法政大学学術機関リポジトリ

HOSEI UNIVERSITY REPOSITORY

PDF issue: 2025-01-29

超流動ヘリウム中Rb原子バブル緩和時間測定 にむけたダイナミックストークスシフトの蛍 光観測

遠藤, 宏紀 / ENDO, Hiroki

(出版者 / Publisher) 法政大学大学院理工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title) 法政大学大学院紀要.理工学研究科編

(巻 / Volume) 65 (開始ページ / Start Page) 1 (終了ページ / End Page) 4 (発行年 / Year) 2024-03-24

(URL) https://doi.org/10.15002/00030766

超流動ヘリウム中 Rb 原子バブル緩和時間測定にむけた ダイナミックストークスシフトの蛍光観測

FLUORESCENCE OBSERVATION OF DYNAMIC STOKES SHIFT TOWARD THE MEASUREMENT OF RELAXATION TIMES OF RB ATOMIC BUBBLE IN SUPERFLUID HELIUM

遠藤 宏紀 Hiroki ENDO 指導教員 松尾由賀利

法政大学大学院理工学研究科システム理工学専攻修士課程

Our research group has been developing a laser spectroscopic method named OROCHI (Optical RI-atom Observation in Condensed Helium as Ion-catcher) for the investigation of hyperfine structure of atoms in superfluid helium (He II). He II has intriguing properties as a laser spectroscopy environment for introduced atoms. Among them, the Stokes shift showing the wavelength difference between the absorption and emission of the introduced atoms is an important phenomenon for understanding the dynamics of He II. In this study, we focus on the "atomic bubble" that causes this shift.

Key Words : atomic bubble, superfluid Helium, laser spectroscopy

1. 研究背景

我々の研究グループでは,超流動ヘリウム中(He II)に導入した原子に対するレーザー分光法 OROCHI(Optical RI-atoms Observation in Condensed Helium as Ion-catcher)を開発している[1,2]. OROCHIでは,加速器から生成された低収量不安定核原子を対象とする実験と,レーザーアブレーション法を用いて He II中に導入された安定核原子の核構造研究を行っている.導入原子の分光環境として He II は興味深い特性を持っている.その中でも,導入原子の吸収・放出波長間に生じるストークスシフトは,バルク He II のダイナミクスを理解するうえで重要な現象である.本研究では,このシフトを引き起こす「原子バブル」に注目する.

He II中に原子を導入すると、導入原子の 最外殻電子と 周囲の He 原子の電子との間にパウリの排他律に起因す る斥力が働く.この斥力によって導入原子とヘリウム原子 の間に空乏領域が形成される.これを原子バブルと呼ぶ [3].特定波長のレーザーを原子に照射することによって 基底状態からよりエネルギーの高い励起状態になり、ある 時間が経過すると蛍光を放出しながら基底状態に戻る.原 子の吸収・放出過程では Franck-Condon 原理が成立する. それにより電子のエネルギー状態の遷移に要する時間 (~10⁻¹⁵ s)はバブル変形に要する時間より極めて短いため、 遷移中はバブルが静止しているとみなすことができる.そ して電子遷移の後を追いかけるようにバブルが変形し、吸 収と放出過程が図1,2のようなサイクルになると考えら れている[4,5].



図1:原子バブルの変形過程



レーザー励起後の原子バブルの変形には数 ps のオーダ ーがかかると推定されているが [6],これまでのところ, バルク He II 中の時間領域での緩和時間の測定はされてい ない.この系では原子バブルの変形度合いに応じて放出波 長が変化していく図3のようなダイナミックストークスシ フトが起こると予想される.



図3:ダイナミックストークスシフトの概要図

時間依存の放出波長の変化を観測することが出来れば, 緩和時間の見積もりも可能となる。そこで,超高速分光技 術を有する理化学研究所・田原分子分光研究室と共同で研 究を行い,異なる波長での時間分解発光測定により,He II 中の Rb 原子バブルの緩和時間を決定することを目指して いる.これまでに,ps レーザー励起による D1 線 (He II における吸収中心波長:778.0 nm)の Rb 原子からのレー ザー誘起蛍光 (Laser induced fluorescence; LIF)を,時間相 関単一光子計数法 (TCSPC) により検出することに成功し ている[7,8].

2. 研究目的

上述のように、He II中における Rb 原子の LIF を TCSPC により検出することに成功している.しかし中心波長より も短波長側の弱い蛍光を測定するためには、S/N 比 (S: LIF の Signal, N:ベースラインの揺らぎ)の向上が必要 である.そこで本研究では S/N 比を向上させ、ダイナミッ クストークスシフトした蛍光の観測を目的とする.

3. 緩和時間測定に向けた S/N 比の向上

本研究では、TCSPCを用いて緩和時間測定を実施する.





この手法では,励起パルスレーザー信号が入力されてか ら光子が検出されるまでの時間を記録することで,蛍光強 度の時間変化が取得できる.測定の概要を図4に示す.

本研究では約80 psの時間分解能での測定が可能である ため、まずは本手法で発光波長のシフトを追跡し、緩和時 間のオーダーを見積もる.

発光波長のシフトを追跡するために,バブル変形過程の 微弱な蛍光を捉える必要がある.そこでバックグラウンド となる励起レーザーからの散乱光の影響を低減するため に,従来の石英容器の代わりに反射防止(AR)コーティ ングを施した窓を持つ黒アルマイト加工の金属容器を導 入した.実験セットアップを図5に示す.



図5:実験セットアップ

クライオスタット内で He II を生成し、He II 中への原子 供給をレーザーアブレーション法により行う. レーザーア ブレーションによって生成された原子を含むクラスター に解離用レーザーを照射し、観測領域に原子を導入する. 蛍光検出系にはモノクロメーターとアバランシェフォト ダイオード (APD) を用い, 蛍光の検出タイミングと励起 パルスレーザーの発振タイミングを励起パルスレーザー の繰り返し周波数である 90 MHz に対応する 11.1 ns 周期 で積算する.励起レーザーには ps モードロック・チタン サファイアレーザーTsunami (レーザー出力:100 mW, 繰 り返し周波数:90 MHz, パルス幅:1.6 ps, 中心波長:779.2 nm)を使用した.ここでモノクロメーターの波長はHeII 中 Rb 原子の D1 放出線の中心値 793 nm 付近に設定してい る. AR コート窓の透過率は, 780 nm から 830 nm の波長 域で 99.4%以上である. これまで観測されていたバックグ ラウンドの大部分は石英容器表面での散乱光と考えられ る. したがって,AR コート窓の導入により散乱光を低減し, LIF 検出効率が向上すると期待される.実験結果の比較を 図6に示す.

図6は、観測された光子強度から ps レーザートリガー が掛かるまでの時間をプロットし、関数として示したもの である.図6のピークは励起レーザー入射時であり、そこ から Rb 原子の自然放出寿命に沿って減衰していることが わかる.図6(a)は、AR コーティングを施していない従 来の石英セルを用いて LIF を観察した結果である[4].図 6(a)の測定では、LIF(青)とLIFと同程度のレーザー散 乱光(オレンジ)の両方が観測された.なお、背景光には レーザー以外の環境光も含まれており、ベースラインとな っている.値が0の部分は検出器が光子をカウントできな いタイミングに相当する.図6(b)より、AR コート窓を 使用した場合、LIF は増加し、レーザー散乱光は LIFの信 号取得に影響を及ぼさない程度であることがわかった.



4. ダイナミクスストークスシフトの蛍光観測

上述で示したように、セットアップ改善により S/N 比の 向上に成功した.ここで時間依存の蛍光を測定する為に中 心波長より短波長の蛍光測定を試みた.モノクロメーター の波長を 785 nm に設定し測定結果を図7に示す.



図 7 : TCSPC 系での光強度

(a) Rb サンプルにレーザーアブレーションあり
(b) Rb サンプルにレーザーアブレーションなし
(c) Ag サンプルにレーザーアブレーションあり

図7(a)のピークは励起レーザー入射時のものである.こ のピークは図3で示したダイナミクスストークスシフト に起因する蛍光であると推測され.このピークがRb原子以 外の微粒子由来でないことを確認する為,図7(c)では Rb の D1線付近に発光波長をもたない Ag 原子をレーザーア ブレーションした場合の蛍光を測定した.これはレーザー 散乱光である図7(b)と同程度の光強度である。これらのこ とは,原子バブル緩和中の Rb 原子の蛍光の観測に成功し たことを示している.

5. まとめと今後の展望

我々は超流動ヘリウムとレーザー分光法を用いて研究を 行っている.本研究ではレーザーアブレーション法を用い て、He II中に導入された安定核原子とバルク He IIの相互 作用に着目している.導入原子の 最外殻電子と周囲の He 原子の電子との間にパウリの排他律に起因する斥力が働 き「原子バブル」と呼ばれる空乏領域が形成される.原子 バブルは導入原子の電子軌道に沿って変形し, それに起因 して He II中原子は吸収・放出波長が異なるという特性を 持つ.そこで原子バブルの変形度合いによって放出波長が 変化していくダイナミックストークスシフトを観測し, 原 子バブル変形時間(緩和時間)の測定を目標に研究を行って いる.これまでに, ps レーザー励起による D1 線(He II に おける吸収中心波長: 778.0 nm)の Rb 原子からのレーザ ー誘起蛍光 (LIF) を,時間相関単一光子計数法 (TCSPC) により検出することに成功している[5].本研究では先行研 究から S/N 比(S: LIF の Signal, N: ベースラインの揺ら ぎ)を向上させ、ダイナミックストークスシフトによる蛍 光スペクトルの波長依存性を観測した.

これまで観測されていたバックグラウンドの大部分は 石英容器表面での散乱光と考えられる.そこで励起レーザ ー付近の波長域で 99.4 %以上の透過率を持つ反射防止 (AR) コーティングを施した窓を持つ黒アルマイト加工の 金属容器を導入した.導入結果,LIF は増加し,レーザー散 乱光はLIFの信号取得に影響を及ぼさない程度まで軽減し た.

次にモノクロメーターの波長を D1 放出波長より短波長 である 785 nm に設定し LIF 観測を行ったところ,ダイナ ミックストークスシフトに起因する蛍光が確認された.し かしレーザーアブレーションによる原子供給の不安定性 から光強度にばらつきが生じるという問題がある.よって 今後は測定回数を増やし,モノクロメーター波長の変更手 順を変えるなどして系統誤差を減らしていく必要がある. これにより,原子バブル緩和時間の測定を行う.

参考文献

[1]X. F. Yang et al., Phys. Rev. A90, 052516 (2014).
 [2]K. Imamura, Applied Physics Express12,016502 (2019).
 [3]B. Tabbert *et al.*, J. Low Temp. Phys., 109, 653 (1997).
 [4]M. Takami, 分光研究, 45, 222 (1996).

[5]藪崎努,『レーザー光による原子物理』,岩波書店(2007).

[6]B. Tabbert, H. Günther, and G. zu Putlitz, J. Low

Temp. Phys., **109**, 653 (1997).

[7]Y. Takeuchi *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep., **54**, 105 (2020).

[8]Y. Takeuchi, Master Thesis, Hosei Univ.(2021).