

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 ($\sim 10^{-15}$ 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]。

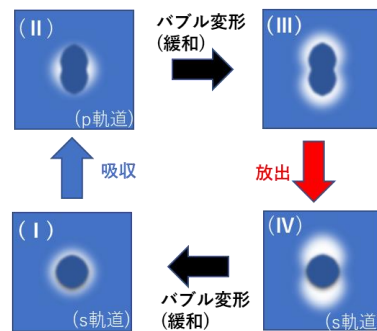


図 1 : 原子バブルの変形過程

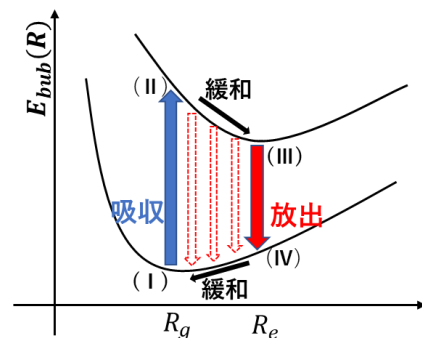


図 2 : 原子バブルのエネルギー準位図

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.

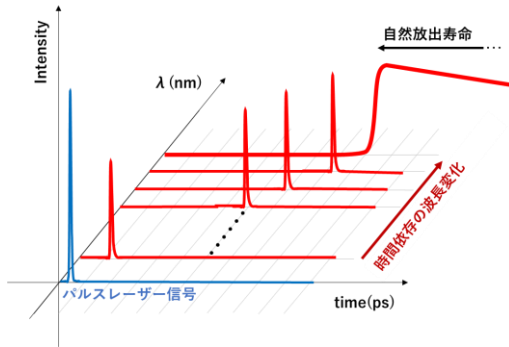


図3：ダイナミックストークスシフトの概要図

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.

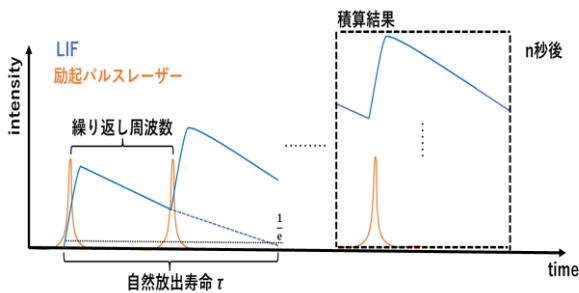


図4：TCSPC データ取得方法

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.

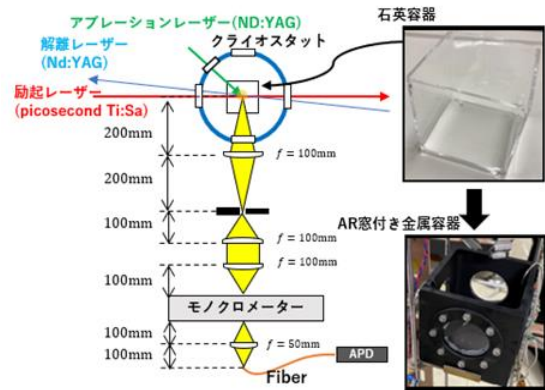


図5：実験セットアップ

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 He II 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 を観測した結果である[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。

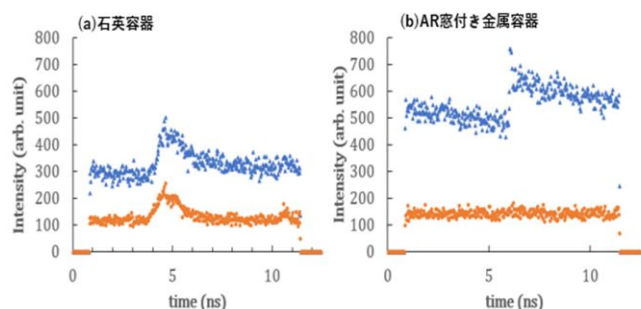


図 6 : TCSPC 系で測定された光強度 (a) 石英容器 (b) AR 窓付き金属容器

4. ダイナミック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。

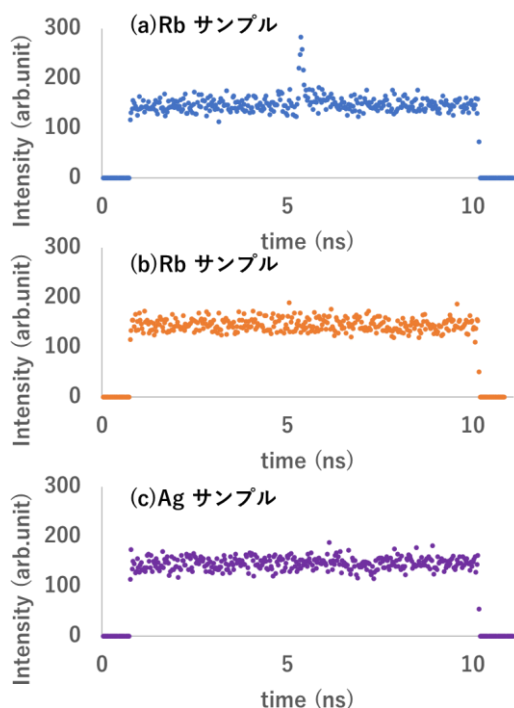


図 7 : TCSPC 系での光強度 (a) Rb サンプルにレーザーアブレーションあり (b) Rb サンプルにレーザーアブレーションなし (c) Ag サンプルにレーザーアブレーションあり

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 で示したダイナミック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具合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. A **90**, 052516 (2014).
- [2]K. Imamura, Applied Physics Express **12**, 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).