

研究終了報告書

「炭素原子気体の精密分光と冷却の実現」

研究期間：2019年10月～2023年3月

研究者：吉岡 孝高

1. 研究のねらい

レーザー冷却に端を発する希薄中性原子気体の冷却や精密分光は、量子縮退集団の形成やその多体量子現象の解明、光周波数標準や量子シミュレータへの展開といった重要な研究領域につながってきた。本研究は、遷移周波数の高さ故に世界的に未開拓の状況である、非金属原子の希薄気体の分光や冷却に関する分野開拓となるような最初の実験実証の提示を目的に、特に重要性が高いとされている中性炭素原子を対象にして原子気体発生法や精密分光・冷却法の提案そして実証を行うことをねらいとした。炭素原子の場合、一光子電気双極子遷移が許容となる最も長波長の遷移は $3P-3P_0$ 遷移であるが、これは 165 nm に位置しており現在のレーザー技術で必要十分な平均パワーを用意することが困難である。そこで本研究では、波長 287 nm において二光子双極子許容となる $3P-3D$ 遷移に着目し、この遷移の性質の理解や遷移周波数の測定、および二光子レーザー冷却の実証をねらうこととした。ただし、当該遷移は一光子遷移程の高効率な誘起ができるか疑問であったため、冷却したヘリウム気体を用いたバッファガス冷却による予冷後に、外場によってトラップ可能な温度まで冷却するためのレーザー冷却を加える手順を想定した。本研究ではまた、摂氏数十度から数百度に加熱することで蒸発気体として用意できるアルカリ金属、アルカリ土類金属原子等と異なり、レーザー分光を可能とする真空中での基底状態の中性炭素原子の発生法は全く知られておらず、昇華温度が約 3900 K にもおよぶグラファイトからいかにして気体を用意するかについても開拓が必要である。このように、気体の準備法や適切なレーザー光源の配置の考察等、あらゆる側面について参考にできる先行研究がない点が挑戦的といえる。レーザー分光グレードの遷移周波数の決定は初めての報告となり得る他、極低温の炭素原子気体の形成によって炭素分子やクラスター分子をはじめとする炭素関連物質の形成過程や有機分子の低温量子化学の実験研究の舞台となり得る。例えば、宇宙背景輻射温度の環境で星間物質中に含まれることが知られている有機分子がいかにして形成されたかを、実験室環境で調べる新たな系を提示できる可能性があり、新規研究分野の形成に寄与できる可能性を有しているものと考え提案を行った。

2. 研究成果

(1) 概要

Chirped Bragg Grating を用いたコンパクトかつ低損失なフェムト秒パルスの時間領域伸張・圧縮と、半導体テーパアンプを用いた増幅を組み合わせた、超高繰り返しフェムト秒光周波数コム短パルス性を維持する新たな増幅法を提案し性能評価を行った。繰り返し周波数 1.6 GHz のチタンサファイアフェムト秒光周波数コムのうち幅 10 nm のスペクトル成分を切り出し構築した増幅系に入力した結果、数百 mW の平均パワーまで増幅すると共に、フーリエ変換限界に

迫るパルス幅まで圧縮することに成功した。

また、真空中に配置した HOPG グラファイトのレーザーアブレーションによる中性炭素原子気体の発生法を開発した。微弱なブルーエンスでターゲットの励起を行った上で、新たに構築した波長可変ナノ秒 Ce:LiCAF レーザーによって $^3\text{P}-^3\text{D}$ 2 光子励起を誘起した。励起後の二段階緩和の際に放出される 165 nm における二光子誘起蛍光を観測することで、基底状態の炭素原子の発生や温度、発生原子数を検出する方法を初めて確立した。通常のアブレーションブルーエンスでは励起状態の原子やイオンが、分光や冷却に適用困難な大きな速度を持って放出されることも初めて明らかにした。これによって、希薄原子気体の研究分野に中性炭素原子を新たに加えることができた。

レーザー冷却に先だって予冷を行うためのバッファガス冷却については、既存の無冷媒ヘリウム3冷凍機とその輻射シールドの改造を行い、設計製作したバッファガスセルの冷却と気体ヘリウム4の導入ラインの構築を行った。ヘリウム気体の排気速度の改良と熱輻射流入の低減を施した結果、十分な量のヘリウム気体の導入下で 5 K 以下を維持し、炭素原子気体の予冷を実現するバッファガス冷却法の実現に成功した。

予冷後の炭素原子気体に 2 光子レーザー冷却を施し磁気トラップ等を実現するためには、287 nm において光強度を高く維持し 10 回のオーダーで冷却サイクルを維持するマイクロ秒程度のパルス幅のレーザー光が必要となる。フェムト秒光周波数コムによって絶対周波数を計測できる単一縦モード cw レーザーによってマイクロ秒 Ti:sapphire レーザーの注入同期を行い、マルチパスアンプによって増幅後に第三高調波の発生を行った。この結果、繰り返し周波数 10 Hz において波長 287 nm、パルス幅約 600 ns、パルスエネルギー約 1 mJ の単一縦モードパルスレーザーを実現した。

(2) 詳細

研究テーマ A「超高繰り返し光周波数コムの増幅法の開発」

本研究では中性炭素原子の精密分光やレーザー冷却を実現するにあたり、現状のレーザー技術で実現可能性が高い 287 nm の絶対周波数が定まった光源を構築し、 $3\text{P}-3\text{D}$ 遷移の 2 光子共鳴遷移を誘起し活用して行くことを提案した。当初計画に基づいて、繰り返し周波数が非常に高いフェムト秒光周波数コムの高効率な増幅法の開発を行い、この実現による高出力な深紫外領域への波長変換を行いこれを分光やレーザー冷却に用いる方針で光源開発を進めた。

フェムト秒パルスレーザーの増幅法としては複数の方法が知られているが、周波数コムとして使用するために繰り返し周波数を変更しないような増幅法を用意する必要がある。そのためには繰り返し周波数に同期したパルスレーザー等で励起したゲイン媒質によってパルス状のゲインを用意するか、直流の効率の良い効率法を考案することが求められる。このうち後者としては、半導体テーパアンプを用いた光増幅法が挙げられ、電流注入下で CW レーザーを非常に高いシングルパスゲインのもとで平均パワー数 W まで増幅できる系であり有力な候補といえる。しかし、反転分布の励起状態寿命が短いため、通常の数 10 MHz 程度の繰り返し周波数のモード同期レーザーの増幅率は CW レーザーよりも著しく下がることが知られている。そこで本研究では、繰り返し周波数 1.6 GHz の Ti:sapphire 超高繰り返し光周波数コムを用いると共に、光パルスにチャープを加えて時間領域で伸張することで、準 CW 的な効率の良い増幅が可能と

考えた。また、増幅後にパルス圧縮を行えばその後の非線形変換効率を向上可能である。

光周波数コムのおクターブに広がった波長分布のうち、中心波長 861 nm、波長幅 10 nm にわたって高反射率となる様な Chirped Bragg Grating (CBG)を導入し、これを用いてパルス幅を 450 ps 程度まで伸張した上で、当該波長において最大ゲインが得られるような半導体テーパアンプを用いて増幅を行った。その上で、同 CBG を用いてパルス圧縮を行うことで、平均パワー 379 mW (縦モード 1 本あたりの平均パワー 150 μ W)、類似の実験配置例と比較して最短となる圧縮後のパルス幅 160 fs のチャープパルス増幅に成功した。これらの増幅システムは 150 mm \times 200 mm の面積に収まっており、コンパクトな光学系が特徴となっている。しかし一方で、さらに入力パワーを向上させるためにテーパアンプの駆動電流を増すと、パルス光の増幅率が期待通りに上昇しないことが判明した。数値計算との比較を通じて、入射光パルスが弱まっている時間領域においては Amplified Spontaneous Emission の増幅効率が上昇することが原因であると分かった(Optics Letters 誌に掲載)。テーパアンプの表面のコーティングが劣化していた可能性が後に判明しており、増幅効率の原理限界はより高いものと考えられる。

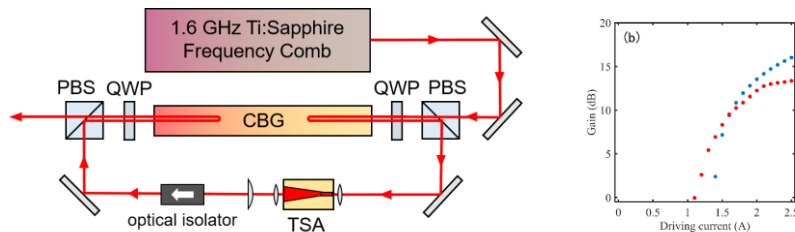


図 1. (左) 本研究で構築した超高繰り返しフェムト秒光周波数コムの再生増幅のためのセットアップの概略図。CBG: Chirped Bragg Grating、TSA: Tapered Semiconductor Amplifier、PBS: Polarizing Beam Splitter、QWP: Quarter Waveplate。(右) TSA の駆動電流に対する光周波数コムのゲイン (赤丸)。青丸は cw レーザーの入力に対するゲイン (スペック値)。

研究テーマ B「真空中の中性炭素原子気体の発生と $^3P-^3D$ 遷移の観測」

研究テーマ A と並行して、真空中のグラファイトのレーザーアブレーションを用いることで、分光や冷却実験のための電子基底状態の中性炭素原子気体の発生法に関する開拓を進めた。研究開始後には、既存のフェムト秒再生増幅器 (波長 800 nm) の出力や、各種波長のナノ秒パルスレーザーを用いて HOPG グラファイトのレーザーアブレーションを誘起し、原子の観測には四重極型質量分析器を用いて真空中の炭素原子の直接的検出を試みていた。しかし、励起条件の変更やベーキング等を通じたグラファイト試料の吸着分子の除去等を行っても、質量分析において検出できるのは炭化水素や二酸化炭素といった分子のフラグメンテーションに由来する炭素のみであり、中性炭素原子による信号は検出できなかった。炭素の蒸気圧の低さに起因し、この方法で原子を選択的に検出することは困難であると結論づけ、光学的検出に的を絞って進めるべきであると考えた。

研究開始後より、基底状態中性炭素の 2 光子許容遷移として着目していた $^3P-^3D$ 遷移の 2 光子遷移レートの数値計算を進めた。その結果、遷移の中間状態が遠共鳴となることが主な理由で、真空中で高速に飛行しうる中性炭素原子を励起して蛍光を観測するためには 287 nm において非常に高い光強度が必要であることが判明した。このため、研究テーマ A で進めていた超高繰り返し光周波数コムの増幅及び 3 倍波発生を用いた 2 光子励起では、現実的な実験時間

での原子検出が難しいと判断し、光源についても当初提案から方針転換し、高いピーク強度を持つ低繰り返し率のナノ秒パルスレーザーの開発を急遽進めることとした。

波長 287 nm における高ピークパワーのナノ秒パルスレーザーとして、本研究では Ce:LiCAF 結晶を使用し、ナノ秒 Nd:YAG レーザーの第四高調波によって励起するナノ秒波長可変レーザーの構築を行った。入手したレーザー結晶の波長 266 nm における線形吸収量から、共振器のデザインや励起に必要なパルスエネルギーの考察を進め、実際に構築を行った。共振器内プリズムとエンドミラーの反射角で決まる波長選択性を用いて波長可変となるようにした。その結果、スロープ効率として 27% の高効率なレーザーを実現し、励起下で 1.2 mJ の出力を 287 nm において確認した。また、パルス幅は 2.8 ns となった。これは、中性炭素原子の $^3\text{P}-^3\text{D}$ 2 光子遷移を十分な遷移レートで誘起可能となるピークパワーを実現している。

$^3\text{P}-^3\text{D}$ の 2 光子励起の確認は、2 段階の蛍光($^3\text{D}_0-^3\text{D}_0$ 遷移:1068 nm、 $^3\text{D}_0-^3\text{P}$ 遷移:165 nm)のうち、単一光子検出レベルの高感度検出器の入手性およびアブレーション下で生じる黒体放射の排除の観点から、真空紫外の 165 nm における検出を選択した。波長 266 nm のナノ秒パルスレーザーを用いた HOPG グラファイトのレーザーアブレーションを行い、プルームの発光スペクトルから中性炭素原子の発光を確認しつつ、2 光子励起下で 165 nm における発光観測を行った。しかし、287 nm の 2 光子遷移誘起用ナノ秒パルス照射せずとも明るい発光信号が観測され(図2)、基底状態からの 2 光子励起に伴う緩和蛍光信号の探索は困難をきわめた。図の結果は長寿命の励起状態にある炭素原子が温度換算で 10^6 K もの速度で飛行していることを意味しており、また基底状態の原子発生は確認できない。そこで、強い励起によって炭素原子間の結合を解くのではなく、桁違いに弱い励起(アブレーションフルーエンス 0.18 J/cm^2)によってグラファイト表面からの昇華を誘起し、この際に基底状態の炭素原子が発生することを期待して再度実験を行った。この結果、固体の励起のみの照射下では深紫外発光は観測されなくなり、かつ、共鳴 2 光子励起後の緩和に伴う 165.7 nm の蛍光を観測することに初めて成功した(図3)。気体発生と 2 光子励起の相対時間を変化させることで、発生した原子気体のピーク速度を計測した結果は 3400 m/s (温度換算で 5600 K) であることや、発生した原子数が単パルスあたり 1.5×10^8 であることを見出した。

これらの結果は、今後中性炭素原子を用いた冷却希薄原子気体の研究分野開拓を可能とする最初の重要な一歩であると考えられる(Physical Review A 誌に掲載)。

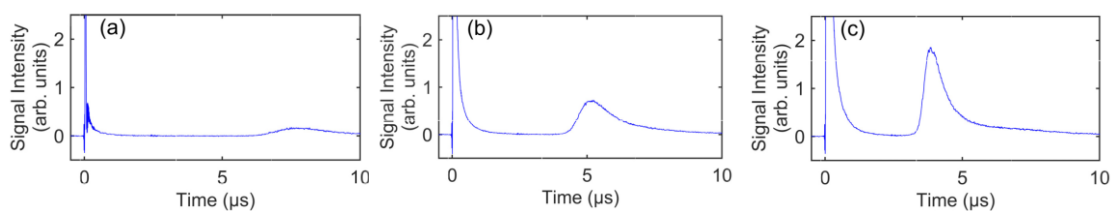


図2. 励起フルーエンス 8 J/cm^2 、 25 J/cm^2 、 50 J/cm^2 における波長 165 nm の発光の時間分解信号。グラファイト試料から 20 cm 離れた位置で検出しているため、数マイクロ秒以上にわたって炭素原子が真空紫外波長域の蛍光を継続して放出しながら基底状態に緩和し、加えて高速に真空中を飛行していることが分かる。

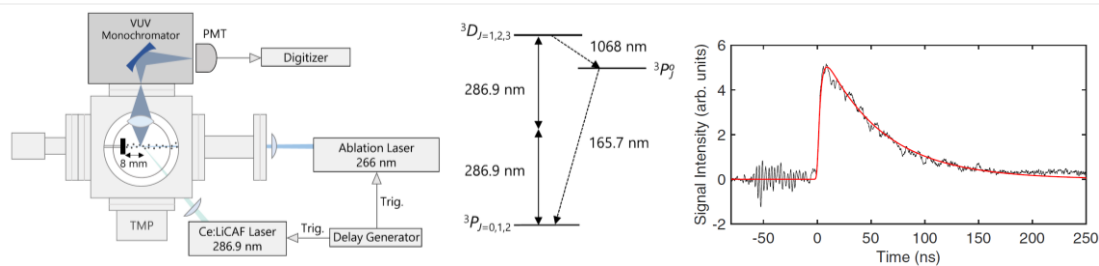


図 3. (左) 中性炭素原子気体の2光子励起誘起蛍光を観測するセットアップの模式図。(中央)観測に用いた2段階緩和。(右) 気体発生用励起フルーエンス 0.13 J/cm^2 、2光子励起用励起強度 $3 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ において観測した 165.7 nm における発光の時間分解信号。グラファイト試料から 8 mm だけ離れた位置で2光子励起を行い、そのタイミングを時間原点に取っている。2光子励起後の2段階の緩和を反映した信号形状が現れている。

研究テーマ C「バッファーガス冷却の構築」

発生させた比較的高温の炭素原子気体に直接レーザー冷却を適用することは、2光子遷移確率の低さを鑑みると効率が悪く現実的ではないため、当初提案通りバッファーガス冷却による数 K までの予冷を実施する方針を取った。既存の無冷媒ヘリウム3冷凍機を活用し、グラファイトのレーザーアブレーションによって発生させた炭素原子と冷却したヘリウム 4 気体との熱交換をバッファーガスセル内で行い、混合気体を冷凍機外に取りだして炭素原子のレーザー冷却やトラップを実現していく計画とした。

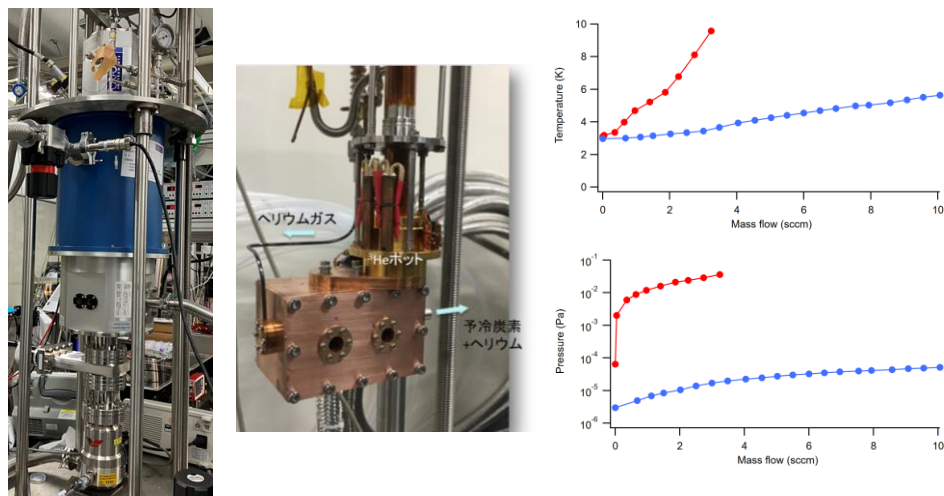


図 4. (左) テール部分の改造を施した無冷媒ヘリウム3 冷凍機。(中央) 製作したバッファーガスセルとヘリウム気体の導入ライン。(右) ヘリウム気体の導入量に対するバッファーガスセルの温度と冷凍機内の真空度。当初の試験運転(赤点)から改良を加え、バッファーガス冷却に十分な最大の気体導入量においても、5 K 台の低温を維持することが可能となった(青点)。

冷凍機外からレーザーアブレーションを行うレーザー光導入のための窓や、必要に応じて使用する透過配置の窓を取り付けたバッファーガスセルを設計・製作し、冷凍機内で最低温度となるヘリウム3 ポットに装着した。また、冷凍機の2段階の冷却ステージで熱アンカーを取りながら室温のヘリウム気体を低温に冷却しつつ導入する気体導入ラインを構築した(図4)。最初の

冷却試験においては、バッファガス冷却自体は可能であるものの冷凍機の真空度が不十分で、少量のヘリウム気体導入でバッファガスセルの温度が 10 K 程まで上昇した。そこで冷凍機内でのヘリウム気体の吸着量の向上や冷凍機の排気速度の向上、輻射熱の流入量の低減を通じて、十分な量のヘリウム気体の導入下でもバッファガスセルの温度を 5 K 台に抑えることに成功し、炭素原子気体の予冷が可能となった。

なお、本研究テーマでは米国 Harvard 大 John M. Doyle 教授との共同研究を最終年度に行った。また、本研究に参加した大学院生が 5 ヶ月間の米国への滞在を行う等、人的交流を開始することができた。

研究テーマ D「マイクロ秒深紫外パルスレーザーの開発」

研究テーマ B で行った 2 光子遷移レートの数値計算の結果、炭素原子の $^3P-^3D$ 2 光子遷移周波数測定や、バッファガス冷却による予冷後のレーザー冷却の実現のためには、当初計画の深紫外フェムト秒周波数コムによるのではなく、パルス幅の長い単一縦モードのパルスレーザーが好適である可能性が高まった。このため、注入同期型 Ti:Sapphire マイクロ秒パルスレーザーと Ti:Sapphire マルチパス増幅器および増幅後の三倍波発生 of 構築を進めた。

本光源の特徴は、注入同期型パルスレーザーにおいて出力鏡の反射率を恣意的に 99% 程と高く設定することで共振器内光子寿命を長くし、Ti:sapphire の励起状態寿命を活かしたマイクロ秒程度のパルス幅の単一モード発振を実現することである。また、もう一つの特徴は注入同期のためのマスターレーザーは狭線幅エタロンに周波数安定化した単一モード cw レーザーであり、フェムト秒光周波数コムを用いて絶対周波数を把握できることである。波長 861 nm におけるパルス幅約 600 ns、パルスエネルギー約 20 mJ を繰り返し 10 Hz で得た。さらに第二高調波発生後に和周波発生を行うことで 287 nm の発生を行い、パルスエネルギーとして約 1 mJ を得た。

3. 今後の展開

本研究で確立した基底状態の中性原子気体の発生方法と、精密分光や冷却のために適切と考えられるパルス光源を用いて、実際に低温原子気体の性質、特に原子間の低温散乱の性質を調べる実験に移行することが重要と考えられる。特に量子散乱が顕著となる温度領域でのトラップ内非弾性散乱係数と炭素分子のようなラジカル分子形成の相関の研究は、ナイーブな想像の範疇でもフラーレンやカーボンナノチューブ等の構造体形成の素過程の理解に大きく貢献できるものと考えている。また、将来的に低温化した水素原子や酸素原子の導入を行うことで、研究提案の際にも将来構想として挙げた有機星間物質の形成過程の解明に寄与することが可能である。また、遷移周波数の正確な決定によって、多彩な分野で参照される標準データへの貢献も図りたい。さらに、レーザーを用いた原子干渉計による質量計測を通じた ^{12}C の質量のプランク定数による決定は、統一原子質量単位の精緻な検証を実現するものと考えられる。

将来的に社会実装に繋がるためには、本研究の成果そのものではまだ不十分であり、上述の低温における分子形成や異種原子との結合ダイナミクスの観測を通じていわゆる超低温化学における新原理を構築できるか否かに依存している。この方向性が明確になるには今後 10 年程度を要するものと想像される。その展開によっては、カーボンニュートラル社会の推進を加速するような学術分野の構築に繋がる可能性もあり、レーザー分光や冷却という分野に拘り発想が矮小化することのないよう努めたい。

4. 自己評価

本研究は、これまでの研究経験に基づいて真に未開拓の研究分野の立ち上げに挑戦すべく、さきがけの枠組みでなければ実行することが難しい内容に取り組んだものである。炭素気体の適切な発生方法や遷移を誘起するための最適なレーザー光源の考案を含め、あらゆる側面を自ら切り拓く必要があった。この試みは一定の成功を収めることができたと考えており、例えば原子分子物理の分野に基底状態炭素原子の希薄気体の発生及び検出方法に関する貢献を論文の形で残すことができた。また、当該論文では精密分光やレーザー冷却のために現時点で最適と考えられる配置を議論し、2光子遷移を用いた非金属原子の冷却に関して新しい道筋をつけることができたことも重要な成果であったと考えている。

しかし、当初提案のバッファーガス冷却による予冷とその後の2光子レーザー冷却の実証については研究期間終了までに到達できなかった。当初計画よりも進捗が遅れた原因としては、中性炭素原子気体の発生方法の確立に時間を要したことに加えて、新型コロナウイルス感染症の蔓延に伴い実験研究が事実上不可能である期間が長く継続したことは、知見の蓄積がなかった本研究の進行には大きな影響があった。

それでもわが国において、真にオリジナルである研究が確かに軌道に乗ったことは事実であり、炭素原子気体の研究の第一人者として今後評価されるための重要な基盤を形成できたことに深く感謝したい。この最初の一步と、新たに構築することができた国際連携を活用しつつ発展させ、大規模な研究を展開して行きたいと考えている。

なお、「今後の展開」にも記載した低温炭素原子気体の異分野への展開を通じた科学技術への波及は、今後5年程度でその端緒となるような研究結果を創出することで、その後さらに5年程度をかけて広く議論され始めるものと期待される。社会・経済への波及効果としては、現時点で本研究から直接的に展開しうることは超高繰り返しフェムト秒レーザーの増幅法に関する技術の普及があり得る。しかしこれは小規模な発展に留まるものと想像され、今後の研究展開によって学術的知見の蓄積が期待される低温炭素原子を用いた化学反応を皮切りに、社会への大きな貢献を図ることを念頭に今後の研究を遂行したい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数:2件

1. Takashi Sakamoto, Kosuke Yoshioka,

Chirped pulse amplification of an ultrahigh-repetition-rate Ti:sapphire frequency comb using a tapered semiconductor amplifier

Optics Letters **46**(18), 4642 (2021).

Chirped Bragg Grating を用いたコンパクトかつ低損失なフェムト秒パルスの時間領域伸張・圧縮と、半導体テーパアンプを用いた増幅を組み合わせ、超高繰り返しフェムト秒光周波数コム短パルス性を維持した増幅を実現した。繰り返し周波数 1.6 GHz のチタンサファイアフェムト秒光周波数コムのうち幅 10 nm のスペクトル成分を切り出し 379 mW の平均パワーまで増幅すると共に、フーリエ変換限界に迫るパルス幅まで圧縮することに成功した。これは超

高繰り返し光周波数コムの高効率な非線形波長変換に活用可能な新規増幅方法と位置づけることができる。

2. Takashi Sakamoto, Kosuke Yoshioka

Observation of two-photon excitation-induced fluorescence of ground-state neutral carbon atoms in vacuum generated by laser ablation of graphite

Physical Review A **106**, 052808 (2022).

真空中の HOPG グラファイトに対して波長 266 nm、パルス幅 4 ns のパルスレーザーを弱く照射すると、表面加熱に伴って昇華による電子基底状態の中性炭素原子が発生する。自作した波長可変ナノ秒 Ce:LiCAF レーザーによって中性炭素原子の $^3P-^3D2$ 光子遷移(286.9 nm)を誘起し 165 nm の蛍光を真空中で初めてとらえたことで証明した。通常レーザーアブレーションの際にはブルームの発生を伴うが、そのような励起条件では電子励起状態にあり 100 eV 程の並進運動エネルギーで飛行するような、精密分光や冷却原子実験には不適格な中性原子およびイオンが発生していることも解明した。また、炭素原子における 2 光子遷移断面積を理論的に評価し、実験における信号量や時間分解実験の結果と 2 光子励起条件に基づいて、発生した気体の数や温度の定量的な評価を行った。

(2) 特許出願

研究期間全出願件数:0 件(特許公開前のものも含む)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

主要な学会発表

- T. Sakamoto, K. Yoshioka, “Chirped Pulse Amplification of 1.6 GHz Ti:Sapphire Frequency Comb Using a Tapered Semiconductor Amplifier”, 2021 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC) All Virtual, 2021/6/26 (口頭)
- 阪本天志, 吉岡孝高 「中性炭素原子気体の二光子誘起蛍光の観測」 日本物理学会第 77 回年次大会, オンライン開催, 2022/3/16 (口頭)
- T. Sakamoto, K. Yoshioka, “Observation of two-photon induced fluorescence of neutral carbon atom gases” The 27th International Conference on Atomic Physics (ICAP2022), Toronto, Canada 2022/7/19 (ポスター)
- 吉岡孝高 「マイクロ秒パルスレーザーを用いた非金属原子の冷却の展開」 レーザー学会学術講演会第 43 回年次大会, ウィンクあいち, 2023/1/18 (招待講演)

受賞(学生)

- 阪本天志 日本物理学会学生優秀発表賞 (2022 年第 77 回年次大会, 領域 1) 2022/4/9