

Photoassociationによる極低温 リチウム分子生成の研究

岡村高志

電気通信大学 電気通信学研究科 電子物性工学専攻

指導教官 清水富士夫教授

31 March 2001

目 次

第1章 序文	1
1.1 本研究の背景	1
第2章 理論	2
2.1 原子のレーザー冷却と MOT	2
2.1.1 光が原子に及ぼす力	2
2.1.2 原子線の減速	2
2.1.3 ドップラー冷却	4
2.1.4 MOT	7
第3章 二原子分子	11
3.1 二原子分子の電子状態と波動関数の分類	11
3.1.1 スピンを考慮しないとき	11
3.1.2 スpinを考慮したとき (Hund's case)	14
3.2 振動エネルギー	17
3.3 回転エネルギー	18
3.4 分子における選択則	20
3.4.1 振動回転準位と Franck-Condon の原理	20
3.4.2 選択則	22
第4章 Photoassociation	23
4.1 極低温原子における Photoassociation	23
4.1.1 Photoassociation とは	23
4.1.2 PA によって生成される分子の状態	23
4.1.3 極低温原子における PA	24
4.2 その他の PA の性質	26
4.2.1 PA と大きな核間距離 (Long Range)	26
4.2.2 PA による分子の生成効率	26

第 5 章 実験	27
5.1 実験概要	27
5.2 実験手順	27
5.3 実験装置	27
5.3.1 Photoassociation	27
5.3.2 冷却系および MOT	30
5.3.3 Photoassociation 実験に関するその他の装置	34
5.3.4 その他の測定	38
第 6 章 結果及びその解析	42
6.1 結果	42
6.2 データの解析	45
6.2.1 生成した分子 (Li_2) の状態	45
6.2.2 $A^1\Sigma_u^+$ の系列におけるスペクトル線の分裂	45
6.2.3 振動(回転)準位の同定	46
6.2.4 精度の算出	46
第 7 章 おわりに	48
参考文献	49
付 錄 A E.R.I.Abraham et al のデータ	51
A.1 $A^1\Sigma_u^+$ 状態と $1^3\Sigma_g^+$ 状態の振動と回転に関する定数	53

図 目 次

2.1	ドップラー冷却の原理	6
2.2	MOT の磁場構造	9
2.3	四重極磁場中のエネルギー準位構造	10
3.1	${}^7\text{Li}_2$ の低エネルギー状態におけるポテンシャル曲線	13
3.2	Hund's case	16
3.3	Franck-Condon の原理	21
4.1	Photoassociation 概念図	25
5.1	PA 装置図	29
5.2	MOT 装置図	31
5.3	${}^7\text{Li}$ のエネルギー準位図	33
5.4	光学系及び測定系	36
5.5	周波数安定化システム	37
5.6	MOT 中の原子の衝突による減衰	41
6.1	${}^7\text{Li}_2$ の振動回転スペクトル	43

表 目 次

3.1 電気双極放射における選択則	22
5.1 MOT に関するパラメータ	32
5.2 Photoassociation に関するパラメータ	32
6.1 同定された振動準位の相対的な束縛エネルギー	44
A.1 E.R.I.Abraham et al による ${}^7\text{Li}_2$ の振動回転スペクトル	52
A.2 $A^1\Sigma_u^+$ 状態と $1^3\Sigma_g^+$ 状態の振動と回転に関する定数	53

第1章 序文

1.1 本研究の背景

1985年にレーザー冷却（ドップラー冷却）がはじめて実現[7]されて以来、人類は（ある一部の）原子・イオンにおいて mK, μ K オーダーの極低温領域にまで比較的容易にアクセスできるようになった。さらに、磁気光学トラップ（MOT）や磁気トラップ、蒸発冷却などの技術の開発はそれまで理論上の产物と考えられていた BEC を実現し、1997年のノーベル賞受賞へとつながった。しかし、レーザー冷却による原子の冷却のその華々しい活躍の一方で、分子の冷却は原子ほどには進んでいない。これは分子に対してはドップラー冷却・MOT と言った輻射圧を用いた冷却・トラップ法が適用できない事が主な原因である。

ドップラー冷却・MOT では 2.1 に述べるように、それに用いる遷移が閉じていることが不可欠である。しかし、原子に比べ分子は量子化された多くの振動回転準位を持っており、一つの励起状態から多数の振動回転準位に緩和する。そのため、閉じた遷移を作ることが非常に困難であり、ドップラー冷却によって冷却することが出来ない。また、MOT によるトラップも困難である。

しかし、現在、世界各地で分子の BEC 実現への取り組みが始まっています、分子の冷却法の確立は一層重要度を増している。そのような状況の中で、分子そのものを冷却するのではなく、冷却分子を冷却した原子から作り出そうという試みが生まれてきた。本研究もこのような考え方から出発しており、今回は Photoassociation（以下 PA）による極低温分子の生成という方法を採用した。

分子の BEC の報告については未だ報告されておらず、これから研究の進展が期待されている。本研究は分子 BEC 生成に向けてのまだほんの第1歩であるが、本学のこれから研究が分子の BEC の実現に大きく貢献することを期待したい。

第2章 理論

2.1 原子のレーザー冷却と MOT

2.1.1 光が原子に及ぼす力

光（電磁波）が原子に及ぼす力は、大きく分けて散乱力と双極子力の2つに分けられる。散乱力とは、波数ベクトル \mathbf{k} をもつ光子が原子において吸収・放出される際に、原子に $\hbar\mathbf{k}$ の運動量の変化（反跳）¹を与えるような力であり、輻射圧とも呼ばれている。これについては次節で述べる。もう一方の双極子力は、光電場によって誘起された原子の双極子モーメントが、光電場強度の空間的な不均一性を感じることに起因する力であり、保存力である。

2.1.2 原子線の減速

原子に共鳴周波数のレーザー光を特定方向から照射する。この時、吸収については常に同じ方向から光子がやってくるため、吸収による散乱力は常にレーザーの進行方向に働く。一方、自然放出に関しては放出される方向はランダムで、あらゆる方向に放出される。そのため、原子が自然放出光によって受ける散乱力は平均すると0になり、トータルでは散乱力はレーザーの進行方向に働くことが分かる。ここで、レーザーの周波数を ω_l 、原子の共鳴周波数を ω_a とすると、波数ベクトル \mathbf{k} の平面電磁波が速度 v で運動している原子に与える平均的な散乱力は、

$$\mathbf{F} = \hbar\mathbf{k} \frac{\Gamma}{2} \frac{I/I_0}{1 + I/I_0 + [2(\delta - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})/\Gamma]^2} \quad (2.1)$$

で与えられる。この式では非相対論的なドップラー効果 ($\delta = \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$) 及び吸収の飽和を考慮している。上式で Γ は遷移の自然幅（半値全幅）、

¹ $\hbar = h/2\pi$ (h は Plank 定数)

$\delta = \omega_l - \omega_a$ は原子の共鳴周波数からのレーザ一周波数の離調、 I はレーザー強度、 I_0 は飽和強度である。式 (2.1) により、レーザーの進行方向に対して逆向き ($-v$) に進むような原子は $\delta_{eff} = \delta + kv = 0$ のときに最大の輻射圧を受け、減速することがわかる。すなわち、効率よく原子を減速するにはレーザー光の周波数の離調は吸収遷移周波数に対して kv だけ低周波数側 ($\delta = -kv < 0$) に選ばなければならないことが分かる。

しかし、レーザーの周波数を固定 ($\delta = const$) したままでは原子が減速していくにしたがって kv が小さくなり $\delta_{eff} = 0$ の条件から離れていくことは明らかである。 $\delta_{eff} = 0$ から外れてしまえば輻射圧は急激に減少するため、効率よく原子を減速することはできない。

ここで、 δ を掃引する必要が出てくるのであるが、これには現在、主に 2 つの方法が知られている。レーザーの周波数を掃引する方法と磁場によるゼーマン効果によって原子のエネルギー準位をシフトさせ、共鳴周波数を掃引していく方法である。

前者は周波数掃引法、後者はゼーマン同調法とよばれる方法である。後者は原子線のように連続してやって来る原子を減速する事が容易であるため、現在ではこの方法が多く用いられ、本研究でもこの方法を採用している。

ここで、ゼーマン同調法で用いる磁場の形状について述べておく。ゼーマン同調法ではゼーマン効果によるエネルギーシフトに対応する周波数変化がドップラーシフト分に等しくなければならない。ゼーマン同調法で用いる磁気量子数 m_J の異常ゼーマン効果では、エネルギーシフトは

$$\Delta E = m_J g \mu_B B \quad (2.2)$$

で与えられる。ここで、 g はランデの g 因子と呼ばれる係数であり、 m_J は磁気量子数である。これを \hbar で割った値が対応する周波数シフトであり、これがドップラーシフト kv に等しいのである。

原子が常に共鳴状態にあるとき、減速の速さは一定であり、その時の加速度を a とすると、原子が $z = 0$ で速度 $v = 0$ となるときには速度は位置 z の関数として

$$v = \sqrt{-2az} \quad (2.3)$$

となる。そのため、ドップラーシフト分を補償するような磁場は

$$B(z) = \frac{\hbar}{gm_J} kv = \frac{\hbar\omega}{gm_J c} \sqrt{-2az} \quad (2.4)$$

のような形になる事が分かる。ただし、 $k = \omega/c$ を用いた。

Closed cycle

光子を吸収して励起状態に上がった原子はある時間の後、自然放出し、エネルギーの低い状態に遷移する。この時に元の状態に戻れば同じ光によって吸収・放出のサイクルを何度も繰り返すことができ、効率的な冷却ができる。このサイクルを closed cycle という。基底状態・最低励起状態間の遷移はこの条件を満たしている。

また、冷却の遷移が完全には閉じていなくても少数のレーザー光で再び冷却の遷移に戻すことができる場合には closed cycle と言ってよい²。

分子の場合には一つの励起状態から多数の振動回転準位に緩和するため、遷移を閉じるには非常に多数の波長の光が必要になり、これは事实上不可能であることから closed cycle とは言えない。

2.1.3 ドップラー冷却

ドップラー冷却とは、吸収強度の周波数依存性を利用した冷却法である。簡単のために1次元の冷却を考えるが、この議論はほとんどそのまま3次元の場合にも成り立つ。

1次元の冷却では一対の対向したレーザービームを使う³。吸収強度が一定ならば、対向したレーザービーム⁴による輻射圧は等しい。しかし、吸収強度曲線は周波数に対して共鳴周波数 ν_0 を中心としたローレンツ型の分布をしている。そのため、図2.1に示されているように、原子は低周波数側ではドップラー効果により、原子と同方向に走る光より逆方向に走る光を多く吸収することになる。そのため、レーザー周波数を共鳴周波数よりもやや低く設定しておくと減速される確率の方が加速される確率より大きくなり、冷却されることが分かる。

ドップラー冷却のような状況では原子は自然放出の寿命程度の頻度で吸収放出を繰り返し、その度に光子の運動量で押されて方向を変える。このため、原子は非常に粘性が高い液体（糖蜜）中に物体があるのと同じように振る舞う。これを Optical Molasses (光糖蜜) という。

²本研究で用いた⁷Li も、冷却遷移の上準位の超微細準位が隣の超微細準位と接近しているために、別の準位に励起されることがある。このため、原子は冷却遷移から外れることがあり、冷却遷移は完全には閉じてはいない。しかし、冷却遷移からはずれた原子を EOM(電気光学変調素子) によって作り出したもうひとつの波長 (サイドバンド光) によって冷却遷移に戻すことができるので、closed cycle になっている。第5章参照

³3次元の場合には最低でも4本のビームが必要になる。

⁴周波数が等しくそれぞれの光強度が等しいとする。

ドップラー限界温度

輻射圧による冷却には自然放出による運動量の揺らぎがあり、運動エネルギー（温度）は0にはならない。これは自然放出による運動量の変化の時間平均 $\langle \Delta p \rangle$ は0になるが二乗平均 $\langle p^2 \rangle$ は0にはならないことに由来する。これは輻射圧による冷却の限界であり反跳限界と呼ばれる。

ランダムウォークの理論から、N回自然放出をしたときの平均の運動量の大きさは $p = (\hbar k)\sqrt{N}$ で与えられ、自然放出を繰り返す度に運動量は増えていき加熱されることがわかる。ドップラー冷却ではこの加熱とドップラー冷却による冷却がつりあう温度が存在する。これはドップラー限界温度とよばれ、

$$T_D = \frac{\hbar\Gamma}{2k_B} \quad (2.5)$$

である。ここで、 k_B はボルツマン定数であり、 Γ は自然放出の遷移の自然幅である。この温度は ${}^7\text{Li}$ では約 $140\mu\text{K}$ となる。

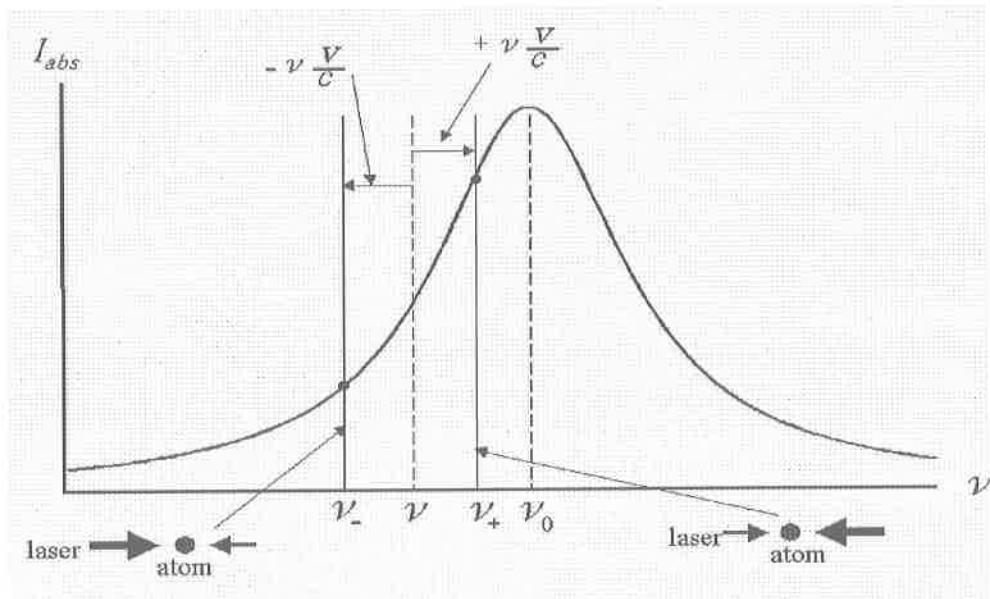


図 2.1: ドップラー冷却の原理

レーザ光と同じ方向に速度 v で運動する原子はドップラー効果により、周波数 ν のレーザー光を $\nu(v/c)$ だけ低く感じる。 $(\nu_- = \nu - \nu(v/c))$

レーザ光と逆方向に運動する原子はドップラー効果により、周波数 ν のレーザー光を $\nu(v/c)$ だけ高く感じる。 $(\nu_+ = \nu + \nu(v/c))$

2.1.4 MOT

原子を空間中にトラップしておくには原子がトラップ中心から変位したとき、中心に押し戻すような力が働くなければならない。MOT(磁気光学トラップ:Magneto-Optical Trap)では光の輻射圧、四重極磁場によるゼーマン分裂、偏光に対する選択則を巧妙に組み合わせることによってこれを実現している。

MOTの主な構成は図2.2のようになっている。

互いに逆方向の電流を流した一対のコイルを用いて四重極磁場を作り、直交する3方向の両側から四重極磁場の中心に向けて、負に離調した円偏光のレーザー光を照射する⁵。原点(四重極磁場の中心を原点とする)付近での磁場の大きさはほぼ位置座標に比例し、磁場 B は $B = A_0(-\frac{1}{2}x, -\frac{1}{2}y, z)$ のようになる。トラップに用いるレーザー光の偏光は図2.2の通りである⁶。

次に MOT の原理について図2.3を用いて簡単に述べる。これは1次元の MOT であるが、3次元の MOT に対しても同様に成り立つ。

円偏光の光に対しては磁気副準位 M の選択則 $\sigma^+ : \Delta M = +1, \sigma^- : \Delta M = -1$ が成り立っている。また、原子のエネルギー準位は四重極磁場によって図2.3のように位置座標 z に比例したゼーマン分裂を起こす。

今は簡単のために上準位の磁気副準位が $M = 1, 0, -1$ 、下準位の磁気副準位が $M = 0$ であるとすると、図2.3において原子が $z = 0$ の位置から右側にずれたときには、右側からの σ^- の光はゼーマン効果により $M = -1$ の共鳴に近づくため、原子にはたらく輻射圧は強く働くようになる。逆に左側からの σ^- の光は $M = +1$ の共鳴から遠ざかり輻射圧は弱くなることになる。左側にずれた時にはこれが逆になる。

このようにして原子には常に中心戻す力が働き、原子は $z = 0$ の磁場のゼロ点付近に閉じ込められることになる。これが MOT の原理である。

MOTに働く力

MOTに働く力はレーザーの強度が飽和強度よりも十分弱く ($I/I_0 \ll 1$)、低強度の極限と見なせるような場合においては、原子に作用する力はそ

⁵本研究ではレーザービームの配置はこのようではなく、4本のビームを用いた四面体型トラップを用いている

⁶今の場合偏光の向きは空間固定された量子化軸の向きによって決めており、対向するレーザービームに関しては円偏光の符号は逆になっている。しかし、レーザーの進行方向に対して偏光を決めると偏光の符号は同じになる。

それぞれの光線が及ぼす力の和と見なすことができ、

$$\begin{aligned} F &= F_{\sigma^+} + F_{\sigma^-} \\ &= \frac{\hbar k \Gamma}{2} \left[\frac{I/I_0}{1 + 4 \left(\frac{\delta - kv - \beta z}{\Gamma} \right)^2} - \frac{I/I_0}{1 + 4 \left(\frac{\delta + kv + \beta z}{\Gamma} \right)^2} \right] \end{aligned} \quad (2.6)$$

となる。ここで、 $\omega_z = \beta z$ は位置座標に比例した磁場から受けるゼーマンシフトによる周波数シフトである。

原子の速度が非常に遅く、ゼーマンシフトも小さいときには上式は

$$F(v, z) = \frac{4\hbar k (I/I_0) (2\delta\Gamma) (kv + \beta z)}{\left[1 + (2\delta/\Gamma)^2 \right]^2} \quad (2.7)$$

のようになる。

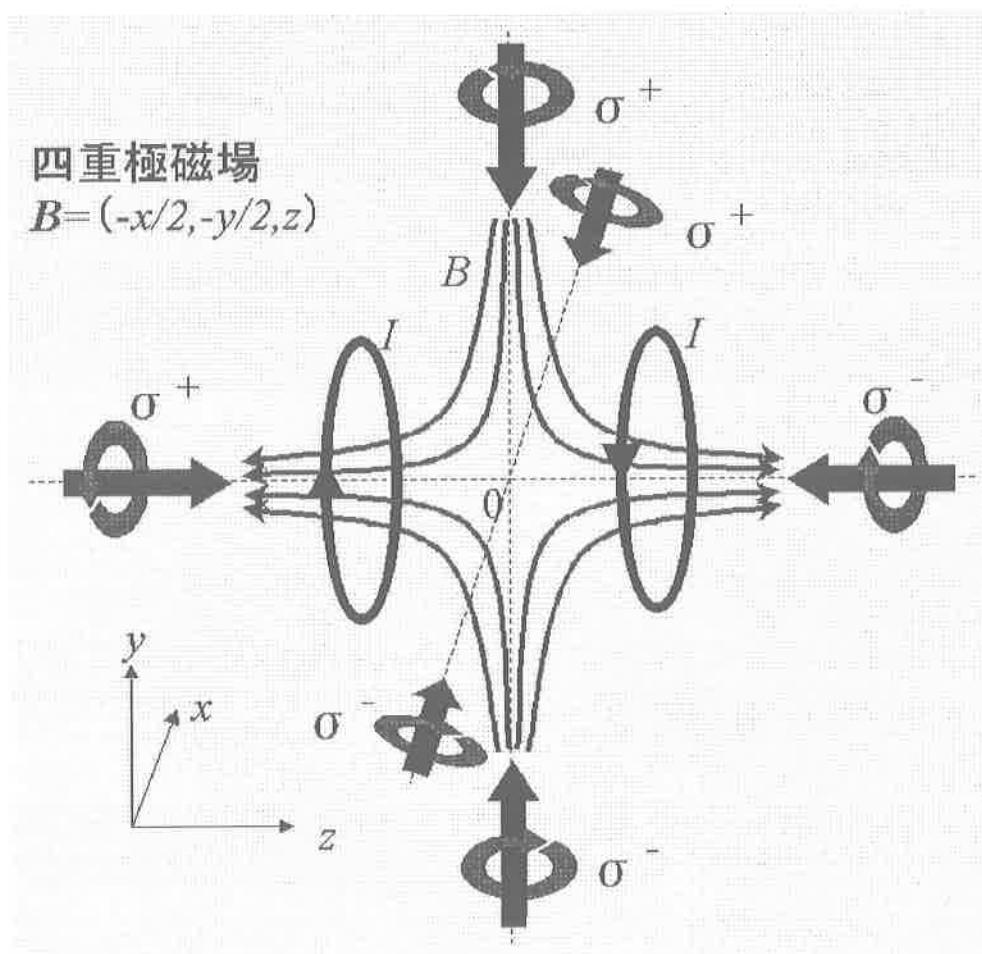
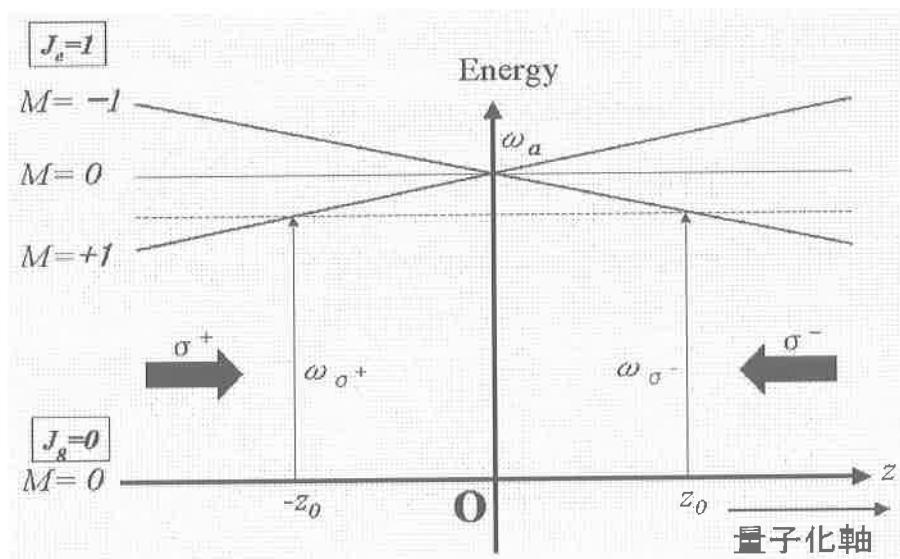


図 2.2: MOT の磁場構造
 量子化軸はそれぞれの軸の正の向きにとっており、空間に固定されている。



選択則

$$\sigma^+ : \Delta M = +1$$

$$\sigma^- : \Delta M = -1$$

図 2.3: 四重極磁場中のエネルギー準位構造

第3章 二原子分子

分子のエネルギーは並進運動を無視すれば、主に振動エネルギー E_v 、回転エネルギー E_r 、電子エネルギー E_e の三つからなっており、粗い近似では分子の全エネルギーは

$$E_{total} = E_e + E_v + E_r \quad (3.1)$$

となる。ここではそれぞれのエネルギーについて簡単に述べる。

3.1 二原子分子の電子状態と波動関数の分類

3.1.1 スピンを考慮しないとき

二原子分子の電子系の波動関数とエネルギーを求めるためには、厳密には、2つの原子核といくつかの電子からなる系のシュレディンガー方程式を解かなければならない。しかし電子を2個以上含む原子において、もはやシュレディンガーフォrmulaを厳密に解くことができないのと同様に最も単純な水素分子についてさえもシュレディンガーフォrmulaは厳密には解くことはできない。しかし、実際に式を解くことができなくても、分子の対称性を使って波動関数を分類することができる。

二原子分子では電子に対するポテンシャル場は核間軸に対して回転対称であるため、 z 軸方向の全軌道角運動量演算子 $\Lambda (= -i\hbar\partial/\partial\phi)$ と分子のハミルトニアンは交換可能になる。したがって、全軌道角運動量 Λ は運動の定数となり、 Λ の固有値 Λ により系の状態及びその状態を表す波動関数を分類することができる。 Λ の値が $0, 1, 2, 3, \dots$ の状態を $\Sigma, \Pi, \Delta, \Phi, \dots$ 状態と呼ぶ。固有値が $+\Lambda$ の状態と $-\Lambda$ の状態とはエネルギーの値が等しいので、 $\Lambda \neq 0$ の状態は二重に縮退している¹。

¹ 電子の軌道関数を分類する時には、同じように軸方向の角運動量の値が $0, 1, 2, 3, \dots$ の軌道を小文字を使って $\sigma, \pi, \delta, \phi, \dots$ と書く。

同種類の核からなる二原子分子では2個の核を結ぶ線分の中点を原点にとると、電子に対するポテンシャルは反転操作 \mathbf{I} すなわち $x \rightarrow -x, y \rightarrow -y, z \rightarrow -z$ の変換に対して、その形を変えない。したがって、反転 \mathbf{I} はハミルトニアンと可換になるので、状態を演算子 \mathbf{I} の固有値により分類できる。続けて2回反転すると系は元に戻るので、任意の関数 $f(x, y, z)$ について、

$$\mathbf{I}^2 f(x, y, z) = f(x, y, z)$$

と書ける。この式から \mathbf{I} の固有値は ± 1 であることが分かる。固有値 $+1$ 属する状態を偶 (gerade) 状態と呼び、 Σ_g, Π_g などのように添字 g つけて表す。固有値が -1 の時は奇 (ungerade) 状態と呼び、 Σ_u, Π_u のように添字 u をつける。

この他に二原子分子では、ポテンシャルは核間軸を含む任意の平面についての鏡映操作 σ (核間軸を z 方向にとると、操作 σ は $x \rightarrow -x, y \rightarrow y, z \rightarrow z$ を表す) に対してその形が変わらない。演算子 σ の固有値は、反転 \mathbf{I} と同じようにして、 ± 1 であることが分かる。状態をこの固有値で区別する時は、固有値 ± 1 に対してそれぞれ Σ^+ または Σ^- のように、軸方向の角運動量 Λ を指定する記号の右肩に \pm の符号をつける。

${}^7\text{Li}_2$ の低エネルギー状態におけるポテンシャル曲線を図 3.1 に示した。

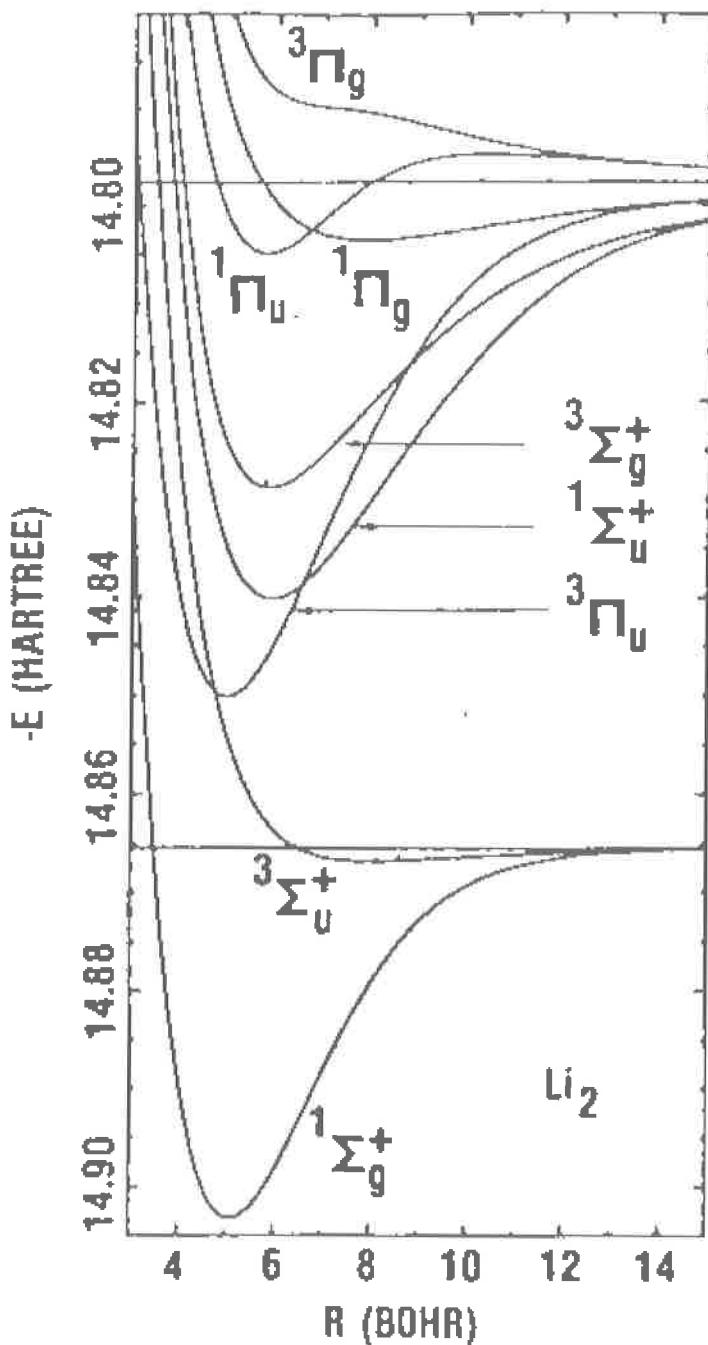


図 3.1: ${}^7\text{Li}_2$ の低エネルギー状態におけるポテンシャル曲線
D.D.Konowalow et al (Ref.[17]) の論文から抜粋。
正確に書くとそれぞれにおける Σ 状態は、励起状態： $1^3\Sigma_g^+, A^1\Sigma_u^+$ 、基底
状態： $X^1\Sigma_g^+, a^3\Sigma_u^+$ である。

3.1.2 スピンを考慮したとき (Hund's case)

上述した波動関数の分類による準位の分類では電子のスピンによる効果を考えておらず、波動関数はスピンに関して $(2S + 1)$ 重に縮退している（図 3.1 ではこの縮退度を波動関数の左肩に書いてある。）。また、分子内の種々の角運動量（電子スピン、電子軌道角運動量、回転の角運動量）の結合の強さに応じて、状態を記述するよい量子数は違ってくる。そのため、F.Hund は角運動量のベクトル模型を用いて、角運動量同士の結合をいくつかの標準的な場合に分けて論じた。Hund によって始められたこの結合の分類を Hund's case という。

Hund's case には次の 5 つの場合がある。（それぞれの結合の仕方は図 3.2 に示した。）

Hund's case(a)

Hund's case(a) はスピン・軌道相互作用がやや強い場合である。このときには強いスピン・軌道相互作用により、電子スピンが核間軸の方向に強く結合されている。このような状態ではスピンは核間軸のまわりに歳差運動をし、スピンの z 成分 S_z は確定値 $S_z = \Sigma \hbar$ (Σ は整数または半整数) をもつ。これにより、電子の全角運動量の z 成分は $L_z + S_z = (\Lambda + \Sigma)\hbar$ となる。これを通常 $\Omega\hbar$ で表す。

この場合には \mathbf{N} と大きさ $\Omega\hbar$ の z 方向のベクトルとのベクトル和、 \mathbf{J} が運動の恒量となり、この固有値がよい量子数になる。ただし、 $J \geq |\Omega|$ であり、 Ω は $\Lambda + S, \Lambda + S - 1, \dots, \Lambda - S$ の値を取る。（ Σ は $S, S - 1, \dots, -S$ の値を取る。）このため、軌道角運動量 Λ を持つ電子項は Ω の異なる $(2S+1)$ 項に分裂する（この分裂のことを原子項の場合と同様に、電子準位の微細構造と呼ぶ）。

Ω の値は普通、 ${}^2\Pi_{1/2}, {}^2\Pi_{3/2}$ のように項を表す記号の右下に記入される。つまり、case(a) における分子の状態を表す項記号は ${}^{2S+1}\Lambda_{\Omega}^{(+ \text{ or } -)}$ となる。

Hund's case(b)

Hund's case(b) はスピン・軌道相互作用が弱い場合である。このときには \mathbf{N} と $\Lambda\hbar$ との結合の状況はあまり影響を受けず、そのままに保たれている。この場合、運動の恒量は \mathbf{K} と電子のスピン \mathbf{S} との和、 \mathbf{J} であり、 \mathbf{K} と \mathbf{S} はゆっくりと \mathbf{J} のまわりに歳差運動をする。 \mathbf{J} の固有値は

$|K - S| \geq J \geq K + S$ の値を取る。また、このときには、 $K = \Lambda, \Lambda + 1, \dots$ である。

case(b) 項記号は $^{2S+1}\Lambda_{(g \text{ or } u)}^{(+ \text{ or } -)}$ となる。

$\Lambda = 0$ の場合は、スピンは核間軸のまわりに歳差運動をしないので、case(b) となる。

Hund's case(c)

Hund's case(c) はスピン・軌道相互作用が非常に強い場合である。この時には L_z, S_z は確定値を持たなくなる。しかし、 $L_z + S_z$ が通常、確定値を持つため、よい量子数は Ω となる。case(c) における項記号は $\Omega_{(g \text{ or } u)}^{(+ \text{ or } -)}$ となる。 $+$ と $-$ の符号の意味は Λ に対して Σ^+ と Σ^- としたのと同じ意味である。

case(c) は分子の核間距離が大きいときにも適用される。これは、核間距離が増大すると両原子間の相互作用が弱まり、最終的には原子内のスピン軌道相互作用に比べて小さくなるため、相対的にスピン・軌道相互作用が強くなるためである。

本研究において得られた分子の準位は核間距離があまり大きくないときには軌道角量子数 Λ が $\Lambda = 0$ であり、Hund's case(b) である。しかし、本研究における実験では基本的に分子の核間距離は大きい。そのため本研究で電子状態を表すのに用いている波動関数の表記は厳密には正しくない。

しかし、Li では原子番号が小さいためスピン・軌道相互作用の絶対的な強さは弱く、Hund's case(b) と考えても差し支えないとしている。

Hund's case(d),(e)

Hund's case(d),(e) については本研究には直接関わってこないので簡単な説明にとどめておく。

Hund's case(d) は分子内の 1 個の電子が励起されて、遠方の軌道にあり、さらに、スピン軌道相互作用は無視できる場合である。この時には、この電子の角運動量が \mathbf{L} となり、これが近似的に運動の恒量となる。これと分子の回転の角運動量 \mathbf{N} とが合成されて、 \mathbf{K} となる。スピン・軌道相互作用が無視できない場合は Hund's case(d') とよばる。

Hund's case(e) は分子内の 1 個の電子が励起されて、遠方の軌道にあ

り、さらに、スピン・軌道相互作用が非常に強い場合である。

スピン0の場合

電子の全スピンが0の場合は、 \mathbf{N} と $\Lambda\hbar$ のベクトル和、 \mathbf{K} が運動の恒量になり、 \mathbf{N} と $\Lambda\hbar$ とは \mathbf{K} の周りに歳差運動をする ($K \geq \Lambda$)。これは $S=0$ のときの Hund's case(a) および (b) に対応する。項記号は case(b) と同じになる。

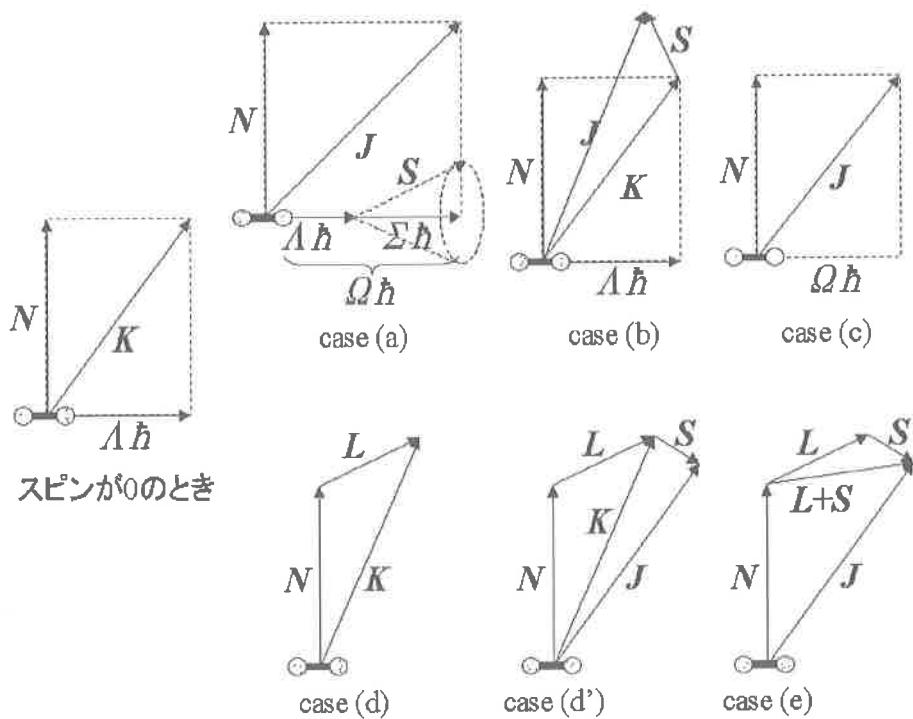


図 3.2: Hund's case

核間軸を z 軸とする。電子の全軌道角運動量を \mathbf{L} 、二つの原子核がその重心のまわりを回転することによる回転の角運動量を \mathbf{N} 、電子系の全スピン角運動量を \mathbf{S} とする。全角運動量 \mathbf{J} は三つの角運動量 $\mathbf{L}、\mathbf{N}、\mathbf{S}$ の合成として定義される。電子の z 軸方向の全軌道角運動量を Λ 、 z 軸方向の全スピン角運動量を Σ とする。 Λ と Σ の合成を Ω とする。 \mathbf{K} はスピンを除いた全角運動量である。

3.2 振動エネルギー

二原子分子の振動は最も粗い近似では2つの原子核がばねによって繋がれている調和振動子モデルで近似される。調和振動子ではエネルギー準位は振動量子数 $v (= 0, 1, 2, 3, \dots)$ を用いて、

$$E_v = hc\nu_{osc} \left(v + \frac{1}{2} \right) \quad (3.2)$$

で与えられる。しかし、二原子分子は厳密には調和振動子ではなく、そのポテンシャルも放物線からずれている。実際の分子のポテンシャルは図3.1のような形をしており²、二原子分子の振動のエネルギーは、調和振動子からのずれを考慮した式

$$E_v = hc \left[\nu_e \left(v + \frac{1}{2} \right) - \nu_e x_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2 + \nu_e y_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^3 + \dots \right] \quad (3.3)$$

で与えられる。

分子分光学では、エネルギーは通常その値を hc で割った、項値 (term value) と呼ばれる値で表される (単位: [cm^{-1}])。そこで振動のエネルギーの式3.3を項値 $G(v)$ に直すと、

$$G(v) = \left[\omega_e \left(v + \frac{1}{2} \right) - \omega_e x_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2 + \omega_e y_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^3 + \dots \right] \quad (3.4)$$

で与えられる。ここで、 $\omega_e = \frac{\nu_{osc}}{c}$ (単位は [cm^{-1}]) であり、各項の係数 $\omega_e x_e, \omega_e y_e, \dots$ は一般に ω_e より小さい。

振動準位間の間隔は式3.4から容易に導かれ、項値では

$$\begin{aligned} \Delta G \left(v + \frac{1}{2} \right) &= G(v+1) - G(v) \\ &= (\omega_e - \omega_e x_e + \omega_e y_e + \dots) \\ &\quad - (2\omega_e x_e - 3\omega_e y_e - \dots) \left(v + \frac{1}{2} \right) \\ &\quad + 3\omega_e y_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2 + \dots \end{aligned} \quad (3.5)$$

² ポテンシャル関数の全体の近似としては Morse 関数 $V = D_0 [1 - e^{-\beta(r-r_e)}]^2$ がよく用いられる。ここで D_0 は解離エネルギー (ポテンシャルエネルギーの漸近線と極小値との差) であり、 $\beta = \sqrt{\frac{2\pi^2 c \mu}{D_0 h}} \omega_e$ (μ :換算質量) である。このポテンシャルをシュレディンガーフラムに代入して解くと振動エネルギーの項値として $G(v) = \omega_e \left(v + \frac{1}{2} \right) - \omega_e x_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2$ が得られる。

で与えられる。この式から分かるように ν が大きくなるにつれて準位間の間隔が狭くなる。しかし、可能なエネルギー準位の数は有限であり、クーロンポテンシャルのように無限ではないことに注意する。

3.3 回転エネルギー

二原子分子の回転は最も簡単なモデルでは剛体回転子モデル（亜鉛モデル）であたえられる。このモデルは質量 m_1, m_2 の2個の質点が、質量を持たない長さ r の棒で結合されているようなモデルである。このような剛体回転子のシュレディンガー方程式は

$$\frac{\mathbf{P}^2}{2I}\Psi = E_r\Psi \quad (3.6)$$

であたえられる。ここで、 I は回転軸のまわりの慣性モーメントであり、 \mathbf{P} は角運動量演算子である。

これを解き、剛体回転子の回転エネルギーを求める

$$E_r = \frac{\hbar^2}{8\pi^2\mu r^2}J(J+1) = \frac{\hbar^2}{8\pi^2 I}J(J+1) \quad (3.7)$$

のようになる。回転量子数 J は $0, 1, 2, 3, \dots$ の正の整数をとることができ、角運動量ベクトル \mathbf{P} と $|\mathbf{P}| = \frac{\hbar}{2\pi}\sqrt{J(J+1)}$ の関係がある。

上式を項値で表すと、

$$F(J) = \frac{E_r}{hc} = BJ(J+1) \quad (3.8)$$

となる。ここで、

$$B = \frac{\hbar}{8\pi^2 c I} = \frac{\hbar}{8\pi^2 c \mu r^2} \quad (3.9)$$

を回転定数という。

剛体回転子の固有関数に対しては $J > 0$ を満たす各々の J の値に対して磁気量子数 M が異なったいくつかの関数が存在する。 M の値は

$$M = J, J-1, \dots, -J \quad (3.10)$$

のようになるとおり、 $M\hbar/2\pi$ は z 方向にかけられた磁場（または電場）の方向の角運動量の成分である。

分子が完全に剛体でないならば、分子が回転した際に生ずる遠心力によって、核間距離がわずかに伸びる。その結果、回転の項値はいくらか修正され

$$F(J) = BJ(J+1) - DJ^2(J+1)^2 + \dots \quad (3.11)$$

のようになる。ここで、 B は式(3.9)で与えられたものと同じであり、 D はつねに B よりはるかに小さな補正項であり、

$$D = \frac{4B^3}{\omega^2} \quad (3.12)$$

で近似される。 ω は cm^{-1} の単位で表した振動の波数である。

一般に、分子の回転と振動は同時に起こるので、両者の相互作用の効果を考慮しなければならない。分子が振動していれば核間距離は変化する。したがって慣性モーメントも変化する。その結果、一定の振動準位 v に対する回転定数 B_v は平衡状態の値とは異なる。 B_v を得るためにには、核間距離の種々値についての平均をとる必要がある。

$$B_v = \frac{\hbar}{8\pi^2 c \mu} \left[\frac{1}{r^2} \right]_{av} \quad (3.13)$$

その結果は

$$B_v = B_e - \alpha_e \left(v + \frac{1}{2} \right) + \gamma_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2 + \dots \quad (3.14)$$

(3.15)

となる。ここで、

$$B_e = \frac{\hbar}{8\pi^2 c \mu r_e^2} \quad (3.16)$$

であり、 α_e は B_e に比べて小さく B_e, ω_e と同様、振動の非調和性に依存する定数である。

同様にして、遠心力の効果を表す回転の定数 D を

$$D_v = D_e + \beta_e \left(v + \frac{1}{2} \right) + \dots \quad (3.17)$$

で表す。ただし D_e は平衡状態における値である。前述の議論によれば、回転と振動の相互作用を考慮する場合には、一定の振動準位の回転の項値はもはや式(3.11)で表すことはできず

$$F_v(J) = B_v J(J+1) - D_v J^2(J+1)^2 + H_v J^3(J+1)^3 + \dots \quad (3.18)$$

のようになる。 v は問題にしている振動準位を表す。

回転と電子運動の結合

回転と電子運動の結合により、もはや式(3.1)は成り立たない。この時にはハミルトニアンは角運動量 \mathbf{N} の回転の運動エネルギー $B\mathbf{N}^2$ 、スピノ・軌道相互作用のエネルギー $A\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$ より、

$$H = B\mathbf{N}^2 + A\mathbf{L} \cdot \mathbf{S} \quad (3.19)$$

となる。そのため、それぞれの Hund's case に対してエネルギーの表し方が変わってくる。

Hund's case(a) ではエネルギー (H の期待値) は

$$E = B[J(J+1) - \Omega^2] + A\Lambda\Sigma \quad (3.20)$$

となる。ただし、 $\hbar = 1$ とし、振動のエネルギーは無視した。³

Hund's case(b) では

$$E = B[K(K+1) - \Lambda^2] + A\Lambda^2 \cdot \frac{J(J+1) - K(K+1) - S(S+1)}{2K(K+1)} \quad (3.21)$$

となる。

3.4 分子における選択則

3.4.1 振動回転準位と Franck-Condon の原理

分子において、異なる電子状態間の振動遷移は Franck-Condon の原理によって支配されている。Franck-Condon の原理は半古典論的には次のように説明される。

ある電子状態から他の電子状態への遷移は核の運動に比べて非常に早いため、遷移の前と後で核は同じ位置にあり、おなじ速度をもつ。

これは遷移の前後で核間距離がほぼ保たれるということであり、分子の振動準位に関する遷移では分子の核間距離に対応した振動準位間の遷移の確率が最も高いということを表している。

これは逆に言えば振動量子数に関しては選択則が無いということである。このため、異なる電子状態間の振動遷移では一つの振動回転準位から多数の振動回転準位に遷移することが可能になり closed cycle が困難になるのである。

³式 3.20 中の J は全角運動量であることに注意。

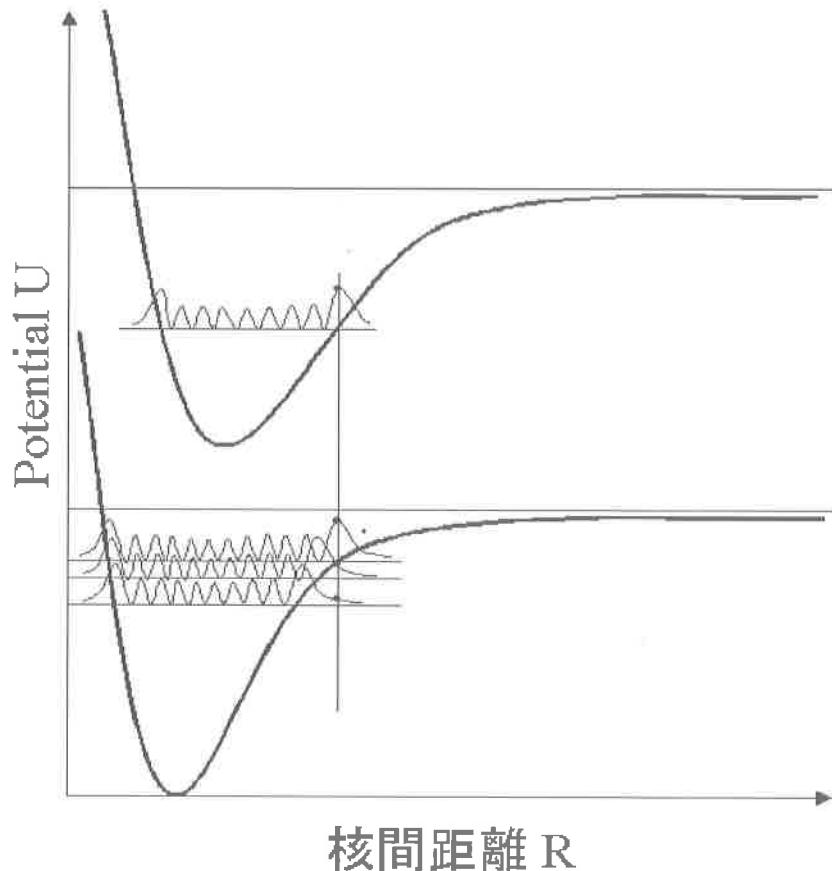


図 3.3: Franck-Condon の原理

各振動準位における波動関数は転回点（ポテンシャル曲線上）付近で最大値を持つ。そのため、核間距離が等しい遷移がもっとも起こりやすい。

3.4.2 選択則

表 3.1 に二原子分子の遷移に関する選択則を示す。

選択則は遷移モーメントの計算により求められるが、この結果には波動関数の近似度によって変わるものと変わらないものがある。変わらないものを厳密な選択則、変わるものを見似的な選択則⁴として備考に記した。

量子数	選択則	備考
全角運動量 J	$\Delta J = 0, \pm 1$ $J = 0 \not\leftrightarrow J = 0$	厳密な選択則 ^{*1} 。
パリティ ^{*2} に関して	$+ \leftrightarrow -$ $+ \not\leftrightarrow +, - \not\leftrightarrow -$	厳密な選択則。
等核分子の対称性 ^{*3}	$s \leftrightarrow s, a \leftrightarrow a$ $s \not\leftrightarrow a$	厳密な選択則。
対称性 g, u を持つ 等核分子	$g \leftrightarrow u$ $g \not\leftrightarrow g, u \not\leftrightarrow u$	見似的な選択則。
核間軸方向の 全軌道角運動量 Λ	$\Delta \Lambda = 0, \pm 1$	見似的な選択則。
全スピン角運動量 S	$\Delta S = 0$	見似的な選択則。
電子状態 Σ^+ と Σ^-	$\Sigma^+ \leftrightarrow \Sigma^+, \Sigma^- \leftrightarrow \Sigma^-$ $\Sigma^+ \not\leftrightarrow \Sigma^-$	見似的な選択則。
核間軸方向の 全スピン角運動量 Σ	$\Delta \Sigma = 0$	Hund's case(a) のみ。 見似的な選択則。
スピンを除く 全角運動量 K	$\Delta K = 0, \pm 1$ $\Sigma - \Sigma$ 遷移では $\Delta K \neq 0$	Hund's case(b) のみ。 厳密な選択則。

表 3.1: 電気双極放射における選択則

$\not\leftrightarrow$ は互いに組み合わされないことを意味する。

*1 核スピンは無視した。

*2 全波動関数の原点に対する反転が対称な場合を +、反対称な場合を -とした。

*3 核の交換に対して全波動関数が対称な場合を s 、反対称な場合を a とした。

⁴ 表中の見似的選択則は波動関数が $\phi = \phi_e \phi_v \phi_r$ (ϕ_e : 電子に関する波動関数、 ϕ_v : 振動に関する波動関数、 ϕ_r : 回転に関する波動関数) と近似できる場合の選択則を表している。

第4章 Photoassociation

4.1 極低温原子における Photoassociation

4.1.1 Photoassociation とは

Photoassociation(以下 PA) とは、原子がレーザー場中で衝突することにより、分子の励起状態を生成する現象である¹。このとき、原子は励起分子生成に不足しているエネルギーを光子の吸収によって補い、束縛状態になる。

PA では生成する分子の状態が励起状態であるため、通常、基底状態が repulsive であるか、または基底状態に比べて励起状態の方が解離エネルギーが大きいときに用いる。

4.1.2 PA によって生成される分子の状態

極低温原子を用いた PA では、原子の速度が遅く衝突にかかる時間が長いため、原子は衝突時には準分子になっていると考えられる²。このため、PA による分子生成は短時間的には、基底状態分子から励起状態分子への光吸収による励起として扱われる。このため、生成する分子は、分子の選択則に従うものだけが許される。

また、PA では核間距離の大きな分子が作られやすい。これは、核間距離 R が $R \geq 20a_0$ のときに、PA による光子の吸収がもっとも効率的になるからである。このことは、基底状態原子の衝突に関する波動関数 $u_g(R)$ が $R \geq 20a_0$ で非常に大きな振幅を持つことに起因する。

PA によって生成した分子は励起状態にあり、しばらくすると自然放出

¹作られた分子集団の温度は反跳エネルギーを無視すれば、その素となった原子集団の温度に等しい。

²準分子状態では原子は光による励起はされるもののエネルギーと寿命は自由原子とは異なっている。この準分子の光励起は内部状態と 2 つの原子の速度分布を変える。さらに 2 つの原子の状態間の相関が起きることもある。

を起こし、光子を放出して緩和する。このとき分子は2個の基底状態の原子に解離するか、もしくは、基底状態の分子になる。どちらも緩和する際には光子を放出するが、これらは本実験における MOT 蛍光の測定にはほとんど影響を与えない。なぜならば、いずれの場合も MOT から逃げていく³ため、吸収・放出は1回限りであり、MOT 中で吸収・放出を繰り返している原子の蛍光に比べれば非常に弱くて無視できるからである。

4.1.3 極低温原子における PA

粒子の熱的な運動による吸収の線幅（吸収のドップラー幅⁴と原子衝突によるエネルギーのかさ上げ⁵）が振動回転準位間の間隔より狭ければ、PA の波長を選択することにより、特定の振動回転準位の励起分子を作ることができる。しかし、同じ電子状態中の振動準位間の間隔は通常上に行くほど狭くなるため、常温では解離極限付近の振動回転準位を分離することは難しい。

極低温原子における PA では原子の運動エネルギーが小さいため、この熱的な幅がこの間隔よりも狭くなり、解離極限付近の振動回転準位を分離できるようになる。

また、波長をスキャンし分子の生成を検出すれば、解離極限付近の振動回転スペクトルを得ることができる。本研究では逆にこのスペクトルを分子生成の証拠としている。

³分子の場合には MOT にはトラップされないので明らかであるが、原子の場合には解離する際に高い運動エネルギーを持つため、トラップ損失が起きる。

⁴MOT の温度が約 1mK のときには約 14MHz。

⁵MOT の温度が約 1mK のときには約 20MHz。

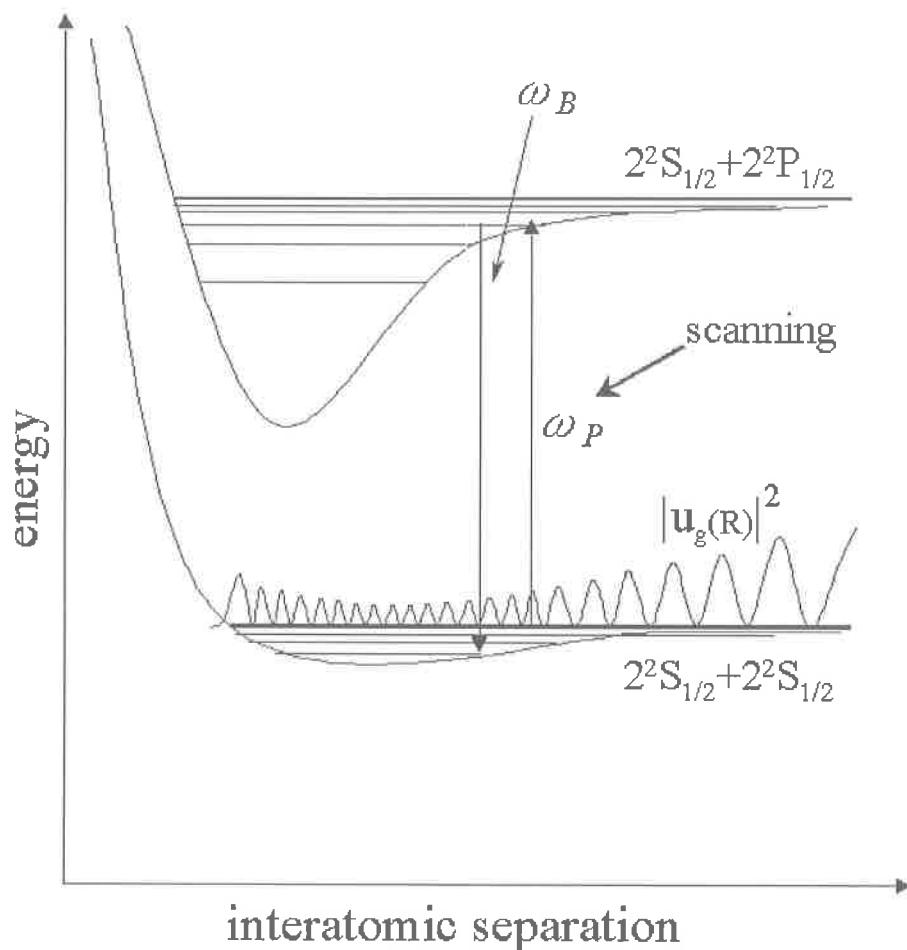


図 4.1: Photoassociation 概念図

ω_P : Photoassociation によって吸収される光子の周波数。

ω_F : 勵起状態の分子が自然に緩和して、2つの自由原子に解離する時に放出する光子の周波数。

ω_B : 勵起状態の分子が自然に緩和して、分子の基底状態に落ちる時に放出する光子の周波数。

4.2 その他のPAの性質

4.2.1 PAと大きな核間距離 (Long Range)

同じ核を持つアルカリ分子では、核間距離が短く核間軸方向の全角運動量成分 Λ が小さいときには通常、結合方式は Hund's case(b) であるが、核間距離が大きくなり、分子を構成する原子間の相互作用が弱くなると、結合方式が変わり、Hund's case(c) になる。そのため大きな核間距離における PA では、 $S + P$ の解離極限より下に、4つの attractive な Hund's case(c) の状態 $1_g, 0_u^+, 0_g^-, 1_u$ (基底状態から attractive な状態 2_u 状態への遷移は電気双極子的に禁制である。) が生じる。状態 1_g および 0_u^+ は短い核間距離で非常に repulsive で、やや深いポテンシャル井戸をもつポテンシャルを与える。これとは異なり、状態 $0_g^-, 1_u$ は二重井戸型のポテンシャルカーブを与える。この外側の井戸（長い核間距離をもつ）の中の振動回転準位を持つ分子も PA によって生成することが可能である。

4.2.2 PAによる分子の生成効率

PA による分子の生成効率は PA によって誘起された自由原子-束縛原子(分子) 遷移の遷移確率 γ_{PA} に比例する。

$$\gamma_{PA} \propto \left| \int_0^\infty u_e(R) d_{eg}(R) u_g(R) dR \right|^2 \quad (4.1)$$

である。ここで、 $u_e(R)$ は励起状態の振動準位の波動関数であり、 d_{eg} は二つの状態をつなぐ電気双極子モーメントである。励起状態のポテンシャル（すなわち $u_e(R)$ ）はエネルギー準位スペクトルの測定から正確に決定され、 d_{eg} は励起状態・基底状態の既に知られている電子的な構造から計算することができる。 d_{eg} の核間距離 R に対する依存性はしばしば無視できる。

第5章 実験

5.1 実験概要

本研究では MOT の磁場勾配を大きくし、直径約 1mm 程度の MOT を作った。その MOT(Magneto-Optical Trap) 中の ^7Li に波長をスキャンしたレーザービームを集光することにより、Photoassociation による極低温分子生成を実現した。分子生成の確認には振動回転スペクトルの観測を用いた。この振動回転スペクトルの観測には分子生成に由来する MOT 蛍光の減少をモニターする方法を用いた。

5.2 実験手順

本実験の手順は次のようになっている。

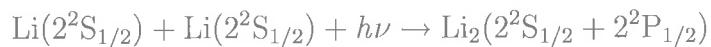
1. 直径 1mm 程度の ^7Li 原子の MOT を作る。
2. その MOT 中の原子にレーザービームを集光し、周波数をスキャンする。
3. 対応する周波数のところで、PA が起き、励起状態分子が生成する。
4. このとき MOT の蛍光の減少をモニターし、レーザーの周波数と対応させることにより、振動回転スペクトルを記録する。
5. 振動回転スペクトルの同定を行い分子生成を確認する。

5.3 実験装置

5.3.1 Photoassociation

図 5.1 は PA の実験装置である。図中のそれぞれの装置について説明する。

PA Laser : DCMをレーザー媒質とする色素レーザーを用い、そのレーザーパワーは300mWであった。このレーザー光の周波数は振動回転スペクトルを測定するにあたってはスキャンされ、そのスキャン幅は中心波長から $\pm 15\text{ GHz}$ 、スキャンスピードは $6\text{ GHz}/\text{min}$ である。PA laserの集光には $f=1000\text{ mm}$ の凸レンズを用いており、ビームウエストでのビーム径（直径）は約1mmである。MOTは振動回転スペクトルのS/Nを挙げるために1mm程度まで小さくしている。PA Laserは相互作用領域での光子密度を上げるために凹面鏡により折り返されている。また、レーザーの波長は



の反応が起きる様に波長を選び、スキャンした。スキャンの起点となる波長は、 $(2^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 2^2\text{P}_{1/2})$ 遷移の 670.977 nm である。

MOT : MOTの大きさはビームウエストと同程度（約1mm）であり、この時のMOTにおける磁場勾配は約55Gauss/cm程度であった。また、MOTの温度は約1mKであり、原子数密度は約 $1 \times 10^{10}\text{ atoms/cm}^3$ であった。（この時の真空度は約 $1 \times 10^{-10}\text{ Torr}$ ）

測定系 (Photo-Diode & Chart Recorder & Etalon) : 本実験では振動回転スペクトルを観測するために、フォトダイオードで MOT の蛍光の減少をモニターし、チャートレコーダーに記録している。この信号はカットオフ周波数 $f_c \simeq 0.2[\text{Hz}]$ のローパスフィルターを通じてチャートレコーダーに記録する。また、PA laserの出力の一部を FSR 1.5GHz の周波数マーカー用のエタロンに入れ、このときに出力される信号をフォトダイオードからの信号と同時に書き込むことによって、波長のリファレンスとしている。

データ処理 : 本実験では1回でスキャンできるレーザー周波数幅が30GHzと狭いため中心波長を順次変えてスペクトルを得た。得られたスペクトルはスキャナーで取り込み画像処理ソフトで重ね合わせ、結合させることによって一連のスペクトルとした。（ただし、表6.1の束縛エネルギーの測定に際しては1回のスキャンで得られるスペクトル内でスペクトル線同士の間隔を測定し、それらの平均値から束縛エネルギーを求めた。）

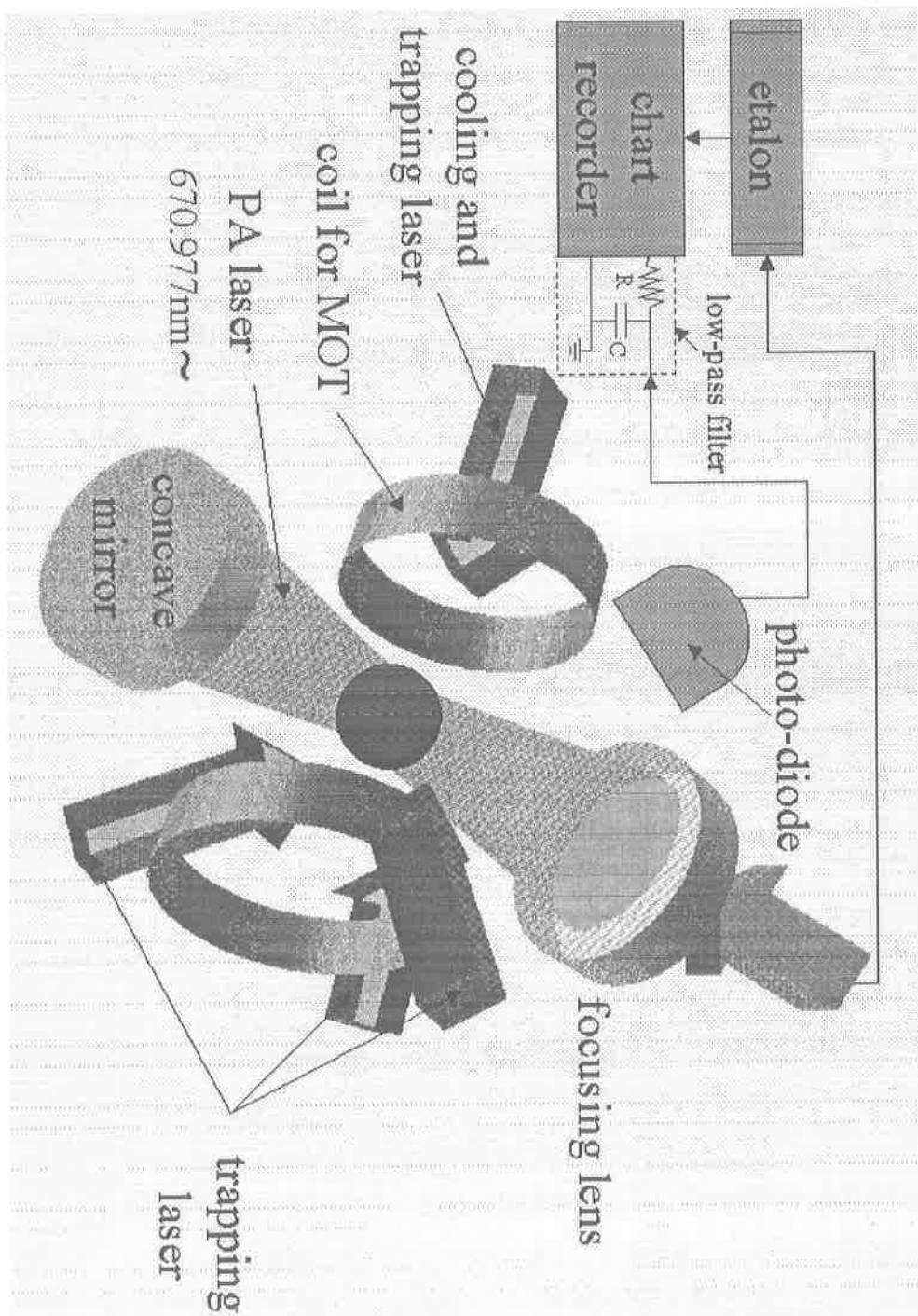


図 5.1: PA 装置図

5.3.2 冷却系およびMOT

PAによる分子生成では衝突が必ず必要である。そのため、原子衝突を効率よく起こさせるための密度の高い原子サンプルが必要になる。また、分子の振動回転スペクトルを得るには原子集団の温度が低いことが条件であり、MOTはこれらの条件を満たしている。

次に MOT を作る一連の装置 (Li 原子を冷却し、MOT を作る) について述べる。装置は図 5.2 のようになっている。図中のそれぞれについて説明する。

oven : Li は常温において固体であるので、まずオーブンにおいて Li を加熱し、気化した Li を原子ビームとして取り出している。

Zeeman coil : この原子ビームはゼーマン同調法によって進行方向に對して減速され、MOT のためのチャンバーに送られる。冷却には⁷Li の $2^2S_{1/2}(F=2) - 2^2P_{3/2}(F=3)$ 遷移を用いており、冷却用のビームは MOT のビームを兼ねている。

MOT Laser : 我々の装置では MOT を形成するのに 4 本のレーザービームを使用した四面体トラップを用いている。四面体トラップではゼーマン同調法のためのレーザービームが MOT のためのビームの 1 本を兼ねており、図中では左側から入射しているビームがこれにあたる。ビームの偏光はこのビームの偏光を σ^+ とすると、その他の 3 本のビームの偏光は σ^- となる。ビーム径は直径約 3cm ほどであり最大直径約 1cm の MOT¹を作ることができる。MOT に用いている遷移は⁷Li の $2^2S_{1/2}(F=2) - 2^2P_{3/2}(F=3)$ 遷移 (波長 : 670.962nm) である。ただし、この波長は原子の共鳴周波数に対して-15MHz 離調されている。

EOM(Electro-Optical Modulator, 電気光学変調素子) : リポンプのために +820MHz だけ離れたサイドバンド光を作つて $2^2S_{1/2}(F=1)$ から $2^2P_{3/2}(F=2)$ へ上げている。

Anti-Helmholtz coil : 四重極磁場を作るためのコイルである。MOT の大きさは四重極磁場の磁場勾配 (すなわち反ヘルムホルツコイルに流す電流の大きさ) を変えることにより調整され、本実験では約 55G の磁場勾配で直径 1mm 程度のトラップを作り出している。

¹ この時の磁場勾配は約 10G である。

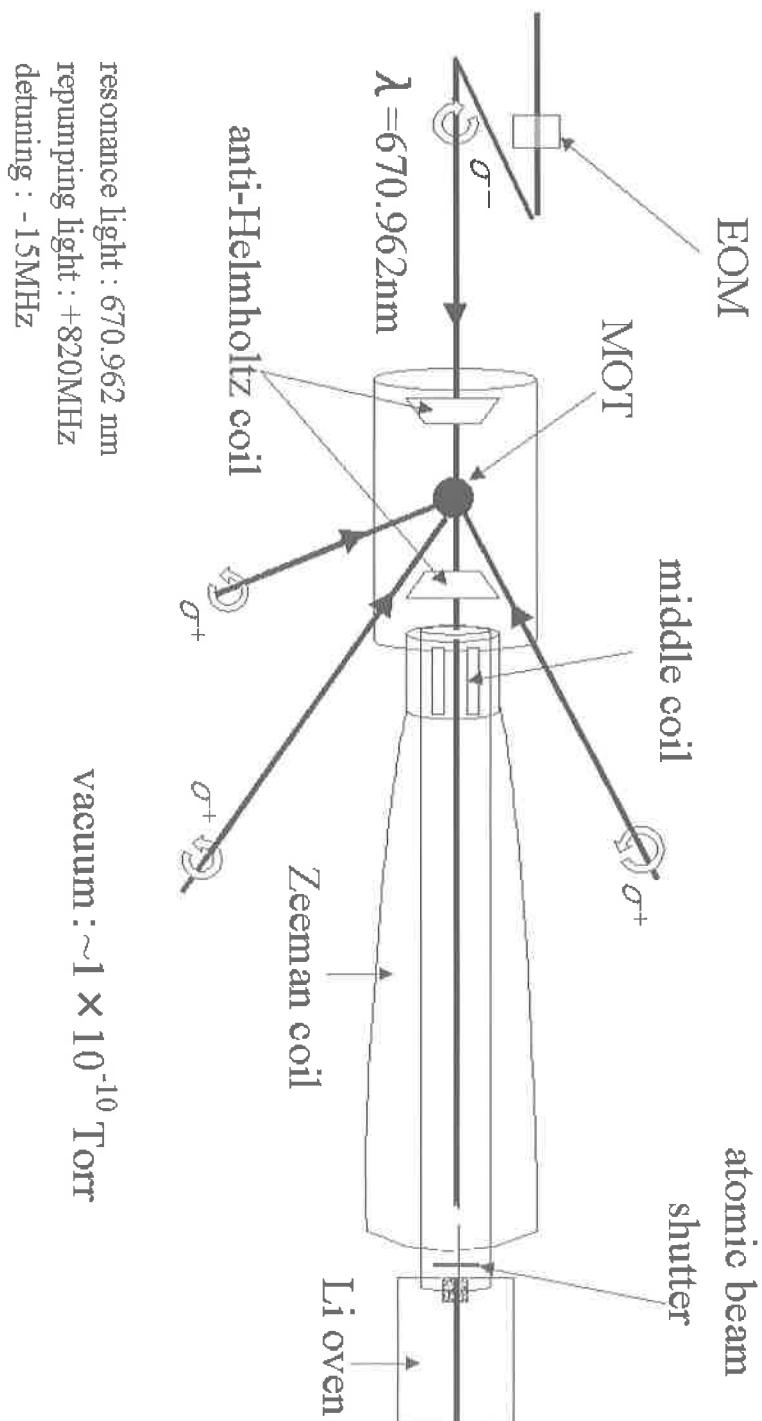


図 5.2: MOT 装置図

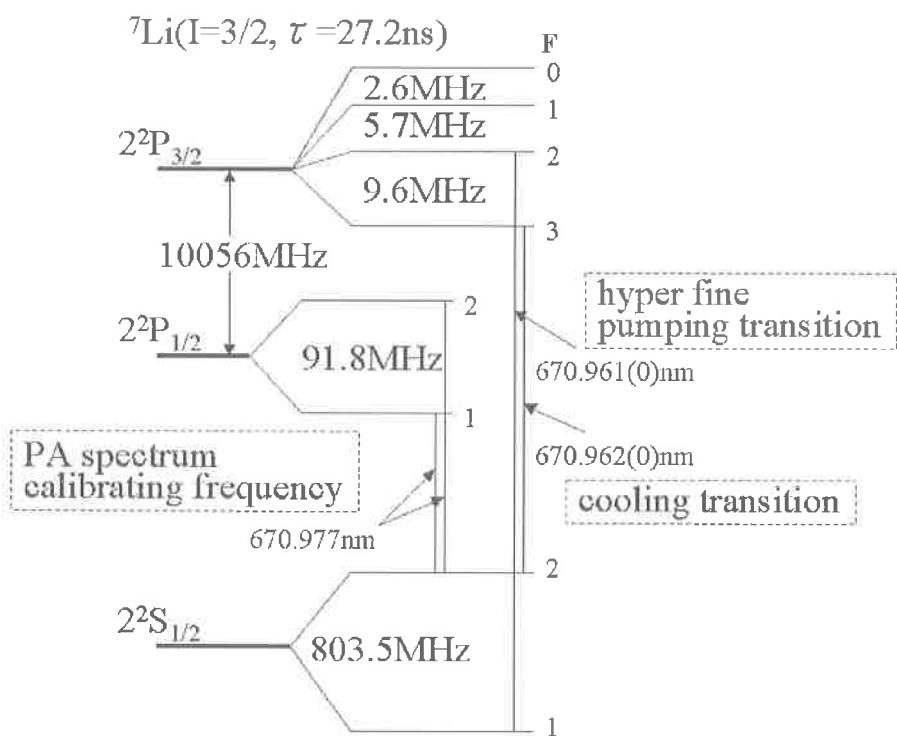
主要な実験条件・パラメータを表5.1、表5.2にまとめた。また、それぞれに用いたレーザーの波長について、図5.3の ${}^7\text{Li}$ のエネルギー準位図にまとめた。

MOTの大きさ	$\sim 1\text{mm}$
磁場勾配	55Gauss/cm
温度	$\sim 1\text{mK}$
原子数	$\sim 1 \times 10^7\text{atoms}$
原子数密度	$\sim 1 \times 10^{10}\text{atoms/cm}^3$
真空間度	$\sim 1 \times 10^{-10}\text{Torr}$

表 5.1: MOTに関するパラメータ

ビームウエスト	$\sim 1\text{mm}$
レーザーパワー	300mW
ビームウエストでの intensity	$\sim 3\text{mW/cm}^2$
基準となる周波数 ($2^2S_{1/2} \rightarrow 2^2P_{1/2}$)	670.977nm

表 5.2: Photoassociationに関するパラメータ

図 5.3: ${}^7\text{Li}$ のエネルギー準位図

5.3.3 Photoassociation 実験に関するその他の装置

光学系

光学系および周波数を安定化するための装置を次頁の図に示した。

$\lambda/2$ 板：入射光の偏光方向に対して結晶軸の角度を変えることにより、偏光ビームスプリッター(PBS)で分けられる光の強度比を調整する。これによって MOT に必要な等強度の 4 本のビームを作り出している。

$\lambda/4$ 板：上の 4 本のビームを円偏光に変える。

レンズ：図中のレンズはテレスコープ配置になっており、これにより上記の 4 本のレーザーを直径約 3cm 程度にまで拡大している。ただし、ゼーマン同調法に用いる正面からの光は原子線の出口で焦点を結ぶようになっている。

凹面鏡の直前の $\lambda/4$ 板：凹面鏡 (concave mirror) でレーザー光を折り返すと PA laser に直接光が戻ってしまう。そのため、凹面鏡の直前に $\lambda/4$ 板をいれ、レーザーの偏光方向を変えてレーザー内部のアイソレーターではねるようになっている。これにより、レーザーが不安定になってしまふのを防いでいる。

周波数安定化システム

この周波数安定化システムでは、レーザー周波数は飽和吸収スペクトルの 3 次微分波形の零点にロックされる。具体的な装置構成は次のようにになっている。

Heater1 : Li は常温で固体であるため、加熱し、気化させている。²

Heater2 : 高温の Li は窓を腐食するため、窓に Li がつかないように常に窓を内部より高温にするのに用いている。

Modulation coil : 1kHz の AC 磁場を形成し、Li の共鳴周波数をゼーマン効果によって変調している。

フォトダイオード : 飽和分光法によって検出される飽和吸収スペクトルをプローブ光強度の変化³によって検出し、これをエラシグナルとして

²Li の融点は 452K であり、沸点は 1500K である。

³飽和分光法では飽和光とプローブ光を用いて飽和吸収スペクトルを検出する。

周波数コントローラーに戻している。

$\lambda/4$ 板と偏光ビームスプリッター : $\lambda/4$ 板によって光がセルを往復したときに偏光が 90° 変わるようになっており、偏光ビームスプリッターでプローブ光だけを取り出している。これにより、飽和光とプローブ光を同一のレーザービームでできるようにしている。

Detuning Coil : セルの軸方向に DC 磁場を形成し、ソレノイドに流す電流量を変化させることで、原子のゼーマン効果を利用して共鳴周波数を任意に ($\pm 50\text{MHz}$ 程度) 離調することができるようになっている。

Oscillator : フォトダイオードからの信号と結合させることにより 3 次の微分波形を作り出している。

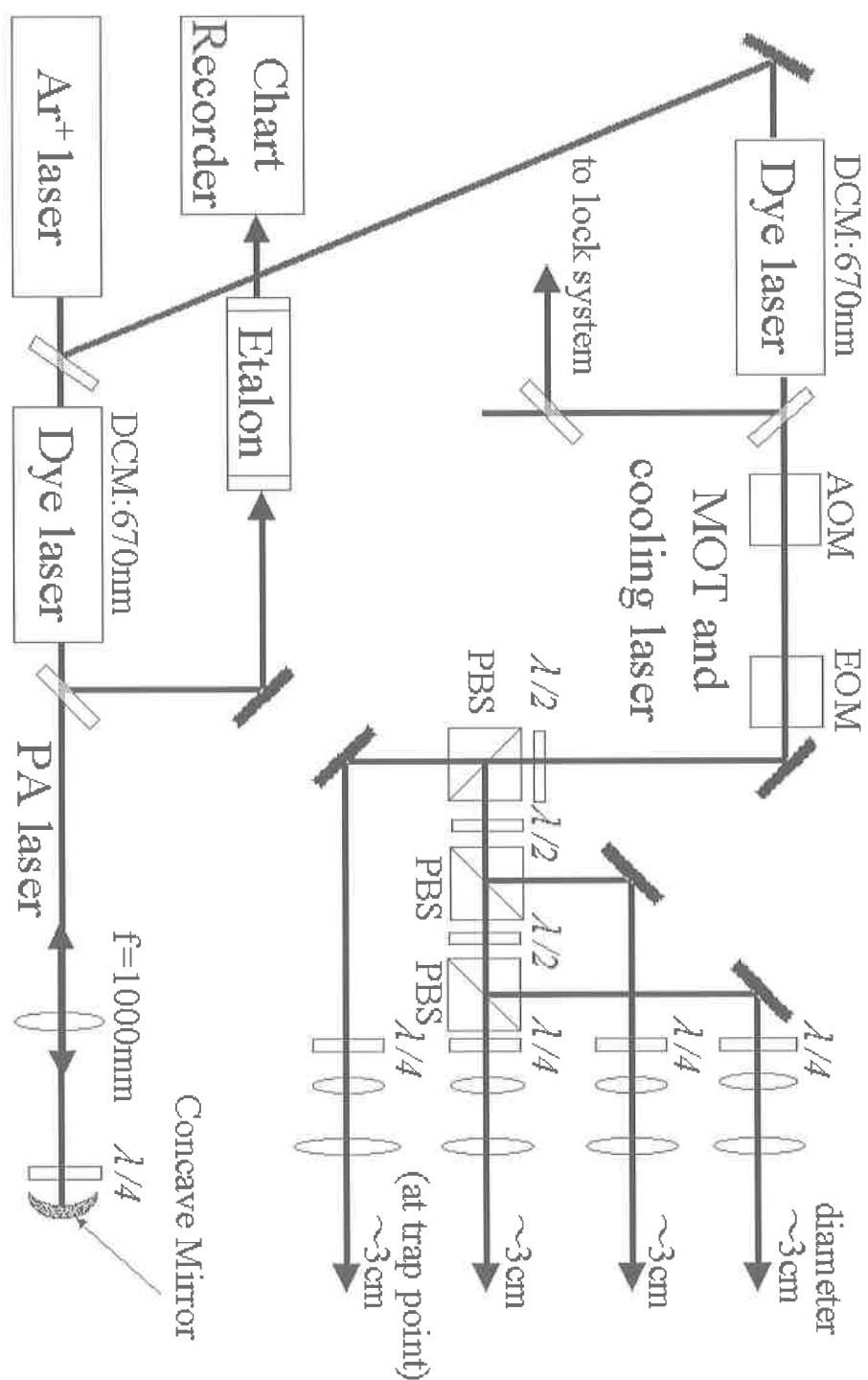


図 5.4: 光学系及び測定系

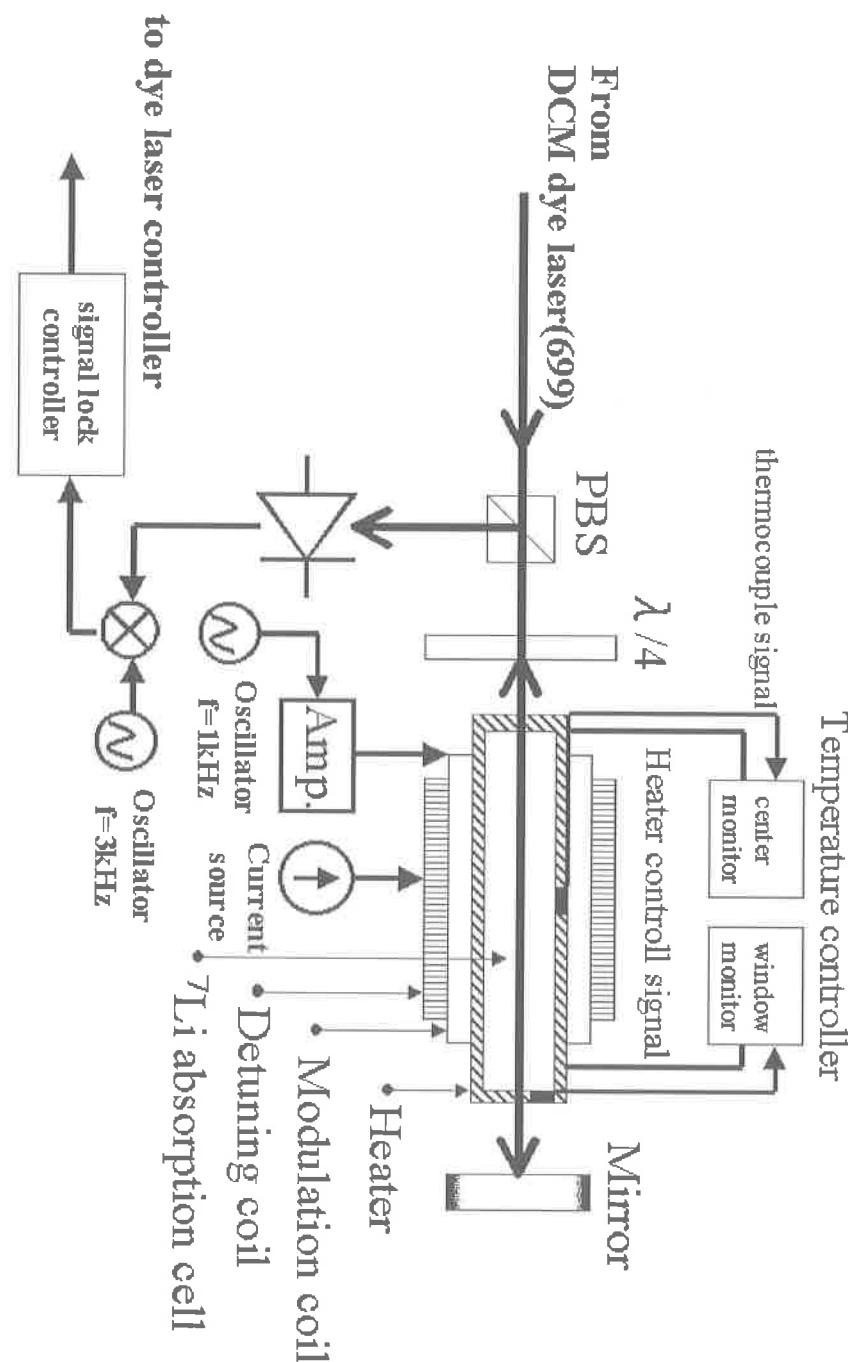


図 5.5: 周波数安定化システム

5.3.4 その他の測定

トラップされた原子の温度測定

MOT の温度は、吸収撮像法を用いた Time of Flight 法 (TOF) によって測定した。これは次のような手順で測定される。

まず原子ビームをメカニカルシャッターによって遮断し、原子が MOT に供給されるのをストップさせる。その後、トラップ光と磁場を切り、MOT から原子を解放する。トラップ光のスイッチングには AOM (Acoustical Optical Modulator : 音響光学変調素子) とメカニカルシャッターを用いて行われる。さらにその後、MOT から解放された原子に共鳴周波数の光 (プローブ光) を当て、光が原子によって吸収された影 (吸収像) をゲートをかけた CCD カメラによって撮像する。これをプローブ光の入射タイミングを変えて繰り返していくのである。

MOT から解放された原子集団は時間が経つにつれて、拡散して広がっていくが、この時間経過 (つまり、プローブ光の入射タイミング) に対する原子集団の広がり方を二次曲線 $v(t)^2 = w_0^2 + \bar{v}^2 w(t)^2$ でフィッティングすることにより、原子の平均速度 \bar{v} をもとめ、温度を決定した。ここで w_0 は時刻 $t = 0$ における原子集団の広がりを表す量であり、これは原子集団が位置と密度の関係において Gauss 分布していると仮定し $1/e$ の半値半幅をとったものである。同様に $w(t)$ は時刻 t におけるものである。

ただしこの方法は非破壊的な測定法ではないので、同じ MOT の再現性が要求される。

トラップされた原子の原子数密度の測定

本実験では基本的に原子の 2 体衝突が重要であるので、おおよその原子数密度の見積は必要である。本実験では MOT の蛍光強度から MOT 中の全原子数を求ることによって原子数密度を見積もっている。MOT 中のおおよその全原子数 N は次の式から求まる。

$$N = \frac{I_p}{\eta_p \eta_c} \frac{1}{2\tau} \frac{1}{h\nu} = \frac{2\tau \lambda I_p}{\eta_p \eta_c h c} \quad (5.1)$$

ここで、 τ は冷却遷移の励起準位の自然寿命であり、原子が一回の吸収・放出のサイクルを終えるのに平均で 2τ かかるとしている。 I_p は MOT 蛍光によってフォトダイオードに流れる電流、 λ は冷却遷移の波長、 η_p はフォトダイオードの放射感度、 η_c はカメラレンズの集光効率である。

しかし本実験で得られる出力信号はOPアンプによる負帰還回路によつて増幅された電圧値である。この出力信号 V_{out} は帰還部の抵抗をRとすると、 $I_p = V_{out}/R$ となる。また、カメラレンズの集光効率 η_c はトラップがカメラレンズにはる立体角と光の透過率との積であたえられ、光の透過率を T 、レンズの直径をD、トラップからレンズまでの距離をLとすると $\eta_c = T \frac{D^2}{16L^2}$ となる。これらより、全原子数は

$$N = \frac{32\lambda\tau L^2}{hc\eta_p RT D^2} V_{out} \quad (5.2)$$

で与えられ、本実験における値 $\lambda = 700[\text{nm}]$, $\tau = 30[\text{ns}]$, $\eta_p = 0.5[\text{A/W}]$, $D = 40[\text{mm}]$, $L = 200[\text{mm}]$, $T = 0.8$, $R = 2 \times 10^6[\Omega]$ を代入すると、

$$N = 1 \times 10^8 V_{out} \quad (5.3)$$

となる。本実験では $V_{out} \simeq 100[\text{mV}]$ であり、 $N \simeq 1 \times 10^7[\text{cm}^{-3}]$ となる。また、MOTの体積を $V \simeq 10^{-3}[\text{cm}^3]$ とし、密度をもとめると、密度nは $n \simeq 1 \times 10^{10}[\text{cm}^{-3}]$ となる。

二体衝突が支配的であることの確認

トラップ中の原子の衝突による減衰は次の式で表される。

$$\frac{dn}{dt} = -\beta n^2 - \alpha n \quad (5.4)$$

これを解くと

$$n(t) = \frac{\alpha}{Ce^{\alpha t} - \beta} \quad (5.5)$$

となる(Cは未定定数)。式5.5の右辺の第1項はトラップされた原子同士の二体衝突による減衰を表し、 β は衝突損失速度係数である。また、第2項はバックグラウンドガスとの衝突による減衰をあらわし、 α はその減衰速度を表す係数である。 α は真空度に依存し、高真空であればあるほど小さくなる。Liにおける β は参考文献[6]によれば $\beta = 4.5 \times 10^{-13}[\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}]$ ⁴であり、また、 α は真空度が $2.6 \times 10^{-10}\text{Torr}$ のときには $\alpha = 0.033$ である。

⁴P.S.Julienne et al による計算では β は $\beta = 3 \times 10^{-14}[\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}]$

本実験における真空度 $\sim 1 \times 10^{-10}$ Torr にもこの値が適用できるとする
と、本実験の条件では二体衝突が支配的になることが分かる。PA は基本
的に二体衝突を前提としているため、この条件は重要である。

実際にトラップ中で二体衝突が支配的であることを確かめるために、原
子ビームを切り、MOT 蛍光の減衰（つまり MOT 中の原子数の減衰）を
測定した。この結果を図 5.6 に示す。もし、二体衝突がなければ式 5.4 の
第 1 項がないと考えて、減衰は

$$n(t) = Ce^{-\alpha t} \quad (5.6)$$

となる。そのため、二体衝突が支配的でないときには減衰を片対数グラ
フにプロットすれば直線となる。直線からのはずれが大きければ二体衝突
が支配的になっている証拠である。

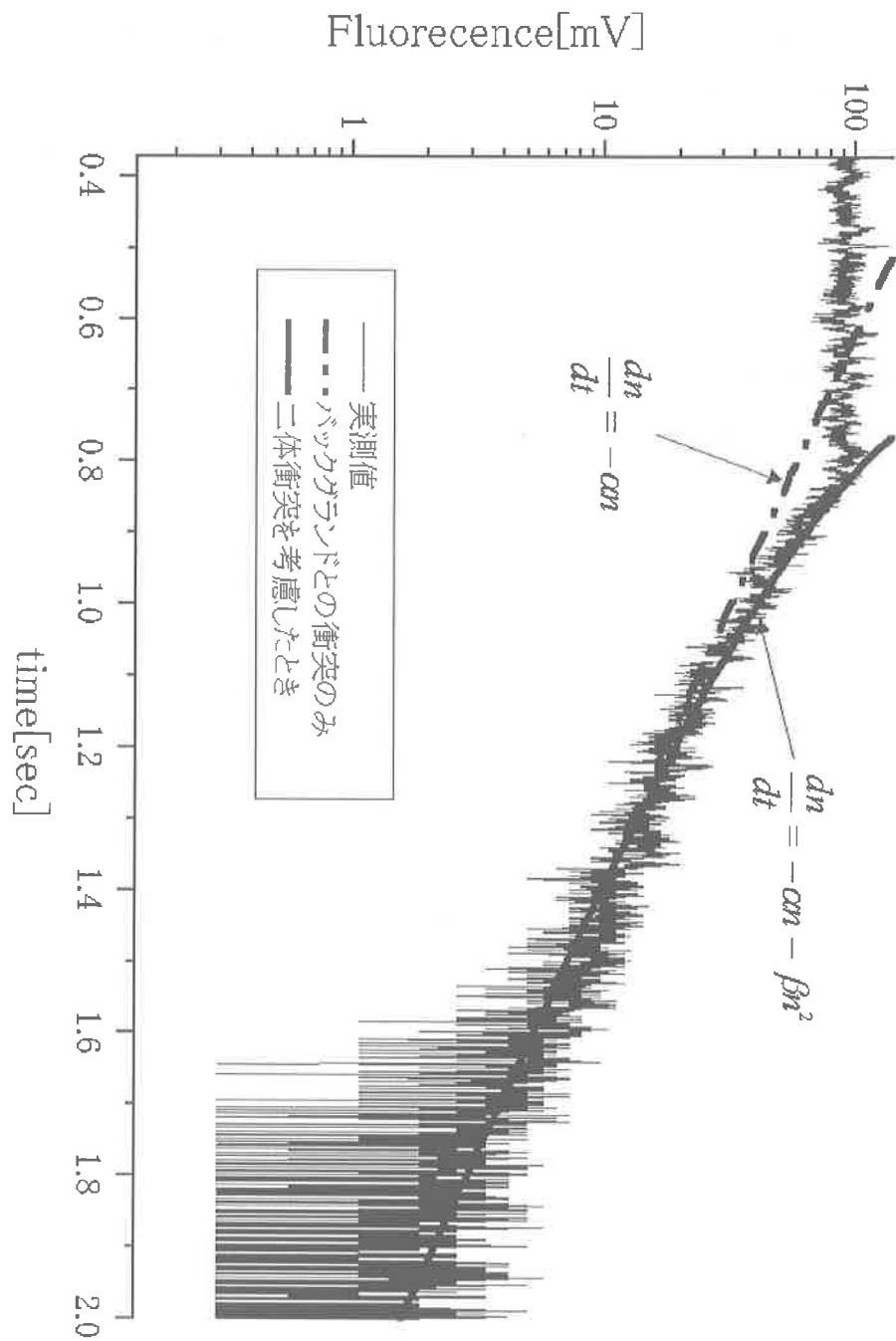


図 5.6: MOT 中の原子の衝突による減衰

第6章 結果及びその解析

6.1 結果

本実験では $^7\text{Li}_2$ の振動回転スペクトルが得られたことによって、Photoassociationによって、 $^7\text{Li}_2$ が生成されたと断定した。本実験で得られたスペクトルからは振動量子数 $v = 90$ から $v = 82$ までの 11 本の $1^3\Sigma_g^+$ 状態のスペクトル線と振動量子数 $v = 97$ から $v = 90$ までの 9 本の $A^1\Sigma_u^+$ 状態のスペクトル線が見られる。

図 6.1 に得られたスペクトルを示した。また、振動準位の束縛エネルギーを表 6.1 に示した。ただし、その値は共鳴光からの相対的な位置によって表されている。

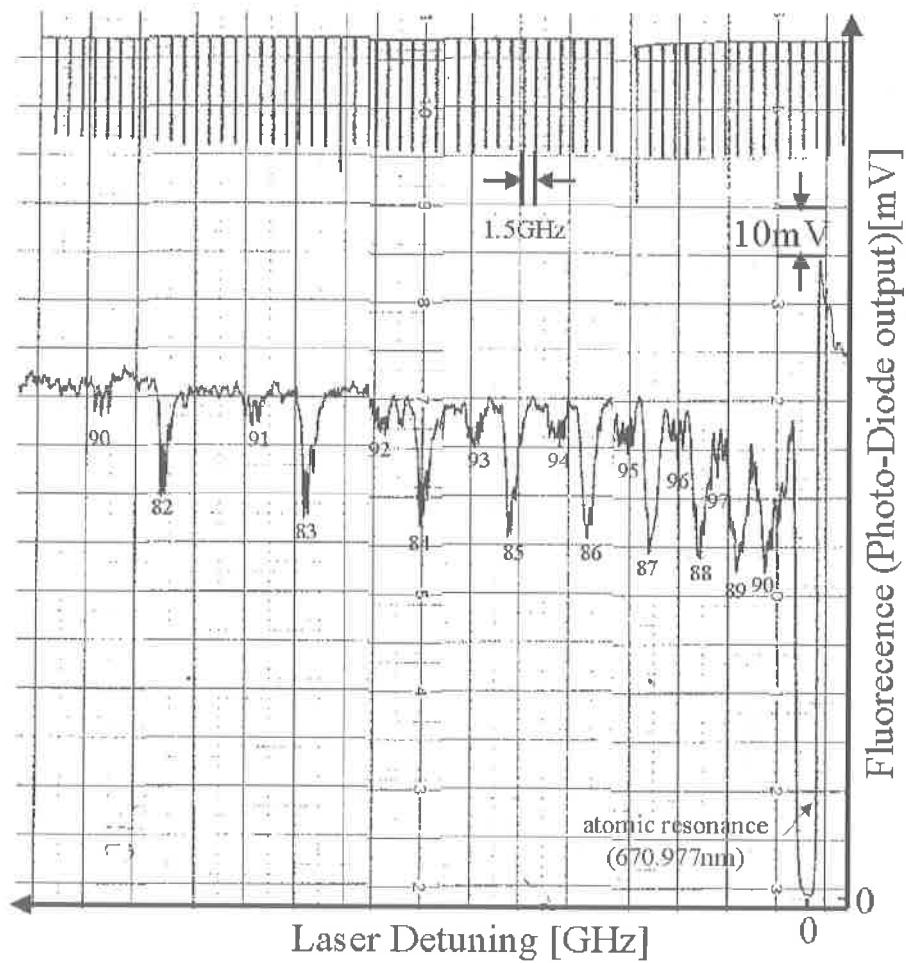


図 6.1: ${}^7\text{Li}_2$ の振動回転スペクトル
 strong signal: $1^3\Sigma_g^+(v = 90 \text{ to } 82)$
 weak signal: $A^1\Sigma_u^+(v = 97 \text{ to } 90)$

electronic state	束縛エネルギー		スペクトル線の間隔		
	v	GHz	v - v+1	GHz	誤差± (GHz)
$1^3\Sigma_g^+$ (K=1)	92?	3.26			
	91?	3.94	91-92	0.68	0.31
	90	5.60	90-91	1.65	0.31
	89	8.85	89-90	3.25	0.31
	88	13.26	88-89	4.41	0.32
	87	19.37	87-88	6.11	0.32
	86	26.53	86-87	7.16	0.33
	85	35.77	85-86	9.24	0.33
	84	47.19	84-85	11.42	0.33
	83	60.92	83-84	13.73	0.32
	82	77.25	82-83	16.33	0.33
$A^1\Sigma_u^+$ (K=1)	98?	6.98			
	97	10.64	97-98	3.45	0.31
	97	10.64			
	96	15.99	96-97	4.86	0.32
	95	21.99	95-96	6.00	0.32
	94	29.70	94-95	7.71	0.31
	93	39.75	93-94	10.05	0.33
	92	51.77	92-93	12.02	0.33
	91	65.88	91-90	14.11	0.32
	90	84.08	90-89	18.20	0.36

表 6.1: 同定された振動準位の相対的な束縛エネルギー
 束縛エネルギーは共鳴光を基準 (0GHz) とし、その位置からの負の離調を単位として表している。また、それぞれの束縛エネルギーの間隔と衝突エネルギーによる誤差 (-20MHz) を除く誤差を併せて記した。

6.2 データの解析

6.2.1 生成した分子 (Li_2) の状態

本実験で生成される分子の電子状態は、第一電子励起状態 (S+P) における $1^3\Sigma_g^+$ 状態と $A^1\Sigma_u^+$ 状態である。これは ${}^7\text{Li}_2$ 分子の基底状態（図 3.1 参照）がいずれも Σ^+ 状態であるためで、選択則 $\Sigma^+ \leftrightarrow \Sigma^+$ から導かれる。ちなみに選択則 $\Delta S = 0$ および $g \leftrightarrow u$ より、 $1^3\Sigma_g^+$ は $a^3\Sigma_u^+$ から、 $A^1\Sigma_u^+$ は $X^1\Sigma_g^+$ から生成されることが分かる。

また、回転準位については、大部分の基底状態準分子において回転量子数が $K=0$ （極低温であるため大きな回転は持たない）であると考えられるから、Hund's case(b) の $\Sigma - \Sigma$ 遷移における選択則 $K = \pm 1$ より、大部分の励起状態分子の回転量子数は $K=1$ となる。つまり、得られたスペクトルの回転量子数は、ほぼ $K=1$ であると考えられる。今回のデータからは分解能的にその他の回転準位は見出せないが、その他の回転準位によるスペクトルは非常に弱いと思われる。

6.2.2 $A^1\Sigma_u^+$ の系列におけるスペクトル線の分裂

$A^1\Sigma_u^+$ の系列のスペクトルにおいてスペクトル線の分裂が見られた。この理由を次に説明する。

得られたスペクトル（図 6.1）において、（例えば $v=90(A^1\Sigma_u^+)$ のところをみると）3つに分かれたスペクトル線が見てとれる。これは生成分子の原料である基底状態原子の超微細構造に由来する分裂である。

${}^7\text{Li}$ 原子の基底状態には $F=1$ と $F=2$ の超微細構造があり（図 5.3 参照）、これらは 803.5MHz 離れている。PA は 2 つの原子の衝突過程であるから、衝突する原子の組合せには $(F=1-F=1), (F=1-F=2), (F=2-F=2)$ の 3 つの場合があり、これらがそれぞれ異なる PA の周波数によって分子生成するため、3 つの分裂したスペクトルが得られる。それぞれのスペクトル線に対する組み合わせの対応は分裂しているスペクトル線の周波数の低い方（原子の共鳴からの離調が大きい方）から順に、 $(F=1-F=1), (F=1-F=2), (F=2-F=2)$ である。これらのエネルギーの差は基底状態原子の超微細構造間の間隔が 803.5MHz であるから、 $(F=1-F=2)$ のエネルギーを 0GHz とすると $(F=1-F=1)$ は -803.5MHz 、 $(F=2-F=2)$ は $+803.5\text{MHz}$ になる。

この分裂に対して、その他の可能性が無いか考察してみる。

$A^1\Sigma_u^+$ は 1 重項状態なので、分子状態における超微細構造はなく、これによる分裂は考えられない。これは $A^1\Sigma_u^+$ を生成する基底状態 $X^1\Sigma_g^+$ についても同様である。また、スペクトルの強度が揃っているため、前述したように回転スペクトルとも考えにくい。

これらのことから、やはり基底状態原子の超微細構造による分裂であると考えられる。そのため、この分裂は、原子からの分子生成である PA に特徴的なスペクトルであると言うことができる。

これによるスペクトル線の分裂は $1^3\Sigma_g^+$ においても見られるはずである。確かに $1^3\Sigma_g^+$ においても、わずかながらスペクトル線の分裂が見てとれる。しかしそれは $A^1\Sigma_u^+$ ほど顕著ではない。これは $1^3\Sigma_g^+$ が 3 重項状態であるため、基底状態原子の超微細構造による分裂に励起分子の超微細構造が重なり、1 本の太いスペクトルとなっているためである。

6.2.3 振動(回転)準位の同定

振動回転準位の同定については参考文献 [1] のデータを参照した。これについては、我々のデータに対応している部分を各準位間の間隔とともに付録に記した。

6.2.4 精度の算出

この節では本研究において与えられた振動回転準位（表 6.1）の束縛エネルギーの決定精度について論じる。

本研究における束縛エネルギーの決定に関しては次のような誤差があると考えられる。

1. チャートレコーダーのペンの太さによる誤差：平均 $\pm 0.23\text{GHz}$
2. reference signal の揺らぎ：平均 $\pm 0.11\text{GHz}$)
3. 衝突エネルギーによるかさ上げ：約 $+20\text{MHz}$ (MOT の温度約 1mK のとき)

これらを合わせると、束縛エネルギーの決定には平均として $\pm 0.34 - 0.02\text{GHz}$ の誤差が存在すると考えられる。

また、PA による振動回転準位測定には PA Laser のレーザー強度に比例した Light Shift があることが確認されている。参考文献 [2] によれば ${}^7\text{Li}$ で $245 \pm 10 \text{ kHz} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$ (Theory: $250 \text{ kHz} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$ [3]) の Light Shift が

あると報告されている。本実験におけるレーザー強度は $\sim 30\text{W/cm}^2$ であり、これによる Light Shift は $\sim 7.5\text{MHz}$ である。これはその他の誤差に比べて小さいので今回は無視した。

第7章 おわりに

極低温分子の生成に関しては本実験で一応の成功を修めたわけであるが、分子の BEC 実現に関してはまだ第一歩を踏み出したに過ぎない。分子の BEC 実現のためには今後主に次のような段階が必要であると考えられている。

1. もう一本ビームを入れ、誘導ラマン遷移によって特定の振動準位の基底状態分子を作る。
2. $^7\text{Li}_2$ 分子を双極子力による光トラップでトラップする。
3. 蒸発冷却もしくはその他の何らかの方法で系全体の温度を転移温度以下まで下げる。

これらに関しては本研究を引き継ぐ者に委ねる。

参考文献

- [1] E.R.I.Abraham,N.W.M.Ritchie,W.I.McAlexander and R.G.Hulet
J.Chem.Phys. **103**, 7773 (1995)
- [2] <http://atomcool.rice.edu/local/degphot/degphot.html>
- [3] Fedichev et al, Phys.Rev.Lett, **77**, 2913 (1996)
- [4] Pierre Pillet,Cyril Drag,Bruno Laburthe Tolra,Daniel Comparat,Andrea Fioretti,Samuel Guibal,Claude Amiot,Anne Crubellier,Olivier Dulieu and Francoise Masnou-Seeuws, Physica Scripta, Vol.T86, 38 (200)
- [5] A.Fioretti,D.Comparat,C.Drag,T.F.Gallagher, and P.Pillet, Phys.Rev. Lett, **82**,No.9 1839 (1999)
- [6] 河仲準二 著,『レーザークーリング・トラッピングされたリチウム原子および準安定状態ネオン原子の極低温原子間衝突に関する研究』電通大電気通信学研究科博士論文 (1993)
- [7] S.Chi,L.Hollberg,J.E.Bjorkholm,A.Cable and A.Ashkin, Phys.Rev. Lett. **55**, 48 (1985)
- [8] 清水富士夫, 数理科学, No.306, December (1988)
- [9] 久我隆弘, 光学, 28巻 11号,596-603 (1999)
- [10] 清水富士夫, 応用物理, 第 60巻, 第 9号, 864 (1991)
- [11] G.Herzberg 著,奥田典夫 訳 『分子スペクトル入門—フリーラジカルのスペクトルと構造—』 培風館 (1975)
- [12] 村井友和 著 『原子・分子の物理学』 共立出版 (1972)

- [13] 児島邦夫, 前田史郎 著 『分子の構造』 朝倉書店 (1972)
- [14] エリ・ランダウ, イエ・リフシツ著, 好村滋洋, 井上健男 訳『ランダウ=リフシツ量子力学2』 東京図書 (1970)
- [15] K.P.Huber,G.Herzberg, Constants of diatomic molecules, 374-375
Van Nostrand Reinhold Company(1985)
- [16] 物理学辞典, 1889-1890, 培風館 (1986)
- [17] D.D.Kanowalow et al, J.Chem.Phys., **72**, 5815 (1980)
- [18] C.Linton,T.L.Murphy,F.Martin,R.Basic and J.Verges, J.Chem.Phys. **91**, 6036 (1989)

付 錄 A E.R.I.Abraham et al のデータ

次のデータは我々が振動回転準位を同定するのに用いた E.R.I.Abraham (Rice Univ.) らのデータ（一部）である。[1]

electronic states	Rice Univ.'s data(GHz)			
	v	binding energy	v - v+1	separation
$1^3\Sigma_g^+(K = 1)$	90	5.775(52)	90-91	
	89	8.990(52)	89-90	3.22
	88	13.257(52)	88-89	4.27
	87	18.928(52)	87-88	5.67
	86	26.116(68)	86-87	7.19
	85	35.219(25)	85-86	9.10
	84	46.469(25)	84-85	11.25
	83	60.202(25)	83-84	13.73
	82	76.832(25)	82-83	16.63
$A^1\Sigma_u^+(K = 2)$	97	10.952(36)	97-98	
	96	15.610(40)	96-97	4.66
	95	21.719(30)	95-96	6.11
	94	29.488(36)	94-95	7.77
	93	39.235(30)	93-94	9.75
	92	51.274(33)	92-93	12.04
	91	65.977(36)	91-90	14.70
	90	83.766(37)	90-89	17.79
	97	11.160(43)		
$A^1\Sigma_u^+(K = 1)$	96	15.857(33)	96-97	4.70
	95	22.005(34)	95-96	6.15
	94	29.835(33)	94-95	7.83
	93	39.645(30)	93-94	9.81
	92	51.758(30)	92-93	12.11
	91	66.553(30)	91-90	14.80
	90	84.432(30)	90-89	17.88
	96	15.990(60)	96-97	
	95	22.214(52)	95-96	6.22
$A^1\Sigma_u^+(K = 0)$	94	30.047(51)	94-95	7.83
	93	39.868(43)	93-94	9.82
	92	51.976(85)	92-93	12.11
	91	66.875(52)	91-90	14.90
	90	84.789(37)	90-89	17.91

表 A.1: E.R.I.Abraham et al による ${}^7\text{Li}_2$ の振動回転スペクトル
E.R.I.Abraham,N.W.M.Ritchie,W.I.McAlexander and R.G.Hulet
J.Chem.Phys. **103**, 7773 (1995) より抜粋。

A.1 $A^1\Sigma_u^+$ 状態と $1^3\Sigma_g^+$ 状態の振動と回転に関する定数

表 A.2 に ${}^7\text{Li}_2$ の $A^1\Sigma_u^+$ 状態と $1^3\Sigma_g^+$ 状態に対する振動および回転エネルギーに関する定数を挙げておく。

	$A^1\Sigma_u^+$ Ref.[15]	$1^3\Sigma_g^+$ Ref.[18]
$\omega_e[\text{cm}^{-1}]$	255.47	251.496(20)
$\omega_e x_e[\text{cm}^{-1}]$	1.58(2)	2.346(4)
$\omega_e y_e[\text{cm}^{-1}]$	+0.002(5)	
$B_e[\text{cm}^{-1}]$	0.4975(0)	0.51061(40)
$\alpha_e[\text{cm}^{-1}]$	0.0054(0)	0.00763(40)
$D_e[\text{cm}^{-1}]$	7.54×10^{-6}	$5.06(176) \times 10^{-6}(v = 1)$
$H_e[\text{cm}^{-1}]$	$+1.23 \times 10^{-10}$	$-73.8(490) \times 10^{-10}$
$T_e[\text{cm}^{-1}]$	14068.35	16328.9
$r_e [\text{\AA}]$	3.107(9)	3.0678
$D_0[\text{cm}^{-1}]$		7091.5

表 A.2: $A^1\Sigma_u^+$ 状態と $1^3\Sigma_g^+$ 状態の振動と回転に関する定数

謝辞

この実験の成功に当たり、適切なご指導と多大なご協力をいただきました清水富士夫教授、清水和子助教授、森永実助手そしてともに実験したF科M2河野託也修士（予定）に感謝の意を表し、ここに深く御礼申し上げます。また、色々とお世話になりました他の清水研のみなさまにもこの場を借りて御礼申し上げます。