

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：32675

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24350016

研究課題名(和文)超流動ヘリウム環境におけるイオンの精密分光

研究課題名(英文)Precision laser spectroscopy of atoms and ions in superfluid helium

研究代表者

松尾 由賀利 (MATSUO, Yukari)

法政大学・理工学部・教授

研究者番号：50231593

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,300,000円

研究成果の概要(和文)：超流動ヘリウムは広い波長領域で透明、低温、スピンに対する擾乱が小さいという特性があり、レーザー分光の新しいマトリックス環境として有用な媒質である。しかし、媒質中では通常、周囲の原子との相互作用の影響により精密分光は困難になる。本研究では、超流動ヘリウム中の原子イオンに対して光ポンピングと二重共鳴法を組合せた精密レーザー分光を適用するために、超流動ヘリウム中への原子イオン導入と光検出、液体中原子のパルス光ポンピングのための光源開発とこれを用いたレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴実験、加速器で生成されるイオンビームを線源とする実験を行い、精度、確度の向上を実現した。

研究成果の概要(英文)：Superfluid helium (He II) is an intriguing host matrix for laser spectroscopy of atoms and ions due to its characteristic properties such as transparency in the wide range of wavelength from ultraviolet to radio frequency, low temperature, and small effectiveness to spins. However, precision measurement of guest atoms and ions is usually difficult in liquid media because of interaction with surrounding atoms. In order to apply precision spectroscopy using optical pumping and double resonance method to atoms and ions in He II, we conducted experiments; introduction to He II and optical detection of ions, construction of a pulsed laser for optical pumping of atoms and ions in He II and its application to laser-microwave/radio frequency double resonance spectroscopy, utilization of ion beams produced at an accelerator facility as ion sources. We have achieved higher precision and accuracy of the double resonance measurement for atoms and ions in He II.

研究分野：.レーザー分光

キーワード：.レーザー分光 マトリックス分光 超流動ヘリウム 光ポンピング レーザー・ラジオ波二重共鳴 レーザー核分光

### 1. 研究開始当初の背景

超流動ヘリウムは光学的にラジオ波から紫外光にわたる広い波長域において透明な媒質であり、レーザー分光を行う新しい環境として近年大きな注目を集めている。液体ヘリウム中に原子やイオンを導入するのは、良く知られている他の希ガスマトリックスに比べて取扱いが困難なことから、精密分光があまり進展していなかった。しかし、近年レーザーアブレーション法によりアルカリ原子を導入して光ポンピングと二重共鳴法を組み合わせることにより精密分光が可能になってきた。

超流動ヘリウムは 2.1 K 以下の低温であり、しかもヘリウム原子は閉殻構造をもつため電子スピンに対する擾乱が小さいので、魅力的なマトリックス環境である。超流動ヘリウム中に電子を導入すると、パウリの排他律により不純物電子と周囲のヘリウム原子の持つ電子との反発力により電子バブルと呼ばれる空乏領域が生じる。中性原子が導入された場合も、原子の外殻電子とヘリウムの電子との反発力のために原子バブルが発生する。電荷を持つイオンが導入された場合は、イオンの電荷が周囲のヘリウムの分極を誘起し、スノーボールと呼ばれるイオンを取り囲むように形成された殻状の固体ヘリウムクラスターを生成するのが一般的であるが、イオンの種類によっては、中性原子と同様にバブル状態となることもある。

原子バブル状態が生成される場合には外殻電子の光励起、脱励起過程が起こり、真空中と同様にレーザー分光が可能になる。この光励起脱励起過程は特徴的で、原子と周囲のヘリウム原子との相互作用が原因で電子遷移波長が真空中と比べて励起線幅は著しく広く(数 nm 程度)、さらに大きく短波長側へシフトする(数~数十 nm 程度)一方、発光波長は真空中のものとは大きく変化しないために原子の同定が可能であるなど、興味深い性質を持つ。ただし、このような超流動ヘリウムのもたらす特異な性質は精密レーザー分光を行うマトリックス環境という観点から見れば必ずしも望ましいことではなく、超流動ヘリウム環境はむしろ精密分光研究には不向きであると考えられていた。

これは、超流動ヘリウム中に静かに原子を注入することが困難で高精度測定が行えなかったことも原因であった。筆者らのグループは 2000 年代以降、固体試料の二段階レーザーアブレーションを用いた独自の原子導入法を開発し、これを用いて原子の光ポンピング法によるスピン偏極生成とレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴を組合せた実験を開始した。この結果、超流動ヘリウム中の Cs 原子のスピン偏極緩和時間が 2 秒以上と極めて長いこと、アルカリ原子の超微細構造およびゼーマン準位間の共鳴スペクトルが高精度で観測可能なことなどを明らかにしていた。

さらに筆者らは、2010 年以降、超流動ヘリウムを加速器で生成された高速イオンビームのストッパーとして使い、原子核構造をレーザー分光の手法で調べる研究に着手し、イオンビームとして導入された Rb 原子のレーザー励起による脱励起光観測にも成功した。イオンビームを入射線源とすれば、超流動ヘリウムとイオンを組合せた精密レーザー分光の可能性が大きく広がることになる。

そこで本研究において、原子イオンの精密レーザー分光へ向けて、超流動ヘリウム中への原子イオン導入法の開発、液体である超流動ヘリウムの特性を生かしたパルスレーザー光を用いた光ポンピングのための光源開発、加速器で生成されるイオンビームを線源とするレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴実験を開始した。

### 2. 研究の目的

本研究課題では、超流動ヘリウムという特異な環境下に原子イオンを導入して、光ポンピングによるスピン偏極生成と、レーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴を組合せた実験を行い、超流動ヘリウム環境下での精密レーザー分光測定を行うことを目的とする。このため、超流動ヘリウム中への原子イオンの導入法としてレーザーアブレーション法、加速器で生成される高速イオンビームを用いた実験を行う。多種類の原子イオンの光ポンピングに適用可能な光源を開発し、これを用いたレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴実験を高い精度、確度で行う。

### 3. 研究の方法

本研究は、原子イオンを超流動ヘリウム中に導入し、光ポンピング法によりスピン偏極させること、さらにレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴法と組合せて、超流動ヘリウム中の原子イオンの超微細構造、ゼーマン準位間隔を精密に測定することより遂行される。イオンの導入には、筆者らの開発した二段階レーザーアブレーション法、および加速器を用いたイオンビーム打込み法の二種類を用いる。このため、(1)超流動ヘリウム中へのアブレーションによる原子イオン導入と光検出、(2)光ポンピングのための光源開発とこれを用いたレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴実験、(3)加速器で生成されるイオンビームを用いた実験、を並行して進める。

(1) 超流動ヘリウム環境において精密分光を実現するには、超流動ヘリウム中で原子、イオンが一定時間レーザー照射位置にとどまっていることが必要である。そこで、本研究計画においては、原子イオン導入法として、われわれが開発した液面上空二段階レーザーアブレーション法による導入法を用いる。これは、液面上空でアブレーションにより生成されたクラスターが液中に浸入し、さらにフェムト秒レーザーで解離されることによ

り、単原子やイオンを静かに導入する方法である。この方法を用いれば中性原子で1秒程度の滞在時間を確保できることがわかっている。導入された原子、イオンの発光を観測することで挙動を調べる。

(2) 本研究の主軸であるポンピングを用いたレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴法は以下の原理に基づく。例えばアルカリ原子の場合、電子基底状態  $S_{1/2}$  と励起状態  $P_{1/2}$  間を円偏光レーザーで励起し続けると、原子の磁気量子数  $M$  が増加することで光ポンピングによる偏極の生成が起り、原子の磁気量子数が最大の状態に集中し、それ以上変化できなくなる。このため円偏光レーザーを吸収できず、レーザー誘起蛍光が消失する。ここに超微細構造間隔またはゼーマン準位間隔に一致した周波数のマイクロ波またはラジオ波を照射すると、原子の偏極が崩壊し蛍光が再び観測される。マイクロ波またはラジオ波の周波数を掃引しながら蛍光強度を観測すれば、共鳴周波数から超微細構造定数およびゼーマン準位間隔を求めることができる。測定精度、確度はそれぞれマイクロ波およびラジオ波の発振器に依拠するため、レーザーの発振周波数の精度によらない。従って、周囲のヘリウム原子からの影響により原子の電子励起スペクトル幅が大きく広がる超流動ヘリウム環境においても、二重共鳴法と組み合わせることで精密分光測定が可能である。しかも超流動ヘリウム中では、観測領域にある原子の拡散時間が1秒程度と、真空中に比べて極めて長いため、通常は連続光源レーザーを用いる光ポンピングも、ある程度繰返しレートが高いパルスレーザーを用いれば実現できると期待される。特に、単位時間当たりの光強度が強いパルスレーザーを用いれば、第二および第三高調波を取ることで、広い波長範囲での発振が可能になり、広範な原子、イオンに本手法が適用可能になる。本研究計画では、可視域から近赤外に広い発振波長を持つ、高繰返しチタンサファイアレーザーを製作し、光ポンピングさらには二重共鳴法に適用していく。

(3) 超流動ヘリウム中に原子イオンを導入するもう一つの有力な方法が、高速イオンビームの打込みである。加速器で生成されたイオンビームは薄い金属窓を通して直接超流動ヘリウム中に打込むことができる。この方法ではイオンビームの軸上1mm程度の範囲に中性または1価イオンとして原子を停止させることができ、1秒程度滞留させられることが知られている。これは同位体を選別して測定する場合や、天然に存在しない不安定核原子に対しても適用可能という利点がある。

#### 4. 研究成果

(1) 超流動ヘリウム中へのアブレーションによる原子イオン導入と光検出：はじめに二段階レーザーアブレーション法を用いて中性原子を静かに導入する場合と同じ方法で、

Ba<sup>+</sup>イオンを超流動ヘリウム中に導入した。これは、超流動ヘリウムの液面上約10mmの場所に固体Ba試料を設置し、第一段階パルスレーザーでアブレーションを行い、液中に侵入したクラスターを第二段階パルスレーザーで解離するというものである。イオンの導入を確認するために、繰返しレートの低い(10Hz)パルス色素レーザーを用いて光検出を行ったところ、レーザー誘起蛍光の検出に成功した。しかし、本手法では中性原子の場合に比べてイオン導入個数が少なく、蛍光信号が微弱である、寿命が短いなどの問題も浮上した。そこで、これらの問題に対処するため、固体試料を超流動ヘリウム液体中に設置して第一段階アブレーションを行う配置に変更し、生成イオンの高密度化を試み、アブレーション時の発光の増強が見られた。

(2) 光ポンピングのための光源開発とこれを用いたレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴実験：真空中では原子、イオンの光ポンピングは通常cw(連続光源)レーザーを用いて行われる。しかし超流動ヘリウム中では導入された粒子の拡散速度が遅いため、高繰返しパルスレーザー(1kHz以上)であれば光ポンピングが可能である。そこで、本研究では700-1000nmの広い波長領域で発振可能なパルスチタンサファイアレーザー(1-3kHz)を製作した。パルスレーザーでは第二高調波を取ることが比較的容易であり、上記の半分の波長範囲においても十分な出力が期待できる。この手法により、Yb<sup>+</sup>イオンの励起波長に近い370nm付近でヘリウム中光ポンピングに十分な100mWの光を出力させることに成功した。さらに、アルカリ原子と似た準位構造を持つAu原子に高繰返しパルスレーザーによる光ポンピングと二重共鳴法を適用し、超微細構造間隔を高精度に測定することに成功した。次に、製作したパルスチタンサファイアレーザーを、これまでcwレーザーで実績のあるRb原子に適用し、光ポンピングと二重共鳴実験を行った。cwレーザーではポンピングに100mW程度を必要とするRb原子に対して、本レーザーでは10mW程度で十分な光ポンピングと二重共鳴が観測できることを実証した。パルスレーザーでは短時間に光強度が集中することで、効率的なポンピングが可能になったと考えられる。超流動ヘリウム中ではポンピング用レーザーの微細な波長チューニングが不要になることから、本レーザーを用いて広範な原子、イオンの精密分光が可能になった。

(3) 加速器で生成されるイオンビームを用いた実験：加速器で生成されるRbイオンビームを超流動ヘリウム中に入射した後、閉じ込められたRb原子に対して、光ポンピングとレーザー・マイクロ波/ラジオ波二重共鳴法を適用することに成功した。超流動ヘリウム中に導入された原子のゼーマン準位間の遷移を観測した結果について詳細に解析し、複数の同位体のスピンを導出することに成功

した。この結果、加速器からのイオンビーム入射は有効な手法であることが示された。さらに、超微細構造準位間の遷移についても印加するマイクロ波周波数の掃引方法を詳細に検討した結果、媒質中の分光測定としては極めて高い6桁の精度、確度で遷移周波数を決定した。

## 5 . 主な発表論文等

### [雑誌論文](計7件)

X.F. Yang, T. Furukawa, T. Wakui, K. Imamura, T. Fujita, Y. Mitsuya, M. Hayasaka, Y. Ichikawa, Y. Ishibashi, H. Shirai, T. Suzuki, Y. Ebara, A. Hatakeyama, M. Wada, T. Sonoda, Y. Ito, T. Kobayashi, S. Nishimura, M. Kurata-Nishimura, Y. Kondo, K. Yoneda, H.Ueno, T. Shinozuka, T. Shimoda, K. Asahi, Y. Matsuo: “Laser-RF double resonance spectroscopy of  $^{84-87}\text{Rb}$  isotopes trapped in superfluid helium” RIKEN Accel. Prog. Rep. **48**, 8-8 (2015). 査読有

M. Hayasaka, T. Furukawa, H. Tomita, T. Takamatsu, K. Imamura, T. Fujita, T. Kobayashi, H. Uematsu, H. Ueno, Y. Matsuo: “Production of spin polarization of atoms in superfluid helium using a pulsed Ti: sapphire laser” RIKEN Accel. Prog. Rep. **48**, 223-223 (2015). 査読有

K. Imamura, T. Furukawa, T. Wakui, X. Yang, Y. Mitsuya, T. Fujita, Y. Ebara, M. Hayasaka, Y. Ichikawa, H. Shirai, T. Suzuki, T. Sato, Y. Ohtomo, S. Kojima, K. Asahi, A. Hatakeyama, H. Odashima, T. Kobayashi, H. Ueno, Y. Matsuo: “Measurement of the hyperfine splitting of alkali atoms in superfluid helium for laser spectroscopy of atoms with unstable nuclei” JPS Conf. Proc. **6**, 030115 (2015). 査読有  
DOI: 10.7566/JPSCP.6.030115

X. F. Yang, T. Furukawa, T. Wakui, T. Fujita, K. Imamura, Y. Mitsuya, M Hayasaka, Y. Ichikawa, Y. Ishibashi, H. Shirai, T. Suzuki, Y. Ebara, A. Hatakeyama, M. Wada, T. Sonoda, Y. Ito, T. Kobayashi, S. Nishimura, M. Kurata-Nishimura, Y. Kondo, K. Yoneda, S. Kubono, Y. Ohshiro, H. Ueno, T. Shinozuka, T. Shimoda, K. Asahi, and Y. Matsuo: “Laser-radio-frequency double-resonance spectroscopy of  $^{84-87}\text{Rb}$  isotopes trapped in superfluid helium” Phys. Rev. A **90**, 052516-1 - 052516-8 (2014). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevA.90.052516

X.F. Yang, T. Furukawa, T. Wakui, K. Imamura, T. Fujita, Y. Mitsuya, M. Hayasaka, Y. Ichikawa, Y. Ishibashi, H. Shirai, T. Suzuki,

Y. Ebara, A. Hatakeyama, M. Wada, T. Sonoda, Y. Ito, T. Kobayashi, S. Nishimura, M. Kurata-Nishimura, Y. Kondo, K. Yoneda, H.Ueno, T. Shinozuka, T. Shimoda, K. Asahi, Y. Matsuo: “Zeeman resonance spectroscopy of  $^{84-87}\text{Rb}$  in superfluid helium” RIKEN Accel. Prog. Rep. **47**, 37 (2014). 査読有

K. Imamura, T. Furukawa, T. Wakui, X.F. Yang, Y. Mitsuya, T. Fujita, M. Hayasaka, T. Sagayama, S. Kishi, Y. Ichikawa, H. Shirai, T. Suzuki, Y. Ebara, T. Sato, Y. Otomo, S. Kojima, A. Hatakeyama, T. Kobayashi, H. Odashima, K. Asahi, H. Ueno, Y. Matsuo: “Observation of hyperfine resonance of  $^{87}\text{Rb}$  in superfluid helium toward laser spectroscopy of atoms with exotic nuclei” RIKEN Accel. Prog. Rep. **47**, 240-240 (2014). 査読有

Y. Yamaguchi, H. Tomita, T. Furukawa, C. Sakamoto, T. Kobayashi, M. Tachikawa, K.D.A. Wendt, Y. Matsuo: “Development of a laser system towards optical pumping of various elements in OROCHI experiment” RIKEN Accel. Prog. Rep. **46**, 179-179 (2013). 査読有

### [学会発表](計6件)

早坂美希, 今村慧, 富田英生, 高松峻英, 山口康広, 藤田朋美, 小林徹, 植松晴子, 古川武, 上野秀樹, 松尾由賀利 「パルス Ti:S レーザーによる超流動ヘリウム中原子のスピン偏極生成」日本物理学会第71回年次大会, 2016年3月19-22日, 東北学院大学(宮城県・仙台市)

T. Fujita, T. Furukawa, K. Imamura, X. F. Yang, A. Hatakeyama, T. Kobayashi, H. Ueno, K. Asahi, T. Shimoda, Y. Matsuo, OROCHI Collaboration: “Laser spectroscopy of atoms in superfluid helium for the measurement of nuclear spins and electromagnetic moments of radioisotope atoms” The sixth international conference on Trapped Charged Particles and Fundamental Physics (TCP2014), かがわ国際会議場(香川県・高松市), Dec. 1-5 (2014).

K. Imamura, T. Furukawa, X.F. Yang, T. Fujita, T. Wakui, Y. Mitsuya, M. Hayasaka, Y. Ichikawa, A. Hatakeyama, T. Kobayashi, H. Odashima, H. Ueno, Y. Matsuo: “Hyperfine structure measurement of  $^{87}\text{Rb}$  atoms injected into superfluid helium as highly energetic ion beam” Fourth Joint Meeting of the Nuclear Physics Divisions of the American Physical Society and the Physical Society of Japan, Hawaii, USA, Oct.

7-11 (2014).

M. Hayasaka, T. Furukawa, H. Tomita, T. Takamatsu, K. Imamura, T. Fujita, T. Kobayashi, H. Uematsu, H. Ueno, Y. Matsuo: “Effective production of spin polarization of atoms in superfluid helium using pulsed lasers” Fourth Joint Meeting of the Nuclear Physics Divisions of the American Physical Society and the Physical Society of Japan, Hawaii, USA, Oct. 7-11 (2014).

山口康広, 富田英生, 古川武, 坂本知佳, 早坂美希, 小林徹, 立川真樹, K.D.A. Wendt, 松尾由賀利, 「内部共振器型 SHG を用いた超流動ヘリウム中レーザー分光用光源の開発」第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 2013 年 9 月 18 日, 同志社大学(京都府・京田辺市)

Y. Matsuo: “Spin polarization of atoms produced by laser excitation and its applications to atomic and nuclear physics” Workshop on Low-Energy Radioactive Isotope Beam (RIB) Production by In-Gas Laser Ionization for Decay Spectroscopy at RIKEN, Dec. 11, 2012, 理化学研究所(埼玉県・和光市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

松尾 由賀利 (MATSUO, Yukari)

法政大学・理工学部・教授

研究者番号: 5 0 2 3 1 5 9 3