

Na 飽和分光実験の理論計算に関する再考

津田 卓雄¹, 兵藤 初美¹, 渡部 蓮¹, 野澤 悟徳², 川端 哲也², 斎藤 徳人³, 川原 琢也⁴

¹ 電気通信大学 (〒182-8585 東京都調布市調布ヶ丘 1-5-1)

² 名古屋大学 (〒464-8601 愛知県名古屋市中千種区不老町)

³ 理化学研究所 (〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1)

⁴ 信州大学 (〒380-8553 長野県長野市若里 4-17-1)

Reconsideration on theoretical calculations of Na saturation spectroscopy experiments

Takuo T. TSUDA¹, Hatsumi HYODO¹, Ren WATABE¹, Satonori NOZAWA², Tetsuya KAWABATA²,
Norihito SAITO³, and Takuya D. KAWAHARA⁴

¹ *Univ. of Electro-Communications, 1-5-1 Chofugaoka, Chofu, Tokyo 182-8585*

² *Nagoya Univ., Furo-cho, Chukusa-ku, Nagoya, Aichi 464-8601*

³ *RIKEN, 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198*

⁴ *Shinshu Univ., 4-17-1 Wakasato, Nagano, Nagano 380-8553*

Abstract: The saturation spectroscopy experiments have been widely used for various applications that require highly accurate laser frequencies, such as resonance scattering lidars. In this presentation, we provide a complete derivation for theoretical calculations of a simple model in Na saturation spectroscopy experiments. The calculated results will be shown and briefly discussed for experiments to be performed in the near future.

Keywords: Na saturation spectroscopy, Na resonance scattering lidar

1 はじめに

飽和分光実験は、原子の励起・緩和過程とそれに付随する飽和を特殊なレーザー照射条件（同強度のレーザーを両方向から同軸上に照射という条件）でフル活用し、原子の共鳴散乱光の周波数特性において、共鳴線の温度によるドップラー幅（GHz オーダー）よりも、微細な構造（MHz オーダー）を生じさせることで、高精度な絶対周波数基準を得る手法であり、レーザー周波数に関して高い絶対精度が求められる共鳴散乱ライダーなどで用いられている。Na D₂ 線（589 nm）を用いる Na 共鳴散乱ライダーに関しては、飽和分光実験でも Na 原子が直接利用可能である。Na 飽和分光実験については、1990 年代に理論計算と実験の両面から研究が進められ^{1,2)}、ライダーシステムへの実装や温度・風速観測においても既に実績が挙げられている^{3,4)}。一方で、理論計算を取扱う際に必要となる飽和分光実験のモデル化、その計算式の導出などについては自明な形式で記述されている文献を見つけるのは難しい。本研究では、先行研究²⁾に沿いながら不足部分は想像で補い、飽和分光実験のモデル化、及びその計算式の導出を改めて行い、自明な形式で理論計算方法の再構築を試みた。

2 理論

Na D₂ 線の Hyperfine structure は、少々複雑である為、少し簡略化した 3-level system について考える (Fig. 1 参照)。この 3-level system でセル内の状況をモデル化し (Fig. 2 参照)、レーザー照射領域の各レベルの Na 密度について連続の式を得る。

$$0 = -(W_{13} + \Gamma) N_1 + (W_{31} + A_{31}) N_3 + \Gamma N_{01} \quad (1)$$

$$0 = -(W_{23} + \Gamma) N_2 + (W_{32} + A_{32}) N_3 + \Gamma N_{02} \quad (2)$$

$$0 = W_{23} N_2 + W_{13} N_1 - (A_{31} + W_{31} + A_{32} + W_{32} + \Gamma) N_3 \quad (3)$$

但し、定常状態であることを仮定し、連続の式の左辺は 0 としている。Eqs. 1-3 において、 N_1 , N_2 , N_3 を未知数とし、 N_3 について解くと以下の式が得られる。

$$N_3 = \frac{\left(\frac{W_{23}\Gamma N_{02}}{W_{23}+\Gamma} \right) + \left(\frac{W_{13}\Gamma N_{01}}{W_{13}+\Gamma} \right)}{(A_{31} + W_{31} + A_{32} + W_{32} + \Gamma) - \left(\frac{W_{23}(W_{32}+A_{32})}{(W_{23}+\Gamma)} \right) - \left(\frac{W_{13}(W_{31}+A_{31})}{(W_{13}+\Gamma)} \right)} \quad (4)$$

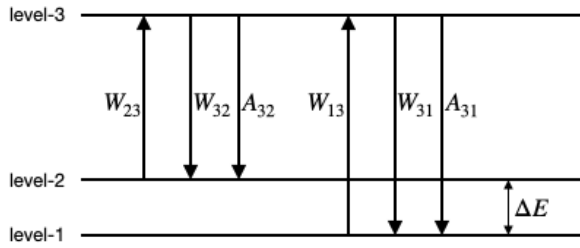


Fig. 1 3-level system の概要. Na D₂ 線の Hyperfine structure は、基底レベルが 2 レベルと励起レベルが 4 レベルの 6-level system であるが、単純化の為に基底レベルは level-1, level-2 の 2 レベル、励起レベルは level-3 の 1 レベルで 3-level system とする. degeneracy は、level-1 は $g_1=3$, level-2 は $g_2=5$ であり、level-3 は Hyperfine structure の 4 レベル分の合計で $g_3=16$ とおくことにする. A は spontaneous transition (i.e., アインシュタイン A 係数), W は stimulated transition, 添字は transition 前後の各レベルを示している. ΔE は level-1, level-2 のエネルギー差であり、温度平衡時のボルツマン分布を得るときに必要なパラメータである.

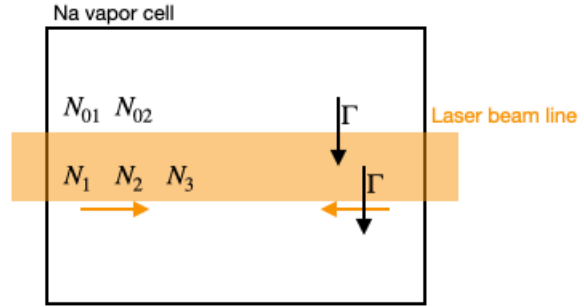


Fig. 2 Na セル内のモデル化の概要. Na セル内に左右から同軸で同強度のレーザーを照射する. レーザービームラインの外側では温度平衡であるとし、level-1, level-2 の基底レベルのみにボルツマン分布で Na が存在するとする. この時の level-1 の Na 密度を N_{01} , level-2 の Na 密度を N_{02} とする. レーザービームラインの内側 (レーザー照射領域) では、level-3 に励起される Na とビームライン内外の移流も含めて定常状態にあるとする. この時の level-1 の Na 密度を N_1 , level-2 の Na 密度を N_2 , level-3 の Na 密度を N_3 , 移流に関するパラメータ (時定数) を Γ とする.

その他のパラメータは既知、あるいは仮定するなどして全て与えていく. そうする事で、 N_3 を求めることができる. (割愛しているが、同様に N_1, N_2 も求めることができる.) 最終的に、 N_3 から飽和分光実験で得られる Na 散乱光強度 F を計算する (Eq. 5).

$$F(\nu_L, I_L) = C \int (A_{31} + A_{32}) N_{3(v_{\text{Na}}, \nu_L, I_L)} dv_{\text{Na}} = C \int A_0 N_{3(v_{\text{Na}}, \nu_L, I_L)} dv_{\text{Na}} \quad (5)$$

N_3 は、Na 速度 v_{Na} の関数であるが、実験では Na 散乱光は速度の区別なく総和として計測されるので速度方向に積分する. 結果として、 F は、レーザー強度 I_L , レーザー周波数 ν_L の関数として書き表せる. 定数 C は、装置感度等による効果を示すために用いているが、相対値のみの議論であれば、特に気にする必要はない. 以上が理論計算の全体の流れである.

ここから Eq. 4 の計算に必要なパラメータ (N_1, N_2, N_3 以外のパラメータ) の与え方について記述していく. まず、レーザー照射領域外の Na は、温度平衡 (ボルツマン分布) で level-1, level-2 に分布していると考えたことで N_{01}, N_{02} を与えることができる. その際、速度分布の扱いも必要になるので、速度分布はマクスウェル分布で与えることにすると、以下の式を得る.

$$N_{01} = N_0 g_1 / [g_1 + g_2 \exp(-\Delta E_{12} / (k_B T))] \exp\left(-\frac{m_{\text{Na}} v_{\text{Na}}^2}{2k_B T}\right) \quad (6)$$

$$N_{02} = N_0 g_2 \exp(-\Delta E_{12} / (k_B T)) / [g_1 + g_2 \exp(-\Delta E_{12} / (k_B T))] \exp\left(-\frac{m_{\text{Na}} v_{\text{Na}}^2}{2k_B T}\right) \quad (7)$$

N_0 は、セル内の基準密度のようなもので定数となるが、 N_{01}, N_{02} は N_0 に比例することがわかる. 従って、 N_3 も N_0 に比例し (Eq. 4), 結果として、 F も N_0 に比例する (Eq. 5) ことになるので、先の C と同様に相対値の議論であれば、 N_0 の値は影響しないことを示しているようにみえる. 理論計算では、温度 T は実験環境にあわせて適当に設定すれば良いので、任意のパラメータとなる. ΔE_{12} は level-1, level-2 のエネルギー差であり、文献値⁵⁾として既知である. A は、アインシュタイン A 係数なので、これらも文献値⁵⁾として既知とすれば良い ($1/A_0 = \tau = 16.2492 \times 10^{-9}$ s).

$$A_{31} = \frac{g_1}{g_1 + g_2} A_0 \quad (8)$$

$$A_{32} = \frac{g_2}{g_1 + g_2} A_0 \quad (9)$$

W は、stimulated transition なので、左右のレーザービームによるものを各々 $+/-$ で表現して、以下のように与えることにする.

$$W_{13(v_{\text{Na}}, \nu_L)} = W_{13+(v_{\text{Na}}, \nu_L)} + W_{13-(v_{\text{Na}}, \nu_L)} \quad (10)$$

$$W_{31}(v_{\text{Na}}, \nu_L) = W_{31+(v_{\text{Na}}, \nu_L)} + W_{31-(v_{\text{Na}}, \nu_L)} \quad (11)$$

$$W_{13+(v_{\text{Na}}, \nu_L)} = B_{13(\nu_{31})} \rho_{+(\nu_{31}, v_{\text{Na}}, \nu_L)} \quad (12)$$

$$W_{13-(v_{\text{Na}}, \nu_L)} = B_{13(\nu_{31})} \rho_{-(\nu_{31}, v_{\text{Na}}, \nu_L)} \quad (13)$$

$$W_{31+(v_{\text{Na}}, \nu_L)} = B_{31(\nu_{31})} \rho_{+(\nu_{31}, v_{\text{Na}}, \nu_L)} \quad (14)$$

$$W_{31-(v_{\text{Na}}, \nu_L)} = B_{31(\nu_{31})} \rho_{-(\nu_{31}, v_{\text{Na}}, \nu_L)} \quad (15)$$

B は、アインシュタイン B 係数なので、アインシュタイン A 係数との関係性より求められる。

$$B_{13(\nu_{31})} = \frac{g_3}{g_1} B_{31(\nu_{31})} = \left(\frac{c^3}{8\pi h \nu_{31}^3} \right) \frac{g_3}{g_1} A_{31} \quad (16)$$

エネルギー密度 ρ を与える際には、左右のレーザービームによる $+/-$ のところをドップラーシフトの部分の Na 速度 (v_{Na}) の右向き速度と左向き速度とところにあわせて、速度の正負で表現することで以下のように書き直せる。

$$\rho_{+(\nu_{31}, v_{\text{Na}}, \nu_L)} = \frac{I_L}{c} g_{+(\nu_{31}, v_{\text{Na}}, \nu_L)} = \frac{I_L}{c} \frac{\Delta\nu_{\text{Na}}}{\pi \left[\left(\nu_L \left(1 - \frac{v_{\text{Na}}}{c} \right) - \nu_{31} \right)^2 + (\Delta\nu_{\text{Na}})^2 \right]} \quad (17)$$

$$\rho_{-(\nu_{31}, v_{\text{Na}}, \nu_L)} = \frac{I_L}{c} g_{-(\nu_{31}, v_{\text{Na}}, \nu_L)} = \frac{I_L}{c} \frac{\Delta\nu_{\text{Na}}}{\pi \left[\left(\nu_L \left(1 + \frac{v_{\text{Na}}}{c} \right) - \nu_{31} \right)^2 + (\Delta\nu_{\text{Na}})^2 \right]} \quad (18)$$

I_L はレーザー強度、 ν_L はレーザー周波数、 ν_{31} は level-3, level-1 の周波数差 (共鳴周波数) である。共鳴周波数は、文献値⁵⁾ として既知とすれば良い。 $\Delta\nu_{\text{Na}}$ は Na の natural linewidth であるが、ここでの定義は HWHM である (Eq. 19)。

$$\Delta\nu_{\text{Na}} = \frac{1}{4\pi\tau_0} \quad (19)$$

Eqs. 17–18 では、レーザー周波数の周波数幅による効果は含めていないが、今回の理論では完全に単色のレーザーにおける計算となっており、この点は今後の課題であるが、 $\Delta\nu_{\text{Na}}$ が ~ 5 MHz なので、それよりも十分に線幅が狭いレーザーを使用する想定であれば大きな問題ではないであろう。 W の他の transition についても同様に与えることができる (記載は割愛する)。 残りの設定パラメータとしては、移流の時定数 Γ 、レーザー強度 I_L である。 これらのパラメータは任意に与えるしかない。 先に述べた温度 T と合わせて 3 つのパラメータを任意で与えることになる。 実際の実験では温度とレーザー強度に関しては測定すれば良い。 移流の時定数については、測定が難しいが、正確な値を与え難いが、それ故に調整パラメータとして用いるという使い方もされている²⁾。

3 結果と展望

$T = 325$ K, $I_L = 2.0$ μm , $\Gamma = 2.5 \times 10^{-5}$ s^{-1} の条件で、3-level model で計算した飽和分光実験の Na 散乱光強度の周波数特性の結果を Fig. 3 に示す。 Na 散乱光強度はピーク値で規格化している。 温度によるドップラー幅 (GHz オーダー) に加えて、 -650 MHz 付近, $+200$ MHz 付近, $+1050$ MHz 付近に微細な構造 (MHz オーダー) が生じている。 これらは lamb dip, crossover peak と呼ばれる飽和分光実験特有の微細な構造であり、想定通りの計算結果が得られている。 同じ理論をベースにして Hyperfine structure model も構築した (記載は割愛する)。 同じ条件で Hyperfine structure model で計算した Na 散乱光強度の周波数特性の結果を Fig. 4 に示す。 3-level model と同様に lamb dip, crossover peak がみられるが、その構造はより複雑な形状をしている。 これらの lamb dip, crossover peak の複雑な構造の理解は今後の課題である。 また、実験との比較、更には Na 以外の原子への展開も視野に入れながら、飽和分光実験の理論計算の方法に関して更なる改良を進めていくことを考えている。

謝辞

本研究は、日本学術振興会科学研究費助成事業 (JP19H01956, JP20K20940, JP21H01144, JP21H01152, JP21H04516, JP21K18315), カシオ科学振興財団研究助成, 日揮・実吉奨学会研究助成, 等の支援により実施している。

参考文献

- 1) C. Y. She, J. R. Yu, H. Latifi, and R. E. Bills: Appl. Opt. **31** (1992) 2095.
- 2) C. Y. She, and J. R. Yu: Appl. Opt. **34** (1995) 1063.
- 3) C. Y. She, H. Latifi, J. R. Yu, R. J. Alvarez II, R. E. Bills, and C. S. Gardner: Geophys. Res. Lett. **17** (1990) 929.
- 4) C. Y. She, and J. R. Yu: Geophys. Res. Lett. **21** (1994) 1771.
- 5) D. A. Steck: Sodium D Line Data (revision 2.2.1, 21 November 2019), <http://steck.us/alkalidata>.

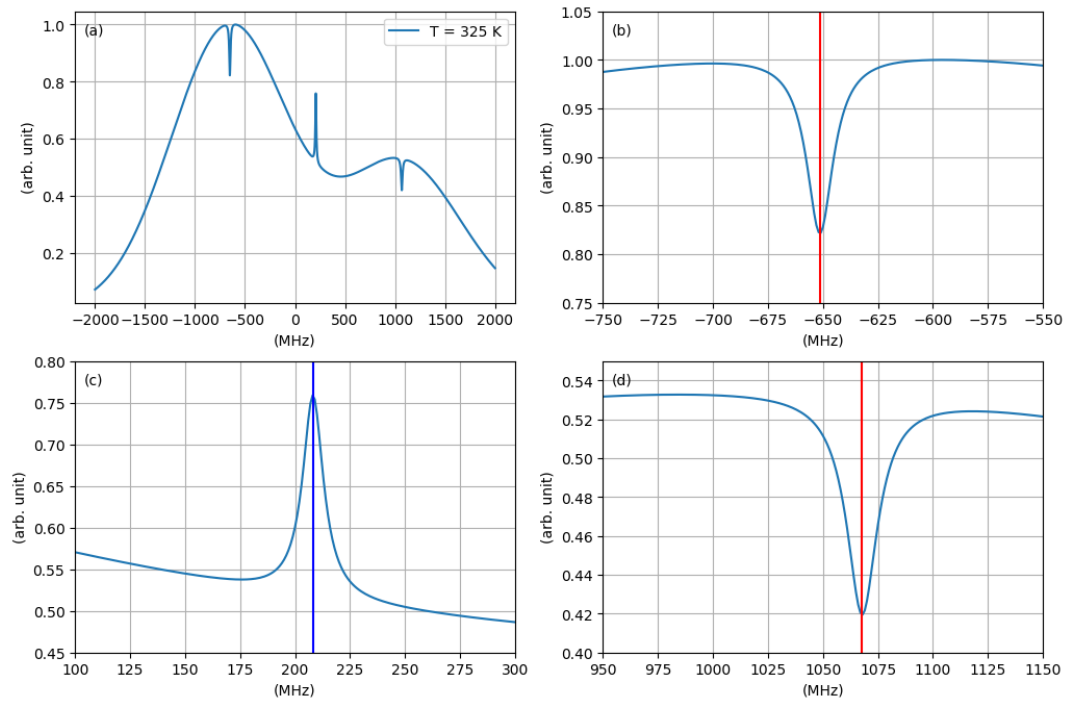


Fig. 3 (a) 3-level model で計算した Na 散乱光強度の周波数特性. (b) 同じ結果の -650 MHz 付近の拡大図. (c) 同じ結果の $+200 \text{ MHz}$ 付近の拡大図. (d) 同じ結果の $+1050 \text{ MHz}$ 付近の拡大図.

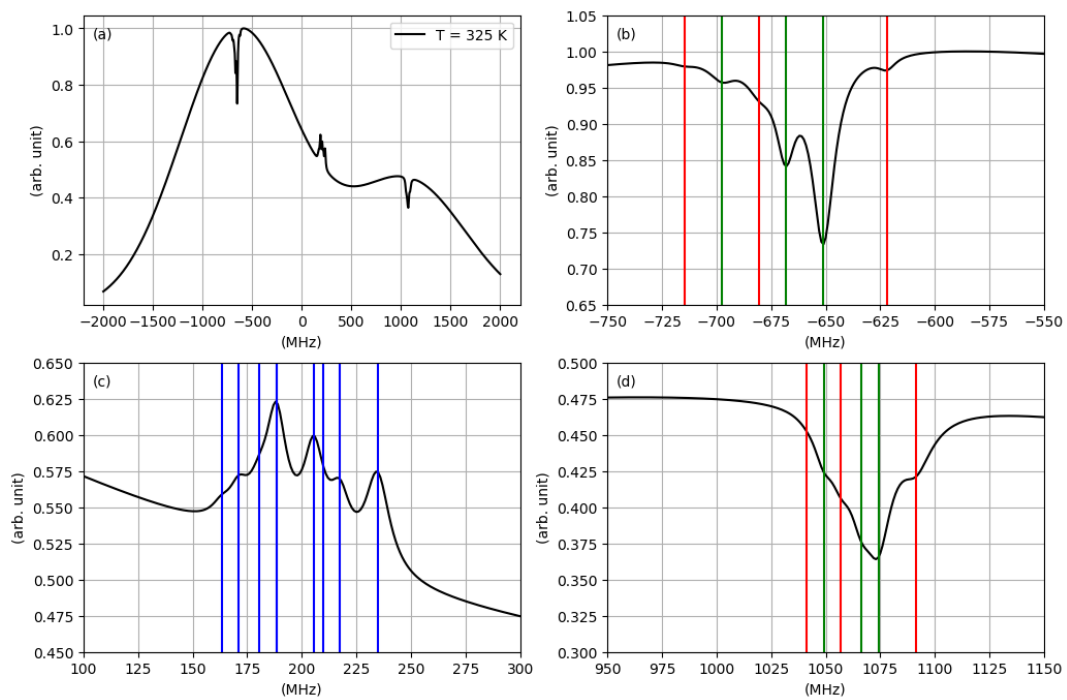


Fig. 4 (a) Hyperfine structure model で計算した Na 散乱光強度の周波数特性. (b) 同じ結果の -650 MHz 付近の拡大図. (c) 同じ結果の $+200 \text{ MHz}$ 付近の拡大図. (d) 同じ結果の $+1050 \text{ MHz}$ 付近の拡大図.