

3-5 薄いセシウムセルを用いたコンパクトクロック

3-5 Compact Clocks Using a Thin Cesium Cell

福田京也 木下 基 長谷川敦司 立川真樹 細川瑞彦

FUKUDA Kyoya, KINOSHITA Moto, HASEGAWA Atsushi,

TACHIKAWA Maki, and HOSOKAWA Mizuhiko

要旨

我々はコンパクト周波数標準器開発の最初のステップとして、薄いガラスセルに封入されたセシウム (Cs) 原子の EIT (Electromagnetically induced transparency) スペクトルのセル形状効果について調べた。セルの厚さが 1 mm 以下で照射レーザー光強度が十分弱いとき、速度の遅い原子のみが暗状態に落ち込むのに十分な時間を持ち EIT 信号に寄与するため、セル壁面間のトランジット時間広がりが大きく低減される。EIT スペクトルの観測は、薄いガラスセルでは壁と原子の衝突による速度選択性を持つことを明らかにする。

We study the effect of cell geometry on the electromagnetically induced transparency (EIT) spectrum using a thin Cs vapor cell as a first step for developing a compact frequency standard. When the cell thickness is less than 1 mm and the coupling radiation is sufficiently weak, the wall-to-wall transit time broadening is largely suppressed because only slow atoms have enough time to settle down on the dark state and contribute to the EIT signals. The observation of EIT spectrum reveals that a thin cell has the velocity selectivity caused by wall collisions.

【キーワード】

電磁波誘起透明化現象, 周波数基準, 薄いガラスセル, 速度選択性

Electromagnetically induced transparency, Frequency reference, Thin cell, Velocity selectivity

1 はじめに

近年、薄いガラスセルを用いたレーザー分光は、シンプルかつ非常に高い分解能を実現できることから、小型の周波数標準への応用技術として、注目を集めている[1]–[4]。特に Cs 原子は、1967 年の国際度量衡総会 (CGPM; General Conference on Weights and Measures) において「秒は Cs133 原子の基底準位の二つの超微細準位のあいだの遷移に対応する放射の 9,192,631,770 周期の継続時間である」と秒の定義にも使われていることから、薄いセル中の Cs 原子のスペクトル観測は小型原子時計への応用を考えた上でも極めて重要である。実際に、Coherent Population Trapping (CPT) や Electromagnetically induced

transparency (EIT) 現象などの量子干渉効果を利用した小型原子時計 (CPT clock) の研究が現在精力的に行われている[5][6]。薄いセルにおいては、セル壁面と垂直方向の小さい速度成分を持った原子のみがレーザー光とのコヒーレント相互作用に対し十分な時間を持つ。セルの形状によるそのような速度選択性は EIT 現象によって生じる鋭い 3 準位 Λ 型共鳴にも影響を与える。

周波数標準や周波数安定化を念頭に入れた研究において、分解能つまりスペクトルの線幅に関する研究は欠かすことのできないものである。そこで我々はコンパクトな周波数標準器開発に対する最初のステップとして、Cs 蒸気が封入された薄いガラスセルを使って EIT スペクトルのセル形状依存性を調べた。セルの厚さやレーザ

一光強度等の実験条件は実験系の規模を計る重要なパラメーターであり、将来小型原子時計への応用を考慮すると、本実験は非常に重要な意味を持つものと考えられる。我々は基底状態 ($F=3, m_F=0$) と ($F=4, m_F=0$) のCPTに対応するEIT信号を観測した。その信号線幅はレーザー光強度とセル厚さの関数として測定された。我々の実験はCs蒸気に満たされた0.3 mm、1 mm及び40 mmの厚さのガラスセルで行われた。セルの厚さが1 mm以下でレーザー光強度が十分弱いとき、セル壁面間のトランジット時間広がりが大きく低減された。

2 薄いセルによる幾何学的効果について

CPT及びEIT現象のメカニズムについては、様々な文献に紹介されているため、ここでは割愛する[7]。薄いセル中の原子のEIT信号に関して、その透過光スペクトル線幅は、エネルギーと時間との不確定性原理 $\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar$ (ΔE と Δt はエネルギーと時間の不確定さ)において $\Delta E = 2\pi \hbar \cdot \Delta \nu$ ($\Delta \nu$ は線幅)とすれば、

$$\Delta \nu \geq \frac{1}{2\pi \cdot \Delta t} \quad (1)$$

となり、時間の不確定さの逆数程度であることが分かる。ここで時間の不確定さとは、原子とレーザー光とがコヒーレント相互作用をしている時間である。図1に示すように、セルの壁面と垂直方向に速度成分 v_z を持つ原子とセル壁面と平行方向に速度成分 v_x を持つ原子を考える。もし、セルの厚さ L とレーザーの径 D が有限であるならば、コヒーレント相互作用の時間は、原子がセル壁面との衝突によって緩和するまで

の時間 $\frac{L}{|v_z|}$ とレーザー光の径から飛び出すまでの時間 $\frac{D}{|v_x|}$ によって決まる。ただし、セル内の原子

数密度はごく小さいものとし、原子同士の衝突は無視できるものとする。EIT信号の線幅は原子とレーザーとのコヒーレント相互作用の継続時間の逆数程度であるから、セルが厚く、レーザ

ーの径が広がるほど線幅は狭くなることが分かる。

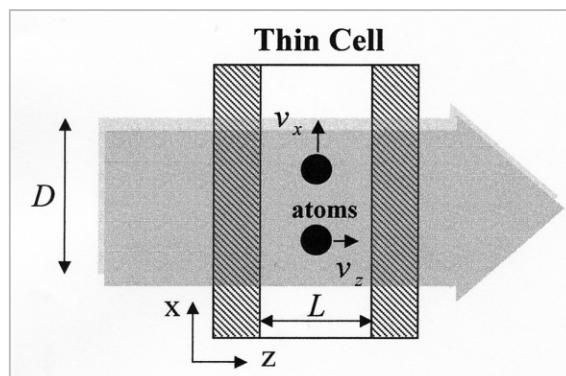


図1 薄いセル中の原子

3 実験

図2にEITスペクトルを観測するための実験配置を、図3にCs原子のエネルギー準位を示す。我々はガラス厚さ3mm、直径3.4cmの円筒パイレックスガラスで作られたCs蒸気セルを用意した。Cs原子の原子数密度は室温で 3×10^{10} 個/cm³ 程度である。原子の速度が変化するような原子同士の衝突に対する平均自由行程は約1.4 mである。外部共振器型半導体レーザーはCs原子のD₂線のS_{1/2} ($F=4$) → P_{3/2} ($F'=4$) 遷移に同調されている。出力光は9.19GHzの電気光学変調器(EOM)に通される。この透過光のスペクトルの上側サイドバンドはF=3状態に対するプローブ光として用いられる。キャリアとサイドバンドスペクトルとの間の周波数間隔は安定なマイクロ波シンセサイザによって与えられる。このマイクロ波周波数が基底状態の超微細構造間隔に正確に一致したときに、ほぼローレンツ型の吸収プロファイルが透過光強度変化として観測される。スペクトルはシンセサイザの周波数の関数として透過光強度を観測することによって記録される。レーザー光は直径約14mmで、平均速度で飛行している原子に対して約2.4kHzのトランジット時間広がりを与える。上側サイドバンドには元のレーザー強度の約15%が含まれており、約70%がキャリアスペクトルに残っている。EIT信号を得るために、レーザー光はセルを透過後、高感度Si-pinフォトダイオードに集光されて

いる。レーザー光の強度はシンセサイザによって振幅変調され、変調周波数は50-300kHzの範囲である。フォトダイオードからの出力信号はこの変調周波数によって同期検波される。

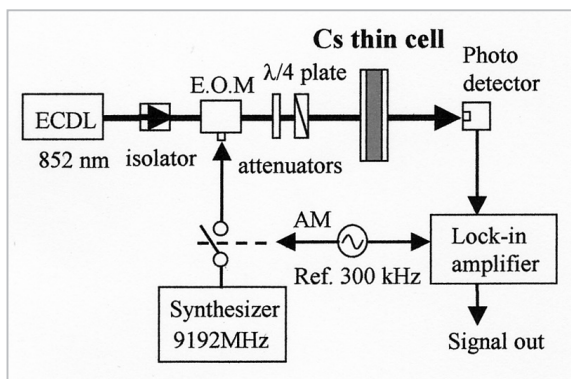


図2 実験概略図

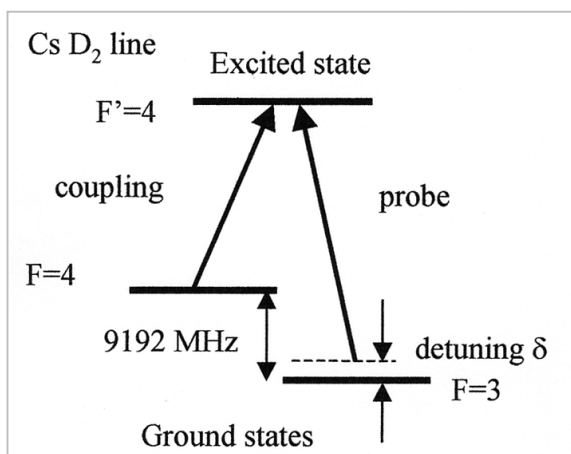


図3 Cs原子のエネルギー準位図

4 実験結果

上記の手順により、実際に観測されたEIT信号の典型的な結果を図4に示す。縦軸は透過光強度でそのスケールは任意目盛(a.u.; arbitrary units)でとってある。また、横軸はProbe光のdetuningで、単位はMHzである。Probe光のdetuningが0の付近で信号強度が増加していることが分かる。つまり、この領域ではレーザーの透過光強度が増加していることになり、これはEITにはかならない。

4.1 EITスペクトルのZeeman分裂

我々のガラスセルは一重の円筒磁気シールド

内に置かれる。このシールドにより残留磁場を $1\mu\text{T}$ 以下に減少させることができる。地磁気等の残留磁場の影響により完全には0ではないため、Zeeman効果によりわずかに縮退が解け、異なった起因条件を持つEITスペクトルが少しずつ周波数シフトして重なってしまう。このため、図4(a)に示したスペクトルの線幅を測定しても、正確な値は求められない。そこで我々は、セルをソレノイドコイルで囲い、磁場をかけることで、Zeeman効果による磁気副準位の分裂から生じた七つに分かれたスペクトルを観測した。ここで、 Λ 型遷移に寄与する $6S_{1/2}$ ($F=3$) 及び $6S_{1/2}$ ($F=4$)

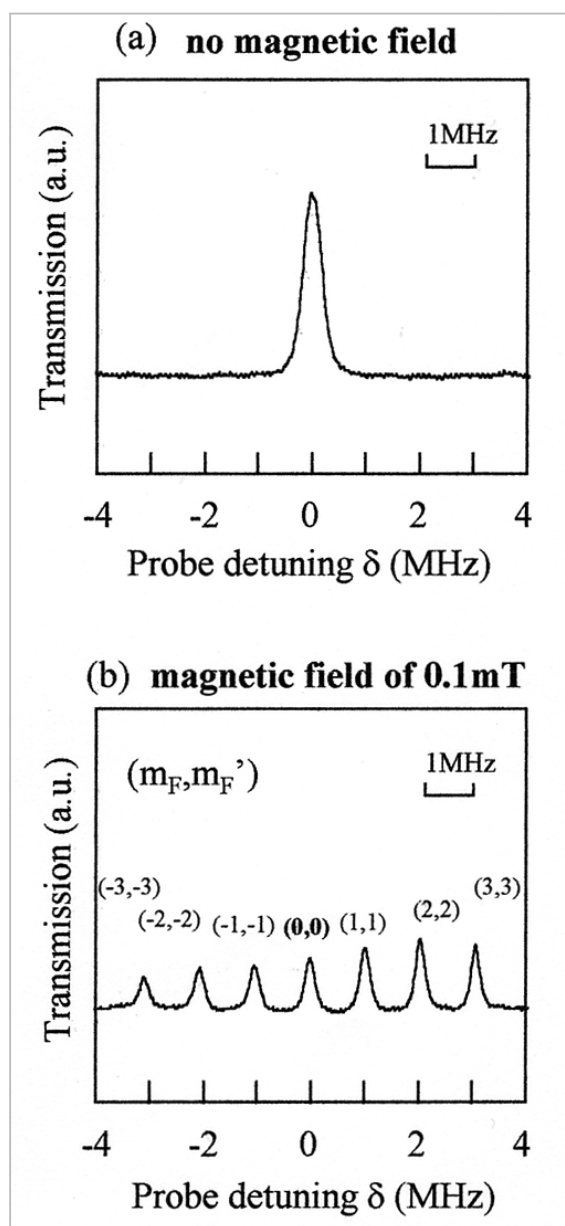


図4 Cs原子のEIT信号

状態の m_F にちなみ、七つのスペクトルを左からそれぞれ $(-3,3)$ 、 $(-2,2)$ 、 $\dots$ 、 $(3,3)$ と名付けることにする。磁場はレーザー照射軸と平行に、レーザーが $\Delta m_F = +1$ の遷移のみを許す σ^+ の円偏光

となるように印加され、その大きさは 0.1mT である。その七つに分裂したスペクトルを図4(b)に示す。我々は二つの基底状態 ($F=3, m_F=0$) と ($F=4, m_F=0$) の間のコヒーレンスに相当する中心の信号ピーク $(0,0)$ の線幅についてのみ考える。

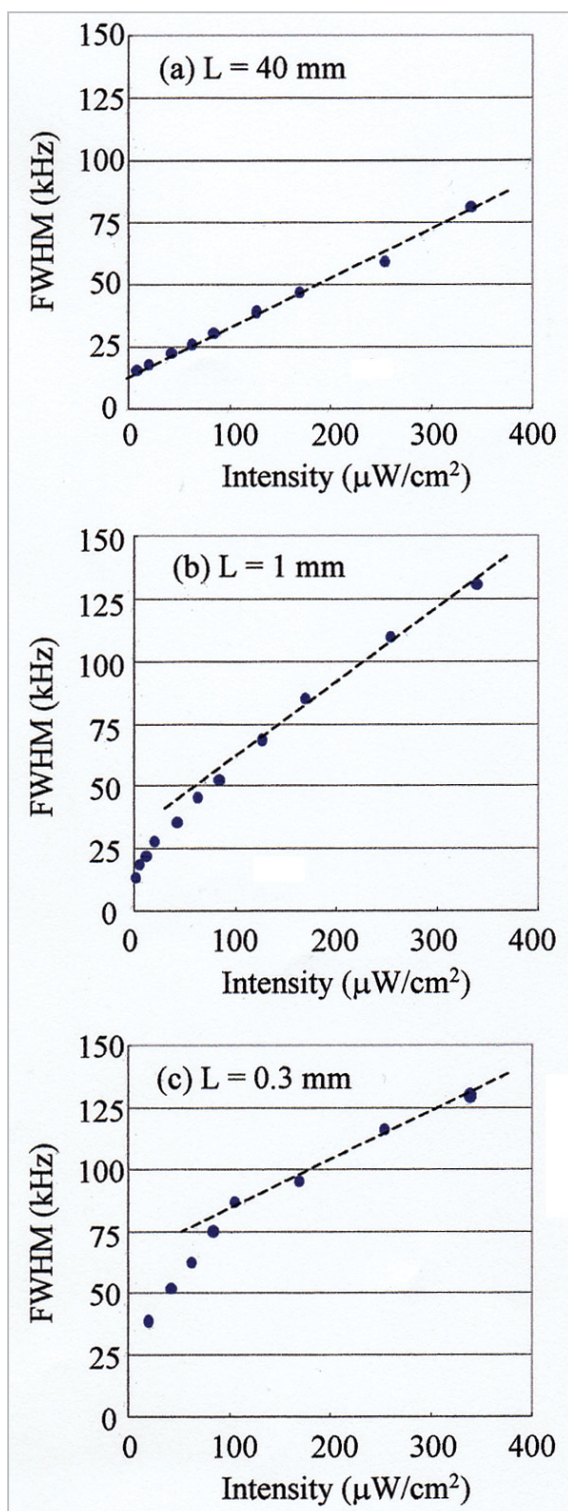


図5 観測されたEITスペクトル線幅のレーザー光強度依存性

4.2 EITスペクトル線幅のレーザー光強度依存性

EITスペクトルの幅を決める大きな要因としては、セル壁面と原子による幾何学的効果とレーザー光の強度である。三つの異なる厚さ (40 mm 、 1 mm 、 0.3 mm) のガラスセルを用いた時のEIT信号線幅のレーザー光強度依存性を図5に示す。セルの厚さが 40 mm のとき、EIT線幅はレーザー光強度に対し線形に増加している。厚さが 1 mm 及び 0.3 mm の場合でも、比較的レーザー光強度が強い領域では、線幅はレーザー光強度に対し線形な傾向を示している。しかしながらレーザー光強度が弱い領域では明らかに異なる傾向を示している。特に厚さ 0.3 mm の場合、その傾向はより顕著である。

5 考察

5.1 rate方程式による $|NC\rangle$ の速度分布の解析

2準位原子における吸収スペクトルを考えた場合、そのスペクトル線幅は照射するレーザー光の強度が強いほど広くなる。これはRabi周波数がレーザー光強度の平方根に比例して大きくなり、その結果準位間の遷移時間、つまり原子とレーザーとの相互作用の継続時間は短くなるためである。また、レーザー光強度が弱いならば線幅は近似的に線形に増加する。これを power broadening 効果という。

本実験においては、3準位系を扱い、二つのレーザー光の照射によって生じた量子干渉効果による透過光スペクトルを考慮するため、上述のような考察をそのまま適用するわけにはいかない。しかしながら、Arimondoは文献[6]において、レーザー光強度が弱い領域 (飽和光強度の10分の1以下の範囲) では、EIT信号の線幅はレーザー光強度の増加に対して線形に増加することを示した。彼は density matrix 解析から得られた Saturation broadening law によってこの現象を説

明している。我々が信号観測に用いたレーザー光の強度の範囲も飽和光強度の10分の1以下であることから、本実験結果にこの Saturation broadening law が適用できると考えられる。したがって、我々の実験結果においてレーザー光強度の増加に対し線幅が線形増加する現象は、Saturation broadening 効果によるものである。実験結果において、薄いセル中の原子に対し観測されたスペクトル線幅は、Saturation broadening 効果やトランジット時間広がりから予測される値よりも狭いことが分かる。以下にこの結果について考察する。

EIT スペクトルの線幅は、レーザー光強度を考慮しなければ、原子とレーザー光との相互作用時間の逆数程度となるということは前述のとおりである。その相互作用時間とは主に原子がセル壁面間を移動するのにかかる時間もしくはレーザー光の径を通過するのにかかる時間であるから、それらは当然原子の速度に依存することになる。つまり、速度の遅い原子はレーザー光との相互作用時間が長いため、その原子による EIT スペクトルの線幅は狭くなる。逆に、速度の速い原子はレーザー光との相互作用時間が短く、その原子による EIT スペクトルの線幅は広くなる。したがって、もし速度の遅い原子が多く EIT 信号に寄与するならば、その線幅は power broadening やセルの厚さから期待される値より狭くなるはずである。我々は、レーザー光強度が十分弱い場合、薄いセル中ではこのような現象が起きているのではないかと考え、EIT 信号に寄与する原子の速度分布を、簡単な rate 方程式モデルを用いて求めた。以下にそのモデル (図6) と rate 方程式を示す。

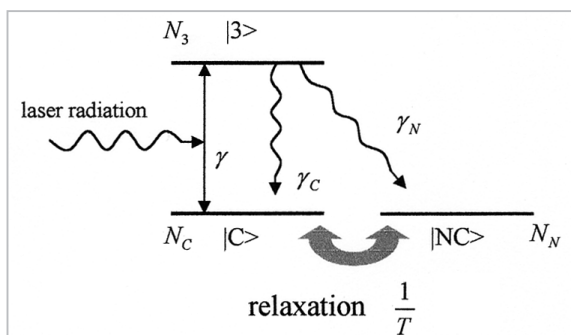


図6 レート方程式モデル

上のようなモデルを考えると、rate 方程式は、

$$\begin{aligned}\frac{dN_C(v_z)}{dt} &= -\gamma(N_C(v_z) - N_3(v_z)) + \gamma_C N_3(v_z) - \frac{N_C(v_z) - N_C^*(v_z)}{T} \\ \frac{dN_N(v_z)}{dt} &= \gamma_N N_3(v_z) - \frac{N_N(v_z) - N_N^*(v_z)}{T} \\ \frac{dN_3(v_z)}{dt} &= \gamma(N_C(v_z) - N_3(v_z)) - (\gamma_C + \gamma_N) N_3(v_z)\end{aligned}\quad (2)$$

と書ける。この式中には、 $|C\rangle$ と $|3\rangle$ の間の光ポンピングレート γ 、 $|3\rangle$ から $|C\rangle$ 及び $|NC\rangle$ への自然放出による緩和レート γ_C 並びに γ_N 、さらに $|C\rangle$ と $|NC\rangle$ の間の緩和効果

$$\frac{1}{T} = \frac{v_x}{D} + \frac{|v_z|}{L}\quad (3)$$

が組み込まれている。式 (3) の第一項目は原子がレーザー光の径から飛び出すために起きる緩和効果で、 v_x は原子の持つ速度のセル壁面と平行成分の最確値、 D はレーザー光の直径である。また、第二項目は原子とセル壁面との衝突による緩和効果で、 $|v_z|$ は原子の持つ速度のセル壁面と垂直成分の絶対値、 L はセル壁面間の距離 (セルの厚さ) である。

光ポンピングレート γ は、

$$\gamma = \frac{\Omega_P^2 \gamma_C + \Omega_N^2 \gamma_N}{\Gamma^2}\quad (4)$$

で表され、ここで Ω_P 、 Ω_C はプローブ光及びカップリング光のラビ周波数、 Γ は励起状態の自然放出レートである。 $N_C(v_z)$ 、 $N_N(v_z)$ 、 $N_3(v_z)$ は $|C\rangle$ 、 $|NC\rangle$ 、 $|3\rangle$ のセル壁面と垂直成分の速度 v_z を持つ原子数、つまり速度分布である。 $N_C^*(v_z)$ 、 $N_N^*(v_z)$ は熱平衡状態での各状態におけるセル壁面と垂直成分の速度分布である。 $N_C(v_z)$ 、 $N_N(v_z)$ 、 $N_3(v_z)$ 以外の各値は、レーザー光強度やセルの厚さ、室温などを与えれば概算することができる。ここで、式 (2) の左辺 ($N_C(v_z)$ 、 $N_N(v_z)$ 、 $N_3(v_z)$ の時間的変化) をすべて 0 と置くことで、定常状態での解が得られる。ここでは原子 1 個の振る舞いを考えるのではなく、原子集団の振る舞いを考え、さらにレーザーは連続発振していることを考慮すると、このようなモデル解析は実験結果に対して良い近似を与えるものと考えられる。図7にEITに寄与する原子の速度分布 $N_N(v_z)$

を示す。ここではレーザー光強度が弱い領域での分布を、セルの厚さ別に図示する。この図から、40mmのセルではほぼMaxwell-Boltzmannの速度分布のような形をしているが、他のセルでは、セルが薄くなるほど、遅い原子の割合が多くなり、先の尖った非Maxwell-Boltzmann分布となっていることが分かる。

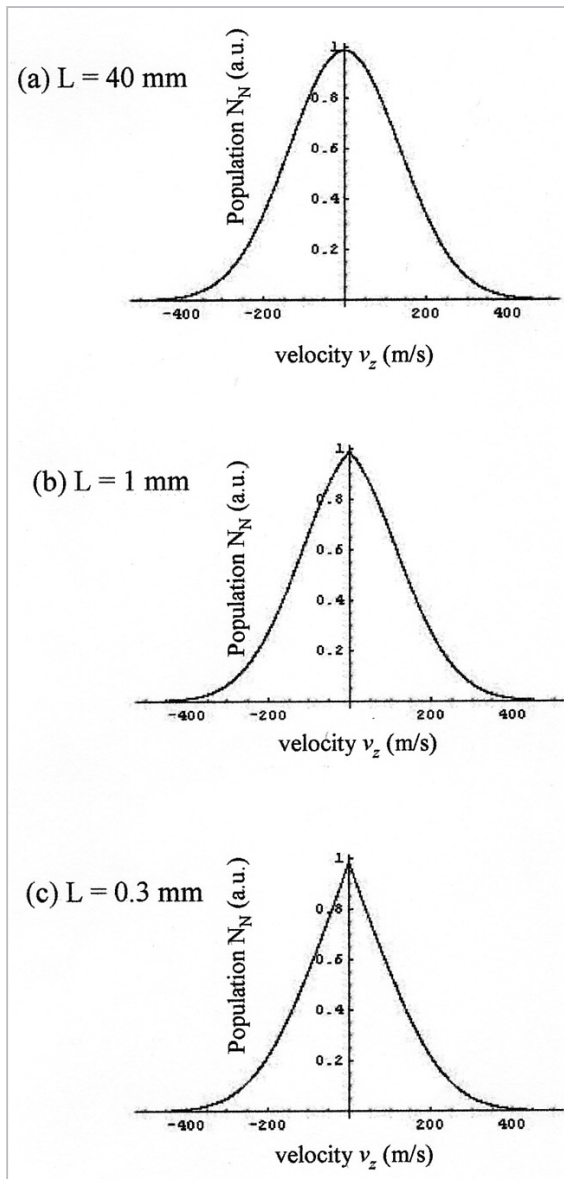


図7 |NC>状態の原子の速度分布

これは次のように考えられる。原子がレーザーを照射されてから、|NC>へ落ち込むまでには有限の時間を必要とする、|NC>への遷移過程のなかには光による遷移も含まれているため、当然それにかかる時間はレーザー光が強ければ短く、弱ければ長くなるはずである。今、レー

ザー光強度が弱い領域を考えているので後者側を採用する。すると、薄いセル中において速度の速い原子はセル壁面と衝突するまでの時間が短く、ある程度レーザー光強度が弱い領域では|NC>に落ち込むよりも早く位相緩和してしまい、|NC>へ遷移することができないのではないかと考えることができる。つまり、薄いセル中では速度の遅い原子だけが十分な光との相互作用時間を持ち、|NC>へ遷移し、EIT信号に寄与することになる。そのために、図7に示したような結果になったと理解される。

5.2 EITスペクトル線幅の解析

ここでは、先ほど求めた|NC>の速度分布からEITスペクトルを計算する。透過光強度 α は、 $N_N(v_z)$ に $f(\delta)$ という重みをかけてすべての速度について積分することで、

$$\alpha \propto \int_{-\infty}^{\infty} f(\delta) N_N(v_z) dv_z \quad (5)$$

と書くことができると仮定する。ここで、 $f(\delta)$ とは、

$$f(\delta) = \frac{1/T + \beta I}{\delta^2 + (1/T + \beta I)^2} \quad (6)$$

であり、Lorentz型をしたdetuning δ の関数である。これは原子1個によるEITスペクトルであると仮定している。また、 I はレーザー光の強度である。さらに β はpower broadening効果を考慮したもので、power broadening係数と名付けた。rate方程式の解析からはこの値を算出することはできないため、実験的な結果を導入する。図5の(a) $L=40\text{mm}$ の線幅のレーザー光強度に対する変化を直線とみなし、その傾きを β とした。式(6)を式(5)に代入し、積分することで、 α がdetuning δ の関数として求められる。その結果の、レーザー光強度が弱い領域での典型例を図8に示す。

この図から、40mmと0.3mmのセルではそれによるEITスペクトルの形が異なっていることが分かる。40mmのものに比べ、0.3mmのものは先が尖っているように見える。スペクトルがこのような形をするならば、その線幅は、power broadeningやセルの厚さから期待される値よりも狭くなることは十分考えられる。こうして得

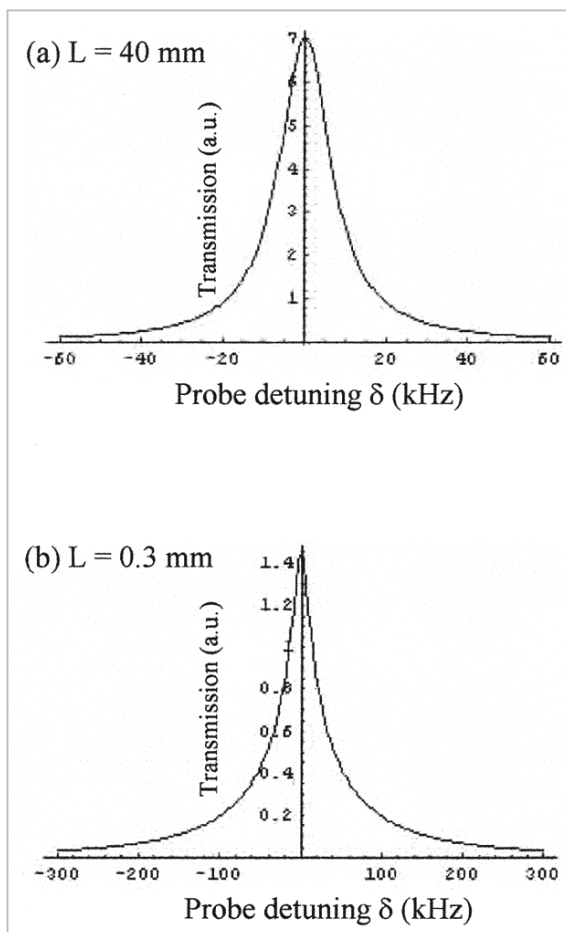


図8 計算されたEITスペクトル

られたEITスペクトルの半値全幅のレーザー光強度依存性を、セルの厚さ別に図9に示す。

図において、レーザー光強度が強い領域では、線幅のレーザー光強度に対する変化は、power broadeningによる線形の依存性を示している。しかしながらレーザー光強度が弱くなると、power broadeningやセルの厚さから期待される値よりEITスペクトルの線幅は狭くなっている。また、それはセルが薄くなるほどより顕著に現れている。このrate方程式によるEITスペクトルの線幅の解析は、実験値を定性的によく再現できていると言える。

コンパクト原子時計は、従来の光-マイクロ波二重共鳴法を使って以前から開発されていた[8][9]。それはガスセルをマイクロ波共振器内に設置するタイプである。そのような時計の寸法はマイクロ波共振器の大きさによって制限されていた。CPTやEITなどの全光励起方法を使うことで原子時計の小型化が可能である。CPT現象を基礎にしたコンパクト原子時計はKitching

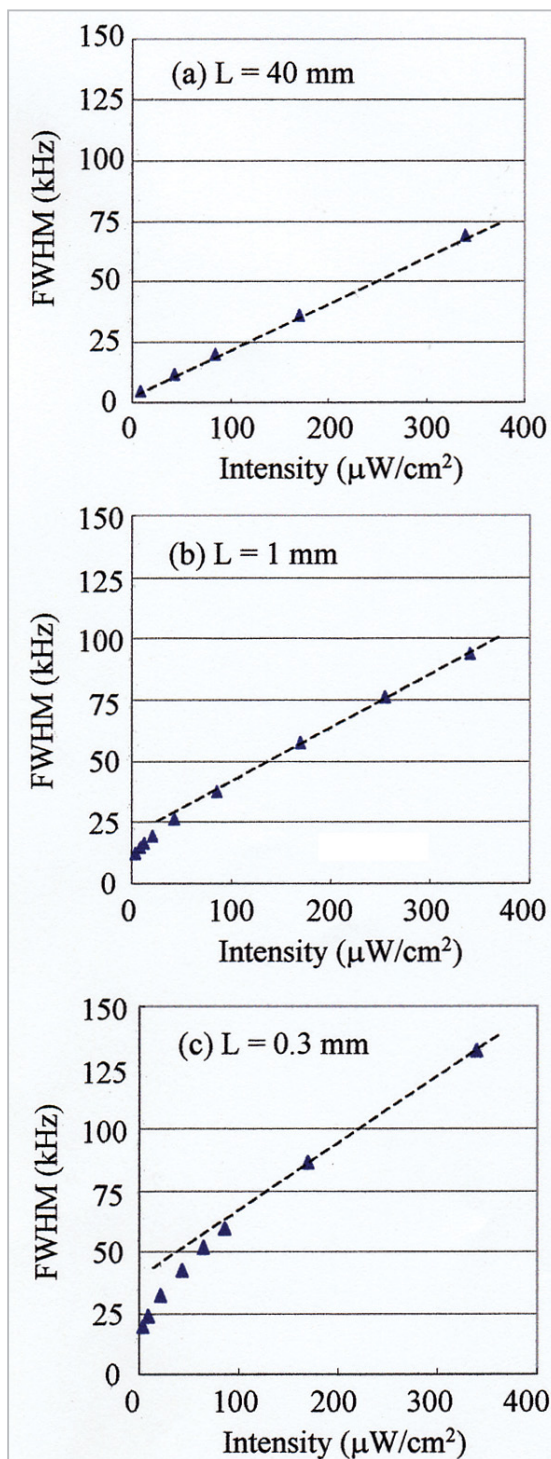


図9 計算されたEITスペクトル線幅のレーザー光強度依存性

ほかによってデモンストレーションされた[5]。彼らは厚さ10mmのガラスセルを用い、積分時間1秒で 1.3×10^{-10} の周波数安定度が得られたと報告している。薄いガラスセルを用いることによる主な欠点は、信号対雑音比(S/N比)が短い相互作用長さによって制限されるということ

ある。速度選択性を保つためには、セル中の原子の蒸気圧を十分低くしておく必要がある。これが、薄いセルをコンパクト原子時計に用いる際の重要な問題になるかもしれない。しかしながらレーザー光強度が十分弱い場合の薄いセル中の原子では、極低速の原子集団しか暗状態に落ち込まないため、非常に鋭いスペクトルが容易に得られるであろう。

4 まとめ

我々は薄いガラスセル中に封入されたCs原子のEIT共鳴のスペクトルプロファイルを調べた。

薄いセル中の原子に対する観測されたスペクトル幅は、レーザー光強度広がりやトランジット時間広がりから期待される値よりも狭いものであった。このようなスペクトルの狭窄化は、光ポンピングとセル壁面によって誘起される緩和とのバランスによって生じた非マクスウェル速度分布によるためと考えられる。EITスペクトルの観測は、薄いセルが速度選択性を持つことを明らかにした。密度行列を用いた薄いセル中の原子のEITスペクトルのより詳細な解析が現在進められている[10]。

参考文献

- 1 A. Ch. Izmailov, Opt. Spectrosc. 74, 25, 1993.
- 2 S. Briaudeau et al., Phys. Rev. A 59, 3723, 1999.
- 3 B. Zambon et al., Opt. Commun. 143, 308, 1997.
- 4 M. Tachikawa et al., Jpn. J. Appl. Phys. 37, L1559, 1998.
- 5 J. Kitching et al., Electron. Lett. 37, 1449, 2001.
- 6 C. Affolderbach et al., Appl. Phys. B 70, 407, 2000.
- 7 For example, E. Arimondo, "Fundamentals of Quantum Optics 3", Lecture Notes in Physics, Vol. 420, 170, 1994.
- 8 P. J. Chantry et al., Proc. 1996 IEEE Int. Frequency Control Symp., 1002, 1996.
- 9 M. Bloch et al., Proc. 1993 IEEE Int. Frequency Control Symp., 164, 1993.
- 10 K. Fukuda et al., in preparation.



福田京也

電磁波計測部門原子周波数標準グループ主任研究員
周波数標準
kyo@crl.go.jp

木下 基

明治大学理工学部物理学科
量子エレクトロニクス



長谷川敦司

基礎先端部門量子情報技術グループ主任研究員 博士(理学)
非線形レーザー分光
hasegawa@crl.go.jp

立川真樹

明治大学理工学部物理学科助教授 理学博士
量子エレクトロニクス、レーザー分光



ほそ かわ みつ ひこ
細川瑞彦

電磁波計測部門原子周波数標準グループ
リーダー 理学博士
原子周波数標準、時空計測
hosokawa@crl.go.jp