

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：14603

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26620011

研究課題名(和文) 固体パラ水素結晶における時間領域波束干渉測定を用いた超高分解能分光計測

研究課題名(英文) High resolution spectroscopy of solid para-hydrogen by time-domain wave packet interferometry

研究代表者

香月 浩之 (Katsuki, Hiroyuki)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・准教授

研究者番号：10390642

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：フェムト秒のレーザーを用いて干渉フリンジを観測し、その周期の変化から遷移周波数の微小な変化を検出する計測法の確立を目指し、マルチパス型のレイアウトを応用した高安定干渉計を作成した。参照用の連続波レーザーの干渉シグナルを元に、ダブルパルスの遅延時間をナノ秒程度まで正確に掃引できるシステムの構築を行った。制御プログラムなどは予定通り作成できたが、参照用レーザーの波長の安定性と干渉計自体の機械的な安定性という問題があり、遅延時間を変化させた場合の再現性が得られず、干渉測定は行ったものの期待していた測定精度は得られなかった。参照光源の波長安定化などの処置を講じることで、問題点は解決できると考えられる。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the new experimental scheme to obtain high-resolution spectroscopic parameters based on the quantum wave packet interferometry. For such purpose, the precise control of the double pulse delay up to nanoseconds time scale is necessary. We have developed a Michelson interferometer with multiple optical path to gain the scan range. To adjust the position of the stage after the motion, we installed a CW reference laser to monitor the fringe structure. We have built a PC program to actively adjust the delay. We have examined the performance of the system, and noticed that the reproducibility of the position is not satisfactory. The main reason is ascribed to the instability of the frequency of the laser, and also to the mechanical instability of the setup. These problems could be overcome by introducing a frequency stabilized light source, and by preparing a more rigid frame for the interferometer.

研究分野：コヒーレント制御

キーワード：固体パラ水素 波束干渉制御 Ramseyフリンジ

1. 研究開始当初の背景

対象とする量子系の波動関数の重ね合わせを外部からのレーザー照射によって制御する技術はコヒーレント制御と呼ばれている。時間遅延させた二発のパルスで単一の量子状態の励起を行った場合、二度の励起による波動関数が重なり合うことにより、その振幅の二乗の時間変動は単純なサイン関数によって表される。このようなシグナルは Ramsey fringe と呼ばれている。この Ramsey fringe の振動周期は、遷移の始状態終状態間のエネルギー差で決まるため、この振動周期を精度よく決定することができれば、遷移エネルギーを高精度で決定できることを意味している。このような手法を利用することで、周波数領域における高分解能分光が可能ではないかと考えた。通常の周波数領域における高分解能分光では、その対応する波長領域で安定した光源が必要となるが、そのようなレーザーは発振可能波長域が狭いために汎用とは言いがたい。より周波数の変換が容易であるフェムト秒レーザーを光源として、同程度の周波数精度の測定が可能となれば大きなメリットがあると考え、本研究テーマを提案するに至った。

2. 研究の目的

本研究では、固体パラ水素が持つ 10ns 以上という長い振動コヒーレンス寿命を利用し、固体中で二つの振動波束を干渉させることで得られる、8fs 周期の波束干渉シグナルに注目する。干渉シグナルのフリンジ周期は振動準位間のエネルギー差を直接反映し、フリンジ位相のずれは遅延時間の増加とともに蓄積していく。ダブルパルス励起を用い、最初の励起からナノ秒経過後に二発目の励起を行い、波束を干渉させて得られるフリンジの位相を計測することから、非常に高精度な遷移周波数測定が可能である。8ns 経過後に 1% のフリンジ位相のずれがあれば、これは 10^{-8} の周波数変化に相当する。このような測定に挑戦するため、アト秒精度のナノ秒遅延時間干渉計を作成し、実際に固体パラ水素中で外部摂動による振動遷移の微小な周波数変化の測定に挑戦する。

3. 研究の方法

実際に必要となる装置として、ナノ秒程度の遅延時間まで掃引可能なマイケルソン型干渉計の作成を行った。従来の同種装置との最も大きな違いとして、今回の実験では時間間隔の大きく離れた時間 t_0, t_1 において、高精度の Ramsey Fringe 測定を行うことを目指している。 t_0 としてはダブルパルスが重なる原点に近いタイミングを取り、 t_1 としてはできるだけ大きな値を取ることが望ましい。 t_1

を大きな値にしていくことで、原理的には任意の分解能が得られることになる。(実際には位置の精度をどうやって保証するかによって限界が決められる。)それぞれの t_0, t_1 周辺において、クローズドループのピエゾステージを用いて高精度に fringe 計測を行う。このような測定を異なる対象に対して行うことで、各タイミングにおける fringe の位相を決定する。そのずれから、遷移周波数のずれが求まる。絶対値に関しては t_0, t_1 を両方含めてデータのフィットを行い、周期を決めることで決定できる。この様子を表したのが図 1 である。

位相のずれは蓄積していくために、 10^{-6} 程度のわずかなずれでも 10^5 周期後には測定可能なずれになり、周波数領域での高分解能測定が可能になると考えられる。

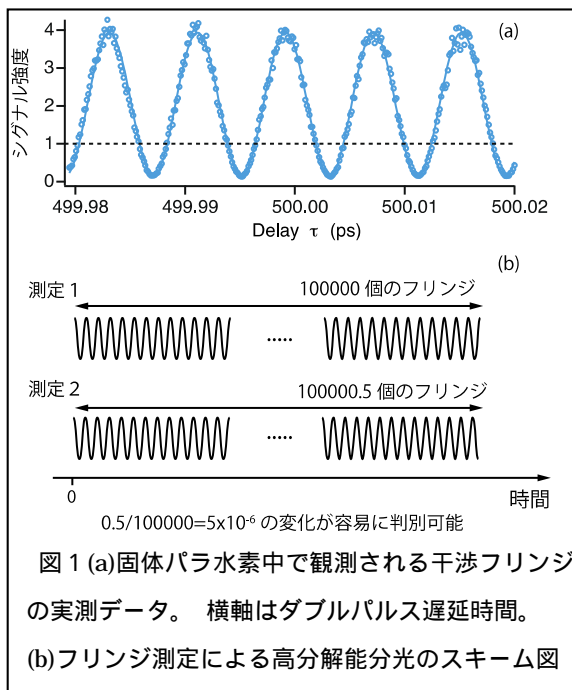


図 1 (a)固体パラ水素中で観測される干渉フリンジの実測データ。横軸はダブルパルス遅延時間。
(b)フリンジ測定による高分解能分光のスキーム図

4. 研究成果

3の研究方法に従い、実際に干渉計の作成を行った。光路のスキャンレンジを増大させるために、片側の光学パスをマルチパスにして、遅延時間を稼いだ。一方で位置決め用の参照光源として、安価に手に入る He-Ne レーザーを使用した。

実際に作成した干渉計の構造を図 2 に示す。メカニカルステージには newport 社の GTS-150 を用い、ピエゾステージは PIJapan 社の P-621.1 を購入した。GTS-150 のスペックとして最小移動量 $0.1 \mu\text{m}$ 、双方向再現性 $\pm 0.1 \mu\text{m}$ となっている。図 2 にあるように 3 往復の光学パスを採用した場合、移動後の誤差は $\pm 0.3 \mu\text{m}$ となる。これは時間に直すと $\pm 2\text{fs}$ に対応し、He-Ne レーザーの振動周期よりも大きくなってしまふ。このため、参照用の He-Ne レーザーはシングルパスの干渉計となるよう、独立したミラーをメカ

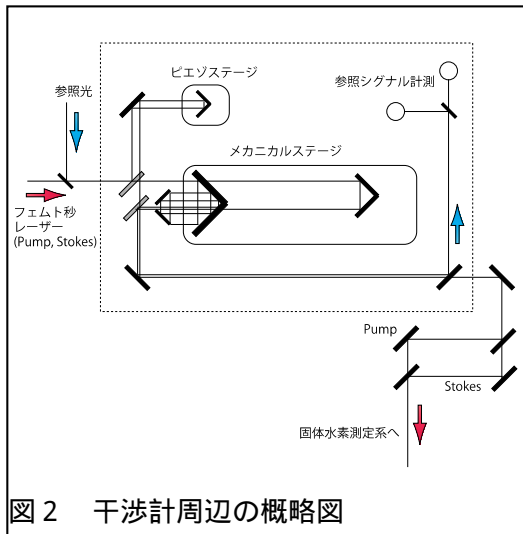


図2 干渉計周辺の概略図

ニカルステージに載せている。もう一方の腕の光学系は共通である。ダブルパルスの遅延ゼロの位置はCWレーザーの干渉とfsレーザーの干渉が同時に最大になる点から算出することができた。次に大きな遅延時間をメカニカルステージで動かした後の位置の誤差を自動で補正するプログラムルーチンを作成した。具体的には以下のようなステップを半自動的に行うルーチンである。

- (1) 遅延時間0の点を決定。
- (2) 遅延時間0の点の $\pm 30\text{fs}$ でピエゾキャンを行い、fringe測定を行う。

必要ならば参照レーザー光の実波長と読み取り波長の誤差からピエゾステージの移動量の補正を行う。

- (3) 画面上で入力した遅延時間(t_1)までメカニカルステージによって移動。

- (4) 移動後の位置に対して、 $t_1 \pm 30\text{fs}$ の領域でピエゾキャンを行い、参照信号のfringe測定をとその結果のサイン関数によるフィットを行う。次に(2)の結果得られた周期を用い、予想されるfringe構造を算出する。得られた二つのサイン関数の位相の差から位置の補正を行い、真の t_1 の位置へ遅延時間を固定する。

(3)の命令をパソコン上から送った時に、自動的に(4)を行い、位置の補正を実行する。これにより、原点から t_1 までの移動を参照レーザー光の波長精度によって実行することが可能となる。これを利用して、固体水素の $v=1-0$ 遷移のフリンジ周期を測定し、結晶温度の変化による遷移周波数の微小な変化を観測することが当初の予定であった。

プログラム完成後、実際にステージを移動させて、その後の位置の補正が上手く行えるかどうかの確認実験を行った。同じ命令を複数回行ってみた結果、問題点としてステージ移動後の位置の再現性にHe-Neレーザーの半波長以上の($> 316\text{nm}$)誤差が生じてしまい、実験結果の誤差が非常に大きくなってしまった。主な要因として参照レーザー光の周波数安定性の問題と干渉計の機械的な安定性の二つが考えられた。機械的な安定性に関して

は、今回の干渉計がマルチパス構造をとっており、図2に示した干渉計の各腕の光学距離が往復で50cm以上とかなり長くなってしまっていることが主因と考えられる。将来的には干渉計全体を筐体中に納めるなどの手法によって改善はできると考えられる。

もう一方の問題となる、周波数安定性に関しては、本研究の性質から周波数精度の高い参照レーザーの使用が必須であり、例えば周波数を安定化したHe-Neレーザーを用いるか、原子の遷移などを用いて周波数を安定化させた半導体レーザーを用いることが必要であると考えられる。当初の目的が、高額な装置を極力使用せず高分解の分光を行うというスタンスであったため、市販の安価なレーザーをベースにチラーによる水冷によって温度の安定化などを試みたが、逆に水の流れによる振動による不安定化が観測され、本研究の期間内では十分な周波数安定性を得ることができなかった。代替案として、例えば市販の周波数安定化He-Neレーザーではカタログスペックで周波数安定性が $\pm 2\text{MHz}$ となっている。これは、周波数の揺らぎとして 4×10^{-9} 程度となる。この揺らぎが無視できると仮定し、1nsの時間間隔をあげた時に水素のfringe(周期 $\sim 8\text{fs}$, 4153cm^{-1} とする)で5%の位相のずれが観測できたとすると周波数の変化は、

$$\frac{8 \cdot 10^{-15} \times 0.05}{10^{-6}} \times 4153 = 1.66 \cdot 10^{-6} (\text{cm}^{-1})$$

となり、50kHz程度の値が分解できることになり、十分意味のある高分解能測定が実現できると期待される。

比較対象として、本研究と原理的に類似の手法が最近デュアル周波数コムを利用した実験としてMorgenwegらによって報告されている(Nat. Phys. 10, 30 (2014))。本研究で苦労している、「時間差の正確に定まった、十分間隔のあいたパルス対」を生成するために干渉計ではなく周波数コムで安定化されたパルス列を用いており、原子の電子遷移において従来のデータよりも1桁以上高い、kHzレベルの高分解能遷移周波数が報告されている。装置的に非常に高額であることを除けば、今回の私の提案の手法をより正確に実行できる実験であることは間違いなく、今後の高分解能実験の一つの潮流になると考えられる。

5．主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0件)

〔学会発表〕(計 1件)

隈本 雄大、香月 浩之、柳 久雄
「Ramsey Fringe 分光を応用した超高分解能
ラマン遷移測定手法の開発」

2015年9月19日

分子科学討論会 2015 (ポスター発表)
(東工大大岡山キャンパス)

6．研究組織

(1)研究代表者

香月 浩之 (KATSUKI, Hiroyuki)
奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科
学研究科・准教授
研究者番号：10390642