

平成 21 年 4 月 20 日現在

研究種目：基盤研究 (A)

研究期間：2005~2007

課題番号：17204017

研究課題名 (和文) 超短パルスレーザーを用いた新奇な核スピン偏極法の開発

研究課題名 (英文) Novel method to polarize nuclei by short laser pulses

研究代表者

中嶋 隆 (NAKAJIMA TAKASHI)

京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授

研究者番号：50281639

研究成果の概要：基底状態にあるアルカリ土類金属原子を短レーザーパルスによって複数の超微細準位にコヒーレントに励起すると、核スピン偏極が  $I=1/2$  の核種については最大 89%、 $I=3/2$  の核種については最大 76%にまで数ナノ秒の時間スケールで変動することを理論的に示した。これは、超高速核スピン偏極が理論的に可能であることを示すものであり、寿命の短い不安定核種へも原理的に応用できると言う点で原子核物理学の研究に大きく寄与する。

また、核スピン偏極の実験実証に先んじて、超高速電子スピン偏極を世界で初めて実験的に観測した。得られた結果は我々の ab-initio 理論計算の結果と良く一致した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005 年度	10,100,000	3,030,000	13,130,000
2006 年度	10,200,000	3,060,000	13,260,000
2007 年度	9,400,000	2,820,000	12,220,000
年度			
年度			
総計	29,700,000	8,910,000	38,610,000

研究分野：量子エレクトロニクス

科研費の分科・細目：物理学 (素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理)

キーワード：核スピン, 偏極, コヒーレンス, 光イオン化

## 1. 研究開始当初の背景

核スピンが高偏極した原子・イオンは、基礎から応用まで非常に幅広い用途が考えられるため、極めて有用性の高いことは既によく知られている。最も基礎的な応用としては、例えば、原子核物理実験での利用が挙げられる。これは、核スピンが偏極した原子・イオンを高エネルギーに加速し、原子核衝突させることにより、無偏極原子核の衝突に比し、核の状態についてより詳しい知見を得ようとするものである。陽子や重陽子について

は、有効な核スピン偏極法も確立され、高い偏極度が既に得られている。その他、Li など、ごく一部の核種については、連続発振狭帯域レーザーによる光ポンピングを応用し、核スピンを偏極させることができる。しかし、他のほとんどの核種、特に不安定核種については、効率のよい核スピン偏極法は未だ確立されておらず、甚だ効率の悪い原子核衝突実験にならざるを得ない。

また、核スピン偏極原子の非常に実用的な応用としては、医療用に使われる核磁気共

鳴画像 (MRI) 計測への利用が挙げられる。医療用 MRI への利用という意味では、C や Xe が重要な核種であるが、残念ながらこれらの原子の核スピンを効率よく高偏極させる方法は未だ確立されていない。希ガス核種に対して現在主流となっているのは、『間接的』に希ガス原子の核スピンを偏極させる手法である。具体的には、アルカリ金属原子の遷移波長に共鳴する波長を持った円偏光レーザーを気体状態のアルカリ金属原子 (Rb) と希ガス (Xe) の混合気体に照射し、アルカリ金属原子に誘起された電子スピン偏極を衝突 (スピン交換相互作用) によって希ガスの核スピン偏極へ移行させる。核スピン偏極した He や Xe などの希ガスは、緩和時間が非常に長いため取り扱いも容易で、MRI による肺や胃などの医療診断感度向上に非常に役立っているものの、このような『間接的』核スピン偏極法では高偏極を得ることは難しい。更なる感度向上には、やはり、より効率のよい核スピン偏極法の確立が望まれる。

## 2. 研究の目的

本研究では、これまでのスピン偏極に関する一連の研究で我々が得た理論的および実験的知見に基づき、高強度の超短パルスレーザーを用いた新奇な『直接的』核スピン偏極法の開発を行う。手順としては、(1) 超短パルスレーザーによる光電子/光イオンのスピン偏極、(2) 超短パルスレーザーと dressing laser の併用による光電子/光イオンのスピン偏極、そして(2)の延長として、(3) 加速されていない原子に対する核スピン偏極、最後に、(4) 加速ビームを用いた核スピン偏極、と年度毎に順を追って理論と実験を比較しつつ研究を進める

## 3. 研究の方法

まず理論モデルを提案し、それを実験で実証するという形で理論と実験の両面から研究を進めた。

理論モデルについては、基底状態にあるアルカリ土類金属原子を円偏光した短レーザーパルス (ポンプパルスと呼ぶ) によって複数の微細準位 (超微細準位) へコヒーレントに励起し、しかるべき時間遅延の後、第 2 の短レーザーパルス (プローブパルスと呼ぶ) によってイオン化するというスキームを考案した。このスキームでは、価電子 (核) のスピン偏極は以下に述べるような 2 段階のプロセスによって引き起こされる。すなわち、まず第 1 段階として、円偏光ポンプパルスを原子が吸収することによって光子の角運動量が電子の軌道角運動量へ移行する。この段階ではスピン偏極は生じていない。第 2 段階として、軌道角運動量の偏極がスピン軌道相互作用 (超微細相互作用) によって価電子

(核) のスピン角運動量の偏極へと移行し、電子 (核) スピン偏極が発生する。この説明から明らかなように、ポンプパルスで励起した「直後」はスピン偏極は生じていない。時間遅延をおくことにより時間遅延の関数として原子内部に価電子 (核) のスピン偏極が生じる。

理論に関しては、電子スピン偏極、核スピン偏極の両方とも我々が考案したモデルによって実現できるという事が分かったが、実験についてはまず、価電子のスピン偏極の実験実証から始めることとした。ターゲット原子には Sr を選び、ナノ秒の色素レーザーとフェムト秒の 2 色レーザーを組み合わせ、Sr を光イオン化した。生成した Sr イオンは我々の理論によればスピン偏極しているはずであり、Sr イオンのスピン偏極度をさらに別のナノ秒色素レーザーによって光学的に検出した。

## 4. 研究成果

研究を進めるに際してはまず理論研究を先行させ、実験的に実現できそうな目処が立った時点で実証実験を開始するという形を取った。すなわち、本研究は研究申請時点で既に終了していた超高速電子スピン偏極の提案および理論解析結果を受けて、超高速核スピン偏極の提案と理論解析、および超高速電子スピン偏極の実証実験を進めた。

4.1. 超高速核スピン偏極の提案と理論解析  
電子スピン偏極と同様、核スピン偏極を実現するにも、動的な方法を用いることができる。この両者の大きな相違は、電子スピン偏極についてはスピン軌道相互作用を有効利用するのに対し、核スピン偏極については超微細相互作用を有効利用するという点にある。しかしながら、超微細構造のエネルギー間隔からもわかるように、超微細相互作用はスピン軌道相互作用に比べ格段に弱い。これはつまり、照射レーザー光子の持つ角運動量を光吸収によって電子の軌道各運動量成分に移行し、それをさらに超微細相互作用を介して核スピンに移行させるには通常極めて長い時間 (マイクロ秒~ミリ秒) を要することを意味する。ところが励起状態の寿命は中性原子の場合、大抵は数ナノ秒から数 10 ナノ秒のオーダーであり、超微細相互作用によって核スピン偏極が実現する前に励起原子は脱励起してしまうという根本的な問題に直面する。この問題は、適当な励起状態を用いることによって回避できる。つまり、アルカリ土類金属原子の場合には、超微細相互作用を起こさせる励起状態としては 1 重項のかわりにまず 3 重項を用いることがよい。というのは、3 重項は 2 つの価電子のスピン向きが同じであるために空間的に近づくことが

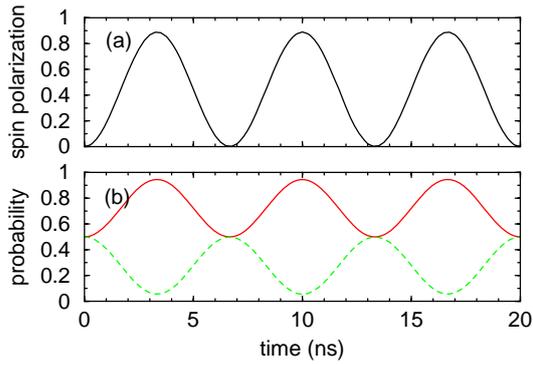


図 1.  $^{27}\text{Mg}$  ( $I=1/2$ )  $3s^2-3s3p\ ^3P_1$ 系について (a) 核スピン偏極度と (b) 異なる核スピンの向きを持つ励起原子の占有密度 (相対値) の時間変化. (b) で赤線は  $M_I=1/2$ , 緑破線は  $M_I=-1/2$  の占有密度を表す.

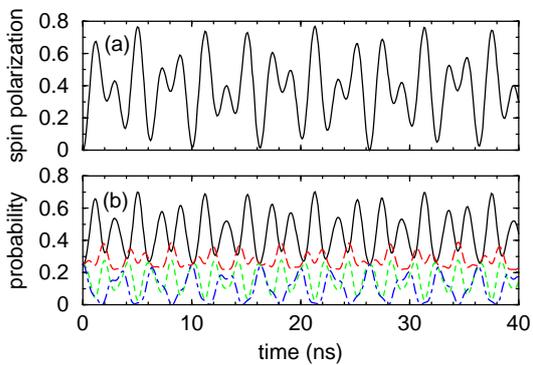


図 2.  $^{37}\text{Ca}$  ( $I=3/2$ )  $4s^2-4s4p\ ^3P_1$ 系について (a) 核スピン偏極度と (b) 異なる核スピンの向きを持つ励起原子の占有密度 (相対値) の時間変化. (b) で黒線は  $M_I=3/2$ , 赤破線は  $M_I=1/2$ , 緑破線は  $M_I=-1/2$ , 青一点鎖線は  $M_I=-3/2$  の占有密度を表す.

でき、その結果として価電子は核により近いところに存在することができるので、同電子配置の 1 重項に比べ超微細相互作用が数倍強くなる傾向があるからである。また、アルカリ土類金属原子の第 1 励起状態は 3 重項であるため、1 重項の基底状態への遷移はスピン禁制であることから非常に長い寿命を持つと言うことも好都合である。そこで、Mg および Ca 原子について異なる核スピン値  $I=1/2, 3/2$  を持つ種々の同位体を考え、核スピン偏極の時間変化を理論的に評価した。例として  $^{27}\text{Mg}$  ( $I=1/2$ ) の結果を図 1 に、 $^{37}\text{Ca}$  ( $I=3/2$ ) の結果を図 2 に示す。それぞれの図で上段はスピン偏極度の時間変化を、下段は異なる核スピンの射影成分 ( $I=1/2$  の場合には  $M_I=\pm 1/2$ ,  $I=3/2$  の場合には  $M_I=\pm 1/2, \pm 3/2$ ) の向きを持つ励起原子の占有密度 (相対値) の時間変化を表している。この結果から、核スピンについても励起準位を適当に選びさえすればナノ秒の時間スケールで励起原子が脱励起するより十分早く超高速核スピン偏極を誘起できることが分かった。

#### 4.2. 超高速電子スピン偏極の実証実験

上述の超高速核スピン偏極に関する理論研究と平行し、超高速電子スピン偏極の実証実験を進めた。実験配置図およびイオン化スキームを図 3(d) および (a) に示す。レーザーアブレーションによって発生した真空チャンバー内の Sr 原子ガスは 689 nm の円偏光ナノ秒光パルスによって  $5s5p\ ^3P_1$  ( $M_J = +1$ ) に励起される。この励起後、我々は 2 色のフェムト秒光パルスを使ってポンププローブ実験を行った：まず、波長 794 nm、エネルギー約 1 mJ/パルス、時間幅 150 fs の光パルス (縦偏光) は非線形光学結晶 (BBO) によって第 2 高調波 397 nm の光パルスを発生する。この 397 nm 光は横偏光であるため、 $\lambda/2$  波長板によって 794 nm と同じ縦偏光にする。その後、この 2 色フェムト秒パルスは delay line によってパルス間の時間遅延をフェムト秒の時間オーダーで制御され、397 nm、794 nm のパルスの順に励起状態にある Sr  $5s5p\ ^3P_1$  原子ガスへと照射され、さらなる励起およびイオン化が起こる。これら一連の光パルスのタイミングチャートを図 3(c) に示す。我々の理論によると、生成する Sr イオンのスピン偏極度は時間遅延の関数として変化するはずである。生成イオンのスピンを検出するため、図 3(b) に示すように生成した Sr イオン 421 nm の円偏光ナノ秒光パルスを照射する。すると、イオン検出レーザーが右 (左) 円偏光である時に観測される  $5p_{1/2}$  から  $5s_{1/2}$  へのレーザー誘起蛍光強度  $I_{\text{RCP}}$  ( $I_{\text{LCP}}$ ) からスピン偏極度  $P$  は  $P = [I_{\text{LCP}} - I_{\text{RCP}}] / [I_{\text{LCP}} + I_{\text{RCP}}]$  として決定できる。本実験では  $I_{\text{RCP}}$  と  $I_{\text{LCP}}$  をポンパパルスとプローブパルスの時間遅延の関数として 0-12 ps まで測定し、それらのデータからスピン偏極度  $P$

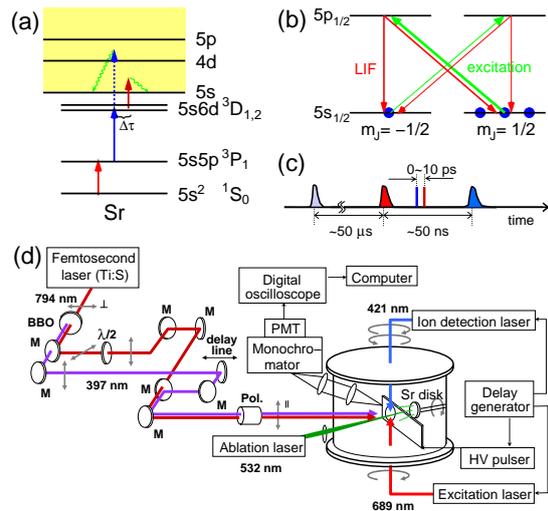


図 3. 超高速電子スピン偏極の実証実験に用いた (a) レベルスキーム, (b) 生成 Sr イオンのスピン偏極検出法, (c) パルスタイミングチャート, (d) 実験配置.

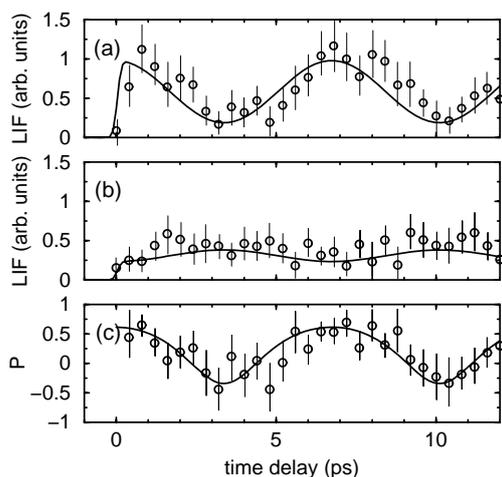


図 4. (a) Sr イオンの電子スピン偏極度と (b) 上向きスピンおよび (c) 下向きスピンの Sr イオンからのレーザー誘起蛍光強度の遅延時間依存性.

を評価した。実験結果を図 4(a)-(c)の丸印で示す。予想通りスピン偏極度は大きく変化し、その変動周期は 6.7 ps であった。これはコヒーレントに励起した  $5s6d\ ^3D_1$  と  $^3D_2$  のエネルギー間隔の逆数に正確に一致しており、時間依存スピン偏極がスピン軌道相互作用に由来していることを示している。

次に理論との整合性を見るため、*ab initio* の理論計算を行った。計算には少数準位系の時間依存シュレーディンガー方程式を用い、また、イオン化（束縛状態から連続状態への遷移）についてスピンの向きも考慮して必要な式の導出を行った。また、計算に必要な種々の遷移双極子モーメントは B-spline を展開関数として用いた原子構造計算から得た。計算結果を図 4 に実線で示す。実験結果との整合性が非常によいことがわかる。

本研究では世界で初めて超高速スピン偏極を実験実証した。核スピン偏極についても超高速核スピン偏極を実現するための新しいスキームを理論的に提案することができたが、実験実証まで行うことは時間の都合上できなかった。本研究が終了した現在は、この研究をさらに発展させ、超高速核スピン偏極を実験実証することを目指している。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

- [1] Takashi Nakajima, Yukari Matsuo, and Tohru Kobayashi, “All-optical control and direct detection of ultrafast spin-polarization in a multi-valence-electron system”, *Phys. Rev. A* 77, 063404 (2008), 査読有.

- [2] Takashi Nakajima, “Ultrafast Nuclear Spin Polarization by Short Laser Pulses”, *AIP Conference Proceedings*, Vol. 980, pp. 289-294 (2007), 12<sup>th</sup> International Workshop on Proceedings on Polarized Ion Sources, Targets and Polarimetry (PSTP2007), Eds. A. Kponou, Y. Makdisi, and A. Zelenskii, 査読無.

- [3] Takashi Nakajima, “Nuclear spin polarization induced by ultrafast laser pulses”, *AIP Conference Proceedings*, Vol. 915, pp. 996-1001 (2007), Proceedings of the 17<sup>th</sup> International Spin Physics Symposium in the 17<sup>th</sup> *International Spin Physics Symposium* (SPIN2006), 査読無.

- [4] Takashi Nakajima, “Spin-polarization using optical methods”, pp. 195-200, Proceedings of the 11<sup>th</sup> International Workshop on *Polarized Sources and Targets*, Eds. T. Uesaka, H. Sakai, A. Yoshimi, and K. Asahi, (World Scientific, Singapore, 2007), 査読無.

- [5] 中嶋隆, “パルスレーザー誘起スピン偏極”, *日本物理学会誌* vol. 62, 230-238 (2007), 査読有.

- [6] Takashi Nakajima, “Investigation of ultrafast nuclear spin polarization induced by short laser pulses”, *Phys. Rev. Lett.* 99, 024801 (2007), 査読有.

- [7] Yukari Matsuo, Tohru Kobayashi, Nobuaki Yonekura, and Takashi Nakajima, “Photoionization characteristics of Sr into  $5sk/l$  continua through the spin-resolved ion detection by laser-induced fluorescence”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 46, 1181-1185 (2007), 査読有.

- [8] Takashi Nakajima, “Effects of laser intensity and applied electric field on coherent control of spin polarization by short laser pulses”, *Appl. Phys. Lett.* 88, 111105 (2006), 査読有.

[学会発表] (計 15 件)

- [1] Takashi Nakajima, Yukari Matsuo, and Tohru Kobayashi, “First step toward ultrafast nuclear-spin polarization: All-optical control and direct

detection of ultrafast electron-spin polarization using fs laser pulses”, *The 18th International Spin Physics Symposium (SPIN2008)*, Oct. 6-11, 2008 (Virginia, USA).

- [2] 中嶋隆, 「超短パルスレーザー誘起スピ  
ン偏極(V)ー大きな核スピン値を持つ同  
位体の超高速核スピン偏極ー」, 日本物  
理学会第63回年次大会, 2008年3月24日,  
近畿大学.
- [3] 松尾由賀利, 小林徹, 中嶋隆, 「超短パ  
ルスレーザー誘起スピ  
ン偏極(IV)ー超  
高速スピ  
ン偏極の実時間観測と制御ー」,  
日本物理学会第 63 回年次大会, 2008 年  
3 月 24 日, 近畿大学.
- [4] 中嶋隆, ” パルスレーザー誘起超高速ス  
ピン偏極”, レーザー学会第28回年次大  
会, 2008年1月31日, 名古屋国際会議場.
- [5] 中嶋隆, “ナノ秒スケールの超高速核ス  
ピン偏極を目指して”, 東北大学サイク  
ロトロン・ラジオアイソトープセンター  
研究会「停止・低速不安定核ビームを用  
いた核分光研究」(Dec. 20-21, 2007, 東  
北大学) .
- [6] Takashi Nakajima, “Ultrafast Nuclear  
Spin Polarization by Short Laser  
Pulses”, *12th International Workshop  
on Polarized Sources, Targets &  
Polarimetry (PSTP07)*, (Brookhaven,  
USA. Sep. 10-14, 2007).
- [7] 中嶋隆, 「レーザー誘起超高速核スピン  
偏極 II: 大きな核スピン値の場合」, 第  
68回応用物理学会学術講演会, 2007年9  
月7日, 北海道工業大学.
- [8] Yukari Matsuo, Tohru Kobayashi, and  
Takashi Nakajima, “Experimental  
observation and control of ultrafast  
spin-polarization using fs laser  
pulses”, *16<sup>th</sup> International Laser  
Physics Workshop (LPHYS’ 07)*, (Leon,  
Mexico. Aug. 20-24, 2007).
- [9] 中嶋隆, 「レーザー誘起超高速スピ  
ン偏極」, 春季第54回応用物理学関係連合講  
演会, 2007年3月29日, 青山学院大学.
- [10] 松尾由賀利, 小林徹, 中嶋隆, 「超短レ  
ーザーパルス誘起スピ  
ン偏極の光学的  
観測」, 春季第54回応用物理学関係連合  
講演会, 2007年3月29日, 青山学院大学.

[11] 中嶋隆, 「超短パルスレーザー誘起スピ  
ン偏極(III)ー核スピ  
ンの偏極ー」, 日本  
物理学会2007年春季大会, 2007年3月18  
日, 鹿児島大学.

[12] 中嶋隆, “超短レーザーパルス誘起核ス  
ピン偏極”, 理研RIビームファクトリ  
ーミニワークショップ「レーザー光利用  
の次世代加速器実験」(Nov. 30-Dec. 1,  
2006, 理化学研究所).

[13] Takashi Nakajima, ” Nuclear spin  
polarization induced by ultrashort  
laser pulses”, *The 17<sup>th</sup> Inter-  
national Spin Physics Symposium  
(SPIN2006)*, Oct. 2-7, 2006 (Kyoto,  
Japan).

[14] Takashi Nakajima, “Spin-polarization  
using optical methods”, *XI<sup>th</sup>  
International Workshop on Polarized  
Sources and Targets (PST05)*,  
Nov. 14-17, 2005 (Tokyo, Japan).

[15] 中嶋隆, 「遷移レート近似を超えた光強  
度領域における超短パルスレーザー誘  
起スピ  
ン偏極」, 秋季第66回応用物理学  
学会学術講演会, 2005年9月10日, 徳島大  
学.

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

中嶋隆, 「核スピン偏極装置及び該方法」  
(特願 2006-269108) H18. 9. 29 出願

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中嶋 隆 (NAKAJIMA TAKASHI)

京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授  
研究者番号: 50281639

(2) 研究分担者

作花 哲夫 (SAKKA TETSUO)

京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授  
研究者番号: 10196206

松尾 由賀利 (MATSUO YUKARI)

理化学研究所・前任研究員

研究者番号: 50231593

小林 徹 (KOBAYASHI TOHRU)

理化学研究所・前任研究員

研究者番号: 70202067