

バッファーガス冷却を用いた中赤外高精度分子分光システムの開発

Development of a high-precision mid-infrared molecular spectroscopy system using buffer-gas cooling

(日本物理学会推薦)

代表研究者 岡山大学 宮本 祐樹 Okayama University Yuki MIYAMOTO

This project aims to develop a high-precision mid-infrared molecular spectroscopy system based on buffer-gas cooling. Recent progress in the production and control of ultracold gas-phase molecules has opened new opportunities in various fields. Buffer-gas cooling is a versatile and robust method applicable to a wide range of molecular species, including relatively large molecules that are difficult to study with conventional techniques. The principal investigator has previously demonstrated high-resolution visible spectroscopy of buffer-gas-cooled large molecules, and the present work seeks to extend this capability to the mid-infrared region, where vibrational transitions provide direct information on molecular structures and intramolecular potentials.

During the project period, two key technical developments were pursued. First, a narrow-linewidth mid-infrared light source based on difference-frequency generation was constructed using near-infrared pump lasers at 871 nm and 1064 nm. The main optical components and setup have now been prepared and are ready for mid-infrared light generation. Second, a new buffer-gas cell incorporating a Vespel thermal isolation section was designed to suppress condensation during molecular introduction. Future work will demonstrate spectroscopy of carbonyl sulfide near 4.8 μm in the buffer-gas cell and then combine optical-frequency-comb stabilization with a mid-infrared enhancement cavity for sensitive precision spectroscopy of cold large molecules.

研究目的

近年、物理分野において極低温気相分子を生成・制御する技術が急速に高度化し、量子情報科学や基礎物理学への応用が数多く提案されている。代表的な例として挙げられる冷却分子を用いた電子の電気双極子モーメント探索では、すでに大きな成果が報告されており、間接的に大型加速器実験を上回る感度で素粒子物理モデルに制限を課することが可能となってきた。これらの研究では冷却分子の高い制御性と長い相互作用時間を活用することが重要であり、現在大きな注目を集めている背景には、分子を単一量子状態に近い条件で生成・制御する技術が現実のものとなりつつあることがある。

冷却分子の生成法は大きく二つに分けられる。一つは冷却原子を会合させて分子を生成する方法であ

り、もう一つは高温または室温の分子を直接冷却する方法である。汎用的な分子分光システムを構築するためには、対象分子が限定されやすい冷却原子会合法ではなく、多様な分子に適用可能な直接冷却法を用いる必要がある。直接冷却法に関する研究は世界的に進展しており、2016 年以降、二原子分子において相次いで 1 mK 以下の冷却が達成されている。一方で、三原子以上からなる多原子分子、特により大型の分子の冷却は、いまだ発展途上にある。その中で、汎用性の高い手法として注目されているのがバッファーガス冷却法である。

バッファーガス冷却は以前から知られていた手法であるが、冷却分子研究への関心の高まりとともに、近年改めて注目を集めている。特に、分子のレーザー冷却における予備冷却法として有効であることが、

その重要性を高めている。バッファーガス冷却は、極低温の不活性ガスとの衝突によって分子を冷却するという単純な原理に基づいており、分子種に対する汎用性が高く、信頼性の高い手法である。分光手法としても、従来広く用いられてきた超音速ジェット法と相補的な手法として、近年活発に研究されるようになっていく。

特に、超音速ジェット法では実験室系における分子の並進速度が大きいのに対し、バッファーガス冷却では並進速度が比較的小さく、光との相互作用時間を長く確保できるという利点がある。これは、超高精度分光や分子の量子制御を行う上で大きな利点であり、バッファーガス冷却法は今後ますます重要になると考えられる。実際、ここ数年でバッファーガス冷却を用いた高精度分光に関する研究は増加しており、kHz レベルの高精度分光も可能になりつつある。

代表研究者はこれまで、可視域において冷却大型分子の高分解能分光を行ってきた。分子の高精度分光には、スペクトル線幅の狭窄化や量子状態分布の単純化のために、標的気相分子の冷却が不可欠である。しかし、従来の冷却・分光手法では大型分子を十分な密度で低温気相中に導入することが難しく、分子の高精度分光は主に比較的単純な分子に限られてきた。代表研究者は最近、バッファーガス冷却と狭線幅レーザーを組み合わせることで、従来の高精度分光では扱いが難しかった比較的大型の分子について、可視域における高分解能分光に成功した。これらの成果は、バッファーガス冷却法が大型分子の精密分光に有効であることを示すものである。

本研究では、この技術をさらに中赤外領域へ拡張することを目的とする。中赤外領域には分子振動に由来する遷移が多く存在し、分子構造や分子内ポテンシャルに関する直接的な情報を得ることができる。また、対象とする遷移によっては寿命幅の影響が小さく、さらに周波数が可視域よりも低いため、ドップラー幅の低減も期待できる。これにより、より高精度な分光が可能になり、分子定数の決定精度の向上が期待される。より高精度な分子定数を量子化学計算と比較することで、分子の形状、エネルギー構造、振動回転相互作用などに関する情報をさらに詳細に得ることが可能となる。一方で、精密な実験データを基準として量子化学計算の精度を検証・改善することにより、理論計算手法の発展にもつながる。

分子の構造や性質を量子化学計算によって高精度に予測できるようになれば、逆に所望の構造や性質を持つ分子を設計することも可能となる。これは、医薬学、材料科学、化学反応制御など、さまざまな分野で重要性を増している分子デザインのあり方を大きく変える可能性を持つ。

本研究では、既存の冷却分子分光システムを拡張し、最終的に冷却分子中赤外精密分光システムを構築することを目指す。本システムでは、光周波数コムにロックした狭線幅レーザーの差周波発生によって狭線幅中赤外レーザーを生成し、さらに中赤外領域における小さな吸収率を補うための感度向上用中赤外光共振器を組み合わせる。これにより、高精度かつ高感度な中赤外分子分光システムを実現する。

その中で本研究期間内には、以下の二点を重点的に進めた。第一に、分光用中赤外レーザー光源の開発である。第二に、標的分子導入時の凝縮を抑制するための新たなバッファーガスセルの開発である。これらの要素技術を確立することで、冷却大型分子を対象とした中赤外高精度分光の基盤を構築する。

研究経過

以下では重点的に進めてきた中赤外レーザー開発と新たなバッファーガスセル開発について、主に説明する。なお、上記二点のほかにも、スペクトル解析手法の開発や新たな広帯域分光法の開発などを行ってきた。大きな分子のスペクトルは複雑であり、その解析手法は十分には確立されていない。スペクトルを解析できなければ、そこから分子の構造や性質に関する情報を得ることはできないため、本研究においても解析手法の確立は重要である。現在、ベイズ推定を用いた解析法を開発中である。また、多くの分子では遷移周波数が十分な精度で明らかになっていないため、高精度分光を行う前段階として、広帯域にわたってスペクトルを取得できる手法が必要である。そのため、白色光を用いた分光手法を開発中であり、赤外領域への拡張も検討している。

① 中赤外レーザー開発

中赤外レーザーのうち、量子カスケードレーザーや光パラメトリック発振器は、広い周波数範囲にわたって強い中赤外光を供給できる。一方で、これらの光源を高分解能分光に用いるためには、中赤外周波数コムや高品質な中赤外光共振器を用いた線幅狭

窄化が必要となる。その実現は不可能ではないものの、広帯域にわたって行うことは技術的に容易ではない。これに対し、差周波発生による中赤外光発生では、可視域から近赤外域のポンプレーザーを光周波数コムにロックすることで、発生する中赤外光の線幅を狭窄化することができる。そのため、比較的容易に狭線幅の中赤外レーザーを得ることが可能である。そこで本研究では、近赤外域の狭線幅レーザーの差周波発生により中赤外光を発生させることを目指した。

差周波発生には、導波路型周期分極反転ニオブ酸リチウム (waveguide periodically poled LiNbO₃: WG-PPLN) を用いた。PPLN は、疑似位相整合による高い変換効率、広い適用周波数範囲、および高い光損傷耐性を有し、広く利用されている優れた非線形光学結晶である。WG-PPLN では、PPLN を導波路型にすることで、光が小さな領域に閉じ込められ、結晶全長にわたって高いビーム強度を維持できる。そのため、バルク PPLN よりも高い差周波発生変換効率が期待でき、比較的低い強度のために出力が小さくなりやすい連続波レーザーシステムにおいて特に有効である。

本研究で用いた WG-PPLN は NTT Electronics 社製の WD4800-000-A-B-C である。これは 1064 nm と 871 nm の近赤外レーザーの差周波により、4.8 μ m の中赤外光を発生させるよう設計されている。そのため、まずこれら二つの近赤外レーザーを用意する必要があった。

871 nm の光源としては、Coherent 社製のチタンサファイアリングレーザーを用いた。532 nm、10 W のレーザーで励起することで、約 500 mW の出力を得た。1064 nm の光源としては、自作の外部共振器型半導体レーザー (ECDL) とテーパーアンプ (TA) を用いた。ECDL は Eagleyard Photonics 社製のダイオードを用いた Littrow 配置のレーザーであり、波長 1064 nm 付近で約 40 mW の出力が得られる。これを m2k-laser 社製の TA により約 1 W まで増幅し、差周波発生に用いる構成とした。

図 1 に、中赤外レーザーのブロックダイアグラムと実機の写真を示す。なお、スペースの都合により、チタンサファイアレーザー本体は写真には含まれていない。各近赤外レーザーの出力は、レンズと波長板により空間モードおよび偏光方向を調整した後、ダイクロイックミラーで合波し、WG-PPLN の入力

偏波保持ファイバーに入射する構成とした。

図 1 の写真 に示すように、必要な主要コンポーネントの整備と光学系の構築は完了している。今後、ファイバー結合効率、偏光条件、位相整合温度などの最適化を進めていく。

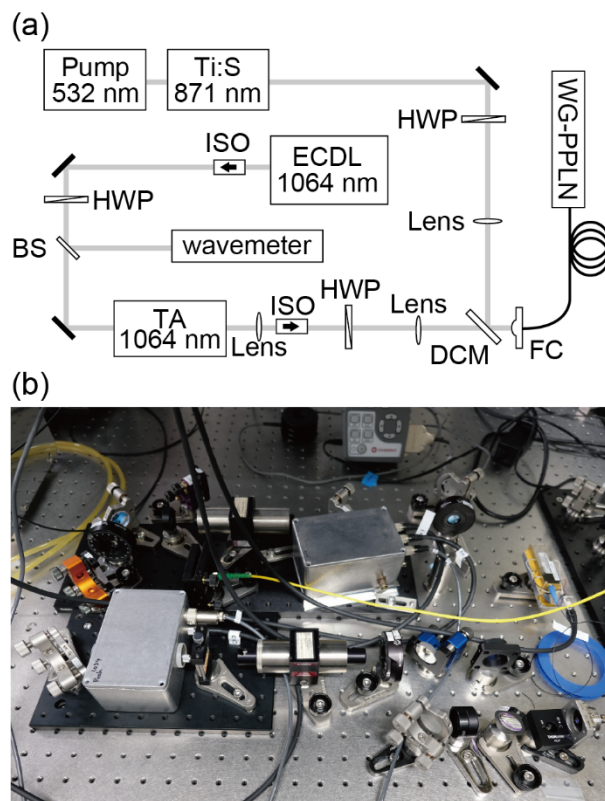


Figure 1. Block diagram (a) and photograph (b) of the mid-infrared laser system. ISO, optical isolator; BS, beam splitter; HWP, half-wave plate; DCM, dichroic mirror; FC, fiber coupler.

② バッファーガスセル開発

バッファーガス冷却法は、比較的シンプルかつ堅牢なシステムであることが大きな利点の一つである。一方で、技術的な課題の一つとして、標的分子をいかにバッファーガスセル内に導入するかという問題がある。バッファーガスセル自体は 4 K 程度に冷却されているため、標的分子はセルへ導入される前、あるいは導入直後に容易に凝縮してしまう。

この問題に対する方法の一つとして、固体標的をセル内に配置し、外部からレーザーを照射することで、セル内で標的分子を気化するレーザーアブレーション法が広く用いられている。しかし、この方法

は室温で気体または液体である標的分子には適用が難しい。そのため、セルと標的導入管を熱的に分離したうえで、ヒーターにより導入管を昇温し、標的分子を気相のままセル内へ導入する方法が用いられる。しかし、セルと導入管の間で、十分な断熱性と気密性を同時に確保することは容易ではなく、これまで様々な工夫がなされてきた。

研究代表者もこれまで、レーザーアブレーション法による分子の導入を行ってきた。本研究では、より多様な標的分子を用いることができるよう、導入管の加熱により標的分子を導入できるセルの開発を行った。特に、セルと導入管の断熱部分に Vespel を用いる工夫をした。Vespel はポリイミド系のスーパーエンジニアリングプラスチックであり、耐熱性、機械的強度、真空適合性に優れるため、本目的に適した材料である。

実機の写真を図 2 に示す。右側の色の濃い部品が Vespel を用いた断熱部である。セルの各部品はインジウムシールにより気密を保持する構造となっており、Vespel 製の断熱部は断熱性と気密性という二つの条件を同時に満たすことができる。断熱された導入管の奥には、ヘリウムガス用の導入管が設けられている。ヘリウムガスはセルへの熱負荷を避けるため低温で導入することが望ましく、標的分子とは別系統で導入する構造とした。また、セルの側面には分光用の赤外窓を設けた。本セルにより、従来よりも多様な分子を測定対象にでき、中赤外分光が容易な分子を用いて、本分光システムの性能チェックが容易になると期待される。

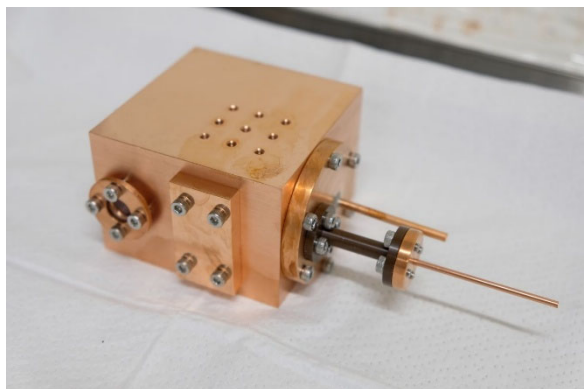


Figure 2. Photograph of the buffer-gas cell

考察

次の課題は、中赤外光発生の最適化である。特に、

偏波保持ファイバーへのカップリング効率の向上が有効であると考えられる。そのため、ポンプレーザの空間モードの調整を集中的に行うとともに、偏光条件や位相整合温度も最適化していく。

作製したバッファーガスセルについては、想定より重量が大きくなったため、装置への取り付けに問題が生じる可能性がある。その場合には、不要な部分を削るなど、軽量化のための対応が必要となる。また、極低温環境下において、Vespel と銅部品の接合部をインジウムシールにより気密に保持するための条件を確立する必要がある。

その後は、作製したバッファーガスセルを装置に設置し、4.8 μm 帯に吸収を持つ硫化カルボニル分子を外部から導入して分光測定を行う。作製したセルにより十分な量の分子をセル内に導入し、吸収信号の観測を目指す。この実証により、開発した中赤外光源と新規バッファーガスセルを組み合わせた冷却分子分光の基本動作を確認する。

以上を当面の課題として進めたうえで、将来的には近赤外ポンプレーザの光周波数コムへのロックを行い、発生する中赤外光の周波数安定性と絶対周波数精度を向上させる。さらに、中赤外光共振器を導入することで吸収感度を高め、冷却大型分子を対象とした高精度・高感度な中赤外分光へと発展させる。

研究の発表

口頭発表

1. 宮本祐樹「バッファーガス冷却された分子の高分解能分光」 第三回冷却分子・精密分光シンポジウム (2024)
2. 宮本祐樹「バッファーガス冷却されたメタルフタロシアニンの高分解能スペクトルの解析」 日本物理学会 2025 年春季大会 (2025)
3. 宮本祐樹「マルコフ連鎖モンテカルロ法を用いた分子定数の推定」 第 25 回分子分光研究会 (2025)
4. 宮本祐樹「マルコフ連鎖モンテカルロ法を用いた分子定数の推定」 日本物理学会 2026 年春季大会 (2026)
5. 宮本祐樹「白色光源を用いたバッファーガス冷却分子の広帯域分光」 日本物理学会 2026 年春季大会 (2026)