

4P047

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

(奈良先端大) ○隈本 雄大, 香月 浩之, 柳 久雄

Development of a high-resolution Raman spectroscopic technique based on Ramsey Fringe Spectroscopy

(NAIST) ○ Yudai Kumamoto, Hiroyuki Katsuki, Hisao Yanagi

【序】

分子に遅延時間をつけたフェムト秒パルスレーザー対を入射して励起を行うと、分子の励起状態波動関数の干渉を引き起こすことができる。波動関数間の相対位相に依存して強めあい、弱めあいの干渉が形成されるため、ダブルパルスの入射するタイミングを制御することで、分子の励起準位の占有率を任意に制御することができる。このような手法は量子コヒーレント制御と呼ばれ、量子情報処理や化学反応制御における基盤技術として重要である。さらに、この遅延時間を連続的に変化させると、波動関数の固有エネルギーに依存した周期で占有数の振動が観測される。この現象は Ramsey Fringe と呼ばれ、原子・分子の遷移周波数を高精度に決定する手法として用いられてきた[1]。本研究では、固体においてもコヒーレント寿命が極めて長いパラ水素をターゲットとし[2]、ラマン遷移過程において Ramsey Fringe を利用した高分解能分光測定を試みる。フリンジの測定をナノ秒スケールで実行することで、状態変化に伴う振動周期の微小な変化を捉えることが可能となる超高分解能測定手法の開発を目指す。今回提案する測定手法を実現するために、数ナノ秒スケールの遅延時間を発生させつつ、アト秒の精度でフリンジ計測が可能であるような干渉計の作成と遅延時間制御のプログラム製作、またその動作結果を報告する。

【目的と原理】

入射するパルスの仕様とタイミング、ならびにパラ水素の振動準位間の遷移過程のスキームを図1に示す。本実験では誘導ラマン遷移により振動励起を行うためにポンプ光、ストークス光の2色のパルスを用いる。さらに検出用に $\Delta \tau_{probe}$ 経過後にプローブ光を入射する。ポンプ光、ストークス光は干渉計によって遅延時間 $\Delta \tau_{control}$ のダブルパルスとする。 $\Delta \tau_{probe}$ を十分大きく確保した上で、 $\Delta \tau_{control}$ を連続的に変化させることで図2のような Ramsey Fringe が観測される。本研究では、この Ramsey Fringe をナノ秒スケールの時間領域で測定する。微小なエネルギー準位の違いによる位相のずれは時間の経過によって蓄積していくため、短い時間範囲での測定では確認できなかった微小な振動周期の変化を、長時間経過後のフリンジ測定を行うことにより評価することが可能であると考えられる。

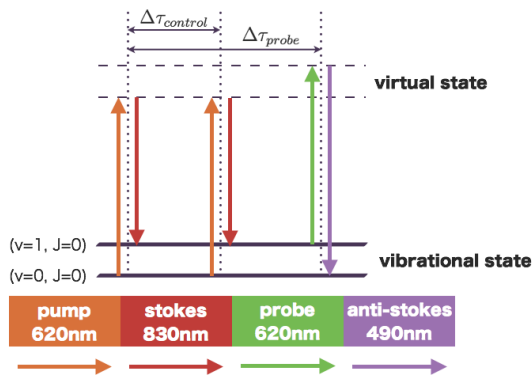


図 1 : スキーム

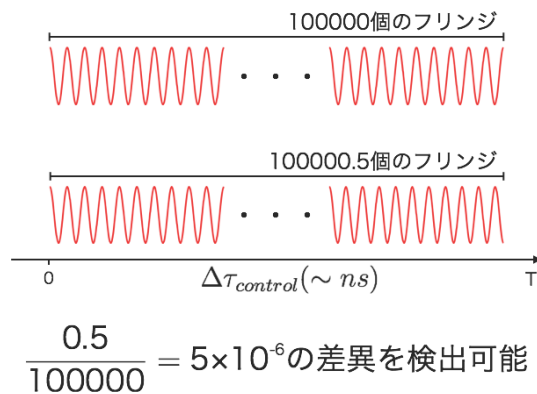


図 2 : Ramsey Fringe 分光測定

【実験】

長時間に渡る遅延時間の変化と高精度なフリンジ測定を可能とするためには、(1) 遅延時間ゼロ近傍及び数ナノ秒の領域で高い精度 (サブフェムト秒) でフリンジ計測を行うこと、(2) ステージを掃引した後の位置の誤差を可能な限り小さくすること、が必要となる。このような要求を満たすために、図 3 のような干渉計を作成中である。コンパクトな設計にするために干渉計の腕をマルチパスにして、光路差の変化量を稼ぐ。遅延時間の大きな変化にはメカニカルステージを使用し、高精度のスキャンにはピエゾステージを使用する。ただし、メカニカルステージの移動精度も必要であるために、参照用の CW レーザーを用い、その信号を参照しながら遅延時間の微妙なずれはピエゾステージで修正できるようにする。

まず、測定原点となる $\Delta\tau_{control} = 0$ の位置を確認する制御プログラムを構築した。位置決めを行う際には、波長の異なる 2 種の CW レーザーを用いる。メカニカルステージを予め $\Delta\tau_{control} = 0$ と予想される位置付近に固定し、ピエゾステージを走査した場合、 $\Delta\tau_{control} = 0$ において二つの波長の干渉は同時に最大となる。フェムト秒パルスの自己相関と CW レーザーの干渉波を同時に測定しつつ、 $\Delta\tau_{control} = 0$ 周辺を掃引した結果を図 4 に示す。測定結果はサイン関数で精度よくフィットでき、その重なりから時間 $t \sim 441.5\text{fs}$ が $\Delta\tau_{control} = 0$ であると定義できる。現在、メカニカルステージを大きく移動した後の移動の誤差を CW レーザーの干渉波形から見積り、ピエゾステージによって誤差の補正を行うプログラムを開発中である。

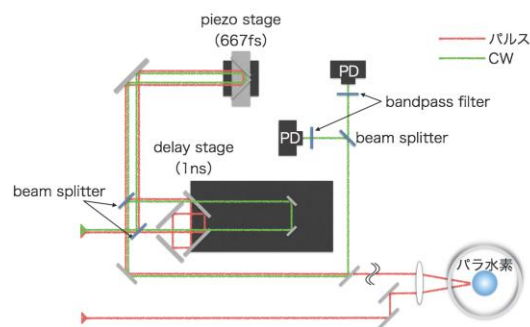


図 3 : 干渉計

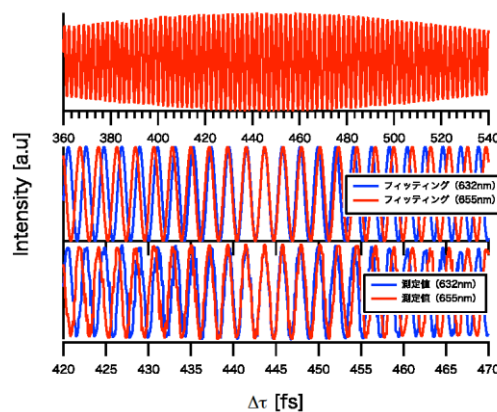


図 4 : 自己相関・CW 干渉測定

参考文献

- [1] N. F. Ramsey, Phys. Rev. 78, 695 (1950).
- [2] H. Katsuki, Y. Kayanuma, and K. Ohmori, Phys. Rev. B 88, 014507 (2013).