

卒業論文

Yb原子が有する長寿命な準安定状態への励起に向けた 半導体レーザー光源の 2次高調波発生と絶対周波数安定化

東京工業大学 理学部 物理学科

正村 泉

指導教員 上妻 幹旺 教授

2014年3月

概要

我々は、光格子にトラップされた Yb 原子を用いて量子計算を実現しようとしている。Yb の基底状態は核スピンのみをもち、電子性のスピンをもたないため、磁場性の擾乱を受けにくく、情報を長く保持できる利点をもつ。さらに Yb は、秒オーダーの寿命をもつ準安定状態を有し、これを利用することで豊富な情報処理が可能となる。より具体的には、波長 507.3nm において、自然幅が数 10mHz の超狭線幅遷移が存在する。

本卒業研究では、波長 1014.6nm の半導体レーザーの出力に対して、第二次高調 波発生を行うことで、目的とする波長 507.3nm の光源を準備することにした。二 次高調波として 100mW 以上の出力が得られれば、ビームウェスト 500 μ m におい て遷移の幅を 380kHz 以上にまでパワーブロードさせることが可能となる。これ は ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移を観察するのに十分な線幅なので、出力強度はロスを考慮して 140mW 以上を目標にする。また光源の絶対周波数ドリフトの目標に関しては、典 型的な実験状況において十分な性能といえる 0.2kHz/min 以下に設定した。光源の 絶対周波数の基準として、熱膨張係数が極端に小さい ULE ガラスという材料でで きたファブリー・ペロー型共振器を用いることにした。ULE ガラスには熱膨張係 数が 0 になる特別な温度(ゼロクロス温度)があり、ULE 共振器をその温度で使 うことで、周波数ドリフトを極限まで抑えることができる。ただし、ゼロクロス 温度には個体差があるため、実測をする必要がある。

私は、ヨウ素分子の遷移 $X^{1}\Sigma_{g}^{+} \rightarrow B^{3}\Pi_{0u}^{+}$ に対する飽和吸収分光を行い、ラム ディップが生じる周波数とULE 共振器の共振周波数の差を測定した。ULE 温度を 変化させつつ、周波数差を計測することで、ゼロクロス温度を 31.5 ± 0.5 と決 定することができた。連続 30 時間の測定をとおし、半導体レーザーの周波数ドリ フトが少なくとも 0.4kHz/min 以下に抑えられていることを確認した。

目 次

第1章	序論	1
1.1	実験の背景	1
1.2	研究の概要と目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2
1.3	本論文の構成	2
第2章	光源に要求される強度と周波数安定度の見積もり	3
2.1		3
2.2	${}^1S_0 \rightarrow {}^3P_2$ 分光を行う手順	4
	2.2.1 Yb 原子の集団を準備する	5
2.3	原子の温度とドップラー広がり	7
2.4	必要強度の見積もり	7
2.5	安定度の議論	9
第3章	要求される性能をもつ光源を準備するための方針	11
3.1	光源の準備・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11
3.2	周波数安定化の方策・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11
3.3	ゼロクロス温度測定の方策.......................	13
<u> </u>		
弗 4草	一次高調波発生を利用した波長 507nm 光源の開発	15
4.1	外部共振器型半導体レーザー (ECLD) について	15
4.2	テーパーアンプによるレーザー出力強度の増大.........	16
4.3	ULE 共振器による絶対周波数の安定化	17
4.4	第二次高調波発生の原理	18
4.5	PPKTP 結晶	19
4.6	第二次高調発生の共振器・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	19
4.7	構築したボウタイ型共振器のスキャン信号	23
4.8	Hänsch-Couillaud 法について	24
第5章	絶対周波数基準としてのヨウ素分子の飽和吸収分光	31
5.1	ヨウ素分子の飽和吸収分光・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	31

iv

		5.1.1 飽和吸収分光の原理	32
		5.1.2 飽和吸収分光の光学系	34
第	6章	ULE 共振器のゼロクロス温度測定	43
	6.1	ULE 共振器の温度と共振周波数の関係	43
	6.2	ゼロクロス温度の測定	48
	6.3	ゼロクロス温度における絶対周波数ドリフトの評価	54
		6.3.1 31 から 31.5 に変化させた時	55
		6.3.2 ゼロクロス温度における周波数ドリフト	56
	6.4	考察	57
		6.4.1 絶対周波数ドリフトの評価の実験 (図 6.11) について	57
		6.4.2 ゼロクロス温度を正しく評価するには	60
第	7章	まとめ	63
	7.1	結果	63
	7.2	今後の課題	63
付	録A	絶対周波数の基準に利用した遷移について	65

図目次

2.1	¹⁷⁴ Yb 原子のグロトリアン図	4
2.2	${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 分光の手順の概略図	4
2.3		6
2.4	磁気光学トラップ (MOT) の概念図	6
2.5	励起光の周波数と励起状態のポピュレーションの関係......	9
3.1	ファブリー・ペロー型共振器	12
3.2	共振周波数のドリフトを測定する系............	13
4.1	本研究で利用した ECLD(Littrow 型)	15
4.2	テーパーアンプにより 1014nm の光を増強する系	16
4.3	テーパーアンプの電流と出力強度の関係	17
4.4	ULE 共振器にカップリングさせ、エラー信号を得る系	18
4.5	共振器とその土台の写真	19
4.6	倍波の強度の非線形係数依存性	21
4.7	PPKTP 結晶の変換効率を測定する系	21
4.8	PPKTP 結晶の基本波から倍波への変換効率	22
4.9	ボウタイ型共振器の設計	23
4.10	ボウタイ型共振器のスキャン信号	24
4.11	Hänsch-Couillaud 法の説明のための光学系	25
4.12	(4.6) 式の概形	26
4.13	Hänsch-Couillaud 法によるエラー信号を得るための系	27
4.14	Hänsch-Couillaud 法によるボウタイ型共振器のエラー信号	27
4.15	ロック時、スキャン時の第二次高調波の強度..........	28
4.16	線形ロスの測定	28
4.17	基本波の強度に対する倍波の強度 (実験結果と理論曲線)	29
5.1	本研究で使用したヨウ素セル(緑の線はヨウ素分子の蛍光)	31
5.2	。 線形吸収曲線の概形 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	32
5.3	飽和吸収分光の光学系	33

vi

5.4	飽和吸収分光で得られる透過光強度信号の概形.........	33
5.5	飽和吸収分光の実験系 (その1)	34
5.6	プローブ光の測定結果 (その1)	35
5.7	飽和吸収分光の実験系 (その2)	36
5.8	フォトディテクターの信号とエラー信号	37
5.9	飽和吸収分光の実験系 (その3)	38
5.10	フォトディテクターの信号 (上) とエラー信号 (下)	39
5.11	飽和吸収分光の実験系 (その4)	40
5.12	実験系その4で得られたエラー信号	41
61	ULE ガラフの泪度と熱脳運逐数の関係 [19]	49
0.1 6 9		45
0.2 6.2		40
0.5 6.4	ULD 共振品の熱力子的過程 ULD 共振器とコディエーションシールドゥの泪度亦化	40
0.4 6 5	ULE 共振品とファイエーションシールド 2 の温度复れ	40
0.0	L ート同次数 (フティエーショノシールト温度 35 \rightarrow 20)	49
0.0	ビロクロス温度を測定するにのの余・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	51
0.1	エノー 旧ちに対 9 るノイツノイノノ 細木 \dots	52
0.0 6.0	六派 向 成 奴 の 友 $()$ () 1 エーン ヨノン 一 \mathcal{N} 「 温 反 $31 \rightarrow 32.3$) サ 年 国 独 物 の 亦 \mathcal{N} () デ ィ エーション シー 川 ド 泪 府 20 () 21)	50
0.9 6 10	+ 振同波数の支忙() + エーンヨンシールド温度 32 → 31) : + 振国 法物の亦化(ラディエーションシールド泪度 21 $-$ 215)	55
0.10 6 11		55
0.11	ビログロス温度にのける向波数ドリフトの測定結末	50
0.12	ビログロス温度にのける向波数ドリンドの測定細末 (ローバスノ1	57
6 1 2	N9000) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	50
0.15 6 14	34 の時のエノー 旧与 · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	50
0.14		99
A.1	計算した各遷移のエネルギー	74
A.2	縦軸が0の部分を拡大した図.......................	74
A.3	飽和吸収分光で観察されたディップ	76

第1章 序論

1.1 実験の背景

量子力学において状態の重ね合わせが許されることを利用した量子計算は、素 因数分解をはじめとした一部の問題に対し古典的なコンピュータと比較して原理 的に高速な計算が可能である [1],[2]。この量子計算を実現する方法としては、超電 導素子を用いる方法 [3],[4]、核磁気共鳴による方法 [5]、そして量子ドットによる 方法 [6],[7] などが研究されているが、計算するための情報を記録する量子ビット の数を増やすことに課題があるものが多い。しかし、数ある量子計算の実装方法 のうち、光格子ポテンシャル中にトラップされた冷却原子のスピンを量子ビット に用いる方法は、他の方法に比べて容易に量子ビットを増やすことができる。我々 の研究室では原子種として Yb 原子を選択し、量子コンピューター実現に向けた研 究を行っている。Yb 原子を選択した理由の1つとして、この原子の基底状態¹S₀ には電子性のスピンが存在せず、核スピンのみが存在するという性質があること が挙げられる。核スピンに由来する磁気モーメントの大きさは、電子スピンのそ れに比べて1000分の1のオーダーである。よって Yb 原子は、磁場による擾乱を 受けにくいためコヒーレンス時間が長いという利点を持つ。

光格子中にトラップされた Yb 原子を量子ビットに用いて計算をするためには、 スピン配置に依存した相互作用を光格子中の各サイト内の原子の間に生じさせる 必要がある。しかし先ほど述べた通り、Yb 原子の基底状態 ${}^{1}S_{0}$ の磁気モーメント は極端に小さい。それゆえスピンに依存した原子間相互作用を誘起することが難 しいという欠点がある。この問題を解決するために計算を行う時だけ基底状態の ${}^{1}S_{0}$ から ${}^{3}P_{2}$ に励起させる。 ${}^{3}P_{2}$ 状態には電子性スピンが存在するため、スピン配 置に依存した相互作用がそれぞれのサイト内の原子の間に生じ、計算が実現でき る。ただし、この遷移の自然幅は非常に細いため、これを利用するには線幅が十 分に細く、かつ絶対周波数が安定化された光源を準備する必要がある。 また、Yb 原子による量子計算を実現するためには情報の読み取りも可能でなければならない。量子ビットである Yb 原子に記録された情報を読み取る方法として、単一サイトアクセスと呼ばれるものがある。単一サイトアクセスでは特定の1つの原子の核スピンを読み取ることができ、この方法においても ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移に共鳴する光源を利用する。

1.2 研究の概要と目的

本研究では、実際に ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移を実験的に観察するために必要な光源系を準備することを行った。この光源を量子計算などへ応用する前段階として、 ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移のスペクトルを得ることが必要であり、これが当面の目標となる。

本研究では、波長 1014nm の半導体レーザー光源を出発点とし、その 2 次高調 波をとることで、 ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移の波長 507nm の光を得るという方策をとること にした。

スペクトルを取得する実際の実験では、Yb原子が有する超狭線幅の ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移を観察する。そのためには、Yb原子をレーザー冷却し、蒸発冷却を施し、波 長 507nmの光を照射した後、原子数の変化を吸収撮像で見積もるという一連の操 作が必要となってくる。原子の温度が高く、超狭線幅の ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移がドップ ラー効果によって大きく広がってしまった場合、遷移の観察は極めて難しくなる。 また、507nmの光源の強度が十分でなければ、Yb原子が拡散してしまう前に原子 を励起することが難しくなる。さらに、原子を冷やす、蒸発させる、吸収撮像を するという一連の操作には10秒のオーダーの時間がかかり、その間にレーザーの 周波数がドリフトしてしまっては、目的のスペクトルを得ることができない。 上記のことを勘案した上で、光源に要求されるスペックを詳らかにするとともに、 そのスペックをもつ光源を準備することを私の卒業研究の目的とした。

1.3 本論文の構成

まず、本論文の第2章において、 ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移に共鳴する光源に要求される 強度と絶対周波数の安定度を求めることを行う。そして、第3章において、その 要求を満たす光源を作製するために本研究でとった方針を示す。第4章では、波 長 1014nm の光から波長 507nm の光を得るために行った2次高調波発生の原理を 簡単に述べ、その後実験結果を紹介する。第5,6章では、ULE 共振器に使われて いる ULE ガラスのゼロクロス温度をどのように測定したかを述べる。そして第7 章にて、本研究で行ったことについてまとめを行う。

第2章 光源に要求される強度と周波 数安定度の見積もり

この章では、Yb原子が有する波長 507nm の超狭線幅遷移 (${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$)を観察す る上で、光源に要求されるスペックを明らかにすることを目的とする。光源のス ペックは、線幅、強度、絶対周波数の安定度の 3 点で特徴付けることができるが、 スペクトル幅については、我々の研究室に所属している西田君が本研究で得られ た波長 507nm の光の線幅を評価し、500Hz 以下となっていることを確認した。そ こで本章では、最初に Yb原子の基礎特性について簡単な紹介を行なった後、強度 と絶対周波数についての議論を行う。

2.1 イッテルビウム原子とは

イッテルビウム原子は原子番号 70 の希土類元素で Yb という記号で表される。 Yb 原子には次の表のような安定同位体が存在する。

	Boson					Fer	mion
質量数	168	170	172	174	176	171	173
自然存在比	0.13	3.05	21.9	31.8	12.7	14.3	16.12
核スピン	0	0	0	0	0	1/2	5/2

表 2.1: Yb 原子の安定同位体

このように5つのボゾンと2つのフェルミオンがYbの同位体には存在する。光 格子にトラップさせて、量子計算に利用する予定なのは質量数が171のフェルミ オンの同位体である。¹⁷¹Yb原子は、基底状態 $^{1}S_{0}$ において、電子性の磁気モーメ ントを持たず、核スピンの磁気モーメントのみが露わになる。したがって、この 原子の核スピンの向きによって情報を表現した場合、外部磁場による擾乱を受け にくいという利点がある。核スピンの大きさは1/2であり、1と0の2通りの情報 を1原子で過不足なく表現できる。この 171 Ybを冷却するために、 174 Yb、 171 Ybの 混合気体を利用して冷却する選択的蒸発冷却という方法も提案されている[8]。Yb 原子は室温において固体で、融点は1097K、沸点は1469K である。¹⁷⁴Yb 原子に ついてのグロトリアン図を以下に示しておく。



図 2.1: ¹⁷⁴Yb 原子のグロトリアン図

2.2 ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 分光を行う手順



図 2.2: ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 分光の手順の概略図

手順としては、まず、Yb原子の冷却原子を準備する。次に、この原子の集団に 波長 507nm の光を照射する。もし、波長 507nm の光と ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移が共鳴す る場合には、原子集団のうち基底状態に存在する原子の個数が減少し、励起状態 にある原子の個数が増加する。反対に、波長 507nm の光と ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移が共鳴 から離れている場合は、原子集団のほとんどの原子が基底状態になっている。よっ て手順の最後として、波長 399nm の光を原子集団に照射し、その透過光の強度分 布から基底状態にある原子の個数を測定することによって、波長 507nm の光の共 鳴の度合いを知ることができる。波長 507nm の光の周波数をある決まった間隔で 変化させながらこの一連の手順を繰り返していけば ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移を探すことが できる。

もし、冷却原子の集団の温度が高過ぎると、どのようになるかを考える。温度が高いと、原子集団の速度分布が広くなり、速さが0に近い原子の個数が減少する。したがって、波長 507nmの光を照射した時に励起状態に遷移する原子の個数が減少する。そのため ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移を探すのが難しくなる。以上から冷却原子の集団の温度を冷却することが重要であることがわかる。

2.2.1 Yb 原子の集団を準備する

この項では、 ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 分光のはじめの手順である冷却された Yb 原子の集団を 準備する方法について述べる。本項を書く際には [17] を参考にした。

原子オーブン

Yb 原子の飽和蒸気圧は室温では非常に低い (~ 10^{-21} Torr) ので、原子オーブン により 700K まで加熱することで飽和蒸気圧をまで高め (~ 10^{-2} Torr)、トラップ される原子が多くなるようにしている。

ゼーマンスローワー

原子オーブンから出射してきた原子は、平均の速さが300m/sであり、そのままでは後に述べる磁気光学トラップという方法で原子をトラップすることはできない。そこで、原子に対向するようにレーザー光を照射することによって原子の速度を1m/sまで減速する。これはゼーマンスローワーと呼ばれるもので、図2.3のような構造になっている。



第2章 光源に要求される強度と周波数安定度の見積もり

図 2.3: ゼーマンスローワー

レーザー光と原子オーブン出射直後の原子は共鳴するようになっている。ゼー マンスローワーの管のまわりはコイルが巻いてあり、磁場によってエネルギー準 位にゼーマンシフトを起こす。原子の減速にあわせて、ゼーマンシフトを起こす ことにより、常にレーザー光と原子が共鳴するようにしておくことで高効率の減 速を実現している。

磁気光学トラップ (MOT)

ゼーマンスローワーによって減速された原子は、磁気光学トラップという仕組 みによりトラップされる。磁気光学トラップは図2.4のように、レーザー光を次の ように照射し、アンチヘルムホルツコイルによる磁場と組み合わせて原子をトラッ プするものである。



図 2.4: 磁気光学トラップ (MOT) の概念図

2.3. 原子の温度とドップラー広がり

光双極子トラップ (ODT)

光双極子トラップは、原子の共鳴周波数より小さな周波数のレーザー光をあて ることにより、ビームウェストの位置に原子がトラップされるというものである。 磁気光学トラップによってトラップされた原子を光双極子トラップによりトラップ する。[17]ではここまで説明してきた一連の流れで¹⁷⁴Yb原子をトラップし、最後 に光双極子トラップと蒸発冷却という方法を組み合わて 2.1µK まで冷却している。

2.3 原子の温度とドップラー広がり

2.2 で説明した手順により、蒸発冷却によって 1uK 程度の温度にすることは、比較的再現性高く実行することができる。原子のスペクトルは、原子集団が温度によって決まる速度分布を持っていることから、ドップラー効果によって広がる。ドップラー効果によるスペクトルの広がりの半値全幅 $\delta \nu$ は、 ν_0 を遷移の周波数、T を 温度、m を原子の質量として

$$\delta\nu = 2\nu_0 \sqrt{\frac{2\ln 2k_BT}{mc^2}}$$

によって求まる。Yb 原子の ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移について、 $T = 1\mu K$ を仮定すると

$$\delta\nu \simeq 32 \mathrm{kHz}$$
 (2.1)

ドップラー幅は(2.1)式のようになった。

2.4 必要強度の見積もり

原子のスペクトルはドップラー広がりにより 30kHz 程度に広がっていることが わかった。 ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 分光の手順で説明した通り、波長 507nm の光を1ステップ ごとに周波数を変えて測定する都合上、1ステップごとに変化させる周波数が大き いほど実験を短時間で終えることができる。そのような事情から原子のスペクト ルはある程度広がっていることが望ましい。しかし、ドップラー効果によってスペ クトル幅を大きくすると、波長 507nm の光に共鳴する原子の個数が減少してしま う。そこで、パワーブロードという効果によってスペクトルを広げることにした。

パワーブロードとは、横軸を原子に当てるレーザー光の周波数、縦軸を励起状態 にある原子の個数というグラフをプロットした際に、その半値全幅が励起状態の 原子の自然幅よりも太くなる現象である。線幅が有限のレーザーに対するパワー ブロードの様子を調べるため、光源と原子に関する各パラメータを定義しておく。 まず、 ω_0, ω_1 をそれぞれ、原子の共鳴の角周波数、レーザー光の角周波数とする。 さらに、 β, λ をそれぞれ原子の自然幅、レーザーの線幅とする。そして、 θ を離調 を表す無次元のパラメータとして、次のように定義する。

$$\theta \equiv (\omega_1 - \omega_0)/\beta$$

ラビ周波数Ωは次の式で表される。

$$\Omega = \frac{2\mu E}{\hbar}$$

以下では、レーザーの光強度が100mWで、ビームウェイストを500µm にすることを仮定する。このとき、ラビ周波数は

 $\Omega \simeq 79.6 \mathrm{kHz}$

となる。線幅が有限のレーザー光を2準位系の原子に当てる場合の励起状態のポ ピュレーションは、初期状態が基底状態のとき、次の式によって求められる。[16]

$$\frac{\frac{1}{4}\Omega^2(1+\lambda/\beta)}{\frac{1}{2}(1+\lambda/\beta) + (\beta+\lambda) + \beta^2\theta^2} - \frac{1}{2}\sum_{\substack{i=1\\i\neq j\neq k}}^3 \frac{(2\beta+p_i)\{(\beta+\lambda+p_i)^2+\beta^2\theta^2\}e^{p_it}}{p_i(p_i-p_j)(p_i-p_k)}$$
(2.2)

ここで *p*₁, *p*₂, *p*₃ は次の 3 次方程式の解である。

$$p^{3} + (4\beta + 2\lambda)p^{2} + ((\beta + \lambda)(5\beta + \lambda) + \beta^{2}\theta^{2} + \Omega^{2})p + 2\beta(\beta + \lambda)^{2} + 2\beta^{3}\theta^{2} + (\beta + \lambda)\Omega^{2} = 0$$

波長 507nm のレーザー光を照射する時間を先行研究 [9] と同じt = 50ms と仮定する。また、西田君の実験において確かめられたレーザーの線幅の値から $\lambda = 500Hz$ とする。これらの条件のもとで、レーザーの周波数を変化させながら、つまり θ を 変化させながら、(2.2) 式により原子の励起状態のポピュレーションを計算する。 すると、レーザーの周波数をグラフの横軸、原子の励起状態のポピュレーション としたグラフ (図 (2.5) 式) を得ることができた。



図 2.5: 励起光の周波数と励起状態のポピュレーションの関係

この曲線の半値全幅は 380kHz となった。これは、ドップラー効果によるスペクトルの広がりより 10 倍以上大きいので、ここで仮定した状況により ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 分光の実験を行う場合、ドップラー広がりは無視できると言える。この程度スペクトルを広げることができれば ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 分光には十分であるから、ここで仮定した光強度 100mW に対してさらにロスなどを含め、波長 507nm の光強度として140mW 以上を得ることを本研究の目標にする。

2.5 安定度の議論

以下では、本研究で製作する光源に要求される周波数安定度の目標値を定める。 ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 分光を行う際には、400kHz 程度まで人工的にスペクトルを広げること を行う。したがって、この分光を行うには400kHz 程度のスペクトル幅を観察する のに十分な安定度の光源が必要とされる。しかし、後の実験を考えると10kHz 程 度の半値全幅のスペクトルを観察するのに十分な安定度が要求される。そこで、30 秒ごとに10kHz ずつ波長507nm の光源の周波数を変化させてデータを取る実験状 況を仮定し、10kHz の1%の周波数ドリフトが許されるという基準を採用すること にする。このときの周波数安定度の目標値は10kHz × 0.01/0.5min = 0.2kHz/min となる。本研究では、この0.2kHz/min という値を絶対周波数安定度の目標値と する。

第3章 要求される性能をもつ光源を 準備するための方針

第2章で掲げた波長507nmの光源に要求される目標値(光強度140mW以上、絶対周波数安定度0.2kHz/min)を達成するための研究方針を本章で述べる。

3.1 光源の準備

本論文を書いている時点において、波長507nmの半導体レーザーにより光強度 100mWを得ることは難しい。そこで、外部共振器型半導体レーザー(ECLD)とい う機構を用いて線幅狭窄化した波長1014nmの半導体レーザー光源を用意し、そ の出力をテーパーアンプによって増幅させ、2次高調波発生という現象を利用して 507nmの光源を得ることにした。外部共振器型半導体レーザー、2次高調波発生に ついては後に述べる。前半部分の線幅狭窄化については西田君の研究により、波 長507nmにおいて線幅500Hz以下という結果を得た。

3.2 周波数安定化の方策

周波数安定化をするため本研究ではファブリー・ペロー型共振器 (図 3.1) と呼 ばれるものを周波数基準として用いることにした。ファブリー・ペロー型共振器 は、2つのミラーを向かい合わせにし、それぞれのミラーをスペーサーと呼ばれる ものに固定したものである。ECLD の出射光が常にこの共振器に共振するように ECLD にフィードバックをかけることにより周波数安定化が実現される。このよ うに周波数基準を用いて ECLD にフィードバックをかけることを、ECLD をロッ クすると今後は表現する場合がある。



図 3.1: ファブリー・ペロー型共振器

この共振器の共振周波数 f と共振器長 L は次の関係を満たす。

$$f = \frac{nc}{2L} \quad (n = 1, 2, 3, \cdots)$$

したがって、共振器長 L が変化しないことが共振器の安定度には重要である。共振器長 L は共振器が温度変化することによる熱膨張の効果によって変化する。共振器の温度を 10mK の精度で安定化できたと仮定する。これは、実験において十分実現できる精度の温度安定度であり、このとき共振器のミラーを支えるスペーサーの材質に対する共振周波数のゆらぎを調べると次のようになった。この表では、共振器長 L = 100mm を仮定している。

スペーサーの材質	熱膨張係数 $\alpha(\text{ppm})$	周波数ドリフト (kHz)
ステンレス (SUS304)	20	50,000
インバー	1	4,000
石英	0.5	2000
ULE ガラス	0.03	90
ULE ガラス [®] ゼロクロス温度	理想的には0	理想的には 0

この表に書かれているインバーという材料はファブリー・ペロー型共振器を組む際に利用されることのある熱膨張係数の小さな材料のうちの1つである。しかし、本研究で目標としている0.2kHz/minという目標の周波数安定度を達成するためには、共振器の温度安定度や温度変化の速度にも依存するが、この材料では達成が難しいと考えられる。この表に出てくるULEガラスというのはインバーよりも更に熱膨張係数の小さい材料であり、ある温度(ゼロクロス温度と呼ばれる)においては熱膨張係数が0になるという特徴を持つ。0.2kHz/minという目標を達成するためには、ファブリー・ペロー型共振器のスペーサーをULEガラスにし、加えて

ULE ガラスのゼロクロス温度に共振器温度を制御する必要があるということがこの表から読み取れる。

以上のような考えのもとで本研究では、ULE ガラスをスペーサーに用いたファ ブリー・ペロー型共振器 (ULE 共振器)を周波数基準として利用することにした。 しかし、ULE ガラスのゼロクロス温度には個体差があるため、この温度の測定す る実験を行うことにした。

3.3 ゼロクロス温度測定の方策

ULE 共振器をゼロクロス温度に温度制御するまでは共振周波数はドリフトして しまう。反対にゼロクロス温度ではドリフトが理想的には0になるという性質が ある。したがって、この共振周波数のドリフトを測定できればゼロクロス温度を 決めることが可能となる。しかし、ULE 共振器にロックした ECLD 光源の周波数 は数 100THz で、高精度な直接測定を行うには周波数が高く、難しい。そこで次 のように共振周波数の揺らぎを測定することにした。まず、ULE 共振器にロック した ECLD 光源を用意する。そして、揺らぎの少ない絶対周波数の基準を別に用 意し、先の ECLD 光源と同じ素性の ECLD 光源をこの周波数基準に対しロックす る。それぞれの光源の出射光のビートを取ることによって ULE 共振器の共振周波 数の揺らぎを測定することができる (図 3.2)。



ヨウ素分子の遷移にロック

図 3.2: 共振周波数のドリフトを測定する系

本研究では、このような揺らぎの存在しない絶対周波数の基準としてヨウ素分子の特定の遷移を活用することにした。ヨウ素分子の遷移の絶対周波数安定度は 23 から 35 の間で 0.2kHz/K[13] となっており、ゼロクロス温度を探すための周 波数基準としては十分である。ただし、ヨウ素分子の遷移を飽和吸収分光により 観察する場合、線幅は数 MHz のオーダーとなる。よって、ECLD をヨウ素分子の 遷移にロックした場合、光源の線幅は、その 100 分の 1 になると仮定して数 10kHz 程度となる。1014nm の ECLD 光源の線幅の目標値は 1kHz であるから、ULE 共 振器の代わりにヨウ素分子の遷移を周波数基準にすることはできない。

第4章 二次高調波発生を利用した波 長507nm光源の開発

本研究では Yb 原子の ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移に共鳴する波長 507.3nm の光源を作製す るために、絶対周波数が安定化され、かつ、線幅の狭窄化された波長 1014.6nm の 外部共振器型半導体レーザー (ECLD)を準備し、その出射光を基本波とした第二 次高調波発生により 507.3nm の倍波を得るという系を構築した。具体的には、ま ず、ECLD 光源の出射光を ULE 共振器にロックするための光と、507.3nm の倍波 を得るための光の 2 つに分割した。一方の光はスペーサーに ULE ガラスという特 殊素材を用いたファブリー・ペロー型共振器である ULE 共振器にロックすること で ECLD 光源の線幅や絶対周波数を安定化している。もう一方はテーパーアンプ で強度を増強した後、非線形結晶として PPKTP 結晶を用いたボウタイ型共振器 の基本波として入射し、第二次高調波発生により倍波の 507.3nm の光を得ている。 本研究で利用した ULE 共振器や共振器の入っているチャンバー は我々のグループ における先行研究 [8] で利用したものと同じである。

4.1 外部共振器型半導体レーザー (ECLD) について

本研究で利用した ECLD は、次図 4.1 のような構造になっている。



図 4.1: 本研究で利用した ECLD(Littrow 型)

これはLittrow型と呼ばれる外部共振器型半導体レーザーである。回折格子の1 次回折光をレーザーダイオードに帰還することで、回折格子とレーザーダイオー ドによる共振器を構成している。このようにすることで、レーザーの発振波長を 選択でき、かつ、線幅を狭窄化することができる。発振波長の選択は、ピエゾ素子 に加える電圧を変化させて、共振器長を変えるか、または、コリメートレンズの 位置を変えてグレーティングへの入射角を変えることによって行うことができる。

ただし、ECLD の線幅は典型的には数 100kHz であるから、本研究では ULE 共振器をリファレンスにしてピエゾ素子とレーザーダイオードの電流にフィードバックをかけて、さらなる線幅狭窄化を行った。本研究で利用した ECLD は、電流を 250mA にしたとき、約 100mW の光強度となった。

4.2 テーパーアンプによるレーザー出力強度の増大

後に説明するように、二次高調波発生は結晶の非線形効果を利用しており、基本波のパワーの2乗に比例して変換効率が高くなる。そのため、経験的にいって、 1W 程度の出力強度を事前に得ておく必要がある。

本研究では、1014nmの光強度を増強するためにテーパーアンプを使用した。次の図のような系を組んで、テーパーアンプとカップリングさせた。



図 4.2: テーパーアンプにより 1014nm の光を増強する系

テーパーアンプの出射光は空間モードに関してシングルモード以外の成分を多 く含んでしまうので、先ほどのテーパーアンプによる出射をシリンドリカルレン ズで整形したあと、一度光ファイバーにカップルさせてモード整形を行っている。 入射光の強度を 24mW にしたとき、テーパーアンプに流す電流と出射光の強度の 関係は次のようになった。



図 4.3: テーパーアンプの電流と出力強度の関係

テーパーアンプに流す電流が 4.0A のとき、出力強度として 1.3W を得ることが できた。この結果から、本研究ではテーパーアンプに入射する光の強度を 24mW、 電流を 4.0A にすることにした。

4.3 ULE 共振器による絶対周波数の安定化

ULE 共振器に ECLD をロックするために、ULE 共振器に光を入射させ、ULE から反射されてくる光の強度を測定することにした。ULE 共振器にロックするために組んだ光学系が図 4.4 である。



図 4.4: ULE 共振器にカップリングさせ、エラー信号を得る系

Pound-Drever-Hall法を使いエラー信号を得ている。このエラー信号を利用して、 遅い周波数の成分に関しては ECLD のピエゾ素子に、kHz 以上の高周波成分には ECLD のレーザーダイオードにフィードバックをかけることで周波数ロックを実 現している。

4.4 第二次高調波発生の原理

物質に対して強力な光を入射すると、物質の電気分極 P は光の電場 E に対して 線形に応答しなくなり、次のようになる。

$$\boldsymbol{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \boldsymbol{E}^{(\omega)} + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \boldsymbol{E} \boldsymbol{E} + \cdots$$
(4.1)

第1項が電場が弱いときにも観察できた線形分極であり、第2項以降が非線形分極の項である。ここで、入射光の電場 *E* を次のように与える。

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{E}_0 \cos(\omega t - kz)$$

このとき (4.1) 式の第 2 項の分極の周波数は 2ω ,0 となる。するとこの分極に応じ て物質内で周波数 2ω の光が生じる。この現象を第二次高調波発生とよぶ。非線形 結晶と呼ばれるものは $\chi^{(2)}$ が大きいため第二次高調波発生に用いられている。

(4.1) 式の第3項以降は、第1,2項に比べて小さいので、簡単のために無視する
 ことにすると、第二次高調波の強度 P_{SHG} は、物質に入射する基本波の強度を P₀
 として

$$P_{\rm SHG} = \alpha P_0^2$$

という関係が成立する。ここで α は非線形変換係数と呼ばれる定数である。

4.5. PPKTP 結晶

4.5 PPKTP 結晶

本研究において使用する非線形結晶は PPKTP 結晶である。これは疑似位相整 合結晶と呼ばれる結晶の種類に属す。

第二次高調波 (SH 波) を効率よく得るには、結晶内の様々な位置で生じる SH 波の 位相を合わせる必要がある。疑似位相整合結晶は、結晶内にできる分極の方向を 周期的に反転させる構造になっている。この構造によって、位相のずれによる SH 波の打ち消しあいを防ぐことができ、高い変換効率を得られるようになっている のである。

本研究ではRAICOL Crystsal Ltd. の1x1x10mm³、Type 1、AR@1014.6/507.3nm の結晶を用いた。

4.6 第二次高調発生の共振器

第二次高調波の発生においては、高い変換効率を得るために共振器を組むこと が多い。非線形結晶にシングルパスで基本波を入射させたとき、第二次高調波へ の変換効率は低い。しかし図 4.5 のような共振器を組むことで非線形結晶に何度も 基本波を通過させれば、高い変換効率を得ることができるようになる。この図は 実際に本研究で第2次高調波発生に用いたボウタイ型共振器の写真である。



図 4.5: 共振器とその土台の写真

図の左下から 1014.6nm の基本波が入射する。上方の 2 つのミラーは、1014nm に対する HR コーティングの凹面鏡で、曲率半径は *R* = 50mm である。また、左 下のミラー (インプットカプラと呼ぶ) は 1014nm に対する反射率が 95%の平面鏡 である。右下は HR コーティングの平面鏡になっており、この裏面には積層ピエゾ 素子 (PZT) が付いている。PZT に印加する電圧を変化させることで共振器長を微 調整できるので、第二次高調波の強度が最大となる共振器長になるようフィード バックをかけて共振器をロックする。この共振器に用いているミラーは、上妻研 究室で行われた先行研究 [8] で使用したものと同じものだが、これはミラーを他の 特性の物に変更しなくても目標とする第二次高調波の強度が十分得られると計算 により判断したためである。

この共振器をどのように設計したかを説明するために、ボウタイ型共振器の第二次高調波の強度をどのように計算するかを述べる。計算の方法に関しては先行研究 [8] と同様である。

基本波の電場を E_{in} 、インプットカプラの透過率をT、共振器を一周するときの 線形ロスをLとする。また第二次高調波発生の非線形変換係数 α は、 P_{SHG} 、 P_0 を 第二次高調波の強度、結晶前の基本波の強度とすれば

$$P_{\rm SHG} = \alpha P_0^2$$

と定義される。また、第二次高調波発生による基本波のロスを β とすれば

$$\beta = \frac{P_{\rm SHG}}{P_0} = \frac{\sqrt{P_{\rm SHG}}\sqrt{P_{\rm SHG}}}{\sqrt{P_0}\sqrt{P_0}} = \sqrt{\frac{P_{\rm SHG}}{P_0^2}}\sqrt{P_{\rm SHG}} = \sqrt{\alpha}\sqrt{P_{\rm SHG}}$$

を満たす。結晶直後の電場 E₀は

$$E_0 = \sqrt{T}E_{\rm in} + (\sqrt{1-\beta}\sqrt{1-T}\sqrt{1-L})\sqrt{T}E_{\rm in}$$
$$+ (\sqrt{1-\beta}\sqrt{1-T}\sqrt{1-L})^2\sqrt{T}E_{\rm in} + \cdots$$
$$= \frac{\sqrt{T}E_{\rm in}}{1-\sqrt{1-\beta}\sqrt{1-T}\sqrt{1-L}}$$

強度に直すと

$$P_{0} = \frac{T}{(1 - \sqrt{1 - \beta}\sqrt{1 - T}\sqrt{1 - L})^{2}}P_{\text{in}}$$

$$P_{\text{SHG}} = \alpha P_{0}^{2} = \frac{\alpha T^{2}}{(1 - \sqrt{1 - \beta}\sqrt{1 - T}\sqrt{1 - L})^{4}}P_{\text{in}}^{2}$$

$$= \frac{\alpha T^{2}}{(1 - \sqrt{1 - \sqrt{\alpha}P_{\text{SHG}}}\sqrt{1 - T}\sqrt{1 - L})^{4}}P_{\text{in}}^{2}$$
(4.2)

本研究で用いられるインプットカプラの透過率TはT = 0.05である。線形ロスLをL = 0.01と仮定したときの、 P_{SHG} の α 依存性のグラフは図 4.6 の通りである。



図 4.6: 倍波の強度の非線形係数依存性

これは、(4.2)式の解を数値的に求めて、それをプロットしたグラフである。 *α* > 0.003W⁻¹ では、シングルパスにおける非線形変換係数を向上させても、共振器を 組んだ時に得られる第二次高調波の強度はほとんど変化しないことがわかる。

次に、効率を最大化する共振器の設計を行うために図 4.7 のような系を組んで非 線形結晶に基本波を1度通したときの変換効率を測定した。



図 4.7: PPKTP 結晶の変換効率を測定する系

PBS の後の4枚のレンズによって、 $w_0 = 1.8$ mm のコリメートビームを用意して、それを様々な焦点距離の凸レンズに入射することで、PPKTP 結晶の変換効率のビームウェスト依存性を調べた。その際、それぞれのウェストに対し、PPKTP 結晶の位相整合温度や位置を微調整して、そのウェストにおける最大の変換効率が得られるようにした。すると図 4.8 の様な測定結果が得られた。



図 4.8: PPKTP 結晶の基本波から倍波への変換効率

この結果を見ると、結晶に入射するビームをどのウェストにしても $\alpha > 0.003$ W⁻¹ が満たされることがわかる。したがって、シングルパスの変換効率を高めることよ りも、熱レンズ効果による変換効率の低下を抑えるように共振器を設計したほう が高い変換効率が得られるようになると考えられる。熱レンズ効果を抑えるため には、結晶端面において単位面積あたりに入射する光の強度を弱めればよい。よっ て、ビームウェストはなるべく大きくしたほうが熱レンズ効果は小さくなる。図 4.5 から分かるようにミラーの位置を調整するための溝の長さや、ミラーホルダー 自体の長さによって、本研究で使用した共振器の土台において実現できる共振器 の長さには制約が存在する。これらの制約のなかでなるべく PPKTP 結晶内での ウェストが大きくなるように共振器を図 4.9 のように設計した。



図 4.9: ボウタイ型共振器の設計

下方の2つのミラーの中心でウェストを結ぶように光を入射させると、上方の 2つのミラーの中心でもウェストを結ぶようになっている。入射光を下方のウェ ストが $w_0 = 234\mu m$ になるようにいれると、上方のウェストは $w_0 = 25\mu m$ にな る。このとき、PPKTP 結晶の中心と上方の2つのミラーの中心が一致するよう に配置すると高い変換効率が得られるように設計されている。上方のウエストを $w_0 = 30\mu m$ にする設計も行ったが、ミラーを固定するためのミラーホルダー同士 が干渉してしまった。

共振器に入射する光が2つの下方ミラーの中心で $w_0 = 234 \mu m$ というウェスト を結ぶように1レンズ問題を解き、その結果に従って共振器のインプットカプラ の前に凸レンズを配置した。

4.7 構築したボウタイ型共振器のスキャン信号

ピエゾを振った時の 4.9 の左上のミラー (HR コートの凹面鏡) から透過する信号 (スキャン信号とよぶ)をモニタしながら、TEM00 モードへの共振が最大になるよ うに PPKTP 結晶の位置、温度、そしてミラーの角度や位置を調整した。調整後 に次のようなスキャン信号を得た。



図 4.10: ボウタイ型共振器のスキャン信号

一番鋭いピークは0次の共振モードに対応しており、他の小さなピークはミラー の角度や、結晶の位置の調整が完全でないことによる高次モードの共振に対応し ている。共振器が常に0次のモードに共振するようにするためには、上の信号を微 分したような形の信号、すなわち、エラー信号を得る必要がある。このエラー信 号を得るために、先行研究においてはPound-Drever-Hall法と呼ばれる手法を用い ていた。この方法では、出射光のスペクトルが単一ではなく、ある中心周波数の 左右にサイドバンドが出てしまう。そこで、本研究ではPound-Drever-Hall法では なく、Hänsch-Couillaud法と呼ばれる手法を用いてエラー信号を得ることにした。

4.8 Hänsch-Couillaud 法について

Hänsch-Couillaud 法について説明するために、ボウタイ型共振器を、間に 1/2 波長板を入れることで偏光依存性を持たせた共振器によって簡単化する。本研究 で構築したボウタイ型共振器には、PPKTP 結晶を入れており、効率的に第二次高 調波が発生する偏光方向が決まっているため、モデルの共振器にも偏光依存性を 持たせた。また、共振器を1往復する際の強度の線形ロスを L とおく。

4.8. Hänsch-Couillaud 法について



図 4.11: Hänsch-Couillaud 法の説明のための光学系

入射光の偏光は直線偏光であるとし、この直線変更に対する 1/2 波長板の角度 を θ とする。レーザー光線は平面波ではないが、ビームウェストが十分太いコリ メートビームであるとして、平面波で近似する。入射光の電場 E⁽ⁱ⁾ をこの 1/2 波 長板の角度に平行な成分 (|| で表す) と、垂直な成分 (⊥で表す) に分解すると次の ようになる。

$$E_{\parallel}^{(i)} = E^{(i)}\cos\theta, \quad E_{\perp}^{(i)} = E^{(i)}\sin\theta$$

$$(4.3)$$

まずは、平行成分について共振器の M1 ミラーから反射する方向の光の電場を計 算する。これは、入射光が M1 によって反射された電場と共振器を往復して M1 ミ ラーから透過した成分の和になる:

$$E_{\parallel}^{(\mathbf{r})} = \left[\sqrt{R_{1}} + T_{1}\sqrt{R_{2}(1-L)}e^{i\delta}\sum_{n=0}^{\infty}\left(\sqrt{R_{1}R_{2}(1-L)}e^{i\delta}\right)^{n}\right]E_{\parallel}^{(\mathbf{i})}$$

$$= \left[\sqrt{R_{1}} + T_{1}\frac{\sqrt{R_{2}(1-L)}e^{i\delta}}{1-\sqrt{R_{1}R_{2}(1-L)}e^{i\delta}}\right]E_{\parallel}^{(\mathbf{i})}$$

$$= \left[\sqrt{R_{1}} + \frac{T_{1}}{\sqrt{R_{1}}}\frac{\sqrt{R_{1}R_{2}(1-L)}e^{i\delta}}{1-\sqrt{R_{1}R_{2}(1-L)}e^{i\delta}}\right]E_{\parallel}^{(\mathbf{i})}$$

$$= \left[\sqrt{R_{1}} + \frac{T_{1}}{\sqrt{R_{1}}}\frac{Re^{i\delta}}{1-Re^{i\delta}}\right]E_{\parallel}^{(\mathbf{i})}$$

$$= \left[\sqrt{R_{1}} - \frac{T_{1}R}{\sqrt{R_{1}}}\frac{\cos\delta - R + i\sin\delta}{(1-R)^{2} + 4R\sin^{2}(\delta/2)}\right]E_{\parallel}^{(\mathbf{i})}$$
(4.4)

ただし $R = \sqrt{R_1 R_2 (1 - L)}$ とおいた。今度は共振器の1/2波長板の角度に対して 垂直方向の電場について考える。垂直方向の電場がM1により反射されたときの 電場を計算する:

$$E_{\perp}^{(\mathbf{r})} = E_{\perp}^{(\mathbf{i})} \sqrt{R_1} \tag{4.5}$$

もし、共振条件 $\delta = 2m\pi(m = 0, \pm 1, \pm 2, \cdots)$ が満たされるならば、反射光の電場はともに実数となる。これは互いの電場の位相がずれていないことを示すため、M1の反射光は直線偏光となる。しかし、先の共振条件が満たされない場合、互いの位相がずれることによって円偏光になる。したがって、直線偏光であるかどうかを調べることができれば共振条件が満たされているかが分かることになる。

これを調べるために、反射光を1/4 波長板に通し、それを PBS で2つのパスに 分けて、それぞれの光の強度を測定する。直線偏光は同じ強度の円偏光の重ね合 わせである。1/4 波長板のファスト軸の角度を共振器内の1/2 波長板の角度と同じ にすると、フォトディテクター a,b の直前における電場は、ジョーンズ計算法を用 いれば

$$\begin{aligned} E_{\mathrm{a,b}} &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \pm 1 \\ \pm 1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \mathrm{i} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel}^{(\mathrm{r})} \\ E_{\perp}^{(\mathrm{r})} \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{2} \left(E_{\parallel}^{(\mathrm{r})} \pm \mathrm{i} E_{\perp}^{(\mathrm{r})} \right) \end{aligned}$$

となる。したがって、光の強度は

$$I_{a,b} = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 |E_{a,b}|^2$$
$$= \frac{1}{8} c \varepsilon_0 \left| E_{\parallel}^{(r)} \pm i E_{\perp}^{(r)} \right|^2$$

これらの強度の差をとると

$$I_{\rm a} - I_{\rm b} = I^{(\rm i)} 2\cos\theta\sin\theta \frac{T_1 R\sin\delta}{(1-R)^2 + 4R\sin^2(\delta/2)}$$
(4.6)

となる。これをグラフにプロットしたのが次の図である。



図 4.12: (4.6) 式の概形

26

図 4.12 で 0 になるとき、 $\delta = 2m\pi(m = 0, \pm 1, \pm 2, \cdots)$ が満たされることが (4.6) 式からわかる。よって、これはエラー信号になっている。すなわち、共振器長を 0 になっている点にもっていき、フィードバックをかければ共振条件を保つことが できる。ここまでの説明でわかる通り、共振器の基本波に対して変調をかけてい ないので、Pound-Drever-Hall 法を用いた場合のサイドバンドが生じてしまう問題 がこの方法ならば起こらない。

本研究では、下図のように Hänsch-Couillaud 法により共振器をロックする系を 組んだ。



図 4.13: Hänsch-Couillaud 法によるエラー信号を得るための系

Hänsch-Couillaud 法により次のようなエラー信号が得られた。



図 4.14: Hänsch-Couillaud 法によるボウタイ型共振器のエラー信号

エラー信号の透過光強度のピークに対応する部分のうち、直線になっている部 分がある。ロック回路はその真中を目標値としてピエゾを対象とした PI 制御を行 う回路である。このような回路を用いて、第二次高調波発生のボウタイ型共振器 をロックした。共振器のアウトプットカプラから透過してくる第二次高調波の強 度を測定し、ロックした時とピエゾに三角波の信号を入力してスキャンした時の 比較をしているのが次図 4.15 のグラフである。



図 4.15: ロック時、スキャン時の第二次高調波の強度

このグラフからロックをしたときに、スキャン時の最大強度を得ることができ ていることが分かる。次に、理論曲線を計算するときに仮定していた共振器の線 形ロスを計測した。PPKTP 結晶を位相整合温度から外したときに、ピエゾによっ て共振器長を振りながら、反射信号の強度を測定した。それが図 4.16 である。



図 4.16: 線形ロスの測定

反射光の最大値と透過光の最小値の比から線形ロスを求める方法[11]により、線
形ロスは1.4%と求められた。次に、基本波と倍波の強度の関係を調べた。具体的には、基本波を7.3mWから360mWの範囲でさまざまな強度にして、その時の倍波の強度を測定した。その結果が次のグラフである。



図 4.17: 基本波の強度に対する倍波の強度(実験結果と理論曲線)

この理論曲線は、実験で測定した線形ロス 1.4%とミラーの反射率を利用して計算した。よって、測定結果とこの曲線は一致することが期待されたが、一致しなかった。先行研究 [8] においても、理論曲線の半分程度の強度しか得られなかったと記述されている。この原因としては、共振器内の光強度が強くなっていることにより、結晶に熱レンズ効果が生じたことや結晶内に青色の光が存在することによる赤外光の吸収 (BLIIRA) が起こったことが挙げられる。

最終的に、基本波の強度が380mWのとき、倍波の強度として190mWを得た。 したがって、本研究で目標としていた波長507.3nmで光強度140mWを得るという目標を達成したことになる。

第5章 絶対周波数基準としてのヨウ 素分子の飽和吸収分光

5.1 ヨウ素分子の飽和吸収分光

本研究では、ガラスセル (図 5.1) に封入されたヨウ素分子の遷移を周波数の基準 とした。このセルの長さは 5cm で、実験室内の温度と同じ温度になっている。写真 では確認できないが、室温 23 の環境下ではセルの壁面に黒色の固体が確認でき る。これはヨウ素分子の固体であるから、室温においてはセル内は2相平衡になっ ていて、気体はセル内温度におけるヨウ素分子の飽和蒸気圧になっている。ヨウ 素分子の遷移の絶対周波数安定度は 23 から 35 の間で 0.2kHz/K[13] となって おり、実験室の温度は数時間かけて 1K 変化する程度なので、数日間の実験を行っ ても、ヨウ素分子の遷移の周波数のゆらぎとしては 0.2kHz 程度となる。本研究と 同様の方法により ECLD の絶対周波数を安定化した場合、典型的には数 kHz/day 以上の周波数安定度となるため、ヨウ素分子は絶対周波数の基準として十分であ るといえる。



図 5.1: 本研究で使用したヨウ素セル(緑の線はヨウ素分子の蛍光)

5.1.1 **飽和吸収分光の原理**

32

ヨウ素分子の入ったセルに光を入射する場合を考える。セルの透過光の強度を 測定すると、次の図のように遷移の自然幅よりも広がった周波数範囲で吸収が起 こる。



図 5.2: 線形吸収曲線の概形

これは、ヨウ素分子が運動していることによる。光の方向と同じ方向に運動し ている原子は、ドップラー効果によって静止系から見た光の周波数より低い周波 数の光を感じ、反対方向に運動している原子は、静止系から見た光の周波数より 高い周波数の光を感じる。したがって、各原子の共鳴周波数にその分子の持つ速 度に依存したずれを生じ、セル全体の分子のスペクトルは自然幅より広がってし まう。しかし、飽和吸収分光と呼ばれる方法を用いれば、この広がったスペクト ルの中から自然幅の遷移のスペクトルを取り出すことができる。この方法は、ヨ ウ素セルに次の図のように同一周波数 f のポンプ光とプローブ光を対向するよう に入射させる。



図 5.3: 飽和吸収分光の光学系

ポンプ光の強度を強く、プローブ光の強度は弱くしておく。もし、分子の速さ が0ならば、その分子にとってポンプ光とプローブ光の周波数はともにfとなる。 この時、ポンプ光は強く、光の吸収が飽和するため、プローブ光の吸収が弱くな る。分子の速さがvでないときは、分子の感じるポンプ光とプローブ光の周波数 が異なるので、このような遷移の飽和は起きない。したがって、セルを透過した 後のプローブ光強度を測定することにより、次のようなスペクトルを得る。



図 5.4: 飽和吸収分光で得られる透過光強度信号の概形

この吸収が弱くなっている部分をラムディップとよび、速さが0の分子の遷移の スペクトルに対応している。 第5章 絶対周波数基準としてのヨウ素分子の飽和吸収分光

5.1.2 飽和吸収分光の光学系

光学系その1

34

まず、次のような光学系によって、ヨウ素分子の飽和吸収分光を行い、ラムディッ プが観察できるかどうかを調べた。



図 5.5: 飽和吸収分光の実験系 (その1)

この系を組んだ上で、次のような条件で飽和吸収分光を行なった。

ヨウ素分子の共鳴周波数	590.8465THz
ポンプ光強度	$73 \mathrm{mW}$
プローブ光強度	$0.36\mathrm{mW}$
ビームウェスト	$500 \mu \mathrm{m}$

ポンプ光をヨウ素セルに入れる場合と、光路を遮ってヨウ素セルにポンプ光を入れない場合でプローブ光を通った光をフォトディテクターでそれぞれ測定した。それらのグラフは図 5.6 の通りである。



図 5.6: プローブ光の測定結果 (その1)

それぞれのグラフは、オシロスコープでフォトディテクターの信号をAC結合で 観察した時の波形データを保存し、プロットしたものである。このようにポンプ光 を入射した時のみ、ディップを観察することができた。したがって、飽和吸収分光 に成功したといえる。しかし、EOMによって位相変調をかけて Pound-Drever-Hall 法によるエラー信号を得ようと試みたがエラー信号を得ることはできなかった。上 の結果から、ディップの最大の高さは10mV程度であり、この系で観察されるディッ プの大きさが小さすぎるためにエラー信号が得られなかったと考えられる。小さ なディップしか見えなかったのは、ヨウ素分子の飽和強度にまだ達していないため であると推測し、ポンプ光とプローブ光のビーム径を小さくし、さらに向い合せ になったミラーの間にヨウ素セルを入れて、光が複数回ヨウ素セルを通過する系 を組むことにした。

光学系その2

始めに組んだ系を改良した新たな系を組んで飽和吸収分光を行うことにした。次図 5.7 ような光学系を組み、ヨウ素分子のエネルギー準位に対応するディップが観察できるかどうかを調べた。



図 5.7: 飽和吸収分光の実験系 (その 2)

ヨウ素セルに光を複数回通すために D 型ミラーと呼ばれるミラーを使った。この系を組んだ上で、次のような条件で飽和吸収分光を行なった。

ヨウ素分子の共鳴周波数	590.9024THz
ポンプ光強度	$130 \mathrm{mW}$
プローブ光強度	$11 \mathrm{mW}$
ビームウェスト	$300 \mu { m m}$

この条件のもとで観察したプローブのフォトディテクターの信号と Pound-Drever-Hall 法によるエラー信号は図 5.8 の通りであった。



図 5.8: フォトディテクターの信号とエラー信号

エラー信号を増幅するために EOM に直列にコイルを接続し、LC 共振回路を構成している。また、最初に組んだ系の時に使用したフォトディテクターは Pound-Drever-Hall 法に必要な 10MHz 程度の信号に対するゲインが十分でなかったので、その帯域まで応答する別のフォトディテクターを利用することにした。この方法では、エラー信号を得ることはできたが、図 5.8 の通り S/N 比が悪い。これを改善するため、ロックインアンプを使ってエラー信号を得る系を組むことにした。この場合 AOM を 2 つ使うことになるため、光の強度が減少する。仮に AOM の回折効率が 70%だとすると、2 つの AOM を出た後の光の強度は、AOM に入射する前の強度の 49%になる。新しい系でも飽和吸収分光ができるのかを調べるために、必要な光の強度を測定した。ノイズイートの度合いを変化させることによって、飽和吸収分光に利用する光の強度を増減することができる。この方法によって、光の強度を最大の 140mW から 20mW に減少させたが、エラー信号はノイズに埋もれることなく観察できた。したがって、AOM を 2 つ使う系でも飽和吸収分光を行うことができると考えた。

光学系その3

先ほどの方法より S/N 比を改善するため、第二高調波発生のボウタイ型共振器 の出射光を AOM に入れてノイズイートを行い、さらに、ポンプ光のみの光路上に AOM を入れてポンプ光をチョッピングできるようにした。前者の AOM は-1 次、 後者の AOM は 0 次で使用した。0 次で使用する場合、AOM によってポンプ光を 完全に遮ることはできない。それを考慮すると、1 次、または、-1 次の回折光をポ ンプ光として利用すべきである。そのような事情があるにもかかわらずこのよう に組んだのは、光学系その2 に対して AOM を追加するという形でこの系を組んだ ので、光路のずれがない 0 次光を利用したかったためである。ポンプ光を完全に 遮ることはできなかったが、回折効率を調整し、さらにアイリスの開き方を調整 することによって AOM をオンにした際の強度はポンプ光を遮らない場合の強度 の 2%になった。詳しくは光学系の図 5.9 の通りである。



図 5.9: 飽和吸収分光の実験系 (その 3)

AOM によるポンプ光のチョッピングは 10kHz でおこなった。そのチョッピング の信号とプローブ光の強度を測定しているフォトディテクターの信号をロックイ ンアンプに入力し、出力として次のようなエラー信号を得た。比較のためにフォ トディテクターの DC 信号も示しておく。

38



図 5.10: フォトディテクターの信号(上)とエラー信号(下)

ポンプとプローブの比やロックインアンプの参照信号と測定信号の間の位相を、 エラー信号が最大になるように調整した後に得られたのが上の結果である。エラー 信号のS/N比は実験系その2の結果である図5.8に比べて改善しているが、ECLD をロックするためのエラー信号としてはS/N比が悪いと考え、Pound-Drever-Hall 法ではなく AOM による周波数変調をかけることにより、エラー信号を得る系を 組むことにした。

光学系その4

第二次高調波発生のボウタイ型共振器の出射光に対して、AOM による周波数変 調をかけてから系のうち飽和吸収分光を行う部分に入射することでエラー信号を 得る系を組んだ。光学素子の配置は図 5.11 の通りである。周波数 80MHz の搬送波 に対して振幅 ±3.5MHz、周波数 10kHz の正弦波によって周波数変調をかけた信号 を AOM にかけている。



図 5.11: 飽和吸収分光の実験系 (その 4)

また、ノイズイート回路の電源に電気的なノイズが乗っていることに由来する 光強度のノイズが存在していたので、ポンプ光とプローブ光をそれぞれフォトディ テクターで測定し、片方の信号を定数倍した後に差分を取るという回路を自作し て、ノイズを減らした。その回路の出力と10kHzの参照信号をロックインアンプ に入力してエラー信号を得た。それが次図5.12のグラフである。



図 5.12: 実験系その4 で得られたエラー信号

このエラー信号を実験系その3で得られた信号(図5.10)と比較するとS/N比が 改善していることが分かる。このレベルのS/N比ならば問題はないと判断して、 ECLDのピエゾ素子にフィードバックをかけることによってロックを行なうこと にした。ヨウ素分子の遷移にECLDをロックすることができるようになったので、 これでゼロクロス温度を探す実験ができる。その前にULE共振器の温度と共振周 波数の関係などを次節において説明する。

第6章 ULE 共振器のゼロクロス温度測定

6.1 ULE 共振器の温度と共振周波数の関係

ULE ガラスの熱膨張係数を α 、ある温度における長さをL、全体の長さを L_0 、 温度をTとすれば、熱膨張係数の定義より

$$\alpha = \frac{1}{L_0} \frac{dL}{dT} \tag{6.1}$$

となる。熱膨張係数と温度の関係の概形は次の通りである。



図 6.1: ULE ガラスの温度と熱膨張係数の関係 [12]

このグラフからゼロクロスポイント近傍で数 温度変化する場合には線形近似 で十分良いということが読み取れるので、*T*₀を ULE ガラスのゼロクロス温度、*α*₀ を比例係数として

$$\alpha(T) = \alpha_0(T - T_0) \tag{6.2}$$

と近似する。ULE 共振器の共振の次数をn、光の波長を λ とすれば

$$L = n\lambda \tag{6.3}$$

という関係が成立する。 $f\lambda = c$ の関係から (6.3) 式は

$$\frac{cn}{f} = L$$
$$cn = fL$$

両辺を温度で微分し、*fL*で割ると

$$-\frac{1}{f}\frac{df}{dT} = \frac{1}{L}\frac{dL}{dT}$$
$$= \alpha(T) \quad (\because (6.1) 式の熱膨張係数の定義を利用した)$$

という関係が成立する。熱膨張係数 α は (6.2) 式と近似されたので

$$-\frac{1}{f}\frac{df}{dT} = \alpha_0(T - T_0) \tag{6.4}$$

という微分方程式が得られ、これを温度 T で積分することで解けば

$$\frac{f(T) - f(T_0)}{f(T)} \simeq -\frac{\alpha_0}{2}(T - T_0)^2 + \alpha_1 \tag{6.5}$$

ここで α_1 は積分定数である。共振周波数fはULEガラスの温度Tの関数であるが、実際にはULEガラスの温度を直接計測することはできない。なぜなら、サーミスタは導線によって温調されていない外部と熱接触してしまうためである。

そこで、ULE 共振器の入っているチャンバーの構造から ULE ガラスの温度を推定することを考える。チャンバーは次のような構造になっている。



図 6.2: ULE 共振器の構造

ラディエーションシールドはアルミ製である。一番外側のラディエーションシー ルドにはペルチェがついており、内側のラディエーションシールドにサーミスタ がついている。温調によってこのラディエーションシールドの温度を制御するこ とができる。以下ではこの構造を次のように熱力学的なモデルに直し、外側のラ ディエーションシールドの温度と ULE ガラスの温度の関係を導く。



図 6.3: ULE 共振器の熱力学的過程

-番外側のラディエーションシールドの温度が一定になるまでの時間は、それ より内側の構造が熱平衡に達するよりも十分早いとする。すると、一番外側のラ ディエーションシールドは温度 T₁の熱浴とみなせる。このとき、内側のラディエー ションシールドと ULE 共振器に対して微小時間 *dt* に出入りする熱に関する方程 式を立てる。

$$d'Q_2 = C_{12}(T_1 - T_2)dt - C_{2u}(T_2 - T_u)dt$$
(6.6)

$$d'Q_u = C_{2u}(T_2 - T_u)dt (6.7)$$

また、この状況では各構造の全エネルギーの変化は熱量の変化と等しく

$$d'Q_2 = C_2 dT_2$$
$$d'Q_1 = C_1 dT_1$$

という関係が成立する。(6.6) 式と(6.7) 式はこの関係から

$$C_2 dT_2 = C_{12} (T_1 - T_2) dt - C_{2u} (T_2 - T_u) dt$$
$$C_u dT_u = C_{2u} (T_2 - T_u) dt$$

これらの関係式から

$$C_2 \frac{dT_2}{dt} = C_{12}(T_1 - T_2) - C_{2u}(T_2 - T_u)$$
$$C_u \frac{dT_u}{dt} = C_{2u}(T_2 - T_u)$$

という微分方程式を得る。この微分方程式を解くと、次のようになる。

$$\begin{split} T_{2}(t) &= \frac{1}{2\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}} \exp\left[-\frac{2\tau_{12} + \tau_{2u} + \sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right] \\ &\times \left[2\left(\exp\left[\frac{\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right] - 1\right)(T_{u}(0) - T_{1})\tau_{12} \right. \\ &- \left(\exp\left[\frac{\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right] - 1\right)(T_{2}(0) - T_{1})\tau_{2u} \right. \\ &+ \left(\left(\exp\left[\frac{\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right] + 1\right)(T_{2}(0) - T_{1}) + 2\exp\left[-\frac{2\tau_{12} + \tau_{2u} + \sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right]T_{1}\right) \right. \\ &\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}} \\ T_{u}(t) &= \frac{1}{2\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}\exp\left[-\frac{2\tau_{12} + \tau_{2u} + \sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right] \\ &\times \left[2\left(\exp\left[\frac{\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right] - 1\right)(T_{2}(0) - T_{1})\tau_{12} \right. \\ &- \left(\exp\left[\frac{\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right] - 1\right)(T_{u}(0) - T_{1})\tau_{2u} \right. \\ &+ \left(\left(\exp\left[\frac{\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right] + 1\right)(T_{u}(0) - T_{1}) + 2\exp\left[-\frac{2\tau_{12} + \tau_{2u} + \sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}}{2\tau_{12}\tau_{2u}}t\right]T_{1}\right) \right. \\ &\sqrt{4\tau_{12}^{2} + \tau_{2u}^{2}}\right] \end{split}$$

ここで、熱平衡に達するまでの時間を特徴づける時定数として $\tau_{12} = C_2/C_{12}, \tau_{2u} = C_u/C_{2u}$ を導入している。これらの関数の概形を見るために適当な状況に対して上の関数をプロットしたのが次の図 6.4 である。



図 6.4: ULE 共振器とラディエーションシールド2の温度変化

これはチャンバー内のすべての構造が 33 で熱平衡に達していた状態から、t = 0に一番外側のラディエーションシールドの温度を 25 にした時のグラフである。 時定数などは実験で求められた値を代入した。このグラフから、内側のラディエー ションシールドよりも ULE 共振器のほうが熱平衡にかかる時間が長いという振る 舞いが読み取れる。ラディエーションシールド 2 と ULE 共振器の熱接触は悪く、 実際にそのように振る舞うと予想されるためにこのモデルは現実に即していると いえる。ULE 共振器の温度と共振周波数の関係は (6.5) 式であり、この関数の温度 の部分に、いま求めた関係式を代入すれば、時間と共振周波数の関係式が導出でき る。時定数 τ_{12}, τ_{2u} やゼロクロス温度を求めるには次のようにする。まず、ラディ エーションシールドの温度が熱平衡になるまで待ってから、時刻 t = 0 に温調の設 定温度を変化させ、その時の共振周波数の時間変化を記録する。その測定データ に対して共振周波数と時間の関係式によってフィッティングすれば、先ほどの定数 を求めることができる。

6.2 ゼロクロス温度の測定

先の図 5.11 の系によりエラー信号を得た。また、PZT にフィードバックをかけて、ヨウ素分子の特定の遷移にロックした。以降のすべてのゼロクロス温度の測定結果はこの遷移を絶対周波数の基準として得られたものである。この遷移の帰属付けをおこなったところ (付録参照)、ヨウ素分子の $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow B^3\Pi_{0u}^+$ 遷移の P40(52)-0の 15 個の超微細構造のうちの 1 つであることがわかった。また、遷移の線幅は実測により 8MHz となった。

SHG に利用している ECLD 光源と同じ方法で作製した ECLD(以降これを 2 台 目の ECLD とよび、もう一方を 1 台目の ECLD と呼ぶ)を ULE 共振器にカップリ

6.2. ゼロクロス温度の測定

電子状態	$X^1 \Sigma_g^+ \to B^3 \Pi_{0u}^+$
振動回転準位	P(40)52-0
超微細構造の各量子数	F = 39, I = 4
ディップの半値全幅	8MHz

表 6.1: 絶対周波数の基準に用いた遷移

ングさせた。ULE 共振器にロックした 2 台目の ECLD の出射光と PZT のフィー ドバックによりヨウ素分子の先ほど述べた遷移にロックした 1 台目の ECLD 光源 の出射光のビートをとり、それを帯域の十分なフォトディテクターで測定した。

次に具体的な実験条件を述べる。ULE共振器を覆っているラディエーションシー ルドの温度を35 にして2日間熱平衡に近づくのを待った。その後次の条件で温 度を変化させて、その間のビート周波数を記録した。



ビート周波数のグラフは次の通りであった。



図 6.5: ビート周波数 (ラディエーションシールド温度 $35 \rightarrow 20$)

図 6.5 の実験データが所々存在しないのは、ヨウ素分子に対する1台目の ECLD のロックが外れてしまっている時間が存在したためである。これ以降本論文に登 場する同様なデータにおけるデータの不連続性は全て ECLD のロックが外れたこ とによるものである。また、フィッティングから求めた各パラメータは次の表のと おりである。

	推定値	標準偏差	95% 信頼区間
alpha0	0.2617	0.0049	$\{0.2520, 0.2714\}$
alpha1	0.1415	0.0004	$\{0.1406, 0.1423\}$
$ au_{12}$	2.413	0.077	$\{2.262, 2.564\}$
$ au_{2u}$	27.79	0.15	$\{27.5, 28.09\}$
t0	305.4	0.01	$\{305.38, 305.44\}$

この結果のalpha0,alpha1は上の理論曲線の関数をf(t)、ULE 共振器の温度を<math>T(t)

として、次のような関係になっている。

$$f(t) = alpha0(T(t) - T_0)^2 + alpha1$$
(6.8)

これは、ULE 共振器の温度と共振周波数の関係式 (6.5) 式とは係数の定義が定数倍 異なっている。以降 alpha0,alpha1 は (6.8) 式で定義されるものとする。この実験 結果から ULE ガラスのゼロクロス温度 t₀ は 32.3 と求められたことになる。こ の方法ではヨウ素分子の遷移を利用して1台目の ECLD をロックしているが、ピ エゾにフィードバックをかけているだけで電流フィードバックをかけていないの で 200kHz 程度の周波数ゆらぎが存在している。そこで、1台目の ECLD 光源を ヨウ素分子の遷移にではなく、ULE 共振器にロックしてゼロクロス温度を測定で きる系を組むことにした。この方法は1台目の ECLD のみを用いる方法である。 その系を図 6.6 に示す。ヨウ素分子の遷移へのロックの際に電流フィードバックを 行わないのは、使用したロック回路に電流フィードバック機能がないことと、遷 移の線幅が 8MHz なので、1台目の ECLD 光源の線幅は良くてその 100 分の 1 の 80kHz になることの 2 つが理由である。ULE 共振器によるロックしたときの1台 目の ECLD 光源の線幅は 200Hz 以下であると測定されている。

6.2. ゼロクロス温度の測定



図 6.6: ゼロクロス温度を測定するための系

AOM による光の周波数変化の大きさに限界があるので、この系によってエラー 信号を得るには ULE 共振器にロックしている ECLD の出射光と周波数基準として 使用するヨウ素分子の遷移は近い周波数になっている必要がある。ULE 共振器の 共振周波数とヨウ素分子の遷移の周波数差を埋めるために第3章3節で紹介した 系の AOM にかける RF 信号の周波数を調整した。

第二高調波に対して1つ目のAOMでエラー信号をスキャンしている。周波数80MHz の搬送波に対し、振幅3.2MHz,10kHzのFM変調をかけた信号を2つ目のAOMに 入力しておりエラー信号を得ている。いままでの系ではVCOによる信号をAOM にかけるRF信号としていたが、この方法だとVCOの温度が変化することによる 周波数ドリフトが存在するため問題がある。そこで、それぞれのAOMに入射す るRF信号はシンセサイザーによって準備した。

これまでの一連の系との大きな違いは、ヨウ素分子のある遷移に AOM や ECLD をロックする方法ではないことである。フォトディテクターの DC 出力からの信号 を測定して、エラー信号自体をオシロスコープで 30 秒ごとに保存する。そのデー タをローレンツ型関数を微分した関数によってフィッティングして、そのフィッティ ング結果から共振周波数の変化を求めるという方法をとった。あるエラー信号に 対して、フィッティングを行った結果のうち、典型的なものを次に示す。



図 6.7: エラー信号に対するフィッティング結果

以上のようにこの関数によるフィッティングはよくデータを説明できている事 がわかる。この実験で光の周波数に変化を与えるものを挙げると、ULE 共振器の 共振周波数、利用しているヨウ素分子の遷移の絶対周波数、AOM にかける RF 信 号の周波数の3通りが考えられ、AOM の周波数は必要な精度より十分良いシンセ サイザーを利用している。したがって、ヨウ素分子の遷移の絶対周波数がずれて いないとき、ULE 共振器の共振周波数の変位のみがこの実験によって得られるエ ラー信号の中心を決めることになる。これが、この実験方法の利点である。

この測定方法によって、ULEの温度を次のように変化させた時の周波数差の変化を測定した。

初期温度()	目標温度()
31	32.5

初期温度に設定して数日間熱平衡に近づくのを待った。そして、ラディエーションシールドの温調の設定温度を 32.5 に設定し、そのときから周波数の差のデータを記録し始めた。その結果が次のグラフである。



図 6.8: 共振周波数の変化 (ラディエーションシールド温度 $31 \rightarrow 32.5$)

灰色の点で表されているのが測定データで、赤色の曲線はそのデータに対して フィッティングを行なった結果である。図 6.5 の実験結果においては、ECLD に電 流フィードバックをかけていないことによる数百 kHz 程度の誤差が存在していた が、ゼロクロス温度を測定するための新しい方法に変えたことにより数十 kHz 程 度の誤差に減少していることが図 6.8 から分かった。

フィッティングからもとまったパラメータは次のとおりである。

	推定値	標準偏差	95% 信頼区間
α_0	39.45	0.1950	$\{39.07, 39.84\}$
α_1	515.0	26710	$\{-51850, 52880\}$
$ au_{12}$	0.0009196	683.0	$\{-1339, 1339\}$
$ au_{2u}$	31.61	683.2	$\{-1308, 1371\}$
t_0	304.6	27.21	$\{251.3, 357.9\}$

したがって、ゼロクロス温度は 31.5 と求められた。±0.5 の範囲内にゼロクロス温度を見つけるため、今度は 32 から 31 へ温度を変化させて同様の観察を行なった。その結果が次のグラフである。



図 6.9: 共振周波数の変化 (ラディエーションシールド温度 $32 \rightarrow 31$)

このように、二次関数の頂点に当たる点があることがわかる。よって 31.5±0.5 の範囲にゼロクロス温度があるといえる。各フィッテイングパラメータは次の通 りである。

推定值	標準偏差	95% 信頼区間
-70.60	0.26	$\{-71.10, -70.09\}$
293.1	42.9	$\{209.0, 377.2\}$
5.844	1.959	$\{2.004, 9.684\}$
22.39	7.61	$\{7.47, 37.32\}$
304.7	0.03	$\{304.62, 304.75\}$
	推定値 -70.60 293.1 5.844 22.39 304.7	推定値標準偏差-70.600.26293.142.95.8441.95922.397.61304.70.03

この結果からゼロクロス温度は 31.5 と求められた。2 つの温度範囲で温度を変化させたときの測定結果からもとめたゼロクロス温度はともに 31.5 であり、一致した。このことからゼロクロス温度は 31.5 である可能性が高いと考えられ、この温度にした時、ドリフトがどの程度であるかを評価することにした。

6.3 ゼロクロス温度における絶対周波数ドリフトの評価

ここまでの実験でゼロクロス温度は 31.5 と推測された。そこで、ULE 共振器 をこの温度に設定して、絶対周波数のドリフトを評価することにした。

6.3.1 31 から31.5 に変化させた時

温調の温度設定を 31 にし、ULE 共振器の温度が熱平衡になるのを待った。そのあと、温度設定を予想ゼロクロス温度である 31.5 にした。温度設定を変化させた時を時刻の原点として、共振周波数の変位をプロットしたのが次図 6.10 のグラフである。



図 6.10: 共振周波数の変化 (ラディエーションシールド温度 31 \rightarrow 31.5)

赤色は、データの測定結果に対してフィッティングを行った曲線である。各フィッ ティングパラメータは次の通りであった。

	推定值	標準偏差	95% 信頼区間
alpha0	100.1	0.5	$\{99.1, 101.1\}$
alpha1	343.2	43.0	$\{258.8, 427.5\}$
$ au_{12}$	1.224	0.246	$\{0.742, 1.705\}$
$ au_{2u}$	22.49	2.34	$\{17.91, 27.07\}$
t0	304.63	0.03	$\{304.57, 304.69\}$

この結果でも、ゼロクロス温度は31.5 と推測され、前節の実験結果と同じになった。この結果は、31.5 が ULE 共振器のゼロクロス温度であるということと矛盾しない。この結果が得られた段階で、ULE 共振器の温度は31.5 に達していると 推測されるので、次に絶対周波数のドリフトを測定した。

6.3.2 ゼロクロス温度における周波数ドリフト

ULE 共振器の温度を 31.5 になってから、ULE 共振器の共振周波数の変位を 測定した。30 時間にわたり測定した結果が以下である。



図 6.11: ゼロクロス温度における周波数ドリフトの測定結果

温度変化によるドリフトは非常に遅いはずなので、1周期15分以上の速さで変化する周波数成分をカットするようなデータ処理を行った。つまり、このデータに対して、FFTをおこない、先に述べたカットオフ周波数より高い周波数成分を0にして、RFFTを行った。その結果が次の図6.12である。



図 6.12: ゼロクロス温度における周波数ドリフトの測定結果 (ローパスフィルタ あり)

この結果から、最大で 0.4kHz/min のドリフトとなっていることが求められた。 よって、この方法によれば、ULE 共振器に ECLD 光源をロックした時の光源の周波 数ドリフトは 0.4kHz/min 以下であるといえる。これは、本研究の目標 0.2kHz/min には達していないが、この目標はかなり厳しめのものであるため、Yb の $^{1}S_{0} \rightarrow ^{3}P_{2}$ 遷移に光源を共鳴するよう調整する実験を行うには十分な精度であるといえる。

6.4 考察

6.4.1 絶対周波数ドリフトの評価の実験(図 6.11)について

温度と共振周波数の関係は(6.5)式より

$$\frac{f(T) - f(T_0)}{f(T)} \simeq -\frac{\alpha_0}{2}(T - T_0)^2 + \alpha_1$$

2次の係数 α_0 はフィッティングによる測定結果にばらつきがあるが、そのうち最大の値 $\alpha_0 f(T)/2 = 515$ kHz·K⁻² が正しい値であると仮定する。最大の値を以降の計算に用いるのは絶対周波数安定化に対して最悪の状況を考えていることにあ

たる。周波数 f の温度 T での微分は (6.4) 式より

$$-\frac{df}{dT} = f\alpha_0(T - T_0)$$
$$|\Delta f| \simeq f\alpha_0 |(T - T_0)\Delta T|$$
$$= 2 \times 515 \times 0.1 |\Delta T| \text{kHz}$$
$$= 1.0 \times 10^2 \Delta T \text{kHz}$$

ULE 共振器の温度は、使用した温調の公称性能上でいうと 1mK の精度で保たれているが、あくまで公称性能なので、実際にはこれが 10mK の精度であると仮定する。このとき、ULE 共振器の共振周波数の変位は

$$|\Delta f| \simeq 1.0 \times 10^2 \times 10 \times 10^{-3} = 1.0 \text{kHz}$$

したがって、ULE 共振器の温度が (ゼロクロス温度 ±0.1) だったとすると、ULE 共振器の共振周波数の周波数変化は 1kHz 以下であるということが言える。

絶対周波数ドリフトを測定した実験結果である図 6.11 の 135 時間付近と 145 時 間付近を比較すると、測定結果の揺らぎを平均した値が 20kHz 程度ずれているこ とが読み取れる。エラー信号に対してプロットを行うことによりゼロクロス温度を 探す実験によって求められたゼロクロス温度は、全て 31.5 である。よって、ゼ ロクロス温度はその温度にある可能性が高い。また、仮にこの温度から真のゼロ クロス温度が1 ずれていたとしても、共振周波数のドリフトは先の計算の 10 倍 の 10kHz にしかならず、図 6.11 の結果を説明できない。以上から、ゼロクロス温 度から 0.1 のずれのときの周波数ドリフトが 1kHz であるとする先の計算結果と 図 6.11 の結果は矛盾する。

この原因として考えられるのは、ULE 共振器の共振周波数の変位ではなくヨウ 素セルの温度が変化することによるずれが挙げられる。フィッテングによる実験 方法は、光強度のゆらぎによるエラー信号のオフセット電圧の変化を理由に採用 した。原理上この方法では、ULE 共振器の共振周波数の変位、もしくは、絶対周 波数の基準であるヨウ素セルの遷移の周波数変位のどちらかを測定することにな る。したがって、ULE 共振器の共振周波数の変位で説明できない部分については ヨウ素セルの遷移の周波数の変位として考えるのが妥当である。ヨウ素セルにコ ンピュータと接続して温度が記録できるサーミスタを接触させ数日間温度を記録 したところ、ヨウ素セルの温度は平均23 で±0.5 程度変化していることがわ かった。この結果から、ヨウ素セルの温度変化がこの実験結果で見えた周波数ド リフトを支配していると考えるに至った。そこで、これを検証する実験を行った。 検証するための実験として、アルミホイルでセルを覆い、ドライヤーの温風で

セルを温めるということを行った。この際、アルミホイルとセルの間に先ほどの

サーミスタを挟んでおいた。サーミスタの温度とセルの温度は完全に一致するわけではないが、これからの議論は定性的なものであり、その程度の誤差は問題にならない。また、少なくとも最初の時点のこの誤差を減らすため、ドライヤーの 温風をまんべんなくセルに当て、時間をかけて温度を上昇させた。この方法でセルを 70 まで加熱し、室温(23)で放置しながら共振周波数を測定した。する と、70 から 50 の温度範囲ではエラー信号の電圧がほぼ 0V になり、測定できなくなった。

この原因として考えられるのは、温度を変化させたことにより、ヨウ素の飽和蒸 気圧が高くなったため、固相にあったヨウ素分子が気化し、セル内の気体のヨウ 素分子の密度が上昇したことである。実際、ドライヤーの温風を当てたことによ るセル温度の上昇でセル内壁のヨウ素がなくなることを確認した。ヨウ素分子の 密度が上昇すると、線形吸収が増加し、フォトディテクターに入るプローブ光が 減少してしまう。このため、信号が測定できなくなったと考えられる。

温度を上昇させた際に得られたグラフと室温(23)との熱平衡になっていると きのグラフの比較が図 6.14,6.13 である。





図 6.13: 34 の時のエラー信号

図 6.14:23 の時のエラー信号

先述の通り、温度の上昇によりエラー信号の電圧が減少することが確認できた。 それ以上に注目したいのが、右と比較して左のフィッティングが測定結果と一致 していないという事実である。この原因はいまのところ分かっていないが、フィッ ティングに乗らなくなってしまうと、フィッティングによって共振周波数の変位を 求めるというこの実験の結果は信用できない。なぜなら、その値は定量的には言 えないものの、真の共振周波数からずれるからである。そして、セルについては、 左右のグラフを得たときのセルの温度差よりも小さいものの、温度変化が起きて いる。よって、測定結果の周波数ドリフトはヨウ素セルの温度変化による誤差が 存在していると考えられる。 ここまでの議論をまとめる。これまで図 6.11 の実験結果で周波数ドリフトが大 きすぎる原因を考察してきた。原理上フィッテングを用いた実験方法においては、 ULE 共振器の共振周波数の変位、もしくは、絶対周波数の基準であるヨウ素分子 の遷移の周波数変位のどちらかがこの原因となる。ULE 共振器の共振周波数の揺 らぎではないということが計算から推測されたため、ヨウ素セルの方に問題があ ると考えられ、セルの温度を変化させる実験によって、実験結果の周波数が変位し てしまうということが分かった。以上により、図 6.11 によって評価された周波数 ドリフトは、ULE 共振器の共振周波数のドリフトではなく、ヨウ素セルの温度が 変化したことによるものが支配的に見えているといえる。ちなみに、ヨウ素の遷 移の周波数ドリフトは、これを調べた研究 [13] のデータから、共鳴周波数が異な るものの、0.2kHz/K という結果が知られている。507.3nm の遷移においてもこの 値にオーダーとしては近いならば、本当に絶対周波数がずれたわけではなく、エ ラー信号が変化してしまったことが原因と考えられる。

ここで議論した絶対周波数基準としてのヨウ素セルの持つ問題は、図 6.11 のデー タを解析して得られた ULE 共振器の絶対周波数ドリフトが 0.4kHz/min 以下に抑 えられたという結果にはほとんど影響しないと考えられる。なぜなら、室温は数 時間かけて 1K 変化するためである。ただし、周波数のドリフトがセルの温度変化 に比例すると仮定した単純な計算を行うと、ヨウ素セルの温度が 1 分間に 5mK 変 化している場合は 0.1kHz のドリフトが起きるという結果が得られ、先の結果に影 響してしまうという結果が導かれた。

6.4.2 ゼロクロス温度を正しく評価するには

現在の系のままでは ULE 共振器にロックした ECLD 光源の絶対周波数のドリ フト評価は難しい。まず一つ目の理由として、前節の議論からヨウ素セルの温度 が変化することにより、フィッティング結果から得られる数値はドリフトを評価す るには不十分な精度になってしまうことが挙げられる。もう一つの理由は、ヨウ 素の飽和吸収分光によって観察されるディップの線幅が大きいことである。この ディップの半値全幅は 8MHz であり、その 100 分の 1 の精度で中心が分かるとし ても 80kHz 程度は周波数が揺らいでしまう。これら 2 つの問題点を解決するには、 ヨウ素セルを本研究の実験中の温度より低い温度で一定の温度に保たれるように することが考えられる。まず、温度を一定に保つことで、前節で述べた問題の解 決が期待される。また、温度を冷やすことによって線幅が細くなるのは、温度と ヨウ素の遷移の周波数ドリフトを調べた研究 [13] を始めとして複数の研究で確認 されている。セルを冷却することで線幅が細くなれば、絶対周波数を精度よく決 めることができるようになる。

6.4. **考察**

別の方法としては、本研究で構築したのと全く同じ系を別に準備し、それぞれのECLDの出射光のビートをとる方法が考えられる。この方法だと、それぞれの出射光は、ともにそれぞれ別のULE共振器にロックされている。各光源の線幅は1kHz未満であるから、ヨウ素セルによる方法よりも精度よくドリフトを評価することができる。

第7章 まとめ

7.1 結果

本論文の序論で掲げた目標に対する達成度を明確にするため、本研究で得た結 果を以下にまとめておく。

- PPKTP 結晶を利用したボウタイ型共振器を組み、波長 1014.6nm の基本波の強度が 380mW のとき 507.3nm の第二次高調波として 190mW の強度を得た。これにより、波長 507.3nm の光の強度を 140mW 以上を得るという目標を達成した。
- ヨウ素を絶対周波数の基準とすることにより、ULE 共振器のゼロクロス温度 を 31.5
- この温度に温調した ULE 共振器に ECLD 光源をロックした際の絶対周波数 のドリフトを評価し、ドリフトは 0.4kHz/min 以下であるという結果を得た。 目標は 0.2kHz/min であり、これには届かなかったが Yb 原子の ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移を探すには十分な性能に達した

7.2 今後の課題

Yb 原子の ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{2}$ 遷移と本研究の光源を共鳴させることを目標とした場合の 今後の課題としては、ゼロクロス温度の評価方法の改善を行うことが挙げられる。 ゼロクロス温度であるということが明確に確認できれば、この実験を行う際にう まくいかなかった場合、ゼロクロス温度になっていないことが原因なのか、もし くは、ほかの部分の問題なのかの切り分けができなくなることを避けられる。
付 録A 絶対周波数の基準に利用し た遷移について

分子のSchrödinger方程式

実験で用いるのはヨウ素分子だが、議論を簡単にするため同じ二原子分子の水素 分子をここでは扱う。電子や陽子のスピンを無視した場合の水素分子のHamiltonian H は

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_e} (\nabla_1^2 + \nabla_2^2) - \frac{\hbar^2}{2m_p} (\nabla_a^2 + \nabla_b^2) + U$$
(A.1)

ここで 1,2 は水素分子中の 2 つの電子をそれぞれ表しており、a,b は 2 つの陽子を それぞれ表す。また、U は電子同士、陽子同士、電子・陽子間のクーロンポテン シャルである。定常状態の Schrödinger 方程式を立てると

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e}(\nabla_1^2 + \nabla_2^2) - \frac{\hbar^2}{2m_p}(\nabla_a^2 + \nabla_b^2) + U\right)\phi(\mathbf{R}_a, \mathbf{R}_b, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = E\phi(\mathbf{R}_a, \mathbf{R}_b, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$$
(A.2)

この方程式を解析的に解くことは多体問題なので難しい。そこで陽子の質量が電子の質量の約 2000 倍であることを利用して、陽子は空間上のある位置に固定されているという近似をする。これを断熱近似と呼ぶ。この近似のもとで、電子の波動関数 $\Psi(\mathbf{R}_a, \mathbf{R}_b, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ の満たすべき Schrödinger 方程式は

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e}(\nabla_1^2 + \nabla_2^2) + U\right)\Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2) = W(R)\Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)$$
(A.3)

となる。上式の解は無数に存在するが、ここでは基底状態に対応する Ψ について 考える。R は陽子間の距離を表しており、電子のエネルギー固有値 W はこの距離 に依存するため右辺のようになる。W(R)の計算方法については後に述べること にし、定性的なグラフを以下に示しておく。



このように $R = R_0$ の時に W(R) は最小値を取る。実際には陽子の質量は無限 大ではないので、 $R = R_0$ の周りでゼロ点振動をするが、その振幅は R_0 に比べて 十分小さい。

今この基底状態の電子の波動関数 Ψ がわかっているとする。(A.2) 式の解として $\phi = \Psi(\mathbf{R}_a, \mathbf{R}_b, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\chi(\mathbf{R}_a, \mathbf{R}_b)$ という形を仮定し (A.2) 式に代入すれば

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} (\nabla_1^2 + \nabla_2^2) - \frac{\hbar^2}{2m_p} (\nabla_a^2 + \nabla_b^2) + U \right) \Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2) \chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b)$$

= $E \Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2) \chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b)$

左辺について計算を行うと

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e}(\nabla_1^2 + \nabla_2^2) - \frac{\hbar^2}{2m_p}(\nabla_a^2 + \nabla_b^2) + U\right)\Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)\chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b)$$

$$= \left(-\frac{\hbar^2}{2m_p}(\nabla_a^2 + \nabla_b^2) + \left(-\frac{\hbar^2}{2m_e}(\nabla_1^2 + \nabla_2^2) + U\right)\right)\Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)\chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b)$$

$$= \left(-\frac{\hbar^2}{2m_p}(\nabla_a^2 + \nabla_b^2) + W(\boldsymbol{R})\right)\Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)\chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b) \quad (A.4)$$

 $\Psi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{r}_1,oldsymbol{r}_2)\chi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b)$ に対して $abla_a^2$ を作用させると

$$egin{aligned}
abla_a^2(\Psi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{r}_1,oldsymbol{r}_2)\chi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b)) &= \chi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{r}_1,oldsymbol{r}_2)) & \ &+ \Psi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{r}_1,oldsymbol{r}_2)
onumber \ &+ \Psi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{r}_1,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{r}_2)
onumber \ &+ \Psi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{r}_1,oldsymbol{r}_2)
onumber \ &+ \Psi(oldsymbol{R}_a,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{r}_1,oldsymbol{R}_b,oldsymbol{R}$$

ここで Ψ は陽子間距離を固定した時の電子の波動関数である。ポテンシャルW(R)の図を見れば、この波動関数を著しく変化させるためには $R \ge R_0$ 程度変化させる必要があることがわかる。一方、 χ は陽子の波動関数を表しており、陽子間距離Rが R_0 を中心としてゼロ点振動をすることを表現している。この振幅は平衡値 R_0 に比べて十分小さく、Rがこの振幅程度変化するだけで χ の値は大きく変化する。これらの考察から、

$$\nabla_a^2(\Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)\chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b)) \sim \Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2) \nabla_a^2 \chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b)$$

という近似が妥当となる。 ∇_b^2 に関しても同じ近似をおこなう。すると Schrödinger 方程式の左辺 (A.4) 式は

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_p}(\nabla_a^2 + \nabla_b^2) + W(R)\right)\Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)\chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b)$$

~ $\Psi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b, \boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2)\left(-\frac{\hbar^2}{2m_p}(\nabla_a^2 + \nabla_b^2) + W(R)\right)\chi(\boldsymbol{R}_a, \boldsymbol{R}_b)$ (A.5)

よって、先の近似の下での Scrödinger 方程式は次のようになる。

$$\Psi(\boldsymbol{R}_{a},\boldsymbol{R}_{b},\boldsymbol{r}_{1},\boldsymbol{r}_{2})\left(-\frac{\hbar^{2}}{2m_{p}}(\nabla_{a}^{2}+\nabla_{b}^{2})+W(R)\right)\chi(\boldsymbol{R}_{a},\boldsymbol{R}_{b})=E\Psi(\boldsymbol{R}_{a},\boldsymbol{R}_{b},\boldsymbol{r}_{1},\boldsymbol{r}_{2})\chi(\boldsymbol{R}_{a},\boldsymbol{R}_{b})\\\left(-\frac{\hbar^{2}}{2m_{p}}(\nabla_{a}^{2}+\nabla_{b}^{2})+W(R)\right)\chi(\boldsymbol{R}_{a},\boldsymbol{R}_{b})=E\chi(\boldsymbol{R}_{a},\boldsymbol{R}_{b})$$
(A.6)

この方程式の固有値が、陽子系のエネルギーを与える。以上の近似を断熱近似、またはボルン-オッペンハイマー近似と呼ぶ。

ここまでの流れを復習しておく。まず、陽子の位置を固定することで電子系の Schrödinger 方程式が得られ、それを解くことで陽子間距離をRとした場合のエネ ルギー固有値W(R)が求められる。したがって、さまざまなRに対してこの方程 式を解けば、W(R)の関数形が求まる。(A.6)式を見れば実はW(R)は陽子の運動 に対するポテンシャルの役割を果たすことになる。陽子はゆっくりと運動するの で、最初に基底状態の電子系があれば、そのままずっと断熱的に基底状態にとど まることになる。励起状態への励起は無視できその意味で断熱である。このこと からW(R)を断熱ポテンシャルとよぶ。

このポテンシャルは陽子間の距離のみに依存しているので、(A.6)式の解は重心運動を表す関数と相対運動を表す関数の積で表せる。そこで陽子系の相対運動を表現するベクトル $R_a - R_b$ をR、重心運動を表現するベクトル $R_a + R_b$ をrとそれぞれ書くことにする。この変換に対するラプラシアンを表現するため、次の計算を行った。

$$\frac{\partial}{\partial x_a} = \frac{\partial(x_a + x_b)}{\partial x_a} \frac{\partial}{\partial(x_a + x_b)} + \frac{\partial(x_a - x_b)}{\partial x_a} \frac{\partial}{\partial(x_a - x_b)}$$
$$= \frac{\partial}{\partial(x_a + x_b)} + \frac{\partial}{\partial(x_a - x_b)}$$
$$\frac{\partial}{\partial x_b} = \frac{\partial(x_a + x_b)}{\partial x_b} \frac{\partial}{\partial(x_a + x_b)} + \frac{\partial(x_a - x_b)}{\partial x_b} \frac{\partial}{\partial(x_a - x_b)}$$
$$= \frac{\partial}{\partial(x_a + x_b)} - \frac{\partial}{\partial(x_a - x_b)}$$
$$\frac{\partial^2}{\partial x_a^2} + \frac{\partial^2}{\partial x_b^2} = 2\left(\frac{\partial^2}{\partial(x_a + x_b)^2} + \frac{\partial^2}{\partial(x_a - x_b)^2}\right)$$

ここで $\mathbf{R}_{a} = (x_{a}, y_{a}, z_{a}), \mathbf{R}_{b} = (x_{b}, y_{b}, z_{b})$ と成分表示した。y, z 成分に関しても上と同様の計算が成り立つ。したがってラプラシアンは次のように変換される

$$\nabla_a^2 + \nabla_b^2 = 2\left(\frac{\partial^2}{\partial (x_a + x_b)^2} + \frac{\partial^2}{\partial (x_a - x_b)^2} + \frac{\partial^2}{\partial (y_a + y_b)^2} + \frac{\partial^2}{\partial (y_a - y_b)^2} + \frac{\partial^2}{\partial (z_a + z_b)^2} + \frac{\partial^2}{\partial (z_a - z_b)^2}\right)$$
$$= 2\nabla_B^2 + 2\nabla_r^2$$

この関係から (A.6) 式を書き直すと

$$\left(-\frac{\hbar^2}{m_p}(\nabla_{\boldsymbol{R}}^2 + \nabla_{\boldsymbol{r}}^2) + W(R)\right)\chi(\boldsymbol{R}, \boldsymbol{r}) = E\chi(\boldsymbol{R}, \boldsymbol{r})$$
$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}(\nabla_{\boldsymbol{R}}^2 + \nabla_{\boldsymbol{r}}^2) + W(R)\right)\chi(\boldsymbol{R}, \boldsymbol{r}) = E\chi(\boldsymbol{R}, \boldsymbol{r}) \quad (\mu \equiv m_p/2) \quad (A.7)$$

ここで R は陽子間距離を表しており、 $R = |\mathbf{R}|$ である。この方程式を変数分離法 によって解くことにする。上式の解を $\chi(\mathbf{R})x(\mathbf{r})$ と仮定し代入すると

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}(\nabla_{\boldsymbol{R}}^2 + \nabla_{\boldsymbol{r}}^2) + W(R)\right)\chi(\boldsymbol{R})x(\boldsymbol{r}) = E\chi(\boldsymbol{R})x(\boldsymbol{r}) \quad (\mu \equiv m_p/2)$$

両辺を $\chi(\mathbf{R})x(\mathbf{r})$ で割ると

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{\chi(\mathbf{R})}\nabla^2_{\mathbf{R}}\chi(\mathbf{R}) - \frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{x(\mathbf{r})}\nabla^2_{\mathbf{r}}x(\mathbf{r}) + W(R) = E$$
$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{\chi(\mathbf{R})}\nabla^2_{\mathbf{R}}\chi(\mathbf{R}) - E + W(R) = \frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{x(\mathbf{r})}\nabla^2_{\mathbf{r}}x(\mathbf{r})$$

左辺は相対運動を表すベクトル R、右辺は重心運動を表すベクトル r の関数にそれぞれなっている。

したがって、上式は定数の値をとる必要がある。ここでは簡単のためその値を0 にとる、すなわち、重心運動量を0と仮定する。すると相対運動に関して次の方 程式が得られる。

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla_R^2 + W(R)\right)\chi = E\chi \tag{A.8}$$

ここからは2原子分子の振動と回転について議論をする。水素分子は2個の陽子 を含み、それぞれの陽子の運動の自由度は3であるから、陽子系全体としての自 由度は6である。陽子系の運動を重心運動と相対運動に分けて考えると、それぞ



れの自由度は3である。(A.8)式は相対運動に関する式なので、3つの自由度があることになる。相対運動の具体的な内容としては、振動と回転が考えられる。図は、重心を座標原点に選び、相対位置ベクトルRの方向を角度 θ, ϕ で示したものである。

陽子系の Schrödinger 方程式 (A.8) のポテンシャル W(R) は球対称なので、水素 原子と同様に解くことができる。よって $\chi(\mathbf{R})$ は極座標表示 $\mathbf{R} = (R, \theta, \phi)$ によっ て次のように表される。

$$\chi = \frac{u(R)}{R} Y_{Km}(\theta, \phi)$$

$$K = 0, 1, 2, \cdots \quad m = K, K - 1, \cdots, -K$$

u(R)は動径方向の関数、 $Y_{Km}(\theta,\phi)$ は球面調和関数である。球面調和関数 Y_{Km} と角運動量演算子 Lとの関係は

$$\hat{L}^2 Y_{Km} = \hbar^2 K (K+1) Y_{Km}$$
$$\hat{L}_z Y_{Km} = m \hbar Y_{Km}$$

である。(A.8)式を解くために、ラプラシアンをRと角運動量演算子 \hat{L} で表すと

$$\nabla_{\boldsymbol{R}}^{2} = \frac{1}{R^{2}} \frac{\partial}{\partial R} \left(R^{2} \frac{\partial}{\partial R} \right) - \frac{1}{\hbar^{2} R^{2}} \hat{\boldsymbol{L}}^{2}$$

となる。この表式を用いれば (A.8) 式は

$$\begin{pmatrix} -\frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{1}{R^2} \frac{\partial}{\partial R} \left(R^2 \frac{\partial}{\partial R} \right) - \frac{1}{\hbar^2 R^2} \hat{L}^2 \right) + W(R) \right) \frac{u(R)}{R} Y_{Km}(\theta, \phi) = E \frac{u(R)}{R} Y_{Km}(\theta, \phi)$$

$$Y_{Km}(\theta, \phi) \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{1}{R^2} \frac{\partial}{\partial R} \left(R^2 \frac{\partial}{\partial R} \right) - \frac{1}{\hbar^2 R^2} \hbar^2 K(K+1) \right) + W(R) \right) \frac{u(R)}{R} = E \frac{u(R)}{R} Y_{Km}(\theta, \phi)$$

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{1}{R^2} \frac{\partial}{\partial R} \left(R^2 \frac{\partial}{\partial R} \right) - \frac{1}{R^2} K(K+1) \right) + W(R) \right) \frac{u(R)}{R} = E \frac{u(R)}{R} Y_{Km}(\theta, \phi)$$

$$(A.9)$$

左辺の計算を進めていくと

$$\begin{split} & \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\left(\frac{1}{R^2}\frac{\partial}{\partial R}\left(R^2\frac{\partial}{\partial R}\right) - \frac{1}{R^2}K(K+1)\right) + W\right)\frac{u(R)}{R} \\ &= -\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{R^2}\frac{\partial}{\partial R}\left(R\frac{\partial u}{\partial R} - u\right) + \frac{u\hbar^2}{2\mu R^3}K(K+1) + \frac{uW}{R} \\ &= -\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{R^2}\left(\frac{\partial u}{\partial R} + R\frac{\partial^2 u}{\partial R^2} - \frac{\partial u}{\partial R}\right) + \frac{u\hbar^2}{2\mu R^3}K(K+1) + \frac{uW}{R} \\ &= -\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{R}\frac{\partial^2 u}{\partial R^2} + \frac{u\hbar^2}{2\mu R^3}K(K+1) + \frac{uW}{R} \end{split}$$

(A.9) 式に戻ると

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{1}{R}\frac{\partial^2 u}{\partial R^2} + \frac{u\hbar^2}{2\mu R^3}K(K+1) + \frac{uW}{R} = E\frac{u}{R}$$
$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{\partial^2 u}{\partial R^2} + \frac{u\hbar^2}{2\mu R^2}K(K+1) + Wu = Eu$$
(A.10)

断熱ポテンシャルW(R)は $R \sim R_0$ において極小値をとるので、 $W(R) = W(R_0) + \frac{1}{2}\mu\omega^2(R-R_0)^2$ と近似できる。さらに、遠心力ポテンシャルに相当する第2項についても、 R^2 を R_0^2 で近似する。そして、2原子分子を剛体と見たときの慣性モーメントIを

$$I = \mu R_0^2$$

このように導入すると(A.10)式は

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{d^2u}{dR^2} + \left(\frac{\hbar^2}{2I}K(K+1) + W(R_0) + \frac{1}{2}\mu\omega^2(R-R_0)^2\right)u = Eu$$
$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{d^2u}{dR^2} + \frac{1}{2}\mu\omega^2(R-R_0)^2u = \left(E - \frac{\hbar^2}{2I}K(K+1) - W(R_0)\right)u$$
$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}\frac{d^2u}{dR^2} + \frac{1}{2}\mu\omega^2(R-R_0)^2u = \epsilon u$$

となる。ただし $\epsilon \equiv E - \frac{\hbar^2}{2I}K(K+1) - W(R_0)$ と定義した。これは調和振動子ポテンシャルにおける Schrödinger 方程式となっているので、エネルギー固有値 ϵ は

$$\epsilon_{\nu} = \left(\nu + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega \quad (\nu = 0, 1, 2, \cdots)$$

70

と書ける。したがって、陽子系の Schrödinger 方程式の固有値 E は

$$E_{\nu K} = \epsilon_{\nu} + \frac{\hbar^2}{2I} K(K+1) + W(R_0) = \left(\nu + \frac{1}{2}\right) \hbar\omega + \frac{\hbar^2}{2I} K(K+1) + W(R_0)$$
(A.11)

と求められる。電子系、陽子系ともに基底状態にある分子のエネルギーは、 $\nu = 0, K = 0$ より

$$W(R_0) + \frac{1}{2}\hbar\omega$$

であり、この逆符号の $-W(R_0) - \frac{1}{2}\hbar\omega$ が分子を無限に離れた 2 つの原子に引き離 すのに必要なエネルギー、つまり解離エネルギーを与える。解離エネルギーは、断 熱ポテンシャルの深さ $W(R_0)$ に比べて、ゼロ点振動のエネルギーだけ小さい。以 上の議論からわかるように、分子のエネルギー E は、電子系のエネルギー $E_{\rm el}$ 、陽 子系の振動エネルギー $E_{\rm vib}$ 、陽子系の回転エネルギー $E_{\rm rot}$ の和である。

$$E = E_{\rm el} + E_{\rm vib} + E_{\rm rot}$$

これらのエネルギーのヒエラルキーは

$$E_{\rm el} \gg E_{\rm vib} \gg E_{\rm rot}$$

となっている。室温において、 E_{el}, E_{vib} はほぼ最低エネルギー状態にあるが、 E_{rot} については、そうはなっていない。例えば水素分子の場合

$$\mu = \frac{m_p}{2} \sim 10^{-27} \text{kg}$$

 $R_0 \sim 10^{-10} \text{m}$

であるから、回転準位を特徴づける周波数 Ω は

$$\frac{\Omega}{2\pi} = \frac{\frac{\hbar}{2I}}{2\pi} = \frac{\frac{\hbar}{2\mu R_0^2}}{2\pi} \sim 1 \text{THz}$$

である。ここから

$$\frac{\hbar\Omega}{k_{\rm B}T} \sim 0.1$$

となり、かなりの数の回転準位が室温で励起されていることが理解できる。この 様子は次図に示した。

分光学の慣習で、振動を特徴づけるパラメータ *v* について上準位はプライムを つけて *v*'、下準位はダブルプライムをつけて *v*'' と表している。



光学遷移の選択則については、Jを回転の量子数、vを振動の量子数とすれば

 $\Delta J = \pm 1$ $\Delta
u = \pm 1$ (同じ電子の断熱ポテンシャル内での遷移)

である。振動準位については、ほとんど基底状態にあるとして、例えば $\nu'' = 0 \rightarrow \nu' = 1$ の光学遷移は、大きく $\Delta J = +1$ のタイプ(R枝)と $\Delta J = -1$ のタイプ(P枝)とに分かれることになる。等核2原子分子ではないが、例えばCO分子の場合、R枝とP枝は、下図のようにきれいに左右にわかれて発生する。



残念ながらヨウ素の場合は複雑で、励起状態の断熱ポテンシャルが大きく変わ り、かつポテンシャルの非調和性が顕著にあらわれ、さらに原子が重いこともあ り、R枝、P枝は複雑に絡み合ってあらわれる。一方で振動の量子数に関する選択 則は、遷移の前後で同じ電子の断熱ポテンシャルの中にいる場合、 $\Delta \nu = \pm 1$ とな る。しかしそうでない場合にはこのような単純な選択則とはならず、遷移の前後で それぞれの振動状態の波動関数がどの程度重なっているかを表す Franck-Condon 因子という値が0 でないときのみ遷移が許される。

振動回転準位の同定

この節では、本研究で絶対周波数の基準として利用した遷移がヨウ素分子のどの振動回転準位なのかを調べる。その方法は参考文献 [14] による。この実験で使用した遷移のエネルギーを波数に換算すると 19710.376 cm⁻¹ であり、これはヨウ素分子の遷移のうち $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow B^3\Pi_{0u}^+$ に対応することが分かっている。次節では本研究で絶対周波数の基準として利用した遷移について、ヨウ素分子の超微細構造の量子数を決定する。

ヨウ素分子の基底状態と励起状態 ('で表す)、基底状態 ("で表す)のエネルギーはそれぞれ次のように書ける。

$$E(\nu', J) = E_{\nu'}(0) + B_{\nu'}K - D_{\nu'}K^2 + H_{\nu'}K^3 + L_{\nu'}K^4 + M_{\nu'}K^5$$
$$E(\nu'', J) = E_{\nu''}(0) + B_{\nu''}K - D_{\nu''}K^2 + H_{\nu''}K^3$$

ここで K = J(J + 1) と表される。K の 2 次以降の項は、遠心力によって結合が のびることによる補正項である。これらの係数として参考文献 [14] の値を利用し、 上の 2 式の差をとることで P 枝と R 枝の遷移のエネルギーをそれぞれ計算した。 それらの結果をまとめて一つのグラフにしたのが図 A.1 である。



図 A.1: 計算した各遷移のエネルギー

波長計で読み取った値から、光源の波数は 19710.376cm^{-1} であった。ここでは、 波数で求められた遷移のエネルギー ΔE からこの値を引いてグラフにプロットした。縦軸が0の付近のみを取り出したのが次の図 A.2 である。



図 A.2: 縦軸が0の部分を拡大した図

この図から P(40)52-0 の遷移のエネルギーが実測されたエネルギーと最も近い ことが読み取れる。よって、実験で使用していた遷移は P(40)52-0 である可能性が 高い。P(40)52-0 の記号の意味は、左から、P が P 枝を、40 が基底状態の回転の量 子数、52 が励起状態の振動の量子数、0 が基底状態の振動の量子数を表している。 ただし、2番目に近いR(57)-73-1の遷移が実験で使用していた遷移である可能 性も存在する。どちらであるかを確かめるために、それぞれの遷移の超微細構造 についての計算を行う。

超微細構造の量子数の同定

ヨウ素の超微細構造は分子の角運動量 J と、全核スピン運動量の I のカップリ ングによって、エネルギー準位に分裂が起こることによって生じる。実験で用い たヨウ素分子 ¹²⁷ I_2 の全核スピン運動量は I = 0, 1, 2, 3, 4, 5 となる。全角運動量 Fは F = I + J で定義され、J > I のとき、角運動量代数の一般論から F

$$F = |J - I|, |J - I + 1|, \cdots, |J + I - 1|, |J + I|$$

という 2*I* + 1 個の状態をとる。JとIには次のような偶奇関係があることが知られている [15]。

電子状態	I:奇数	I:偶数	
$B^3\Pi^+_{0u}$	J:偶数	J:奇数	
$X^1 \Sigma_g^+$	J:奇数	J:偶数	

遷移の前後で核スピンは変化しない $(\Delta I = 0)$ とする。

遷移に関する選択則については、 $J \gg 1$ ならば、 $\Delta F = \Delta J$ の遷移のみを考えるので十分である。したがって、遷移の起こる基底状態の準位と励起状態の準位の組み合わせは1対1に対応する。また、原子の飽和吸収分光において、原子の速度が0でないときにもクロスオーバーと呼ばれるディップが観察されるが、ヨウ素分子については $J \gg 1$ ならばクロスオーバーも観察できない。

今、*J*["]が偶数である場合の超微細分裂による準位の個数を調べる。*I*,*J*の偶奇 性と、選択則から

Ι	許される F の値	対応する準位の個数 (2I+1)
0	J	1
2	$J-2,\cdots,J+2$	5
4	$J-4,\cdots,J+4$	9

J''が偶数の場合、1 + 5 + 9 = 15 個の準位に分裂し、電子の基底状態の準位と電子の励起状態の準位は1対1に対応することから、飽和吸収ディップも15 個観察される。

J"が偶数の場合も同様に、準位の個数を調べる。I,Jの偶奇性と、選択則から

Ι	許される F の値	対応する準位の個数 $(2I+1)$
1	J - 1, J, J + 1	3
3	$J-3,\cdots,J+3$	7
5	$J-5,\cdots,J+5$	11

この表から J'' が奇数の場合、準位の個数は3 + 7 + 11 = 21 個である。したがって、21 個の飽和吸収ディップが観察される。

本研究で使用した遷移の周囲のディップを飽和吸収分光により観察した結果が次の図 A.3 である。



図 A.3: 飽和吸収分光で観察されたディップ

飽和吸収分光の測定結果に存在している線形吸収のオフセットを取り除く処理 を行い、このグラフを得た。この測定結果に含まれるディップの個数を数えると 15 個であった。実験でゼロクロス温度を探す際の周波数基準に用いたのは、この 図における 10 番目のディップである。前節で遷移の候補として最有力としていた P(40)52-0は、基底状態の回転の量子数 J'' が J'' = 40 である。これは偶数で、この 節において、そのディップの数は 15 個であることが計算によって求められた。し たがって、上の測定結果に存在するディップの個数が 15 個であることと、観察さ れた遷移が P(40)52-0 であるということは矛盾しない。一方、前節で2 番目に可能 性のある遷移の候補とした R(57)73-1の遷移は、基底状態の回転の量子数が奇数 であり、これが観察された遷移と同じ出るとすると、図 A.3 と矛盾する。

P(40)52-0 であることをさらに確認するため、超微細構造の準位の理論式によって、 上の測定結果の各ディップに対応する周波数が得られるかを調べる。超微細構造の ハミルトニアン H_{hfs} は次のようになる [15]。

$$H_{\rm hfs} = H_{\rm EQ} + H_{\rm SR} + H_{\rm SSS} + H_{\rm TSS}$$

右辺の左の項から順に電子四重極子相互作用、スピン-回転相互作用、スカラース ピン-スピン相互作用、テンソルスピン-スピン相互作用を表している。各相互作用 の表式をここで示すことはしないが、その式にはヨウ素分子のどの準位であるか に依存した相互作用の大きさを表す係数が含まれている。したがって、ある準位 の超微細構造は、4 つの係数によって特徴づけることができる。このハミルトニア ンの固有値が超微細分裂の大きさを与える。実験結果からこの係数を求めるには 次のようにする。基底状態のこの係数は分かっているので、励起状態のこの4 つの 係数をある値に仮定し、超微細構造の大きさを計算する。これを実験で測定した ディップの間の周波数差と比較し、先ほど仮定したパラメータを実験結果と計算結 果が一致するように修正する。この比較と修正のプロセスを繰り返すことで、励 起状態の相互作用の大きさを特徴づける 4 つの係数の値と、隣合うディップ間の周 波数の値の理論的な予測値を得る。以下で示す結果はすべて 5 回の繰り返しによ り、Picard の論文 [15] のプログラムを用いて計算したものである。本研究で利用 していた遷移が P(40)52-0 であると仮定し、この計算を行った結果を示したのが次 の表である。

番号	F	Ι	J	観察された周波数 (MHz)	計算された周波数 (MHz)	周波数差
1	39	2	39	0	0	0
2	35	4	39	209	207.669585	1.330415
3	38	2	39	273	272.80757	0.19243
4	40	2	39	291	290.480549	0.519451
5	43	4	39	351.23	351.970056	-0.740056
6	36	4	39	354.65	356.481356	-1.831356
7	37	4	39	387	387.241992	-0.241992
8	41	4	39	456	455.359706	0.640294
9	42	4	39	486	485.477722	0.522278
10	39	4	39	563	563.146654	-0.146654
11	37	2	39	664	663.705764	0.294236
12	38	4	39	679	678.651094	0.348906
13	40	4	39	729	728.869541	0.130459
14	41	2	39	747	747.041096	-0.041096
15	39	0	39	846	846.510553	-0.510553

このように実験結果と計算結果が 2MHz 以下の範囲内で一致した。各ディップの 測定結果と理論結果の差の標準偏差は 0.69MHz であった。前節の結果において P 枝の遷移のうち 2 番目の候補は P(52)53-0 であった。この遷移を仮定した場合も同 様の計算をおこなった。すると各ディップの測定結果と理論結果の差の標準偏差は 1.6MHz であり、P(40)52-0 程は計算と実験の一致を見なかった。以上から、本研 究で利用した遷移は P(40)52-0 であると考えられる。

77

関連図書

- David Deutsch and Richard Jozsa. Rapid Solution of Problems by Quantum Computation. Proc. R. Soc. Lond. A,439,553-558,1992.
- [2] Peter W. Shor. Algorithms for Quantum Computation: Discrete Logarithms and Factoring. Foundations of Computer Science, 1994 Proceedings., 35th Annual Symposium on.
- [3] V. Bouchiat, D. Vion, P. Joyez, D. Esteve and M. H. Devoret. Quantum coherence with a single Cooper pair. Physica Scripta T76,165-170,1998.
- [4] J. E. Mooij, T. P. Orlando, L. Levitov, Lin Tian, Caspar H. van der Wal, Seth Lloyd. Josephson Persistent-Current Qubit. Science 285,1036,1999.
- [5] D.G. Cory, A.F. Fahmy, T.F. Havel. Ensemble quantum computing by NMR Spectroscopy. Proc. Natl. Acad. Sci 94,1634-1639,1997.
- [6] D. Loss and D. P. DiVincenzo, Quantum computation with quantum dots. Phys. Rev. A 57,120,1998.
- [7] B. E. Kane. A silicon-based nuclear spin quantum computer. Nature 393, 133-137, 1998.
- [8] 中本顕正. 超狭線幅光学遷移を用いた Yb 同位体混合ガスの選択的蒸発冷却. 東京工業大学大学院理工学研究科物性物理学専攻 修士論文,2013.
- [9] A. Yamaguchi, S. Uetake, Y. Takahashi . A diode laser system for spectroscopy of the ultranarrow transition in ytterbium atoms. Applied Physics B,91,pp57-60,2008.
- [10] 野口篤史. 中性 Yb 原子を用いた Cavity QED. 東京工業大学大学院理工学 研究科物性物理学専攻 修士論文,2011.
- [11] 初田泰之. 高レベルスクイーズド光生成の研究. 東京大学工学部物理工学科 卒業論文,2004.

- [12] Corning Incorporated, ULER Corning Code 7972 Ultra Low Expansion Glass (http://www.corning.com/docs/specialtymaterials/pisheets/ulebro91106.pdf)
- [13] M Gläser. An Improved He-Ne Laser at $\lambda = 612$ nm, Stabilized by Means of an External Absorption Cell. Metrologia 23,45,1986.
- [14] S.Gerstenkorn and P.Luc . Description of the absorption spectrum of iodine recorded by means of Fourier Transform Spectroscopy : the (B-X) system, J.Physique 46,867-881,1985.
- [15] Susanne Fredin-Picard . On the Hyperfine Structure of Iodine : 1. How to Calculate Hyperfine Transition Energies . Rapport BIPM-90/5 .
- [16] H. J. Kimble, L. Mandel. Resonance fluorescence with excitation of finite bandwidth. Phys. Rev. A 15, 689, 1997.
- [17] Martin Santiago Miranda. All-optical method to create a two-dimensional condensate of Yb atoms under the surface of a solid immersion lens. 東京 工業大学大学院理工学研究科物性物理学専攻 修士論文,2013.

謝辞

本卒業論文は、私が上妻研に所属してから1年間の研究成果をまとめたもので す。本研究を行っていく過程で、多くの方々の手助けをいただきました。皆様の おかげでこの卒業論文を書き上げることができました。

指導教官である上妻幹旺教授には、この1年様々な面でお世話になりました。本 研究に関するところでいうと、なかなか資料の集まらない分子分光に関する理論 的背景について基礎知識の不足している私にもわかりやすく教えていただきまし た。また、自分が勉強していく中で生じた疑問にも、私が理解できるまで根気よ く説明してくださいました。大変感謝しています。

井上遼太郎助教は、私が研究や勉強で困っていると常に的確な指導や助言をし てくださいました。本研究においては、ヨウ素分子の帰属付けに関する論文を探 していただき、さらに帰属付けの計算の仕方までご指導いただきました。それだ けでなく、今年研究室に所属したばかりで電子回路に関する知識などがほとんど なかった私に、実験で必要となる知識を一から説明してくださいました。井上助 教の手助けがなければ本研究は成り立たなかったと思います。

博士課程の Martin Miranda さんには、光学部品の扱い方や共振器の組み方など を指導していただきました。エラー信号にロックするのではなく、フィッティング によって共振周波数を求めるという素晴らしいアイデアを教えていただき感謝い たします。この方法によって測定誤差を非常に小さくすることができました。

修士2年の奥山勇貴さんと修士1年の細谷俊之さんにも大変お世話になりました。奥山さんとは一緒に実験する機会があまりありませんでしたが、研究生活に 関する助言をいただいたりしました。また、本論文を書く際の図の書き方などを 教えていただきました。細谷さんには機械工作に関する知識を多く指導していた だきました。また、自身が就職活動で忙しい中でも私や西田君の卒業論文の進捗 状況を気にかけて声をかけてくださいました。

同期の西田君には、この1年の研究生活を通して、きっちりと物事を進めてい く人であるという印象を受けました。発表の準備などを早い段階で始め、計画的 に進めていく姿は私も見習っていきたいと思いました。修士課程でもよろしくお 願いします。 本研究の過程では、このように多くの方々からのご指導、ご助言を頂きました。 改めて感謝いたします。最後に1年間の研究生活の間、経済的支援と精神的支援 をしてくれた家族に感謝します。

82