

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 10 月 6 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2011～2014

課題番号：23244053

研究課題名(和文) 超短レーザーパルス列照射による高効率・高汎用核スピン偏極

研究課題名(英文) Efficient and Versatile scheme for nuclear-spin polarization by a train of 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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 37,000,000円

研究成果の概要(和文)：ターゲットとなる原子が既にビームである場合には、ビームと垂直な方向からレーザー照射すればドップラー広がりをほぼ無視することができるため、比較的容易に高い偏極効率を得ることができるが、原子ガス状のターゲットの場合、ドップラー広がりが偏極効率を阻害する大きな要因となる。本研究では、ドップラー広がりのある原子ガスをターゲットに用いた場合について、どのようなスペクトル特性のレーザーパルスを使えば高い偏極効率およびイオン化効率を得られるかについて詳細な検討を行った。その結果、いずれにおいても、コヒーレンスが損なわれていないフーリエ限界パルスを用いることにより、良好な効率を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：If the target atom to be polarized is in a beam, it is fairly easy to obtain high polarization efficiency by sending the laser pulse from the direction perpendicular to the atomic beam, because Doppler broadening can be neglected. However, for the case of atomic gas as a target, Doppler broadening is the main cause of low polarization and ionization efficiency. To overcome this problem, a straightforward solution is to use either broadband and hence incoherent nanosecond pulses or transform-limited picosecond pulses. Which is better is not a priori obvious. In this work we have carried out the study mainly to clarify this issue, and found that the use of transform-limited picosecond pulses is usually better than that of broadband incoherent nanosecond pulses.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：核スピン 偏極 レーザー コヒーレンス

1. 研究開始当初の背景

核スピンの高偏極した原子・イオンは、高エネルギー物理学や原子核物理学、半導体物理学、量子エレクトロニクスなどの基礎科学から医療応用まで幅広い用途が考えられるため、極めて有用性が高いにも関わらず、既存の偏極法では高効率期待できるものの偏極できる核種が限られているか、あるいは汎用性はあるものの偏極効率が悪いなどの相反する問題点があり、高効率と高汎用を両立できていない。

我々は、コヒーレンスを活用してレーザーと物質の相互作用を制御する研究を行っている。制御対象を電子または核のスピンのように、それらのスピン状態さえもレーザーで制御することが可能である。実際、先の研究では超短レーザーパルス誘起超高速核スピン偏極が可能であることを我々は示したが、この方法では核スピン偏極が実現されるのは(電子)励起状態であって(電子)基底状態ではないため、自然放出によって核スピンの緩和する前に価電子を取り除かれば偏極度が低下してしまうなどという問題点や限界もある。

2. 研究の目的

本研究では、これまで我々が進めてきたスピン偏極に関する知見を元に、超短レーザーパルス列を用いた核スピン偏極法の現実的な条件下における効率検討、および偏極実現や偏極度計測に必要な光源開発を目的とする。また、超短レーザーパルス列照射が、高エネルギー物理学や原子核物理学などのような基礎科学にとどまらず、様々な応用が考えられる凝縮系物質(たとえば量子ドット)のスピン制御などにも応用できることを示すことも副次的な目的の一つとする。

3. 研究の方法

(1) 実際の系ではターゲット原子ガスにドップラー広がりがあるので、どういうレーザー照射条件であればドップラー広がりのある原子ガスを効率良く偏極およびイオン化させることができるかを検討する。

(2) 高い偏極効率を実現するためには、高強度な紫外～真空紫外光源の開発も重要である。そこで、効率良く紫外～真空紫外パルスを生成できるスキームを検討する。

(3) 原子ガスをターゲットとした核スピン偏極のみにとどまらず、例えば量子ドットのような凝縮系におけるスピンのレーザー制御も検討する。

4. 研究成果

(1) ドップラー広がりのある原子ガスへのレーザーパルス列照射による偏極度の増大

原子ガスをレーザーパルス照射によって偏極させる場合、ドップラー広がりによって共鳴周波数がシフトするため偏極効率が低下

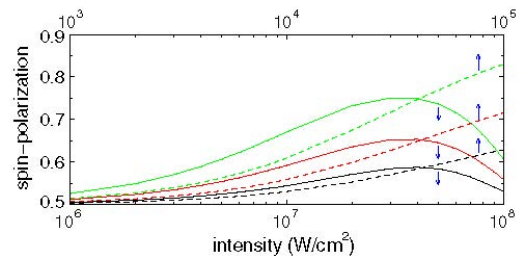


図1. ブロードバンド 2ns パルス(点線)とフーリエ限界 2ps パルス(実線)照射による偏極効率の比較. 5ns 間隔で 1 (黒)、2 (赤)、4 (緑) パルスを照射した結果を示す. 同じパルスエネルギー下での比較のため、2ns および 2ps パルスの光強度は上および下の横軸スケールに記してある。

する。偏極効率を維持するためには、ブロードなスペクトルを有するレーザーパルスを照射することが必要である。ブロードなスペクトルのパルス光源としては、ブロードバンドなナノ秒光源とフーリエ限界ピコ秒光源の 2 通りが考えられるが、前者はよりインコヒーレント、後者は完全にコヒーレントな光源であることから、たとえ同じスペクトルであっても偏極効率に違いが出るであろうことが予想される。そこで、原子ガスのドップラー幅をカバーするだけの同等なスペクトル帯域を持つブロードバンドな 2ns パルスとフーリエ限界 2ps パルスを核スピン偏極に用いた場合について、偏極効率に違いがあるかどうかを検討した。その結果、完全なコヒーレンスを持つフーリエ限界 2ps パルスを用いた方が偏極効率は確かに良いが、ブロードバンドな 2ns パルスでも意外に高い偏極度が実現できることがわかった(図1)。

(2) レーザー誘起コヒーレンスを用いた偏極用真空紫外パルスの高効率発生

超短レーザーパルス列を用いた我々の偏極スキームではターゲットとなる原子ガスを共鳴励起するが、原子によっては真空紫外～紫外光源が必要となる。特に波長 200nm 以下の真空紫外光は、別途、ガス媒質を用いた非線形波長変換によって生成するというのが唯一知られている方法であり、変換効率は極めて低い。ここではクリプトンガスを用いた差周波発生によってエキジチック原子の 1 つであるミュオニウム(μ^+e^-)の偏極に必要な波長 122nm のライマン α 光を発生させるスキームについて、効率良く波長変換ができないかを検討した。波長変換スキームを図 2(a)に、1ns のポンプパルス(212.6nm)および 1ns の非共鳴スタルクパルス(1064nm)の時間波形を図 2(b)に示す。2つのパルス間のタイミングを図 2(b)のように遅延させることにより、高コヒーレンスを発生させるこのスキームを D-STIRAP (Detuning-Induced Stimulated Raman Adiabatic Passage) と名付ける。高効率差周波発生の際となる準位 $|1\rangle$ と $|4\rangle$ 間

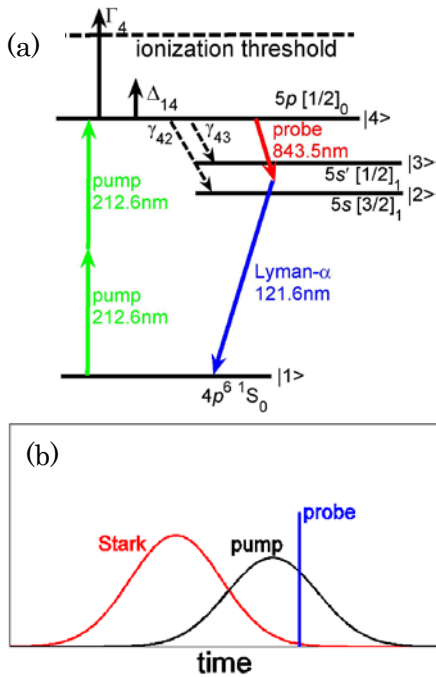


図 2. (a) クリプトンガスを用いたライマン α 光発生スキーム. (b) ポンプパルス (1ns)、スタルクパルス (1ns)、プローブパルス (1ps) のパルスタイミング.

のコヒーレンス $|\rho_{14}|$ のポンプおよびスタルクパルス光強度依存性を室温クリプトンガスのドップラー広がりやイオン化も考慮して計算した結果を図 3(a) に示す。ポンプパルスは 0.4 GW/cm^2 、スタルクパルスは 0.5 GW/cm^2 付近でコヒーレンスが最大になることがわかる。そこで、これら最適な光強度を選んだ上で、ポンプパルスに対するスタルクパルスのタイミングを -0.9 ns に固定し、コヒーレンスがポンプパルス後にどのくらい変化するかを示したのが図 3(b) 中 D-STIRAP と記した曲線である。比較のため、ポンプパルス

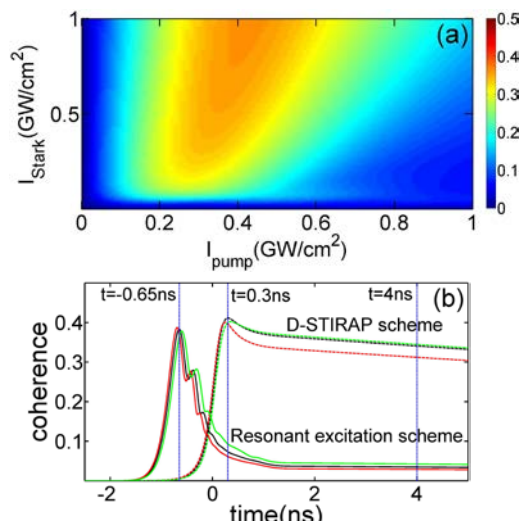


図 3. (a) コヒーレンス $|\rho_{14}|$ のポンプおよびスタルクパルス光強度依存性. (b) D-STIRAP および 2 光子共鳴スキームによって生成するコヒーレンス $|\rho_{14}|$ の時間依存性.

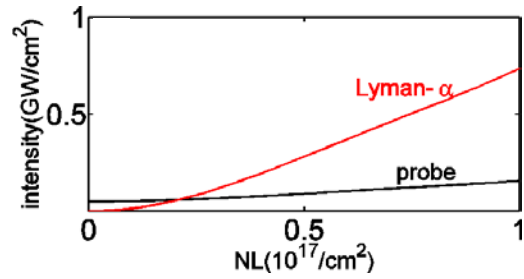


図 4. 生成するライマン α パルス光強度の伝搬距離依存性. 横軸 NL はクリプトンガスの数密度 N と伝搬距離 L の積を表す.

($\sim 212.6 \text{ nm}$) のみでコヒーレンスを生成した場合の結果が図 3(b) 中 Resonant excitation scheme と記した曲線である。コヒーレンス生成直後は、コヒーレンスの最大値には大きな差はないものの、後者は時間の経過と共に急速に減少していくのに対し、前者はほとんど減少しない。これは、ポンプパルス後に 1 ps のプローブパルスを照射するタイミングが多少ずれても良いことを意味しており、実験的には大きな利点となる。この条件下で、伝搬と共に 1 ps ライマン α パルスが成長する結果を図 4 に示す。効率良くライマン α パルスが発生することが見て取れる。

(3) 光電子検出による核スピン偏極度計測

安定な原子の核スピン偏極計測には何らかの形で超微細構造を分解しなくてはならないと一般には信じられているが、核スピンと電子スピン、および電子の軌道角運動量は全て結合していることを思い出すと、原子の光イオン化によって生じる光電子の角度分布から核スピン偏極度が評価できるかもしれ

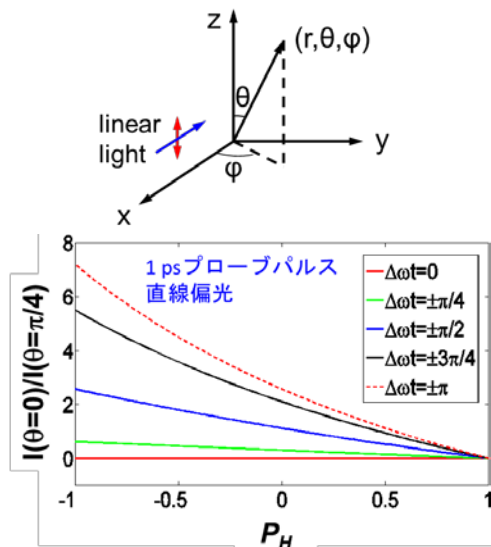


図 5. $\theta = 0$ 方向と $\pi/4$ 方向に放出された光電子信号比の偏極度 P_H に対する依存性. プローブパルスは 1 ps の直線偏光を仮定した. 異なる曲線は異なる時間遅延 t でプローブパルスを照射した場合の結果に対応する. ここで $\Delta \omega$ は $2p_{1/2}$ と $2p_{3/2}$ の準位間エネルギー差を表す.

れない。例として、水素または水素とほぼ同じエネルギー準位構造を持つミュオニウム（共に核スピン $I=1/2$ ）の 1 光子励起 2 光子イオン化を考え、考察を進めた。1ps のポンプパルス (122nm) で 1s 状態から 2p 状態に励起し、その後、時間遅延 t において 1ps のプローブパルス (355nm) でイオン化した場合についての結果を図 5 に示す。この場合、2p に属する全ての微細構造および超微細構造準位は 1ps のポンプパルスによってコヒーレントに共鳴励起されている。図 5 からわかるように、ポンプパルスとプローブパルスの時間遅延をうまく選んで ($t=\pi/\Delta\omega$ が最適) $\theta=0$ と $\pi/4$ の方向に放出された光電子信号の強度比を測定すれば、それから基底状態 $1s_{1/2}$ の核スピン偏極度 P_H が一意的に決定できることがわかる。すなわち、光電子信号の確度分解測定から核スピン偏極度を評価することが可能であることが示された。

(4) フーリエ限界ナノ秒パルスおよび広帯域ナノ秒パルスによる光イオン化効率

ターゲット原子をレーザーによって核スピン偏極させた後は光イオン化し、ビームとして取り出すが、原子ガスには数 GHz から数 100GHz のドップラー広がりがあるため、単純に考えればドップラー広がりをカバーするようなスペクトル幅の広い光源を励起に用いることが重要なように思われる。そこで、元々はスペクトル幅の狭い (<数 100MHz) ナノ秒パルス、あるいはコヒーレンスを犠牲にして複雑な機構の導入により広帯域化したパルスを共鳴励起に用いた場合で、どちらが効率よくイオン化できるかを検討した。励起パルスの光強度が低い場合には、予想通り、インコヒーレントな広帯域ナノ秒パルスの方がイオン化効率が良いという結果が得られたが、光強度が高い領域では、予想に反し、コヒーレンスの良い狭帯域なフーリエ限界ナノ秒パルスの方がイオン化効率が良くなるという結果が得られた。

(5) 偏極度計測用狭帯域紫外光源の開発

多くの元素には同位体が存在する。レーザーパルス列照射後には、核スピンが 0 でない同位体に核スピン偏極が起こるが、同位体ごとに核スピンの値も異なり、従って偏極度も異

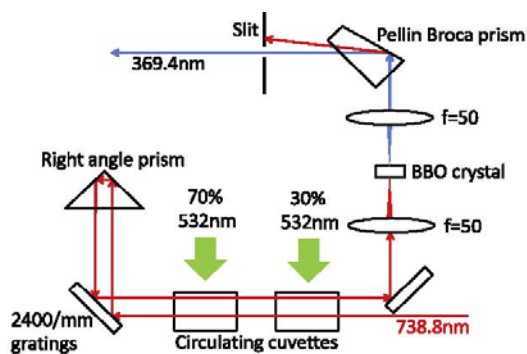


図 6. 光学配置図.

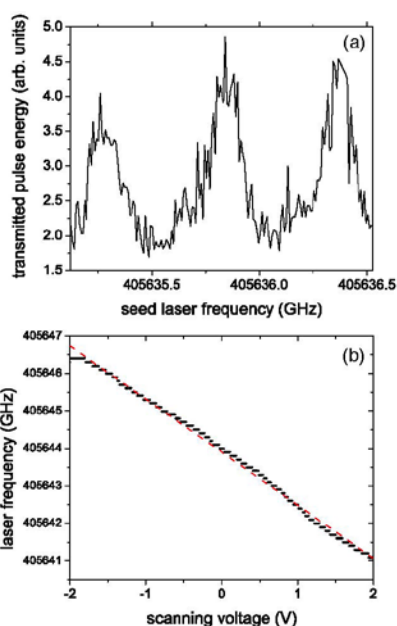


図 7. (a) エタロンを用いた増幅後の近赤外 738.8nm パルスの透過スペクトル、および (b) ECDL 掃引電圧とレーザー周波数の関係.

なる。従って、特定の同位体について偏極度を計測しなくてはならない。我々はレーザー誘起蛍光の偏光検出によって光学的に偏極度を計測することを考えたが、そのためには特定の同位体を選択励起することがまずは必要である。そこで、今回は特に、質量数 171 の Yb イオンを選択的に励起するための狭帯域紫外光源 (波長 ~ 369.4 nm) を開発した。光学系を図 6 に示す。まず、出力 15mW、波長 738.8nm の外部共振器型ダイオードレーザー (ECDL) を種光に使い、それを 2 段の色素 (LDS751) セルによってパルス増幅した後、非線形光学結晶 (BBO) を用いて 369.4nm の第 2 高調波を発生させた。特定の同位体に波長をチューンするためには、狭帯域のまま波長掃引ができることを確認しなくてはならない。その結果を図 7 に示す。こうして、パルスエネルギー $10\mu\text{J}$ 、時間幅 3ns、スペクトル幅 230MHz の波長掃引可能な紫外パルス (369.4nm) 光源を開発することができた。

(6) フェムト秒パルス列を用いた量子ドットにおけるポピュレーショントラッピング

レーザーパルスを用いた量子ドットの状態操作は、量子コンピュータなどの分野で注目を集めている。さて、量子ドットはしばしば人工原子とも呼ばれるが、原子との根本的な違いは、量子ドットの場合、作成した量子ドットは、エネルギー準位構造や双極子モーメントなどの点でわずかな違いがある、という事である。これは、複数の量子ドットを光で操作する時の障害となる。我々は、照射するパルス列のパラメータと印加磁場を適切に選ぶことにより、この不均一性を最小限に抑えることができることを示した。

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 20 件)

- [1] Parvendra Kumar and Takashi Nakajima, "Fast and high-fidelity optical initialization of spin state of an electron in a semiconductor quantum dot using light-hole-trion states", *Opt. Commun.* 370, 103-109 (2016). 査読有
doi: 10.1016/j.optcom.2016.03.006
- [2] Rakesh Mohan Das, Souvik Chatterjee, Masahiko Iwasaki, and Takashi Nakajima, "Ionization efficiencies of Doppler-broadened atoms by transform-limited and broadband nanosecond pulses: one-photon resonant two-photon ionization of muoniums", *J. Opt. Soc. Am. B* 32, 1237-1244 (2015). 査読有
doi: 10.1364/JOSAB.32.001237
- [3] Souvik Chatterjee and Takashi Nakajima, "Manipulation of resonant Auger processes using a strong bichromatic field", *Phys. Rev. A* 91, 043413 (2015). 査読有
doi: 10.1103/PhysRevA.91.043413
- [4] Parvendra Kumar and Takashi Nakajima, "Coherent population trapping in negatively charged self-assembled quantum dots using a train of femtosecond pulses", *Phys. Rev. A* 91, 023832 (2015). 査読有
doi: 10.1103/PhysRevA.91.023832
- [5] Gabriela Buica and Takashi Nakajima, "Propagation of two short laser pulse trains in a Λ -type three-level medium under conditions of electromagnetically induced transparency", *Opt. Commun.* 332, 59-69 (2014). 査読有
doi: 10.1016/j.optcom.2014.06.044
- [6] Yu Qin, Takashi Nakajima, Heishun Zen, Xiaolong Wang, Toshiteru Kii, and Hideaki Ohgaki, "Characterization of non-Gaussian mid-infrared free-electron laser beams by the knife-edge method", *Infrared Phys. Technol.* 66, 146-151 (2014). 査読有
doi: 10.1016/j.infrared.2014.05.021
- [7] Xiaolong Wang, Tohru Kobayashi, Yukari Matsuo, and Takashi Nakajima, "Generation of tunable narrowband laser pulses in the ultraviolet with a pulsed dye amplifier seeded by a near-infrared diode laser", *Opt. Commun.* 324, 168-171 (2014). 査読有
doi: 10.1016/j.optcom.2014.03.035
- [8] Vladimir Yu. Fedorov and Takashi Nakajima, "Negative refraction of inhomogeneous waves in lossy isotropic media", *J. Opt.* 16, 035103 (2014). 査読有
doi: 10.1088/2040-8978/16/3/035103
- [9] Li Deng and Takashi Nakajima, "Detuning-induced stimulated Raman adiabatic passage in atoms with hyperfine structure", *Phys. Rev. A* 89, 023406 (2014). 査読有
doi: 10.1103/PhysRevA.89.023406
- [10] Vladimir Yu. Fedorov and Takashi Nakajima, "All-angle collimation of incident light in μ -near-zero metamaterials", *Optics Express* 21, 27789-27795 (2013). 査読有
doi: 10.1364/OE.21.027789
- [11] Xiaolong Wang, Takashi Nakajima, Heishun Zen, Toshiteru Kii, and Hideaki Ohgaki, "Damage threshold and focusability of mid-infrared free-electron laser pulses gated by a plasma mirror with nanosecond switching pulses", *Appl. Phys. Lett.* 103, 191105-1-4 (2013). 査読有
doi: 10.1063/1.4828995
- [12] Li Deng, Masahiko Iwasaki, and Takashi Nakajima, "Nuclear-spin polarimeter using photoelectron signals", *Phys. Rev. A* 88, 013409 (2013). 査読有
doi: 10.1103/PhysRevA.88.013409
- [13] Yu Qin, Heishun Zen, Xiaolong Wang, Toshiteru Kii, Takashi Nakajima, and Hideaki Ohgaki, "Pulse duration and wavelength stability measurements of a midinfrared free-electron laser", *Optics Letters* 38, 1068-1070 (2013). 査読有
doi: 10.1364/OL.38.001068
- [14] Xiaolong Wang, Takashi Nakajima, Heishun Zen, Toshiteru Kii, and Hideaki Ohgaki, "Single-shot spectra of temporally selected micropulses from a mid-infrared free-electron laser by upconversion", *Optics Letters* 37, 5148-5150 (2012). 査読有
doi: 10.1364/OL.37.005148
- [15] Takashi Nakajima, "Spin-polarization of Doppler-broadened muoniums by the broadband nanosecond and transform-limited picosecond laser pulses", *J. Opt. Soc. Am. B* 29, 2420-2424 (2012). 査読有
doi: 10.1364/JOSAB.29.002420
- [16] Li Deng and Takashi Nakajima, "Generation of vacuum-ultraviolet pulses with a Doppler-broadened gas utilizing high atomic coherence", *Optics Express* 20, 17566-17580 (2012). 査読有
doi: 10.1364/OE.20.017566
- [17] Xianghe Ren and Takashi Nakajima, "Suppression of ionization of heteronuclear diatomic molecules probed by intense laser", *Phys. Rev. A* 85, 023403 (2012). 査読有

doi: 10.1103/PhysRevA.85.023403

[18] Vladimir Yu. Fedorov and Takashi Nakajima, "Controlling the propagation velocity of a femtosecond laser pulse with negative index metamaterials", *Phys. Rev. Lett.* 107, 143903 (2011). 査読有
doi: 10.1103/PhysRevLett.107.143903

[19] Jun Chen, Ryuji Itakura, and Takashi Nakajima, "Reconstruction of attosecond pulses using a two-color pumping", *J. Opt. Soc. Am. B* 28, 2195-2199 (2011). 査読有
doi: 10.1364/JOSAB.28.002195

[20] Takashi Nakajima, "Recursion-relation analysis for optical pumping to polarize nuclei by a sequence of short laser pulses", *J. Opt. Soc. Am. B* 28, 2123-2128 (2011). 査読有
doi: 10.1364/JOSAB.28.002123

[学会発表] (計 14 件)

[1] Chatterjee Souvik, 中嶋隆, 「Strong x-ray induced resonant Auger decay from core-excited states」, 東京工業大学大岡山キャンパス, 2016年3月19-22日, 第63回応用物理学会春季学術講演会, 21a-S622-2

[2] DAS Rakesh Mohan, CHATTERJEE Souvik, 中嶋隆, 岩崎雅彦, 「伝搬パルスによるミュオニウムの光イオン化効率」, 東北学院大学, 2016年3月19-22日, 日本物理学会第71回年次大会, 19pAF-9

[3] 中嶋隆, CHATTERJEE Souvik, 「X線パルス対による内殻励起状態を介したラムゼー干渉」, 名古屋国際会議場, 2015年9月13-16日, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 13a-2G-8

[4] DAS Rakesh Mohan, CHATTERJEE Souvik, 中嶋隆, 岩崎雅彦, 「ドップラー広がりを持つミュオニウムのイオン化におけるフリーエ境界ナノ秒ライマン α パルスの優位性」, 早稲田大学, 2015年3月21-24日, 日本物理学会第70回年次大会, 24aCJ-9

[5] CHATTERJEE Souvik, 中嶋隆, 「X線+近赤外2色レーザー励起による共鳴オージェ過程の光学制御」, 東海大学, 2015年3月11-14日, 第62回応用物理学会春季学術講演会, 13p-A15-1

[6] DAS Rakesh Mohan, CHATTERJEE Souvik, 中嶋隆, 岩崎雅彦, 「ミュオニウムの1光子および2光子イオン化」, 中部大学, 2014年9月7-10日, 日本物理学会2014年秋季大会, 9pAE-5

[7] Li Deng and Takashi Nakajima, "Influence of hyperfine structure on the detuning-induced stimulated Raman adiabatic passage process", 23rd International Laser Physics

Workshop (LPHYS'14), July 14-18, 2014 (Sofia, Bulgaria).

[8] Deng Li, 中嶋隆, 「コヒーレンスを利用した高効率真空紫外パルス発生における超微細構造の影響について」, 青山学院大学, 2014年3月17-20日, 第61回応用物理学会春季学術講演会, 18a-F7-10

[9] DENG Li, 岩崎雅彦, 中嶋隆, 「光電子計測による水素およびミュオニウムのスピン偏極度の評価」, 広島大学, 2013年3月26-29日, 日本物理学会第68回年次大会, 26pXZB-1

[10] Takashi Nakajima, "Diagnosis of the wavelength stability of a mid-infrared free-electron laser using a fringe-resolved autocorrelation technique", 10th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics (AISAMP10), Oct. 23-30, 2012 (Taipei, Taiwan).

[11] Takashi Nakajima, "Efficient generation of vacuum-ultraviolet radiation with a Doppler-broadened gas utilizing atomic coherence", 21st International Laser Physics Workshop (LPHYS'12), July 23-27, 2012 (Calgary, Canada).

[12] 中嶋隆, 「ブロードバンドナノ秒パルスを用いたミュオニウムの再偏極」, 関西学院大学, 2012年3月24-27日, 日本物理学会第67回年次大会, 25aCL-6

[13] 中嶋隆, DENG Li, 「ブロードバンドナノ秒パルスによるミュオニウムのスピン偏極と高効率VUV光発生のための新スキームの検討」, 早稲田大学, 2012年3月15-18日, 応用物理学関係連合講演会, 17p-E9-16

[14] Takashi Nakajima, "Ionic coherence induced by ultrafast electron ejection", 42th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics (PQE2012), Jan.2-6, 2012 (Snowbird, USA).

[図書] (計 0 件)

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

小林 徹 (KOBAYASHI, Tohru)
理化学研究所・主任研究員研究室等・専任研究員

研究者番号: 70202067