

w 研究課題別評価書

1. 研究課題

位相コヒーレント真空紫外パルスによる精密原子分光

2. 氏名

井戸哲也

3. 研究のねらい

極限レーザー技術においては90年代初頭までは、

(I) 狭線幅連続波レーザーによる原子運動操作や高分解能分光

(II) 超短パルスレーザーによる高強度・短波長・超高速現象の探求

という比較的独立した二方向があった（以下、(I)、(II)はこの二方向を意味する。）。そして、本来物理学的には相補的であるはずのこの二方向は近年飛躍的な発展を遂げた光周波数コムによって緊密な連携を取る事が可能になった。これは90年代後半から(I)の専門家であった各国の時間標準研究所において(II)の短パルスレーザーの研究グループが多数立ち上げられたことや、他方(II)の研究グループが光電場の周波数スペクトルや位相にかつてない注意を払って高調波発生をした結果アト秒パルスや波長数nmのコヒーレントな光源が開発されたことに象徴されている。この流れの行き着く学術的な行き先の一つとして、周波数標準を専門分野とする本研究の研究者は「厳密に位相が制御された真空紫外域での精密分光及び周波数コム」をイメージしている。しかし現状を見ると真空紫外域での連続波レーザーは光学部品や利得媒質等がないために当分不可能と推測され、またチタンサファイアベースのCPAパルスの高調波として得られる真空紫外光は繰り返し周波数の低さから周波数コムとして使うのは現実的でなく、また目標とする1秒にも及ぶコヒーレンス時間を確保するのは能動増幅に伴う位相ノイズのために極めて困難である。そこで本研究はオッシレータからの近赤外パルスを受動光共振器に蓄積してパルス強度を上げ、この高次高調波を取り出すことによって厳密に位相が制御された真空紫外光を得ることを目標とし、さらにあわよくばこれを利用して原子分光を行うことを狙いとした。真空紫外域には、水素やヘリウム等構成が簡単な原子の基底状態からの遷移が多数あり、この精密分光はラムシフトの測定精度の向上等物理学の根本部分に大きなインパクトを与える。また、ごく一部の原子においてはこの波長域に核遷移を見いだすことが出来る。核遷移原子は固体中にあっても摂動を受けにくく、なおかつラムディッケ状態に原子核があるため、周波数標準を実現するには理想的であると言われている。また、この手法による真空紫外光発生の実社会への貢献は数多く想定される。近年急速にその位相ノイズが改善されたファイバ光周波数コム+増幅器を基本波として使用すれば、テーブルトップで容易に真空紫外光が取り出せる可能性がある。この場合、CPAパルスに比べて4-5桁高い数10MHzにも及ぶ繰り返し周波数は、例えば真空紫外域顕微鏡の照明等、高い平均強度の一方でより低い電場強度が要請されるアプリケーションにおいて広い活躍の場があると想定される。

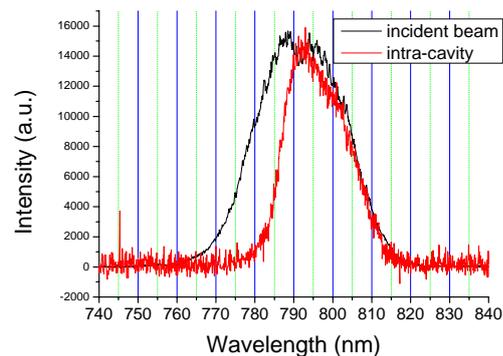
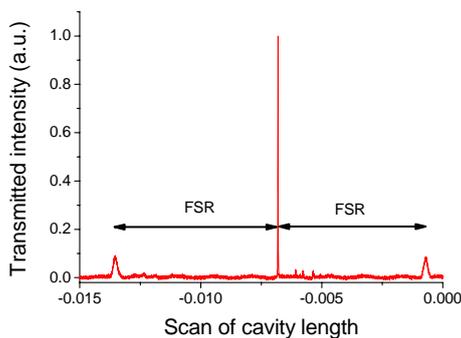
4. 研究の成果

フェムト秒チタンサファイアレーザーの受動光共振器による強度増強

繰り返し周波数 110MHz, パルス幅 60fs, バンド幅 30nm, 平均出力 550mWのチタンサファイアパルスレーザーを製作した。ここではリニアキャビティとし, 石英プリズムペアによる群速度分散補償を採用し, 負分散ミラーは使用していない。これは中心発振波長を結合させる受動光共振器の零速度分散波長に合わせるためにオッシレータの発振波長やバンド幅を可変としておく必要があるからである。また, パルスを蓄積増強する光共振器を真空槽内に組むことを考えて, 槽内



に光学定盤のように 25mmピッチでM6 ねじが切つてある板を内包した角型真空槽を設計し(写真参照), この中で6枚構成のbow-tie共振器を組んだ。レーザーの共振器長と真空槽内の外部共振器長が完全に一致した時のみ共振器内に光強度が蓄積・増強される。下左図はその様子を示している。レーザー共振器の共振器長を掃引し, 共振器鏡から漏れてくる光強度によって共振器内強度を得ている。両方の光学長が一致した時のみ共振器内強度が劇的に上昇するのが見える。また, 自作したEOMを利用して, 繰り返し周波数を共振器に合わせるためのエラー信号を取得し, 安定にパルスを光共振器にロックすることに成功した。結果共振器内で330倍のパルス強度(平均強度 150W相当)を得た。この平均強度で, 繰り返し周波数 112MHz, 焦点でのビー



左図: レーザー共振器長をスキャンしたときの外部共振器内強度。レーザー共振器長と外部共振器の Free spectral range が一致した時のみキャビティに光が結合する。

右図: 入射レーザー及びキャビティに結合した光のスペクトラム。30nm の発振レーザーのバンド幅のうち 20nm 程度が共振器にカップルしている。光共振器の群速度分散のために, 共振器に結合するバンド幅は狭くなっている。

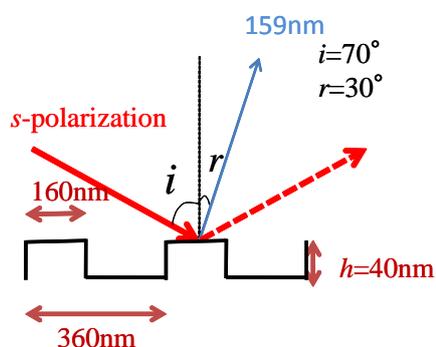
μ系(1/e²半径 10μm), パルス幅 60fsより, 焦点での瞬間ピーク強度は $8.5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ となる。このとき, 共振器に結合した光のスペクトルを元のレーザーのスペクトラムと比較したのが右図である。レーザーの 30nm程度のバンド幅のうち, 20nm程度が結合しているの見える。

増強パルスによるXeガスのプラズマイオン化

上述の bow-tie 共振器の曲面鏡によって作った焦点に Xe ガスを供給して, 共振器内で強度増強されたパルスによって Xe 原子のプラズマイオン化が起きることを確認した。ガスノズルの直径は 0.1mm, 背圧 0.25atm としている。プラズマ電流が最大になるように, ノズルの位置および入射ビームのパルス幅を最適化して, 結果 1.6nAのプラズマ電流を検出した。この電流量は同一のピーク強度の Yb ファイバレーザーで得られている値と同じ程度となっている。現状では高調波を得るにはピーク強度が 2 倍程度足りないと推測され, 高調波を見るにはまだ至っていないが, (1) レーザーの平均出力の増大, (2) インプットカップラーの反射率の最適化, (3) 焦点のビーム系の縮小 (4) 共振器の群速度分散のより厳密な最適化 (5) ビーム径の拡大 (6) input coupler からの反射光の偏光回転を利用したロック法への変更 (7) より低い繰り返し周波数の利用 等の方策で共振器内強度を上げて高調波を得たい。

高調波取り出し用Laminar Gratingの作成

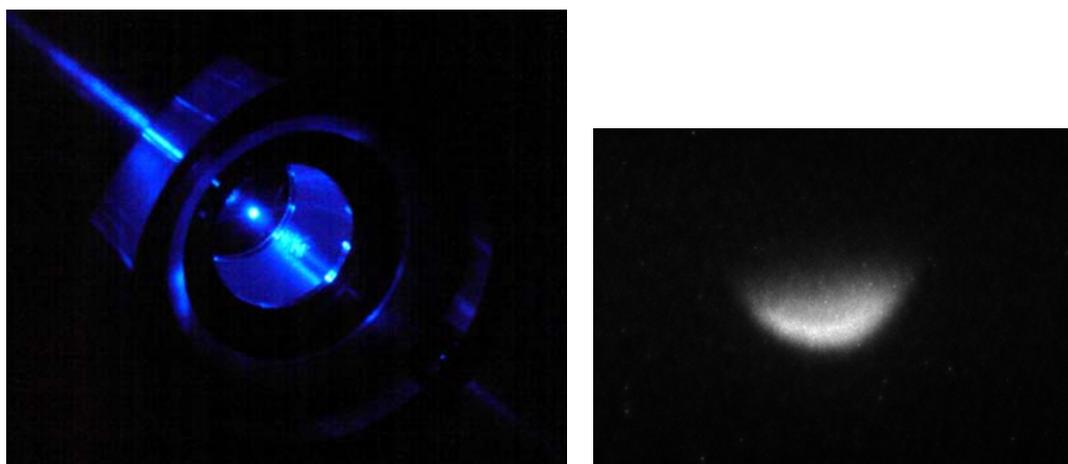
本研究で取り組んでいる受動共振器による強度増強と高調波発生の問題点は高調波を以下にして共振器の外に取り出すかである。低分散誘電体多層膜鏡の表面にラミナー型回折格子構造を形成したものを設計して発注, 入手した。基本思想は, 基本波については鏡, 高調波については回折格子となることを期待し, 高調波を回折光として取り出すことである。高調波は誘電体多層膜には吸収されるため, フレネル反射を利用する。従って入射角度を大きくとった設計とし, s 偏光の光を入射する。設計した回折格子の詳細仕様は図のようになっている。残念ながらこれにて高調波を取り出すまで研究が進まなかった。



冷却Sr原子系の準備及び精密飽和吸収分光によるバッファーガス衝突シフトの測定

真空紫外パルスによる精密原子分光の対象となりうる冷却Sr原子を用意した。双極子許容遷

移及びスピン禁制遷移の二段階での冷却によって温度 $3\mu\text{K}$ で $\sim 10^4$ 個がトラップされた。また、ここでのスピン禁制遷移でのレーザー冷却のために用意した光源及び絶対周波数安定化用蒸気セルを利用して、精密飽和吸収分光を行った。ここでは周波数コムを利用して常にプローブ光の絶対周波数をモニターしながら分光をして、わずかに数kHzのSr原子のバッファーガスとの衝突シフトを検出することに成功した。ここから得られる情報は次世代の周波数標準と言われている光格子時計において測定が困難な系統誤差である真空槽内のバックグラウンドガスとの衝突シフトの評価にとって非常に有用である。研究者のNICTでの任務は次世代の周波数標準として有望である中性Sr原子の光格子時計を構築することである。それに加えて本さきがけ研究のために他の原子系を用意するのは個人型研究として現実的でなく、この冷却原子を利用しての真空紫外域での分光を当初より検討してきた。しかしながら、現状では真空紫外光は強度が小さいためにこれによって原子の速度や位置等の外部自由度を制御するのは困難であり、一方で高分解能分光を目指す、真空紫外光の大きな光子運動量は原子に対して大きな反跳を与え分解能を得るのは容易ではないと感じている。



二段階での冷却・トラップをした ^{88}Sr 原子. 左は 461nm による予備冷却 (温度 $\sim\text{mK}$). 右は 689nm によるトラップ. 冷却遷移の幅が狭く、重力と同じ程度の輻射圧でのトラップのため磁場の形状を反映した形状となっている。

^{88}Sr 原子の光結合分光及びSr光格子時計

研究者は研究期間の最初の9ヶ月はJILA (米国)にて研究を行った。その間においては、帰国が確定していたため本格的な実験装置を立ち上げることは困難であった。そこで、繰り返し周波数 25MHz のChirped pulse oscillatorを結合させるための光共振器用チャンバの製作に参加した。また、それまでのJILAでの実験の延長としての ^{87}Sr の光格子時計及び ^{88}Sr の光結合分光の実験も並行して行った。光格子時計においては 400THz の光学遷移においてわずかに 2Hz (Q 値 2×10^{14})のスペクトル幅の分光に成功した。ここで光周波数を計測するのに用いた周波数コムはチタンサファイアレーザーでリニアキャビティであり、この経験が帰国後のフェムト秒レーザー製作に生かさ

れている。光結合分光については今回の実験は可視域での分光であるが、将来的には真空紫外域での分子の分光は興味もたれるところであり、この実験により基底状態間の分子ポテンシャルの形状等有用な知見が得られた。

5. 自己評価

提案当初予定していた真空紫外光の発生にはまだ到達していないが、その前段階である受動共振器による近赤外増強パルスでの原子のプラズマイオン化を実現したのは研究者の知る限り本邦初である。これを実現している欧米の研究機関では一線級の光科学の研究者のもと複数の学生やポスドクが関与して研究していることを考えると文字通りの個人型研究としては健闘に値すると言えよう。また、光格子時計でのかつてないQ値であるわずか2Hzのスペクトル幅での分光はレーザー発明以来の高分解能分光の歴史における1つのマイルストーンといっても過言ではない。研究者はJILA（米国）にて研究を開始したが、開始後まもなくして帰国が決まり、当初想定していたある程度揃った環境でなく、零から環境を作り直す再スタートとなった。パルスレーザーの操作経験が少ないにもかかわらず、モードロックレーザーの自作から始まった帰国後の研究は決して順風満帆とは行かなかったが、どうにか重要な通過点である多光子イオン化まではこぎつけた。これまで連続波レーザーで光の位相コヒーレンスを追求してきた研究者にとって本さきがけ研究を機会として同じ目的に対してパルスレーザーからも現場レベルでアプローチできたことは、周波数標準の研究者として今後の発展の核を得られたと思う。提案当初の真空紫外光で精密な原子分光をする時代が来るという予測は3年半経とうとしている今でも変わらず、その端緒はちらほらと報告されている。またその一方で本提案の研究を実現するには広く光科学の英知を結集する必要があることも実感した。本テーマの研究としての重要性は研究の狙いに記した通りであるが、これまで比較的独立して発展してきた連続波レーザーの分野とパルスレーザーの分野の研究者が緊密に連携する契機となることも見逃せない。さきがけで得た光科学における多彩な知己を最大限活用して、さらなる研究の発展を期す所存である。

6. 研究総括の見解

周波数コムや高分解能分光等、究極の光の位相制御を真空紫外域で実現することを研究の目標とした。主たる成果は下記2点である。

- ①真空紫外光の発生に重要な役割を果たす、受動共振器による近赤外増強パルスでの原子のプラズマイオン化を実現。
- ②⁸⁷Srの光格子時計及び⁸⁸Srの光結合分光実験をおこない、光格子時計において400THzの光学遷移でわずか2Hz(Q値 2×10^{14})のスペクトル幅の分光に成功。

理論的な実験手法にて堅実に進めている。成果の①は日本でも先駆的な位置を占め、今後の真空紫外域研究を大きく進めるものと高く評価できる。また、成果②の、光格子時計でのかつてないQ値であるわずか2Hzのスペクトル幅での分光は、レーザー発明以来の高分解能分光の歴史における1つのマイルストーンと言うべき特筆すべきものである。

研究成果は、3編の原著論文、3件の招待講演に纏められている。

さきがけ研究期間中に、光周波数コム研究のメッカである JILA から日本に研究場所を異動し、研究環境の新規立ち上げというハンディを負ったが、今後、これらの手法を確立し、受動光共振器による強度増強、及び、周波数コムや高分解能分光等究極の光の位相制御を真空紫外域で実現することを望む。また、真空紫外域では、高い平均強度を求めながら低い電場強度が要請される分野があり応用範囲が広い。この波長域の光学技術を大きく発展させることを期待する。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文 (国際)

・ Tanya Zelevinsky, Martin M. Boyd, Andrew D. Ludlow, Tetsuya Ido, Jun Ye, Roman Ciurylo, Pascal Naidon, and Paul Julienne: “Narrow line photoassociation in an optical lattice” *Physical Review Letters*, Vol. 96, No. 20, p 203201 (2006).

(2) 受賞

- ・ 2007年9月 第1回 日本物理学会若手奨励賞
- ・ 2008年4月 平成20年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞

(3) 解説記事

- ・ 井戸哲也: 「受動光共振器によるパルス強度の増強と高次高調波発生」
レーザー研究 第35巻 10号 p633 (2007).

(4) 招待講演

- ・ Tetsuya Ido, “Background gas collision shift for $^{88}\text{Sr } ^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_1$ spin-forbidden transition”
Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, 2008年11月, University of Western Australia, Perth, Australia
- ・ 井戸哲也, 「極限位相コヒーレント光: 狭線幅な連続波レーザーと光コム」、第6回超高速光エレクトロニクス研究会、2006.11.18.

(5) 学会発表

- ・ 井戸哲也, 「“外部光共振器によるチタンサファイアレーザーのパルス増強”, 応用物理学会秋期関係連合講演会, 2008年9月
- ・ Tetsuya Ido, ” What kind of atomic physics can we enjoy with phase-coherent UV combs?”,
20th International Conference on Atomic Physics, 2006.7.

(B) その他の主な成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- Martin M. Boyd, Andrew D. Ludlow, Sebastian Blatt, Seth M. Foreman, Tetsuya Ido, Tanya Zelevinsky, and Jun Ye: “ ^{87}Sr Lattice Clock with Inaccuracy below 10^{-15} ”: Physical Review Letters, Vol. 98, p 083002 (2007)
- Martin M. Boyd, Tanya Zelevinsky, Andrew D. Ludlow, Seth M. Foreman, Sebastian Blatt, Tetsuya Ido, and Jun Ye: “Optical Atomic Coherence at the 1-Second Time Scale” Science, Vol. 314, p. 1430 (2007).

(2) 招待講演

- Tetsuya Ido, Martin M. Boyd, Andrew D. Ludlow, Tanya Zelevinsky, Seth M. Foreman, S. Blatt, and Jun Ye ; “Ultracold Sr at JILA: Precision spectroscopy, optical clock, and future outlooks”, Symposium on Cold Atom/Matter Waves, Abingdon, UK, May 1 – 3, 2006

(3) 学会発表

- Tetsuya Ido, Tanya Zelevinsky, Martin M. Boyd, Andrew D. Ludlow, Jun Ye, Roman Ciurylo, Pascal Naidon. And Paul S. Julienne, “ Narrow Line Photoassociation in an Optical Lattice”, Quantum Electronics and Laser Science Conference 2006, 2006.5.