波の項はローパスフィルターで除去する。

## 2.2 実験装置

遅延線ロックの周波数安定度を評価するために、大きく分けて2つの実験を行った。1つ目は Nd:YAG レーザー間での遅延線ロックの実験 (図 2.2)、もう1つは小型固体レーザーを光周波数コムに遅延線ロックする実験 (図 2.3) である。1つ目の実験では、2台の波長 1064 nm の Nd:YAG レーザーを用意し、そのうちの1台を Modulation transfer 法によってヨウ素分子の R(56)32-0 の  $a_{10}$  遷移に周波数安定化した(ちなみに、この遷移は CIPM によって秒の二次表現以外の周波数標準として設定されており、勧告値は 563 260 223 513 kHz、不確かさは  $8.9 \times 10^{-12}$  である)。いずれの Nd:YAG レーザーも線幅が数 kHz のオーダーであり、パワーは最大で約 900 mW 出力することができる。ヨウ素安定化するには、周期分極反転リン酸チタニルカリウム (PPKTP) を用いた2次高調波発生によって得られた波長 532 nm の光で分光を行った。ヨウ素安定化された Nd:YAG レーザーの基本波はダイクロイックミラーによって2次高調波と分離され、周波数安定化されていない Nd:YAG レーザーと合波して光検出器によって両者の間のビート信号のヘテロダイン検出に用いた。検出されたビート信号は遅延線ロックに用いられ、図 2.1(b)の方法でエラー信号を得た後、サーボコントローラー (Precision Photonics LB1005) を用いて Nd:YAG レーザーのピエゾ素子にフィードバックを行っ

た。また、本実験では比較のために図 2.1(a)の位相同期による周波数安定化も行った。周波数安定化されたビート信号は、GPS タイムベースによって校正されたデッドタイムフリーの周波数カウンター (Pendulum CNT-91) を用いて周波数計測した。なお、位相同期の参照信号に用いたシンセサイザーも GPS タイムベースを参照している。

2つ目の実験では、短期周波数安定度が低い小型固体レーザーとファイバーコムを用意した。小型固体レーザーは LD によって励起される Nd:YVO<sub>4</sub> レーザーであり、波長は 1064 nm、最大出力は約 500 mW である。このレーザーは共同研究先の研究室にて長距離量子通信のための波長変換に用いるものである。ファイバーコムは Er ファイバーレーザーを共振器としており、繰り返し周波数 $f_{\text{rep}}$ は 107 MHz、キャリアエンベロープオフセット周波数 $f_{\text{CEO}}$ は 30 MHz であり、いずれも GPS タイムベースを基準としている信号に周波数安定化した。このファイバーコムはファイバーカップラーにより 4 分岐されている。本実験で用いるブランチでは高非線形ファイバーで広帯域化を行い、波長 1064 nm をカバーするスペクトルを実現している。固体レーザーとファイバーコムの光はファイバーカップラーで合波され、空間に出射してから回折格子によって 1064 nm の成分のみを分離した。光検出器によってヘテロダイン検出した信号には、目的のビート信号以外にも $n$ 次の $f_{\text{rep}}$ の信号やそれぞれの次数に対応するビート信号など不要な信号が多く含まれるため、バンドパスフィルターによって目的の周波数のみを切り出した。その後は 1つ目の実験と同様の RF 回路を経て固体レーザーへフィードバックし、周波数安定化した。ただし、小型固体レーザーにはピエゾ素子が含まれていないため、励起レーザーの注入電流に対してフィードバックを行った。

### 2.3 遅延線によるエラー信号

周波数安定化を行う前に、遅延線による位相差の様子を調べた。遅延線ロックにおけるミキサーの後の信号の電圧を、2 台の Nd:YAG レーザーのビート周波数を変化させながら図 2.2 中のデータ収集デバイスを用いて測定した。その結果を図 2.4 に示す。青実線は実験的に得られた値、黒破線は計算値を表している。本研究では 5 m の遅延線を用いており、計算値は $\tau = 25$  ns として計算している。また、ビート信号の S/N は約 60 dB であり、計算値の振幅は実験値に合わせて設定した。式(2.1)から予想される通り、エラー信号はビート周波数に対して $\cos \omega \tau$ で変化する。特に、計算値から求められるように 30 MHz 付近にゼロクロス点すなわちロックポイントが存在することが分かった。なお、周波数が高い領域で実験値が減衰しているのはミキサーの帯域が 100 MHz までであることに起因する。

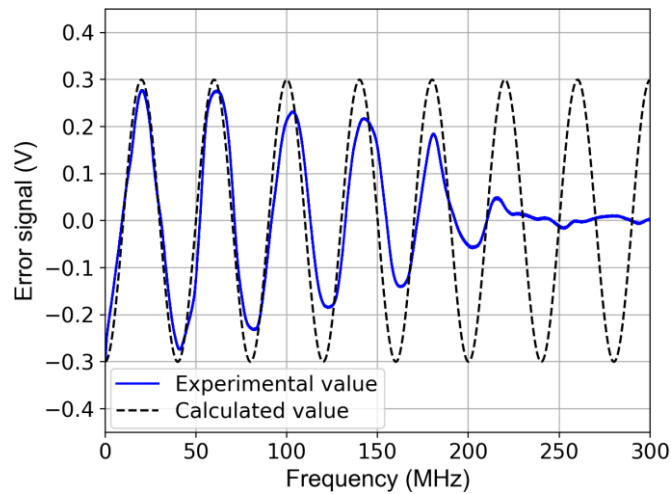


図 2.4 ビート周波数に対する遅延線によるエラー信号の変化。青実線は実験値、黒破線は遅延時間を 25 ns としたときに式(2.1)から計算した値を表している。

## 2.4 2 台の Nd:YAG レーザー間の遅延線ロックと位相同期の周波数安定度の比較

本研究では遅延線ロックの手法の周波数安定度を評価するとともに、比較対象としてフリーランと位相同期の周波数安定度も評価した。まず、ビート周波数の時間変動を 1 時間測定した結果を図 2.5 に示す。赤線はフリーランのとき、青線は遅延線ロックしたとき、緑線は位相同期したときを表している。フリーランの場合は 1 時間で 160 MHz 以上の周波数ドリフトが起こったのに対し、遅延線ロックしたときは約 36 kHz に抑えることができた。位相同期の場合は 0.1 Hz 以下となった。CIPM の勧告値に周波数安定化されたヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーの場合、周波数変動は 1 kHz 以下であることが分かっている [49]。したがって、フリーランや遅延線ロックの場合、Nd:YAG レーザー 2 の周波数変動は Nd:YAG レーザー 1 よりも大きくなり、見えているビート周波数の変動は Nd:YAG レーザー 2 の周波数変動であるといえる。一方、位相同期の場合は Nd:YAG レーザー 2 の周波数変動は Nd:YAG レーザー 1 と同じとなる。

図 2.5 の周波数データからフリーラン、遅延線ロック、位相同期の周波数安定度を Allan 標準偏差によって評価したものを図 2.6 に示す。フリーランの場合は安定度が平均時間 1 秒で  $2.7 \times 10^{-10}$  であり、512 秒では  $4.9 \times 10^{-8}$  まで悪化する。一方、遅延線ロックの場合の安定度は平均時間 1 秒で  $3.5 \times 10^{-12}$  であり、512 秒では  $1.6 \times 10^{-11}$  となりフリーランの場合に比べて周波数ドリフトを抑えることが出来たことが分かる。位相同期の場合は Allan 標準偏差が  $1/(\text{平均時間})$  で減少し、白色位相雑音で安定度が制限される結果となった。この結果はサイクルスリップが無く、Nd:YAG レーザー 2 の位相が Nd:YAG レーザー 1 の位相に完全に追従していることを示している。遅延線ロックの場

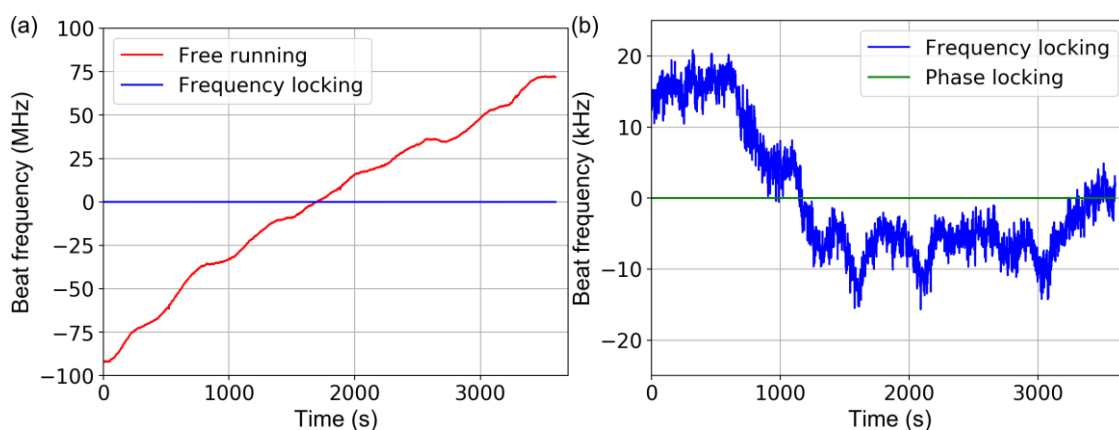


図 2.5 2 台の Nd:YAG レーザー間のビート周波数の時間変動。フリーラン、遅延線ロック、位相同期それぞれの場合の平均値からの差を計算してプロットしている。(a)赤線がフリーラン、青線が遅延線ロックの場合を表す。(b)青線が遅延線ロック、緑線が位相同期の場合を表す。

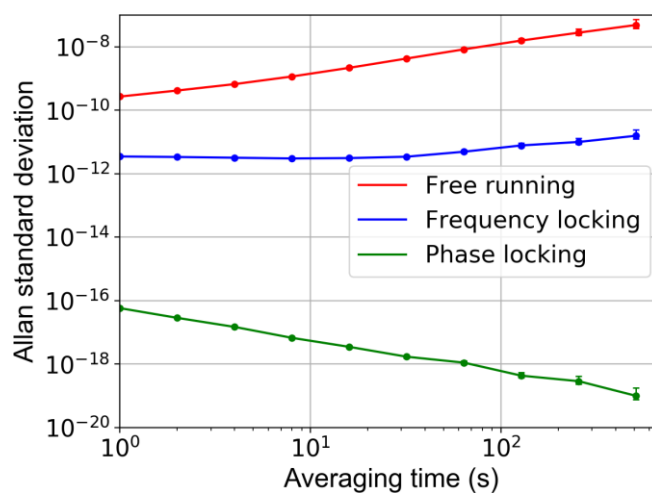


図 2.6 2 台の Nd:YAG レーザー間におけるフリーラン、遅延線ロック、位相同期の周波数安定度の比較。周波数データは図 2.5 のものに対応する。

合において周波数ドリフトが起こってしまう理由としては、ロックポイントが変化してしまうことが考えられる。位相同期と異なり、遅延線ロックの手法においては絶対的な周波数の基準が存在しない。したがって、スプリッターで分けられた 2 つの信号の相対的な遅延時間が変わればロックポイントの周波数も変化する。また、位相同期と異なりビート信号自体の位相は参照しておらず、サイクルスリップを抑えることはできない。この理由は本研究で用いた遅延線による遅延線ロックだけでなく、周波数をエラー信号に用いる全ての手法に当てはまると考えられる。しかし、サイクルスリップによる周波数の変化は小さいため、本研究における周波数安定度を制限している要因ではないと考えられる。実際にはそれ以前に制御回路のノイズによって周波数変動に対する電圧の変

化が埋もれていることが考えられる。例えば、周波数が 1 Hz 変化したときに電圧が 1  $\mu\text{V}$  変化するような場合を仮定したときに、制御回路に 10  $\mu\text{V}$  のノイズが発生していたら周波数変動は検知できなくなる。したがって、本手法において周波数安定度を向上させるには、制御回路全体のノイズを下げるのが有効であると考えられる。また、別の方法として遅延線を長くして遅延時間を増やすことも有効であると考えられる。遅延時間が長くなると図 2.4 に示したエラー信号の正弦波の周期が短くなり、電圧 0 V の近傍においてスロープが急峻になる。その結果、周波数安定度が良くなることが期待されるが、トレードオフとして制御のキャプチャレンジが狭くなる。長時間ロックが外れることなく制御し続けるためには、遅延線の長さを適切にとらなければならない。

## 2.5 小型固体レーザーとファイバーコム間の遅延線ロックの周波数安定度の評価

小型固体レーザーとファイバーコム間の遅延線ロックはビート周波数 30 MHz で行った。ビートの S/N はスペクトラムアナライザの分解能が 300 kHz のとき 30 dB であった。図 2.7 にビート周波数の時間変動を 1 時間測定した結果を示す。赤線はフリーランのとき、青線は遅延線ロックしたときを表している。フリーランの場合は 1 時間で 38 MHz の周波数ドリフトが起こったのに対し、遅延線ロックしたときは 490 kHz に抑えることができた。いずれの場合も GPS タイムベースに安定化された光周波数コムの周波数変動より大きいため、見えているビート周波数の変動は小型固体レーザーの周波数変動であるといえる。

図 2.7 の周波数データからフリーランと遅延線ロックの周波数安定度を Allan 標準偏差によって評価したものを図 2.8 に示す。フリーランの場合は安定度が平均時間 1 秒で  $1.6 \times 10^{-9}$  であり、512 秒では  $2.1 \times 10^{-8}$  まで悪化する。一方、遅延線ロックの場合の安定度は平均時間 1 秒で  $8.2 \times 10^{-11}$  であり、512 秒では  $2.2 \times 10^{-10}$  となった。Nd:YAG レーザーの場合と比べて遅延線ロックしたときの周波数安定度が悪い理由は、ビート信号の S/N が低いためであると考えられる。Nd:YAG レーザーの場合は 60 dB であったが、小型固体レーザーとファイバーコム間の場合は 30 dB であった。ビート信号の S/N が低いと遅延線によるエラー信号の S/N もそれに伴って低くなり、周波数安定度を悪化させる。光周波数コムの場合は櫛 1 本あたりの光パワーが非常に弱いため、この手法においては CW レーザー同士をロックする場合に比べて多少の周波数安定度の悪化は避けられない。一方で、S/N が 30 dB を下回ると位相同期が難しくなるが、遅延線ロックは高い周波数安定度は得られない代わりに S/N が低くても周波数安定化できるという利点もある。用途によってどちらの手法を選択すべきか判断する必要がある。

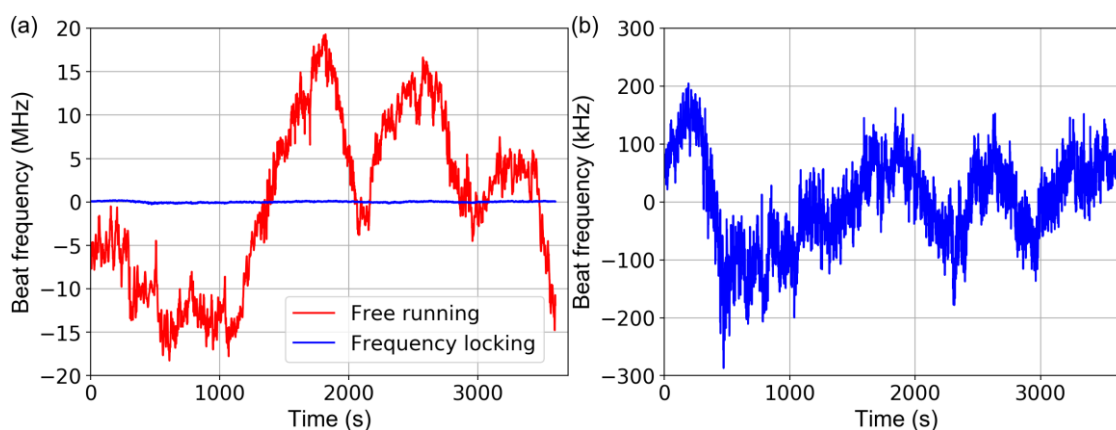


図 2.7 小型固体レーザーとファイバーレーザー間のビート周波数の時間変動。フリーラン、遅延線ロックそれぞれの場合の平均値からの差を計算してプロットしている。(a)赤線がフリーラン、青線が遅延線ロックの場合を表す。(b) 遅延線ロックの場合について縦軸を拡大した。

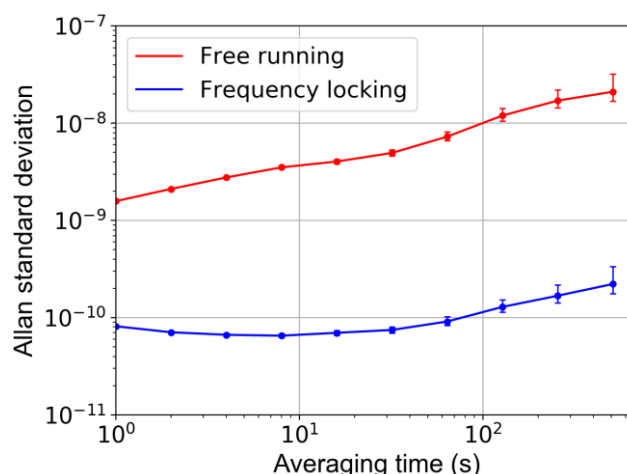


図 2.8 小型固体レーザーとファイバーコム間におけるフリーランと遅延線ロックの周波数安定度の比較。周波数データは図 2.7 のものに対応する。

例として、Sr 光格子時計における光格子レーザーとリポンプレーザーの周波数安定化について考える。本論文全体の中での本実験の位置付けは、Sr 光格子時計の周波数安定化に遅延線ロックの手法が適切かどうかの判断材料とすることにある。光格子レーザーの場合、考慮すべき点は光格子による AC Stark シフトである。いま、簡単のため電気双極子 (E1) 遷移のみを考慮に入れ、光シフトは光格子レーザーの周波数に対して線形に変化すると仮定する。E1 Stark シフトは光格子レーザーの周波数が魔法波長から 1 GHz ずれると、トラップ深さが  $50 E_R$  のときおよそ 1 Hz シフトする。すなわち、光シフトの不確かさが  $10^{-17}$  レベルとなることを目標とすると、実験中の光格子レーザーの周波数変動は 10 MHz 以内に抑える必要がある。本実験において平均時間 512 秒で

$2.2 \times 10^{-10}$ の周波数安定度、すなわち約 120 kHz であるから光格子レーザーの周波数安定化には適しているといえる。なお、Yb 光格子時計の場合、Sr 光格子時計に比べてレーザー冷却された原子の温度が高く光格子のトラップポテンシャルを深くしなければならぬため、トラップ深さを  $500 E_R$  とすると、魔法波長から 1 GHz ずれたとき約 10 Hz シフトする。 $10^{-17}$ レベルの不確かさを目指す場合は周波数変動を 1 MHz 以内に抑えなければならない。したがって、本手法は Yb 光格子時計に対しても有効である。一方、Sr 光格子時計のリポンプに用いる  $^3P_0 - ^3S_1$  遷移（波長 679 nm）は線幅が 13.5 MHz であり、狭線幅なレーザーを必要としない。また、比較的短波長の領域になるため光周波数コムを広帯域化して 2 次高調波発生させた際にあまりパワーが期待できず、CW レーザーとの S/N が低くなることが見込まれるため、こちらも遅延線ロックの手法が適していると考えられる。

## 2.6 遅延線ロックの長期周波数安定度と再現性

2.4 節では主に遅延線ロックの短期安定度について考察した。図 2.6 から、遅延線ロックした際の Allan 標準偏差は平均時間とともに大きくなっており、長期ではこのまま周波数ドリフトを続けて Allan 標準偏差が大きくなり続けるのか、それともどこかで頭打ちになるのかを調べたいと考えた。レーザーの周波数に比較的長い時間スケールで影響を与える外的要因として環境の温度が考えられる。そこで、2 日以上にわたって 2 台の Nd:YAG レーザー間で遅延線ロックを行った際のビート周波数と実験室の気温を計測した結果を図 2.9 に示す。なお、このときサーボコントローラーは自作のものを用いている。測定は 1 日目の夜に開始して 4 日目の朝に終了している。温度が離散的になっているのは、データロガーの分解能によるものである。図 2.9 から、周波数は温度とともに周期的に変化していることが分かり、遅延線ロックしたときの周波数は環境の温度に影響を受けることが読み取れる。この原因としては、単純な遅延線の伸び縮みではなく、温度によって制御系のエレクトロニクス全体が影響を受け、エラー信号に電気的なオフセットが乗ったことによりロックポイントが変化したことが考えられる。また、周波数変化が周期的であることから、実験室の温度がドリフトしない限り長期間遅延線ロックを続けていてもロックポイントの周波数の値が一方向にドリフトしていかないと考えられる。この結果は、光格子時計の長期運転や、ダイヤモンド NV 中心間をつなぐ量子通信など長期にわたってある範囲内で一定の周波数を保ち続ける必要がある実験において遅延線ロックの手法が適用できることを示している。

上記の実験に用いるためには、ロックポイントの再現性も重要となる。そこで、光格子レーザーに用いる Ti:sapphire レーザーをファイバーコムに遅延線ロックし、1 日ごとに遅延線ロックを外して周波数の再現性を確かめた。この実験では長さ 25 m の遅延



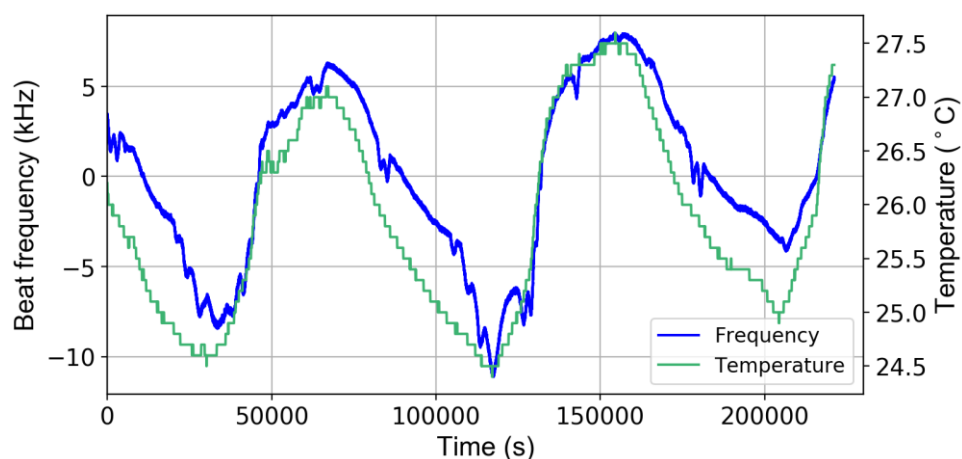


図 2.9 2 台の Nd: YAG レーザー間で 2 日以上にわたって遅延線ロックしたときのビート周波数の時間変動と実験室の温度変化。周波数は平均値からの差を計算してプロットしている。

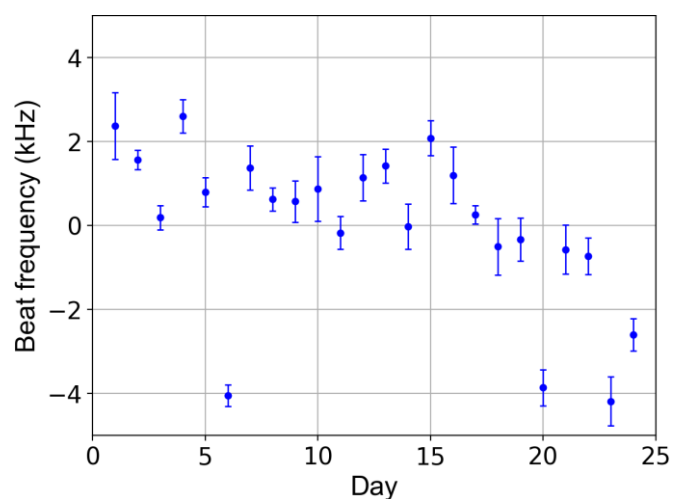


図 2.10 ファイバーコムに Ti: sapphire レーザーを遅延線ロックしたときの平均周波数の再現性。エラーバーは各日において Allan 標準偏差を計算し、最も平均時間が長い点における Allan 標準偏差の値を採用した。

線を用いた。ビート信号の S/N は分解能 300 kHz において 30 dB であった。図 2.10 に結果を示す。各点は各日の周波数の平均値を計算し、さらに全体の平均値との差をとったものを表している。エラーバーは各日において Allan 標準偏差を計算し、平均時間が最も長い点の Allan 標準偏差の値を採用した。図 2.10 から、遅延線ロックを行った時の周波数は 8 kHz 以内で再現しているといえる。

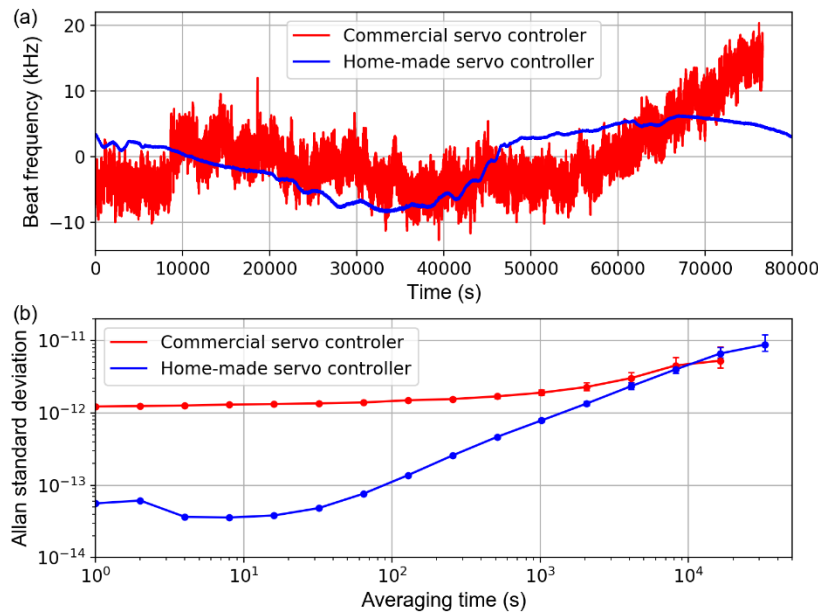


図 2.11 (a)市販のサーボ回路 (Precision Photonics LB1005) と自作のサーボ回路を用いて遅延線ロックを行った場合の周波数変動の比較。遅延線の長さはいずれの場合も 5 m である。(b)(a)のデータから計算した Allan 標準偏差。

## 2.7 遅延線ロックの周波数安定度のサーボ回路依存性

2.4 節で、遅延線ロックの短期の周波数安定度を制限している要因は制御系の電圧ノイズであると述べた。電圧ノイズを付加する構成要素として最も考えられるのはサーボ回路である。そこで、サーボコントローラーによって遅延線ロックの短期安定度が変化するか確かめた。2 台の Nd:YAG レーザーの間でサーボコントローラーを変えて遅延線ロックを行い、周波数計測して周波数安定度を評価した。結果を図 2.11 に示す。赤線は市販のサーボコントローラーである Precision Photonics LB1005 を用いた場合、青線は自作のサーボコントローラーを用いた場合(図 2.9 と同じデータ)である。図 2.11 (a)において、カウンターのゲートタイムはいずれも 1 秒である。図 2.11(b)より自作のサーボコントローラーを用いた場合の方が短期安定度が良くなり、平均時間 1 秒においては 1 桁以上向上した。したがって、本手法において短期安定度を向上させるにはサーボ回路のノイズに気を付けなければならないということが分かった。一方、長期安定度は自作のサーボコントローラーを用いた場合も平均時間の増加とともに悪化し、平均時間 10000 秒では LB1005 を用いた場合と同等の周波数安定度となった。したがって、2.6 節の結果と合わせて、本手法の長期安定度を向上させるには制御系全体を外気から遮蔽し温度を一定に保つ必要があることが分かった。

## 第3章 Sr・Yb 光格子時計のための8 ブランチ光周波数コム の開発と応用

本章では光格子時計の実験のための8 ブランチ光周波数コム (8 ブランチコム) の開発と、8 ブランチコムによるレーザーの周波数安定化と周波数計測について述べる。3.1 節では8 ブランチコムの開発の背景について述べる。3.2 節では8 ブランチコムの作製方法と作製結果について述べる。3.3 節では8 ブランチコムを実際に光格子時計の実験へ応用し、CW レーザーの遅延線ロックと光格子時計の絶対周波数計測を行った結果について述べる。3.4 節では8 ブランチコムを拡張できる可能性と、問題点の解決について考察する。本章の内容は原著論文として Optics Express にて発表した [50]。

### 3.1 8 ブランチコム開発の背景

産総研では Sr 光格子時計と Yb 光格子時計の実験を行っている [33,51,52]。光格子時計の実験では、レーザー冷却、光格子、分光、リポンプなどのために多数の周波数安定化レーザーが必要となる。図 3.1 に Sr・Yb 光格子時計において使われる主な遷移と、対応する波長を示す。図 3.1 に示されている波長のレーザーは、707 nm のリポンプレーザーを除いて全て周波数安定化される必要がある。これらのレーザーのうち時計レーザーと2次冷却用のレーザーは狭線幅にする必要があるため、別の狭線幅な光周波数コムに位相同期されている (図 4.7 と図 4.8 を参照)。また、1次冷却用のレーザーはホローカソードランプを用いて modulation transfer 分光法によって周波数安定化されている。残りのレーザーは従来の産総研における実験では周波数安定化されていなかった。リポンプに用いる遷移の線幅は、Sr の  $^3P_0 - ^3S_1$  遷移の場合は 13.5 MHz、Yb の  $^3P_0 - ^3D_1$  遷移の場合は 48.4 kHz であるため、十分な強度のレーザーを照射していれば短期的な光格子時計の運転においては周波数安定化していなくても実用上問題ない。しかし、光格子時計の長期運転を視野に入れた場合、周波数ドリフトを防ぐためリポンプレーザーの周波数安定化が必須となる。また、光格子レーザーについても長期運転した場合に、常に魔法波長の周波数で発振させるためには周波数安定化が必要となる。さらに、interleave 法によって魔法波長を決定する際にも、不確かさを小さくするためには長時間積算する必要があるため、光格子時計の不確かさを低減するためにも周波数安定化しなければならない。ところで、リポンプレーザーや光格子レーザーは原子の遷移に周波数安定化することができない。したがって、これらの波長のレーザーを周波数安定化するためには、共振器か光周波数コムを安定化基準にする方法が採られる。また、光格子

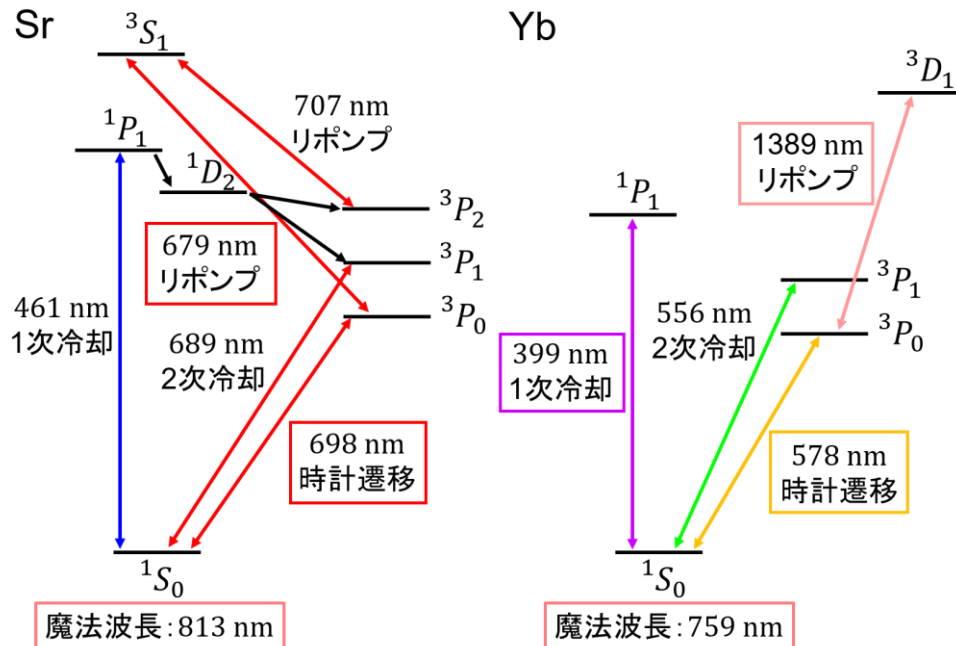


図 3.1 産総研の Sr・Yb 光格子時計で用いられるエネルギー単位と、遷移に対応する波長。四角で囲った波長のレーザーを周波数安定化・周波数計測するためのブランチを作成した。

時計の絶対周波数計測を行う際には光周波数コムが欠かせない。そこで、これまで産総研の光格子時計の実験において周波数安定化されていなかったレーザーを安定化し、さらに時計レーザーの周波数計測を 1 台で出来るような光周波数コムを開発することを計画した。光格子時計の実験に用いられる光周波数コムとしては、1つのブランチで複数の波長に対応させることによって周波数安定度を上げることが出来るシングルブランチコム [53] [54] と、それぞれの CW レーザーの波長に応じてスペクトルを最適化したブランチを用意するマルチブランチコム [55] の 2 通りのアプローチがある。我々のグループではマルチブランチを採用した。従来のマルチブランチのファイバーコムは、最も多いブランチを持つもので 4 ブランチのものが報告されていた [56]。本研究では、これまでに無かった 8 ブランチのファイバーコムを作成することとした。

## 3.2 8 ブランチコムの作成

### 3.2.1 8 ブランチコムの構成

図 3.2(a) に 8 ブランチコムの全体像を示す。図 3.2(b) は実際の写真である。共振器は中心波長が 1530 nm の Er ファイバーレーザーであり、Er 添加ファイバー (EDF) の長さは 90 cm である。励起レーザーには波長 1480 nm の半導体レーザーを用いて、EDF

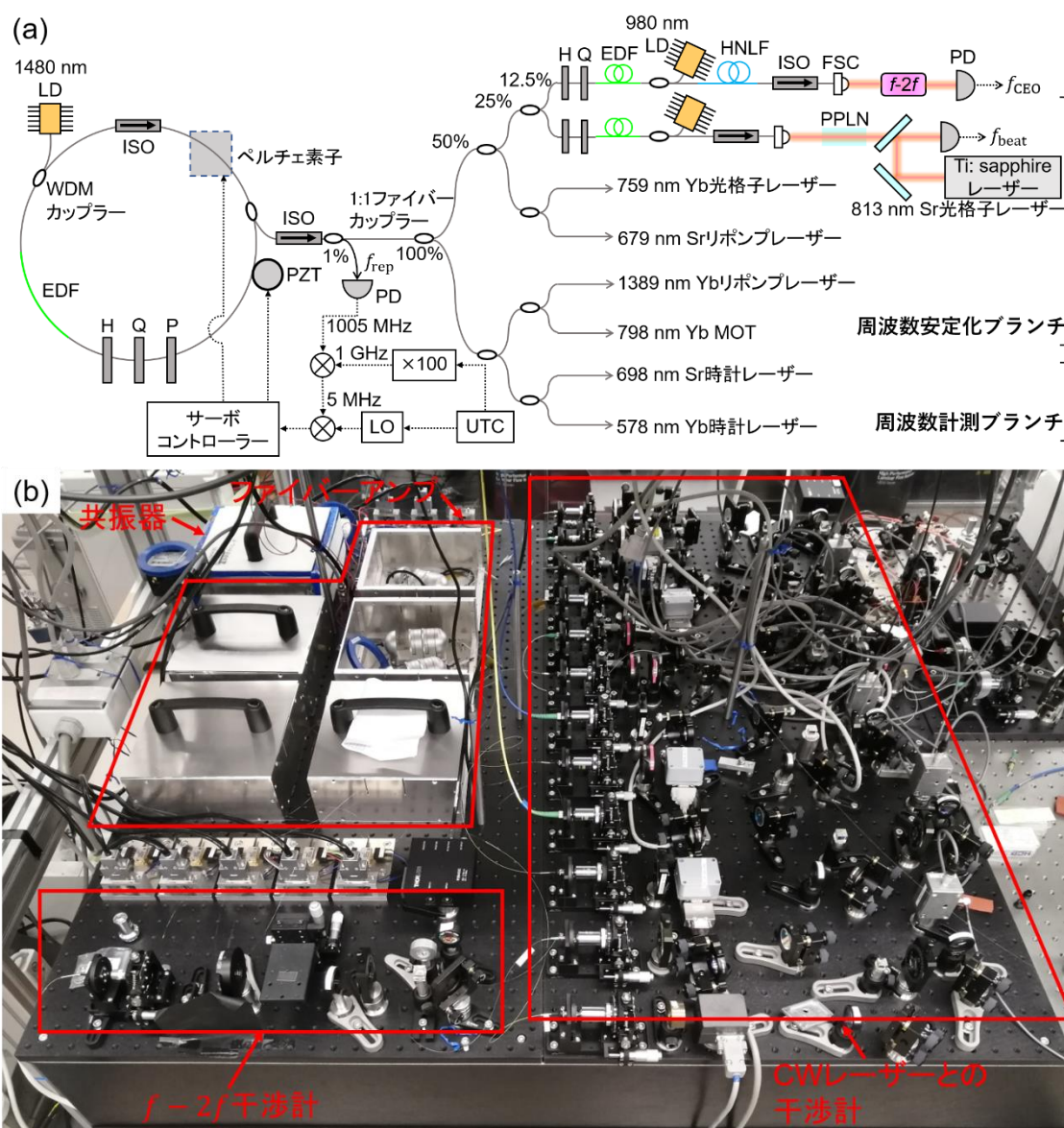


図 3.2 (a)8 ブランチコムの全体図。点線は RF 回路を表す。LD: 半導体レーザー、WDM: 波長分割多重、EDF: エルビウム添加ファイバー、ISO: アイソレーター、H: 1/2 波長板、Q: 1/4 波長板、P: 偏光子、PZT: ピエゾ素子、PD: 光検出器、LO: 局部発振器、HNLF: 高非線形ファイバー、FSC: ファイバーカップラー、PPLN: 周期分極反転ニオブ酸リチウム。(b)8 ブランチコムと干渉計の写真。全体は 120 cm×120 cm のブレッドボード上に収まっている。ただし、波長 798 nm 用の干渉計は写真中には無い。

を後方励起した。モード同期機構には非線形偏波回転を採用し、1/2 波長板、1/4 波長板、偏光子から成る偏波コントローラーを調整することによって受動モード同期をかけた。共振器部分は写真の発泡スチロールで覆われたアルミ製の箱に収められており、断熱されている。底面は銅板になっており、その下にペルチェ素子を設置することにより

共振器の温調をしている。さらに共振器にピエゾ素子を取り付けることにより共振器長を変えることができるようになっている。繰り返し周波数 $f_{\text{rep}}$ は50.25 MHzとなっている。共振器からファイバーカップラーによって枝分かれした光はアイソレーターを通った後、ファイバーカップラーにより1%の光が $f_{\text{rep}}$ の制御に用いられる。光検出器で $20f_{\text{rep}}$ の信号を検出し、水素メーザーを源とする10 MHzの基準信号であるUTC(NMIJ)を固定逡倍器によって100倍して1 GHzとした信号とミキシングして差周波の5 MHzの信号を得る。この信号を、UTC(NMIJ)を基準とするシンセサイザーからの5 MHzの信号に位相同期することによって $f_{\text{rep}}$ を制御した。早い制御はピエゾ素子に、遅い制御はペルチェ素子にフィードバックした。このように固定逡倍器を用いて高い周波数で $f_{\text{rep}}$ を周波数安定化することにより、UTC(NMIJ)の周波数安定度に近い安定度を実現することが出来る [57]。

共振器から出力される光のパワーは2.9 mWであり、3段階のファイバーカップラーによって8分岐される。分岐された光はそれぞれのブランチにおいて1/2波長板と1/4波長板から成る偏波コントローラー、Erファイバーアンプ(EDFA)、高非線形ファイバー(HNLF)を用いて適宜スペクトルを調整できるようにした。HNLFは求める波長によっては入れていないブランチもある。EDFAの励起レーザーには波長980 nmの半導体レーザーを用いた。ところで、光ファイバーを通るパルスは分散によってチャープする。したがって、分散補償を行う必要がある。1.5  $\mu\text{m}$ 帯ではシングルモードファイバー(SMF)は異常分散、EDFは正常分散となるため、SMFの長さを調整することによって分散補償を行った。こうしてパワーとスペクトルの最適化を行った各ブランチの出力パワーは、励起LDの注入電流が700 mA程度のとき約70 mAであった。ここで、8ブランチコム作製の際に工夫した点としてファイバーから空間に出射する直前にはアイソレーターを挿入した。アイソレーターを入れなかった場合、EDFAの出力パワーが約20 mWと大きく低下する現象が起こった。従来の4ブランチまでのファイバーコムの場合はこのような現象は見られなかった。また、アイソレーターを入れる代わりに出射側のファイバーコネクタをPCからAPCに変えた場合も約70 mAのパワーを得ることが出来た。したがって、戻り光によって本来出力側が得るはずのEDFAの利得が奪われ、光増幅後のパワーが低下したことが考えられる。

8つのブランチのうち1つは $f - 2f$ 干渉計 [58]によるキャリアエンベロープオフセット周波数( $f_{\text{CEO}}$ )の検出に用いた。HNLFによって1オクターブ以上にスペクトルを広帯域化し、空間に出射した後にWG-PPLNを通すことによって、コム $n$ 番目のモードの2次高調波と $2n$ 番目のモードとの間のビート信号を光検出器で検出することによって $f_{\text{CEO}}$ を得ることが出来る。 $f_{\text{CEO}}$ は30 MHzの $f_{\text{rep}} - f_{\text{CEO}}$ の信号を分周器で1/10の3 MHzにした後、UTC(NMIJ)に安定化されたシンセサイザーからの基準信号に周波数

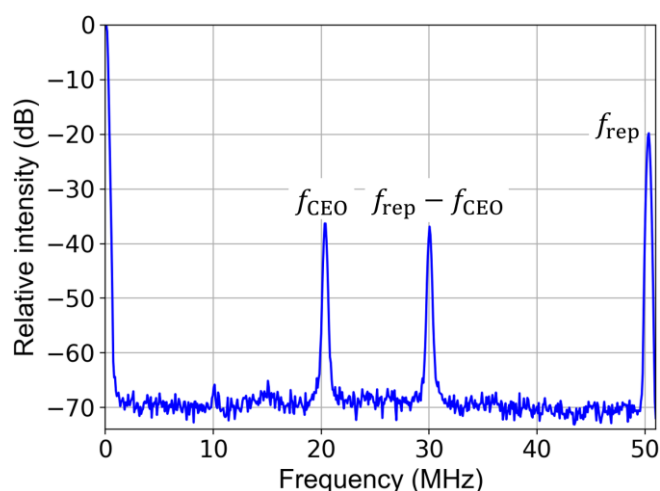


図 3.3 スペクトラムアナライザーで観測した $f_{\text{CEO}}$ の RF スペクトル。分解能は 300 kHz であり、 $f_{\text{CEO}}$ の S/N は 32 dB である。

安定化した。分周した理由は、制御のキャプチャーレンジを広げるためである。フィードバックは共振器の励起 LD に返した。

残りの 7 つのブランチは光格子時計の実験のための応用に用いた。例えば Sr 光格子時計の光格子レーザーに用いる Ti:sapphire レーザーを周波数安定化するために、EDFA によってパワーを増幅させた後、PPLN を通すことによって 2 次高調波発生させ、魔法波長である 813 nm のコムを作った。

### 3.2.2 $f_{\text{CEO}}$ と $f_{\text{rep}}$ の周波数安定化

8 ブランチコムを作成する際の懸念事項の 1 つは、共振器からのシード光を 8 分岐したことによって EDFA で増幅しても十分な $f_{\text{CEO}}$ の S/N が得られず、位相同期が出来ないということである。したがって、まず図 3.3 にスペクトラムアナライザーで観測した $f_{\text{CEO}}$ の信号を示す。図 3.3 は分解能 300 kHz で観測した結果であり、 $f_{\text{CEO}}$ の S/N は 32 dB であった。この結果はサイクルスリップせずに位相同期するために必要な S/N の目安である 30 dB を超えている。次に、100 万秒（約 11 日）にわたって $f_{\text{CEO}}$ を位相同期した際の周波数変動を図 3.4(a)に示す。このときのカウンターのゲートタイムは 1 秒である。この図が示すように、途中で位相同期が外れることや周波数が不安定になることなく位相同期し続けることが出来た。最終的には手動で位相同期を外すまで 2 週間以上にわたって連続で位相同期した。

同様に、 $f_{\text{rep}}$ も 2 週間以上にわたって連続で位相同期することが出来た。100 万秒までの $f_{\text{rep}}$ の周波数変動を図 3.4(b)に示す。図 3.4(b)の結果はカウンターのノイズで制限されている。

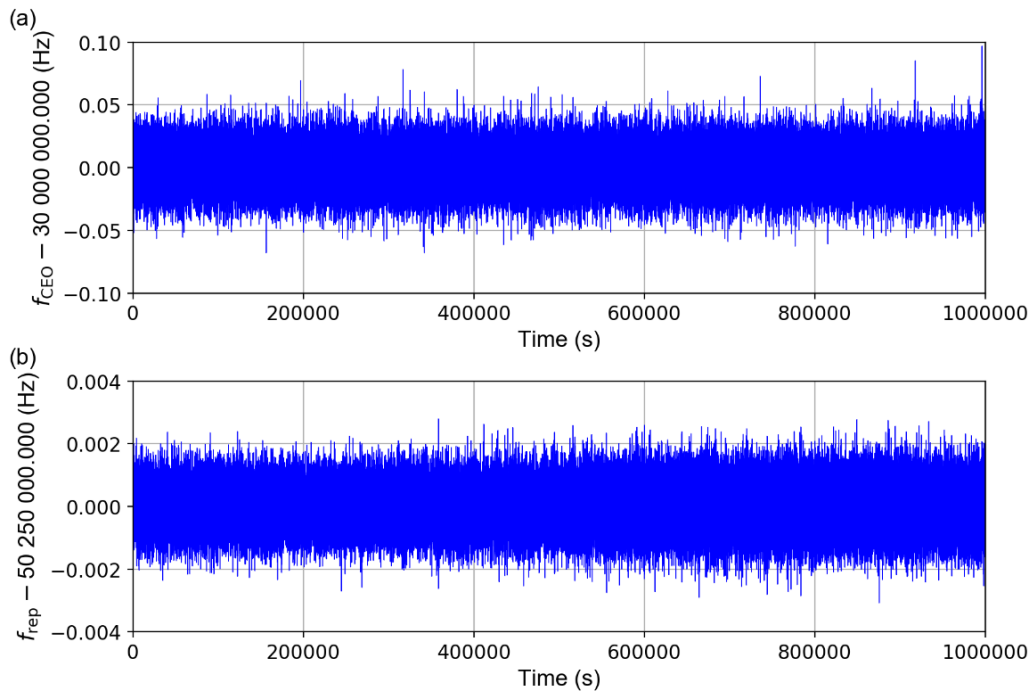


図 3.4 周波数カウンターで測定した、位相同期された(a) $f_{\text{CEO}}$ と(b) $f_{\text{rep}}$ の周波数変動。

### 3.2.3 広帯域化された8 ブランチコムのスペクトルとビート検出

3.2.1 節で説明した、光格子時計の実験に用いる各ブランチのスペクトルの広帯域化の結果を図 3.5 に示す。スペクトルは光スペクトラムアナライザーで測定した。図 3.5 では各スペクトルの重なりを防ぐためパワーに対してオフセットをつけており、パワーの絶対値ではない。EDFA のみの場合、下の 3 つのスペクトルのようによろ 1.5~1.6  $\mu\text{m}$  の範囲に広がる。EDFA に HNLF を加えた場合、HNLF の種類に応じてよろ 1.0~2.0  $\mu\text{m}$  まで広帯域化された。1.0  $\mu\text{m}$  より短い波長までスペクトルを広げることは困難であるため、1.0  $\mu\text{m}$  以下の波長を得るためには 2 倍の波長までスペクトルを広げて、バルクの PPLN を用いて 2 次高調波発生させた。この方法を用いた場合、目的の波長のみで 2 次高調波発生させることができ、基本波と 2 次高調波を容易に分離できるため、コムの余分なモードを除去するための回折格子や干渉フィルターが必要ない。

偏波コントローラーによる偏光と HNLF は、個々のブランチに要求される波長においてパワーが大きくなるように最適なものを選んだ。HNLF は住友電工製のものを使用している。本研究では波長 698 nm と 679 nm のブランチでは分散が一定の HNLF を使用した。一方、1389 nm のブランチでは分散の勾配が  $0.020 \text{ ps}/\text{nm}^2\text{-km}$  でゼロ分散波長が 1565 nm の HNLF を、1156 nm と 578 nm のブランチでは分散の勾配が  $0.025 \text{ ps}/\text{nm}^2\text{-km}$  でゼロ分散波長が 1545 nm の HNLF を用いた。なお、1 オクターブ以上の



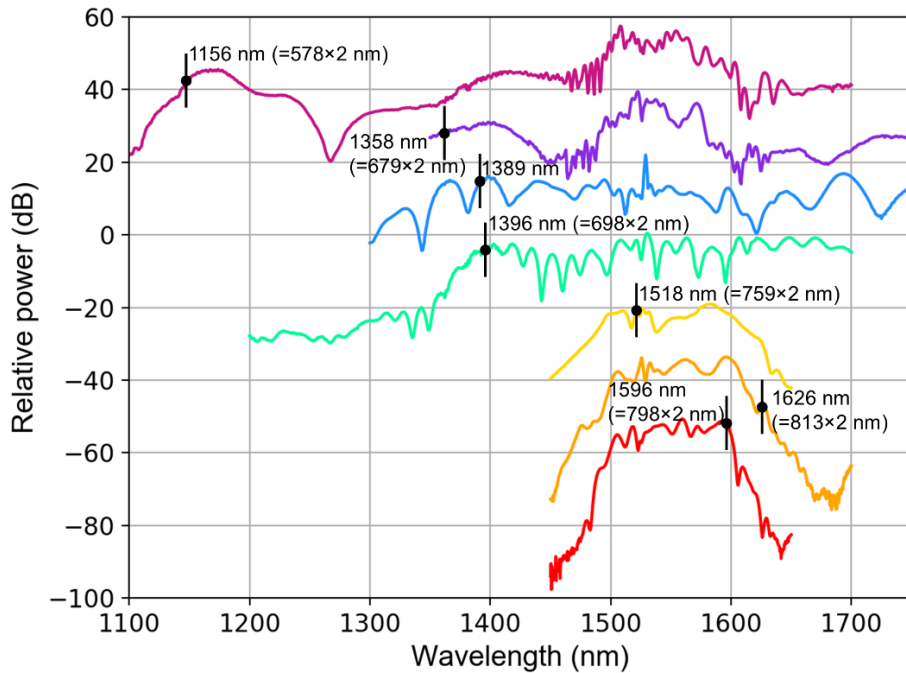


図 3.5 光格子時計の実験に応用する 7 つのブランチのスペクトル。各々のスペクトルのパワーには見やすくするためオフセットを入れており、パワーの絶対値を表してはいない。黒点と黒線は Sr・Yb 光格子時計の実験で周波数安定化あるいは周波数計測する CW レーザーの波長（あるいはその 2 倍の波長）を表している。

広いスペクトルが必要な  $f_{\text{CEO}}$  のブランチでは分散の勾配が  $0.030 \text{ ps/nm}^2\text{-km}$  でゼロ分散波長が  $1447 \text{ nm}$  の HNLF を用いた。

一例として、スペクトラムアナライザーで観測した 8 ブランチコムと Ti:sapphire レーザーのビート信号  $f_{\text{beat}}$  を図 3.6 に示す。分解能が  $300 \text{ kHz}$  のとき、 $f_{\text{beat}}$  の S/N は  $37 \text{ dB}$  であり、周波数安定化に十分な S/N が得られた。

### 3.3 8 ブランチコムと光格子時計の実験への応用

#### 3.3.1 8 ブランチコムへの CW レーザーの遅延線ロック

図 3.6 に示すような検出されたビート信号を用いて、3 章で説明した遅延線による遅延線ロックの手法で光格子時計の実験に用いる CW レーザーを周波数安定化した。このとき、遅延線の長さは  $25 \text{ m}$  とした。一例として、8 ブランチコムに遅延線ロックした Ti:sapphire レーザーとのビート周波数の時間変動を図 3.7(a) に示す。カウンターのゲートタイムは  $1 \text{ s}$  である。図 3.7 では途中で外れることなく 3 時間にわたって遅延線ロックし続け、 $4 \text{ kHz}$  以下の変動に抑えることが出来た。また、このときのデータから

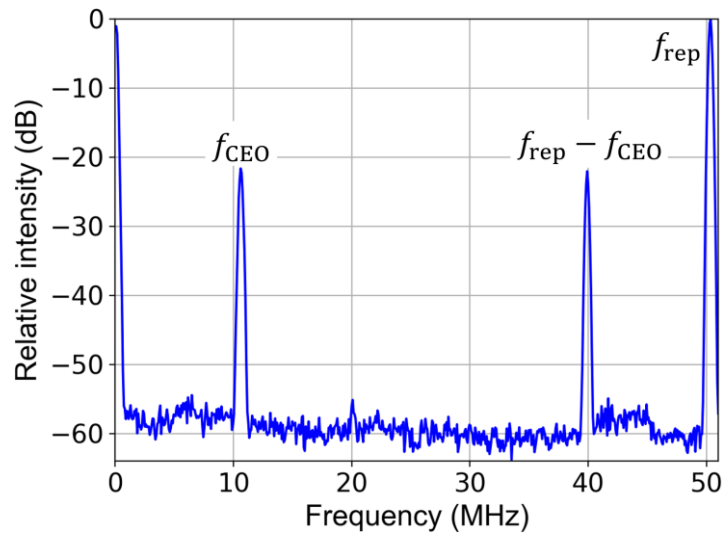


図 3.6 スペクトラムアナライザーで観測した 8 ブランチコムと波長 813 nm の Ti: sapphire レーザーのビート信号  $f_{\text{beat}}$  の RF スペクトル。分解能は 300 kHz で、 $f_{\text{beat}}$  の S/N は 37 dB であった。

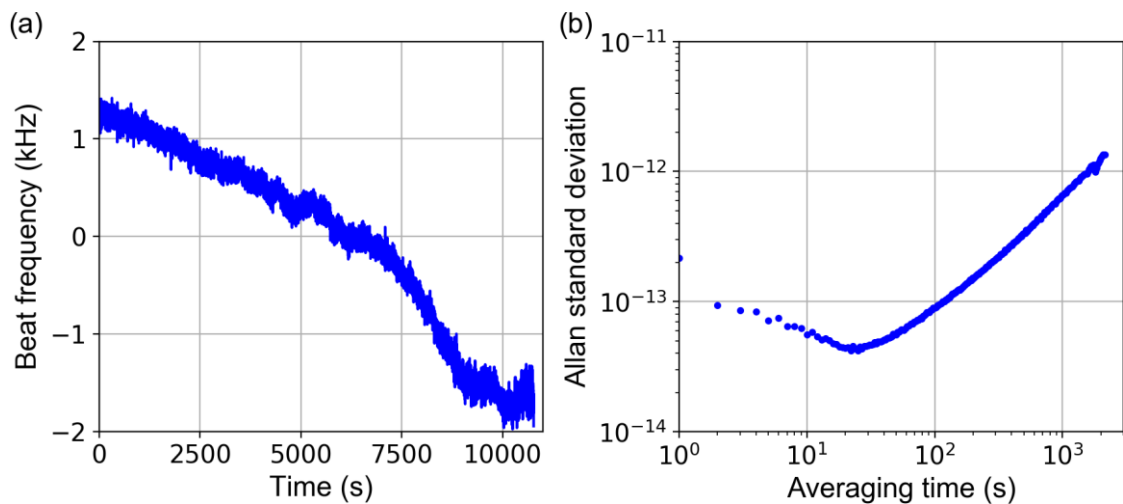


図 3.7 (a) 遅延線ロックした時の 8 ブランチコムと波長 813 nm の Ti: sapphire レーザーとのビート周波数の時間変動。(b)(a)のデータから計算した Allan 標準偏差。

計算した Allan 標準偏差を図 3.7(b)に示す。平均時間 1 秒においてビート周波数の安定度は  $2.2 \times 10^{-13}$  であり、平均時間 20 秒のとき最小の  $4.4 \times 10^{-14}$  となった。20 秒以上の平均時間では周波数ドリフトが起り、最も長い平均時間での周波数安定度は  $1.4 \times 10^{-12}$  となった。しかし、第 2 章で述べたようにこの周波数ドリフトは一方的なものではなく、1 日の温度変化による周期的なものであるため周波数は元に戻り、Allan 標準偏差が増加し続けるわけではない。

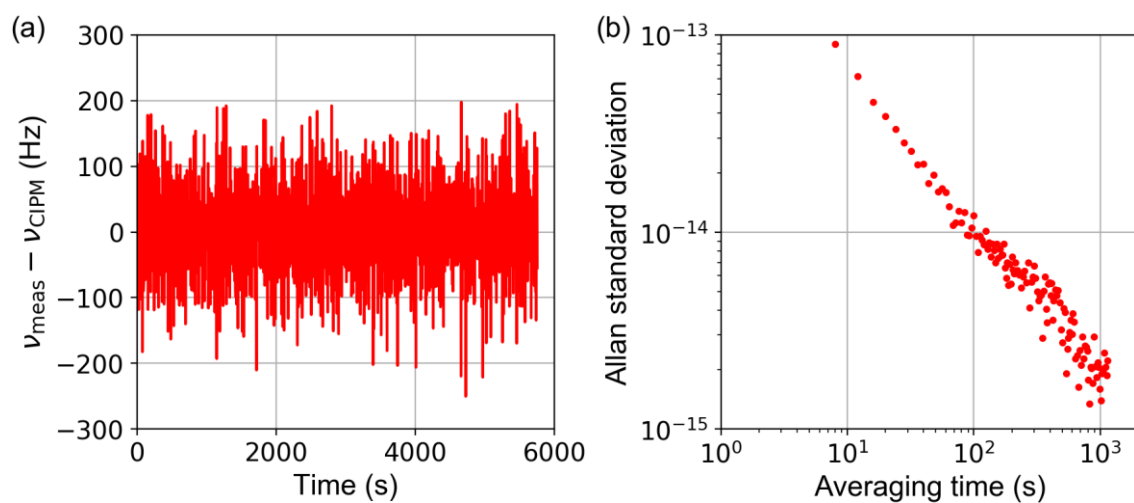


図 3.8 (a)8 ブランチコムによる Sr 光格子時計の絶対周波数計測の結果。周波数の値は実際に時計遷移周波数を測って得られた値から CIPM の勧告値を引いたものを示している。(b)(a)のデータから計算した Allan 標準偏差。

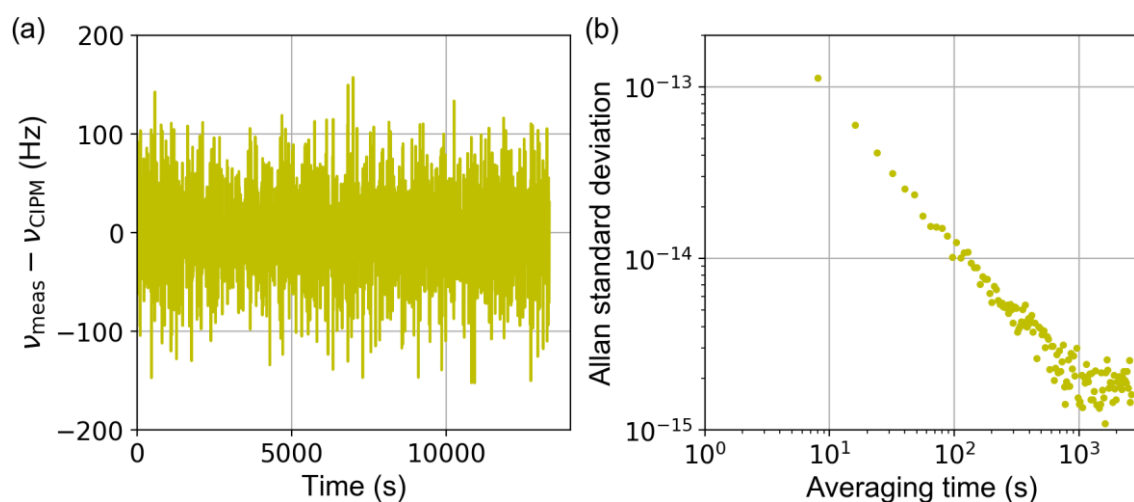


図 3.9 (a)8 ブランチコムによる Yb 光格子時計の絶対周波数計測の結果。周波数の値は実際に時計遷移周波数を測って得られた値から CIPM の勧告値を引いたものを示している。(b)(a)のデータから計算した Allan 標準偏差。

### 3.3.2 8 ブランチコムによる Sr・Yb 光格子時計の絶対周波数計測

3.2.1 節で 8 ブランチコムの周波数安定度を上げるために、固定通倍器を用いて約 1 GHz、で UTC(NMIJ)に位相同期したことを述べた。したがって 8 ブランチコムの周波数安定度を調べるために、UTC(NMIJ)よりも高い周波数安定度を持つ Sr・Yb 光格子時計の絶対周波数計測を試験的に行った。図 3.8 と図 3.9 にそれぞれ Sr 光格子時計と Yb 光格子時計の絶対周波数計測を行い、周波数安定度を評価した結果を示す。図 3.8(a)と図 3.9(a)は各々の絶対周波数計測によって得られた値と CIPM の勧告値との

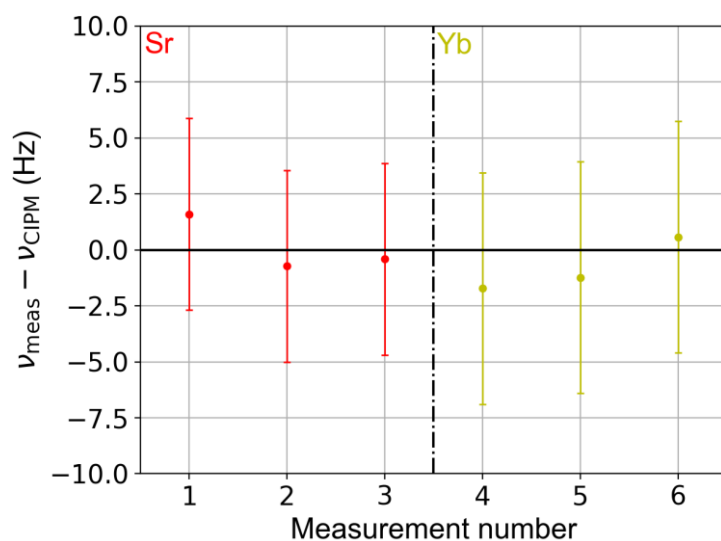


図 3.10 8 ブランチコムによる Sr 光格子時計と Yb 光格子時計の絶対周波数計測の結果。縦軸は CIPM の勧告値からの差を取っている。エラーバーは相対不確かさ  $1 \times 10^{-14}$  として設定した。

差を取ったものをプロットしている。これらの周波数データから計算した Allan 標準偏差は図 3.8(b) と図 3.9(b) のようになった。平均時間 8 秒では、Sr の場合は  $9.0 \times 10^{-14}$ 、Yb の場合は  $1.1 \times 10^{-13}$  となった。いずれの光格子時計においても平均時間を長くするにつれてほぼ  $1/(\text{平均時間})$  で Allan 標準偏差が小さくなり、平均時間 1000 秒では Sr も Yb も安定度が  $2 \times 10^{-14}$  となった。この結果は 8 ブランチコムの  $f_{\text{CEO}}$  が UTC(NMIJ) に追従する安定度で測定することが出来たことを表している。

絶対周波数計測の再現性を確認するために、Sr 光格子時計と Yb 光格子時計それぞれについて 3 回ずつ絶対周波数計測を行った結果を図 3.10 に示す。縦軸は CIPM の勧告値からの差である。いずれのデータも 3~4 時間にわたって測定を行っている。不確かさは保守的に見積もり、UTC(NMIJ) と光格子時計の間で比較する際に生じるデッドタイムに由来するとして、全ての値に対して  $1 \times 10^{-14}$  とした。光格子時計自体の系統不確かさは  $10^{-16}$  台であり、十分小さいため無視できる。図 3.10 に示す結果から、各々の測定結果は不確かさの範囲内で一致しており、CIPM の勧告値とも一致した。

### 3.4 考察

本研究では 8 ブランチコムの作製に成功したことから、 $2^n$  ブランチ ( $n \geq 4$ ) の光周波数コムが作成可能かどうかについて考える。現状のセットアップから考えると、懸念事項が 2 つ考えられる。1 つは  $f_{\text{CEO}}$  の S/N である。単純に現状からファイバーカップラーをもう 1 段階増やして 16 ブランチにしたときに、シード光のパワーが減少し、位相

同期に必要な目安の 30 dB を下回りサイクルスリップが生じることや位相同期が外れやすくなることが想定される。一方、応用のブランチに関しても CW レーザーとのビートをヘテロダイン検出して周波数安定化や周波数計測するために必要な S/N を得られるかどうかにも注意を払わなければならない。この問題を回避するための解決策はいくつか考えられる。1つは、 $f_{\text{CEO}}$ のブランチは現状のまま、残りのブランチのみを増やして15 ブランチにするという方法である。この方法は簡単であるが、応用のブランチの S/N を改善することは出来ない。2つ目は共振器から出射した直後に EDFA を導入し、ファイバカップラーで分ける前にシード光を増幅する方法である。この方法では全てのブランチへのシード光のパワーを増幅することが出来るが、新しく導入した EDFA によって位相ノイズが付加される可能性があり、応用に支障をきたす可能性がある。あるいは、遅延線を用いた遅延線ロックの手法は多少位相ノイズが大きくても周波数安定化できるため、1段目のファイバカップラーで遅延線ロックに使うブランチとそれ以外のブランチに分け、遅延線ロックに使う側のブランチ側のみに EDFA を導入する方法も考えられる。

光格子時計の周波数比の計測を行う際のマルチブランチコムの問題点は、ブランチ間のファイバノイズが付加されることである。具体的には、 $f_{\text{CEO}}$ や $f_{\text{rep}}$ を位相同期した際、これらの周波数を検出するためのブランチで発生するファイバノイズを含んで共振器にフィードバックされるため、周波数計測で用いるブランチに $f_{\text{CEO}}$ や $f_{\text{rep}}$ 検出用ブランチのファイバノイズが上乘せされる。このような問題を回避するために、光格子時計の周波数比計測の際にシングルブランチの光周波数コムを用いているグループもある [53] [54]。一方、マルチブランチコムであってもブランチ間のファイバノイズをキャンセルする手法も報告されている [56]。この手法では CW レーザーを $f_{\text{CEO}}$ のブランチに周波数安定化する。その CW レーザーを基準として他のブランチの出力光とのビートを検出し、各ブランチに取り付けられたピエゾ素子にフィードバックすることによって、 $f_{\text{CEO}}$ 検出用ブランチと応用のブランチの間のファイバノイズをキャンセルしている。この手法により Allan 標準偏差が 1/3 に低減されたと報告されている。我々の8 ブランチコムにも応用可能であると考えられるため、今後ファイバ間のノイズが問題となった際に適用することも選択肢の1つである。

## 第4章 Sr 光格子時計の実験装置

本章では Sr 光格子時計の実験装置について述べる。光格子時計は大規模で複雑な装置であるため、まず 4.1 節で産総研における実験室の配置と、どの実験室に光格子時計のどの部分があるかについて述べる。4.2 節では光格子時計の本体ともいえる真空チェンバーについて説明する。4.3 節と 4.4 節では Sr 光格子時計に用いる各レーザー光源の発生方法と、光学系について説明する。本論文では光学系の図は実際の構成に極力忠実に描画した。4.5 節ではファイバー伝送により光に付加される位相ノイズを打ち消すためのファイバーノイズキャンセルと、光学系の振動により空間を伝搬する光に付加される位相ノイズを打ち消すための Doppler キャンセルの原理について述べる。4.6 節では光格子時計の無人での長期運転のために導入した、レーザーの周波数安定化の制御が外れた時に自動で復帰することが出来るリロックシステムについて説明する。本章で述べる装置の全体は産総研で従来から開発したもので、本研究で私が新たに担当した部分は 4.3.2、4.3.3 節の一部と、4.5 節である。

### 4.1 産総研における光格子時計の配置

光格子時計の実験は産総研で行った。光格子時計は量子エレクトロニクスの実験の中でも大規模な実験であることと、産総研における光格子時計の開発の歴史的背景から光格子時計を構成する装置は複数の部屋にまたがっている。図 4.1 に産総研の光格子時計の実験が関わる部屋と、装置の配置を示す。Sr・Yb 光格子時計に関する装置は実験室 I、II、III の 3 つの部屋に分かれている。光格子時計の本体と言える真空チェンバーは、Sr は実験室 I に、Yb は実験室 II に設置されている。実験室 I には 3 章で述べた 8 ブラUNCHコムと光制御型の狭線幅コム [59] (本論文では以後「光制御コム」と呼ぶ)、時計レーザーを除く Sr 光格子時計に用いるレーザーの系がある。また、Sr 光格子時計を制御するためのパソコンも実験室 I に置かれている。実験室 II には Sr 時計レーザー、EOM 制御型の狭線幅コム [60] (本論文では以後「狭線幅コム」と呼ぶ)、Yb 光格子時計のために使われるファイバーコム (本論文では以後「K コム」と呼ぶ)、狭線幅コムを周波数安定化するためのマスターレーザーと光格子レーザーを除く Yb 光格子時計に用いるレーザーの系がある。実験室 III には Yb 光格子レーザーと Yb 光格子時計の制御に用いるパソコンが置かれている。3 つの部屋の間はファイバーリンクでつながっており、ファイバーを介して光を別の部屋に送ることが出来る。それぞれの部屋には水素レーザーをベースとする 10 MHz の基準信号である UTC(NMIJ) が同軸ケーブルにより送られている。実験室 II は光格子時計専用の部屋になっており、原則として人の立ち入りを禁止することで Yb 光格子時計の長期運転につながった [26]。さらに、時計レーザ

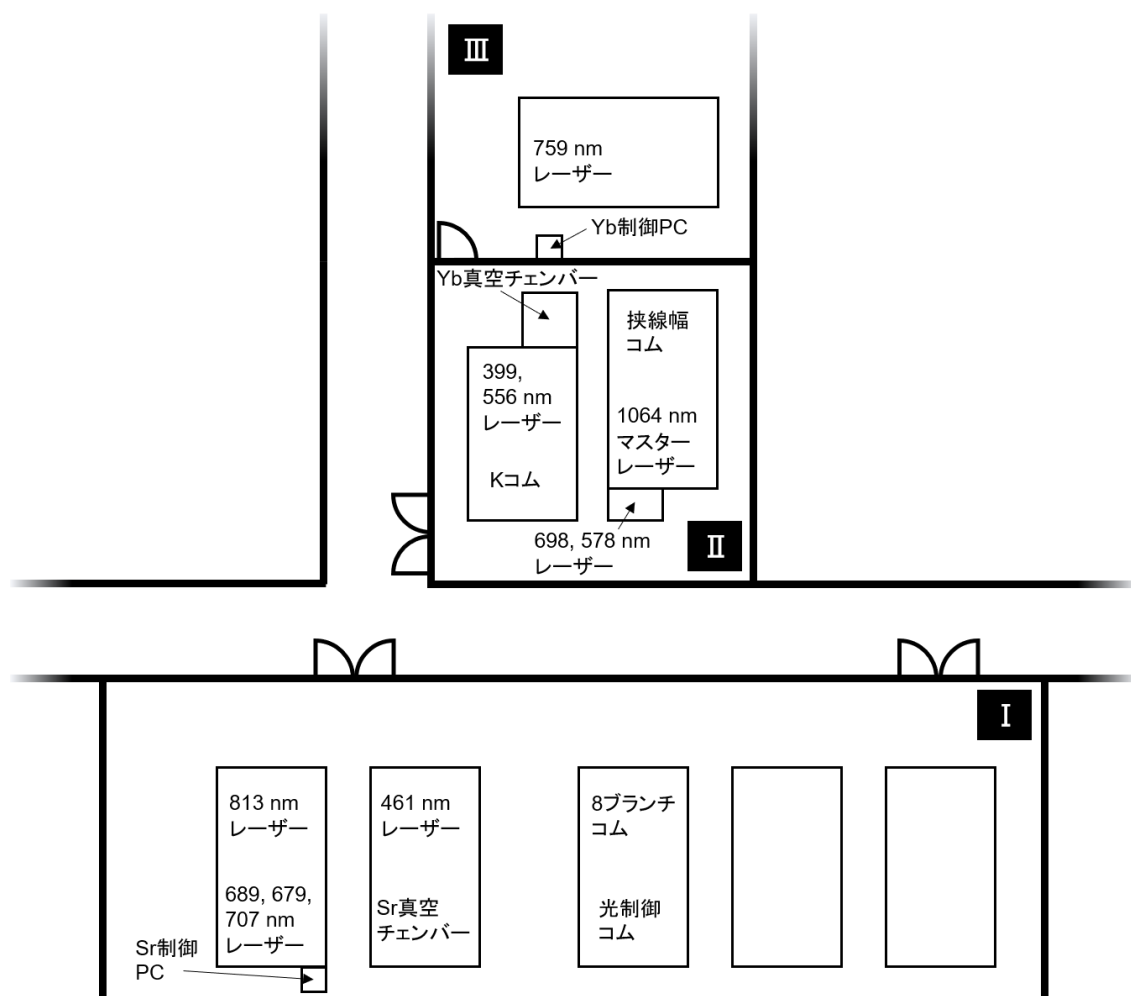


図 4.1 産総研における光格子時計に関連するレーザーや装置の配置。I、II、IIIは部屋番号を表す。各部屋の間はファイバーリンクでつながれている。

ーやマスターレーザーも実験室IIに設置されていることから、Sr 光格子時計の連続運転の一助にもなっている。

## 4.2 真空チェンバー

Sr 光格子時計の真空チェンバーを図 4.2 に示す。真空チェンバーの端には原子オープンから取り付けられており、Sr の固体を約  $450^{\circ}\text{C}$  に加熱し、気体の原子ビームとして放出する。原子オープンの前にはメカニカルシャッターが取り付けられており、分光の際の原子オープンからの黒体放射の影響と、光格子時計が稼働していないときにも原子ビームが放出され不必要に Zeeman slower 用の窓を汚すことを防ぐ役割を果たしている。メインチェンバーの前には Zeeman slower のためのコイルが巻かれている。メインチ

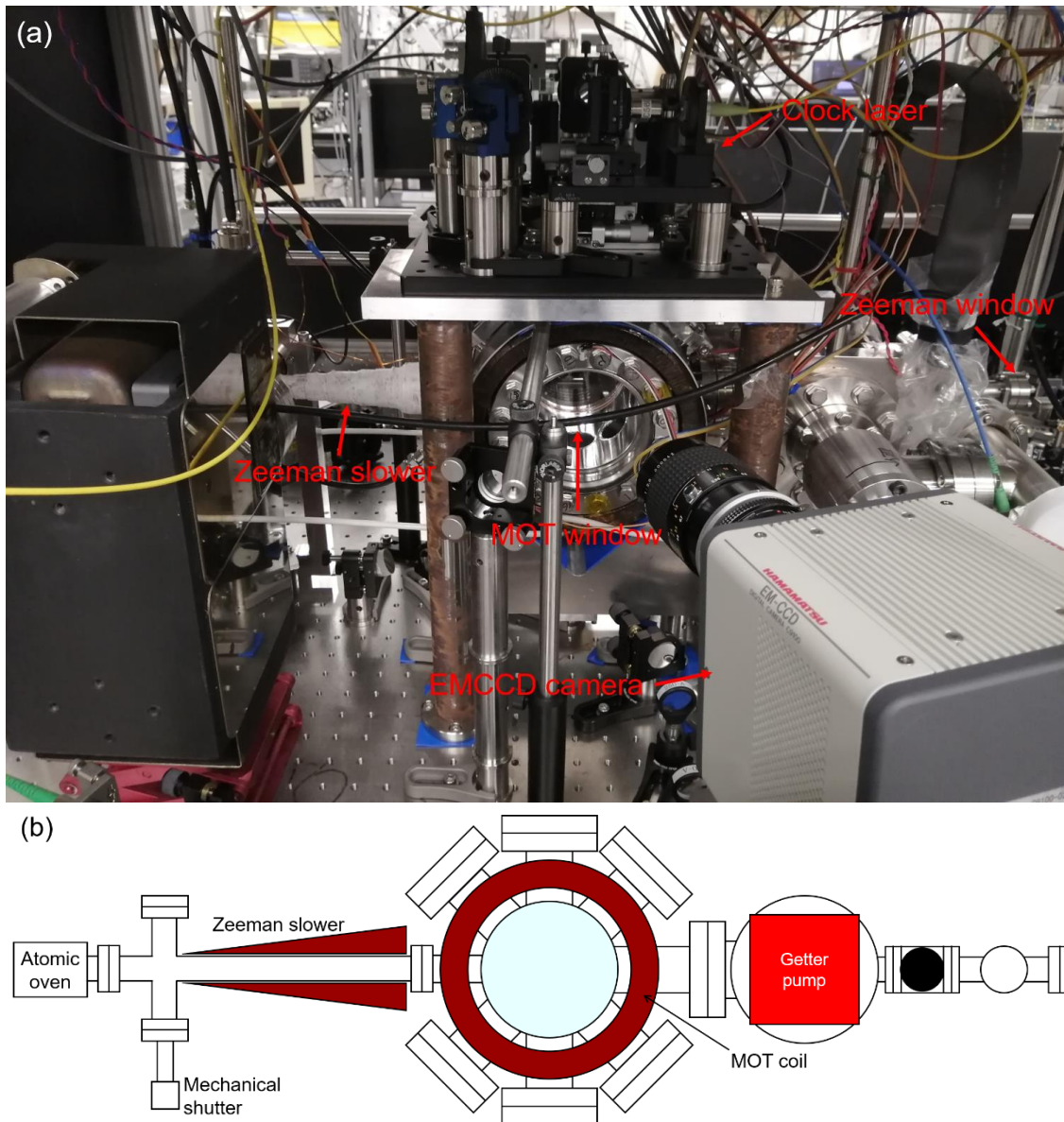


図4.2 (a)Sr 光格子時計の真空チェンバーとその周辺の写真。(b)真空チェンバーの図。MOT: 磁気光学トラップ。

エンバーは2つの大きな窓と、周りに6つのICF70の窓が取り付けられている。磁気光学トラップの光は図4.2において紙面手前と反対側にある2つのICF152の窓と、斜め方向の4つのICF70の窓から入射させる。また、大きな窓はリポンプレーザーの光の入射にも用いられる。一方、鉛直方向のICF70の窓は時計レーザーと光格子レーザーを入射させるために用いる。メインチェンバーの両側には磁気光学トラップ用のコイルが設置されており、チェンバーの中心に四重極磁場を発生させる。大きな窓の窓ガラスの材質は、磁場による影響を抑えるため合成石英を採用している。反対側の端にはZeeman slowerに用いるレーザー光を入射させるためのICF34の窓が取り付けられている。真空ポンプはイオンポンプとゲッターポンプの一体型のNEXTorr D 200-5と、



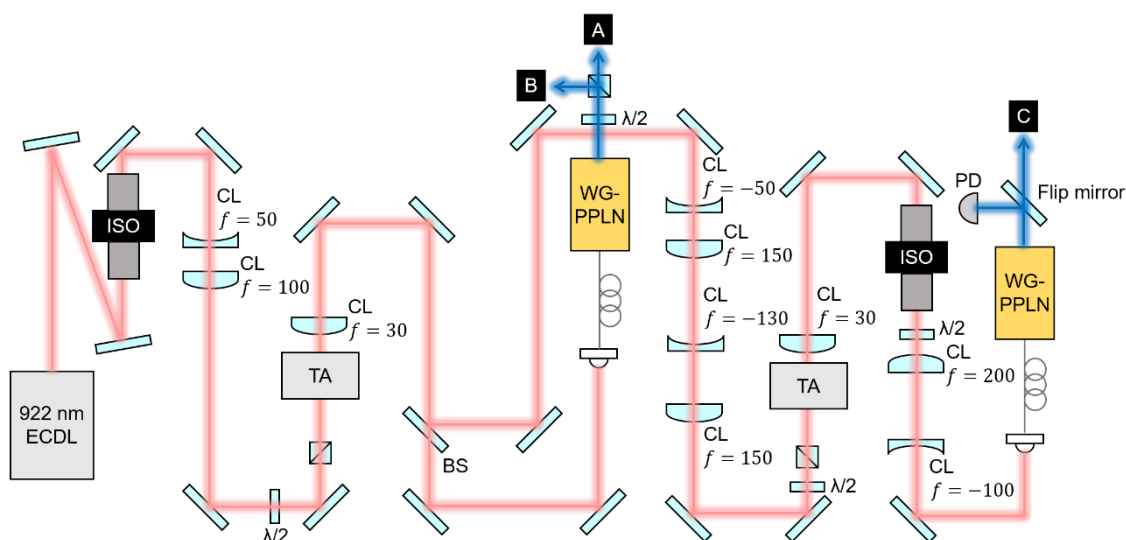


図 4.3 波長 461 nm 光源の発生用の光学系。なお、図中の白抜きのアアルファベットは他の図の同じアアルファベットに対応し、つながりを表す。ECDL:外部共振器型半導体レーザー、ISO:アイソレーター、CL:シリンドリカルレンズ、 $\lambda/2$ :1/2 波長板、TA:テーバーアップ、BS:ビームスプリッター、WG-PPLN:導波路型周期反転分極ニオブ酸リチウム、PD:光検出器。

イオンポンプ Varian Vaclon Plus 55 を用いている。真空計の値は原子オーブンを加熱していないときで  $1.3 \times 10^{-7}$  Pa 程度、加熱しているときで  $3 \times 10^{-17}$  程度であった。

真空チェンバーの上部には図 4.2(a) のように、時計レーザーを照射するための光学系と光格子レーザーの打ち返しミラーが設置されている。また、手前には原子のイメージング用の EMCCD カメラ (C9100-02) が設置されている。磁気光学トラップ (MOT) コイルの下部や時計レーザーの光学系の支柱の下部には MOT コイルによる振動の影響を抑えるためにゴムシートを敷いた。

### 4.3 光格子時計に用いるレーザー光源

光格子時計の実験では様々な波長の周波数安定化レーザーを用いる。そこで、本節では波長ごとにどのようにレーザー光源を発生させているかと、周波数安定化をどのように行っているかについて説明する。図 4.3~図 4.13 中のレーザービームが交差している箇所は実際の配置をそのまま書き写したもので、レーザービーム間に相互作用があることを示しているものではない。

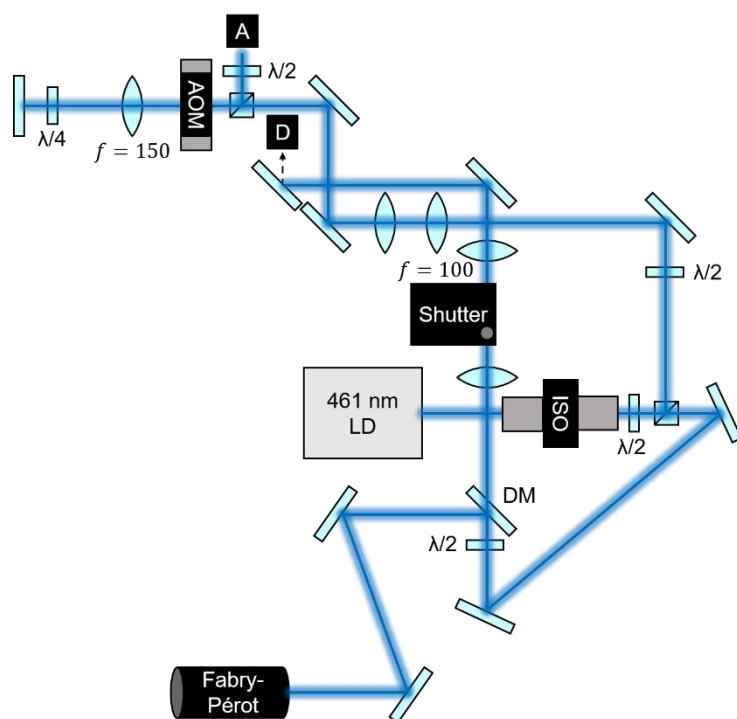


図 4.4 波長 461 nm 光源の注入同期用の光学系。AOM：音響光学変調器、LD：半導体レーザー、ISO：アイソレーター、DM：ダイクロイックミラー、 $\lambda/2$ ：1/2 波長板、 $\lambda/4$ ：1/4 波長板。

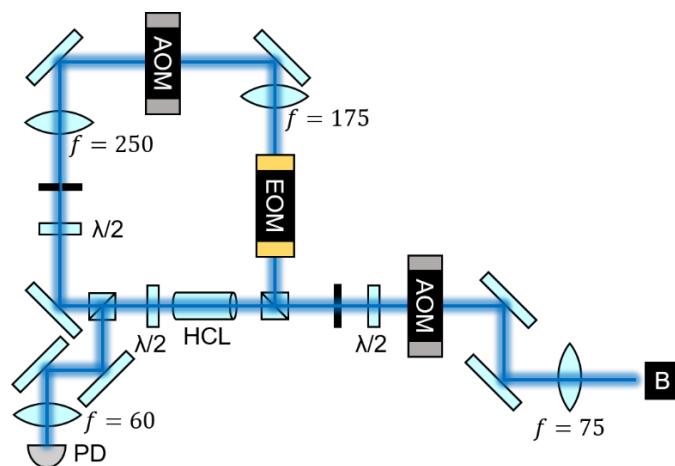


図 4.5 Modulation transfer 分光の系。AOM：音響光学変調器、EOM：電気光学変調器、 $\lambda/2$ ：1/2 波長板、HCL：ホローカソードランプ、PD：光検出器。

#### 4.3.1 波長 461 nm レーザー

Sr 原子の 1 次冷却および Zeeman slower、イメージングに用いる波長 461 nm のレーザー光源は、波長 922 nm のレーザーの 2 次高調波を用いた。図 4.3 に波長 922 nm のレーザーから 461 nm の光を得るための光学系を示す。本研究では 1 台のレーザーから

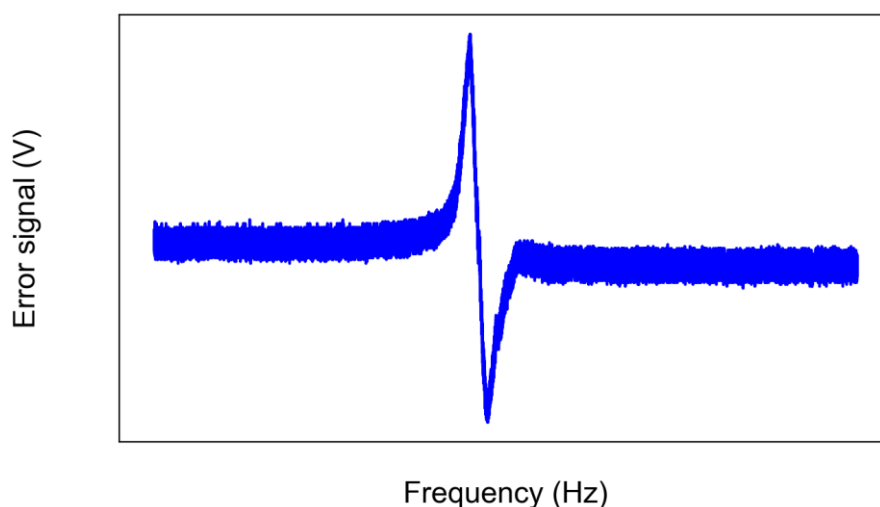


図 4.6 Modulation transfer 分光によって得られた  $^{87}\text{Sr}$  原子の  $^1S_0 - ^1P_1$  遷移の分光信号。

の光を Zeeman slower と MOT の両方に用いた。自作の外部共振器型半導体レーザー (ECDL) からの波長 922 nm の光はパワーが約 35 mW であり、テーパアンプ (TA) で約 650 mW に増幅された後、ビームスプリッターで 2 つに分けられる。1 つは導波路型 PPLN (NTT Electronics 製、WH-0460-000-A-B-C) [61] で 2 次高調波発生させて波長 461 nm に変換し、波長 922 nm ECDL の周波数安定化のための Modulation transfer 分光 (MTS) [62] の系 (B) と Zeeman slower のための注入同期の系 (A) に送られる。もう 1 つは再び TA で増幅された後、同様に導波路型 PPLN で 2 次高調波発生させて MOT に使われる。なお、アイソレーターの透過率は 80~90% である。また、TA の前後ではビーム成型のためにシリンドリカルレンズを用いている。図中の光検出器はパワーをモニターするために用いている。

図 4.4 に波長 461 nm レーザーの注入同期のための光学系を示す。図 4.3 からの波長 461 nm の光はダブルパス AOM を通ることによって Zeeman slower のために共鳴から 366 MHz だけ離調される。注入同期に使われる波長 461 nm の半導体レーザー (Nichia NDB4216E) に入射する前のパワーは偏光ビームスプリッター (PBS) の手前で 15 mW であり、PBS 透過直後で測った注入同期後のパワーは 75 mW であった。注入同期がかかっているかどうかは Fabry-Pérot 共振器を用いてシングルモードになっているかどうかを見ることによって確認した。注入同期によりパワーが増幅された光は (D) で上方方向に打ち上げられ Zeeman slower に送られる。

波長 922 nm の ECDL の周波数安定化は、波長 461 nm に変換した後にホローカソードランプを用いて  $^{87}\text{Sr}$  原子の  $^1S_0 - ^1P_1$  遷移を MTS によって分光することによって行った。図 4.5 に MTS の系を示す。波長 461 nm の光を 1/2 波長板と PBS を用いてポンプ光とプローブ光の 2 つに分けた。ポンプ光のパワーは 0.86 mW、プローブ光のパワ

ーは 0.84 mW であった。MTS ではポンプ光に電気光学変調器 (EOM) によって変調をかける。得られた分光信号を図 4.6 に示す。この分光信号を用いてレーザーを  $^1S_0 - ^1P_1$  遷移に周波数安定化した。

#### 4.3.2 波長 689 nm レーザー

Sr 原子の 2 次冷却およびスピン偏極に用いる波長 689 nm のレーザー光源は、波長 689 nm の ECDL によって得た。LD はウシオ電機の HL6750MG を用いており、出射端面には内部共振器の形成を防止するための減反射コーティングを施した。図 4.7 に波長 689 nm のレーザーの光学系を示す。波長 689 nm のレーザーは、クーリングレーザーとスターリングレーザーでそれぞれ別々の ECDL を用意した。それぞれのレーザーの筐体から出射直後のパワーは 34 mW と 30 mW であった。いずれのレーザーもアイソレーターを通過してから PBS で 2 つのパスに分けられる。1 つのパスは MOT のための周波数変調に用いられるダブルパス AOM を通ってファイバーカップルし、真空チャンバーへ向けて送られる。もう 1 つのパスは周波数安定化のために用いられる。 $^{87}\text{Sr}$  原子の  $^1S_0 - ^3P_1$  遷移は自然幅が 7.5 kHz と狭いため、効率的な冷却のためにはレーザーを狭線幅化する必要がある。そこで、後述する狭線幅化された光制御コムに CW レーザーを位相同期した。光制御コムの 2 次高調波をバルクの PPLN によって発生させ、波長 689 nm の CW レーザーと PBS で合波してから 30 MHz のビート信号をバランス光検出器でヘテロダイン検出した。ビート信号の S/N は 30 dB 以上であった。ビート信号は位相同期に用いられ、光制御コムに位相同期された波長 689 nm のレーザーは光制御コムの線幅程度に狭線幅化された。位相同期に用いたシンセサイザーは UTC(NMIJ) を基準としている。制御のフィードバックは早い制御をそれぞれのレーザーの電流に、遅い制御をピエゾ素子に返した。

#### 4.3.3 波長 698 nm レーザー

Sr 原子の時計遷移の分光に用いる波長 698 nm のレーザー光源は、波長 698 nm の ECDL によって得た。ECDL 本体は音による振動の影響を避けるため音響遮蔽箱の中に入っており、ファイバー伝送により光を取り出している。ECDL 出射直後のパワーは 32 mW であり、ファイバーから出射しているパワーは 11.5 mW であった。図 4.8 に波長 698 nm のレーザーの光学系を示す。ファイバーから出射した光は PBS で 2 つのパスに分けられる。PBS を透過するパスはファイバーノイズキャンセルのための AOM を経て 011 に送られる。なお、AOM①の周波数は第 7 章で Yb/Sr 時計遷移周波数比の計算に用いられる。途中にある PBS で分けられたパスはファイバーノイズキャンセルの

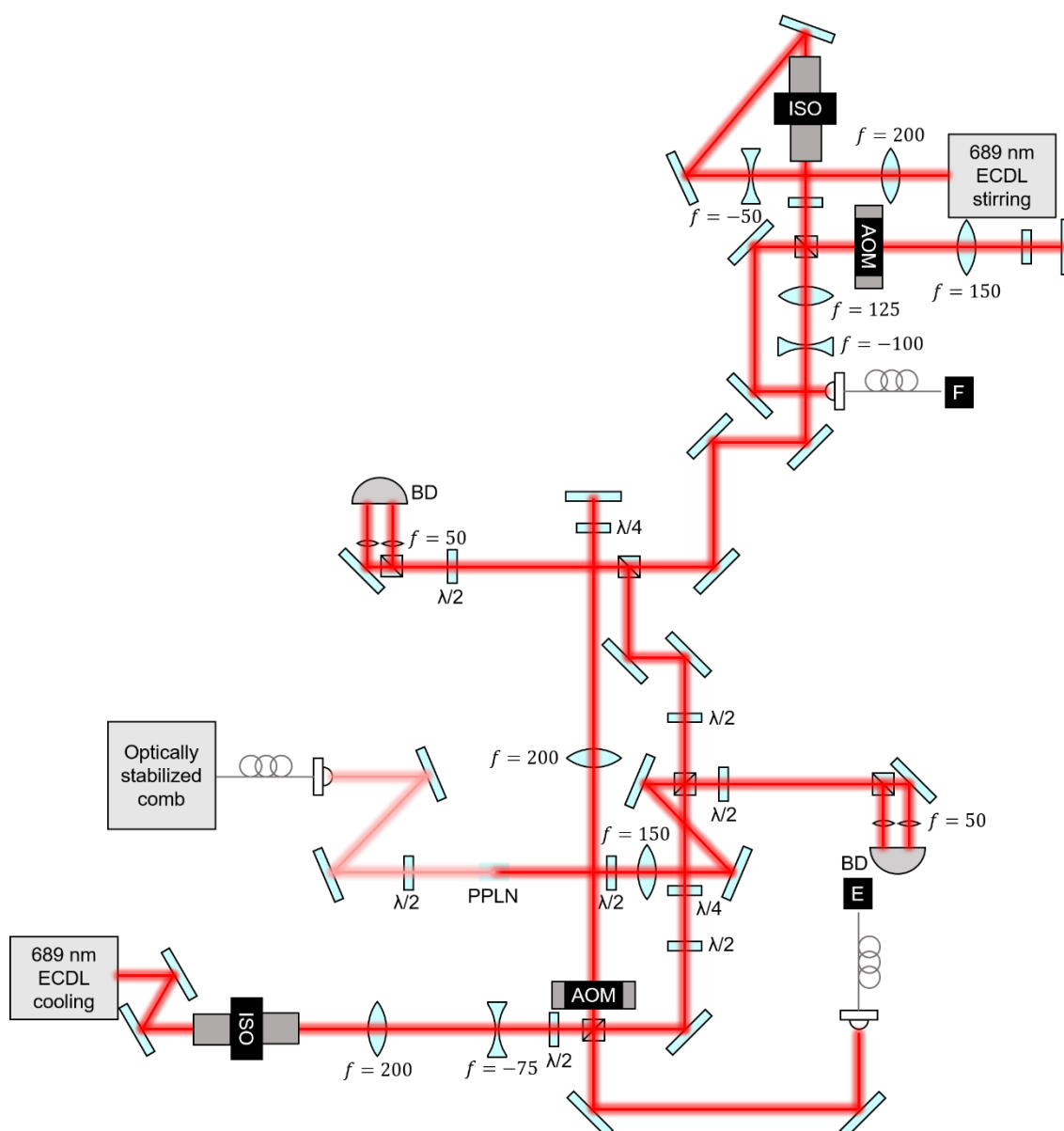


図 4.7 波長 689 nm のレーザーの光学系。ECDL：外部共振器型半導体レーザー、ISO：アイソレーター、AOM：音響光学変調器、 $\lambda/2$ ：1/2 波長板、 $\lambda/4$ ：1/4 波長板、BD：バランス光検出器。

ための系であり、原理については 4.5 節で述べる。一方、PBS で反射されるパスは周波数安定化のために用いられる。 $^{87}\text{Sr}$  原子の  $^1S_0 - ^3P_0$  時計遷移の自然幅は約 1 mHz と非常に狭いため、時計遷移の分光のためには狭線幅レーザーが必要となる。そこで、後述する狭線幅コムに CW レーザーを位相同期した。狭線幅コムの 2 次高調波を WG-PPLN によって発生させ、波長 698 nm の CW レーザーと PBS で合波してから 30 MHz のビート信号を光検出器でヘテロダイン検出した。光検出器の手前にある偏光子は光周波数コムの光と CW レーザーの光のパワーバランスを取り、ビート信号の S/N を上げると

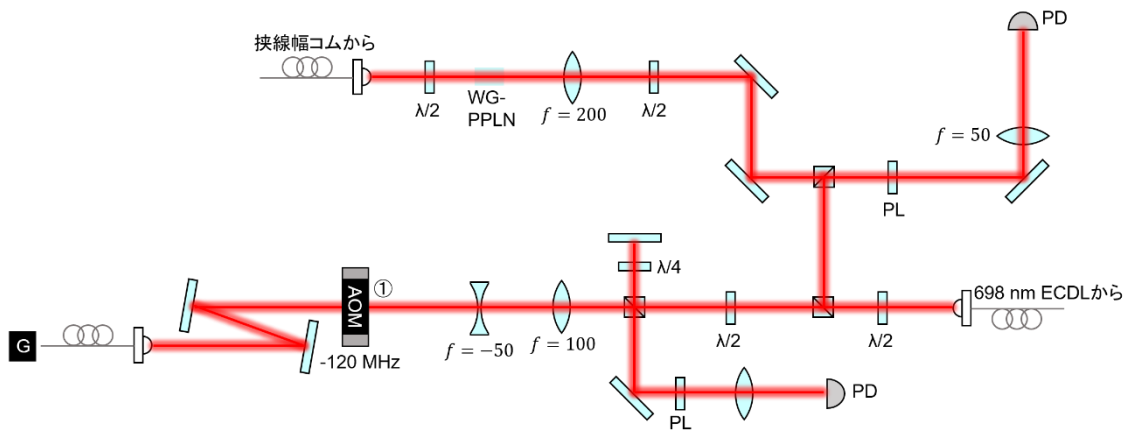


図 4.8 波長 698 nm のレーザーの光学系。ECDL：外部共振器型半導体レーザー、AOM：音響光学変調器、 $\lambda/2$ ：1/2 波長板、 $\lambda/4$ ：1/4 波長板、PL：偏光子、PD：光検出器、WG-PPLN：導波路型 PPLN。

同時に光検出器が飽和しないようにするために入れている。ビート信号の S/N は 30 dB 以上であった。制御のフィードバックは早い制御をレーザーの電流に、遅い制御をピエゾ素子に返した。

#### 4.3.4 波長 813 nm レーザー

Sr 光格子時計において魔法波長の光格子レーザーとして用いられる波長 813 nm のレーザー光源は、Ti:sapphire レーザーを用いた。図 4.9 に光格子レーザーのための光学系を示す。Ti:sapphire レーザー (M squared, SolsTiS) は波長 532 nm の励起レーザー (Coherent, Verdi-V10) によって励起される。励起レーザーのパワーが 10 W のとき、Ti:sapphire の出射パワーは約 1.5 W であった。Ti:sapphire レーザーからの波長 813 nm の光は透過型回折格子を通る。これは、波長 813 nm の成分だけを選択的に取り出すことにより自然放射増幅光 (ASE) の影響を低減し、光格子による光シフトを小さくするためである。回折格子とアイソレーターを通った後の光は 2 段階の PBS により 3 つに分けられ、それぞれ (I)、8 ブランチコムの干渉計、K コムの干渉計へと送られる。(I) に伝送される光は真空チェンバーへ送られ光格子レーザーとして用いられる。(I) のパスにある AOM は光格子レーザーのパワーサーボに用いられる。8 ブランチコムの干渉計に送られた光は 8 ブランチコムへの遅延線ロックに用いられる。8 ブランチコムと CW レーザーのビート信号の S/N は約 40 dB であった。制御のフィードバックは Ti:sapphire レーザーのピエゾ素子に返した。遅延線ロックされた Ti:sapphire レーザーの周波数変動はおよそ数 10 kHz の範囲内に収まっており、光格子による光シフトの不確かさには寄与しないといえる。また、K コムの干渉計に送られた光は K コムによ

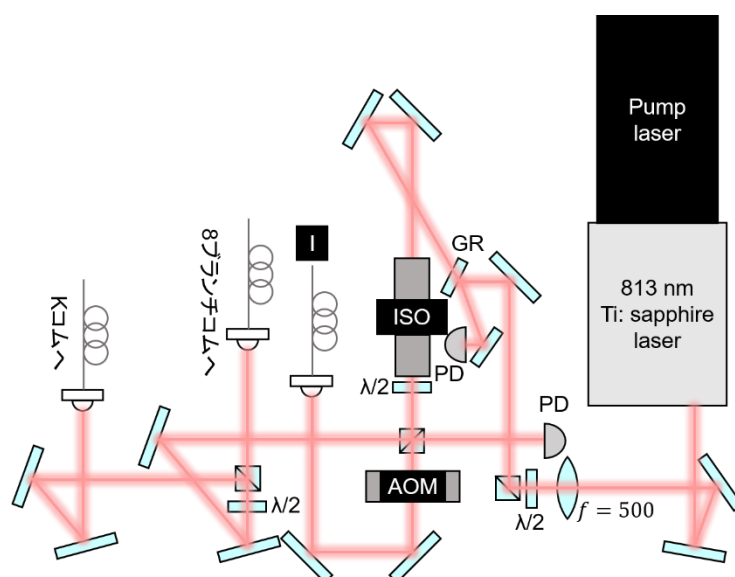


図 4.9 波長 813 nm のレーザーの光学系。 $\lambda/2$ :  $1/2$  波長板、GR: (透過型) 回折格子、ISO: アイソレーター、AOM: 音響光学変調器、PD: 光検出器。

て周波数計測され、8 ブランチコムによる周波数計測と合わせて光周波数コムのモード番号を一意に決定し、周波数値を計算することで Ti:sapphire レーザーが魔法波長で発振しているかチェックするために使われる。なお、回折格子の反射光はパワーのモニターに用いられる。また、AOM の手前の PBS は、真空チェンバー上部に取り付けられた凹面ミラーで折り返して戻ってきた光を反射し、光検出器でパワーをモニターする用途にも使われている。

#### 4.3.5 波長 679, 707 nm レーザー

Sr 原子のリポンプに用いられる波長 679 nm と 707 nm のレーザー光源は、それぞれの波長の ECDL を用いた。図 4.10 にリポンプレーザーの光学系を示す。ECDL から出射した光はいずれもアイソレーターを通過してから PBS で合波し、ファイバーカップルして真空チェンバーへ送られる。波長 679 nm の光はアイソレーターの直後で PBS によって分岐され、一方は 8 ブランチコムの干渉計へ送られて遅延線ロックに用いられる。ビート信号の S/N は約 20 dB であった。制御のフィードバックはピエゾ素子に戻した。一方、波長 707 nm の ECDL は周波数安定化していない。 ${}^3P_2 - {}^3S_1$  の複数の超微細構造準位間の遷移に共鳴するように ECDL のピエゾ素子に印加する電圧に正弦波の変調をかけレーザーの周波数を変調した。

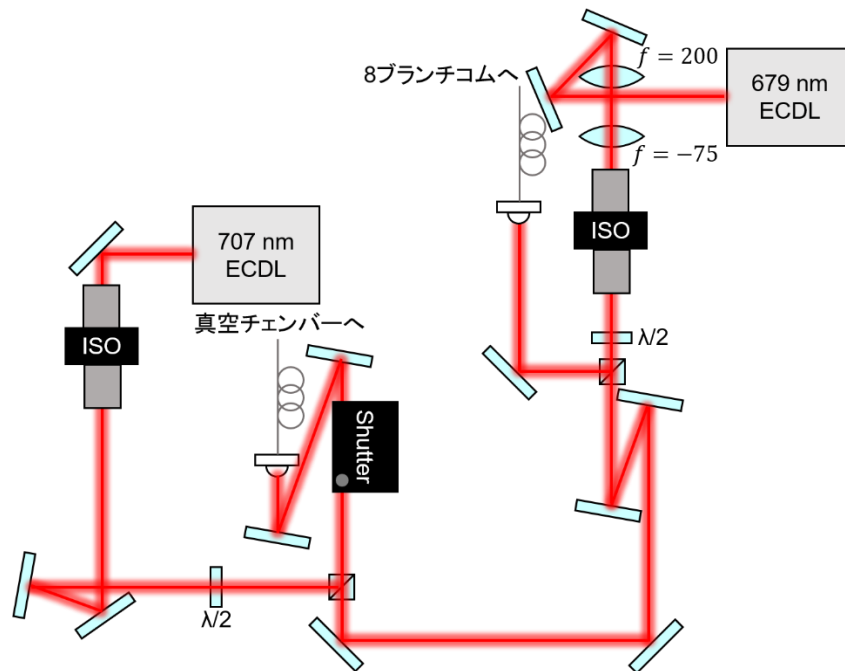


図 4.10 リポンレーザーの光学系。ECDL：外部共振器型半導体レーザー、 $\lambda/2$ ：1/2 波長板、ISO：アイソレーター。

#### 4.3.6 波長 1064 nm レーザー

我々のグループでは、Sr・Yb 光格子時計の 2 次冷却に用いるレーザーと時計レーザーを狭線幅化するためのマスターレーザーとして、波長 1064 nm の Nd:YAG レーザーを用いている。まず、Nd:YAG レーザーは高フィネス超低膨張 (ULE) 共振器に Pound-Drever-Hall (PDH) 法 [63] によって安定化した。早い制御はレーザー結晶に取り付けられた piezoelectric 素子を用いた。その制御帯域は約 100 kHz である。遅い制御はレーザー結晶の温調を用いた。PDH 法のサイドバンドは 5 MHz の RF 発振器によって駆動される EOM によって発生させられる。共振器は  $3 \times 10^{-5}$  Pa の真空チェンバー内に鉛直方向に取り付けられている。共振器のフィネスは約 735 000 であり、円筒形である。スペーサーの間隔は 75 mm、直径は 25.4 mm である。ミラーとスペーサーはいずれも ULE ガラスで出来ている。真空チェンバーと EOM などの光学素子は除振台に置かれ、音響遮蔽箱の中に収納されている。ULE 共振器の熱膨張係数 0 になる 22.2°C で温調されている。

図 4.11 に波長 1064 nm レーザーの光学系を示す。Nd:YAG レーザーから出射した光は PBS で分岐される。PBS を透過するパスはパワーサーボのための AOM を通ってからファイバーカップルして ULE 共振器へ送られる。一方、反射した光はダブルパス AOM を通ってから、ファイバーノイズキャンセルのためのシングルパス AOM により 0 次回折光と 1 次回折光に分けられる。0 次回折光はファイバーカップルして光制御



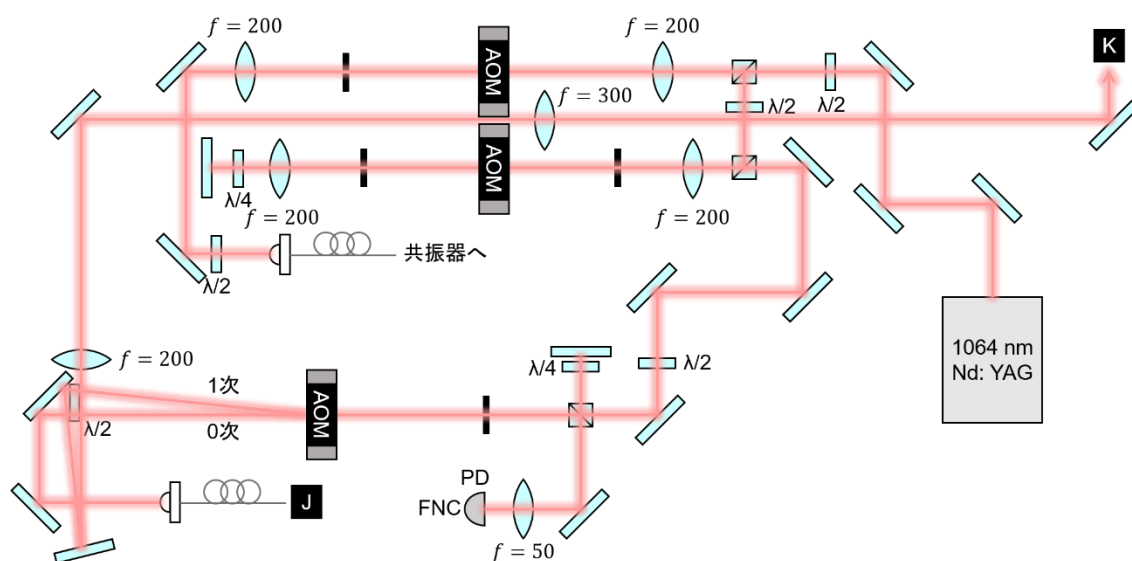


図 4.11 波長 1064 nm レーザーの光学系。 $\lambda/2$  : 1/2 波長板、 $\lambda/4$  : 1/4 波長板、AOM : 音響光学変調器、PD : 光検出器。

コムに送られる (J)。1 次回折光は狭線幅コムとのビートをとるための系へ送られる (K)。なお、シングルパス AOM の手前の PBS、1/4 波長板、光検出器はファイバーノイズキャンセルのためのものである。

ULE 共振器はアモルファスが結晶化することにより収縮し、共振器に安定化されたレーザーの周波数がドリフトする。したがって、周波数ドリフトを補正するために図 4.11 中に示したダブルパス AOM にフィードフォワードを行っている。

#### 4.3.7 狭線幅コムの周波数安定化

狭線幅コムは高速制御を可能にするために、ファイバー共振器内に EOM が挿入されている [60]。狭線幅化のために 4.3.6 節で述べた波長 1064 nm のレーザーをマスターレーザーとして位相同期した。狭線幅化した光周波数コムに CW レーザーを位相同期することによって、マスターレーザーの線幅を光周波数コムを介して CW レーザーに移すことが出来る。このような手法を線幅転送と呼ぶ [64]。図 4.12 に狭線幅コムの周波数安定化のための光学系を示す。(K) から送られてきたマスターレーザーのパワーを光アッテネーターによって弱めた後、PBS によって狭線幅コムの光と合波した。合波された光は回折格子によって波長 1064 nm の成分のみを選択的に取り出した後、光周波数コムと CW レーザーのパワーのバランスを調整するための偏光子を通り、光検出器によってビート信号を検出した。ビート信号の S/N は 30 dB 以上であり、 $f_{\text{rep}}$  の制御に用いた。フィードバックは早い制御をファイバー共振器中に組み込まれた EOM に、遅

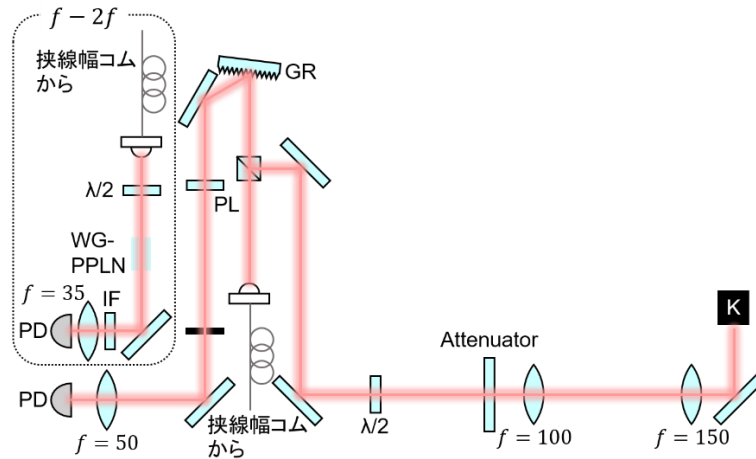


図 4.12 狭線幅コムの周波数安定化のための光学系。 $\lambda/2$  :  $1/2$  波長板、GR : 回折格子、PL : 偏光子、PD : 光検出器、WG-PPLN : 導波路型 PPLN、IF : 干渉フィルター。

い制御を piezo 素子に、非常に遅い制御を白熱球による温調に返した。白熱球による温調はペルチェ素子による温調と比較すると、ファイバー共振器を均一に温調することが出来るという長所がある。一方で冷却することは出来ないで、環境の温度が一定以上に上がってしまうと目標の繰り返し周波数に到達できなくなるという短所もある。

狭線幅コムの  $f_{\text{CEO}}$  は  $f - 2f$  干渉計によって検出した。光学系は 3.2.1 節で述べた 8 ブランチコムの場合と同様である。S/N は約 35 dB であった。 $f_{\text{CEO}}$  の制御のフィードバックは励起レーザーの注入電流に返した。

#### 4.3.8 光制御コムの周波数安定化

光制御コムはファイバー共振器内に EDF に加えて Yb 添加ファイバー (YDF) を取り付け、YDF の励起レーザーの注入電流を制御することにより高速制御を可能にしたファイバーコムである [59]。光制御コムも 4.3.7 節の狭線幅コムと同様に狭線幅レーザーに  $f_{\text{rep}}$  を位相同期することにより狭線幅化した。図 4.13 に光制御コムの周波数安定化のための光学系を示す。(J) からファイバー伝送されたマスターレーザーの光を PBS で光制御コムの光と合波した。その後、偏光子と干渉フィルターを通して光検出器でビート信号を検出し、 $f_{\text{rep}}$  の制御に用いた。ビート信号の S/N は 30 dB 以上であった。制御のフィードバックは早い制御を YDF の励起レーザーの注入電流に、遅い制御をファイバー共振器の温調に返した。また、合波に用いている PBS における CW レーザーの反射光はミラーで打ち返され、ファイバーノイズキャンセルに用いた。

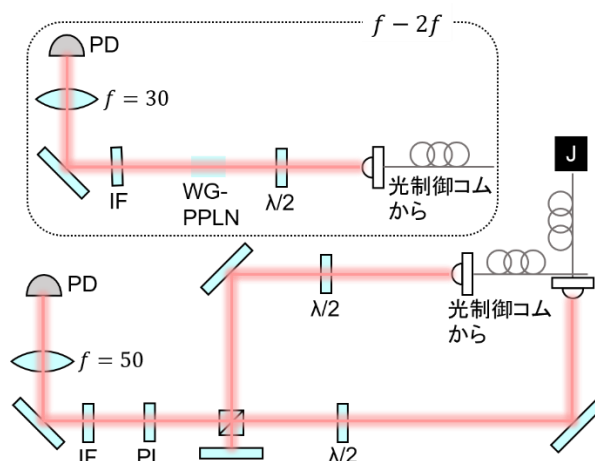


図 4.13 光制御コムの周波数安定化のための光学系。 $\lambda/2$  :  $1/2$  波長板、 $\lambda/4$  :  $1/4$  波長板、GR : 回折格子、PL : 偏光子、IF : 干渉フィルター、PD : 光検出器、WG-PPLN : 導波路型 PPLN。

光制御コムの  $f_{\text{CEO}}$  も狭線幅コムの場合と同様に検出され制御に用いられる。S/N は約 35 dB であった。 $f_{\text{CEO}}$  の制御のフィードバックは EDF の励起レーザーの注入電流に返した。

#### 4.4 Sr 原子の冷却・トラップと時計遷移分光のための光学系

光格子時計において原子の時計遷移を分光する際には、原子に照射するレーザーの切り替えや、レーザーの周波数や偏光の調整が必要となる。適切な偏光や周波数に調整された光は、最終的には図 4.14 のように真空チェンバーに送られる。本節では一連の操作のための光学系について説明する。

##### 4.4.1 磁気光学トラップの光学系

2つの波長の磁気光学トラップに用いる光学系を図 4.15 に示す。図 4.3 の (C) からの波長 461 nm の光は、1次冷却用の MOT に用いるために AOM で共鳴周波数から 43 MHz だけ離調を取る。一方、図 4.7 の (E)、(F) からのクーリングレーザーとスターリングレーザーの光は PBS で合波される。その後、PBS で波長 461 nm の光と合波され、2段階の PBS によって3つのパスにパワーが等しくなるように分けられる。いずれのパスの光も上方向のミラーで打ち上げられ、図 4.14 のように  $1/4$  波長板を通して円偏光にしてから3方向から真空チェンバーへと送られる。それぞれの光を  $1/4$  波長板を通してミラーで打ち返すことによって 3DMOT を実現している。MOT に使われ

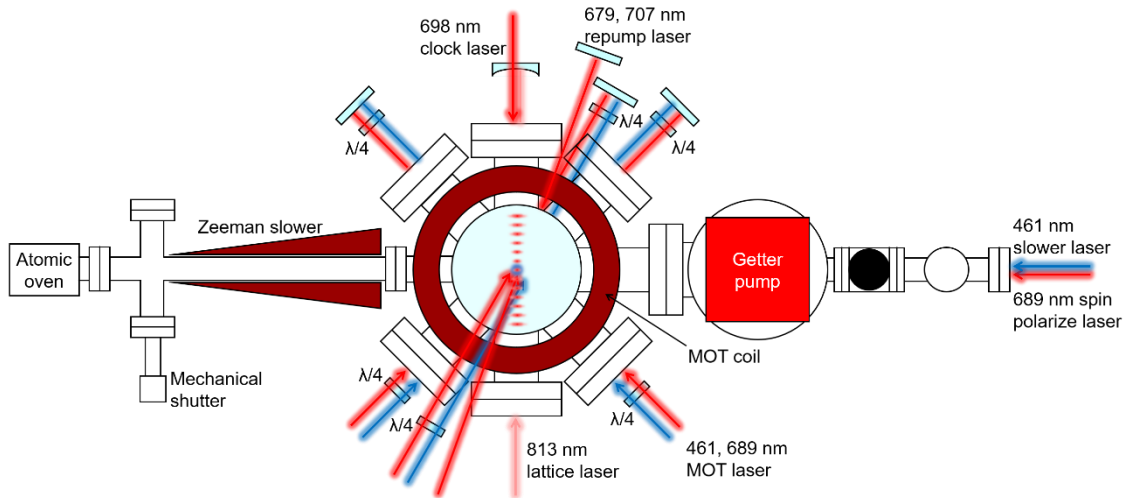


図 4.14 真空チェンバーと光格子時計に用いるレーザー。 $\lambda/4$  : 1/4 波長板。

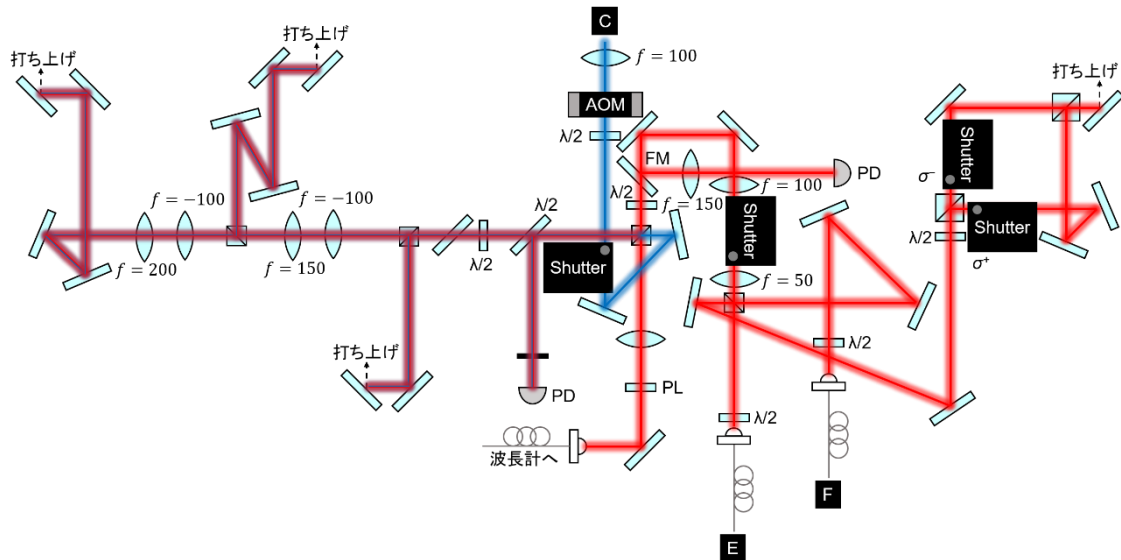


図 4.15 磁気光学トラップのための光学系。 $\lambda/2$  : 1/2 波長板、FM : フリップミラー、PL : 偏光子、PD : 光検出器。

ている光のパワーは片側 1 方向当たり、波長 461 nm は 11.6 mW、波長 689 nm のクーリングレーザーは 1.1 mW、スターリングレーザーは 1.8 mW である。また、最初の PBS を透過するスターリングレーザーの光はスピン偏極に用いられる。PBS によって $\sigma^+$ 偏光のパスと $\sigma^-$ 偏光のパスの 2 つに一旦分け、2 台のメカシャッターにより切り替えられるようにした。パワーはいずれの偏光も 0.3 mW であった。再び合波して打ち上げた後、1/4 波長板によって円偏光にしてから Zeeman slower のビームと合波し、Zeeman slower 用の窓から真空チェンバー内の原子に照射した。なお、図 4.15 中の 2 つの光検出器はいずれもパワーモニターに用いている。

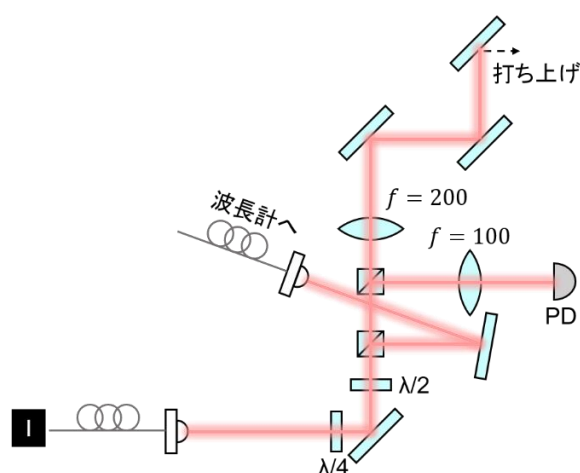


図 4.16 光格子レーザーのための光学系。 $\lambda/2$  :  $1/2$  波長板、 $\lambda/4$  :  $1/4$  波長板、PD : 光検出器。

#### 4.4.2 光格子レーザーの光学系

光格子レーザーのための光学系を図 4.16 に示す。図 4.9 の (I) からの波長 813 nm の光は、図 4.9 で打ち返しのパワーを測るための PBS で反射するように  $1/4$  波長板を通った後、光格子レーザーの偏光がバイアス磁場に対して平行になるように  $1/2$  波長板と 2 つの PBS を通る。1 つ目の PBS で反射された光は波長計へファイバー伝送され、光格子レーザーの波長をモニターするために使われる。2 つ目の PBS で反射された光は光検出器で光格子レーザーのパワーをモニターし、パワーサーボを通して光格子のトラップ深さを一定に保つのに使われる。2 つの PBS を透過した光は真空チェンバーの下から打ち上げられ、図 4.14 のように真空チェンバー上部に取り付けられた凹面ミラーで打ち返されることによって定在波となり、光格子を形成する。凹面ミラーの曲率と位置は、折り返した光が入射光の伝搬モードとよく重なるように調整した。

#### 4.4.3 時計レーザーの光学系

時計レーザーのための光学系を図 4.17 に示す。図 4.8 の (G) からの波長 698 nm の光のパワーは 2.4 mW であり、ファイバーノイズキャンセルのための  $1/4$  波長板と部分反射ミラーを通過してから、PBS で 2 つのパスに分岐される。PBS を透過した光はファイバーノイズキャンセルのための PBS を経て、AOM で 0 次回折光と 1 次回折光に分けられる。1 次回折光は 8 ブランチコムへファイバーにより伝送される。AOM④は 8 ブランチコムによる時計レーザーの周波数計測の際のファイバーノイズキャンセルに用いられる。また、Sr 光格子時計の絶対周波数計測の際には AOM④の周波数を考慮し

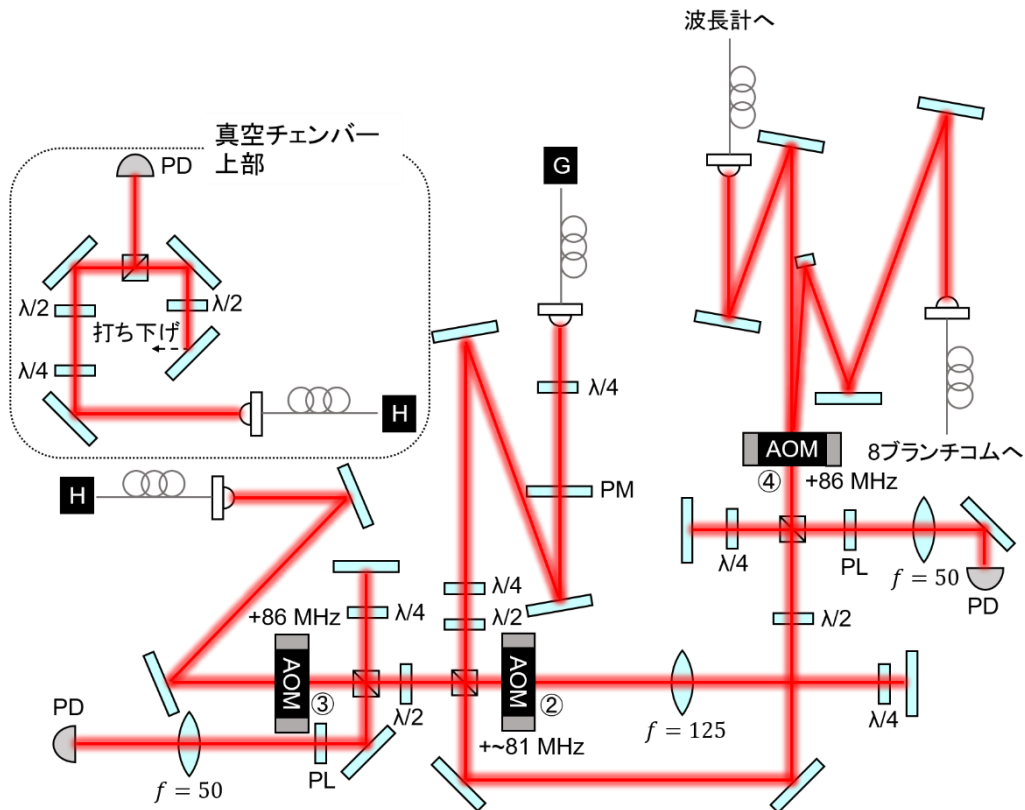


図 4.17 時計レーザーのための光学系。 $\lambda/2$ :  $1/2$  波長板、 $\lambda/4$ :  $1/4$  波長板、PM: 部分反射ミラー、AOM: 音響光学変調器、PL: 偏光子、PD: 光検出器。

て周波数値を計算する必要があるが、本研究では絶対周波数計測を行わなかったため AOM④の周波数は用いなかった。0 次回折光は波長系で時計レーザーの波長をモニターするために用いられる。一方、最初の PBS で反射するパスは原子の時計遷移分光に用いられる。分光の際に時計レーザーの周波数を変化させるためのダブルパス AOM②を通過してから、ファイバーノイズキャンセルと後述する Doppler キャンセルのための PBS と AOM③を通り (H) へ送られる。(H) は真空チェンバー上部に設置された光学系であり、PBS を透過した光が図 4.14 の凹面ミラーを透過して Sr 時計遷移の分光に使われる。一方、反射光は原子に照射する時計レーザーのパワーを一定にするためのパワーサーボに使われる。

#### 4.5 Doppler キャンセルとファイバーノイズキャンセル

4.4 節で述べたように、本実験では時計レーザーおよびマスターレーザーのファイバー伝送をしている箇所にはファイバーノイズキャンセル [65] を入れており、真空チェンバー上部の時計レーザーの光学系には Doppler キャンセル [66] を入れている。光を

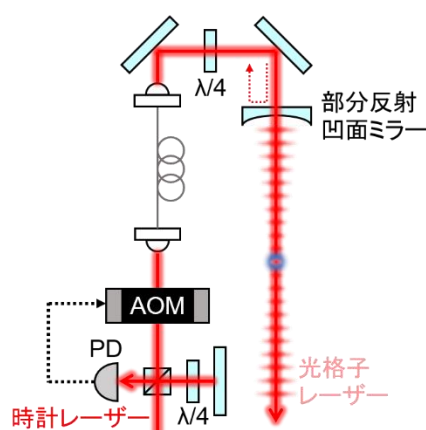


図 4.18 Doppler キャンセルの光学系。光格子を形成するための凹面ミラーは波長 698 nm に対して 10% 反射の部分反射ミラーになっている。

ファイバーで伝送すると、ファイバーの機械的な振動や温度変化などによってファイバー内を伝搬する光に位相ノイズ（ファイバーノイズ）が付加される。したがって、時計遷移のような狭線幅な遷移を分光するにはファイバーノイズを除去する必要がある。また、産総研の Sr 光格子時計では、MOT コイルによって磁場を発生させた際に生じる斥力による MOT コイルの振動や、原子オーブンの前に取り付けられたメカニカルシャッターの開閉による振動が真空チェンバー周辺の光学系に伝わっていたことが分かった。光学系の振動により空間を伝搬する光の位相が変化し、Doppler シフトを引き起こしていた。この影響を除去するために Doppler キャンセルのシステムを導入した。

ファイバーノイズキャンセルと Doppler キャンセルの原理は同じである。そのため、Doppler キャンセルを例として説明する。図 4.18 に Doppler キャンセルの系を示す。時計レーザーの光は PBS で 2 つに分けられる。反射光は 1/4 波長板を通過してからミラーで打ち返され PBS を透過して光検出器に入射する。この光を参照光として用いる。一方、最初に PBS を透過した光は 1/4 波長板を通過してからトラップされた原子へ向かう。その際、光格子を形成するための凹面ミラーが時計レーザーの波長 698 nm に対しては 10% 反射の部分反射ミラーとなっており、反射した光が PBS を反射して光検出器で参照光とのビート信号を検出する。2 つの光の位相差が検出でき、AOM にフィードバックすることによって PBS と部分反射ミラーの間で付加された位相ノイズをキャンセルすることができる。この手法では、光格子が動いても、光格子の動きに合わせて時計レーザーの位相変化をキャンセルすることもできる。また、我々の実験装置では PBS と部分反射ミラーの間に光ファイバーがある。この場合はファイバー伝送で生じるファイバーノイズもキャンセルすることができる。一方、ファイバーノイズキャンセルのみを行う場合は、ファイバー出射直後に部分反射ミラーなどを置いて光の一部を打ち返すことによって実現することができる。

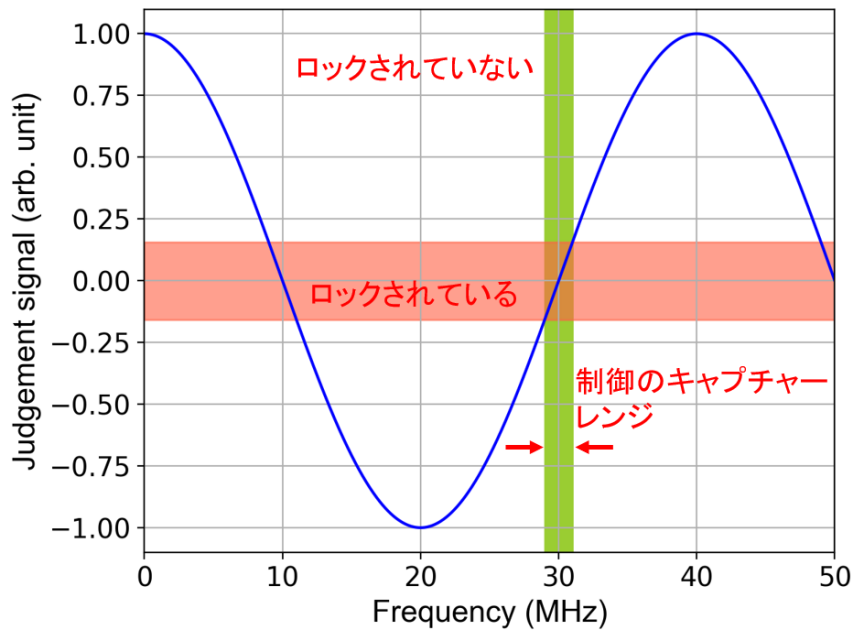


図 4.19 リロックシステムの原理。遅延線により同軸ケーブルを伝搬する信号の周波数を電圧に変換している。青線は遅延線の長さが 5 m であると仮定したときのエラー信号である。緑の網掛け部分は位相同期などの制御のキャプチャレンジを表している。赤の網掛け部分はロックされているときに出力される電圧の値を表している。

#### 4.6 リロックシステム

狭線幅コムには FPGA を用いたリロックシステムが導入されており、 $f_{\text{rep}}$  や  $f_{\text{CEO}}$  の位相同期が外れた際にも自動的に無人で制御を復帰することができる。リロックシステムについては我々のグループでの論文 [67] に詳細が記載されており、本論文の本筋からは離れるため簡単に原理のみを紹介する。

本手法は第 2 章で述べた遅延線による周波数オフセットロックの手法を応用している。遅延線を通った信号と通っていない信号をミキサーで掛け合わせると、式(2.1)より位相差の信号として周波数と遅延時間に依存する  $\cos \omega \tau$  の成分が生じる。すなわち、遅延線によって周波数の値を電圧の値に変換することができる。このことを利用して、制御がかかっているときの電圧の範囲を FPGA であらかじめ設定しておき、この範囲を超えたらロックが外れていると判断させる。外れている場合は遅い制御に段階的にフィードバックを返して、制御のキャプチャレンジに戻ったところで再び早い制御をかける。

図 4.19 を用いて具体的に説明する。CW レーザー同士をビート周波数 30 MHz で位相同期したいものとし、遅延線の長さが 5 m、位相同期のキャプチャレンジが  $\pm 1$  MHz であるとする。このときの遅延線によるエラー信号は青線のようになり、緑の網掛けで



示すキャプチャーレンジの値から、制御がかかっているときの電圧の幅は赤の網掛け部分に対応する。電圧が赤の網掛けの範囲を超えると FPGA は制御が外れたと判断し、電圧が赤の網掛けの範囲に戻るようフィードバックをかける。

## 第5章 Sr 原子のレーザー冷却と時計遷移の分光

本章では Sr 光格子時計の実験における時計遷移の分光までのプロセスについて述べる。5.1 節では分光までの全体の流れを述べる。5.2 節では原子ビームを減速するための Zeeman slower について述べる。5.3 節では原子を冷却するための磁気光学トラップについて述べる。5.4 節では光格子による冷却原子のトラップについて述べる。5.5 節では狭線幅な分光を行うために必要なスピン偏極について述べる。5.6 節では時計遷移の分光について述べる。5.7 節では分光によって得られた時計遷移のスペクトルに時計レーザーを周波数安定化する方法について説明する。本章は実験の手順を記したものであり、第6章と第7章の実験の基礎となっている。

### 5.1 Sr 光格子時計における分光手順

Sr 光格子時計で時計遷移を分光する際には、各過程においてレーザー光や磁場を操作する必要がある。我々のグループの Sr 光格子時計は LabVIEW のプログラムで制御しており、そのタイムチャートを図 5.1 に示す。最初に約 1 s の間、波長 461 nm の  $^1S_0 - ^1P_1$  遷移を用いた Zeeman 減速と磁気光学トラップ (MOT) を行う。1 次冷却を行っている間は効率よく冷却サイクルを回すため、波長 679 nm と 707 nm のリポンプレーザーを同時に照射する。次に、波長 461 nm の光をメカニカルシャッターで切り、代わりに波長 689 nm の光を照射し、さらに MOT 磁場を小さくして 275 ms の間、狭線幅な  $^1S_0 - ^3P_1$  遷移を用いた MOT を行う。この MOT により 1 次冷却よりもさらに低い温度まで原子を冷却することが出来る。2 次冷却により十分に原子を冷却した後は、波長 689 nm の光を切り、光格子にトラップする。トラップされた原子をスピン偏極するために 5.3.2 節で後述する波長 689 nm のスターリングレーザーを 50 ms 間照射し、スピン偏極された原子の時計遷移を波長 698 nm のレーザーで励起する。5.6.1 節で述べるように、時計レーザーは 40 ms 間照射した。励起率を見るためには、EMCCD カメラによる観測を 3 回行う。まず、励起されていない原子を観測するために時計レーザーを照射した直後にイメージング光を当てる。すると、基底状態である  $^1S_0$  にいる原子が散乱されるので、散乱光を EMCCD カメラで撮影する。このときの原子数を  $N_g$  とする。次に、リポンプ光を 10 ms 間当てて励起状態  $^3P_0$  にある原子を脱励起し、 $^1S_0$  に落とす。その状態でイメージング光を照射すると、 $^3P_0$  から  $^1S_0$  に戻ってきた原子が散乱されるため、このときの散乱光を EMCCD カメラで撮影することで  $^3P_0$  に励起されていた原子数  $N_e$  を知ることが出来る。この時点で理論上は全ての原子が散乱され、トラップされている原子は無くなる。最後に、EMCCD カメラで原子の蛍光を撮影した際に原子の蛍光以外のバックグラウンドの光が検出されてしまうため、原子がトラップされていない状

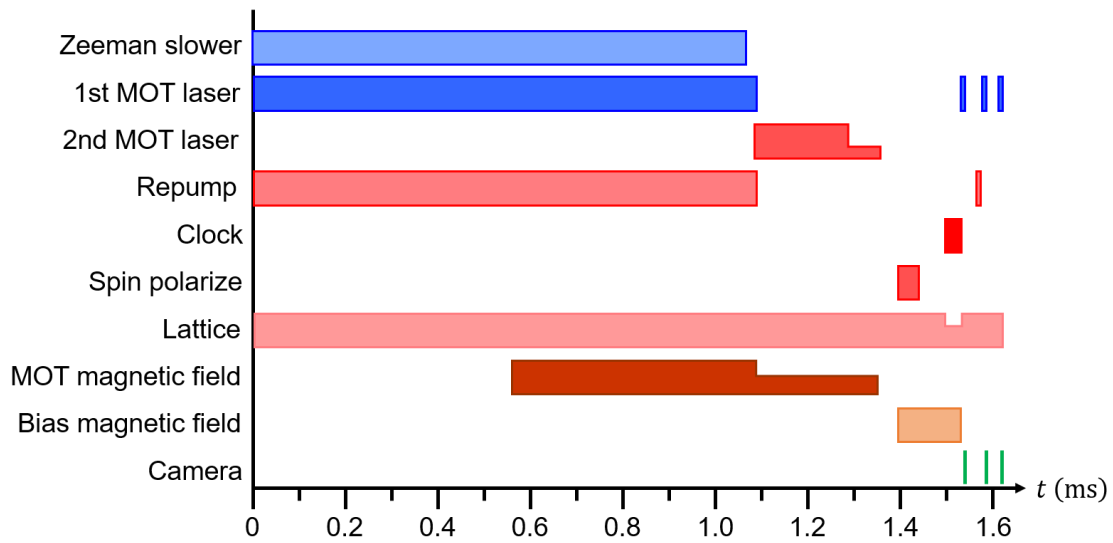


図 5.1 Sr 光格子時計のタイムチャート。レーザーや磁場の切り替えは LabVIEW で行っている。

態でイメージング光を照射して EMCCD カメラで撮影する。そして、先の 2 つの画像からバックグラウンドのカウントを差し引き、励起率を計算する。励起率  $\kappa$  は  $N_g$  と  $N_e$  を用いて次の式で計算することが出来る。

$$\kappa = \frac{N_e}{N_g + N_e} \quad (5.1)$$

時計遷移の分光が終わったあとは再び Zeeman 減速と 1 次冷却を開始して原子をロードする。

## 5.2 Zeeman slower

原子オープンから放出された Sr 原子ビームは高速で運動しているため、直接磁気光学トラップで冷却すると効率が悪くトラップできる原子が少なくなる。そこで、Zeeman slower と呼ばれる方法により Sr 原子を予備冷却した。

レーザー冷却の際に用いられる力である散乱力は次のように書ける [68]。

$$F_{\text{scatt}} = \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{I/I_{\text{sat}}}{1 + I/I_{\text{sat}} + 4\delta^2/\Gamma} \quad (5.2)$$

$\Gamma$  は寿命の逆数、 $I$  はレーザーの強度、 $I_{\text{sat}}$  は飽和強度、 $\delta$  は共鳴からの離調を表す。原子ビームに対向してある離調の値のレーザー光を当てると、Doppler 効果を考慮してその離調の値に対応した速度成分を持つ原子に式(5.2)で表される散乱力が働き、わずかに減速される。しかし、原子が減速されると異なる Doppler シフトの値を持つようになる

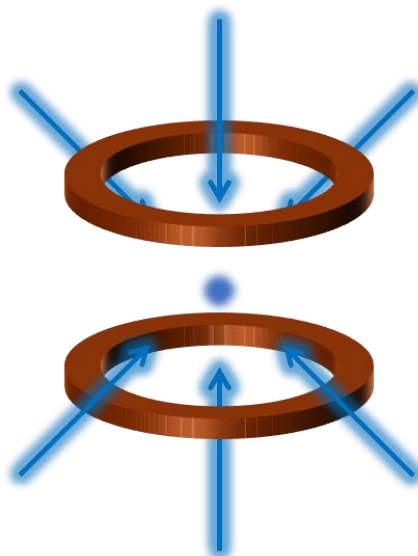


図 5.2 磁気光学トラップの概念図。原子に対して 6 方向からレーザーを照射し、さらに anti-Helmholtz コイルによって四重極磁場を発生させることによって位置に依存した力を原子に与えることが出来るようになり、原子を冷却・トラップすることができる。

ため、その原子には散乱力が働かなくなりそれ以上減速することは出来なくなる。そこで、式(5.3)のように原子に位置に依存した磁場をかけて Zeeman シフトを起こすことによって、原子の減速により Doppler シフトが変化した分を補正することで原子を効率よく減速させることが出来る。

$$\omega_0 + \frac{\mu_B B(z)}{\hbar} = \omega + kv \quad (5.3)$$

$\omega_0$  は原子の共鳴周波数、 $\mu_B$  は原子の磁気モーメント、 $\omega$  はレーザーの周波数である。本研究では、Zeeman slower による冷却遷移に  $^1S_0 - ^1P_1$  遷移を用いて、波長 461 nm のレーザーを原子に照射した。Zeeman コイルは図 4.14 のように真空チェンバーに銅線を巻いて作成した。コイルは位置によって巻き数を変え、原子が進むにつれて磁場が大きくなるように巻き数を増やした。レーザーの離調は -366 MHz に設定した。

### 5.3 磁気光学トラップ

原子に対して  $\pm x, \pm y, \pm z$  の 6 方向から原子の共鳴付近の周波数のレーザーを照射すると、光が原子に与える散乱力によって原子をレーザー冷却することが出来る。しかし、この方法では原子を冷却することは出来てもトラップすることは出来ない。そこで、原子を冷却・トラップするためには磁気光学トラップ (MOT) という手法がよく用いられる。MOT では図 5.2 のように 1 対の anti-Helmholtz コイルによって四重極磁場を発生させ、原子の磁気副準位を Zeeman 分裂させる。また、対向するビームを互いに  $\sigma^+$  偏

表 5.1 Sr 原子のレーザー冷却に関わる遷移のパラメーター。

	$^1S_0 - ^1P_1$	$^1S_0 - ^3P_1$
波長 $\lambda$	460.9 (nm)	689.3 (nm)
緩和レート $\gamma$	$2.0 \times 10^8$ (1/s)	$4.7 \times 10^4$ (1/s)
寿命 $\tau = 1/\gamma$	5.0 (ns)	21 ( $\mu$ s)
自然幅 $\Gamma = \gamma/2\pi$	32 (MHz)	7.5 (kHz)
Doppler 冷却限界温度 $T_D = \hbar\gamma/2k_B$	760 ( $\mu$ K)	180 (nK)
飽和強度 $I_{\text{sat}} = \pi\hbar c/3\lambda^3\tau$	42 (mW/cm $^2$ )	3.0 ( $\mu$ W/cm $^2$ )

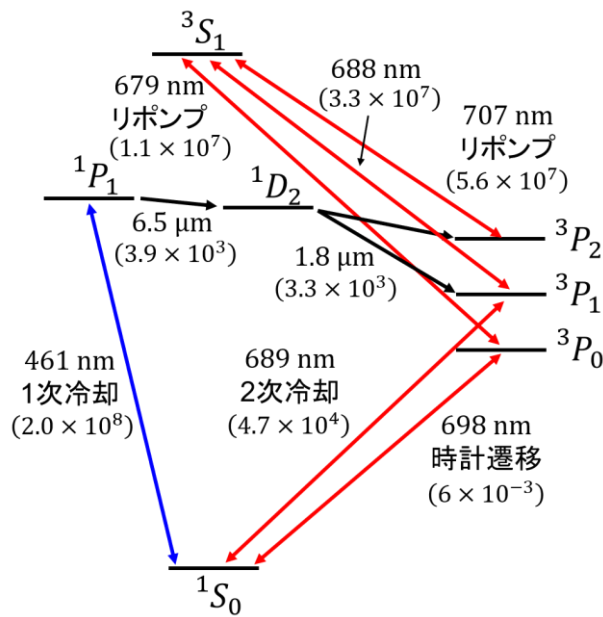


図 5.3 Sr 原子のレーザー冷却に関わるエネルギー準位。カッコ内の数字は緩和レートを表す。

光と $\sigma^-$ 偏光になるようにすると、次の式のように位置に依存する力が原子に働くようになる [68]。

$$\begin{aligned}
 F_{\text{MOT}} &= F_{\text{scatt}}^{\sigma^+}(\omega - kv - (\omega_0 + \beta z)) - F_{\text{scatt}}^{\sigma^-}(\omega + kv - (\omega_0 - \beta z)) \\
 &\simeq -2 \frac{\partial F}{\partial \omega} kv + 2 \frac{\partial F}{\partial \omega_0} \beta z \\
 &= -2 \frac{\partial F}{\partial \omega} (kv + \beta z) \\
 &= -\alpha v - \frac{\alpha \beta}{k} z
 \end{aligned} \tag{5.4}$$

ただし、

$$\beta z = \frac{g\mu_B}{\hbar} \frac{dB}{dz} z \tag{5.5}$$

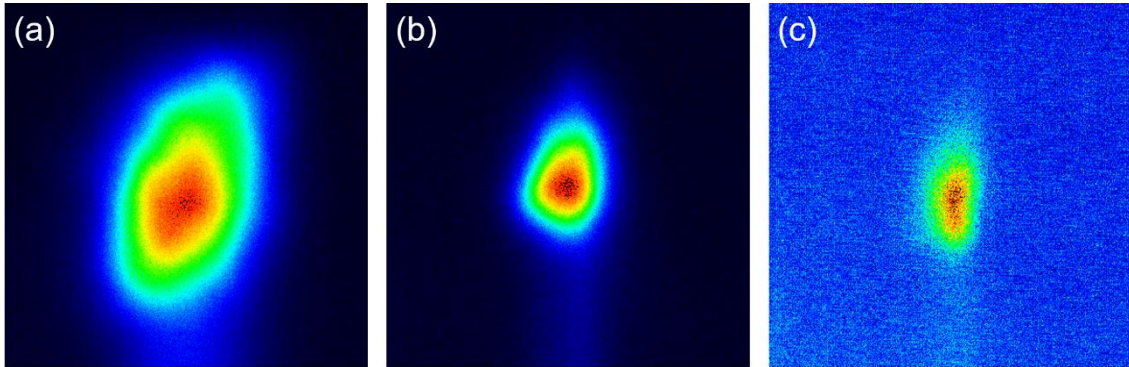


図 5.4 MOT によって冷却された Sr 原子集団に波長 461 nm の光を照射して蛍光をイメージングした画像。(a)1 次冷却の MOT によってトラップされている原子。(b)2 次冷却後の原子。(c)光格子にトラップされた原子。

である。また、散乱力が離調  $\delta = \omega - \omega_0$  に依存することから、 $\partial F / \partial \omega_0 = -\partial F / \partial \omega$ であることを用いた。 $g$  は  $g$  因子、 $\mu_B$  は Bohr 磁子、 $B$  は磁場の大きさである。式(5.4)において、 $\sigma^+$  の項は磁気副準位の変化  $\Delta M_J = +1$  となる遷移に対応しており、 $\sigma^-$  の項は  $\Delta M_J = -1$  に対応している。式(5.4)の最後の式の第 2 項から、原子が  $z > 0$  の領域にいるときは  $z < 0$  の向きに力が働き、反対に  $z < 0$  の領域にいるときは  $z > 0$  の向きに力が働くことが分かる。磁場の中心では原子に働く力が 0 になるため、原子をトラップすることが出来る。また、式(5.4)の第 1 項は粘性力を表しており、レーザー冷却におけるこのような効果を光糖蜜と呼ぶ。

### 5.3.1 $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移を用いた磁気光学トラップ

表 5.1 に  $^{87}\text{Sr}$  原子の冷却遷移に関するパラメーターの値を示す。 $^1S_0 - ^1P_1$  遷移は許容遷移であり、緩和レートが  $2.0 \times 10^8$  (1/s) と強い遷移であるため、この遷移で MOT を行うと多数の原子を効率よく冷却することが出来る。一方、Doppler 冷却限界温度は  $760 \mu\text{K}$  と比較的高い。

図 5.3 に Sr 原子のエネルギー準位を示す。レーザー冷却において、冷却遷移で励起された原子が基底状態に戻り、再び冷却遷移で励起出来ることを「冷却サイクルが閉じる」と表現する。Sr 原子の場合は  $^1S_0 - ^1P_1$  遷移だけでは冷却サイクルが閉じず、 $^1P_1$  に励起された原子は  $^1D_2$  を経て  $^3P_1$  と  $^3P_2$  へ緩和する。 $^1P_1$  から  $^1D_2$  への緩和レートは  $3.9 \times 10^3$  (1/s)、 $^1D_2$  から  $^3P_1$  あるいは  $^3P_2$  への緩和レートは  $3.3 \times 10^3$  (1/s) である。一方、 $^3P_1$  から  $^1S_0$  への緩和レートは  $4.7 \times 10^4$  (1/s) であるが、二重禁制遷移である  $^3P_2$  から  $^1S_0$  への緩和レートは非常に小さい。したがって、 $^3P_2$  が暗状態となり、1 次冷却における冷却サイクルが閉じなくなる。そこで、 $^3P_2$  にある原子を一旦  $^3S_1$  へ励起し、比較的緩和レートの大きい  $^3P_1$  へ遷移させるために波長 707 nm のリボンレーザーを導入し

た。また、 $^3S_1$ から $^3P_0$ へ遷移する場合もあり、 $^1S_0 - ^3P_0$ も二重禁制遷移であるため、 $^3P_0$ から $^3S_1$ へ励起するための波長 679 nm のリポンプレーザーも用いた。これら 2 台のリポンプレーザーにより 1 次冷却サイクルが閉じ、効率よく Sr 原子を冷却することが出来る。

### 5.3.2 $^1S_0 - ^3P_1$ 遷移を用いた磁気光学トラップ

$^1S_0 - ^3P_1$ 遷移はスピン禁制遷移であり、緩和レートが $4.7 \times 10^4$  (1/s)と弱い遷移であるため、Doppler 冷却温度が180 nKとなり、 $^1S_0 - ^1P_1$ を用いた場合よりも低い温度まで冷却することが出来る。しかし、1 次冷却後の原子を直接シングルモードの波長 689 nm のレーザーを用いた 2 次冷却 MOT に移行すると、1 次冷却された原子の温度を持つ Doppler 幅に対して $^1S_0 - ^3P_1$ 遷移の自然幅とレーザーの線幅が狭すぎるため、トラップできる原子が少なくなる [69]。したがって、最初の 200 ms 間は AOM によってレーザー光に変調をかけることによって幅広い速度成分を持つ原子に対して冷却を行い、その後単一周波数に切り替えて 75 ms 間冷却した。

$^{87}\text{Sr}$  原子を $^1S_0 - ^3P_1$ 遷移で冷却する際には、レーザー冷却するためのクーリングレーザーに加えて、冷却には直接寄与しないスターリングレーザーを導入するという工夫が必要である。その理由を述べる。

アルカリ金属のように、基底状態と励起状態の $g$ 因子の値が同程度 ( $g_g \approx g_e$ ) であれば、図 5.5 のように基底状態と励起状態の間どの $\sigma^+$ 遷移と $\sigma^-$ 遷移もほぼ同じ周波数である。したがって基底状態の原子の磁気量子数 $m_F$ の値に関係なく共鳴し、原子はトラップの中心に向かうような力を受け続ける。一方、本研究で用いた  $^{87}\text{Sr}$  原子の場合は、 $g_g$ は核スピンの値によって決まり、 $g_g \ll g_e$ となる。すると、図 5.6 のように異なる $m_F$ の値の間の遷移では共鳴周波数が大きく異なる。その結果、3 つの問題が生じる [70,71]。1 つは、図 5.6(c)に示すように $\sigma^+$ 遷移と $\sigma^-$ 遷移の共鳴周波数が近くなり、原子が $z < 0$ の領域にいるときに $\sigma^-$ 偏光の光が共鳴してしまう。その結果、トラップの中心から遠ざかる向きに力が働き、原子はトラップの外へ逃げてしまう。しかし、図 5.6(a)に示すように $F_g = 9/2 - F_e = 11/2$ の遷移では基底状態が $m_F = +9/2$ のときの $\Delta m_F = +1$ の遷移強度が $\Delta m_F = -1$ の遷移強度に対して 55 倍であるため、 $\sigma^-$ 偏光の光の寄与は非常に小さくなる。したがって、ほとんどの原子はトラップの中心に向かって力を受けるため、この問題は自動的に解決される。2 つ目の問題は、先ほど述べたように $m_F = +9/2 \rightarrow +11/2$ の遷移が強いため、 $z < 0$ の領域でスピン偏極されて原子が $z > 0$ の領域に入ったときに $\Delta m_F = -1$ の遷移がほとんど起こらず、冷却が機能しなくなることである。3 つ目の問題は、基底状態で $m_F = +9/2$ にいた原子が $z < 0$ の領域で $\sigma^+$ 偏光の光から力を受けて $z > 0$ に入ると、今度は $\sigma^-$ 偏光の光から力を受けてトラップの中心

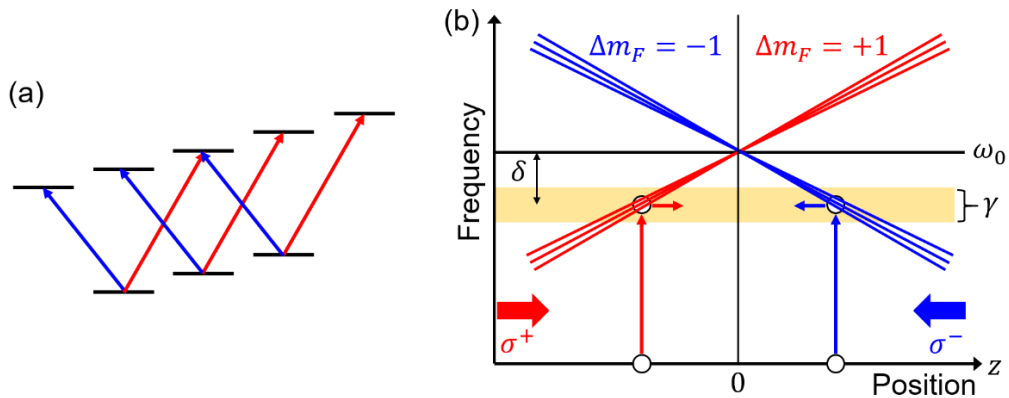


図 5.5 アルカリ金属の場合の MOT。(a)  $g_g \approx g_e$  の場合の磁気副準位。赤矢印は  $\sigma^+$  遷移、青矢印は  $\sigma^-$  遷移を表す。(b) 原子の位置と共鳴周波数の関係。共鳴周波数が磁気量子数の値にほとんど依らないのでどの基底状態にいる原子にも力が働く。

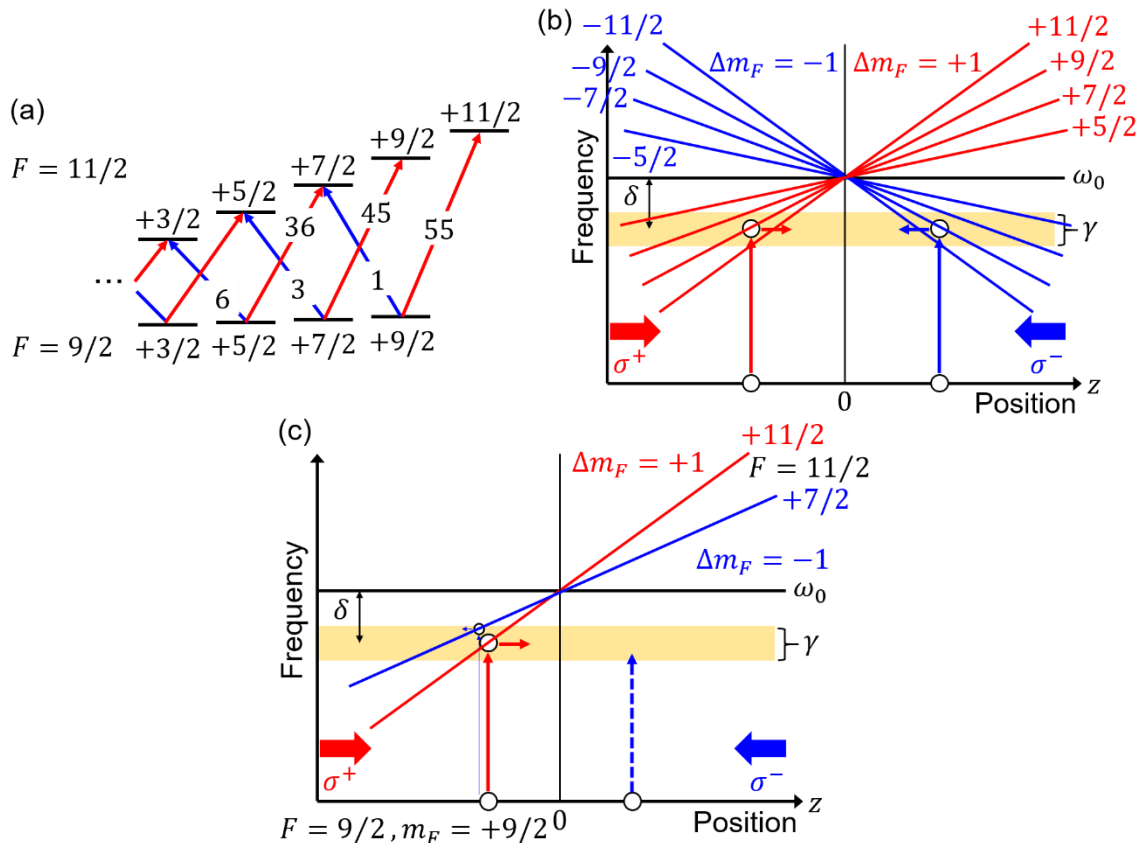


図 5.6  $^{87}\text{Sr}$  の場合の MOT。(a)  $g_g \ll g_e$  の場合の磁気副準位。矢印上の数字は Clebsch-Gordan 係数の比、すなわち相対的な遷移強度を表す。遷移強度の値は対称である。(b) 原子の位置と共鳴周波数の関係。基底状態に比べて励起状態のシフトが大きいので、共鳴周波数が磁気量子数の値に大きく依存する。共鳴しない原子が増え、特に線幅が狭いと顕著になる。(c)  $z < 0$  の領域で  $\sigma^+$  偏光の光から力を受けた、基底状態の  $m_F = +9/2$  の原子は、 $z > 0$  の領域では  $\sigma^-$  偏光の光に共鳴せずトラップから逃げてしまう。



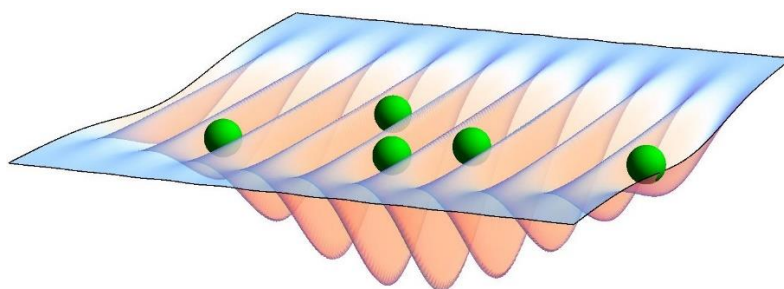


図 5.7 1次元光格子にトラップされた原子。

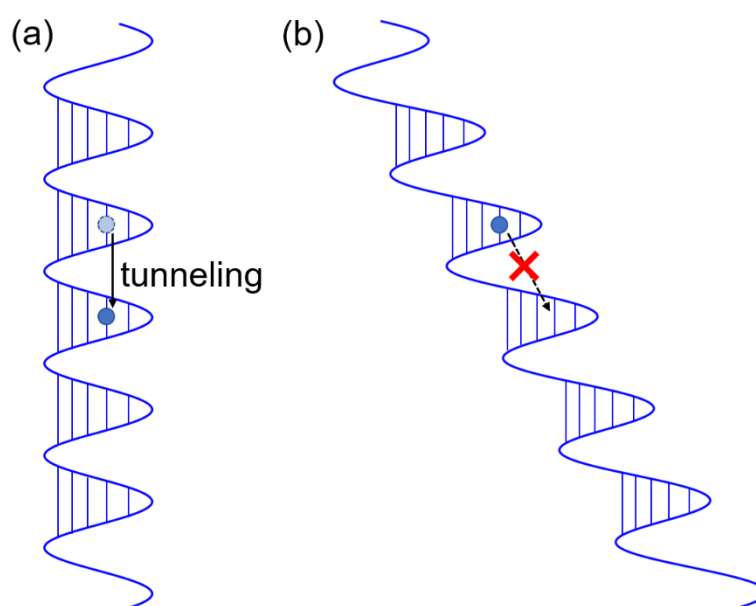


図 5.8 (a)重力ポテンシャルによる効果がない場合の光格子。水平方向に光格子を形成したときもこのようになる。振動量子状態がサイト間で縮退しており、トラップされた原子のトンネリングが起きやすい。(b)重力ポテンシャルを加えた場合の光格子。振動量子状態の縮退が解け、ポテンシャル深さが浅くてもトンネリングを抑制することが出来る。

へ戻される必要があるが、 $m_F = +9/2 \rightarrow +7/2$ の共鳴周波数が大きく離れているため共鳴せず、原子が力を受けずにそのまま $z > 0$ の方向へ運動し続けてトラップの外へ逃げてしまうことである。2つ目と3つ目の問題は $^1S_0 - ^3P_1$ 遷移の線幅が狭いことにより顕著になる。これら2つの問題を解決するためには、 $F_g = 9/2 - F_e = 9/2$ の遷移に共鳴するレーザーを導入することが有効である。通常 MOT を行う際には $\Delta m_F = \pm 1$ の遷移を使うことから、基底状態よりも励起状態の方が副準位が多い遷移を用いる。 $F_g = 9/2 - F_e = 9/2$ の遷移だけでは MOT は出来ないが、この遷移を使うことによってスピン偏極された原子のスピンをランダム化することができる。また、 $F_g = 9/2 - F_e = 9/2$ の遷移は $F_g = 9/2 - F_e = 11/2$ の遷移に比べて Zeeman シフトが 4.5 倍小さいため、不均一磁場の中で長く共鳴し続けることが出来る。したがってこの遷移を用いると MOT 光に共鳴する原子が増えるため、冷却の効率を高めることが出来る。このような操作を

行うためのレーザーをスターリングレーザーと呼ぶ [71]。本研究ではクーリングレーザーとスターリングレーザーの間の周波数差を約 1.5 GHz とした。

## 5.4 光格子によるトラップ

上で述べた 2 段階の MOT によって数  $\mu\text{K}$  まで冷却された原子は、光格子によるトラップに移行される。具体的には、光格子レーザーは常に MOT 中の原子に照射しており、 $^1S_0 - ^3P_1$  遷移を用いた MOT を切ったときに光格子のトラップポテンシャルの深さよりも低い温度の原子がそのまま図 5.7 のようなパンケーキ状の 1 次元光格子にトラップされる。レーザーの定在波によって形成される光格子ポテンシャルは、次のような式で表すことが出来る [72]。

$$U(r, z) = U_0 e^{-2r^2/w(z)^2} \cos^2 kz \quad (5.6)$$

本研究では、光格子は図 4.14 に示したように鉛直方向に形成した。その理由は、鉛直方向の方が水平方向よりも原子をトラップしやすいためである。トラップポテンシャルは重力によって傾く。このとき、水平方向に形成されたトラップポテンシャルの方が相対的に傾きが大きくなり、原子が逃げやすくなる。また、通常ポテンシャル深さが浅い場合、原子が光格子のサイト間でトンネリングを起こしやすくなる。この現象はサイト間で振動量子状態が縮退していることにより顕著になる。ここで、鉛直方向にしたときに重力ポテンシャルを足し合わせた、原子にとっての実際のポテンシャルは次の式で表される。

$$U(r, z) = U_0 e^{-2r^2/w(z)^2} \cos^2 kz + mgz \quad (5.7)$$

$m$  は原子の質量、 $g$  は重力加速度である。このときのポテンシャルの形は図 5.8 のようになる。このとき、サイト間での振動量子状態の縮退が解け、光格子のサイト間での原子のトンネリングを抑えることが出来る [73]。

### 5.4.1 Lamb-Dicke 束縛

イオントラップや光格子のように、原子をプローブ光の波長以下の領域に閉じ込めると、原子はプローブ光の位相変化を感じなくなり 1 次の Doppler シフトを取り除くことが出来る。このような効果を Lamb-Dicke 束縛と呼ぶ [74]。Lamb-Dicke 条件を式で表すと、Lamb-Dicke パラメーター  $\eta$  を用いて

$$\eta = k_z z_0 = k_z \sqrt{\frac{\hbar}{2m\nu_z}} = \sqrt{\frac{\nu_r}{\nu_z}} \ll 1 \quad (5.8)$$

と書ける。ここで、 $k_z$  はプローブ光の波数、 $z_0 = \sqrt{\hbar/2m\nu_z}$  はトラップされた原子の振動量子状態が基底状態にあるときの振幅、 $\nu_z$  はトラップ周波数、 $m$  は原子の質量、 $\nu_r$  は反

跳周波数である。Lamb-Dicke 束縛では 1 次の Doppler シフトを取り除くことは出来るが、2 次の Doppler シフトは残る。しかし、数 $\mu\text{K}$ まで冷却された極低温原子の場合は 2 次の Doppler シフトの影響は十分小さく無視できる。

#### 5.4.2 魔法波長

前節で述べた通り、原子を光格子にトラップして分光すると Doppler シフトを取り除くことが出来るという利点がある。一方で、原子が光格子によって Stark シフトを受け、エネルギー準位が変化してしまうという問題がある。この問題を解決するために、上準位と下準位のエネルギーシフトが同じになるような波長の光格子レーザーを使って原子をトラップすれば、遷移の周波数シフトは 0 になることを用いる方法が考えられた [10]。このような波長を魔法波長と呼ぶ。

光格子にトラップされた原子が受ける、エネルギー準位  $i$  の Stark シフト  $\delta U_{\text{Stark}}$  は次のように書ける。

$$\delta U_{\text{Stark}} = -\frac{1}{2} \alpha_i E_L^2 \quad (5.9)$$

$\alpha_i$  は準位  $i$  の分極率、 $E_L^2$  は光格子の電場の大きさである。式(5.9)では電場の 4 乗以上の項は無視した。励起状態を  $k$  とし、周波数  $\omega_L$  の光格子レーザーから摂動を受けているとき、準位  $i$  と  $k$  の間の電気双極子相互作用を考慮すると  $\alpha_i$  は

$$\alpha_i(\omega_L) = 6\pi\epsilon_0 c^3 \sum_k \frac{A_{ik}}{\omega_{ik}^2 (\omega_{ik}^2 - \omega_L^2)} \quad (5.10)$$

と表される [70]。ただし、 $A_{ik}$  は Einstein の A 係数であり、準位  $k$  から  $i$  への自然放出による遷移確率を表している。 $A_{ik}$  は電気双極子モーメント  $\mu_{ik}$  を用いて

$$A_{ik} = \frac{\omega_{ik}^3}{3\pi\hbar\epsilon_0 c^3} |\mu_{ik}|^2 \quad (5.11)$$

と書ける。したがって、基底状態と励起状態の分極率の差を用いると遷移周波数の Stark シフトの大きさ  $\Delta v_{\text{Stark}}$  は次のように書ける。

$$\Delta v_{\text{Stark}} = -\frac{1}{2\hbar} \Delta\alpha E_L^2 = -\frac{1}{2\hbar} [\alpha_e(\omega_L) - \alpha_g(\omega_L)] E_L^2 \quad (5.12)$$

式(5.12)において  $\Delta\alpha = \alpha_e(\omega_L) - \alpha_g(\omega_L) = 0$  となるような周波数  $\omega_L$  の光格子レーザーで原子をトラップすれば  $\Delta v_{\text{Stark}} = 0$  となり、このときの  $\omega_L$  が魔法波長となる。

#### 5.5 スピン偏極

光格子にトラップされた原子を分光する前に、スピン偏極を行った [75]。スピン偏極の目的は 2 つある。1 つは非縮退の状態では原子を分光し、狭線幅なスペクトルを得るた

めである。 $^{87}\text{Sr}$ 原子にバイアス磁場をかけると縮退が解け、 $^1S_0$ と $^3P_0$ はそれぞれ $m_F = -9/2$ から $9/2$ の10個の磁気副準位にZeeman分裂する。これらの副準位のうち $m_F = -9/2 - m_F = -9/2$ と $m_F = +9/2 - m_F = +9/2$ の遷移のみを分光するためにスピン偏極を行う。もう1つは光格子の同一のサイト内に複数個の原子がトラップされてしまったときに、衝突を抑えるためである。フェルミオンである $^{87}\text{Sr}$ 原子は同一の状態を取る原子の間ではs波散乱が起こらない。したがってスピン偏極によって $m_F = -9/2$ のみあるいは $m_F = +9/2$ のみの状態を用意する。

スピン偏極光は4.4.1節で述べたように、スターリングレーザーの一部を用いている。分光のサイクルに応じて、 $^1S_0 (F = 9/2) - ^3P_0 (F = 9/2)$ 遷移に共鳴する $\sigma^+$ 偏光と $\sigma^-$ 偏光の光を交互に50 msの間照射する。スピン偏極光を照射された原子は $\Delta m_F = +1$ または $\Delta m_F = -1$ の遷移を起こし、やがて $m_F = +9/2$ か $m_F = -9/2$ に偏極される。

## 5.6 時計遷移の分光

### 5.6.1 光格子にトラップされた原子の分光

光格子にトラップされた原子は振動量子状態 $n$ を持つ。まず、近似的にトラップポテンシャルの形状が一次元調和振動ポテンシャルであるとする。このとき、原子は

$$E_n = h\nu_z \left( n + \frac{1}{2} \right) \quad (5.13)$$

で表されるエネルギー準位にある。 $\nu_z$ はトラップ周波数である。すなわち、エネルギー準位は等間隔に分布している。原子がレーザーによって励起されるときに、図5.9(a)のように振動量子数の変化 $\Delta n = 0$ の場合と $\Delta n = \pm 1$ の場合が起こる。 $\Delta n = 0$ の遷移はキャリア遷移と呼び、 $\Delta n = \pm 1$ の遷移はサイドバンド遷移と呼ぶ。キャリア遷移の場合は式(5.13)において $\Delta E_n = 0$ となるため、理想的には時計遷移の共鳴周波数においてデルタ関数型のスペクトルを持ち、狭線幅な分光が可能となる。一方、サイドバンド遷移の場合は $\Delta E_n = h\nu_z$ となり、キャリアスペクトルから $\nu_z$ だけ離れた周波数にやはりデルタ関数型のスペクトルを持つ。しかし、実際のポテンシャルの形は調和振動子型ではなく $\cos^2$ の形をとる。したがって、図5.9(b)のようにエネルギー準位は等間隔ではなくなり、 $n$ が大きくなるほど間隔が狭くなる。すると、 $n \rightarrow n \pm 1$ のサイドバンド遷移の場合においては $n$ の値によって $\Delta E_n$ の値が異なり、複数の $\Delta n = \pm 1$ の遷移のスペクトルの重ね合わせとなることによって線幅が広がる。また、Sr光格子時計の実験においては数 $\mu\text{K}$ にまで冷却された原子を用いるため、 $n = 0$ の基底状態にある原子が多くなる。基底状態の原子が $\Delta n = -1$ の遷移を起こすことはないため、 $\Delta n = -1$ のスペクトルは $\Delta n = +1$ のスペクトルと比べて高さが低くなる。したがって、2つのサイドバンドスペクトルの高

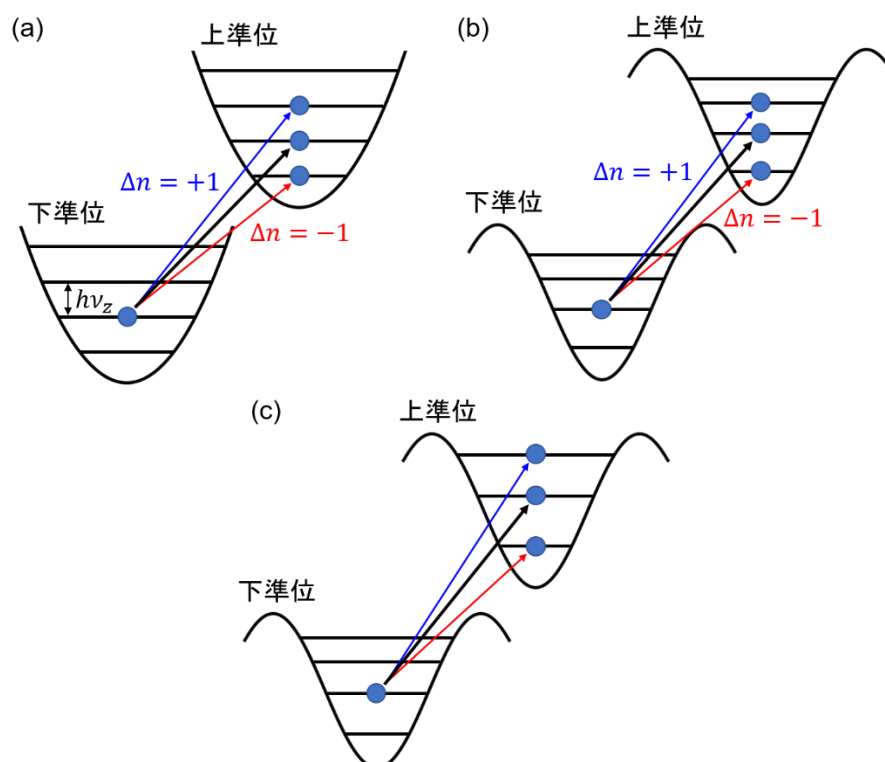


図 5.9 (a)調和振動ポテンシャル中にトラップされた原子の分光。時計遷移においては下準位が $^1S_0$ 、上準位が $^3P_0$ である。下準位から上準位に遷移する際に、振動量子数が同じ場合がキャリア遷移（黒矢印）、異なる場合がサイドバンド遷移（青・赤矢印）である。振動量子状態のエネルギーの差は等間隔で $h\nu_z$ である。(b) $\cos^2$ 型ポテンシャル（光格子）中にトラップされた原子の分光。振動量子状態のエネルギーの差は不均一である。(c)魔法波長でない光格子にトラップした原子の分光。上準位と下準位で振動量子状態のエネルギー間隔が異なる。

さの比から振動量子数の平均値を介してトラップされている原子の温度を見積もることが出来る。

魔法波長の光格子で原子をトラップした場合は上準位と下準位が等しくエネルギーシフトを受けるため、上述したようなキャリア遷移における狭線幅な分光が可能となる。しかし、魔法波長でない光格子で原子をトラップした場合、上準位と下準位自体のシフトが異なるだけでなく、図 5.9(c)のように上準位と下準位の振動量子状態が受けるエネルギーシフトも異なる。その結果、 $\Delta E_n \neq 0$ となり狭線幅な分光は不可能となる。このように、魔法波長の光格子レーザーを用いることは光格子時計における時計遷移の分光において不可欠である。

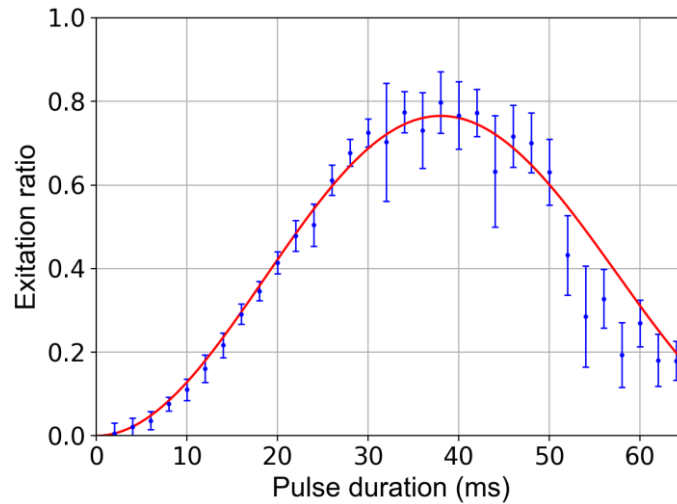


図 5.10  $1S_0 - 3P_0$  遷移の Rabi 振動。青点は実験値、赤線は実験値に対するフィッティングを表す。時計レーザーの強度は約  $100 \mu\text{W}/\text{cm}^2$  である。

### 5.6.2 時計遷移の Rabi 分光

本研究では時計遷移の分光手法として、Rabi 分光を採用した。Rabi 分光では Rabi 振動の位相が  $\pi$  変化するようなパルス時間と強度のパルスを原子に照射する。原子が励起状態にいる確率  $|c_e(t)|^2$  は式(5.14)のように表される [68]。

$$|c_e(t)|^2 = \frac{\Omega^2}{W^2} \sin^2\left(\frac{Wt}{2}\right) \quad (5.14)$$

ただし、

$$W^2 = \Omega^2 + (\omega_p - \omega_0)^2 \quad (5.15)$$

である。 $\Omega$  は Rabi 周波数、 $\omega_p$  はプローブレーザーの周波数、 $\omega_0$  は原子の共鳴周波数である。すなわち式(5.15)の第 2 項は離調を表している。Rabi 振動の位相が  $\pi$  変化したとき、原子が励起状態にいる確率は最大になる。このときのプローブレーザーの周波数を測ることで、原子の共鳴周波数を知ることが出来る。

スピン偏極した時計遷移の Rabi 振動を観測した結果を図 5.10 に示す。このときのレーザーの強度は  $I \sim 100 \mu\text{W}/\text{cm}^2$  であり、4.4.3 節で述べたように時計レーザーは原子に照射される時はパワーサーボによりパワーを一定としている。図 5.10 の結果から、パルス時間が約 40 ms のときに励起率が最大となることが分かった。したがって、時計遷移の分光を行う際にはパルス時間を 40 ms に設定した。なお、60 ms 以降で Rabi 振動が見られなくなっている理由は、時計レーザーの位相雑音が大きく、パルス時間が長くなるにつれてコヒーレンスが失われるためであると考えられる。

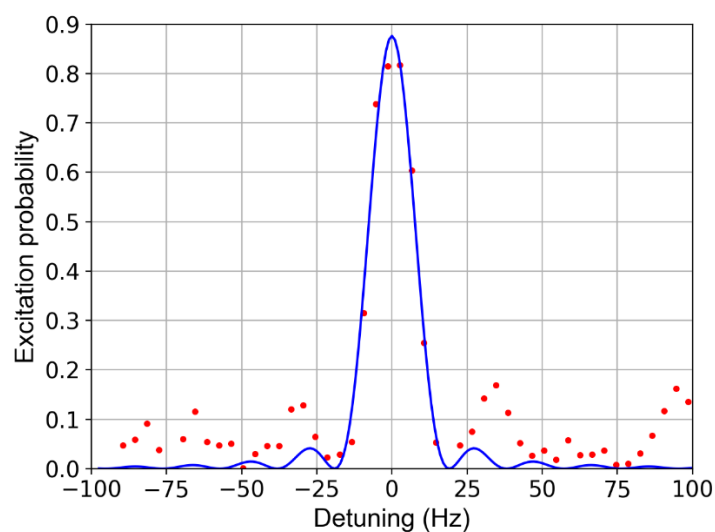


図 5.11  $m_F = +9/2 - m_F = +9/2$ の時計遷移の Rabi スペクトル。横軸はスペクトルの中心からの離調を表している。赤点は実際のデータ、青線は sinc 関数によるフィッティング結果である。

時計遷移の分光は、図 4.17 に示した AOM②の周波数を掃引することで行った。図 5.11 に時計遷移の Rabi スペクトルを観測した結果を示す。赤点が測定データで、AOM の周波数を 2 Hz ずつ（ダブルパスなので光の周波数は 4 Hz ずつ）変えて励起率を取得した。青線は時間軸上における矩形関数のフーリエ変換である sinc 関数でフィッティングした結果である。半値全幅はおよそフーリエ限界である 20 Hz となった。なお、励起率が 1 になっていないことや、測定データにおいて離調が +100 Hz 付近のところで励起率が高くなっている理由は、スピン偏極が不完全であり、 $m_F = +7/2$ の状態にある原子が残っているためであると考えられる。

### 5.6.3 時計遷移のサイドバンドスペクトル

前節では時計レーザーの強度を非常に弱くして原子に照射することによって狭線幅な時計遷移を観測することが出来た。一方、時計レーザーの強度を十分に強くして原子に照射すると、キャリアのスペクトルの他にサイドバンドスペクトルが見えるようになる。このサイドバンドスペクトルは、光格子にトラップされた原子が  $^1S_0$  から  $^3P_0$  に励起される際の振動量子状態  $n$  の変化によるものである。 $\Delta n = +1$  のときは青方に、 $\Delta n = -1$  のときは赤方にサイドバンドスペクトルが現れるため、それぞれブルーサイドバンド、レッドサイドバンドと呼ぶ。本研究では 6.2 節にて光格子による光シフトの計算を行うため、サイドバンドスペクトルを解析することによってトラップされた原子の軸方向の振動量子数  $n_z$  とトラップ温度  $T_r$  を求めた。

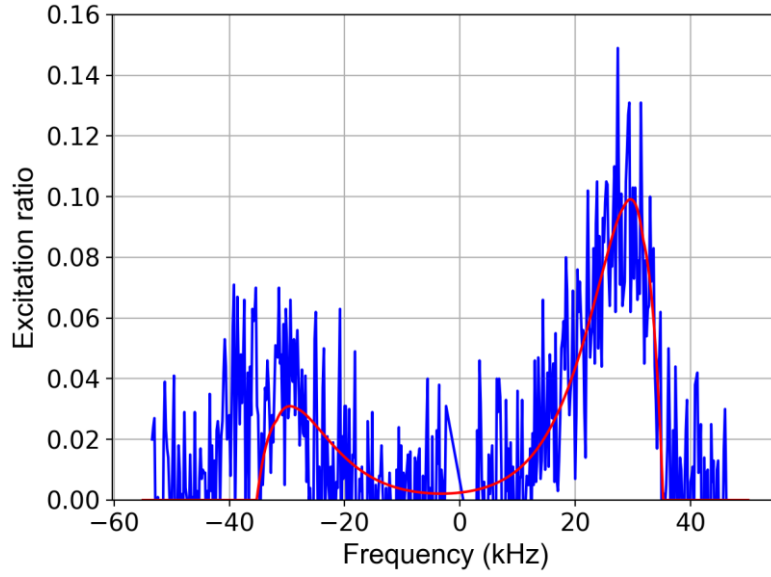


図 5.12 サイドバンドスペクトルのフィッティング。青線は実験値、赤線がフィッティングを表す。キャリア部分はデータが取れなかったため削除してある。

ブルーサイドバンド  $\sigma_{\text{blue}}(\delta)$  は次のように表される [76,77]。

$$\sigma_{\text{blue}}(\delta) = \frac{1}{Z} \sum_{n_z=0}^{N_z} e^{-\frac{E_n}{k_B T_z}} \sigma_{\text{blue}}^{n_z}(\delta) \quad (5.16)$$

$$E_n = h \left[ \nu_{\text{trap}} \left( n_z + \frac{1}{2} \right) - \frac{\nu_{\text{rec}}}{2} (n_z^2 + n_z + 1) \right] \quad (5.17)$$

ただし、 $Z$  は分配関数であり、 $Z = \sum_{n_z} e^{-E_n/k_B T_z}$  である。また、 $\nu_{\text{trap}}$  は光格子中の原子のトラップ周波数、 $\nu_{\text{rec}}$  は光格子レーザーからの光子から原子が受ける反跳周波数である。 $\sigma_{\text{blue}}^{n_z}(\delta)$  はある  $n_z$  に対して動径方向の振動量子数  $n_x, n_y$  の総和をとって、Boltzmann 分布によって重みづけしてスペクトルを重ね合わせたものであり、

$$\sigma_{\text{blue}}^{n_z}(\delta) = \frac{\alpha_{\text{blue}}^2}{\gamma_{\text{blue}}(n_z)} \left( 1 - \frac{\delta}{\gamma_{\text{blue}}(n_z)} \right) e^{-\alpha \left( 1 - \frac{\delta}{\gamma_{\text{blue}}(n_z)} \right)} \Theta(\gamma_{\text{blue}}(n_z) - \delta) \quad (5.18)$$

と表される。 $\Theta(x)$  は Heaviside 関数であり、スペクトルを  $\delta = \gamma_{\text{blue}}(n_z)$  で打ち切ることを意味している。また、

$$\gamma_{\text{blue}}(n_z) = \nu_{\text{trap}} - \nu_{\text{rec}}(n_z + 1) \quad (5.19)$$

$$\alpha_{\text{blue}} = \frac{\gamma_{\text{blue}}(n_z) h \nu_{\text{trap}}}{\nu_{\text{rec}} k_B T_r} \quad (5.20)$$

である。

一方、レッドサイドバンドの場合は  $n_z = 0$  の原子は寄与しないことと離調の符号が異なることに注意して、ブルーサイドバンドの場合と同様に表すことが出来る。



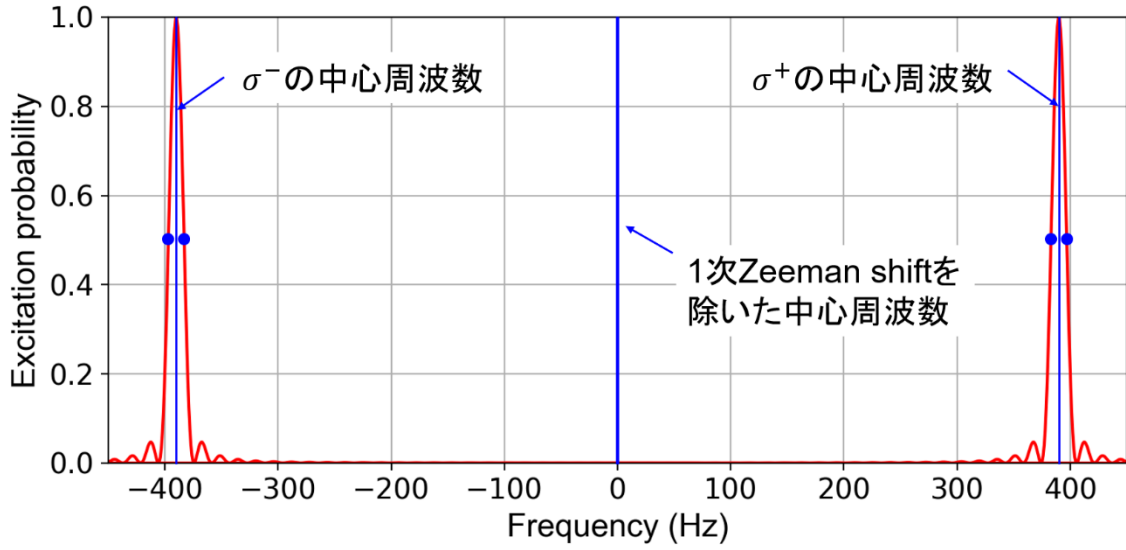


図 5.13 時計遷移への時計レーザーの周波数安定化の方法。横軸は 1 次 Zeeman shift をキャンセルした時の時計遷移の中心周波数からの差を表している。

$$\sigma_{\text{red}}(\delta) = \frac{1}{Z} \sum_{n_z=1}^{N_z} e^{-\frac{E_n}{k_B T_z}} \sigma_{\text{red}}^{n_z}(\delta) \quad (5.21)$$

$$\sigma_{\text{red}}^{n_z}(\delta) = \frac{\alpha_{\text{red}}^2}{\gamma_{\text{red}}(n_z)} \left(1 + \frac{\delta}{\gamma_{\text{red}}(n_z)}\right) e^{-\alpha \left(1 + \frac{\delta}{\gamma_{\text{red}}(n_z)}\right)} \Theta(\gamma_{\text{red}}(n_z) + \delta) \quad (5.22)$$

$$\gamma_{\text{red}}(n_z) = \nu_{\text{trap}} - \nu_{\text{rec}} n_z \quad (5.23)$$

$$\alpha_{\text{red}} = \frac{\gamma_{\text{red}}(n_z) h \nu_{\text{trap}}}{\nu_{\text{rec}} k_B T_r} \quad (5.24)$$

2 つのサイドバンドスペクトルは式(5.16)と(5.21)の重ね合わせで表すことが出来る。実験によって得られたサイドバンドスペクトルに式(5.16)～(5.24)を用いてフィッティングを行った結果を図 5.12 に示す。このフィッティングの結果から、 $\nu_{\text{trap}} = 39(5)$  kHz、 $T_r = 1.1(3)$   $\mu$ K、 $\langle n_z \rangle = 0.6(0.6)$ と求められた。

## 5.7 時計遷移への周波数安定化

時計レーザーを分光によって得られた時計遷移のスペクトルに周波数安定化させる。図 5.13 に周波数安定化の方法を示す。スピン偏極によって得られる狭線幅な $\sigma^+$ と $\sigma^-$ のスペクトルの両肩を分光し、励起率を測定する。スペクトルの右肩が周波数が大きく、左肩が周波数が小さい。得られた両肩の励起率からそれぞれのスペクトルの中心周波数を割り出す。さらに、2つのスペクトルの中心周波数の平均値を計算し、この値を時計遷移周波数として AOM にフィードバックを返す。このような方法を用いることによって、1 次 Zeeman シフトをキャンセルした周波数値を得ることが出来る。本研究では、

バイアス磁場による 2 つのスペクトルの間隔は約 780 Hz であった。分光の順番は、 $\sigma^+$  の右肩  $\rightarrow$   $\sigma^-$  の右肩  $\rightarrow$   $\sigma^+$  の左肩  $\rightarrow$   $\sigma^-$  の左肩とした。一連の 4 つの分光を行い時計レーザーにフィードバックされるまでにかかる時間は約 6.8 秒である。

## 第6章 Sr 光格子時計の系統不確かさ評価

本章では、 $^{87}\text{Sr}$  光格子時計の系統不確かさ評価について述べる。単純に光格子時計の絶対周波数や周波数比の値を測っただけでは不十分である。その理由は、原子は常に電場や磁場などからあらゆる摂動を受けていると考えられ、それらの摂動が時計遷移の周波数をシフトさせる系統的な要因となっているからである。すなわち、周波数計測によって得られた時計遷移の周波数は系統シフトを含んでいる。したがって、無摂動状態における周波数を計算するために系統シフトの大きさと不確かさを見積もる必要がある。

まず 6.1 節では系統不確かさの評価に使われる interleave 法について説明する。6.2 節以降では、本研究で評価した系統不確かさの要因である光格子による光シフト、黒体輻射シフト、衝突シフト、Zeeman シフト、DC Stark シフト、時計レーザーによる光シフト、サーボエラー、Line pulling、AOM チャープについて、評価方法と結果を述べる。最終的に、上記の系統不確かさ要因をすべて考慮したときの Sr 光格子時計の補正值と系統不確かさの相対値は  $558.2(10.7) \times 10^{-17}$  となった。この結果は、産総研のグループが 2014 年に報告した系統不確かさ [33] と比べて 3 分の 1 以下となった。本章の内容は原著論文として Metrologia にて発表した [78]。

### 6.1 interleave 法

Interleave 法とは、ある系統シフト要因を引き起こすパラメーターを 1 台の時計において 2 つの値の間で交互に切り替えながら行うことで、系統シフトがパラメーターによってどのように変化していくかを調べる方法である。Interleave 法によって得られた系統シフトのパラメーター依存性より、光格子時計の時計遷移や周波数比測定時における系統シフト量と不確かさを評価することができる。

具体的に説明するために、衝突シフトの場合を例として挙げる。図 6.1 に示すように、原子数を  $n_1$  と  $n_2$  ( $n_2 > n_1$ ) の間で交互に切り替えて測定を行う。2 つの原子数の場合の周波数シフトの差から、原子数  $n_1$  と  $n_2$  の差、すなわち原子数が  $n_2 - n_1$  のときに対応する衝突シフトの値が得られる。一連の測定を  $n_2 - n_1$  の値を変えて複数回行い、得られた結果をプロットしてフィッティングすることによって衝突シフトの原子数依存性を示す関数が得られる。得られた関数に実験時の原子数を代入することによって、衝突シフトの値と不確かさを見積もる。

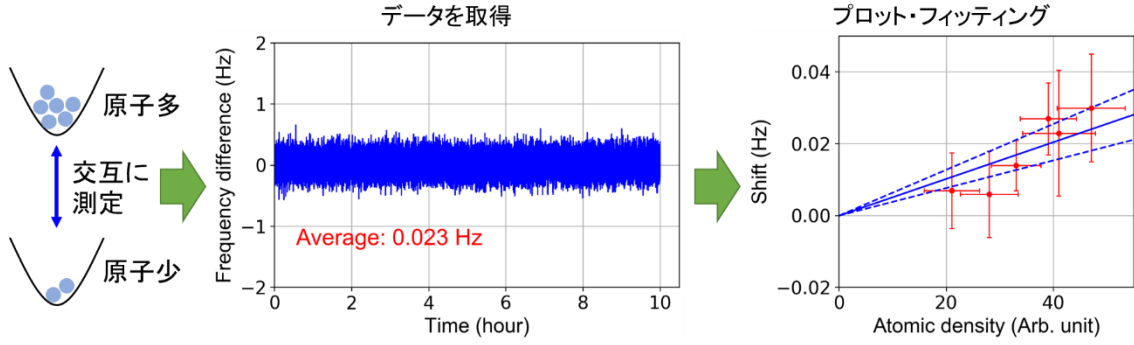


図 6.1 衝突シフトを例とした interleave 法の説明。データは実際の実験結果ではない。

## 6.2 光格子による光シフト

光格子による光シフトは、本研究における Sr 光格子時計の系統不確かさ要因において最も大きな不確かさを持っている。5.4.2 節では簡単のため電場の 2 乗に比例する項のみを示したが、本研究では光格子による光シフトをより正確に評価するために先行研究 [79] より次の式を用いた。

$$\begin{aligned}
 hv_{\text{LS}}(u, \delta_L, n_z) \approx & \left( \frac{\partial \tilde{\alpha}^{E1}}{\partial \nu} \delta_L - \tilde{\alpha}^{qm} \right) \left( n_z + \frac{1}{2} \right) u^{\frac{1}{2}} \\
 & - \left[ \frac{\partial \tilde{\alpha}^{E1}}{\partial \nu} \delta_L + \frac{3}{2} \tilde{\beta} \left( n_z^2 + n_z + \frac{1}{2} \right) \right] u + 2\tilde{\beta} \left( n_z + \frac{1}{2} \right) u^{\frac{3}{2}} - \tilde{\beta} u^2
 \end{aligned} \quad (6.1)$$

式(6.1)において、 $\tilde{\alpha}^{E1}$ は電気双極子 (E1) による分極率の上下準位の差、 $\tilde{\alpha}^{qm}$ は電気四重極子と磁気双極子 (E2-M1) による多重分極率の上下準位の差、 $\tilde{\beta}$ は超分極率の上下準位の差、 $\delta_L$ はE1魔法波長からの離調、 $n_z$ はトラップされた原子のz軸方向の振動状態、 $u$ は反跳エネルギー $E_R$ で割った光格子ポテンシャルの深さ ( $u = U/E_R$ ) である。図 6.2 に示すように、魔法波長から十分離れた周波数の光格子レーザーによって原子をトラップした場合は、E1分極率の項が支配的となる。一方、魔法波長近傍では多重分極率や超分極率の効果が無視できなくなる。本研究ではE1魔法波長を求めた後、光格子レーザーをE1魔法波長付近に周波数安定化して実験を行っているため、多重分極率や超分極率の効果を考慮すべきと判断した。

式(6.1)を $\delta_L$ に依存する項とそれ以外の項に分けて整理すると

$$\begin{aligned}
 hv_{\text{LS}}(u, \delta_L, n_z) \approx & \frac{\partial \tilde{\alpha}^{E1}}{\partial \nu} \left[ \left( n_z + \frac{1}{2} \right) u^{\frac{1}{2}} - u \right] \delta_L - \tilde{\alpha}^{qm} \left( n_z + \frac{1}{2} \right) u^{\frac{1}{2}} \\
 & - \frac{3}{2} \tilde{\beta} \left( n_z^2 + n_z + \frac{1}{2} \right) u + 2\tilde{\beta} \left( n_z + \frac{1}{2} \right) u^{\frac{3}{2}} - \tilde{\beta} u^2 \\
 = & A(\nu_L - \nu^{E1}) + B
 \end{aligned} \quad (6.2)$$

となる。ただし、 $A = \frac{\partial \tilde{\alpha}^{E1}}{\partial \nu} \left[ \left( n_z + \frac{1}{2} \right) u^{\frac{1}{2}} - u \right]$ 、 $B = -\tilde{\alpha}^{qm} \left( n_z + \frac{1}{2} \right) u^{\frac{1}{2}} - \frac{3}{2} \tilde{\beta} \left( n_z^2 + n_z + \frac{1}{2} \right) u + 2\tilde{\beta} \left( n_z + \frac{1}{2} \right) u^{\frac{3}{2}} - \tilde{\beta} u^2$ 、 $\delta_L = \nu_L - \nu^{E1}$ とおいた。 $\nu_L$ は光格子レーザーの周波数、 $\nu^{E1}$ はE1

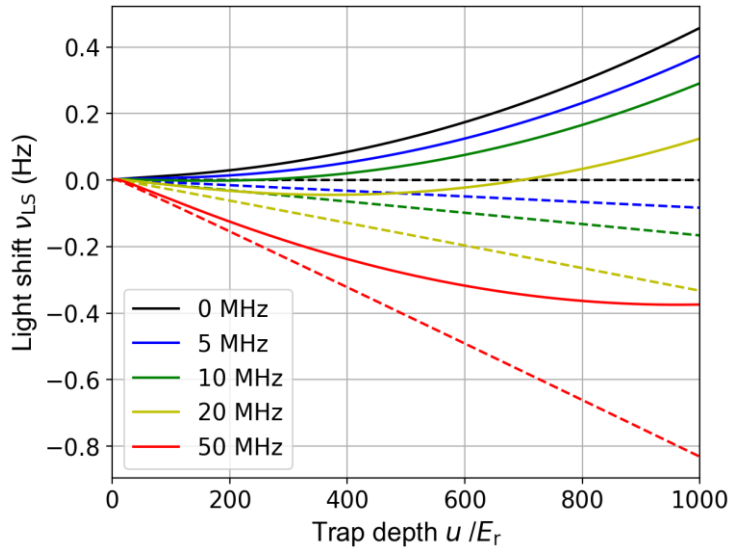


図 6.2 トラップ深さに対する光シフトの計算結果。実線は式(6.2)において多重極分極率と超分極率を含むすべての項を考慮した場合、点線はE1分極率の項のみを考慮した場合を表す。

魔法周波数である。式(6.2)の最後の式より、ポテンシャル深さが一定であれば光シフトは光格子レーザーの周波数の1次関数で表されるので、2つのポテンシャル深さ $u_1, u_2$ に対してinterleave法を行ったときの周波数差 $\nu_{LS}(u_2, \delta_L, n_z) - \nu_{LS}(u_1, \delta_L, n_z)$ の結果をプロットし、1次関数でフィッティングすることによりE1魔法波長を決定した。また、このフィッティングの結果からE1分極率による光シフトの値を求めた。次に、残りの多重極分極率と超分極率による項を考慮した光シフトを求め、E1分極率による光シフトと合算して合計の光シフトを計算した。

式(6.1)は光格子を形成するビームが一様な強度である平面波であるときの光シフトを表しているが、実際にはガウシアンビームを用いている。そのため実際の平面波の場合と比べてトラップ深さが浅くなる。このことを考慮したときのトラップ深さのj乗は、

$$\overline{u^j} = \int \rho(x, y) \left( \frac{\alpha^{E1} I_0 e^{-2(x^2+y^2)/w^2}}{E_R} \right)^j dx dy \equiv \zeta_j u^j \quad (6.3)$$

と表される。ここで、

$$\rho(x, y) = \frac{m(2\pi\nu_r)^2}{2\pi k_B T_r} e^{-\frac{1}{2}m(2\pi\nu_r)^2 \frac{x^2+y^2}{k_B T_r}} \quad (6.4)$$

$$\nu_r = \frac{v_z \lambda_L}{\sqrt{2\pi w}} \quad (6.5)$$

$$v_z = \frac{2\sqrt{\alpha^{E1} I_0 E_R}}{h} \quad (6.6)$$

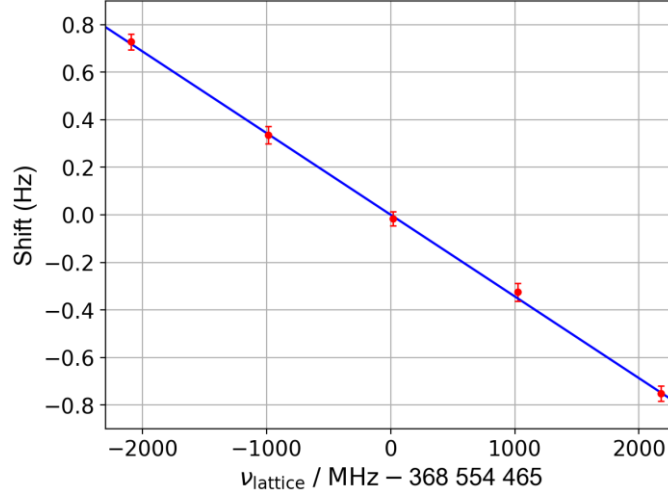


図 6.3 光格子による光シフトの interleave 法での評価の結果。縦軸は時計遷移の光シフトの値であり、横軸は光格子レーザーの周波数から 368 554 465 MHz を引いたものである。光シフトが 0 のときの光格子レーザーの周波数が魔法波長を表す。

である。 $\rho(x, y)$ は原子の熱分布、 $\nu_r$ と $\nu_z$ はそれぞれ動径方向と光軸方向の振動周波数（トラップ周波数）を表している。また、 $m$ は原子の質量、 $k_B$ は Boltzmann 定数、 $T_r$ は動径方向の温度、 $\lambda_L$ は光格子レーザーの波長、 $w$ はビーム半径、 $I_0$ はピーク強度、 $h$ は Planck 定数である。 $\zeta_j$ は強度減少因子と呼ばれ、

$$\zeta_j(u) \approx 1 - \frac{jk_B T_r}{u E_R} \quad (6.7)$$

と表される。強度減少因子は、光格子の強度が一様でないため、原子のトラップ温度を考慮して原子が実際に感じる光格子の強度に補正するために導入されたパラメーターである。本研究では式(6.1)によって光シフトを計算する際、式(6.3)と(6.7)によって強度減少因子を考慮したトラップ深さをを用いた。

Interleave 法はポテンシャル深さ $51E_R$ と $23E_R$ の間で行った。フィッティングの結果を図 6.3 に示す。ポテンシャル深さが $1E_R$ のときの直線の傾きは $(\partial\tilde{\alpha}^{E1}/\partial\nu)/h = -1.371(39) \times 10^{-10}$  (Hz/Hz)となった。光シフトが 0 になる直線上の点より、 $E1$ 魔法波長は 368 554 463(46) MHz であると求められた。実験時の光格子レーザーの周波数は 368 554 501 MHz、ポテンシャル深さは $46E_R$ であったことから、 $E1$ 分極率による光シフトは $-5.0(5.5) \times 10^{-17}$ となった。式(6.1)によって光シフトを計算する際に必要なパラメーターである $n_z$ の平均値は、5.6.3 節で示した時計遷移のサイドバンドスペクトルのフィッティングの結果より $\bar{n}_z \approx 0.6(0.6)$ と見積もられた。また、 $\tilde{\alpha}^{qm}$ と $\tilde{\beta}$ の値は参考文献 [79]より $\tilde{\alpha}^{qm}/h = -0.962(40)$  mHz、 $\tilde{\beta}/h = -0.461(14)$   $\mu$ Hzを用いて式(6.1)より高次の項も含めた光シフトを計算した結果、 $2.4(5.7) \times 10^{-17}$ となった。

### 6.3 黒体輻射シフト

物体はその温度に応じたスペクトルを持つ電磁波を放出する(黒体輻射)。そのため、原子は常に黒体輻射による Stark シフトを起こす。黒体輻射シフトは常温においては Sr 光格子時計の系統シフトの中で最も大きな値を持つ。光格子時計において黒体輻射が時計遷移に与える影響を考える際は、現状の不確かさでは電気双極子遷移の寄与のみを考えれば十分であり、磁気双極子遷移の寄与は無視できる [80]。常温である 300 K における黒体輻射のスペクトルは赤外からマイクロ波の領域にわたっており、光の周波数に比べて十分周波数が小さいため基本的に静電場とみなすことができる。ここで、黒体輻射の電場の 2 乗の平均  $\langle E^2 \rangle$  は温度  $T$  の 4 乗に比例する。したがって、原子が受ける黒体輻射シフトも  $T^4$  に比例する。しかし、Sr 原子の  $^3P_0 - ^3D_1$  遷移の波長が 2.6  $\mu\text{m}$  であることから、完全に静電場であるとはみなせない。以上のことを踏まえて黒体輻射シフトを式で表すと、

$$\Delta\nu_{\text{BBR}} = -\frac{1}{2}\alpha_{\text{stat}}\langle E^2 \rangle(1 + \eta) \quad (6.8)$$

と書ける [81]。  $\alpha_{\text{stat}}$  は静電場における分極率である。  $\eta$  は振動電場を考慮した場合の補正項であり、温度の  $2^n$  ( $n \geq 1$ ) 乗に比例する [80]。本研究では  $\eta$  の最低次の項のみを考慮、すなわち式(6.8)全体において  $T^6$  までの項を考慮した。

黒体輻射シフトの不確かさを低減させる方法は、大きく分けて 2 通りの方法が報告されている。1 つは真空チェンバーの温度を精密に計測・制御する方法である [12,25]。この方法では温度を出来るだけ細かく測定することや、真空チェンバーの温度を制御して極力温度分布が一様になるようにすること、あるいは黒体輻射シールドをチェンバー内に設置しその内部で分光することで不確かさを低減する。もう 1 つは真空チェンバー内部を低温にする方法である [11]。先述した通り、黒体輻射シフトの大きさは温度の 4 乗に比例するので、分光する環境の温度を下げれば劇的に黒体輻射シフトの不確かさを低減することができる。本研究では 1 つ目の方法を用いた。

本研究における黒体輻射の影響は、トラップされた原子の周囲の真空チェンバーからの寄与を想定した。なお、本研究で用いた装置では分光時は原子オープンの前に設置されたメカシャッターを閉じているため、原子オープンからの寄与は無視している。温度測定には白金抵抗温度計 Pt1000 (RS PRO 814-0178) を用いた。今回用いた Pt1000 の規格は 1/3DIN で、温度の不確かさは 20°C において 0.1°C である。電気抵抗の測定方法は 4 端子法を用いた。図 6.4 に示す計 8 個の地点に Pt1000 を設置し、リアルタイムに温度を測定した。黒体輻射シフトの計算には、先行研究 [15] より以下の式を用いた。

$$\Delta\nu_{\text{BBR}}(T) = \nu_{\text{stat}}\left(\frac{T}{T_0}\right)^4 + \nu_{\text{dyn}}\left(\frac{T}{T_0}\right)^6 \quad (6.9)$$

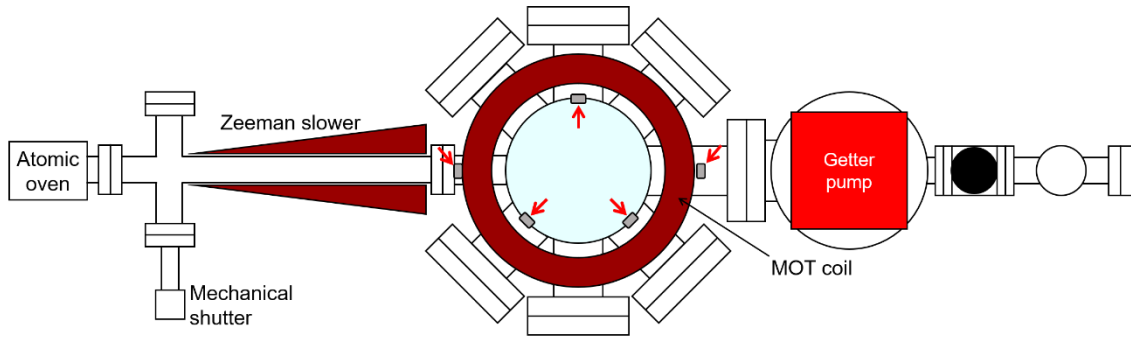


図 6.4 真空チェンバーに取り付けられた白金抵抗温度計 Pt1000 の位置。図中の矢印で示した位置に加えて、紙面方向に対になっている真ん中のウインドウの反対側にも 3 つの Pt1000 が取り付けられている。

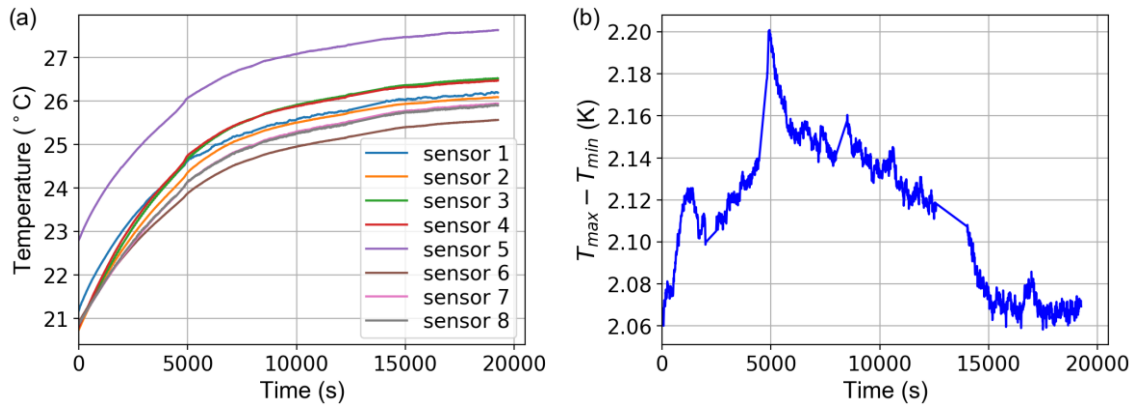


図 6.5 (a) 典型的な真空チェンバーの温度の時間変化。光格子時計が止まっている時間はデータを削除してある。(b) (a)のデータに対応する真空チェンバーの温度の最大点と最小点の差の時間変化。

ただし、 $\nu_{\text{stat}} = -2.13023(6) \text{ Hz}$  [82]、 $\nu_{\text{dyn}} = -0.1487(7) \text{ Hz}$  [12]、 $T_0 = 300 \text{ K}$ とした。ここで、各時刻の温度に対する黒体輻射シフトを計算してから、その平均を取って比の平均値に補正を加えることは、各時刻における比の値にそれぞれ各時刻の温度に対する黒体輻射シフトの補正を加えてから、その平均値を取ることと等価であるため、前者の方法で計算を行った。式(6.9)に基づいて黒体輻射シフトを計算する際には、測定した温度データのうち光格子時計が稼働している時刻のデータのみを取り出した。図 6.5 に真空チェンバー周辺 8 点の温度の時間変化を示す。グラフが直線的に変化しているところは光格子時計が止まっている時間であり、解析には用いないデータのため削除した部分である。黒体輻射シフトの計算に用いる温度の実効値は、各時刻において 8 点のうち最大値と最小値の平均  $T_{\text{ave}}(\tau) = (T_{\text{max}}(\tau) + T_{\text{min}}(\tau))/2$  を採用した。温度の不確かさは真空チェンバーの温度が一様分布であると仮定し、参考文献 [83] に基づいて 8 点の最大値と最小値の差を取って  $\sqrt{12}$  で割ったもの、すなわち  $\Delta T_{\text{ave}}(\tau) = (T_{\text{max}}(\tau) - T_{\text{min}}(\tau))/\sqrt{12}$  を採用した。最終的な黒体輻射シフトの不確かさは、全 6 日間の測定データの黒体輻射



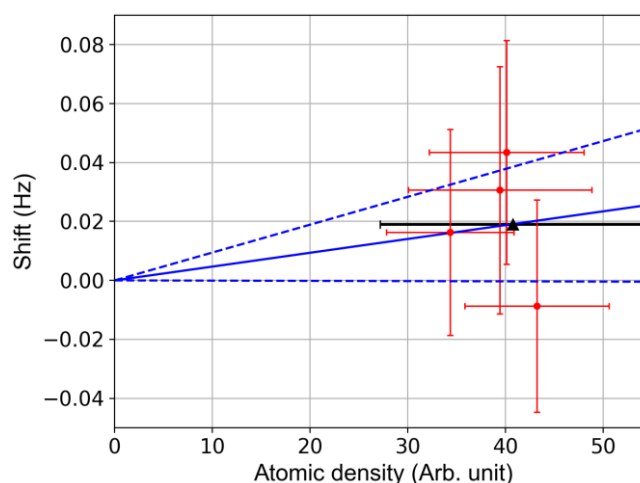


図 6.6 interleave 法により評価した原子数密度と衝突シフトの関係。赤丸は interleave 法による結果を示している。黒三角は周波数比計測を行った際の原子数密度の平均値に対応する衝突シフトを示している。青実線と青点線はそれぞれ赤丸を直線フィッティングして得られた原子数密度と衝突シフトの関係とその不確かさである。

シフトの不確かさの最大値を採用した。その結果、黒体輻射シフトとその不確かさは  $519.2(5.1) \times 10^{-17}$  となった。

#### 6.4 衝突シフト

光格子ポテンシャルの同一サイト内に複数個の原子がトラップされると、原子間の衝突による周波数シフトが生じる。衝突シフトは光格子中の原子数密度に比例する。フェルミオンの原子をスピン偏極すると、パウリの排他律より  $s$  波散乱が抑えられ、衝突シフトを低減することができる。しかし、実際には残留的な衝突シフトが存在する。その理由は主に次の 2 つが考えられる。1 つは原子が一様に励起されないことである。ビームの強度分布が一様でないことから、ビーム径に応じて光格子にトラップされている原子が不均一に励起される。このとき、個々の原子が受ける時計レーザーの強度が異なることにより時計遷移のラビ周波数が原子によって違ってくる。その結果、原子ごとに内部状態が異なり、同一粒子とはみなせなくなるため  $s$  波散乱が起こる [84]。もう 1 つは、スピン偏極を行っても  $p$  波散乱は抑制できないことである。フェルミオンの場合、軌道角運動量  $l$  が偶数（例えば  $l = 0$  の  $s$  波散乱）のときは対称性を考慮すると散乱断面積が 0 になるため  $s$  波散乱は起こらなくなるが、 $l$  が奇数（例えば  $l = 0$  の  $p$  波散乱）のときは散乱断面積が有限の値を取る。しかし、本研究で用いた Sr 原子の場合は  $75 \mu\text{K}$  以下の場合には遠心力バリアを越えられないため、 $p$  波散乱は起こらない [85]。したがって、本研究では前者の理由で存在すると考えられる衝突シフトを評価した。

図 6.6 に interleave 法により評価した衝突シフトを示す。Interleave 法を行う際は、blue MOT の光の強度を変えることによって光格子にトラップされる原子数を変えた。実際の原子数を正確に測ることは困難であるため、図の横軸は EMCCD カメラによって得られた 1st パルスと 2nd パルスの蛍光の値の和を用いている。図中の赤丸は interleave 法を行った際の 2 つの原子数  $N_1, N_2$  の差  $\Delta N = N_2 - N_1$  に対応する周波数シフトの値をプロットしたものである。周波数比計測時の原子数の不確かさは、原子数の標準偏差ではなく、1st パルスと 2nd パルスにおいて原子をイメージングした際の蛍光量のゆらぎを考慮して見積もった。その理由は、衝突シフトも黒体輻射シフトの場合と同様に各時刻のデータに対して補正していることと同値であるため、各時刻における原子数が正確に分かれれば不確かさは 0 になる。しかし、実際にはイメージング光の強度が一定ではなく、なおかつ飽和強度を下回っているため、EMCCD カメラで見えている蛍光と実際の原子数の間の関係が変化してしまうからである。具体的には、イメージング光の強度が最大値の 1/2 まで変化すると仮定して不確かさを見積もった。この計算により、衝突シフトの値とその不確かさは  $4.5(4.8) \times 10^{-17}$  と求まった。

## 6.5 Zeeman シフト

磁場中にある原子は超微細構造が分裂し、磁場の大きさに応じた周波数シフトが起こる。 $^{87}\text{Sr}$  原子の場合は核スピン  $I = 9/2$  であり、磁気量子数は  $m_F = \pm 9/2, \pm 7/2, \pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2$  の 10 個が存在する。時計遷移に時計レーザーを周波数安定化する際には、原子に磁場をかけてスピン偏極させることで  $m_F = \pm 9/2$  の 2 つの準位を交互に分光し、平均値を取ることによって 1 次 Zeeman シフトを打ち消している。しかし、2 次 Zeeman シフトは  $m_F = \pm 9/2$  のいずれの状態に対しても同じ方向に周波数シフトを与えるため、この方法によって打ち消すことが出来ない。したがって、シフト量を別途評価する必要がある。

原子が受けている磁場の大きさは 1 次 Zeeman シフトの分裂の大きさ  $\Delta\nu_B^{(1)}$  から求めることができる。 $\Delta\nu_B^{(1)}$  と磁場の大きさ  $B$  の関係は

$$\Delta\nu_B^{(1)} = -2\delta g m_F \mu_0 B \quad (6.10)$$

で与えられる。ここで、 $\delta g$  は上準位と下準位の  $g$  因子差、 $\mu_0 = \mu_B/h$  ( $\mu_B$  はボーア磁子) である。式(6.10)中の  $\delta g \mu_0$  の値は先行研究 [86] の中で実験的に  $\delta g \mu_0 = -108.4(4)$  Hz と求められている。我々の実験では  $\Delta\nu_B^{(1)} \sim 780$  Hz であるため、式(6.10)より磁場の大きさは  $B \sim 160$   $\mu\text{T}$  と求められる。物理的にはこの磁場の値から 2 次 Zeeman シフトの値を求める方が自然であるが、この場合途中に 1 次 Zeeman シフトの値から磁場の大きさの値への変換を挟むことで不確かさが大きくなってしまふ。一方、先行研究 [15] において

$\Delta\nu_B^{(1)}$ と2次 Zeeman シフトの大きさ $\Delta\nu_B^{(2)}$ の関係が小さな不確かさで求められている。したがって、本研究では $B$ を介さず $\Delta\nu_B^{(1)}$ から直接 $\Delta\nu_B^{(2)}$ を求めた。具体的には、

$$\Delta\nu_B^{(2)} = \xi \left( \Delta\nu_B^{(1)} \right)^2 \quad (6.11)$$

と表される。ここで、 $\xi = -2.456(3) \times 10^{-7}$ である。式(6.11)を用いると、本研究における2次 Zeeman シフトは $35.2 \times 10^{-17}$ と求められた。また、不確かさは $\xi$ の不確かさで制限され、そのオーダーは $10^{-19}$ 台であった。

## 6.6 DC Stark シフト

真空中に置かれたミラーや真空チェンバーのウインドウなどの誘電体に電荷が蓄積し、DC 電場による Stark 効果によって真空中にトラップされている原子が周波数シフトを起こすことが先行研究 [87]によって報告されている。先行研究 [87]によると電荷の蓄積した誘電体に紫外光を照射することにより電荷を除去できることが報告されている。本研究では真空中にはミラーを設置しておらず、真空チェンバーのウインドウとトラップされた原子の距離が約 85 mm である。この条件の下で周波数比の測定後に DC Stark シフトの不確かさを評価した。

まず、真空チェンバーのウインドウに蓄積した電荷によるウインドウの電位を調べた。電位の測定には静電気測定器 (KEYENCE SK-050) を用いた。その結果、ウインドウの電位は 30 V 以下であることが分かった。なお、SK-050 の電位の測定精度は高精度モードの場合 $\pm 10$  Vである。次に、測定された電位をもとに原子の位置の電場を有限要素法による電場解析で求めると 48 V/m となった。このとき、DC Stark シフトは $1.7 \times 10^{-17}$ となる。本研究では実験中に常に電場を測定していたわけではないため、実験中に $\pm 30$  Vの変化があると仮定してシフト量は 0 とし、不確かさを $1.7 \times 10^{-17}$ とした。

## 6.7 時計レーザーによる光シフト

分光の際に原子に照射する時計レーザーによっても光シフトが引き起こされる。光シフトの大きさはレーザーの強度に比例する一方で、時計遷移の Rabi 分光の際に照射する時計レーザーの強度 $I$ は Rabi 周波数 $\Omega$ に依存する。原子に $\pi$ パルス照射する場合、 $\Omega t = \pi$ よりパルス時間 $t$ が決まれば $\Omega$ が決まる。すなわち、パルス時間 $t$ から時計レーザーによる光シフトの大きさを決定することができる。式で表すと

$$\Delta\nu_{\text{probe}} \propto I = I_{\text{sat}} \frac{2\Omega^2}{\Gamma^2} = I_{\text{sat}} \frac{2\pi^2}{\Gamma^2 t^2} \quad (6.12)$$

と書ける。 $I_{\text{sat}}$ は飽和強度、 $\Gamma$ は原子の寿命の逆数すなわち線幅である。しかし、時計遷移は非常に狭線幅であり $\Gamma$ は正確に決定されていない。したがって、本研究では式(6.12)

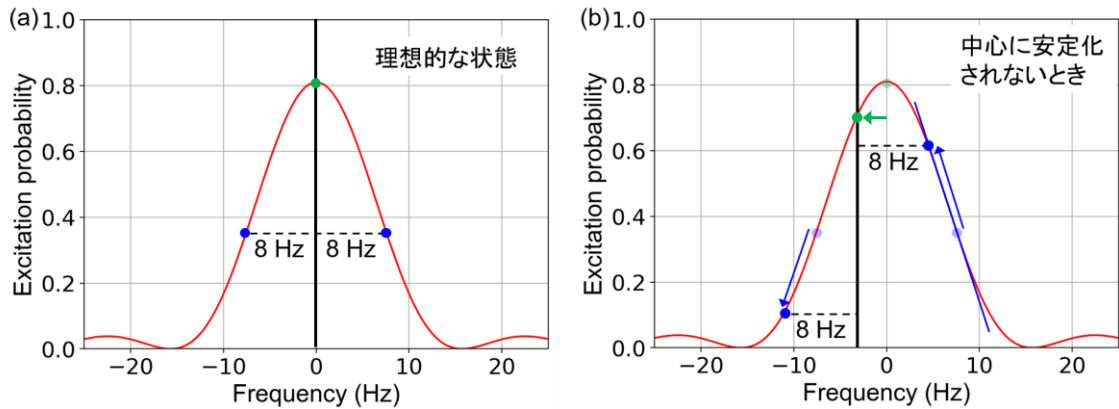


図6.7 サーボエラーの説明。(a)は時計遷移スペクトルの中心に時計レーザーが安定化され、サーボエラーが0となるような理想的な状態。本研究では中心から両側に8 Hz離れたスペクトルの肩を分光している。実際には(b)のようにスペクトルの中心からずれた値に安定化される。中心からのずれは励起率の差として検出することができ、このデータをもとに補正を行う。

に値を代入して $I$ を求めるのではなく、式(6.12)より $\Delta v_{\text{probe}}$ が $t^2$ に反比例することを用いて、先行研究 [12]の条件と結果から $\Delta v_{\text{probe}}$ の値を計算した。先行研究 [12]では $t = 1 \text{ s}$ のとき $\Delta v_{\text{probe}} = -3.2(1.7) \times 10^{-20}$ であり、本研究では $t = 40 \text{ ms}$ で実験を行ったことから、時計レーザーによる光シフトは $2.0(1.1) \times 10^{-17}$ であった。

## 6.8 サーボエラー

時計遷移に時計レーザーを周波数安定化する際、スペクトルの両肩を分光し、それらの中心周波数を割り出すことによってスペクトルの中心に安定化している。その際、図6.7のようにスペクトルの左右で励起率が異なると本来の中心からずれた周波数に安定化されることになり、系統的な周波数シフトの要因となる。サーボエラーが起こる原因は時計レーザーの安定度が良くないことや、フィードバックの大きさが適当でないことなどが挙げられる。

サーボエラーの大きさは時計遷移の励起率を用いて計算した。励起率の平均値と Rabi 分光のパルス時間から、パルスをフーリエ変換して得られる sinc 関数の形状を決定した。そして励起率の平均値付近の sinc 関数の傾きを求め、その傾きの値を係数として励起率の差の平均値と掛け合わせることで近似的にシフト量を求めた。この値は右肩と左肩の両方のシフトを反映しているため、中心周波数のシフト量を求める際には2で割ることでサーボエラーの値を計算した。励起率を $\kappa$ とすると傾きの値は $20.01 \text{ Hz}/\kappa$

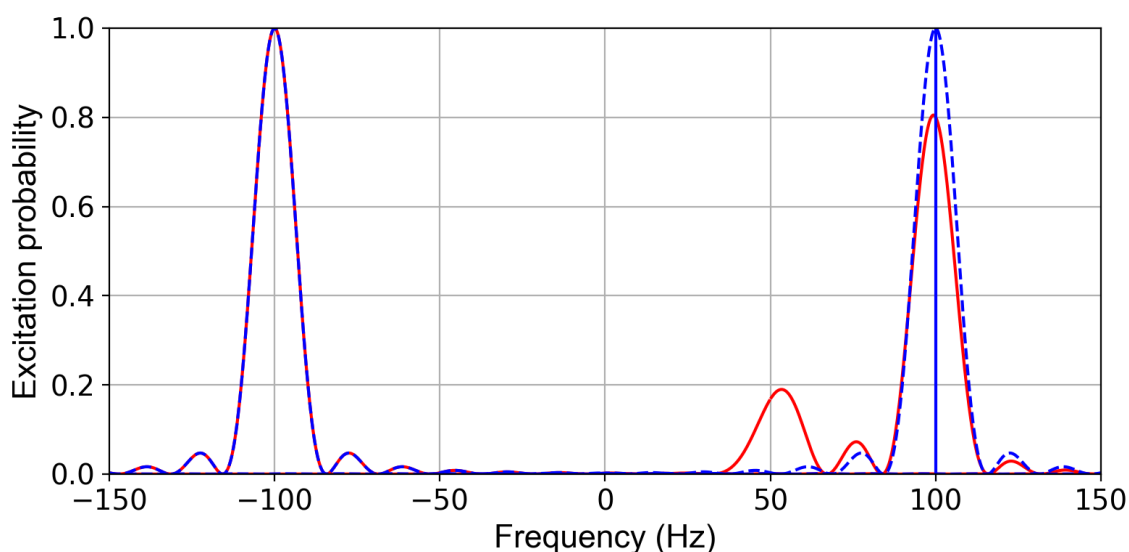


図 6.8 line pulling の説明。例として、 $\pm 100$  MHz を中心周波数とするスペクトル（青破線）を分光したいが、 $+100$  MHz 以外に  $+50$  MHz を中心周波数とするスペクトルが存在したとする（赤実線）。このとき、2 つの sinc 関数で表されるスペクトルの重ね合わせは互いに中心周波数から引き合うようになり、本来  $+100$  MHz であったはずのスペクトルがわずかにシフトしていることが分かる。

であった。この値を用いるとサーボエラーによる周波数シフトは  $3.9(4.8) \times 10^{-17}$  と求められた。

## 6.9 Line pulling

時計遷移を分光する際にはスピン偏極を行って  $m_F = \pm 9/2$  間の  $\pi$  遷移を分光している。しかしスピン偏極が不十分な場合、図 6.8 のように  $m_F = \pm 7/2$  などの状態にある原子が存在し、分光して得られた周波数が  $m_F = \pm 9/2$  以外の周波数に引っ張られることがある。この効果が  $m_F = \pm 9/2$  の両方に対して等しく起これば周波数シフトは 0 になるが、実際には等しくないため不確かさの要因となる。

Line pulling による不確かさは次のように見積もった。まず、保守的に見積もって  $m_F = +9/2$  の励起率が 0.85、 $m_F = +7/2$  の励起率が 0.15 であり、 $m_F = -9/2$  の励起率が 1 だとする。また、 $m_F = +9/2$  と  $m_F = +7/2$  の分裂の間隔は  $780/9 \cong 87$  Hz であるとした。このとき  $m_F = +9/2$  と  $m_F = +7/2$  のスペクトルを重ね合わせると、 $m_F = +9/2$  だけのときに比べて  $m_F = +9/2$  のスペクトルの中心がシフトする。この周波数シフトの値を不確かさとする、Line pulling による不確かさは  $2 \times 10^{-17}$  と見積もられた。

## 6.10 AOM チャープ

時計遷移の分光や時計レーザーの時計遷移への周波数安定化は、AOM を用いて周波数シフトすることによって実現している。AOM は音響光学素子に超音波を加えて屈折率を周期的に変化させることによって回折格子を形成し、回折光の周波数を変化させる。このとき音響光学素子に温度変化が加わると、屈折率が変化し周波数チャープが発生する。従来、我々のグループにおける光格子時計の実験では、時計レーザーをスイッチングする際に AOM に加える RF 信号をオンオフしていた。しかし、この場合 RF 信号のエネルギーによる熱もオンオフされることになり、音響光学素子の温度変化が生じ、結果的に無視できない大きさの周波数チャープが発生した。

本研究では AOM に加える RF 信号をオンオフするのではなく、時計遷移の分光の瞬間だけ共鳴周波数に設定し、それ以外のときは約 30 kHz 離調を取ることで温度変化の効果を回避して時計レーザーのスイッチングを可能にした。その際、外付けの RF スイッチを用いると RF 信号の位相がスイッチングの瞬間に途切れるため、外部からのトリガーで位相をつなげたまま周波数のスイッチングが出来るファンクションジェネレーター (NF 回路設計ブロック WF1968) を用いた。不確かさの見積もりは、先行研究 [52]において同様の方法を採用しており、その論文中の不確かさである  $1 \times 10^{-17}$  を本研究における不確かさとした。

## 第7章 Yb/Sr 時計遷移周波数比の計測

本章では Yb 光格子時計と Sr 光格子時計の時計遷移周波数比計測について述べる。まず、7.1 節では 4.4.3 節で説明した時計レーザーの系から周波数比を計算する方法について説明する。7.2 節では Sr・Yb 光格子時計のエラーバジェットと、時計遷移周波数比に補正を加える際の計算方法について説明する。7.3 節では周波数比計測の際に周波数安定度の制限を与える量子射影ノイズと Dick 効果について説明し、Dick 効果を取り除く方法を紹介する。7.4 節では本研究での周波数比計測の結果を示し、過去に報告された周波数比の値と比較する。本章の内容は原著論文として *Metrologia* にて発表した [78]。

### 7.1 Yb/Sr 時計遷移周波数比の計算

時計遷移周波数比は、Sr・Yb それぞれの時計遷移の絶対周波数を測定して比を取ることによって求めるのではなく、時計レーザーを周波数安定化している光周波数コムのパラメーターと時計レーザーの系に組み込まれている AOM の周波数から直接計算することが出来る [34]。したがって、マイクロ波を介さないため短時間で統計不確かさの小さな測定が可能である。

まず、光周波数コムのパラメーターと AOM の周波数から周波数比を計算する式を求める。光周波数コムの  $n$  番目のモードの周波数  $\nu_n$  は

$$\nu_n = n f_{\text{rep}} + f_{\text{CEO}} \quad (7.1)$$

と表される。 $f_{\text{rep}}$  は繰り返し周波数、 $f_{\text{CEO}}$  はキャリアエンベロープオフセット周波数である。ここで、Sr・Yb 光格子時計の時計レーザーの波長はそれぞれ 698 nm と 578 nm である。3.4 節で述べたように 1000 nm 以下の波長は本研究で用いている Er ファイバーコムで直接広帯域化することは難しいため、光周波数コムを PPLN によって 2 次高調波発生させた。2 次高調波の光周波数コムの  $n$  番目のモードにオフセットロックされたレーザーの周波数は次の式で表される。

$$\nu_{\text{laser}} = n f_{\text{rep}} + 2 f_{\text{CEO}} + f_{\text{beat}} \quad (7.2)$$

$f_{\text{beat}}$  は  $n$  番目のモードと CW レーザーのビート周波数である。また、2 次高調波の光周波数コムを考えているため  $f_{\text{CEO}}$  が 2 倍になっていることに注意する。時計レーザーの系には時計遷移の分光やファイバーノイズキャンセル、Doppler キャンセルのために AOM が挿入されており、周波数シフトが行われている。AOM の周波数  $f_{\text{AOM}}$  も含めた、原子に実際に照射している Sr・Yb 時計レーザーの周波数は

$$\nu_{\text{Sr}} = n_{\text{Sr}} f_{\text{rep}} + 2 f_{\text{CEO}} + f_{\text{beat}}^{\text{Sr}} + f_{\text{AOM}}^{\text{Sr}} \quad (7.3)$$

$$\nu_{\text{Yb}} = n_{\text{Yb}} f_{\text{rep}} + 2f_{\text{CEO}} + f_{\text{beat}}^{\text{Yb}} + f_{\text{AOM}}^{\text{Yb}} \quad (7.4)$$

と表される。式(7.3)より

$$f_{\text{rep}} = \frac{\nu_{\text{Sr}} - 2f_{\text{CEO}} - f_{\text{beat}}^{\text{Sr}} - f_{\text{AOM}}^{\text{Sr}}}{n_{\text{Sr}}} \quad (7.5)$$

と変形できるので、これを式(7.4)に代入して両辺を $\nu_{\text{Sr}}$ で割ると

$$\frac{\nu_{\text{Yb}}}{\nu_{\text{Sr}}} = r + \frac{2(1-r)f_{\text{CEO}} + f_{\text{beat}}^{\text{Yb}} + f_{\text{AOM}}^{\text{Yb}} - r(f_{\text{beat}}^{\text{Sr}} + f_{\text{AOM}}^{\text{Sr}})}{\nu_{\text{Sr}}} \quad (7.6)$$

となる。ただし、 $r = \frac{n_{\text{Yb}}}{n_{\text{Sr}}}$ とおいた。式(7.6)において $n_{\text{Sr}}$ と $n_{\text{Yb}}$ は整数であり厳密に決定されることから、 $r$ は正確に求めることが出来る。また、第 2 項は RF の周波数を光の周波数で割っているため、比の値を求める際には第 1 項が支配的となり、第 2 項の分子はおよそ 9 桁の精度があれば $10^{-15}$ の不確かさを達成できる。この点で、直接絶対周波数の比を取って計算するよりも式(7.6)の計算で周波数比を求めることは便利である。 $\nu_{\text{Sr}}$ には CIPM の勧告値を代入した。

時計遷移周波数比の計算に關与する Sr 光格子時計の AOM は図 4.8 と図 4.17 に示した①～③の AOM であり、 $f_{\text{AOM}}^{\text{Sr}} = f_{\text{AOM1}}^{\text{Sr}} + f_{\text{AOM2}}^{\text{Sr}} + f_{\text{AOM3}}^{\text{Sr}}$ と書ける。それぞれの周波数は $f_{\text{AOM1}}^{\text{Sr}} = -120$  MHz、 $f_{\text{AOM2}}^{\text{Sr}} \sim +81$  MHz、 $f_{\text{AOM3}}^{\text{Sr}} = +86$  MHzである。ただし、AOM②は Sr 時計遷移の分光に用いる AOM であり、周波数は時計遷移の共鳴周波数に合わせるように ULE 共振器のドリフトに合わせて変化することと、ダブルパスになっているので時計レーザーの周波数シフト量は AOM に印加している RF 周波数の 2 倍となることに注意しておく。また、オフセットロックのビート周波数は $f_{\text{beat}}^{\text{Sr}} = -30$  MHzである。光周波数コムモード番号は波長計によって測定された周波数を式(7.3)に代入することによって計算し、 $n_{\text{Sr}} = 3\,475\,562$ と決定した。

Yb 光格子時計の時計レーザーの系を図 7.1 に示す。時計レーザーは波長 1156 nm の ECDL からの光を基本波として、WG-PPLN で 2 次高調波発生させて波長 578 nm の光に変換している。578 nm の光は位相同期用のダブルパス AOM を経て PBS で 2 つに分けられる。PBS を反射するパスはさらにもう 1 つの PBS で 2 つに分けられ、透過光は周波数計測のための K コムとの干渉計に送られる。反射光は狭線幅コムとのビート検出と位相同期に使われる。一方、前の PBS の透過光は分光用の AOM を経て真空チェンバーに送られる。ファイバーカップルの手前のファイバーノイズキャンセルの系は現在は使われていない。

Yb 光格子時計の系において時計遷移周波数比の計算に關与する AOM は、シングルパスの分光用 AOM のみで、 $f_{\text{AOM}}^{\text{Yb}} \sim -200$  MHzある。また、狭線幅コムへのオフセットロックのビート周波数は $f_{\text{beat}}^{\text{Yb}} = 30$  MHzである。光周波数コムモード番号は Sr の場合と同様に $n_{\text{Yb}} = 4\,196\,768$ と決定した。



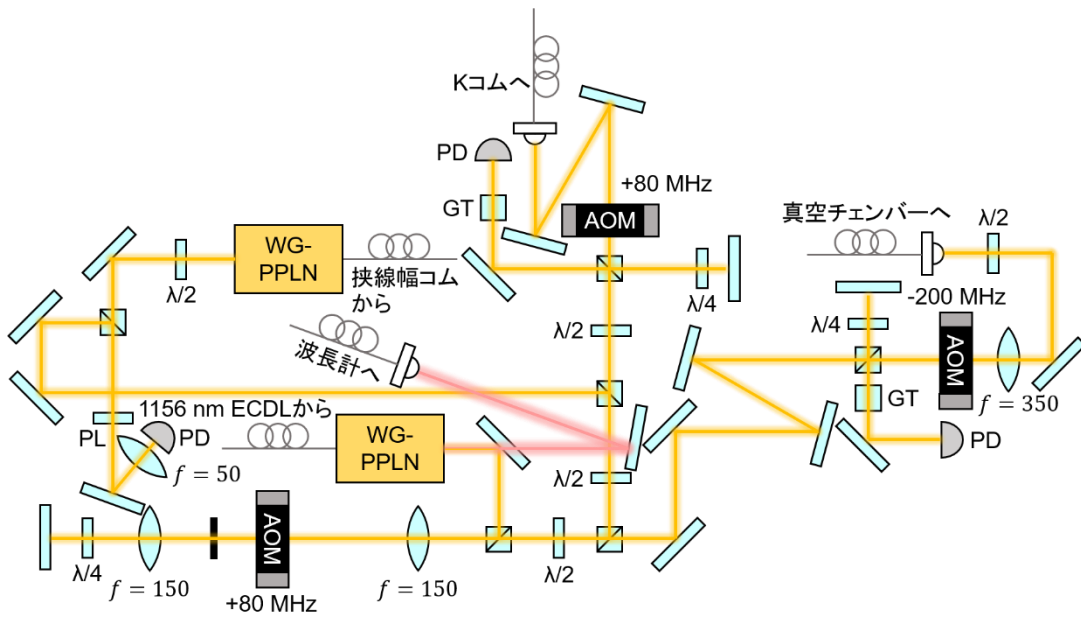


図 7.1 Yb 時計レーザーの系。WG-PPLN：導波路型 PPLN、 $\lambda/2$ ：1/2 波長板、 $\lambda/4$ ：1/4 波長板、PL：偏光子、PD：光検出器、GT：グラントムソンプリズム、AOM：音響光学変調器。

## 7.2 Sr・Yb 光格子時計のエラーバジェットと比の補正値の計算

本研究において Sr 光格子時計の比較対象である Yb 光格子時計の系統不確かさを含めたエラーバジェットを表 7.1 に示す。Yb 光格子時計の系統不確かさの値は我々のグループの文献 [52] に記載されている値を基にしているため、不確かさ評価についての詳細は省略する。ただし、光格子による光シフト、黒体輻射シフト、衝突シフト、2 次 Zeeman シフト、時計レーザーによる光シフト、サーボエラーは再評価を行ったため文献 [52] に記載されている値と異なる。表 7.1 から、本研究における周波数比の系統不確かさは Yb 光格子時計の系統不確かさによって制限されていることが分かる。

Sr・Yb 双方の補正値を考慮して算出される周波数比  $R$  は次のように表すことができる。

$$R = \frac{\nu_{Yb} + \Delta\nu_{Yb}}{\nu_{Sr} + \Delta\nu_{Sr}} \quad (7.7)$$

ここで、式(7.7)は、

$$R \approx \frac{\nu_{Yb}}{\nu_{Sr}} \left(1 + \frac{\Delta\nu_{Yb}}{\nu_{Yb}}\right) \left(1 - \frac{\Delta\nu_{Sr}}{\nu_{Sr}}\right) \approx \frac{\nu_{Yb}}{\nu_{Sr}} \left(1 + \frac{\Delta\nu_{Yb}}{\nu_{Yb}} - \frac{\Delta\nu_{Sr}}{\nu_{Sr}}\right) \quad (7.8)$$

と近似できる。ただし、補正値の 2 乗以上の項は十分小さいとして無視した。式(7.8)から、エラーバジェットの補正値を式(7.6)で求めた比の値に加えることによって補正さ

表 7.1 Sr 光格子時計と Yb 光格子時計のエラーバジェット。

系統シフトの効果	<sup>87</sup> Sr 光格子時計		<sup>171</sup> Yb 光格子時計	
	補正值 ( $\times 10^{-17}$ )	不確かさ	補正值 ( $\times 10^{-17}$ )	不確かさ
光格子による光シフト	2.4	5.7	-3.4	33.1
黒体輻射シフト	519.2	5.1	263.8	20.8
衝突シフト	-4.5	4.8	3.8	3.7
2 次 Zeeman シフト	35.2	< 0.1	5.2	0.3
DC Stark シフト	0	1.7	0	< 0.1
時計レーザーによる光シフト	2.0	1.1	-0.4	0.2
サーボエラー	3.9	4.8	1.9	4.6
Line pulling	0	2	0	1
AOM チャープ	0	1	0	1
<b>合計</b>	<b>558.2</b>	<b>10.7</b>	<b>270.9</b>	<b>39.5</b>

れた時計遷移周波数比を計算できることが分かる。式(7.8)に表 7.1 の結果を代入して計算すると、それぞれの光格子時計に由来する Yb/Sr 時計遷移周波数比の系統シフトと不確かさは  $-287.3(40.9) \times 10^{-17}$  となった。周波数比計測の系統不確かさは、主に Yb 光格子時計で制限される不確かさとなった。

### 7.3 時計遷移周波数比計測の安定度

周波数比計測の安定度に最も根本的な制限を与えるものは量子射影ノイズ (QPN) である [88]。QPN は周波数基準となる原子あるいはイオンの個数に依存することから、単一イオン光時計よりも光格子時計の方が QPN が小さくなり、短時間で高い周波数安定度を達成することが出来る。しかし、Dick 効果と呼ばれる、周波数比計測をもっと悪い安定度で制限する効果が存在する。本節では QPN と Dick 効果について説明し、さらに Dick 効果を取り除くための同期測定の詳細と実際の周波数比計測の結果について述べる。

#### 7.3.1 量子射影ノイズ

量子射影ノイズとは、2つの固有状態の確率が有限であるとき、原子がどちらの状態をとっているかの分布の揺らぎによって生じるノイズである。QPN によって周波数安定度が制限されるため、高い安定度の周波数標準を実現することを目指した場合に考慮

する必要がある。周波数比計測における Allan 標準偏差の QPN の寄与はそれぞれの光格子時計に対する QPN の寄与の 2 乗和の平方根で表される。

$$\sigma_y(\tau) = \sqrt{\sigma_{\text{Sr}}^2(\tau) + \sigma_{\text{Yb}}^2(\tau)} \quad (7.9)$$

Rabi 分光の場合において QPN によるそれぞれの光格子時計の Allan 標準偏差は

$$\sigma_x(\tau) = \frac{1}{2K_0} \frac{\gamma}{\nu_0} \sqrt{\frac{1}{\bar{N}_x} + \frac{1}{\bar{N}_x n_{ph}} + \frac{2\sigma_{\delta N_x}^2}{\bar{N}_x^2}} \quad (7.10)$$

と表される [66]。 $\gamma$  は Rabi スペクトルの半値全幅、 $\nu_0$  は時計遷移周波数、 $\bar{N}_x$  は原子数の平均値、 $n_{ph}$  は EMCCD カメラで検出された原子 1 個当たりの光子数、 $\sigma_{\delta N_x}$  は EMCCD カメラでの光子のカウントの際のテクニカルノイズである。 $K_0$  は Rabi スペクトルの肩における周波数に対する励起率  $\kappa$  の変化に  $\gamma$  を掛けたものであり、 $K_0 = |d\kappa/d\nu|\gamma$  と書ける。Rabi 分光のスペクトルの形は sinc 関数となり、 $\gamma \approx 0.8/T_i$  ( $T_i$  は Rabi パルスの時間) である。

### 7.3.2 Dick 効果

Dick 効果とは、時計遷移の分光のサイクル全体の中で時計レーザーを原子に照射している時間が一部であることから、連続的に変化している時計レーザーの周波数に対するフィードバックが離散的になることによって生じるエイリアシングの効果である。この効果により周波数安定度が悪化することが知られている [89,90]。Dick 効果による周波数計測の相対安定度は次の式で与えられる。

$$\sigma_{y,\text{Dick}}(\tau) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} \frac{1}{|g_0|} \sqrt{\sum_{k=1}^{\infty} S_y\left(\frac{k}{T}\right) |g_k|^2} \quad (7.11)$$

$g_0$  は Fourier 係数の直流成分であり、

$$g_0 = \frac{1}{\pi} \frac{dp_e}{d\nu} \approx \pm 0.60T_i \quad (7.12)$$

と書ける。式(7.12)の最後の近似は Rabi 分光のときに成り立つ。また、 $S_y$  は時計レーザーの片側パワースペクトル密度、 $g_k$  は感度関数  $w(t)$  の Fourier 成分である。 $T$  は合計の測定時間で、サイクル時間  $T_c$  と時計遷移の分光の回数  $n_i$  を用いて  $T = n_i T_c$  と表される。感度関数は時計レーザーの周波数変化に対する励起率の応答を表しており、

$$\delta\kappa = \frac{1}{2} \int_0^T 2\pi \delta\nu(t) w(t) dt \quad (7.13)$$

という関係がある。

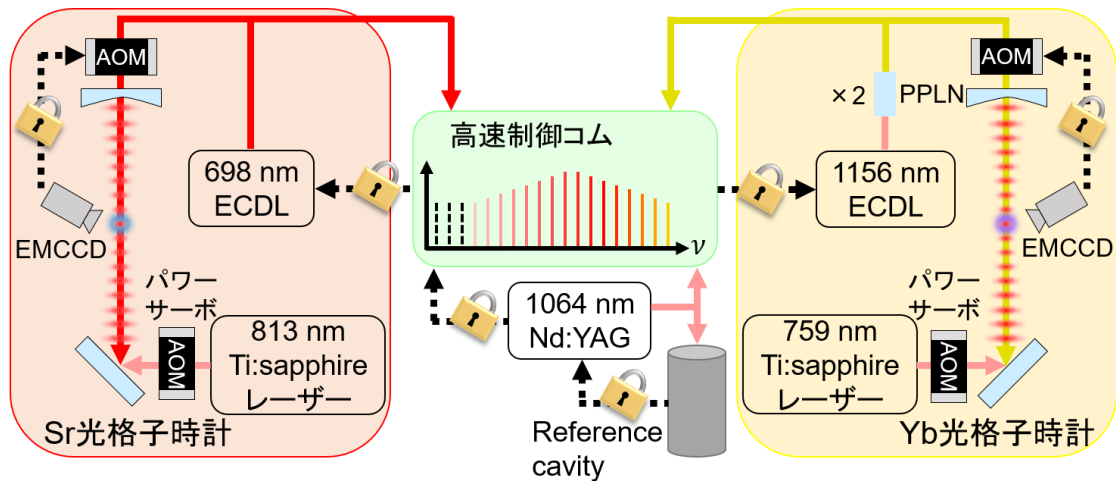


図 7.2 Yb/Sr 時計遷移周波数比計測のための実験系。それぞれの光格子時計の時計レーザーは同じ光周波数コムに位相同期され、さらに時計遷移分光のタイミングを合わせている。このような操作によって時計レーザーのノイズを共有し、比の計測における Dick 効果を打ち消すことができる。

### 7.3.3 Yb・Sr 光格子時計の同期測定

2 台の光格子時計の周波数比計測の際に Dick 効果を取り除く方法として、図 7.2 のようにそれぞれの時計レーザーを同一のマスターレーザーに位相同期し、さらに時計遷移の分光を同じタイミングで行うことによって時計レーザーの持つノイズを共有してキャンセルする方法がある [66]。1 台の光格子時計の絶対周波数計測の場合、連続的なノイズを持った時計レーザーの周波数を常にカウントするため、時計レーザーのノイズの一部のみを参照してフィードバックすると Dick 効果が発生する。一方、2 台の光格子時計の周波数比計測では時計レーザーの周波数は計測せず、分光結果に対して離散的に周波数値を与える AOM の周波数を用いる。そのため、参照していない時間の時計レーザーのノイズは考慮する必要が無く、2 台の時計レーザーが同期されていればノイズは打ち消される。本研究ではこの手法を用いて Dick 効果を超えた周波数安定度での周波数比計測を試みた。

2 つの光格子時計が同じ時計レーザーのノイズを共有していれば、それぞれの時計遷移の励起率に相関が見られるはずである。そこで、2 台の光格子時計を同期した場合としていない場合の、Sr 光格子時計と Yb 光格子時計の励起率の相関を図 7.3 に示す。同期していない場合は両者の励起率の間に全く相関が見られないが、同期した場合は相関が見られ、相関係数は 0.72 となった。Sr の励起率が 0.8 以上にならない理由は、スピン偏極が不完全であり  $m_F = \pm 9/2$  以外の原子が一部残っているためであると考えられ

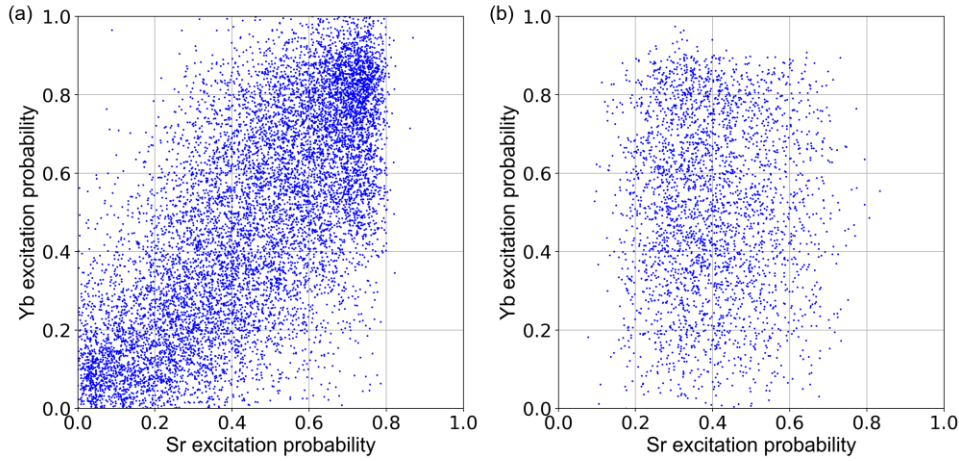


図 7.3 Sr 光格子時計と Yb 光格子時計の時計遷移の励起率の相関。時計レーザーは時計遷移に安定化されている。(a)2 台の光格子時計を同期した場合。(b)2 台の光格子時計を同期していない場合。

る。励起率を 1 に近づけるためには、スピン偏極後に時計レーザーの $\pi$ パルス照射し、 $^3P_0$ に励起してから基底状態に残っている原子を除去するという方法が有効である [91]。

#### 7.4 Yb/Sr 時計遷移周波数比計測の結果

Yb/Sr 時計遷移周波数比計測は 6 日間行い、測定時間は合計で約 70000 秒となった。図 7.4 はそのうちの 1 日の周波数比計測の典型的な周波数安定度である。図 7.4 の縦軸の値は周波数比( $\approx 1.2$ )で割った相対値である。いずれの日の Allan 標準偏差も  $1/\sqrt{\tau}$  で減少した。フィッティングは  $\tau = 30$  s 以降の点に対して行い、フィッティングから得られた安定度は  $1.2 \times 10^{-14} (\tau/s)^{-1/2}$  となった。6 日間すべてのデータを合算して得られた Allan 標準偏差から求めた統計不確かさは  $5.1 \times 10^{-16}$  となり、周波数比計測の不確かさが系統不確かさで制限される十分小さな値となった。

周波数比を計算する際に、重力シフトの影響について調べた。一般相対性理論により、重力があると重力ポテンシャルに依存する重力赤方偏移が起こることが知られている。重力赤方偏移の大きさは次の式で表される [19]。

$$\frac{\Delta\nu_g}{\nu_0} = \frac{\Delta\phi}{c^2} \quad (7.14)$$

地上で重力が一様であるとする、 $\Delta\phi = g\Delta h$  である。 $g$  は重力加速度である。本研究では Sr 光格子時計と Yb 光格子時計の高さの差は  $\Delta h = 1$  cm であり、高さの不確かさを 5 cm であるとする、重力シフトは  $\Delta\nu_g/\nu_0 = 1(5) \times 10^{-18}$  となる。

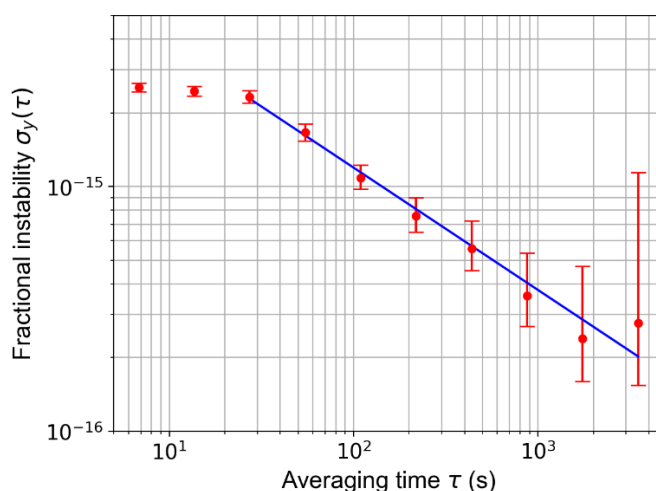


図 7.4 Yb/Sr 時計遷移周波数比計測の典型的な相対周波数安定度。フィッティングにより得られた直線の傾きは  $1.2 \times 10^{-14} (\tau/s)^{-1/2}$  である。

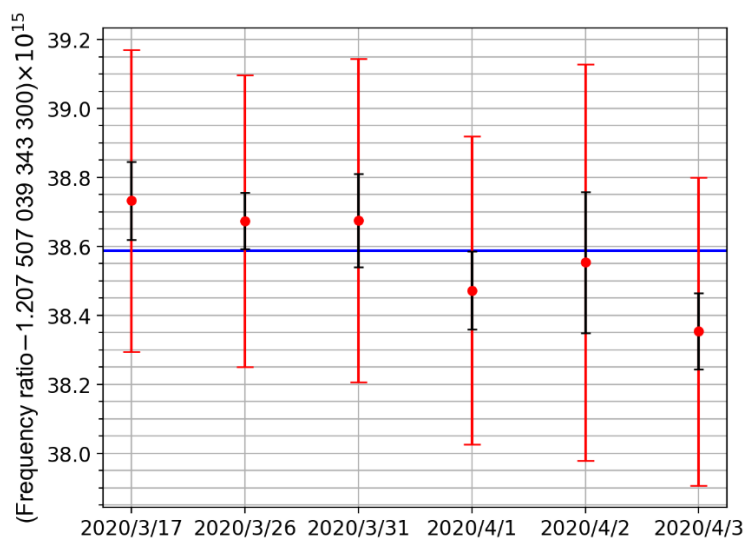


図 7.5 6 日間の周波数比の測定結果。黒のエラーバーは統計不確かさ、赤のエラーバーは合計の不確かさを表す。青線は本研究により得られた  $^{171}\text{Yb}/^{87}\text{Sr}$  の周波数比である。

6 日間の周波数比の測定結果を図 7.5 に示す。値は各日の系統シフトを計算して補正してある。黒のエラーバーは統計不確かさ、赤のエラーバーは系統不確かさを加えた合計の不確かさを表している。6 日間の測定値は不確かさの範囲で一致した。6 日間の補正前の測定値を加重平均し、全体の系統シフトによって補正して得られた  $^{171}\text{Yb}/^{87}\text{Sr}$  の時計遷移周波数比は  $\nu_{\text{Sr}}/\nu_{\text{Yb}} = 1.207\,507\,039\,343\,338\,58(49)_{\text{sys}}(6)_{\text{stat}}$  となった。6 日間の測定値と不確かさから計算した  $\chi^2$  の値（自由度  $6 - 1 = 5$  で割った値）は 1.76 となった。全体の相対不確かさは  $4.1 \times 10^{-16}$  であり、この値は 2014 年の結果 [34] と比較して 3.4 倍小さな不確かさとなった。

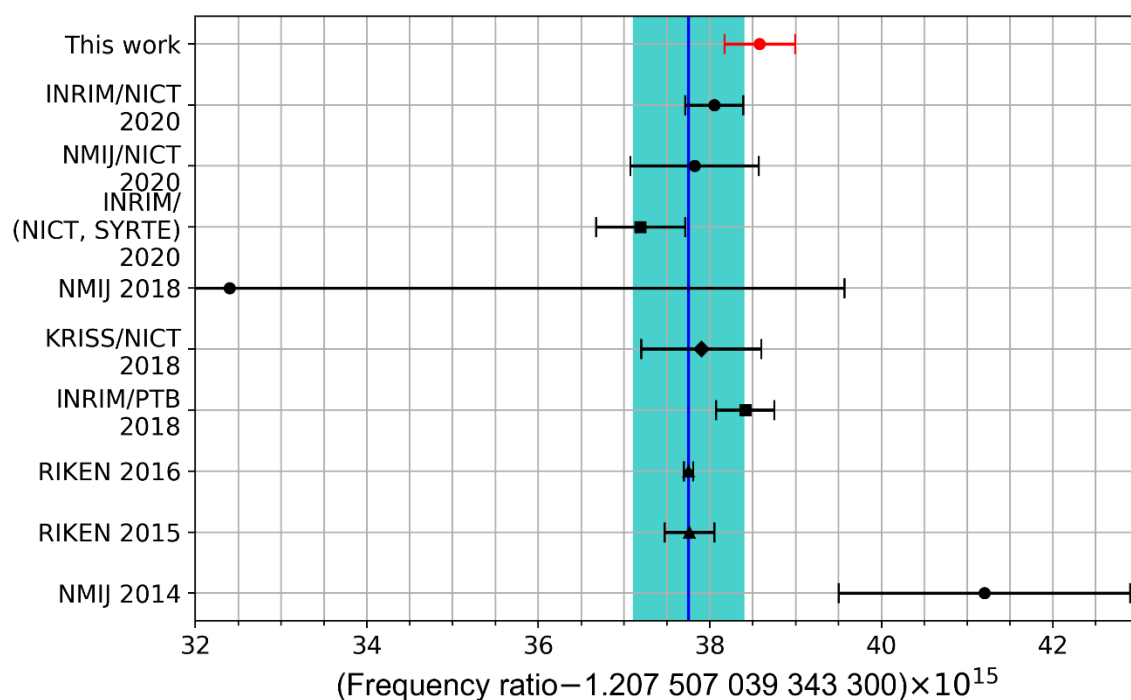


図 7.6 本研究の周波数比計測の結果と過去に報告された他研究機関の周波数値の比較。青線と網掛けはそれぞれ CIPM の絶対周波数値から計算した周波数比の値とその不確かさを表している。

図 7.6 にこれまで報告されてきた  $^{171}\text{Yb}/^{87}\text{Sr}$  時計遷移周波数比の結果と本研究の結果を示す。青線と網掛けはそれぞれ CIPM の Sr・Yb 光格子時計の各々の絶対周波数の値から計算した周波数比の値とその不確かさを表している。本研究の結果は CIPM の値と合算した不確かさの範囲内で一致した。なお、2014 年の NMIJ (計量標準総合センター、産総研の中で我々のグループが所属する組織) [34]、2015 年と 2016 年の RIKEN [92,93]、2018 年の INRIM (伊) /PTB (独) [94]の結果は同じ場所にある 2 台の Sr・Yb 光格子時計間での測定であり、2018 年の KRISS (韓) /NICT (情報通信研究機構) [95]の結果は衛星リンクによる測定、2020 年の INRIM/NICT [96]の結果は超長基線電波干渉法 (VLBI) を用いた測定、2020 年の INRIM/(NICT/SYRTE (仏)) [39]と NMIJ/NICT [26]の結果は Circular T に掲載されている、TAI に貢献した Sr 光格子時計の値から計算した結果である。また、2018 年の NMIJ は 1 台の光格子時計で Yb と Sr の両方の原子をトラップし、交互に分光できる「デュアル光格子時計」を用いた測定である [97]。

## 第8章 まとめと今後の展望

### 8.1 まとめ

本研究では最初に、遅延線による2台のレーザーの間の周波数オフセットロックの周波数安定度を評価した。この手法は位相同期と比較して簡便で、かつ比較的小さなS/Nでも周波数安定化を行うことが出来るという特徴を持つ。この手法によってCWレーザーと光周波数コムに適用することにより、任意の光周波数にレーザーを安定化することが出来る。特に光格子時計の実験においては、周波数安定化に原子の共鳴を用いることが出来ない魔法波長に安定化する際に有用となる。評価のための実験は主に2台のNd:YAGレーザー間と光周波数コム-小型固体レーザー間で行った。いずれの実験の結果もフリーランのときに比べて短期周波数安定度が約2桁向上し、位相同期に比べてS/Nが小さくても制御がロバストであることが分かり、光格子時計の実験において十分な結果が得られた。本手法の周波数安定度に影響を及ぼす要因を調べた結果、環境の温度や回路のノイズであるということが考えられる。ロックポイントの周波数は変動するが、一方向に変動し続けるのではなく測定時の環境の温度に応じて再現性が見られた。

本研究の2つ目の準備段階として、Yb・Sr光格子時計の実験のための8ブランチ光周波数コムを開発した。Erファイバーレーザーを共振器とし、分岐した光を広帯域化するための高非線形ファイバーを適切に選ぶことによって、各々のブランチにおいて実験に必要な波長をカバーするスペクトルが得られた。実際に8ブランチコムを用いた光格子時計用レーザーの周波数制御も行い、十分なビート信号のS/Nが得られるとともに長時間にわたって安定化することが出来た。また、8ブランチコムを用いたYb・Sr光格子時計の絶対周波数計測を行い、繰り返し周波数を高い精度で安定化したことにより基準信号であるUTC(NMIJ)に追従する周波数安定度で測定できることを確認した。

本研究においてSr光格子時計を大きく改善した点は、時計レーザーの分光にDopplerキャンセルの機構を導入したことと、これまで周波数安定化されていなかったCWレーザーを8ブランチコムにより周波数安定化したことである。DopplerキャンセルによりDopplerシフトの影響を抑えることが出来た。また、CWレーザーを遅延線による周波数オフセットロックの手法で周波数安定化したことにより長時間の測定が可能になった。その結果、周波数計測の統計不確かさの低減につながるだけでなく、interleave法の際の統計不確かさの低減にもつながり、系統不確かさを低減することも出来た。本研究におけるSr光格子時計の系統不確かさ評価の結果は $1.07 \times 10^{-16}$ であり、2014年に我々のグループが評価した結果に比べて1/3以下となった。



最後に Yb/Sr 時計遷移周波数比の測定を行った。測定は 6 日間にわたって行い、補正を加えた最終的な周波数比の値は  $\nu_{\text{Yb}}/\nu_{\text{Sr}} = 1.207\,507\,039\,343\,338\,58(49)_{\text{sys}}(6)_{\text{stat}}$  となった。この結果は CIPM の Yb・Sr 光格子時計の絶対周波数の勧告値から計算した周波数比の値とオーバーラップした不確かさの範囲内で一致した。周波数比計測の不確かさは系統不確かさで制限され、我々のグループの 2014 年の測定と比較して 1/3 以下となった。

## 8.2 今後の展望

### 8.2.1 さらに不確かさの低減

本研究の主な目的の 1 つは産総研の Sr 光格子時計の不確かさを低減することであった。Sr 光格子時計に系統シフトを与える最も大きな要因である黒体輻射の不確かさをさらに低減する比較的簡単な方法としては、真空チェンバーの温度が一様になるように温調することが考えられる。現在のところ温度計測をしている 8 つの点の中では最大約 2°C の温度差がある。温度差を半分になれば黒体輻射シフトの不確かさをおよそ半分にする事が出来る。一方、光格子による光シフトや衝突シフトは interleave 法による評価の測定点数を増やせば不確かさも小さくすることが出来る。特に、Appendix で述べる新たな PPLN を用いることで波長 461 nm のレーザーパワーを上げることができ、1 次冷却でトラップされる原子数が増え、結果的に衝突シフトを評価する際の原子数の差を大きく取ることが出来るようになることと期待される。4 番目に大きな不確かさ要因であるサーボエラーは、周波数比計測の積算時間を増やせば不確かさを小さくすることが出来る。あるいは、時計レーザーの短期安定度を向上させることによっても低減できる。以上の改善により、Sr 光格子時計の系統不確かさを  $10^{-17}$  台にすることは難しくないと考えられる。

### 8.2.2 堅牢化

上で述べたように産総研の Sr 光格子時計は以前よりも長期運転が行いやすくなったが、課題も残っている。例えば、波長 689 nm の 2 次冷却用のレーザーは光制御コムへ位相同期を行っているが、音や振動によって位相同期が簡単に外れるという問題がある。このレーザーは Litrow 型の ECDL であり、振動によって共振器中のビームの方向がずれやすいという性質がある。したがって、このレーザーを置き換えるための干渉フィルター型の ECDL の作成を進めている。さらに、Sr 光格子時計に用いている CW レーザーの制御にもリロックシステムを導入することを考えている。このリロックシステムは本研究で用いたリロックシステムとは異なる原理のものを開発中である。しかし、現

状では、開発した干渉フィルター型 ECDL の出力パワーが不十分であるという問題があり、現在改良を進めている。

もう 1 つ Sr 光格子時計の運転が途切れる要因としては、1 次冷却光に用いている波長 461 nm レーザーを 2 次高調波発生によって得るための WG-PPLN の位相整合が外れやすいということである。一度位相整合をとるために温調を調整して 2 次高調波の出力を最大にしても、レーザー光による加熱や環境の温度変化などの要因によって時間が経つと出力パワーが半分程度に低下する。そこで、改良を加えられた WG-PPLN モジュールを NTT エレクトロニクスから提供していただき、評価を行った。Appendix にその評価結果を示した。出力パワーは最大で 100 mW を超え、光格子時計での実験時に使うことが想定されるパワーで 1 日出力しても最大で 20 % 程度のパワーの低下に抑えられた。この結果から光格子時計の実験に投入することが有効であると考えており、近日中に投入する予定である。

### 8.2.3 絶対周波数計測と TAI への貢献

秒の再定義へ向けた動きに貢献するために Sr 光格子時計の絶対周波数計測を今後再度行うことも検討している。図 8.1 にこれまで報告されてきた絶対周波数計測の結果を示す [33,75,105–114,91,115,98–104]。本研究の周波数比の値と同時期に稼働していた産総研の Yb 光格子時計の絶対周波数の値から求めた Sr の絶対周波数の値を赤で示した。絶対周波数計測の不確かさは年々小さくなり、最近では最も高精度の原子泉型セシウム原子時計の確かさと同等の不確かさでの測定も行われている [114]。8.2.2 節で述べた堅牢化を達成した後は Sr 光格子時計の長期の絶対周波数計測を行い、我々のグループでもなるべく小さな不確かさで値を報告したいと考えている。また、長期運転可能な Yb 光格子時計を用いて Yb・Sr それぞれの絶対周波数の値と周波数比の値の 3 つを同時に出すことも考えている。最終的には 1 か月以上にわたって断続的に光格子時計を運転し、国際度量衡局にレポートを提出して TAI へ貢献することを目標としている。

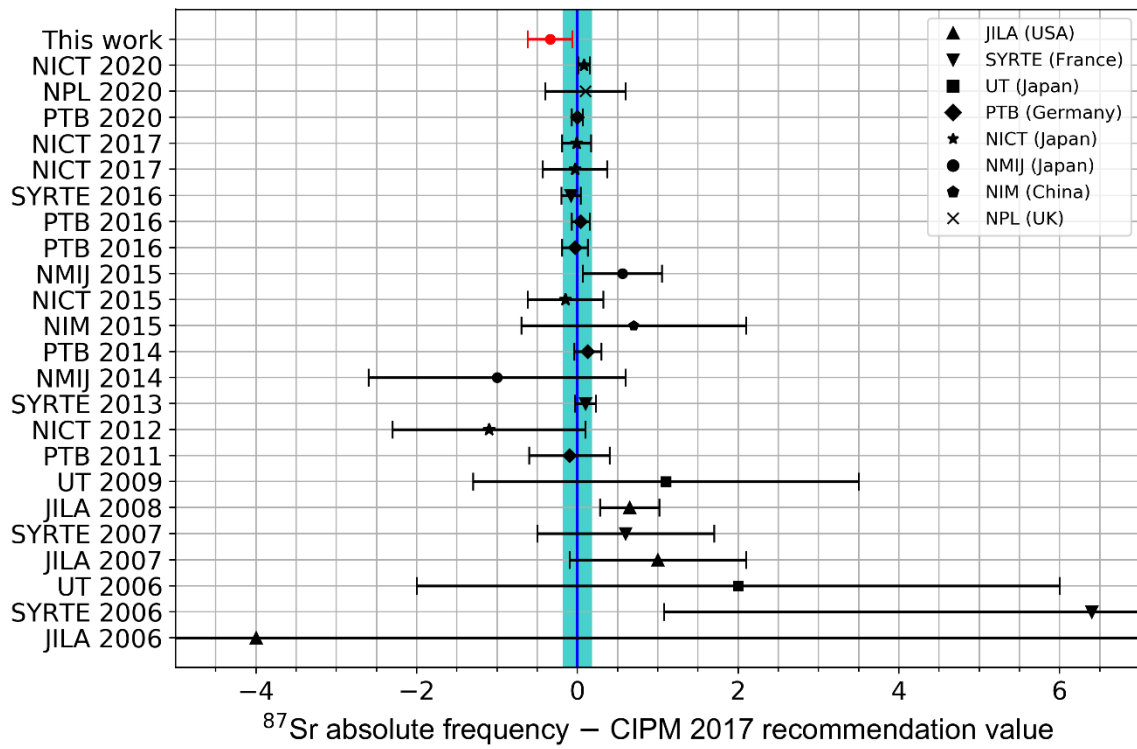


図 8.1 これまで報告された Sr 光格子時計の絶対周波数計測の結果。赤で示した点は本研究で得られた Yb/Sr 周波数比の値から求めた絶対周波数値である。

## Appendix 波長 461 nm PPLN の評価

Sr 原子の  $^1S_0 - ^1P_1$  遷移を用いたレーザー冷却には、波長 461 nm のレーザーが必要となる。本研究では導波路型 PPLN (WG-PPLN) を用いたが、パワーがやや不十分であることや、461 nm のパワーが不安定であるという課題があった。そこで、NTT エレクトロニクスの西田博士から WG-PPLN の試作品を提供していただき、性能評価を行った。

本研究で用いた WG-PPLN は光ファイバー、コリメートレンズ、ペルチェ素子、サーミスタがあらかじめ取り付けられたモジュールとなっている。光ファイバーは偏波保持ファイバーである。導波路の長さは 22 mm、コアの幅は 12  $\mu\text{m}$  である。従来の WG-PPLN からの改善点は、導波路の出射端にスラブ構造を導入したことである。従来は青色光による集塵効果によって導波路端面が損傷するという課題があったが、スラブ構造部分でビームが広がりパワー密度が下がることによって WG-PPLN の寿命が延びることが期待される。一方、その代償としてスラブ構造のために出射ビームは楕円になるが、シリンドリカルレンズを用いることで真円にすることは容易である。

図 A.1 に WG-PPLN の性能評価のための実験装置を示す。波長 922 nm の ECDL の光をテーパーアンプで増幅させてファイバーカップルした。出射光を 461 nm の透過率が約 97% のショートパスフィルター (THORLABS FESH0700) に通し、さらに UV ミラーで 1 回反射させることによって基本波である 922 nm の光を取り除いてからパワーメーターで 2 次高調波のパワー  $P^{2\omega}$  を計測した。また、PPLN の温度を変えて位相整合条件を外し、フィルターの手前でフリップミラーを用いて反射させてパワーメーターで基本波のパワー  $P^\omega$  を計測した。

基本波のパワーに対する 2 次高調波のパワーの測定結果を図 A.2(a) に示す。従来から用いていた WG-PPLN [61] と比較すると、 $P^\omega = 200 \text{ mW}$  における  $P^{2\omega}$  は [61] では約 75 mW であったのに対し、本研究では 64 mW であったため [61] に劣る。しかし、新しい WG-PPLN は  $P^\omega$  をさらに上げてパワーが飽和せず、 $P^\omega = 350 \text{ mW}$  では  $P^{2\omega} = 116 \text{ mW}$  を達成した。ただし、 $P^\omega = 290 \text{ mW}$  を超えたあたりから 2 次高調波の出力がやや不安定になり、温調を適切に行っても常にその基本波のパワーにおける最大の 2 次高調波のパワーを保つことが難しくなった。具体的には、数 mW 程度の変動は避けられなかった。現時点では、我々は  $P^\omega = 250 \text{ mW}$  で使用する予定であるため、高い基本波のパワーで使用した場合の不安定性は光格子時計の実験においては支障をきたさないと考えられる。

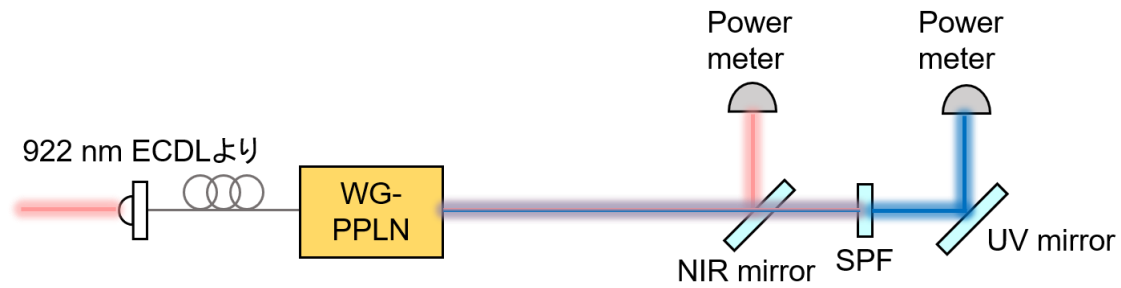


図 A.1 461 nm PPLN の評価に用いた実験系。近赤外ミラーはフリップミラーになっている。SPF: ショートパスフィルター。

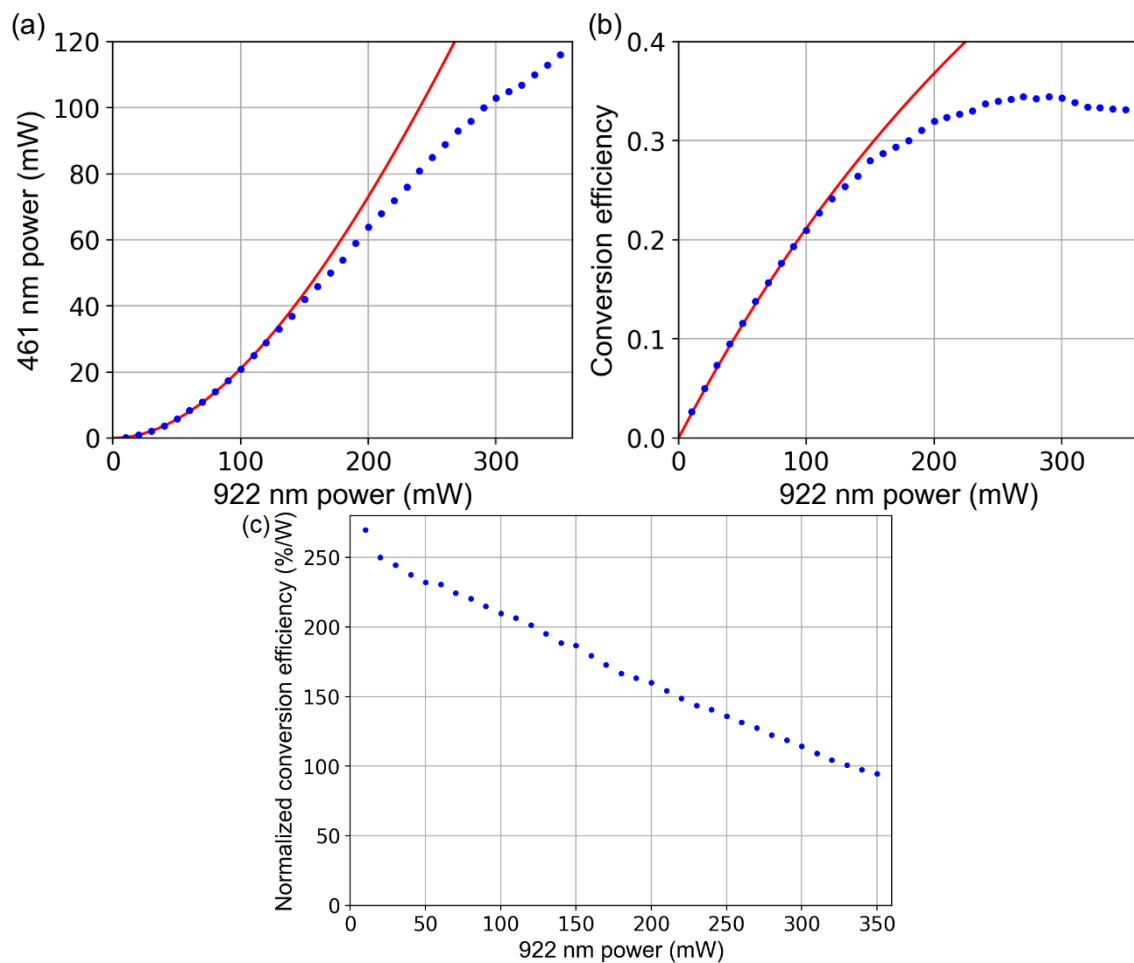


図 A.2 (a)基本波のパワーと 2 次高調波のパワーの関係。(b)基本波のパワーに対する変換効率。赤線は pump depletion モデルによるフィッティングを表す。(c)規格化変換効率。

変換効率を図 A.2(b)に示す。変換効率 $\eta$ は $\eta = P^{2\omega}/P^\omega$ によって計算した。変換効率は $P^\omega = 250$  mW付近まで上昇し、それ以降は基本波のパワーを上げても変換効率は上昇しなかった。また、図 A.2(c)は規格化変換効率 $\eta' = P^{2\omega}/(P^\omega)^2$ である。

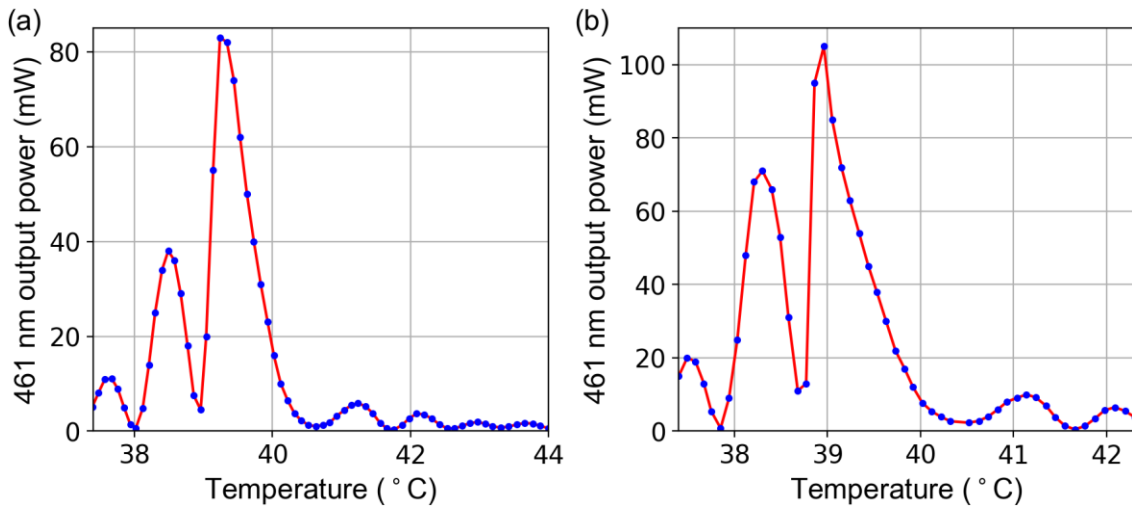


図 A.3 (a)基本波のパワーと 2 次高調波のパワーの関係。(b)基本波のパワーに対する変換効率。

また、得られた  $P^\omega$  と  $P^{2\omega}$  あるいは  $P^\omega$  と  $\eta$  の関係に対して pump depletion モデル [116] を用いてフィッティングを行った。pump depletion モデルとは、PPLN に入射した基本波の光が損失無く全て 2 次高調波に変換されることによって基本波のパワーが減少していくことを仮定したモデルである。pump depletion モデルにおいて  $P^\omega$ ,  $P^{2\omega}$ ,  $\eta$  の間には次の関係が成り立つ。

$$P^{2\omega} = \eta P^\omega = P^\omega \tanh^2(\sqrt{\eta_0 P^\omega L}) \quad (\text{A.1})$$

ここで、 $\eta_0$  は規格化非線形効率、 $L$  は導波路の長さである。 $L = 22 \text{ mm}$  であるから、 $\eta_0$  をフィッティングパラメーターとして実験データを式(A.1)でフィッティングした結果が図 A.2 の赤線である。フィッティングは  $0 \leq P^\omega \leq 100$  に対して行った。フィッティングの結果より得られた規格化非線形効率の値は  $\eta_0 \sim 5100$  であった。 $P^\omega$  が低い領域で実験データとフィッティングが合っている一方で、ハイパワーになるにつれてずれが大きくなる理由は 2 つ考えられる。1 つは BRIIRA (blue light induced infrared absorption) の存在によるものである。BRIIRA とは、青色光によって赤外光の吸収が誘起される現象である。この現象により 2 次高調波がハイパワーになるにつれて基本波のパワーが pump depletion モデルで想定されるよりも減少する可能性がありうる。もう 1 つはレーザー光の熱的な効果によって PPLN 結晶の反転分極のピッチが歪み、不均一化が進むことによって変換効率が低下するということである。ピッチが本来の設計から変化すると、発生した 2 次高調波の位相がランダムになり互いに打ち消しあい、結晶から出力されるパワーが減少することが考えられる。

次に、PPLN の温度に対する 2 次高調波のパワーの変化を図 A.3 に示す。 $P^\omega = 250 \text{ mW}$  の場合は最も高いピークの線幅が約  $0.5^\circ\text{C}$  となった。この結果を [61] と比較すると、[61] では  $P^\omega = 248 \text{ mW}$  のときに線幅が約  $0.1^\circ\text{C}$  であったので、新しい PPLN の

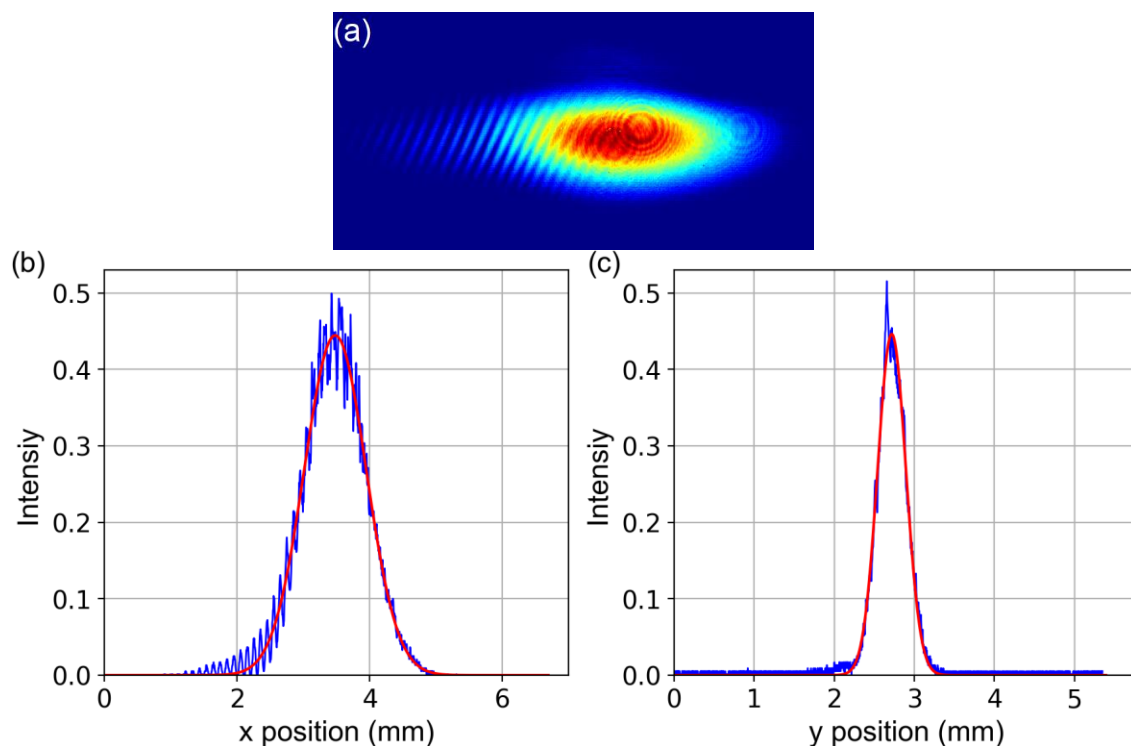


図 A.4 (a) ビームプロファイラで撮影した PPLN 出射後の 2 次高調波のモード。干渉縞のように見える部分はビームプロファイラに取り付けたアッテネーターによるものと考えられる。(b) x 方向の断面図。(c) y 方向の断面図。いずれもビームの中心を通る断面を取り出している。赤線はガウシアンフィッティングを表している。

方が温度に対する安定性が高い基本波のパワーにおいて改善されたと言える。また、 $P^{\omega} = 350 \text{ mW}$  の場合においても  $P^{\omega} = 250 \text{ mW}$  の場合と大きく変わらない結果となった。ただし、高温側では温度変化に対して 2 次高調波のパワーが安定であるのに対し、低温側では急激にパワーが低下するため、最大値よりも若干高温側で使った方が安定性は良いと考えられる。ここで、図 A.3 の曲線が最大値に対して左右対称でない理由は、PPLN 結晶の反転分極のピッチがわずかに不均一であるためだと考えられる。

図 A.4(a) にモジュールの出射口から約 70 cm 離れた位置においてビームプロファイラで撮影した PPLN 出射後の 2 次高調波のモードの画像を示す。当初予想された通りビームのモードは横長の楕円形となっているが、強度分布は図 A.4(b)、(c) に示すようにガウシアンに近い分布を示した。なお、ビームの画像に干渉縞のようなものが見えているのは、ビームプロファイラの手前に入れた ND フィルターによるものと考えられる。ND フィルターを外した状態で弱いパワーの 2 次高調波のビームを撮影したところ、このような縞模様は見られなかった。

モジュールから出射したビームはコリメートされていないため、モジュールの出射口からの伝搬距離  $z$  に対するビーム径（直径）をビームプロファイラを用いて調べた。

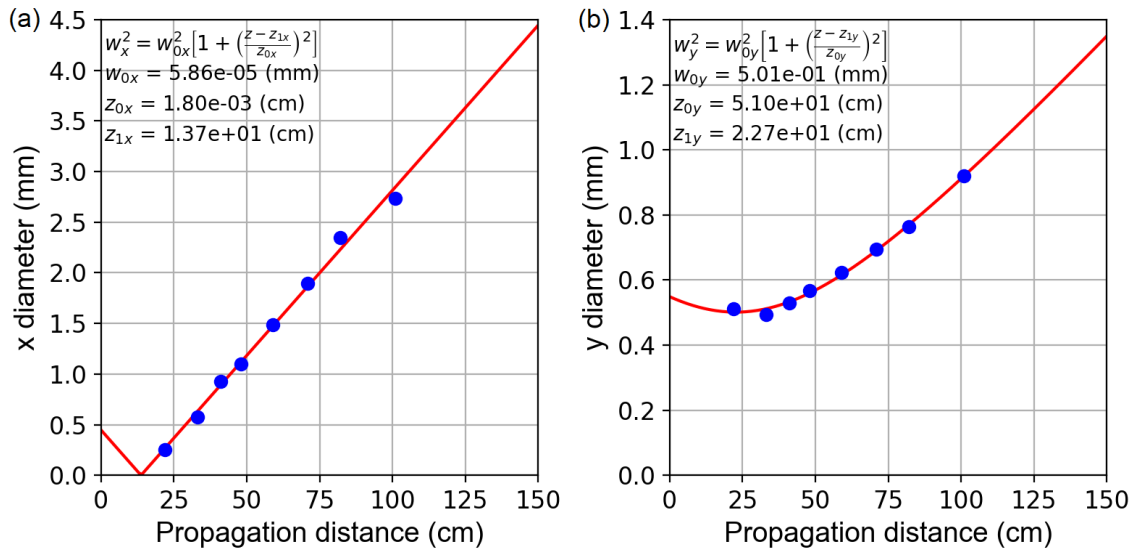


図 A.5 ビームの伝搬距離に対するビーム径の変化。図中の式と数値はそれぞれフィッティングに用いた式とフィッティングパラメーターを表す。(a)x 方向。(b)y 方向。

図 A.5 に結果を示す。ビーム径は  $1/e^2$  幅を採用している。フィッティングにはガウシアンビームの幅を表す式である

$$w^2(z) = w_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{z - z_1}{z_0} \right)^2 \right] \quad (\text{A.2})$$

を用いた。ここで、 $w_0 = w(z_1)$  であり最小のビーム径を表し、 $z_0$  はビーム径が  $w_0$  となる点からビーム径が  $\sqrt{2}$  倍になるまでの距離 (コンフォーカルパラメーター) を表す。フィッティングの結果より、x 方向は  $z \sim 14$  cm、y 方向は  $z \sim 23$  cm の点でビーム径が最小となることが分かった。

光格子時計の実験においては、高いレーザーのパワーが得られることが望ましいのはもちろんだが、パワーが安定していることも重要となる。そこで、実際に光格子時計の実験を行う際に使用が想定される、2 次高調波のパワー  $P^{2\omega}$  が 90 mW 前後の時のパワーの時間変化を測定した (図 A.6)。比較のために基本波のパワー  $P^\omega$  も同時に測定したが、このときのパワーは変化の様子を見るためだけに測定したため、ND フィルターを通して PPLN に入射しているパワーを表しているわけではない。図 A.6(a) と (b) を比較すると、 $P^{2\omega}$  と  $P^\omega$  の間に相関が見られる、すなわち  $P^{2\omega}$  が増加しているときに  $P^\omega$  が減少しているように見られる部分もある。これはより多くの基本波が 2 次高調波に変換されたためと考えられる。しかし、一方で  $P^{2\omega}$  と  $P^\omega$  がともに減少している部分も見られる。そこで  $P^{2\omega}$  と同時に環境の温度変化も同時に測定し、プロットした (図 A.7)。その結果、 $P^{2\omega}$  は環境の温度とも相関があることが分かった。環境の温度変化が  $P^{2\omega}$  に与える影響は 2 通り考えられる。1 つは、WG-PPLN モジュールは温調がされているが、外界と断熱されているわけではないため環境の温度が変化することによって位相整合条



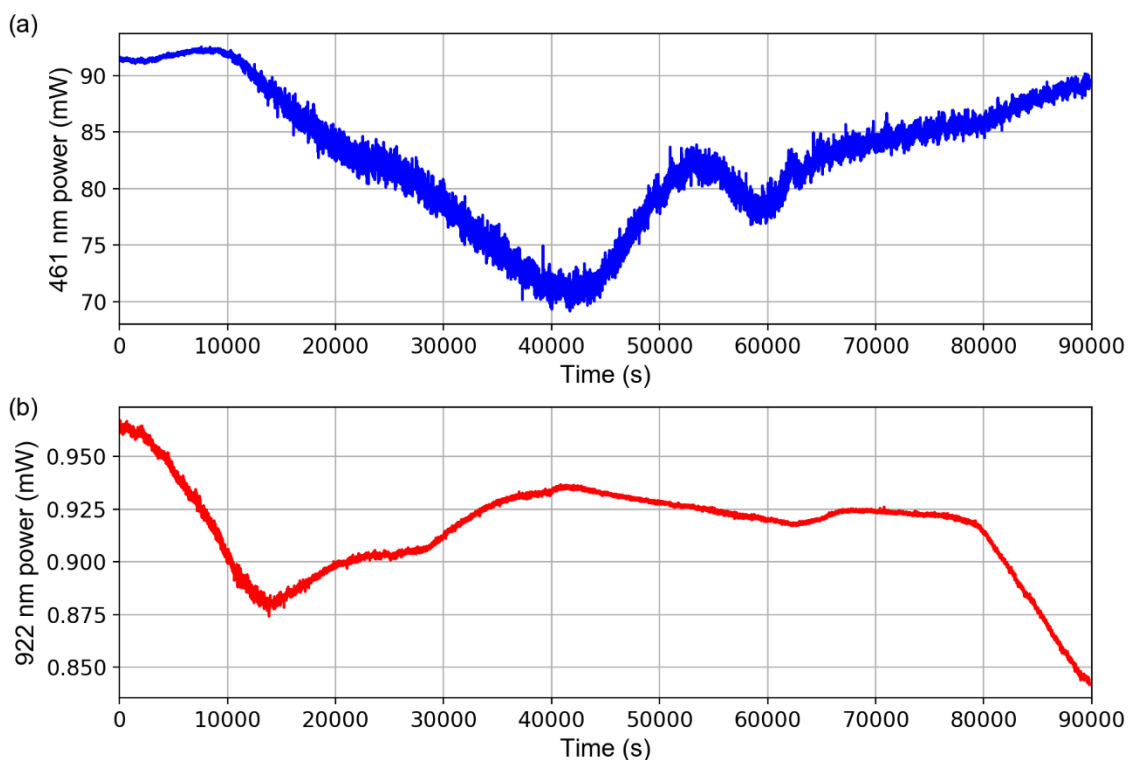


図 A.6 (a)2次高調波のパワーと(b)基本波のパワーの時間変化。

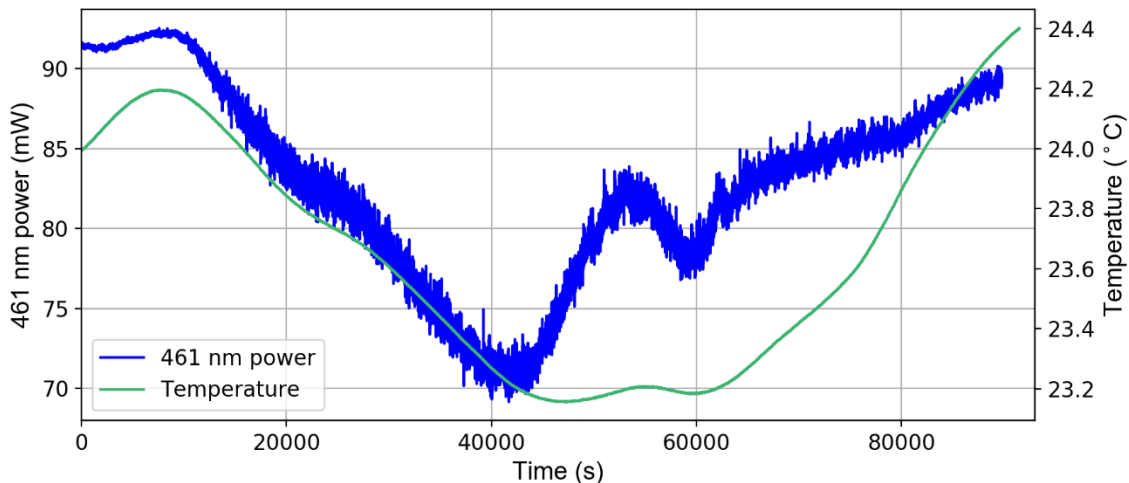


図 A.7 2次高調波のパワーと環境の温度の時間変化。

件からわずかにずれてしまうことである。この影響は特に図 A.6(a)において $P^{2\omega}$ の値が下がるにつれて $P^{2\omega}$ の揺らぎが大きくなることから読み取れる。すなわち、位相整合条件の曲線において傾きが急な部分の状態にあるためであると考えられる。もう1つは、気温の変化により PPLN より前の光学系のアライメントがずれ、ファイバーカップルしている基本波のパワーが低下することである。 $P^{\omega}$ と環境の温度を比較するとこ

ちらにも相関があることから、温度変化はアライメントのずれに影響を与えることが考えられる。

## 参考文献

1. BIPM, *The International System of Units* (2009).
2. S. Weyers, V. Gerginov, M. Kazda, J. Rahm, B. Lipphardt, G. Dobrev, and K. Gibble, "Advances in the accuracy, stability, and reliability of the PTB primary fountain clocks," *Metrologia* **55**, 789–805 (2018).
3. S. Knappe, V. Shah, P. D. D. Schwindt, L. Hollberg, J. Kitching, L. A. Liew, and J. Moreland, "A microfabricated atomic clock," *Appl. Phys. Lett.* **85**, 1460–1462 (2004).
4. Y. Ovchinnikov and G. Marra, "Accurate rubidium atomic fountain frequency standard," *Metrologia* **48**, 87–100 (2011).
5. S. Knappe, P. D. D. Schwindt, V. Shah, L. Hollberg, J. Kitching, L. Liew, and J. Moreland, "A chip-scale atomic clock based on  $^{87}\text{Rb}$  with improved frequency stability," *Opt. Express* **13**, 1249–1253 (2005).
6. H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle, and G. Zinner, "Phase coherent frequency measurement of visible radiation," *Phys. Rev. Lett.* **76**, 18–21 (1996).
7. H. S. Margolis, G. P. Barwood, G. Huang, H. A. Klein, S. N. Lea, K. Szymaniec, and P. Gill, "Hertz-level measurement of the optical clock frequency in a single  $^{88}\text{Sr}^+$  ion," *Science* **306**, 1355–1358 (2004).
8. M. Takamoto, F.-L. Hong, R. Higashi, and H. Katori, "An optical lattice clock," *Nature* **435**, 321–324 (2005).
9. U. Sterr, C. Degenhardt, H. Stoehr, C. Lisdat, H. Schnatz, J. Helmcke, F. Riehle, G. Wilpers, C. Oates, and L. Hollberg, "The optical calcium frequency standards of PTB and NIST," *Comptes Rendus Phys.* **5**, 845–855 (2004).
10. H. Katori, M. Takamoto, V. G. Pal'chikov, and V. D. Ovsiannikov, "Ultrastable optical clock with neutral atoms in an engineered light shift trap," *Phys. Rev. Lett.* **91**, 173005 (2003).
11. I. Ushijima, M. Takamoto, M. Das, T. Ohkubo, and H. Katori, "Cryogenic optical lattice clocks," *Nat. Photonics* **9**, 185–189 (2015).
12. T. L. Nicholson, S. L. Campbell, R. B. Hutson, G. E. Marti, B. J. Bloom, R. L. McNally, W. Zhang, M. D. Barrett, M. S. Safronova, G. F. Strouse, W. L. Tew, and J. Ye, "Systematic evaluation of an atomic clock at  $2 \times 10^{-18}$  total uncertainty," *Nat. Commun.* **6**, 6896 (2015).
13. W. F. McGrew, X. Zhang, R. J. Fasano, S. A. Schäffer, K. Beloy, D. Nicolodi, R. C. Brown, N. Hinkley, G. Milani, M. Schioppo, T. H. Yoon, and A. D. Ludlow,

- "Atomic clock performance enabling geodesy below the centimetre level," *Nature* **564**, 87–90 (2018).
14. S. M. Brewer, J. S. Chen, A. M. Hankin, E. R. Clements, C. W. Chou, D. J. Wineland, D. B. Hume, and D. R. Leibbrandt, "Al<sup>+</sup> 27 Quantum-Logic Clock with a Systematic Uncertainty below 10<sup>-18</sup>," *Phys. Rev. Lett.* **123**, 033201 (2019).
  15. T. Bothwell, D. Kedar, E. Oelker, J. M. Robinson, S. L. Bromley, W. L. Tew, J. Ye, and C. J. Kennedy, "JILA SrI optical lattice clock with uncertainty of  $2.0 \times 10^{-18}$ ," *Metrologia* **56**, 065004 (2019).
  16. C. Sanner, N. Huntemann, R. Lange, C. Tamm, E. Peik, M. S. Safronova, and S. G. Porsev, "Optical clock comparison for Lorentz symmetry testing," *Nature* **567**, 204–208 (2019).
  17. M. Takamoto, I. Ushijima, N. Ohmae, T. Yahagi, K. Kokado, H. Shinkai, and H. Katori, "Test of general relativity by a pair of transportable optical lattice clocks," *Nat. Photonics* **14**, 411–415 (2020).
  18. G. Lion, I. Panet, P. Wolf, C. Guerlin, S. Bize, and P. Delva, "Determination of a high spatial resolution geopotential model using atomic clock comparisons," *J. Geod.* **91**, 597–611 (2017).
  19. T. Takano, M. Takamoto, I. Ushijima, N. Ohmae, T. Akatsuka, A. Yamaguchi, Y. Kuroishi, H. Munekane, B. Miyahara, and H. Katori, "Geopotential measurements with synchronously linked optical lattice clocks," *Nat. Photonics* **10**, 662–666 (2016).
  20. R. Bondarescu, A. Schärer, A. Lundgren, G. Hetényi, N. Houlié, P. Jetzer, and M. Bondarescu, "Ground-based optical atomic clocks as a tool to monitor vertical surface motion," *Geophys. J. Int.* **202**, 1770–1774 (2015).
  21. N. Huntemann, B. Lipphardt, C. Tamm, V. Gerginov, S. Weyers, and E. Peik, "Improved limit on a temporal variation of  $m_p/m_e$  from comparisons of Yb<sup>+</sup> and Cs atomic clocks," *Phys. Rev. Lett.* **113**, 210802 (2014).
  22. P. Wcisło, P. Morzyński, M. Bober, A. Cygan, D. Lisak, R. Ciuryło, and M. Zawada, "Experimental constraint on dark matter detection with optical atomic clocks," *Nat. Astron.* **1**, 0009 (2016).
  23. P. Wcisło, P. Ablewski, K. Beloy, S. Bilicki, M. Bober, R. Brown, R. Fasano, R. Ciuryło, H. Hachisu, T. Ido, J. Lodewyck, A. Ludlow, W. McGrew, P. Morzyński, D. Nicolodi, M. Schioppo, M. Sekido, R. Le Targat, P. Wolf, X. Zhang, B. Zjawin, and M. Zawada, "New bounds on dark matter coupling from a global network of optical atomic clocks," *Sci. Adv.* **4**, eaau4869 (2018).

24. S. Kolkowitz, I. Pikovski, N. Langellier, M. D. Lukin, R. L. Walsworth, and J. Ye, "Gravitational wave detection with optical lattice atomic clocks," *Phys. Rev. D* **94**, 124043 (2016).
25. S. B. Koller, J. Grotti, S. Vogt, A. Al-Masoudi, S. Dörscher, S. Häfner, U. Sterr, and C. Lisdat, "Transportable Optical Lattice Clock with  $7 \times 10^{-17}$  Uncertainty," *Phys. Rev. Lett.* **118**, 073601 (2017).
26. T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, Y. Hisai, M. Wada, H. Inaba, T. Suzuyama, F. Hong, and M. Yasuda, "Demonstration of the nearly continuous operation of an  $^{171}\text{Yb}$  optical lattice clock for half a year," *Metrologia* **57**, 065021 (2020).
27. D. Świerad, S. Häfner, S. Vogt, B. Venon, D. Holleville, S. Bize, A. Kulosa, S. Bode, Y. Singh, K. Bongs, E. M. Rasel, J. Lodewyck, R. Le Targat, C. Lisdat, and U. Sterr, "Ultra-stable clock laser system development towards space applications," *Sci. Rep.* **6**, 33973 (2016).
28. S. Origlia, M. S. Pramod, and S. Schiller, "Towards an optical clock for space: Compact, high-performance optical lattice clock based on bosonic atoms," *Phys. Rev. A* **98**, 053443 (2018).
29. I. Courtillot, A. Quessada-Vial, A. Bruschi, D. Kolker, G. D. Rovera, and P. Lemonde, "Accurate spectroscopy of Sr atoms," *Eur. Phys. J. D* **33**, 161–171 (2005).
30. S.-Y. Lan, P.-C. Kuan, B. Estey, D. English, J. M. Brown, M. A. Hohensee, and H. Müller, "A Clock Directly Linking Time to a Particle's Mass," *Science* **339**, 554–557 (2013).
31. F. Riehle, P. Gill, F. Arias, and L. Robertsson, "The CIPM list of recommended frequency standard values: guidelines and procedures," *Metrologia* **55**, 188–200 (2018).
32. T. Kohno, M. Yasuda, K. Hosaka, H. Inaba, Y. Nakajima, and F.-L. Hong, "One-dimensional optical lattice clock with a fermionic  $^{171}\text{Yb}$  isotope," *Appl. Phys. Express* **2**, 072501 (2009).
33. D. Akamatsu, H. Inaba, K. Hosaka, M. Yasuda, A. Onae, T. Suzuyama, M. Amemiya, and F.-L. Hong, "Spectroscopy and frequency measurement of the  $^{87}\text{Sr}$  clock transition by laser linewidth transfer using an optical frequency comb," *Appl. Phys. Express* **7**, 012401 (2014).

34. D. Akamatsu, M. Yasuda, H. Inaba, K. Hosaka, T. Tanabe, A. Onae, and F.-L. Hong, "Frequency ratio measurement of  $^{171}\text{Yb}$  and  $^{87}\text{Sr}$  optical lattice clocks," *Opt. Express* **22**, 7898–7905 (2014).
35. D. Akamatsu, M. Yasuda, H. Inaba, K. Hosaka, T. Tanabe, A. Onae, and F. Hong, "Errata : Frequency ratio measurement of  $^{171}\text{Yb}$  and  $^{87}\text{Sr}$  optical lattice clocks," *Opt. Express* **22**, 32199 (2014).
36. N. Nemitz, T. Ohkubo, M. Takamoto, I. Ushijima, M. Das, N. Ohmae, and H. Katori, "Frequency ratio of Yb and Sr clocks with  $5 \times 10^{-17}$  uncertainty at 150 seconds averaging time," *Nat. Photonics* **10**, 258–261 (2016).
37. K. Yamanaka, N. Ohmae, I. Ushijima, M. Takamoto, and H. Katori, "Frequency ratio of  $^{199}\text{Hg}$  and  $^{87}\text{Sr}$  optical lattice clocks beyond the SI limit," *Phys. Rev. Lett.* **114**, 230801 (2015).
38. B. J. Bloom, T. L. Nicholson, J. R. Williams, S. L. Campbell, M. Bishof, X. Zhang, W. Zhang, S. L. Bromley, and J. Ye, "An optical lattice clock with accuracy and stability at the  $10^{-18}$  level," *Nature* **506**, 71–75 (2014).
39. M. Pizzocaro, F. Bregolin, P. Barbieri, B. Rauf, F. Levi, and D. Calonico, "Absolute frequency measurement of the  $^1\text{S}_0$ - $^3\text{P}_0$  transition of  $^{171}\text{Yb}$  with a link to international atomic time," *Metrologia* **57**, 035007 (2020).
40. N. Ohmae, F. Bregolin, N. Nemitz, and H. Katori, "Direct measurement of the frequency ratio for Hg and Yb optical lattice clocks and closure of the Hg/Yb/Sr loop," *Opt. Express* **28**, 15112–15121 (2020).
41. A. Arvanitaki, J. Huang, and K. Van Tilburg, "Searching for dilaton dark matter with atomic clocks," *Phys. Rev. D* **91**, 015015 (2015).
42. Y. Hisai, K. Ikeda, H. Sakagami, T. Horikiri, T. Kobayashi, K. Yoshii, and F.-L. Hong, "Evaluation of laser frequency offset locking using an electrical delay line," *Appl. Opt.* **57**, 5628–5634 (2018).
43. J. J. McFerran, "Laser stabilization with a frequency-to-voltage chip for narrow-line laser cooling," *Opt. Lett.* **43**, 1475–1478 (2018).
44. G. Ritt, G. Cennini, C. Geckeler, and M. Weitz, "Laser frequency offset locking using a side of filter technique," *Appl. Phys. B* **79**, 363–365 (2004).
45. N. Strauß, I. Ernsting, S. Schiller, A. Wicht, P. Huke, and R. H. Rinkleff, "A simple scheme for precise relative frequency stabilization of lasers," *Appl. Phys. B* **88**, 21–28 (2007).
46. G. Puentes, "Laser frequency offset locking scheme for high-field imaging of cold atoms," *Appl. Phys. B* **107**, 11–16 (2012).

47. U. Schunemann, H. Engler, R. Grimm, M. Weidemuller, and M. Zielonkowski, "Simple scheme for tunable frequency offset locking of two lasers," *Rev. Sci. Instrum.* **70**, 242–243 (1999).
48. K. Komori, Y. Takasu, M. Kumakura, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, "Injection-Locking of Blue Laser Diodes and Its Application to the Laser Cooling of Neutral Ytterbium Atoms," *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, 5059–5062 (2003).
49. F. L. Hong, J. Ishikawa, Y. Zhang, R. Guo, A. Onae, and H. Matsumoto, "Frequency reproducibility of an iodine-stabilized Nd:YAG laser at 532 nm," *Opt. Commun.* **235**, 377–385 (2004).
50. Y. Hisai, D. Akamatsu, T. Kobayashi, S. Okubo, H. Inaba, K. Hosaka, M. Yasuda, and F.-L. Hong, "Development of 8-branch Er: fiber frequency comb for Sr and Yb optical lattice clocks," *Opt. Express* **27**, 6404–6414 (2019).
51. M. Yasuda, H. Inaba, T. Kohno, T. Tanabe, Y. Nakajima, and K. Hosaka, "Improved Absolute Frequency Measurement of the  $^{171}\text{Yb}$  Optical Lattice Clock towards the Redefinition of the Second," *Appl. Phys. Express* **5**, 102401 (2012).
52. T. Kobayashi, D. Akamatsu, Y. Hisai, T. Tanabe, H. Inaba, T. Suzuyama, F.-L. Hong, K. Hosaka, and M. Yasuda, "Uncertainty Evaluation of an  $^{171}\text{Yb}$  Optical Lattice Clock at NMIJ," *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **65**, 2449–2458 (2018).
53. H. Leopardi, J. Davila-Rodriguez, F. Quinlan, J. Olson, J. A. Sherman, S. A. Diddams, and T. M. Fortier, "Single-branch Er: fiber frequency comb for precision optical metrology with  $10^{-18}$  fractional instability," *Optica* **4**, 879–885 (2017).
54. N. Ohmae, N. Kuse, M. E. Fermann, and H. Katori, "All-polarization-maintaining, single-port Er: fiber comb for high-stability comparison of optical lattice clocks," *Appl. Phys. Express* **10**, 062503 (2017).
55. H. Inaba, Y. Daimon, F.-L. Hong, A. Onae, K. Minoshima, T. R. Schibli, H. Matsumoto, M. Hirano, T. Okuno, M. Onishi, and M. Nakazawa, "Long-term measurement of optical frequencies using a simple, robust and low-noise fiber based frequency comb," *Opt. Express* **14**, 5223–5231 (2006).
56. K. Kashiwagi, Y. Nakajima, M. Wada, S. Okubo, and H. Inaba, "Multi-branch fiber comb with relative frequency uncertainty at  $10^{-20}$  using fiber noise difference cancellation," *Opt. Express* **26**, 8831–8840 (2018).
57. H. Inaba, S. Yanagimachi, F.-L. Hong, A. Onae, Y. Koga, and H. Matsumoto, "Stability degradation factors evaluated by phase noise measurement in an

- optical-microwave frequency link using an optical frequency comb," *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **54**, 763–766 (2005).
58. D. J. Jones, S. A. Diddams, K. Ranka, Jinendra, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff, "Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis," *Science* **288**, 635–639 (2000).
  59. S. Okubo, K. Gunji, A. Onae, M. Schramm, K. Nakamura, F. L. Hong, T. Hattori, K. Hosaka, and H. Inaba, "All-optically stabilized frequency comb," *Appl. Phys. Express* **8**, 122701 (2015).
  60. Y. Nakajima, H. Inaba, K. Hosaka, K. Minoshima, A. Onae, M. Yasuda, T. Kohno, S. Kawato, T. Kobayashi, T. Katsuyama, and F.-L. Hong, "A multi-branch, fiber-based frequency comb with millihertz-level relative linewidths using an intra-cavity electro-optic modulator," *Opt. Express* **18**, 1667–1676 (2010).
  61. D. Akamatsu, M. Yasuda, T. Kohno, A. Onae, and F.-L. Hong, "A compact light source at 461 nm using a periodically poled LiNbO<sub>3</sub> waveguide for strontium magneto-optical trapping.," *Opt. Express* **19**, 2046–2051 (2011).
  62. J. H. Shirley, "Modulation transfer processes in optical heterodyne saturation spectroscopy," *Opt. Lett.* **7**, 537–539 (1982).
  63. R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward, "Laser Phase and Frequency Stabilization Using an Optical Resonator," *Appl. Phys. B* **31**, 97–105 (1983).
  64. H. Inaba, K. Hosaka, M. Yasuda, Y. Nakajima, K. Iwakuni, D. Akamatsu, S. Okubo, T. Kohno, A. Onae, and F.-L. Hong, "Spectroscopy of <sup>171</sup>Yb in an optical lattice based on laser linewidth transfer using a narrow linewidth frequency comb," *Opt. Express* **21**, 7891–7896 (2013).
  65. L.-S. Ma, P. Jungner, J. Ye, and J. L. Hall, "Delivering the same optical frequency at two places: accurate cancellation of phase noise introduced by an optical fiber or other time-varying path," *Opt. Lett.* **19**, 1777–1779 (1994).
  66. M. Takamoto, T. Takano, and H. Katori, "Frequency comparison of optical lattice clocks beyond the Dick limit," *Nat. Photonics* **5**, 288–292 (2011).
  67. T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, and M. Yasuda, "A rellocking scheme for optical phase locking using a digital circuit with an electrical delay line," *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 103002 (2019).
  68. C. J. Foot, *Atomic Physics* (2005).



69. H. Katori, T. Ido, Y. Isoya, and M. Kuwata-gonokami, "Magneto-Optical Trapping and Cooling of Strontium Atoms down to the Photon Recoil Temperature," *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1116–1119 (1999).
70. M. M. Boyd, "High Precision Spectroscopy of Strontium in an Optical Lattice: Towards a New Standard for Frequency and Time," PhD thesis (2007).
71. T. Mukaiyama, H. Katori, T. Ido, Y. Li, and M. Kuwata-Gonokami, "Recoil-Limited Laser Cooling of  $^{87}\text{Sr}$  Atoms near the Fermi Temperature," *Phys. Rev. Lett.* **90**, 113002 (2003).
72. S. Friebe, C. D'Andrea, J. Walz, M. Weitz, and T. W. Hänsch, " $\text{CO}_2$ -laser optical lattice with cold rubidium atoms," *Phys. Rev. A* **57**, R20–R23 (1998).
73. P. Lemonde and P. Wolf, "Optical lattice clock with atoms confined in a shallow trap," *Phys. Rev. A* **72**, 033409 (2005).
74. R. H. Dicke, "The Effect of Collisions upon the Doppler Width of Spectral Lines," *Phys. Rev.* **89**, 472–473 (1953).
75. M. Takamoto, F. L. Hong, R. Higashi, Y. Fujii, M. Imae, and H. Katori, "Improved frequency measurement of a one-dimensional optical lattice clock with a spin-polarized fermionic  $^{87}\text{Sr}$  isotope," *J. Phys. Soc. Japan* **75**, 104302 (2006).
76. 大久保拓哉, "イッテルビウム・ストロンチウム光格子時計の時計遷移周波数比測定," PhD thesis (2016).
77. S. Blatt, J. W. Thomsen, G. K. Campbell, A. D. Ludlow, M. D. Swallows, M. J. Martin, M. M. Boyd, and J. Ye, "Rabi spectroscopy and excitation inhomogeneity in a one-dimensional optical lattice clock," *Phys. Rev. A* **80**, 052703 (2009).
78. Y. Hisai, D. Akamatsu, T. Kobayashi, K. Hosaka, H. Inaba, F.-L. Hong, and M. Yasuda, "Improved frequency ratio measurement with  $^{87}\text{Sr}$  and  $^{171}\text{Yb}$  optical lattice clocks at NMIJ," *Metrologia* **58**, 015008 (2021).
79. I. Ushijima, M. Takamoto, and H. Katori, "Operational Magic Intensity for Sr Optical Lattice Clocks," *Phys. Rev. Lett.* **121**, 263202 (2018).
80. S. G. Porsev and A. Derevianko, "Multipolar theory of blackbody radiation shift of atomic energy levels and its implications for optical lattice clocks," *Phys. Rev. A* **74**, 020502 (2006).
81. M. S. Safronova, D. Jiang, B. Arora, C. W. Clark, M. G. Kozlov, U. I. Safronova, and W. R. Johnson, "Blackbody Radiation Shifts and Theoretical Contributions to Atomic Clock Research," *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **57**, 94–105 (2010).

82. T. Middelmann, S. Falke, C. Lisdat, and U. Sterr, "High accuracy correction of blackbody radiation shift in an optical lattice clock," *Phys. Rev. Lett.* **109**, 263004 (2012).
83. Joint Committee For Guides In Metrology, *Evaluation of Measurement Data — Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement* (2008).
84. G. K. Campbell, M. M. Boyd, J. W. Thomsen, M. J. Martin, S. Blatt, M. D. Swallows, T. L. Nicholson, T. Fortier, C. W. Oates, S. A. Diddams, N. D. Lemke, P. Naidon, P. Julienne, J. Ye, and A. D. Ludlow, "Probing interactions between ultracold fermions," **324**, 360–363 (2009).
85. M. J. Martin, "Quantum Metrology and Many-Body Physics : Pushing the Frontier of the Optical Lattice Clock," PhD thesis (2013).
86. M. M. Boyd, T. Zelevinsky, A. D. Ludlow, S. Blatt, T. Zanon-willette, S. M. Foreman, and J. Ye, "Nuclear spin effects in optical lattice clocks," *Phys. Rev. A* **76**, 022510 (2007).
87. J. Lodewyck, M. Zawada, L. Lorini, M. Gurov, and P. Lemonde, "Observation and cancellation of a perturbing dc Stark shift in strontium optical lattice clocks," *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **59**, 411–415 (2012).
88. W. M. Itano, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, J. M. Gilligan, D. J. Heinzen, F. L. Moore, M. G. Raizen, and D. J. Wineland, "Quantum projection noise: Population fluctuations in two-level systems," *Phys. Rev. A* **47**, 3554–3570 (1993).
89. G. Santarelli, C. Audoin, A. Makdissi, P. Laurent, G. John Dick, and A. Clairon, "Frequency stability degradation of an oscillator slaved to a periodically interrogated atomic resonator," *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **45**, 887–894 (1998).
90. A. Al-Masoudi, S. Dörscher, S. Häfner, U. Sterr, and C. Lisdat, "Noise and instability of an optical lattice clock," *Phys. Rev. A* **92**, 063814 (2015).
91. C. Grebing, A. Al-Masoudi, S. Dörscher, S. Häfner, V. Gerginov, S. Weyers, B. Lipphardt, F. Riehle, U. Sterr, and C. Lisdat, "Realization of a timescale with an accurate optical lattice clock," *Optica* **3**, 563–569 (2016).
92. M. Takamoto, I. Ushijima, M. Das, N. Nemitz, T. Ohkubo, K. Yamanaka, N. Ohmae, T. Takano, T. Akatsuka, A. Yamaguchi, and H. Katori, "Frequency ratios of Sr, Yb, and Hg based optical lattice clocks and their applications," *Comptes Rendus Phys.* **16**, 489–498 (2015).

93. N. Nemitz, T. Ohkubo, M. Takamoto, I. Ushijima, M. Das, N. Ohmae, and H. Katori, "Frequency ratio of Yb and Sr clocks with  $5 \times 10^{-17}$  uncertainty at 150 seconds averaging time," *Nat. Photonics* **10**, 258–261 (2016).
94. J. Grotti, S. Koller, S. Vogt, S. Häfner, U. Sterr, C. Lisdat, H. Denker, C. Voigt, L. Timmen, A. Rolland, F. N. Baynes, H. S. Margolis, M. Zampaolo, P. Thoumany, M. Pizzocaro, B. Rauf, F. Bregolin, A. Tampellini, P. Barbieri, M. Zucco, G. A. Costanzo, C. Clivati, F. Levi, and D. Calonico, "Geodesy and metrology with a transportable optical clock," *Nat. Phys.* **14**, 437–441 (2018).
95. M. Fujieda, S. H. Yang, T. Gotoh, S. W. Hwang, H. Hachisu, H. Kim, Y. K. Lee, R. Tabuchi, T. Ido, W. K. Lee, M. S. Heo, C. Y. Park, D. H. Yu, and G. Petit, "Advanced Satellite-Based Frequency Transfer at the  $10^{-16}$  Level," *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **65**, 973–978 (2018).
96. M. Pizzocaro, M. Sekido, K. Takefuji, H. Ujihara, H. Hachisu, N. Nemitz, M. Tsutsumi, T. Kondo, E. Kawai, R. Ichikawa, K. Namba, Y. Okamoto, R. Takahashi, J. Komuro, C. Clivati, F. Bregolin, P. Barbieri, A. Mura, E. Cantoni, G. Cerretto, F. Levi, G. Maccaferri, M. Roma, C. Bortolotti, M. Negusini, R. Ricci, G. Zacchiroli, J. Roda, J. Leute, G. Petit, F. Perini, D. Calonico, and T. Ido, "Intercontinental comparison of optical atomic clocks through very long baseline interferometry," *Nat. Phys.* **17**, 223–227 (2020).
97. D. Akamatsu, T. Kobayashi, Y. Hisai, T. Tanabe, K. Hosaka, M. Yasuda, and F.-L. Hong, "Dual-mode operation of an optical lattice clock using strontium and ytterbium atoms," *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **65**, 1069–1075 (2018).
98. R. Le Targat, X. Baillard, M. Fouché, A. Bruschi, O. Tcherbakoff, G. D. Rovera, and P. Lemonde, "Accurate optical lattice clock with  $^{87}\text{Sr}$  atoms," *Phys. Rev. Lett.* **97**, 130801 (2006).
99. A. D. Ludlow, M. M. Boyd, T. Zelevinsky, S. M. Foreman, S. Blatt, M. Notcutt, T. Ido, and J. Ye, "Systematic study of the  $^{87}\text{Sr}$  clock transition in an optical lattice," *Phys. Rev. Lett.* **96**, 033003 (2006).
100. M. M. Boyd, A. D. Ludlow, S. Blatt, S. M. Foreman, T. Ido, T. Zelevinsky, and J. Ye, " $^{87}\text{Sr}$  Lattice Clock with Inaccuracy below  $10^{-15}$ ," *Phys. Rev. Lett.* **98**, 083002 (2007).
101. X. Baillard, M. Fouché, R. Le Targat, P. G. Westergaard, A. Lecallier, F. Chapelet, M. Abgrall, G. D. Rovera, P. Laurent, P. Rosenbusch, S. Bize, G. Santarelli, A. Clairon, P. Lemonde, G. Grosche, B. Lipphardt, and H. Schnatz,

- "An optical lattice clock with spin-polarized  $^{87}\text{Sr}$  atoms," *Eur. Phys. J. D* **48**, 11–17 (2008).
102. G. K. Campbell, A. D. Ludlow, S. Blatt, J. W. Thomsen, M. J. Martin, M. H. G. De Miranda, T. Zelevinsky, M. M. Boyd, J. Ye, S. A. Diddams, T. P. Heavner, T. E. Parker, and S. R. Jefferts, "The absolute frequency of the  $^{87}\text{Sr}$  optical clock transition," *Metrologia* **45**, 539–548 (2008).
103. F. L. Hong, M. Musha, M. Takamoto, H. Inaba, S. Yanagimachi, A. Takamizawa, K. Watabe, T. Ikegami, M. Imae, Y. Fujii, M. Amemiya, K. Nakagawa, K. Ueda, and H. Katori, "Measuring the frequency of a Sr optical lattice clock using a 120 km coherent optical transfer," *Opt. Lett.* **34**, 692–694 (2009).
104. S. Falke, H. Schnatz, J. S. R. V. Winfred, T. Middelmann, and S. Vogt, "The  $^{87}\text{Sr}$  optical frequency standard at PTB," *Metrologia* **48**, 399–407 (2011).
105. K. Matsubara, H. Hachisu, Y. Li, S. Nagano, C. Locke, A. Nogami, M. Kajita, K. Hayasaka, T. Ido, and M. Hosokawa, "Direct comparison of a  $\text{Ca}^+$  single-ion clock against a Sr lattice clock to verify the absolute frequency measurement," *Opt. Express* **20**, 22034–22041 (2012).
106. R. Le Targat, L. Lorini, Y. Le Coq, M. Zawada, J. Guéna, M. Abgrall, M. Gurov, P. Rosenbusch, D. G. Rovera, B. Nagórny, R. Gartman, P. G. Westergaard, M. E. Tobar, M. Lours, G. Santarelli, A. Clairon, S. Bize, P. Laurent, P. Lemonde, and J. Lodewyck, "Experimental realization of an optical second with strontium lattice clocks," *Nat. Commun.* **4**, 2109 (2013).
107. S. Falke, N. Lemke, C. Grebing, B. Lipphardt, S. Weyers, V. Gerginov, N. Huntemann, C. Hagemann, A. Al-Masoudi, S. Häfner, S. Vogt, U. Sterr, and C. Lisdat, "A strontium lattice clock with  $3 \times 10^{-17}$  inaccuracy and its frequency," *New J. Phys.* **16**, 073023 (2014).
108. Y. G. Lin, Q. Wang, Y. Li, F. Meng, B. K. Lin, E. J. Zang, Z. Sun, F. Fang, T. C. Li, and Z. J. Fang, "First Evaluation and Frequency Measurement of the Strontium Optical Lattice Clock at NIM," *Chinese Phys. Lett.* **32**, 090601 (2015).
109. H. Hachisu and T. Ido, "Intermittent optical frequency measurements to reduce the dead time uncertainty of frequency link," *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 112401 (2015).
110. T. Tanabe, D. Akamatsu, T. Kobayashi, A. Takamizawa, S. Yanagimachi, T. Ikegami, T. Suzuyama, H. Inaba, S. Okubo, M. Yasuda, F. L. Hong, A. Onae, and K. Hosaka, "Improved Frequency Measurement of the  $^1\text{S}_0$ - $^3\text{P}_0$  Clock Transition in

- <sup>87</sup>Sr Using a Cs Fountain Clock as a Transfer Oscillator," *J. Phys. Soc. Japan* **84**, 115002 (2015).
111. J. Lodewyck, S. Bilicki, E. Bookjans, J.-L. Robyr, C. Shi, G. Vallet, R. Le Targat, D. Nicolodi, Y. Le Coq, J. Guéna, M. Abgrall, P. Rosenbusch, and S. Bize, "Optical to microwave clock frequency ratios with a nearly continuous strontium optical lattice clock," *Metrologia* **53**, 1123–1130 (2016).
112. H. Hachisu, G. Petit, and T. Ido, "Absolute frequency measurement with uncertainty below  $1 \times 10^{-15}$  using International Atomic Time," *Appl. Phys. B* **123**, 34 (2017).
113. H. Hachisu, G. Petit, F. Nakagawa, Y. Hanado, and T. Ido, "SI-traceable measurement of an optical frequency at the low  $10^{-16}$  level without a local primary standard," *Opt. Express* **25**, 8511–8523 (2017).
114. R. Schwarz, S. Dörscher, A. Al-Masoudi, E. Benkler, T. Legero, U. Sterr, S. Weyers, J. Rahm, B. Lipphardt, and C. Lisdat, "Long term measurement of the <sup>87</sup>Sr clock frequency at the limit of primary Cs clocks," *Phys. Rev. Res.* **2**, 033242 (2020).
115. R. Hobson, W. Bowden, A. Vianello, A. Silva, C. Baynham, H. S. Margolis, P. E. G. Baird, P. Gill, and I. R. Hill, "A strontium optical lattice clock with  $1 \times 10^{-17}$  uncertainty and measurement of its absolute frequency," *Metrologia* **57**, 065026 (2020).
116. K. R. Parameswaran, J. R. Kurz, R. V. Roussev, and M. M. Fejer, "Observation of 99% pump depletion in single-pass second-harmonic generation in a periodically poled lithium niobate waveguide," *Opt. Lett.* **27**, 43–45 (2002).

## 謝辞

指導教員である洪鋒雷教授には、私の学部時代からの6年間の研究生生活全体を通して様々な面で大変お世話になりました。最初にお世話になったのは洪先生が横浜国立大学に着任された直後のプレゼンテーション実習のときでした。その時点から考えると6年半にもわたって指導していただいたこととなります。私は洪研究室の1期生として、研究室の立ち上げという貴重な機会に恵まれ、1から研究を興していくことの面白さと大変さを経験させていただきました。大学院修士1年からは産業技術総合研究所の時間標準研究グループで共同研究させていただく機会を与えていただきました。さらにその際の交通費や滞在費を援助していただくなど、経済的にも支えていただきました。在学中には国内学会や国際会議で発表することも奨励していただき、学部4年の3月という比較的早い時期から日本物理学会で発表させていただきました。国際会議にも3度発表させていただき、初めての海外経験を積むことができました。博士1年の時にCLEOで発表した際には、研究の打ち合わせとしてコロラド州BoulderにあるNational Institute of Standards and Technology (NIST)とUniversity of Colorado、Joint Institute for Laboratory Astrophysics (JILA)を訪問し、Scott A. Diddams博士やThomas R. Schibli博士、Jun Ye博士、John L. Hall博士など数多くの世界トップレベルの研究者の方々と交流する、普通の学生生活ではあり得ないような機会をいただきました。この海外経験に刺激されて博士1年の時にはシンガポールの南洋理工大学に留学しましたが、洪研究室での研究とはほとんど関係のない研究内容にも関わらず、私の興味と意志を尊重していただき快く送り出していただきました。研究内容に関しては、大学院入学後は産総研での研究が主となりましたが、赤松博士や小林博士を交えて議論していただき、結果的に筆頭著者として3本の論文を出すことができました。本博士論文につきましても多くの助言をいただき、完成させることができました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門時間標準研究グループ主任研究員の赤松大輔博士には、私の受け入れ研究者として私の修士課程以降のすべての研究に携わっていただきました。基本的には光格子時計の実験は赤松博士の指導の下行いました。光格子時計という、学生が1人で動かすには非常に複雑な装置について1から手取り足取り教えていただき、一緒に実験を進めていく中で最終的に1人でSr光格子時計を動かせるまでに成長することができました。光格子時計の物理だけではなく、電気回路や装置の制御、データ処理など技術的な事柄についても教えていただきました。研究に関しては得られた結果や今後の研究の方針などについて毎日のように議論させていただきました。相手が学生であっても容赦なく反論や指摘をする赤松博士の姿勢により、科学者に必要な論理的思考を鍛えることができました。産総研で行った実験に関する投稿論文や会議の概要を執筆する際には非常に丁寧に添削をしていただ

き、科学的な文書の作成能力も向上させることができました。研究以外の部分では、赤松博士の持つ豊富な人脈により、学会発表や研究会の際に他大学・他研究機関の様々な研究者の方々と交流させていただくことができました。この経験により研究の楽しさにより深まり、一方で自分が将来どのような道を選択すべきか熟考するための材料となりました。また、私がシンガポールへの留学を検討していた際には、最も積極的に留学を進めてくださいました。赤松博士との出会いが無ければ今の私は存在しておらず、そもそも博士課程にすら進んでいなかったものと思います。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門時間標準研究グループ主任研究員の小林拓実博士には、赤松博士と並んで光格子時計について指導していただき、一緒に実験をさせていただきました。小林博士との出会いも洪先生と同じく私が学部3年の時の10月であり、当時洪教授の産学連携研究員であった小林博士に初歩的なことを教えていただきました。さらに、小林博士により産総研から異動し新設されたばかりの洪研究室の物品が整理され、私たち学生が研究室配属された際に円滑に実験を始めることができました。周波数安定化の研究も小林博士の協力があったことにより論文化するまでに発展させることができました。私が産総研で研究するようになってからは赤松博士と共に実験結果や今後の方針について議論させていただいたことや、一緒に実験を進めていただいたことにより私の研究に大きく貢献していただきました。特に、Yb/Sr 時計遷移周波数比測定の研究に関しては長期運転可能でほぼ常に稼働しているYb 光格子時計の存在により十分な量のデータを取ることができたため、このような洗練された装置を完成させていただいた小林博士のお力無くしては成し遂げられなかったものと思います。また、私の周りの産総研の研究員の方で最も歳が近かったのが小林博士であるため、小林博士の存在により自分の近い将来の研究者としての姿を想像することができました。

横浜国立大学工学研究院の吉井一倫助教（現徳島大学ポストLEDフォトンクス研究所特任准教授）には、主に横浜国立大学での実験でお世話になりました。吉井先生は私が学部4年の9月に洪研究室に異動され、業務で多忙な洪先生に代わって実験を細かく指導していただきました。1期生であったため研究のことがまだあまりよく分かっておらず質問できる人が限られていた当時の私にとって、吉井先生の存在は私の研究が本格化する転機になりました。CLEOに応募する際も、概要の添削のため締め切り当日の夜遅くまで一緒に作業していただきました。CLEOに参加した際はまだ海外に慣れない私と米国でほぼ常に行動を共にしていただき、無事に発表することができました。研究内容としては、私のテーマにおいては周波数安定化の実験を一緒に進めていただき、最終的に論文としてまとめることができました。さらに、私の研究テーマのみならず研究室全体の研究に関わっていただき、加えて優秀な後輩たちの努力もあり、1期生とし

て初期の段階に私が広く浅く関わった実験のすべてが論文の形で世に送り出される結果となりました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門副研究部門長の保坂一元博士には、主に Yb 光格子時計の長期運転維持においてお世話になりました。上述したように、Yb 光格子時計が長期にわたって安定に動いていなければ Yb/Sr 時計遷移周波数比測定の実験は非常に困難なものとなったと予想されます。Yb 光格子時計の安定な長期運転は、時計が止まった際に保坂博士が忙しい合間を縫ってすぐに駆け付けてくださり、メンテナンスしてくださったことやその結果得られた様々な知見の蓄積によるものが成功の一因となったと思います。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門時間標準研究グループ研究グループ長の安田正美博士には、光格子時計の実験において助言をいただきました。グループ内の年長の研究者として、私や赤松博士とはまた違った俯瞰的な視点からの意見を得ることができました。また、私がまだ光格子時計のことをあまり理解していない学部4年生のときに、安田博士の著書『1秒って誰が決めるの?』を拝読し、より一層光格子時計に興味を持つきっかけとなりました。さらに、私が博士1年のときに出版された『単位は進化する』も拝読し、計量標準全般にも興味を持つようになりました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門時間標準研究グループ主任研究員の田邊健彦博士には、Sr 光格子時計の実験においてご指導いただきました。私が光格子時計に触れるようになった最初のうちは、田邊博士に作成していただいた Sr 光格子時計の操作の手順書を読みながら学ばせていただきました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門光周波数計測研究グループ研究グループ長の稲場肇博士には、8 ブランチコムの実験や光格子時計の実験において助言をいただきました。光周波数コムの作成は、光周波数コムが非線形性を用いていることもあり理論的な予測が難しい面がありますが、稲場博士が長年光周波数コムの研究に携わられてきたことによる豊富な知見があるからこそ可能な経験則的な助言を度々いただき、結果的に8 ブランチコムを完成させ論文にまとめることができました。また、私が学会発表の概要や論文を執筆し添削を依頼した際には、お忙しいところにも関わらずいつも丁寧に細部まで目を通していただきご指摘をいただきました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門光周波数計測研究グループ主任研究員の大久保章博士には、8 ブランチコムの実験においてお世話になりました。光周波数コムのプロフェッショナルとして8 ブランチコムの作成の際に多くの助言をいただいただけでなく、高非線形ファイバーなどの必要な物品を提供していただき、大久保博士の支援がなければ8 ブランチコムは到底完成しなかったものと思います。また、横浜国立大学における実験にも多大なる貢献をしていただき、特に私が関わ



った研究のうち導波路型 PPLN の実験と狭線幅光周波数コムの実験は大久保博士のお力無くしては論文として発表するまでに至らなかったと思います。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門光周波数計測研究グループ研究員の和田雅人博士には、洪研究室の博士課程の先輩として見習わせていただきました。これまで洪研究室には博士号取得者はいませんでした。和田博士が最初の例となったことで博士論文の審査までのスケジュール感や必要な手続きなどを知ることができました。研究内容に関しては和田博士はファイバー干渉計や周波数安定度の評価に精通しており、ゼミなどにおいて学生目線の非常にわかりやすい説明をしていただいたことにより私のみならず多くの学生の理解の助けとなりました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門光周波数計測研究グループ主任研究員の柏木謙博士には研究内容においては直接のつながりはありませんが、隣のグループということもあり産総研において日常的にお世話になりました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門時間標準研究グループ前アシスタントの阿部亜希子様には、私が産総研で研究する上での事務手続き等を行っていただきました。特に産総研つくばセンター内にある宿泊施設であるさくら館の宿泊手続きを毎週滞りなく行っていただき、産総研での研究を支障なく進めることが出来ました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門量子計測基盤研究グループ主任研究員の衛藤雄二郎博士（現京都大学准教授）には、WG-PPLN の実験において助言をいただきました。それ以外にも昼食の際に赤松博士、小林博士らとともに物理についてなど様々な議論をしていただき、私の研究生活を豊かなものにしていただきました。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門時間標準研究グループ主任研究員の故・鈴木智也博士には、光格子時計の実験において絶対に欠かすことのできない根幹を担う UTC(NMIJ)の維持にご尽力していただきました。UTC(NMIJ)が適切に維持されていなければ、当然ながら私の実験は遂行不可能になったと思われま

す。

産業技術総合研究所計量標準総合センター物理計測標準研究部門光周波数計測研究グループ（前周波数計測研究グループ）上級主任研究員の故・大苗敦博士には、修士時代の私の研究などについてよく議論させていただきました。知的好奇心の塊のような大苗博士の姿を見て、私も知的探求を楽しめる研究者になりたいと思うようになりました。

洪研究室の秘書である富士多佳子様には私の研究生活を事務的な面から支えていただきました。特に私の旅費の精算や、物品の購入の手続きをいつも快く引き受けてくださり、円滑に研究を進めることができました。また、私を含め研究室の学生の話し相手になっていただき、研究室の居心地の良さを保つことや治安維持に貢献していただきま

した。福士様がいなければ今の私どころか、今のような洪研究室は無かったものと思います。

洪研究室の同期の池田幸平君は、学部4年のときからの周波数安定化レーザーの実験を共に行いました。当時の彼は堀切研究室に所属しており、量子通信用のレーザーの開発を目指す堀切研究室との共同研究といった形でした。お互いに主に扱う装置は違いましたが、お互いの装置で協力しなければ出来ない実験であったため頻繁に一緒に作業していました。

横浜国立大学工学研究院准教授の堀切智之准教授とは、上記の周波数安定化レーザーの研究において共同研究させていただきました。共同研究中は吉井先生と共に実験を指導していただき、当時学部4年生で研究に関して未熟だった私にとって非常に助けになりました。本研究の第2章で登場した小型固体レーザーは堀切研究室のものを使わせていただきました。また、本論文の審査委員に加わっていただきました。

NTT エレクトロニクス株式会社の西田好毅博士には Appendix で述べた波長 461 nm の2次高調波発生用の WG-PPLN モジュールを提供していただきました。我々のグループで用いていた WG-PPLN モジュールは出力パワーが安定しないという問題があり、この問題を将来的に解決できると期待されます。また、提供していただいた WG-PPLN モジュールの情報や評価結果を本論文中に記載することを快諾していただきました。

電気通信大学情報理工学研究科情報理工学域基盤理工学専攻の美濃島薫教授には、ERATO 美濃島知的光シンセサイザプロジェクトを通じてお世話になりました。特に私が学部時代から始めた周波数安定化レーザーの研究は、ERATO の支援もあり成し遂げられたものです。また、プロジェクトを通じて電気通信大学や徳島大学などの研究者や学生と交流する機会を得ることができ、私の研究生生活を豊かなものにしていただきました。シンガポールで開かれた CLEO Pacific-Rim で発表した際は、南洋理工大学やシンガポール国立大学の見学に参加させていただき、そのときに Kim 先生と出会ったことが留学のきっかけとなり、結果的に私の人生を大きく変える機会をいただきました。

本論文の内容とは直接関係はありませんが、シンガポールの Nanyang Technological University (NTU), School of Mechanical and Aerospace Engineering の Kim Young Jin 博士（現 Korea Advanced Institute of Science and Technology (KAIST) Assistant Professor）には、留学生として受け入れていただき大変感謝しております。シンガポールでの留学経験があったからこそ自分の研究能力がこれまでの次元を超えて成長し、本研究を成し遂げることに繋がったと考えています。

筆者は博士課程後期2年次から日本学術振興会の特別研究員 DC2 に採用され、研究奨励金の支援と研究費の給付を受けました。また、博士課程1年次には文部科学省が主宰するトビタテ！留学 JAPAN 日本代表プログラムに採用され、本プログラムの支援によりシンガポールの Nanyang Technological University に留学することができました。

これらの支援が無ければ私の博士課程での研究生生活は成り立たなかったと考えており、大変感謝しております。

本論文の審査委員には堀切准教授に加え、武田教授、片山教授、関谷教授に加わっていただきました。お忙しい中私の博士論文の審査のために時間を取っていただき、談話会や予備審査の際に様々なコメントをいただいたことにより本論文の完成度を高めることができました。心から御礼申し上げます。

その他本研究では研究室の学生の皆様、産総研の関係者の皆様、ERATO の関係者の皆様など多くの方々にお世話になりました。心より感謝申し上げます。