

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月30日現在

機関番号：12608
 研究種目：挑戦的萌芽研究
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23654142
 研究課題名（和文） SISミキサーを用いた位相安定化レーザー誘起マイクロ波発光分光と量子位相検出
 研究課題名（英文） Stimulated microwave emission spectroscopy of molecules induced by phase-locked lasers and the detection of the molecular quantum phase by using SIS mixer
 研究代表者
 金森 英人（Kanamori Hideto）
 東京工業大学・大学院理工学研究科・准教授
 研究者番号：00204545

研究成果の概要（和文）：

本研究は「SISミキサーを用いた位相安定化レーザー誘起マイクロ波発光分光と量子位相検出」と題して、スペクトルを極限まで狭窄化した2台のレーザー光源を用いて励起した分子の回転状態から発生するコヒーレントなマイクロ波を、量子限界の検出感度を有する超伝導（SIS）ミキサーを用いて位相敏感検出する分光システムを構築した。これによって、従来の吸収分光法では到達できなかった超高分解能マイクロ波発光分光法を実現するのみならず、分子の回転励起状態の量子位相を直接制御し、その結果をモニターする手段を確立するための研究をおこなった。

研究成果の概要（英文）：

This research titled as “Stimulated microwave emission spectroscopy of molecules induced by phase-locked lasers and the detection of the molecular quantum phase by using SIS mixer” offers a new avenue for not only high-sensitive and high-resolution molecular spectroscopy which has never been established by usual absorption spectroscopy, but also quantum phase control of molecular rotational excited states.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,900,000	870,000	3,770,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：サブミリ波、マイクロ波発光分光、量子位相、量子情報、超伝導ミキサー

1. 研究開始当初の背景

実験室におけるマイクロ波分光は波長可変のマイクロ波光源を用いた吸収分光法が主流である。すなわち電磁波と分子の相互作用を電磁波の強度変化でしかとらえていないために、分子の波動関数の絶対値の二乗の情報しか得ることができなかった。しかしながら、近年、波動関数の位相項の直接制御やモニタ

ーの有用性が認識されるようになり、可視光領域ではさまざまな量子位相制御の原理検証実験がなされるようになってきている。一方、電磁波のスペクトル線幅を狭窄化する技術は位相安定化回路(PLL)によってマイクロ波領域でのみ確立されていたが、2000年の自己参照を可能とするオクターブ光周波数コム（OCW）の出現によって、可視・近赤外領域のレーザーについても、

マイクロ波と同等のスペクトル純度と位相同期性を持たせることが可能となってきた。本研究を開始する時点での我々の研究成果を以下に示す。

① 半導体レーザーの位相安定化実験

図1に示すように、2台の半導体レーザーを光コム異なるモードに位相安定化することによって、両者の光ビートのスペクトル線幅を0.001 Hzまでに狭帯化することに成功した(図2参照)。また、図1の位相操作($\Delta\phi$ -operation)によって、光の相対位相を

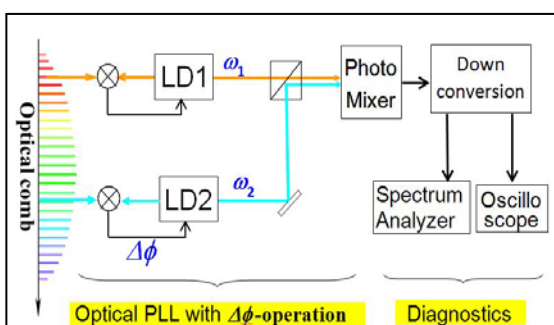


図1) 光コムに位相安定化された2台の半導体レーザーの光ビート評価実験図。

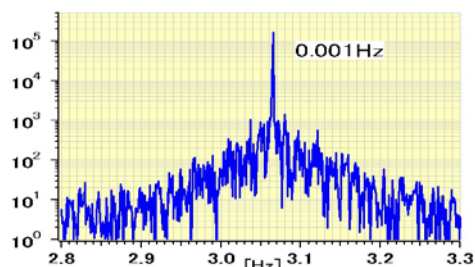


図2) 図1)で得られた光ビートを3Hzにdown conversionしたスペクトル。線幅は0.001Hz

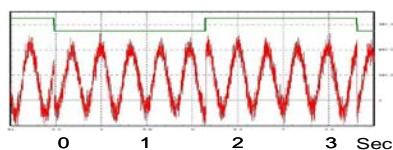


図3) 図2)の3Hz光ビートの時間軸波形。上方に示す0.3Hzクロックにしたがって、光ビート波形の位相が180度切り換わっている

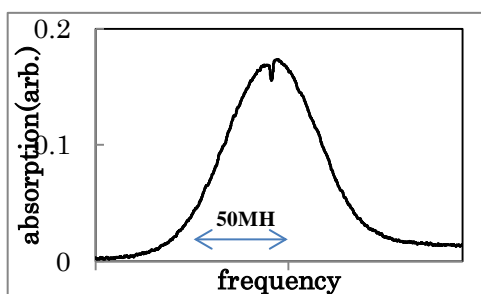


図4) CH_3F 分子の $3\mu\text{m}$ OPOレーザーによる hole burning スペクトル: $\nu_4 R_3(6)$

自由に制御できることを図3に示すように時間軸で直接確認した。

② 分子の赤外飽和分光実験

$3\mu\text{m}$ の赤外領域で発振するOPOレーザーを用いて CH_3F 分子の ν_4 バンドを励起することによって作り出した特定速度成分の分布数変化を、図4に示すように ν_4 振動遷移のhole burningスペクトルとして観測した。これによって、振動遷移を使った非線形分光が可能であることを示した。

③ 実験室マイクロ波発光分光実験

情報通信機構の既存のマイクロ波スペクトロメーターを用いて過酸化水素分子(H_2O_2)から自然放出された600 GHz帯の回転スペクトルを測定し、実験室マイクロ波発光分光手段としての実用性を確認した。また、大気環境下での圧力によるスペクトル線幅の影響を調べた。

以上の成果を踏まえて本研究では、マイクロ波と同等の極めて優れたコヒーレント特性を備えるようになった複数のレーザー光を活用することによって、分子の回転状態の量子位相制御とその結果を診断評価するための位相敏感マイクロ波検出システムの構築を目指した。

2. 研究の目的

スペクトルを極限まで狭帯化した2台のレーザー光源を用いた分子の誘導ラマン過程で発生するコヒーレントなマイクロ波を、量子限界の検出感度を有する超伝導(SIS)ミキサを用いて位相敏感検出する分光システムを開発する。これによって、従来の吸収分光法では到達できなかった超高分解能マイクロ波発光分光法を実現するのみならず、分子の回転励起状態の量子位相を直接制御し、その結果をモニターする手段を実現することによって、量子情報処理等の新しい科学技術の基盤技術の確立を目的とする。

3. 研究の方法

本研究ではレーザー誘起マイクロ波発光(Laser Induced Microwave Emission Spectroscopy)という、新しい概念の実験室マイクロ波分光法にチャレンジする。そのために、電波天文観測において宇宙からの微弱マイクロ波を検出するために開発されたSISミキサーを導入する。これは超伝導素子であるため、

液体 He 温度での量子限界検出感度を実現することができる。さらにヘテロダイン検出後の信号処理系に 1GHz 帯域の実時間スペクトルアナライザを導入することによって、測定効率を飛躍的に向上させ、従来、不可能と考えられていたサブミリ波領域のマイクロ波誘起発光分光法を実現する。

この手法は基本的には 2 色のレーザー光を用いた 4 光子混合のコヒーレント誘導ラマン過程であり、4 光子目が目的の回転準位に共鳴するように、レーザー光の波長を選択する。以下に、2 色の赤外レーザー光を用いた例を挙げる。光源としては波長可変のファイバーレーザーをポンプ光 ω_{pump} とする赤外 OPO レーザーの ω_{idler} と ω_{sig} を用いる。

図 5 に示す 4 光子共鳴条件

$$\omega_{\text{emi}} = 2\omega_{\text{idler}} - \omega_{\text{sig}}$$

にパラメトリック過程の条件式

$$\omega_{\text{pump}} = \omega_{\text{idler}} + \omega_{\text{sig}}$$

を代入すると次の式が得られる。

$$\omega_{\text{emi}} = 3\omega_{\text{idler}} - \omega_{\text{pump}} \quad \text{①}$$

この式から、 ω_{idler} を振動回転遷移に共鳴させた条件の下で、 ω_{pump} の波長を掃引することによって、 ω_{emi} を目的の回転準位に共鳴させることができることが分かる。この共鳴過程で発生する

ω_{emi} には位相整合条件による空間指向性があるので、特定の方向に放出されるマイクロ波を高い空間捕集効率で検出することができる。このように本手法は自然放出のレートが極めて低い上に、全立体角に方向に放出されるために実用化が困難であった実験室マイクロ波発光分光の弱点を、パラメトリック過程で必然的に発生する Signal 光と Idler 光を同時に用いて、マイクロ波をコヒーレントに発生させることで解決する。

この分光法が適用できる分子は、OPO レーザーの ω_{pump} と ω_{idler} の掃引範囲、および SIS ミキサの受信バンド帯域で決まる。現有の OPO レーザーは ω_{pump} が 1030 ~ 1083 nm (エネルギー差 500 cm^{-1})、 ω_{idler} が 2.8 ~ 3.8 μm (エネルギー差 1000 cm^{-1}) の範囲で発振が可能であり、今回準備する SIS ミキサの受信バンドは 600 ~ 700 GHz である。振動遷移に共鳴させる ω_{idler} については ω_{emi} が小さい

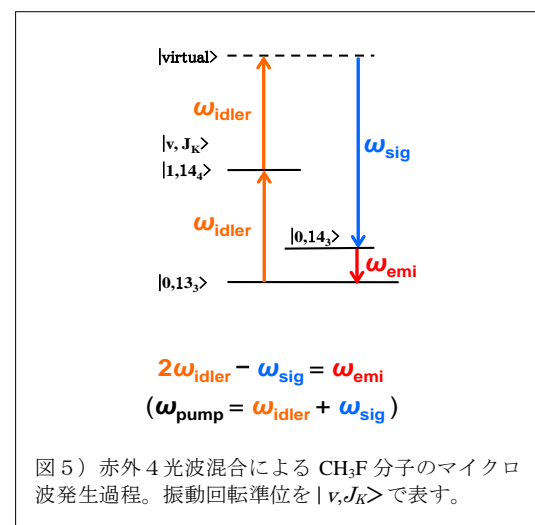
ことから①式で

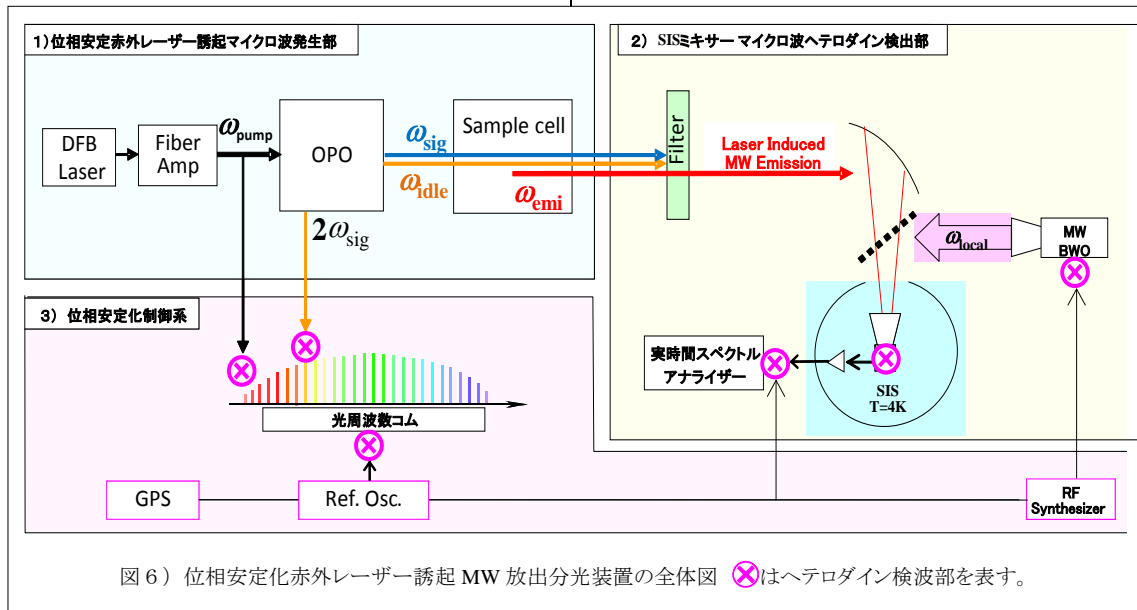
$$\omega_{\text{idler}} \sim \omega_{\text{pump}}/3 \sim 3000 \text{ cm}^{-1},$$

すなわち CH 伸縮振動領域が該当するので、多くの分子に適用できる。CH₃F 分子を例にすると振動準位は $\nu_4(e)$ モード、回転準位は $J = 12 \sim 14$ が該当するので、図 5 に $J = 13$ の場合を記入した。この準位図から分かるように仮想中間準位は実存する振動の $\nu = 2$ 準位に調和近似で共鳴するので、誘導ラマン過程のエンハンスメントが期待できる。

さらに、OPO レーザーの ω_{pump} と ω_{sig} の両者を光コムに位相安定化することによって、間接的に ω_{idler} の相対位相も確定するので、誘導ラマン過程で生ずる分極の位相も確定することになり、その分極からの輻射 ω_{emi} の位相も確定することが期待される。すなわち、本研究では分子から発生するマイクロ波の位相を励起光で制御し、その様子を SIS ミキサを用いた位相敏感検波で確認する。このことを量子情報操作の観点からみると回転準位 qubit の量子位相制御とそのモニター手法の確立と言い換えることができる。さらに図 5 の光学過程において、仮想準位を実準位とする新たな共鳴条件を満たす 4 準位系を構築すれば、制御 NOT ゲートを構成する 2 qubit システムとみなせるので、量子コンピューティングに必要な基本ゲート演算を分子の振動・回転準位 qubit の光学遷移操作で実現することになる。

以上の基本戦略に基づき、位相安定化レーザー誘起マイクロ波発光分光システムを構築することとした。





4. 研究成果

本研究で製作した位相安定化赤外レーザー誘起マイクロ波発光分光システムは図6の概要図に示されるように、(1) 位相安定化赤外レーザー誘起マイクロ波発生部と(2) SIS ミキサーマイクロ波ヘテロダイン検出部、および両者をマスタークロックを介して結合する(3) 位相安定化制御系から構成され、(1)(2)の開発を平行に進め、最終的に(3)でGPSマスタークロックを導入し、全体を統合した。その手順を以下に示す。

(1) 位相安定化レーザー誘起によるマイクロ波発生部の構築

① ヨウ素分子用の可視領域位相安定化レーザー光源の製作

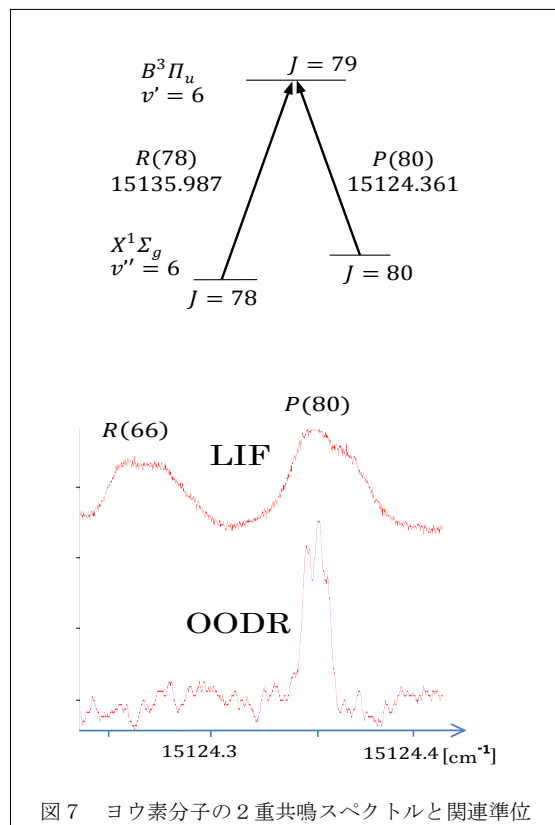
ヨウ素分子の $B-X$ 電子遷移を用いるために2台の630nm帯の半導体レーザー素子を外部共振器に組み込み狭帯域化した後に、光ヘテロダイン法を用いて、光標準である光コムレーザーの異なるモードに位相安定化システムを作成した。

② ヨウ素分子の2重共鳴分光実験

ヨウ素分子の電子励起状態を中間準位とする Λ 型の2重共鳴分光をおこない、図7に示すように基底状態の回転準位間の遷移に相当するサブドップラースペクトルを得た。2本レーザー光を同軸同一方向で重ねたため、15本の超微細構造は1つの束として観測されてい

る。この実験結果は、可視領域のレーザーを用いて分子の特定の回転準位をコヒーレントに励起できることが実証した。これを極性分子に適用することによって、コヒーレントな誘導マイクロ波発光を実現することが可能とした。

③ 赤外 OPO レーザーの位相安定化
赤外領域で発振する OPO レーザーを可視光領



域発振する光コムレーザーとの位相安定化を実現するために、図8に示すように ω_{sig} を倍周し、光コム領域にアップコンバージョンして位相安定化し、さらに ω_{pump} のポンプ光レーザーを光コムに位相安定化することによって、両者の差周波である ω_{idle} を結果的に位相安定化させることに成功した。

(2) SISミキサーを用いたサブミリ波ヘテロダイン検出部の作成

① 600 GHz帯SISミキサーの実装

本研究のキーデバイスはSISサブミリ波ミキサーであり、これには連携研究者である情報通信機構の入交博士の全面的な協力を得た。博士は超伝導素子の開発に携わる一方、これを用いたバルーンによる大気リモートセンシングの実証実験に成功しており、本研究での実験室分光システムの最適化にもその実装技術を活用した。このSISミキサー素子をダイアゴナルホーンアンテナを備えた特注の精密導波路型マウントに組み込み、図6の全体図に示すように $T = 4\text{K}$ の液体Heクライオスタット内に設置した。局部発振光としては既存の位相安定化したBWO光源を用いた。GPS周波数標準発振器をマスタークロックとするRFシンセサイザーの高調波に位相安定化されたサブミリ波をduplexerを通してSISミキサーに導入した。

② 信号処理系の構築

IFの信号帯域は1-2 GHzとし、10Kステージ上のHEMTアンプで増幅後、外部に取り出し、さらにdown conversion後、実時間スペクト

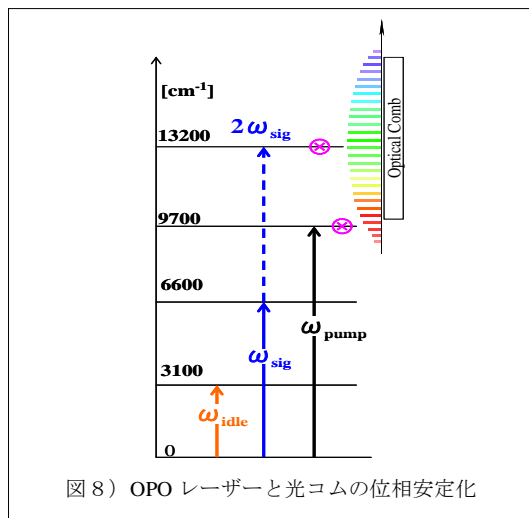


図8) OPOレーザーと光コムの位相安定化

ラムアナライザーで処理できるようにした。

③ 輝度温度標準の設計

マイクロ波の輻射強度を輝度温度として評価するための、液体窒素の黒体標準背景を切り替えシステムを設計した。

④ 600GHz帯SISミキサー検出部の評価実験

図9はI-V特性の温度依存性を測定したものである。Nbの超伝導転移温度の9.2Kを切ったあたりから変化が現れ、5Kでは超伝導ギャップエネルギーである2.7 meV付近で急激に上昇する理論通りの振る舞いを示し、ミキサーとしても理想的な非線形特性を有することを確認した。

図10は永久磁石をミキサーマウントに取り付け、外部磁場を加えたときのものである。超伝導ギャップエネルギー付近の傾斜は緩くなるものの、原点付近のホッピングを除去できることを確認した。

さらに、局部発振光としてBWO発振器からの640 GHzのサブミリ波を導入し、自己バイアス電流を測定することによって、サブミリ波帯での検波作用を確認した。さらに、直径10 cm、

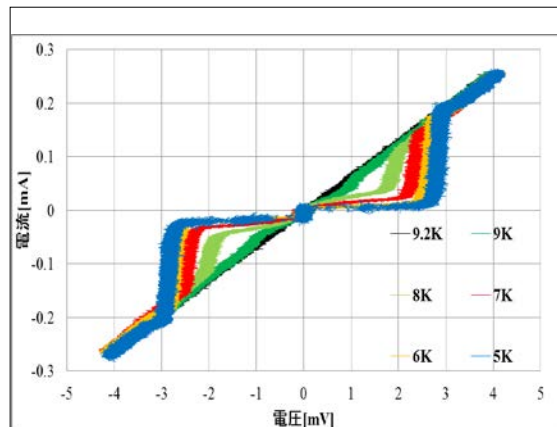


図9) SISミキサーのIV特性の温度依存性

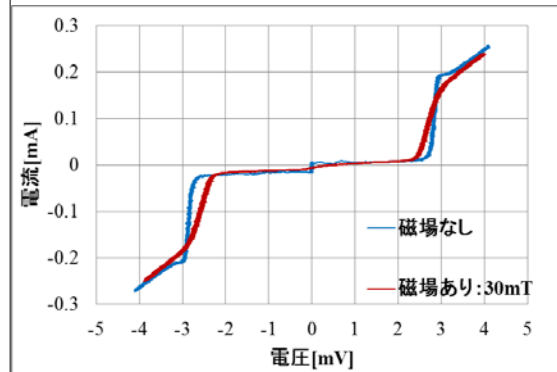


図10) SISミキサーのIV特性の磁場依存性

長さ200 cmの試料気体セルを作成し、分子のマイクロ波発光分光システムを構築した。

以上の成果を踏まえ、図5で示すような4光子混合過程を利用した、レーザー励起マイクロ波誘導放出分光という、新しい概念のマイクロ波分光法の準備が整った。今後は相互作用時間極限のサブドップラーマイクロ波分光を実現するのみならず、光と物質の相互作用を通して、図3のように分子の量子状態の位相を自由に制御することをめざしていく。この技術は直ちに量子情報処理における基盤技術と位置付けることができる。なぜなら、図5の ω_{emi} に対応する準位をqubitと見なせば、4光子混合過程を使った飽和分光と量子位相制御は制御NOTゲート演算を実現するために必須の操作となるからである。

[その他]

<http://www.molec.ap.titech.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

金森 英人 (KANAMORI HIDETO)
東京工業大学・大学院理工学研究科・准教授
研究者番号：00204545

(2) 研究分担者

溝口 麻雄 (MIZOGUCHI ASAO)
東京工業大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号：20322092

(3) 連携研究者

入交 芳久 (IRIMAJIRI YOSHIHISA)
独立行政法人情報通信研究機構
電磁波計測研究センター
研究者番号：60358992