

博士論文

高性能な小型光周波数標準に関する研究

(Study on high-performance and compact
optical frequency standards)

横浜国立大学大学院

理工学府

野邑 寿仁亜

(Junia Nomura)

2024年3月

目次

第1章 序論	4
1.1 光周波数標準	4
1.1.1 Yb 光格子時計	7
1.1.2 ヨウ素安定化レーザー	9
1.2 光周波数コム	11
1.3 光周波数標準の応用	12
1.3.1 精密計測応用	12
1.3.2 光通信応用	12
1.3.3 時空間センシング応用	13
1.4 本研究の目的と論文の構成	14
1.4.1 本研究の目的	14
1.4.1 本論文の構成	15
第2章 原理	17
2.1 原子分子分光の理論	17
2.1.1 電場と原子のコヒーレント相互作用	17
2.1.2 自然幅	19
2.1.3 圧力幅	20
2.1.4 通過時間幅	20
2.1.5 飽和幅	20
2.1.6 ドップラー幅	21
2.2 ドップラーフリー分光	22
2.2.1 飽和吸収分光	22
2.2.1 Modulation transfer 分光	24
2.3 半導体レーザーの雑音特性と評価の理論	31
2.3.1 強度雑音	31
2.3.2 周波数雑音	32
2.3.3 アラン標準偏差	33
2.4 光周波数コムと光周波数計測の理論	36
2.4.1 光周波数コム	36
2.4.2 光周波数コム非線形偏波回転	37
2.4.3 ビート信号検出	38
2.4.4 位相同期	38
2.4.5 自己参照法によるキャリアエンベロープオフセット周波数 f_{CEO} の計測	40
2.4.6 光周波数コムの安定化	40

2.4.6	光周波数コムを用いた絶対光周波数計測	43
2.5	イッテルビウム原子分光の理論	45
2.5.1	微細構造	45
2.5.2	超微細構造	46
2.5.3	選択則	46
2.5.2	同位体シフト	47
2.6	ヨウ素分子分光の理論	48
2.6.1	振動エネルギー	48
2.6.2	振動回転エネルギー	48
2.6.3	2原子分子の電子状態の表記	50
2.6.4	波動関数の対称性	50
2.6.5	ヨウ素分子の超微細構造	52
2.6.6	超微細構造遷移の選択則	53
2.6.7	超微細構造ハミルトニアン	54
2.7	ファイバー干渉計の理論	55
2.7.1	ファイバー干渉計による周波数雑音の F-V 変換と狭線幅制御	55
2.7.2	ファイバー干渉計の温度変動	59
2.7.3	ピエゾアクチュエーターのダイナミックレンジ	60
2.8	磁気光学トラップ(MOT)の理論	61
2.8.1	注入同期	61
2.8.2	磁気光学トラップ(MOT)	62
2.8.3	磁気光学トラップ(MOT)用コイル	64
第3章	超小型半導体レーザーモジュールのヨウ素安定化	66
3.1	超小型半導体レーザーモジュールの基本特性	67
3.2	ヨウ素分子の超精密分光に向けた分光系構成	68
3.3	ヨウ素分子の Modulation transfer 分光信号特性	70
3.4	ヨウ素安定化レーザーの周波数安定度評価	71
3.4.1	ヨウ素安定化レーザーの線幅評価	71
3.4.2	ヨウ素安定化レーザーのアラン標準偏差評価	72
3.5	絶対周波数計測に向けた系統不確かさ評価	73
3.5.1	ポンプ光のパワー変動により生じる周波数シフト	73
3.5.2	ヨウ素セル内の圧力変化により生じる周波数シフト	74
3.5.3	エラー信号のオフセット電圧変化により生じる周波数シフト	74
3.5.4	ポンプ・プローブ光のミスアライメントにより生じる周波数シフト	75
3.5.5	ヨウ素セル内不純物により生じる周波数不確かさ	76
3.6	第3章のまとめ	76

第 4 章 超小型半導体レーザーモジュールのハイブリッド周波数制御.....	77
4.1 ファイバー干渉計を用いた超小型レーザーモジュールの狭線幅化	78
4.1.1 実験セットアップ.....	78
4.1.2 狭線幅化の最適化	80
4.2 ハイブリッド制御系の開発.....	86
4.2.1 ファイバー共有型ヨウ素分光系の開発	86
4.2.2 ヨウ素分光系を利用したハイブリッド制御.....	89
4.3.3 ハイブリッド制御された超小型半導体レーザーの絶対周波数計測.....	94
4.4 まとめ.....	95
第 5 章 小さな Yb 原子レーザー冷却装置の開発	96
5.1 Hollow cathode lamp を用いた 399 nm 安定化レーザーの開発.....	99
5.1.1 Modulation transfer 分光系の構成.....	99
5.1.2 Modulation transfer 信号の観測と周波数安定化	100
5.2 注入同期を用いた周波数安定化レーザーの光増幅とトラップ光ビームの開発	103
5.2.1 冷却用レーザーシステムの構築.....	103
5.2.2 Slave レーザーの実装.....	104
5.2.3 注入同期を用いた高出力化	105
5.2.4 MOT 用レーザービーム(MOT beams)の開発.....	111
5.2.5 減速用レーザービーム(Longitudinal cooling beam)の開発	113
5.3 ディスペンサーを用いた原子線源の開発と評価	115
5.3.1 Yb ディスペンサーの実装	115
5.3.2 Yb ディスペンサーのアクティベーション	117
5.3.3 Yb 原子ビームの蛍光観測	118
5.4 磁気光学トラップによる Yb 原子のレーザー冷却.....	121
5.4.1 MOT 用アンチヘルムホルツコイルの開発	121
5.4.2 MOT 光学系の構成	124
5.4.3 MOT 光学系の初期調整	127
5.4.4 MOT パラメーターの最適化と性能評価.....	128
5.4.5 Yb 同位体の MOT 信号観測.....	132
5.4.6 MOT の収率評価	133
5.5 第 5 章のまとめ	134
第 6 章 総括	135
参考文献	137
謝辞	146
研究成果	147

第 1 章 序論

1.1 光周波数標準

周波数(時間)は SI 単位系の 7 つの基本単位の一つであり, あらゆる計測量の中で最も高い精度を誇る単位であり, 周波数(時間)標準は計量標準の根幹を担っている[1, 2]. 周波数標準の身近な応用例の一つに, 衛星測位システム, 特に全地球測位システム(Global positioning system: GPS)が挙げられる. GPS は携帯電話や車の一般測位にとどまらず, 地殻変動や地球科学観測といった幅広い分野で利用されている. このシステムでは, 衛星に搭載された周波数標準(一般的にはルビジウム(Rb)原子時計やセシウム(Cs)原子時計)から生成された高精度なマイクロ波信号を複数利用することで信号受信者の位置を特定している. GPS では衛星位置と原子時計精度が測位基準となる. そこで, 協定世界時(UTC)や原子時計の時系である国際原子時(TAI)に準拠した時系を有する地上基地局を介して, 衛星の軌道決定や時計の高精度同期が実行される[1, 3, 4].

時間を測る装置(すなわち時計)は, 周期現象をともなう発振器とその周期を測定するカウンターで構成される. 例えば一次周波数標準器として利用される Cs 原子時計[5]には, 原子ビーム方式あるいは原子泉方式[6]で得られたラムゼー共鳴スペクトルに対応した周波数のマイクロ波を発生させる発振器が備えられている. 一方で, 近年ではより高いキャリア周波数を有するレーザーを周波数標準の発振器として活用する試みがなされている[1]. レーザーの発振周波数は, 光共振器の熱膨張等の影響を受けて一定に保つことが出来ずに変化する. この光周波数の時間的な変動特性を表す指標として, 線幅(ミリ秒), ジッター(秒), そしてドリフト(時間)の 3 つのパラメーターがしばしば利用される. 周波数標準の開発においては, 分光を通して観測された量子力学により決定される原子や分子, イオンのエネルギー準位を基準とした制御を施すことで, 発振器の周波数変動を抑制させる[1].

分光学は光と物質の相互作用の周波数特性を通して物性を研究する学問であり, 1960 年代に誕生したレーザーによって大きな進歩を遂げた. レーザーは単色性に優れた高強度なコヒーレント光を発生させる光源であり, 波長や偏光の制御による分子状態の選択的励起を可能にした. 気相原子分子集団に対してレーザーを照射する分光手法では, ドップラー効果によるスペクトル幅の不均一広がりの影響を受けて分解能が制限される. そこで 1960 年代後半にはレーザーの特性を活かして, ドップラー幅による分解能の制限を超えた超精密分光として飽和吸収分[7]や二光子分光[8], 原子ビームに対して垂直に光を入射して蛍光信号を取得する[9]などのドップラーフリー分光法が確立された. これらはいずれも, 空間中を動く原子分子, イオンから入射光に対して光の進行方向の速度成分が相対的に 0 となる集団を選択して分光することで, ドップラー効果を除去する手法である. 一方で 1980 年代にはレーザー冷却技術が開発され[10], 原子の運動エネルギーを奪い, 速度を大幅に遅くすることでドップラー効果を抑制し, トラップすることが容易になった. さらにイオントラップ[11]や光格子[12]を導入してそのトラップポテンシャルの底に原子やイオンを束縛することで, ドップラー効果の除去と相互作用時間の増大が両立され, 高い信号対雑音比(Signal to noise ratio: SNR)で狭線幅遷移の分光が可能となった.

光周波数標準とは, 光波長域における原子や分子, イオンの基底状態と励起状態間の量子遷移

を光周波数の基準として用いる周波数標準を指す。一般的に、ある光周波数基準を参照して光周波数が制御されたレーザーを、周波数安定化レーザーと呼ぶ。そのため、光周波数標準は周波数安定化レーザーの一種であると言える。光周波数の基準となる原子や分子、イオンの基底状態と励起状態間の量子遷移を精密かつ高分解能に測定するため、光周波数標準の開発にはレーザー分光学の技術が活用されている。周波数標準の性能は、「正確さ」と「安定度」により評価される。量子遷移を基準として制御された発振器の周波数とそこからのズレ量をそれぞれ ν_0 と $\delta\nu$ として、「正確さ」は $\delta\nu/\nu_0$ で与えられる。 $\delta\nu$ は電場や磁場、黒体輻射などの外部要因や、原子間衝突などの影響で発生する。量子遷移の基底/励起準位が一定の摂動を受けて周波数ズレが生じる場合、遷移周波数が高いほど相対的にそのズレの影響が小さくなる。その一方で、キャリア周波数 ν_0 を有する発振器の「安定度」は一般に、式(1.1.1)のアラン標準偏差として示される。

$$\sigma = \frac{\Delta\nu}{\nu_0} \frac{1}{\sqrt{N\tau}} \quad (1.1.1)$$

ここで、 $\Delta\nu$ は測定される量子遷移のスペクトル幅、 N は単位時間あたりに観測される原子数、 τ は平均(積算)時間である。高いキャリア周波数の周波数標準の周波数を測定するほうが、短い時間で高い周波数安定度を達成することが可能である。セシウム原子の基底状態の超微細構造遷移で定義された9192631770 Hzのマイクロ波周波数標準と比較して、光周波数標準のキャリア周波数は5桁程度高いため、原理的により高い周波数の「正確さ」と「安定度」が期待される。ゆえに、新しい秒の定義を提供する次世代の周波数標準として、世界各国で光周波数標準の研究が進められている[1, 2]。特に、冷却中性原子集団を用いた光格子時計[12]とイオントラップ中の冷却イオンを用いた単一イオン時計[11]が競い合っており、いくつかの光周波数標準は秒の再定義の候補リストである「秒の二次表現」として認められている。表 1.1 に、国際度量衡委員会が勧告する光周波数標準を示す[13]。

表 1.1. 国際度量衡委員会が勧告する光周波数標準. ([2, 13]をもとに作成.)

波長	種別	周波数基準	周波数	不確かさ	分光
237 nm	$^{115}\text{In}^+$	$^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_0$	1267402452901050 Hz	1.6×10^{-14}	イオン
243 nm	^1H	1S - 2S	1233030706593514 Hz	9×10^{-15}	ビーム
266 nm	^{199}Hg	$^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_0$	1128575290808154.4 Hz	5×10^{-16}	光格子
267 nm	$^{27}\text{Al}^+$	$^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_0$	1121015393207857.3 Hz	1.9×10^{-15}	イオン
282 nm	$^{199}\text{Hg}^+$	$^2\text{S}_{1/2}(\text{F}=0)\text{-}$ $^3\text{D}_{5/2}(\text{F}=2)$	1064721609899145.30 Hz	1.9×10^{-15}	イオン
436 nm	$^{171}\text{Yb}^+$	$^2\text{S}_{1/2}(\text{F}=0)\text{-}$ $^3\text{D}_{3/2}(\text{F}=2)$	688358979309308.3 Hz	6×10^{-16}	イオン
467 nm	$^{171}\text{Yb}^+$	$^2\text{S}_{1/2}(\text{F}=0)\text{-}$ $^2\text{F}_{7/2}(\text{F}=3)$	642121496772645.0 Hz	6×10^{-16}	イオン
515 nm	$^{127}\text{I}_2$	P(13)43-0 a ₃	582490603442 kHz	8.6×10^{-12}	飽和吸収
531 nm	$^{127}\text{I}_2$	P(56)32-0 a ₁	564074632.42 MHz	1×10^{-10}	飽和吸収
532 nm	$^{127}\text{I}_2$	R(56)32-0 a ₁₀	563260223513 kHz	8.9×10^{-12}	飽和吸収
543 nm	$^{127}\text{I}_2$	R(106)28-0 a ₁₀	551580162400 kHz	4.5×10^{-11}	飽和吸収
576 nm	$^{127}\text{I}_2$	P(62)17-1 a ₁	520206808.4 MHz	4×10^{-10}	飽和吸収
578 nm	^{171}Yb	$^1\text{S}_0(\text{F}=1/2)\text{-}$ $^3\text{P}_0(\text{F}=1/2)$	518295836590863.6 Hz	5×10^{-16}	光格子
612 nm	$^{127}\text{I}_2$	R(47)9-2 a ₇	489880354.9 MHz	3×10^{-10}	飽和吸収
633 nm	$^{127}\text{I}_2$	R(127)11-5 a ₁₆	473612353604 kHz	2.1×10^{-11}	飽和吸収
640 nm	$^{127}\text{I}_2$	P(10)8-5 a ₉	468218332.4 MHz	4.5×10^{-10}	飽和吸収
657 nm	^{40}Ca	$^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_1; \Delta m=0$	455986240494140 Hz	1.8×10^{-14}	冷却原子
674 nm	$^{88}\text{Sr}^+$	$^2\text{S}_{1/2}\text{-}^2\text{D}_{5/2}$	444779044095486.5 Hz	1.5×10^{-15}	イオン
698 nm	^{88}Sr	$^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_0$	429228004229873.0 Hz	4×10^{-16}	光格子
729 nm	$^{40}\text{Ca}^+$	$^2\text{S}_{1/2}\text{-}^2\text{P}_{5/2}$	411042129776399.8 Hz	2.4×10^{-15}	イオン
778 nm	^{85}Rb	$\text{S}_{1/2}(\text{F}=3)\text{-D}_{5/2}(\text{F}=5)$	385285142375 kHz	1.3×10^{-11}	二光子 吸収
780 nm	^{87}Rb	$\text{S}_{1/2}\text{-D}_{3/2}$	384227981.9 MHz	5×10^{-10}	飽和吸収
1.54 μm	$^{13}\text{C}_2\text{H}_2$	P(16)(v ₁ +v ₃)	194369569384 kHz	2.6×10^{-11}	飽和吸収
3.39 μm	CH_4	P(7)v ₃ :F ₂ (²)	88376181600.18 kHz	3×10^{-12}	飽和吸収

ただし表中でイオンは単一イオントラップを, ビームは原子ビームに対する二光子吸収分光を示す。

1.1.1 Yb 光格子時計

単一イオン時計[11]とは、レーザー冷却されたのちにイオントラップの電場ポテンシャルの最低振動状態に近い波長以下の空間に閉じ込められ一次のドップラー広がりが無くなった（ラムディッケ束縛）状態の1個のイオンの量子遷移を観測し、光周波数制御された光周波数標準である。イオントラップ領域では外界との相互作用をコントロールして摂動の影響を回避することが可能である特徴がある。一方で、単一イオン(N=1)からの信号を利用するため、量子射影雑音が大きく、高い周波数安定度を獲得するためには積算時間を長く稼ぐ必要がある[14]。

一方で光格子時計[12]は単一イオン時計と異なり、光格子を用いてラムディッケ領域にトラップされた多数(典型的には 10^6 個程度)の原子の量子遷移を一括に観測することで、高い「正確さ」と「安定度」を両立する特徴を有する。このとき、光格子レーザーの電場中の原子が受けるシュタルクポテンシャルを設計し、対象となる量子遷移の上下準位のポテンシャルが一致するような波長(これを魔法波長と呼ぶ)のレーザー光で光格子を形成し、電場ポテンシャルからの量子遷移周波数のシフトを実効的に除去する[15]。 ^{87}Sr 原子の $^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_0$ を光周波数標準として利用した Sr 光格子時計が 2005 年に報告され[12]、わずか数年後に秒の 2 次表現として採択されるに至っている。 ^{171}Yb 原子の $^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_0$ を光周波数標準として利用した Yb 光格子時計は 2009 年に産業総合技術研究所から報告され、同様に秒の 2 次表現として採択されている[16]。Yb 原子は Sr 原子と比較して、

- (1). 原子核スピンの $1/2$ であり磁場の影響を受けず、準位構造が単純となりリポンプ光が不要となる
- (2). 室温での黒体輻射由来のシフトが Sr と比較して小さい
- (3). スピン禁制遷移の自然幅が比較的大きく、光格子へ原子を導入するための 2 次冷却が容易である

などの特徴を有し、各研究機関で Yb 光格子時計の研究が進められている[17 - 21]。小型化や可搬化という視点では Sr 光格子時計の方が先行しており [22 - 26]、Yb 光格子時計がそれに追従している[27, 28]。

レーザー冷却 Yb 原子集団はすでに述べた光格子時計のみならず、量子シミュレーション[29]や量子コンピューター[30]、原子波干渉計[31]など様々な研究分野で活用される。要求される冷却原子数や原子雲温度は研究に応じて異なるが、いずれの場合であっても磁気光学トラップ(MOT)により原子集団を捕捉および冷却する必要がある。それを実現する装置は一般的に大型かつ煩雑であり、装置群の小型化や簡便化は常に要求される。MOT とは、共鳴周波数よりもわずかに負に離調された円偏光の光と MOT コイルを用いて、ドップラー冷却効果を働かせつつゼーマン効果を用いて四重極磁場のゼロ点に原子を捕捉する手法である。一般的には原子線を生成する原子線源とコイルを含む真空装置と、冷却用レーザーで MOT 装置は構成される。レーザー冷却装置の小型化や簡便化に関する研究は、主にレーザー冷却の容易なアルカリ金属を対象として進められている。原子線源に注目すると、3D プリンターで自作されたディスペンサーを原子線源として利用した Li 原子の MOT[32]が挙げられる。レーザー冷却機構に注目すると、より簡便かつコンパクトな光学系で MOT を達成する手法として、ピラミッド形状にくぼんだミラーへ適切な円偏光を垂直入射して四重極磁場の中心位置で原子を 4 方向からトラ

ップするピラミッド型 MOT(P-MOT)[33]や、ミラーの代わりに回折格子を利用するグレーティング MOT(G-MOT)[34]などが挙げられる。これらの研究は将来的に Sr 原子や Yb 原子のレーザー冷却にも適用される可能性がある。アルカリ土類金属のレーザー冷却装置の小型化や簡便化に関する研究もすでにいくつか存在する。原子線源に注目すると、可搬型光格子時計の開発の一環として、真空内にヒーターを導入することで原子オーブンの低消費電力化が報告された[35]。また、加熱式の原子オーブンではなく、酸化 Yb の光誘起原子脱離現象を利用して獲得された気相 Yb 原子の MOT が報告されている[36]。レーザー冷却機構に注目すると、Yb 原子ビームを Zeeman slower 無しでトラップさせる研究[37]や、トラップに必要な磁場勾配を小さくすることを目的として 1 次冷却光と 2 次冷却光を同時に MOT チェンバー内に照射する 2 色 Yb MOT の研究[38]が報告されている。

1.1.2 ヨウ素安定化レーザー

原子やイオンと異なり、分子は振動や回転など内部自由度が豊富であるがゆえにエネルギー準位構造が複雑であり、レーザー冷却による極低温分子の生成とトラップが困難であることが知られている。冷却分子の生成方法として、2 つ以上の極低温原子を会合させて極低温分子を生成する技術に関する研究が報告されているものの、冷却分子への分光により観測された量子遷移は CIPM に光周波数標準として採択されていない。表 1.1 に示すように、光周波数標準として採択された量子遷移を有する分子はヨウ素、アセチレン、メタンの 3 種であり、いずれの分子についても飽和吸収分光により量子遷移の観測と周波数安定化が実現されている。特にヨウ素分子は紫外から赤外にかけて強い吸収量を有する量子遷移が豊富に存在し、古くから分光学的研究対象とされてきた。ヨウ素分子の高分解能分光は、ヨウ素分子の量子力学的構造やその物性値の決定に寄与するなど、原子分子物理学において重要な役割を果たす。さらにヨウ素分子の吸収線のうちいくつかは光周波数基準として利用され、分光学のみならず長さ計測やレーザーセンシングなどの様々な分野で活用されてきた。

波長 633 nm の He-Ne レーザー(線幅 ~ 10 kHz)や波長 532 nm の Nd:YAG レーザー(線幅 ~ 1 kHz)は、絶対周波数マーカ[39]や精密計測[40, 41]、重力波干渉計測[42-44]の光源として利用されてきた。特に Nd:YAG レーザーを光源としたコンパクトな周波数安定化レーザーシステムは高い周波数安定度(10^{-13})を誇る。産業技術総合研究所にて、アタッシュケースに入れて飛行機に持ち込むことを想定して開発された 30 cm \times 45 cm サイズの可搬型ヨウ素安定化レーザーは、当時の光周波数標準の国際比較に大きく貢献した[45, 46]。一方でこのようなヨウ素安定化レーザーは、Nd:YAG レーザーによりサイズが 10 cm \times 10 cm \times 10 cm(縦 \times 横 \times 高さ)程度に制限され、比較的高価かつアクセス可能な波長域が狭いという欠点を有する。近年の微細加工技術の向上により、入手性と信頼性が向上した半導体レーザー光源は Nd:YAG レーザーに比べて線幅が悪い一方で、小型かつ安価であり、さらに波長可変領域が広いという特長がある。そのため、従来ではアクセスの難しかった波長域での超精密分光と光周波数標準の構築を、より小型な実験系で達成可能である。実際に、波長 514 nm[47]、531 nm [48, 49]、548 nm[50]、556 nm[51]、647 nm[52]において半導体レーザーを用いたヨウ素分子の超微細構造遷移の観測が実施されている。半導体レーザーを利用する場合のほとんどでは、狭線幅なレーザーによるドップラーフリー分光を達成するために外部共振器半導体レーザー(External cavity diode laser: ECDL)が利用された[47, 49 - 52]。ECDL は非通信波長帯域では自作する必要があり、通信波長帯域では堅牢ではあるが波長ダイナミックレンジが小さい高価な製品を入手することもできる。その一方で、波長 531 nm では周波数雑音の大きい DFB レーザー(線幅 ~ 2 MHz)を種光源としたコインサイズの低価格なコンパクトレーザーモジュールを利用した、飽和吸収分光とヨウ素安定化が達成され、周波数安定度は 5×10^{-11} と報告された[48]。さらにこの研究で観測されたヨウ素分子の P(56)32-0 a_1 の絶対周波数は、光周波数標準の勧告値として採択されるまでに至っている。後にはこのヨウ素安定化レーザーを利用した、ゲージブロック干渉も報告されている[53]。

真空装置が不要であり、さらにガスセルを共振器に挿入するなど特殊な構成を用いずとも、100 kHz オーダーの自然幅を有する狭線幅量子遷移に対するドップラーフリー分光が容易に達成され、周波数

安定度が 10^{-15} レベルにまで到達可能であるため、産業用光周波数標準の基準対象としてヨウ素分子は魅力的である。実際に、衛星-衛星(地上)間通信における時間基準としての活用が見込まれ、飛翔体に搭載する光周波数標準としてのヨウ素安定化レーザーの研究開発が実施されている[54 - 57]。あるいはヨウ素分光系のオールファイバー化に向けた、中空ファイバーに封入されたヨウ素分子に対するドップラー分光の研究も報告されている[58]。

1.2 光周波数コム

光周波数は電気信号に対して周波数が高すぎるゆえに、光周波数標準のキャリア周波数を周波数カウンターで直接計測することは不可能である。唯一の計測法であった周波数チェーン[59]は大がかりかつ複雑なシステムであり、限られた研究機関でしか運用することができず、計測の誤差や測定帯域の課題もあった。ところが 1990 年台にモード同期レーザーを応用した光周波数コムが開発され[60]、その状況は一変した。モード同期レーザーから発生する超短光パルス列は、周波数軸上では多数の縦モードが等間隔に並んだ姿をとり、各縦モードは高いコヒーレンス特性を有する。周波数軸上の縦モード間隔と位置を、周波数標準を用いて制御されたモード同期レーザーを光周波数コムと称する。この光周波数コムを参照用レーザーとした光ヘテロダイン検出により、被測定対象レーザーの光周波数計測が容易に達成される [61]。光周波数コムの黎明期に開発された Ti:Sapphire モード同期レーザーは高繰り返し周波数で低雑音特性を有するものの、装置サイズが Ti:Sapphire 結晶を励起するレーザー光源で制限される。加えて Bow-tie 共振器やスペクトル広帯域化のためのフォトニック結晶ファイバーへの入射光学部のアライメント安定性に課題があり、連続運転が困難であった。一方で、Er モード同期ファイバーレーザーをベースとした Er ファイバーコムは比較的小型かつ安価であり、さらに連続運転可能なメンテナンス性に優れた光周波数コムとして広く普及している。光周波数コムは当初、高精度なマイクロ波で制御された光周波数標準として、光周波数の性能評価を達成する装置であったが、近年では逆に光周波数標準を用いて制御された光周波数コムから高精度なマイクロ波を発生させる光-マイクロ波ダウンコンバージョン装置としても活用される。実際に、既存のマイクロ波周波数標準よりも高精度なマイクロ波信号を生成することを目的として、衛星などの飛行体に搭載することを前提とした光周波数コムの研究も報告されている[62]。

1.3 光周波数標準の応用

光周波数標準(周波数安定化レーザー)は波長に応じて多様な用途が存在する。その中で精密計測、光通信分野、そして新たな時空間センシング応用について取り上げる。

1.3.1 精密計測応用

精密計測の分野では、周波数安定化レーザーがブロックゲージ計測の光源として利用される。ブロックゲージとは、耐久性がある材料で作成、長方形断面で平行な二つの測定面をもち、その測定面は他のブロックゲージ又は補助体(基準平面)ともよく密着する性質をもっている端度器と定義され[63]、長さの基準として利用される。計測では、長さの基準であるブロックゲージを光波干渉で計測する。たとえば干渉縞画像をカメラで撮像し、ブロックゲージ部分と平面基盤部分の干渉縞の位置ずれから光路差を算出することが可能である[64]。このとき、干渉光源には 10^{-9} 程度の周波数安定度が要求される。この要求精度は、気温や気圧の測定結果を用いた大気中屈折率の変動量補正の精度によって決定される。また、周波数安定化レーザーはライダー計測の光源としても利用される。大気中の風速を計測するインコヒーレントドップラー-ToF ライダーでは、ヨウ素分子の吸収線付近で発振する Nd: YAG レーザーが光源の一つとして利用されてきた。このようなライダーでは、送信光と大気中エアロゾル散乱光の強度差から 2 つの光の周波数差、すなわちエアロゾルの移動速度に対応するドップラーシフトを算出するための波長フィルターとしてヨウ素分子セルを利用する。パルスレーザー線幅は 100 MHz 程度と比較的広いものの、ヨウ素分子の吸収線付近でのドップラープロファイルのエッジ領域(典型的には 1 GHz 程度)よりも十分に狭い周波数安定性が要求されている[65]。このようなインコヒーレントドップラー-ToF ライダーは、地上モデルのみならず衛星搭載化が実現されている。別の波長帯では、CO₂ の吸収波長に安定化されたレーザー(ONレーザー)と、吸収波長からわずかに周波数が離調された状態で周波数安定化された 6 つのレーザー(OFFレーザー)を送信レーザーシステムとして大気中へ照射し、散乱光から大気中の CO₂ の吸収スペクトルを解析して CO₂ 濃度を測定する航空機搭載向けインコヒーレント式差分吸収ライダーが提案され、その送信レーザーシステムについて報告されている[66]。このレーザーシステムの周波数安定度は 10^{-11} レベルであった。コヒーレント式差分吸収ライダーとしては、豪雨災害予測に向けた水蒸気計測ライダーの研究が遂行されている。この場合にはコヒーレント検波を利用するため、ON/OFF レーザー光源双方に高い波長安定性(10^{-8} レベル)と狭線幅性(<1 MHz)が達成された[67]。

1.3.2 光通信応用

光通信の分野でも、周波数安定化レーザーが利用される。例えばコヒーレント光 QAM 伝送では、光の振幅と位相に情報を付与するため、送信光には高いコヒーレンスと周波数安定性が要求される。そこで、アセチレン分子の量子遷移を用いた波長 1.5 μ m 帯周波数安定化 Er ファイバーレーザー(線幅 4kHz, 周波数安定度 1.3×10^{-11})が光源として利用されている[68]。あるいはすでに通信領域で利用されている波長分割多重通信(や周波数多重通信)では、一度に複数の波長の光を送受信することで伝送容量を確保する。このとき、ITU-T 周波数グリッドと呼ばれる複数のチャンネル内に所望の送受

信光を収容し、チャンネル間でのクロストークを避ける、あるいは適切に除去することが要求される。波長間隔を狭くして周波数利用効率を高めると、各チャンネルのキャリア周波数に関する精度要求は厳しくなる。たとえば、送受信機に組み込まれる光源や波長合分波器や、製造において利用される測定器(波長計や光スペクトラムアナライザーなど)は適切に波長校正される必要がある。一般的には、光周波数標準に安定化された光周波数コム of 適当な縦モードを基準光として、校正物との周波数差を測定することで校正は実施される[69]。なお波長 1.5 μm 帯の光周波数標準としてはアセチレン分子の量子遷移が広く用いられてきたが、非線形効果を利用した高調波発生技術を活用することで、その他の原子分子やイオンの量子遷移を活用することも可能であることを述べておく。実際に、2つの異なる周期分極構造で構成される波長変換結晶素子を利用して波長 1.5 μm 狭線幅レーザーの3次高調波を発生させ、ヨウ素分子の超微細構造遷移を観測し、周波数安定化を達成する研究が報告されている[47]。

超高速デジタル光コヒーレント伝送に向け、レーザー光源や半導体光増幅器、波長モニター、受信機などの光部品が集積化された統合型波長可変レーザーモジュール(Integrated Tunable laser Assembly: ITLA)の開発が盛んにおこなわれている。ITLA 内の光源である DFB-DL の線幅は 1 MHz 以下であり、現状のデジタルコヒーレント通信において送受信光の周波数変動量は ± 1.8 GHz 程度が要求される[70]。この波長安定性を確保するために、波長モニターとしてエタロンや PLC が ITLA に組み込まれ、DFB-DL の光周波数安定化に活用される。より高度な光通信方式の実現に向けては、より狭線幅かつ周波数安定度の高い集積型レーザーモジュールが要求されるであろう。ITLA について補足すると、ターンキー操作が可能ないようにパッケージ化され、比較的安価に販売されている。結果として光通信以外の様々な研究分野(ファイバーセンサー、テラヘルツ分光、生体計測など)で広く活用されている。その技術を転用して、光通信波長以外の領域においても類似の集積レーザーモジュールの開発が実施されている。本研究の第 3 章および第 4 章にて利用するコンパクトレーザーモジュール(Compact Laser module: CL module)もその成果の一例である。

1.3.3 時空間センシング応用

最新の研究にて報告される光周波数標準の精度は 18 桁に到達している。一般相対性理論から予言される重力赤方偏移の効果による、重力ポテンシャル変動に由来する時間の進みの変動を、周波数計測を介して観測することが可能である。実際にイオン時計と光格子時計の双方で、標高が 10 cm スケールで異なる二地点に設置された光時計の周波数の差分から、その二地点の重力ポテンシャルの差を検出可能であると実証されている[71, 72]。重力ポテンシャル変動の測定をはじめとした新たな時空間センシングの分野開拓も進められており、地殻変動や火山活動のモニタリング、地下資源探索への利活用が検討されている。

1.4 本研究の目的と論文の構成

1.4.1 本研究の目的

ここまで記述されたように、小型な光周波数標準は学術分野のみならず、産業分野においても有用な装置である。一方でその装置のサイズや取り扱いの容易さを律速するのは光源や真空装置であることが多い。一方で光源については近年の微細加工技術の発展に伴い、固体レーザーよりも周波数雑音特性や出力パワーが劣るものの、小型かつ安価な半導体レーザーが入手可能になってきた。近赤外以上の波長域においてはDFB-DLや分布反射型半導体レーザーといった、ゲインレーザーダイオード(Laser Diode : LD)と波長選択素子、共振器構造が集積化された半導体レーザーデバイスが入手可能であり、紫外など短波長領域ではゲイン LD の外部に外部共振器と波長選択素子を設ける半導体レーザーデバイスが利用可能である。そこで、小型な半導体レーザーを用いた高性能な小型光周波数標準の実現に向けて、分布帰還型半導体レーザーを含む超小型半導体レーザーモジュールのヨウ素分子の吸収線への周波数安定化と、イッテルビウム原子の吸収線へ周波数安定化された外部共振器型半導体レーザーを光源とした小型かつ簡便な空冷式レーザー冷却装置に関する研究を実施する。

ヨウ素分子の量子遷移は様々な波長域で適応可能な優れた光周波数標準として用いられてきた。様々な種類の光源を用いたヨウ素安定化レーザーが研究されてきたが、周波数雑音の比較的大きなDFB DL を光源とした研究例は少ない。先行研究[48]では系を極限まで小型化するために、DFB DL と光増幅器、波長変換素子が集積化された超小型半導体レーザーモジュールと、コールドフィンガー部を常温駆動した 6 cm のヨウ素セルを利用し、変調器を利用しない周波数変調法によるドップラーフリー分光を採用した。一方でこの装置は、線形吸収の影響を受けにくいヨウ素分子の超微細構造遷移の限られた成分のみが観測され、周波数安定化が可能であった。獲得されたドップラーフリー信号の吸収線幅は 8 MHz, SNR は 10 (帯域幅 1 kHz)であった。この信号を利用した周波数安定度は 5×10^{-11} に制限されており、さらに周波数変調により光スペクトルが広がり良好なコヒーレンス長が獲得されない課題もあった。そこで今回、低圧保持された長いヨウ素ガスセルを利用することで狭いスペクトル線幅と高い SNR を有するドップラーフリー信号を超微細構造遷移の全成分にて取得し、周波数安定化が可能な量子遷移の範囲を拡張する。さらに位相変調器を用いた Modulation transfer 分光法[73,74]を採用することで、高い周波数安定度を獲得する。さらにファイバー干渉計を用いて DFB DL の周波数雑音を検出して低減させ、ヨウ素分子の量子遷移の自然幅よりも十分に小さな線幅まで狭窄化させることで、ヨウ素分子のドップラーフリー信号への光源雑音重畳を抑制する。さらにファイバー干渉計をヨウ素分子の超微細構造遷移に安定化させる 2 段階のハイブリッド制御を導入することで、ヨウ素安定化レーザーのコヒーレンス長を改善しつつ周波数安定度をより一層改善させる。

ヨウ素安定化レーザーの周波数安定度は最高でも 10^{-15} 程度でフリッカー雑音フロアに到達するため、それ以上の周波数安定度が要求されるアプリケーションには冷却原子の量子遷移を対象とした周波数安定化レーザー、たとえば光格子時計が有用な光周波数標準となる。そのような用途を想定した可搬型 Yb 光格子時計の開発に向けて、1st MOT を実現可能な小型かつ取り扱いの簡便なレーザー冷却

装置を開発する。レーザー冷却装置は、原子の冷却遷移にアクセス可能な高出力レーザーシステムと原子サンプルと MOT 用コイルを含む真空装置から構成される。特に Yb 原子の場合は 1 次冷却遷移が紫外波長域に存在するためレーザーシステムが大型化する。さらにアルカリ土類金属であるので蒸気圧が低く、気相 Yb を獲得するために原子サンプルの高温動作(Yb では 400-500 °C程度)が必要で、消費電力の大きな MOT coil や Zeeman coil を含めた真空装置の熱管理のために水冷が必要となる[75]。そこでまず、紫外波長の光を直接出射する ECDL を周波数安定化させて注入同期により高出力させることで小型な冷却用レーザーシステムを構築する。さらに真空装置に関しては Yb 原子線源として市販のディスペンスーを活用し、Zeeman slower 機構を廃止する、MOT 用コイルの消費電力を低減するなどの工夫を施すことで、装置全体の小型化と空冷化を試みる。光格子時計の研究においては、1st MOT の段階で 10^7 個程度の冷却原子を生成することが一般的であり[76]、これをレーザー冷却装置に関する具体的な性能目標とする。さらに Yb 原子を封入した市販ディスペンスーからの原子ビームの特性評価を実施する。そして獲得された冷却 Yb 原子数と、Yb 原子ビームから 1st MOT に補足された冷却 Yb 原子数の割合を示す収率を算出することで装置全体の性能を評価する。

1.4.1 本論文の構成

第 1 章では、光周波数標準に関する研究の歴史と最新の動向を示すことを目的として、国際度量衡委員会 (CIPM) の勧告値に採用されている光周波数標準のリストを示した。その中で今回の研究対象となる Yb 光格子時計とヨウ素安定化レーザーの特徴と先行研究についてまとめた。また、光周波数計測技術の歴史について触れた後に、光周波数コムを用いた精密計測の原理について述べた。そして、光周波数標準の工学分野での応用例についていくつか例示し、小型なかつ簡便な光周波数標準の必要性について記述した。

第 2 章では、周波数安定化レーザーや冷却原子装置を開発するにあたって欠かせない、原子分子とレーザーの相互作用に関する理論やレーザー分光の手法について詳細を述べる。また、光周波数コムの制御と光周波数計測の手法、ヨウ素分子やイッテルビウム原子のポテンシャルエネルギーと超微細構造、光周波数標準の評価指標について記述する。

第 3 章では、線幅の大きな DFB DL と半導体光増幅器、波長変換素子が集積された超小型レーザーモジュールを光源としたヨウ素分子のドップラーフリー分光を行う。分光により取得された吸収信号の一つを光周波数基準としてレーザーモジュールの周波数安定化を実施し、周波数安定度評価を光周波数コムとの光ビートの変動から測定し、アラン標準偏差の値で特徴づける。

第 4 章では、自作のマイケルソンファイバー干渉計を利用して超小型レーザーモジュールの線幅をヨウ素分子の吸収自然幅以下に狭窄化することで、ヨウ素分子のドップラーフリー分光を改善させる。さらに、吸収信号の一つを光基準としてファイバー干渉計の光路長差をアクチュエーターで直接制御することで超小型レーザーモジュールのハイブリッド周波数安定化を実現する。周波数安定度評価をアラン標準偏差の値で特徴づける。

第 5 章では、外部共振器型半導体紫外レーザーを光源としたイッテルビウム原子のドップラーフリー分光を行う。分光により取得された吸収信号の一つを光周波数基準としてレーザーの周波数安定化を実

施し、レーザー光の一部を用いてマルチモードレーザーダイオードに注入同期をかけることで、周波数安定化レーザーの光を増幅させる。原子サンプルを含んだディスペンサーを原子線源として組み込んだ小型かつ簡便な空冷式の真空装置と組み合わせることで、イッテルビウム原子の磁気光学トラップを実現する。真空内でのドップラーフリー分光から原子線源のフラックスを、トラップ時の原子雲の蛍光量から磁気光学トラップの原子数を評価する。

第 6 章では総括として、本研究で得られた結果をまとめ、今後の展望について述べる。

第2章 原理

2準位系において、始状態と終状態のエネルギーが確定していれば、その間の遷移周波数は確定するように思われるが、実際の吸収線は広がりを持つ。このような広がりを線幅と呼び、これを決定する要因としては、励起準位の準位寿命の逆数によって決定される自然幅、分子の速度がマクスウェル分布に従うことによるドップラー広がり、圧力広がり、パワー広がり等が存在する。第1節ではこれらについて記述する。第2節では、高分解能分光を実現するために本研究で用いたドップラーフリー分光の一種である Modulation transfer 分光と、この分光により取得された分光信号を用いた周波数安定化の原理について記述する。第3節では、周波数安定化レーザーの評価方法の一つであるアラン標準偏差について述べる。第4節では、周波数安定化レーザーの性能評価のために参照光源として利用された光周波数コムと周波数計測法について記述する。第5節では Yb 原子の量子遷移について、第6節ではヨウ素分子の量子遷移について記述する。第6節ではファイバー干渉計を用いた狭線幅化手法について述べる。第7節では原子の時期光学トラップについて述べる。

2.1 原子分子分光の理論

原子や分子の分光は光電場と原子の相互作用を観測する技術である。分光で観測されるスペクトル広がりを決定づける要因である自然幅、ドップラー幅、圧力幅、時間通過幅、飽和幅について述べる。

2.1.1 電場と原子のコヒーレント相互作用

2準位系(下準位 a , 上準位 b)の原子を仮定すると、その状態を表す密度行列 ρ の運動方程式は

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar} [H, \rho] \quad (2.1.1)$$

で与えられる。ただし、 H は系のハミルトニアンで

$$H = \begin{pmatrix} \hbar\omega_a & -\mu E(z, t) \\ -\mu E(z, t) & \hbar\omega_b \end{pmatrix} \quad (2.1.2)$$

で与えられる。 μ は2準位間の遷移双極子モーメントを、 $\hbar\omega_i$ は i 準位の固有エネルギーである。また、 $E(z, t)$ は角周波数 ω 、波数 k で z 方向に進行する光電場であり、複素振幅を E_0 として

$$E(z, t) = \frac{1}{2} E_0 e^{i(\omega t - kz)} + c.c. \quad (2.1.3)$$

で与えられる。準位 ab 間の遷移角周波数を $\omega_0 = \omega_b - \omega_a > 0$ とする。励起された原子や原子集団が元の状態に戻ることを緩和と呼び、これを現象論的に取り入れると、(2.1.1)式は、

$$\dot{\rho}_{aa} = -\frac{i\mu E(z, t)}{\hbar} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) - \Gamma(\rho_{aa} - \rho_{aa}^0) \quad (2.1.4(a))$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \frac{i\mu E(z, t)}{\hbar} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) - \Gamma(\rho_{bb} - \rho_{bb}^0) \quad (2.1.4(b))$$

$$\dot{\rho}_{ab} = i\omega_0\rho_{ab} - \gamma\rho_{ab} + \frac{i\mu E(z,t)}{\hbar}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (2.1.4(c))$$

$$\dot{\rho}_{ba} = -i\omega_0\rho_{ba} - \gamma\rho_{ba} - \frac{i\mu E(z,t)}{\hbar}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (2.1.4(d))$$

となる。ただし、 Γ は密度行列の対角成分の緩和を、 γ は密度行列の非対角成分の緩和を表す。前者を縦緩和レートと呼び、ポピュレーションの decay を表す。一方で後者を横緩和レートと呼び、原子間衝突などにより生じる準位間の位相コヒーレンスの緩和を表す。 ρ_{ii}^0 は、光電場 $E(z,t)$ の項がない場合の ρ_{ii} の平衡状態での値である。速度 v で運動する原子を考える場合、時間微分は

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z} \quad (2.1.5)$$

で与えられる。さらに、共鳴角周波数付近($\omega \cong \omega_0$)で、 $\omega + \omega_0$ の振動項を無視する近似を回転波近似と呼ぶ。回転波近似および $\rho_{ij} = \tilde{\rho}_{ij}e^{i(\omega t - kz)}$ により、(2.1.4(a))~(2.1.4(d))は

$$\dot{\rho}_{aa} = -\frac{i\Omega}{2}(\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ba}) - \Gamma(\rho_{aa} - \rho_{aa}^0) \quad (2.1.6.(a))$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \frac{i\Omega}{2}(\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ba}) - \Gamma(\rho_{bb} - \rho_{bb}^0) \quad (2.1.6.(b))$$

$$\dot{\tilde{\rho}}_{ab} = -i(\omega - \omega_0 - kv - i\gamma)\tilde{\rho}_{ab} + \frac{i\Omega}{2}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (2.1.6.(c))$$

$$\dot{\tilde{\rho}}_{ba} = i(\omega_0 - \omega + kv + i\gamma)\tilde{\rho}_{ba} - \gamma\rho_{ba} - \frac{i\Omega}{2}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (2.1.6.(d))$$

となる。ここで、Rabi 角周波数

$$\Omega = \frac{\mu E_0}{\hbar} \quad (2.1.7)$$

を導入した。定常解を ρ_{ij}^{st} とすると、

$$\rho_{aa}^{st} - \rho_{bb}^{st} = \frac{(\rho_{aa}^0 - \rho_{bb}^0)\{(\omega - \omega_0 - kv)^2 + \gamma^2\}}{(\omega - \omega_0 - kv)^2 + \gamma(1+s)} \quad (2.1.8)$$

$$\tilde{\rho}_{ab}^{st} = -\frac{(\rho_{aa}^0 - \rho_{bb}^0)\Omega}{2} \frac{\omega - \omega_0 - kv + \gamma^2}{(\omega - \omega_0 - kv)^2 + \gamma^2(1+s)} \quad (2.1.9)$$

を得る。ただし、 s は

$$s = \frac{\Omega^2}{\gamma\Gamma} \quad (2.1.12)$$

であり、これを飽和パラメータと呼ぶ。光電場によって励起される原子の双極子モーメント p は、

$$p = \tilde{\rho}_{ab}^{st}\mu + c.c. \quad (2.1.10)$$

で表される。(2.1.9)式を(2.1.10)式に代入すると、

$$p = -\frac{(\rho_{aa}^0 - \rho_{bb}^0)\mu^2}{2\hbar} \frac{\omega - \omega_0 - kv + i\gamma}{(\omega - \omega_0 - kv)^2 + \gamma^2(1+s)} E_0 e^{i(\omega t - kz)} + c.c. \quad (2.1.11)$$

を得る。この原子が単位体積当たり N 個存在するとき、巨視的な分極 $P(z, t)$ は $P(z, t) = Np$ となる。 $E(z, t)$ と同様に $P(z, t)$ も

$$P(z, t) = Np = \frac{1}{2} P_0 e^{i(\omega t - kz)} + c. c. \quad (2.1.13)$$

と分解する。(2.1.11)式と(2.1.13)式を見比べると、角周波数の関数 $\chi(\omega)$ を用いて $P_0 = \varepsilon_0 \chi(\omega) E_0$ という対応関係を得ることができる。この $\chi(\omega)$ は電気感受率と呼ばれ、

$$\chi(\omega) = -\frac{N(\rho_{aa}^0 - \rho_{bb}^0)\mu^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{\omega - \omega_0 - kv + i\gamma}{(\omega - \omega_0 - kv)^2 + \gamma^2(1+s)} \quad (2.1.14)$$

である。更に電気感受率 $\chi(\omega)$ を

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) - i\chi''(\omega)$$

と実部と虚部に分解する。電束密度と電場の関係から、

$$\varepsilon = \varepsilon_0(1 + \chi(\omega)) \quad (2.1.15)$$

である。更に、屈折率 $n(\omega)$ は、誘電率 $\varepsilon(\omega)$ 率と透磁率 $\mu \cong \mu_0$ の媒質中での位相速度の式

$$c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon\mu}} = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0\mu_0}} \frac{1}{\sqrt{\varepsilon/\varepsilon_0}} = \frac{c_0}{\sqrt{\varepsilon/\varepsilon_0}} = \frac{c_0}{n(\omega)} \quad (2.1.16)$$

から、

$$n(\omega) = \sqrt{1 + \chi(\omega)} \quad (2.1.17)$$

を得る。 $|\chi(\omega)| \ll 1$ であれば、Taylor 展開により

$$n(\omega) = 1 + \frac{\chi'(\omega)}{2} - i\frac{\chi''(\omega)}{2} \quad (2.1.18)$$

を得る。(2.1.18)式の実部は屈折率の分散を、虚部は入射光の吸収を表す項である。入射光パワーの吸収係数 $\alpha(\omega)$ は、

$$\alpha(\omega) = \frac{\chi''(\omega)}{2} k = \frac{Nk(\rho_{aa}^0 - \rho_{bb}^0)\mu^2}{2\varepsilon_0 \hbar} \frac{\gamma}{(\omega - \omega_0 - kv)^2 + \gamma^2(1+s)} \quad (2.1.19)$$

で表される[77 - 79].

2.1.2 自然幅

遷移の上準位は自然放出による緩和のために有限な寿命 (τ) を持つ。これに起因するスペクトル幅は自然幅と呼ばれる。時間とエネルギーの不確定性関係

$$\tau \times \delta E \geq \hbar \quad (2.1.20)$$

と、周波数の不確定性 $\delta\omega$ とエネルギーの不確定性 δE の関係

$$\delta E = \hbar \delta\omega \quad (2.1.21)$$

を合わせると、

$$\delta\omega \geq \frac{1}{\tau} \quad (2.1.22)$$

を得る。つまり、スペクトルは寿命の逆数程度の幅を持つ。入射強度が飽和強度よりも小さく、Rabi

角周波数が緩和レートより十分小さい時、 $\Omega \ll \sqrt{\gamma\Gamma}$ すなわち $s \ll 1$ であり、吸収スペクトル幅は縦緩和レートに依存する。具体的には、吸収スペクトルは規格化定数を C としてローレンツ型の関数

$$L(\omega) = \frac{C}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2} \quad (2.1.23)$$

の形で与えられ、その半値全幅は

$$\delta\omega = \frac{\omega_0^3}{3\pi\hbar\epsilon_0 c^3} |\mu|^2 \quad (2.1.24)$$

である[77 - 79].

2.1.3 圧力幅

気体の密度が増すと、同種原子分子同士の衝突頻度が高くなる。この衝突によって他準位への遷移が生じたり、あるいは波動関数の位相が変化してコヒーレントな相互作用が打ち切られる。このように、衝突により励起寿命が短くなることで生じるスペクトル広がりを圧力幅($\delta\omega_p$)と呼ぶ。衝突回数は分子密度、すなわち圧力に依存する。圧力幅は、半値全幅が

$$\delta\omega_p = Cp \quad (2.1.25)$$

のローレンツ型関数で表される。圧力広がりは一均一広がり的一种に分類される。

また、衝突による波動関数の位相変化や内部エネルギー準位のシフトによって生じる遷移周波数のシフトを圧カシフトと呼ぶ。一般に、圧カシフトは圧力に比例することが知られている[77 - 79].

2.1.4 通過時間幅

原子分子がレーザー光を横切るように運動する場合、コヒーレントな相互作用時間は有限である。これによって生じるスペクトル幅の広がりを通過時間幅 ($\delta\omega_t$)という。通過時間幅の半値全幅は、レーザーのビーム径 w と分子の平均速度の絶対値、 $\bar{v} = \sqrt{8RT/M\pi}$ を用いて

$$\delta\omega_t = \frac{2\bar{v}}{w} \sqrt{2\ln 2} \quad (2.1.26)$$

で与えられる。通過時間広がりは一均一幅に分類されることが多い。しかし、Maxwell-Boltzmann 分布に従う原子分子集団は、個々の原子でスペクトルの広がりが異なる。故に、不均一幅と考えることもある[77 - 79].

2.1.5 飽和幅

式(2.1.19)の吸収係数 $\alpha(\omega)$ から明らかのように、分光に利用する光強度が大きくなり飽和パラメータ $-s$ が増大すると、スペクトル幅の広がりが生じる。これを飽和幅($\delta\omega_s$)と呼ぶ。飽和強度に対する光強度の比率を $s = I/I_s$ で定義すると、飽和幅の半値全幅は

$$\delta\omega_s = \gamma\sqrt{1+s} \quad (2.1.27)$$

となる[78].

2.1.6 ドップラー幅

分光に用いる原子分子は気相であることが多い。プローブ光の入射方向に速度成分を持つ原子分子からみた光周波数はドップラー効果によりシフトする。これをドップラーシフトという。熱平衡状態の気相分子集団において、プローブ光の入射方向の速度分布は Maxwell-Boltzmann 分布で与えられる。一般に絶対温度 T で速度成分が v と $v+dv$ との間にある分子数は、最確速度

$$u = \sqrt{2k_B T/M} \quad (2.1.28)$$

を用いて

$$N(v)dv = \frac{N}{u\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{v^2}{u^2}\right) dv \quad (2.1.29)$$

で表すことができる。 M は原子分子の質量、 k_B はボルツマン定数、 $N = \int N(v)dv$ は分子密度を表す。図 2.1.2 のように、プローブ光の入射方向に対して速度成分 v を有する原子分子からみたプローブ光の角周波数は、ドップラーシフトによって

$$\omega' = \omega - kv \quad (2.1.30)$$

で表される。 k はプローブ光の入射方向の波数である。角周波数分布関数 $D(\omega)$ は

$$D(\omega) = \frac{1}{ku\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{(\omega - \omega')^2}{ku^2}\right) d\omega \quad (2.1.31)$$

となる。角周波数分布関数 $D(\omega)$ は、図 2.1.3 のようにドップラー効果によるスペクトル線の広がりを表す。 $D(\omega)$ は、半値全幅 $\delta\omega_D = 2ku\sqrt{\ln 2}$ のガウス型関数である。ドップラー幅は、

$$\delta\omega_D = 2\pi \times 2\sqrt{\ln 2} \times \frac{f}{c} \times \sqrt{\frac{2k_B T}{M}} = \frac{4\pi f}{c} \sqrt{\frac{2RT \ln 2}{M}} \quad (2.1.32)$$

となる[78]。例えばヨウ素分子のドップラー幅は典型的に 1 GHz 程度であり、自然幅に対して 3 桁大きい値を取る。このように、集団中の個々の原子分子がそれぞれ異なる周波数の光と共鳴することにより生じるスペクトル幅を不均一幅という。

2.2 ドップラーフリー分光

気相原子分子の運動によって生じたドップラー幅は数百 MHz 以上であり，光周波数標準として利用される原子分子の吸収線の自然幅と比較して 3 桁以上大きい．このため，通常の分光法では狭線幅スペクトルがドップラー幅に埋もれ，分解能が制限される．これを回避するため，様々なドップラーフリー分光法が開発されてきた．今回の研究では，この分光法の一つである飽和吸収分光のうち，Modulation transfer 分光[73, 74]を用いる．そこで以下ではこの分光法の原理について述べる．

2.2.1 飽和吸収分光

前提として，2 準位系(遷移角周波数 ω_0)の原子を想定する．まず図 2.2.1 に示すように，気体の原子分子に対して角周波数 ω (波数ベクトルの大きさ k)の光を対向入射させることを考える．ドップラー効果の影響で，光軸方向に対して速度の大きさ v を持つ原子分子から見たポンプ光の角周波数(ω'_{pump})とプローブ光の角周波数は以下の式で表される．

$$\omega'_{\text{pump}} = \omega + kv \quad (2.2.1)$$

$$\omega'_{\text{probe}} = \omega - kv \quad (2.2.2)$$

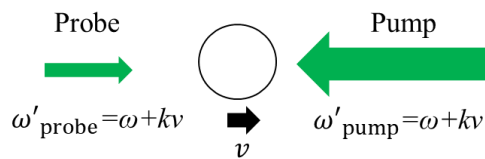


図 2.2.1 原子の運動とポンプ・プローブ光の角周波数の関係

$N_1(v)$ は準位 1(下準位)の占有数分布， $N_2(v)$ を準位 2(上準位)の占有数分布とする．原子からみたポンプ光の角周波数と遷移周波数 ω_0 が一致したとき，すなわち

$$\omega_0 = \omega + kv \quad (2.2.3)$$

でポンプ光の吸収が生じる．その条件はポンプ光によって励起される原子集団は，速度成分 $v = (\omega_0 - \omega) / k_0$ を有する．同様に考えると，プローブ光によって励起される原子集団は，速度成分 $v = (\omega - \omega_0) / k_0$ を有する．図 2.2.2 はレーザー光による準位 1(下準位) \leftrightarrow 準位 2(上準位)の遷移による準位系の占有数分布の変化を示し，左側のへこみはプローブ光による励起を，右側のへこみはポンプ光による励起を表す．つまりレーザー角周波数と遷移周波数が異なる時，ポンプ光とプローブ光はどちらも十分に吸収される．

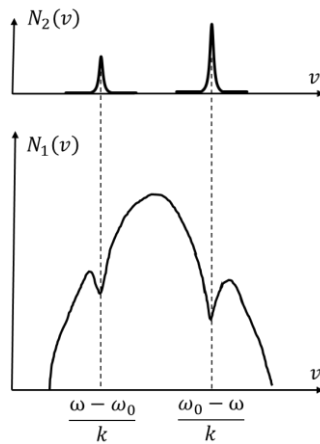


図 2.2.2 準位 1 と準位 2 の占有数分布

一方で、光軸方向の速度成分が 0 の原子分子は、ポンプおよびプローブ光双方に共鳴し、吸収を引き起こす。このとき、ポンプ光パワーが吸収飽和の生じる程大きいとき、プローブ光はほとんど吸収されずに気相原子分子を通過する。すなわち、レーザー周波数を掃引しながらプローブ光のパワーを検出器で測定すると、図 2.2.3 のような信号が得られる。これを飽和吸収信号と呼び、線形吸収信号の内部に生じるくぼみを Lamb ディップと呼ぶ。スペクトル幅が均一広がりと不均一広がりとの畳み込み積分で表されるとき、ある周波数の入射光による飽和は均一広がり範囲内だけで生じ、自然幅や圧力幅、飽和幅といった均一幅によって決定される[77 - 79].

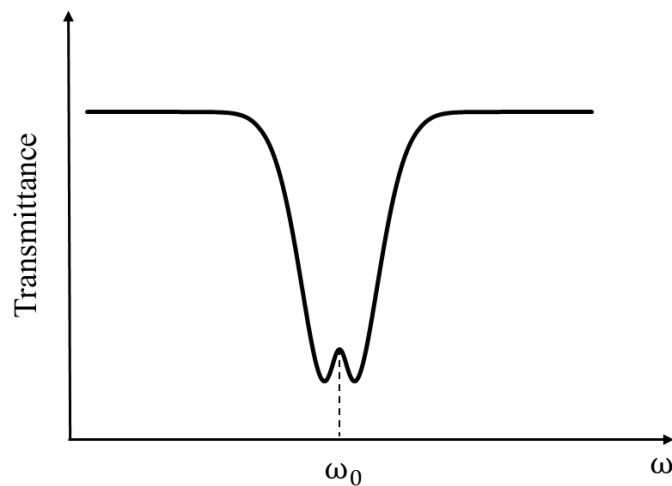


図 2.2.3 飽和吸収信号の一例

また、実際の原子分子は多準位系であるため、その影響を考慮する必要がある。たとえば、ドップラースhiftの影響で Pump 光によって励起される準位と Probe 光によって励起される準位が異なるため、見かけ上の飽和吸収が信号上に現れることがある。これを準位間のクロスオーバーと呼ぶ。これを説明するために、Probe 光の進行方向に速度成分 v を持つ、3 準位系の原子が存在すると仮定する。準位 1 と

準位 2 の遷移の角周波数を ω_{12} , 準位 1 と準位 3 の遷移の角周波数を ω_{13} とする。レーザーの角周波数を ω_L とすると, 準位 1 \leftrightarrow 準位 2 の遷移に寄与するのは,

$$v = \pm \frac{\omega_L - \omega_{12}}{k} \quad (2.2.4)$$

の速度成分を持つ原子分子に限られる。同様に, 準位 1 \leftrightarrow 準位 3 の遷移は,

$$v = \pm \frac{\omega_L - \omega_{13}}{k} \quad (2.2.5)$$

の速度成分を持つ原子分子で選択的に発生する。すなわちレーザー光の角周波数が $\omega_L = \frac{\omega_{12} + \omega_{13}}{k}$ の

とき, 同一角周波数の光を対向させると準位 1 と準位 2 の遷移と, 準位 1 と準位 3 の遷移が同時に発生する。このとき, ポンプ光による励起で準位 1 の占有数が減少するので, プロブ光の吸収が弱まり, 透過光を観測するとあたかも原子分子の飽和吸収分光が生じているかのような結果が得られる。

2.2.1 Modulation transfer 分光

図 2.2.3 のような飽和吸収信号そのものから共鳴周波数にレーザーを周波数安定化することは困難である。例えば, 透過光強度から共鳴周波数(ω_0)にロックをかけることを考える。レーザー周波数がずれた場合, 共鳴周波数の正負どちらに変化したかを透過率から読み取ることができず, フィードバック信号の符号を決定することが困難である。そこで共鳴周波数前後で符号の異なる(線形な)信号を作り出すことで, 共鳴周波数から正負どちらにどの程度ずれたかが判別可能である。このようなフィードバックの基準信号のことを誤差(エラー)信号と呼ぶ。エラー信号を用いてレーザーに対してフィードバックをかけ, 周波数安定化は達成される。本節では, ドップラーフリー分光の中で特に優れたエラー信号を得ることが可能である Modulation transfer 分光について述べる。例として, ヨウ素分子の Modulation transfer 分光の模式図を図 2.2.4 に示す。

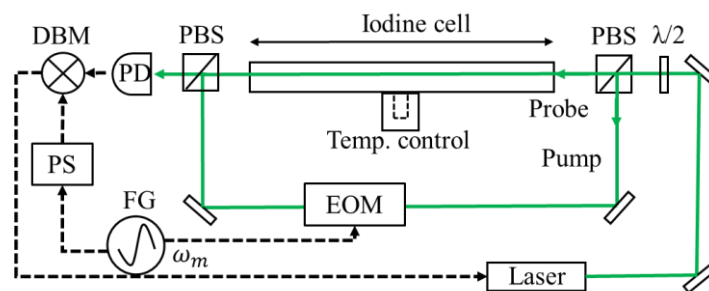


図 2.2.4 Modulation transfer 分光系の模式図。

$\lambda/2$: Half wave plate, PBS: Polarizing beam splitter, EOM: Electro-optic modulator,
PD: Photodetector, DBM: Double balanced mixer, FG: Function generator, PS: Phase shifter.

レーザー光 $1/2$ 波長板(Half wave plate: HWP)と偏光ビームスプリッター(Polarizing beam splitter : PBS)を用いてレーザーを 2 方向に分離させる。PBS で反射された S 偏光の光は Pump 光の役割を,

PBS で反射された P 偏光の光は Probe 光の役割を担う。Pump 光は電気光学変調器(Electro-optic modulator: EOM)を用いて位相変調される。光電場が

$$E(t) = E_0 e^{i\omega_c t} + c. c. \quad (2.2.6)$$

で表される角周波数 ω_c のポンプ光に対して, EOM で位相変調を与えること考える。変調信号の角周波数を ω_m , 変調指数 δ_m とすると, 変調された光電場は以下の式で与えられる。

$$\begin{aligned} E(t) &= E_0 e^{i\omega_c t} e^{i\delta_m \sin(\omega_m t)} + c. c. \\ &= E_0 e^{i\omega_c t} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\delta_m) e^{in\omega_m t} + c. c. \\ &= E_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\delta_m) e^{i(\omega_c + n\omega_m)t} + c. c. \end{aligned} \quad (2.2.7)$$

位相変調により, 角周波数 ω_c の搬送波に加えて変調角周波数 ω_m 毎に離散的な側帯波が発生する。変調指数 δ_m が $\delta_m \ll 1$ の場合,

$$\begin{aligned} E(t) &\approx E_0 [J_0(\delta_m) e^{i\omega_c t} + J_1(\delta_m) e^{i(\omega_c + \omega_m)t} + J_{-1}(\delta_m) e^{i(\omega_c - \omega_m)t}] + c. c. \\ &= E_0 [J_0(\delta_m) e^{i\omega_c t} + J_1(\delta_m) e^{i(\omega_c + \omega_m)t} - J_1(\delta_m) e^{i(\omega_c - \omega_m)t}] + c. c. \end{aligned} \quad (2.2.8)$$

となる。パワーの大部分が搬送波と ± 1 次のサイドバンドに集中し, ± 2 次以降のサイドバンドは十分小さいので無視できる。この時, ± 1 次のサイドバンドの位相は π 異なり, この様子は例えば図 2.2.5 のように表される。

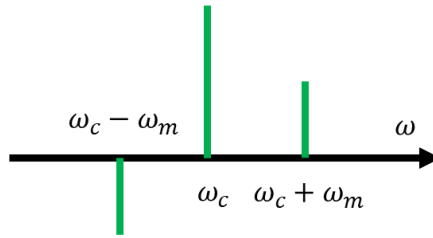


図 2.2.5 EOM によって位相変調を受けたポンプ光の角周波数成分

さらに式(2.2.8)をテイラー展開すると,

$$\begin{aligned} E(t) &\approx E_0 e^{i\omega_c t} (1 + i\delta_m \sin\omega_m t) + c. c. \\ &= E_0 e^{i\omega_c t} + \frac{\delta_m}{2} E_0 e^{i(\omega_c + \omega_m)t} - \frac{\delta_m}{2} E_0 e^{i(\omega_c - \omega_m)t} + c. c. \end{aligned} \quad (2.2.9)$$

となる。ポンプ光はグラントムソンプリズム(Glan-Thompson prism : GT)を通過し, ミラーで反射されヨウ素セル内を通過する。一方, PBS を通過した Probe 光はセル内で Pump 光と対向するように重ね合わせる。原子分子の共鳴周波数付近で飽和吸収が起きた際に, Pump 光の強度が飽和強度より十分に大きいとき, 原子分子において 3 次の非線形分極が発生する。原子分子を媒質とした 4 光波混合により, ポンプ光の位相変調(Modulation)がプローブ光に移り(Transfer), プローブ光に ± 1 次のサイドバンドが発生する。この様子を Modulation Transfer と呼ぶ。位相変調を受けた Probe 光が気相原子分子集団を通過すると, 周波数に依存した, 吸収による強度減衰や分散による位相シフトが生じる。この効果を, 伝達関数

$$T_l = \exp[-\alpha_l - i\varphi_l] \quad (2.2.10)$$

で表す。αは吸収による強度減衰を、φは分散による位相シフトを表し、ともに周波数依存性を有する。具体的には、Lはセルの長さ、aはパワー吸収係数、nは屈折率として

$$\alpha_l = \frac{La_l}{2} \quad (2.2.11)$$

$$\varphi_l = \frac{n_l L(\omega_c + l\omega_m)}{c} \quad (2.2.12)$$

である。添え字の l は l = 0, ±1 の値をとり、l = 0 は搬送波の場合を、l = ±1 は ±1 次のサイドバンドの場合を表す。最終的に得られる Probe 光の光電場は

$$E(t) = E_0 T_0 e^{i\omega_c t} + \frac{\delta_m}{2} E_0 T_1 e^{i(\omega_c + \omega_m)t} - \frac{\delta_m}{2} E_0 T_{-1} e^{i(\omega_c - \omega_m)t} + c.c. \quad (2.2.13)$$

で表される。その後、Probe 光は偏光分離光学素子、たとえば GT で Pump 光と分離され、受光器 (PD) で受光される。PD から得られる電気信号は電場の二乗に比例するので、

$$V_{PD} \propto |E_0|^2 e^{-2\alpha_0} \left| e^{-i\varphi_0} e^{i\omega_c t} + \frac{\delta_m}{2} e^{-i(\alpha_0 - \alpha_1)} e^{-i\varphi_1} e^{i(\omega_c + \omega_m)t} - \frac{\delta_m}{2} e^{-i(\alpha_0 - \alpha_{-1})} e^{-i\varphi_{-1}} e^{i(\omega_c - \omega_m)t} \right|^2 \quad (2.2.14)$$

と表される。δ_m² ≪ 1, |α₀ - α₋₁| ≪ 1, |α₀ - α₁| ≪ 1, |φ₀ - φ₁| ≪ 1, |φ₀ - φ₋₁| ≪ 1 と近似すると、

$$V_{PD} \propto e^{-2\alpha_0} [1 + (\alpha_{-1} - \alpha_1)\delta_m \cos(\omega_m t) + (\varphi_1 - 2\varphi_0 + \varphi_{-1})\delta_m \cos(\omega_m t)] \quad (2.2.15)$$

となる[79-80]。J. H. Sherry は 3 次の摂動までを考えることで、Modulation transfer 信号が

$$V_{PD} \propto J_0(\delta_m) J_1(\delta_m) \times \left[\left(L_1 - L_{\frac{1}{2}} + L_{-\frac{1}{2}} - L_{-1} \right) \cos(\omega_m t + \varphi) + \left(-D_1 + D_{\frac{1}{2}} + D_{-\frac{1}{2}} - D_{-1} \right) \sin(\omega_m t + \varphi) \right] \quad (2.2.16)$$

となることを示した[73]。ただし、 $L_n = \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\Delta - n\omega_m)^2}$ 、 $D_n = \frac{\Gamma^2(\Delta - n\omega_m)}{\Gamma^2 + (\Delta - n\omega_m)^2}$ である。ここで、Γ は自然幅、

Δ は吸収周波数からの離調、φ は検出時の位相シフトである。L_n は吸収を示すローレンツ関数であり、

D_n は分散を示す関数である。第 1 項は変調信号と位相が π/2 ずれている直交位相成分であり、第 2 項は同位相成分である。

PD からの受信信号から Modulation Transfer 信号を検出する際には、位相敏感検波 (Phase sensitive detection: PSD) と呼ばれる方法を用いる。PSD の典型的な模式図を図 2.2.9 に示す。PD からの受信信号を $V_D = V_1 \sin(\omega_1 t + \varphi_1)$ 、参照信号を $V_{ref} = V_2 \sin(\omega_2 t + \varphi_2)$ とする。ダブルバランスドミキサ (DBM: double balanced mixer) を用いて乗算すると、DBM の出力信号は

$$\begin{aligned}
S &= V_1 V_2 \sin(\omega_1 t + \varphi_1) \sin(\omega_2 t + \varphi_2) \\
&= \frac{V_1 V_2}{2} \cos[(\omega_1 - \omega_2)t + (\varphi_1 - \varphi_2)] \\
&\quad - \frac{V_1 V_2}{2} \cos[(\omega_1 + \omega_2)t + (\varphi_1 + \varphi_2)]
\end{aligned} \tag{2.2.17}$$

である。 $\omega_1 = \omega_2$ の場合、

$$S = \frac{V_1 V_2}{2} \cos[(\varphi_1 - \varphi_2)] - \frac{V_1 V_2}{2} \cos[(2\omega_1)t + (\varphi_1 + \varphi_2)] \tag{2.2.18}$$

となる。この信号をローパスフィルターに通すと、式(2.2.18)の第1項の直流成分のみが得られる。この直流成分の振幅は $\cos(\varphi_1 - \varphi_2)$ 、つまり PD からの受信信号 (V_D) と参照信号 (V_{ref}) の位相差に比例する。実際と同じ角周波数を有するが異なる2つの位相を有する2つの信号成分のうち、どちらか一方のみを参照信号 (V_{ref}) の位相を調整することで抽出することができる。この操作を PSD と呼ぶ。参照信号を用いて、非参照信号のうち同じ角周波数を有する特定の成分を抽出することを復調という[1]。この直流成分は遷移周波数において $S = 0$ となり、その周辺で線形な形状であるため、レーザー光の周波数と遷移周波数の差を電圧に変換 (F-V 変換) することが可能である。このような信号をエラー信号と呼び、この情報をサーボ回路へ入力することでサーボ信号を生成し、レーザーの光周波数を決定する実験パラメーターへフィードバックを施すことで、周波数安定化が達成される。

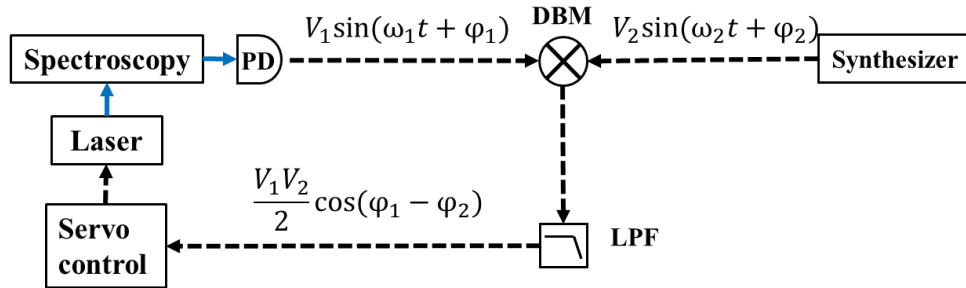


図 2.2.6 位相敏感検波の模式図。

PD: Photodetector, DBM: double balanced mixer, LPF: Low-pass filter.

エラー信号が飽和吸収信号の微分形であることを、直観的に導出する。PD からの出力電圧は、

$$\begin{aligned}
V_{PD} \propto |E(t)|^2 \propto \frac{\delta_m}{2} (T_0^* T_1 - T_0 T_{-1}^*) e^{i\omega_m t} + \frac{\delta_m}{2} (T_1^* T_0 - T_{-1} T_0^*) e^{-i\omega_m t} + Const \\
+ (2\omega_m \text{ terms})
\end{aligned} \tag{2.2.19}$$

と表される。DBM でローカルオシレーターからの信号 $V_{LO} = V_2 \sin(\omega_2 t + \varphi_2)$ と乗算して位相検波を実施し、ローパスフィルターで高周波成分を除去すると、観測される信号は

$$S \propto \frac{\delta_m}{2} (T_1^* T_0 - T_{-1} T_0^*) \tag{2.2.20}$$

となる。Modulation transfer 分光法では $\omega_m \ll \omega_c$ である。ゆえに $T_0 = T(\omega_c)$, $T_{\pm 1} = T(\omega_c \pm \omega_m)$ と

書き直すと,

$$\begin{aligned}
 S &\propto \frac{\delta_m \omega_m}{2} \left(T(\omega_c) \frac{T(\omega_c + \omega_m)^* - T(\omega_c)^*}{\omega_m} + T(\omega_c)^* \frac{T(\omega_c) - T(\omega_c - \omega_m)^*}{\omega_m} \right) \\
 &\approx \frac{\delta_m \omega_m}{2} \left(T(\omega_c) \frac{dT(\omega_c)^*}{d\omega} + T(\omega_c)^* \frac{dT(\omega_c)}{d\omega} \right) \\
 &= \frac{\delta_m \omega_m}{2} \left(\frac{d|T(\omega)|^2}{d\omega} \Big|_{\omega=\omega_c} \right) \tag{2.2.21}
 \end{aligned}$$

が得られる。|T(ω)|²はセル内での分子の吸収に相当し、飽和吸収信号である。よって、エラー信号は飽和吸収信号の微分に比例した信号であることが理解できる。

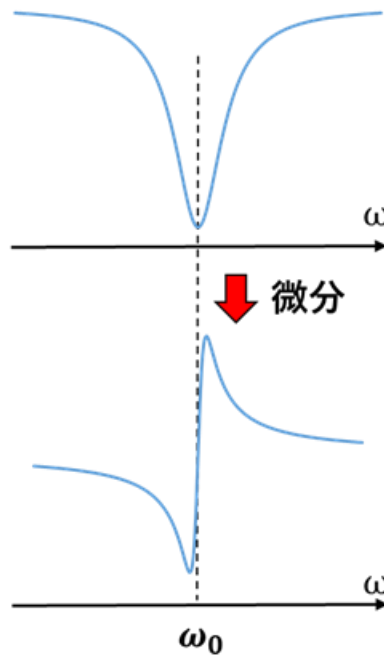


図 2.2.7 飽和吸収信号とエラー信号の関係

Modulation transfer 分光法では共鳴周波数付近でかつ飽和吸収が生じている時のみ、プローブ光のサイドバンドが発生する。ゆえにこの分光法では、獲得される信号がドップラー広がりの影響を受けにくい。結果として、ベースラインがほぼフラットなドップラーフリー信号が獲得されるという特長がある。Modulation transfer 分光法は周波数安定化に適した分光法であると言える。

ここまではポンプ光とプローブ光の周波数を等しいと考えたが、実際の Modulation transfer 分光ではポンプ光かプローブ光のどちらか一方を音響光学素子(AOM)のような周波数シフターで周波数シフトさせることが多い。この AOM は、分光系内での不要な干渉によるノイズ生成を防ぐために用いられる。具体例として、Pump 光と Probe 光が同一角周波数の場合を考える。ただし、区別のために角周波数をそれぞれ ω_0 , ω_0' とおく。この仮定の下では、当然、 $\omega_0 = \omega_0'$ である。この様子を図 2.2.8 に示す。

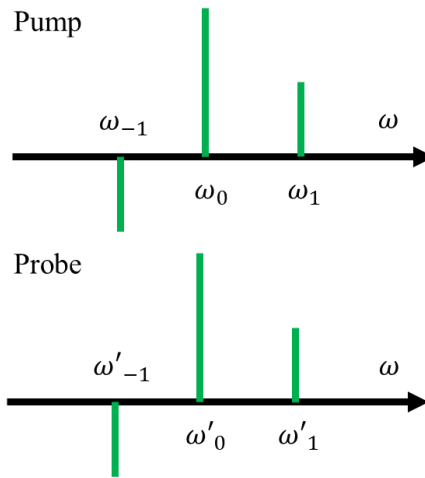


図 2.2.8 位相変調されたポンプ光(上)と、4 光波混合で変調を移された
プローブ光(下)の周波数成分の関係

検出すべき信号は、セル内で強度変調や位相変調を受けたプローブ光の搬送波とその ± 1 次のサイドバンドとのビート信号である。ところが実際の光学系では、光学素子の表面等でレーザーの一部が反射、散乱する。ここではこれらを総称して戻り光と表現する。ポンプ光の戻り光とプローブ光が混在して PD で受光した場合、例えばポンプ光の ± 1 次のサイドバンドとプローブ光の搬送波のビート信号が観測されることがある。これは不要な DC オフセットを生じさせ、周波数安定化時の周波数シフトの原因となるため、除去すべきである。ところが、検出すべきプローブ光の搬送波と ± 1 次のサイドバンドのビート信号と、除去すべきポンプ光の ± 1 次のサイドバンドとプローブ光の搬送波のビート信号は同じ角周波数を有し、PD 受信信号をスペクトラムアナライザーで測定した際には周波数 ω_m の信号として観測される。ポンプ光とプローブ光はセル内で重なり合うようにアライメントするため、ポンプ光の戻り光がプローブ光に混在した場合、2つを目視で区別することは困難である。そこで、AOM を用いてどちらか一方の光（典型的には Pump 光）の光周波数をシフトさせる。AOM を用いた場合の光学系の概念図を図 2.2.9 に、ポンプ光とプローブ光の角周波数の関係を図 2.2.10 に示す。Probe 光の搬送波と ± 1 次のサイドバンドのビート信号と、Pump の戻り光の搬送波と ± 1 次のサイドバンドのビート信号は、異なる周波数を有する。ポンプ光の ± 1 次のサイドバンドとプローブ光の搬送波のビート信号は角周波数が $\omega_{\text{AOM}} \pm \omega_m$ となるので、スペクトラムアナライザー上で目的の信号(= ω_m)と区別可能であり、当然 LPF を用いて除去することが容易である。このように、AOM を用いた Modulation transfer 分光は unnecessary 信号を取り除くことができるという利点がある。その一方で AOM を用いた場合は絶対周波数計測を行う際に、注意する点がある。それは、先程例に挙げたようにポンプ光の角周波数が $\omega + \omega_{\text{AOM}}$ かつプローブ光の角周波数が ω の場合、原子の共鳴周波数は $\omega + \omega_{\text{AOM}}/2$ となることである。

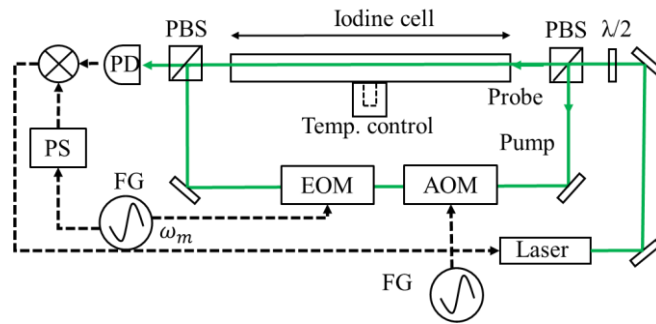


図 2.2.9 AOM を用いたヨウ素分子の Modulation transfer 分光のセットアップ図の例.

$\lambda/2$: Half wave plate, PBS: Polarizing beam splitter, AOM: Acousto-optic modulator, EOM: Electro-optic modulator, PD: Photodetector, DBM: Double balanced mixer, FG: Function generator, PS: Phase shifter.

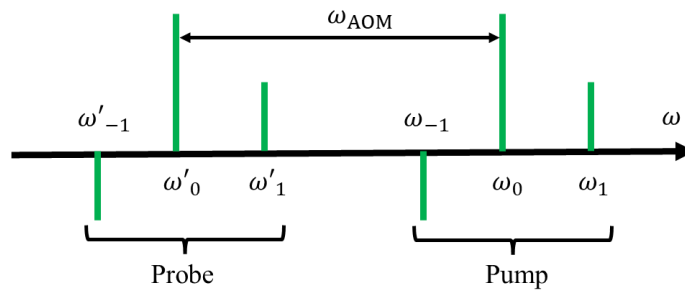


図 2.2.10 AOM を用いた場合のポンプ光(右)とプローブ光(左)の周波数成分の関係

2.3 半導体レーザーの雑音特性と評価の理論

本研究では、光周波数標準の発振器として半導体レーザーを利用する。そこで、半導体レーザーが有する雑音特性を強度雑音と周波数雑音の観点から述べる。さらに、光周波数基準に周波数安定化された半導体レーザーの光周波数特性を評価する手法の1つであるアラン標準偏差について述べる。

2.3.1 強度雑音

連続的に動作するレーザーの光強度は、平均値の周りにわずかに揺らいでいる。これを式(2.3.1)で定義される強度雑音とよび、dB表記することが多い。

$$RIN = 10 \log \left[\frac{\langle \Delta P^2 \rangle}{P_0^2 \times \Delta f} \right] \quad (2.3.1)$$

ここで、 $\langle \Delta P^2 \rangle$ はフーリエ周波数の帯域内の強度揺らぎの2乗平均値、 P_0 は平均光強度、 Δf は測定周波数帯域である。強度雑音は、自然放出光に由来する量子雑音や外的要因に由来して決定される。レーザー発振時には、自然放出光のうち共振器モードに一致する周波数成分の光が誘導放出で増幅される一方で、それ以外の周波数自然放出光が発生し続ける。利得飽和による負帰還が働くため、発振閾値を超えた光パワー領域では、強度雑音は量子雑音、特にショット雑音レベルまで減少する。この自然放出光に由来する量子雑音はファンデルポル方程式に不規則雑音の項を付け加えたランジュバン方程式を解くことで解析されてきた。量子雑音の強度雑音パワースペクトルは、 A, B, b を定数として

$$S_{ASE}^P(f) = \sqrt{\frac{A^3 + B\omega^3}{(\omega - \omega_r^2)^2 + \omega^2 b^2}} \quad (2.3.2)$$

で表され、低周波数領域では白色雑音特性を、高周波領域で鋭いピークを有する[81 - 83]。

外的要因としては、温度変動による量子効率の変化、電流値の変動、戻り光、共振器内縦モード間のモードホッピング現象などが挙げられる。例えば、半導体レーザーの出力パワーは駆動電流に敏感であり、 I_{th} を電流閾値、 E_g をバンド間エネルギー、 η_D を微分量子効率として

$$P = \frac{dP}{dI} (I - I_{th}) = E_g \eta_D (I - I_{th}) \quad (2.3.3)$$

で表される。半導体レーザーの出力は温度にも敏感であり、電流閾値(I_{th})と微分量子効率(η_D)は温度上昇にともない劣化することが多い。たとえば閾値電流値を表すために、以下の近似式が用いられる。ここで T_0 は特性温度である。

$$I_{th}(T) = I_{th}(T') \exp [(T - T')/T_0] \quad (2.3.4)$$

戻り光が生じる光学系は、光のコヒーレンス長と戻り光を生じさせる外部反射面までの距離との大小関係に応じて二重共振器構成と外部光注入構成に分類される。二重共振器構成における戻り光由来の雑音発生は、実効的な共振器長変動による位相変動に由来する。外部光注入構成での雑音発

生は、レーザーの時間的な周波数変動が外部光注入同期状態を悪化させることに由来する。

2.3.2 周波数雑音

周波数雑音は、レーザーのキャリア周波数の揺らぎをしめす量であり、強度雑音と同様に自然放出光に由来する白色の量子雑音や半導体レーザー固有のキャリア変動による共振ピークを有する有色雑音、外的要因に由来する雑音の足し合わせで表現される。半導体レーザーの場合、自然放出光由来の雑音の影響がその他のレーザーと比較して大きいことが知られている。自然放出光が定常発振するレーザー光の中に無関係な位相関係で混在し、コヒーレンスを悪化させる。レーザー発振閾値付近では、誘導放出による増幅作用で自然放出に由来する量子雑音が増幅されるため、量子雑音は非常に大きい。一方で発振閾値を大きく超えると、レーザー利得の飽和が負帰還効果を促し、雑音が減少していく。結果として単一モード発振では光検出器のショット雑音限界まで低下する。半導体レーザーにおける自然放出光に由来する量子雑音による線幅を記述する式として、シャロータウンズの関係式に対して周波数幅が $(1 + \alpha^2)$ だけ増加した、修正シャロータウンズの関係式

$$\begin{aligned} \Delta\nu_{ST} &= \frac{8\pi h\nu(\Delta\nu_c)^2}{P}(1 + \alpha^2) \\ &= \frac{h\nu n_{sp}}{8\pi} \left(\frac{C}{n_r L_{cavity}} \right)^2 \left[a_{cavity} + \frac{1}{2L_{cavity}} \ln \left(\frac{1}{R_1 R_2} \right) \right] \ln \left(\frac{1}{R_1} \right) \frac{(1 + \alpha^2)}{P} \end{aligned} \quad (2.3.5)$$

がしばしば用いられる。ただし、 $\Delta\nu_c$ は共振器の半値全幅、 P は共振器内の光パワーの合計、 n_{sp} は自然放出光係数(1~2)、 n は平均屈折率、 L_{cavity} は共振器長、 a_{cavity} は共振器内光損失、 R_1 と R_2 はそれぞれ出力側と裏面側の共振器ミラーの光損失である。 α は線幅増大係数と呼ばれ、自然放出により突発的に伝導体に励起されたキャリア数の変動が活性層の屈折率の実部と虚部に及ぼす影響の比、すなわち

$$\begin{aligned} \Delta n &= \Delta n' - i\Delta n'' \\ \alpha &= \Delta n' / \Delta n'' \end{aligned} \quad (2.3.5)$$

で定義される。 α は典型的に2~7程度である。さらに先述のキャリア数の変動は半導体内の電流量と自己発熱量の変動をもたらす、共振器の縦モード周波数の温度ドリフトを引き起こす[81, 82]。外的要因としては強度雑音と同様に、電流値変動に由来する自己発熱による周波数変動、周囲温度変動による周波数変動、戻り光、共振器内縦モード間のモードホッピング現象などが挙げられ、フリッカー雑音をはじめとしたさまざまな雑音を誘起する[81 - 83]。

電流-光周波数変動の感度特性は典型的に-1 GHz/mA程度である。周波数特性は、低周波数領域では一様な白色特性であり、高周波数領域に共振上のピーク($f_r \sim 1$ GHz)を有する。これは緩和振動現象と同様に、LD内のキャリア数密度変動の応答特性で決定される。さらに高い周波数領域では感度を有さず、カットオフ周波数 f_c の高周波数遮断特性を示す。一方で、温度-光周波数変動の感度特性は典型的に-10 GHz/K程度である。変動特性については、カットオフ周波数10 MHz程度のLPF型の高周波数遮断特性を有する。ただしこれらはLDの構造や材質、マウント治具、ペルチエ素子の配置などにも依存する。電流-光周波数変動の方が広帯域で白色特性を有するため、一般的

には電流制御により周波数雑音の低減が実施される。周囲温度変動による周波数ドリフトを抑制するために、低周波数領域(< 1 kHz)では制御利得を稼ぐ積分回路を、中間周波数領域では比例回路を利用する。電流-光周波数変動は位相遅れ特性を有するので、高周波数領域の周波数変動抑制のために、位相進み要素と利得獲得を同時に達成するために微分回路が利用されることもある。電氣的制御による周波数雑音低減では、ASE 由来の量子雑音以下まで周波数雑音を低減することが可能であり、究極的には制御系の光検出器のショット雑音と周波数弁別器の感度で制限される。ただし電氣的制御においては、制御周波数帯域幅をフリーランのレーザー線幅よりも大きく設計する必要がある。

さらに ASE 由来の高周波数領域の周波数雑音を抑制するためには、外部共振器構造を導入して共振器の Q 値を向上させて ASE の影響を削減させる方式がしばしば用いられ、このようなレーザーを ECDL と称する。ECDL は外部共振器を構成する（典型的には回折格子などの）反射ミラーの機械的振動に由来する共振器内戻り光の位相揺らぎがレーザー発振を不安定にさせる、レーザー共振器が大型化する、レーザーの電流変調が低下するなどの問題が生じる[83]。

周波数安定度の評価において、周波数領域での光周波数変動を何らかの手法で計測し、パワースペクトル密度（周波数雑音）として評価する方法がしばしば用いられる。線幅測定による評価も、この周波数領域での評価に含まれる。本研究では、線幅を周波数領域での周波数安定度の評価指標として利用する。

2.3.3 アラン標準偏差

一方で、時間領域で周波数の変動を計測し、アラン分散あるいはアラン標準偏差として評価する手法も周波数安定度の評価として用いられる。本研究ではアラン標準偏差を時間領域での周波数安定度の評価指標として利用する。

時刻 t における信号波形(レーザー光電場, RF 信号など)を

$$V(t) = [V_0 + e(t) \sin(2\pi\nu_0 t + \varphi(t))] \quad (2.3.6)$$

と表す。瞬時位相と瞬時周波数はそれぞれ

$$\theta(t) = (2\pi\nu_0 t + \varphi(t)) \quad (2.3.7)$$

$$\nu(t) = \frac{d\theta(t)}{dt} \times \frac{1}{2\pi} = \nu_0 t + \dot{\varphi}(t)/2\pi \quad (2.3.8)$$

で表される。平均値からのずれの量をキャリア周波数で規格化することで、周波数変動を表す無次元パラメータ $y(t)$ を、

$$y(t) = \frac{\dot{\varphi}(t)}{2\pi\nu_0} \quad (2.3.9)$$

で定義する。

時刻 t とともに変動する変数の自己相関関数を

$$R_y(\tau) = \langle y(t' + \tau)y(t') \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^{\infty} y(t')y(t' + \tau) dt' \quad (2.3.10)$$

で定義する。ウィナー・ヒンチンの定理によると、 $y(t)$ のパワースペクトル密度は $R_y(\tau)$ のフーリエ変換で与

えられる。周波数が負の値を取らないことを踏まえ、フーリエ周波数が $0 < f < \infty$ の範囲で定義される片側パワースペクトル密度は

$$S_y(f) = 4 \int_0^{\infty} R_y(\tau) \cos(2\pi f\tau) d\tau \quad (2.3.11)$$

で表される。 $S_y(f) \propto f^0, f^{-1}, f^{-2}$ となる $y(t)$ をそれぞれ白色雑音、フリッカー雑音、ランダムウォークと呼ぶ。

実際の測定においては、周波数カウンターでは瞬時周波数を計測することはできず、カウンターのゲート時間 τ で平均化された周波数が計測される。 k 回目の測定開始時刻から τ 秒間の周波数計測を行うと、測定開始時刻 (t_k) とその平均値 (\bar{y}_k) は

$$t_k = t_{k-1} + \tau \quad (2.3.12)$$

$$\bar{y}_k = \frac{1}{\tau} \int_{t_k}^{t_k+\tau} y(t) dt \quad (2.3.13)$$

で表される。これらの平均値のばらつきを表す分散をアラン分散と定義し、

$$\langle \sigma_y^2(N, \tau) \rangle = \left\langle \frac{1}{N-1} \sum_{n=1}^N (\bar{y}_n - \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \bar{y}_k) \right\rangle \quad (2.3.14)$$

で表される。特に $N=2$ の時、

$$\sigma_y^2(\tau) = \left\langle \frac{(\bar{y}_{k+1} - \bar{y}_k)^2}{2} \right\rangle \quad (2.3.15)$$

となり、これをアラン分散と呼ぶ。アラン標準偏差は、

$$\sigma_y(\tau) = \sqrt{\left\langle \frac{(\bar{y}_{k+1} - \bar{y}_k)^2}{2} \right\rangle} \quad (2.3.16)$$

で表され、周波数安定度の時間領域の尺度として利用される[84, 85]。アラン分散はパワースペクトル密度から算出することが可能であり、その変換式は

$$\sigma_y^2(\tau) = 2 \int_0^{\infty} S_y(f) \times \frac{\sin^4(\pi f\tau)}{(\pi f\tau)^2} df \quad (2.3.17)$$

である。例えばパワースペクトル変動が白色雑音であれば、アラン標準偏差は

$$\sigma_y(\tau) = \frac{1}{2\pi\nu_0} \sqrt{\frac{C}{\tau}} \quad (2.3.18)$$

で表され、 $1/\sqrt{\tau}$ に従いアラン標準偏差は向上する。ここで C は定数である。通常、平均時間 τ を一定以上に長く取ると系全体で生じるフリッカー雑音の影響が大きくなり、アラン標準偏差は限界値に到達する。この限界値をフリッカーノイズフロアと呼ぶ。さらに平均時間を延ばすと温度変動に起因する周波数ドリフトの効果が顕在化し、アラン標準偏差は悪化する[84, 85]。

原子分子への周波数安定化においては、ドップラーフリー分光により得られた吸収信号から短期の周波数安定度を見積もることが可能である。例えばエラー信号が得られた時、信号の振幅電圧を V_{pp} 、 J

イズレベルの電圧を V_{noise} , 吸収線の最大値と最小値の周波数差(吸収線幅と呼ぶ)を f_{pp} とすると, 周波数安定化時の周波数揺らぎ δf は,

$$\delta f = \frac{V_{\text{rms}}}{V_{\text{pp}}} \times f_{\text{pp}} \quad (2.3.19)$$

と表現することが可能である. 信号を観測する際に利用した LPF の時定数がアラン標準偏差の積算時間に相当する.

2.4 光周波数コムと光周波数計測の理論

本研究で作成された光周波数標準の周波数安定度は、参照用レーザーとの干渉計測を通して線幅やアラン標準偏差で評価される。これらの光周波数の特性を計測するための参照レーザーとして利用する光周波数コムと周波数計測の手法について述べる。

2.4.1 光周波数コム

多モード発振しているレーザーの全光電場 $E(t)$ は、各縦モードの光電場の重ね合わせ

$$E(t) = \sum_n E_n \exp [i\{(\omega_c + n\delta\omega) + \varphi_n\}] \quad (2.4.1)$$

で表現される。 ω_c はキャリア縦モードとして任意に選定した縦モードの角周波数、 E_n と φ_n はそれぞれキャリア縦モードから n だけ離れた縦モードの電場の大きさと位相を表す。一般的なレーザー発振では φ_n がランダムであり、各モードの電場が独立な発振をする。一方で、各モードの位相 φ_n がそろっている場合をモード同期状態と呼ぶ。モード同期状態の各モードの位相を簡単のために 0 とすると、レーザーの全光電場と強度は

$$E(t) = \sum_n E_n \exp[i(\omega_c + n\delta\omega)t] \propto \frac{e^{iN\delta\omega t} - 1}{e^{i\delta\omega t} - 1} e^{i\omega_c t} \quad (2.4.2)$$

$$I(t) = |E(t)|^2 \propto \frac{\sin(N\delta\omega t/2)^2}{\sin(\delta\omega t/2)^2} \quad (2.4.3)$$

となる。各モード同士のコヒーレントな干渉により、超短パルス光が出力されることが分かる。一般に媒質中では群速度と位相速度が異なるため、パルスが進行するにつれて包絡線のピークとパルスのピークはずれていく。パルスの繰り返し周期を T_{rep} 、 $\Delta\varphi$ を 1 パルス毎に生じる搬送波と包絡線のピークの位相差とする。繰り返し周期 T_{rep} の逆数を f_{rep} とすると、

$$f_{\text{rep}} = \frac{1}{T_{\text{rep}}} \quad (2.4.4)$$

を得る。包絡線のピークとパルスのピークの位相差が 0 の状態から再び位相差 0 に戻るまでにかかる時間 T_{CEO} は、

$$T_{\text{CEO}} = \frac{2\pi}{\Delta\varphi} \times T_{\text{rep}} \quad (2.4.5)$$

で表される。この逆数を f_{CEO} とすると、

$$f_{\text{CEO}} = \frac{\Delta\varphi}{2\pi} f_{\text{rep}} \quad (2.4.6)$$

と表される。 f_{rep} を繰り返し周波数、 f_{CEO} をキャリアエンベロープオフセット周波数と呼ぶ。

モード同期レーザーは、時間軸上ではパルスが周期的に並んだものであり、これを周波数領域で観測すると図 4.1.1 のようにある一定周波数感覚で並ぶ δ 関数列である。このスペクトル列は形状が櫛に似ているため、「光周波数コム」と呼ばれる。モード間隔が f_{rep} に相当し、これを繰り返し周波数と呼ぶ。

モードを一定間隔のまま、周波数ゼロ付近まで拡張していったとき、最もゼロに近いコムモードをゼロ番目のモードとして、これが f_{CEO} に相当する。 f_{CEO} はキャリアエンベロープオフセット周波数と呼ばれる。コム
の N 番目のモードでの周波数 $f(N)$ は、

$$f(N) = f_{CEO} + N \times f_{rep} \quad (2.4.7)$$

で表される[1, 60, 61, 86].

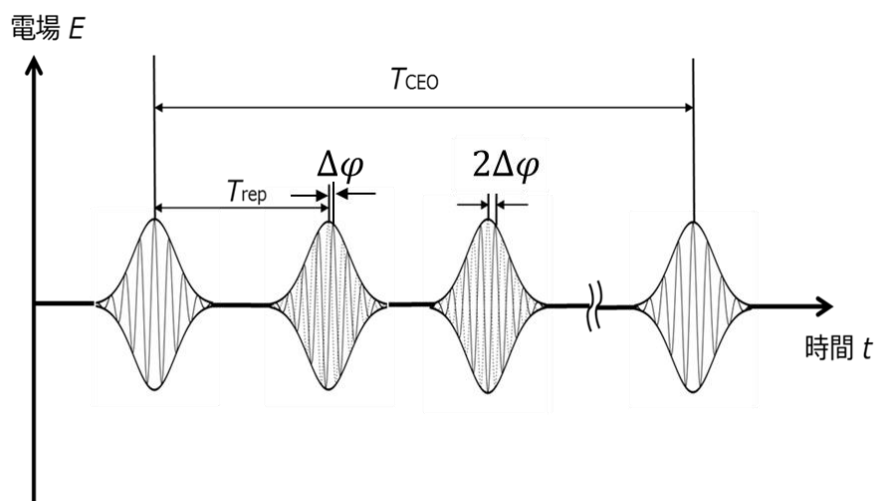


図 2.4.1 モード同期レーザーの典型的な時間波形

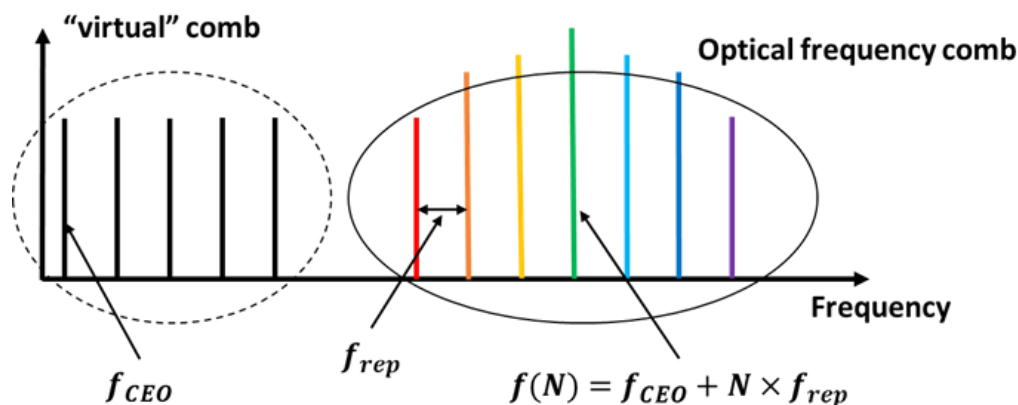


図 2.4.2 周波数領域での光周波数コムの概念図

2.4.2 光周波数コム非線形偏波回転

波長 1.5 μm 帯で発振するモード同期エルビウム(Er)ファイバーレーザーをベースとした Er ファイバーコムは、小型かつ堅牢であり、更にメンテナンスフリーで数週間の連続運転が可能であるため、精密分光を始めとした様々な分野で広く普及している[1]。モード同期法には、共振器に周期的変調を引き起こす能動モード同期法と、受動的に変調がおきる受動モード同期法がある。今回使用された Er ファイバーコムは、非線形偏波回転(Nonlinear Polarization Rotation: NPR)[87]を用いてモード同期を達成している。そこで本節ではこの NPR について述べる。

光ファイバー中を楕円偏光のパルスレーザーが周回することを考える。楕円偏光は強度の異なる、直交する2つの円偏光の重ね合わせとみなすことができる。ファイバー中では伝搬光の直交する二つの偏光成分に光強度に依存した位相差が発生し、楕円偏波面が超高速で回転する。これを NPR と呼ぶ。ファイバーはそのコア径の小ささゆえに非線形屈折率の変化が大きいため、NPR を容易に発生させることが可能である。ファイバー中では、パルスのピーク付近、すなわち高強度な部分は自己位相変調や相互位相変調といった非線形光学効果の影響で偏光が回転する。その一方でパルスの裾野付近、すなわち低強度な部分は位相変調を受けにくい。ゆえに1つのパルス内で、高強度部と低強度部の偏光が異なる状態が発生する。ここで波長板と偏光子をファイバー出力端に設置し、「パルスのうち高強度な部分の偏光方向」と「偏光子を通過する偏光方向」を一致するように操作すると、パルスのピーク部分は偏光子を通過する一方で、低強度の部分は偏光状態がピーク部分と異なるので、偏光子により除去される。パルスが周回するごとに、ファイバー共振器中ではパルスの高強度な部分(中心部)が生き残り、利得媒質(Er^{3+})で増幅される一方で、裾の部分が削られていき、超短パルス光が生成される。

2.4.3 ビート信号検出

図 4.1.6 は、角周波数 ω_1 と ω_2 のレーザー光のビート信号を検出するための光学系の模式図を示している。レーザー光の光電場について、それぞれの振幅の絶対値を E_1 と E_2 とすると、

$$\text{Laser 1: } E_1 \equiv E_1 e^{i(\omega_1 t + \varphi_1(t))} \quad (2.4.8)$$

$$\text{Laser 2: } E_2 \equiv E_2 e^{i(\omega_2 t + \varphi_2(t))} \quad (2.4.9)$$

であり、 $\varphi_1(t)$ 、 $\varphi_2(t)$ はそれぞれレーザー光電場の位相揺らぎである。2つのレーザーの偏光を一致させたうえで空間的に重ね合わせて検出器で受光すると、検出器からの電気信号 $V_{det}(t)$ は、

$$V_{det}(t) \propto |E_1 + E_2|^2 \propto E_1^2 + E_2^2 + 2E_1 E_2 \cos [(\omega_1 - \omega_2)t + (\varphi_1(t) - \varphi_2(t))] \quad (2.4.10)$$

である。第3項がレーザーの周波数差、すなわちビート周波数を示し、PD から AC 信号として取り出すことが可能である。また、第4項は、レーザー光電場の位相揺らぎが原因で生じるビート信号の位相揺らぎである [79]。式(2.4.10)では省略したが、実際にはビート信号の大きさは波面の重なり積分で示されるため、2つのレーザー光の波面を合わせて、ビームが同軸平行に調整し、偏光を一致させることが重要である。

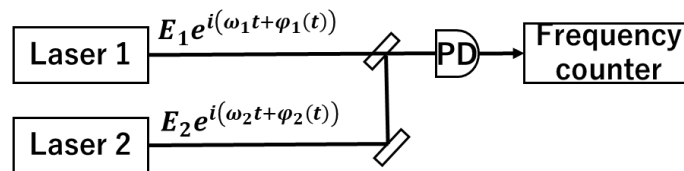


図 2.4.3 レーザーのビート検出を行う系の模式図。PD: Photodetector.

2.4.4 位相同期

ある信号の位相を、基準となる別の信号に同期することを位相同期と呼ぶ。位相の時間微分が周波数なので、位相を同期させると周波数も同期される。特に二つの信号が光電場であるとき、基準となる光電場信号(レーザー)をマスターレーザー、これに安定化される光電場信号(レーザー)をスレ

ーレーザーと呼ぶ。図 2.4.4 にレーザーの位相同期系の概念図を示す。Laser1 がマスターレーザー、Laser2 がスレーブレーザーである。ダブルバランスミキサ(DBM)は位相比較器として用いる。2 つのレーザーのビート信号の角周波数と位相揺らぎをそれぞれ $\omega_{beat} = \omega_1 - \omega_2$, $\varphi_{beat} = \varphi_1(t) - \varphi_2(t)$ とする。ビート信号の位相を $\theta_{beat}(t) = \omega_{beat}t + \varphi_{beat}$, 基準信号の位相を $\theta_{ref}(t) = \omega_{ref}t + \varphi_{ref}$ とすると、ビート信号 $V_{beat}(t)$ は

$$V_{beat}(t) = V_1 \cos \theta_{beat}(t) \quad (2.4.11)$$

で、基準信号 $V_{ref}(t)$ は

$$V_{ref}(t) = V_2 \cos \theta_{ref}(t) \quad (2.4.12)$$

で表せる。これらを DBM で乗算して LPF で高周波数成分を除去すると、獲得される電気信号は

$$S(t) \propto \frac{V_1 V_2}{2} \cos(\theta_{beat}(t) - \theta_{ref}(t)) \quad (2.4.13)$$

となる。これをエラー信号として、 $S(t) = 0$ となるようにスレーブレーザーに対してフィードバック制御をかけると、2 つのレーザーは任意の時刻で $\theta_{beat}(t) - \theta_{ref}(t) = \frac{\pi}{2}$ を保つように位相同期される。この時に

$\omega_{ref} = \omega_{beat}$ かつ $\varphi_{beat} - \varphi_{ref} = \frac{\pi}{2}$ であり、ビート信号の周波数、位相揺らぎの両方が基準信号に安定化されることになる。 $\omega_1 < \omega_2$ の場合は $\omega_{beat} < 0$ であるから、ローパスフィルターを通した出力は、

$$S(t) \propto \frac{V_1 V_2}{2} \cos(\theta_{beat}(t) + \theta_{ref}(t)) \quad (2.4.14)$$

となる。フィードバック制御によって2本のレーザーは

$$\theta_{beat}(t) + \theta_{ref}(t) = \frac{\pi}{2} \quad (2.4.15)$$

を保つように位相同期される。位相同期の時間微分を考えると、角周波数 $|\omega_1 - \omega_2|$ のビート信号が角周波数 ω_{ref} の基準信号に位相同期するようレーザー2 を制御することで、レーザー2(1)の角周波数をレーザー1(2)の角周波数から ω_{ref} だけ異なる角周波数に安定化したことに等しい。このような周波数安定化の機構をオフセットロックと呼ぶ。この位相同期は、PLL(phase-locked loop)回路を用いた RF 発振器と同じ仕組みであるため、OPLL(optical phase-locked loop)とも呼ばれる [81]。

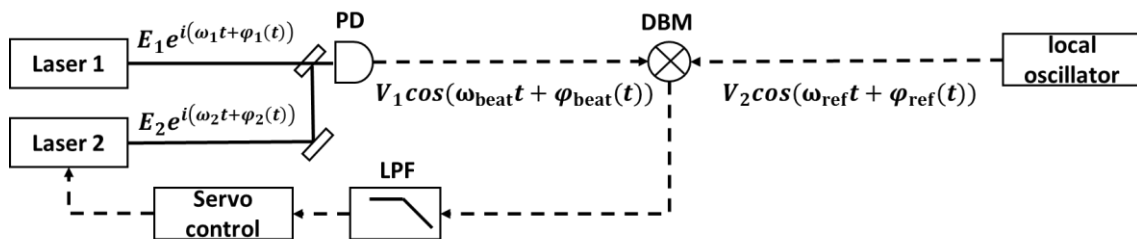


図 2.4.4 位相同期を行う実験系の模式図。

PD: photodetector, DBM: Double balanced mixer, LPF: Low-pass filter.

2.4.5 自己参照法によるキャリアエンベロープオフセット周波数 f_{CEO} の計測

キャリアエンベロープオフセット周波数 f_{CEO} の検出は通常、自己参照法と呼ばれる干渉計測を用いて達成される[85]。自己参照法とは、ある一つの光周波数コムから f_{CEO} の異なる光周波数コムを2種類発生させ、ある波長(領域)でその2つの光コムモードのビート信号を検出する手法である。スペクトル幅が1オクターブ以上に広がった光周波数コムに対して $1f - 2f$ 干渉計を組む方法が一般的である。先述したように、光周波数コムの n 番目の縦モードの光周波数は

$$f(n) = f_{\text{CEO}} + n \times f_{\text{rep}} \quad (2.4.16)$$

である。光周波数コムのスペクトルが1オクターブ以上に広がっている時、低周波側に N_1 番目のコムが、高周波側に $2 \times N_1 = N_2$ 番目のコムが同時に存在するような N_1 の値が存在する。この $N_2 = 2N_1$ 番目縦モードの光周波数は

$$f(N_2) = f_{\text{CEO}} + N_2 \times f_{\text{rep}} \quad (2.4.17)$$

である。一方で、 N_1 番目の縦モードを波長変換結晶に通して得られるSHGの光周波数は

$$2f(N_1) = 2f_{\text{CEO}} + 2N_1 \times f_{\text{rep}} \quad (2.4.18)$$

である。よって、この2つの光のビート信号を測定すると、

$$2f(N_1) - f(N_2) = f_{\text{CEO}} \quad (2.4.19)$$

f_{CEO} が得られる。ここでは簡単のため n をある一つの自然数としたが、実際は光周波数コムの数万の縦モード成分が n に相当し、これらすべてが f_{CEO} 信号検出に用いられるため、位相同期制御に十分なSNRが獲得される[86]。一方で光周波数コムのスペクトルが1オクターブに満たない場合、より高次の高調波を用いた自己参照法により、 f_{CEO} 信号を検出する。

2.4.6 光周波数コムの安定化

光周波数領域で絶対周波数を計測できる「光周波数のものさし」として光周波数コムを利用するためには、 f_{rep} と f_{CEO} を高精度な周波数基準に安定化する必要がある。安定化した光周波数コムの絶対周波数の不確かさは、安定化に用いる周波数基準の不確かさと安定化の方法で決定される。安定化の方法としては、

- (1). 繰り返し周波数 f_{rep} とキャリアエンベロープオフセット周波数 f_{CEO} をマイクロ波基準に安定化する。
- (2). コムの1つのモードを光周波数領域の周波数基準に、キャリアエンベロープオフセット周波数 f_{CEO} をマイクロ波基準に安定化する。

などの手法が挙げられる。本研究で光周波数計測の参照用レーザーとして利用した光周波数コムは、Iの手法で制御されたErファイバーコム(3章)と、IIの手法で制御されたTi:Sapphireコム(3章)とErファイバーコム(4章)である。そこで、(1)と(2)のそれぞれの手法で制御された光周波数コムの N 次の縦モードの光の絶対周波数の不確かさを考える。

図2.4.5および図2.4.6に(1)の手法、すなわちマイクロ波基準のみを使用して光周波数コムを安定化する系の模式図を示す。

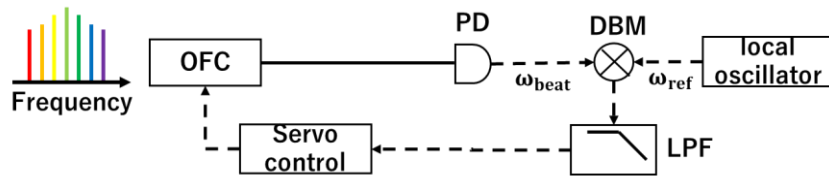


図 2.4.5 マイクロ波標準を用いた f_{rep} の制御

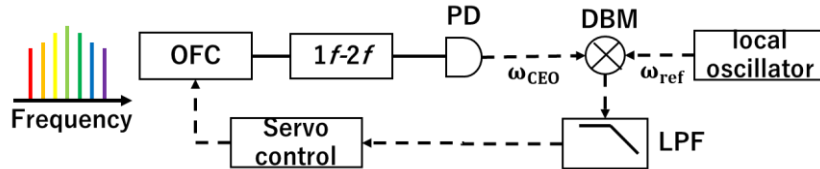


図 2.4.6 マイクロ波標準を用いた f_{CEO} の制御の模式図.

OFC: Optical frequency comb, $1f-2f$: $1f-2f$ interferometer,

PD: photodetector, DBM: Double balanced mixer, LPF: Low-pass filter.

図 2.4.5 は、光周波数コムの f_{rep} をマイクロ波周波数標準に位相同期する系の概要図を示す。光周波数コムの光を検出器で受光すると、容易に f_{rep} を観測することができる。この信号と local oscillator の基準信号を DBM に入力すると、DBM は位相比較器として働き、 f_{rep} と基準信号の位相差信号を出力する。その信号をエラー信号としてサーボ回路入力することでサーボ信号を獲得し、オシレーターに取り付けられた PZT やオシレーター台座に接着されたペルチエ素子で光周波数コムの共振器長を制御することで f_{rep} の安定化を達成する。

図 2.4.6 は光周波数コムの f_{CEO} をマイクロ波周波数標準に位相同期する系の概要図を示す。 f_{rep} と異なり、 f_{CEO} は $1f - 2f$ 干渉計で得られる干渉信号を検出器で受信することで観測される。その後の処理は f_{rep} の制御と同様であり、典型的にはサーボ信号を用いて光周波数コムの励起電流を制御することで、 f_{CEO} の安定化が達成される。

この場合、 N 次縦モードの有する周波数不確かさは

$$\delta\nu_N = N \times \delta f_{\text{rep}} + \delta f_{\text{CEO}} \quad (2.4.20)$$

で表される。例えば相対不確かさが 10^{-11} のマイクロ波周波数標準に安定化された、 $f_{\text{CEO}} \cong 10$ MHz かつ $f_{\text{rep}} \cong 100$ MHz の光周波数コムの、 $\nu = 250$ THz 付近の縦モードを考える。光周波数コムを用いた光周波数領域での周波数計測では、縦モード次数 N が非常に大きく、今回の例では 2×10^6 程度である。マイクロ波周波数標準の不確かさが N 倍に拡張されるため、光周波数 ν_N の縦モードが有する不確かさは $N \times \delta f_{\text{rep}} \cong 2$ kHz となる。相対不確かさは $N \times \delta f_{\text{rep}} / \nu_N \cong 10^{-11}$ である。一方で f_{CEO} の安定化を同様に行うとその不確かさは、 $\delta f_{\text{CEO}} \cong 0.2$ mHz である。光周波数 ν_N の縦モードの絶対周波数に対する δf_{CEO} の相対不確かさは、 $\delta f_{\text{CEO}} / \nu_N \cong 10^{-18}$ と非常に小さい。ゆえに、光周波数コムの周波数安定度は f_{rep} の不確かさ、すなわちマイクロ波標準の周波数安定度で制限されることになる。よって、マイクロ波標準として高精度な発振器を用いることが望ましい。

一方で(2)の手法では、すなわちマイクロ波標準と光周波数標準を併用して光周波数コムを安定化する。図 2.4.7 は光周波数コムの一つのモードを CW レーザーにオフセットロックする系の概要図を示す。

先に述べたビート信号検出手法で光周波数コムと光周波数標準のビート信号を検出する。光周波数コムを参照用レーザーとして利用する場合に特有の課題として、ビート信号の測定時には光周波数標準の光周波数の最近接モード2つのみがビート信号を生成し、そのほかの縦モードはショット雑音の発生要因になることが挙げられる。ゆえに、回折格子や波長フィルターを用いて適切に波長フィルタリングすることが重要である。獲得された光周波数コムと光周波数標準のビート信号を安定なマイクロ波標準に位相同期することで、光周波数コムの一つのモードはCWレーザーに安定化される。光周波数コム f_{CEO} は、先ほどと同様にマイクロ波周波数標準に位相同期される。

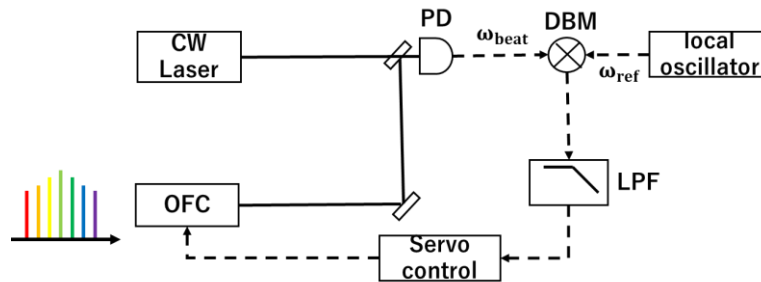


図 2.4.7 コムの一つのモードを CW レーザーに位相同期する系の概念図

OFC: Optical frequency comb, PD: photodetector,
DBM: Double balanced mixer, LPF: Low-pass filter.

光周波数基準である周波数安定化レーザー(周波数 f_{CW} , 不確かさを δf_{CW})に位相同期された光周波数コム N 次縦モードの光周波数は、不確かさを含めて

$$f_{\text{CW}} + \delta f_{\text{CW}} = N(f_{\text{rep}} + \delta f_{\text{rep}}) + f_{\text{CEO}} + \delta f_{\text{CEO}} \quad (2.4.21)$$

で表される。ただし簡略化のため、光周波数コムと光周波数標準のビート信号を 0 とした。光周波数計測に利用される任意の M 次縦モード光周波数と不確かさは、

$$f_M + \delta f_M = M(f_{\text{rep}} + \delta f_{\text{rep}}) + (f_{\text{CEO}} + \delta f_{\text{CEO}}) \quad (2.4.22)$$

$$= \frac{M}{N} f_{\text{CW}} + \left(1 - \frac{M}{N}\right) f_{\text{CEO}} + \frac{M}{N} \delta f_{\text{CW}} + \left(1 - \frac{M}{N}\right) \delta f_{\text{CEO}}$$

で表される。左辺と右辺を比較することで、

$$f_M = \frac{M}{N} f_{\text{CW}} + \left(1 - \frac{M}{N}\right) f_{\text{CEO}} \quad (2.4.23)$$

$$\delta f_M = \frac{M}{N} \delta f_{\text{CW}} + \left(1 - \frac{M}{N}\right) \delta f_{\text{CEO}} \quad (2.4.24)$$

の関係式を得る。ここで縦モード次数 N と M は光周波数領域に存在するため、(1)の手法に比べて縦モード光周波数の不確かさは小さくなるということがわかる。先ほどと同様の議論により、実際の実験系において、 δf_{CEO} は典型に $\delta f_{\text{CEO}} \cong 0.2$ mHz 程度である。すなわち、縦モード光周波数の不確かさは光周波数標準の不確かさで決定されることが多い。

2.4.6 光周波数コムを用いた絶対光周波数計測

被測定対象のレーザー(光周波数 f)が光周波数コムの帯域内に存在するとき、被測定対象レーザーと光周波数コムとの干渉信号を計測することでレーザーの絶対光周波数を算出することが可能である。例えば、光周波数コムの N 番目の光縦モードとレーザーとのビート信号の周波数が f_{beat} であるとき、レーザーの周波数は

$$f = f_{CEO} + N \times f_{rep} + f_{beat} \quad (2.4.25)$$

で表される。光周波数の関係の模式図を図 2.4.8 に示す。ところが実際の実験系では図 2.5.10 に示すように、 $0 \leq f \leq f_{rep}$ の領域で 2 つのビート信号が観測される。これは、光周波数コムの第 1 最近接モードとレーザーのビート信号光周波数コムの第 2 最近接モードとレーザーのビート信号がともに f_{rep} 以下の値を有するためである。 f_{laser} の最近接縦モード次数を n として、縦モード光周波数を $f(n)$ とすると、

$$|f_{laser} - f(n)| = f_{beat} \quad (2.4.26)$$

$$f_{laser} = n \times f_{rep} \pm f_{CEO} \pm f_{beat} \quad (2.4.27)$$

である。±の符号は、 f_{laser} あるいは f_{rep} のうち一方の周波数値を変化させることで確認する。 f_{rep} を大きくして f_{beat} が大きくなれば、

$$n = N + 1 \quad (2.4.28)$$

$$f_{laser} = n \times f_{rep} + f_{CEO} - f_{beat} \quad (2.4.29)$$

となる。逆に、 f_{beat} が小さくなれば

$$n = N \quad (2.4.20)$$

$$f_{laser} = n \times f_{rep} + f_{CEO} + f_{beat} \quad (2.4.31)$$

となる。 f_{CEO} 検出信号に関しても同様に考えられる。

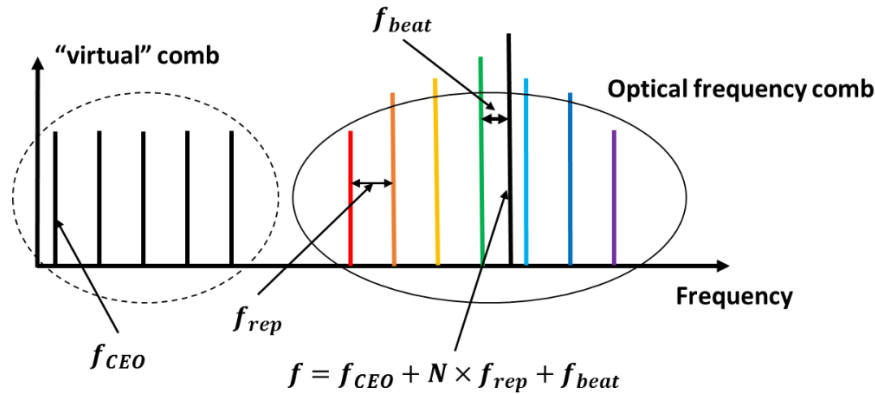


図 2.4.8 光周波数コムを用いたレーザー周波数計測の概念図

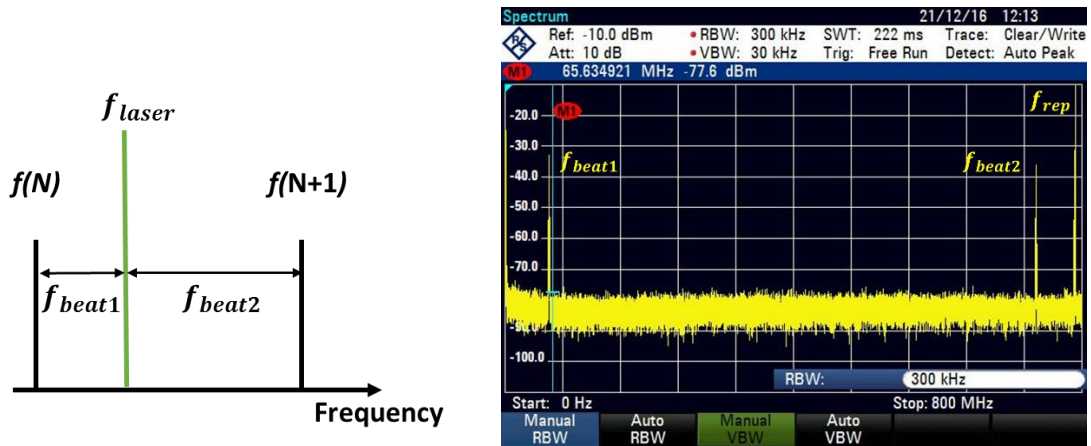


図 2.4.9 光周波数コムと CW レーザーのビート信号の対応図.

左図は被測定対象レーザーと光周波数コムとの最近接縦モードの周波数関係の概念図を、
 右図はスペクトラムアナライザーで観測された実際のビート信号を示す。

2.5 イッテルビウム原子分光の理論

本節では、Yb 原子の冷却遷移として利用される $^1S_0 - ^1P_1$ 許容光学遷移を理解するのに必要な、原子のエネルギー準位と光学遷移の理論について記述する。

2.5.1 微細構造

2つの電子から生じる結合状態を考える。LS 結合では、スピンはスピン同士と、軌道角運動量は軌道角運動量同士と結合する。原子内の電子の全軌道角運動量 L は各電子の軌道角運動量を l_i として

$$L = \sum l_i \quad (2.5.1)$$

で表される。同様に原子内の電子の全スピン S は、個々の電子のスピン s_i のベクトル和

$$S = \sum s_i \quad (2.5.2)$$

で表される。ただし電子の場合、 $s_i = 1/2$ である。さらに全軌道角運動量 L と全軌道角運動量 S をベクトル的に足し合わせることで全角運動量 J を定義する。

$$J = L + S \quad (2.5.3)$$

このとき、全角運動量 J の大きさ J は、

$$J = |L + S|, |L + S - 1|, \dots, |L - S| \quad (2.5.4)$$

である。この L-S 結合の結果を示す記号を項記号と呼ぶ。項記号は、

$$^{2S+1}L_J \quad (2.5.5)$$

と表す。全軌道角運動量子数 $L = 0, 1, 2, 3, \dots$ に対して記号を S, P, D, F, \dots と割り当てる。また $2S + 1$ はスピン多重度と呼ばれ、 S の z 方向への射影成分の数を表す。項記号は主量子数 n を用いて、

$$n^{2S+1}L_J \quad (2.5.6)$$

と表す場合もある[88, 89]。今回の研究で注目する遷移は、Yb 原子の $^1S_0 - ^1P_1$ である。始状態と終状態の電子状態を表 2.5.1 に示す。

表 2.5.1 $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移の始終状態での電子状態

1S_0	$S = 0, L = 0, J = 0$
1P_1	$S = 0, L = 1, J = 1$

水素原子のシュレインガー方程式を解くと、エネルギーは主量子数 n のみに依存する。ところが実際には、同じ主量子数 n でも縮退が解けてエネルギー準位が分裂する現象が生じる。これは、多電子原子のハミルトニアンには通常の運動エネルギーと静電相互作用の項に加え、スピンに関係した多くの項が存在するためである。特に、電子スピンに付随した磁気モーメントと、電子自身の軌道運動により発生する電流が作る磁場との相互作用として古典的に説明されるスピン軌道相互作用によって生じる構造を微細構造と呼ぶ。

各電子状態のエネルギー準位は、Hund の規則と呼ばれる以下の 3 つの経験的法則に従う[88, 89]。

- (1). 最大の S を持つ状態が最安定であり, S が小さくなるにつれて安定性が減少する.
- (2). 同じ S を持つ状態では最大の L を持つ状態が最安定である.
- (3). L と S が同じ場合, 副殻の半分以下が占有されていれば最小の J の状態が最安定であり, 半分以上が占有されていれば最大の J の状態が最安定である.

2.5.2 超微細構造

原子の中心にある原子核が核スピンを持っている場合, 電子の磁気モーメントと原子核の磁気モーメントの相互作用により, 微細構造エネルギー準位がさらに分裂する. この構造を超微細構造と呼ぶ. 核スピンを考慮した場合の全角運動量 F は, 考慮していない場合の全角運動量 J と核スピン I のベクトル和で表し

$$F = J + I \quad (2.5.7)$$

となり, 全角運動量の大きさ F は

$$F = |J + I|, |J + I - 1|, \dots, |J - I| \quad (2.5.8)$$

である. 超微細構造のエネルギー準位は, 量子数 F を用いて指定することができる [88, 89]. そして, 原子の超微細構造作用を示すハミルトニアン H_{hfs} は式(2.5.9)で与えられる.

$$H_{hfs} = A_{hfs}(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) + B_{hfs} \times \frac{6(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})^2 + 3\mathbf{I} \cdot \mathbf{J} - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \quad (2.5.9)$$

ここで右辺第 1 項は周囲の電子がつくる磁場と原子核の磁気双極子モーメントの相互作用である磁気双極子相互作用であり, A_{hfs} は磁気双極子相互作用であり, 最も影響が大きい. 右辺第 2 項は周囲の電荷が形成する電場勾配と原子核の電気四重極子モーメントとの相互作用である電気四重極子相互作用を示し, B_{hfs} は電気四重極子相互作用係数である[88, 89].

2.5.3 選択則

原子分光で観測される遷移は大きく 3 種類(電気双極子遷移, 磁気双極子遷移, 及び電気四重極遷移)に分けられる. この中では電気双極子遷移が最も遷移確率が高い. 電気双極子遷移は電気双極子モーメントを介しての遷移であり, これが起こり得る遷移を光学的許容遷移, そうでない遷移を光学的禁止遷移と呼ぶ. この遷移が起こり得る条件 (一般的に選択則と呼ばれる) を表 3.2.2 に示す.

表 2.5.2 選択則

全軌道角運動量 L	$\Delta L = 0, \pm 1$ (ただし, $L' = 0 \leftrightarrow L'' = 0$ は禁制)
全スピン角運動量 S	$\Delta S = 0$
全角運動量 J	$\Delta J = 0, \pm 1$ (ただし, $J' = 0 \leftrightarrow J'' = 0$ は禁制)
全角運動量 F	$\Delta F = 0, \pm 1$ (ただし, $F' = 0 \leftrightarrow F'' = 0$ は禁制)

ただし, 選択則 $\Delta S = 0$ はスピン軌道相互作用が小さい場合, すなわち原子番号が小さい原子だけによく当てはまる. 原子番号が大きくなるにつれて, 選択則が破れる確率が高くなる. 多重度の異なるエネルギー準位間の遷移で放出されるスペクトル線を異重項間遷移線と呼ぶ. 異重項間遷移は遷移確

率が小さい, すなわち自然幅が小さく上準位寿命が長いという特長を有する [89]. 例えば今回の研究で用いた Yb 原子は, 3 つの異重項間遷移を持つ. 特に, $^1S_0 - ^3P_0$ 遷移は時計遷移とも呼ばれ, 秒の再定義の候補の一つとなっている.

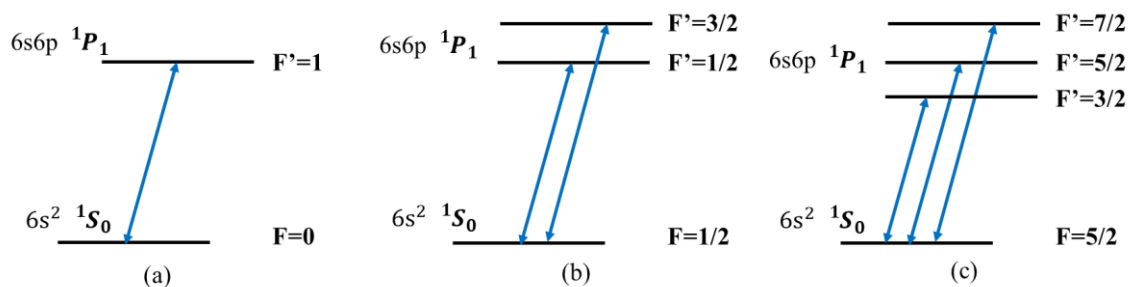


図 2.5.1 Yb 原子のエネルギー準位と, 選択則に従った $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移
(a)はボソン同位体, (b)は ^{171}Yb , (c)は ^{173}Yb のエネルギー準位を表している.

2.5.2 同位体シフト

同一原子でも, 同位体によって遷移周波数が異なる場合がある. この現象を同位体シフトと呼ぶ. 同位体シフトの原因は主に原子核の質量の差異と, 原子核の電荷分布の広がり(体積効果)によって生じると考えられている. 特に Yb のように重い原子の場合は, 後者が主要な原因である[88, 89].

2.6 ヨウ素分子分光の理論

光周波数標準の研究対象として利用される等核 2 原子分子であるヨウ素分子の分光についての理論を示す。2 原子分子のエネルギーは、電子エネルギー、回転エネルギー、振動エネルギーの 3 つの和で近似的に表すことができる。

$$E_{total} = E_e + E_r + E_v \quad (2.6.1)$$

ゆえにヨウ素分子の分光を考える際は、系全体の電子、分子振動、分子回転を考慮する必要がある [88 - 91]。

2.6.1 振動エネルギー

まず、2 原子分子を換算質量 μ の剛体回転子とみなす。回転の波動関数を Ψ_r として、シュレディンガー方程式は

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \Psi_r = E_r \Psi_r \quad (2.6.2)$$

である。これを解くと、回転量子数 J と分子の慣性モーメント $I = \mu r^2$ を用いて以下の解が得られる。

$$E_r = \frac{\hbar^2}{2I} J(J+1) \quad (2.6.3)$$

分子分光学では、この式を hc で割った項値の形で書かれることが多い。

$$F(J) = \frac{E_r}{hc} = BJ(J+1) \quad (2.6.4)$$

ここで B を回転定数という。回転の波動関数 Ψ_r は、回転量子数 J と磁気量子数 M を用いて球面調和関数で記述される。ここで磁気量子数 M は、

$$M = J, J-1, \dots, -J, \quad (2.6.5)$$

を取り得て、 $\hbar M$ は量子化軸方向の角運動量成分を表す。分子は完全な剛体ではないので、回転の際の遠心力によって核間距離がわずかに伸び、

$$F(J) = BJ(J+1) - DJ^2(J+1)^2 + \dots \quad (2.6.6)$$

と修正される。ただし、遠心力の補正項 D は B に比べてはるかに小さい [88 - 91]。

2.6.2 振動回転エネルギー

2 原子分子を調和振動子とみなすと、振動の波動関数 Ψ_v を用いてシュレディンガー方程式は

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial (r-r_e)^2} \Psi_v + \frac{1}{2} k(r-r_e)^2 \Psi_v = E_v \Psi_v \quad (2.6.7)$$

で与えられる。ここで、 r は核間距離、 r_e は平衡核間距離、 k は調和振動子の力の定数を表す。これを解くと調和振動子のエネルギー固有値は、

$$E_v = \hbar \sqrt{\frac{k}{\mu}} \left(v + \frac{1}{2} \right) = \nu_0 \left(v + \frac{1}{2} \right) \quad (2.6.8)$$

と表される。ただし、振動量子数を $v = 0, 1, 2, \dots$ と定義する。式(2.6.8)から明らかなように、調和振動子のエネルギー準位は等間隔である。実際の分子は非調和振動子であり、ポテンシャルは放物線ではなく式(2.6.9)の Morse ポテンシャルを用いることが多い。

$$V(r) = D_e \left[1 - e^{-a(r-r_e)} \right]^2 \quad (2.6.9)$$

$$a = \sqrt{\frac{k}{2D_e}} \quad (2.6.10)$$

D_e は解離限界エネルギーを表す。Morse ポテンシャルでは、核間距離の平衡位置からの変位が大きくなると $V(r)$ は D_e に漸近する。この効果を踏まえてシュレディンガー方程式を解くと、振動エネルギーは

$$G(v) = \nu_0 \left(v + \frac{1}{2} \right) + \nu_0 x_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2 + \nu_0 y_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^3 \quad (2.6.11)$$

で与えられる。 x_e, y_e を非調和定数と呼び、一般に 1 より小さい[88 - 91]。

ここまで分子の回転と振動を独立に考えたが、一般的にこれらは同時に生じる。分子が振動するときには核間距離が変化するので慣性モーメントの値も変化する。結果として、振動量子数 v に対する回転定数 B_v は、振動がない場合の回転定数 B とは異なる。振動で変動する核間距離の平均を取り、

$$B_v = \frac{\hbar}{4\pi c \mu} \left[\frac{1}{r^2} \right]_{av} = B_e - \alpha_e \left(v + \frac{1}{2} \right) + \dots \quad (2.6.12)$$

で表される。 $[]_{ave}$ は平均を表す。

$$B_e = \frac{\hbar}{4\pi c \mu r_e^2} \quad (2.6.13)$$

は平衡核間距離における回転定数である。 α_e は振動の非調和性で決定される定数である。遠心力の補正項は、

$$D_v = D_e - \beta_e \left(v + \frac{1}{2} \right) + \dots \quad (2.6.14)$$

である。 D_e は平衡核間距離での遠心補正項、 β_e は振動の非調和性を示す定数である。これらを用いて、振動遷移 v における回転エネルギーは

$$F_v(J) = B_v J(J+1) + D_v J^2(J+1)^2 \quad (2.6.15)$$

で表される。振動回転エネルギーは

$$E_{rv} = G(v) + F_v(J) \quad (2.6.16)$$

である[88 - 91]。

2.6.3 2原子分子の電子状態の表記

2つの核の間に存在する電子の量子状態は量子数 n, l, m_l で特徴づけられる。同一の主量子数 n と軌道量子数 l を有し、異なる方位量子数 $|m_l|$ の電子状態を区別するために、量子数 λ を定義する。

$$\lambda = |m_l| = l, l-1, \dots, 0 \quad (2.6.16)$$

多電子系内の各電子は、核と他の電子がつくる近似的に軸状になっている電場内で独立に運動していると考えられる。この近似の下、波動関数 $\varphi_i(q_i)$ で表される各電子は量子数 n_i, l_i, λ_i を用いて記述される。多電子系の波動関数 φ は個々の電子の波動関数の直積

$$\varphi = \prod \varphi_i(q_i) \quad (2.6.18)$$

で表される。分子に束縛された電子は、やはり軌道角運動量とスピン角運動量を持つ。ヨウ素のような2個の原子核によって作られた電場は円柱座標系で表される対称性を有するので、保存量である方位角運動量を用いて電子状態を考える。系の全軌道角運動量 L の分子軸方向成分 Λ は

$$\Lambda = \sum \lambda_i \quad (2.6.19)$$

で表される。生じた角運動量の大きさ $\Lambda = 0, 1, 2, 3, \dots$ に応じて $\Sigma, \Pi, \Delta, \Phi, \dots$ と状態を表す。系の全スピン S は、個々の電子のスピン s_i のベクトル和

$$S = \sum s_i \quad (2.6.20)$$

で表される。ただし、電子の場合 $s_i = \pm 1/2$ である。分子軸方向への射影成分は、量子数 Σ を用いて

$$\Sigma = S, S-1, \dots, -S \quad (2.6.21)$$

で表される。したがって、量子状態の多重度は $2S+1$ である。2原子分子の電子の全角運動量 J_a は、電子の軌道角運動量とスピン角運動量の和で表される。ヨウ素分子のような直線分子の場合、分子軸まわりの回転に対して核の電場は不変であり、分子軸方向の角運動量成分は保存される。電子の全角運動量 J_a の分子軸への射影成分 Ω は、以下の式で与えられる。

$$\Omega = \Lambda + \Sigma \quad (2.6.22)$$

原子におけるLS結合で使われる項記号にならい、2原子分子の電子状態は $^{2S+1}\Lambda_\Omega$ で表される。基底状態は、先頭にXをつけて表すのが慣例である。基底状態と同じスピン多重度を持つ励起状態は、励起エネルギーが小さい順にA, B, C, ...とつけられる。基底状態と多重度が違う励起状態は、a, b, c, ...と小文字で表される。また、分子分光ではAを上準位、Bを下準位としたときの遷移をA-Bと表記する[88-91]。

2.6.4 波動関数の対称性

分子状態間の遷移は、原子の時と同様に双極子遷移が最も確率が高く、遷移に関与する2状態は反対の偶奇性を有する必要がある。そこで波動関数の偶奇性について考える。電子の波動関数

ψ_e の対称性はパリティと鏡映対称性で、回転準位の波動関数の対称性は回転の波動関数のパリティと、電子振動回転準位のパリティと、核交換の対称性で記述される。

分子軸である z 軸の上に 2 個の正電荷が置かれた状態を考える。 i 番目の電子の位置ベクトル(r_i) に対して、直角座標系での反転($r_i \rightarrow -r_i$)に対応する反転操作を 2 回実施すると、波動関数は元に戻る。すなわち反転による変換により電子波動関数 ψ_{e_i} は符号のみが変化するか否かのいずれかとなる。反転操作で波動関数の符号が変化しない場合は、その軌道は偶パリティであると呼び、(gerade : g)で表す。一方で波動関数の符号が変化する場合は、その軌道は奇パリティと呼び、(ungerade : u)で表す。分子軌道の全電子波動関数 ψ_e は個々の電子波動関数 $\psi_{e_i}^i$ の直積で与えられ、そのパリティは、奇パリティ(u)軌道の電子が偶数個なら(g)であり、奇数個であれば(u)である。反転操作に関する対称性は、一般的に項記号の右下に表記する。

分子軸を含む平面を鏡映面として、ヨウ素分子のような等核 2 原子分子の電子状態は鏡映対象性を有する。 $\Lambda = 0$ (Σ 状態)の場合、電子波動関数が鏡映変換で不変な場合を「正の対称性を持つ」と呼ぶ。一方で、鏡映変換で電子波動関数の符号が変化する場合を「負の対称性を持つ」と呼ぶ。この対称性は電子状態の表記の右肩に \pm で表記する。この 2 状態はエネルギー的に縮重していない。その一方で $\Lambda \neq 0$ の場合はこの鏡映対称性を持たない。ただし、縮退が分子の回転と電子状態の相互作用によって分裂した場合、 $\Lambda = 0$ (Σ 状態)と同様に鏡映対称性を有する。このとき生じた分裂を Λ 型二重分離とよび、回転量子数 J が大きくなると分離が拡大し易い。本研究では、ヨウ素分子の $B^3\Pi_{0u}^+ - X^1\Sigma_g^+$ 遷移が観測対象の量子遷移である。この遷移の始状態と終状態の分子状態を表 2.6.1 に示す。

表 2.6.1 $B^3\Pi_{0u}^+$ 状態と $X^1\Sigma_g^+$ 状態の分子状態

項記号	電子状態	反転操作の対称性	鏡映操作の対称性
$B^3\Pi_{0u}^+$	$A=1, S=1, \Omega=0$	奇パリティ(u)	正(+)
$X^1\Sigma_g^+$	$A=0, S=1, \Omega=0$	偶パリティ(g)	正(+)

回転の波動関数 ψ_r の反転操作についても、同様に 2 回の操作で元の状態に戻れることを踏まえると、やはり波動関数の符号が変化するか否かのいずれかである。回転準位のパリティは、回転操作で符号が変化しない場合を正パリティ(+)で、変化する場合を負パリティ(-)と称する。回転の波動関数が反転によって符号変化するかは回転量子数 J の偶奇性で決定される。 J が偶数の時には回転準位のパリティは(+), J が奇数なら回転準位は(-)である[88-91]。

分子の全波動関数は、電子の波動関数 ψ_e 、振動の波動関数 ψ_v と回転の波動関数 ψ_r の積の形で表される。よって、ある電子状態の回転準位の反転操作についての対称性は 3 つの波動関数の対称性によって決定される。2 原子分子の場合は振動が全対称であることを踏まえると、分子の全波動関数の対称性は、電子状態と回転状態の対称性で決定される。すべての組み合わせを表 2.6.2 に示す。

表 2.6.2 各電子状態での回転量子数 J のパリティの正負

	回転量子数 J が奇数(-)	回転量子数 J が偶数(+)
鏡映操作に関して 正の対称性	負パリティ(-)	正パリティ(+)
鏡映操作に関して 負の対称性	正パリティ(+)	負パリティ(-)

ヨウ素分子の回転準位を表す波動関数は、核交換に関して対称性を持つ。核交換により回転準位の波動関数の符号が変化しない時は対称(s)、変化する時は反対称(a)と呼ぶ。核交換に関する対称性は、電子状態と回転準位のパリティで決定される。より具体的には、電子状態が偶パリティ(g)のとき、回転準位のパリティが正(+)であれば回転準位は対称(s)、回転準位のパリティが負(-)であれば回転準位は反対称(a)である。電子状態が奇パリティ(u)のときは逆が成立する[88 - 91]。

2.6.5 ヨウ素分子の超微細構造

原子と同様に、分子においても電子の全角運動量 J と原子核の核スピン I の相互作用によってエネルギー準位の分裂構造、すなわち超微細構造が生じる。まず、原子の核スピンについて考える。ヨウ素分子の全核スピン T は、各々の原子(それぞれを A と B とする)の核スピン(I_A, I_B)の和として与えられる。

$$T = I_A + I_B \quad (2.6.23)$$

全核スピンの大きさ T は、

$$T = I_A + I_B, I_A + I_B - 1, \dots, |I_A - I_B| \quad (2.6.24)$$

となる。ヨウ素分子のような等核 2 原子分子の場合、 $I_A = I_B = I$ なので、核スピンの大きさを I とすると全核スピンは、 $T = 2I, 2I - 1, \dots, 0$ の値を取り、全核スピン T が取りうる状態数は $2T + 1$ である。核スピンまで考慮したとき、等核二原子分子の全波動関数は、先ほどまでの全波動関数と核スピン波動関数 ψ_n の積の形、すなわち

$$\Psi_{\text{total}} = \psi_n \psi_e \psi_v \psi_r \quad (2.6.25)$$

と書ける。これまでの議論と同様に、全波動関数の核交換に対する対称性は核スピン波動関数 ψ_n の対称性と、回転準位の対称性によって決定される。この対応を表 2.6.3 にまとめる。

表 2.6.3 核スピン関数の対称性と回転準位の対称性によって決定される全波動関数の対称性

	核スピン関数が対称(s)	核スピン関数が反対称(a)
回転準位が対称(s)	対称(s)	反対称(a)
回転準位が反対称(a)	反対称(a)	対称(s)

等核二原子分子の核スピン波動関数は、 $T = 2I, 2I - 2, \dots$ の時は核交換に対して対称(s)であり、 $T = 2I - 1, 2I - 3, \dots$ の時は反対称(a)である。 $T = 0$ の時の核スピン波動関数は I が整数なら対称で、半整数なら反対称である[88-91]。ヨウ素原子は原子核の核スピンの $5/2$ であるので、ヨウ素原子核は Fermi 粒子である。よって、ヨウ素分子の全波動関数は核交換に対して反対称となる。つまり、回転準位が対称(s)であれば、核スピン関数は反対称(a)な状態をとる。この時 T は偶数の値のみを取り、このような状態を Para state と言う。逆に、回転準位が反対称(a)であれば核スピン関数は対称(s)

な状態をとる。この場合、 T は奇数の値のみを取り、このような状態を Ortho state という。

ヨウ素分子の全角運動量 F を J と I のベクトル和で定義し、全角運動量量子数 F は式(2.6.27)で表される領域の値を取りうる。

$$F = J + T \quad (2.6.26)$$

$$F = |J + T|, |J + T - 1|, \dots, |J - T| \quad (2.6.27)$$

である。ヨウ素分子($^{127}\text{I}_2$)の場合はヨウ素原子の核スピンの大きさが $I=5/2$ なので、分子の全核スピンの大きさは $T = 5, 4, 3, 2, 1, 0$ の値をとり得る。それぞれの全核スピンに対して取りうる状態数は $2T + 1 = 11, 9, 7, 5, 3, 1$ となる。例えば $\text{B } ^3\Pi_{0u}^+$ 状態では、回転量子数 J が奇数の準位は対称(s)、偶数の準位は反対称(a)である。表(2.6.3)を参照すると、 J が奇数(-)の準位は Para State(T は偶数)であり、偶数(+)の準位は Ortho state(T は奇数)である。一方で $\text{X } ^1\Sigma_g^+$ 状態では、回転量子数 J が奇数の準位は反対称(a)、偶数の準位は対称(s)である。先程と同様に考えると、 J が奇数の準位は Para State(T は偶数)であり、偶数の準位は Ortho state(T は奇数)である。 $\text{B } ^3\Pi_{0u}^+ - \text{X } ^1\Sigma_g^+$ 遷移の始状態、終状態でのスピン関数の対称性を表 2.6.4 に示す。

表 2.6.4 $\text{B } ^3\Pi_{0u}^+$ 状態と $\text{X } ^1\Sigma_g^+$ 状態の回転準位での全核スピンの偶奇

電子状態	J が奇数	J が偶数
$\text{B } ^3\Pi_{0u}^+$	Para state(T は偶数)	Ortho state(T は奇数)
$\text{X } ^1\Sigma_g^+$	Ortho state(T は奇数)	Para state(T は偶数)

Para state の場合、 T は偶数值($T = 0, 2, 4$)のみを取るのので超微細構造準位は $1 + 5 + 9 = 15$ より 15 に分裂して、Ortho state の場合、 T は奇数值($T = 1, 3, 5$)のみを取るのので超微細構造準位は $3 + 7 + 11 = 21$ より 21 に分裂する。超微細構造は全角運動量 F と全核スピン T を用いて指定される[88 - 91]。

2.6.6. 超微細構造遷移の選択則

遷移の終状態の回転量子数を J' 、始状態の回転量子数を J'' としてその差分を $\Delta J = J' - J''$ と定義する。全角運動量量子数についても同様に差分を $\Delta F = F' - F''$ と定義をする。Hund の結合形式(c)に分類される2原子分子の電気双極子遷移の遷移強度は遷移モーメントから算出され、結果から得られる許容遷移の選択則を表 2.6.5 に示す。 $\Delta J = -1, 0, 1$ の遷移をそれぞれ P 枝、Q 枝、R 枝と呼ぶ。遷移を表記する場合、 ΔJ の値を P, Q, R のいずれかで示し、その後ろに電子基底状態の回転量子数 J'' の値と振動量子数 v'' 、電子励起状態の振動量子数 v' を記す。例えば、 $J' = J'' - 1$ の場合は $\text{P}(J'')v' - v''$ と表す。ヨウ素分子の B - X 遷移では、 $\Delta J = 0$ の時の回転状態のパリティは変化しない。よって、 $\Delta J = \pm 1$ の遷移のみが観測される。更に、ヨウ素分子の超微細構造間の遷移については、 $J \gg T$ の場合は $\Delta F = \Delta J$ が最も遷移強度が強く、 $\Delta F = 0$ の遷移に対して $2J^2$ 倍、となり、 $\Delta F = -\Delta J$ 遷移に対して $10J^4$ と計算される[92, 93]。よって今回は $\Delta F = \Delta J$ の超微細構造遷移のみを考える。例えば、R(36)32-0 遷移の基底状態の回転量子数は $J'' = 36$ であり、Para state なので、 $T = 0, 2, 4$ を取り得る。よって、 $1 + 5 + 9 = 15$ の超微細構造を持つことが可能である。一方、励起状態の回転

量子数は $J' = 37$ であり, Para state であり, こちらも 15 本の超微細構造を持つ. $\Delta J = \Delta F = +1$ を考慮すると, 観測可能な超微細構造間遷移は 15 だけ存在することが分かる.

表 2.6.5 ヨウ素分子の電気双極子遷移の選択則

回転量子数	$\Delta J = 0, \pm 1$ (ただし, $J' = 0 \leftrightarrow J'' = 0$ は禁制)
回転状態のパリティ	$+\leftrightarrow -$ ($+\leftrightarrow +, -\leftrightarrow -$ は禁制) $s \leftrightarrow s, a \leftrightarrow a$ ($s \leftrightarrow a$ は禁制)
電子状態のパリティ	$g \leftrightarrow u$ ($g \leftrightarrow g, u \leftrightarrow u$ は禁制)
全角運動量	$\Delta F = 0, \pm 1$ (ただし, $F' = 0 \leftrightarrow F'' = 0$ は禁制)

2.6.7. 超微細構造ハミルトニアン

超微細構造作用を示すハミルトニアン H_{hfs} は, 式(2.6.28)で与えられ, その固有値が超微細構造成分の間隔を特徴づける.

$$H_{hfs} = eQq \times H_{EQ} + C \times H_{SR} + d \times H_{TSS} + \delta \times H_{SSS} \quad (2.6.28)$$

右式の第一項から, 電気四重極子相互作用, スピン回転相互作用, テンソルスピン-スピン相互作用, スカラスピン-スピン相互作用を示している. それぞれのハミルトニアンの係数, eQq, C, d, δ はそれぞれの相互作用の大きさを与える定数である. 電気四重極子相互作用とは, 同じモーメントの大きさを有し逆向きに並んだ 2 つの双極子モーメント, すなわち電気四重極子モーメントと周囲の電荷が形成する電場勾配との相互作用であり, ヨウ素分子の超微細構造ハミルトニアンのうち最も影響が大きい. スピン回転相互作用は, 核スピンと核回転運動の間の相互作用を, スピン-スピン相互作用は 2 つの核スピンの方向の差に応じて生じる相互作用である. 精密分光を用いた超微細構造遷移成分の周波数間隔測定値から, それぞれの相互作用の大きさや量子数依存性を算出することは, 光周波数標準の精度向上やヨウ素分子の構造, 分子物性のより詳細な理解の上で重要な役割を果たす. たとえばヨウ素分子のドップラーフリー分光により, ヨウ素分子の電気四重極子相互作用の大きさが基底準位の振動量子数に依存することが実験的に明らかにされている[94].

2.7 ファイバー干渉計の理論

制御対象であるレーザーの光周波数雑音を低減させるために、ファイバー干渉計を光周波数基準とした狭線幅制御がしばしば利用される。本章ではファイバー干渉計で被測定対象のレーザーの周波数雑音を検出し、電気制御によりその雑音を低減する具体的な手法について述べる。

2.7.1 ファイバー干渉計による周波数雑音の F-V 変換と狭線幅制御

ファイバー干渉計として、図 2.7.1 および図 2.7.2 のような遅延路側に周波数シフターを入れたマイケルソン干渉計と電気信号制御系を考える。カプラーで分岐された光の内、参照経路へ向かう光を参照光と呼ぶ。参照光は長さ L のファイバーを往復してカプラーで再び分岐され、一部が PD へ入射する。一方で、カプラーで分岐された光の内、遅延経路へ向かう光を信号光と呼ぶ。信号光は長さ L に加えて L_{add} だけ追加された遅延ファイバーを往復してカプラーで再び分岐され、一部が PD へ入射する。光が干渉計内を通過する時間のうち、共通の経過時間 τ_0 は

$$\tau_0 = 2 \times \frac{nL}{c_0} \quad (2.7.1)$$

であり、信号光はさらに遅延ファイバーにより

$$\tau_s = 2 \times \frac{nL_{add}}{c_0} = \frac{nL_{delay}}{c_0} \quad (2.7.2)$$

だけの遅延時間 τ_s が付与されている。ただし、 $L_{delay} = 2 \times L_{add}$ とした。周波数変調器や遅延ファイバーの透過損失などで、参照光と信号光の光パワーは異なることが一般的であり、各光電場は

$$E_{ref} = E_1 \cos(\omega_0(t - \tau_0) + \delta\varphi(t - \tau_0)) \quad (2.7.3)$$

$$E_{sig} = E_2 \cos((\omega_0 + 2\omega_m)(t - (\tau_0 + \tau_s)) + \delta\varphi(t - (\tau_0 + \tau_s))) \quad (2.7.4)$$

と表現できる。光はカプラーにより合波されているので、PD に入射する光パワーは

$$P_{PD}^o \propto |E_{ref} + E_{sig}|^2 = \left\{ \begin{array}{l} \frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} \\ + \frac{E_1^2}{2} \cos\{2(\omega_0(t - \tau_0) + \delta\varphi(t - \tau_0))\} \\ + \frac{E_2^2}{2} \cos\{2(\omega_0 + 2\omega_m)(t - (\tau_0 + \tau_s)) + \delta\varphi(t - (\tau_0 + \tau_s))\} \\ + E_1 E_2 \cos\{(\omega_0(t - \tau_0) + \delta\varphi(t - \tau_0)) \\ + (\omega_0 + 2\omega_m)(t - (\tau_0 + \tau_s)) \\ + \delta\varphi(t - \tau_0) + \delta\varphi(t - (\tau_0 + \tau_s))\} \\ + E_1 E_2 \cos\{(\omega_0(t - \tau_0) + \delta\varphi(t - \tau_0)) \\ - (\omega_0 + 2\omega_m)(t - (\tau_0 + \tau_s)) \\ + \delta\varphi(t - \tau_0) - \delta\varphi(t - (\tau_0 + \tau_s))\} \end{array} \right. \quad (2.7.5)$$

で表される。第 1-2 項は DC 成分であり、第 3-5 項は光周波数の 2 倍振動数が高すぎて観測不可能な成分である。ゆえに、この信号を電気信号領域で観測すると、観測可能な成分は DC 成分を除い

て第 6 項のみであり

$$V_{PD}^e \sim \eta E_1 E_2 \cos\{-(2\omega_m(t - \tau_0)) + (\omega_0 + 2\omega_m)\tau_s + \delta\varphi(t - \tau_0) - \delta\varphi(t - (\tau_0 + \tau_s))\} \quad (2.7.6)$$

で表される。ここで、以下のように新たな変数を用いると、電気信号は次のように表される。

$$-\delta\varphi_{beat} = \delta\varphi(t - \tau_0) - \delta\varphi(t - (\tau_0 + \tau_s)) \quad (2.7.7)$$

$$2\omega_m = \omega_s \quad (2.7.8)$$

$$E_1 E_2 = P_0 \quad (2.7.9)$$

$$\begin{aligned} V_{PD}^e &\sim \eta P_0 \cos\{(\omega_s(t - \tau_0)) - (\omega_0 + \omega_s)\tau_s + \delta\varphi_{beat}\} \\ &= P_0 \cos\{\omega_s(t - \tau_0 - \tau_s) + \omega_0\tau_s + \delta\varphi_{beat}\} \end{aligned} \quad (2.7.10)$$

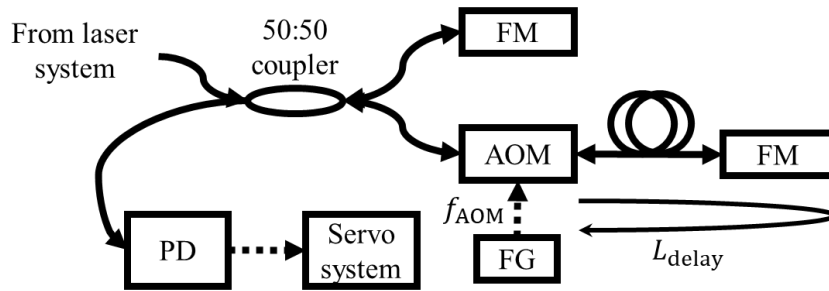


図 2.7.1 ファイバー干渉計の光学系部の模式図

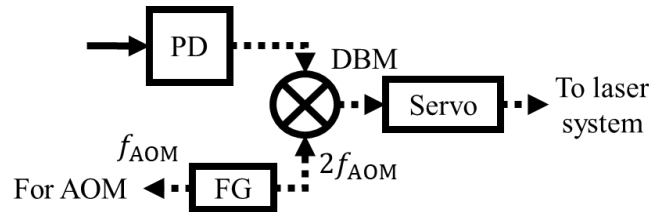


図 2.7.2 ファイバー干渉計の電気信号部の模式図。FM: Faraday mirror, AOM: Acousto-optic modulator, FG: Function generator, PD: Photodetector, DBM: Double balanced mixer.

例えば周波数シフターが挿入されていない($\omega_s = 0$)場合, すなわちホモダイン検波の場合を考えると,

$$V_{PD}^e = P_0 \cos\{\omega_0\tau_s + \delta\varphi_{beat}\} \quad (2.7.11)$$

となる。この場合も干渉計は光周波数を f - V 変換することが可能であることがわかる。 $V_{PD}^e = 0$ となる光

周波数は, $\frac{c_0}{2nL}$ 毎に現れる。さらに曲線スロープの \pm を考慮して, 実際のロックポイント周波数とその周波

数間隔は整数 m とオフセット量 v_{lock}^{offset} を用いて

$$v_{lock}^m - \frac{1}{2} \frac{c_0}{2nL_{delay}} < \nu_0 < v_{lock}^m + \frac{1}{2} \frac{c_0}{2nL_{delay}} \quad (2.7.12)$$

$$v_{lock}^m = \left(m \frac{c_0}{nL_{delay}} + v_{lock}^{offset}\right) \quad (2.7.13)$$

である。よって, ある光周波数 ν_0 のレーザーが有する周波数変動 (あるいは測定時間が長ければ周波

数ドリフト) を観測するとき, このファイバー干渉計が f -V 変換可能な周波数領域は, その最近接ロックポイント周波数 ν_{lock}^m を基準として以下の不等式で表される.

$$\nu_{lock}^m - \frac{1}{2} \frac{c_0}{2nL_{delay}} < \nu_0 < \nu_{lock}^m + \frac{1}{2} \frac{c_0}{2nL_{delay}} \quad (2.7.14)$$

不等式の幅は $\frac{c_0}{2nL_{delay}}$ である. すなわち周波数変動の大きなレーザーを用いる場合はファイバー長を短く

して観測可能領域を広げる必要がある. 一方で, F-V 変換の役割を担うエラー信号のロックポイント周波数付近における傾きは, 以下の式で表される.

$$\left. \frac{dV_{PD}^e}{d\nu} \right|_{\nu=\nu_{lock}^m} \propto \frac{2\pi nL_{delay}}{c_0} \quad (2.7.15)$$

スロープの傾きは信号 SNR とともに短期周波数安定性を決める指標となり, 傾きが大きいほど短期周波数安定度が向上する. ゆえに, ファイバー長を長くした方が良好な狭線幅結果を得られる.

ヘテロダイン検波の場合に話を戻して, PD からの電気信号を位相敏感検波することを考える. 参照信号として LO からの出力

$$V_{LO}^e = V_0 \sin(\omega_s t + \delta\phi_{LO}) \quad (2.7.16)$$

と PD からの信号をミキサで乗じると, ミキサからの出力電圧 V_{DBM}^e は以下ようになる. さらに, 高周波 ($2\omega_s$) 成分を LPF でカットすると, 出力信号 V_{DBM}^e はレーザー周波数 ω_s あるいは周波数シフト量 ω_0 の周期関数として表現できる.

$$\begin{aligned} V_{DBM}^e &= V_{PD}^e \times V_{LO}^e \\ &= \eta P_0 V_0 \cos\{\omega_s(t - \tau_0 - \tau_s) + \omega_0 \tau_s + \delta\phi_{beat}\} \times \sin(\omega_s t + \delta\phi_{LO}) \\ &= \frac{\eta P_0 V_0}{2} [\sin\{2\omega_s t - \omega_s(\tau_0 + \tau_s) + \omega_0 \tau_s + \delta\phi_{beat} + \delta\phi_{LO}\} \\ &\quad - \sin\{-\omega_s(\tau_0 + \tau_s) + \omega_0 \tau_s + \delta\phi_{beat} - \delta\phi_{LO}\}] \end{aligned} \quad (2.7.17)$$

$$V_{DBM}^e \sim \frac{\eta P_0 V_0}{2} \sin\{\omega_s(\tau_0 + \tau_s) - \omega_0 \tau_s - \delta\phi_{beat} + \delta\phi_{LO}\} \quad (2.7.18)$$

ヘテロダイン検波においても, 全く同じ議論が可能であり, 実際のロックポイント周波数とその周波数間隔は, 整数 m とオフセット量 ν_{lock}^{offset} を用いて

$$\Delta\nu_{lock} = \frac{c_0}{nL_{delay}} \quad (2.7.19)$$

$$\nu_{lock}^m = \left(m \frac{c_0}{nL_{delay}} + \nu_{lock}^{offset} \right) \quad (2.7.20)$$

である. よって, ある光周波数 ν_0 のレーザーが有する周波数変動 (あるいは測定時間が長ければ周波数ドリフト) を観測するとき, このファイバー干渉計が f -V 変換可能な周波数領域は, その最近接ロックポイント周波数 ν_{lock}^m を基準として,

$$\nu_{lock}^m - \frac{1}{2} \frac{c_0}{2nL_{delay}} < \nu_0 < \nu_{lock}^m + \frac{1}{2} \frac{c_0}{2nL_{delay}} \quad (2.7.21)$$

で表され、幅は $c_0/2nL_{delay}$ である。よって、周波数変動の大きなレーザーを用いる場合はファイバー長を短くして観測可能領域を広げる必要がある。例えば遅延長が 12 m の時、キャプチャーレンジは約 8 MHz であり、これは CL module のフリーラン時の線幅(~2 MHz)と比較して広いため、狭線幅化が可能であると考えられる。一方で遅延長が 50 m(キャプチャーレンジ 2 MHz に相当)を大きく超えると、狭線幅制御が困難になると予想される。一方で周波数制御において、 f - V 変換グラフのスロープの傾きは信号 SNR とともに短期周波数安定性を決める指標となり、傾きが大きいほど短期の周波数安定度が向上する。ゆえに、ファイバー長を長くした方が良好な狭線幅結果を得られる。このトレードオフ関係をまとめたものが下表である。

表 2.7.1 ファイバー干渉計の遅延光路長の選定のための比較表

遅延光路長	キャプチャーレンジ	感度
長い	×	○
短い	○	×

ファイバー干渉計で得られた受信信号をエラー信号として利用し、 $V_{DBM}^e = 0$ (あるいは特定の値)となるような制御を行うことで、レーザーの周波数制御や周波数雑音の低減が達成される。その具体例として、制御信号をレーザー光源に戻す場合について考察する。 $\omega_s, \tau_0, \delta\varphi_{LO}$ の変動が無視できるほど小さいと仮定する。 $V_{DBM}^e = 0$ となるような制御信号をレーザー側に加えると、 $\omega_0\tau_s + \delta\varphi_{beat} = const$ となる。遅延時間 τ_s が一定とみなせるほど安定であれば ω_0 と $\delta\varphi_{beat}$ が安定化される。

ファイバー干渉計を用いることで、レーザーの周波数雑音をビート信号の位相変動量から算出可能であることを示してきた。これを別の視点から考える。レーザービート信号の位相変動量は、式(2.7.22)であり、さらにフーリエ変換すると式(2.7.23)を得る。

$$\delta\varphi_{beat}(t) = \delta\varphi(t - \tau_0) - \delta\varphi(t - (\tau_0 + \tau_s)) \quad (2.7.22)$$

$$\delta\tilde{\varphi}_{beat}(f) = e^{-i2\pi f\tau_0}(1 - e^{-i2\pi f\tau_s})\delta\tilde{\varphi}(f) \quad (2.7.23)$$

その一方でレーザー周波数の瞬時値は

$$v(t) = \frac{1}{2\pi} \frac{d}{dt} [2\pi\nu_0 t + \delta\varphi(t)] = \nu_0 + \frac{1}{2\pi} \frac{d}{dt} \delta\varphi(t) \quad (2.7.24)$$

である。ゆえに、以下の関係式が成り立つ。

$$\delta v(f) = \frac{1}{2\pi} \frac{d}{dt} \delta\varphi(t) \quad (2.7.25)$$

$$\delta\tilde{v}(f) = if\delta\tilde{\varphi}(f) \quad (2.7.26)$$

干渉計で発生したビート信号の位相変動量 $\delta\tilde{\varphi}_{beat}(f)$ とレーザー周波数雑音のフーリエ変換 $\delta\tilde{v}(f)$ を比較すると、

$$\delta\tilde{\varphi}_{beat}(f) = \frac{e^{-i2\pi f\tau_0}(1 - e^{-i2\pi f\tau_s})}{if} \delta\tilde{\varphi}(f) \quad (2.7.27)$$

を得る。式(2.7.27)左辺の係数はファイバー干渉計の伝達関数を $H(f)$ としてとらえることが可能であり、その大きさは

$$H(f) = \left| \frac{e^{-i2\pi f\tau_0}(1 - e^{-i2\pi f\tau_s})}{if} \right| = \left| \frac{(1 - e^{-i2\pi f\tau_s})}{if} \right| \sim 2\pi\tau_s = 2\pi \frac{nL}{c} \quad (2.7.28)$$

である。ただし、最後の式では $f \ll 1/\tau_s$ を仮定してべき級数展開を行った。遅延光路長の違いによる伝達関数特性を図に示す。ファイバー干渉計の長さ τ_s と伝達関数のカットオフ周波数が反比例の関係にあることは、式(2.7.14)および(2.7.14)で示した内容と一致する。また、ファイバー干渉計の長さ τ_s と伝達関数の大きさ(ゲイン)がトレードオフの関係にあることは、表 2.7.1 で示した内容と一致する。より具体的には、伝達関数が低周波数領域では一様であるのは、ロックポイント周波数領域での F-V 変換グラフが略直線であることに対応し、カットオフ周波数付近で下がり始めるのは正弦波の非線形領域に対応する。この計算結果は、遅延長を伸ばすとレーザー周波数雑音を高い感度で検出可能な一方で観測可能な周波数帯域が狭くなることを示している。これも表 2.7.1 に示された関係を支持している。

2.7.2 ファイバー干渉計の温度変動

微小時間 dt での温度変動 dT で引き起こされる光路長変動は、熱光学定数が熱膨張係数に対して十分大きいことを踏まえると、近似的に以下の式で表される。

$$\frac{d}{dt} nL = \left[L \frac{dn}{dT} + n \frac{dL}{dT} \right] \frac{dT}{dt} \sim L \frac{dn}{dT} \frac{dT}{dt} \quad (2.7.29)$$

ロックポイントの変動が無視できるような微小時間スケールにおいて、温度由来の屈折率変動が与える短期的な周波数変動は、相対的に

$$\frac{dv}{v} = \frac{1}{v} \frac{dv}{dt} dt \propto \frac{dT}{dT} \frac{dn}{n} \quad (2.7.30)$$

であり、周波数安定度の向上には温度の時間変化 dT/dt を制御することが重要であると考えられる。ファイバー干渉計の最近接モード m にレーザー周波数を制御したのちに、温度変動により干渉計の遅延長が ΔnL_{delay} だけ変化することを考える。変動の前後で最近接モード次数 m が変動しないことを踏まえると、以下の式(2.7.31)が成立し、いくつかの式変形で式(2.7.32)を得る。

$$\begin{aligned} m &= \frac{nL_{delay} \times v_{lock}^m(nL_{delay})}{c_0} \\ &= \frac{n(L_{delay} + \Delta nL_{delay}) \times v_{lock}^m(nL_{delay} + \Delta nL_{delay})}{c_0} \end{aligned} \quad (2.7.31)$$

$$\Delta v_{lock}^m = v_{lock}^m(nL_{delay}) \times \frac{1}{n} \times \Delta T \frac{dn}{dT} \quad (2.7.32)$$

たとえば遅延ファイバー長 12 m を有するファイバー干渉計において 10 mK の温度変動が生じている場合、それに由来する周波数ドリフトは 20 MHz(at 1062 nm)程度である。温度由来の周波数ドリフトを抑制するためには安定かつ高速で均一分布な温度制御が必要になるが、遅延ファイバー長が長くなると装置が大型化し、そのような温度制御の実現が困難になる。

2.7.3 ピエゾアクチュエーターのダイナミックレンジ

ファイバー干渉計の最近接モード m にレーザー周波数を制御したのちに、ファイバー干渉計に取り付けた PZT への駆動電圧量を ΔV_{PZT} だけ変化した際の光周波数変化を考える。変動の前後で最近接モード次数 m が変動しないことを踏まえると、いくつかの式変形で式(2.7.33)を得る。ただしここでは、PZT の変形量が電圧変化に対して線形であることを仮定している。

$$\Delta v_{lock}^m = v_{lock}^m (nL_{delay}) \times \frac{\Delta L_{PZT}^{MAX}}{L_{PZT}^{MAX}} \times \frac{\Delta V_{PZT}}{V_{PZT}^{MAX}} \quad (2.7.33)$$

たとえば遅延ファイバー長 12 m を有するファイバー干渉計に駆動電圧 150 V で 20 μm 伸びる PZT(Thorlab: PC4QR)を取り付ける場合、周波数シフト量の電圧感度は 3.1 MHz/V(at 1062 nm)と換算される。なお、PZT のストローク量や共振周波数は負荷なしの場合で定義されることが一般的であり、実際に干渉計へ取り付けると特性は計算値より小さくなることに注意して設計する必要がある。

2.8 磁気光学トラップ(MOT)の理論

2.8.1 注入同期

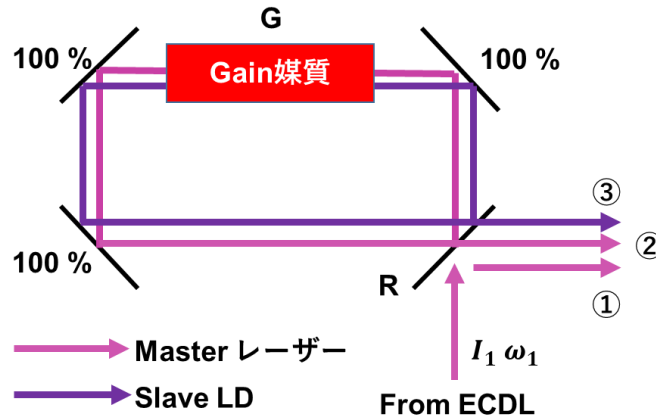


図 2.8.1 注入同期法 の概念図. ECDL: External cavity diode laser.

縦マルチモード発振している高出力 LD (Slave レーザー: 角周波数 ω_0 , 強度 I_0) に ECDL (Master レーザー: 電場 E_1 , 角周波数 ω_1 , 強度 I_1) の光を注入する場合を考える. Slave LD を, ゲイン媒質を含む 4 枚のミラーを用いた共振器と仮想的におく. ここで共振器通過後の Slave LD 出力電場を $E_2 = g E_1$ とすると,

$$g = \sqrt{1-R} \sqrt{G} e^{-i\delta} \sqrt{1-R} \sum (\sqrt{GR} e^{-i\delta})^n$$

$$= (1-R) \sqrt{G} e^{-i\delta} / (1 - \sqrt{GR} e^{-i\delta}) \quad (2.8.1)$$

となる. $\delta = \omega_1 L / c$ は Cavity を一周した時の位相シフトである. Slave LD が発振していれば $\sqrt{GR} = 1$ であり, $\omega_1 - \omega_0 \ll c/L = FSR$ を満たすとき,

$$g = \frac{(1-R) \sqrt{G}}{1 - (1 - \frac{i(\omega_1 - \omega_0)L}{c})} = -\frac{ic(1-R) \sqrt{G}}{L(\omega_1 - \omega_0)} \quad (2.8.2)$$

と近似できる. 共振器通過後の光電場強度は

$$|g|^2 I_1 = \left(\frac{c}{L}\right)^2 \frac{(1-R)^2 G}{(\omega_1 - \omega_0)^2} I_1 \quad (2.8.3)$$

で与えられる. Master LD の発振角周波数 (ω_1) と Slave LD の発振角周波数 (ω_0) の差が十分に小さいとき, $|g|^2 I_1 \cong I_0$ となり Cavity 内媒質のゲインが飽和し, 縦マルチモード LD 内で発振していた縦モード (ω_0) のゲインを注入光 (ω_1) が奪い始める. 更に二つの角周波数を近づけると ω_0 の縦モード発振が完全に停止し, 注入光 (ω_1) の増幅光のみが残る. この現象を注入同期 (injection locking) と呼ぶ. 特に

$|g|^2 I_1 = \left(\frac{c}{L}\right)^2 \frac{(1-R)^2 G}{(\omega_1 - \omega_0)^2} I_1 \cong I_0$ となる領域を locking range と呼び、

$$|\omega_1 - \omega_0| \cong \frac{c}{L} (1-R) \sqrt{G} \sqrt{\frac{I_1}{I_0}} \cong FSR \times \frac{1-R}{\sqrt{R}} \sqrt{\frac{I_1}{I_0}} \quad (2.8.4)$$

で与えられる[95]. (2.8.4)式から明らかなように、マルチモード LD 内への注入光のパワーが大きいか、あるいはマルチモード LD からの出力光パワーが小さいほどロッキングレンジが大きくなる。これは、注入同期の持続時間を向上させることに直結する。ただしここまでは、master レーザーと slave レーザーの偏光が一致している場合を仮定した[95].

2.8.2 磁気光学トラップ(MOT)

イオンを始めとした荷電粒子は、電磁場を用いることで容易に運動を制御することができる。その一方で原子の運動を止める、すなわち冷却する操作は非常に困難であった。レーザーの発明により、光の輻射圧を用いた原子の運動制御が可能となった。温度 T における質量 M の平均速度 v は

$$v = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{2k_B T}{M}} \quad (2.8.5)$$

で与えられる。Yb の質量を代入すると、

二準位系原子が波数 hk のレーザーにより感じる力を考える。レーザー光強度が I の時、原子が励起状態にいる確率(ρ_{ee})は

$$\rho_{ee} = \frac{1}{2} \frac{\frac{I}{I_{sat}}}{1 + \frac{I}{I_{sat}} + \frac{4\delta^2}{\Gamma^2}} \quad (2.8.6)$$

で与えられる。レーザー強度 I を大きくしても、確率は $1/2$ に漸近するのみであることに注意する。漸近をもたらすレーザー光強度の目安を与えるのが I_{sat} である。原子が自然放出を行うのは励起状態にある場合のみであり、その自然放出のレートは

$$R_{scatt} = \Gamma \rho_{ee} \quad (2.8.7)$$

である。自然放出一回につき hk の運動量を受け取るので、原子が単位時間あたりに平均して受け取る運動量、すなわち原子が感じる光の輻射圧は

$$F_{scatt} = hk R_{scatt} = hk \frac{\Gamma}{2} \frac{\frac{I}{I_{sat}}}{1 + \frac{I}{I_{sat}} + \frac{4\delta^2}{\Gamma^2}} \quad (2.8.8)$$

で表される[96].

つぎに、第一に原子が静止している(z 軸方向の速度成分を持たない)場合を考える。2本のレーザー光から受ける輻射圧は対称性により等しい為、原子は力を受けない。次に原子が運動している(z 軸方向の速度成分を持つ)場合を考える。この場合は、原子が感じる2本のレーザー周波数はドップラー効

果の影響で異なる値になり、対称性が崩れる。あらかじめレーザー周波数に負の detuning が施されている場合、原子の運動方向に対して対抗するレーザー光をより顕著に吸収するようになる。これは、運動方向に対して逆向きの輻射圧を受けることに相当する。ただし、ドップラー冷却で到達可能な速度には下限値(ドップラー冷却限界温度)が存在する。これは、ランダムな方向への光子の自然放出により、光子の運動量 hk に由来する加熱を受け取ることに起因する。これを反跳 (recoil) 効果と呼ぶ。ドップラー冷却限界温度は、

$$T_D = \frac{h\Gamma}{2k_B} \quad (2.8.9)$$

で与えられる。Yb 原子の $^1S_0 - ^1P_1$ 許容光学遷移を利用したレーザー冷却の場合、ドップラー冷却限界温度は 0.7 mK 程度である。狭線幅な遷移を利用すると、ドップラー冷却による到達温度を下げる事が可能である。ただし、ドップラー冷却では運動エネルギーを奪う事ができるが、位置依存性が無いため空間に原子をトラップすることは不可能である [96]。

実際のレーザー冷却の実験系のように原子が運動している場合は、ドップラー効果の影響で対向するレーザー光の周波数を高く感じる。そこで、原子ビームに対向して入射させる光の周波数は負に離調させる。しかし、原子の減速に伴いドップラーシフトが変化すると、レーザー周波数が共鳴から外れて十分な輻射圧を受けられなくなる。そこで、通常はコイルで発生させた磁場により Zeeman シフトを引き起こしてドップラーシフトの変化量を補正し、常に原子から見た光周波数が一定、すなわち共鳴周波数になり、輻射圧を受けられるようにすることが多い。ただし後述するように、本実験では Zeeman コイルを使用しない。

アンチヘルムホルツコイルにより四重極磁場を発生させて、更に上下左右前後の 6 方向から適当に偏光を定められたレーザー光を入射させることで、レーザー冷却機構に位置依存力を持たせることが可能となる。この機構により実現される原子トラップを磁気光学トラップと呼ぶ。まず簡単のため、2 準位系 < 基底状態:全スピン $J=0(m_j=0)$, 励起状態:全スピン $J=1(m_j=0, \pm 1)$ で記述される原子を考える。原子の遷移周波数 ω_A からわずかに負の離調 δ だけ離れた周波数 ω_L のレーザーを対向させた状態で原子に照射する。レーザー光に平行な軸を z 軸と取る。コイルによる四重極磁場は、 $z=0$ 付近では近似的に

$$B_z = bz \quad (b > 0) \quad (2.8.10)$$

で表される。磁場中におけるゼーマンシフトは、磁気量子数 m_j として、

$$\Delta E = m_j g_j \mu_B b z \quad (2.8.11)$$

で与えられる。 μ_B はボーア磁子、 g_j はランダウの g 因子である。 z 軸正の向きを量子化軸方向に取り、 $z=0$ 付近の原子に対して、 z 軸正の向きに σ^+ 偏光の、負の向きに σ^- 偏光のレーザー光を対向して入射する。 σ^\pm 偏光の光は、 $\Delta m_j = \pm 1$ の遷移しか引き起こすことが出来ない点に注意する。図に示すように、 $z < 0$ の原子は z 軸正の向きに伝搬する σ^+ 偏光の光に対する遷移確率が高く、 $z > 0$ の原子はその逆である。すなわち $z < 0$ の原子は z 軸正の向きに、 $z > 0$ の原子は z 軸負の向きに輻射圧を受ける。これらの力は、原子を $z=0$ の位置へ動かす復元力に相当する。この議論は直ちに x , y 軸についても拡張可能である。また、MOT beam は冷却遷移周波数に対して負に離調されているので、ドップラー冷却作

用も同時に働く[96].

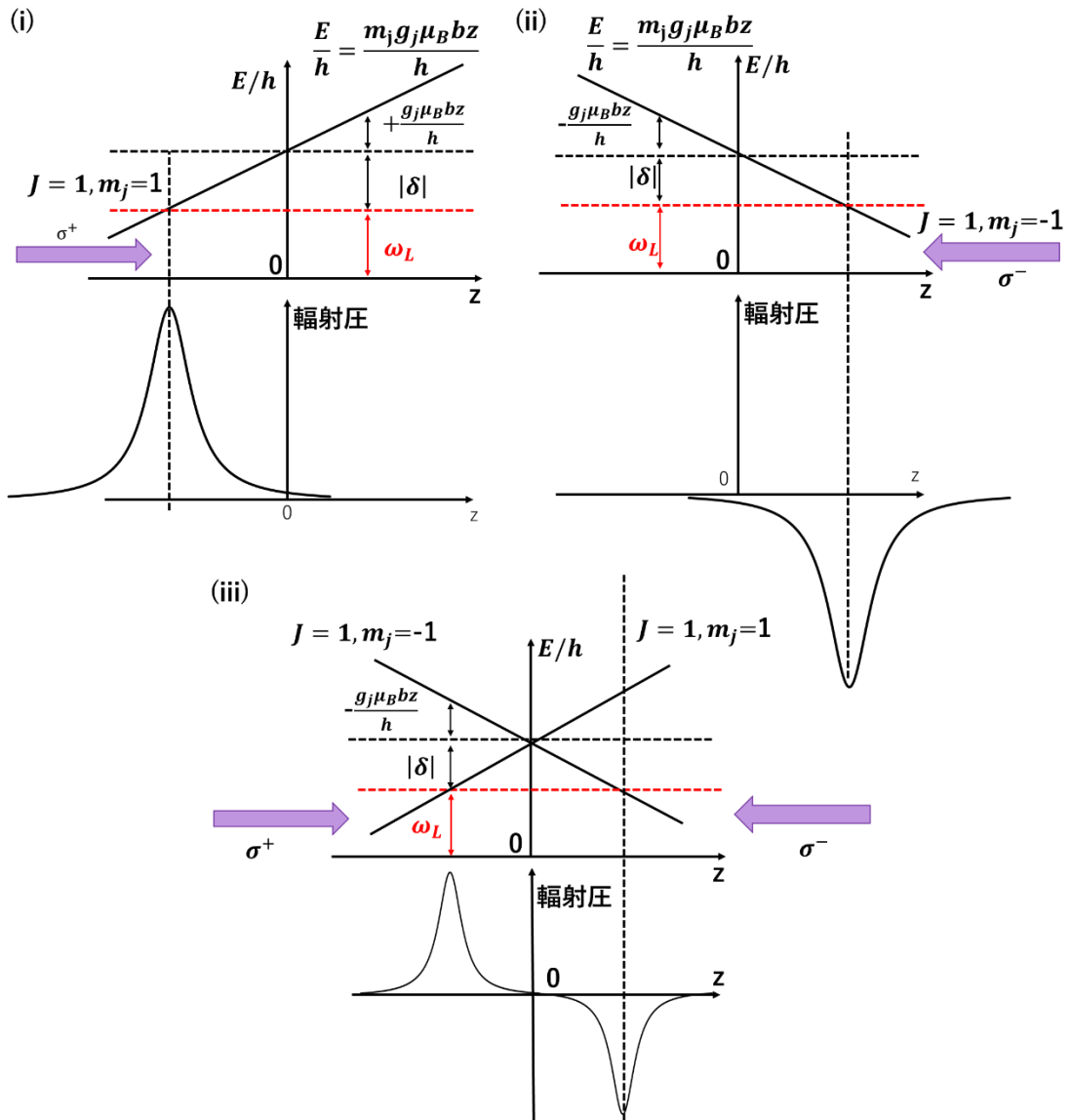


図 2.8.2 磁気光学トラップに寄与する復元力の概念図. (i)は σ^+ 偏光の光からの輻射圧を, (ii)は σ^- 偏光の光からの輻射圧を(iii)は 2つの光からのトータル輻射圧を示している.

2.8.3 磁気光学トラップ(MOT)用コイル

図 2.8.3 に示すような 3次元円筒座標系において, 半径 R , 高さ D の位置に設置されたコイル(巻き数 1 , 電流 I)が位置 (z, ρ) に作る磁場 (B_z, B_ρ) はそれぞれ

$$B_z = \frac{\mu I}{2\pi} \frac{1}{\sqrt{(R+\rho)^2 + (z-D)^2}} \left[K(k^2) + \frac{R^2 - \rho^2 - (z-D)^2}{R^2 - \rho^2 + (z-D)^2} E(k^2) \right] \quad (2.8.12)$$

$$B_\rho = \frac{\mu I}{2\pi\rho} \frac{z-D}{\sqrt{(R+\rho)^2 + (z-D)^2}} \left[-K(k^2) + \frac{R^2 + \rho^2 - (z-D)^2}{(R-\rho)^2 + (z-D)^2} E(k^2) \right] \quad (2.8.13)$$

で表される。ただし、 $k^2 = \frac{4R\rho}{(R+\rho)^2} + (z-D)^2$ である。また、 $K(k^2)$ は第一種完全楕円積分、 $E(k^2)$

は第二種完全楕円積分である[97]。次に、 Z 軸方向に $-2D$ 離れた位置に半径 R のコイルがあり、電流が逆向きに流れている構成(アンチヘルムホルツコイルと呼ばれる構成)を考える。十分に原点に近い位置において、発生する磁場は

$$B_z = \mu I 3 \frac{DR^2}{(R^2 + D^2)^{5/2}} z + \mu I \frac{15 R^2(4D^2 - 3R^2)}{24 (R^2 + D^2)^{9/2}} (4z^3 - 6\rho^2 z) \quad (2.8.14)$$

$$B_\rho = -\mu I \frac{3}{2} \frac{DR^2}{(R^2 + D^2)^{5/2}} \rho + \mu I \frac{15 R^2(4D^2 - 3R^2)}{16 (R^2 + D^2)^{9/2}} (\rho^3 - 4\rho z^2) \quad (2.8.15)$$

と近似される[97]。第一項のみを取り出して磁場勾配を概算することが多いが、今回は(2.8.12)および(2.8.13)を用いて正確な見積を行う。より定性的な議論も可能であり、例えば磁場勾配は $2D=R$ の時最大値を取り、そのときの磁場勾配は

$$\frac{dB_z}{dz} = \mu I \frac{48}{25\sqrt{5}R^2} = -2 \frac{dB_\rho}{d\rho} \quad (2.8.16)$$

となる。すなわち、効率的に磁場勾配を獲得するためには、「コイルと磁場中心（原点）をなるべく近づけつつ、コイル半径とコイル間距離をなるべく等しくする」ことが重要である。

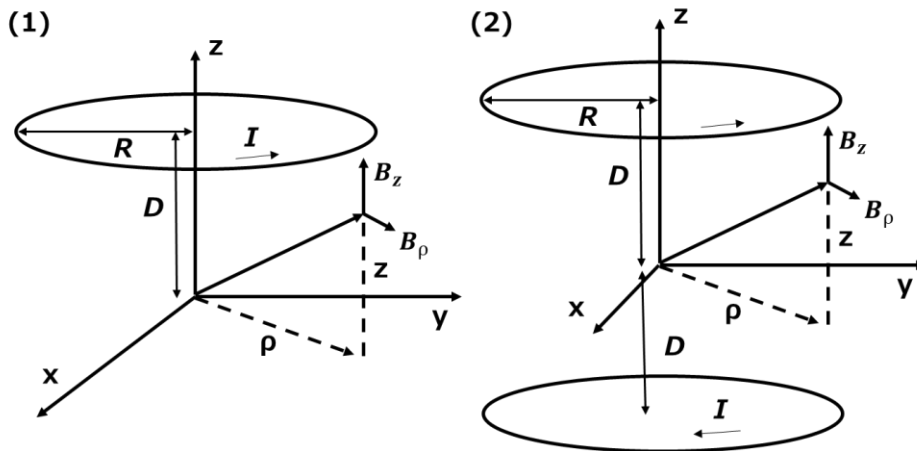


図 2.8.3 コイル(左)とアンチヘルムホルツコイル(右)の磁場計算に必要なパラメーター設定

第3章 超小型半導体レーザーモジュールのヨウ素安定化

我々の研究グループでは 2015 年に、コインサイズの超小型かつ低価格な半導体レーザーをドップラーフリー分光により観測されたヨウ素分子の超微細構造遷移に安定化することで、波長 531 nm 周波数安定化レーザーを開発した。この研究では、長さ 6 cm のヨウ素セルを常温で使用し、変調器を必要としない Dither Lock と呼ばれる 3 次高調波法による周波数安定化技術を用いることで、装置全体の小型化に成功した[48]。ヨウ素分子の R(36)32-0 遷移中の超微細構造成分 a_1 にレーザー光周波数を安定化し、相対的な周波数安定度 5×10^{-11} (1 s) を達成した。さらにこの研究では、この周波数安定化レーザーの 2 次高調波の絶対周波数が 564074632419(8) kHz と算出し、国際度量衡委員会勧告値の採択に寄与した[48]。これにより、上記の周波数安定化レーザーを波長標準として用いることが可能となり、実際に産業総合研究所においてブロックゲージ干渉計に利用可能であることが示された[53]。しかしこの研究では、系全体をコンパクトにしつつ十分な SNR を獲得するために、ヨウ素セルを短尺化する一方でコールドフィンガー部を常温で駆動することで飽和吸収分光に寄与するヨウ素分子数を確保した。ところがその結果として、強い線形吸収に由来するプローブ光の過度な吸収が発生し、線形吸収の裾野の領域、すなわちドップラープロファイル両端の数本の超微細構造遷移成分のみが観測されるという課題が生じた。レーザーの光周波数を常に直接変調する Dither Lock を用いたことも併せて、観測されたドップラーフリー信号の吸収線幅は 8 MHz で SNR は 10 (bandwidth: 1 kHz) と良好な分光特性とは言えず、周波数安定度も 3×10^{-12} でフリッカーノイズレベルに到達していた。そこで本研究では、

- (1). 長さ 45 cm のヨウ素セルを低圧で駆動することで、圧力広がりを低減しつつ分光に寄与するヨウ素分子の総数を確保し、SNR の低下を防ぐ
- (2). 位相変調器を用いたドップラーフリー分光法の一つである MTS を用いてドップラーフリー吸収信号を取得する

工夫を施すことで、より高い SNR と狭い吸収線幅を有するドップラーフリー分光信号を超微細構造遷移の全成分で観測し、ヨウ素安定化レーザーの周波数安定度向上を目指した。

3.1 超小型半導体レーザーモジュールの基本特性

図 3.1 に、本研究で用いた波長 531 nm (QDLaser 社製, QLD0593-3220) コインサイズ半導体レーザーモジュール(CL module)の写真と内部構成を示す. 今回使用した CL module には、図 5.1(b)のように赤外領域の基本波光を発振する分布帰還型半導体レーザー(Distributed feedback diode laser: DFB-DL)と光のパワーを増幅するための半導体光増幅素子(Optical semiconductor amplifier), 可視領域の二次高調波を発生させるための非線形光学結晶(Waveguide-type periodically poled lithium niobate: WG-PPLN)が、2 cm×6 mm×4 mm(長さ×幅×厚み)の筐体に集積化されている. 出力部からの基本波光のパワーは最大で約 60 mW, 二次高調波である可視光は最大で約 25 mW である. これは分光計測を行うのに十分な出力であると言える. 一般的に、DFB レーザーは温度あるいは電流をコントロールして発振周波数を制御することが可能である. 図 3.1.2 に、531-nm CL module について、温度を変化させた際にアクセス可能な周波数掃引範囲を示す. 大きなモードホップ無しに、500 GHz の周波数掃引が可能である事が分かる. 発振周波数の温度依存性は、 $-42.2 \text{ GHz}/^\circ\text{C}$ である. DFB-DL の駆動電流を変化させることによっても発振周波数を変化させることが可能であり、その際の sensitivity は $-8.8 \text{ GHz}/\text{mA}$ である. 現在知られているヨウ素の吸収周波数のうち、531 nm レーザーの発振周波数帯域内に存在する相対強度 40 以上の吸収線を文献[98]から抽出した結果を図 3.1.2 に示す.

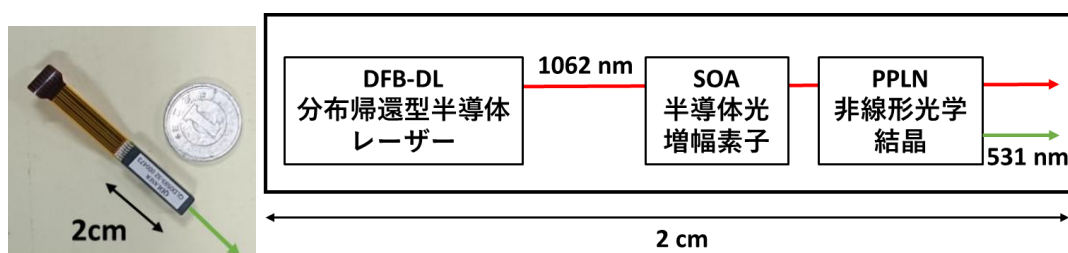


図 3.1.1 CL module と一円玉(参照用)の写真 (左) と、CL module の内部構造の模式図(右)

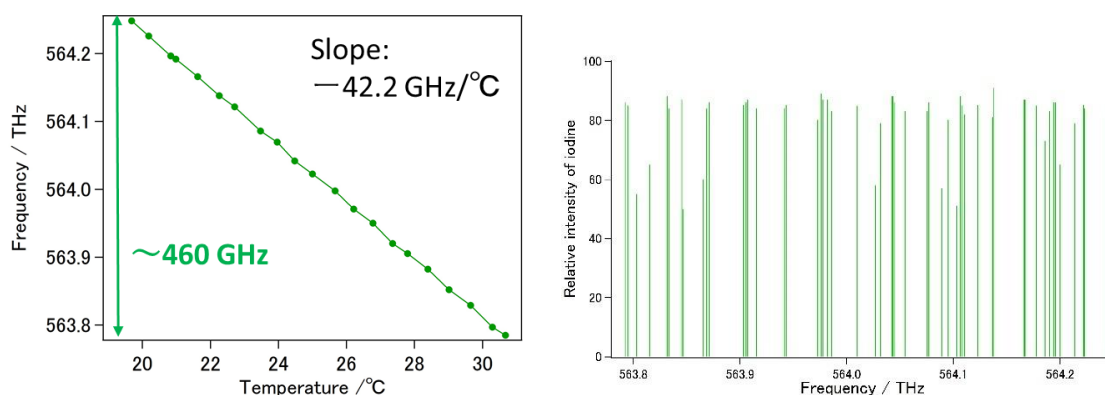


図 3.1.2 CL module の周波数可変域(左)と、現在知られているヨウ素の吸収周波数[98]のうち、レーザーの発振周波数帯域内に存在する相対強度 40 以上の吸収線(右).

3.2 ヨウ素分子の超精密分光に向けた分光系構成

ヨウ素分子を用いた超精密分光の実験で用いた光学系を図 3.2.1 に示す。今回の実験で我々は、ドップラーフリー分光の一種である Modulation transfer 分光法を用いた。先に述べたように、CL module からは赤外域の基本波光(IR 光)とその 2 次高調波である可視光(SHG 光)出力される。レーザーの駆動電流の電流源からのノイズを削減するためにカットオフ周波数 2 Hz の LPF を挟んでいる。ダイクロイックミラー(Dichroic mirror : DM)を用いてこの 2 つを分離し、赤外光は周波数測定系へ送り、可視光はレンズペアを用いてビーム径を小さくしてファイバーに通し、分光系に送る。ファイバーをスイッチすることで異なる波長の光を同一の分光系に送ることも可能である。

ファイバーから出射された SHG 光は HWP と PBS を通過し、2 つに分岐される。HWP の回転量を調整することで、SHG 光ビームのパワー分岐比を調整することが可能である。PBS で反射された S 偏光はポンプ光の役割を果たす。まず、ポンプ光は AOM を通過し、周波数シフトを与えられる。グラントムソンプリズム(GTP)で 1 次回折光から純度の高い S 偏光を取り出し、EOM 内を通過させて位相変調を与える。ヨウ素分子の吸収線の自然幅は 500 kHz 程度であり、変調周波数は 300 kHz 程度が適切である。ところが後述するように CL module の線幅は 2 MHz 程度であるため、変調周波数が低い場合サイドバンドがキャリア信号に埋もれ、MTS 信号を取得するための適切な位相変調を与えられない可能性がある。そこで、EOM の変調周波数は 800 kHz に設定した。分光系内で生じる、特に EOM 結晶でのエタロン効果に由来する RAM を低減させるために、EOM 筐体を発泡スチロールで覆い、時間的な温度変動の抑制を試みた。ポンプ光は別の GTP を通過し、ミラーで反射されてヨウ素セル内を通過する。一方で、PBS を通過した P 偏光はプローブ光の役割を果たす。プローブ光はセル内でポンプ光と重ね合わせて対向するように調整される。GTP でポンプ光とプローブ光を分離し、プローブ光のみを PD で受光する。蛍光灯の光に由来する雑音を避けるために、PD の受光面の周囲を覆っている。PD からの電気信号を EOM の変調周波数で復調し、エラー信号を得る。エラー信号を用いてサーボ制御を行い、駆動電流にフィードバックを返すことで周波数安定化を行う。

本研究に使用したヨウ素ガスセルについて述べる。Modulation transfer 分光では、ポンプ光とプローブ光の重なり合った空間に存在するヨウ素分子の数が信号に寄与する。そのため、ヨウ素セルが長いほど信号の SN 比は向上する。また、ヨウ素セルを冷却すると気体だったヨウ素分子が凝固し、コールドフィンガーに溜まる。セル内の気相ヨウ素分子が減少するとセル内の気圧が下がる。前述したように吸収線幅は均一幅であり、自然幅と衝突幅と飽和広がりとの和で表される。セル内の気圧が下がると衝突幅が減少するので、吸収線幅が小さくなる。ヨウ素セルの冷却部分をコールドフィンガーと呼ぶ。2.3.3 で述べたように周波数安定度は SN 比が大きいほど良く、吸収線幅が小さいほど良くなる。以上の事より、ヨウ素分子の分光では低温、低圧保持した長いセルを利用するのが望ましい。本研究では長さ 45 cm のセルのコールドフィンガー温度を -5°C あるいは -10°C に保ち実験を行う。

CL module の光周波数計測を実施する光学系を図 3.2.2 に示す。DM を透過した IR 光はレンズペアでビーム径を縮小した後に光アイソレーターに 2 回通過させて、HWP に通した後 Non-PM SMF に導入する。HWP は、IR 光の偏光を調整して光周波数コムとのビート信号の SNR を最大化するために設

置されている。IR 光と光周波数コムはカプラーで合波され、PD(Newport: 1811-FC)で受光する。PD からのビート信号を適切なローパスフィルターやハイパスフィルターで抜き出し、RF Amp(Mini Circuit: ZFL-1000LN)で増幅し、GPS 信号に同期された周波数カウンター(Pendulum: CNT-91)へ入力する。

周波数安定化 CL module の周波数安定度を測定するために、ヨウ素安定化レーザーに位相同期された Ti:Sapphire コムを利用した。フォトニック結晶ファイバーを用いて $0.5 \sim 1.1 \mu\text{m}$ までスペクトル広帯域化されたモード同期 Ti:Sapphire レーザーで構成されている。 f_{CEO} は $1f-2f$ 自己参照法を用いて検出され、GPS 信号をタイムベースとした FG からの RF 信号に安定化されている。 f_{CEO} の安定化は、Ti:Sapphire 結晶を励起する波長 532 nm 高出力レーザーのパワー（を制御する AOM の回折効率）をフィードバック制御することで達成される。さらにモード同期 Ti:Sapphire レーザーとヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーとのビート信号を検出し、GPS 信号をタイムベースとした別の FG からの RF 信号に安定化されている。共振器を構成する 4 枚のミラーのうち 1 枚に接着された PZT の駆動電圧を介して共振器長を制御することで f_{rep} の安定化が達成される。典型的な f_{rep} は 780 MHz 程度である。一方で Ti:Sapphire コムは、共振器部やフォトニック結晶ファイバーへの光入出力部の空間アライメントの長期安定性に課題があり、我々の実験系において典型的な稼働時間は数時間程度である。結果として、この Ti:Sapphire コムは狭線幅($\sim\text{kHz}$)かつ高い周波数安定度(10^{-13} at 1 s)を有する。

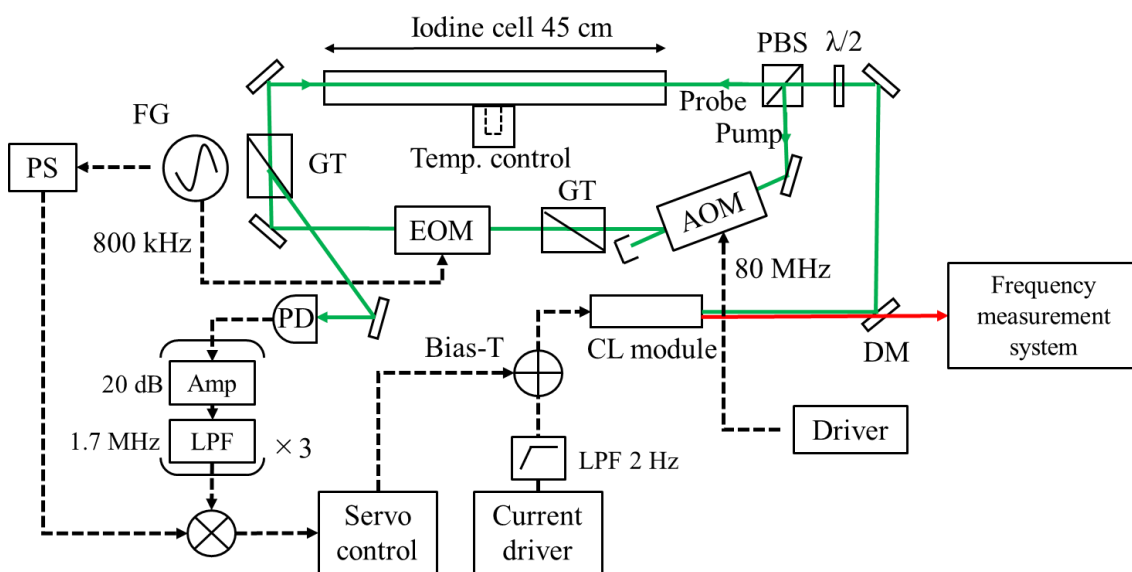


図 3.2.1 CL module を用いたヨウ素分光系。

赤線は赤外光，緑線は可視光，点線は電気信号配線を示す。

$\lambda/2$: Half wave plate, PBS: Polarizing beam splitter, AOM: Acousto-optic modulator, EOM: Electro-optic modulator, GT: Glan-Thompson prism, PD: Photodetector, DBM: Double balanced mixer, FG: Function generator, PS: Phase shifter, Amp: Amplifier, LPF: Low-pass filter.

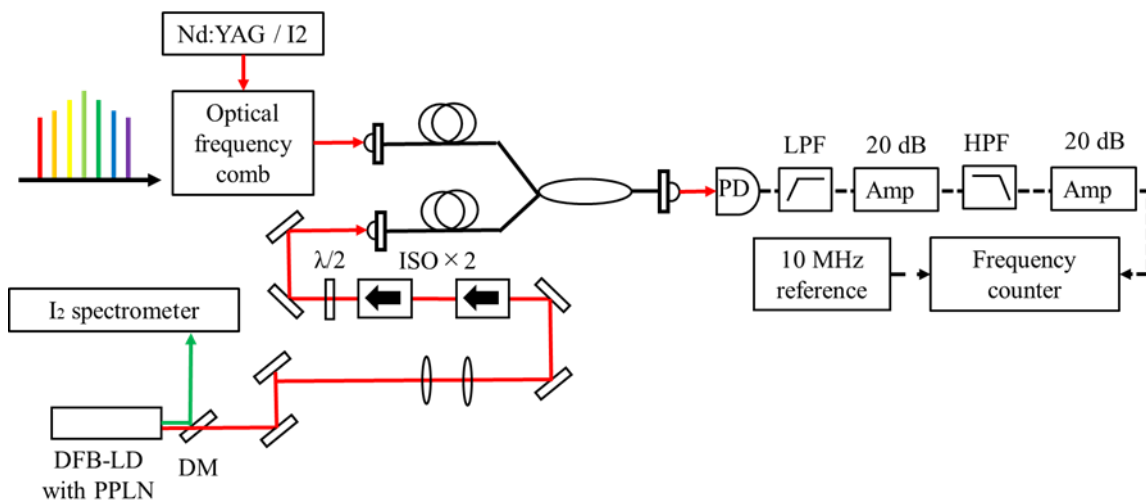


図 3.2.2 CL module の光周波数測定系.

赤線は赤外光, 黒線はファイバー配線, 点線は電気信号配線を示す.

ISO: Optical isolator, LPF: Low-pass filter, Amp: Amplifier, HPF: High-pass filter.

3.3 ヨウ素分子の Modulation transfer 分光信号特性

図 3.3 に, CL module を光源として用いた MTS により取得されたヨウ素分子の吸収線 R(36)32-0 のドップラーフリー信号の一例を示す. エラー信号取得の際には, カットオフ周波数 100 Hz のローパスフィルターを使用した. 吸収信号の線幅は約 5 MHz で, SNR は 57 であった. ヨウ素の回転振動遷移は, 回転量子数の基底準位が偶数であれば, 核スピンの結合によって 15 個の副準位に分裂する. 図 3.3 から分かるように, 15 本の超微細構造の全成分を観測することに成功した. ただし, a_{11} と a_{12} , a_{13} と a_{14} の吸収線は非常に近接しているため, 重なり合って 1 つの信号のように観測された.

表 3.3.1 Modulation transfer 分光の実験条件

遷移	R(36)32-0
Pump 光出力	6.45 mW
Probe 光出力	0.2 mW
EOM 変調周波数	800 kHz
ヨウ素圧力	1.4 Pa
コールドフィンガー温度	-10 °C

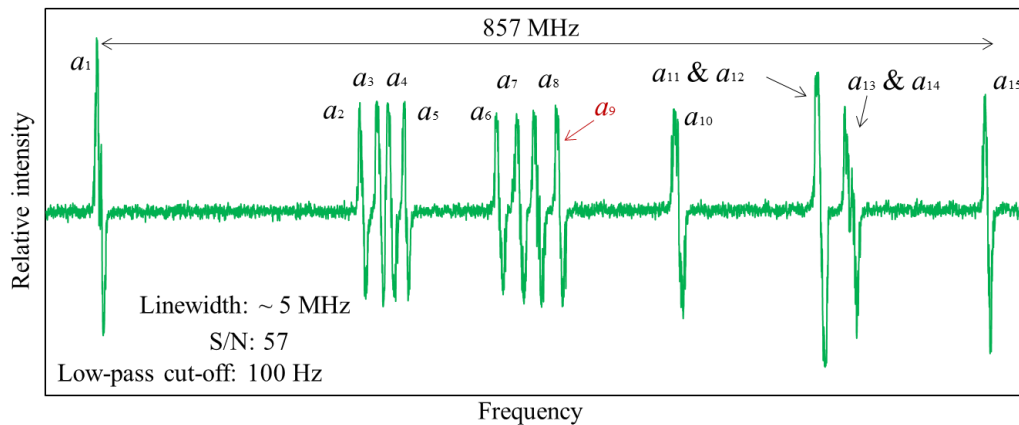


図 3.3.1 MTS により観測された R(36)32-0 の超微細構造遷移の全成分.

3.4 ヨウ素安定化レーザーの周波数安定度評価

3.4.1 ヨウ素安定化レーザーの線幅評価

DFB-LD の駆動電流を制御することで、観測されたヨウ素分子の R(36)32-0: a_9 成分を周波数基準とした CL module の周波数安定化を実施した. 図 3.4.1 に、ESA で測定された周波数安定化 CL module の IR 光と Ti:Sapphire コムの最近接モードとのビート信号を示す. RBW=300 kHz における、ビート信号の SNR は 30dB であり、のちに実施される周波数計測に使用する周波数カウンターの検出レベルに十分である. フリーランの時の CL module の IR 光の線幅(図 3.4.2 破線)は約 2 MHz であった. 一方で、周波数安定化を行った際の IR 光の線幅(図 3.4.2 緑線)は約 1 MHz であった. Ti:Sapphire コムの線幅は十分に狭線幅(~1 kHz)であり、観測されたビート信号の線幅は CL module の線幅を示している.

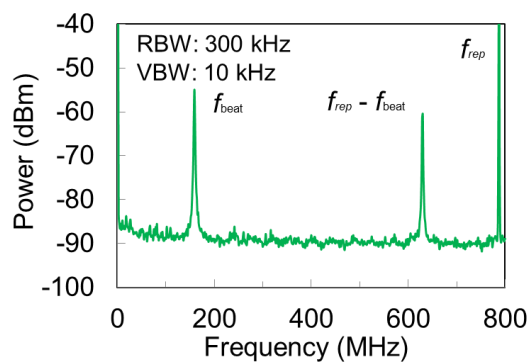


図 3.4.1 R(36)32-0 の a_9 成分に周波数安定化された CL module と Ti:Sapphire コムの最近接モードとのビート信号

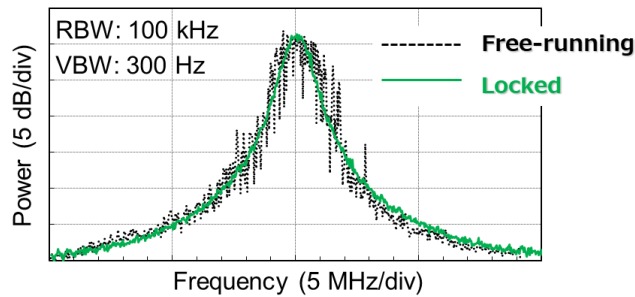


図 3.4.2 ビート信号(f_{beat})の拡大図。破線はフリーランの時のビート信号であり、緑線は周波数安定化を行った際のビート信号である。

3.4.2 ヨウ素安定化レーザーのアラン標準偏差評価

図 3.4.3 に周波数カウンター(Pendulum: CNT-91)を用いて記録された、R(36)32-0 の a_9 超微細構造成分に周波数安定化された波長 531 nm の CL module と Ti:Sapphire コムの最近接モードとのビート信号の周波数の時間変動を示す。周波数カウンターのゲートタイムは 1 秒であった。測定時間(=6000 s)は、Ti:Sapphire コムの CEO 周波数制御の時間不安定性により制限されている。

図 3.4.4 のプロット (緑) は、ヨウ素安定化レーザーに位相同期された Ti:Sapphire コムとのビート周波数から算出されたアラン標準偏差を示す。参考までに、黒破線に典型的なヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーの周波数安定度を示す。Ti:Sapphire コムの光モードの一つはヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーに対して位相同期されている。ゆえに、Ti:Sapphire コムの周波数安定度も黒破線と同程度であり、光周波数計測の測定限界を示す。今回の測定結果は、R(36)32-0 の a_9 成分に周波数安定化された 531-nm CL module の周波数安定度を示している。周波数安定度は 4.3×10^{-12} (平均時間 1 秒)であり、平均時間 800 秒で 4.1×10^{-13} に到達する。800 秒以上で、分光系で決定されるフリッカーフロアレベルに到達していると考えられる。周波数安定度が $1/\sqrt{\tau}$ 曲線に従っておらず、例えば CL module の光パワーの変動やジッター、分光系内での RAM に由来する白色雑音ではない周期的な雑音の存在が示唆される。参考までに、青点線で先行研究[48]のヨウ素安定化 CL module の周波数安定度を示す。短期から長期にわたるすべての時間領域において、1 桁程度の周波数安定度の改善が確認された。分光系の改善により先行研究[48]に対して信号 SNR が 1 桁改善されたことと整合性がとれている。

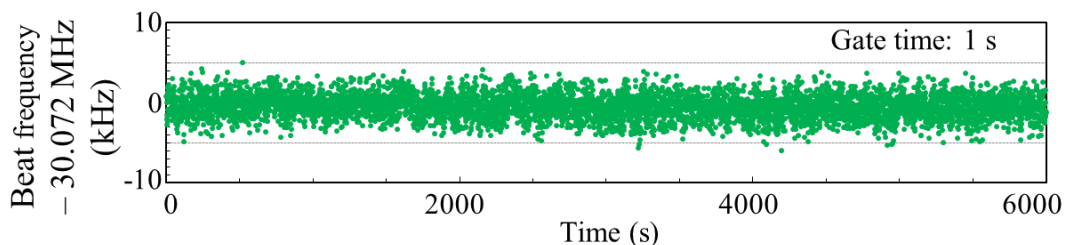


図 3.4.3 R(36)32-0 の a_9 成分に周波数安定化された CL module と Ti:Sapphire コムとのビート周波数の時間変動

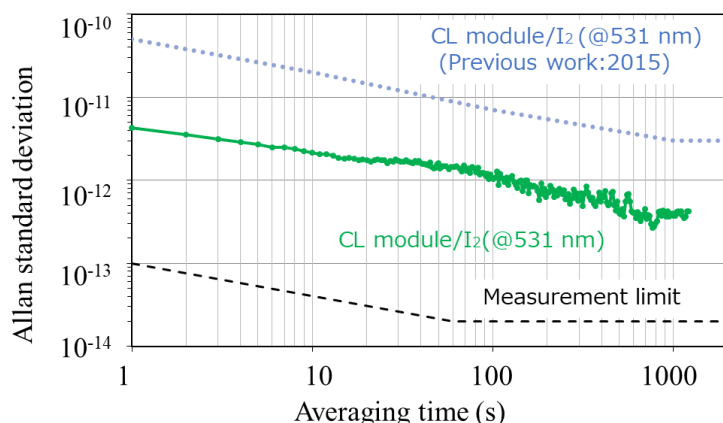


図 3.4.4 ヨウ素安定化レーザーに位相同期された Ti:Sapphire コムとのビート周波数から算出された 531-nm 周波数安定化 CL module (緑) と、研究室で保有する Ti:Sapphire コムの測定限界(黒破線)と、先行研究[48]のヨウ素安定化 CL module (青点線) の周波数安定度

3.5 絶対周波数計測に向けた系統不確かさ評価

R(36)32-0:a₁ 成分の絶対周波数計測に向けた系統不確かさ評価を試みた。光周波数計測には新たに作成された、ヨウ素安定化レーザーに位相同期された高速制御型 Er ファイバーコムを使用した。

3.5.1 ポンプ光のパワー変動により生じる周波数シフト

EOM の直後に可変式減衰板を設置し、ヨウ素セルに入射する Pump 光のパワーを変化させることで、ポンプ光のパワー変化による周波数シフトを計測した。図 5.6 に示すように、ポンプ光のパワーを変化させた際の周波数シフトは-0.40 kHz/mW であった。ヨウ素分光系内でのポンプ光のパワー揺らぎは大きく見積もって 10%以下である。

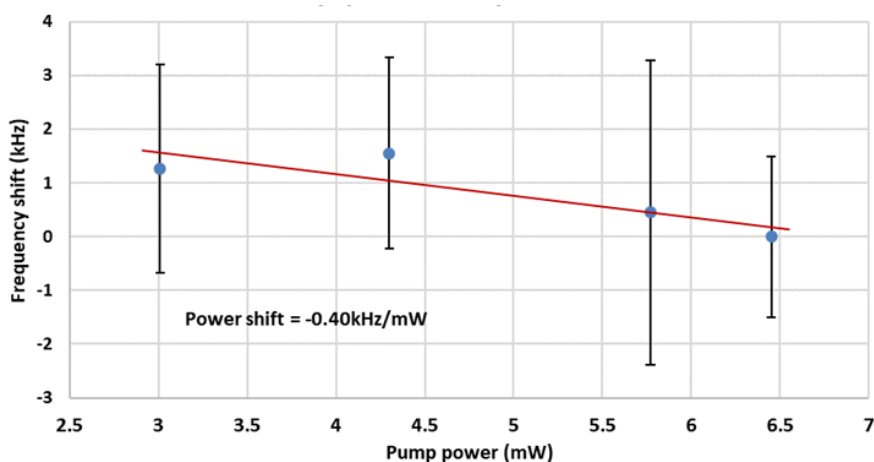


図 3.5.1 ヨウ素安定化レーザーのポンプ光パワーシフト

3.5.2 ヨウ素セル内の圧力変化により生じる周波数シフト

ヨウ素セル内の圧力変化により生じる周波数シフトを圧カシフトと呼ぶ。ヨウ素セルのコールドフィンガー温度を変化させることでセル内の圧力を上昇させ、その際の圧カシフトを光周波数コムとのビート信号から評価した。コールドフィンガー温度からガスセル内圧力への換算は

$$\log(P) = -\frac{3512.830}{T} - 2.013 \times \log(T) + 18.37971 \quad (4.1.1)$$

に従った[99]。図 3.5.2 に示すように、分光系におけるヨウ素セル内の圧カシフトは-2.1 kHz/Pa であり、セル内圧力の不確かさは大きく見積もって 0.2 Pa 程度であり、対応する周波数シフト量は 0.26 kHz である。

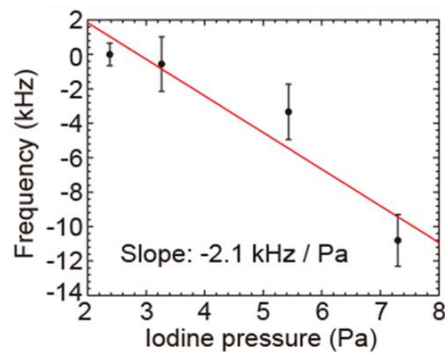


図 3.5.2 ヨウ素安定化レーザーの圧カシフト

3.5.3 エラー信号のオフセット電圧変化により生じる周波数シフト

Modulation transfer 分光は、オフセットフリーのエラー信号を取得可能であるという利点があるが、分光系内で生じる RAM や電気回路内のノイズなどが原因で、エラー信号にオフセット電圧が生じる。我々の使用したサーボ回路は、エラー信号のオフセットを調整する機構を備えている。そこで、エラー信号のオフセット電圧を変化させた際の周波数シフトを光周波数コムとのビート信号から評価した。サーボ回路上で発生するオフセット電圧揺らぎは 0.5 mV 程度と推定され、対応する周波数シフト量は 4 kHz である。

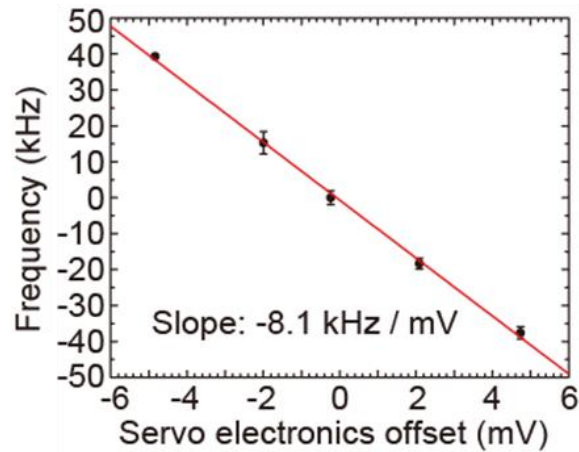


図 3.5.3 エラー信号のオフセット電圧変動に由来する周波数シフト

3.5.4 ポンプ・プローブ光のミスアライメントにより生じる周波数シフト

EOM の後段に設置された PBS を動かすことでポンプ光の光路をわずかに変化させ、その際に発生する周波数シフトを計測した。ただし、Modulation transfer 信号が最も大きくなる時がポンプ光とプローブ光のアライメントが最も理想的である(すなわち両ビームの波面が最も一致している時)と仮定している。横方向のミスアライメントによる周波数シフトは $15.2 \text{ kHz}/|\text{mrad}|$ である。一方で、縦方向のミスアライメントによる周波数シフトは $5.16 \text{ kHz}/|\text{mrad}|$ である。いずれの方向の周波数シフトも対称性がある。測定において発生するポンプ光のミスアライメントは大きく見積もって 0.1 mrad 程度である。

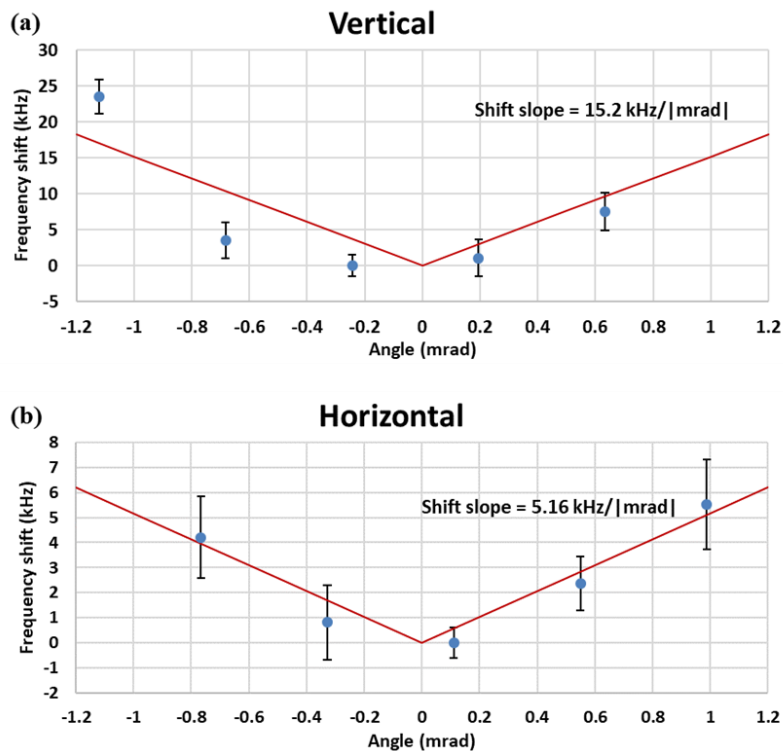


図 3.5.4 ポンプ光とプローブ光の、(a)横方向 (b)縦方向のミスアライメントによる周波数シフト。

3.5.5 ヨウ素セル内不純物により生じる周波数不確かさ

ヨウ素セル内の不純物が、周波数シフトを引き起こすことが知られている。本研究に使用されたセルは産総研にてヨウ素を封入されており、不純物に由来する周波数シフトが非常に小さい(<5 kHz)[100] ことを、同一ヨウ素セルを用いたヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーの絶対周波数計測と勧告値との比較実験にて確認した。

ここまでの周波数不確かさ評価をまとめた結果を表 3.5.1 にしめす。

表 3.5.1 系統不確かさに関する一覧表

Effect	Frequency sensitivity	Frequency uncertainty	Parameter uncertainty
Pressure shift	-2.1 kHz/Pa	< 0.4 kHz	<0.2 Pa
Power shift	-0.40 kHz/mW	< 0.26 kHz	< 10 %
Servo electronics offset	-8.1 kHz/mV	< 4 kHz	<0.5 mV
Alignment of the pump beams			
-vertical-	15.2 kHz/mrad	<1.5 kHz	<0.1 mrad
-horizontal-	5.16 kHz/mrad	<0.52 kHz	<0.1 mrad
Cell impurity		5 kHz	

3.6 第3章のまとめ

低圧保持された長いヨウ素セルと位相変調器を用いたドップラーフリー分光の一種である Modulation transfer 分光を用いて、コインサイズの超小型半導体レーザーモジュールのヨウ素安定化を実施した。線幅の大幅な改善は見られなかったものの、先行研究[48]に対してドップラーフリー信号の SNR が一桁改善し、R(36)32-0 の a_1 から a_{15} までの全ての超微細構造全成分の観測にも成功した。また、ヨウ素安定化レーザーのアラン標準偏差も同様に約一桁改善し、長期の積算時間で 4.1×10^{-13} に到達した。800 秒以上で、分光系で決定されるフリッカーフロアレベルに到達していると考えられる。中長期のアラン標準偏差は典型的な GPS-DO タイムベース RF 信号よりも良好であり、このヨウ素安定化レーザーシステムは光周波数コム参照用光周波数標準など様々な応用分野へ適応可能であると期待される。

本研究に関する研究発表

Junia Nomura, Kazumichi Yoshii, Yusuke Hisai, and Feng-Lei Hong, "Precision spectroscopy and frequency stabilization using coin-sized laser modules," J. Opt. Soc. Am. B 36, 631-637 (2019).

第 4 章 超小型半導体レーザーモジュールのハイブリッド周波数制御

第 3 章で、CL module を利用したヨウ素安定化レーザーの開発について記述した。一方でこのヨウ素安定化レーザーは線幅が 1 MHz と十分な狭窄化がなされず、コヒーレンス長が短いために応用分野が制限される。例えば、長距離伝搬を想定したセンシングや通信には不向きである。さらにその後の研究で、このレーザーシステムを用いてヨウ素分子の超微細構造遷移の絶対周波数計測や、それを利用した超微細構造定数の同定が実施されたが、先行研究と乖離した結果が得られた[98]。第 3 章では、線幅の大きなレーザーを用いた MTS において、自然幅よりも大きい変調周波数で位相変調を利用していった。これは、レーザー自身のスペクトル雑音内に位相変調サイドバンドを埋もれさせないようにするためであった。しかし変調周波数が大きい場合には、線形吸収による ± 1 次のサイドバンドのバランスの崩れる光周波数範囲が広がり、ドップラーフリー信号のゼロクロス点と本来の超微細構造遷移周波数に差異が生じる。この効果が、先述したヨウ素分子の超微細構造間遷移成分の絶対周波数計測を困難にすると考察されている[101]。

これを回避するための手段としては、何らかの手段で超小型半導体レーザーモジュールの線幅を狭窄化したのちに、低い変調周波数で位相変調をかけてドップラーフリー分光を実行するという 2 段階の制御が有効であると考えられる。電気制御の狭線幅化は、光共振器[102]やファイバー干渉計[103]を周波数弁別器としてレーザーの周波数雑音を観測し、その信号をもとにエラー信号を作成してサーボ制御することで達成される。光共振器は材質の適切な選定と構造、保持方法の最適化により、振動や熱などの環境変動に対して強固な特性を獲得することが可能である。その一方で、ファイバー干渉計は信頼性の高い市販品を組み合わせることで容易に構成され、ファイバー構成であるため空間アライメント調整も不要である。さらに周波数弁別器の特性、すなわち FSR や Q 値も容易に変更可能である。実際に光時計やコヒーレントファイバーリンクに適用可能な、ファイバー干渉計を利用した kHz 級レーザーの狭線幅化(Hz 級)が達成されている[104-107]。一方で、短い(< 10 m)インバランスファイバー長のファイバー干渉計を利用した、MHz 級線幅を有する DFB-DL の狭線幅化(~ 15 kHz level)も報告されている[108, 109]。

周波数弁別器を用いて超小型半導体レーザーモジュールの周波数雑音を観測して電気制御により線幅を低減させ、加えてヨウ素分子のドップラーフリー分光を利用してヨウ素安定化を達成する光周波数制御を検討する。このような 2 つの異なる周波数特性を有する周波数弁別器を利用した制御をハイブリッド制御と定義する。このようなハイブリッド制御はこれまでに 2 例報告されている[110, 111]。1 例目は ULE 共振器への PDH lock により Nd:YAG レーザーの短期周波数安定度を改善し、ヨウ素安定化により ULE 共振器の手前に追加で挿入された AOM の変調周波数を制御することで長期的な周波数安定化を実現している[110]。このようなハイブリッド制御の長期安定性は、AOM のダイナミックレンジで制限される。2 例目では、ヨウ素安定化により Nd:YAG レーザーの長期周波数安定化を達成したうえで、ULE 共振器への PDH lock 制御を追加された AOM と EOM へ返すことで、レーザーシステムの短

期周波数安定度を改善した。EOM を追加することでダイナミックレンジ改善が図られている[108]。どちらの先行研究でも、ハイブリッド制御は

(1). ULE 共振器の温度変動に由来する周波数ドリフトを改善する

(2). レーザーの絶対周波数を同定する

ためにのみ利用されている。

その一方で、今回我々はファイバー干渉計を用いて超小型半導体レーザーモジュールの周波数雑音を観測して電気制御により線幅を低減させ、そのうえでヨウ素分子のドップラーフリー分光を実施し、ファイバー干渉計を直接ヨウ素安定化制御する 2 段階の光周波数制御を実施する。このようなハイブリッド制御を観測する遷移自然幅より大きな線幅を有するレーザーに対して実行すると、(1)と(2)に加えて

(3). ドップラーフリー分光の信号特性を改善させ、ハイブリッド制御適用前と比較して良好な周波数安定度を短期から長期まですべての時間帯で達成する

(4). PZT や温度制御素子を利用したファイバー干渉計の直接制御により、光変調器を制御対象とした従来のハイブリッド制御に比べて広いダイナミックレンジ(> 100 MHz)を容易に獲得する

(5). 2 つの制御における制御帯域の調整を容易にする

効果が期待される。

4.1 ファイバー干渉計を用いた超小型レーザーモジュールの狭線幅化

4.1.1 実験セットアップ

実験装置の模式図を図 4.1.1 に示す。光源である CL module の詳細な説明は省略する。非球面レンズで出力光をコリメートし、DM で IR 光と SHG 光を分離した。先の研究において、IR 光を測定系へ送信するためのファイバー結合部分の端面反射の影響で、CL module の発振不安定性が生じることが明らかになっていた。そこで、レンズペアでビーム径を 1/3 程度に縮小し、戻り光を防止するための空間型の光アイソレーターを通過させた。光アイソレーターは 2 段(後述するように、後半の実験では 3 段)挿入している。HWP と PBS のペアで IR 光を 2 分割し、HWP の角度で分岐比を調整する。一方の光は AR coated FC/APC Non PM SMF へ結合されたのち測定系へおくれる。もう一方の光は AR coated FC/APC Non PM SMF へ結合されたのちにファイバー干渉計へ送られる。間のパッチコードケーブルは、IR 光のファイバー結合効率を最適化するモニター用に設置されている。

図 4.1.2 に示す MI システムは 50:50 カプラー、ファラデーミラー×2、ファイバーAOM、追加 Non PM SMF で構成されている。入力光を 50:50 カプラーで分離させ、一方を参照光、もう一方を信号光として用いる。参照光はファラデーミラーで偏光を 90 度回転させて反射し、50:50 カプラーでさらに 2 分岐させる。信号光はファイバーAOM で周波数シフトさせたのちにファラデーミラーで偏光を 90 度回転させて、50:50 カプラーでさらに 2 分岐させる。FG(NF 回路:WF1971)からの信号 (30MHz) を RF Amp(Mini circuit: ZFL1-2)で増幅させた信号を用いて、ファイバーAOM を駆動している。ダブルパス構成であるため、信号光の受ける周波数シフト量は 60 MHz である。この構成では、50:50 カプラーの出力ポートからは相対的に偏光のそろった参照光と信号光のペアが出力され、ビート信号の SNR は常に最大である。

そのため MZI と異なり, Non PM SMF で構成されたファイバー干渉計であっても偏光コントローラーは不要である.

サーボシステムの構成を図 4.1.3 に示す. PD からの受信信号の信号パワーは-33 dBm, SNR は 30 dB 程度であり, ノイズフロアはショット雑音で決定されている. PD からの受信信号は, BPF と RF Amp で信号パワーを増幅させ, DBM(Mini-Circuit: ZAD-3)で位相検波させる. 位相検波の参照用信号は FG の CH2 からの出力信号 $2f_{AOM}$ を利用している. DBM で生成されたエラー信号をサーボ回路に入力し, 制御信号を生成する. 早い制御信号は自作の Bias-T 回路を通して DFB DL に返すことで狭線幅化を達成する. CL module の特性として, レーザー発振が不安定であり, 狭線幅化が成立する DFB-DL 駆動電流範囲が非常に狭い(典型値: $<0.2\text{mA}$). ゆえに, 干渉計変動に由来する光周波数変動(ドリフトや掃引)により, 長期制御を実現することはできなかった. そこで, 遅い制御信号を 10 dB ほど減衰させて温度コントローラーを通してペルチエ素子へ返すことで, 長期制御を実現させている.

$\text{I}_2\text{-Nd:YAG}$ laser に安定化された OFC とのビート信号を SA で観測した. 別の実験にて OFC の線幅は 1 kHz 程度であることが確認されており, ビート信号の線幅が 1 kHz を超えている場合は CL module の線幅と考えられる.

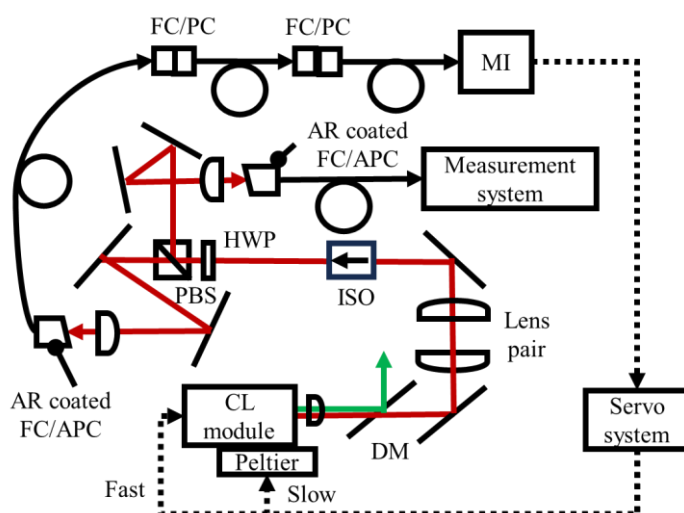


図 4.1.1 狭線幅制御の実験模式図 (光学系) .

赤線は赤外光, 緑線は可視光, 黒線はファイバー配線, 点線は電気信号配線を示す.

CL module: Compact laser module, DM: Dichroic mirror, ISO: Optical isolator,
HWP: Half wave plate, PBS: Polarization beam splitter, MI: Michelson interferometer.

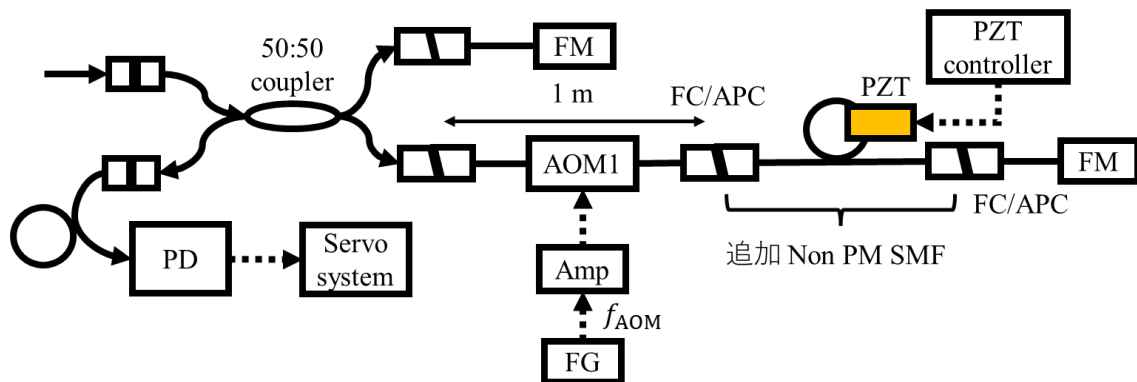


図 4.1.2 狭線幅制御の実験模式図 (MI 部) . 黒線はファイバー配線, 点線は電気信号配線を示す. FM: Faraday mirror, AOM1: Acousto-optic modulator, PZT: Piezoelectric transducer, FG: Function generator, Amp: Amplifier, PD: Photodetector.

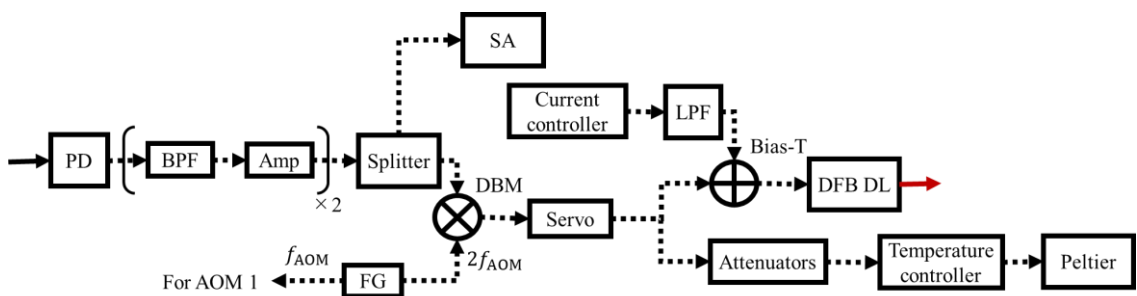


図 4.1.3 狭線幅制御の実験模式図 (サーボシステム部) . 黒線はファイバー配線, 点線は電気信号配線を示す. PD: Photodetector, BPF: Bandpass filter, Amp: Amplifier, SA: Spectrum analyzer, FG: Function generator, DBM: Double balanced mixer, LPF: Lowpass filter, DFB DL: Distributed feedback diode laser.

4.1.2 狭線幅化の最適化

MI の AOM と FM の間に挿入する追加 non-PM SMF を 5 m ずつ変化させ, 狭線幅制御の reload を 7 回以上繰り返して線幅を測定し, 狭線幅化における線幅と MI の遅延路長との関係を調査した結果を図 4.1.4 に示す. なお, non-PM SMF の変動量 5 m は, MI の遅延路長に直すと 10 m になる. 遅延路長が 12 m から 42 m の領域では, 線幅は平均 9 kHz 程度であり, 標準偏差まで考慮に入れると有意な差は確認されなかった. 一方で, 遅延路長 2 m における線幅は平均 17 kHz と悪化した. 遅延路長が短くなったことで, 周波数雑音の低周波数側の感度が低くなったためと考えられる. また, 52 m 以上の領域では 10 kHz 前半の線幅が得られる一方で, 狭線幅化が不安定な挙動を示す現象が確認された. ここでの不安定な挙動とは, 制御がすぐに外れるかあるいは線幅が劣化する, 狭線幅化後の光周波数が隣接ロックポイントへ飛ぶなどの現象を指す. ファイバー干渉計のキャプチャーレンジが CL module の従来の線幅を裕に超えて制御が困難になる, あるいは制御の基準である MI が外部環境の影響を受けるなどの原因が考えられる. 遅延路長が 62 m を超えた測定においては, 干渉計を箱に封

入ることができなかつたため、62 m 以下の測定と実験環境が異なる。そのためグラフには示していないが、同様の不安定な挙動が起き、さらに線幅も悪化していくことを確認した。さらに遅延路長を 100 m 付近まで延伸すると、図 4.1.5 に示すように CL module が狭線幅化されずに発振波長がロックポイントに安定化される様子が確認された。

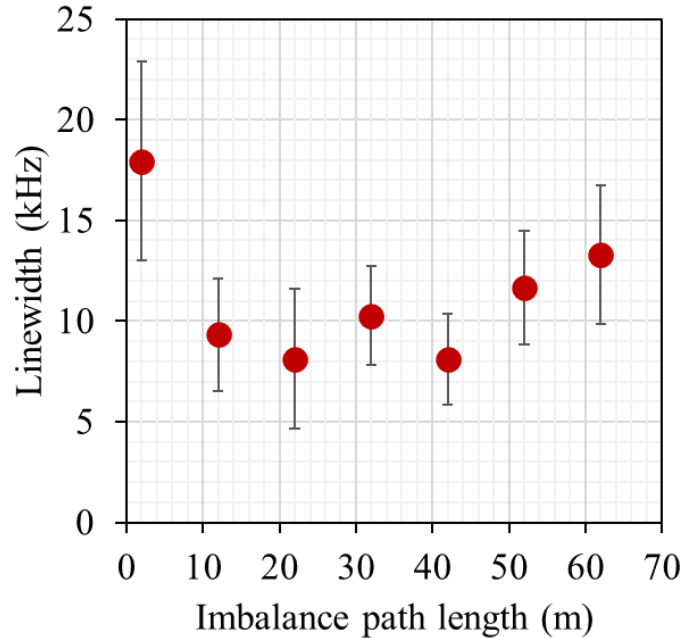


図 4.1.4 遅延路長とファイバー干渉計へ安定化された CL module の線幅との関係。

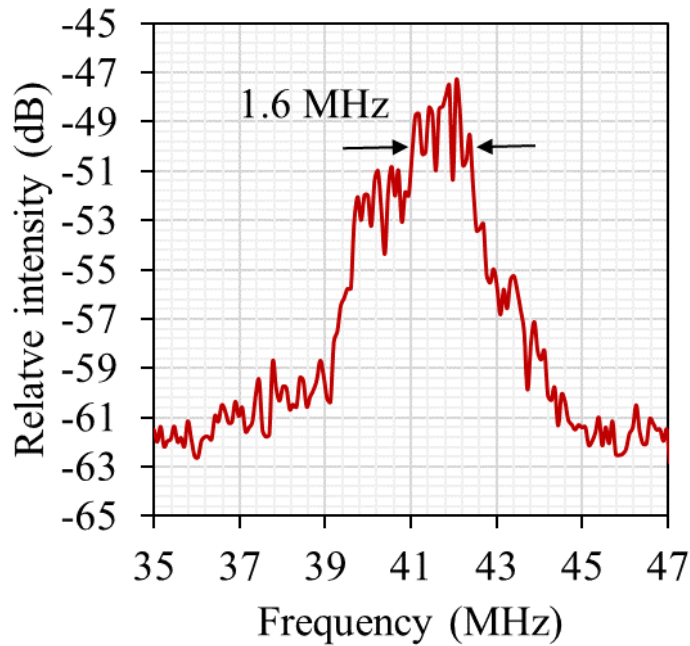


図 4.1.5 遅延路長 102 m の時のファイバー干渉計へ安定化された CL module の光スペクトル (RBW: 300 kHz, VBW: 10 kHz) .

図 4.1.6 に示すように、OFC とのビート検出系への送信光路に 99:1 分離カプラーを挿入し、99%をビート検出系へ、1%を波長計へ入射させた。波長を監視しつつ狭線幅化を実施するためである。ここで、カプラーを新たに挿入した際の散乱光が狭線幅化に及ぼす影響について確認するため、カプラー挿入前後で狭線幅制御の relock を 10 回繰り返す、測定線幅の平均と標準偏差を算出して比較した。結果として、カプラー挿入の影響は確認されなかったため、以降の全ての測定ではカプラーを挿入している。

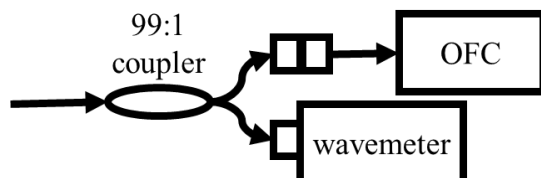


図 4.1.6 波長計およびカプラーを追加した場合の模式図。OFC: Optical frequency comb.

つぎに、CL module の波長をヨウ素分子の吸収線に合致させた際の線幅を測定し、狭線幅化の波長依存性を確認した。結果として、CL module の発振波長変更による狭線幅化の劣化は確認されなかった。これは、CL module で発振可能な任意の波長領域において、10 kHz 程度の狭線幅化が可能であることを示している。

外乱の影響を避けるため、ファイバー干渉計を銅製治具に固定したうえで、それらすべてを防塵アルミニウム筐体に封入した。銅製治具とペルチェ素子、筐体の間には熱伝導シートを敷いている。また、銅製治具と防塵アルミニウム筐体は樹脂製のネジで固定して、熱の流入を抑えている。さらに、ファイバー干渉計の一方の光路を構成するファイバーの一部、具体的には AOM と FM の間のファイバーの一部 (約 25 mm) の被覆をファイバーストリッパーで剥ぎ、PZT と接着している。接着にはアラルダイトを利用した。ファイバーの大部分はゴム製ファイバールールライトに巻き付けられている。ルールライトの上にはサーミスターがスコッチテープで固定されている。防塵アルミニウム筐体の側面には 4 か所+1 か所の穴が空いている。4 か所側について、2 か所にはファイバーコネクタを、もう 2 か所には防水対応の BNC コネクタを取り付けている。ファイバーコネクタは MI 入射/出射ポートである。BNC コネクタは、PZT 駆動信号ポートと AOM 駆動信号ポートである。1 か所側には、防水対応の Dsub(9 Pin)コネクタを取り付けている。こちらはペルチェ素子駆動信号の送信と、サーミスターの抵抗値を測定するためのポートである。ただし、ファイバーコネクタは防水対応ではない。また、筐体の蓋を閉めるための外側 4 か所のネジ穴のうち 1 か所が緩んでおり、これらの影響で筐体密閉が不十分な可能性があることを記しておく。

MI を筐体に封入したことによる狭線幅化制御への影響を確認したところ、筐体封入による大幅な線幅改善は確認されなかった。一方で、狭線幅化制御の長期安定性を波長計で測定したところ、封入前後で顕著な違いが見られた。筐体封入前の測定結果図 4.1.7 (a)では、約 10 分間で 200 MHz 程度の周波数シフトが生じているとともに、スパイク形状の散発的な周波数シフトが確認された。スパイク部分の拡大図の一例を図 4.1.7 (b)に示す。その一方で、図 4.1.7 (c)に示す筐体封入後の測定結果では周波数シフトが改善されるとともに、散発的なスパイクも確認されない。波長計の表示最小分解能は 10 MHz であるが、データ取得時には 1 MHz レベルで記録される。グラフ(a)(b)上のスパイク(表示

錠では~14 MHz)は波長計の分解能で制限されているのではなく、約 16 MHz 間隔で点在するファイバー干渉計の隣接ロックポイントへ CL module の光周波数が実際に転移していることを、光コムとのビート周波数計測で確認している。このスパイクは筐体を開封したときや、狭線幅制御の I ゲインを高くしたときに顕著に発生する。

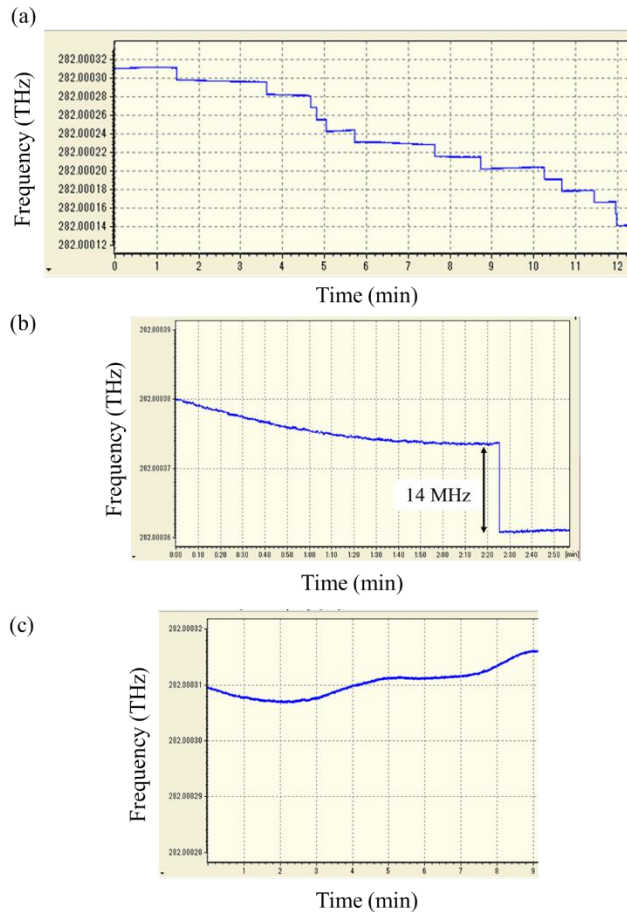


図 4.1.7 狭線幅化時の長期的な周波数安定性. それぞれ (a)筐体封入前, (b)スパイク部分の拡大図, (c)筐体封入後の波長計での測定結果.

つぎに、銅製 MI 治具の直下に取り付けたペルチエ素子を動作させて、MI の温度制御を実施した際の狭線幅化 CL module の光周波数の特性を確認した。温調動作の有無で線幅の改善は見られなかった。これは、温度制御の時定数が秒スケールであることに由来すると推測される。長期安定性測定結果の一例を図 4.1.8 に示す。1 時間以上にわたり狭線幅化が維持される様子が見て取れる。この測定では周波数ドリフトは 20 MHz であり、MI の温度が 10 mK 精度で制御されていることになる。ただし、この周波数ドリフト測定は測定時間帯や実験室の空調管理の様子により多少の変動があったことに触れておく。

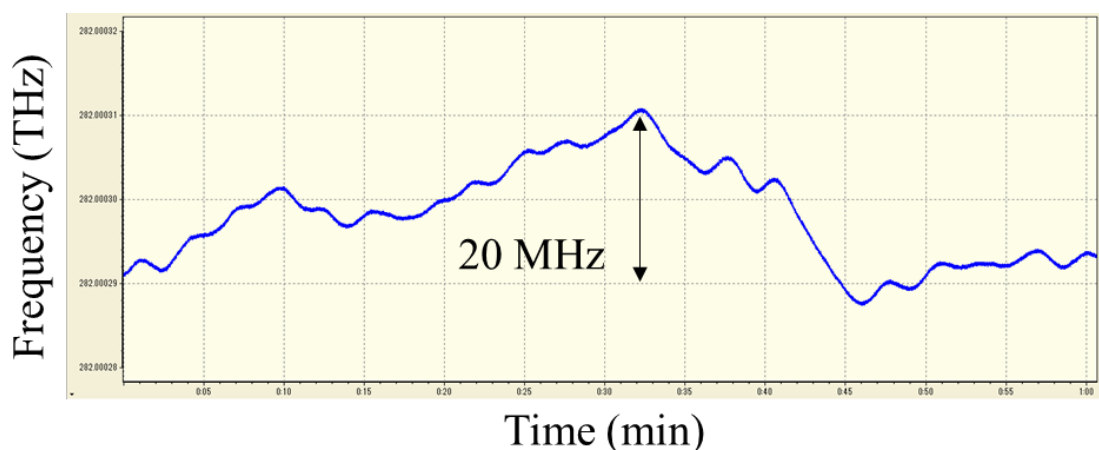


図 4.1.8 温調制御時の狭線幅化制御の 1 時間にわたる長期動作確認

図 4.1.9 に、一連の測定で観測された CL module と光周波数コムとのビート信号を示す。(a)はフリーラン時の典型的な CL module の線幅をしめす。(b)は狭線幅化時のビート信号であるが、スペクトル幅は ESA の分解能で制限されている。線幅を測定するためにさらに ESA の設定を変更した場合の測定結果を(c)に示す。すべての線幅測定は測定時間を 400 ms に設定しており、この計測において線幅は 6 kHz であった。赤プロットは測定結果を、黒線はローレンツ関数によるフィッティング結果を示す。サーボポンプを観測するため、SA の分解能を変更した測定結果を(d) (縦軸：対数) と(e) (縦軸：線形) に示す。狭線幅化制御の制御帯域をサーボポンプから見積もったところ、750 kHz であった。今回使用したサーボ回路の制御帯域は最大で 10 MHz 程度であり、ファイバー干渉計内で生じる遅延時間に由来する応答速度限界は 4.1.1 にて示すとおり約 8 MHz である。すなわち今回の狭線幅化制御の制御帯域は、サーボ回路やファイバー干渉計の遅延長以外、たとえば受信信号の SNR などで決定されると推測される。

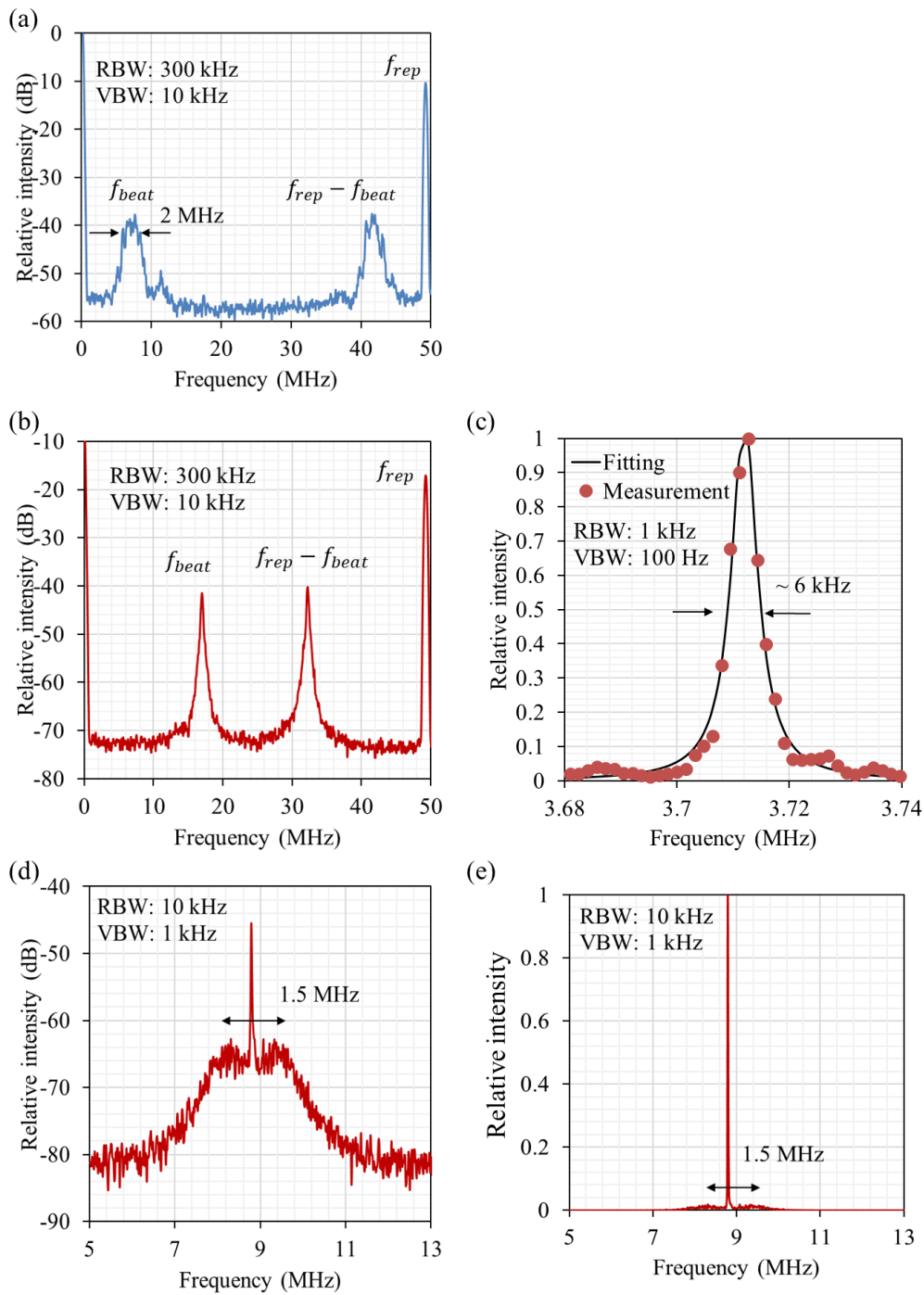


図 4.1.9 CL module と光周波数コムとのビート信号.

- (a) フリーランの場合, (b)狭線幅化を実施した場合, (c)は狭線幅化時の拡大図と
 (b) ローレンツ関数でのフィッティング結果, (d)(e)はサーボパンプの測定結果を示す.

以降のすべての測定では MI を筐体に密閉し, 温度制御を施している. また, 途中でファイバー干渉計に取り付けた PZT が故障したため, 接着されたファイバー部分ごと切断して融着し, 別箇所に同じ手

順で新たな PZT を接着した。この作業の前後で狭線幅化の測定結果に有意な差は確認されなかったため、その検証作業結果は省略する。

4.2 ハイブリッド制御系の開発

4.2.1 ファイバー共有型ヨウ素分光系の開発

本研究では、2 種類のヨウ素分光系（共有ヨウ素分光系、独立ヨウ素分光系）を用いている。前者は他の研究グループと共同で利用しており、SHG 光を non-PM SMF で伝送する必要がある。後者は本研究で独立して利用しており、SHG 光を自由空間で伝送している。ヨウ素分光系はドップラーフリー分光の一種である MTS を利用している。分光手法の詳細は第 3 章にて記述されているため、割愛する。

図 4.2.1 に SHG 光の送信系の模式図を示す。共有ヨウ素分光系に SHG 光を入射するために、ミラー 3 枚と非球面レンズを用いて片側端面(APC/FC)が AR コーティングされた non-PM SMF(2 m)へ入射した。その後、3 種類の non-PM SMF(5 m, 1m, 0.5 m)を経由して共有ヨウ素分光系へ SHG 光を送信している。このとき、MTS 信号の SNR に大きな時間的不安定性が確認された。OFC と CL module とのビート信号にも同様の時間不安定性が発生していたため、SHG 光を共有ヨウ素分光系へ伝送する段階で不具合が生じたと考えるのが自然である。正常時と異常時が数秒間隔で交互に生じる状態が最も多発した。

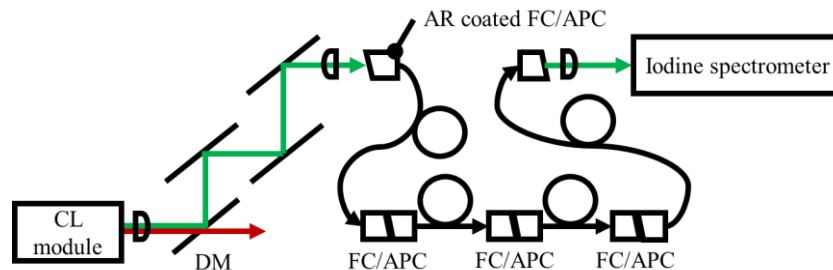


図 4.2.1 ファイバー共有型ヨウ素分光系への SHG 光送信系。
赤線は赤外光，緑線は可視光，黒線はファイバー配線を示す。

CL module: Compact laser module, DM: Dichroic mirror, AR: Anti reflection.

1 枚の DM で除去しきれなかった IR 光が非球面レンズで反射して戻り光として CL module に入射したと予想し、前述したミラー 3 枚をすべて DM に変更した。DM の IR 光/SHG 光分離比はおよそ 20 dB であり、端面反射した IR 光は 120 dB 減衰すると期待される。ところがこの変更で時間特性の改善は確認されなかった。IR 光路部で生じた戻り光の影響も考えられたが、アイソレーターの段数を 2 段から 3 段に増やしたが、こちらも効果は確認されなかった。

つぎに、SHG 光がいずれかの光学部品で反射して戻り光として CL module に入射したと予想し、ファイバー接続部分を確認した。まず、図 4.2.2 (i)のとおり入力用 non-PM SMF の出力光をパワーメーター

でダンプした状態で、狭線幅制御が正常であることを確認した。図 4.2.3 の(a)にエラー信号をオシロスコープで測定した波形を、(b)にファイバー干渉計の受信信号の ESA での観測波形を、(c)に狭線幅化 CL module と光周波数コムとのビート信号を示す。動作正常時には、エラー信号電圧の標準偏差は 20 mV 程度であり、PD 受信信号の SNR は 30 dB 程度であった。つぎに図 4.2.2 (ii)のとおり、使用したファイバーのうちいずれか（あるいは複数）の端面異常を確認するため、保有するすべての中継用 non-PM SMF(1 m, 2 m, 5 m)を入力用 non-PM SMF と直接接続した。すると、任意の 2 種類の中継用 non-PM SMF を接続した段階で不安定性が生じた。図 4.2.3 の(d)にエラー信号をオシロスコープで測定した波形を、(e)にファイバー干渉計の受信信号の ESA での観測波形を、(f)に狭線幅化 CL module と光周波数コムとのビート信号を示す。動作異常時に、エラー信号電圧の標準偏差は 34 mV 程度であり、その時の PD 受信信号の SNR は 15 dB 程度であった。先に述べた不安定性とは、動作正常時と動作異常時が数秒ごとに繰り返す様子を表現している。この結果から接続コネクタ部における反射光か、ファイバー中での誘導ブリルアン散乱光の存在が疑われるが、これ以上の特定作業は実施しなかった。詳細な評価をする場合、より長い(例えば 10~100 m)中継用 non-PM SMF が必要になるためである。

最後に反射光が存在した場合、狭線幅化に悪影響を及ぼすことを確認する実験を実施した。図 4.2.2 (iii)のように、non-PM SMF の出力側(APC コネクタ)とパワーメーターを FC/PC アダプターで接続し、出力光をダンプした。このとき、狭線幅制御がかからない現象を確認した。また、狭線幅制御をかけた状態で同様の操作を行うと、制御が発振することを確認した。図 4.2.3 の(g)にエラー信号をオシロスコープで測定した波形を、(h)にファイバー干渉計の受信信号の ESA での観測波形を、(i)に狭線幅化 CL module と光周波数コムとのビート信号を示す。このとき、エラー信号電圧の標準偏差は 62 mV 程度であり、その時の PD 受信信号の SNR は 10 dB 程度であった。また、光周波数コムとのビート信号が完全につぶれて測定不能になっている様子が見て取れる。参考までに、FC/APC アダプターを利用した場合には、この現象は確認されなかった。

以上の結果から、共有分光系へ SHG 光を入射した際の制御不安定性の原因として、誘導ブリルアン散乱あるいは端面接続部分の反射光のいずれかが原因で生じた戻り光(SHG 光)が、CL module の狭線幅制御に悪影響を及ぼしていることが特定された。そこで図 4.2.4 に示すように SHG 光のファイバーカップリング系に新たに光アイソレーター(37 dB)を挿入した。結果として、分光信号 SNR とビート信号の時間不安定性が解消された。

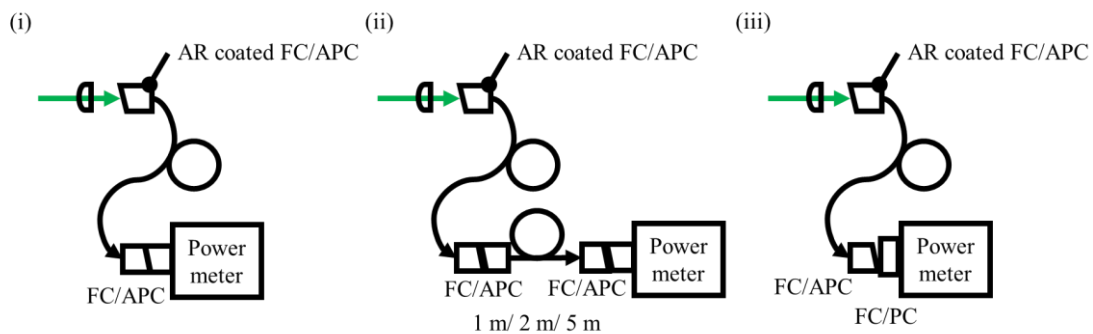


図 4.2.2 狭線幅制御不安定性の調査実験系。緑線は可視光，黒線はファイバー配線を示す。
AR: Anti reflection.

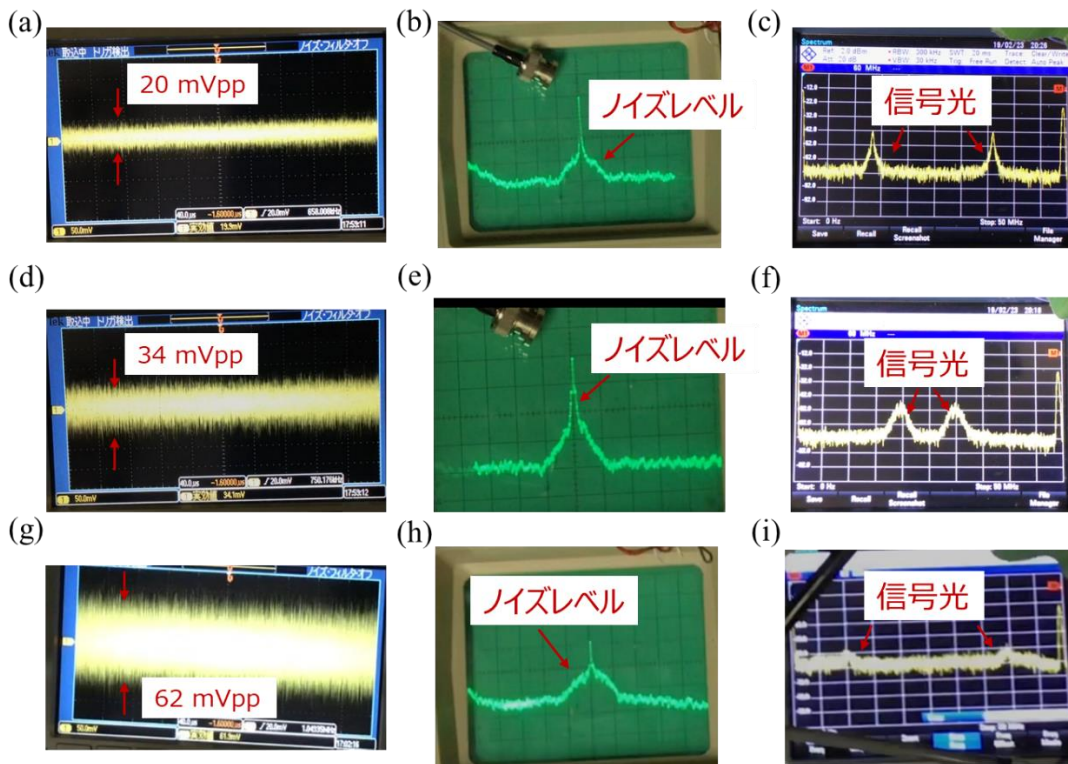


図 4.2.3 狭線幅制御不安定性の測定結果一覧。狭線幅制御達成時の(a)エラー信号，(b)PD 受信信号，(c)光周波数コムとのビート信号。狭線幅制御不安定時の(d)エラー信号，(e)PD 受信信号，(f)光周波数コムとのビート信号。狭線幅制御発振時の(g)エラー信号，(h)PD 受信信号，(i)光周波数コムとのビート信号をそれぞれ示す。

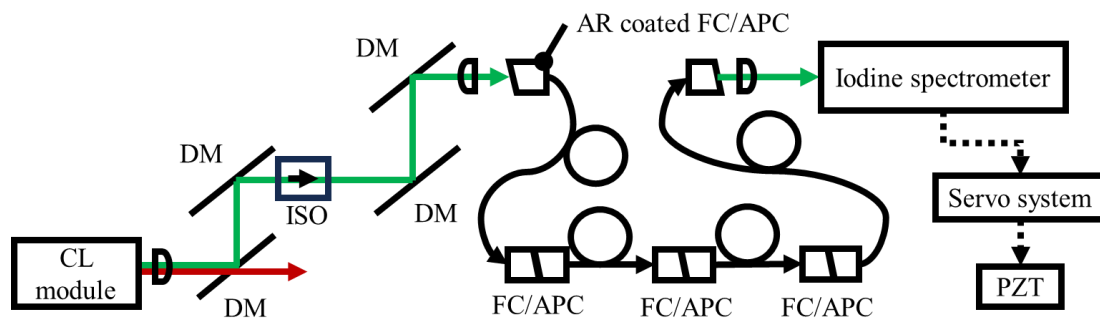


図 4.2.4 アイソレーター挿入後の SHG 光の送信光学系構成。赤線は赤外光，緑線は可視光，黒線はファイバー配線，点線は電気信号配線を示す。CL module: Compact laser module, DM: Dichroic mirror, ISO: Optical isolator, AR: Anti reflection, PZT: Piezoelectric transducer.

4.2.2 ヨウ素分光系を利用したハイブリッド制御

ハイブリッド制御の手順フローを図 4.2.5 に示す。まず，CL module の発振周波数をヨウ素分子の吸収線に合わせる。つぎに，ファイバー干渉計を用いた狭線幅制御を実施する。この時，狭線幅化と同時に最近接ロックポイントへ光周波数が安定化される。つぎに，PZT 駆動電圧を変動させて最近接ロックポイント（および安定化された CL module の光周波数）を掃引し，ヨウ素分子の超微細構造成分を観測する。最後に，観測された超微細構造成分を用いてファイバー干渉計をヨウ素安定化する。ヨウ素安定化は，PZT ドライバーを介して PZT 駆動電圧をサーボ制御することで達成される。

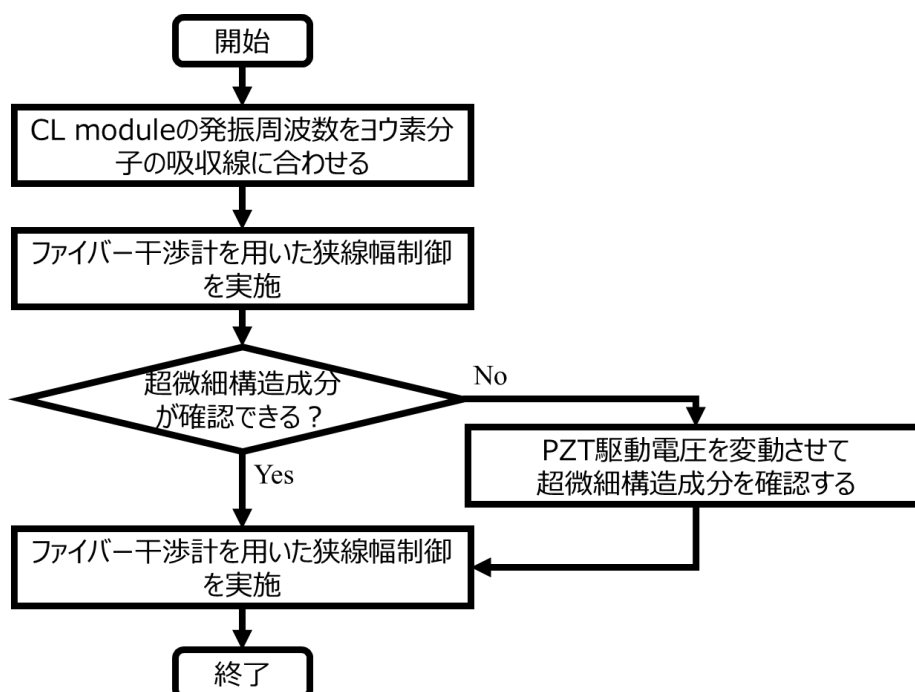


図 4.2.5 ハイブリッド制御の手順フロー

ハイブリッド制御された CL module と OFC のビート信号を周波数カウンターで測定し、その結果から CL module の周波数安定度を評価した。結果として、図 4.2.6 のような結果が得られた。短期(積算時間 10 ms)の周波数安定度は 2×10^{-11} と良好であるものの、積算時間を延ばしてもアラン標準偏差が改善されない。これは光学系において予期せぬ雑音が生じていることを意味している。SHG 光の伝送に non-PM SMF を利用しており、ファイバー内での偏光変動が分光信号を時間的に変化させ、ヨウ素安定度を悪化させていると疑われた。そこで、ハイブリッド制御中に non-PM SMF をわずかに揺らし、周波数変動を測定した。図 4.2.7 に示すように、ファイバーの意図的な揺れに応じてハイブリッド制御レーザーの周波数シフトが発生することを確認した。共有ヨウ素分光系における時間的な SHG 光の偏光変動が分光およびヨウ素安定化制御に悪影響を与えていると推測される。

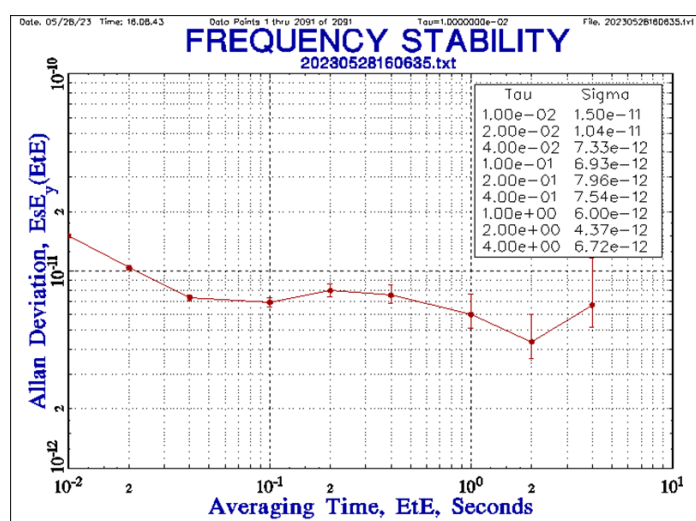


図 4.2.6 ファイバー共有分光系を使用した際ハイブリッド制御の周波数安定度

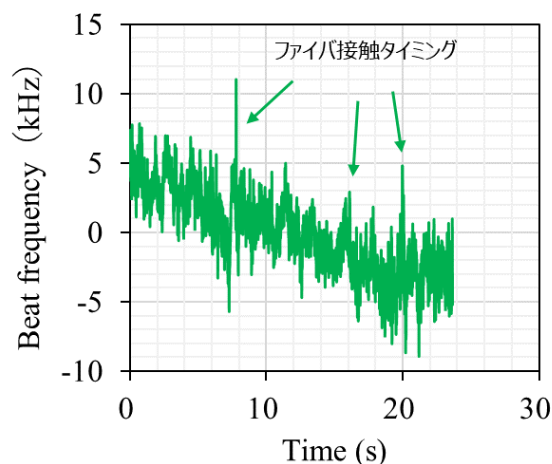


図 4.2.7 ファイバーに手を接触させて故意に揺らした際に生じたハイブリッド制御レーザーの周波数変動

実験室のオペレーションの観点から、すべてのファイバーの偏波保持化が困難であったため、図 4.2.8 に示す独立ヨウ素分光系を構築した。電気制御部の模式図は図 4.2.9 に示す。基本的な構成は先ほどまでと同様であり省略する。また、最終的なハイブリッド制御系の全体図を図 4.2.10 に示す。実験手順は先ほどと同様であり、こちらも省略する。

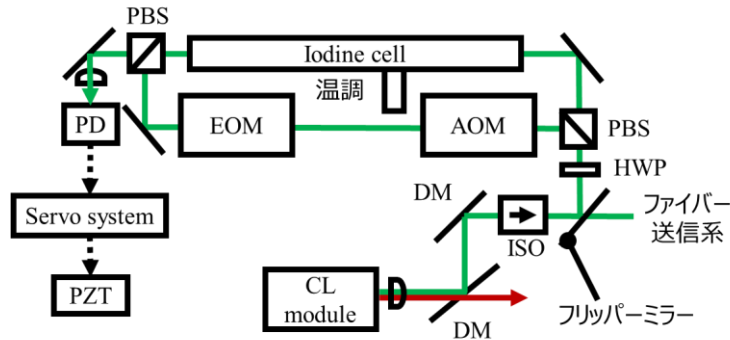


図 4.2.8 独立ヨウ素分光系の模式図。赤線は赤外光、緑線は可視光、点線は電気信号配線を示す。CL module: compact laser module, DM: Dichroic mirror, ISO: Optical isolator, HWP: Halfwave plate, PBS: Polarization beam splitter, AOM: Acousto-optic modulator, EOM: Electro-optic modulator, PD: Photodetector, PZT: Piezoelectric transducer.

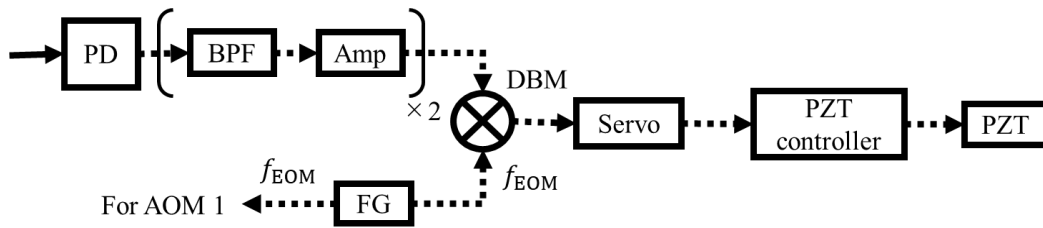


図 4.2.9 サーボシステム部の模式図。点線は電気信号配線を示す。PD: Photodetector, BPF: Bandpass filter, Amp: Amplifier, DBM: Double balanced mixer, FG: Function generator, PZT: Piezoelectric transducer.

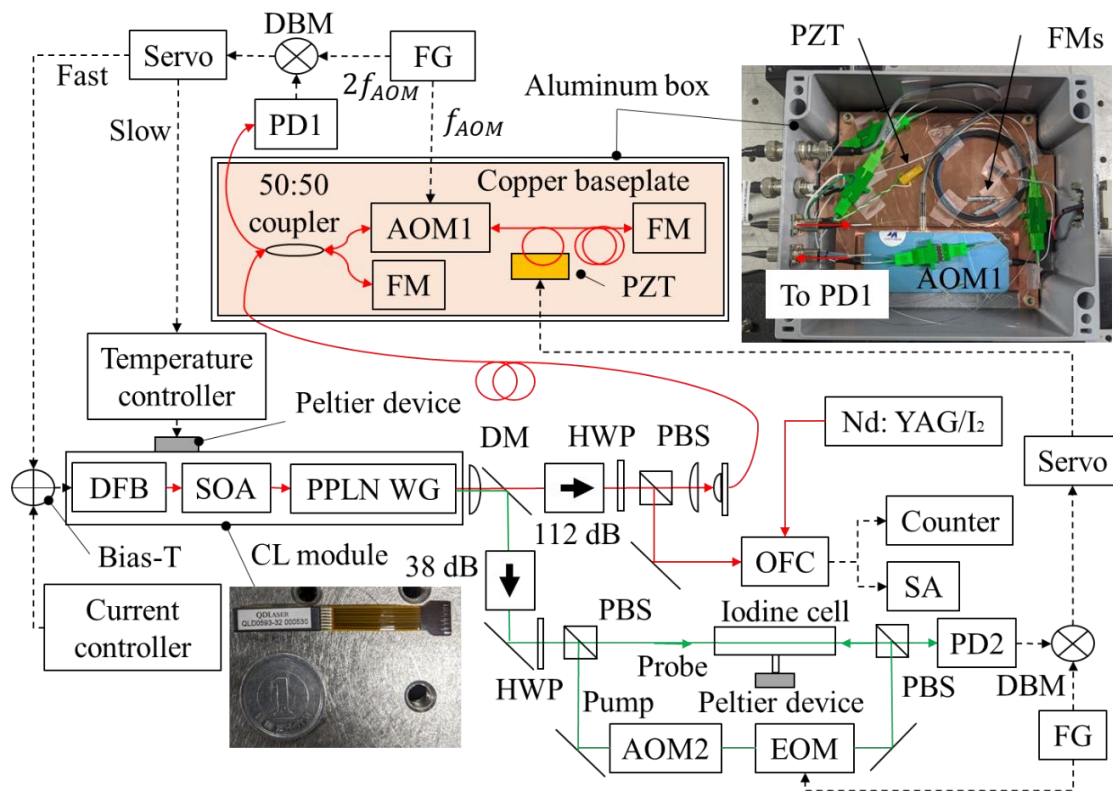


図 4.3.10 ハイブリッド制御系の全体図. 赤線は赤外光, 緑線は可視光, 点線は電気信号配線を示す. DFB: Distributed-feedback diode laser, SOA: Semiconductor optical amplifier, PPLN WG: Periodically poled lithium niobate waveguide, CL module: Compact laser module, DM: Dichroic mirror, ISO: Optical isolator, HWP: Half-wave plate, PBS: Polarization beam splitter, AOM: Acousto-optical modulator, FM: Faraday rotator mirror, PZT: Piezoelectric transducer, PD: Photodetector, FG: Function generator, DBM: Double-balanced mixer, EOM: Electro-optical modulator, Nd:YAG/I₂: Iodine-stabilized Nd:YAG laser, OFC: Optical frequency comb, SA: Spectrum analyzer.

ヨウ素分子の MTS 信号の一例として, P(35)32-0 の a_2 成分を図 4.2.11 に示す. SNR は 38, 吸収線幅は 670 kHz である. この測定で使用した LPF のカットオフ周波数は 300 Hz である. 狭線幅化の前後で, 吸収線幅が約一桁改善されている. MTS 信号から予測される短期周波数安定度は 1.6×10^{-11} at 10ms である. さらにこの分光システムを用いて, P(35)32-0 の a_1 - a_{21} の全ての超微細構造成分が観測された. 以降の測定では, 最も SNR の大きな a_2 成分を利用する.

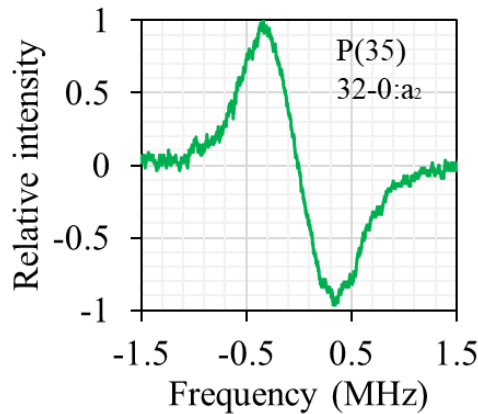


図 4.2.11 狭線幅化 CL module を用いて観測されたヨウ素分子のドップラーフリー分光

図 4.2.12 にハイブリッド制御された CL module と OFC のビート信号をゼロデッドタイム周波数カウンターで測定した。ゲートタイムは 10 ms であり、これは周波数カウンターの測定限界である。連続して 2000 s 以上の長期制御が確認された。この結果を用いて、CL module の周波数安定度を評価した。その結果を図 4.2.13 の緑プロットに示す。短期の周波数安定度については、 9.8×10^{-12} at 10 ms であり、白色周波数雑音特性を示す $1/\sqrt{\tau}$ 直線に従い平均時間増加にともない改善していく。さらにこの周波数安定度は、図 4.3.11 に示された吸収線の吸収線幅と SNR から算出された予想値とおおむね一致しており、周波数安定度が分光系の特性で決定されていることは明らかである。中期の周波数安定度については、 $10 \text{ s} < \tau < 100 \text{ s}$ の領域では $1/\sqrt{\tau}$ 則から外れ、さらに $100 \text{ s} < \tau < 200 \text{ s}$ の領域では周波数安定度が悪化する様子が見て取れる。分光系内でこの時間領域の不要な雑音がヨウ素分光系内に存在することを示している。この原因としては、Pump 光および Probe 光のパワー安定性や分光系内の RAM が考えられる。本研究の主眼（すなわちハイブリッド制御の実現）から外れるため、さらなる分光系の性能改善は実施しなかった。さらに $400 \text{ s} < \tau$ の領域では、周波数安定度が再び改善し始める。これは、積算時間を長くすることで中期の周波数変動が平均化されることに起因する。さらに積算時間増加による周波数安定度の改善は、ハイブリッド制御がヨウ素分光系のフリッカー雑音限界に到達していないことを示している。積算時間を延ばすことで、さらなる周波数安定度向上が見込まれる。参考までに、フリーランの CL module のアラン標準偏差を黒線で、狭線幅制御時の CL module のアラン標準偏差を赤線で示す。線幅が改善されて短期の周波数安定度が 2 桁改善されている。一方で、いずれの測定結果においても環境変動、特に温度変動に由来する周波数ドリフトの影響で長期の周波数安定度が悪化する様子も確認されている。また、第 3 章の測定結果を青プロットで、本研究における測定限界である Er ファイバーコムの周波数安定度の想定値を黒破線で示す。

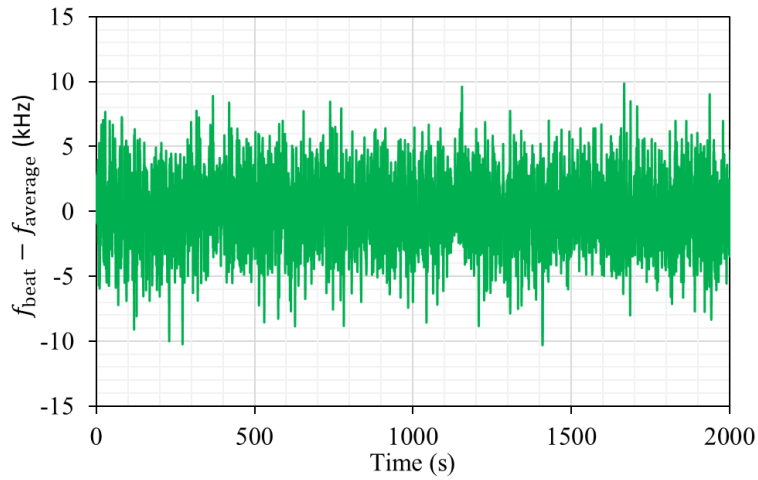


図 4.2.12 ハイブリッド制御された CL module と光周波数コムとのビート信号の時間変動

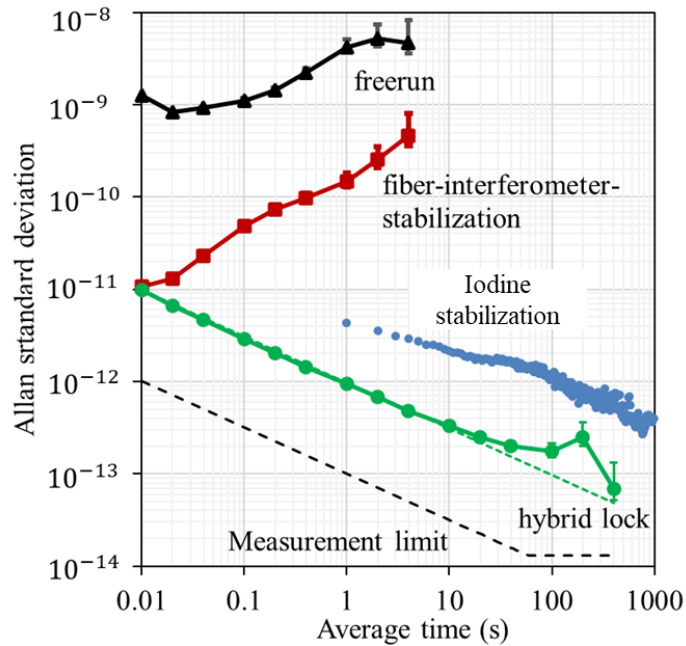


図 4.2.13 フリーラン(黒), 狭線幅化 (赤) , およびハイブリッド制御時の CL module のアラン標準偏差. 青プロットは狭線幅化を施していないヨウ素安定化の場合 (第 3 章の結果) を示す.

4.3.3 ハイブリッド制御された超小型半導体レーザーの絶対周波数計測

つぎに、ハイブリッド制御された CL module の絶対周波数の再現性を確認した。測定では 2 日間にわたり 13 回の relock を繰り返し、各回で 1000 秒以上の測定を実施した。ゲート時間は 0.01 秒である。図 4.2.14 には、ハイブリッド制御された CL module の光周波数の 13 回測定の平均値と、その各回における CL module の絶対周波数との差分と、測定不確かさを示している。測定不確かさは、測定データから計算されたうち最も長い積算時間におけるアラン標準偏差を利用している。この再現性試験において、ハイブリッド制御された CL module の光周波数の平均値は 564 011 175 767.2 (0.7) kHz

と計算された。以前われわれの研究グループにおいて、異なる光源(1-kHz 級 ECDL)と分光系で測定された R(35)32-0 a₂ の絶対周波数は 564 011 175 773 (6) kHz [112]であり、その差は約 5 kHz である。ヨウ素分子の吸収線はセル内不純物の影響で 5 kHz の不確かさが報告されている[100]ことを踏まえ、2つの測定結果は不確かさの範囲内で一致しているとみなすことが可能である。

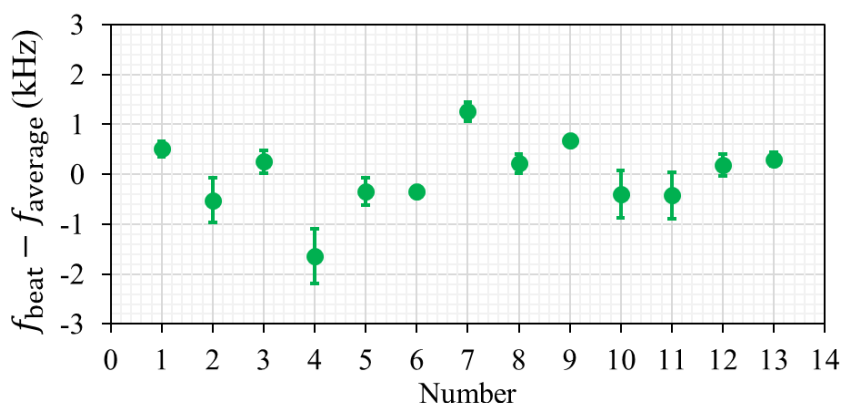


図 4.2.14 ハイブリッドロックの再現性確認試験結果

4.4 まとめ

12 m のマイケルソンファイバー干渉計とヨウ素分子のドップラーフリー分光を併用した、CL module のハイブリッド制御を実現した。従来のハイブリッド制御と異なり、(1)吸収線の自然幅よりも線幅が大きいレーザーに対して狭線幅制御を適用し、(2)追加の光変調器を利用せずに、取り付けられたアクチュエータを介して周波数弁別器を直接ヨウ素安定化する構成により、良好なドップラー分光特性(吸収線幅: 670 kHz, SNR: 38)と周波数安定度(6.8×10^{-14})を獲得した。狭線幅化時の CL module の線幅は 6 kHz に到達しており、ハイブリッド制御 CL module の絶対周波数計測も先行研究の結果と不確かさ内で一致し、高い再現性が確認された。このハイブリッド制御システムは精密分光のみならず、周波数安定性と高コヒーレンスが要求されるセンシングや光通信への適応が可能であると期待される。

本研究に関する研究発表

Junia Nomura, Daisuke Akamatsu, and Feng-Lei Hong, "Linewidth narrowing and frequency stabilization of a coin-sized laser module," Opt. Continuum 2, 2552-2560 (2023)

第 5 章 小型な Yb 原子レーザー冷却装置の開発

イッテルビウム原子(Yb)は,

- (1). 2 つの非常に狭線幅の異重項間遷移を持つ,
- (2). 基底状態の電子配置が一重項(最外殻電子が 2 電子)であり, 基底状態原子は磁場の影響を受けない,
- (3). 7 種類の豊富な安定同位体が存在する,
- (4). 遷移波長が可視から近赤外領域に分布している,

などの特徴を持つユニークな原子である. ゆえに, 光格子時計[12, 16 - 21]や量子シミュレーション[29]を始めとした様々な基礎物理の研究に利用される. 加えて近年では, 光格子時計による時空間センシングや, 自己位置を推定するために必要な基本情報である「加速度」や「角速度」を高精度に検出するための量子慣性センサーの実現[31]など, 冷却 Yb 原子に関する研究は応用研究の分野へも広がりを見せている. いずれの応用研究についても, 実用化の際にはレーザー冷却装置を移動体へ搭載する必要があり, 小型化や低消費電力化, 軽量化, 熱管理の容易さ, 長寿命化(以降ではこれらを総称して小型化と称する)がシステム全体へ要求される. Yb 原子のレーザー冷却において, 小型化を困難にする要因として, 例えば以下の 3 点を挙げる. (1)は光源部の課題, (2)と(3)は真空装置部の課題である.

- (1). レーザー冷却のために, 高出力の紫外周波数安定化レーザーが必要である.
- (2). 蒸気圧がアルカリ金属に対して低く, 気相原子ビームを獲得するために 450 °C程度まで加熱する必要がある. 実験時の熱管理の手法として, 水を利用した冷却(水冷)を利用することが多い. 原子ビーム源が大型な場合, スイッチを入れてから原子ビームを獲得するまでに 1 時間程度のウォームアップが必要な場合も多い.
- (3). MOTの実現に必要な磁場勾配がアルカリ金属原子に比べて大きく, コイルの消費電力が大きいため, MOT コイルに対しても水冷化が必要である.

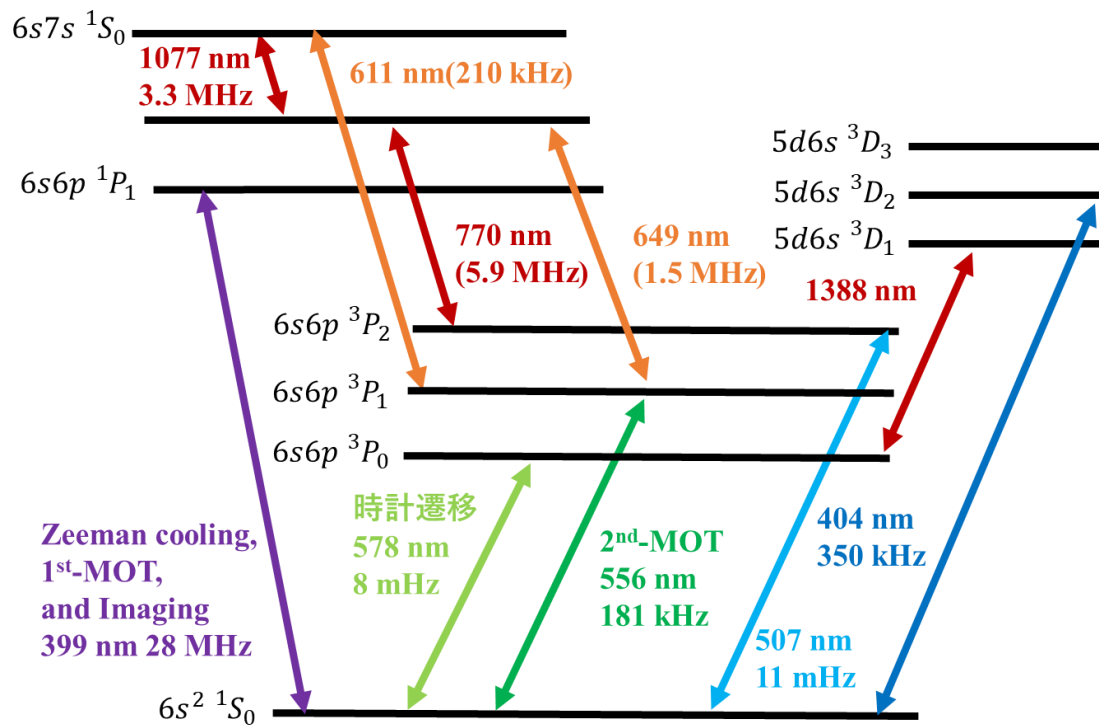


図 5.1.1. Yb 原子のエネルギー準位図

表 5.1.1 Yb 原子の同位体存在比と核スピン[113]

同位体	同位体比	核スピン
^{168}Yb	0.123(3)	0
^{170}Yb	2.982(39)	0
^{171}Yb	14.09(14)	1/2
^{172}Yb	21.68(13)	0
^{173}Yb	16.103(63)	5/2
^{174}Yb	32.026(80)	0
^{176}Yb	12.996(83)	0

Yb 原子の $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移(波長: 399 nm, 自然幅: 29 MHz)は, 極低温 Yb 原子集団を生成するための 1 次冷却に利用される許容光学遷移である. この遷移は自然幅が大きいため, 効率よくレーザー冷却を行うことが可能である.

同遷移のドップラーフリー分光と冷却用の周波数安定化レーザー開発の先行研究では, 主に 3 種類のレーザーシステムが利用されてきた. 1 つ目は, 波長 798 nm の Ti:Sapphire レーザーと SHG 光学系を利用したレーザーシステムである[114]. Ti:Sapphire レーザーは周波数掃引範囲が広く出力パワーも大きい, Ti:Sapphire レーザーが大型であり, 更に SHG 光学系が必要になるので実験系が大型化する欠点がある. 2 つ目は, 波長 798 nm の ECDL と SHG 結晶を利用したレーザーシステムである. 一般的な ECDL の出力パワーは 100 mW 以下であり, 分光やレーザー冷却に必要なパワーを得るために,

空間結合型のテーパアンプを用いることが必須となる [115]. 更に SHG 光学系が必要になるので, やはり実験系が複雑になる欠点がある. 3 つ目は波長 399 nm のレーザー光を直接出射する ECDL であり, ECDL からは典型的に 20 mW 程度の実出力パワーが得られるため, Yb 原子分光や周波数安定化に必要なパワーを直接出力可能である[116]. 一方で波長 798 nm や 399 nm の ECDL はレーザー冷却に必要な光パワーが得られないため, 注入同期による光増幅が必要となる[117, 118].

先行研究で用いられた分光手法は主に 2 種類である. 1 つ目は, ホローカソードランプ(Hollow-cathode lamp : HCL)中の Yb 原子を用いたドップラーフリー分光である[111, 112]. HCL は小型かつ安価であり, 放電により容易に高い数密度の Yb 原子を得られるという利点がある. 一方で, HCL に封入された他原子分子との衝突による周波数シフトが引き起こされる欠点がある. この衝突効果による周波数シフトは 10 MHz 程度と報告されている[112]. 2 つ目は, 真空装置内で Yb 原子ビームに対して垂直にレーザーを照射する蛍光分光を観測する分光法である[111, 116]. この分光法は原子オープンや真空装置等を必要とするため, 装置が大型かつ高価になると欠点がある一方で, 真空中であるため衝突による周波数シフトを避けられる利点がある.

表 5.1.2 $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移の性質([113]より算出)

	記号	$^1S_0 - ^1P_1$
遷移波長	λ	398.9 nm
緩和レート	γ	$18 \times 10^7 / \text{s}$
寿命	$\tau = 1/\gamma$	5.6 ns
自然幅	$\Gamma = \gamma/2\pi$	29 MHz
ドップラー温度	$T_D = h\kappa/2k_B$	690 μK
Recoil 限界温度	$T_r = (h/k)^2/mk_B$	0.71 μK
飽和強度	$I_{\text{sat}} = \pi h c / 3 \lambda \tau^3$	58 mW/cm ²

Yb 原子の蒸気圧は室温では非常に低いため($\sim 10^{-21}$ Torr), 原子源を封入した真空チャンバー部分(原子オープンと呼ばれる)周囲にバンドヒーターを巻き付けて 700 K 程度まで加熱する事で蒸気圧を高め, 固体 Yb を昇華させて気相 Yb 原子ビームを獲得し, 実験真空層内に Yb 原子集団を供給する. 一般的な原子オープンでは約 100 W 程度の電力を消費するが, この消費電力の大部分は金属原子ではなく周囲の空気を加熱することに利用される. このような消費電力に起因する発熱の問題を解決するため, 多くの Yb 原子オープンには水冷機構が施されることが多い. 近年では, 真空装置内にヒーターを導入することでチャンバー周囲大気中での不必要な熱流出を阻止し, 大幅に消費電力を低減する(10 W 級)技術が報告されている[35]. また, 原子ビームを適切にコリメートするためにはマイクロキャピラリーや差動ポンプチューブが必要であり, しばしば系が複雑化する. このような設計や管理の煩雑さを避けるために, ディスペンサーを原子線源として利用した研究も増加しつつある. ストロンチウム(Sr)原子を含んだディスペンサーを用いた真空装置内での蛍光分光が実現され, 原子線のフラックス量が見積もられている[120]. また, Yb 原子を含んだディスペンサーを用いた BEC の実現が報告されている[121, 122]. BEC の実現のため, ディスペンサーからの原子線源を 180 mW のレーザー光を用いて 2D MOT により捕捉し, さらに別のチャンバー内へ輸送したのちに 3 D MOT と BEC を達成している. 原子ビーム

を減速させてから MOT を達成する通常的手法と比較して、このような 2 段階の MOT より高出力な光パワーが必要となり、小型化を制限する要因となる。さらにディスペンサーや射出された原子ビームの詳細な性能評価は報告されていない。

真空装置の小型化や簡便化の方向としては、原子ビームの効率的な冷却手段として利用される Zeeman Slower を廃止し、レーザーを原子ビームに対向入射するのみでビームをわずかに減速させる研究[123]や、そもそもビーム減速を実施しない研究例[37]もあることに触れておく。

今回我々は、可搬型 Yb レーザー冷却装置の可搬化にむけ、冷却用レーザーシステムとして、Yb HCL 内の Yb 原子のドップラーフリー分光信号を用いた周波数安定化波長 399 nm 直接射出型 ECDL を開発した。さらに注入同期法[117, 118]により、レーザー冷却に十分な冷却用ビーム出力を獲得した。また、原子サンプルを含んだディスペンサー[124]を原子線源として採用し、空冷動作可能に設計された MOT コイルを作成し、従来に比べて小型かつ簡便な空冷式の真空装置を設計・構築した。さらにこれらの装置を組み合わせてレーザー冷却装置を開発し、 ^{174}Yb の磁気光学トラップを達成した。ディスペンサーからの原子ビームのフラックスと MOT 内原子数を測定し、レーザー冷却装置としての性能を収率として評価した。

5.1 Hollow cathode lamp を用いた 399 nm 安定化レーザーの開発

原子レーザー冷却では、自然幅の大きな冷却遷移(今回では波長 399 nm の $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移)に対してわずかに周波数が離調されたレーザービームを原子へ照射する必要がある。そこで、波長 399 nm の光を直接射出する Littrow 型 ECDL を用いた HCL 内 Yb 原子の $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移のドップラーフリー分光と、同遷移に周波数安定化された、従来に比べコンパクトな周波数安定化レーザーの開発を実施した。

5.1.1 Modulation transfer 分光系の構成

周波数安定化レーザーの実験装置の模式図を図 5.1.1 に示す。種光源である ECDL(周波数: f_L) からの出射光は楕円形であるため、アナモルフィックプリズムペアでビーム整形し、空間型アイソレーターに入射する。アイソレーターの出射光を HWP1 と PBS1 で 2 つに分離する。PBS1 の反射光は HCL 内の Yb 原子の分光及び周波数安定化に利用する。PBS1 の透過光は HWP3 と PBS4 で再び 2 つに分離されている。反射光を注入同期の種光源として、透過光を原子ビームの特性測定のプローブ光として利用する。これらの詳細は後述する。

HWP2 と PBS2 を用いてレーザービームを 2 方向に分け、反射光をポンプ光、透過光をプローブ光として利用する。ポンプ光とプローブ光の干渉を避けるため、AOM1 を用いてポンプ光の周波数を -130 MHz(-1 次光に相当)シフトさせている。また、ポンプ光へ位相変調を与えるために利用している EOM の変調周波数は 21.4 MHz である。ポンプ光とプローブ光は HCL 内で、重ね合わせたうえで対向させ、飽和吸収分光を行う。Yb 原子を非線形効果の媒質とした四光波混合によって、ポンプ光のサイドバンド(位相変調)をプローブ光へ移行させる。PBS3 を用いて取り出されたプローブ光は PD で受光し、その信号を基にレーザーの周波数安定化を行う。エラー信号は DAQ を用いて記録する。また、エラー信号

から生成されたフィードバック信号はレーザーの共振器長を制御する電流あるいはピエゾアクチュエーターのドライバーへ送られる。理論の項で述べたようにポンプ光を f_{AOM} だけシフトさせた場合は、ポンプ光(f_{pump})とプローブ光(f_{probe})の周波数は一致しない。原子の共鳴周波数 f_{AOM} と安定化レーザーの周波数 f_L の関係は、

$$f_{atom} = \frac{f_{pump} + f_{probe}}{2} = f_L + \frac{f_{AOM}}{2} \quad (5.1.1)$$

$$f_L = f_{atom} + 65 \text{ MHz} \quad (5.1.2)$$

となる。

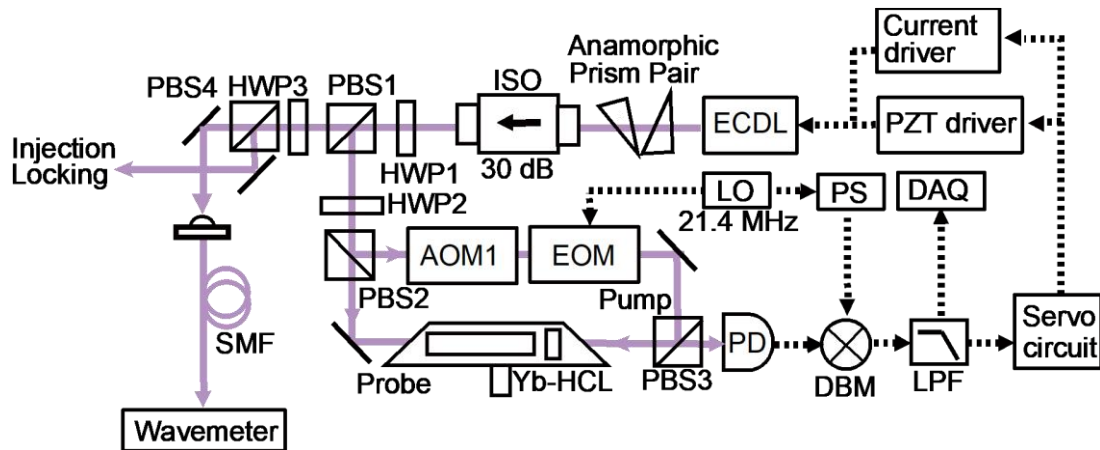


図 5.1.1. 作成した Modulation transfer 分光系の模式図。紫線は紫外光，点線は電気信号配線を示す。ECDL: External cavity diode laser, ISO: Optical isolator, HWP: Half-wave plate, PBS: Polarization beam splitter, SMF: Single mode fiber, AOM: Acousto-optic modulator, EOM: Electro-optic modulator, Yb-HCL: Ytterbium hollow-cathode lamp, PD: Photodetector, LO: Local oscillator, PS: Phase shifter, DBM: Double balanced mixer, LPF: Low-pass filter, DAQ: Data acquisition system.

5.1.2 Modulation transfer 信号の観測と周波数安定化

PZT 駆動電圧に変調を加えて ECDL の周波数掃引を行い、Modulation transfer 信号を観測した。典型的な Modulation transfer 信号を図に示すとともに、測定実験条件を表 5.1.2 に示す。

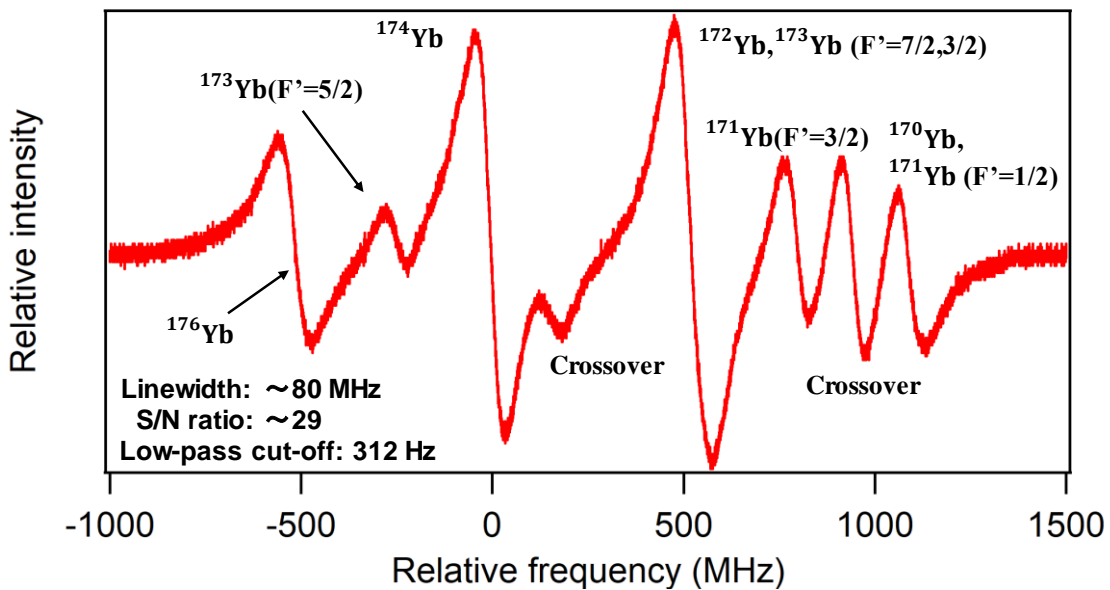


図 5.1.2 $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移の Modulation transfer 信号

表 5.1.1 Modulation transfer 分光の実験条件の典型値

Pump 光出力	2.9 mW
Probe 光出力	0.34 μ W
EOM 変調周波数	21.4 MHz
HCL 電圧	175 V

図に示すように、 ^{168}Yb を除く全同位体の $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移の観測に成功した。ただし、得られた複数のドップラーフリー信号と各同位体との対応付けは、同遷移の絶対周波数計測の先行研究[114]を参照して実施した。 ^{174}Yb の吸収線幅は約 80 MHz、SNR は 29 である。 ^{172}Yb と $^{173}\text{Yb}(F' = 7/2, 3/2)$ 、 ^{170}Yb と $^{171}\text{Yb}(F' = 1/2)$ の吸収線幅が重なって観測された。原因としては各信号の吸収線幅が、同位体シフトに比べて大きいためである。また、 ^{168}Yb の Modulation transfer 信号が観測されなかったのは、この同位体の存在比が極めて小さいことが原因であると考えられる。実際に Yb-HCL を用いたドップラーフリー分光の先行研究[115, 116]においても、 ^{168}Yb の吸収信号は確認されていない。

^{174}Yb 吸収線から見積もられる周波数安定度は 2×10^{-10} (積算時間 1 秒) であり、周波数数揺らぎに換算すると 150 kHz である。周波数安定化の持続時間は、典型的には 24 時間以上であった。遷移の自然幅が MHz オーダーであることを踏まえると、周波数安定度・持続時間共にレーザー冷却の実験には十分であると判断される。さらに、上記の周波数安定度を先行研究[115, 116]と比較する。HCL を用いた周波数安定化レーザーの周波数安定度は、典型的には $10^{-9} \sim 10^{-11}$ 程度 (積算時間 1 秒) である。また、波長 399 nm 周波数安定化レーザー (周波数安定度: 1.1×10^{-11} (積算時間 1 秒)) を用いて HCL 内 Yb 原子の絶対周波数計測が報告されている[115]。この研究結果と比較して、今回の周波数安定化レーザーの安定度は一桁悪い。これは、先行研究と比較して分光計測に利用

可能な光パワーが低く、十分な信号 SNR を稼げないことが原因と考えられる。そこで ECDL のビームを分光系に全て送信し、再度 Modulation transfer 分光を実施した。観測されたスペクトルを図 5.1.3 に、そのときの実験条件を表 5.1.2 に示す。観測された ^{174}Yb のドップラーフリー信号について、吸収線幅が 97 MHz で SN は 190 であった。ここから見積もられる周波数安定度は 1.5×10^{-11} (積算時間 1 秒)であり、先行研究[115]と同程度である。ただし、この実験条件下では注入同期を達成することが出来ない点に注意する。

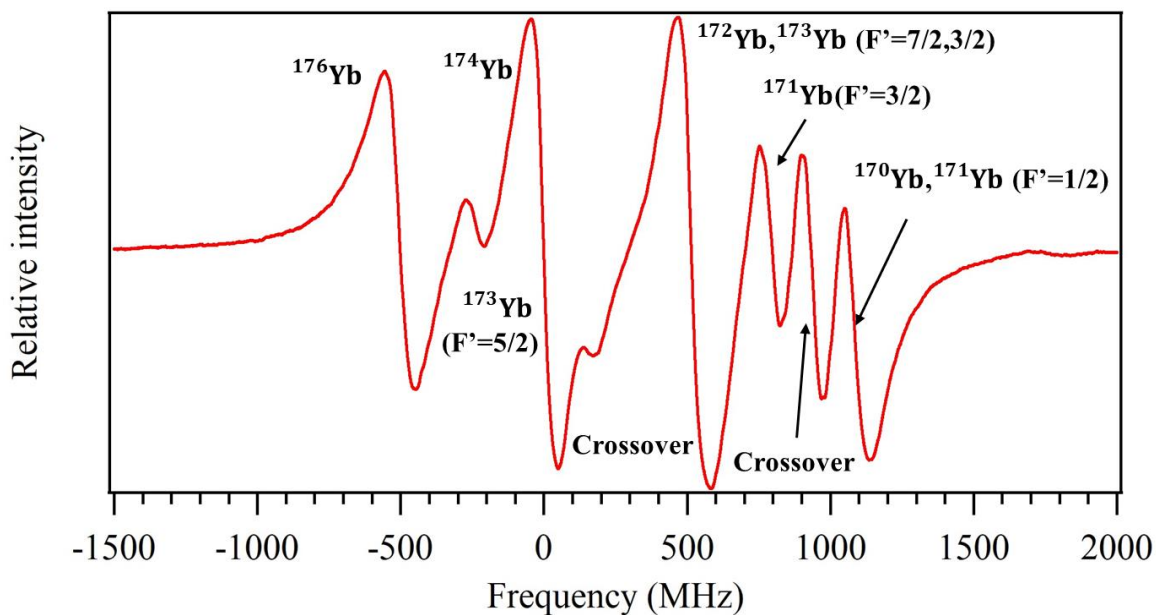


図 5.1.3 $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移の Modulation transfer 信号

表 5.1.2 Modulation transfer 分光の実験条件

Pump 光出力	5.1 mW
Probe 光出力	0.7 μW
EOM 変調周波数	21.4 MHz
HCL 電圧	180 V

5.2 注入同期を用いた周波数安定化レーザーの光増幅とトラップ光ビームの

開発

イッテルビウム原子の 1st-MOT に向けて、5.1 にて開発した波長 399 nm 安定化レーザーの光増幅が必要である。そこで今回我々は、先行研究[117, 118]と同様に、non-AR コーティングの高出力縦マルチモード LD を Slave Laser とした注入同期法による高出力化を試みる。

5.2.1 冷却用レーザーシステムの構築

冷却用レーザーシステムの模式図を図 5.2.1 に示す。周波数安定化レーザーの光の一部を PBS1 で取り出したのちに、HWP3 と PBS4 でさらにビームを 2 分岐する。一方は後述する原子ビームのドップラーフリー分光に利用し、もう一方の反射光を注入同期の種光として利用する。種光は PBS5 で反射され、HWP4 とファラデーローテーターを通過した後、空間モードがおよそ一致した形でスレーブレーザー (NICHIA: NDV4B16)へ入射される。スレーブレーザーは低温保持され、結露防止のために筐体は窒素充填されている[117, 118]。スレーブレーザーの実装については 5.2.3 で詳細を述べる。スレーブレーザーの発振波長のひとつとマスターレーザーの波長が十分近づくると注入同期が起こり、スレーブレーザーがシングルモード発振する。スレーブレーザーの出射光は HWP4 とファラデーローテーターを通過し、PBS5 を用いて取り出される。そのビームはシリンドリカルレンズペアを用いて遠視野で円形になるように整形されたのち、HWP5 と PBS6, HWP6 と PBS7 で 3 本に分離される。PBS7 の透過光は、スレーブレーザーの発振モードを確認するために Fabry-Perot 共振器に送られる。PBS6 の反射光は MOT 用ビームに利用される。反射光を AOM2 によって -80 MHz 周波数シフトさせた後に、レンズペアを用いてビーム径を約 9 mm に拡大する。拡大したビームは HWP7 と PBS8, HWP8 と PBS9, を用いて 3 つに分離し、真空装置の MOT チャンバー部へ入射する。

一方で PBS7 の反射光は原子ビームへ対向して入射する減速用ビーム (Longitudinal cooling beam) に用いる。反射光を AOM3 によって -200 MHz シフトさせた後に、レンズペアを用いてビーム径を約 3 mm に拡大する。拡大したビームは HWP9 を通過した後、原子ビームに対して対向して入射させる。

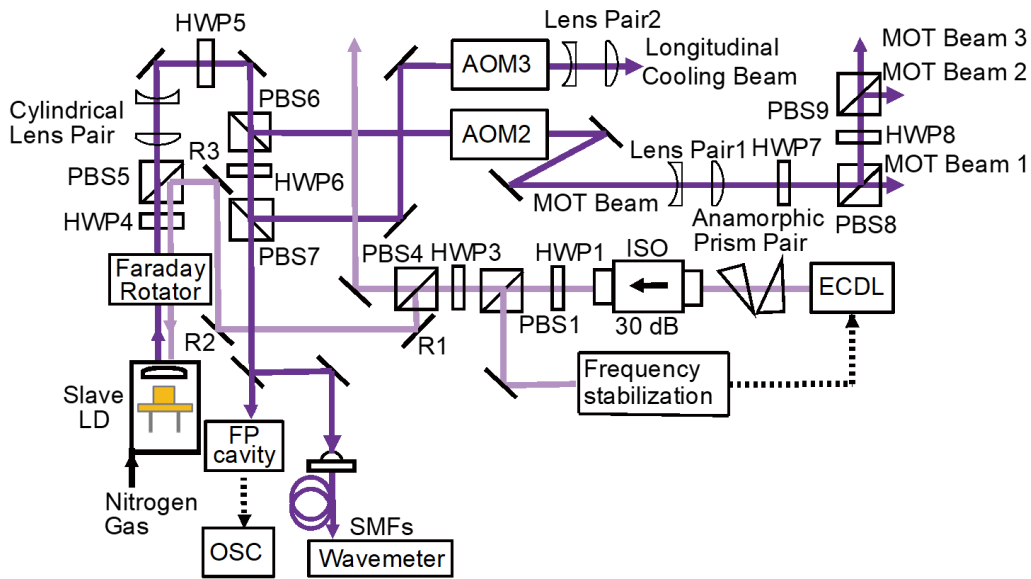


図 5.2.1 冷却用レーザーシステムの模式図. 薄紫線は紫外光(ECDL 出力), 濃紫線は紫外光(Slave LD 出力), 点線は電気信号配線を示す. ECDL: External cavity diode laser, ISO: Optical isolator, HWP: Half-wave plate, PBS: Polarization beam splitter, SMF: Single mode fiber, LD: Laser diode, AOM: Acousto-optic modulator, FP cavity: Fabry Perot cavity, OSC: Oscilloscope.

5.2.2 Slave レーザーの実装

本研究では高出力マルチモード LD(NICHIA: NDV4B16)を slave LD として使用する. LD のピーク波長は 401 nm, パワーは 300 mW($I=207$ mA, $T=25^{\circ}\text{C}$)であり, 端面に AR コーティングは施されていない. Slave LD を高いパワーで使用するためには駆動電流値を高くする必要がある. 今回使用する電流ドライバーは最大 200 mA 出力である. 一般的には LD の電流値が上がると発振波長が高くなる. 今回, マスターレーザーは Yb の共鳴周波数($\lambda\sim 398.9$ nm)で安定化されているため, slave LD の発振波長を低くする必要がある. そこで先行研究と同様に, LD の駆動温度を 0°C 以下に下げて低温保持した状態で実験を行う. 通常大気下では低温になると結露が発生し, これは LD が壊れる原因になる. そこで結露の発生を防ぐために, LD 筐体内を窒素で充填したうえで筐体を密閉し, 温度を下げていく必要がある. 具体的な作業手順を以下に示す.

- (1). Slave LD 筐体の上部と側面部, 底面に穴をあけ, 側面は 1/8-inch タップでねじ穴を切る. その後, を取り付ける.
- (2). Slave LD の台座に放熱用ヒートシンクを取り付ける. 後述するように, 作成した slave laser を運用する上では放熱が非常に重要である. そこで, 前面以外の全ての位置になるべく放熱度の高いヒートシンクを取り付けた.
- (3). LD の配線を行う. LD, ペルチエ素子, サーミスタの配線は一か所(9pin の D-sub)にまとめている.
- (4). LD を無酸素銅製の治具にはめ込み, ネジで固定する. このネジは金属ネジを使用する. 治具の下にペルチエ素子を接着する. 接着に使用したのは放熱用シリコンである. 当初ペルチエ素子を入れ替える可能性があり, 固定接着性シリコンを使用しなかった.

- (5). LD の温度を測るためにサーミスタを LD 治具に取り付けた。サーミスタが治具から外れることを防ぐため、接着には固定用シリコン接着剤を使用した。ペルチェ素子とサーミスタの距離が離れすぎると温度制御が上手くいかなることがある。そこでサーミスタはペルチェ素子の近くに張り付けている。そのため、LD の温度とサーミスタで計測している温度はわずかに異なることに注意する。
- (6). Slave LD 治具と slave LD 台座を接着する。ペルチェ素子の背面と台座を接着する際にも放熱用シリコンを塗っている。また、台座側に伝搬したペルチェ素子の排熱が LD 筐体に戻ることを防ぐために、筐体と台座の間には断熱用ピーク樹脂台座を挟んでいる。また、LD 治具に同様の排熱が戻ることを防ぐために、固定用ネジは全てピーク樹脂製である。
- (7). LD の固定を緩め、固定角度を調整する。Master レーザーのビームは長軸方向が定盤に対して水平なので、Slave LD のビームもそれに合わせる。
- (8). LD 筐体の出射口にウェッジ窓を取り付ける。接着には、産総研からお借りした紫外硬化樹脂を利用した。接着部分から窒素が漏れないように、樹脂をしっかり塗る必要がある。
- (9). LD 固定治具の上部に結露を確認するためのインジケータを付ける。
- (10). 筐体とピーク樹脂台座、slaveLD 台座の隙間から窒素が抜けることを防ぐため、シリコンで隙間を埋め、更にパラフィルムを何重にも巻きつけた。ここまでで実装された Slave レーザーの写真と図面を図 5.2.3 に示す。
- (11). LD 筐体と蓋をわずかにずらして隙間を作り、窒素を流し込む。ある程度窒素が入ったらすぐに蓋をする。
- (12). 蓋をしたら直ちに LD 温度を下げる。今回は -7°C まで温度を下げた。この際も窒素を流し続けることが好ましい。

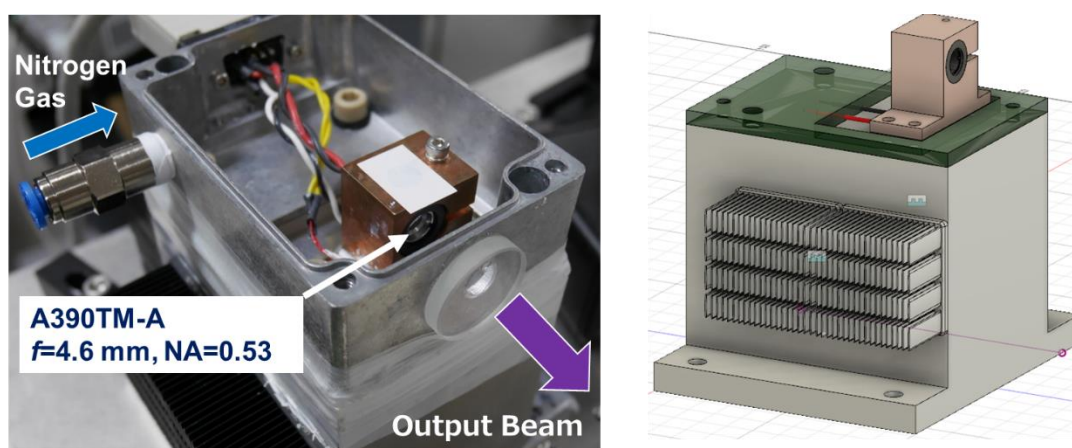


図 5.2.2 SlaveLD の写真(左)と筐体内部の模式図(右)。右図の緑はピーク樹脂製の断熱板。

5.2.3 注入同期を用いた高出力化

Master レーザーを Slave LD にカップリングした際の、Slave LD の PI カーブを図 5.2.3 に示す。LD の駆動温度は -7°C であり、Master レーザー光は約 5 mW で、Master レーザーは ^{174}Yb の吸収線に周

波数安定化されている。測定の際には電流値を 170 mA 程度に設定してから徐々に値を下げていった。電流値を変化させていった際の、Slave レーザーの縦モードは FP 共振器でモニタリングされている。図 5.2.4 に、slave レーザーの縦モードをファブリーペロー共振器でモニタリングした信号を示す。(i)は注入同期が外れた信号、(ii)は注入同期が完全にかかり、Slave LD が単一モード発振した際の信号、(iii)は注入同期がかかり始め、Slave LD モードの大部分が引き込まれている時の信号をそれぞれ示す。縦モードのモニタリングに使用した FP 共振器の FSR は 1.5 GHz 間隔である。Injection Locking がかかる電流値は赤線で示された領域(Single mode area)である。各領域の電流幅は 0.5 mA であり、領域毎の間隔は約 10 mA である。電流値を 170 mA 以上にすると LD の発熱が大きくなり、ペルチェ素子による温度制御が追いつかなくなり制御が暴走する。そのため、170 mA 以上では注入同期が達成できなかった。

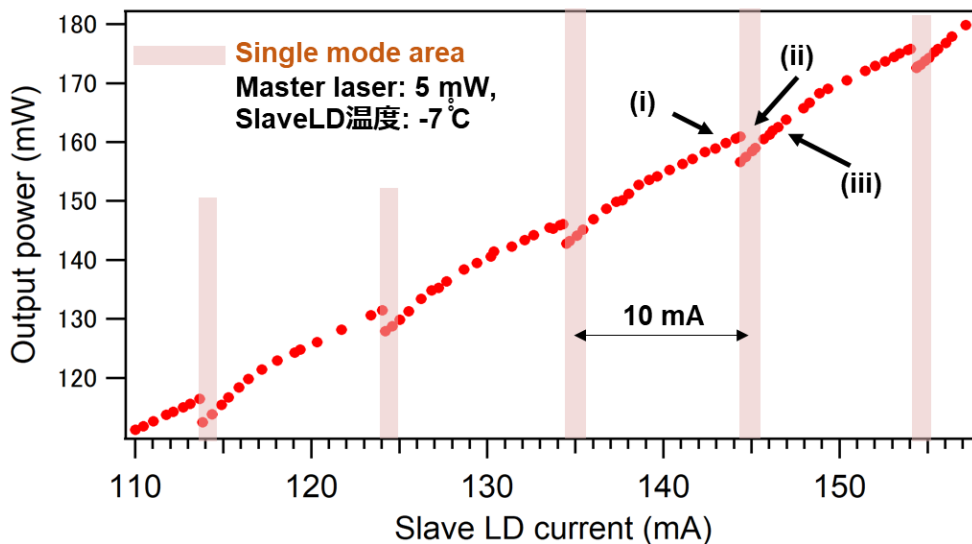


図 5.2.3 Master レーザー光をカップリングさせた際の Slave LD(駆動温度は -7°C)の PI カーブを示す。Slave LD に入射したマスターレーザーは 5 mW で、周波数安定化されている。

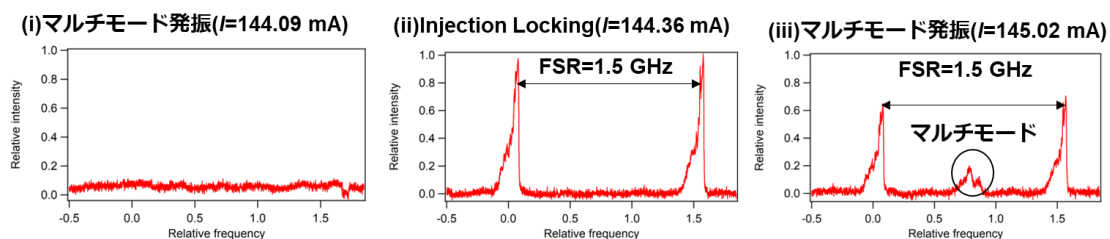


図 5.2.4 Master レーザー光をカップリングさせた上で、Slave LD 駆動電流値を変化させた際の、slave レーザーの縦モードをファブリーペロー共振器でモニタリングした信号を示す。(i) 注入同期が外れた信号。(ii) 注入同期が完全にかかり、Slave LD が単一モード発振した際の信号。(iii) 注入同期がかかり始め、Slave LD モードの大部分が引き込まれている時の信号。縦モードのモニタリングに使用した FP 共振器の FSR は 1.5 GHz である。

PI カーブのヒステリシスな振る舞いについて

注入同期を最適化する過程において、Slave レーザーの駆動電流値を下げることでしか注入同期がかからない現象が発生した。この理由について考察する。一般的に電流値を下げていくと、LD の共振器長は短くなる。徐々に電流値を下げていき、共振器(LD)の共鳴周波数が注入光と一致すると、注入光が LD 内部で共鳴して注入同期が達成される。共鳴に伴い注入光が LD 内を往復すると、ジュール熱により共振器長が長くなる。注入同期がかかる領域では、この 2 つ(LD 駆動電流と注入光によるジュール熱)を競合させて LD の共振器長をうまく制御していることになる。その一方で、電流値を上げる際には LD の共振器長は長くなる。徐々に電流値を上げていき、共振器(LD)の共鳴周波数が注入光と一致すると、注入光が LD 内部で共鳴する。共鳴に伴い発生するジュール熱は LD 共振器長を長くする方向に働くので、注入同期をかけようと電流値を上げてても、目標の LD 共振器長に到達することができない。

注入同期時に、SlaveLD からの全体出力が低下する現象について

Slave レーザーへの入射光電場は

$$E_1 \cong E_1 \exp [i(kx - \omega_1 t)] \quad (3.4.5)$$

で表わされる。一方で、Slave LD 端面(固定端)で反射されたマスターレーザー光の光電場(E_{ref})は入射時に比べて位相が π ずれる。

$$E_{ref} \cong |E_{ref}| \exp [i(-kx - \omega_1 t + \pi)] \quad (3.4.6)$$

注入同期により単一モード化された SlaveLD 光の光電場(E_{LD})は、入射したマスターレーザー光に対して位相がそろった状態で発振する。

$$E_{LD} \cong |E_{LD}| \exp [i(-kx - \omega_1 t + 2n\pi)] \quad (3.4.6)$$

2 つの光は位相が π ずれているので打ち消し合いが起きる。

$$E_{Total} \cong |E_{LD} - E_{ref}| \exp [i(-kx - \omega_1 t)] \quad (3.4.6)$$

これが、引き込みが強くなるほど Slave LD の出力が小さくなる原因と考えられる。

注入同期の最適化(パワー増幅・持続時間増加)

当初作成した実験系においては、注入同期の持続時間は数分程度と非常に短い。注入同期が外れる原因としては大きく 3 つの要因が挙げられる。

- (1). ロックポイント付近で slave LD の駆動電流値が変化すると、注入同期が外れる。
- (2). slave LD の温度が変化すると、やはり発振波長がシフトする。マスターレーザーの波長と slave LD の最近接縦モード周波数がある周波数(ロッキングレンジ)以上離れると、インジェクションロックが外れる。
- (3). 時間経過とともに空間アライメントが崩れ、master レーザー光の slave LD へのカップリング効率が減る・あるいはカップリングが完全に外れる。これにより、注入同期が外れる。

要因(1)と(2)に対して施した対策について記述する。

まず要因(1)について、実験結果にて述べたように、注入同期は電流変化に非常に敏感である。ロックポイントよりも電流値を少し上げるとロックが甘くなりマルチモード発振が起きてしまい、少し下げるとロックが外れてしまう。そこで電流源のノイズを防ぐために、電流源外部に LPF(カットオフ周波数 2 Hz)を取

り付けた。これにより、Injection locking の持続時間が数分～数十分程度に改善された。ただし、それ以上の長期改善性は見られなかった。

次に要因(2)について、実験当初、先行研究に合わせて Slave LD の駆動温度を -7°C と設定した。Slave LD の発振縦モードのピーク波長(λ_{peak})とマスターレーザーの波長(λ_m)を比較した際に、 λ_{peak} と λ_m をなるべく近づけることで、注入同期が長時間持続する可能性がある。そこで、 $\lambda_{peak} < \lambda_m$ ($\lambda_{peak} > \lambda_m$)であれば、slave LD の温度を高くして(低くして)、 λ_{peak} を長くする(短くする)最適化を実施した。なお、研究室で保有する波長計は縦マルチモード光の波長プロファイルを観測することができなかつたため、可視分光器(Ocean optics: USB2000+)を利用した。まず、周波数安定化された Master レーザーのビームを、非球面レンズを用いて SMF ヘカップリングさせた。カップリングされた光パワーは $10\ \mu\text{W}$ (典型値)である。SMF の出射光はコリメートせずに発散させる。出射光の一部を分光器に取り込みそのスペクトルを観測した。分光器に強い光を入射すると飽和が生じて測定エラーを引き起こし、最終的には分光器の故障の原因になるので注意する。観測後、SMF 出射ポートと分光器の相対的な位置関係を固定した。これは、分光器は光の入射角度に応じて測定値が変化するためである。次に、Slave LD ビームを同一の SMF ヘカップリングさせ、SMF の出射光の一部を分光器に取り込み、そのスペクトルを観測した。 -7°C の slave LD の波長プロファイルは $\lambda_{peak} < \lambda_m$ であった。そこで、Slave LD の温度を 0.05°C 間隔で徐々に上昇させ、 λ_{peak} を長波長側にシフトさせながら、注入同期のかかり方(最高光パワーと持続時間)を観察した。最終的に、LD 温度は -3.75°C まで上昇させた。温度を上昇させた際の Injection locking の変化について、パワーと持続時間の面から述べる。

LD 温度が -3.75°C の時の、典型的な PI 曲線を図 5.2.5 に示す。 -7°C (図 5.2.3)に比べて高い電流値で LD を駆動できるようになった。LD の駆動温度条件が緩和されたため、駆動電流値を上昇させて LD の発熱量が増加しても、温調用ドライバー及びペルチェ素子のスベック範囲内で温度制御が可能になったと考えられる。現在はこの温度条件で LD を駆動しており、典型的には $200\ \text{mW}$ 程度(電流値: $193\ \text{mA}$)のパワーが得られている。改善前と同様に、注入同期のかかる電流領域が $10\ \text{mA}$ 間隔で存在する。一方で先行研究[113]と異なり、ある特定の電流値領域($140\sim 160\ \text{mA}$)では注入同期がかからない事象が発生しており、その原因は不明である。

現状では、Slave LD のパワーは

- (1). 電流ドライバーの最大駆動電流値($200\ \text{mA}$)
 - (2). 温調ドライバーがペルチェ素子へ流せる電流値($2.07\ \text{A}$)とペルチェ素子の最大許容電流($2.1\ \text{A}$)
- で制限されている。(1)については大電流用コントローラーに交換すればよい。Slave LD は、 $350\ \text{mA}$ まで電流を印加することが可能である。(2)については、大電流を流せる温調ドライバー及びペルチェ素子を利用するか、デュアル型のペルチェ素子を利用することで改善が見込まれる。

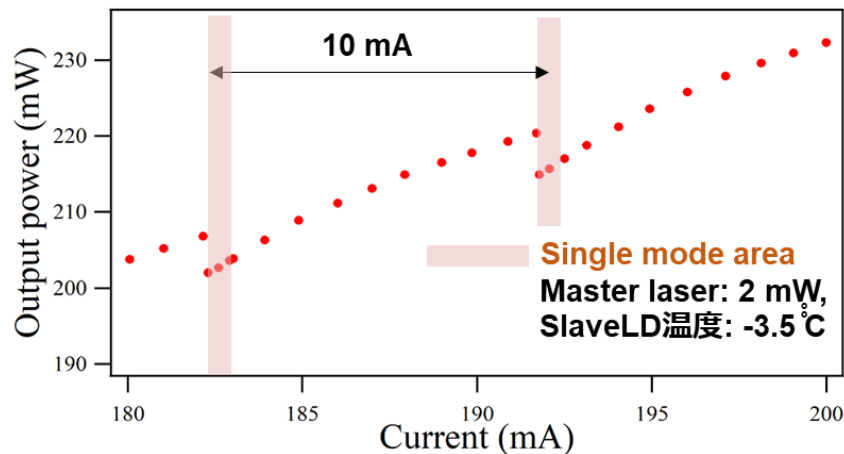


図 5.2.5 改善後の Slave レーザーの PI 曲線 (注入同期時)

さらに、LD の駆動温度を上昇させたことで、注入同期の持続時間に大幅な改善傾向が確認された。注入同期が外れる原因を、温度制御の面から考察する。図 5.2.6 に示すように、Slave LD 及び LD 固定治具はペルチェ素子によって冷却され(①)、奪われた熱はペルチェ素子背面から排出される(②)。排熱は Slave LD 台座を通して大気中に伝わる(③)。台座の熱が溜まったまま残ると、断熱用ピーク樹脂台座を通して slave LD 筐体に入れ込み、筐体内の窒素を加熱する(④)。筐体内の窒素は Slave LD 及び LD 治具を加熱する(⑤)。ペルチェ素子及びサーミスタは Slave LD より離れた位置にある。そのため、温調ドライバーに付属している温度制御機構を用いても、LD の温度変化を制御できずに LD の発振周波数がドリフトしてしまう(⑥)。特に今回は治具及び LD の熱時定数が大きく、PID 制御をかけると発振してしまうために P 制御のみを用いている。そのため、設定温度と実際の slave LD 温度の間には残留偏差が存在することに注意する。温度(周波数)ドリフトにより、LD 最近接モードとマスターレーザーの波長の差がロックレンジを超えると注入同期が外れる。今回 LD の駆動温度が高温になったため、多少電流値を上げて LD の発熱量が増加しても、ペルチェ素子からの排熱量が先ほどと比べて小さくなる。そのため、台座から逆流する排熱量が下がり、長期的な LD の温度制御が達成された、あるいは温度ドリフトが軽減されたのではないかと予測できる。また、排熱温調用ドライバー及びペルチェ素子のスペック範囲内で温度制御が可能になり、温調が暴走しにくくなったことも当然安定性向上に寄与していると思われる。

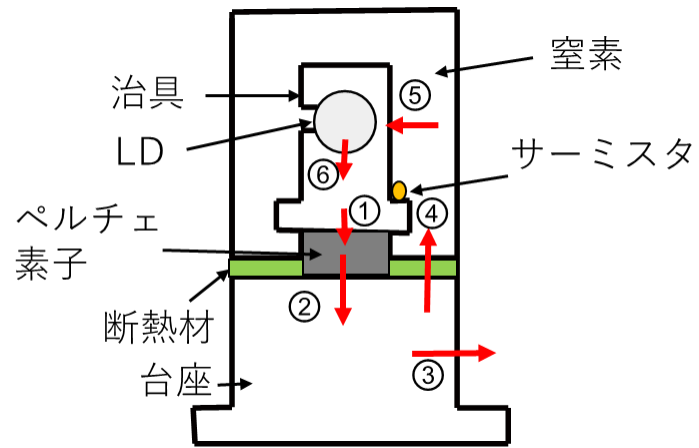


図 5.2.6 LD の排熱機構の概念図. LD: Laser diode.

5.2.4 MOT 用レーザービーム(MOT beams)の開発

MOT の実験において、6 方向から入射するレーザービーム(MOT Beams)の周波数を共鳴周波数からわずかに(典型的には、自然幅程度)負に離調させる必要がある。レーザー周波数を原子の共鳴周波数からずらした状態で周波数安定化する方法としては、

- (1). 原子セル(今回の場合は Yb-HCL)にコイルを巻いてゼーマン分裂効果を利用する
- (2). Yb 原子の分光で得られるエラー信号に電圧オフセットをのせる
- (3). 周波数シフター (例えば AOM) を利用して光周波数をシフトさせる

等が挙げられる。今回のように、一つの小型な高出力レーザー光源をいくつかの用途に同時に利用する場合には、ビームを複数に分離させた上で、(3)各レーザービームの周波数を AOM でシフトさせることが多い。今回は slave レーザーの光を2つの目的、すなわち原子ビームの減速と MOT に利用するため、手法IIIを選択した。ただし、10~20 MHz の低い変調周波数で利用可能な AOM は市販されていない。そこで、複数の AOM を用いて所望の周波数シフトを達成する。まず、130 MHz で駆動される AOM を用いて Modulation transfer 分光を実施し、観測された信号を基に ECDL を周波数安定化する。先に述べたように、この時の ECDL 周波数は Yb 原子の共鳴周波数に対して+65 MHz だけ周波数がシフトしている。このレーザーを用いて注入同期を行うと、slave LD の発振周波数は ECDL の発振周波数と一致する。このビームを分岐したのち、80 MHz で駆動される AOM(Gooch and Housego: AOM 3080-125)を通過させて-1 次光を取り出すと、得られるビームの周波数は Yb 原子の共鳴周波数に対して-15 MHz だけ周波数がシフトしている。また、AOM の駆動周波数のダイナミックレンジは 20 MHz 程度であり、シフト量の微調整が可能である。一般に AOM の回折効率が入射光ビーム径や波面の状態に依存する。今回の実験では、AOM の回折効率は 70%程度であった。また、AOM をどの位置においても、回折光の FFP が変化する様子は見られなかった。

MOT を行う際には各ビームの重なる領域を広げるために、入射ビームを十分に拡大する必要がある。今回の実験系では MOT beam のサイズは波長板の開口径で制限される。今回はビーム直径 10 mm 程度を目標として、レンズペアによるビーム拡大を行った。使用したレンズペアは $f=-30$ mm と $f=+300$ mm である。前節で記述したように、光ビームの NEP と FFP は異なっており、AOM 直後にレンズペアの一方(凹レンズ)を設置した際には、NEP のパターン形状を保ったままビームが拡大、コリメートされる現象を確認した。そこで、AOM から離れた位置、すなわちビームが FFP になる位置に凹レンズを設置した。結果として、ビームパターンが円形に近い状態を保ちつつ MOT Beam を 0.74 mm から 8 mm 程度まで拡大してコリメートした。ただし、研究室のビームプロファイラーの開口が小さいため、拡大後のビーム直径は目視で確認している。拡大前の MOT ビームの FFP 測定結果を図 5.2.7 に示す。

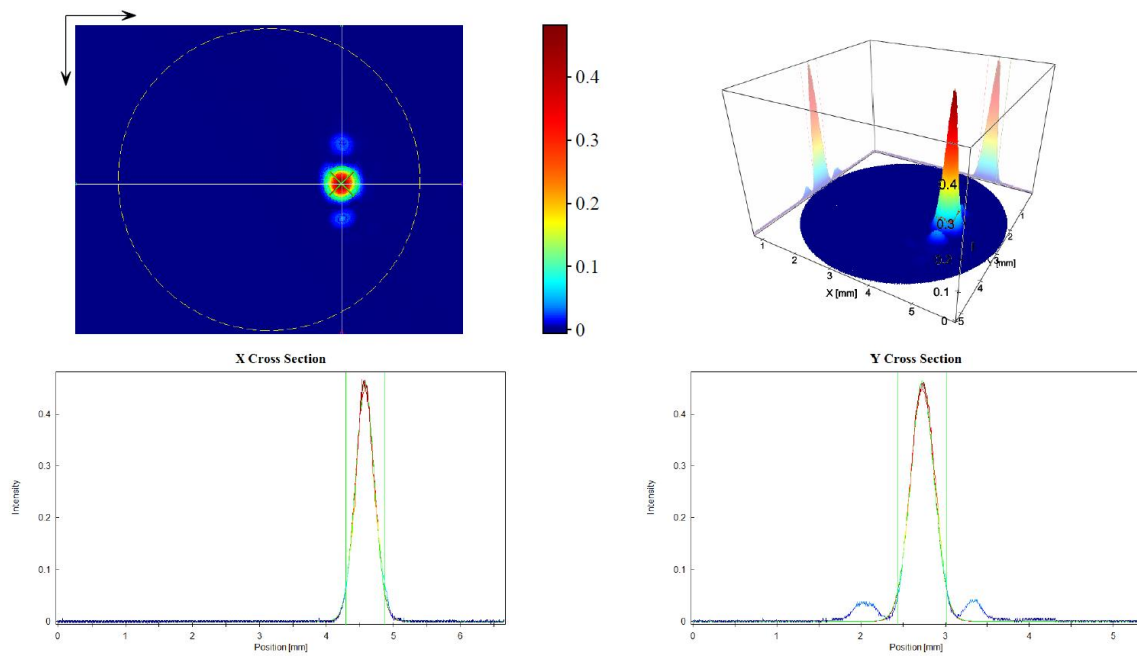


図 5.2.7 MOT beam (拡大前)の FPP

5.2.5 減速用レーザービーム(Longitudinal cooling beam)の開発

Longitudinal cooling beam は、原子ビームに対向して入射するレーザー光である。加熱された原子ビームの速度を考慮すると、Longitudinal cooling beam には十分に大きな負の detuning を与える必要がある。市販の入手可能な AOM は 200 MHz 駆動用(Gooch and Housego: 3200-125)と 350 MHz 駆動用の二種類がある。そこで今回は 200MHz 駆動用 AOM を利用することとした。より大きな周波数の離調が必要な場合は、AOM の double pass 構成を組むか、別途 AOM を購入すればよいと判断したためである。AOM の回折効率は最大約 80%程度であり、ビームパターンは MOT beams と同様である。

Longitudinal cooling beam (や、一般的には Zeeman beam) の強度は飽和強度より大きい必要がある。その一方でビーム径を小さくすると、対向ビームと相互作用する(減速可能な)原子数が減ってしまう。本実験で原子線源として用いるディスペンサーの開口径が 3 mm である。そこで今回はレンズペア($f=-50$ mm, $f=+250$ mm)を用いてビーム径を 0.56 mm から 3 mm 程度まで拡大した。拡大前の Longitudinal cooling beam の FPP 測定結果を図 5.2.8 に示す。レンズペアの配置位置については、MOT beam と同様であり省略する。

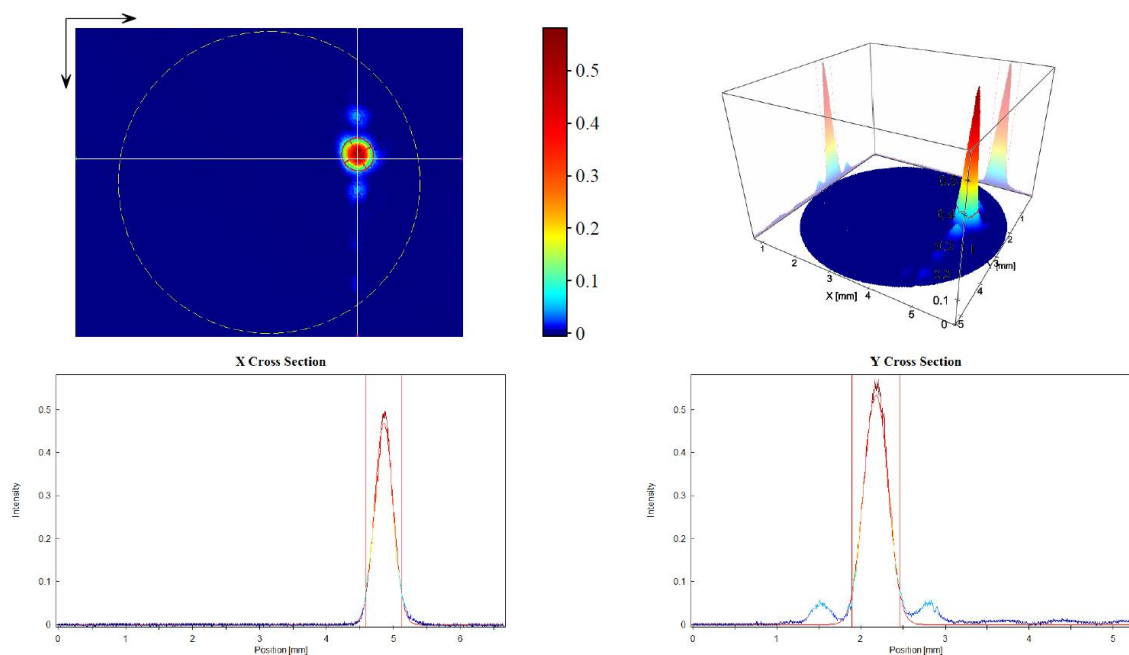


図 5.2.8 Longitudinal cooling beam(拡大前)の FPP

最終的に作成した冷却用光学系の全体図を図 5.2.9 に、MOT beam および Longitudinal cooling beam と冷却遷移周波数との周波数差の関係を図 5.2.10 に示す。

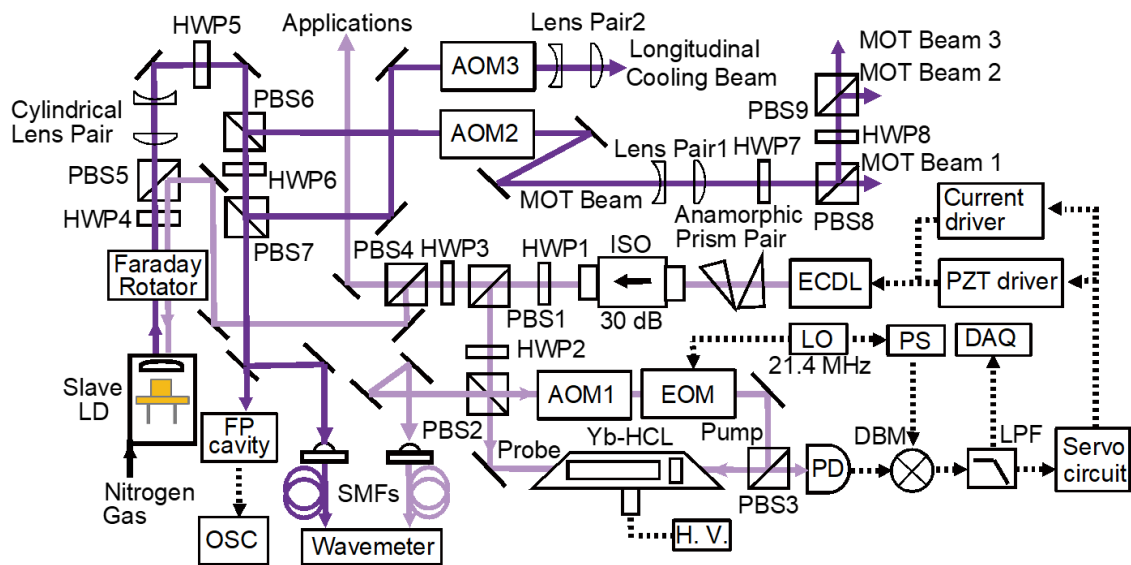


図 5.2.9 冷却用光源系全体の概要図. 薄紫線は紫外光(ECDL 出力), 濃紫線は紫外光(Slave LD 出力), 点線は電気信号配線を示す. 光学系全体が 45 cm×90 cm のブレッドボード上に収まっており, 持ち運び可能である. ECDL: External cavity diode laser, ISO: Optical isolator, HWP: Half-wave plate, PBS: Polarization beam splitter, SMF: Single mode fiber, AOM: Acousto-optic modulator, EOM: Electro-optic modulator, Yb-HCL: Ytterbium hollow-cathode lamp, H. V.: High-voltage source, PD: Photodetector, LO: Local oscillator, PS: Phase shifter, DBM: Double balanced mixer, LPF: Low-pass filter, DAQ: Data acquisition system, LD: Laser diode, FP cavity: Fabry Perot cavity, OSC: Oscilloscope, MOT: Magneto-optical trap.

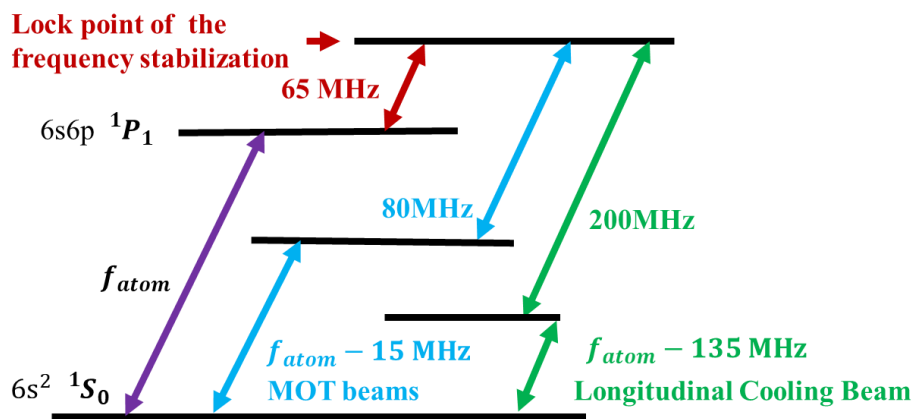


図 5.2.10 各ビームの共鳴周波数からの detuning

5.3 ディスペンサーを用いた原子線源の開発と評価

5.3.1 Yb ディスペンサーの実装

今回使用したディスペンサーは、AlfaVakuo 社製の AS-Yb-0500-3F である。ディスペンサー内にはアルゴン雰囲気下で 500 mg の Yb 金属が封入されており、出射口はインジウム薄膜により封がされている [125]。電流を流すことでディスペンサーを加熱し、封を溶かすことで原子ビームを出射する。本実験では、ディスペンサーは 2 本の電流端子が付いた ICF70 フィードスルー (SOLID SEALING TECHNOLOGY, INC: FA11638-02)に取り付けて使用する。2 本の端子はどちらも真空計全体とは絶縁されており、そのうちの一本をディスペンサーのグラウンドに利用する。ディスペンサー取り付けの際には、別途設計した治具を利用する。治具の設計上の留意点を以下に示す。

- 材質は無酸素銅を利用し、アセトン超音波洗浄を施している。
- フィードスルー端子が柔らかいので、接着後に端子が曲がらないように、なるべく小さくかつ軽量にする。
- 固定には M3 の真空用全ネジを利用し、機械的安定性を確保するために各部品同士を 2 つ以上のネジでとめる。
- 真空計全体との通電を避けるため、フィードスルー端子や端子と接続されている治具と、真空系内壁の一部が接触しないようにする。3D-CAD を用いて治具と内壁の位置関係を事前に確認する。

設計された治具を用いて、以下の手順で Yb ディスペンサーをフィードスルー端子に固定し、さらにフィードスルーを真空チェンバーに接続した。なお、作業時はアセトン洗浄された機械部品を使用し、ゴム手袋を付け、アルミシート上で作業する等の注意を払う必要がある。フィードスルー端子、治具、ディスペンサーの固定にはモリブデンコーティングされた M3 の全ネジ(真空用処理済)を使用している。これは、フィードスルー全体を高温作動させる際の、ネジ固定部での焼き付きを防止するためである。

- (1). ディスペンサーや治具に接触するラジオペンチ、ドライバーをアセトン超音波洗浄にかける。洗浄機は関谷研究室からお借りした。洗浄時間は 10 分程度である。
- (2). 上側固定治具を上側のフィードスルー端子に取り付ける。次の作業の邪魔にならないように、なるべく半分より奥の方に押し込む。
- (3). 下側固定治具を下側のフィードスルー端子に取り付ける。ディスペンサーの出口側の出っ張り部分をラジオペンチで折り曲げて、固定治具 2 と接続する。
- (4). 上側固定治具 1 とディスペンサーの端を接続する。
- (5). フィードスルー端子や固定治具の位置を最適化して、前から見たときにディスペンサーがなるべくフランジの中心に位置するようにする。
- (6). フィードスルー端子とペローズニップル、更に MOT チェンバーを組み合わせる。対向ビームを打ち込むための ICF70 ビューポートからディスペンサーの開口部分を観察し、フィードスルー角度やペローズニップルの角度を微調整する。

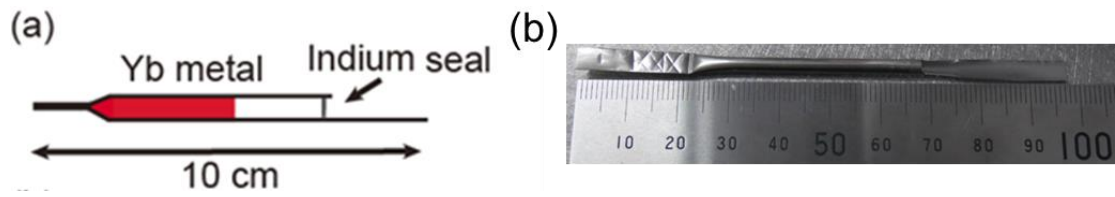


図 5.3.1 ディスペンサーの概念図(a)と写真(b)

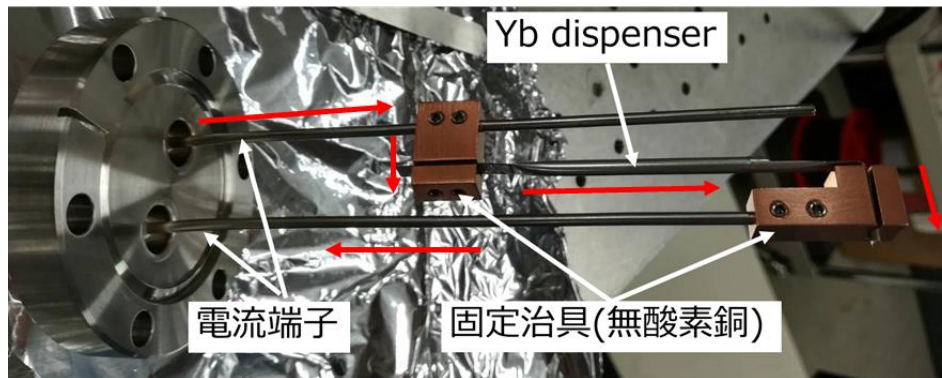


図 5.3.2 無酸素銅製治具を用いてフィードスルー端子に固定されたディスペンサーの写真. 赤線は電流の流れる向きを示す.

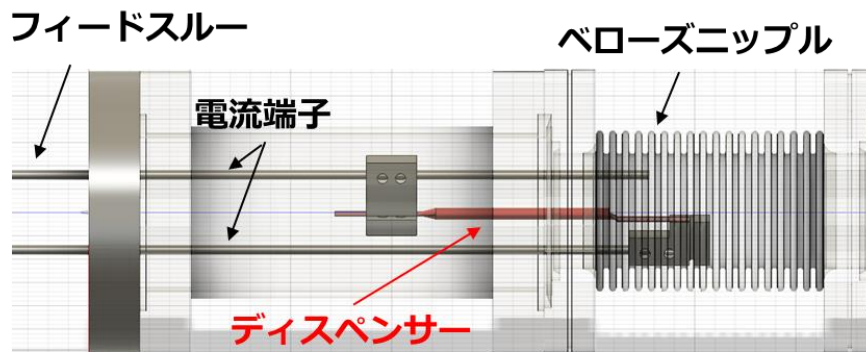


図 5.3.3 ディスペンサー実装を模擬した 3D CAD

5.3.2 Yb デispensサーのアクティベーション

デispensサーのアクティベーションを実施した。デispensサーに電流を流したところ、2 A(0.3 V)で急激に真空装置内圧力が 8×10^{-4} Pa まで悪化した。デispensサーの開口部のインジウムシールが溶けて、封入されていたアルゴンガスと共に析出したことが原因と考えられる。この作業をアクティベーションと呼び、30 分以上実施した。メーカーHP[124]の記述によると、この作業を最低 10 分間行う必要がある。

デispensサーの容器(ステンレス製チューブ)の電流対温度のグラフも、メーカーHP[124]に記載されている。Yb 原子オーブンの典型的な駆動温度は $400 \sim 600^\circ\text{C}$ であり、それに対応する電流値は $4 \sim 6$ A 程度である(図 5.3.4 のピンクダイヤプロット(OD=3 mm))。例えば 4.5A 駆動電流では、デispensサー温度は 675 K 程度と考えられる。電流値を大きくすると、原子ビームのフラックスが過大となりデispensサー内の原子がすぐに枯渇する恐れがあるので注意が必要である。詳細なフラックス量の評価については後述する。

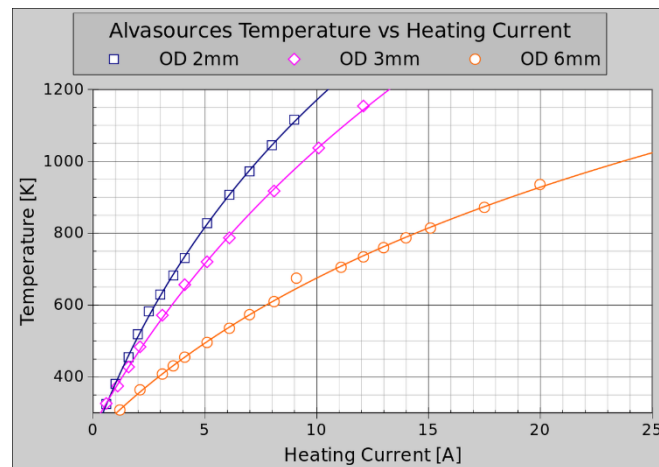


図 5.3.4 デispensサー容器の電流対温度特性のグラフ[124]
(今回のデispensサーは、OD=3 mm)

5.3.3 Yb 原子ビームの蛍光観測

図 3.5.3 で示すように、ECDL からの光の一部を PBS4 で抜き出して、原子ビームに対して垂直にプローブ光を照射し、ドップラーフリーな蛍光信号を COMS カメラおよび PMT で受光した。デイスペンサーの駆動電流値は 4.5 A で、プローブ光パワーは 0.2 mW ($s=0.12$ に相当)であった。COMS カメラ撮影画像と PMT の受光信号をそれぞれ図 5.3.6 と図 5.3.7 に示す。図 5.3.7 に示されたドップラーフリー信号の半値全幅は、遷移自然幅と比較して明らかに大きい。これは、原子ビームが厳密にはコリメートされておらず、発散角に応じたドップラー広がりがあるためであると考えられる。そこで PMT での受信信号に対して、ローレンツ関数とガウス関数の重なり積分である Voigt 関数でフィッティングすることで、原子ビームの発散角を算出することを試みた。ただし、ローレンツ関数の半値線幅は自然幅である $\Gamma = 2\pi \times 28.9$ MHz を仮定した。また、信号波形についてはレーザー周波数掃引の線形性が確認された領域のみ (図 5.3.7 の青線部分) をフィッティングに利用した。結果として、ガウス曲線の半値全幅 (ω_G) は 93.3 MHz であった。4.5A 駆動電流では、デイスペンサー温度は 675 K であり、このときの最大確率速度 (v_{mp}) は 311 m/s である。原子ビームの広がり角の半値半幅 (θ) はドップラーシフトによるスペクトル広がりを考慮して

$$\frac{\omega_G}{2} = \frac{v_{mp} \sin \theta}{\lambda} \quad (5.3.1)$$

で表され、今回の場合は $\theta = 60$ mrad であった。

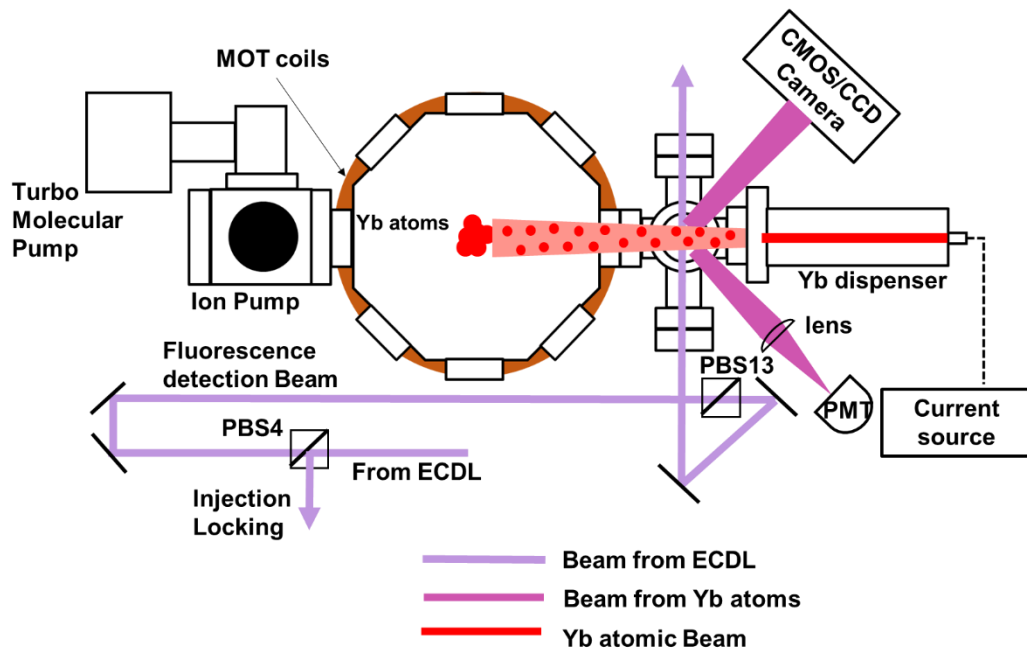


図 5.3.5 Yb 原子ビームの蛍光分光のための光学系構成。紫線は紫外光を、点線は電気信号配線を示す。ECDL: External cavity diode laser, PBS: Polarization beam splitter, PMT: Photomultiplier tube, MOT coils: Magneto-optical trap coils.

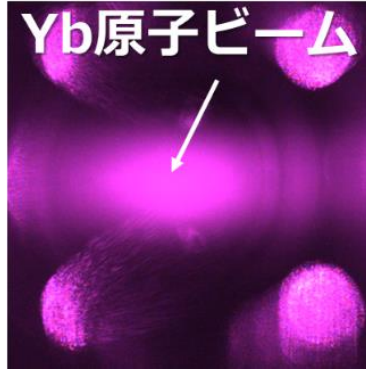


図 5.3.6 原子ビームにプローブ光を当てた際の蛍光信号を CMOS カメラで撮影した様子

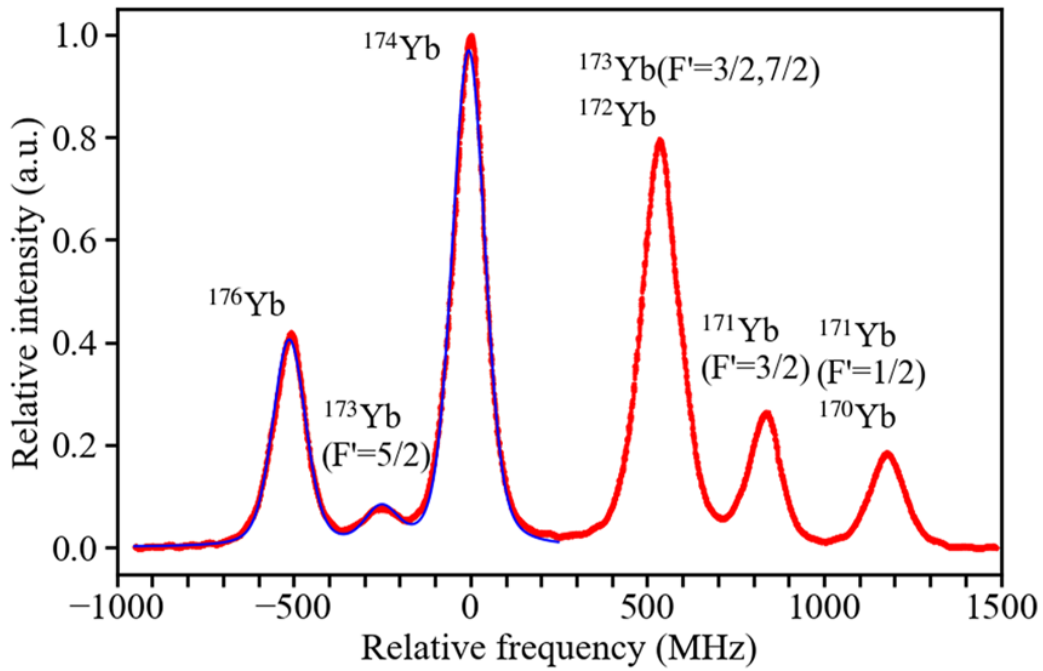


図 5.3.7 原子ビームからのドップラーフリー分光で得られた 蛍光信号を PMT で受信したときの電気信号

次に原子密度 ρ と最確速度 v_{mp} を用いて式(5.3.2)で定義される, ビームのフラックス量(F)を評価した. 原子密度 ρ は速度分布 $f(v_t)$ と原子の上準位確率 $\rho_{ee}(v_t)$ を考慮することで, 式(5.3.3)で表される[35].

$$F = \rho v_{mp} \quad (5.3.2)$$

$$\begin{aligned} \rho &= \frac{1}{V_{int}} \times P_{max} \times \frac{\Omega_{tot}}{\Omega_{ph}} \times \left[\hbar \omega_0 \times \int_{-\infty}^{\infty} dv_t f(v_t) \rho_{ee}(v_t) \right]^{-1} \\ &= \frac{1}{V_{int}} \times P_{max} \times \frac{\Omega_{tot}}{\Omega_{ph}} \times \left[\frac{\hbar \omega_0 \Gamma s}{2 \sigma_t \sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} dv_t \frac{\exp(-\frac{v_t^2}{2\sigma_t^2})}{1 + 4 \left(\frac{|k|v_t}{\Gamma} \right)^2} \right]^{-1} \end{aligned} \quad (5.3.3)$$

V_{int} はプローブ光と原子ビームの相互作用体積であり、 $4.4 \times 10^{-8} \text{ m}^3$ である。 P_{max} は ^{174}Yb の蛍光信号光パワー(131 nW)、 Ω_{tot} は双極子放射の立体角($8\pi/3$)、 Ω_{ph} はPMTに入射する蛍光束の立体角(0.089 sr)、 v_t と σ_t はそれぞれ原子ビームに平行な方向の原子速度(積分変数)とその標準偏差(16 m/s)を示す。Mathematicaによる計算の結果、 ^{174}Yb のフラックスは $4.6 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}\text{cm}^{-2}$ であった。表 5.1.1 に示した ^{174}Yb の同位体存在比を考慮すると、Yb原子のフラックス総量は $1.4 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}\text{cm}^{-2}$ と算出される。蛍光観測ポートにおける原子ビームとプローブ光の相互作用長 L_{int} を用いて、単位時間あたりの原子の流入量(フローレート \dot{N})は、

$$\dot{N} = F \times \pi \left(\frac{L_{int}}{2} \right)^2 \quad (5.3.4)$$

で表される。今回の測定では、 $L_{int} = 16.8 \text{ mm}$ であったので、駆動電流 4.5 A におけるフローレートは $3.2 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$ と算出される。蛍光信号強度の測定結果に対して同様の計算により得られた、ディスペンサー駆動電流に対するフローレートの算出結果を図 5.3.8 に示す。今回使用したディスペンサーには 0.5 g の Yb 原子が封入されているため、駆動電流 4.5A において連続使用時のディスペンサー寿命は 1.7 年と算出される。

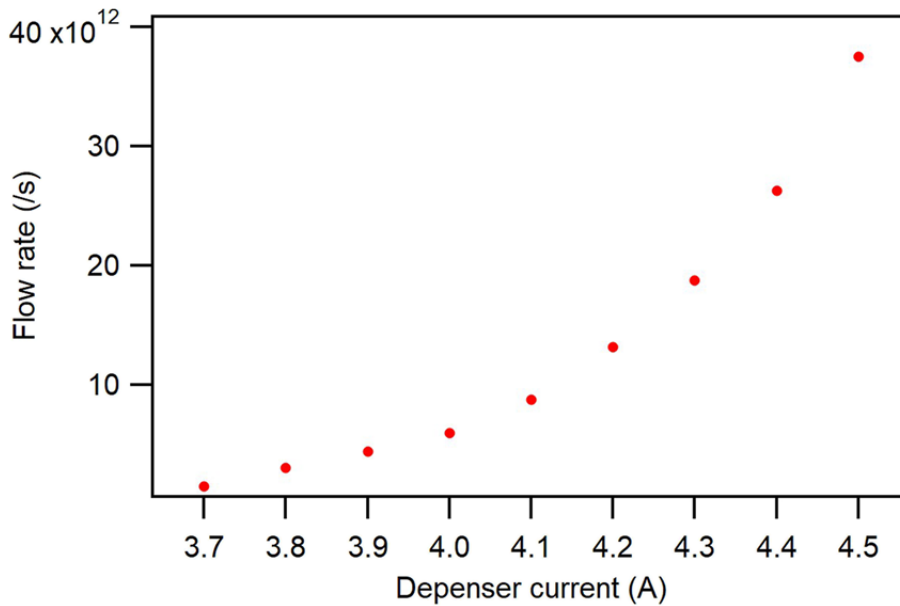


図 5.3.8 Yb ディスペンサーのフローレートの駆動電流依存性

5.4 磁気光学トラップによる Yb 原子のレーザー冷却

$^1S_0 - ^1P_1$ 許容光学遷移を利用した磁気光学トラップ(MOT)により, デイスペンサーから出射された Yb 原子を mK オーダーまで冷却しつつ空間的にトラップすることが可能である. 本章では MOT の設計と原子ビームの MOT 測定から収率評価までを述べる.

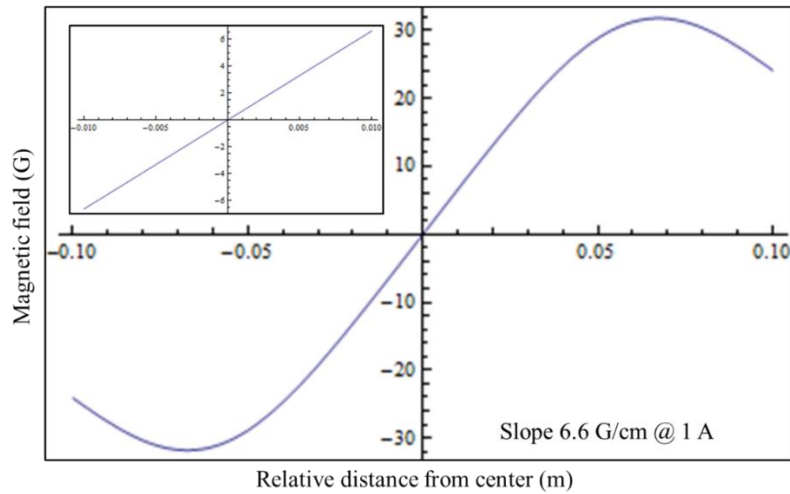
5.4.1 MOT 用アンチヘルムホルツコイルの開発

Yb 原子のレーザー冷却において必要な z 軸方向の磁場勾配 (dB_z/dz)は, 約 30 G/cm 以上であることが報告されている [76]. そこで, 30 G/cm の磁場勾配を達成するために必要なコイルの設置位置・巻き数・電力量を試算した. 2.8.3 節の式(2.8.13)および(2.8.14)を用いてコイル設置位置を検討した結果, 今回設計された真空装置に対しては表 5.4.1 に示す条件で最も効率良く磁場勾配を発生させられると試算された. 計算された位置に対する磁場の大きさを図 5.4.1 に示す. 電流 1 A あたりの磁場勾配は, $\frac{dB_z}{dz} = 6.6$ G/cm かつ $\frac{dB_\rho}{d\rho} = -3.3$ G/cm と見積もられる. ゆえに, 垂直方向の磁場勾配 30 G/cm に必要な電流値は約 5 A である.

表 5.4.1 磁場勾配の計算に用いたパラメーター(電流 1A)

真空の透磁率	$4\pi \times 10^{-7}$ H/m
コイル中心-磁場中心間距離 D	65 mm
コイル半径 R	45 mm
銅線直径(被膜含む) ϕ	1.3 mm
縦方向巻き数	28 巻き
横方向巻き数	16 層
垂直方向の磁場勾配 dB_z/dz	6.6 G/cm
動径方向の磁場勾配 $dB_\rho/d\rho$	-3.3 G/cm

(1)



(2)

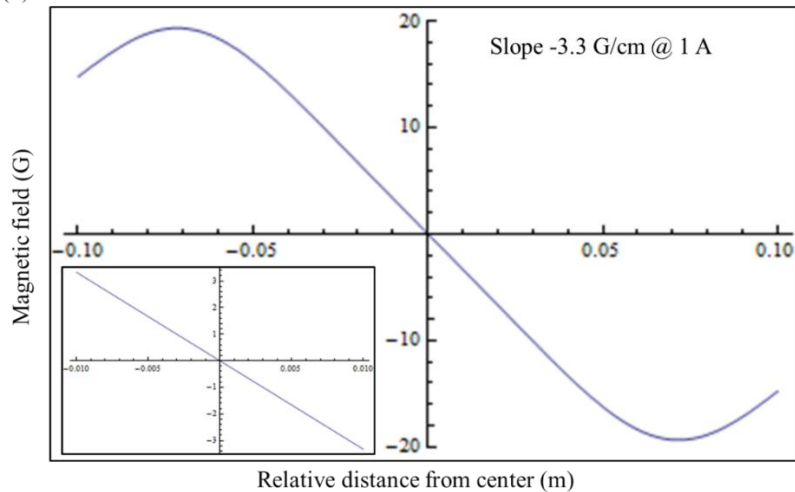


図 5.4.1 Mathematica を用いた、アンチヘルムホルツコイルによる磁場勾配のシミュレーション結果。(1) 垂直方向の磁場のグラフを示す。挿入図は原点付近の拡大図を示す。(2) 動径方向の磁場のグラフを示す。挿入図は原点付近の拡大図を示す。

コイル銅線の選定

銅線には流す事の出来る最大電流値が存在する。直径が大きいほど最大電流値が上昇し、単位長さ当たりの銅線抵抗値も小さくなる。一方で、直径が大きくなるとコイルの作成が難しくなるという欠点も存在する。今回我々は、産総研から提供いただいた $\phi 1.2\text{mm}$ のポリイミド被覆銅線(耐熱温度:200°C)を利用した。

治具の加工

治具はアルミ合金製で、コイル巻き付けの際の圧力に耐えられるように、5 mm の厚みを持たせている。しかし、実際にはより薄いアルミ合金でも十分な剛性を確保できることが判明した。その上、治具の厚みの分だけコイルと磁場中心の距離が離れてしまうため、厚みが大きいのは好ましくない。そのため、厚

みは小さくするべきであり、更に言えばコイルを外側から押さえつけるタイプの治具を用いるのが好ましい。

コイル磁場の ON/OFF のために MOT コイルの電流を切る際、誘導起電力が生じるため金属製治具に誘導電流が流れる。この誘導電流により二次的な残留磁場が発生し、MOT の実験に影響が出る可能性がある。これを防ぐため、コイルと同様の閉回路ができないように治具に切れ込みを入れた。更に残留磁場の影響を抑えたい場合には、非金属性治具を利用する方法があるが、アルミニウム治具より高価であるため今回は採用を避けた。

自作コイルの性能評価

表 5.4.1 の設計に従い、アンチヘルムホルツコイルを作成した。自作アンチヘルムホルツコイルペアを直列につないだうえで 1 A の電流を流し、磁場プローブ計を用いて実際の磁場勾配を計測した。図 5.4.3 に計測された四重極磁場の (1)z 軸方向の磁場勾配(2)動径方向の磁場勾配を示す。各グラフにおいて、黒線は mathematica による理論値を示す。一方で赤点は実測値、点線は実測値に対する一次関数によるフィッティング直線を示し、両者はおおむね一致していることを確認した。

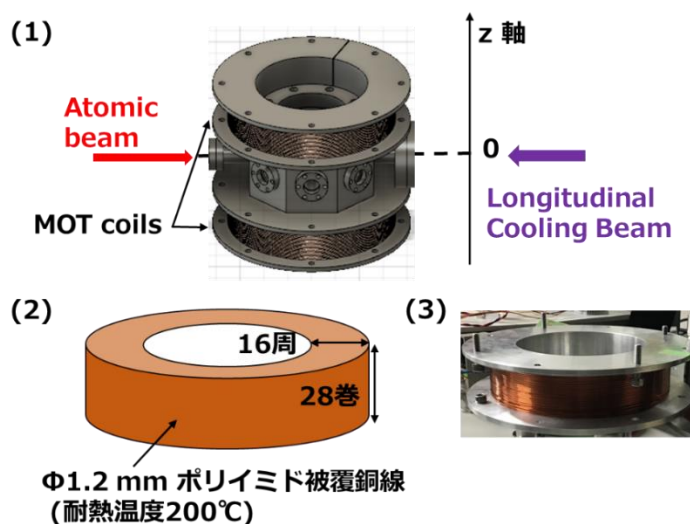


図 5.4.2 MOT に向けて作成した MOT coil(アンチヘルムホルツコイル)の (1)設置位置(2)巻き数(3)実際の写真をそれぞれ示す。

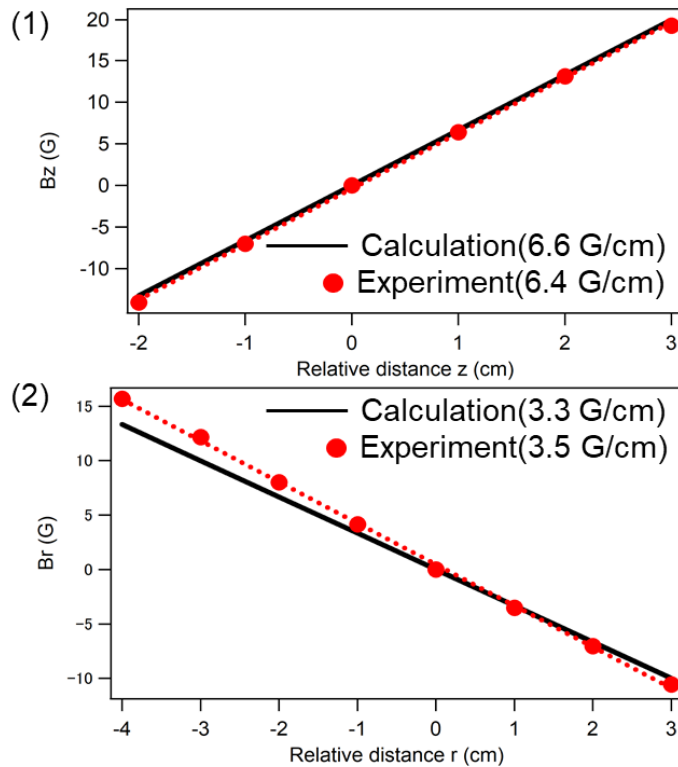


図 5.4.3 自作アンチヘルムホルツコイルに 1 A の電流値を流した際に発生した四重極磁場の (1)z 軸方向の磁場勾配. (2)動径方向の磁場勾配. 各グラフにおいて, 黒線は mathematica による計算値を示す. 一方で赤点は実測値, 点線は実測値に対する一次関数によるフィッティング直線を示す.

5.4.2 MOT 光学系の構成

図 5.4.4 および図 5.4.5 に, 作成した MOT 光学系の構成図を示す. AOM2 にて周波数シフトされた MOT beam は HWP7 と PBS8 のペアと, HWP8 と PBS9 のペアを用いて 3 つに分岐される. PBS の透過光を 1 本目の MOT beam として利用し, ペリスコープで光軸高さを低くした後に PBS10 と QWP1 を用いて円偏光にされたのち, MOT チャンバーの真下から上部へ打ち上げられる. 2 本目と 3 本目の MOT beam はそれぞれ PBS9 の反射光と透過光であり, 1 本目と同様に MOT チャンバー内を通過する. 3 つの MOT ビームはすべてミラーで打ち返され, 真空チャンバー内で往復してビームが重ね合わせられるように調整されている. さらに, ダブルパス構成の QWP を利用することで円偏光のヘリシティを逆向きに変化させている. MOT 光学系の細かな調整方法については後述する.

AOM3 にて周波数シフトされた longitudinal cooling beam は偏光調整用の HWP9 を通過したのち, イオンポンプ接続用チャンバーの側面に設置されたビューポートを通して真空装置内に入射される. 原子ビームを減速させることを目的とするため, Yb ディスペンサーの出射口に光が当たるようにアライメントを調整している. 今回は Zeeman Slower を使用しないため, HWP9 を用いた偏光操作は不要であり, これは取り除くことが可能であることを述べておく.

MOT チャンバー部には 8 か所のビューポートが設置されており, うち 6 か所は MOT ビームの入射に利

用している。残る2か所は MOT された Yb 原子雲の観測に利用される。片側のビューポート出口には、焦点可変 C マウントレンズを取り付けた COMS カメラを設置している。このカメラで撮影された映像から原子雲の形状や蛍光信号を定性的に確認し、光学系の粗調整を実施する。もう片側のビューポート出口にはレンズと PD を設置している。この領域では受信信号を利用して光学系の微調整、MOT の原子数などの特性評価を実施する。

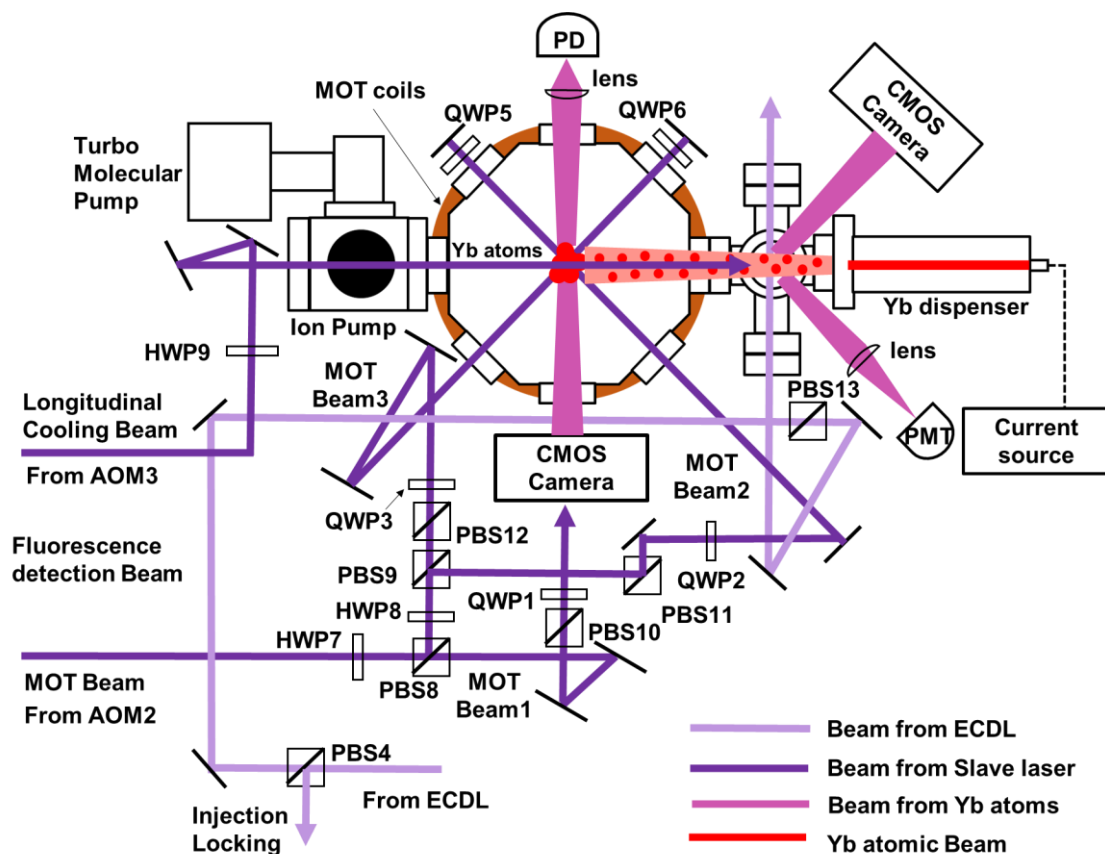


図 5.4.4 真空チェンバーへレーザー光を入射するための光学系全体図。ただし、レーザービーム高さ調整用に用いたペリスコープは省略している。薄紫線は紫外光(ECDL 出力)、濃紫線は紫外光(Slave LD 出力)、点線は電気信号配線を示す。ECDL: External cavity diode laser, PBS: Polarization beam splitter, HWP: Half wave plate, QWP: Quarter wave plate, PBS: Polarization beam splitter, PMT: Photomultiplier tube, MOT coils: Magneto-optical trap coils, PD: Photodetector, AOM: Acousto-optic modulator.

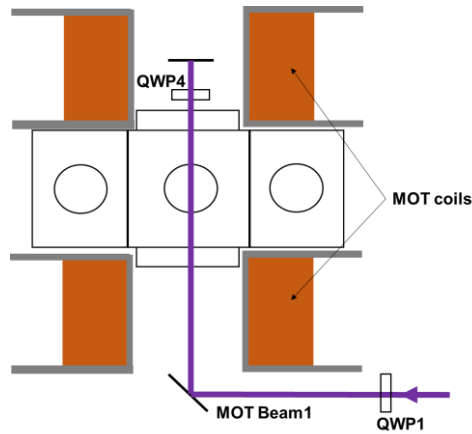


図 5.4.5 上下方向から MOT チェンバーへ光を入射するための光学系.
QWP: Quarter waveplate, MOT: Magneto-optical trap.

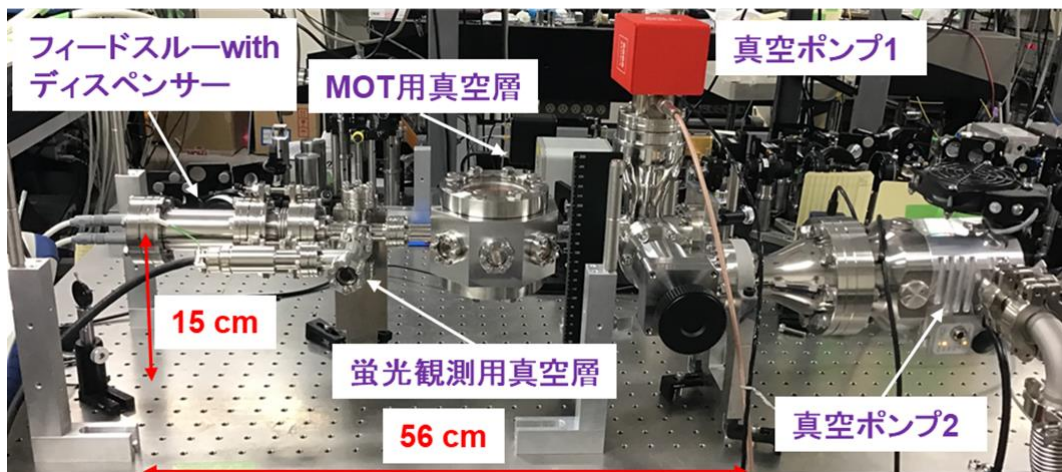
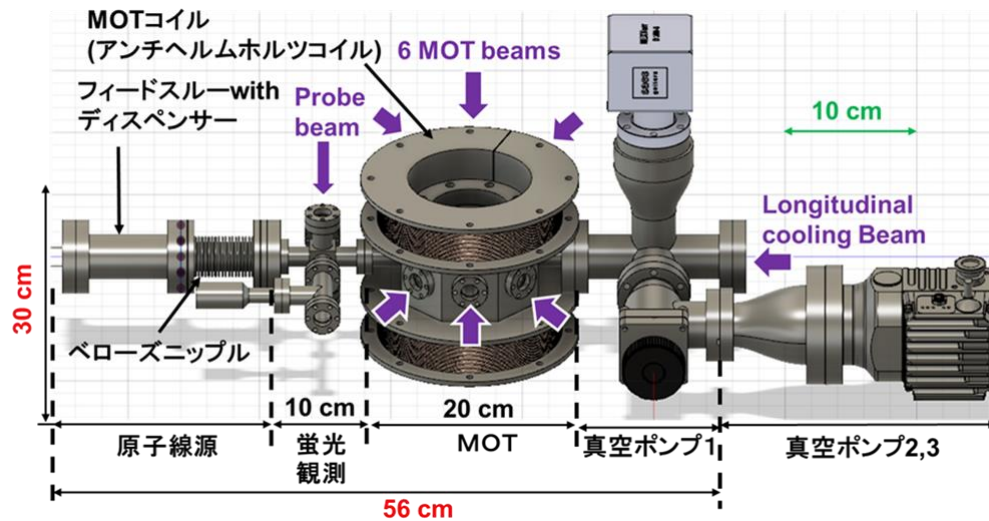


図 5.4.6 真空系全体の 3D CAD 図(上)と写真(下).
QWP: Quarter waveplate, MOT: Magneto-optical trap.

5.4.3 MOT 光学系の初期調整

円偏光の調整手法

磁気光学トラップにおいて、各ビームの偏光方向や purity は非常に重要である。下記手順に従い、3本すべての MOT Beams の偏光調整を行った。

- ① 各 MOT Beam を QWP と PBS に通し、透過光をパワーメーターで受光する。QWP 通過前と比較して、透過光のパワーが半分になるように QWP の回転角度を調整する。この時点で、MOT Beam は円偏光である。
- ② 円偏光の向きを確認するための光学セット (QWP-A + PBS-A) を作る。この光学セットに円偏光の各 MOT beam が入射すると、その helicity に応じて、PBS-A を透過(反射)する。すなわち、この光学セットにより円偏光の helicity を確認することができる。
- ③ MOT コイルが作る面に平行に入射する2つのビームの偏光は同じ helicity になるように MOT 光用の QWP を調整する。一方、垂直方向は逆の helicity になるように調整する。
- ④ 調整用の光学セット (QWP-A + PBS-A) を取り外す。
- ⑤ 折り返し用の QWP を適当な位置に設置する。回転角度にかかわらず、折り返し構成で逆の helicity を有する円偏光が得られる。

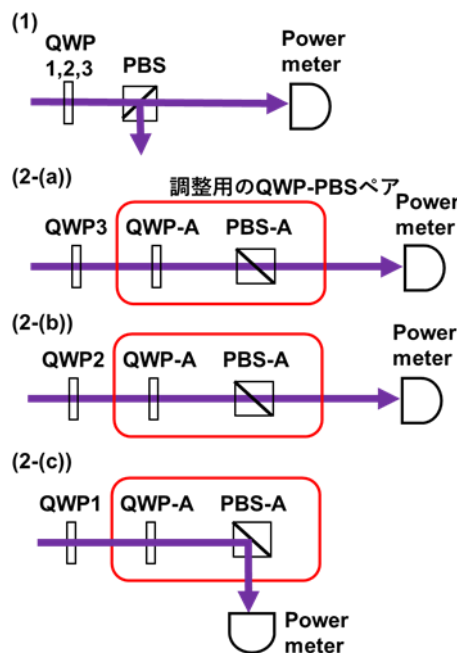


図 5.4.7 (1)円偏光調整のための光学系。(2)円偏光の相対的な向きを決定するための光学系。

QWP: Quarter wave plate, PBS: Polarization beam splitter.

MOT coils の電流の向きの決定

各 MOT beams の偏光・アライメント調整を行ったら、コイルに電流を流す。MOT が達成されない場合、コイルに流れる電流の向きを逆にする。どちらかが、中心に向かう力を作る磁場の方向になる。逆

向きだと MOT 領域の外側に原子を吹き飛ばすような力が働く。この時点で電流の向きが決められない原因は、作成した MOT ビームの偏光が σ^+ と σ^- のどちらであるかを決定することができないためである。十分に MOT beam のアライメントが目視で十分であれば、MOT を観測することができる。観測できない場合、コイル駆動電源を on/off 点滅させると、どちらかの磁場の方向の場合は原子が吹き飛ばされているように見えて、逆向きだと中心に集まっているように見える。その様子を見極めて、中心に集まっている方向に磁場をセットしておいて、折り返しミラーや入射ミラーなどのアライメントを微調整する。真空系内で生じる散乱光に由来するバックグラウンドの光が邪魔な場合、Longitudinal cooling beam を消して MOT beams だけを入射してもよい。

5.4.4 MOT パラメーターの最適化と性能評価

MOT 蛍光信号が確認されたのちに、細かな光学系のパラメーターを調整した。まず、MOT の蛍光信号が一番強くなるように各 MOT Beams の偏光を整える。具体的には、QWP 1,2,3 を順に回転させ、信号強度が最も高くなる位置で固定した。さらに、COM カメラの撮影画面で MOT 蛍光信号の明るさが最大になるように、MOT beam と longitudinal cooling beam のアライメントを最適化した。このとき、光軸の変化に伴い、原子雲の形が変化する様子が見られた。蛍光信号強度が最大となると、MOT 原子雲の形は少し歪んでいる。これは、トラップ用の MOT Beams の波面歪みに起因すると考えられる。アライメント調整が完了したのち、磁場勾配や MOT beam, Longitudinal cooling beam の最適化を実施した。

磁場勾配の最適化

MOT coils に流す電流量を変化させ、Yb MOT 信号の強度変化をモニタリングしながら最適化を行った。磁場勾配に対する MOT 原子数の変動を図 5.4.8 に示す。平均値と標準偏差はそれぞれ平衡状態における受信信号の平均値と標準偏差を原子数へ換算して示している。電流値を上昇させて磁場勾配を強くすると、MOT 領域内の Yb 原子数が上昇する様子が確認された。現状の実験系では、MOT の駆動電流値はコイル用電源の最大出力電流値(=6.3 A)に制限されている。

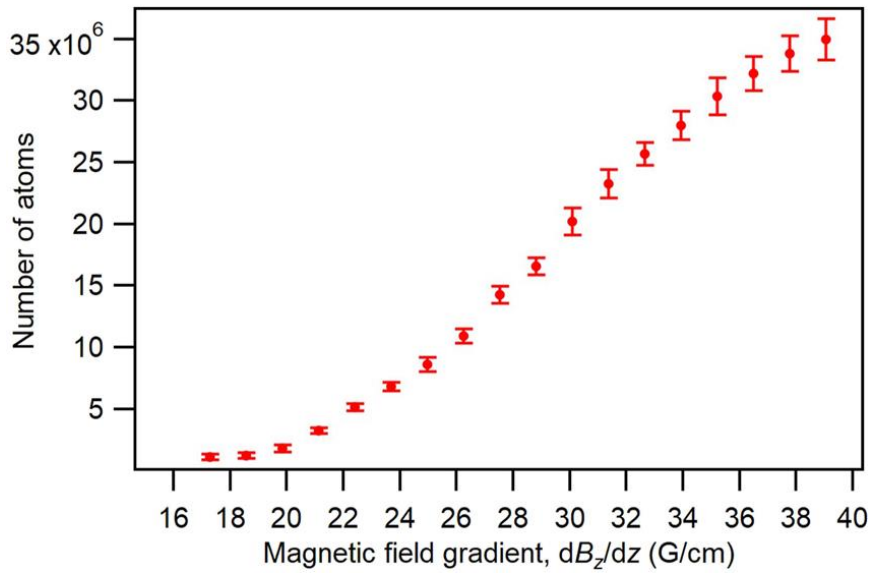


図 5.4.8 MOT 原子数の磁場勾配依存性測定の結果

Longitudinal cooling Beam のパワー最適化

Longitudinal cooling Beam が機能している事を確認するために、ビームの ON(図 5.4.9 右)/OFF(図 5.4.9 左)による信号強度の変化を観測した。Longitudinal cooling Beam により、原子ビーム中 Yb 原子が減速されて MOT 原子数が増加する様子が見とれる。

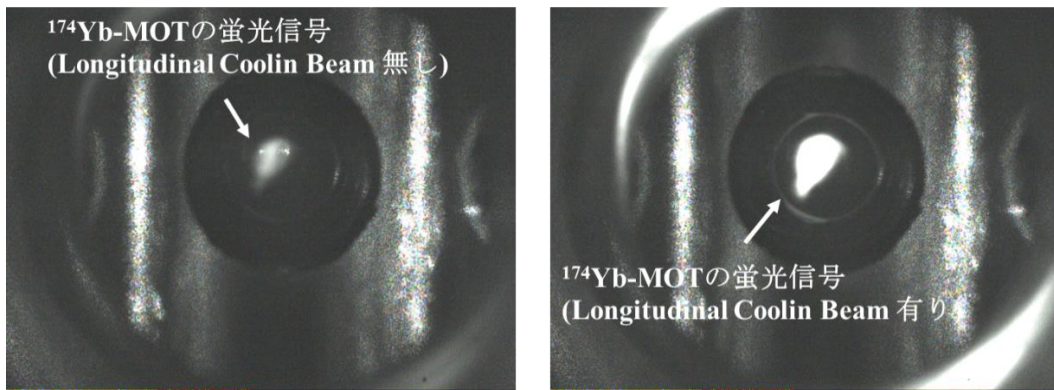


図 5.4.9 (1)Longitudinal Cooling Beam 有りと
(2) Longitudinal Cooling Beam 無しの場合での MOT 蛍光信号の比較

次に、Longitudinal cooling Beam のパワーを変化させた際の MOT 内 Yb 原子数の変化量を測定した。パワーに対する MOT 原子数の変動を図 5.4.10 に示す。現状の実験系では、Longitudinal cooling Beam の光パワーは注入同期系でのスレーブレザーからの出力パワーで制限されている。

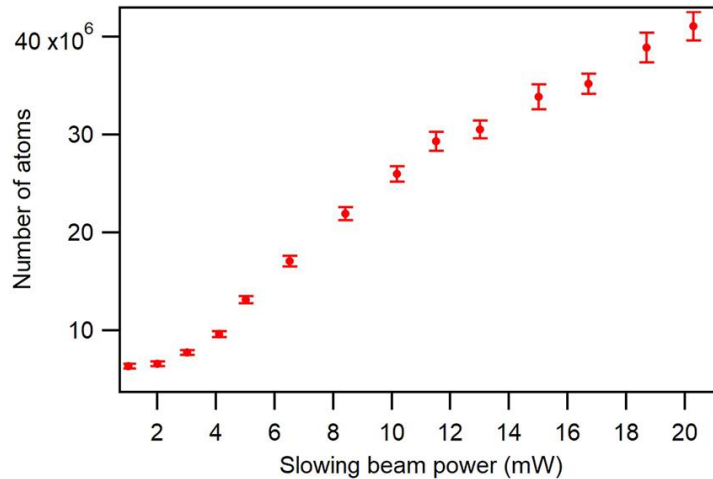


図 5.4.10 MOT 原子数の Longitudinal cooling Beam のパワー依存性

Longitudinal cooling Beam の detuning 最適化

AOM3 の変調周波数を変化させて、MOT 蛍光量が最大となる周波数シフト量を調査した。周波数シフト量に対する MOT 原子数の変動を図 5.4.11 に示す。結果として、共鳴周波数に対して -112.5 MHz 周波数をシフトさせたときに、信号強度が最大になった。この離調周波数のレーザー光と相互作用する原子の速度は 45 m/s である。

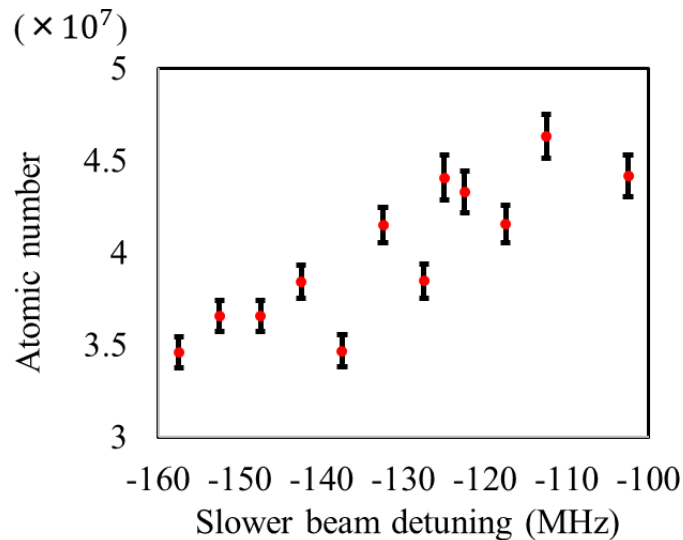


図 5.4.11 MOT 原子数の MOT Beam の detuning 依存性

MOT Beams の detuning 最適化

Longitudinal cooling Beam を遮断した状態で MOT 蛍光信号を観察しながら AOM2 の変調周波数を変化させて MOT Beams の周波数をシフトさせることで、detuning 最適化を行った。結果として、共鳴周波数に対して -17.5 MHz 周波数をシフトさせたときに、MOT 蛍光信号強度が最大になった。

最終的に得られた MOT

以上の条件を最適化した上で、改めて CMOS カメラで取得した ^{174}Yb -MOT の蛍光信号を図 5.4.12 に示す。直径 ϕ_{MOT} (今回は 7 mm) の領域内における MOT の捕捉速度 (v_{cap}) は、最大輻射圧 $F_{\text{max}} = \frac{\Gamma \hbar k}{2m}$ が、領域端すなわち直径 ϕ_{MOT} の球の外周に存在する原子に働き、原子が捕捉され続ける状況を考えると式(5.4.13)で示され[125]、今回は 34 m/s であった。最終的な実験条件を表 5.4.2 に示す。

$$v_{\text{cap}} = \sqrt{\frac{2F_{\text{max}}\phi_{\text{MOT}}}{m}} = \sqrt{\frac{\hbar k \Gamma}{m} \phi_{\text{MOT}}} \quad (5.4.13)$$

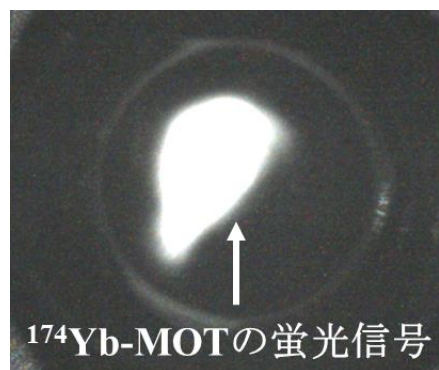


図 5.4.12 実験条件を最適化した時の ^{174}Yb -MOT 蛍光信号

表 5.4.2 最適化された MOT 実験条件

MOT Beam Power(1 軸あたり)	35.0 mW
MOT Beams detuning	-17.5 MHz
MOT magnetic field gradient	39 G/cm
Longitudinal cooling Beam Power	20.3 mW
Longitudinal cooling Beam detuning	-112.5 MHz
Dispenser current	4.5 A

5.4.5 Yb 同位体の MOT 信号観測

マスターレーザーの周波数を掃引することで、 ^{174}Yb と同様に Yb 同位体の MOT を達成し、その原子雲の蛍光信号を CMOS カメラで撮像した。得られた蛍光信号を図に示す。それぞれ、(a) ^{174}Yb , (b) ^{176}Yb , (c) ^{173}Yb ($F'=3/2, 7/2$) および ^{172}Yb , (d) ^{173}Yb ($F'=3/2$) , (e) ^{171}Yb ($F'=1/2$) および ^{170}Yb である。 ^{170}Yb と ^{171}Yb ($F'=1/2$), ^{172}Yb と ^{173}Yb ($F'=7/2, 3/2$) の蛍光信号は分離することが出来なかった。

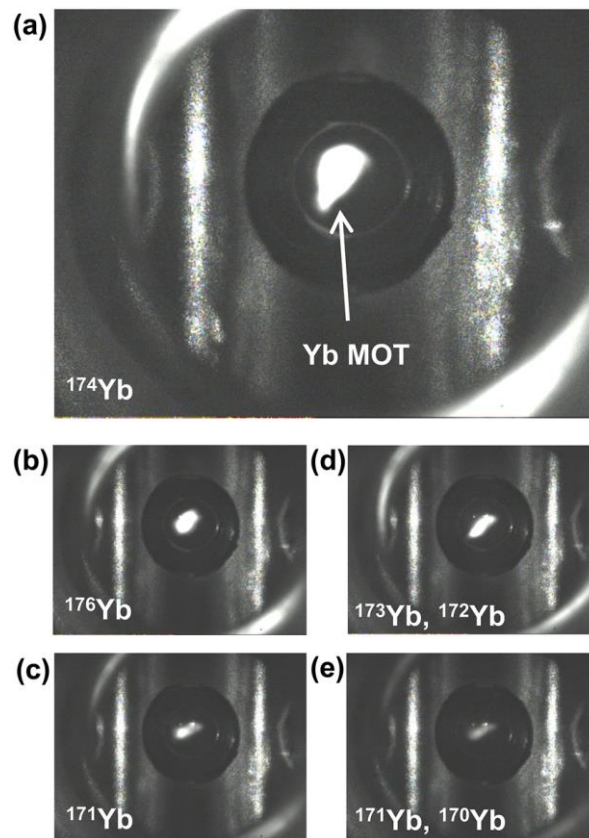


図 5.4.13 CMOS カメラで撮影された Yb 同位体の MOT 蛍光信号。それぞれ、(a) ^{174}Yb , (b) ^{176}Yb , (c) ^{173}Yb ($F'=3/2, 7/2$) および ^{172}Yb , (d) ^{173}Yb ($F'=3/2$) , (e) ^{171}Yb ($F'=1/2$) および ^{170}Yb である。

5.4.6 MOT の収率評価

MOT コイルを OFF から ON に切り替えた際の MOT の立ち上がり時間特性を図 5.4.13 に示す。MOT 原子数 N の時間特性は式(5.4.14)で表される。 α は供給レート、 β は線形損失を示す。線形損失の原因は、バックグラウンドガスや非トラップ Yb 原子との衝突ロスや、 1P_1 準位から D 状態への遷移ロスが挙げられる[126]。式 (5.4.14) の一般解は式 (5.4.15) で示される。

$$dN/dt = \alpha - \beta N \quad (5.4.14)$$

$$N = N_{st}(1 - e^{-t/\tau}) \quad (5.4.15)$$

図 5.4.13 の測定結果に対して式(5.4.15)でフィッティングを実施した結果、定常状態における MOT 内原子数(N_{st})は 4.1×10^7 であり、MOT 領域内に入射して捕捉される原子のフラックス量は $N_{st}/\tau = 2.6 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ であった。原子ビームの広がり角を考慮して得られる MOT 領域内の ^{174}Yb 原子集団の流量が $2.0 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$ であり、このときの MOT の収率は 1.3×10^{-5} と計算される。

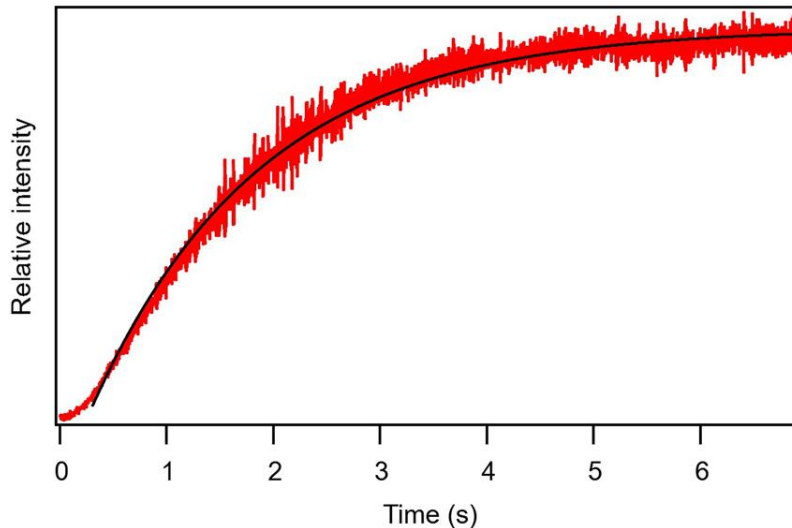


図 5.4.14 MOT のローディングタイムの測定結果。

赤線は MOT 蛍光信号の測定結果を、黒線は式(5.4.15)を利用したフィッティング結果を示す。

また、MOT コイルを ON にした状態でディスペンサーへの電流印加を ON にした際の MOT の時間変動を観測し、ディスペンサーの立ち上がり時間を評価した。3.5 A から 4.5 A のすべての電流値において、電流印加を開始してから定常状態になるまでの時間は 300 s 程度であった。これは、典型的な原子オープン立ち上がり時間(数十分以上)と比較して十分に早い。また、電流値の増加に伴い定常状態の MOT 個数も増加する傾向が見られた。これは、図 5.4.15 に示すように Yb 原子の供給フローレートが電流値上昇にともない向上するためと考えられる。

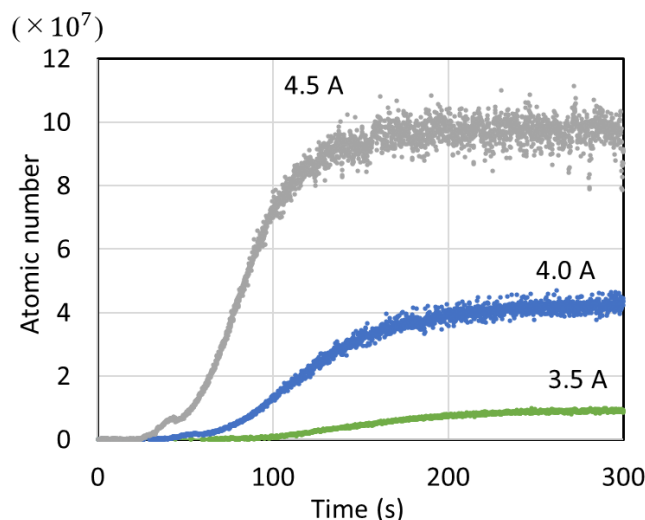


図 5.4.15 MOT の立ち上がり時間の測定結果.

ディスペンサーの駆動電流値はそれぞれ 3.5 A(緑), 4.0 A(青), 4.5 A(灰)である.

5.5 第 5 章のまとめ

小型光周波数標準の実現にむけ、小型かつ空冷式の Yb レーザー冷却装置を開発した。冷却用レーザーシステムは、399 nm のレーザー光を直接射出する ECDL と、Yb HCL を原子サンプル源とした Yb 原子の Modulation transfer 分光系、高出力化のための注入同期系、MOT beam 用と Longitudinal cooling beam 用の周波数シフターにより構成され、全体が 45 cm×90 cm のブレッドボード上に設置されている。最終的に獲得された光パワーは 200 mW 以上に到達し、レーザー冷却に十分な値である。次に、原子サンプルを含んだ市販のディスペンサー(消費電力: 3 W)を原子線源とした、空冷動作 MOT コイル(消費電力: 250 W)を有する、従来に比べて小型かつ簡便な空冷式の真空装置を設計・構築した。この装置では、Zeeman Slower 機構(消費電力: 15 W 程度)を廃止している。これらの装置を組み合わせるレーザー冷却装置を開発し、ダイレクトローディング方式で ^{168}Yb 以外の全ての同位体の MOT を達成した。 ^{174}Yb の定常状態の MOT 個数は 4.1×10^7 と見積もられ、光格子時計をはじめとした冷却原子の実験に十分な冷却 Yb 原子数が獲得された。ドップラーフリー蛍光分光からディスペンサーからの原子ビームのフラックスを評価した。フラックスのうち、MOT 領域内への流入量は $2.0 \times 10^{11}\text{s}^{-1}$ であり、レーザー冷却装置の効率性を示す MOT の収率は 1.3×10^{-5} と算出された。

本研究に関する研究発表

Junia Nomura, Tomohiko Momma, Yuki Kojima, Yusuke Hisai, Takumi Kobayashi, Daisuke Akamatsu, Feng-Lei Hong, “Direct loading of Yb atoms into a 3D magneto-optical trap from a dispenser atomic source,” AIP Advances 13, 025361 (2023).

第6章 総括

本学位論文では、半導体レーザーを用いた高性能な小型光周波数標準の実現に向けて、分布帰還型半導体レーザーを含む超小型レーザーモジュールのヨウ素分子の吸収線への周波数安定化と、イッテルビウム原子の吸収線へ周波数安定化された外部共振器型半導体レーザーを光源とした小型かつ簡便な空冷式レーザー冷却装置に関する研究を実施した。

まず、2 MHz 程度の悪い線幅を有する分布帰還型半導体レーザーと半導体光増幅器、波長変換素子が集積された超小型レーザーモジュールのヨウ素安定化を実施した。低圧保持された長いガスセル内のヨウ素分子を対象とした MTS を利用することで、先行研究に対してドップラーフリー信号の SNR が一桁改善した。また、R(36)32-0 の a_1 から a_{15} までの全ての超微細構造全成分の観測にも成功した。ドップラーフリー信号を用いてヨウ素安定化された超小型レーザーモジュールのアラン標準偏差も同様に約一桁改善し、長期の積算時間で 4.1×10^{-13} に到達した。800 秒以上で、分光系で決定されるフリッカーフロアレベルに到達していると考えられる。さらに超小型レーザーモジュールの線幅を、自作のマイケルソンファイバー干渉計を用いた線幅狭窄化により 6 kHz、すなわちヨウ素分子の吸収自然幅(~250 kHz) [127]以下に狭窄化することに成功した。狭線幅化制御の制御帯域は、サーボンプより 750 kHz であることを確認した。さらに狭線幅化されたレーザーモジュールを用いてヨウ素分子のドップラーフリー分光を実施し、その分光信号を利用してアクチュエーターを介してファイバー干渉計の光路長差を制御することで、超小型レーザーモジュールのハイブリッド周波数安定化を実現した。実現したハイブリッド安定化光源の周波数安定度は、長期の積算時間で 6.8×10^{-14} に到達した。さらにハイブリッド制御の絶対周波数を繰り返し測定することで光周波数標準としての再現性を先行研究と比較し、不確かさの範囲内であることを確認した。

市販されている DFB レーザーの線幅は、非通信波長帯域では 2 MHz 程度、通信波長帯域では 100 kHz 程度である。今回開発した半導体レーザー光源をベースとした小型なハイブリッド制御ヨウ素安定化レーザーは、可視から赤外にわたる広大な波長帯の DFB DL(線幅 ~2 MHz)に対して適用可能である。また、ファイバー干渉計を構成する各部品の利用可能な波長帯域は数十 nm 以上にも及ぶため、DFB DL の広い波長帯域に存在する多数のヨウ素分子の量子遷移へ任意にアクセス可能である。ITLA で利用されるような DFB DL アレイ光源に対しても、1 つの干渉計を共有して利用できることも強みであろう。また、近年報告された微細加工に関連する技術を適用することで、ハイブリッド制御ヨウ素安定化レーザーのさらなる小型化も期待される。今回利用したヨウ素分子を封入したセルはガラス製であり、システムに組み込まれた素子の中で最も大きい。ヨウ素原子はハロゲンの一種であり化学反応を引き起こしやすいものの、ヨウ素安定化レーザーの小型化にむけて中空ファイバー内にヨウ素分子を封入する研究が報告されている。あるいは将来的にはアルカリ原子(Rb)[128]やアルカリ土類原子(Sr)[129]のようにマイクロセルへ封入することでさらなる小型化が見込まれる。また、周波数弁別器として利用したマイケルソン干渉計はすでにオールファイバー構成であるものの、シリコンフォトニクス技術[130 - 133]を適用することで更なる小型化の可能性がある。たとえば、伝搬ロス小さな 1-m 級遅延路を 2.2 mm×5.9 mm 領域に形成する研究[130]やファラデーローターに関する研究[131]、高速変調器[132]や光検

出器[133]の研究が報告されていることに触れておく。

また、冷却原子を用いた小型光周波数標準の実現にむけ、小型かつ空冷式の Yb レーザー冷却装置を開発した。Yb レーザー冷却装置は冷却用レーザーシステムと原子オープンや MOT コイルを含んだ真空装置で構成されている。冷却用レーザーシステムは、399 nm 出射 ECDL と、Yb HCL 内の Yb 原子の Modulation transfer 分光系、高出力化のための注入同期系、MOT beam 用と Longitudinal cooling beam 用に周波数を制御する周波数シフターにより構成され、全体が 45 cm×90 cm のブレッドボード上に収納されている。最終的に獲得された光パワーは 200 mW 以上に到達し、レーザー冷却に十分なパワーである。また、消費電力が大きく煩雑な構成の原子オープンの代替として、原子サンプルを含んだ市販のディスペンサーを原子線源とした原子ビーム源を開発した。ディスペンサーの典型的な消費電力は 3 W であり、一般的な原子オープン(~100 W)や近年報告された真空導入原子オープン(~10 W)[35]に比べ十分に小さい。さらに原子ビームのドップラーフリー分光を用いて、そのフラックスを $1.4 \times 10^{13} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ と算出した。つぎに、真空チャンバーの小型化により MOT コイルの消費電力を 700 W(典型値)から 250 W まで低減させ、コイルの空冷操作を可能とした。さらにレーザー冷却装置から Zeeman Slower 機構(消費電力: 15 W 程度)を排除した。これらの装置を組み合わせるとレーザー冷却装置を開発し、典型的値として 4.1×10^7 個の ^{174}Yb の MOT を達成した。獲得された冷却 Yb 原子数は、光格子時計をはじめとした冷却原子の実験に十分な数量である。ディスペンサーからの原子フラックスのうち、単位時間あたりの MOT 領域内への流入原子数は $2.0 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$ であり、MOT の収率は 1.3×10^{-5} と算出された。

従来の光周波数標準の光源として採用されてきた固体レーザーと比較して、半導体レーザーは光周波数雑音が大きいが一方で小型かつ安価であり、波長の選択自由度も高い。加えて微細加工技術の発展に伴い、様々な光学部品との集積化が将来的に見込まれる。それゆえに、半導体レーザーを光源とした超精密分光と周波数制御技術の実現は、高性能光周波数標準の小型化への重要な研究課題に位置付けられる。本研究にて開発された小型な装置群で実現される光周波数標準は、電波の届かない領域やローカルネットワークの構築、衛星などの移動体の時間・周波数基準としての活用、移動体搭載レーザーセンシングシステム向け光源、テラ bit 級光通信の送受信システム、防災減災にむけた地殻変動活動や火山活動などによるセンチメートル精度の標高差やそれともなう重量ポテンシャル変動の計測システムの構築など、未来社会基盤への実装が強く期待されるであろう。

参考文献

- [1] F.-L. Hong, "Optical frequency standards for time and length applications," *Meas. Sci. Technol.* 28, 012002 (2017).
- [2] 洪 鋒雷, "時間周波数標準と光コム of 現状," *電気学会誌* 137, 418-421 (2017).
- [3] 今江 理人, "GPS の時系とその応用 36, 547-550 (1997).
- [4] K. Senior, J. R. Ray and R. L. Beard, "Characterization of periodic variations in the GPS satellite clocks," *GPS Solutions* 12, 211–225 (2008)
- [5] BIPM, *The International System of Units* (2009).
- [6] A. Clairon, C. Salomon, S. Guellati and W. D. Phillips, "Ramsey Resonance in a Zacharias Fountain," *EPL* 16, 165 (1991).
- [7] T. W. Hänsch, I. S. Shahin, and A. L. Schawlow, "High-Resolution Saturation Spectroscopy of the Sodium D Lines with a Pulsed Tunable Dye Laser," *Phys. Rev. Lett.* 27, 707 (1971).
- [8] T. W. Hänsch, S. A. Lee, R. Wallenstein, and C. Wieman, "Doppler-Free Two-Photon Spectroscopy of Hydrogen 1S-2S," *Phys. Rev. Lett.* 34, 307 (1975).
- [9] C. Zimmermann, R. Kallenbach, and T. W. Hänsch, "High-resolution spectroscopy of the hydrogen 1S-2S transition in an atomic beam," *Phys. Rev. Lett.* 65, 571 (1990).
- [10] D. J. Wineland and Wayne M. Itano, "Laser cooling of atoms," *Phys. Rev. A* 20, 1521 (1979).
- [11] 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).
- [12] M. Takamoto, F.-L. Hong, R. Higashi, and H. Katori, "An optical lattice clock.," *Nature* 435, 321–324 (2005).
- [13] <http://www.bipm.fr/en/publications/mep.html>
- [14] 松原 健祐, 李 瑛, 長野 重夫, 伊東 宏之, 早坂 和弘, 細川 瑞彦, " $^{40}\text{Ca}^+$ イオン光周波数標準器," *レーザー研究* 38, 517-523 (2010).
- [15] 高本 将男, 香取 秀俊, "次世代周波数標準 : 光格子時計," *光学* 37, 370-375 (2008).
- [16] T. Kohno, M. Yasuda, K. Hosaka, H. Inaba, Y. Nakajima, and F.-L. Hong, "One-Dimensional Optical Lattice Clock with a Fermionic ^{171}Yb Isotope," *Appl. Phys. Express* 2, 072501 (2009).
- [17] N. D. Lemke, A. D. Ludlow, Z. W. Barber, T. M. Fortier, S. A. Diddams, Y. Jiang, S. R. Jefferts, T. P. Heavner, T. E. Parker, and C. W. Oates, "Spin-1/2 Optical Lattice Clock," *Phys. Rev. Lett.* 103, 063001 (2009).
- [18] C. Y. Park, D.-H. Yu, W.-K. Lee, S. E. Park, E. B. Kim, S. K. Lee, J. W. Cho, T. H. Yoon, J. Mun, S. J. Park, T. Y. Kwon, and S.-B. Lee, "An Yb optical lattice clock: Current status at KRISS," *Metrologia* 50, 119 (2013).
- [19] N. Nemitz, T. Ohkubo, M. Takamoto, I. Ushijima, M. Das, N. Ohmae, and H. Katori, "Frequency

- ratio of Yb and Sr clocks with 5×10^{-17} uncertainty at 150 seconds averaging time," *Nat. Photon.* 10, 258 (2016).
- [20] M. Pizzocaro, P. Thoumany, B. Rauf, F. Bregolin, G. Milani, C. Clivati, G. A. Costanzo, F. Levi, and D. Calonico, "Absolute frequency measurement of the $^1S_0 - ^3P_0$ transition of ^{171}Yb ," *Metrologia* 54, 102 (2017).
- [21] Q. Gao, M. Zhou, C. Han, S. Li, S. Zhang, Y. Yao, B. Li, H. Qiao, D. Ai, G. Lou, M. Zhang, Y. Jiang, Z. Bi, L. Ma, and X. Xu, "Systematic evaluation of a ^{171}Yb optical clock by synchronous comparison between two lattice systems," *Sci. Rep.* 8, 8022 (2018).
- [22] N. Poli, M. Schioppo, S. Vogt, St. Falke, U. Sterr, Ch. Lisdat and G. M. Tino "A transportable strontium optical lattice clock," *Appl. Phys. B* 117, 1107–1116 (2014).
- [23] S. B. Koller, J. Grotti, St. Vogt, A. Al-Masoudi, S. Dörscher, S. Häfner, U. Sterr, and Ch. Lisdat, "Transportable Optical Lattice Clock with 7×10^{-17} Uncertainty," *Phys. Rev. Lett.* 118, 073601 (2017).
- [24] 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).
- [25] D.-H. Kong, Z.-H. Wang, F. Guo, Q. Zhang, X.-T. Lu, Y.-B. Wang and H. Chang, "A transportable optical lattice clock at the National Time Service Center," *Chinese Phys. B* 29, 070602 (2020).
- [26] M. Takamoto, Y. Tanaka and H. Katori, "A perspective on the future of transportable optical lattice clocks," *Appl. Phys. Lett.* 120, 140502 (2022).
- [27] R. J. Fasano, "A Transportable Ytterbium Optical Lattice Clock," University of Colorado at Boulder ProQuest Dissertations Publishing, 28861340 (2021).
- [28] McGrew, W.F., Zhang, X., Fasano, R.J. et al. Atomic clock performance enabling geodesy below the centimeter level. *Nature* 564, 87–90 (2018)
- [29] R. Yamamoto, J. Kobayashi, T. Kuno, K. Kato, and Y. Takahashi, "An ytterbium quantum gas microscope with narrow-line laser cooling," *New J. Phys.* 18, 023016 (2016).
- [30] A. J. Daley, M. M. Boyd, J. Ye, and P. Zoller, "Quantum Computing with Alkaline-Earth-Metal Atoms," *Phys. Rev. Lett.* 101, 170504 (2008).
- [31] J. Hartwig, S. Abend, C. Schubert, D. Schlippert, H. Ahlers, K. Posso-Trujillo, N. Gaaloul, W. Ertmer and E. M. Rasel, "Testing the universality of free fall with rubidium and ytterbium in a very large baseline atom interferometer," *New J. Phys.* 17 035011 (2015).
- [32] E. B. Norrgard, D. S. Barker, J. A. Fedchak, N. Klimov, J. Scherschligt, S. Eckel; "Note: A 3D-printed alkali metal dispenser," *Rev. Sci. Instrum.* 89, 056101 (2018).
- [33] K. I. Lee, J. A. Kim, H. R. Noh, and W. Jhe, "Single-beam atom trap in a pyramidal and conical hollow mirror," *Opt. Lett.* 21, 1177-1179 (1996).
- [34] M. Vangeleyn, P. F. Griffin, E. Riis, and A. S. Arnold, "Laser cooling with a single laser beam

- and a planar diffractor," *Opt. Lett.* 35, 3453-3455 (2010).
- [35] M. Schioppo, N. Poli, M. Prevedelli, S. Falke, C. Lisdat, U. Sterr, and G. M. Tino, "A compact and efficient strontium oven for laser-cooling experiments ", *Rev. Sci. Instrum.* 83, 103101 (2012).
- [36] M. Yasuda, T. Tanabe, T. Kobayashi, D. Akamatsu, T. Sato, and A. Hatakeyama, "Laser-Controlled Cold Ytterbium Atom Source for Transportable Optical Clocks," *J. Phys. Soc. Jpn.* 86, 125001 (2017).
- [37] U. D. Rapol, A. Krishna, A. Wasan, and V. Natarajan, "Laser cooling and trapping of Yb from a thermal source," *Eur. Phys. J. D* 29, 409 (2004).
- [38] A. Kawasaki, B. Braverman, Q. Yu and V. Vuletic, "Two-color magneto-optical trap with small magnetic field for ytterbium," *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 48 155302 (2015).
- [39] J. Ye, L. S. Ma, and J. L. Hall, "Molecular iodine clock," *Phys. Rev. Lett.* 87(27), 270801-1-4 (2001).
- [40] J. Dong, J. Liu, D. Bi, X. Ma, X. Zhu, X. Zhu, and W. Chen, "Optimal iodine absorption line applied for spaceborne high spectral resolution lidar," *Applied Optics* 19, 5413-5419 (2018).
- [41] Y. Bitou, K. Sasaki, S. Iwasaki, and F.-L. Hong, "Compact I₂-stabilized frequency-doubled Nd:YAG laser for long gauge block interferometer," *Jpn. J. Appl. Phys.* 42, 2867–2871 (2003).
- [42] M. Musha, T. Kanaya, K. Nakagawa, and K. Ueda, "The short- and long-term frequency stabilization of an injection-locked Nd:YAG laser in reference to a Fabry-Perot cavity and an iodine saturated absorption line," *Opt. Commun.* 183, 165–173 (2000).
- [43] W. Kokuyama, K. Numata, and J. Camp, "Simple iodine reference at 1064 nm for absolute laser frequency determination in space applications," *Appl. Opt.* 49(32), 6264–6267 (2010).
- [44] B. Argence, H. Halloin, O. Jeannin, P. Prat, O. Turazza, E. de Vismes, G. Auger, and E. Plagnol, "Molecular laser stabilization at low frequencies for the LISA mission," *Phys. Rev. D* 81(8), 082002-1-8 (2010).
- [45] F.-L. Hong, J. Ishikawa, J. Yoda, J. Ye, L. S. Ma, and L. L. Hall, "Frequency comparison of ¹²⁷I₂-stabilized Nd:YAG lasers," *IEEE Trans. Instrum. Meas.* 48(2), 532–536 (1999).
- [46] F.-L. Hong, J. Ishikawa, Z. Y. Bi, J. Zhang, K. Seta, A. Onae, J. Yoda, and H. Matsumoto, "Portable I₂-stabilized Nd:YAG laser for international comparisons," *IEEE Trans. Instrum. Meas.* 50(2), 486–489 (2001).
- [47] K. Ikeda, S. Okubo, M. Wada, K. Kashiwagi, K. Yoshii, H. Inaba, and F.-L. Hong, "Iodine-stabilized laser at telecom wavelength using dual-pitch periodically poled lithium niobate waveguide," *Opt. Express* 28, 2166-2178 (2020).
- [48] T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, H. Inaba, S. Okubo, T. Tanabe, M. Yasuda, A. Onae, and F. -L. Hong, "Compact iodine-stabilized laser operating at 531 nm with stability at the 10⁻¹² level and using a coin-sized laser module," *Opt. Express* 23(16), 20749–20759 (2015).

- [49] K. Yoshii, H. Sakagami, H. Yamamoto, S. Okubo, H. Inaba, and F.-L. Hong, "High-resolution spectroscopy and laser frequency stabilization using a narrow-linewidth planar-waveguide external cavity diode laser at 1063 nm," *Opt. Lett.* 45, 129-132 (2020).
- [50] Y.-C. Hsiao, C.-Y. Kao, H.-C. Chen, S.-E. Chen, J.-L. Peng, and L.-B. Wang, "Absolute frequency measurement of the molecular iodine hyperfine transitions at 548 nm," *J. Opt. Soc. Am. B* 30, 328–332 (2013).
- [51] Y. Tanabe, Y. Sakamoto, T. Kohno, D. Akamatsu, and F.-L. Hong, "Frequency references based on molecular iodine for the study of Yb atoms using the 1S0 – 3P1 intercombination transition at 556 nm," *Opt. Express* 30, 46487-46500 (2022).
- [52] Y.-C. Huang, Y.-C. Guan, T.-H. Suen, J.-T. Shy, and L.-B. Wang, "Absolute frequency measurement of the molecular iodine hyperfine transitions at 647 nm," *Appl. Opt.* 57(9), 2102-2106 (2018).
- [53] K. Döringshoff, T. Schuldt, E. V. Kovalchuk, J. Stühler, C. Braxmaier, A. Peters, "A flight-like absolute optical frequency reference based on iodine for laser systems at 1064 nm," *Appl. Phys. B* 123(183), 1-8 (2017).
- [54] K. Döringshoff, T. Schuldt, E. V. Kovalchuk, J. Stühler, C. Braxmaier, A. Peters, "A flight-like absolute optical frequency reference based on iodine for laser systems at 1064 nm," *Appl. Phys. B* 123(183), 1-8 (2017).
- [55] V. Schkolnik, K. Döringshoff, F. B. Gutsch, M. Oswald, T. Schuldt, C. Braxmaier, M. Lezius, R. Holzwarth, C. Kürbis, A. Bawamia, M. Krutzik, and A. Peters, "JOKARUS - design of a compact optical iodine frequency reference for a sounding rocket mission," *EPJ Quantum Technology* 4(9), 1-10 (2017).
- [56] T. Schuldt, K. Döringshoff, E. V. Kovalchuk, A. Keetman, J. Pahl, A. Peters, and C. Braxmaier, "Development of a compact optical absolute frequency reference for space with 10^{-15} instability," *Applied Optics* 56(4), 1101-1106 (2017).
- [57] K. Döringshoff, F. B. Gutsch, V. Schkolnik, C. Kürbis, M. Oswald, B. Pröbster, E. V. Kovalchuk, A. Bawamia, R. Smol, T. Schuldt, M. Lezius, R. Holzwarth, A. Wicht, C. Braxmaier, M. Krutzik, and A. Peters, "Iodine Frequency Reference on a Sounding Rocket," *Phys. Rev. Applied* 11, 054068 (2019).
- [58] A. Lurie, P. S. Light, J. Anstie, T. M. Stace, P. C. Abbott, F. Benabid, and A. N. Luiten, "Saturation spectroscopy of iodine in hollow-core optical fiber," *Opt. Express* 20, 11906-11917 (2012).
- [59] 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).
- [60] T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, "Absolute optical frequency measurement of the cesium D1 line with a mode-locked laser," *Phys. Rev. Lett.* 82(18), 3568–3571 (1999).
- [61] 洪 鋒雷, "光コムによる光周波数メトロロジー," *光学* 36, 60-67 (2007).

- [62] M. Lezius, T. Wilken, C. Deutsch, M. Giunta, O. Mandel, A. Thaller, V. Schkolnik, M. Schiemangk, A. Dinkelaker, A. Kohfeldt, A. Wicht, M. Krutzik, A. Peters, O. Hellmig, H. Duncker, K. Sengstock, P. Windpassinger, K. Lampmann, T. Hülasing, T. W. Hänsch, and R. Holzwarth, "Space-borne frequency comb metrology," *Optica* 3, 1381-1387 (2016).
- [63] JIS B 7506 : 2004
- [64] 尾藤洋一, 実用長さ標準器の進展 – 低熱膨張ガラス材を用いたブロックゲージ, 産総研 TODAY 5, 46-47 (2005).
- [65] O. Lux, D. Wernham, P. Bravetti, P. McGoldrick, O. Lecrenier, W. Riede, A. D'Ottavi, V. De Sanctis, M. Schillinger, J. Lochard, J. Marshall, C. Lemmerz, F. Weiler, L. Mondin, A. Ciapponi, T. Kanitz, A. Elfving, T. Parrinello, and O. Reitebuch, "High-power and frequency-stable ultraviolet laser performance in space for the wind lidar on Aeolus," *Opt. Lett.* 45, 1443-1446 (2020).
- [66] K. Numata, J. R. Chen, S. T. Wu, J. B. Abshire, and M. A. Krainak, "Frequency stabilization of distributed-feedback laser diodes at 1572 nm for lidar measurements of atmospheric carbon dioxide," *Appl. Opt.* 50, 1047-1056 (2011).
- [67] M. Imaki, H. Tanaka, K. Hirose, T. Yanagisawa, and S. Kameyama, "Demonstration of the 1.53- μm coherent DIAL for simultaneous profiling of water vapor density and wind speed," *Opt. Express* 28, 27078-27096 (2020).
- [68] K. Kasai, J. Hongo, M. Yoshida, and M. Nakazawa, "Optical phase-locked loop for coherent transmission over 500km using heterodyne detection with fiber lasers," *IEICE Electron. Express* 4, 77-81 (2007).
- [69] 大苗 敦, "光通信帯の波長標準とその伝送," *IEEJ Journal*, 137, 422-425, (2017).
- [70] <https://www.oiforum.com/technical-work/implementation-agreements-ias/>
- [71] J. Flury, "Relativistic geodesy," *J. Phys.: Conf. Ser.* 723, 012051 (2016).
- [72] X. Zheng, J. Dolde, M. C. Cambria, H. Ming Lim and S. Kolkowitz, "A lab-based test of the gravitational redshift with a miniature clock network." *Nat. Commun.* 14, 4886 (2023).
- [73] J. H. Shirley, "Modulation transfer processes in optical heterodyne saturation spectroscopy," *Opt. Lett.* 7(11), 537-539 (1982).
- [74] G. Camy, Ch. J. Bordé, and M. Ducloy, "Heterodyne saturation spectroscopy through frequency modulation of the saturating beam," *Opt. Commun.* 41(5), 325-330 (1982).
- [75] T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, Y. Hisai, M. Wada, H. Inaba, T. Suzuyama, and F.-L. Hong, and M. Yasuda, "Demonstration of the nearly continuous operation of an 171Yb optical lattice clock for half a year," *Metrologia* 57, 065021 (2020).
- [76] M. Yasuda, F.-L. Hong, T. Kohno, H. Inaba, K. Hosaka, C. Willis, T. Kurosu, A. Onae, and S. Ohshima, "Present status of the development of an Yb optical lattice clock at NMIJ/AIST (National Metrology Institute of Japan / National Institute of Advanced Industrial Science and

- Technology),” in Time and Frequency Metrology, R. J. Jones, ed., SPIE Proceedings Series 6673, 66730D (2007).
- [77] 松岡正浩, "量子光学," 裳華房 (2013).
- [78] 霜田光一, "レーザー物理入門," 岩波書店 (2013).
- [79] F. Riehle, Frequency Standards Basics and Applications, WILEY-VCH (2004).
- [80] G. Bjorklund, Marc D. Levenson, W. Lenth, C. Ortiz, "Frequency modulation (FM) spectroscopy," Appl. Phys. B 32, 145-152(1983).
- [81] M. Ohtsu, M. Murata and M. Kouroggi, "FM noise reduction and subkilohertz linewidth of an AlGaAs laser by negative electrical feedback," in IEEE Journal of Quantum Electronics, 26, 231-241 (1990).
- [82] 伊賀 健一, "レーザー光学の基礎," オーム社 (1988).
- [83] 応用物理学会編, "半導体レーザーの基礎," オーム社 (1987).
- [84] D.B. Sullivan, D.W. Allan, D.A. Howe, and F.L. Walls, "Characterization of Clocks and Oscillators," NIST Tech Note 1337, (1990).
- [85] ITU-R Handbook, "Selection and Use of Precise Frequency and Time Systems," (1997).
- [86] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, 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(5466), 635–639 (2000).
- [87] K. Tamura, E. P. Ippen, H. A. Haus, and L. E. Nelson, "77-fs pulse generation from a stretched-pulse mode-locked all-fiber ring laser," Opt. Lett. 18, 1080-1082 (1993)
- [88] 平野功, "原子スペクトル入門," 技報堂出版, (2000).
- [89] 高橋和夫, "原子分子物理学," 朝倉書店, (2000)
- [90] G. Herzberg, "Molecular spectra and molecular structure vol.I - spectra of diatomic molecules," 2nd ed. (Krieger, USA, 1950).
- [91] G. ヘルツベルグ, "分子スペクトル入門," 培風館 (1975).
- [92] S. Picard, Rapport BIPM 90/5 (1990).
- [93] S. Picard and A. Razet, Rapport BIPM 91/2 (1991).
- [94] F.-L. Hong, J. Ye, L.-S. Ma, S. Picard, C. J. Bordé, and J. L. Hall, "Rotation dependence of electric quadrupole hyperfine interaction in the ground state of molecular iodine by high-resolution laser spectroscopy," J. Opt. Soc. Am. B 18, 379-387 (2001).
- [95] R. Lang, "Injection locking properties of a semiconductor laser," in IEEE Journal of Quantum Electronics, 18, 976-983 (1982).
- [96] E. L. Raab, M. Prentiss, Alex Cable, Steven Chu, and D. E. Pritchard, "Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure," Phys. Rev. Lett. 59, 2631(1987).
- [97] T. Bergeman, G. Erez, and H. J. Metcalf, "Magnetostatic trapping fields for neutral atoms," Phys. Rev. A 35, 1535 (1987).

- [98] S. Gerstenkorn and P. Luc, “Atlas Du Spectre D' Absorption de la Molecule D' Iode,” Editions de CNRS, Paris (1978).
- [99] L. J. Gillespie and L. H. D. Fraser, “The normal vapor pressure of crystalline iodine,” *J. Am. Chem. Soc.* 58, 2260–2263 (1936).
- [100] 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).
- [101] K. Yoshii, C. Chen, H. Sakagami, and F.-L. Hong, “Hyperfine structure of molecular iodine measured using a light source with a laser linewidth at the megahertz level,” *OSA Continuum* 4, 1452-1460 (2021).
- [102] 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,” *Applied Physics B* 31, 97-105 (1983).
- [103] F. Favre and D. Guen, “Spectral properties of a semiconductor laser coupled to a single mode fiber resonator,” *IEEE J. Quantum Electron.* 21, 1937-1946 (1985).
- [104] F. Kéfélian, H. Jiang, P. Lemonde, and G. Santarelli, “Ultralow-frequency-noise stabilization of a laser by locking to an optical fiber-delay line,” *Opt. Lett.* 34, 914-916 (2009).
- [105] J. Dong, Y. Hu, J. Huang, M. Ye, Q. Qu, T. Li, and L. Liu, “Subhertz linewidth laser by locking to a fiber delay line,” *Appl. Opt.* 54, 1152-1156 (2015).
- [106] A. P. Hilton, P. S. Light, L. Talbot, and A. N. Luiten, “Optimal design for spectral narrowing and fast frequency sweep of an interferometer-stabilized laser,” *Opt. Lett.* 45, 45-48 (2020).
- [107] A. Sydnev and G. Eisenstein, “An Ultra-Coherent Semiconductor Laser Locked to a Short Delay Fiber Mach-Zehnder Interferometer With Active Fiber Noise Cancellation,” *J. Light. Technol.* 40, 4825-4831 (2022).
- [108] W.-K. Lee, C. Y. Park, J. Mun, D.-H. Yu, “Linewidth reduction of a distributed-feedback diode laser using an all-fiber interferometer with short path imbalance,” *Rev. Sci. Instrum.* 82, 073105 (2011).
- [109] Jia Kong, Vito Giovanni Lucivero, Ricardo Jiménez-Martínez, Morgan W. Mitchell, “Long-term laser frequency stabilization using fiber interferometers,” *Rev. Sci. Instrum.* 86, 073104 (2015).
- [110] M. Musha, T. Kanaya, K. Nakagawa, K. Ueda, “The short- and long-term frequency stabilization of an injection-locked Nd:YAG laser in reference to a Fabry–Perot cavity and an iodine saturated absorption line,” *Opt. Comm.* 183, 165-173 (2000).
- [111] J. Sanjuan, K. Abich, L. Blümel, M. Gohlke, V. Gualani, M. Oswald, T. Wegehaupt, T. Schuldt, and C. Braxmaier, “Simultaneous laser frequency stabilization to an optical cavity and an iodine frequency reference,” *Opt. Lett.* 46, 360-363 (2021).

- [112] H. Sakagami, K. Yoshii, T. Kobayashi, et al., “Absolute frequency and hyperfine structure of $^{127}\text{I}_2$ transitions at 531.5 nm by precision spectroscopy using a narrow-linewidth diode laser,” *J. Opt. Soc. Am. B* 37(4), 1027–1034 (2020).
- [113] G. Baysinger, “CRC Handbook of chemistry and physics”, CRC Press (2015).
- [114] D. Das, S. Barthwal, A. Banerjee, and V. Natarajan, “Absolute frequency measurements in Yb with 0.08 ppb uncertainty: Isotope shifts and hyperfine structure in the 399-nm $^1\text{S}_0$ – $^1\text{P}_1$ line,” *Phys. Rev. A* 72, 032506 (2005).
- [115] T. Tanabe, D. Akamatsu, H. Inaba, S. Okubo, T. Kobayashi, M. Yasuda, K. Hosaka, and F.-L. Hong, *Jpn. J. Appl. Phys.* 57, 062501 (2018).
- [116] T. Kohno, M. Yasuda, H. Inaba, and F.-L. Hong, “Optical Frequency Stability Measurement of an External Cavity Blue Diode Laser with an Optical Frequency Comb,” *Jpn. J. Appl. Phys. A* 47, 8856-8858(2008).
- [117] T. Hosoya, M. Miranda, R. Inoue, and M. Kozuma, “Injection locking of a high power ultraviolet laser diode for laser cooling of ytterbium atoms,” *Rev. Sci. Instrum.* 86, 073110 (2015).
- [118] T. Kobayashi, D. Akamatsu, Y. Nishida, T. Tanabe, M. Yasuda, F.-L. Hong, and K. Hosaka, “Second harmonic generation at 399 nm resonant on the $^1\text{S}_0$ – $^1\text{P}_1$ transition of ytterbium using a periodically poled LiNbO₃ waveguide,” *Opt. Express* 24, 12142 (2016).
- [119] M. Kleinert, M. E. G. Dahl, and S. Bergeson, “Measurement of the Yb $^1\text{S}_0$ – $^1\text{P}_1$ transition frequency at 399 nm using an optical frequency comb,” *Phys. Rev. A* 94, 052511(2016).
- [120] E. M. Bridge, J. Millen, C. S. Adams, M. P. A. Jones, "A vapor cell based on dispensers for laser spectroscopy," *Rev. Sci. Instrum.* 80, 013101 (2009).
- [121] S. Dörscher, A. Thobe, B. Hundt, A. Kochanek, R. L. Targat, P. Windpassinger, C. Becker, and K. Sengstock, “Creation of quantum-degenerate gases of ytterbium in a compact 2D-/3D-magneto-optical trap setup,” *Rev. Sci. Instrum.* 84, 043109 (2013).
- [122] A. Jenkins, J. W. Lis, A. Senoo, W. F. McGrew, and A. M. Kaufman, “Ytterbium Nuclear-Spin Qubits in an Optical Tweezer Array,” *Phys. Rev. X* 12, 021027 (2022).
- [123] C. Y. Park and T. H. Yoon, “Efficient magneto-optical trapping of Yb atoms with a violet laser diode,” *Phys. Rev. A* 68, 055401 (2003).
- [124] <http://alfavakuo.eu/products/mvs/>
- [125] C. Monroe, W. Swann, H. Robinson, and C. Wieman, "Very cold trapped atoms in a vapor cell," *Phys. Rev. Lett.* 65, 1571(1990).
- [126] B. P. Anderson and M. A. Kasevich, "Loading a vapor-cell magneto-optic trap using light-induced atom desorption," *Phys. Rev. A* 63, 023404 (2001).
- [127] M. L. Eickhoff and J. L. Hall, "Optical frequency standard at 532 nm," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 44, 155-158 (1995).
- [128] M. T. Hummon, S. Kang, D. G. Bopp, Q. Li, D. A. Westly, S. Kim, C. Fredrick, S. A.

- Diddams, K. Srinivasan, V. Aksyuk, and J. E. Kitching, "Photonic chip for laser stabilization to an atomic vapor with 10^{-11} instability," *Optica* 5, 443-449 (2018).
- [129] J. M. Pate, J. Kitching, and M. T. Hummon, "Microfabricated strontium atomic vapor cells," *Opt. Lett.* 48, 383-386 (2023).
- [130] S. Hong, L. Zhang, Y. Wang, M. Zhang, Y. Xie, and D. Dai, "Ultralow-loss compact silicon photonic waveguide spirals and delay lines," *Photon. Res.* 10, 1-7 (2022).
- [131] Y. D'Mello, S. Bernal, A. Helmy, E. Berikaa, O. Carpentier, I. Alamgir, M. S. Alam, E. El-Fiky, and D. V. Plant, "Standalone, CMOS-based Faraday rotation in a silicon photonic waveguide," *Opt. Express* 30, 24602-24610 (2022).
- [132] L. Chen, K. Preston, S. Manipatruni, and M. Lipson, "Integrated GHz silicon photonic interconnect with micrometer-scale modulators and detectors," *Opt. Express* 17, 15248-15256 (2009).
- [133] S. Y. Siew, B. Li, F. Gao, H. Y. Zheng, W. Zhang, P. Guo, S. W. Xie, A. Song, B. Dong, L. W. Luo, C. Li, X. Luo, and G.-Q. Lo, "Review of Silicon Photonics Technology and Platform Development," *J. Lightwave Technol.* 39, 4374-4389 (2021).

謝辞

本博士論文は多くの方のご指導ご協力により、まとめることができました。全員を挙げることはできませんが、ここに記して感謝を申し上げます。

学部課程より終始親切なご指導賜りました横浜国立大学大学院工学研究院教授洪鋒雷博士に心から感謝の意を表します。修士課程より同様に終始親切なご指導賜りました横浜国立大学大学院工学研究院准教授赤松大輔博士に心から感謝の意を表します。

ご多忙にもかかわらず、審査を引き受けてくださいました横浜国立大学大学院工学研究院教授武田淳博士、横浜国立大学大学院工学研究院教授片山郁文博士、横浜国立大学大学院工学研究院准教授堀切智之博士には熱心な御討論と御意見、御指導を賜りました。ここに心から感謝の意を表します。

龍谷大学先端理工学部講師吉井一倫博士（当時横浜国立大学大学院助教）にも、学部課程より終始親切なご指導賜りました。特に第3章の研究において共同研究者として様々な御支援、御助言を賜りました。ここに心から感謝の意を表します。

産業技術総合研究所物理計測標準研究部門小林拓実博士にも、第5章の研究において共同研究者として様々な御支援、御助言を賜りました。ここに心から感謝の意を表します。

第3章および第5章の共同研究者である久井裕介博士（当時横浜国立大学大学院学生）、第5章の共同研究者である門馬知彦様、小嶋優輝様（いずれも当時横浜国立大学大学院学生）にも様々な御支援、御助言を賜りました。ここに心から感謝の意を表します。

博士課程進学に関しまして御支援賜りました三菱電機株式会社先端技術総合研究所所長高林幹夫様（当時三菱電機株式会社情報技術総合研究所光技術部部長）に心から感謝の意を表します。三菱電機株式会社情報技術総合研究所光技術部部長鈴木巨生様にも博士課程在学中の御配慮を賜り、心から感謝の意を表します。三菱電機株式会社情報技術総合研究所光技術部先進フォトリソグループグループマネージャー大畠信夫博士には博士課程進学に関する御配慮に加え、半導体レーザーに関する有用な議論と御助言を賜りました。心から感謝の意を表します。

最後に、長きにわたる学生生活を支えていただいた母野邑千恵子とパートナー、友人、同僚の皆様に心から感謝の意を表します。

研究成果

第 3 章に関する研究成果

(論文)

- (1). Junia Nomura, Kazumichi Yoshii, Yusuke Hisai, and Feng-Lei Hong, "Precision spectroscopy and frequency stabilization using coin-sized laser modules," J. Opt. Soc. Am. B 36, 631-637 (2019).

第 4 章に関する研究成果

(論文)

- (2). Junia Nomura, Daisuke Akamatsu, and Feng-Lei Hong, "Linewidth narrowing and frequency stabilization of a coin-sized laser module," Opt. Continuum 2, 2552-2560 (2023).

第 5 章に関する研究成果

(論文)

- (3). Junia Nomura, Tomohiko Momma, Yuki Kojima, Yusuke Hisai, Takumi Kobayashi, Daisuke Akamatsu, Feng-Lei Hong, "Direct loading of Yb atoms into a 3D magneto-optical trap from a dispenser atomic source," AIP Advances 13, 025361 (2023).

(国際学会, 筆頭のみ)

- (4). Junia Nomura, Yusuke Hisai, Kazumichi Yoshii, Feng-Lei Hong, "Sub-Doppler Spectroscopy of Yb Using a Diode Laser at 399 nm," the 24th General Congress of International Commission for Optics (2017).

(国内学会, 筆頭のみ)

- (5). 野邑寿仁亜, 久井裕介, 吉井一倫, 洪 鋒雷, "399nm 半導体レーザーを用いた Yb 原子のドップラーフリー分光," 2pB3, 2016 年 10 月.
- (6). 野邑寿仁亜, 久井裕介, 吉井一倫, 洪 鋒雷, "399nm フィルター型外部共振器半導体レーザーを用いた Yb 原子のドップラーフリー分光," 17aH12-9, 2017 年 3 月.
- (7). 野邑寿仁亜, 門馬知彦, 久井裕介, 吉井一倫, 小林拓実, 赤松大輔, 洪 鋒雷, "Yb 原子レーザー冷却用の小型な真空及びレーザー装置の開発," 日本光学会年次学術講演会, 2aC1, 2018 年 10 月.
- (8). 野邑寿仁亜, 門馬知彦, 久井裕介, 吉井一倫, 小林拓実, 赤松大輔, 洪 鋒雷, "Yb ディスペンサー原子源を用いた小型レーザー冷却装置の開発," 日本物理学会第 74 回年次大会, 16pK304-11, 2019 年 3 月.

その他の研究成果（論文）

- (9). Junia. Nomura and Nobuo. Ohata, "Improvement of Output Characteristics of a Large-Mode-Area Er-Doped Fiber Amplifier Pulse Pumped by a Cascaded Raman Fiber Laser With a Low Repetition Frequency," IEEE Photonics Journal, 15, 1502306 (2023).
- (10). Junia Nomura, Kenichi Hirosawa, Takayuki Yanagisawa, Nobuo Ohata, Shunsuke Imamura, Daisuke Sakaizawa, and Naoya Tomii, "Single-frequency 45-mJ pulses from a MOPA system using an Er,Yb:glass planar waveguide amplifier and a large mode area Er-doped fiber amplifier," Opt. Lett. 48, 1758-1761 (2023)
- (11). Masayuki Omaki, Yoshitaka Kajiyama, Masaharu Imaki, Yoko Inoue, Shota Nakahara, Natsuki Honda, Eiji Niikura, Yoshiaki Hirata, Junia Nomura, Michinori Yoshida, Hiroshi Sakamaki, Sato Kobayashi, Hirobumi Matsui, Yuichiro Horiguchi, Masahiro Kawai, Shohei Tsukamoto, Yoshitaka Tsuboi, Yosuke Tsuzaki, Yosuke Takagawa, Hiroaki Inoue, Yohei Miki, Takayuki Yanagisawa, Takaki Sugino, Hiroshi Sakanoue, Kozo Ishida, and Shumpei Kameyama, "Compact and MEMS-Scanner-Based 3-D Imaging LiDAR With Wide Scanning Angle of $147.5^\circ \times 11.6^\circ$ Using Multiple Transmitters and a Single Small Photodetector With Diameter of 0.5 mm," IEEE Sensors Journal, 22, 20389-20400 (2022).
- (12). Kazumichi Yoshii, Junia Nomura, Kaho Taguchi, Yusuke Hisai, and Feng-Lei Hong, "Optical frequency metrology study on nonlinear processes in a waveguide device for ultrabroadband comb generation," Phys. Rev. Applied 11, 054031 (2019).

Precision spectroscopy and frequency stabilization using coin-sized laser modules

JUNIA NOMURA,^{1,2}  KAZUMICHI YOSHII,^{1,2}  YUSUKE HISAI,^{1,2}  AND FENG-LEI HONG^{1,2,*} 

¹Department of Physics, Graduate School of Engineering Science, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan

²Japan Science and Technology Agency, ERATO, MINOSHIMA Intelligent Optical Synthesizer Project, 1-5-1 Chofugaoka, Chofu, Tokyo 182-8585, Japan

*Corresponding author: hong-fl@ynu.ac.jp

Received 10 December 2018; revised 17 January 2019; accepted 17 January 2019; posted 17 January 2019 (Doc. ID 355076); published 14 February 2019

We demonstrate high-resolution spectroscopy of molecular iodine using coin-sized laser modules at 531 nm, 561 nm, and 594 nm. Hyperfine components of the $R(36)32-0$, $P(64)20-0$, and $P(69)12-1$ transitions are observed with a signal-to-noise ratio of several tens over a bandwidth of 100 Hz. The laser modules are frequency-stabilized to the observed hyperfine components and achieve stabilities at a level of 10^{-12} for a 1-s averaging time. The frequency-stabilized coin-sized laser modules are useful for various applications, including interferometric measurements and studies of molecular iodine. © 2019 Optical Society of America

<https://doi.org/10.1364/JOSAB.36.000631>

1. INTRODUCTION

Laser spectroscopy and frequency stabilization are of great interest for a wide range of applications, including fundamental science and technologies that support broadband communication networks and precision measurements. High-resolution laser spectroscopy can be used, for instance, to verify the constancy of fundamental constants [1,2] and to perform space missions [3–6]. Frequency-stabilized lasers are used as length standards in metrology applications [7] and as experimental tools for laser cooling and quantum optics. Research on frequency-stabilized lasers is also strongly linked to that of optical frequency combs, which were developed at the end of the last century [8,9] and have further stimulated the field of optical frequency metrology [10].

Issues in laser spectroscopy and frequency stabilization include the compactness and cost efficiency of the laser source. A compact iodine-stabilized laser emitting at 532 nm is attractive for applications including flywheel oscillators or absolute frequency markers for optical frequency combs [11–14], interferometric measurements of gauge blocks [15], gravitational wave detection [16–18], and high-resolution spectroscopy of molecular iodine [19]. Some compact Nd:YAG systems [15,17,18,20,21] have already been developed using a non-planar ring oscillator (NPRO) Nd:YAG laser that contains a monolithic laser cavity [22]. The NPRO Nd:YAG laser has a size of approximately 10 cm × 10 cm × 10 cm and a relatively high cost. Recently, an ultra-compact iodine-stabilized laser was developed based on Doppler-free spectroscopy using a low-cost coin-sized light source at 531 nm [23]. The laser system has reached a frequency stability of 5×10^{-11} at an averaging time

of 1 s [23] and was successfully used in the interferometric measurement of gauge blocks [24]. However, in such an iodine-stabilized laser system, only two hyperfine components at the high- and low-frequency ends of iodine transitions were observed because of strong linear absorption around the Doppler center. The observation of all hyperfine components should provide more options with different absorption frequencies for laser frequency stabilization and enable studies on the hyperfine constants of molecular iodine [19,25].

Another issue in laser spectroscopy and frequency stabilization is the necessity to establish frequency-stabilized laser systems at different wavelengths for a wide range of applications. For instance, in precise measurements of long gauge blocks, the excess fraction method [26] requires frequency-stabilized lasers with at least two, desirably three, wavelengths. As shown in [7], besides the Rb-stabilized lasers at 778 and 780 nm and the C₂H₂-stabilized laser at 1.54 μm, most frequency-stabilized lasers at visible wavelengths use iodine as a frequency reference. The spectra of molecular iodine cover a wide wavelength range from green to red, with strong absorption. In addition to the well-known 633-nm and 532-nm absorption lines, an iodine line at 515 nm [27] has been used to stabilize several kinds of laser sources. Historically, iodine saturation spectroscopy has been performed using an argon/krypton ion laser at 515 nm, 521 nm, 531 nm, and 568 nm [28]. Hyperfine components at 660 nm have been observed using a frequency-doubled Nd:YAG laser at 1319 nm [29], and iodine lines near the ¹S₀-³P₀ clock transition of atomic ytterbium (Yb) at 578 nm have been studied using different light sources

[30,31]. A frequency-doubled Nd:YAG laser and external-cavity diode laser were used to measure hyperfine components at 561 nm and 560 nm, respectively [32,33]. More recently, external-cavity diode lasers have been utilized to measure hyperfine components at 548 nm and 647 nm [34,35]. To our knowledge, low-cost coin-sized lasers have not been used for iodine spectroscopy at wavelengths other than 531 nm. Since compact lasers use distributed-feedback (DFB) diode lasers as a light source, it is useful to determine whether a megahertz-linewidth DFB laser is applicable to high-resolution spectroscopy of molecular iodine at wavelengths longer than 531 nm, where the iodine absorption is relatively weak.

In this paper, we demonstrate the observation of all hyperfine components of the $R(36)32-0$, $P(64)20-0$, and $P(69)12-1$ transitions of molecular iodine using low-cost coin-sized laser modules at 531 nm, 561 nm, and 594 nm, respectively. To reduce the linear absorption, increase the signal-to-noise ratio (S/N), and reduce the absorption linewidth, we use a much longer iodine cell with a much lower iodine pressure and perform Doppler-free spectroscopy without frequency modulation on the laser source, in contrast to the experimental conditions in [23]. Laser frequency stabilization is performed using the observed hyperfine components. For the 531-nm case, we obtained a laser frequency stability of 4.3×10^{-12} at an averaging time of 1 s, which represents an improvement of approximately 1 order of magnitude compared to [23]. We also achieved frequency stabilities of 7.1×10^{-12} and 9.6×10^{-12} at an averaging time of 1 s using low-cost coin-sized laser modules at 561 nm and 594 nm, respectively. The observed hyperfine components and demonstrated frequency stabilities are useful for broadening the application range of such low-cost frequency-stabilized lasers.

2. EXPERIMENTAL SETUP

As an example, Fig. 1(a) shows an image of a compact laser module emitting at 531 nm (QDLaser, QLD0593-3220). Two other laser modules emit at 561 nm (QLD0593-6120) and 594 nm (QLD0593-9420). The dimensions of the

compact laser modules are $20 \text{ mm} \times 6 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$ (length \times width \times thickness). The laser modules consist of a DFB diode laser (DFB-DL) operating in the infrared region, a semiconductor optical amplifier, and a periodically poled lithium niobate crystal for second-harmonic generation (SHG), as shown in Fig. 1(b). We mounted each module on a Peltier device, which we used to control the temperature of the laser module. The lasers emit a fundamental light (1062 nm, 1122 nm, and 1188 nm) with a power of $\sim 60 \text{ mW}$ and an SHG light (531 nm, 561 nm, and 594 nm) with a power of $\sim 20 \text{ mW}$, respectively. Figure 1(c) shows the frequency range of the 531-nm compact laser as the temperature of the laser is varied. The laser frequency can be smoothly tuned over 500 GHz without large mode hopping. The sensitivity of the frequency against temperature is $-42.2 \text{ GHz}/^\circ\text{C}$. We can also change the frequency of the compact laser by tuning the current of the DFB-DL with a sensitivity of $-8.8 \text{ GHz}/\text{mA}$. The typical current used to operate the lasers is about 150 mA. A low-pass filter at 2 Hz is introduced between the current driver and the laser diode. As shown in Figs. 1(e) and 1(g), for the 561-nm and 594-nm laser modules, the sensitivities of the frequency against temperature are -39.5 and $-36.5 \text{ GHz}/^\circ\text{C}$, respectively. Figures 1(d), 1(f), and 1(h) show available iodine absorption transitions within the tuning ranges of the 531-nm, 561-nm, and 594-nm laser modules, respectively. In these figures, only absorption lines with a relative intensity of 40 or more are extracted from [36].

Figure 2 shows a schematic illustration of the experimental setup for Doppler-free spectroscopy of molecular iodine and frequency stabilization using the laser modules. The SHG laser beam was separated from the fundamental beam using a dichroic mirror. The SHG beam was then sent to the iodine spectrometer through either a free-space laser beam or a single-mode optical fiber. Spectroscopy and frequency stabilization using the 531-nm laser module were first performed in free space, followed by the use of optical fibers for compatible connections among the lasers with different wavelengths. Using a fiber

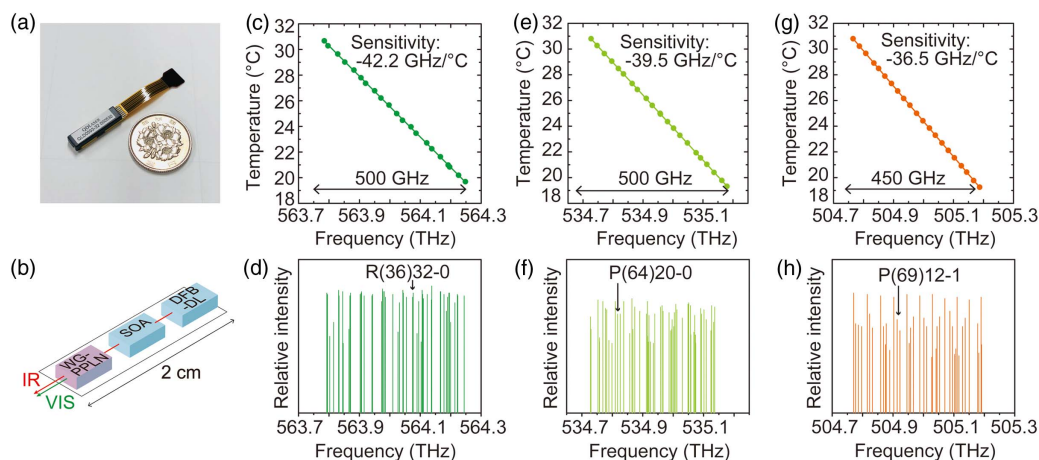


Fig. 1. (a) Photograph of a compact laser module and a Japanese hundred-yen coin. (b) Schematic diagram of the compact laser module. DFB-DL, distributed-feedback diode laser; SOA, semiconductor optical amplifier; WG-PPLN, waveguided-type periodically poled lithium niobate. The frequency tuning ranges of the compact lasers as a function of the DFB-DL temperature at (c) 531 nm, (e) 561 nm, and (g) 594 nm. Frequency atlases of the iodine molecular transition in the frequency tuning ranges of the compact lasers near (d) 531 nm, (f) 561 nm, and (h) 594 nm. The arrows indicate iodine transitions observed and used for frequency stabilization.

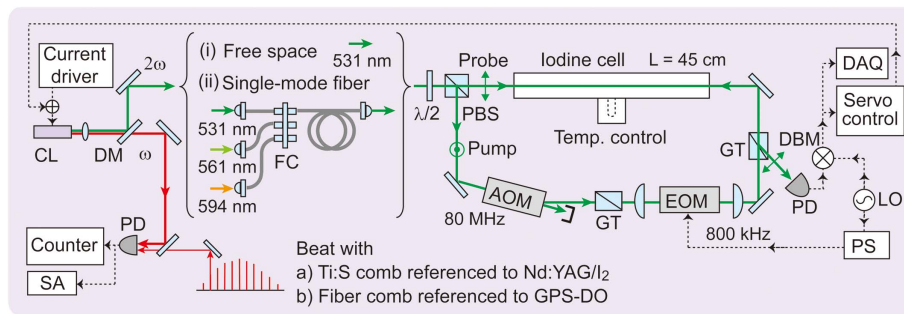


Fig. 2. Schematic diagram of the experimental setup for Doppler-free spectroscopy and laser frequency stabilization based on the modulation transfer technique. CL, compact laser; DM, dichroic mirror; FC, fiber connector; $\lambda/2$, half-wave plate; PBS, polarization beam splitter; AOM, acousto-optical modulator; EOM, electro-optical modulator; GT, Glan–Thompson prism; PD, photodetector; DBM, double-balanced mixer; LO, local oscillator; PS, phase shifter; DAQ, data acquisition system; Ti:S, titanium sapphire mode-locked laser; Nd:YAG laser/ I_2 , iodine-stabilized Nd:YAG laser; GPS-DO, GPS disciplined oscillator; SA, spectrum analyzer. The optical and electrical paths are shown as solid and dashed lines, respectively.

connection, we can easily change the light source from the 531-nm laser module to the 561-nm and 594-nm laser modules by switching the port of the fiber connectors. We note that this light source selection can be realized under computer control using micro electro mechanical systems (MEMS) fiber-optic switches.

Doppler-free spectroscopy of molecular iodine was carried out based on the modulation transfer technique [37,38]. The laser beam was separated into two parts by a half-wave plate ($\lambda/2$) and a polarization beam splitter, which were introduced to adjust the power ratio of the reflected beam (pump beam) and transmitted beam (probe beam). The pump beam was frequency-shifted by 80 MHz using an acousto-optic modulator (AOM) and phase-modulated by an electro-optical modulator (EOM) at a modulation frequency of 800 kHz. The AOM was used to prevent interferometric baseline problems in the iodine spectrometer. The pump and probe beam were overlapped anticollinearly in a 45-cm iodine cell. The unmodulated probe beam passed through the iodine cell and developed sidebands by a non-linear resonant four-wave mixing process when saturation occurred [37,38]. This probe beam was separated from the pump beam by a Glan–Thompson prism and was detected by a photodetector. We obtained the modulation transfer signal of the spectral lines by demodulating the signal from the detector. The demodulated signal was recorded by a data acquisition system. This signal was fed back to the injection current of the DFB-DL through a servo system when frequency stabilization was carried out. All of the optical parts of the iodine-stabilized laser were arranged on a 45 cm \times 75 cm breadboard.

To evaluate the stability of the iodine-stabilized compact laser, the fundamental beam was sent to optical frequency comb systems for frequency measurement. We have two frequency combs in our laboratory, each with advantages and disadvantages.

(1) A frequency comb based on a mode-locked Ti:sapphire laser (Ti:s comb): The linewidth of each comb component is on the kilohertz level. The servo bandwidth of the comb is relatively large so that the comb can be easily locked to an optical reference, such as an I_2 -stabilized Nd:YAG laser. Consequently,

the frequency stability of the comb components follows that of the Nd:YAG laser, which is better than that of most microwave frequency references. In contrast, the Ti:s comb can only be continuously operated at the hour level. Furthermore, significantly more effort is necessary to maintain the routing operation of the Ti:s comb system. We used a Ti:s comb to evaluate the linewidth and stability of the 531-nm frequency-stabilized laser module. The Ti:s comb operated at a repetition rate (f_{rep}) of 780 MHz, which was self-referenced [9] and phase-locked to an iodine-stabilized Nd:YAG laser [39]. After this measurement, our laboratory shifted from the Ti:s comb to a second comb system based on a mode-locked Er:fiber laser.

(2) A mode-locked Er:fiber laser (fiber comb): The linewidth of each comb component is of the order of tens of kilohertz. The servo bandwidth of the comb is relatively small, limited by the piezoelectric transducer (PZT) attached to the fiber in the laser cavity. Because of this limited servo bandwidth, the fiber comb cannot be locked to an optical frequency reference but can be locked to a microwave frequency reference [GPS disciplined oscillator (GPS-DO)]. In contrast to the Ti:s comb, the fiber comb can continuously operate for several weeks or months. Moreover, the GPS-DO provides a frequency reference that can be traced back to the SI second through GPS time. For evaluation of the 561-nm and 594-nm lasers, we used a fiber comb operated at a repetition rate of 107 MHz, which was phase-locked to a local oscillator referenced to the GPS time signal.

The frequency of the beat signal between the compact laser and the optical frequency combs was measured by a Π -type frequency counter (Pendulum, CNT-91) with zero dead time.

3. EXPERIMENTAL RESULTS

A. High-Resolution Doppler-Free Spectroscopy

Figure 3(a) shows the observed modulation transfer signal of the $R(36)32-0$ transition, obtained using the laser module at 531 nm. Laser frequency scanning was performed by tuning the injection current of the DFB-DL. The powers of the pump and probe beams were 3.0 mW and 60 μ W, respectively, and the diameters of the pump and probe beams were 1.4 mm and 1.3 mm, respectively. The cold-finger temperature of the iodine

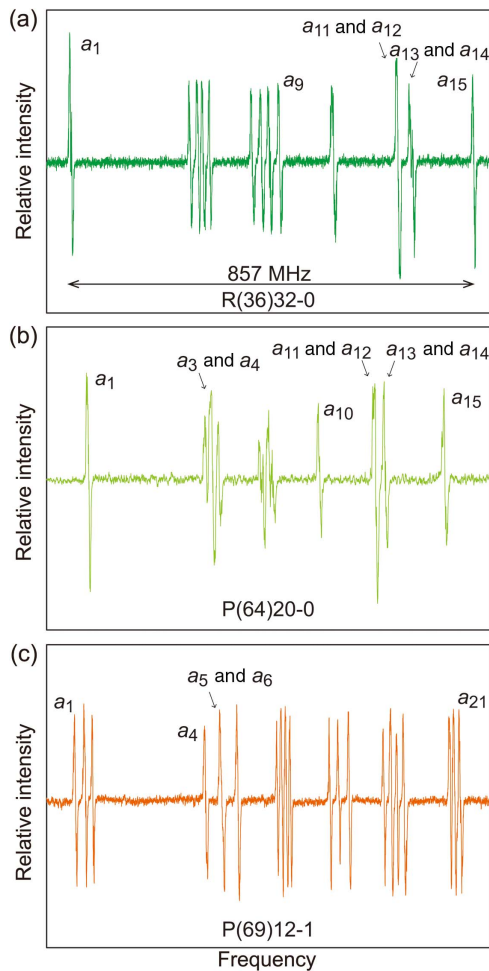


Fig. 3. Doppler-free spectra of the (a) $R(36)32-0$ transition of molecular iodine obtained over a bandwidth of 100 Hz, (b) $P(64)20-0$ transition of molecular iodine obtained over a bandwidth of 30 Hz, and (c) $P(69)12-1$ transition of molecular iodine obtained over a bandwidth of 30 Hz.

cell was held at -5°C , corresponding to an iodine pressure of 2.5 Pa. The temperature of the cell body matched the controlled room temperature of 23°C . The transition is indicated by an arrow in Fig. 1(d) and was previously investigated in [23]. In contrast to the two hyperfine components observed in [23], all 15 hyperfine components of the $R(36)32-0$ transition are observed in the present experiment. When the ground state of molecular iodine has an even (odd) rotational quantum number, the rovibrational energy level is split into 15 (21) sub-levels, which results in 15 (21) hyperfine components from a_1 to a_{15} (a_{21}). As shown in Fig. 3(a), the a_{11} and a_{12} components overlap, as do the a_{13} and a_{14} components. The S/N of the a_9 component, which is located at the Doppler center, was approximately 57 for a bandwidth of 100 Hz, and the spectral linewidth of the a_9 component was 5 MHz.

Figures 3(b) and 3(c) show the observed modulation transfer signal of the $P(64)20-0$ and $P(69)12-1$ transitions obtained using the 561-nm and 594-nm laser modules, respectively. The optical powers of the pump and probe beams in the iodine spectrometer are 2.5 and 0.12 mW for the 561-nm case and 3.4

and 0.12 mW for the 594-nm case. The other experimental parameters are the same as in the 531-nm case. The transitions are indicated by arrows in Figs. 1(f) and 1(h). All 15 and 21 hyperfine components are observed, for the first time, for the $P(64)20-0$ and $P(69)12-1$ transitions, respectively. In the $P(64)20-0$ transition, the a_3 and a_4 components overlap, as do the a_{11} and a_{12} , and the a_{13} and a_{14} components. In the $P(69)12-1$ transition, the a_5 and a_6 components overlap. The S/N of the a_{10} component of the $P(64)20-0$ transition and that of the a_4 component of the $P(69)12-1$ transition are 38 and 12, respectively, for a bandwidth of 100 Hz.

We note that the present experimental system can be used to observe hyperfine components of 84, 56, and 64 iodine transitions, which have not been fully resolved before, at 531-nm, 561-nm, and 594-nm wavelengths, respectively [as indicated in Figs. 1(d), 1(f), and 1(h), respectively]. The flat baseline of the observed spectra in the present experiment is important for minimizing the frequency instability.

B. Laser Frequency Stabilization

The frequency of the laser modules is stabilized by servo-controlling the injection current of the DFB-DL using the observed modulation transfer signals. Figure 4 shows the observed beat notes between the fundamental light of the frequency-stabilized 531-nm laser and the Ti:s comb. The inset shows the observed enlarged beat signal (f_{beat}) at a resolution bandwidth of 300 kHz. f_{rep} is the repetition rate of the comb, and the $(f_{\text{rep}} - f_{\text{beat}})$ signal is the beat frequency between the laser and the second-nearest comb. The S/N of the observed beat signals exceeds 30 dB at a resolution bandwidth of 300 kHz and is sufficient for frequency measurements with a frequency counter. The observed linewidth of ~ 1 MHz indicates the linewidth of the stabilized compact laser since the linewidth of the Ti:s comb is at the kilohertz level. For comparison, the

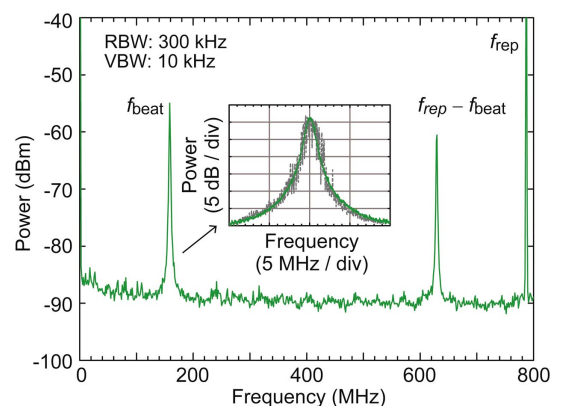


Fig. 4. Beat notes between the fundamental light of the compact laser frequency-stabilized to the a_9 component of the $R(36)32-0$ transition and the optical frequency comb stabilized to the iodine-stabilized Nd:YAG laser. The inset shows an enlarged beat signal (f_{beat}) at a resolution bandwidth of 300 kHz. f_{rep} is the repetition rate of the comb, and the $(f_{\text{rep}} - f_{\text{beat}})$ signal is the beat frequency between the laser and the second-nearest comb. The dashed line and green line show the linewidth of the free running and frequency-locked laser, respectively.

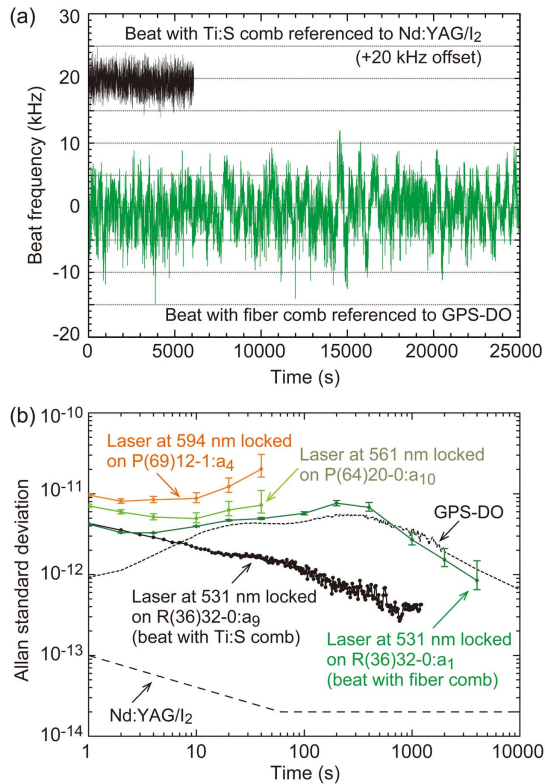


Fig. 5. (a) Measured time variation of the beat frequency between the 531-nm laser module stabilized to the a_9 component of the $R(36)32-0$ transition and the Ti:s comb locked to the I_2 -stabilized Nd:YAG laser using a frequency counter with a gate time of 1 s (upper solid black curve). The measured long-term beat frequency between the frequency-stabilized 531-nm laser and the fiber comb locked to the GPS signal with a gate time of 1 s (lower solid green curve). (b) The Allan standard deviation calculated from the measured beat frequency between the compact lasers and the optical frequency combs. The solid black curve shows the Allan standard deviation calculated from the measured beat frequency between the compact laser locked on the a_9 component of the $R(36)32-0$ transition and the Ti:s comb stabilized to the iodine-stabilized Nd:YAG laser. The green, light green, and orange curves show the Allan standard deviation of the frequency-stabilized compact laser emitting at 531 nm, 561 nm, and 594 nm, respectively, measured using the fiber comb stabilized to the GPS-DO. The dotted curve and dashed line show the Allan standard deviation of the GPS-DO reference signal and that of a typical iodine-stabilized Nd:YAG laser, respectively.

linewidth of the free-running compact laser (~ 2 MHz) is also presented using a dashed line.

The black curve in Fig. 5(a) shows the time variation of the beat frequency between the 531-nm laser module stabilized to the a_9 component of the $R(36)32-0$ transition and the Ti:s comb locked to the I_2 -stabilized Nd:YAG laser. The maximum excursion of the beat frequency over 6000 s was approximately 15 kHz. The solid black curve in Fig. 5(b) shows the Allan standard deviation calculated from the measured beat frequency. The Allan standard deviation was 4.3×10^{-12} for $\tau = 1$ s, improving toward 4.1×10^{-13} after 800 s. At $\tau > 800$ s, the Allan standard deviation appears to reach the flicker floor of the system. The observed Allan standard deviation does not exactly follow the $1/\sqrt{\tau}$ character due to

unexpected noise, such as residual amplitude modulation in the iodine spectrometer. For comparison, the frequency stability of the Nd:YAG laser is also shown in Fig. 5(b) as a dashed curve, starting from 1×10^{-13} at 1 s improving after 100 s to approximately 2×10^{-14} . Since the stability of the Nd:YAG laser and the Ti:s comb is better than that of the frequency-stabilized laser module, the observed Allan standard deviation indicates the stability of the 531-nm laser module. The laser frequency stability obtained in the present work is approximately 10-fold better than that in [23].

The frequency stability of the 531-nm laser module was also measured using a fiber comb to verify the stability of the fiber comb. The green curve in Fig. 5(a) shows the time variation of the beat note between the laser locked on the a_1 component of the $R(36)32-0$ transition and the fiber comb. The powers of the pump and probe beams in the iodine spectrometer were 6.45 mW and 0.2 mW, respectively, and the cold-finger temperature of the iodine cell was held at -10°C , corresponding to an iodine pressure of 1.4 Pa. The other experimental parameters were the same as in the measurement using the Ti:s comb. The maximum excursion of the beat frequency over 25,000 s was approximately 20 kHz. The Allan standard deviation calculated from the measured beat frequency is shown in Fig. 5(b) as a solid green curve. For comparison, the frequency stability of the GPS-DO timebase is also shown in Fig. 5(b) as a dotted curve, starting from 1×10^{-12} at 1 s, degrading to 6×10^{-12} after 400 s, and improving again after 10,000 s to approximately 6×10^{-13} . We note that the Allan standard deviation of the measured beat frequency between the 531-nm laser module and the fiber comb follows the Allan standard deviation of the 531-nm laser module and that of the fiber comb. For the short term ($\tau \leq 3$ s), the measured Allan standard deviation was basically limited by the stability of the 531-nm laser module, although for $\tau > 4$ s, the measured Allan standard deviation was basically limited by the stability of the GPS-DO.

In Fig. 5(b), the solid light-green curve shows the Allan standard deviation calculated from the measured beat frequency between the 561-nm laser module stabilized to the a_{10} component of the $P(64)20-0$ transition and the fiber comb locked on the GPS-DO signal. The frequency stability of the iodine-stabilized 561-nm laser module was 7.1×10^{-12} for a 1-s averaging time. The orange curve in Fig. 5(b) shows the Allan standard deviation calculated from the measured beat frequency between the 594-nm laser module stabilized to the a_4 component of the $P(69)12-1$ transition and the fiber comb. The frequency stability of the iodine-stabilized 594-nm laser module was 9.6×10^{-12} for a 1-s averaging time. The experimental conditions were the same as in the observation of hyperfine components using the 561-nm and 594-nm laser modules described in Section 3.A. The frequency stabilities of both the 561-nm and 594-nm laser modules hit the flicker floor and start to drift after $\tau = 3$ s. The iodine transitions at 561 nm and 594 nm exhibit different absorbances and sometimes different lower vibrational quantum numbers compared to those at 531 nm. Therefore, the experimental parameters, such as iodine pressure, environmental temperature, and laser power, need to be fully investigated to achieve optimal laser frequency stability and reproducibility.

4. DISCUSSION AND CONCLUSION

In the present experiment, an external EOM was introduced to perform frequency modulation in spectroscopy. This approach resulted in unmodulated fundamental and SHG laser beams as output for applications. Furthermore, the frequency stabilization using iodine signals eliminated frequency jitter and reduced the linewidth of the fundamental light to 1 MHz. Compared to frequency-stabilized lasers with relatively large frequency modulation [23], modulation-free frequency-stabilized lasers should have a much wider range of applications. For example, such a laser can be used as a frequency reference for optical frequency combs.

The laser linewidth of the compact laser modules is already comparable to the linewidth of the Doppler-free iodine spectra. This is the main factor that limits the improvement of the frequency stability in case of the 531-nm laser compared to the previous work [23]. The spectral linewidth cannot be further reduced by decreasing the iodine pressure or laser power. Therefore, prestabilization of the laser source and narrowing of the laser linewidth may be needed to further improve the laser frequency stability.

Since the frequency stability of the laser systems is on the level of 10^{-12} (corresponding to an absolute frequency of ~ 500 Hz), one should be able to measure the hyperfine splitting of iodine transitions with an uncertainty at the same level using the present laser system. However, with weaker iodine lines, a larger uncertainty may arise in the hyperfine splitting measurement. Since most of the hyperfine splittings in these wavelength regions have not been previously measured, the measurement and fitting of the hyperfine splittings will result in new hyperfine constants for each iodine transition. Based on the rotational and vibrational dependences of the iodine hyperfine constants [19,25,40,41], we can obtain a better understanding of the rotational and vibrational characteristics of the iodine hyperfine constants by studying the hyperfine structures of iodine in these wavelength regions.

The frequency stabilization of the 561-nm and 594-nm laser modules opens the door for the study of iodine hyperfine constants and other applications of frequency-stabilized lasers in these wavelength regions. Previous studies have been reported on Doppler-free spectroscopy and on the hyperfine structure of several iodine transitions at 560 nm and 561 nm [32,33]. The frequency range of those lasers does not overlap with that of the present experiment. Thus far, there have been no studies on high-resolution Doppler-free spectroscopy of the iodine transition at 594 nm. Studies on the hyperfine structures of molecular iodine using the 561-nm and 594-nm laser modules should provide detailed information on iodine hyperfine constants in these wavelength regions. The combination of the 531-nm, 561-nm, and 594-nm lasers is an excellent solution for the excess fraction method [26] for gauge block measurements. Actually, an internal-mirror frequency-stabilized He-Ne laser at 594 nm [42] is used in a commercially available gauge block interferometer. Recently, a 594-nm laser has also been used as an optical readout in bulk diamond nitrogen-vacancy ensembles [43].

In conclusion, we performed high-resolution spectroscopy and observed all hyperfine components for three typical iodine

transitions in the 531-nm, 561-nm, and 594-nm wavelength regions using coin-sized laser modules. Frequency stabilization of the laser modules is achieved using the observed high-resolution iodine spectra. These lasers operating in three different visible wavelength regions are compact and low-cost and exhibit good frequency performance for various applications.

Funding. Japan Society for the Promotion of Science (JSPS) KAKENHI (15H02028, 18H01898, 18H03886); Japan Science and Technology Agency (JST), Exploratory Research for Advanced Technology (ERATO) (JPMJER1304).

Acknowledgment. The authors would like to thank T. Kobayashi for his helpful discussions and T. Inamura for technical assistance in the experiment.

REFERENCES

1. C. W. Chou, D. B. Hume, T. Rosenband, and D. J. Wineland, "Optical clocks and relativity," *Science* **329**, 1630–1633 (2010).
2. E. Peik, B. Lipphardt, H. Schnatz, T. Schneider, C. Tamm, and S. G. Karshenboim, "Limit on the present temporal variation of the fine structure constant," *Phys. Rev. Lett.* **93**, 170801 (2004).
3. J. Dong, J. Liu, D. Bi, X. Ma, X. Zhu, X. Zhu, and W. Chen, "Optimal iodine absorption line applied for spaceborne high spectral resolution lidar," *Appl. Opt.* **57**, 5413–5419 (2018).
4. V. Schkolnik, K. Döringshoff, F. B. Gutsch, M. Oswald, T. Schuldt, C. Braxmaier, M. Lezius, R. Holzwarth, C. Kürbis, A. Bawamia, M. Krutzik, and A. Peters, "JOKARUS—design of a compact optical iodine frequency reference for a sounding rocket mission," *EPJ Quantum Technol.* **4**, 1–10 (2017).
5. K. Döringshoff, T. Schuldt, E. V. Kovalchuk, J. Stühler, C. Braxmaier, and A. Peters, "A flight-like absolute optical frequency reference based on iodine for laser systems at 1064 nm," *Appl. Phys. B* **123**, 183 (2017).
6. T. Schuldt, K. Döringshoff, E. V. Kovalchuk, A. Keetman, J. Pahl, A. Peters, and C. Braxmaier, "Development of a compact optical absolute frequency reference for space with 10^{-15} instability," *Appl. Opt.* **56**, 1101–1106 (2017).
7. F.-L. Hong, "Optical frequency standards for time and length applications," *Meas. Sci. Technol.* **28**, 012002 (2016).
8. T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, "Absolute optical frequency measurement of the cesium D_1 line with a mode-locked laser," *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3568–3571 (1999).
9. D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff, "Carrier-envelope phase control of femto-second mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis," *Science* **288**, 635–639 (2000).
10. T. Udem, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, "Optical frequency metrology," *Nature* **416**, 233–237 (2002).
11. J. Ye, L. S. Ma, and J. L. Hall, "Molecular iodine clock," *Phys. Rev. Lett.* **87**, 270801 (2001).
12. M. Takamoto, F.-L. Hong, R. Higashi, and H. Katori, "An optical lattice clock," *Nature* **435**, 321–324 (2005).
13. F.-L. Hong, M. Takamoto, R. Higashi, Y. Fukuyama, J. Jiang, and H. Katori, "Frequency measurement of a Sr lattice clock using an SI-second-referenced optical frequency comb linked by a global positioning system (GPS)," *Opt. Express* **13**, 5253–5262 (2005).
14. A. Cingöz, D. C. Yost, T. K. Allison, A. Ruehl, M. E. Fermann, I. Hartl, and J. Ye, "Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet," *Nature* **482**, 68–71 (2012).
15. Y. Bitou, K. Sasaki, S. Iwasaki, and F.-L. Hong, "Compact I_2 -stabilized frequency-doubled Nd:YAG laser for long gauge block interferometer," *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, 2867–2871 (2003).
16. M. Musha, T. Kanaya, K. Nakagawa, and K. Ueda, "The short- and long-term frequency stabilization of an injection-locked Nd:YAG laser

- in reference to a Fabry-Perot cavity and an iodine saturated absorption line," *Opt. Commun.* **183**, 165–173 (2000).
17. W. Kokuyama, K. Numata, and J. Camp, "Simple iodine reference at 1064 nm for absolute laser frequency determination in space applications," *Appl. Opt.* **49**, 6264–6267 (2010).
 18. B. Argence, H. Halloin, O. Jeannin, P. Prat, O. Turazza, E. de Vismes, G. Auger, and E. Plagnol, "Molecular laser stabilization at low frequencies for the LISA mission," *Phys. Rev. D* **81**, 082002 (2010).
 19. F.-L. Hong, J. Ye, L.-S. Ma, S. Picard, Ch. J. Bordé, and J. L. Hall, "Rotation dependence of electric quadrupole hyperfine interaction in the ground state of molecular iodine by high-resolution laser spectroscopy," *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 379–387 (2001).
 20. F.-L. Hong, J. Ishikawa, Z. Y. Bi, J. Zhang, K. Seta, A. Onae, J. Yoda, and H. Matsumoto, "Portable I₂-stabilized Nd:YAG laser for international comparisons," *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **50**, 486–489 (2001).
 21. F.-L. Hong, J. Ishikawa, J. Yoda, J. Ye, L. S. Ma, and L. L. Hall, "Frequency comparison of ¹²⁷I₂-stabilized Nd:YAG lasers," *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **48**, 532–536 (1999).
 22. A. Arie, S. Schiller, E. K. Gustafson, and R. L. Byer, "Absolute frequency stabilization of diode-laser-pumped Nd:YAG lasers to hyperfine transitions in molecular iodine," *Opt. Lett.* **17**, 1204–1206 (1992).
 23. T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, H. Inaba, S. Okubo, T. Tanabe, M. Yasuda, A. Onae, and F.-L. Hong, "Compact iodine-stabilized laser operating at 531 nm with stability at the 10⁻¹² level and using a coin-sized laser module," *Opt. Express* **23**, 20749–20759 (2015).
 24. Y. Bitou, T. Kobayashi, and F.-L. Hong, "Compact and inexpensive iodine-stabilized diode laser system with an output at 531 nm for gauge block interferometers," *Precis. Eng.* **47**, 528–531 (2016).
 25. F.-L. Hong, J. Ishikawa, A. Onae, and H. Matsumoto, "Rotation dependence of the excited-state electric quadrupole hyperfine interaction by high-resolution laser spectroscopy of ¹²⁷I₂," *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 1416–1422 (2001).
 26. J. E. Decker and J. R. Petelsky, "Uncertainty evaluation for the measurement of the gauge blocks by optical interferometry," *Metrologia* **34**, 479–493 (1997).
 27. J. Wallerand, L. Robertson, L. Ma, and M. Zucco, "Absolute frequency measurement of molecular iodine lines at 514.7 nm, interrogated by a frequency-doubled Yb-doped fibre laser," *Metrologia* **43**, 294–298 (2006).
 28. P. Gill and S. J. Bennett, "Iodine saturation spectroscopy for multi-wavelength stabilization of an Argon/Krypton ion laser," *Metrologia* **15**, 117–123 (1979).
 29. R. Guo, F.-L. Hong, A. Onae, Z.-Y. Bi, H. Matsumoto, and K. Nakagawa, "Frequency stabilization of a 1319 nm Nd:YAG laser by saturation spectroscopy of molecular iodine," *Opt. Lett.* **29**, 1733–1735 (2004).
 30. F.-L. Hong, H. Inaba, K. Hosaka, M. Yasuda, and A. Onae, "Doppler-free spectroscopy of molecular iodine using a frequency-stable light source at 578 nm," *Opt. Express* **17**, 1652–1659 (2009).
 31. T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, H. Inaba, S. Okubo, T. Tanabe, M. Yasuda, A. Onae, and F.-L. Hong, "Absolute frequency measurements and hyperfine structures of the molecular iodine transitions at 578 nm," *J. Opt. Soc. Am. B* **33**, 725–734 (2016).
 32. T. Yang, F. Meng, Y. Zhao, Y. Peng, Y. Li, J. Cao, C. Gao, Z. Fang, and E. Zang, "Hyperfine structure and absolute frequency measurements of ¹²⁷I₂ transitions with monolithic Nd:YAG 561-nm lasers," *Appl. Phys. B* **106**, 613–618 (2012).
 33. J. Zhang, Z. H. Lu, and L. J. Wang, "Absolute frequency measurement of the molecular iodine hyperfine components near 560 nm with a solid-state laser source," *Appl. Opt.* **48**, 5629–5635 (2009).
 34. Y.-C. Hsiao, C.-Y. Kao, H.-C. Chen, S.-E. Chen, J.-L. Peng, and L.-B. Wang, "Absolute frequency measurement of the molecular iodine hyperfine transitions at 548 nm," *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 328–332 (2013).
 35. Y.-C. Huang, Y.-C. Guan, T.-H. Suen, J.-T. Shy, and L.-B. Wang, "Absolute frequency measurement of the molecular iodine hyperfine transitions at 647 nm," *Appl. Opt.* **57**, 2102–2106 (2018).
 36. S. Gerstenkorn and P. Luc, *Atlas du Spectre d'Absorption de la Molecule d'Iode* (Editions de CNRS, Paris, 1978).
 37. J. H. Shirley, "Modulation transfer processes in optical heterodyne saturation spectroscopy," *Opt. Lett.* **7**, 537–539 (1982).
 38. G. Camy, Ch. J. Bordé, and M. Ducloy, "Heterodyne saturation spectroscopy through frequency modulation of the saturating beam," *Opt. Commun.* **41**, 325–330 (1982).
 39. 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).
 40. L. Chen and J. Ye, "Extensive, high-resolution measurement of hyperfine interactions: precise investigations of molecular potentials and wave function," *Chem. Phys. Lett.* **381**, 777–783 (2003).
 41. F.-L. Hong, Y. Zhang, J. Ishikawa, A. Onae, and H. Matsumoto, "Vibration dependence of the tensor spin-spin and scalar spin-spin hyperfine interactions by precision measurement of hyperfine structures of ¹²⁷I₂ near 532 nm," *J. Opt. Soc. B* **19**, 946–953 (2002).
 42. W. R. C. Rowley and P. Gill, "Performance of internal mirror frequency stabilized He-Ne lasers emitting green, yellow or orange light," *Appl. Phys. B* **51**, 421–426 (1990).
 43. H. Jayakumar, S. Dhomkar, J. Henshaw, and C. A. Meriles, "Spin readout via spin-to-change conversion in bulk diamond nitrogen-vacancy ensembles," *Appl. Phys. Lett.* **113**, 122404 (2018).



Linewidth narrowing and frequency stabilization of a coin-sized laser module

JUNIA NOMURA,^{1,2,*}  DAISUKE AKAMATSU,¹  AND FENG-LEI HONG¹ 

¹Department of Physics, Graduate School of Engineering Science, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan

²Mitsubishi Electric Corporation, Information Technology R & D Center, 5-1-1 Ofuna, Kamakura, Kanagawa 247-8501, Japan

*Nomura.Junia@dp.Mitsubishielectric.co.jp

Abstract: We demonstrate linewidth narrowing and frequency stabilization of a coin-sized laser module using both a short imbalance path length Michelson fiber interferometer and Doppler-free spectroscopy of molecular iodine. The linewidth of the coin-sized laser is reduced from 2 MHz to 6 kHz, which is now narrower than the Doppler-free spectral linewidth (670 kHz) of molecular iodine. Laser frequency stabilization based on the Doppler-free iodine signal is carried out by directly controlling the imbalance path length of the fiber interferometer. The frequency stability of the hybrid-locked coin-sized laser is 9.8×10^{-13} at 1-s averaging time and reaches 6.8×10^{-14} at 400 s. The hybrid-locked coin-sized laser with linewidth narrowing and frequency stabilization has a long coherence time and known absolute frequency and can be used for precision measurements in either fundamental science or industrial applications.

© 2023 Optica Publishing Group under the terms of the [Optica Open Access Publishing Agreement](#)

1. Introduction

Frequency-stabilized, narrow-linewidth lasers are of great interest for a wide range of applications, including fundamental science [1] and frequency metrology [2]. They are also used in industrial applications, such as optical communications [3] and coherent laser sensing [4].

Precision spectroscopy of molecular iodine based on Doppler-free spectroscopy and frequency stabilization has been performed using various lasers. He-Ne lasers (linewidth ~ 10 kHz) at 633 nm [5] or Nd:YAG lasers with a non-planar ring oscillator (linewidth ~ 1 kHz) at 1064 nm [6] have conventionally been used. In recent years, planar-waveguide external cavity diode lasers (linewidth \sim several kHz) at 1063 nm [7] and 1542 nm [8] have also been used as light sources for high-resolution iodine spectroscopy. Precision spectroscopy and frequency stabilization have also been demonstrated [9,10] using low-cost, coin-sized laser (CL) modules consisting of a distributed feedback (DFB) diode laser (linewidth > 1 MHz), an optical amplifier and a frequency conversion crystal. Although the frequency instability of the iodine-stabilized CL could be used in a block gauge measurement [11] and has achieved the stability at a level of 10^{-12} for a 1-s averaging time [10], the linewidth of the iodine-stabilized CL remains unchanged (> 1 MHz). The relatively large linewidth of the iodine-stabilized CL has limited its application because, for example: 1) the coherence length of this laser is 2-3 orders of magnitude shorter than that of the other iodine stabilized lasers mentioned above; and 2) reliable measurement of the iodine hyperfine structure using this laser could not be demonstrated [12]. Therefore, to expand applications of this laser, linewidth reduction using prestabilization is necessary for this low-cost, coin-sized laser.

To obtain a narrow linewidth laser, servo control using frequency discriminators such as optical cavities [13] and fiber interferometers [14] have been commonly used. In most cases, optical cavities and fiber interferometers have been used to narrow the kHz-level laser linewidth down to the Hz level [15–18]. In these experiments, optical cavities and fiber interferometers are usually

placed in an environment with good vibration isolation and thermal control. The advantages of optical cavities are that they can be insensitive to vibration and/or have ultra-low thermal noise depending on the cavity design. Fiber interferometers have the advantages that they can be configured with reliable fiber components without needing precision alignment and make it easy to adjust the free spectral range and quality factor of the frequency discriminator. The achieved Hz-level narrow-linewidth lasers can be used in gravitational interferometers, optical clocks, and coherent optical fiber links. Fiber interferometers were also used to narrow the MHz-level laser linewidth down to the kHz level [19,20]. In these experiments, the laser sources were DFB diode lasers, and the fiber interferometers had a short path imbalance (< 10 m). The linewidth of the DFB diode laser was improved from 3 MHz to 15 kHz using a 5-m imbalance fiber interferometer with homodyne detection [19]. Another group improved the frequency stability of a similar DFB diode laser by a factor of approximately 30 compared to free-running operation using 5-m imbalance fiber interferometers [20].

Hybrid frequency locking combining the laser-linewidth narrowing and Doppler-free molecular spectroscopy has been reported for kHz-level laser sources (Nd:YAG lasers) [21,22]. In these experiments, an ultra-low expansion (ULE) cavity was used for linewidth reduction and Doppler-free spectroscopy of iodine molecules was used for mid- to long-term frequency stabilization. In the first case [21], long-term frequency stabilization was obtained by feedback to an additional acousto-optic modulator (AOM) placed in front of the ULE cavity. In this case, the dynamic range of the feedback was limited by the AOM, typically to several tens of megahertz [21]. The frequency instability of the hybrid-locked laser was not measured [21]. In the second case [22], hybrid locking was confirmed by measuring the frequency instability of the laser. The dynamic range of the feedback was improved by using several external modulators and frequency-offset sideband locking [22]. As mentioned in [22], the long-term frequency stability of the hybrid-locked laser was not improved over that of the laser using only Doppler-free iodine spectroscopy. This is because the linewidth of the original laser source (kHz level) was much narrower than that of the Doppler-free iodine spectrum (~ 500 kHz). Therefore, in such experiments [21,22], the hybrid locking was only used to: a) reduce the long-term frequency drift of the ULE cavity (or a fiber interferometer); b) calibrate the absolute frequency of the laser. To our knowledge, hybrid frequency locking has not been performed for MHz-level DFB diode laser sources. In such systems, hybrid locking will benefit the laser system (in addition to the above a) and b)) in several ways: c) to further improve the frequency stability over that of the laser using Doppler-free iodine spectroscopy only, because the free-running laser linewidth (MHz level) is larger than that of the iodine spectrum (~ 500 kHz); d) to improve the dynamic range of the feedback by using a fiber interferometer and a piezoelectric transducer (PZT) attached to the fiber; and e) to search for better frequency between the linewidth servo using the laser current and the iodine servo using the PZT.

In this paper, we demonstrate hybrid frequency locking of a MHz-level-linewidth CL module using a 12 m imbalance fiber interferometer and Doppler-free spectroscopy of molecular iodine. The linewidth of the 1063 nm DFB laser in the CL module was reduced from 2 MHz to 6 kHz, with a servo bandwidth of 750 kHz. The frequency stabilization based on Doppler-free spectroscopy was realized using a PZT attached to the arm of the fiber interferometer, which compensates any fiber length change in the fiber interferometer. The Allan standard deviation of the hybrid-locked laser was 9.8×10^{-13} at an averaging time of 1 s (a 4-fold improvement over iodine stabilization alone [10]) and reached 6.8×10^{-14} at 400 s. The hybrid-locked CL module with its narrow linewidth, good frequency stability and determined absolute frequency is expected to expand widespread application in various fields due to the cost efficiency and compactness of the system.

2. Experimental setup

Figure 1 shows a schematic illustration of the experimental setup for linewidth reduction, Doppler-free spectroscopy, and frequency stabilization using the CL module. The dimensions of the CL module are $20 \text{ mm} \times 6 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$ (length \times width \times thickness). The CL module consists of a DFB diode laser operating at 1063 nm, a semiconductor optical amplifier, and a periodically poled lithium niobate crystal for second harmonic generation (SHG). We mounted the CL module on a Peltier device for temperature control. The laser module emits a fundamental light (1063 nm) with a power of $\sim 40 \text{ mW}$ and an SHG light (531 nm) with a power of $\sim 10 \text{ mW}$. The SHG laser beam was separated from the fundamental beam and guided using a dichroic mirror (DM) to a Doppler-free iodine spectrometer. The fundamental beam passed through the DM was split into two parts: one part was sent to a fiber interferometer for laser linewidth narrowing and the other part was sent to a frequency comb for laser frequency measurement. Both beams were delivered using single mode fibers. Optical isolators were placed on both the fundamental (112 dB) and SHG (38 dB) paths to prevent backscattered light.

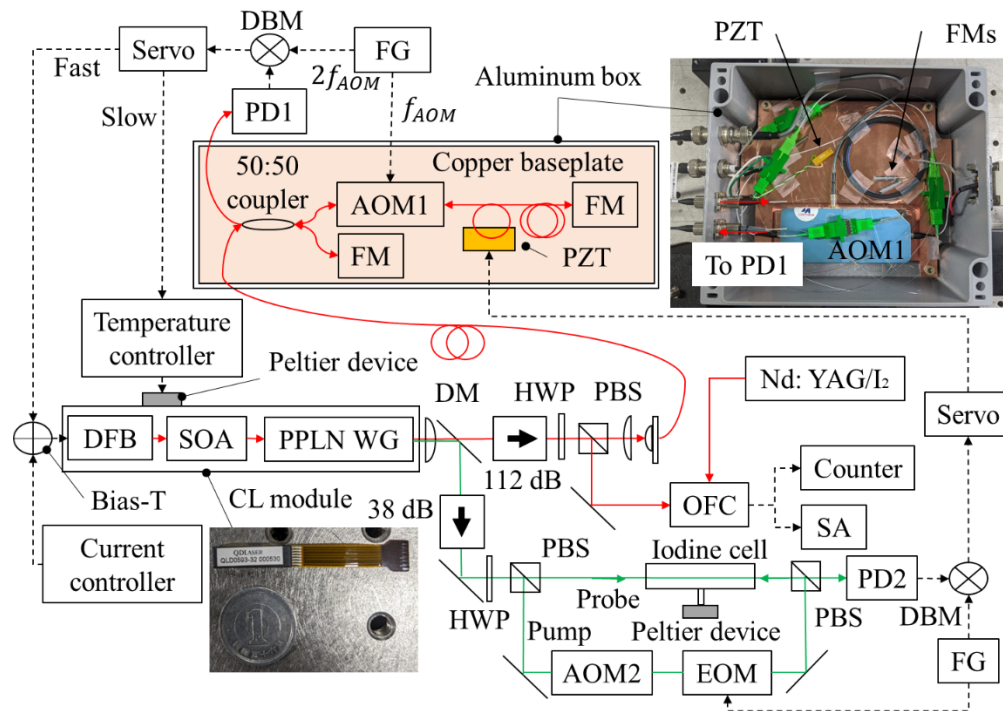


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental setup. The inset images are the CL module and the Michelson interferometer. DFB: Distributed-feedback diode laser, SOA: Semiconductor optical amplifier, PPLN WG: Periodically poled lithium niobate waveguide, CL module: Compact laser module, DM: Dichroic mirror, ISO: Optical isolator, HWP: Half-wave plate, PBS: Polarization beam splitter, AOM: Acousto-optical modulator, FM: Faraday rotator mirror, PZT: Piezoelectric transducer, PD: Photodetector, FG: Function generator, DBM: Double-balanced mixer, EOM: Electro-optical modulator, Nd:YAG/I₂: Iodine-stabilized Nd:YAG laser, OFC: Optical frequency comb, SA: Spectrum analyzer.

The fiber interferometer was a 12-m imbalance Michelson interferometer (MI), which consists of a 50:50 fiber coupler, a fiber-coupled AOM, a 6-m-long SMF, and two Faraday rotator mirrors (FM). The MI was placed on a copper baseplate the temperature of which was stabilized by a Peltier device. The MI and baseplate were enclosed in a commercial $200 \times 90 \times 170 \text{ mm}^3$

waterproof aluminum box. The 2.5 mW input beam was divided by the coupler into two parts: one beam was reflected by an FM and the other beam was frequency shifted by the AOM and reflected by another FM. The FMs guarantee that the two beams in the output port of the coupler always have the same polarization and lead to a beat note with a maximum signal to noise ratio (S/N) without employing any polarization controller. We removed the outer coating of the 125 μm cladding of a portion of the SMF between the AOM and the FM, and glued this part to a PZT to control the fiber length of the interferometer. The interference signal of the fiber interferometer was observed by a photodetector (PD1) and demodulated using a double balanced mixer (heterodyne detection). The demodulated signal was fed back to the driving current of the DFB diode laser through a bias-T circuit as a fast frequency servo. Slow feedback using the temperature control of the CL module was also performed to expand the dynamic range of the current servo.

A Doppler-free iodine spectrometer was used as an optical frequency reference in addition to the fiber interferometer. Doppler-free spectroscopy of molecular iodine was performed based on the modulation transfer technique [23]. The 531 nm SHG laser beam was separated into pump and probe beams by a half-wave plate and a PBS. The pump beam was frequency-shifted by 80 MHz using an AOM and phase-modulated by an electro-optical modulator at a modulation frequency of 350 kHz. The AOM was used to avoid interferometric baseline problems in the iodine spectrometer. The pump and probe beams were overlapped anti-collinearly in a 45-cm iodine cell. The probe beam was separated from the pump beam by another PBS and was detected by PD2. Details of the iodine spectrometer can be found elsewhere [24]. We obtained the modulation transfer signal of the spectral lines by demodulating the signal from PD2. The demodulated signal was fed back to the PZT attached to the arm of the fiber interferometer through a servo system.

To evaluate the frequency stability of the hybrid-locked CL module, the fundamental light of the module was measured using a frequency comb based on a mode-locked Er:fiber laser (Er:fiber comb) [25]. The Er:fiber comb was self-referenced and phase-locked to an iodine-stabilized Nd:YAG laser [24]. Consequently, both the linewidth ($\sim\text{kHz}$) and the frequency instability (1×10^{-13} at $\tau = 1$ s) of the comb follow those of the iodine-stabilized Nd:YAG laser. The frequency of the beat signal between the fundamental light of the CL module and the Er:fiber comb was measured by a Π -type frequency counter (Pendulum, CNT-91) with zero dead time. Also, the beat signal was monitored by an electrical spectrum analyzer (SA).

3. Experimental result

3.1. Linewidth reduction of the CL module using the fiber interferometer

Figure 2 shows the observed beat notes between the fundamental light of the CL module and the Er:fiber comb. Figure 2(a) shows the beat notes when the linewidth reduction was not carried out (free running). The resolution bandwidth (RBW) and video bandwidth (VBW) of the SA were 300 kHz and 10 kHz, respectively. The observed linewidth of the beat notes indicates the free-running linewidth of the laser and was approximately 2 MHz. Figure 2(b) shows the beat notes similarly as in Fig. 2(a), when the linewidth reduction was carried out. Figure 2(c) shows an enlarged view of the beat note in the linewidth reduction operation with an RBW of 10 kHz and a VBW of 1 kHz. The observed servo bump was approximately 750 kHz, which represents the feedback control bandwidth of the linewidth reduction. This was not limited by the delay time of the 12-m-long imbalance fiber length. Figure 2(d) shows a further enlarged view (with linear vertical scale) of the beat note in the linewidth reduction operation with an RBW of 1 kHz and a VBW of 100 Hz for a 400 ms measurement time. The red plots show the measured data, and the black curve shows the result of curve fitting to a Lorentzian function. The observed linewidth of 6 kHz indicates that of the fiber-interferometer-stabilized CL module. The optimum imbalance length of the fiber interferometer was searched for by varying the fiber length in 10

m increments up to 102 m. In our case, no significant difference was observed from 12 m to 32 m. To ensure sufficient dynamic range of the PZT control in the hybrid lock, the imbalance length of the interferometer was set to 12 m. With the present fiber interferometer, the linewidth of the DFB CL module is reduced from 2 MHz to 6 kHz. This result is approximately a 2-fold improvement over the 15 kHz linewidth obtained using a 5-m imbalance fiber interferometer [19].

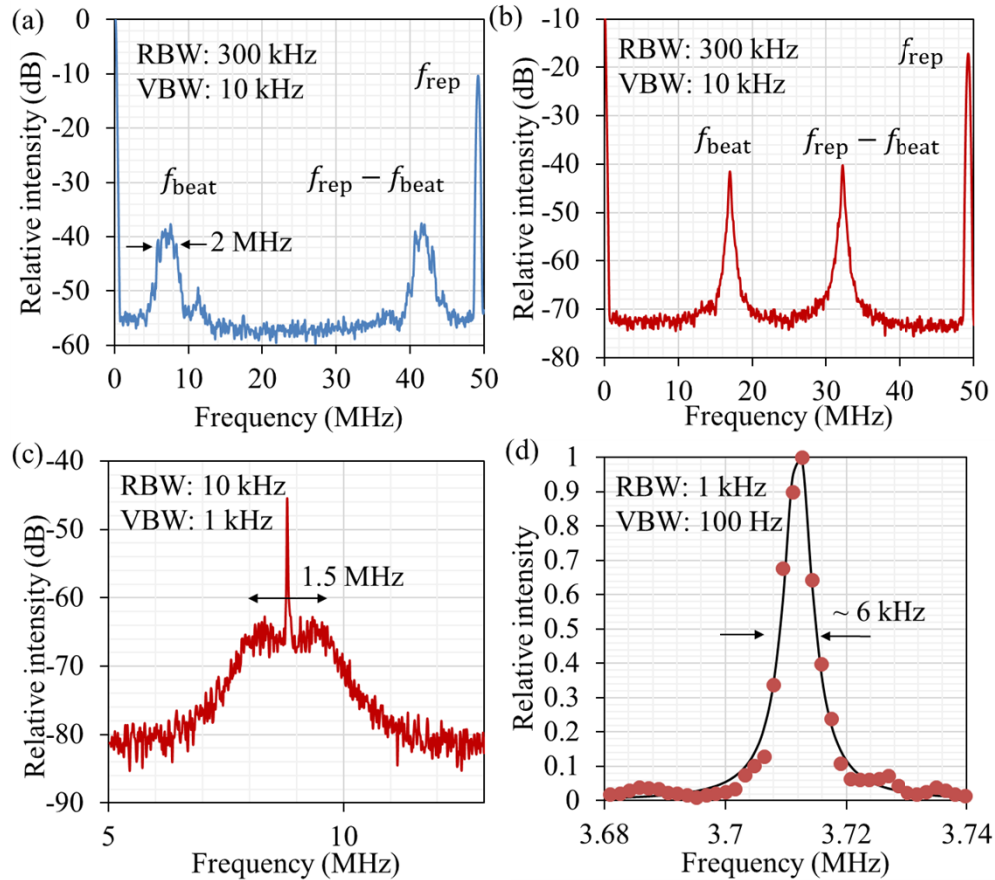


Fig. 2. (a) Beat notes between the fundamental light of the CL module and the comb components of the Er:fiber comb. (b) Beat notes when the CL module was stabilized to the fiber-interferometer. (c) An enlarged beat signal (f_{beat}) with a RBW of 10 kHz. (d) An enlarged beat signal (f_{beat}) with a RBW of 1 kHz. The vertical scale is linear. The solid red circles and black curve show the observed result and the result of Lorentzian fitting, respectively.

3.2. Doppler-free spectroscopy of molecular iodine and hybrid lock

Figure 3(a) shows the observed modulation transfer signal of the a_2 hyperfine component of the P(35)32-0 transition using the fiber-interferometer-stabilized CL module. The S/N of the a_2 component, which was the largest one in this transition, was approximately 38 in a bandwidth of 300 Hz, and the spectral linewidth of the a_2 component was approximately 670 kHz. Laser frequency scanning was performed by adjusting the voltage of the PZT attached to the fiber interferometer. The sensitivity of the frequency to the voltage was 2 MHz/V, resulting in a dynamic range of 300 MHz using 150 V servo voltage. The powers of the pump and probe beams

were 2.5 mW and 0.3 mW, respectively. The cold-finger temperature of the iodine cell was held at -3°C , corresponding to an iodine pressure of 3.0 Pa. The temperature of the cell body matched the controlled room temperature of 23°C . We note here that the observed spectral linewidth is smaller than that of the free-running CL module.

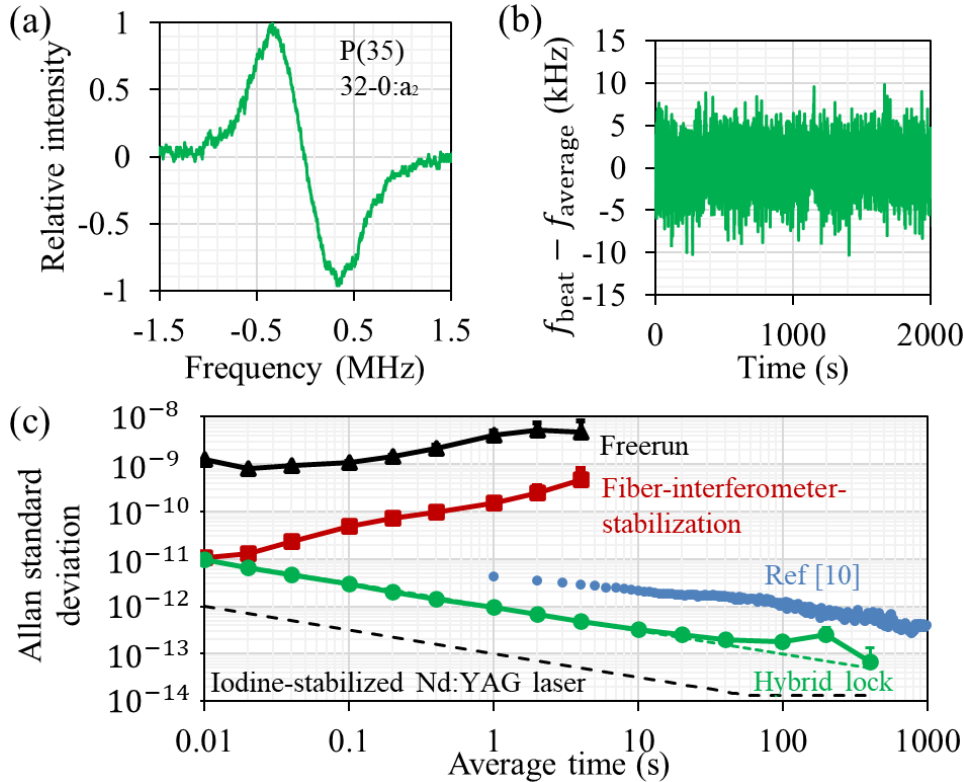


Fig. 3. (a) Doppler-free spectrum of the a_2 component of the P(35)32-0 transition of molecular iodine obtained using the linewidth-reduced CL module with a low-pass filter of 100 Hz. (b) The measured time variation of the beat frequency between the hybrid-locked CL module and the Er: fiber comb. (c) The Allan standard deviation calculated from the measured beat frequency between the CL module and the optical frequency combs. The curves with black triangles, red squares, and green discs show the Allan standard deviation of the CL module when free running, stabilized to the fiber interferometer, and hybrid locked, respectively. The plot with blue diamonds shows the Allan standard deviation of the iodine-stabilized CL module as shown in [10]. The dashed curve shows the measurement limit of the Er: fiber comb.

The green curve in Fig. 3(b) shows the time variation of the beat frequency between the hybrid-locked CL module and the Er: fiber comb, when the counter gate time was set to 0.01 s. The maximum excursion of the beat frequency over 2000 s was approximately 10 kHz. Since the Er: comb has better frequency stability than the CL module, the observed frequency variation is mostly attributed to the CL module.

The measured Allan standard deviations of the free-running and linewidth-reduced CL module are shown in Fig. 3(c) with the curves with black triangles and red squares, respectively. In the free running case, the Allan standard deviation was 1.3×10^{-9} at 0.01 s, and 4.7×10^{-9} at 4 s. In the linewidth-reduced case, the Allan standard deviation was 1.3×10^{-11} at 0.01 s and degrades to 4.0×10^{-10} at 4 s. Although the frequency instability of the CL module was reduced by 2 orders

of magnitude at 0.01 s using the fiber interferometer, the frequency of the linewidth-reduced CL module drifted in time due to the fiber length variation caused by mechanical and temperature fluctuations. The solid green curve in Fig. 3 (c) shows the Allan standard deviation calculated from the measured beat frequencies shown in Fig. 3(b), indicating the frequency stability of the hybrid-locked CL module. The Allan standard deviation was 9.8×10^{-12} for $\tau = 0.01$ s, improving to 3.1×10^{-13} at $\tau = 10$ s following the $1/\sqrt{\tau}$ characteristics. At $100 < \tau < 200$ s, the Allan standard deviation appeared to degrade due to unexpected noise. At $\tau > 200$ s, the Allan standard deviation began to improve again and reached 6.8×10^{-14} at $\tau = 400$ s. For comparison, the frequency instability of a CL module stabilized to the a_0 component of the R(36)32-0 transition without linewidth reduction [10] is shown as the blue plot, starting from 4.3×10^{-12} at 1 s, improving to approximately 3.6×10^{-13} at $\tau = 1000$ s. The laser frequency instability obtained in the present work (with laser linewidth reduction) was approximately 4-fold better than that at 1 s and 9-fold better at 400 s in [10]. In the current experiment, the cutoff frequency of the PI servo of the iodine feedback was set to larger than 100 Hz. Therefore, the observed Allan standard deviation for $\tau > 0.01$ s following the $1/\sqrt{\tau}$ characteristics is basically limited by the characteristics of the Doppler-free iodine signal. We also show the typical frequency instability of the iodine-stabilized Nd:YAG laser in Fig. 3(c) as a dashed line, starting from 10^{-12} at 10 ms and improving after 100 s to approximately 1.2×10^{-14} . This was the measurement limit of the Er: fiber comb since the comb was phase locked to the iodine-stabilized Nd:YAG laser.

3.3. Repeatability of the hybrid lock of the CL module

The absolute frequency measurement of the a_2 component of the P(35)32-0 transition using the hybrid-locked laser was demonstrated. As shown in Fig. 4, thirteen frequency measurements were performed over several days. Each measurement in Fig. 4 was calculated from over 1000 s beat-frequency data measured with a gate time of 0.01 s. The uncertainty bars are given by the Allan standard deviation for the longest average time. The average of the thirteen frequencies measured in Fig. 4 was 564 011 175 767.2 (0.7) kHz. The standard deviation of 0.7 kHz indicates the repeatability of the hybrid-locked CL module. In our previous experiments, the absolute frequency of the a_2 component of the P(35)32-0 transition was measured to be 564 011 175 773 (6) kHz [26]. Taking into account that 1) the absolute frequency obtained in the present experiment only includes the repeatability (not the evaluated total uncertainty) of the system, and 2) there is a 5 kHz uncertainty due to impurity of the iodine cell (the iodine cell used in the present experiment is different from that in the previous experiment [26]), we conclude that they agree with each other.

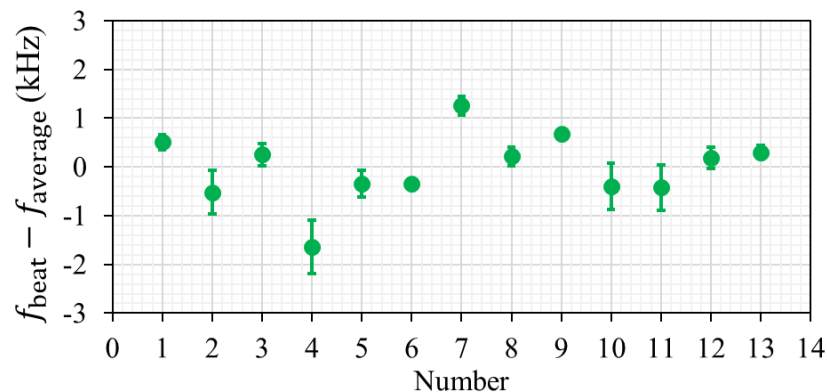


Fig. 4. Repeatability and frequency measurement of the hybrid-locked CL module.

4. Conclusion

In conclusion, we performed linewidth narrowing using both a 12-m imbalance Michelson interferometer and frequency stabilization using Doppler-free molecular spectroscopy (hybrid lock) for a CL module with an original linewidth of 2 MHz. The laser linewidth was reduced to 6 kHz and was much less than the Doppler-free iodine spectral linewidth of 670 kHz. The frequency stability of the hybrid-locked CL module at 4 s was 4.9×10^{-13} , which was an improvement of 3 orders of magnitude from the linewidth reduction only case. The frequency stability of the hybrid-locked CL module at 400 s was 6.8×10^{-14} , which was a 9-fold improvement over the iodine stabilization only case [10]. The hybrid-locked CL with long coherent time and known absolute frequency can be used for precision spectroscopy and various industrial applications.

Funding. Moonshot Research and Development Program (JPMJMS226C); ACT-X (JPMJAX22KC).

Acknowledgments. We are grateful to Y. Sakamoto for technical assistance with the experiment.

Disclosures. The authors declare no conflicts of interest.

Data availability. Data underlying the results presented in this paper are not publicly available at this time but may be obtained from the authors upon reasonable request.

References

1. B. Argence, H. Halloin, O. Jeannin, *et al.*, “Molecular laser stabilization at low frequencies for the LISA mission,” *Phys. Rev. D* **81**(8), 082002 (2010).
2. F.-L. Hong, “Optical frequency standards for time and length applications,” *Meas. Sci. Technol.* **28**(1), 012002 (2017).
3. S. Camatel and V. Ferrero, “Narrow linewidth CW laser phase noise characterization methods for coherent transmission system applications,” *J. Lightwave Technol.* **26**(17), 3048–3055 (2008).
4. J. Nomura, K. Hirozawa, T. Yanagisawa, *et al.*, “Single-frequency 45-mJ pulses from a MOPA system using an Er,Yb:glass planar waveguide amplifier and a large mode area Er-doped fiber amplifier,” *Opt. Lett.* **48**(7), 1758–1761 (2023).
5. T. H. Yoon, J. Ye, J. L. Hall, *et al.*, “Absolute frequency measurement of the iodine-stabilized He-Ne laser at 633 nm,” *Appl. Phys. B* **72**(2), 221–226 (2001).
6. J. L. Hall, L.-S. Ma, M. Taubman, *et al.*, “Stabilization and frequency measurement of the I₂-stabilized Nd:YAG laser,” *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **48**(2), 583–586 (1999).
7. K. Yoshii, H. Sakagami, H. Yamamoto, *et al.*, “High-resolution spectroscopy and laser frequency stabilization using a narrow-linewidth planar-waveguide external cavity diode laser at 1063 nm,” *Opt. Lett.* **45**(1), 129–132 (2020).
8. K. Ikeda, S. Okubo, M. Wada, *et al.*, “Iodine-stabilized laser at telecom wavelength using dual-pitch periodically poled lithium niobate waveguide,” *Opt. Express* **28**(2), 2166–2178 (2020).
9. T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, *et al.*, “Compact iodine-stabilized laser operating at 531 nm with stability at the 10⁻¹² level and using a coin-sized laser module,” *Opt. Express* **23**(16), 20749–20759 (2015).
10. J. Nomura, K. Yoshii, Y. Hisai, *et al.*, “Precision spectroscopy and frequency stabilization using coin-sized laser modules,” *J. Opt. Soc. Am. B* **36**(3), 631–637 (2019).
11. Y. Bitou, T. Kobayashi, and F.-L. Hong, “Compact and inexpensive iodine-stabilized diode laser system with an output at 531 nm for gauge block interferometers,” *Precis. Eng.* **47**, 528–531 (2017).
12. K. Yoshii, C. Chen, H. Sakagami, *et al.*, “Hyperfine structure of molecular iodine measured using a light source with a laser linewidth at the megahertz level,” *OSA Continuum* **4**(5), 1452–1460 (2021).
13. R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, *et al.*, “Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator,” *Appl. Phys. B* **31**(2), 97–105 (1983).
14. F. Favre and D. Guen, “Spectral properties of a semiconductor laser coupled to a single mode fiber resonator,” *IEEE J. Quantum Electron.* **21**(12), 1937–1946 (1985).
15. F. Kéfélian, H. Jiang, P. Lemonde, *et al.*, “Ultralow-frequency-noise stabilization of a laser by locking to an optical fiber-delay line,” *Opt. Lett.* **34**(7), 914–916 (2009).
16. J. Dong, Y. Hu, J. Huang, *et al.*, “Subhertz linewidth laser by locking to a fiber delay line,” *Appl. Opt.* **54**(5), 1152–1156 (2015).
17. A. P. Hilton, P. S. Light, L. Talbot, *et al.*, “Optimal design for spectral narrowing and fast frequency sweep of an interferometer-stabilized laser,” *Opt. Lett.* **45**(1), 45–48 (2020).
18. A. Sydnev and G. Eisenstein, “An ultra-coherent semiconductor laser locked to a short delay fiber Mach-Zehnder interferometer with active fiber noise cancellation,” *J. Lightwave Technol.* **40**(14), 4825–4831 (2022).
19. W.-K. Lee, C. Y. Park, J. Mun, *et al.*, “Linewidth reduction of a distributed-feedback diode laser using an all-fiber interferometer with short path imbalance,” *Rev. Sci. Instrum.* **82**(7), 073105 (2011).
20. J. Kong, V. G. Lucivero, R. Jiménez-Martínez, *et al.*, “Long-term laser frequency stabilization using fiber interferometers,” *Rev. Sci. Instrum.* **86**(7), 073104 (2015).

21. M. Musha, T. Kanaya, K. Nakagawa, *et al.*, “The short- and long-term frequency stabilization of an injection-locked Nd:YAG laser in reference to a Fabry–Pérot cavity and an iodine saturated absorption line,” *Opt. Commun.* **183**(1-4), 165–173 (2000).
22. J. Sanjuan, K. Abich, L. Blümel, *et al.*, “Simultaneous laser frequency stabilization to an optical cavity and an iodine frequency reference,” *Opt. Lett.* **46**(2), 360–363 (2021).
23. J. H. Shirley, “Modulation transfer processes in optical heterodyne saturation spectroscopy,” *Opt. Lett.* **7**(11), 537–539 (1982).
24. F.-L. Hong and J. Ishikawa, “Hyperfine structures of the R(122)35-0 and P(84)33-0 transitions of $^{127}\text{I}_2$ near 532 nm,” *Opt. Commun.* **183**(1-4), 101–108 (2000).
25. Y. Asahina, K. Yoshii, Y. Yamada, *et al.*, “Narrow-linewidth and highly stable optical frequency comb realized with a simple electro-optic modulator system in a mode-locked Er: fiber laser,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**(3), 038003 (2019).
26. H. Sakagami, K. Yoshii, T. Kobayashi, *et al.*, “Absolute frequency and hyperfine structure of $^{127}\text{I}_2$ transitions at 531.5 nm by precision spectroscopy using a narrow-linewidth diode laser,” *J. Opt. Soc. Am. B* **37**(4), 1027–1034 (2020).

RESEARCH ARTICLE | FEBRUARY 24 2023

Direct loading of Yb atoms into a 3D magneto-optical trap from a dispenser atomic source

Junia Nomura ; Tomohiko Momma; Yuki Kojima; Yusuke Hisai ; Takumi Kobayashi ; Daisuke Akamatsu ; Feng-Lei Hong  

 Check for updates

AIP Advances 13, 025361 (2023)

<https://doi.org/10.1063/5.0140774>

 CHORUS

 View Online

 Export Citation

CrossMark

Articles You May Be Interested In

Increasing the length of free-falling path with homogeneous bias field for compact cold atom interferometers by configuring MOT coils

AIP Advances (September 2020)

Jet-loaded cold atomic beam source for strontium

Rev. Sci. Instrum. (January 2023)

Push beam spot-size dependence of atom transfer in a double magneto-optical trap setup

Rev. Sci. Instrum. (July 2013)

17 October 2023 10:02:18

AIP Advances

Why Publish With Us?



25 DAYS
average time to 1st decision



740+ DOWNLOADS
average per article



INCLUSIVE
scope

Learn More

 AIP Publishing

Direct loading of Yb atoms into a 3D magneto-optical trap from a dispenser atomic source

Cite as: AIP Advances 13, 025361 (2023); doi: 10.1063/5.0140774

Submitted: 30 December 2022 • Accepted: 2 February 2023 •

Published Online: 24 February 2023



View Online



Export Citation



CrossMark

Junia Nomura,¹  Tomohiko Momma,¹ Yuki Kojima,¹ Yusuke Hisai,¹  Takumi Kobayashi,² 
Daisuke Akamatsu,¹  and Feng-Lei Hong^{1,a)} 

AFFILIATIONS

¹Department of Physics, Graduate School of Engineering Science, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan

²National Metrology Institute of Japan (NMIJ), National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba, Ibaraki 305-8563, Japan

^{a)}Author to whom correspondence should be addressed: hong-feng-lei-mt@ynu.ac.jp

ABSTRACT

The realization of cold atoms using a compact and low-power-consumption experimental setup is indispensable for cold atom experiments, including optical clocks and quantum simulations. We demonstrate the direct loading of Yb atoms into a 3D magneto-optical trap (MOT) from a dispenser atomic source without using a Zeeman slower. The power consumption of the dispenser was ~ 3 W. Spectroscopy of the atomic beam from the dispenser on the $6s^2\ ^1S_0-6s6p\ ^1P_1$ Yb transition at 399 nm shows that the flux of the atomic beam reaches $1.4 \times 10^{13}\ \text{s}^{-1}\ \text{cm}^{-2}$. We can load up to 4.1×10^7 atoms into the MOT with slowing and trapping laser powers of 20.3 and 35.0 mW, respectively. The realized cold atom system is reliable and can be adapted for experiments on alkaline earth and other alkaline earth-like atoms.

© 2023 Author(s). All article content, except where otherwise noted, is licensed under a Creative Commons Attribution (CC BY) license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>). <https://doi.org/10.1063/5.0140774>

I. INTRODUCTION

Ultra-cold atoms of alkaline earth and alkaline earth-like atoms are of great interest for a wide range of applications, including fundamental science and technologies that support optical frequency standards. Among these atoms, Ytterbium (Yb) has five bosonic ($^{168}, ^{170}, ^{172}, ^{174}, ^{176}\text{Yb}$) and two fermionic ($^{171}, ^{173}\text{Yb}$) isotopes with relatively high natural abundances. The strong $6s^2\ ^1S_0-6s6p\ ^1P_1$ transition of Yb at 399 nm has a natural linewidth of 29.1 MHz, which is suitable for the creation of a cold Yb atomic ensemble using a laser cooling technique. Yb also has two intercombination transitions with ultra-narrow spectral linewidths, which can be used to further cool atoms or as the clock transition of an optical frequency standard. Moreover, the ground-state electric configuration is insensitive to magnetic fields because it has a closed-shell structure. Due to these features, cold-atom experiments with Yb atoms can be used for studies of optical lattice clocks,¹⁻⁷ quantum simulations,⁸

quantum information processing,⁹ and quantum degeneration gasses.¹⁰ These applications require robust, reliable, and sometimes transportable experimental systems. For example, compact and low-power-consumption optical lattice clocks are important for clock comparisons^{11,12} and relativistic geodesy tests.¹³

One of the bottlenecks for the realization of a compact and reliable laser cooling experimental setup is the difficulty associated with handling the atomic source in the system. Because the vapor pressure of alkaline earth metals is lower than that of alkaline at the same temperature, an ytterbium atom oven is usually operated at a relatively high temperature (450–500 °C) using an oven heater. In most cases, heat management, such as water cooling, is required to protect vacuum flanges from heat. Water cooling has become an obstacle to the development of compact and transportable laser cooling systems. To overcome this problem, an atomic oven with good heat isolation was placed inside a vacuum and operated without water cooling.¹⁴ This setup was successful for Sr experiments¹⁴ and is also

applicable to Yb. However, the complicated design of heat isolation of the oven inside a vacuum may limit the range of applications of this method. An alternative idea is to use dispenser atomic sources in vacuum systems for Sr and Yb laser cooling experiments.^{15–18} In particular, in the Yb case, Bose–Einstein Condensation (BEC) and Fermi degenerated gas experiments were performed using ultra-cold atoms realized in a 3D magneto-optical trap (MOT) on the narrow 1S_0 – 3P_1 intercombination transition.¹⁷ In the experiment,¹⁷ atoms were pre-loaded to a 2D MOT using the 399 nm 1S_0 – 1P_1 transition from a commercial Yb dispenser. To generate the 2D MOT, ~180 mW of 399 nm trapping laser power was necessary.¹⁷ The two-step MOT strategy and the required relatively high laser power may limit the compactness of the system.

In this study, we directly loaded Yb atoms from a commercial Yb dispenser into a 3D MOT with a trapping laser power of 35.0 mW. Typically, 4.1×10^7 Yb atoms are laser-cooled and trapped in the MOT with ~3 W of power consumption in the dispenser. The MOT is realized ~300 s after the start of the dispenser heating. We also performed laser spectroscopy on the $6s^2\ ^1S_0$ – $6s6p\ ^1P_1$ transition at 399 nm to investigate the flux of the atomic beam from the dispenser. Our system is compact, consumes low power, and applies to experiments using alkaline earth and other alkaline earth-like atoms.

II. EXPERIMENTAL SETUP

A. Atom beam source based on a dispenser

Figure 1 shows an image of an atomic beam source of Yb based on a dispenser. The Yb dispenser (AlfaVakuo AS-Yb-0500-3F) contained Yb metal (0.5 g) under an argon atmosphere inside a thin stainless-steel tube. As shown in Fig. 1(a), the tube was sealed using an indium plug at one end. The length of the dispenser was ~45 mm, with an outer diameter of 3 mm. As shown in Fig. 1(b), each end of the dispenser was connected to the feedthroughs of a vacuum flange using oxygen-free copper jigs with molybdenum-dioxide-coated screws. To activate the dispenser source inside the vacuum system (refer Sec. II B), the current for the dispenser was slowly increased from 0 to 4.0 A. At a current of 2.5 A, the vacuum pressure suddenly increased from 2×10^{-6} to 7×10^{-1} Pa. This was

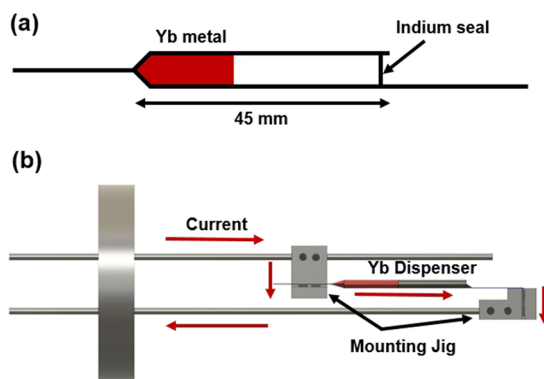


FIG. 1. (a) Cross-sectional view of the dispenser (a side view). (b) Schematic of the atomic beam source using the dispenser with a commercial ICF 70 feedthrough. The red arrows show the direction of the current flow.

owing to the melting of the indium seal by resistance heating and the release of argon gas in the vacuum chamber system. The dispenser was then degassed at 4.0 A for 24 h. The pressure was then returned to the initial pressure of 2×10^{-6} Pa. No water cooling was required for the dispenser atomic beam source. Compared to the power consumption (36 W) of the atomic oven with good heat isolation,¹⁴ the power consumption of the dispenser in the present experiment was ~3 W.

B. Compact MOT system of Yb

A schematic of the vacuum chamber system developed for the realization of a 3D MOT is shown in Fig. 2. The vacuum system contained four parts (from left to right shown in Fig. 2) with different functions: (1) dispenser source chamber, (2) fluorescence chamber, (3) MOT chamber, and (4) pump chamber. The dispenser source chamber is composed of a typical pipe nipple and a bellows pipe nipple. A bellows pipe nipple was used to adjust the direction of the atomic beam. The fluorescence chamber was connected to the bellows pipe nipple and had two side windows and a top viewport with ICF34 flanges. A vacuum gauge was connected to the fluorescence chamber to monitor vacuum pressure. The MOT chamber had six side windows with ICF34 flanges and two relatively large windows with ICF114 flanges at the top and bottom. The height of the MOT chamber is 7.5 cm. A pair of coils in the anti-Helmholtz configuration, as needed for MOT operation (MOT coils), is placed outside the MOT chamber on the top and bottom. The inner and outer diameters of the coils are ~13.5 and 15.4 cm, respectively. The height of the coils was ~3.9 cm. The number of horizontal and vertical turns of the coils was 28 and 16, respectively. In this configuration, a magnetic field gradient in the strong (vertical) direction of 39 G/cm is obtained at a current of 6.3 A, corresponding to a total power consumption of ~250 W. With this level of power consumption, we could avoid water cooling and use air cooling for the MOT coils. The pump chamber was connected to the MOT chamber and had a viewport on the opposite side for the injection of the laser beam to slow the atoms from the dispense source. An ion-getter pump is connected to the pump chamber to pump the vacuum system. The pressure of the vacuum system was $\sim 2 \times 10^{-6}$ Pa when the dispenser was under operation. A turbo pump was also connected to the pump chamber and could be operated whenever necessary. The length of the vacuum system from the feedthrough vacuum flange (left-hand side) to the pump chamber viewport (right-hand side) is ~56 cm. Because the system can be operated without a turbo pump, this is the largest dimension of the operational vacuum system, including MOT coils.

C. Laser system

The laser system for the current experiment was developed for four purposes: (1) laser frequency stabilization, (2) atomic beam spectroscopy, (3) atom slowing, and (4) MOT operation. As the light source, we used a GaN-based external cavity diode laser (ECDL) employing the Littrow configuration (MOGLabs: CEL-002). The laser operating at 399 nm had an output power of ~20 mW. The laser output beam is divided into three parts. The first part of the beam is used for the frequency stabilization of the laser based on Doppler-free spectroscopy of the 1S_0 – 1P_1 transition of Yb in a

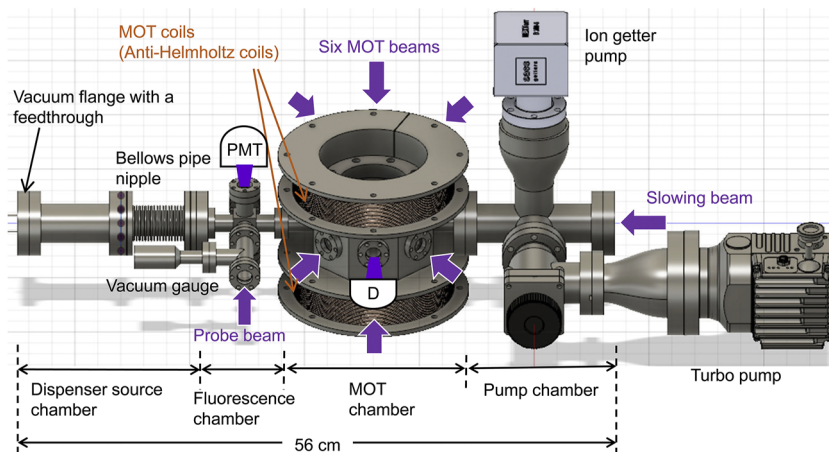


FIG. 2. Schematic of the developed vacuum chamber system for the realization of a 3D Yb MOT. The vacuum system contains four parts: (1) dispenser source chamber; (2) fluorescence chamber; (3) MOT chamber; and (4) slowing beam chamber. PMT: photo multiple tube; D: detector (photodetector or CMOS camera).

hollow cathode lamp (HCL). The modulation transfer technique was used in the Doppler-free spectroscopy of Yb in the HCL.¹⁹ The uncertainty of the frequency-stabilized laser was evaluated to be 0.23 MHz,²⁰ which is small enough for MOT operation.

The second part of the beam was used as a probe beam for Yb spectroscopy. Atomic beam spectroscopy was used to estimate the flux of the beam source. The probe beam was introduced into the fluorescence chamber from one of the side windows, perpendicular to the atomic beam, with horizontal light polarization. The fluorescence signal from the atoms in the beam was detected using a photo multiple tube (PMT) from the top viewport.

The third part of the 399 nm beam from the ECDL was sent to an injection locking system using a 399 nm diode laser (Nichia NDV4B16).^{21,22} The optical power of the laser beam was amplified from several milliwatts to 220 mW by injection locking. The amplified laser beam was then further split into two parts for the longitudinal cooling of the Yb atomic beam (slowing beam) and MOT operation (MOT beam). The slowing beam has a $1/e^2$ diameter of 3 mm and a beam intensity of $I_s = 5.3I_{\text{sat}}$, where $I_{\text{sat}} = 58 \text{ mW/cm}^2$ is the corresponding saturation intensity. The MOT beam has a diameter of 7 mm and total beam intensity of $I_{\text{MOT}} = 9.5I_{\text{sat}}$. For the optimization of the MOT operation, the frequencies of both the slowing and MOT beams were detuned separately using different acousto-optic modulators (AOMs). The fluorescence signal from the Yb atoms in the MOT was detected from a side window using a photodetector or CMOS camera to measure the number of atoms. All optical parts of the laser light source, stabilization system, and injection locking system were arranged on a $45 \times 90 \text{ cm}^2$ breadboard. In the vacuum system, the laser beams had a beam height of 15 cm, except for vertical MOT beams. This relatively low optical beam height, which is possible owing to the compact design of the vacuum chamber and MOT coils, contributes to the overall compactness of the experimental system.

III. EXPERIMENTAL RESULTS

A. Atomic beam

We performed atomic beam spectroscopy to estimate the atomic beam flux and lifetime of the beam source. Figure 3 shows

the fluorescence signals as a function of the laser frequency. The fluorescence signals (red curve) were observed using a PMT installed above the top viewport of the fluorescence chamber. The dispenser current was 4.5 A, and the power of the probe beam was 0.2 mW. The laser frequency is scanned by tuning the voltage applied to the piezoelectric actuator of the ECDL. Fluorescence signals from six stable isotopes were observed, with the exception of ^{168}Yb . This was due to the small natural abundance of ^{168}Yb . Some of the spectra overlapped because of the small difference in their isotope shifts. Here, we used a Voigt function, which is the convolution of the Lorentzian and Gaussian functions, to fit a part of the observed spectra [^{176}Yb , $^{173}\text{Yb}(F' = 5/2)$, ^{174}Yb]. Because the natural width (Γ) is the main contributor to the Lorentz width, the Lorentz width was fixed at $\Gamma = 2\pi \times 29.1 \text{ MHz}$. The Gaussian width was set to a single value for all the isotopes. The full-width half-maximum (FWHM) of the Gauss width (ω_G) is calculated to be 93.3 MHz from the fit (blue curve). The width reflects the transverse velocity distribution of the atomic beam. Using the temperature vs current curve in the specification of the dispenser, we obtained a dispenser temperature

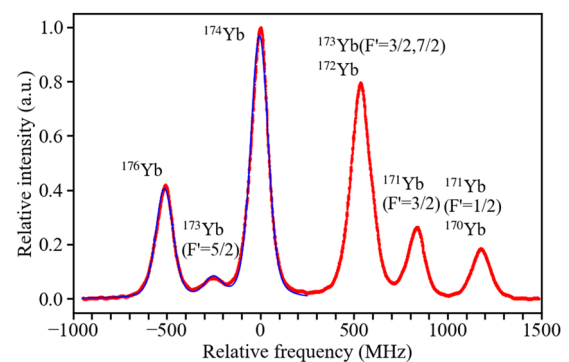


FIG. 3. Observed (red curve) and fitted (blue curve) fluorescence signals of the $^1S_0-^1P_1$ transition of Yb in the atomic beam. The spectra include fluorescence signals from six stable isotopes except for ^{168}Yb due to its small natural abundance. F' is the total angular momentum of the excited states.

of 675 K when the current was 4.5 A. Then, the most probable velocity (v_{mp}) of the atomic beam was calculated to be 311 m/s using the dispenser temperature. The beam divergence angle (half-width at half-maximum of the flux angular distribution, θ) can be calculated using the following relationship:²³

$$\frac{\omega_G}{2} = \frac{v_{mp} \sin \theta}{\lambda}, \quad (1)$$

where λ is the wavelength of the laser. Using Eq. (1), θ was calculated as 60 mrad.

We follow the procedure described in Ref. 14 to estimate the atomic flux (F) of the beam. The dispenser current was set at 4.5 A. Atomic flux is the product of the atomic density (ρ) and v_{mp} of the atomic beam,

$$F = \rho v_{mp}, \quad (2)$$

$$\rho = \frac{1}{V_{int}} \times P_{max} \times \frac{\Omega_{tot}}{\Omega_{ph}}, \quad (3)$$

$$\times \left(\frac{\hbar \omega_0 \Gamma s}{2 \sigma_t \sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dv_t \frac{\exp\left(-\frac{v_t^2}{2\sigma_t^2}\right)}{1 + 4\left(\frac{|k|v_t}{\Gamma}\right)^2} \right)^{-1}.$$

Here, V_{int} is the interaction volume of the laser beam and the atomic beam and is calculated to be $4.4 \times 10^{-8} \text{ m}^3$ using the laser beam diameter and the atomic beam divergence θ . Other parameters in Eq. (3) are as follows: P_{max} , the fluorescence optical peak power of ^{174}Yb (131 nW); Ω_{tot} , the total solid angle of dipole emission ($8\pi/3$ sr); Ω_{ph} , the solid angle under which the atomic fluorescence is observed using the photodiode (0.089 sr); \hbar , the reduced Planck's constant; ω_0 , the laser center frequency; s , the saturation parameter (0.12); σ_t , the velocity standard deviation (16 m/s); and $|k| = 2\pi/\lambda$, the modulus of the probe beam wavevector. The values in parentheses are calculated based on the present experimental conditions. Using these parameters, the atomic flux F of ^{174}Yb was calculated to be $4.6 \times 10^{12} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ when the dispenser current was 4.5 A ($T = 675 \text{ K}$). Considering the contributions of all Yb isotopes, we estimated a total flux of $F = 1.4 \times 10^{13} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. We conclude that the obtained F value is reasonable by comparing with $F = 1.0 \times 10^{13} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ of a Sr atomic beam reported in Ref. 14 using a compact Sr oven ($T = 723 \text{ K}$). In this comparison, the temperature of the Yb dispenser is lower than that of the Sr dispenser. Furthermore, even at the same temperature, the vapor pressure of Yb is higher than that of Sr.²⁴

The atomic flux can be used to calculate the flow rate (\dot{N}) of the atomic beam,¹⁴

$$\dot{N} = F \times \pi \left(\frac{L_{int}}{2} \right)^2, \quad (4)$$

where L_{int} is the interaction length of the laser and atomic beams along the laser beam and is estimated to be 16.8 mm. Figure 4 shows the calculated flow rate of the Yb atomic beam as a function of dispenser current. The flow rate increased rapidly as the dispenser current increased. Using Eq. (4), the flow rate \dot{N} is calculated to be $3.2 \times 10^{13}/\text{s}$ when the dispenser current is 4.5 A ($T = 675 \text{ K}$). This

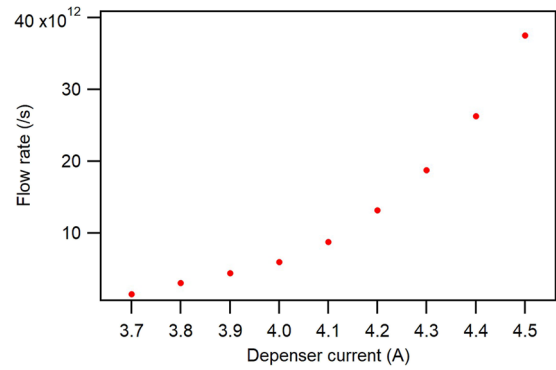


FIG. 4. Flow rate of the Yb atomic beam from the dispenser as a function of the dispenser current.

flow rate corresponds to a continuous operation lifetime (with 0.5 g of Yb) of ~ 1.7 years. We note that the flow rate of a dispenser may also be estimated based on a theoretical model of flux distribution from a tube.²² In such an estimation, the flow rate of the dispenser in the present experiment was calculated to be $6.2 \times 10^{14}/\text{s}$, which gives a much shorter lifetime of 32 days. In the theoretical model of flux distribution from a tube,²⁵ the atomic diffusion profile has a wide wing. Integration over the solid angle for atomic diffusion in the wing area increased the flow rate and decreased the lifetime in the estimation.

B. MOT

MOT for Yb atoms was realized using the developed dispenser atomic beam source. Figure 5 shows photographs from a side window of the MOT chamber when Yb atoms were trapped in the MOT. The photographs were taken using a CMOS camera. The white spot at the center of each photograph represents the fluorescence signal from the trapped atoms. Figures 5(a)–5(e) represent the fluorescence signals from (a) ^{174}Yb , (b) ^{176}Yb , (c) ^{173}Yb ($F' = 3/2, 7/2$) and ^{172}Yb , (d) ^{171}Yb ($F' = 3/2$), and (e) ^{171}Yb ($F' = 1/2$) and ^{170}Yb . In some cases, the MOT fluorescence signals from different isotopes cannot be divided because the resonant frequencies of these isotopes are very close. This situation is essentially the same as that of the fluorescence signals observed from the atomic beam, as shown in Fig. 3. The number of ^{174}Yb atoms in the realized MOT is 4.1×10^7 . This number of atoms was achieved when the dispenser current was 4.5 A; the power and detuning of slowing laser beam were 20.3 mW and -112.5 MHz , respectively; the MOT magnetic field gradient (dB_z/dz) was 39 G/cm; and the power and detuning of the MOT cooling laser beams were 35.0 mW and -17.5 MHz , respectively.

The above experimental parameters were optimized for a dispenser current of 4.5 A, corresponding to an atomic flux of $4.6 \times 10^{12} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. Figure 6 shows the number of ^{174}Yb atoms in the MOT as a function of the power of the slowing laser beam. The number of atoms was estimated using the fluorescence signal measured using a photodetector. The uncertainties associated with the measured number of atoms were calculated based on the fluctuations of the fluorescence signal. The number of atoms increased significantly when the slowing beam power was greater than 2 mW. The number of atoms did not saturate until the slowing beam

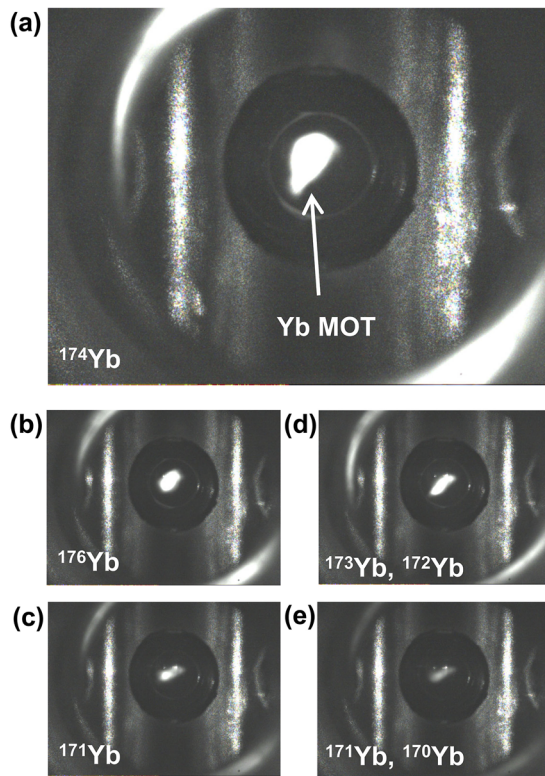


FIG. 5. The fluorescence signal from the Yb atoms in the MOT captured using a CMOS camera. Each photograph shows the signal of (a) ^{174}Yb , (b) ^{176}Yb , (c) ^{173}Yb ($F' = 3/2, 7/2$) and ^{172}Yb , (d) ^{171}Yb ($F' = 3/2$), and (e) ^{171}Yb ($F' = 1/2$) and ^{170}Yb .

power was increased to 20.3 mW, where the upper limit of the slowing beam power was reached. This implies that the laser power is one of the limiting factors for the number of atoms loaded in the MOT. The power balance between the slower beam and MOT beams was adjusted to achieve the largest number of atoms in the MOT. The detuning of the slower beam was changed from -100

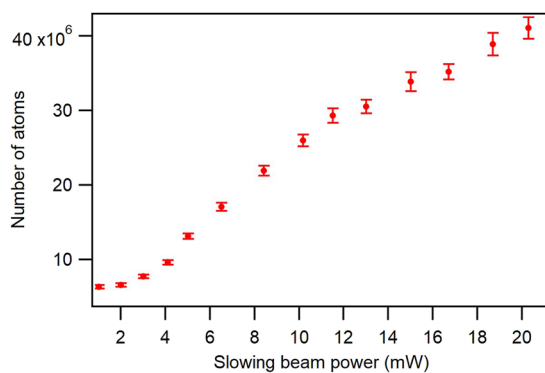


FIG. 6. Number of ^{174}Yb atoms in the MOT as a function of the power of the slowing laser beam.

to -160 MHz to search for the best detuning matching the velocity distribution of the atomic beam. No drastic dependence of the number of atoms in the MOT on detuning was observed. The detuning of the slower beam was set to -112.5 MHz, where the number of atoms in the MOT was slightly larger than that obtained with other detuning frequencies. The atomic velocity at which the detuning of the slower beam corresponds to the Doppler shift was 45 m/s, and the maximal capture velocity of the MOT was 34 m/s. We note here that the slower beam functioned successfully even without the Zeeman coils,²⁶ which typically require 15 W of electric power consumption.²⁷

Figure 7 shows the number of ^{174}Yb atoms in the MOT as a function of the magnetic quadrupole field gradient dB_z/dz , where the z -axis is along the vertical direction, as shown in Fig. 2. The magnetic-field gradient was measured before the coils were attached to the chamber. The number of atoms increased rapidly when the magnetic field gradient exceeded 20 G/cm. It appears that the number of atoms could have increased if the magnetic field was increased to more than 39 G/cm, where we reached the upper limit of the current (6.3 A, the limitation from the current source) applied to the MOT coils. This measurement was performed in one part of the parameter dependence study, and the reached number of atoms of 3.5×10^7 at 39 G/cm was not yet the maximum number, as shown in Fig. 6.

Figure 8 shows the loading time of the MOT. The vertical axis represents the atomic fluorescence measured using a photodetector. The horizontal axis indicates the time after the starting of MOT operation. The rate equation for the number of atoms (N) trapped in the MOT can be calculated by²⁸

$$\frac{dN}{dt} = \alpha - \beta N, \quad (5)$$

where α is the number of atoms loaded into the MOT. Atoms with a velocity slower than the maximum capture velocity were captured by the trap. The rate α depends on the size and intensity of the cooling laser beams and atomic flux. β is the linear loss due to the trap loss rate owing to collisions with the background gas atoms and untrapped Yb atoms and the branching ratio of the 1P_1 to the

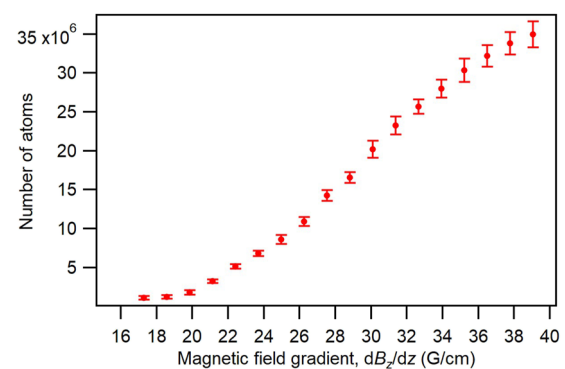


FIG. 7. Number of ^{174}Yb atoms in the MOT as a function of magnetic quadrupole field gradient dB_z/dz .

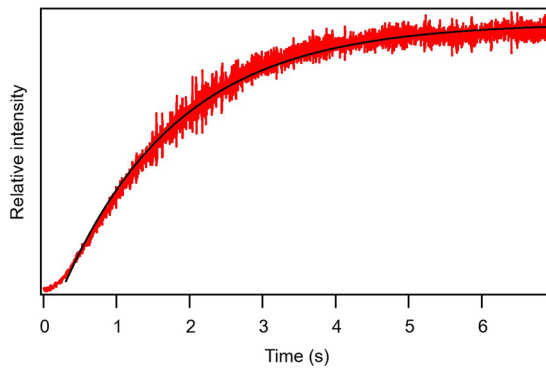


FIG. 8. Loading time of the MOT: atomic fluorescence as a function of time from the starting of the MOT operation. The red and black curves are the observed fluorescence signal and a theoretical fit, respectively.

D-states. The steady-state number of atoms was obtained as $N_{st} = \alpha/\beta$ by solving Eq. (5), with $dN/dt = 0$. The number of trapped atoms increases as follows:

$$N = N_{st} \left(1 - e^{-t/\tau}\right), \quad (6)$$

where $\tau = 1/\beta$ is the MOT loading time. The observed time dependence of the fluorescence signal (red curve in Fig. 8) was fitted using Eq. (6). From the fit, we found that the loading time of MOT was 1.6 s. In this experiment, $N_{st} = 4.1 \times 10^7$. The effective atomic flux of atoms is $N_{st}/\tau \sim 2.6 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$. In the MOT area, the atomic flux of ^{174}Yb was estimated to be $2.0 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$. Therefore, $\sim 1.3 \times 10^{-5}$ of the atoms in the atomic flux of ^{174}Yb are effectively trapped in the MOT.

We also measured the time constant of the dispenser operation. The fluorescence signal of Yb atoms in the MOT was measured as a function of time from the starting point at which the dispenser current was applied. The steady-state reached ~ 300 s after the dispenser was turned on. In a typical oven, the time constant for oven operation (turn on/off) is much longer (tens of minutes to an hour). This relatively long time is needed not only for starting the experiment but also for shutting down the system before stopping the cooling water for the oven.

IV. DISCUSSION AND CONCLUSION

In the present experiment, the obtained number of atoms of ^{174}Yb in the MOT was 4.1×10^7 . For comparison, the number of ^{171}Yb atoms in the 399 nm MOT in the Yb optical lattice clock²⁹ was 1×10^7 . Considering the ratio of the natural abundances, the number of atoms obtained in the present experiment was comparable to that obtained in the optical lattice clock experiment. If a larger number of atoms is needed, this can be achieved by increasing the current applied to the MOT coils and the laser power for slowing and cooling. The laser power can be increased by setting up another injection-locking system. We note that the number of atoms can also be increased if we introduce a Zeeman slower coil on the expense of the compactness of the setup.

During the experiment, we experienced a decrease in the number of atoms in the MOT owing to the decrease in the slowing beam power, which was caused by the coating of Yb atoms on the viewport for the injection of the slowing beam. This situation can be improved by replacing the window on the viewport. To avoid such a procedure that will break the vacuum, we have newly installed a window heated at 204°C inside a vacuum chamber in the path of the slowing laser beam to prevent the atomic beam from coating the viewport.²⁸ Since then, there has been no problem with the coating of the viewport. Another approach to solve this problem is to perform cold-atom experiment without the slowing beam,³⁰ which makes the system simpler. As indicated in Fig. 6, the atom number obtained with zero slower laser power was $\sim 4 \times 10^6$.

The present vacuum system can be improved by simply disconnecting the fluorescence chamber. A fluorescence chamber was used for the atomic beam spectroscopy to estimate the atomic flux of the dispenser. If we continue to use HCL (not atomic beam spectroscopy) for laser frequency stabilization, the fluorescence chamber can be removed from the vacuum system. Therefore, the dispenser should be placed closer to the MOT area to increase the atomic flux in the MOT region. Although re-optimization is necessary for the detuning of the slowing beam, the number of atoms should be increased with a closer dispenser system.

Along this line, a glass cell vacuum system together with a dispenser can be used to develop a compact system for cold atom experiments. In this design, much smaller anti-Helmholtz coils can be used to realize an MOT with very low electrical power consumption. Heating the glass may be useful in avoiding Yb coating on the glass cell.

V. SUMMARY

We demonstrated the direct loading of Yb atoms into a 3D magneto-optical trap from a dispenser atomic source. The experimental setup contained a compact vacuum system with the largest dimensions of 56 cm and a compact laser system for the cooling and trapping of Yb atoms. The power consumption of the dispenser was ~ 3 W. The dispenser can operate without water cooling and has a warm-up time of 300 s. The MOT coils also have low power consumption (operating without water cooling) and are compact (resulting in a low optical beam height of 15 cm). Atomic flux from the dispenser was $4.6 \times 10^{12} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ when the dispenser current was 4.5 A ($T = 675$ K). The MOT of Yb based on the $6s^2\ ^1S_0 - 6s6p\ ^1P_1$ transition at 399 nm was realized with a trapping number of atoms of 4.1×10^7 . The loading time of MOT was ~ 1.6 s. The realization of MOT using the strong dipole-allowed transition at 399 nm is an important starting point for experiments using Yb cloud atoms. Our system has great potential for many applications, including optical lattice clocks and quantum simulations. The realized cold atom system can also be adapted in experiments on alkaline earth and other alkaline earth-like atoms.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was supported by the Japan Society for the Promotion of Science (JSPS) KAKENHI (Grant No. 18H03886).

AUTHOR DECLARATIONS

Conflict of Interest

The authors have no conflicts to disclose.

Author Contributions

F.-L.H., D.A., and T.K. conceived the experiment; J.N., T.M., Y.K., and Y.H. conducted the experiment; and F.-L.H., J.N., T.M., Y.K., and D.A. analyzed the results. All authors have reviewed the manuscript.

Junia Nomura: Data curation (equal); Formal analysis (equal); Investigation (equal); Methodology (equal); Writing – original draft (equal); Writing – review & editing (equal). **Tomohiko Momma:** Data curation (equal); Formal analysis (equal); Writing – review & editing (equal). **Yuki Kojima:** Data curation (equal); Formal analysis (equal); Writing – review & editing (equal). **Yusuke Hisai:** Data curation (equal); Formal analysis (equal); Writing – review & editing (equal). **Takumi Kobayashi:** Methodology (equal); Writing – review & editing (equal). **Daisuke Akamatsu:** Conceptualization (equal); Data curation (equal); Formal analysis (equal); Methodology (equal); Writing – original draft (equal); Writing – review & editing (equal). **Feng-Lei Hong:** Conceptualization (equal); Data curation (equal); Formal analysis (equal); Funding acquisition (equal); Methodology (equal); Project administration (equal); Supervision (equal); Writing – original draft (equal); Writing – review & editing (equal).

DATA AVAILABILITY

The data that support the findings of this study are available from the corresponding author upon reasonable request.

REFERENCES

- T. Kohno, M. Yasuda, K. Hosaka, H. Inaba, Y. Nakajima, and F.-L. Hong, *Appl. Phys. Express* **2**, 072501 (2009).
- N. D. Lemke, A. D. Ludlow, Z. W. Barber, T. M. Fortier, S. A. Diddams, Y. Jiang, S. R. Jefferts, T. P. Heavner, T. E. Parker, and C. W. Oates, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 063001 (2009).
- C. Y. Park, D.-H. Yu, W.-K. Lee, S. E. Park, E. B. Kim, S. K. Lee, J. W. Cho, T. H. Yoon, J. Mun, S. J. Park, T. Y. Kwon, and S.-B. Lee, *Metrologia* **50**, 119 (2013).
- N. Nemitz, T. Ohkubo, M. Takamoto, I. Ushijima, M. Das, N. Ohmae, and H. Katori, *Nat. Photonics* **10**, 258 (2016).
- M. Pizzocaro, P. Thoumany, B. Rauf, F. Bregolin, G. Milani, C. Clivati, G. A. Costanzo, F. Levi, and D. Calonico, *Metrologia* **54**, 102 (2017).
- Q. Gao, M. Zhou, C. Han, S. Li, S. Zhang, Y. Yao, B. Li, H. Qiao, D. Ai, G. Lou, M. Zhang, Y. Jiang, Z. Bi, L. Ma, and X. Xu, *Sci. Rep.* **8**, 8022 (2018).
- A. Zhang, Z. Xiong, X. Chen, Y. Jiang, J. Wang, C. Tian, Q. Zhu, B. Wang, D. Xiong, L. He, L. Ma, and B. Lyu, *Metrologia* **59**, 065009 (2022).
- R. Yamamoto, J. Kobayashi, T. Kuno, K. Kato, and Y. Takahashi, *New J. Phys.* **18**, 023016 (2016).
- A. J. Daley, M. M. Boyd, J. Ye, and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 170504 (2008).
- Y. Takasu, K. Maki, K. Komori, T. Takano, K. Honda, M. Kumakura, T. Yabuzaki, and Y. Takahashi, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 040404 (2003).
- 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. Zampalo, P. Thoumany, M. Pizzocaro, B. Rauf, F. Bregolin, A. Tampellini, P. Barbieri, M. Zucco, G. A. Costanzo, C. Clivati, and F. Levi, and D. Calonico, *Nat. Phys.* **14**, 437 (2018).
- M. Takamoto, I. Ushijima, N. Ohmae, T. Yahagi, K. Kokado, H. Shinkai, and H. Katori, *Nat. Photonics* **14**, 411 (2020).
- J. Flury, *J. Phys.: Conf. Ser.* **723**, 012051 (2016).
- M. Schioppa, N. Poli, M. Prevedelli, S. Falke, C. Lisdat, U. Sterr, and G. M. Tino, *Rev. Sci. Instrum.* **83**, 103101 (2012).
- E. M. Bridge, J. Millen, C. S. Adams, and M. P. A. Jones, *Rev. Sci. Instrum.* **80**, 013101 (2009).
- G. Verma, C. Vishwakarma, C. V. Dharmadhikari, and U. D. Rapol, *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 033103 (2017).
- S. Dörscher, A. Thobe, B. Hundt, A. Kochanek, R. L. Targat, P. Windpassinger, C. Becker, and K. Sengstock, *Rev. Sci. Instrum.* **84**, 043109 (2013).
- A. Jenkins, J. W. Lis, A. Senoo, W. F. McGrew, and A. M. Kaufman, *Phys. Rev. X* **12**, 021027 (2022).
- T. Tanabe, D. Akamatsu, H. Inaba, S. Okubo, T. Kobayashi, M. Yasuda, K. Hosaka, and F.-L. Hong, *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 062501 (2018).
- Y. Kojima, K. Ikeda, Y. Tanabe, D. Akamatsu, and F.-L. Hong, *Opt. Lett.* **47**, 30 (2022).
- T. Hosoya, M. Miranda, R. Inoue, and M. Kozuma, *Rev. Sci. Instrum.* **86**, 073110 (2015).
- T. Kobayashi, D. Akamatsu, Y. Nishida, T. Tanabe, M. Yasuda, F.-L. Hong, and K. Hosaka, *Opt. Express* **24**, 12142 (2016).
- C. Li, X. Chai, B. Wei, J. Yang, A. Daruwalla, F. Ayazi, and C. Raman, *Nat. Commun.* **10**, 1831 (2019).
- C. B. Alcock, V. P. Itkin, and M. K. Horrigan, *Can. Metall. Q.* **23**, 309 (1984).
- L. Sharma, A. Roy, S. Panja, and S. De, *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 053202 (2019).
- C. Y. Park and T. H. Yoon, *Phys. Rev. A* **68**, 055401 (2003).
- T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, Y. Hisai, M. Wada, H. Inaba, T. Suzuyama, and F.-L. Hong, and M. Yasuda, *Metrologia* **57**, 065021 (2020).
- B. P. Anderson and M. A. Kasevich, *Phys. Rev. A* **63**, 023404 (2001).
- M. Yasuda, F.-L. Hong, T. Kohno, H. Inaba, K. Hosaka, C. Willis, T. Kurosu, A. Onae, and S. Ohshima, *Proc. SPIE* **6673**, 66730D (2007).
- U. D. Rapol, A. Krishna, A. Wasan, and V. Natarajan, *Eur. Phys. J. D* **29**, 409 (2004).

Sub-Doppler Spectroscopy of Yb Using a Diode Laser at 399 nm

Junia Nomura¹⁾, Yusuke Hisai^{1,2)}, Kazumichi Yoshii^{1,2)}, and Feng-Lei Hong^{1,2)}

¹⁾ Department of Physics, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan

²⁾ JST, ERATO, MINOSHIMA Intelligent Optical Synthesizer Project, ERATO, 1-5-1 Chofugaoka, Chofu, Tokyo 182-8585, Japan
nomura-junia-xb@ynu.jp

Abstract: We have developed a compact frequency-stabilized laser system at 399 nm based on Sub-Doppler spectroscopy of the $^1S_0 - ^1P_1$ transition of ytterbium in a hollow-cathode lamp. The frequency stability of the laser was estimated.

1. Introduction

Frequency-stabilized lasers are important for high precision laser spectroscopy and laser cooling due to their high frequency stability. Ytterbium (Yb) has five bosonic and two fermionic isotopes with relatively high natural abundances. Yb has two intercombination transitions with narrow spectral linewidths. Due to these features, Yb is being studied for various experiments of fundamental physics including optical clocks [1] and Quantum simulations [2]. The strong $6s^2 ^1S_0 - 6s6p ^1P_1$ transition of Yb at 399 nm has a natural linewidth of 28 MHz and is used to create ultra-cold Yb atomic ensemble by laser cooling. Using a frequency doubled Ti:Sapphire laser, Das *et al* measured the absolute frequency of the $6s^2 ^1S_0 - 6s6p ^1P_1$ transition of ^{174}Yb atoms in the atomic beam to be 751 525 987.761(60) MHz [3]. Tanabe *et al* demonstrated the frequency stabilization at 399 nm using the second harmonic generation of an external cavity diode laser (ECDL) operating at 798 nm based on Doppler-free spectroscopy of ^{174}Yb atoms in a hollow-cathode lamp (HCL) and determined the absolute frequency of the transition to be 751 526 522.5(5) MHz using an optical frequency comb [4]. Although several groups measured the absolute frequency of the transition, these measurement values do not agree with in their measurement uncertainties.

In this paper, we demonstrate Doppler-free spectroscopy of Yb of the $6s^2 ^1S_0 - 6s6p ^1P_1$ transition using an ECDL with an interference filter inside the laser cavity operating at 399 nm and a HCL. This laser has an advantage in the laser cavity design resulting stable optical axis in the laser output when the laser is scanned. In the HCL, the collisions of ytterbium atoms and other atoms cause frequency shift. It is important to investigate possible frequency shifts and improve the accuracy of the frequency measurement of the $6s^2 ^1S_0 - 6s6p ^1P_1$ transition.

2. Experimental setup

Figure 1 shows a schematic illustration of the frequency stabilization system of an external cavity diode laser system. We used a ECDL (MOGLabs, CEL002) employing a ultranarrow interference filter for mode selection and cat-eye reflection geometry to reduce susceptibilities to intra-cavity optical misalignment and mechanical vibration. The laser operating at 399 nm emits a beam with a power of about 20 mW and a spectral linewidth of about 350 kHz. The laser power is enough for saturation spectroscopy and the linewidth is sufficiently smaller than natural linewidth of the $6s^2 ^1S_0 - 6s6p ^1P_1$ transition of Yb. The laser beam passed through an optical isolator to avoid feedback light. A half-wave plate ($\lambda/2$) and a polarization beam splitter (PBS1) were used to divide the beam into two parts. One portion of this beam was used for

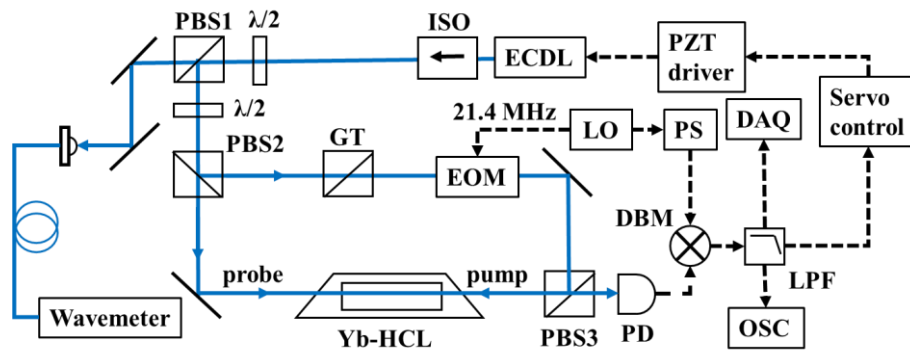


Fig. 1. Schematic diagram of experimental set up of ytterbium stabilized laser using the modulation transfer technique. ECDL: External cavity diode laser, ISO: Isolator, $\lambda/2$: Half-wave plate, PBS: Polarization beam splitter, GT: Glan-Thompson prism, EOM: Electro-optic modulator, Yb-HCL: Yb hollow-cathode lamp, PZT driver: Piezoelectric transducer driver, PD: Photo detector, LO: Local oscillator, PS: Phase shifter, DBM: double balanced mixer, LPF: Low-pass filter, DAQ: Data acquisition system. Optical and electrical paths are shown as solid and dashed lines, respectively.

spectroscopy. The other was sent to a wavemeter for wavelength monitoring via a single mode fiber.

Doppler-free spectroscopy of Yb was based on the modulation transfer technique [5]. The laser beam was separated into two parts again by a $\lambda/2$ and a PBS2. The reflected beam (pump beam) was phase modulated by an electro-optical modulator (EOM). The transmitted beam (probe beam) and the pump beam were overlapped anti-collinearly in an Yb-HCL (Hamamatsu L2783-70NE-Yb). The unmodulated probe beam passed through the Yb-HCL and developed sidebands as a result of a four-wave mixing process when saturation occurred. This probe beam was separated from the pump beam by a PBS3 and detected by a photo detector. We obtained the modulation transfer signal of the spectral lines by demodulating the signal from the photo detector using a double balanced mixer. The modulation transfer signal was monitored by a data acquisition system. The signal was fed back to the piezoelectric transducer (PZT) of the ECDL.

3. Result

Figure 2 shows the observed modulation transfer signal of the $6s^2 \ ^1S_0 - 6s6p \ ^1P_1$ transition of Yb. This was obtained by a continuous frequency scan by tuning the temperature of the ECDL. The optical powers of the pump and probe beams in the spectrometer were 4.7 mW and 0.50 mW, respectively. The Yb-HCL was usually run with a voltage of 160 V. The modulation frequency of the EOM was 21.4 MHz. The waveform of the signal was recorded with a digital oscilloscope with a low-pass filter at 100 Hz. The signal-to-noise ratio of the signal of ^{174}Yb is approximately 120. The linewidth of the signal is estimated to be about 100 MHz. We have successfully observed all isotope signals except ^{168}Yb .

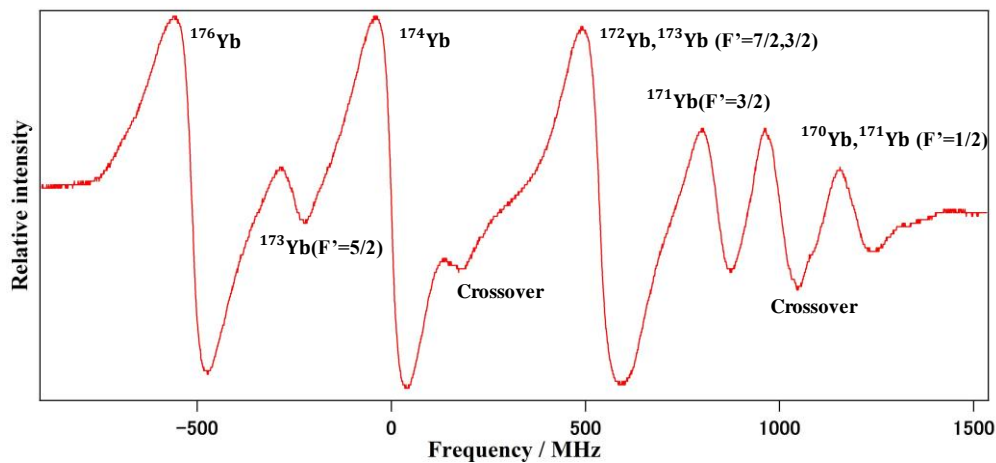


Fig. 2. Modulation transfer signal of the $^1S_0 - ^1P_1$ transition of Yb atoms in HCL obtained in a bandwidth of 100 Hz.

The laser frequency was stabilized to the center of the dispersive like lineshape of ^{174}Yb by feed-back control of the PZT of the ECDL. Since currently we do not have an optical frequency comb which covers 399 nm in the laboratory, we evaluated the frequency stability of the stabilized ECDL by estimating the frequency fluctuation from the error signal used in the frequency locking. The frequency stability of the ECDL was estimated to be 7.6×10^{-11} at 1-s averaging time. Furthermore, we will measure the frequency stability by using an optical frequency comb that can cover 399 nm and report the absolute frequency of the $^1S_0 - ^1P_1$ transition of Yb.

4. References

- [1] T. Kohno, M. Yasuda, K. Hosaka, H. Inaba, Y. Nakajima, and F.-L. Hong, "One-Dimensional Optical Lattice Clock with a Fermionic ^{174}Yb Isotope," *Appl. Phys. Express* **2**, 072501-1-3 (2009).
- [2] S. Takahashi, K. Inaba, S. Sugawa, K. Shibata, R. Yamamoto, M. Yamashita, and Y. Takahashi, "Laser spectroscopic probing of coexisting superfluid and insulating state of an atomic Bose-Hubbard system," *Nat. Commun.* **7**, 11341-1-6(2016).
- [3] D. Das, S. Barthwal, A. Banerjee, and V. Natarajan, "Absolute frequency measurements in Yb with 0.08 ppb uncertainty: Isotope shifts and hyperfine structure in the 399-nm $^1S_0 - ^1P_1$ line," *Phys. Rev. A* **72**, 032506 (2005).
- [4] T. Tanabe, D. Akamatsu, H. Inaba, S. Okubo, T. Kobayashi, M. Yasuda, F.-L. Hong, and K. Hosaka, "Characterization of a 399-nm light source stabilized to the $6s^2 \ ^1S_0 - 6s6p \ ^1P_1$ transition in Yb atoms in a hollow-cathode lamp," submitted to *Applied Optics*.
- [5] J. H. Shirley, "Modulation transfer processes in optical heterodyne saturation spectroscopy," *Opt. Lett.*, **7**, 537-539 (1982).

399 nm 半導体レーザーを用いた Yb 原子のドップラーフリー分光

Sub-Doppler Spectroscopy of Yb Using a Diode Laser at 399 nm

○野邑寿仁¹⁾, 久井裕介^{1,2)}, 吉井一倫^{1,2)}, 洪鋒雷^{1,2)}

○Junia Nomura¹⁾, Yusuke Hisai^{1,2)}, Kazumichi Yoshii^{1,2)}, and Feng-Lei Hong^{1,2)}

横浜国立大学 理工学部¹⁾, JST, ERATO 美濃島知的光シンセサイザ²⁾

Department of Physics, Graduate School of Engineering, Yokohama National University¹⁾,

JST, ERATO MINOSHIMA Intelligent Optical Synthesizer²⁾

E-mail: nomura-junia-xb@ynu.jp

We develop a frequency-stabilized laser system at 399 nm based on sub-Doppler spectroscopy of the $^1S_0 - ^1P_1$ (Yb) transition of ytterbium (Yb) using a hollow-cathode lamp and a diode laser. The diode laser is an external cavity diode laser with an interference filter inside the cavity and have an output power of about 25 mW at 399 nm.

1. 背景と目的

イッテルビウム原子(Yb)は2つの弱い異重項間遷移を持ち、それらの遷移確率が小さく上準位の寿命が長い。また、閉殻基底状態でのスピン交換衝突がアルカリ金属原子に比べて小さく、基底状態の電子配置は一重項であり、磁場による影響を受けないので光格子時計に用いられる原子として有力な候補である¹⁾。さらに、豊富な同位体、具体的には5つのボソン同位体と2つのフェルミオン同位体が存在し、これらの性質を活かして Yb は量子縮退気体の相転移の研究にも利用されている²⁾。また、 ^{171}Yb は核スピンの $\frac{1}{2}$ であり、長寿命 q-bit として量子計算へ利用する研究も進められている³⁾。これらの研究を行うためには Yb のレーザー冷却を行う必要があり、そのために利用されるのが 399 nm の $^1S_0 - ^1P_1$ の許容光学遷移である。

Yb 原子のこの遷移を調べた先行研究として、798 nm のチタンサファイアレーザーと2次高調波発生光源を利用して、ホローカソードランプ(hollow-cathode lamp: HCL)中の Yb 原子のドップラーフリー分光を偏光分光法で行われたものや⁴⁾、798 nm の外部共振器型半導体レーザー(External cavity diode laser: ECDL)と2次高調波発生光源を利用して、ドップラーフリー分光法である Modulation transfer 法により行われたものが報告されている⁵⁾。今回の研究では、波長 399 nm のフィルター型 ECDL を用いて Yb 原子のドップラーフリー分光を行う。フィルター型の ECDL を用いることで光軸のずれが起こりにくくなり、分光系の性能向上が期待される。ホローカソードランプ中では、他の原子や分子による衝突効果が評価されていないので、得られる遷移周波数が正確ではない可能性がある。我々は最終的に、ホローカソードランプ中の Yb 原子と真空中の Yb 原子ビームのドップラーフリー分光結果を比較し、より正確な遷移周波数の決定を目指す。

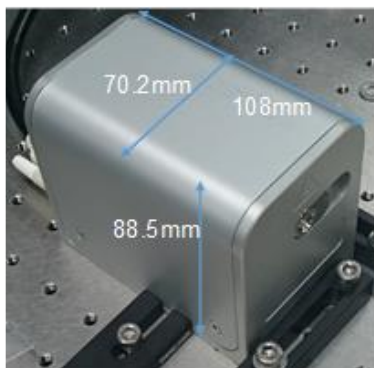


Fig. 1. An external cavity diode laser at 399 nm.

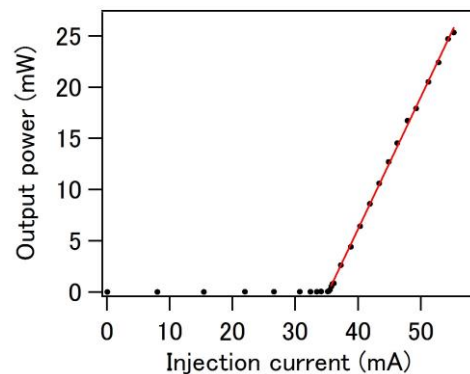


Fig. 2. Laser output power vs injection current.

2. 実験

今回の実験で我々が用いるフィルター型 ECDL の外観を図 1 に示す。この ECDL は、狭線幅の干渉フィルターを用いて波長選択を行うものであり、波長掃引の際に光軸がずれない。またこのレーザーは、レンズの焦点にミラーを置くことで反射光を入射方向に対して平行に反射するという CatEye 構造を用いているため、微小な振動でレンズやミラーがわずかにずれたとしても光軸のズレが起きにくい。

次に、このレーザー光源の出力パワーの注入電流依存性を図 2 に示す。温度 25.4 度、ピエゾアクチュエーター (PZT) 印加電圧 0 V において、電流の発振閾値は 35.2 mA である。また、注入電流が 55 mA のときに、レーザーの出力パワーは 25 mW に達した。このレーザーパワーは、HCL 及び原子ビームのドップラーフリー分光において十分だと考える。さらに、レーザーの温度、注入電流及び PZT の調整により、レーザーの発振波長を Yb 原子の吸収線に合わせられることを確認した。

3. 分光手法

我々は、ドップラー広がりを防ぐために飽和吸収分光の 1 つである Modulation transfer 法を用いている。図 3 は実験に用いた光学系を表している。ECDL から出た光はアイソレーターを通過し、ビームスプリッターで 2 つに分かれる。一方は波長計に通してモニタリングを行い、もう一方の光を分光に用いる。その光を PBS1 で 2 つに分け、ポンプ光は音響光学変調器及び電気光学変調器を通して PBS2 で反射させてホローカソードランプに通す。プローブ光は HCL 中でポンプ光に重ね合わされて PBS2 によって取り出された後フォトディテクターへ集光する。Modulation transfer 法は、Yb 原子を非線形光学効果の媒質とした四光波混合によってポンプ光の変調をプローブ光に移した後、この変調信号をロックインアンプで復調することで微分信号を得る分光法であり、DC オフセットが 0 の微分信号を得られるという特長がある⁶⁾。

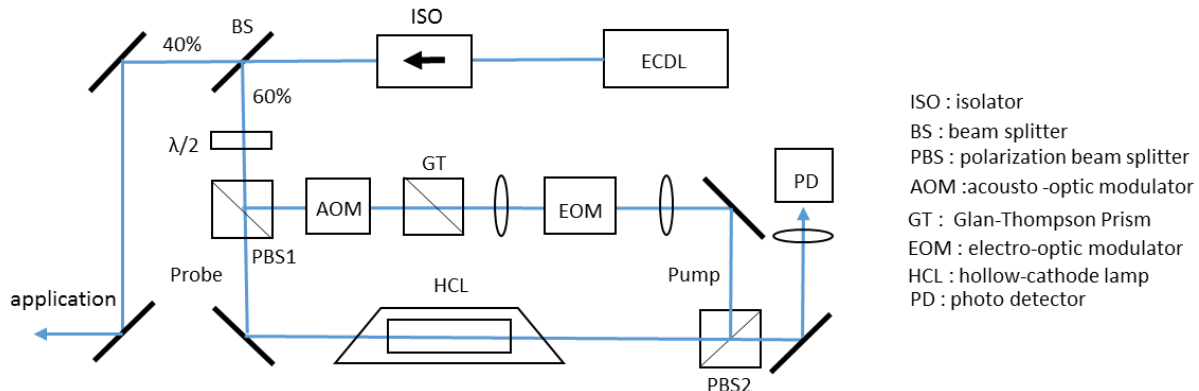


Fig.3. Experimental setup.

文献

- 1) M. Yasuda, H. Inaba, T. Kohno, T. Tanabe, Y. Nakajima, K. Hosaka, D. Akamatsu, A. Onae, T. Suzuyama, M. Amemiya and F.-L. Hong, Appl. Phys. Express, **5**, 102401-1-3 (2012).
- 2) R. Yamamoto, J. Kobayashi, T. Kuno, K. Kato and Y. Takahashi, New J. Phys., **18**, 023016-1-10 (2016).
- 3) T. Hosoya, M. Miranda, R. Inoue and M. Kozuma, Rev. Sci. Instrum., **86**, 073110-1-5 (2015).
- 4) S. Zhu, T. Chen, X. Li and Y. Wang, J. Opt. Soc. Am. B, **31**, 2302-2309 (2014).
- 5) 田辺, 赤松, 安田, 小林, 保坂, 稲場, 大久保, 大苗, 洪, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 11a-A14-10 北海道大学 (2014).
- 6) J. H. Shirley, Opt. Lett., **7**, 537-539 (1982).

399 nm フィルター型外部共振器半導体レーザーを用いた Yb 原子のドップラーフリー分光

横浜国大理工^A, JST, ERATO 知的光シンセ^B

野邑寿仁亜^A, 久井裕介^{A,B}, 吉井一倫^{A,B}, 洪鋒雷^{A,B}

Sub-Doppler Spectroscopy of Yb using an external-cavity diode laser at 399 nm with an intracavity interference filter

^ADep. Physics, YNU, ^BJST, ERATO IOS

J. Nomura^A, Y. Hisai^{A,B}, K. Yoshii^{A,B}, and F.-L. Hong^{A,B}

イッテルビウム原子(Yb)は、(i) 2つの弱い異重項間遷移を持つ、(ii) 基底状態の電子配置は一重項であり、磁場による影響を受けない、(iii) 豊富な同位体が存在する、等の特徴を持つ。そのため、光格子時計の研究[1]を始めとした様々な基礎物理研究に利用されている。これらの研究を行うためには Yb のレーザー冷却を行う必要があり、そのために利用されるのが $^1S_0 - ^1P_1$ の許容光学遷移(波長 399 nm, 自然幅 29 MHz)である。

先行研究は Yb 原子のドップラーフリー分光を行い、 ^{174}Yb の $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移の周波数を 751525987.761(60) MHz と報告した[2]。また別の研究グループが、798 nm の外部共振器型半導体レーザー(External cavity diode laser: ECDL)と 2次高調波発生光源を利用して、ドップラーフリー分光法である Modulation Transfer 法でホローカソードランプ中の Yb 原子の遷移を調べた[3]。今回の研究では、波長 399 nm のフィルター型 ECDL を用いて Yb 原子の Modulation transfer 分光を行った。フィルター型の ECDL を用いることで光軸のずれが起きにくくなり、分光系の性能向上が期待される。図 1 に測定された Modulation transfer 信号を示す。また、観測された ^{174}Yb の吸収線にロックし、周波数安定化を行った。講演では、測定した周波数安定度の結果などを報告する。

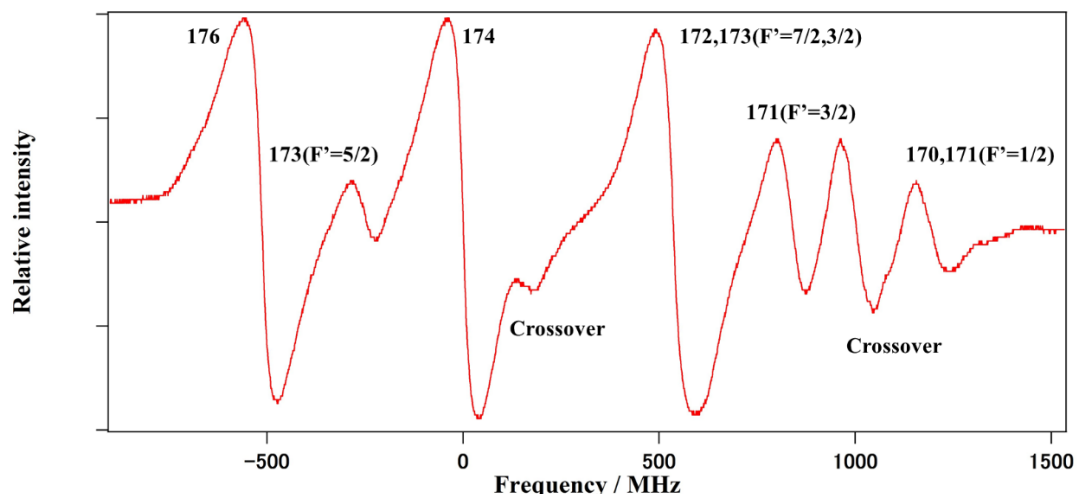


図 1: Modulation transfer 分光法による Yb 原子の $^1S_0 - ^1P_1$ 遷移の信号

[1] T. Kohno, M. Yasuda, K. Hosaka, H. Inaba, Y. Nakajima, and F.-L. Hong, Appl. Phys. Express **2**, 072501 (2009).

[2] D. Das, S. Barthwal, A. Banerjee, and V. Natarajan, Phys. Rev. A **72**, 032506 (2005).

[3] 田辺, 赤松, 安田, 小林, 保坂, 稲場, 大久保, 大苗, 洪, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 11a-A14-10 北海道大学 (2014).

Yb 原子レーザー冷却用の小さな真空及びレーザー装置の開発

Development of a compact vacuum and laser system for laser cooling of Yb atoms

○野呂寿仁^{1,3)}, 門馬知彦¹⁾, 久井裕介^{1,3)}, 吉井一倫^{1,3)}, 小林拓実²⁾, 赤松大輔²⁾, 洪鋒雷^{1,3)}

○Junia Nomura^{1,3)}, Tomohiko Momma¹⁾, Yusuke Hisai^{1,3)}, Kazumichi Yoshii^{1,3)}, Takumi Kobayashi²⁾, Daisuke Akamatsu²⁾, and Feng-Lei Hong^{1,3)}

横浜国立大学 理工学部¹⁾, 産業技術総合研究所²⁾, JST, ERATO 美濃島知的光シンセサイザ³⁾

Department of Physics, Graduate School of Engineering Science, Yokohama National University¹⁾, AIST²⁾, JST, ERATO MINOSHIMA Intelligent Optical Synthesizer³⁾
E-mail: nomura-junia-xb@ynu.jp

We design and develop a compact laser cooling system for a magneto-optical-trap of ytterbium atoms. The system consists of a small vacuum chamber with a dispenser as an atomic source, and a frequency-stabilized laser system at 399 nm based on sub-Doppler spectroscopy of the $^1S_0 - ^1P_1$ transition of Yb using a hollow-cathode lamp.

1. はじめに

イッテルビウム原子(Yb)は、(i)2つの非常に狭線幅の異重項間遷移を持つ、(ii)基底状態の電子配置が一重項であり、磁場による影響を受けない、(iii)豊富な安定同位体が存在する、などの特徴を持つ。そのため、Ybは光格子時計¹⁾や量子シミュレーション²⁾を始めとした様々な基礎物理の研究に利用されている。これらの研究を行うためには、レーザー冷却による極低温 Yb 原子集団生成が必要であり、そのために利用されるのが 399 nm の $^1S_0 - ^1P_1$ 許容光学遷移である。

同遷移の絶対周波数計測の先行研究として、798 nm のチタンサファイアレーザーの 2 次高調波光源と真空中の原子ビームを用いた蛍光分光法による報告³⁾がある。また他の先行研究では、798 nm の外部共振器型半導体レーザー(External cavity diode laser: ECDL)の 2 次高調波光源を利用して、ドップラーフリー分光法の一つである Modulation transfer 法により、ホローカソードランプ(hollow-cathode lamp: HCL)中の Yb 原子の同遷移の絶対周波数計測を行った⁴⁾。しかし、各先行研究で報告された絶対周波数値は不確かさの範囲内で一致しておらず、未だ議論の余地が残っている。

本研究では従来に比べて小型かつ簡便なレーザー冷却装置の開発を行う。このレーザー冷却装置は、真空装置と周波数安定化レーザー装置から構成されている。真空装置についてはディスペンサーを原子線源として用い、周波数安定化レーザー装置については波長 399 nm の光を直接出射する ECDL と HCL を利用する。我々は最終的に HCL 中の Yb 原子と真空中の Yb 原子ビーム、及び磁気光学トラップ(Magneto-optical-trap: MOT)中の Yb 原子のドップラーフリー分光結果を比較し、より正確な遷移周波数の決定を目指す。

2. 実験装置

本研究ではディスペンサー(AlfaSource: AS-Yb-0500-3F, 図 1(a))を原子線源として利用する。ディスペンサー内にはアルゴン雰囲気下で 500 mg の Yb 金属が封入されており、出射口はインジウム薄膜により封が

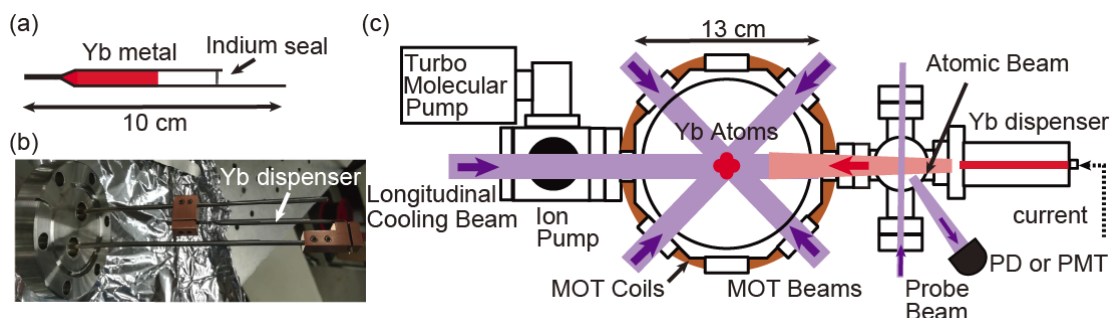


Fig. 1. (a) Cross-section of the dispenser. (b) Spectrogram of the dispenser with a commercial ICF 70 feedthrough. (c) Schematic view of the apparatus of the vacuum chamber system for the MOT experiment of Yb. PMT: Photo multiple tube, PD: Photo detector. Optical and electrical paths are shown as solid and dashed lines, respectively.

されている。ディスペンサーは2本の電流端子が付いたフィードスルー(SOLID SEALING TECHNOLOGY, INC: FA11638-02)に取り付けられており(図 1(b))、電流を流すことでディスペンサーを加熱し、封を溶かすことで原子ビームを出射する。図 1(c)に我々が開発した真空装置の概念図を示す。ディスペンサーの直後に入射されているプローブ光は、原子ビームの蛍光を観測するためのものである。蛍光信号は、光検出器あるいは光電子増倍管を用いて観測される。一方、ディスペンサーから出射した原子ビームは対向して入射された光で減速される。その後、アンチヘルムホルツコイル(MOT Coils)による磁場と、真空チェンバーに6方向から入射された MOT 光により磁気光学トラップ(Magneto-optical-trap: MOT)を行う。MOT チェンバーの構造は正八角柱(上底面: 一辺 5.4 cm、外接円の直径が 13 cm の正八角形、高さ: 7 cm)である。側面のうち2面にはニップルが溶接されており、上下2面には ICF114 の、それ以外の面には ICF34 のビューポートが取り付けられている。光学定盤を基準としてレーザー及び原子ビームの高さは 15 cm である。

図 2 に周波数安定化レーザーの実験装置概略図を示す。実験装置は大きく(i)飽和分光を用いた周波数安定化機構、(ii)注入同期法を用いたレーザー出力増幅機構の2つに分かれている。本実験では波長 399 nm の光を出射する Littrow 型 ECDL を用いる。レーザーのパワーは 25mW である。ECDL の出射光は戻り光の影響を避けるためにアイソレーターを通過し、HWP1 と PBS1 を用いて2つに分けられ、透過光は周波数安定化に、反射光は注入同期に利用される。PBS1 の透過光はアナモルフィックプリズムペアで空間モードを整形された後、HWP2 と PBS2 を用いて2つに分かれる。

我々はドップラー広がりを防ぐために飽和分光の1つである Modulation transfer 法を用いている⁵⁾。周波数安定化の際には、飽和分光で得られた信号は ECDL の共振器長を制御するピエゾアクチュエーター及び電流コントローラーにフィードバックされる。

一方で PBS1 の反射光は注入同期法によるパワー増幅に利用される^{6,7)}。送られたビームは PBS5 で反射され、HWP4 とファラデーローテーターを通った後、空間モードがおよそ一致した形でスレーブレザー(NICHIA: NDV4B16)へ入射される。スレーブレザーは低温保持され、結露防止のために筐体は窒素充填されている。スレーブレザーの発振波長のひとつとマスターレーザーの波長が十分近づくと注入同期が起こり、スレーブレザーがシングルモード発振する。スレーブレザーの出射光は HWP4 とファラデーローテーターを通過し、PBS5 を用いて取り出される。そのビームを HWP5 と PBS6、HWP6 と PBS7 で3つに分離し、透過光を Fabry-Perot 共振器に送る。Fabry-Perot 共振器の透過信号を用いてスレーブレザーの発振モードを確認する。PBS の反射光は AOM によって周波数シフトされた後に真空装置に送られ、レーザー冷却に使用される。光学系全体は 45 cm×90 cm のブレッドボード上に収まっている。

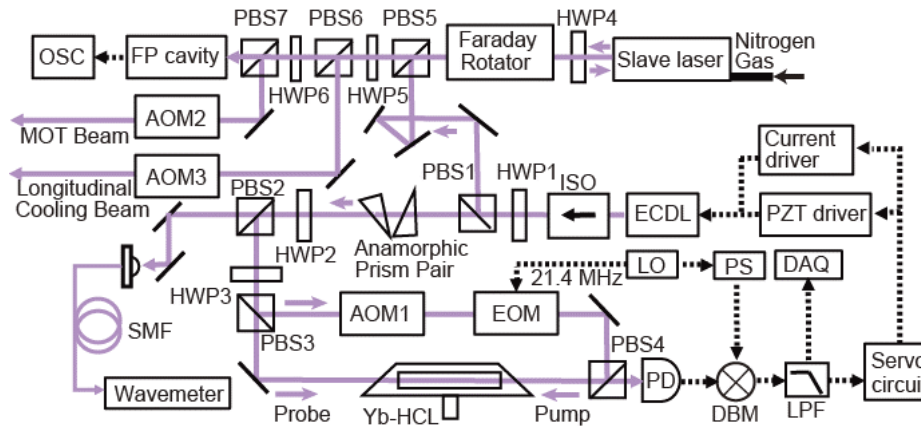


Fig. 2. Schematic diagram of experimental setup of a frequency stabilized laser using the modulation transfer technique and power amplification system based on injection locking. ECDL: External cavity diode laser, HWP: Half-wave plate, PBS: Polarization beam splitter, ISO: Isolator, SMF: Single mode fiber, AOM: acousto-optic modulator, EOM: Electro-optic modulator, Yb-HCL: Yb hollow-cathode lamp, PD: Photo detector, LO: Local oscillator, PS: Phase shifter, DBM: double balanced mixer, LPF: Low-pass filter, DAQ: Data acquisition system, PZT driver: Piezoelectric transducer driver, FP cavity: Fabry-Perot cavity, OSC: oscilloscope. Optical and electrical paths are shown as solid and dashed lines, respectively.

文献

- 1) T. Kohno, M. Yasuda, K. Hosaka, H. Inaba, Y. Nakajima, and F.-L. Hong, Appl. Phys. Express **2**, 072501 (2009).
- 2) R. Yamamoto, J. Kobayashi, T. Kuno, K. Kato and Y. Takahashi, New J. Phys., **18**, 023016 (2016).
- 3) D. Das, S. Barthwal, A. Banerjee, and V. Natarajan, Phys. Rev. A **72**, 032506 (2005).
- 4) T. Tanabe, D. Akamatsu, H. Inaba, S. Okubo, T. Kobayashi, M. Yasuda, F.-L. Hong, and K. Hosaka, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 062501 (2018).
- 5) 野邑, 久井, 吉井, 洪, 日本光学会年次学術講演会, 2pB3 (2016).
- 6) T. Hosoya, M. Miranda, R. Inoue and M. Kozuma, Rev. Sci. Instrum., **86**, 073110 (2015).
- 7) T. Kobayashi, D. Akamatsu, Y. Nishida, T. Tanabe, M. Yasuda, F.-L. Hong, and K. Hosaka, Opt. Express, **24**, 12142 (2016).

Yb ディスペンサー原子源を用いた 小型レーザー冷却装置の開発

横浜国大理工^A, 産総研物理計測標準^B
野邑寿仁亜^A, 門馬知彦^A, 久井裕介^A, 吉井一倫^A,
小林拓実^B, 赤松大輔^B, 洪鋒雷^A

Development of a compact laser cooling system using a Yb dispenser

^ADep. Physics, YNU, ^BNMIJ, AIST

J. Nomura^A, T. Momma^A, Y. Hisai^A, K. Yoshii^A,
T. Kobayashi^B, D. Akamatsu^B, and F.-L. Hong^A

イッテルビウム原子(Yb)は、(i)2つの非常に狭線幅な異重項間遷移を持つ、(ii)基底状態の電子配置が一重項であり、磁場による影響を受けない、(iii)豊富な同位体が存在する、などの特徴を持つ。これらの特徴から、レーザー冷却により生成された極低温 Yb 原子集団は、光格子時計等の様々な基礎物理研究に利用される[1,2]。レーザー冷却には、 $^1S_0 - ^1P_1$ 許容光学遷移(波長 399 nm, 自然幅 29 MHz)が利用される。我々は同遷移の精密分光などを目指して、Yb 原子のレーザー冷却装置を開発している。

従来の水冷式原子オープンには、(i)装置が大型かつ煩雑、(ii)実験準備に長い時間が必要、(iii)発熱に対して細心の注意を払う必要がある、といった問題点がある。また、従来の大型真空チャンバーについても、(i)大きな磁場勾配獲得のために水冷式コイルが必要、(ii)光学ビームの高さに制限が出来て、実験系が不安定になる、という問題点がある。今回我々は、原子サンプルを含んだディスペンサー[3]を用いて、従来に比べて小型かつ簡便な空冷式の Yb 原子レーザー冷却装置を定盤から 15 cm の高さに設計・構築した。Yb ディスペンサーは、無酸素銅製の治具を用いてフィードスルー電流端子に固定して使用している[図 1(a)]。冷却用光源には、Yb ホローカソードランプで周波数安定化した波長 399 nm ECDL を用いた。注入同期法[4,5]により、冷却に十分なレーザー出力を達成した。結果として、 ^{174}Yb の磁気光学トラップを達成した[図 1(b)]。本講演にて詳細を述べる。

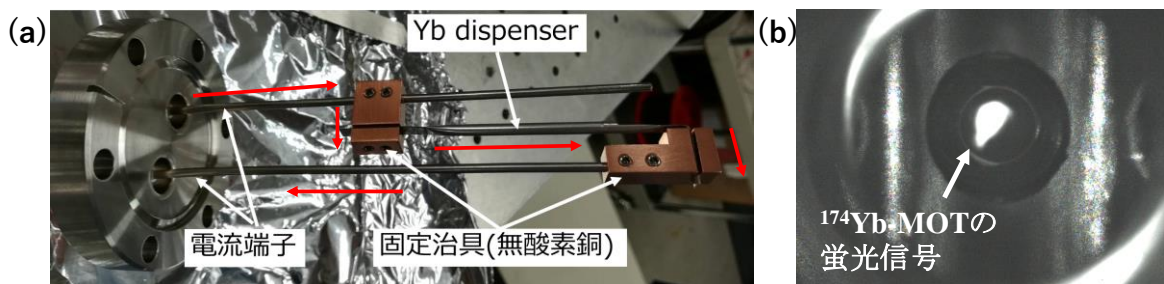


Fig. 1. (a) フィードスルー端子に接続した Yb dispenser.赤線は電流の流れる向きを示す。
(b) CMOS カメラで撮影した ^{174}Yb の 1st MOT の写真.

- [1] T. Kohno, M. Yasuda, K. Hosaka, H. Inaba, Y. Nakajima, and F.-L. Hong, Appl. Phys. Express **2**, 072501 (2009).
- [2] S. Takahashi, K. Inaba, S. Sugawa, K. Shibata, R. Yamamoto, M. Yamashita, and Y. Takahashi, Nat. Commun. **7**, 11341 (2016).
- [3] Sören Dörschera, Alexander Thobea, Bastian Hundt, André Kochancke, Rodolphe Le Targat, Patrick Windpassinger, Christoph Becker, and Klaus Sengstockb, Rev. Sci. Instrum. **84**, 043109(2013).
- [4] T. Hosoya, M. Miranda, R. Inoue and M. Kozuma, Rev. Sci. Instrum., **86**, 073110 (2015).
- [5] T. Kobayashi, D. Akamatsu, Y. Nishida, T. Tanabe, M. Yasuda, F.-L. Hong, and K. Hosaka, Opt. Express, **24**, 12142 (2016).