

固体中の Pr^{3+} の一イオン発光検出

(東工大院・理) ○中村一平, 吉弘達矢, 稲川博敬, 藤芳暁, 松下道雄

Optical detection of single praseodymium ion in crystal

(Graduate School of Science, Tokyo Institute of Technology) ○Ippei Nakamura, Tatsuya Yoshihiro, Hironori Inagawa, Satoru Fujiyoshi, and Michio Matsushita

【序論】無機結晶中にドーパされた希土類イオンは、電子遷移を利用して核スピン状態を検出できる系として知られている。温度数Kに冷却すると電子遷移の吸収線幅は1 MHz以下になり、核スピンと電子の相互作用によるエネルギー準位の超微細構造があらわになる。この性質を利用し、電子と核スピンの二重共鳴分光、例えば光検出磁気共鳴、ラマンヘテロダイナミクス分光の研究が行われてきた[1, 2]。近年では、固体中の希土類イオンの核スピン状態を量子ビットとし、光で観測と制御を行う量子コンピュータのモデルが提案されている[3]。その実現に向けた課題は、核スピン量子ビットの多ビット化に伴う発光信号の減少である。希土類イオンの輻射寿命の長さは核スピンの超微細構造を分解できる細い寿命幅の由来であるが、長寿命の遷移の発光は必然的に弱い。もちろん、結晶中の多数のイオン集団を一つの量子ビットとみなせば核スピンの観測に十分な発光量を得ることができる。しかし、多ビット化を進めるほど1量子ビットに割り当てられるイオン数は減るので、少数、究極的には単一イオンの観測を可能とする微弱光検出の技術が求められている。我々は、フッ化ランタン(LaF_3)結晶中にドーパされた単一プラセオジウムイオン(Pr^{3+})の発光検出に数年来取り組んできた。観測する遷移は $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ の ${}^3\text{H}_4 \rightarrow {}^3\text{P}_0$ 遷移で、励起状態 ${}^3\text{P}_0$ の寿命は47 μs である[4]。単一 Pr^{3+} の発光量は最大でも寿命の逆数の $2.1 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ に過ぎない。しかも発光波長は ${}^3\text{P}_0 \rightarrow {}^3\text{H}_6$ 遷移の600 nmを主として530-730 nmに渡り、励起波長478 nmと大きく離れている。発光検出の実現には、可視全域で色収差が無く、しかも高い検出効率を持つ低温用の顕微鏡の開発が必要であった。

【実験】図1に単一 $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ 発光検出のための共焦点低温顕微鏡のセットアップを示す。試料は Pr^{3+} 濃度0.05atm%の $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ 結晶である。試料に励起光を照射し、生じた発光を捕集する対物レンズには、我々が独自に開発した低温対応の反射型対物レンズ($\text{NA}=0.97, f=1.79 \text{ mm}$)を用いた[5]。このレンズは真空中で 1.2π という高い立体角を持ち、さらに屈折ではなくレンズ表面に蒸着されたアルミ面の反射で集光するために色収差がない。

単一 Pr^{3+} の観測は、遷移の不均一広がりや端の波長帯を励起する方法[6]で行った。対物レンズの焦点領域はおおよそ $0.1 \mu\text{m}^3$ の広がりを持ち、試料はその中に 10^6 個の Pr^{3+} を含む。個々のイオンの吸収線は半値全幅14 GHzの不均一広がりをもって分布しているので、励起波長をアンサンブルの吸収スペクトルの中心から外すことで、光吸収を起こすイオン数を絞ることができる。本実験で

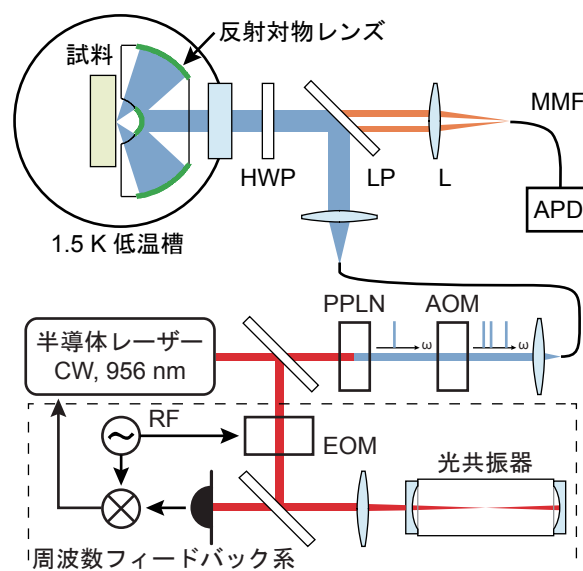


図1：顕微システムのセットアップ。HWPは励起偏光を回すための1/2波長板。LPは励起光カット用のロングパスフィルタ。Lは結像レンズ($f=150 \text{ mm}$)で、顕微鏡の倍率は84倍。MMFはマルチモードファイバー(ファイバー径 $50 \mu\text{m}$)で、共焦点系の結像ピンホールの役割を果たす。APDは発光強度測定用のアバランシェ型フォトダイオード。

は、不均一広がりを中心波長(477.89 nm, 627.76 THz)から100 GHzほど外した波長域で発光励起スペクトル測定を行い、単一Pr³⁺の吸収線を分解しようと試みた。

単一Pr³⁺の吸収線は温度数Kで寿命幅に相当する0.1 MHzまで細くなるのが期待されるため、測定には同程度の線幅、周波数安定度、掃引の分解能を持つ光源が必要である。そこで、図1下部に示すCW近赤外半導体レーザーをベースにした線幅0.5 MHz以下の安定化光源を製作した。半導体レーザーの周波数安定化は、電気光学変調子(EOM)で位相変調した光をFabry-Perot光共振器に入射させ、共振器の透過率ピーク周波数にロックするPound-Drever-Hall法[7]で行った。安定化した近赤外光を周期分極反転LiNbO₃(PPLN)結晶の第二次高調波発生で波長変換し、波長478 nmの励起光を得た。励起光の周波数掃引は、音響光学変調子(AOM)への入力RF周波数の掃引によって行った。また、AOMに同時に3つの周波数成分を入力し、励起光にPr³⁺の核スピンによる分裂(-8.5 MHz、+16.7 MHz、図2)に合わせたサイドバンドを立てた。これはイオンがどの核スピン状態にあっても常に光励起させるためである。サイドバンドのない単一周波数の励起光の場合、光励起によってPr核スピンの別の核スピン準位に遷移するオプティカルポンピング(OP)が起きる。核スピンの遷移と共に励起しているイオンの光吸収の波長も変化するので、共鳴が外れて消光してしまうのである。

【結果と考察】 図3は、サイドバンドを立てた励起光を一斉に掃引することで得た単一Pr³⁺の発光励起スペクトルである。励起波長は477.82 nm(627.85 THz)で、不均一広がりを中心波長から92 GHz高エネルギー側に外して測定した。(a)の0 MHz付近に強度20 cpsのピークがみられる。このようなスペクトル構造は、Pr核スピンの分裂に対応するサイドバンドを立てた時にしか観測されなかった。この結果は、測定された信号がOPを起こす、すなわち電子遷移と核スピンの結合しているPr³⁺の発光であることを示す。単一Pr³⁺の発光強度は、³P₀状態の輻射寿命47 μs、文献[4]より計算した検出波長域の発光を生じる確率33%、そして顕微鏡の検出効率0.53%より40 cpsと見積もられ、この値は測定値20 cpsと整合する。また、図2(a)と(b)の比較から分かるように、励起光の偏光を90°回転させるとピークが消失した。これも単一の遷移双極子に期待される性質である。講演ではこれらの結果の他、単一Pr³⁺とアンサンブル測定の発光信号の違いについて議論する。

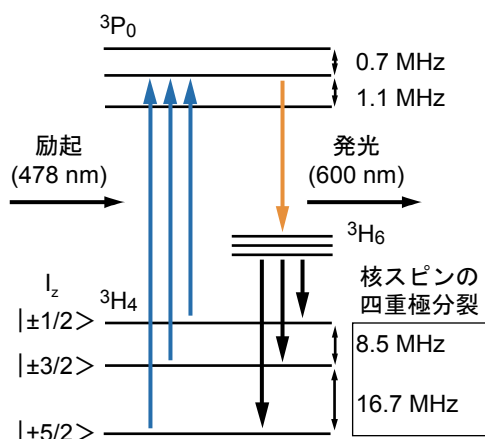


図2: Pr³⁺:LaF₃のエネルギーダイアグラム。Prは大きさ5/2の核スピンを持ち、エネルギー準位は零磁場で3準位に分裂している。³P₀から³H₆への失活の際に励起前と異なる核スピン状態に戻る確率があり、OPを起こす。

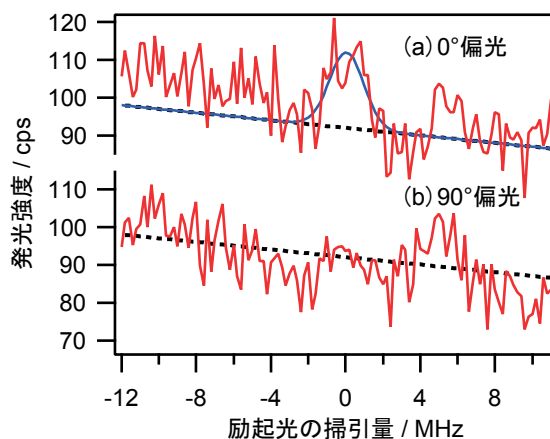


図3: 単一Pr³⁺の発光励起スペクトル。点線は90°偏光のデータを直線フィットしたもの。0°偏光のデータには、ピークをガウスフィットした曲線を重ねてある。励起強度は90 W/cm²。

【参考文献】 [1] L. E. Erickson, *Opt. Commun.* **21** 147 (1977). [2] M. Matshushita, et. al., *Phys. Rev. B* **58** 14372 (1998). [3] Nicklas Ohlsson, et. al., *Opt. Commun.* **201** 71 (2002). [4] M. J. Weber, *J. Chem. Phys.* **48** 4774 (1968). [5] 稲川博敬他, 第6回分子科学会討論会, 2p020 (2012). [6] W. E. Moerner and L. Kador, *Phys. Rev. Lett.* **62** 2535 (1989). [7] R. W. P. Drever, et. al., *Appl. Phys. B* **31** 97 (1983).