

研究報告書

「凝縮系波動関数の時空間マニピュレーションとイメージング」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成22年10月～平成26年3月

研究者: 香月 浩之

1. 研究のねらい

コヒーレント制御とは光の持つコヒーレンスを対象とする系に転写して、系の量子状態を外部から自在に制御する技術である。この手法を用いて、化学反応の生成物比制御や量子情報処理における任意の初期状態の生成などが研究されている。これまでの私の研究において、より単純な孤立分子系を対象としたコヒーレント制御を行ってきたが、この技術を固体凝縮系に応用して、凝縮系中での波動関数を時間空間の両次元において制御し、その結果を観測する技術を開発することが本研究の最終目標である。このような手法が実現できれば、固体中に自在な励起状態の波動関数を生成することが可能となり、その時間的な発展の様子を制御して、イメージとして計測することも可能になる。波動関数の状態は、物質の示す様々な特性の起源となることから、その制御が可能となると対象とする系の様々な性質を制御することにもつながる。

コヒーレント制御を行うためには対象系の位相緩和寿命が重要となる。固体でありながらコヒーレンスの緩和寿命が非常に長いパラ水素結晶の振動励起状態と、自発的なコヒーレンスの形成を伴う、ポラリトン凝縮が起きる可能性がある有機結晶中の励起子ポラリトン状態とを対象とする。パラ水素結晶に状態を書き込む際には、非共鳴ラマン遷移を利用する。生成された波束の状態は結晶中に長時間留まる。最終的な励起状態の分布を読み出すために、波束の分布全体をカバーするような弱く集光させたプローブ光を遅延時間経過後に照射し、散乱光の空間パターンを観測する。有機分子性結晶を用いた実験では、まず蛍光顕微鏡を組み上げ、フェムト秒パルスで励起した際に得られる蛍光の空間コヒーレンスを探る装置を立ち上げる。励起強度がしきい値を超え、ポラリトンの凝縮が起きるような状況が達成できると、結晶中に広がった状態が生成され、異なる位置から発せられる蛍光の間にコヒーレンスが存在するようになると考えられる。励起子ポラリトン状態の生成に伴うコヒーレンスの自発的な形成過程について、超短パルスレーザーを用いて解き明かすことが目標である。

2. 研究成果

(1) 概要

固体パラ水素結晶を作製するために、液体ヘリウムを必要としない閉サイクル冷凍機をベースとした光学クライオスタットを作製した(図1および図2)。空間変調を掛けた光パルスを集光することによって二次元的な波動関数の分布を結晶内に生成し、その分布をプローブ光の散乱イメージとして測定することに成功した。次に、干渉計を用いて作製した時間遅延パルス対を用いて振動波束を二個形成し、両者の間の干渉をイメージ計測した。空間位置の違いによって干渉フリンジの位相が異なっており、振動励起状態の振幅と位相を空間イメージとして計測することに成功した。有機分子結晶を対象として、フェムト秒レーザーを光源とした顕微鏡システ

ムと蛍光スペクトル観測系を作製した。得られた蛍光イメージ像に対して、ダブルスリットによる空間フィルタを組み合わせることで、結晶内の空間的に異なる二点から放射される光のコヒーレンスについて計測する装置を立ち上げた。

(2) 詳細

研究テーマ A「閉サイクルクライオスタットを用いた固体水素結晶作製技術の確立」

平成24年6月の異動による研究環境の変化に伴い、液体ヘリウムを消費せずにパラ水素結晶を作製できる極低温クライオスタットを新たに準備する必要が生じたため、まずはその立ち上げを行った。機械的振動の影響を低く抑えるため、パルスチューブ型の冷凍機を購入し、パラ水素ガス導入用のステンレスチューブ導管や結晶作製用銅製セルを設計し、光学クライオスタットを作製した。光学窓を開けた状態で最低到達温度は4K を切るまで下げることができ、十分な冷却能力が得られた。均一な結晶を作製するための温度及びガス流量のパラメータを探索し、最終的に無色透明でクラックのない良質な結晶を成長させる手法を確立した。



図1 作製したクライオスタット外観

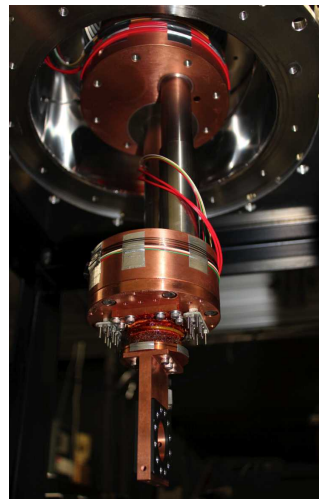


図2 結晶作製用銅セルの拡大図

研究テーマ B「二次元励起状態空間分布の生成とそのイメージングによる一括読み出し手法の確立」

パラ水素結晶中に振動励起状態を生成するために、チタンサファイアオシレータとOPOを用いて830nm, 617nmのフェムト秒パルスを用意した。両者の差周波を水素分子の $v=1 \leftarrow 0$ 遷移と共鳴させ、インパルスラマン遷移で励起を行う。二次元位相変調子に対してホログラムを投影することで、任意の波面パターンを持ったパルスを構成することが可能である。実験ではポンプ光、ストークス光の両者に対して 2×2 のドットパターンを作製し、それらを固体水素結晶中で重ねることで、空間的な励起状態分布を生成した。生成された波束の状態は波数ベクトルがほぼ0の状態であり、固体中で同じ位置に留まる。十分な時間経過後に読み出し用のプローブパルスを照射することにより、波束の状態を読み出す。この際、プローブ光を弱めに集光することで波束の存在する空間全体を一度にプローブすることに成功した。得られたイメージが書き込みパルスと比較して歪んでいるのは、波長の異なるパルスの焦点面の微妙なずれと三次元

的なパルスの重なりが二次元に射影されていることの影響と考えられる。実験のスキーム図を以下に示す(図3)。

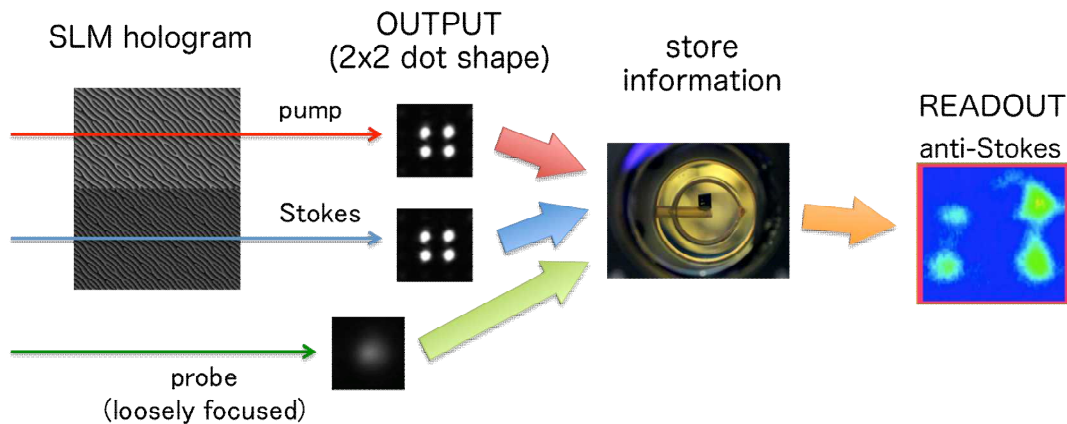


図3 空間整形パルスを用いた振動状態書き込みとイメージ読み出しのスキーム

研究テーマ C「水素結晶中に作製した励起状態分布の干渉イメージング計測の実施」

マイケルソン干渉計を用いて、ポンプ光とストークス光を遅延時間のついたダブルパルスを作製して、それらを固体水素結晶に照射することで遅延をかけた独立した二つの波束を作製した。実験の都合上、本実験ではノーマル水素を対象として用いている。二つの波束を完全に空間的に重ねた場合には、8fsの間隔でスポット全体が明滅する様子が観測された(図4)。得られた干渉フリンジの質は非常に高く、励起に用いた光源の干渉よりも良いことが明らかになった。この理由は、様々なモードの混ざっている光と比較して、固体水素の励起状態が純粋な状態となっていて、フィルタリングされたためと考えられる。

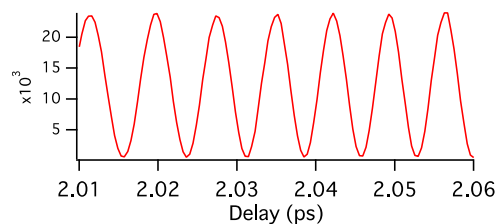


図4 計測された干渉フリンジ

3. 今後の展開

波束間の干渉の様子をイメージング計測により読み出し、空間的に異なる場所で異なる位相の状態が生成されていることを確認することができた。固体水素に関連した研究として、今後顕微分光系へ移行することでよりミクロスコピックな領域における波動関数の位相項の影響を見ることが出来る。超短パルスによる励起であるため、多少の環境の違いによってエネルギーがシフトしても励起することが可能であり、エネルギーの微妙なずれは干渉フリンジの周期の変化としてとらえられる。また、液体水素にも応用は可能であり、この場合水素分子の流れを可視化することにもつながると考えている。

さらに、まだ端緒について所であるが、有機半導体結晶における励起子ポラリトンの流れとその分布を可視化し、さらには照射光の操作によって励起子ポラリトンの分布や運動量を制御する技術にまで発展させていきたいと考えている。

4. 評価

(1) 自己評価

装置がようやく立ち上がった時期に異動が決定し、さらに液体ヘリウムの問題で追加の実験装置の立ち上げが必要となり、丸1年間以上実験が停滞してしまったことは、やむを得ないことではあったが研究の進捗には大きな影響が出てしまった。しかし、結果的にこれまで使用していた装置の問題点を踏まえて、より性能の良い、使いやすい実験装置を作製することができた。異動に伴う様々な追加出費が必要となり、最終年度では研究を効率よく行うことができなかった点も残念である。それでも、固体中に励起状態の空間分布を生成し、その結果をイメージ計測で読み出すことと、異なる位相を持った励起状態の分布を干渉フリンジ計測によって可視化することに成功した。これらの手法は今後固体中での波束状態の制御と観測を行うための基盤となる技術であり、本さきがけの成果である。後はこれらを組み合わせることで、固体中における様々な量子状態の波動関数の位相振幅分布を可視化しつつ制御する手法を確立したい。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

香月研究者は、孤立分子系などを対象としたコヒーレント制御を行ってきた。本さきがけ研究では、固体凝縮系中での波動関数を、光により時間空間の両次元において制御し、生成される波動関数をイメージングすることを目指した。このような手法が実現できれば、固体中に自在に励起状態の波動関数を生成し、その時間的な発展を制御し、さらにはその過程をイメージングすることも可能になる。波動関数の状態が制御できれば、対象とする系の様々な物理・化学的性質を制御することにつながる。

研究期間中に異動があり、新たに閉サイクル冷凍機をベースとした光学クライオスタット系を作製した。この装置を使って、固体パラ水素結晶を作製し、まず空間変調を掛けた光パルスより二次元的な波動関数の分布を結晶内に生成し、その分布をプローブ光の散乱イメージとして測定できることを確認した。次に、時間遅延光パルス対を照射して振動波束を二個形成し、両者の間の干渉状態のイメージングに成功した。さらに、空間位置の違いによって干渉フリンジの位相が異なることを利用し、振動励起状態の振幅と位相の空間分布をイメージングして2次元計測することに成功した。さらに、有機分子結晶を対象として、フェムト秒レーザーを光源とした顕微鏡システムと蛍光スペクトル観測系を作製し、結晶内の空間的に異なる二点から放射される光のコヒーレンスについて計測することが可能な装置を立ち上げた。

異動に伴う、装置の再構築に時間を要したが、それまでの経験を生かした装置を立ち上げる事ができた。それにより期待できる成果が得られ始めたところである。先駆けるための助走段階で研究期間が終わる事となったが、固体パラ水素から有機分子結晶などへ研究対象を広げつつあり、さきがけ研究としての真価をこれから発揮してもらいたい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

該当なし



(2)特許出願

なし

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表

1. “Spatio-temporal manipulation and imaging of condensed-phase wavefunction” 香月浩之
日本化学会第 92 春季年会 JST さきがけ研究領域合同国際シンポジウム
2012.3.27 慶應義塾大学
2. 「アト秒精度の分子波束干渉制御」 香月浩之
横浜国立大学大学院 工学研究院 グループ研究セミナー 先端光科学技術と光機能性材料開発の最前線, 2012.12.21 横浜国立大 (招待講演)
3. 「固体パラ水素を用いた量子情報の保存と読み出し」 ○香月浩之、大森賢治
レーザー学会学術講演会第 33 回年次大会, 2013.1.29 姫路商工会議所 (招待講演)
4. “ultrafast coherent control of delocalized vibrational wavefunctions in solid para-hydrogen”
Hiroyuki Katsuki, 15th Asian Chemical Congress, 2013.8.22 Resorts World Sentosa, Singapore
(招待講演)
5. 「固体パラ水素における時空間振動波束干渉制御」
○堀江 徹, 大森 健三, 柳 久雄, 香月 浩之
第 61 回応用物理学会春季学術講演会 2014.3.18 青山学院大学

受賞

1. 平成 23 年度文部科学大臣表彰・若手科学者賞 2011.4.11
「アト秒精度の波束干渉技術を用いた量子状態精密制御の研究」
2. 分子科学研究奨励森野基金 2011.8.31
「アト秒精度の波束干渉法を用いた分子の精密量子制御についての研究」