

Li 原子-Ca⁺ イオン混合系における
原子-イオン間非弾性散乱の研究

齋藤了一

電気通信大学大学院情報理工学研究科
博士（理学）の学位申請論文

2018 年 3 月

Li 原子-Ca⁺ イオン混合系における
原子-イオン間非弾性散乱の研究

博士論文審査委員会

主査 中川 賢一 教授

委員 向山 敬 教授 (大阪大学)

委員 岸本 哲夫 准教授

委員 渡辺 信一 教授

委員 斎藤 弘樹 教授

著作権所有者

齋藤了一

2018

Study of inelastic collisions between an atom and an ion in Li-Ca⁺ hybrid system

Ryoichi Saito

Abstract

Recent developments in cold atomic system based on the laser cooling technique make it possible to control quantum state of atomic ensemble or single atomic particle. This precious control technique creates additional interests in development of manipulation method of collision including inelastic collisions and chemical reaction process between state controlled atoms, ions or molecules. Manipulation of state to state reaction process can provide great progress of synthesis technology and fundamental physics. Chapter 1 introduces like this background and target of this study.

We investigate inelastic collision including elementary step of chemical reaction between quantum state controlled an atom and an ion in nearly absolute zero temperature against the background discussed above. To realize observing the precious controlled inelastic collisions in cold and ultracold regime, we developed ultracold ⁶Li-⁴⁰Ca⁺ hybrid system. This system consists combination of laser cooled Li atomic gas and laser cooled Ca⁺ ions in an ion trap. This atom-ion hybrid system has attracted attention as new platform to study inelastic collision in cold to ultracold regime. Chapter 2 to 4 review property and basic technique of cold atomic gas and trapped ions and introduce the experimental setup of our hybrid system.

In chapter 5, to reveal inelastic collision mechanism, we systematically investigate charge-exchange process between a lithium atom and a calcium ion. Energy dependence of charge-exchange cross section is measured in every selected internal state of Ca⁺ by optical pumping. Controlling collisional energy is achieved with a deliberately excited micromotion of ions in the RF ion trap. We find out charge-exchange collision mechanism in collision energy range of milliKelvin

to Kelvin is explained by Langevin collision from this energy dependence measurement. Charge-exchange cross section changes depending on internal state of calcium ions. To analyze this internal state dependence of charge-exchange reactivity, we compare the measured results and calculated potential energy curves and identify the route of charge-exchange process in Ca^+ D state. Moreover, chapter 5 introduces another experiment of spin dependence of inelastic collisions.

Chapter 6 shows summary of this study and discuss about future plan and outlook.

Li 原子-Ca⁺ イオン混合系における 原子-イオン間非弾性散乱の研究

齋藤 了一

概要

レーザー冷却技術は絶対零度近傍の中性原子集団およびイオントラップ装置によって捕獲された原子イオンの生成を可能にした。一方で冷却中性原子と冷却イオンは同じような実験技術を背景としながらも両者を同一の実験装置内で捕獲し、相互作用あるいは結合させる実験は長らく試みられてこなかった。近年、冷却中性原子集団とイオントラップ中の冷却イオンを一つの実験系で捕獲し、両者の相互作用に注目した研究が発表されるようになった。こうした系を原子-イオン混合系と呼んでおり、原子-イオン間が引き起こす散乱現象を利用して極低温における化学反応の研究や固体のシミュレーションといった展開に期待が持たれている。

冷却原子-イオン混合系の特徴として原子およびイオンの量子状態を実験者が任意に選択可能であることがあげられる。通常、常温での原子-イオン間散乱を想定した時、様々な始状態が分布しており、得られる終状態も個々の状態同士の散乱の結果生じた終状態が混ざり合っている。すなわち散乱現象ひいては化学反応過程の根本的な理解にはそれぞれの状態を選別することが重要と言える。その点、レーザー冷却により絶対零度近傍まで冷却された中性原子あるいはイオンの状態はレーザー光によって精密に制御することが可能である。そこで本研究では、リチウム原子とカルシウムイオンからなる原子-イオン混合系を構築し、両者の状態を制御した際の非弾性散乱に関する研究を行った。こうした実験および実験技術の確立は散乱過程の理解といった興味はもちろん、化学反応過程の量子的制御といった研究における第一歩と言える。以上のような背景と目的について第1章に詳述した。

第2章と第3章に本研究の基礎事項と理論的背景について記述する。それぞれ原子-イオン間の相互作用とカルシウムイオンを捕獲するために用いたイオントラップの原理についてそれぞれで記した。

実験に使用したリチウム原子-カルシウムイオン混合系について記述する。実験系は既存の実験技術を組み合わせることで構築した。高周波を用いて荷電粒子を捕

獲するリニアパウルトラップによって光イオン化したカルシウムイオン ($^{40}\text{Ca}^+$) を捕獲し、ドップラー冷却によって絶対零度近傍まで冷却した。一方のリチウム原子 (^6Li) はリチウムの固体を熱して熱原子線を生成し、ゼーマン減速器を経て磁気光学トラップにて冷却および捕獲を行った。その後リチウム原子を光トラップに移行し、カルシウムイオンと相互作用させるために光ピンセット技術を用いて冷却されたリチウム原子集団を捕獲したイオンまで輸送した。混合された原子とイオンの散乱前後の状態の変化からどのような散乱過程を起きたかを検出した。リチウム原子は吸収撮像法にて観測し、カルシウムイオンは冷却光の散乱光を観測することで行った。これらの実験装置と技術は第4章にて記述する。

原子-イオン間非弾性散乱の一つに電荷交換散乱があげられる。この過程はリチウム原子に束縛された電子がカルシウムイオンに飛び移る現象であり、化学反応素過程の一つである。電荷交換散乱の詳細を検証するために散乱断面積のエネルギー依存性とカルシウムイオンの内部状態依存性を測定した。以下に簡潔に記述する。

散乱断面積のエネルギー依存性を測定するためには原子-イオン間の散乱エネルギーを制御する必要がある。そこでイオントラップ中に捕獲したカルシウムイオンの運動エネルギーを制御する手法を開発した。イオントラップ中のイオンの運動は永年運動とマイクロモーションに分離できる。永年運動はレーザー冷却によって冷却することができるが、マイクロモーションは捕獲に用いる高周波によって直接駆動されている運動でレーザー冷却することができない。通常、マイクロモーションは最小になるように高周波電場の鞍点でイオンを捕獲するが、外部電場を加えることで捕獲点と鞍点をずらすことで誘起することができる。マイクロモーションが増大したイオンが発する蛍光スペクトルはドップラー広がりとは異なり特徴的なスペクトル形状を呈する。このスペクトルを用いてマイクロモーションエネルギーを較正した。

また、一方のカルシウムイオンの内部状態はレーザー光ポンピングで選択した。

測定した散乱断面積のエネルギー依存性から散乱のメカニズムはランジュバン散乱で説明でき、測定エネルギー領域では古典的な散乱であることを示した。また、散乱断面積はカルシウムイオンの内部状態ごとに異なった。この内部状態間の反応性の差がポテンシャルエネルギー曲線の状態間の結合の有無によって説明できることを共同研究により明らかにした。これらの結果を第5章に記した。

以上のように本研究では内部状態による反応性の違いを見出し、それを個々の状態におけるポテンシャルエネルギー曲線から説明した。これは本来、散乱過程がそ

れぞれの状態ごとに理解されるべきであることを端的に示した結果と言える。本研究で得られた知見は非弾性散乱過程の理解に加え、実験者による散乱過程の制御手法の開発といった観点からも有益であると考えられる。

第6章では上に示したような成果をもとに本研究のまとめと今後の展望について言及した。

目次

第 1 章	序論	19
1.1	背景	19
1.2	中性原子-イオン混合系	21
1.2.1	冷却イオン	21
1.2.2	冷却原子	22
1.2.3	中性原子-イオン混合系の概要	22
1.2.4	低温化学反応	24
1.2.5	メゾスコピック分子	26
1.2.6	共同冷却	26
1.2.7	量子シミュレーション	28
1.2.8	局所領域プローブ	29
1.3	本論文の目的	30
1.4	本論文の構成	31
第 2 章	原子とイオンの相互作用	33
2.1	古典的な質点の散乱	33
2.2	原子-イオン間相互作用	35
2.2.1	相互作用ポテンシャル	35
2.2.2	特性距離と特性エネルギー	37
2.2.3	${}^6\text{Li}$ - ${}^{40}\text{Ca}^+$ 間相互作用ポテンシャルエネルギー	39
2.3	原子-イオンの散乱過程	41
2.3.1	散乱過程の概要	41
2.3.2	古典散乱理論	43
2.3.3	量子散乱理論	47

2.3.4	半古典理論	56
第 3 章	イオントラップの原理	59
3.1	パウルトラップ中のイオンの運動	59
3.1.1	イオンの運動方程式	60
3.1.2	最低次の安定解	63
3.1.3	リニアパウルトラップ	65
3.1.4	擬調和ポテンシャル	67
3.2	外部電場下のイオンの性質	68
3.2.1	余剰マイクロモーション	68
3.2.2	イオンの運動エネルギー	70
3.2.3	イオンのスペクトル	71
第 4 章	実験装置と手法	77
4.1	実験装置概要	77
4.2	実験手法概要	80
4.3	真空装置	84
4.4	リチウム原子の冷却	86
4.4.1	原子線の生成	86
4.4.2	冷却光学系	89
4.4.3	ゼーマン減速器	96
4.4.4	磁気光学トラップ	98
4.4.5	原子線のコリメート	99
4.5	原子の光トラップ	104
4.5.1	光トラップの原理	104
4.5.2	光共振器トラップ	105
4.5.3	シングルビームトラップ	107
4.6	原子の撮像	111
4.6.1	撮像光学系	111
4.6.2	高磁場イメージング	112
4.6.3	撮像倍率の測定	112
4.6.4	原子気体の温度測定	113
4.6.5	原子のトラップ周波数の測定	115

	4.6.6	原子の寿命	118
4.7		カルシウムイオンの捕獲と冷却	119
	4.7.1	イオントラップ	119
	4.7.2	イオンの生成	123
	4.7.3	イオンの冷却	128
4.8		イオンの検出と撮像	137
	4.8.1	イオンの検出と検出系	137
	4.8.2	トラップ周波数の測定	140
	4.8.3	イオンの撮像倍率の較正	141
4.9		マイクロモーションの補正	143
	4.9.1	補正電極	144
	4.9.2	スペクトルによる補正	145
	4.9.3	RF 光子相関法	145
4.10		$D_{5/2}$ 状態へのポンピングとレーザー	149
	4.10.1	850 nm レーザー	149
	4.10.2	729 nm レーザー	149
第 5 章		内部状態選択による非弾性散乱の制御	153
	5.1	概要	153
	5.2	内部状態の制御	154
	5.2.1	基底状態と準安定状態へのポンピング	154
	5.2.2	励起状態 $4^2P_{1/2}$	156
	5.3	原子イオン間散乱エネルギーの制御	157
	5.3.1	原子イオン間の散乱エネルギー	157
	5.3.2	マイクロモーションによる散乱エネルギーの制御	158
	5.3.3	混合中の散乱エネルギーの変化	167
	5.4	電荷交換断面積	169
	5.4.1	電荷交換散乱の検出	170
	5.4.2	ロス確率の測定	172
	5.4.3	電荷交換レート	172
	5.4.4	電荷交換断面積のエネルギー依存性	176
	5.5	電荷交換断面積の内部状態依存性	180

5.5.1	電荷交換-ランジュバン断面積比	180
5.5.2	電荷交換経路の特定	180
5.6	非弾性散乱のスピンの依存性	184
5.6.1	D 状態のスピンの依存性	184
5.6.2	Li 原子のスピンの偏極	186
5.6.3	Ca^+ イオンのスピンの偏極	187
5.6.4	スピンの依存性の検出手法	188
第 6 章	まとめと展望	191
6.1	まとめ	191
6.2	今後の展望と課題	193
付録 A	外部共振器型半導体レーザー	195
A.1	原理	197
A.2	外部共振器型半導体レーザーの構造	197
A.2.1	リトロー型	197
A.2.2	リットマン型	198
A.2.3	干渉フィルタ型	199
付録 B	Li 原子と Ca^+ イオンの性質	201
B.1	基本的性質	201
B.2	エネルギー準位	203
B.2.1	微細構造	203
B.2.2	超微細構造	206
B.2.3	静磁場下のエネルギー準位	207
参考文献	215
学術発表一覧	229
関連論文	229
参考論文	229
国際会議発表	229
国内会議発表	230

第 1 章

序論

1.1 背景

化学反応は現代社会において工業的，産業的な利用にとどまらない身近な現象の一つであり，長い間研究が行われてきた．化学反応の存在はその担い手としての原子や分子の存在が知られる前から広く知られており，それらの存在が知られた現在ではより一層盛んに研究が行われている．粒子としての原子や分子の存在は気体分子運動論に端を發するような統計力学的成果のみならず化学反応においても重要な見方を示している．それは運動する原子あるいは分子の散乱に伴って化学反応が起きるということである．すなわち化学反応過程は原子や分子の散乱現象の一部としてとらえられる．さらに原子や分子の存在に立脚した物理学あるいは化学において重大な変革をもたらしたのは量子力学の登場である．量子力学は原子や分子の構造やふるまいを説明することに成功した．もちろんこうした結果や量子力学的原理は化学の分野にも持ち込まれ，分子の結合や反応性等について成果を上げている [1]．

化学反応を量子力学的にとらえると，散乱する 2 粒子にそれぞれ離散的に存在する内部状態ごとに相互作用ポテンシャルが存在し，それらの状態間の結合や特定の準位間の光を介在した遷移等を考える必要がある．しかし，こうした観点からの反応過程は必ずしも厳密に省みられてきたわけではない．なぜなら常温で起きる化学反応は複数の内部状態が存在する混合状態であり，外部状態に関しても熱分布しているため，反応生成物もそれぞれ個別の状態が反応した結果が混ざり合っている．こうした常温の系において各状態での散乱を実験的に議論，検証するのは原理的な難しさが存在する．

こうした背景のもと、分子線を用いた化学反応の研究がこれまでに実現されてきた。この分子線を散乱させる実験では、分子の並進速度の選別に加え、状態と分子の配向を制御した反応過程の観測に成功した。[2, 3]。分子線を用いた実験的研究では立体配座異性体による反応性の違い [4] やペニングイオン化 [5]、状態を選別した散乱過程 [6] といった興味深い結果が報告されている。

一方で分子線は並進温度の冷却がされているもの到達温度は高く量子的な効果が表れる極低温に至ることが難しいため、トラップされた冷却原子や分子を用いた化学反応研究も近年盛り上がりを見せている。冷却原子や冷却分子 [7] を用いれば、極低温領域に到達することができ、化学反応過程における量子効果や共鳴が媒介する反応といった研究が可能になると冷却分子系において指摘されている [8]。冷却原子、分子系に特徴的な強力なツールはレーザーや磁場による量子状態の制御である。実際に量子状態を制御された KRb 分子同士の化学反応過程の観測が報告されている [9]。

以上のような背景のもと極低温領域まで冷却可能なトラップ系であること、レーザーによる量子状態の制御が可能であることを満たした実験系として注目を集めるのが冷却原子-イオン混合系である。この系はレーザー冷却された中性原子とイオントラップ中の原子イオンから構成されている。原子や原子イオンは比較的単純な構造を持つため、その多くの内部構造が現在までに明らかにされており、また特定の原子種、イオン種については捕獲技術、レーザー冷却技術が確立されている。こうした点は単一状態の化学反応過程の実験的あるいは理論的検証を行う上で非常に有利であると言える。さらに、上記のように化学反応を含めた散乱過程は、内部状態ごとに特徴づけられることを鑑みると、原子やイオンの内部状態を制御することで散乱過程を制御する技術を開発できる可能性を示唆していると言える。つまり原子-イオン混合系はこうした非弾性散乱過程の制御を検証する上で有効なプラットフォームになりうる。

原子-イオン系における内部状態の制御を通じた散乱過程の制御に関する研究は今日までも報告されており、Bonn 大学の M. Köhl らのグループによる Rb-Yb⁺ 系において内部状態を選別した上での電荷交換の反応性の観測 [10] やイスラエルの Ozeri らのグループによる Rb-Sr⁺ 系のスピン状態を選別した散乱過程の観測 [11] があげられる。また UCLA の E. R. Hudson らグループは Ca 原子-Ba⁺ イオン混合系を用いてイオントラップ中に捕獲し Ba⁺ で共同冷却した BaOCH₃⁺ と Ca 原子の反応を観測し、その反応メカニズムを検証した [12]。

本研究ではレーザー冷却された中性原子と原子イオンを用いて両者の散乱過程、特に非弾性散乱過程に関する研究を行った。中性原子とイオン間の非弾性散乱に関する実験的研究を行うため、Li 原子-Ca⁺ イオン混合系を実現し、混合系における非弾性散乱のうち特に電荷交換散乱に着目した。電荷交換散乱とは片方の原子に束縛された電子がもう一方に移る現象である。また、このとき Li 原子あるいは Ca⁺ イオンの内部状態を実験者自らが選択して両者を相互作用させた。こうした実験を通して単一状態の化学反応過程に関する知見を深め、化学反応過程の量子力学的理解および内部状態操作による化学反応の操作の可能性を模索することを目的とした。

1.2 中性原子-イオン混合系

1.1 では本研究の背景と目的を記したが、本節では中性原子-イオン混合系とその実験の元になった技術である冷却イオンおよび冷却原子の歴史的背景と混合系を用いた研究における代表的な成果や研究意義を概観することで本論文の位置づけを示す。

1.2.1 冷却イオン

荷電粒子捕獲装置であるイオントラップは電荷を利用して粒子を三次的に閉じ込める装置であり、二種類が広く知られている。一つはペニングトラップ (Penning trap)[13, 14] と呼ばれ、静電場と静磁場を組み合わせる手法であり、F. M. Penning によって開発された。もう一方は高周波電場と静電場を用いた捕獲装置であり、開発者である W. Paul の名よりパウルトラップ (Paul trap)[14, 15] と呼ばれる。

イオントラップの特徴として外場のパラメーターを変化させることで種々の質量を捕獲できる点や非常に深く強い束縛ポテンシャルを実現できる点があげられる。こうした観点からパウルトラップは質量分析に用いられる。

レーザー冷却の概念が Wineland, Delmelt, Hänsch, Schawlow[16, 17] によって提案され、実際にペニングトラップ中のイオン [18]、パウルトラップ中のイオン [19] それぞれについて適用された。イオントラップ装置はそれ単体でもイオンを捕獲できるが、レーザー冷却の登場により、一個のイオンであっても安定で長時間の捕獲が可能となった。その後、ドップラー冷却限界以下にイオンを冷却する手法としてサイドバンド冷却 [20] が行われ、振動基底状態までイオンが冷却されるように

なった.

冷却イオンは非常に優れた量子孤立系となりうるために現在までに研究は多岐にわたり, 代表的な応用として周波数標準と量子情報があげられる. 以上の議論は文献 [21] を参考にした.

1.2.2 冷却原子

1975 年に提案されたレーザー冷却の概念が原子の冷却実験に用いられるようになり, アルカリ金属の熱原子線の次元冷却が行われた後, 発展を遂げ, 三次元的な冷却であるオプティカルモラセスが Na 原子において開発された [22]. その後, 不均一磁場とオプティカルモラセスを組み合わせ, 原子に対して復元力を与えて捕獲する磁気光学トラップ (MOT) が生まれ [23], 絶対零度近傍まで冷却された原子気体を安定的に生成, 捕獲する手法が示された.

レーザー冷却された原子気体を用いたボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) の実現を目指す研究が生まれ, 磁気トラップ中の原子に対して蒸発冷却 [24, 25] を適用することで E. Cornell と C. Wieman のグループで ^{87}Rb 原子にて, W. Ketterle のグループにおいて ^{23}Na 原子にてそれぞれボース・アインシュタイン凝縮が実現された [26, 27].

ボソン原子を用いたボース・アインシュタイン凝縮の実現の一方でフェルミオン原子を用いた冷却実験も進められた. JIRA のグループにおいて ^{40}K 原子についてフェルミ縮退が実現された [28].

1.2.3 中性原子-イオン混合系の概要

冷却中性原子気体とイオントラップ中の冷却イオンは互いに共通した技術を用い, 近い分野にありながらもそれぞれ独自に発展を遂げてきたと言える.

一方で複数の同位体や異なる原子種や複数の原子, 分子を対象とする研究が注目集め始めている. 一種類の原子気体や単一粒子を任意に制御する技術が徐々に成熟してきたことでそれら複合させた実験系を構築し, それぞれの長所を生かした実験や技術を開発する動きが盛んになりつつある.

こうした中, 冷却原子気体とイオントラップ中のイオンを同一系にて捕獲し両者の相互作用に注目した中性原子-イオン混合系の研究が十年以上前から盛り上がりつつある. 原子-イオン混合系は 2005 年に W. W. Smith らによって提案された [29].

その後、実験では V. Vuletić のグループによってはじめて磁気光学トラップ中の Yb 原子とイオントラップ中の Yb⁺ イオンの系が実現された [30]。以来、現在までにいくつかのグループで実現されている。下表 1 に実現された原子-イオン混合系を示した。

中性原子-イオン混合系は中性原子集団の中に新たな自由度としての荷電粒子を浴した系としてとらえることができる。原子気体は比較的高密度で多数の原子から成るが、イオンは比較的低密度で少数個を捕獲することに優れる。少数個のイオンはクーロン相互作用により一個一個を分離して観測することができるので原子-イオン間の散乱過程を散乱後のイオンの状態検出を行うことで単一レベルで観測することが可能である [31, 32]。さらに中性原子はボソンならば BEC、フェルミオンならばフェルミ縮退といった量子縮退状態を作り出すことができ、一方のイオンは外部電場に対して制御が容易であるという特徴を持つ。こうした特徴を利用して原子-イオン混合系では様々な研究が提案されてきた。次項以降に提案あるいは研究されてきた項目について個別に述べる。

表 1 中性原子-イオン混合系

Research group	Atom-ion combination
MIT	Yb(MOT)-Yb ⁺ [30]
Ulm university	Rb(BEC)-Ba ⁺ [31]
University of Basel	Rb(MOT)-Ca ⁺ [33] Rb(MOT)-Ba ⁺ [34]
University of Bonn	Rb-Yb ⁺ [35]
UCLA	Ca(MOT)-Yb ⁺ [36, 37] Ca(MOT)-Ba ⁺ [38]
University of Connecticut	Na(MOT)-Na ⁺ [39]
Osaka university	Li(Degenerate)-Ca ⁺ [40]
Raman Research Institute	Rb(MOT)-Rb ⁺ [41] Rb(MOT)-K ⁺ Cs(MOT)-Rb ⁺ [42]
The Weizmann Institute of Science	Rb(BEC)-Sr ⁺ [43]
University of Amsterdam	Li-Yb ⁺ [44]

1.2.4 低温化学反応

1.1 において冷却原子と冷却イオンを用いた内部状態を制御した非弾性散乱過程観測の意義について述べたが，低温あるいは極低温における非弾性散乱ひいては化学反応を調べる興味と意義について述べる．

量子化学において化学反応過程は反応物と生成物を含めた反応系においてボルン-オッペンハイマー近似に基づき原子核の位置の関数として表される電子のエネルギー曲面であるポテンシャルエネルギー曲面上を移動するモデルで議論される．一般に反応はポテンシャルエネルギー曲面の谷に沿ってすすみ，途中，遷移状態と呼ばれる極大値を通過する．このような反応モデルを遷移状態モデルと呼ぶ [45]．反応経路沿いに軸をとって一次元系のポテンシャルエネルギー曲面を図 1 に示した．このときの横軸を反応座標と呼ぶ．図 1 が示すように反応は活性化エネルギーと呼

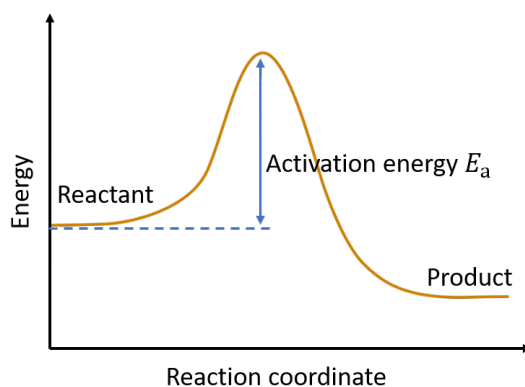


図 1 化学反応機構

ばれるポテンシャル障壁を超えることで起きる．すなわち，反応物のうち活性化エネルギー以上のエネルギーを散乱時に獲得したものが反応を起こすことができる．

このモデルは経験的によく知られたアレニウスの式にも合致している．アレニウスの式によれば化学反応の速度定数 k は活性化エネルギー E_a を用いて

$$k \propto \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (1)$$

と表される．ここで R は気体定数， T は絶対温度である．

アレニウスの式 (1) より温度が高ければ高いほど，活性化エネルギー以上のエネル

ギーを獲得する反応物が多くなるため化学反応は促進される。つまり、本研究のような絶対零度近傍での化学反応を取り扱った場合反応は非常に起こりにくくなると考えられる。

一方で原子や分子は絶対零度近傍まで冷却されると量子力学的な波の性質が顕著になる。こうした物質波は以下式の熱的ド・ブロイ波長 λ_{dB} で特徴づけられる。

$$\lambda_{dB} = \frac{h}{\sqrt{3mk_B T}} \quad (2)$$

ここで h はプランク定数, m は質量, k_B はボルツマン定数である。

ド・ブロイ波長の長さが相互作用到達距離に対して同程度から十分長くなってくると散乱過程に量子効果が現れるようになる。(原子-イオン系の場合, 相互作用到達距離に相当する特性距離 [46, 47] が知られる。特性距離に関しては 2.2.2 にて後述する。) こういった状況下では化学反応速度はアレニウスの式に従わなくなり, トンネル効果によって化学反応が逆に促進されると言われている。

原子-イオン混合系はこうした低温から量子効果が現れる極低温領域にわたって散乱を研究する恰好のプラットフォームになりうる。原子-イオン間の低温散乱は R. Côté らによって初めて Na-Na⁺ 系について理論的研究が行われた [48]。この論文の中では弾性散乱と電荷交換散乱の散乱断面積について取り扱われており, 電荷交換散乱の場合, 散乱エネルギーが 10^{-12} - 10^{-3} [a. u.] の間で散乱断面積はランジュバン散乱 [49] のエネルギー依存性に従い, さらに高温では対数関数に従う [48]。また, ランジュバン散乱より低い領域では散乱断面積の変化が飽和する様子が見て取れる。[48] これは, 低エネルギーになるにつれ軌道角運動量の大きい部分波の散乱の寄与が消えて, 最終的に s 波散乱の寄与のみが残るためであると考えられる。

また, ²³Na - ⁴⁰Ca⁺ 系について多チャンネル量子欠損理論 (MQDT: multichannel quantum defect theory) を用いた極低温における弾性散乱と電荷交換散乱レートのエネルギー依存性が計算された [50]。⁸⁷Rb - ¹³⁸Ba⁺ における弾性散乱についても同様の手法による計算結果が学位論文 [51] 内にて示された。

実験的にも原子-イオン混合系において化学反応過程が観測されている。電子が原子-イオン間で飛び移る過程で, 化学反応素過程である電荷交換散乱は多くの原子-イオン混合系で観測されている [10, 11, 30, 31, 32, 33, 44, 52]。さらに分子生成についても光が介在した結合過程 [33] について報告された。

分子生成に関して述べれば, 冷却原子系においては相互作用を変調できるフェッシュンバハ共鳴 [53, 54] が良く知られており, これを利用した分子生成は冷却分子

研究において頻繁に用いられる。原子-イオン系は相互作用ポテンシャルが距離の 4 乗に反比例するため原子系よりも束縛状態が豊富に存在することが予想でき、実験可能な範囲に共鳴が存在する可能性は高い。最近では理論的な予測も行われており [55]、実現されれば、原子-イオン系の実験を大きく促進するものと期待されている。

なお、低温での原子-イオンの反応過程は星間分子の反応においても重要な過程の一つであることが指摘されている。

1.2.5 メゾスコピック分子

原子-イオン系の化学反応に関する興味深いトピックとしてメゾスコピック分子 [56] の存在が予言されている。このメゾスコピック分子とは量子縮退気体の中に溶されたイオンが存在するとき、イオンとの相互作用ポテンシャルによって原子が緩やかな束縛状態に落ち分子となったものを指す。量子縮退気体に BEC を用いた場合、フォノンを介してエネルギー放出し、何百と原子が緩やかに束縛することが示唆されている [56]。

このような巨大分子の形成には量子統計性が大きく関わると思われる。イオンにコアにして原子が高い準位に緩やかな束縛状態を形成したとき、この準位に束縛される原子がボソンの場合、同種粒子であっても何個も同じ状態に束縛される。一方で BEC ではなく、フェルミ縮退気体を用いた場合、同種粒子は同一の状態に束縛されることはなくイオンをコアとして何百も原子が束縛されるような状態を作ることとは不可能であると考えられる。こうした量子統計性の化学反応における効果を検証する系としても原子-イオン混合系は興味深い。

1.2.6 共同冷却

原子-イオン混合系が提案された初期段階から期待されていた研究の一つとして共同冷却によるイオンの冷却があげられる。共同冷却とは冷媒との弾性散乱を通して冷却を行う手法のことであり、イオントラップ中のイオンに関してはヘリウムガス等の希ガスを流し込むことで行われてきた。原子-イオン混合系においては冷却原子気体を冷媒としてイオンを冷却することを目的としている。

冷却原子気体は蒸発冷却を行うことで μK から数十 nK オーダーまで冷却することができる。一方のイオンの冷却はドップラー冷却を適用可能なイオン種に関してはドップラー冷却限界程度まで温度を下げることができ、さらにドップラー冷却限

界以下の冷却に関してはサイドバンド冷却 [20] がよく知られている。サイドバンド冷却を用いれば、振動基底状態までイオンを冷却することが可能である。しかし、サイドバンド冷却は冷却手法がやや煩雑でレーザーはじめ多くの装置も必要となる。加えて、冷却できるイオン種も限られ、閉殻となるアルカリ金属の正イオンや分子イオンの冷却は困難である。

そこで低温から極低温まで冷却した原子気体を用いてイオンを冷却する手法が提案された。冷媒となる原子気体が磁気光学トラップならば典型的に数 mK、光トラップや磁気トラップで蒸発冷却を行えば数十 nK なのでヘリウムガスよりはるかに効果的な冷却が期待できる。2005 年に初めて磁気光学トラップに捕獲した Na 原子気体でイオントラップ中の Na^+ の共同冷却の提案され [29]、実験においても $\text{Na}-\text{Na}^+$ 系において確認された [39, 57]。また他の組み合わせに関しても $\text{Rb}-\text{K}^+$ 系、 $\text{Cs}-\text{Rb}^+$ において確認された [42]。これらのイオン種はレーザー冷却は困難な閉殻構造を持ち、イオントラップ中での寿命が磁気光学トラップされた原子によって延びることを冷却の証拠としている。磁気光学トラップ中だけでなく、光トラップ中の原子気体とイオンの混合においても研究されており、 $\text{Rb}-\text{Sr}^+$ 系において振動基底状態まで冷却した Sr^+ の温度変化が報告された [43]。この系では原子との混合によるイオンの加熱が報告されている。また一方で、我々の $\text{Li}-\text{Ca}^+$ 系においても数 K の温度領域でイオンの冷却を確認した [58]。

原子-イオン混合系の共同冷却は原子-イオンの組み合わせによる質量比が重要であることが指摘されている [59, 60]。これはイオントラップにおけるマイクロモーションの存在が大きく関わっていると考えられる。一回の散乱において交換する運動エネルギーは原子の質量が大きいほど大きくなるが、イオントラップ中のイオンの運動は高周波電場によって直接駆動される振動モードであるマイクロモーションが存在するため冷却に働くか、あるいは加熱に働くか複雑になる。イオンはマイクロモーションは外部の振動電場起源のためコヒーレントな振動であるが、原子との散乱によって乱されると加熱となる。こうした複雑さからイオントラップ中のイオンの中性原子気体による共同冷却は理論的によく議論されており、非マックスウェル・ボルツマン分布をとることが指摘されている [61, 62, 63]。これは上記の $\text{Rb}-\text{Sr}^+$ 系における実験においても確かめられた。イオンの効率的な冷却のためにはむしろ原子の質量が小さいほうが有利であると考えられており、我々の $\text{Li}-\text{Ca}^+$ 系はリチウムが質量数 6 に対してイオンは 40 であることからイオンに対して原子が軽いいため冷却を観測できたと考えられる。

原子-イオン混合系での共同冷却の成果は分子の冷却を促進する可能性を持つ。冷却分子の研究は近年、量子情報への応用等の観点から注目されているが、分子の研究の難しさの一つは、その冷却手法が確立されていないことに起因する。冷却分子イオンの生成方法の一つとしてレーザー冷却可能なイオン種をイオントラップで捕獲し、冷却した後、真空チャンバー内に水素分子ガスなどを導入して反応させ水素化物イオンなどの分子イオンをつくる手法が知られている [64]。このイオントラップ中の分子イオンの並進運動エネルギーをレーザー冷却したイオンとの散乱で共同冷却する。しかしながら分子は並進運動エネルギーだけでなく、振動、回転運動エネルギーを持つ。振動回転状態を冷却するには粒子同士が近接して散乱する必要があるため、イオン同士の散乱では冷却が難しい。そこでヘリウムガスを導入し、ヘリウムとの散乱による回転状態冷却が報告されている [65]。またヘリウムバッファガス冷却に関しては、多原子分子についても ND_3 および H_2CO について回転状態冷却が行われた [66]。ヘリウムガスを冷却原子気体に置き換えることで分子の並進、振動、回転状態の冷却が期待できる [67]。実際に E. R. Husdon らのグループではイオントラップ中の BaCl^+ 分子と磁気光学トラップ中の Ca 原子気体の混合系において BaCl^+ 分子の振動状態の冷却を確認している [68]。

また共同冷却とは異なるが、原子-イオン混合系におけるイオンの冷却として電荷交換に伴うスワップ冷却が指摘されている。これは同一核種から成る原子-イオン混合系において共鳴電荷交換 (resonant charge-exchange) が起きることを利用し、もともと冷却されている原子気体がイオン化することで冷却イオンを得る手法である。文献 [69, 70, 71] にて議論されている。

1.2.7 量子シミュレーション

原子-イオン混合系を構成する冷却原子、冷却イオンともに量子シミュレーションの研究が盛んである。冷却原子気体による量子シミュレーションの研究は近年、光格子中の原子気体の量子顕微鏡の開発やトポロジカル相転移の 2016 年ノーベル物理学賞受賞などでますます盛んな勢いを見せる。

固体シミュレーション

原子-イオン混合系においても固体シミュレーションを行う提案がされている。光格子中の原子を用いたシミュレーションの場合、光格子ポテンシャルを結晶格子が

作り出す周期ポテンシャルとし、その中を動き回る原子を電子に見立てた系として議論される。原子-イオン混合系の場合、イオントラップ中に配列したイオン結晶を結晶格子が作るポテンシャルとし、原子を電子とするアナロジーのもとで議論される。

結晶格子にイオンを用いる最大の特徴はフォノンの存在である。光格子によるポテンシャルでは結晶格子の振動モードは再現できないが、イオントラップ中のイオンはフォノンが存在するため、フォノンが陽に関わる現象のシミュレーションを行うことが可能である。U. Bissbort らによる理論提案では一次元鎖状に捕獲したイオンと原子気体をオーバーラップさせることでフォノンと原子の結合によるパイエルス転移のシミュレートが報告された [72]。

ポーラロン

固体中に表れる準粒子の一つとしてポーラロン [73] があげられる。ポーラロンは結晶格子中を電子が運動すると格子を構成する原子と相互作用し、結晶格子は歪む。こうした結晶格子歪みは量子力学的にはフォノンとして理解されるためフォノンとカップルした電子としてポーラロンはみなされる。ポーラロン研究は固体物理はもちろん冷却原子系における研究もおこなわれており、縮退したフェルミ気体中に不純物となる気体を入れることでポーラロンの観測が報告された [74, 75, 76]。

原子-イオン系においても原子を固体中の電子、イオンを結晶格子とすることで原子-イオン間相互作用を利用したポーラロンの研究を行うプラットフォームになりうる。イオントラップ中のイオンは個別に光で制御できるのでイオンあるいはイオン列の持つフォノンを制御する技術 [77] に基づいてイオンの外部状態を制御した上で観測すれば原子-イオン系の特色を生かした研究が期待できる。

1.2.8 局所領域プローブ

原子あるいはイオンの制御、操作のためにもう一方を使用する実験は二種以上の対象物がある混合系の特色と言える。

イオンのマイクロモーションを検出し、補正する手段として原子気体を使ったデモンストレーションが報告された [78]。これは原子-イオン間の弾性散乱を利用してイオンの運動を測定したものであり、原子をプローブとした例である。

ところで単一の原子に個別にアクセスしてその数や位置や状態の検出・操作を行

う技術は現在あるいは将来的な量子情報分野をはじめとした科学技術の根幹となりうる基礎要素技術と言える。現在までに開発されている技術ではイオントラップ中の結晶化したイオン列に対して個別にアクセスして量子ビットとする手法 [79] や光格子中の単一サイトを分解して観測する量子顕微鏡と単一サイト中の原子に対して光でアクセスする手法 [80], リュドベリ原子を使って光格子中の原子をプローブする手法 [81], 光マイクロトラップ中の単一原子 [82] あるいは原子列に光でアクセスする手法が知られている。このように様々な手法や技術が開発, 提案されており, 原子気体を用いた量子シミュレーション, 量子情報といった研究において光格子中の単一サイトといった局所領域の物理量をプローブあるいは操作する手法の新たな開発は大きなブレイクスルーとなりうる。

文献 [83] では光格子中の原子に対してイオントラップ中の単一イオンのような捕獲した単一粒子の空間位置を操作することで STM[84] のようにプローブする手法が提案された。イオントラップ中のイオンは外部電場による制御性に優れるため, STM のように順次, 原子状態をスキャンしていく手法に適していると考えられる。個別の原子にアクセスする代表的な手法としてレーザーによるものが広く用いられている。レーザー光を用いた場合, 対象とする光格子のサイトだけでなく, 隣接するサイトへの影響が抑えきれないことが問題視されている。また, サイドバンド冷却で振動基底状態まで冷却すればトラップ条件によるが, 典型的にナノメートルオーダーまで局在化できる。これをプローブに用いれば従来の分解能よりはるかに高分解能のプローブが実現できる。また量子情報の立場からも提案がされている [85]。

現在までに原子-イオン系ではイオンの位置を原子気体中の異なる位置で混合させて散乱を観測する実験が行われ, 原子気体の密度の位置による変化が観測されている [31, 32, 35]。

1.3 本論文の目的

本研究では中性 ${}^6\text{Li}$ 原子- ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオン混合系における非弾性散乱を研究することを目的とした。そのために冷却 ${}^6\text{Li}$ 原子気体と冷却 ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオンを生成する装置を開発し, 装置内で原子とイオンを空間的にオーバーラップして両者を相互作用させ, 原子あるいはイオンの混合前後の状態変化から散乱過程を検出した。

原子-イオン間の非弾性散乱過程のうち電荷交換散乱と呼ばれる, 原子に束縛された電子がイオンに飛び移る散乱過程を取り扱った。一般に化学反応過程は素過程と

呼ばれるいくつかの過程の組み合わせから成っているが、この電荷交換散乱は化学反応素過程である。

こうした化学反応素過程について内部状態を制御し、各状態ごとの反応性を検証することを目的とした。原子-イオンの反応過程を含めたすべての散乱過程はそれぞれの内部状態によって決まるポテンシャルエネルギー曲線の各チャンネルごとに特徴づけられる。すなわち、各チャンネルごとのポテンシャルエネルギー曲線が明らかになれば散乱過程の予測を行うことができるともいえる。しかし、ポテンシャルエネルギー曲線について理論的検証も十分に行われているとは言えず、微細構造、超微細構造あるいは各磁気副準位まで考慮した計算を行う手法は確立されていない。同時に実験的にも各状態を分離した上での散乱はほとんど観測されていない。そこで、実験者が原子あるいはイオンの任意の内部状態を選択して散乱を観測し、各チャンネルごとの反応性の違いを検証した。こうした研究は化学反応過程の起源の検証やポテンシャルエネルギー曲線計算の検証、あるいは内部状態を実験者が選ぶことで反応を制御する技術の確立といった結果をもたらすと期待される。

内部状態ごとに散乱過程を検証する際、各磁気副準位ごとに原子とイオンを選別して準備し、散乱を観測する必要がある。本研究では単純化するためにまず、超微細構造ごとに原子とイオンを準備し、実験を行った。各準位に準備したイオンについて電荷交換断面積を測定することで、反応性の違いを調べた。次のステップとして磁気副準位ごとの測定があるが、これに関しては展望としてふれる。

1.4 本論文の構成

以下に本論文の構成を示す。

第1章では本論文の背景および目的について現在までに近い研究領域で得られた成果や本研究で用いた原子-イオン混合系の提案や成果を交えつつ述べた。

第2章と第3章では本研究の基礎事項について項目ごとに記す。

第2章は、中性原子とイオン間の相互作用や散乱過程について述べる。特に本研究で用いた Li-Ca^+ 系での散乱過程を中心に展開し、本実験系で起こりうる散乱過程やエネルギースケール等について述べる。また原子-イオン間散乱の理論的背景も古典的な粒子としての描像から量子力学的な記述まで概要を記述する。

第3章はカルシウムイオンの捕獲に用いたパウルトラップの原理について述べる。荷電粒子の捕獲原理から始め、実験に用いたリニアパウルトラップの特徴や原理に

ついて記す．特にリニアパウルトラップ中のイオンの運動とエネルギー，イオンの蛍光スペクトルを中心に記述する．

第 4 章では構築した原子-イオン混合系の装置と装置の性能評価について実際に得られた実験データとともに記す．

第 5 章は内部状態を制御した ${}^6\text{Li}$ 原子と ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオン間の非弾性散乱についての実験結果について記述する．この章は大きく二つに分かれており，一つは微細構造準位についてレーザーで選択した Ca^+ イオンと基底状態の Li 原子間の電荷交換散乱について研究した結果である．もう一つは特定の磁気副準位について選別した Li 原子， Ca^+ イオン間の非弾性散乱を観測する実験である．

第 6 章にて本研究のまとめと今後の展望を記述する．

第 2 章

原子とイオンの相互作用

中性原子とイオン間の相互作用は，その両者の距離が十分遠い領域では電荷を持ったイオンとそのイオンが作る電場に誘起された中性原子の電気双極子との相互作用である．以下では中性原子とイオンの相互作用の基礎事項について記述する．

2.1 古典的な質点の散乱

古典的な質点として考えられる粒子の散乱を考える．質量 m_1 , m_2 の粒子 1, 2 がそれぞれの速度を \mathbf{v}_1 , \mathbf{v}_2 で散乱する．重心系で考えると重心速度 \mathbf{v}_{CM} は

$$\mathbf{v}_{\text{CM}} = \frac{m_1 \mathbf{v}_1 + m_2 \mathbf{v}_2}{m_1 + m_2} \quad (3)$$

これより粒子 1, 2 の重心系における速度 \mathbf{u}_1 , \mathbf{u}_2 は

$$\mathbf{u}_1 = \mathbf{v}_1 - \mathbf{v}_{\text{CM}} \quad (4)$$

$$\mathbf{u}_2 = \mathbf{v}_2 - \mathbf{v}_{\text{CM}} \quad (5)$$

すると重心系の運動エネルギー E_{coll} は

$$E_{\text{coll}} = \frac{1}{2} m_1 \mathbf{u}_1^2 + \frac{1}{2} m_2 \mathbf{u}_2^2 \quad (6)$$

式 (4), (5) に式 (3) を代入して上式に代入し，整理すると

$$E_{\text{coll}} = \frac{1}{2} \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} (\mathbf{v}_1 - \mathbf{v}_2)^2 = \frac{1}{2} \mu_0 \mathbf{v}_{\text{rel}}^2 \quad (7)$$

ここで \mathbf{v}_{rel} は相対速度であり， μ_0 は 2 粒子の換算質量 $\mu_0 = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$ である．以上のように二粒子の換算質量と相対速度で散乱エネルギーが書けた．

式 (7) を展開, 変形して

$$\begin{aligned} E_{\text{coll}} &= \frac{1}{2}\mu_0 (v_1^2 - 2\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2 + v_2^2) \\ &= \mu_0 \left(\frac{1}{m_1} E_1 + \frac{1}{m_2} E_2 \right) + \frac{1}{2}\mu_0 v_1 v_2 \cos \theta \end{aligned} \quad (8)$$

が得られる. ここで E_1 , E_2 は粒子 1, 2 の実験室系での運動エネルギーであり, θ は \mathbf{v}_1 , \mathbf{v}_2 のなす角である. θ は粒子の初期条件に依存するが, θ が 0 から π の値を等確率で取ると仮定して平均をとる.

$$\begin{aligned} \langle E_{\text{coll}} \rangle &= \mu_0 \left(\frac{1}{m_1} E_1 + \frac{1}{m_2} E_2 \right) + \frac{\int_0^\pi \frac{1}{2}\mu_0 v_1 v_2 \cos \theta d\theta}{\int_0^\pi d\theta} \\ &= \mu_0 \left(\frac{1}{m_1} E_1 + \frac{1}{m_2} E_2 \right) \end{aligned} \quad (9)$$

以上より平均の散乱エネルギーは散乱する二粒子の質量と実験室系での運動エネルギーを使って書くことができた.

2.2 原子-イオン間相互作用

本節では原子-イオン間の相互作用について簡潔に記述する．中性原子はイオンの作る電場によって誘起双極子を作るため，2粒子の距離が十分遠い領域では原子-イオン間の相互作用は電荷-誘起双極子相互作用となる．

2.2.1 相互作用ポテンシャル

本研究で用いた中性原子は ${}^6\text{Li}$ であり，イオンは一価の陽イオンである ${}^{40}\text{Ca}^+$ を用いた．陽イオンがつくる電場 E は

$$E(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e}{r^2} \quad (10)$$

と書ける．ここで r , ϵ_0 , e はそれぞれ距離，真空の誘電率，電気素量である．上式は ${}^{40}\text{Ca}^+$ を想定して一価の陽イオンを作る電場とした．中性原子は電子と陽子が同数いるため電氣的に中性であるが，イオンの作り出す電場によって図 2 のように分極する．この分極 p は分極率 α と外部電場によって以下のように書ける．

$$p = \alpha E \quad (11)$$

誘起分極した原子は電荷の偏りが生じている，これを δ^- と δ^+ とする．この双極子と電荷との相互作用を考える． δ^- , δ^+ とイオン間のそれぞれに引力と斥力が生じるが， δ^- の方がイオンに近く， δ^+ の方が遠いため全体としては引力となる．この

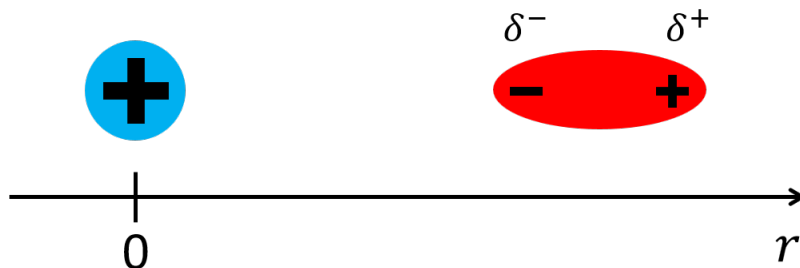


図 2 イオンと誘起双極子の相互作用模式図．イオンの作る電場によって中性原子中に電荷の偏りが生じる．この誘起された双極子と電荷との相互作用が中性原子-イオンの相互作用である．

静電気力を f とすると

$$f = \frac{2\alpha e^2}{4\pi\epsilon_0 r^5} \quad (12)$$

と表現できる．この静電気力のポテンシャルエネルギー V_{int} は，ポテンシャルの定義より

$$V_{\text{int}} = - \int_{-\infty}^r f dr \quad (13)$$

$$= - \frac{2\alpha e^2}{4\pi\epsilon_0} \int_{\infty}^r \frac{1}{r^5} dr \quad (14)$$

$$= - \frac{1}{2} \alpha \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r^4} \quad (15)$$

$$= - \frac{C_4}{r^4} \quad (16)$$

となる．

ここで $C_4 = \frac{1}{2} \frac{\alpha e^2}{4\pi\epsilon_0}$ とした．すなわち中性原子とイオンの相互作用は距離の四乗で特徴づけられることがわかる．

以上のように中性原子とイオンの相互作用は距離の四乗に反比例することがわかったが，冷却原子系で広く研究されている中性原子同士の相互作用は距離の六乗の反比例することが知られている．これは電氣的に中性である原子であっても原子核の周りに分布する電子のある瞬間に生じる双極子によってつくられる電場によってもう一方の原子にも電荷の偏りが生じ双極子が発生する．こうして中性原子同士で互いに誘起される双極子の誘起双極子-誘起双極子相互作用である．以下の表 2 に代表的な相互作用とその距離依存性とその例を示した [45]．本研究で扱った中性原子-イオン間の相互作用は中性原子同士の相互作用より長距離においても効力を示すが，近年盛んに研究が進む冷却極性分子にあらわれる双極子-双極子相互作用よりは減衰がはやいことがわかる．

一般の中性原子-イオン散乱では式 (16) に加え遠心力ポテンシャルの項が加わるため原子-イオン間の相互作用ポテンシャルは以下のように表される．

$$V_{\text{int}} = - \frac{C_4}{r^4} + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu r^2} \quad (17)$$

ここで $\hbar = h/2\pi$ で表されるディラック定数であり， μ は原子とイオンの質量をそれぞれ m_{atom} と m_{ion} としたときの換算質量 $\mu = \frac{m_{\text{atom}} m_{\text{ion}}}{m_{\text{atom}} + m_{\text{ion}}}$ である．また l は散乱の軌道角運動量である．

表2 相互作用とそのポテンシャルエネルギーの距離依存性

相互作用	距離依存性	例
電荷-電荷 (クーロン)	r^{-1}	イオン同士
電荷-双極子	r^{-2}	イオンと極性分子
双極子-双極子	r^{-3}	極性分子同士
電荷-誘起双極子	r^{-4}	イオンと中性原子
双極子-誘起双極子	r^{-6}	極性分子と中性原子
誘起双極子-誘起双極子 (ロンドン分散力)	r^{-6}	中性原子同士

式 (17) において散乱の角運動量 $l = 0$, すなわち s 波散乱のとき, 相互作用ポテンシャルは式 (16) に一致する.

2.2.2 特性距離と特性エネルギー

散乱の角運動量 l が有限の値を持つとき, 相互作用ポテンシャルには図 3 に表すようなポテンシャル障壁が存在する. このポテンシャル障壁の極大点について考える. 極大点の位置 r_l^{max} は

$$r_l^{max} = \sqrt{\frac{2}{l(l+1)}} \sqrt{\frac{2\mu C_4}{\hbar^2}} = \sqrt{\frac{2}{l(l+1)}} r^* \quad (18)$$

とかける. ここで

$$r^* = \sqrt{\frac{2\mu C_4}{\hbar^2}} \quad (19)$$

とおいた.

r^* は $l = 1$ のときの極大点の位置であり, 特性距離と呼ばれ, 相互作用到達距離に相当する.

極大値, すなわちポテンシャル障壁 E_l^{max} は式 (18) を式 (17) に代入することにより,

$$E_l^{max} = \frac{l^2(l+1)^2}{4} \frac{\hbar^2}{2\mu r^{*2}} = \frac{l^2(l+1)^2}{4} E^*, \quad (20)$$

が得られる.

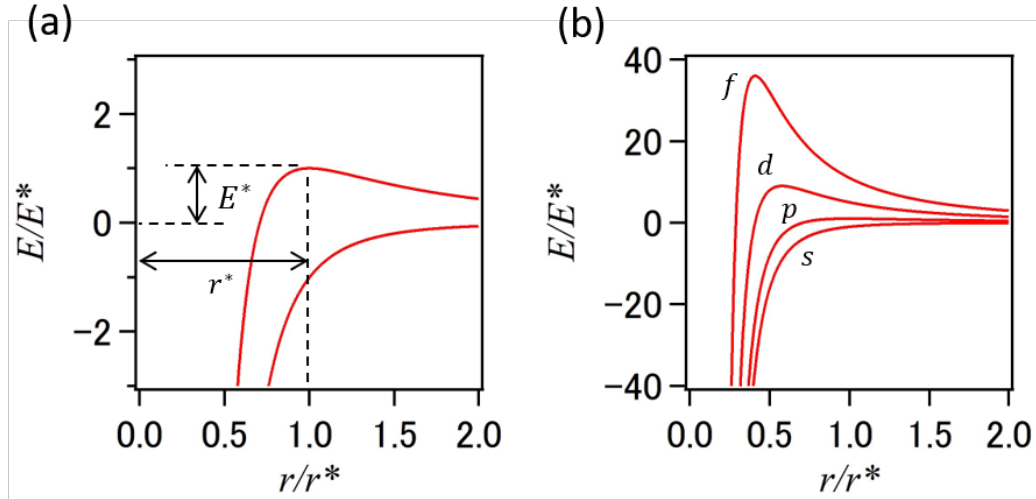


図 3 遠心力ポテンシャルを考慮した中性原子-イオン間のポテンシャル. 横軸は特性距離で, 縦軸は特性エネルギーでそれぞれ規格化した. (a) s 波, p 波のときのポテンシャル. p 波のときの極大点を特性距離 r^* と特性エネルギー E^* で表す. (b) s, p, d, f 波でのポテンシャル.

ここで E^* は $l = 1$ のときのポテンシャル障壁であり, 特性エネルギーと呼ばれ,

$$E^* = \frac{\hbar^2}{2\mu r^{*2}}, \quad (21)$$

である.

このエネルギーは角運動量 $l = 0$ と 1 , つまり s 波と p 波散乱の閾エネルギーに相当する. 図 3(a) に特性エネルギーと特性距離を示した. 特性距離と特性エネルギーを図 3(a) 中に示した. 原子-イオン間の散乱エネルギーを E^* 以下にすれば, s 波だけが支配的な量子的な散乱領域に突入する. 特性エネルギーは換算質量に反比例するため, 換算質量が小さいほど s 波散乱の閾エネルギーは上昇する. つまり軽い質量の粒子を持った組み合わせの方が, 量子的な散乱を観測するにあたって有利であると言える. 表 3 に中性原子-イオン系での特性距離と特性エネルギーを示した. 本実験で用いた ${}^6\text{Li}-{}^{40}\text{Ca}^+$ の組み合わせが他の組み合わせに比べて 2-3 桁程度高い閾エネルギーを持つことがわかる. 中性原子気体は蒸発冷却によって数十ナノケルビンオーダーまで冷却することが可能である一方でイオンはサイドバンド冷却を用いても数十マイクロケルビン程度の冷却にとどまる. すなわち既存の冷却手法を用いて特性エネルギー以下の中性原子-イオン間散乱を観測するためには本実験で用いたよ

うな適切な組み合わせを選択する必要がある。我々の用い ${}^6\text{Li}-{}^{40}\text{Ca}^+$ 系はこうした点で優位な組み合わせと言える。以上の議論は文献 [46, 47, 51, 59] を参考にした。

表 3 原子-イオン系の特性距離と特性エネルギー [46, 59]

組み合わせ	r^* [nm]	E^*/k_B [nK]
${}^{172}\text{Yb} - {}^{174}\text{Yb}^+$	252	44
${}^{87}\text{Rb} - {}^{138}\text{Ba}^+$	296	52
${}^{87}\text{Rb} - {}^{40}\text{Ca}^+$	211	199
${}^{87}\text{Rb} - {}^{174}\text{Yb}^+$	306	44.7
${}^{40}\text{Ca} - {}^{174}\text{Yb}^+$	166	270
${}^6\text{Li} - {}^{40}\text{Ca}^+$	66	10.6×10^3
${}^{87}\text{Rb} - {}^{87}\text{Rb}^+$	266	79
${}^6\text{Li} - {}^{176}\text{Yb}^+$	70	8.56×10^3

2.2.3 ${}^6\text{Li}-{}^{40}\text{Ca}^+$ 間相互作用ポテンシャルエネルギー

中性原子-イオンに関わらず粒子間の相互作用はポテンシャルエネルギー曲線によって特徴付けられる。実際の原子には内部状態が存在し、それぞれの内部状態の組み合わせごとに相互作用ポテンシャルエネルギー曲線は異なる。 ${}^6\text{Li}$ 原子と ${}^{40}\text{Ca}^+$ 原子のポテンシャルエネルギー曲線を図 4 に示す。この図はパリ 11 大学の Maurice Raoult, Humberto Da Silva Jr., Olivier Dulieu の計算により、共同研究として関連論文 [52] にて発表した。この計算は文献 [86, 87] の手法に基づいている。

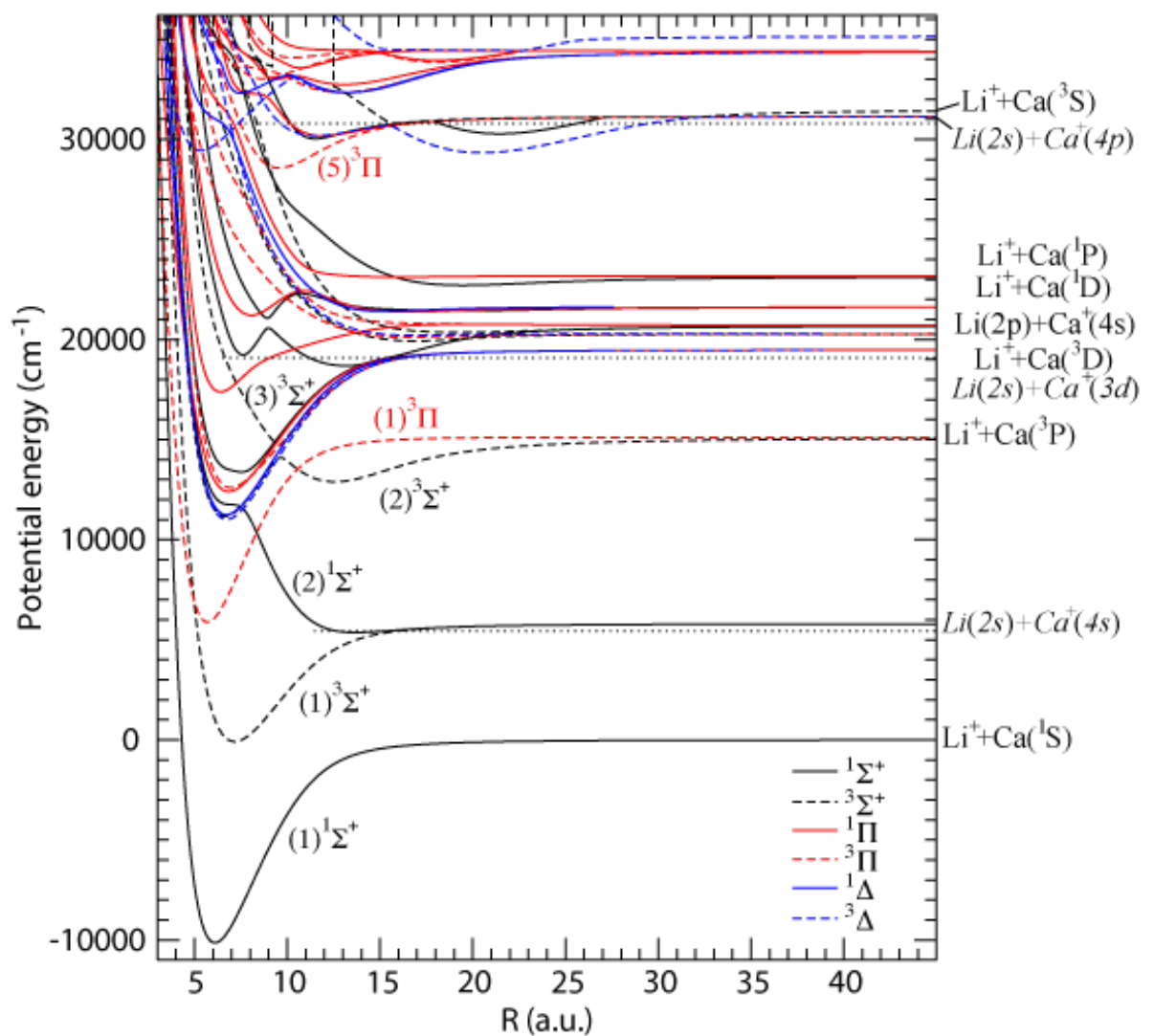


図 4 Li-Ca⁺ 系のポテンシャルエネルギー。実線はスピン一重項，破線は三重項を示し，黒，赤，青線はそれぞれ Σ ， Π ， Δ に対応する。図は関連論文 [52] より引用。

2.3 原子-イオンの散乱過程

2.3.1 散乱過程の概要

原子とイオンは互いに散乱したとき散乱の前後で状態が変化する, この散乱前後の状態の変化によって散乱過程を分類することができる. 以下では本研究で取り扱った ${}^6\text{Li}$ 原子と ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオンの系について想定される散乱過程について記述する.

散乱に伴う状態の変化には外部状態の変化と内部状態の変化が考えられる. このうち内部状態は変化せずに外部状態の変化のみが起きる散乱過程のことを弾性散乱と呼ぶ. また, 弾性散乱では相対運動の運動エネルギーは変化せず, 個々の粒子の外部状態は変化する. 一方で外部状態だけでなく, 内部状態の変化も伴う過程を非弾性散乱と呼ぶ. 内部状態のエネルギーと相対運動のエネルギー間に変換が起こる [46]. さらに非弾性散乱は変化する内部状態によって分類される.

一方で散乱過程には散乱に関わる粒子数によっても分類することができ, 一つの中性原子と一つのイオンが散乱する場合は, 二体の散乱過程と呼ばれる. さらに三粒子が散乱する場合は三体の散乱過程と呼ばれるが, 本実験に用いた原子-イオン混合系の場合, 捕獲されたイオンはクーロン相互作用による強力な斥力によってイオン同士は近づけないため, 二つのイオンと一つの原子が関わる散乱過程は除外される. つまり, 二つの原子と一つのイオンが関係する三体の散乱のみを考えれば良い.

まず, 二体の散乱過程について述べる. 表 4 に ${}^6\text{Li}-{}^{40}\text{Ca}^+$ 系における二体の散乱過程を列挙した. 表中 h はプランク定数, ν は電磁波の振動数を示す.

表 4 中の下 7 つの過程は非弾性散乱である.

電荷交換散乱は Li 原子に束縛された電子が Ca^+ イオンに飛び移り, 束縛され Ca 原子に変化する. 散乱前後のエネルギー, つまり $\text{Li} + \text{Ca}^+$ と $\text{Li}^+ + \text{Ca}$ のエネルギーは異なるため, 内部状態分の余剰エネルギーを吐き出す先が必要になる. 両者の質量比で分配した運動エネルギーに変換される過程が無放射性的電荷交換散乱であり, 余剰エネルギーを電磁波として吐き出すのが放射性的電荷交換散乱である. 放射性的電荷交換散乱の場合異なる電子状態間の遷移が起こり, その際に状態間のエネルギーに相当する電磁波を放出する. 一方の無放射性的電荷交換散乱の場合, 状態間に擬交差 (avoided crossing) が存在すると状態間の遷移が起こりやすくなる [46, 52]. この間の状態間のエネルギー差は相対運動エネルギーに変換される.

表 4 Li 原子-Ca⁺イオン 系の二体散乱過程

$\text{Li} + \text{Ca}^+ \rightarrow \text{Li} + \text{Ca}^+$	弾性散乱
$\text{Li} + \text{Ca}^+ \rightarrow \text{Li}^+ + \text{Ca}$	無放射性電荷交換散乱
$\text{Li} + \text{Ca}^+ \rightarrow \text{Li}^+ + \text{Ca} + h\nu$	放射性電荷交換散乱
$\text{Li} + \text{Ca}^+ \rightarrow (\text{LiCa})^+ + h\nu$	放射性分子生成
$\text{Li} g\rangle + \text{Ca}^+ e\rangle \rightarrow \text{Li} g\rangle + \text{Ca}^+ g\rangle$	無放射性状態変化散乱
$\text{Li} g\rangle + \text{Ca}^+ e\rangle \rightarrow \text{Li} g\rangle + \text{Ca}^+ g\rangle + h\nu$	放射性状態変化散乱
$\text{Li} \uparrow\rangle + \text{Ca}^+ \downarrow\rangle \rightarrow \text{Li} \downarrow\rangle + \text{Ca}^+ \uparrow\rangle$	スピン交換散乱
$\text{Li} \uparrow\rangle + \text{Ca}^+ \uparrow\rangle \rightarrow \text{Li} \uparrow\rangle + \text{Ca}^+ \downarrow\rangle$	スピン緩和散乱

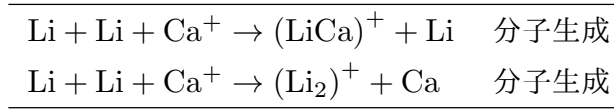
状態変化散乱 (quenching collision, state-changing collision) は電子励起状態にあった原子あるいはイオンが散乱によって基底状態に緩和する散乱過程のことである [10]。この散乱過程にも放射性和無放射性的過程が想定されるが、上記の電荷交換散乱と同様のメカニズムで起きると考えられる。

分子生成は原子とイオンが束縛状態に遷移し、分子イオンになる過程のことである。始状態からある電子状態のある振動回転準位に遷移することで起き、余剰分のエネルギーは電磁波として放出する。余剰エネルギーを運動エネルギーとして放出すると運動量保存則を満たさないため、このような無放射性分子生成過程は二体の散乱では存在しない。一方で三体以上では運動量保存則を満たすことができるため許容される。

原子はスピン自由度を持つため、スピンの変化する散乱過程も考えられる。スピンに関わる原子-イオン系の散乱は二つ報告されており、一つがスピン交換散乱であり、もう一方がスピン緩和散乱である [11, 88]。スピン交換散乱では散乱前後で原子とイオンのスピンの交換する散乱過程であり、スピン緩和散乱ではスピンの保存せず、例えば表中に示したように始状態がアップスピン同士であるが、終状態ではアップスピンとダウンスピンになる。表 4 中のスピンに関する散乱は一例である。

上では二体の散乱過程について述べたが、三体過程では無放射性的分子生成が許される。二体の過程では二粒子が分子になるため、エネルギー保存則は満たせても、運動量保存則は決して満たせない。一方で三体では散乱に関わる三粒子のうち二粒子が分子になり、残り一つ原子と分子が運動量を分配することができるので運動量

保存則も満たすことが可能である。上でも記述したが、我々の使った実験系ではイオン同士の距離が内部状態変化が起こるほど近接しない系であるため、三体過程であっても中性原子-中性原子-イオンの散乱しかとり得ず、中性原子-イオン-イオンの散乱は起こり得ない。表 5 に Li-Ca⁺ 系での三体散乱過程を列挙した。生成される

表 5 Li 原子-Ca⁺イオン 系の三体散乱過程

分子には (LiCa)⁺ と (Li₂)⁺ が考えられる。原子-イオン系の三体散乱は Rb-Ba⁺ 系にて観測された [89, 90].

2.3.2 古典散乱理論

ここでは中性原子-イオン散乱を古典的な観点から概観する。中性原子-イオン散乱の理論はランジュバンによって研究された [49]。古典的な領域での中性原子-イオン散乱はそのメカニズムから二つの領域に分けられる。一つはランジュバン散乱であり、もう一つはグランシング散乱である。また、前述のように散乱過程は弾性散乱と非弾性散乱に分けられるが、この観点についても記述する。

運動する質量 m_{atom} の原子と質量 m_{ion} のイオンの散乱を考える。この二粒子の相互作用ポテンシャルは式 (16) で表される。最初、二粒子は無遠方に離れており、近づいてきて散乱するとする。

重心座標系をとることで二粒子の問題を一粒子の問題に帰結する。すると換算質量 $\mu = \frac{m_{\text{atom}}m_{\text{ion}}}{m_{\text{atom}}+m_{\text{ion}}}$ の粒子が相対速度 v_{rel} で運動している仮想粒子が原点にあるターゲットで散乱すると考えることができる。また相対位置ベクトルは \mathbf{r} とする。

この散乱は初期相対速度の方向に平行な重心座標系の原点を通る軸について回転対称性を持つので以下では二次元系で考える。これを図に表すと図 5 のようにかける。

相対位置ベクトル \mathbf{r} は二次元極座標 (r, φ) で表すと

$$\mathbf{r} = r \cos \varphi \hat{e}_x + r \sin \varphi \hat{e}_y \quad (22)$$

である。

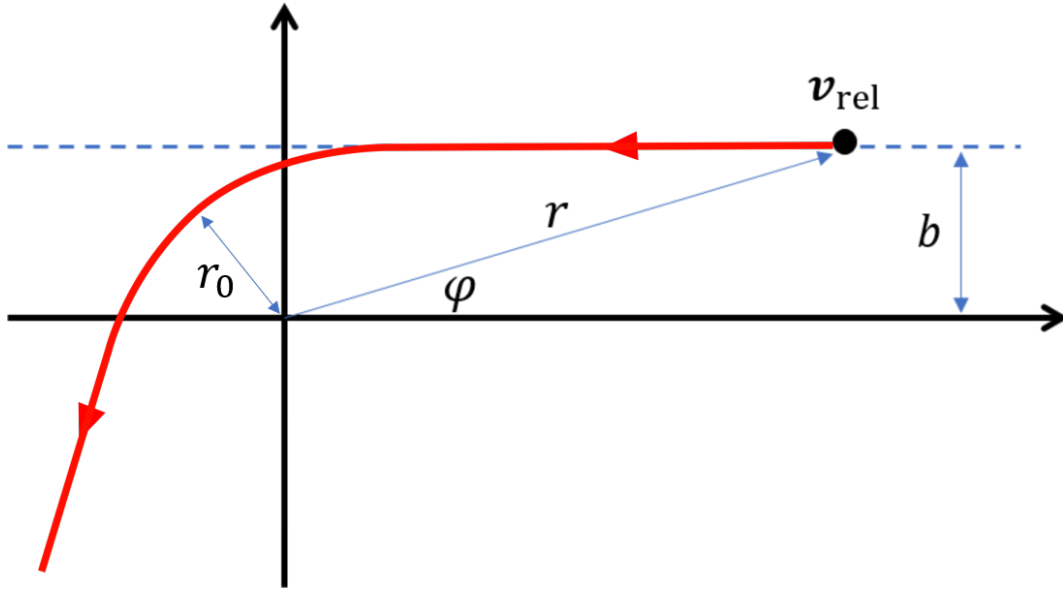


図 5 重心系における二粒子の散乱. \mathbf{v}_{rel} で入射した仮想粒子は原点にある仮想ターゲットによって軌道を曲げられる. 相互作用しないときの最近接距離が b であり, 衝突径数と呼ばれる. 実際の最近接距離は r_0 とおいた.

\hat{e}_x と \hat{e}_y は x 軸, y 軸方向の単位ベクトルである. また, 図中の b は衝突径数と呼ばれ, 式 (16) で表される相互作用が存在しない際の最近接距離である.

この系の全エネルギー E_{tot} を考える. 運動エネルギーとポテンシャルエネルギーの和でかけるので

$$E_{\text{tot}} = \frac{\mu}{2} \left\{ \left(\frac{dr}{dt} \right)^2 + r^2 \left(\frac{d\varphi}{dt} \right)^2 \right\} - \frac{C_4}{r^4} \quad (23)$$

二粒子が無限遠方に離れている初期状態 $r \rightarrow \infty$ では相互作用は無視できるので式 (7) より

$$E_{\text{tot}}|_{r \rightarrow \infty} = \frac{\mu}{2} v_{\text{rel}}^2 \quad (24)$$

となる.

ところで, この重心系の仮想粒子が原点周りに持つ角運動量ベクトル \mathbf{L} について考える. 角運動量ベクトル \mathbf{L} は

$$\mathbf{L} = \mathbf{r} \times \mu \mathbf{v}_{\text{rel}} \quad (25)$$

となる。

このベクトルの方向は図 5 の紙面の法線方向であるが、このベクトルの大きさ L は

$$L = \mu r^2 \frac{d\varphi}{dt} = \mu v_{\text{rel}} b \quad (26)$$

と書ける。

式 (26) を式 (23) の右辺第一項括弧内の第二項に代入して $\frac{dr}{dt}$ について解くと

$$\frac{dr}{dt} = \pm v_{\text{rel}} \sqrt{1 - \frac{b^2}{r^2} + \frac{2C_4}{\mu v_{\text{rel}}^2 r^4}} \quad (27)$$

となる。

仮想粒子が原点に最近接する点、図 5 中の r_0 について考える。この最近接点通過時は r は時間変化しない。つまり、

$$\left. \frac{dr}{dt} \right|_{r=r_0} = 0 \quad (28)$$

であるから、式 (27) は $r = r_0$ において

$$r_0^2 = \frac{b^2}{2} \pm \sqrt{\frac{b^4}{4} - \frac{2C_4}{\mu v_{\text{rel}}}} \quad (29)$$

となる。

r_0 が実数になるためには根号内が正になる必要があるので

$$\frac{b^4}{4} \geq \frac{2C_4}{\mu v_{\text{rel}}} \quad (30)$$

である。

すなわち実数になる境界の衝突係数 b_c は

$$b_c = \left(\frac{8C_4}{\mu v_{\text{rel}}} \right)^{1/4} = \left(\frac{4C_4}{E_{\text{tot}}} \right)^{1/4} \quad (31)$$

となる。以上の議論は学位論文 [51] を参考にした。

グランシング散乱

式 (31) について $b > b_c$ のとき起きる散乱をグランシング散乱 [51] と呼ぶ。この散乱では粒子はポテンシャルによって軌道を変化させられて運動方向が変化する。粒子は比較的単純な軌道を描くが、粒子同士はさほど近接せずに散乱するため大きな運動量の変化も起こりにくいと考えられる。同様の理由により、グランシング散乱では非弾性散乱は起こりづらいと考えられる。分子生成は当然として、電荷交換散乱やスピン交換散乱が起きるためには原子核に束縛された電子の状態に強く作用する必要があるからだ。

ランジュバン散乱

式 (31) について $b < b_c$ のとき起きる散乱をランジュバン散乱と呼ぶ。このとき、粒子はポテンシャルにキックされて軌道が単純に曲げられる散乱ではなく、粒子がポテンシャルにとらわれて、内向きのスパイラルを描きつつ近接して散乱する過程である。このランジュバン散乱断面積は P. M. Langevin により

$$\sigma_L = \pi b_c^2 = 2\pi \sqrt{\frac{C_4}{E_{\text{coll}}}} \quad (32)$$

と導出されている [49]。

ランジュバン散乱が起きたとき二粒子は非常に近接していき、相互作用ポテンシャルの古典的転換点 (turning point) まで近接した後、離れていくと考えられる。そのため、グランシング散乱よりも大きな運動量の交換が起きると考えられる。また、グランシング散乱の場合二粒子が近接しないため、非弾性散乱が起こりづらいと述べたが、ランジュバン散乱の場合、粒子がボーア半径の数倍程度の距離まで近接するので非弾性散乱が起きると考えられる。すなわち、古典的な散乱領域で、非弾性散乱が起きたときはランジュバン散乱が起きたと考えることができる。

2.3.3 量子散乱理論

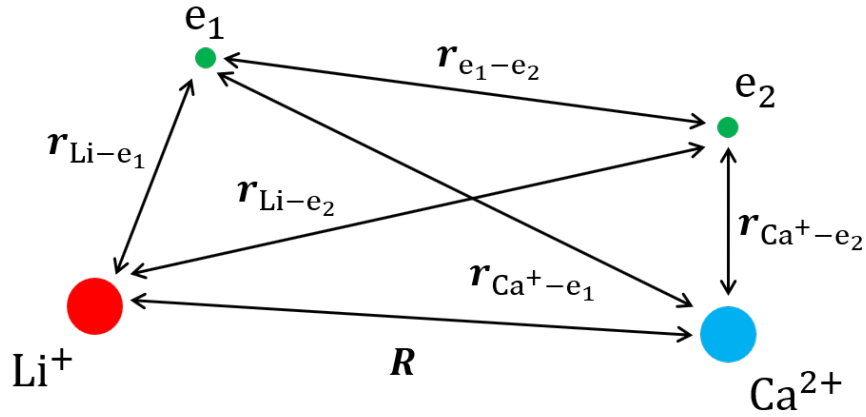
ここでは中性原子-イオン間の散乱を量子力学的に取り扱う。中性原子-イオン間には相互作用ポテンシャルエネルギーが存在し、そのポテンシャルに沿って散乱がおきる。2.2 で電荷-誘起双極子の相互作用を考えることにより、中性原子-イオン間の相互作用ポテンシャル曲線を考えたが、実際は図 4 に示したように Li 原子と Ca^+ イオンに存在する内部状態によって多数の曲線が存在する。これは実際には原子は古典的な質点ではなく、原子核や電子といった内部構造が存在するためである。また電荷-誘起双極子間の相互作用は中性原子-イオン間距離が十分遠いときに有効である一方で中性原子-イオン間距離が近接するとやはり内部構造に由来するずれが生じると考えられる。

まず中性原子-イオン系のシュレディンガー方程式について議論した後、散乱理論の概要と弾性散乱断面積について述べる。

一方で原子イオン間距離が十分遠い領域では原子の内部構造の詳細を厳密に取り扱わなくてよいため 2.2 に示した相互作用ポテンシャルが良い近似となる。これを利用し、散乱エネルギーが大きいときの弾性散乱断面積について半古典理論にて議論する。

原子-イオン系のシュレディンガー方程式

中性原子-イオン間の相互作用を厳密に取り扱うためには多体のシュレディンガー方程式を解く必要がある。Li 原子と Ca^+ イオンの散乱を考える場合、それぞれの原子を構成する原子核とすべての電子について相互作用を考える必要がある。これを簡単に扱うために、Li 原子と Ca^+ イオンの内部構造を考えてみる。Li 原子、 Ca^+ イオンともに安定な希ガス型の配置に加えて価電子が一つ存在する電子配置である。そこで、原子核と内殻電子をまとめて扱い、原子核によるポテンシャルは内殻電子による遮蔽効果で実効的にクーロンポテンシャルを形成していると考え。すなわち、 Li^+ と一つの価電子から Li 原子は構成されているとみなし、 Ca^{2+} と一つの価電子から Ca^+ イオンは構成されているとみなす。するとシュレディンガー方程式で陽に扱うのは原子核と内殻電子による実効的な中心ポテンシャルと Li 原子と Ca^+ イオンにそれぞれひとつずつ存在する価電子である。図 6 にこの系の模式図と距離の定義を示した。この系のシュレディンガー方程式は次の式 (33) のように書ける。


 図 6 Li-Ca⁺ 系の模式図.

$$\begin{aligned}
 \hat{H}\Psi = & \left(-\frac{\hbar^2}{2m_{\text{atom}}}\nabla_{\text{atom}}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_{\text{ion}}}\nabla_{\text{ion}}^2 \right. \\
 & - \frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_{e_1}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_{e_2}^2 \\
 & - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{\text{Li}-e_1}} - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{\text{Ca}^+-e_1}} \\
 & - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{\text{Li}-e_2}} - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{\text{Ca}^+-e_2}} \\
 & \left. + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{e_1-e_2}} + \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0 R} \right) \Psi = E\Psi
 \end{aligned} \tag{33}$$

上式中の m_e は電子の質量である.

ここでハミルトニアン \hat{H} の一、二項目は Li⁺ と Ca²⁺ イオンの運動エネルギー項であり、三、四項目は価電子 e_1 , e_2 の運動エネルギー項である. 五、六項は価電子 e_1 と Li⁺ あるいは Ca²⁺ 間の実効的なポテンシャルであり、七、八項は価電子 e_2 とのそれである. また九項目は価電子間の相互作用項であり、十項目は核間、すなわち Li⁺ と Ca²⁺ 間の相互作用である. ただし、ここではスピン自由度に関しては考慮しない.

ここで式 (33) にボルン-オッペンハイマー近似を適用する. これは核の質量が電子の質量に比べてはるかに重いことから、電子の運動は核の運動より十分に速く、核の運動を無視できるとする近似である. 式 (33) をこの近似のもと電子の運動と核

の運動に分離すると、電子の運動に関する方程式は

$$\hat{H}\Psi_e = \left(-\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_{e_1}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_{e_2}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\mathbf{r}_{\text{Li}-e_1}} - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0\mathbf{r}_{\text{Ca}^+-e_1}} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\mathbf{r}_{\text{Li}-e_2}} - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0\mathbf{r}_{\text{Ca}^+-e_2}} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\mathbf{r}_{e_1-e_2}} \right) \Psi_e = W\Psi_e \quad (34)$$

と書ける。

式 (34) について原子核間距離を変化させて計算すると電子の状態 Ψ_e と電子のエネルギー $W(\mathbf{r}_{\text{Li}-\text{Ca}^+})$ が得られる。このエネルギー曲線を核運動のポテンシャルとして核に関するシュレディンガー方程式を記述すると

$$\hat{H}_n\Psi_n = \left\{ -\frac{\hbar^2}{2m_{\text{atom}}}\nabla_{\text{atom}}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_{\text{ion}}}\nabla_{\text{ion}}^2 + \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0\mathbf{R}} + W(\mathbf{R}) \right\} \Psi_n = E'\Psi_n \quad (35)$$

となる。

上式 (35) のハミルトニアン中の三項目は核間の相互作用であり、四項目は電子のエネルギー曲線である。以上の二つの項が原子-イオン間散乱の実効的なポテンシャルであり、 $V(\mathbf{R}) = \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0\mathbf{R}} + W(\mathbf{R})$ とおく。

式 (35) を重心座標系で書き換えて重心運動と相対運動に分離する。ポテンシャル $V(\mathbf{R})$ は核の相対位置にのみ依存するため、重心運動は自由空間中の運動となる。すなわち、平面波が解である。

一方で相対運動のシュレディンガー方程式は

$$\hat{H}_{\text{rel}}\Psi_{\text{rel}} = \left\{ -\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla_{\text{rel}}^2 + V(\mathbf{R}) \right\} \Psi_{\text{rel}} = E_{\text{rel}}\Psi_{\text{rel}} \quad (36)$$

とかける。ここで換算質量 μ の粒子の波動関数を Ψ_R とし、エネルギーを E_{rel} とした。

式 (36) 中のポテンシャル $V(\mathbf{R})$ は球対称ポテンシャルであるため、波動関数 Ψ_R は動径方向と角度方向に変数分離することができる。さらに波動関数を軌道角運動

量量子数 l で分解する.

$$\Psi_{\text{rel}}(\mathbf{R}) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l C_l^m \Phi_l(R) Y_l^m(\theta, \phi) \quad (37)$$

ただし, C_l^m は任意係数, Y_l^m は球面調和関数であり, l, m は量子数である. また, $\Phi_l(R)$ は動径方向の関数である.

上式 (37) のように角運動量の固有関数で波動関数を展開する手法を部分波展開と呼ぶ. この手法は特に冷却原子系などの低エネルギーでの散乱を取り扱うとき非常に有効である. 本研究で扱う原子-イオン散乱も絶対零度近傍の低エネルギー散乱であるため, この手法が有効であると考えられる.

動径方向の方程式は

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{2}{R} \frac{\partial}{\partial R} \right) + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu R^2} + V(R) \right\} \Phi_l(R) = E_{\text{rel}} \Phi_l(R) \quad (38)$$

となる.

上式を簡単にするため

$$\Phi_l(R) = \frac{\chi_l(R)}{R} \quad (39)$$

と置き換えると式 (38) は

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu R^2} + V(R) \right\} \chi_l(R) = E_{\text{rel}} \chi_l(R) \quad (40)$$

になる. すなわち動径方向の方程式はボルン-オッペンハイマー近似に基づくポテンシャルエネルギー曲線 $V(R)$ と遠心力ポテンシャルの和からなるポテンシャル項を持つ. ただし l は散乱の軌道角運動量の量子数である.

なお動径方向の波動関数が満たすべき境界条件の一つとして, 原点付近で波動関数式 (39) の形が

$$\Phi_l(R) = \frac{\chi_l(R)}{R} \sim R^l \quad (41)$$

を満たす必要があり, ここから原点 $R = 0$ において $\Phi_l(R) = 0$ である

一方の角度方向の解に関して述べる. 球対称ポテンシャルであるため, 粒子の入射方向の軸まわりに回転対称性を持つ. すると角度 ϕ に関する依存性がない (ただし, 今回はスピン自由度について考慮していない). すなわち,

$$Y_l^{m=0}(\theta, \phi) = \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}} P_l(\cos \theta) \quad (42)$$

となる。 $P_l(\cos \theta)$ はルジャンドル関数である。

以上より、波動関数 $\Psi_{\text{rel}}(\mathbf{R})$ は、 C_l を任意係数として

$$\Psi_{\text{rel}}(R, \theta, \phi) = \sum_{l=0}^{\infty} C_l \frac{\chi_l(R)}{R} P_l(\cos \theta) \quad (43)$$

となる。

以上の議論は文献 [1, 91] を参考にした。

散乱断面積

上記の時間に依存しない原子-イオン系のシュレディンガー方程式より、原子-イオン間の相互作用は仮想的な一粒子が中心力ポテンシャルによって散乱される問題へと帰着できることが分かった。さらに部分波展開を用いて波動関数を展開し、動径方向のシュレディンガー方程式を得た。ここでは文献 [91, 92, 93, 94] をもとに中心力ポテンシャルによる散乱を議論し、散乱断面積を導出する。

これまでに議論した定常状態の散乱問題に適した境界条件を考える。遠方から飛んできた粒子が中心力ポテンシャルに入射し、散乱される時原子-イオン間の相互作用ポテンシャルは遠方で距離の四乗に反比例するため、 $R \rightarrow \infty$ において作用を無視できる。すなわち、無限遠方での波動関数は入射粒子による入射平面波とポテンシャルによる散乱に起因する外向き球面波によって書ける。

$$\Psi'(\mathbf{R})|_{r \rightarrow \infty} = e^{ik_{\text{coll}}z} + \frac{f(\theta)}{R} e^{ik_{\text{coll}}R} \quad (44)$$

第一項が入射粒子の平面波であり入射方向を z とした、第二項が外向き球面波である。ここで、 $f(\theta)$ は散乱波の振幅を示しており、散乱振幅と呼ぶ。ただし、上で議論したように z 軸周りの回転対称性を考慮し、角度 ϕ を無視している。

微分断面積は散乱振幅の絶対値の二乗でかけることから、弾性散乱の散乱断面積 σ_{el} はこれを全範囲で積分することで得られる。

$$\sigma_{\text{el}} = 2\pi \int_0^{2\pi} |f(\theta)|^2 \sin \theta d\theta \quad (45)$$

ここまでに漸近領域における境界条件を満たす波動関数から弾性散乱断面積の式を示した。この漸近領域における波動関数に対して前項で記した部分波展開を施す。まず、平面波はレイリーの公式より

$$e^{ik_{\text{coll}}z} = e^{ik_{\text{coll}}R \cos \theta} = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) i^l j_l(k_{\text{coll}}R) P_l(\cos \theta) \quad (46)$$

と展開される．ただし， $j_l(k_{\text{coll}}R)$ は球ベッセル関数， $P_l(\cos \theta)$ はルジャンドル関数である．

さらに球ベッセル関数の性質より漸近領域 $R \rightarrow \infty$ では

$$e^{ik_{\text{coll}}z} \Big|_{R \rightarrow \infty} = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{2l+1}{2ik_{\text{coll}}R} \{e^{ik_{\text{coll}}R} - (-1)^l e^{-ik_{\text{coll}}R}\} P_l(\cos \theta) \quad (47)$$

となる [95]．

一方で球面波に関して散乱振幅をルジャンドル関数で展開し

$$f(\theta) = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) f_l P_l(\cos \theta) \quad (48)$$

が得られる．ここで f_l は各部分波の振幅を示す．

以上より部分波展開した波動関数 Ψ' の漸近領域における形は

$$\begin{aligned} \Psi' \Big|_{R \rightarrow \infty} &= \left\{ e^{ik_{\text{coll}}z} + \frac{f(\theta)}{R} e^{ik_{\text{coll}}R} \right\} \Big|_{R \rightarrow \infty} \quad (49) \\ &= \sum_{l=0}^{\infty} \frac{2l+1}{2ik_{\text{coll}}} \left\{ (1 + 2ik_{\text{coll}}f_l) \frac{e^{ik_{\text{coll}}R}}{R} - (-1)^l \frac{e^{-ik_{\text{coll}}R}}{R} \right\} P_l(\cos \theta) \quad (50) \end{aligned}$$

と得られる．

ここでこの式 (50) 括弧内の第一項は外向き球面波，第二項は内向きの球面波であることがわかる．さらに入射平面波は式 (47) からわかるように波面が球対称な外向き球面波と内向き球面波の和からなる．一方でポテンシャルによる散乱波は外向き球面波であり，括弧内第一項の係数 $2ik_{\text{coll}}f_l$ の項である．

今回取り扱っているのは弾性散乱であるため，粒子の増減は起きない．すなわち，外向き球面波と内向き球面波の振幅の絶対値が等しくなることが，確率の保存から要請される．つまり $|1 + 2ik_{\text{coll}}f_l| = 1$ を満たす必要がある．遠方で観測される散乱による波動関数の変化は位相変化であるためこの位相シフトを δ_l として

$$1 + 2ik_{\text{coll}}f_l = e^{2i\delta_l} \quad (51)$$

と表すことができる．

部分波の散乱振幅 f_l について上式 (51) を解くと

$$f_l = \frac{e^{2i\delta_l} - 1}{2ik_{\text{coll}}} = \frac{e^{2i\delta_l} \sin \delta_l}{k_{\text{coll}}} = \frac{1}{k_{\text{coll}} \cot \delta_l - ik_{\text{coll}}} \quad (52)$$

と求められるので式 (48) から

$$f(\theta) = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \frac{e^{2i\delta_l} \sin \delta_l}{k_{\text{coll}}} P_l(\cos \theta) \quad (53)$$

と書き換えることができる。

以上から散乱振幅 $f(\theta)$ を散乱による波動関数の位相シフト δ_l に関する問題に帰着することができた。

式 (53) を利用して散乱断面積の式 (45) をルジャンドル関数の直交性を用いて整理すると

$$\sigma_{\text{el}} = \sum_{l=0}^{\infty} \sigma_l = \frac{4\pi}{k_{\text{coll}}^2} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \sin^2 \delta_l \quad (54)$$

となる。

以上より散乱断面積を各部分波の位相シフトを用いて書くことができた。

上の議論では中心力ポテンシャルによる散乱問題について入射波の位相がポテンシャルの存在によって位相 δ_l だけシフトするという問題に帰着した。またこの結論を導くために確率の保存を利用した。ところで位相シフト δ_l は式 (40) に示した動径方向のシュレディンガー方程式の解がポテンシャル $V(R) + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu R^2}$ の存在によってシフトすることに対応している。以下では位相シフトと動径方向の波動関数の関係について記述する。

さて距離 R がポテンシャル到達距離である特性距離 r^* よりも遠い領域での動径方向の解を考えてみる。ただし、 $R > r^*$ においてポテンシャルの効果は無視できるとする。つまり、自由粒子に関する波動関数であるため球ベッセル関数の線形結合で表すことができる。この動径方向の波動関数を式 (43) に代入した上で漸近領域でのふるまい $\Psi_{\text{rel}}|_{R \rightarrow \infty}$ を考える。この漸近領域の波動関数は以前、式 (50) で導いた漸近領域の波動関数と一致すると考えられる。以上より動径方向の解は球ベッセル関数を用いて以下のようにかける。

$$\Phi_l(R) = D_l \{ \cos \delta_l j_l(k_{\text{coll}} R) - \sin \delta_l n_l(k_{\text{coll}} R) \} \quad (55)$$

ここで、 D_l は規格化定数、 $j_l(k_{\text{coll}} R)$ は球ベッセル関数 (第一種球ベッセル関数)、 $n_l(k_{\text{coll}} R)$ は球ノイマン関数 (第二種球ベッセル関数) である。

s 波散乱

冷却原子系のように散乱エネルギーが非常に低くなると、軌道角運動量子数が大きい部分波の寄与は無視することができるようになる。これは遠心力ポテンシャルによる障壁を透過できなくなるためである。ポテンシャルの有効距離に相当する 2.2.2 で議論した特性距離 r^* が $1/k_{\text{coll}}$ に比して同程度から小さくなると、 $l=0$ の s 波散乱が支配的な領域となる（これは 2.2.2 に記した散乱エネルギーが E^* 以下になるという議論と同等である）。

ここでは以下の条件の下で s 波散乱のみを考えることとする。

$$\frac{1}{k_{\text{coll}}} \gg r^* \quad (56)$$

この条件下での $R > r^*$ における動径方向の波動関数 $\Phi_l(R) \sim \Phi_0(R)$ は式 (55) より

$$\Phi_0(R) = D_0 \{ \cos \delta_0 j_0(k_{\text{coll}}R) - \sin \delta_0 n_0(k_{\text{coll}}R) \} \quad (57)$$

$$= D_0 \left\{ \cos \delta_0 \frac{\sin(k_{\text{coll}}R)}{k_{\text{coll}}R} + \sin \delta_0 \frac{\cos(k_{\text{coll}}R)}{k_{\text{coll}}R} \right\} \quad (58)$$

$$= D_0 \cos \delta_0 \frac{1}{R} \left\{ \frac{\sin(k_{\text{coll}}R)}{k_{\text{coll}}} + \frac{\tan \delta_0}{k_{\text{coll}}} \cos(k_{\text{coll}}R) \right\} \quad (59)$$

と求められる。

ここで長波長極限（低エネルギーの極限） $k_{\text{coll}} \rightarrow 0$ を考えると式 (59) の波動関数は

$$\Phi_0(R) = D'_0 \left\{ R + \lim_{k_{\text{coll}} \rightarrow 0} \frac{\tan \delta_0}{k_{\text{coll}}} \right\} \quad (60)$$

となる。ただし定数部分を新たにまとめて D'_0 と置きなおした。

ところで上式 (60) 中の第二項を

$$a \equiv - \lim_{k_{\text{coll}} \rightarrow 0} \frac{\tan \delta_0}{k_{\text{coll}}} \quad (61)$$

と定義し、散乱長と呼ぶ。

すなわち長波長極限では波動関数は直線になり、振幅がゼロとなる距離が散乱長であることがわかる。つまり、外側のポテンシャルで決まる波動関数を内側のポテンシャルが存在しないものとして内側まで延長していったときに振幅がゼロになる点である。この散乱長はポテンシャルの形状あるいは入射エネルギーによって正負両方の値をとりうる。原子-イオン系については文献 [96] にて実際に計算されている。

長波長極限における散乱断面積について式 (54) と式 (52) より

$$\sigma_{\text{el}} \sim \sigma_0 = 4\pi \lim_{k_{\text{coll}} \rightarrow 0} |f_0|^2 \quad (62)$$

$$= 4\pi \lim_{k_{\text{coll}} \rightarrow 0} \left| \frac{1}{k_{\text{coll}} \cot \delta_0 - ik_{\text{coll}}} \right|^2 \quad (63)$$

$$= 4\pi a^2 \quad (64)$$

となる。なお、二行目から三行目には散乱長の定義，式 (61) を用いている。以上から低エネルギーの極限における散乱断面積を導くことができた。散乱長は長さの次元をもつため式 (64) は長さの二乗の次元を持つが，その表式は古典的な散乱断面積より四倍大きくなることを示している。

共鳴散乱

$l > 0$ のときは遠心力ポテンシャルによるポテンシャル障壁が形成されることは 2.2.2 と図 3(b) に示した。このときポテンシャルの内側とポテンシャル障壁によって $E_{\text{rel}} > 0$ に束縛状態が形成され得る。しかし，遠心力ポテンシャルによるポテンシャル障壁は有限の高さを持つため有限の時間でトンネル効果によって崩壊する。このような束縛状態のことを準束縛状態と呼ぶが，入射エネルギーが準束縛状態のエネルギーに等しくなると共鳴的に散乱断面積が増加することが知られている。こうした共鳴散乱を形状共鳴と呼ぶこともある。

こうした共鳴構造は核による中性子の散乱においてよく研究されており，ブライト-ウィグナーの公式が知られている [97].

2.3.4 半古典理論

散乱の角運動量 l が十分大きいときの弾性散乱断面積について述べる．以下の理論は文献 [48] にて述べられている．

軌道角運動量量子数 l が大きいとき，遠心力ポテンシャルによるポテンシャル障壁によって粒子間の距離が近接することができない．すなわち，ポテンシャルの内側の詳細を無視することが可能である．一方で量子数 l が小さいときは，ポテンシャルの内側による位相シフトの効果が大きいと考えられる．

上記の考えをもとに式 (54) を軌道角運動量量子数の大きさに二つの領域に分割する．

まず，角運動量量子数 l が十分大きく，ポテンシャル障壁によって生じる転回点までのポテンシャルによる位相シフトを考慮すればよいときを考える．このようなときの位相シフト δ_l は

$$\delta_l \approx -\frac{\mu}{\hbar^2} \int_{R_t}^{\infty} dR \frac{V(R)}{\sqrt{k_{\text{coll}}^2 - \frac{(l+1/2)^2}{R^2}}} \quad (65)$$

と書ける [48]．ここで R_t はポテンシャル障壁によって生じた古典的転回点である．漸近領域では式 (38) 中のポテンシャルエネルギー曲線 $V(R)$ は式 (16) に示したポテンシャルエネルギー曲線に近似できるため，式 (65) は以下のようにまとめられる．

$$\delta_l \approx \frac{\pi \mu^2 C_4 E_{\text{coll}}}{4 \hbar^4 l^3} \quad (66)$$

以上のように角運動量量子数が大きいときの位相シフトを示すことができた．

すると式 (66) が示すように位相シフトは l の三乗に反比例するので l が十分大きいと δ_l が小さくなり以下の近似が成り立つ．

$$\sin \delta_l \approx \delta_l \quad (67)$$

一方で角運動量量子数が小さくポテンシャル内部が影響する場合，位相シフトは角運動量によって大きく変動するため平均値をとって $\delta_l = \left| \frac{\pi}{4} \right|$ とすることができる（位相シフトは $-\frac{\pi}{2} \sim \frac{\pi}{2}$ の範囲である）．すると $\sin \delta_l \approx \left| \frac{1}{\sqrt{2}} \right|$ となる．

上の近似を参考に弾性散乱断面積，式 (54) を $l = l_{\text{semi}}$ においてに分割する．ただし， l_{semi} 以上では式 (66) の近似が成立する程度に軌道角運動量量子数が大きい

ものとする.

$$\sigma_{\text{el}} = \frac{4\pi}{k_{\text{coll}}} \left\{ \sum_{l=0}^{l_{\text{semi}}-1} (2l+1) \sin^2 \delta_l + \sum_{l=l_{\text{semi}}}^{\infty} (2l+1) \sin^2 \delta_l \right\} \quad (68)$$

$$\approx \frac{4\pi}{k_{\text{coll}}} \left\{ \sum_{l=0}^{l_{\text{semi}}-1} \frac{2l+1}{2} + \int_{l_{\text{semi}}}^{\infty} 2l\delta_l^2 dl \right\} \quad (69)$$

$$= \frac{4\pi}{k_{\text{coll}}} \left(\frac{l_{\text{semi}}^2}{2} + \frac{l_{\text{semi}}^2}{2} \delta_l^2 \right) \quad (70)$$

$$= \frac{2\pi}{k_{\text{coll}}} l_{\text{semi}}^2 (1 + \delta_{l_{\text{semi}}}^2) \quad (71)$$

上式の一行目と二行目の間には上で示した近似を使用した.

ここで $\delta_{l_{\text{semi}}} = \frac{\pi}{4}$ をとすると l_{semi} は式 (66) より

$$l_{\text{semi}} = \left(\frac{\mu^2 C_4}{4\hbar^4} E_{\text{coll}} \right)^{1/3} \quad (72)$$

となるので式 (71) は以下のように書き下せる.

$$\sigma_{\text{el}} = \pi \left(\frac{\mu C_4^2}{\hbar^2} \right)^{1/3} \left(1 + \frac{\pi^2}{16} \right) E_{\text{coll}}^{-1/3} \quad (73)$$

上式 (73) が半古典近似による弾性散乱断面積であり, 散乱エネルギーの三乗に反比例する.

Li 原子-Ca⁺ イオン系における弾性散乱断面積の測定結果は式 (73) によく一致することが確かめられている [40].

第3章

イオントラップの原理

本研究では中性原子とイオンの相互作用を取り扱ったが，絶対零度近傍での散乱を観測するため，外界と隔絶した状況で中性原子あるいはイオンを長時間保持する必要がある．混合系では中性原子とイオンをそれぞれ異なる実験技術で捕獲したが，ここでは特にイオンに関する捕獲技術について述べる．イオンは電荷をもつため電場や磁場を用いて捕獲することができ，これらは荷電粒子トラップと呼ばれ，ペニングトラップとパウルトラップが広く用いられている．開発者である H. G. Dehmelt と W. Paul はイオントラップ法の開発の功績で 1989 年のノーベル物理学賞を受賞している．

本章では特にイオンのトラップに用いたパウルトラップについて原理やトラップ中のイオンの運動について述べる．

3.1 パウルトラップ中のイオンの運動

イオンをはじめとした荷電粒子は電荷をもつため電場を用いて容易に制御可能である．しかしながら静電場を用いてイオンを捕獲することは不可能であり，これはアーンショウの定理と呼ばれる．これは静電場のみではポテンシャルの極大点および極小点を作り出せないことに由来する．そこで高周波電場を用いて粒子を捕獲する装置をパウルトラップもしくは RF トラップと呼ぶ．

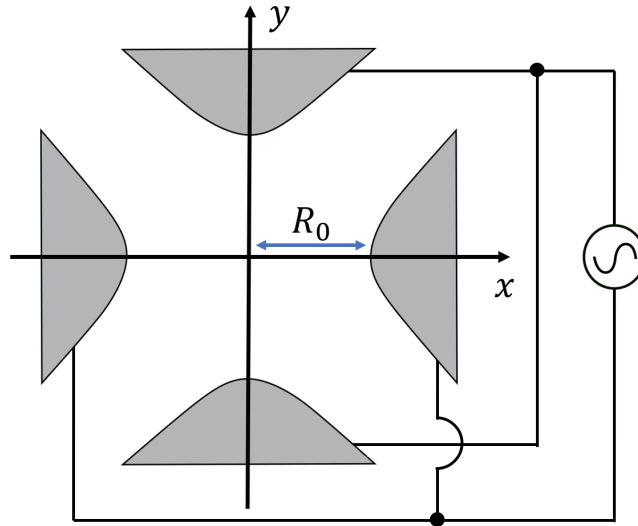


図 7 2次元のパウルトラップ．双極面をもつ4つの電極から構成される．トラップ中心に原点をおき，中心から電極の最近接点までの距離を R_0 とする．向かい合った電極に同位相の高周波電圧 $V_{\text{RF}} \cos \Omega_{\text{RF}} t + V_{\text{DC}}$ を加える．

3.1.1 イオンの運動方程式

パウルトラップ中のイオンの運動方程式について考えてみる．イオンを捕獲するためには三次元的な閉じ込めを行う必要があるが，ここでは高周波 (RF) 電場による二次元的な閉じ込めについてのみ述べる．残り一軸の閉じ込めについては実際に使用したイオントラップの形状により近い形を想定した上で 3.1.3 にて記述する．なお，以下の議論は文献 [98, 99, 100] を参考にした．

二次元的な閉じ込めを行うパウルトラップは図 7 に示したように双極面を持った四つの電極より構成される．電極のうち向かい合った二つの電極に同位相の電圧 V_{RF} ，角周波数 Ω_{RF} 高周波電場を印加する． x, y 平面上の双極面で囲まれた中心付近には

$$U_{xy} = \frac{V_{\text{RF}} \cos \Omega_{\text{RF}} t + \kappa V_{\text{DC}}}{2R_0^2} (-x^2 + y^2) \quad (74)$$

というポテンシャルが形成される．

ここで t は時間， V_{DC} はオフセット電圧， R_0 はトラップ中心から電極までの最近接距離である．また， κ は幾何因子と呼ばれる値で $\kappa < 1$ を満たす．このポテンシヤ

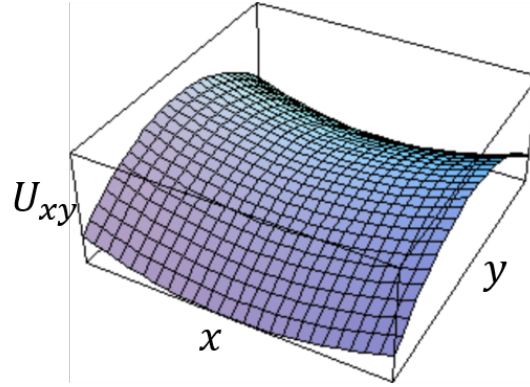


図8 パウルトラップの高周波電場によるポテンシャル. x, y 軸の山と谷の関係は時間的に振動する. 中心付近の鞍点にイオンは捕獲される. 振動電場は鞍点を中心に回転するポテンシャルとしてしばしば取り扱われる.

ルは図8のような形状であり, 時間的に山と谷が変動する. 中心付近は鞍点と呼ばれ, この付近にイオンは捕獲される.

このポテンシャル中の電荷 Q , 質量 m の荷電粒子の運動方程式は

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = -Q \frac{\partial U_{xy}}{\partial x} = Q \frac{V_{\text{RF}} \cos \Omega_{\text{RF}} t + V_{\text{DC}}}{R_0^2} x \quad (75)$$

$$m \frac{d^2 y}{dt^2} = -Q \frac{\partial U_{xy}}{\partial y} = -Q \frac{V_{\text{RF}} \cos \Omega_{\text{RF}} t + V_{\text{DC}}}{R_0^2} y \quad (76)$$

と記せる.

ここで以下の置き換えを行う.

$$a_x = -a_y = -\frac{4Q\kappa V_{\text{DC}}}{mR_0^2 \Omega_{\text{RF}}^2} \quad (77)$$

$$q_x = -q_y = -\frac{2QV_{\text{RF}}}{mR_0^2 \Omega_{\text{RF}}^2} \quad (78)$$

$$\xi = \frac{\Omega_{\text{RF}} t}{2} \quad (79)$$

この a_x, a_y, q_x, q_y のことをそれぞれ a パラメータ, q パラメータと呼ぶ. すると式 (75), 式 (76) は

$$\frac{d^2 x}{dt^2} + \{a_x - 2q_x \cos 2\xi\} x = 0 \quad (80)$$

$$\frac{d^2 y}{dt^2} + \{a_y - 2q_y \cos 2\xi\} y = 0 \quad (81)$$

と書き換えられる.

さらに X_i を導入して $i = x, y$ に対して $X_x = x$ と $X_y = y$ に対応させる. すると式 (81) は

$$\frac{d^2 X_i}{dt^2} + \{a_i - 2q_i \cos 2\xi\} X_i = 0 \quad (82)$$

とまとめられる.

このような方程式をマシュー方程式と呼ぶ. マシュー方程式は安定解と不安定解を持ち, 安定解ではイオンは $x - y$ 平面のある領域内を振動する. 一方で不安定解では x 軸あるいは y 軸あるいは両軸の方向の運動が発散する. これはイオンが捕獲できないことに対応している. つまりマシュー方程式が安定な解を持つことがイオンが捕獲されることに対応する [101].

マシュー方程式が安定解を持つか不安定解を持つかはパラメータ a_i と q_i のによって決まり, 初期状態によらない. マシュー方程式の解は $a_i - q_i$ 面上において安定解領域と不安定解領域に区別することが可能である. このような図をスタビリティダイアグラムと呼ぶ [99, 101].

また, マシュー方程式の安定解は以下のようになることが知られている.

$$X_i(\xi) = A e^{j\beta_i \xi} \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_{2n} e^{j2n\xi} + B e^{-j\beta_i \xi} \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_{2n} e^{-j2n\xi} \quad (83)$$

ここで A と B は任意定数であり, C_{2n} および β_i は a_i と q_i の関数である. また, j は虚数単位である.

安定解には $a_i - q_i$ 面上の高次の解が存在するが, イオントラップに用いられるのは最低次の解である. 次項では最低次の解について述べる.

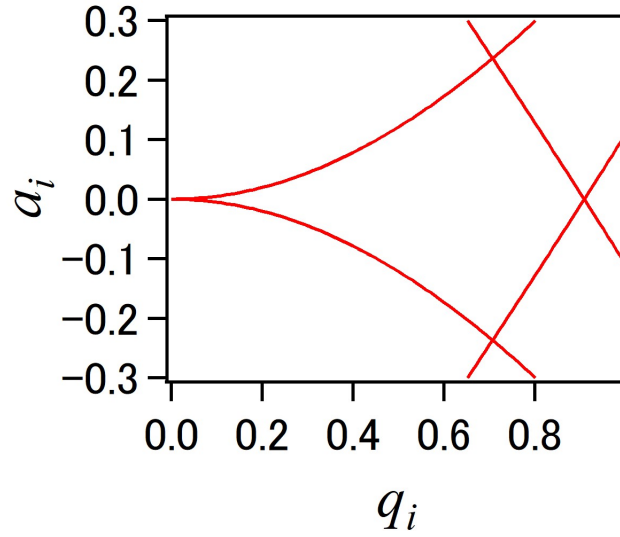


図9 二次元パウルトラップのスタビリティダイアグラム．中心にある赤線で囲まれた領域が a_i - q_i 面の最低次の安定解領域を示す．3.1.3 にて後述するリニアパウルトラップのスタビリティダイアグラムも同様の形状を持つ．

3.1.2 最低次の安定解

最低次の安定解の領域は a_i - q_i 面上で以下の関数による曲線に囲まれた部分である．

$$\begin{aligned}
 a_{i0} &= -\frac{1}{2}q_i^2 + \frac{7}{128}q_i^4 - \frac{29}{2304}q_i^6 + \frac{68687}{18874368}q_i^8 + \dots \\
 a_{i1} &= 1 - q_i - \frac{1}{8}q_i^2 + \frac{1}{64}q_i^3 - \frac{1}{1536}q_i^4 \\
 &\quad - \frac{11}{36864}q_i^5 + \frac{49}{589824}q_i^6 - \frac{55}{79626240}q_i^7 - \frac{83}{34389440}q_i^8 + \dots \\
 \bar{a}_{i0} &= -a_{i0} \\
 \bar{a}_{i1} &= -a_{i1}
 \end{aligned} \tag{84}$$

この式は文献 [102] に依った．

図9 にスタビリティダイアグラムを示した．囲まれた領域内で最低次の安定解を持つ．

また最低次の近似解を求めるために $a_i, q_i^2 \ll 1$ として式 (83) の安定解を求め

ると

$$X_i(t) \approx X_{1i} \cos(\omega_i t + \phi_i) \left\{ 1 + \frac{q_i}{2} \cos(\Omega_{\text{RF}} t) \right\} \quad (85)$$

となる.

ここで

$$\omega_i = \frac{\Omega_{\text{RF}}}{2} \sqrt{\frac{q_i^2}{2} + a_i} \quad (86)$$

である. X_{1i} , ϕ_i は初期条件によって決まる振幅と位相である.

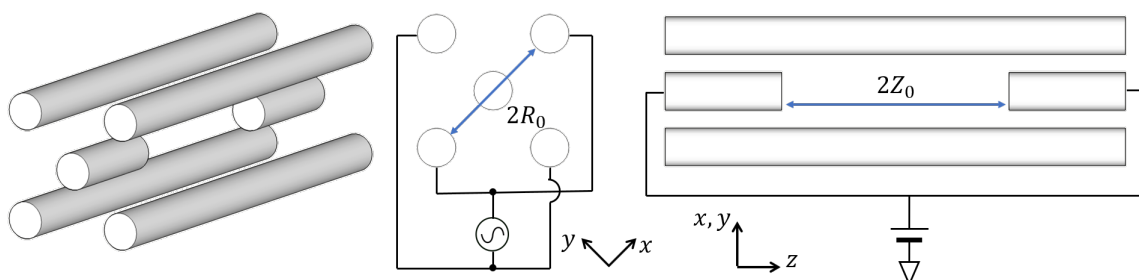


図 10 典型的なリニアパウルトラップ. 4本の RF 電極（高周波電極）と 2本のエンドキャップ電極からなる. エンドキャップ電極には静電場を加え z 軸の閉じ込めを担う.

3.1.3 リニアパウルトラップ

この項では実際に用いたイオントラップに近い形状をもとにイオントラップ中のイオンの運動を議論する. 実験に用いたパウルトラップはリニア（線形）パウルトラップと呼ばれ, 二次元的な閉じ込めを上で議論したような高周波電場で行い, 残り一軸の閉じ込めを静電場で行う.

図 10 に典型的なリニアパウルトラップを示す. 4本の長い柱状の電極と二つの短い柱状の電極からなる. 4本の電極は図 10 のように高周波電圧を加える. すなわち 3.1.1 にて議論した四つの電極に相当し, x - y 平面の閉じ込めを行う. 一方の二つの柱状電極は z 軸方向の閉じ込めを実現するためについており, 図 10 に示したように静電圧 $V_{\text{DC}z}$ を印加する.

さて, 静電場中のイオンの運動方程式を考えてみる. 静電場が作る z 軸方向につくるポテンシャルは

$$U_z = \frac{\kappa V_{\text{DC}z}}{Z_0^2} z^2 \quad (87)$$

である.

すなわち運動方程式は

$$m \frac{d^2 z}{dt^2} = -Q \frac{\partial U_z}{\partial z} = -Q \frac{2V_{\text{DC}z}}{Z_0^2} z \quad (88)$$

と書き下せる.

ここで式 (77) を参考に以下の置き換えを行うと

$$-\frac{1}{2}a_z = -\frac{4Q\kappa V_{\text{DC}}}{mZ_0^2} \quad (89)$$

運動方程式 (90) は次のように書き換えられる.

$$\frac{d^2z}{dt^2} + a_z z = 0 \quad (90)$$

この微分方程式は単振動の運動方程式であるから, ただちに

$$z(t) = z_1 \cos(\omega_z t + \phi_z) \quad (91)$$

が得られる. ただし z_1 と ϕ_z は初期条件によって定まる振幅と位相である.

ここで

$$\omega_z = \sqrt{a_z} \quad (92)$$

である.

こうして z 軸方向の運動を導くことができた.

以上より x , y , z のすべての軸に関する運動を導出することができた. これらを改めてまとめて書き下すと

$$x(t) \approx x_1 \cos(\omega_x t + \phi_x) \left\{ 1 + \frac{q_x}{2} \cos(\Omega_{\text{RF}} t) \right\} \quad (93)$$

$$y(t) \approx y_1 \cos(\omega_y t + \phi_y) \left\{ 1 + \frac{q_y}{2} \cos(\Omega_{\text{RF}} t) \right\} \quad (94)$$

$$z(t) = z_1 \cos(\omega_z t + \phi_z) \quad (95)$$

ただし,

$$\omega_x = \frac{\Omega_{\text{RF}}}{2} \sqrt{\frac{q_x^2}{2} + a_x} \quad (96)$$

$$\omega_y = \frac{\Omega_{\text{RF}}}{2} \sqrt{\frac{q_y^2}{2} + a_y} \quad (97)$$

$$\omega_z = \sqrt{a_z} \quad (98)$$

である. ただし $X_{1x} = x_1$, $X_{1y} = y_1$, ϕ_x , ϕ_y はそれぞれ x 軸, y 軸についての初期条件で決まる振幅と位相である.

3.1.4 擬調和ポテンシャル

これまでにパウルトラップ中のイオンの運動を運動方程式の解を求めることで得たが、ここではこれをもとにリニアパウルトラップ中のイオンが実効的に感じるポテンシャルについて議論する。

3.1.2 で求めたように x , y 軸方向に関するイオンの運動は式 (85) となった。この運動は ω_i によって決まる比較的ゆっくりした運動と Ω_{RF} によって決める速い振動が存在する。ゆっくりした運動のことを永年運動と呼び、高周波周波数の運動をマイクロモーションと呼ぶ。図 11 に数値計算で求めたリニアパウルトラップ中のイオンの軌跡を示す。図 11(a) について横軸は時間であり、縦軸は x 軸に対応する。ゆっくりした正弦関数状の永年運動とそれよりも速い振動のマイクロモーションが見て取れる。図 11(b) は x - z 平面上での運動である。永年運動によるリサージュ曲線にマイクロモーションによる振動が加わっている様子が見て取れる。この数値計算は分子動力学法に基づいて開発したプログラムを用いた。

マイクロモーションが十分小さいとして無視した場合、イオンの運動は x 軸, y 軸ともに正弦関数で表される。また、リニアパウルトラップの場合 z 軸の方向はマイクロモーションは原理的に存在せず、式 (95) から読み取れるように調和ポテンシャル中の単振動である。すなわちイオンが x - y - z 空間において実質的に感じるポテンシャル U_{xyz} は

$$U_{xyz} = \frac{1}{2}m(\omega_x^2 x^2 + \omega_y^2 y^2 + \omega_z^2 z^2) \quad (99)$$

と書ける。

つまり、リニアパウルトラップ中のイオンは実質的に三次元の調和ポテンシャル中に捕獲されているとみなすことができる。これを擬調和ポテンシャルと呼ぶ。イオンの運動は三次元のリサージュ曲線であり、高周波電場で閉じ込められている x - y 軸方向にはマイクロモーションが存在する。

さらに実験に近い状況でのイオンの擬調和トラップ周波数を考える。実験に用いた高周波電場はオフセット電圧 $V_{\text{DC}} = 0$ を用いたので $a_i = 0$ である。すると $\omega_x = \omega_y$ が成立し、 x 軸方向と y 軸方向のトラップ周波数が縮退する。これを代表して ω_r と書くことにすると

$$\omega_r = \frac{q\Omega_{\text{RF}}}{2\sqrt{2}} = \frac{QV_{\text{RF}}}{\sqrt{2}mR_0^2\Omega_{\text{RF}}} \quad (100)$$

となる。

ただし

$$q = |q_i| = \frac{2QV_{\text{RF}}}{mR_0^2\Omega_{\text{RF}}^2} \quad (101)$$

である。

この式 (100) を用いれば, $q^2 \ll 1$ が成立するとき q パラメータを用いてトラップ周波数を求めることができる。

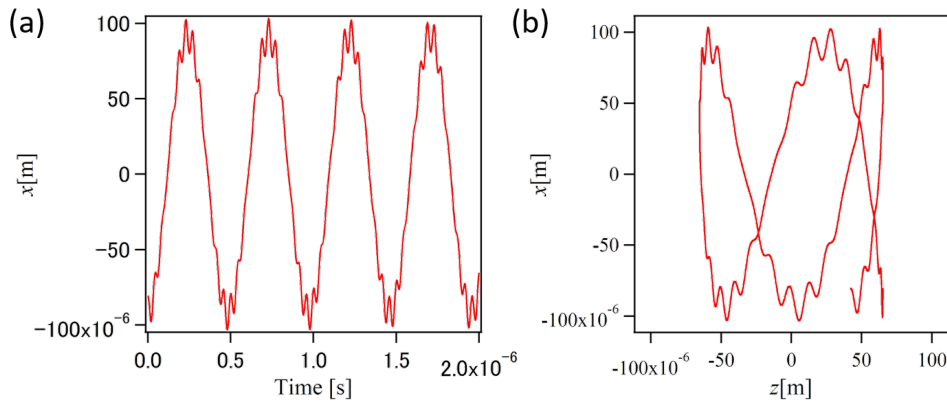


図 11 イオントラップ中のイオンのシミュレーション結果. (a) x 軸方向の振動. (b) x - z 平面のイオンの軌跡. RF の加わった x 軸にはマイクロモーションが加わっており, 静電場による閉じ込めのための z 軸には単振動のみである.

3.2 外部電場下のイオンの性質

前節では二次元的な高周波による閉じ込めとリニアパウルトラップによる高周波と静電場による閉じ込めについて議論した. イオンの運動方程式の解からパウルトラップ中のイオンの運動には永年運動とマイクロモーションが存在することを示した.

一方, 本節ではトラップに用いた高周波電場と静電場以外の外部電場が印加されている時のイオンの運動を議論する. この記述は文献 [98] を参考に記述した.

3.2.1 余剰マイクロモーション

式 (85) で求めたようにリニアパウルトラップ中のイオンの運動は x , y 軸方向について永年運動とマイクロモーションに分けられた. このうち永年運動は熱的なイ

ンコヒーレントな運動であり、レーザー冷却できる [98, 103]. 一方でマイクロモーション運動は熱的でないコヒーレントな運動である. このマイクロモーションは式 (74) のような振動電場によってイオンが直接駆動されるモードである. つまりイオンが高周波電場の鞍点で捕獲される場合, 最もマイクロモーションは小さくなると考えられる. 逆にイオンの捕獲点が鞍点とずれているときはマイクロモーションは大きくなる. このような式 (85) に表れるマイクロモーション以外のそれを余剰マイクロモーション [98] と呼ぶ.

余剰マイクロモーションの起源は上記のような鞍点からのずれに以外に電極にかけた高周波電圧の位相が向かい合った一組の電極間で異なることも挙げられる [98]. こうした位相ずれはイオントラップの配線に生じる静電容量やインダクタによって容易に引き起こされ得るが, ここでは無視する.

ところで以下での議論を簡潔に表現するために, これまでに導出したパウルトラップ中のイオンの式を整理する. 式 (95) と式 (85) を比較すると z 軸の運動は式 (85) 式中で $q_i = 0$ としたものに等しい. そこで次元を $i = x, y, z$ に拡張する. すなわち $q_z = 0$ のもとで $X_z = z$ とする. また x, y, z 軸方向の単位ベクトルとして \hat{e}_i を導入する. 以下では上のルールに従って記述する.

外部静電場 \mathcal{E}_{DC} を印加すると式 (82) は以下のように書き換えられる.

$$\frac{d^2 X_i}{dt^2} + \{a_i - 2q_i \cos 2\xi\} X_i = \frac{Q\mathcal{E}_{\text{DC}} \cdot \hat{e}_i}{m} \quad (102)$$

この方程式の $a_i - q_i$ 面の最低次の安定解は

$$X_i(t) \approx \{X_{0i} + X_{1i} \cos(\omega_i t + \phi_i)\} \left\{1 + \frac{q_i}{2} \cos(\Omega_{\text{RF}} t)\right\} \quad (103)$$

ただし

$$X_{0i} \approx \frac{4Q\mathcal{E}_{\text{DC}} \cdot \hat{e}_i}{m\omega_i^2} \quad (104)$$

である.

上式 (103) は外部電場 $\mathcal{E}_{\text{DC}} = 0$ とすれば式 (93), 式 (94) あるいは式 (95) の外部電場が存在しないときの解に帰結する. すなわち式 (104) の X_{0i} が外部電場による効果を示しており, イオンの捕獲位置が

$$\mathbf{X}_0 = X_{0x}\hat{e}_x + X_{0y}\hat{e}_y + X_{0z}\hat{e}_z \quad (105)$$

だけ, 外部電場によってずれたことを示している.

3.2.2 イオンの運動エネルギー

3.2.1 では外部電場によって生じる余剰マイクロモーションについて記述した．導出したイオンの運動，式 (103) からイオンの運動エネルギーを考える．前述のようにイオンは永年運動とマイクロモーションが存在するのでイオン速度は時間変動する．そこで，より周期が長い永年運動の周期 $T_i = \frac{2\pi}{\omega_i}$ について平均をとる． i 軸方向のイオンの運動エネルギー E_{ki} は

$$\begin{aligned} E_{ki} &= \frac{1}{2}m \left\langle \left(\frac{dX_i}{dt} \right)^2 \right\rangle \\ &= \frac{1}{2}m \int_{T_i} \left(\frac{dX_i}{dt} \right)^2 dt \end{aligned} \quad (106)$$

を計算することで

$$E_{ki} \approx \frac{1}{4}mX_{1i}^2 \left(\omega_i^2 + \frac{1}{8}q_i^2\Omega_{\text{RF}}^2 \right) + \frac{4}{m} \left\{ \frac{q_i Q \mathcal{E}_{\text{DC}} \cdot \hat{e}_i}{(2a_i + q_i^2)\Omega_{\text{RF}}} \right\}^2 \quad (107)$$

と得られる．

式 (107) の最初の項は永年運動エネルギーを表しており，二項目は外部電場が存在しないときのマイクロモーションエネルギーである．そして三項目が余剰マイクロモーションエネルギーに対応する．

イオンの運動エネルギーの式 (107) を実際に用いたイオントラップの条件で考えると， z 軸については静電場による閉じ込めを行ったので $q_z = 0$ より二，三項目は消去される．さらに 3.1.4 でも述べた通り，本研究で用いたイオントラップでは高周波電圧のオフセット電圧 $V_{\text{DC}} = 0$ より $a_x = a_y = 0$ である．また，外部電場 \mathcal{E}_{DC} を x 軸方向のみに印加して x 軸のみ余剰マイクロモーションが存在する状況をつくとイオンの運動エネルギーはそれぞれの軸について

$$E_{kx} = \frac{1}{2}m\omega_x^2 X_{1x}^2 + \frac{4}{m} \left(\frac{Q\mathcal{E}_{\text{DC}}}{q_x\Omega_{\text{RF}}} \right)^2 \quad (108)$$

$$E_{ky} = \frac{1}{2}m\omega_y^2 X_{1y}^2 \quad (109)$$

$$E_{kz} = \frac{1}{4}m\omega_z^2 X_{1z}^2 \quad (110)$$

となる.

z 軸は永年運動のみのエネルギーである. x, y 軸の第一項は永年運動エネルギーと外部電場が存在しないときのマイクロモーションエネルギーの和である. この条件下ではこの二つのエネルギーは近似的に等しくなる. また x 軸の第二項は余剰マイクロモーションによるエネルギーである.

3.2.3 イオンのスペクトル

原子やイオンが持つ準位間エネルギーに相当する光を入射すると光の電場成分と原子の準位が結合して遷移が起きる. ここではパウルトラップ中のイオンにレーザー光を入射したときの吸収あるいは放出スペクトルについて述べる. 以下の議論は文献 [98, 104, 105] を参考にした.

基底準位 1 と励起準位 2 を持つ原子に対して振動電場 $\mathbf{E}(t)$ を入射したとき電気双極子遷移の吸収 (放出) スペクトルはローレンツ関数になることが知られている [45, 106]. すなわちイオンの余剰マイクロモーションが存在せず, イオンの運動が十分小さいときはイオンの発する蛍光スペクトルはローレンツ型になると考えられる.

一方で原子が熱運動している場合はドップラー広がりによってスペクトルはガウス型になることが知られている [106]. しかしながら, パウルトラップ中のイオンの場合単純な熱運動ではなく, マイクロモーションのため問題は複雑になる.

余剰マイクロモーションが大きく, 永年運動はよく冷却されている状況を考える. こうしたイオンにレーザーによる振動電場を加えた場合, マイクロモーションはコヒーレントな振動のため, イオンが感じる振動電場はレーザーによる角周波数 ω_{laser} の電場だけでなく, マイクロモーションによってイオンが運動する周波数でも変化する. これは振動電場が変調されたようにとらえることが可能である. この観点からすると振幅 \mathbf{E}_0 , 位相 φ_{laser} , 波数ベクトル $\mathbf{k}_{\text{laser}}$ のレーザー電場は

$$\mathbf{E}(t) = \text{Re} \{ \mathbf{E}_0 \exp(j\mathbf{k} \cdot \mathbf{X}_i - j\omega_{\text{laser}}t + \varphi_{\text{laser}}) \} \quad (111)$$

とかける. ただし j は虚数単位.

ここで簡単に扱うために余剰マイクロモーションに比して永年運動は冷却され

十分小さいとする．すると $|X_{0i}| \gg |X_{1i}|$ が成立するので $\mathbf{k} \cdot \mathbf{X}_i$ について

$$\begin{aligned}
 \mathbf{k} \cdot \mathbf{X}_i &= (k_x, k_y, k_z) \cdot (X_x, X_y, X_z) \\
 &\approx (k_x, k_y, k_z) \\
 &\quad \cdot \left(X_{0x} + \frac{1}{2} X_{0x} q_x \cos \Omega_{\text{RF}} t, \right. \\
 &\quad \quad X_{0y} + \frac{1}{2} X_{0y} q_y \cos \Omega_{\text{RF}} t, \\
 &\quad \quad \left. X_{0z} + \frac{1}{2} X_{0z} q_z \cos \Omega_{\text{RF}} t \right) \\
 &= \mathbf{k} \cdot \mathbf{X}_{0i} + \frac{1}{2} \left(\sum_{i=x,y} k_i X_{0i} q_i \right) \cos(\Omega_{\text{RF}} t)
 \end{aligned} \tag{112}$$

と計算できる．三つ目の式で和の中に $i = z$ が抜けているのは $q_z = 0$ だからである．

ここで

$$\beta = \left| \frac{1}{2} \sum_{i=x,y} k_i X_{0i} q_i \right| \tag{113}$$

とおく．この β を変調指数 (modulation index) と呼ぶ．

以上より式 (111) 内の $\exp(j\mathbf{k} \cdot \mathbf{X}_i) = \exp(j\mathbf{k} \cdot \mathbf{X}_{0i}) \exp\{j\beta \cos(\Omega_{\text{RF}} t)\}$ とまとめられた．

さらにベッセル関数の母関数による定義を用いて

$$\exp\{j\beta \cos(\Omega_{\text{RF}} t)\} = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) \exp\left\{jn \left(\Omega_{\text{RF}} t + \frac{\pi}{2}\right)\right\} \tag{114}$$

と変換できる [95]．

以上より式 (111) は

$$\mathbf{E}(t) = \text{Re} \left[\mathbf{E}_0 \exp(j\mathbf{k} \cdot \mathbf{X}_i) \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) \exp\left\{-j\omega_{\text{laser}} t + \varphi_{\text{laser}} + jn \left(\Omega_{\text{RF}} t + \frac{\pi}{2}\right)\right\} \right] \tag{115}$$

と書き直される．

この振動電場とイオンの二準位間の相互作用の光学ブロッホ方程式を解くと励起準位 2 の存在確率を示す密度行列要素 ρ_{22} は

$$\rho_{22}(\omega_{\text{laser}}) = \frac{\chi^2}{4} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{J_n^2(\beta)}{(\omega_{\text{atom}} - \omega_{\text{laser}} + n\Omega_{\text{RF}})^2 + \left(\frac{1}{2}\gamma_e\right)^2} \quad (116)$$

となる [105].

ここで ω_{atom} はイオンの二準位間の共鳴周波数である. さらに $\chi = \frac{\mu_{12}E_0}{\hbar}$ であり, μ_{12} は準位 1, 2 間の遷移双極子モーメントである. また, γ_e は励起準位 2 の自然幅である.

以上のようにパウルトラップ中のイオンのスペクトルが導出できたが, ドップラー広がりとは大きく異なることが見て取れる. 熱運動する原子の場合, 様々な速度をもつ原子が連続的に分布しているためにローレンツ型の関数が共鳴周波数を中心に分布するために全体としてガウス型のスペクトルが観測される. 一方でマイクロモーションは熱分布は取らず決まった速度域の運動であるため共鳴周波数のまわりに高周波の周波数ごとにサイドバンドが立つ.

ベッセル関数中の変調指数 β は余剰マイクロモーションの大きさを示す. $\beta = 0$ のときはベッセル関数は $n = 0$ 以外で有限な値を持たず, また $n = 0$ のとき $J_0(0) = 1$ であるから式 (116) はローレンツ型のスペクトルに帰着する.

式 (116) をもとに描画したスペクトルを図 12 に示す. スペクトルは高周波電場の周波数 Ω_{RF} と自然幅 γ_e の関係によって様子が異なり図 12(a) には $\Omega_{\text{RF}} \ll \gamma_e$ のときのスペクトルを示し, 図 12(b) には $\Omega_{\text{RF}} \gg \gamma_e$ のときを示した. 自然幅が高周波の周波数よりも十分大きいときはマイクロモーションサイドバンドが自然幅の中に埋もれてしまうため, 一つのスペクトルにみえる. 一方で自然幅のほう細かい場合はマイクロモーションサイドバンドの一つ一つが分離して見えるため図 12(b) のようになる. また, 変調指数 β が大きくなるほど共鳴周波数での励起準位の存在確率が低くなり, それ以外での確率が増え, スペクトルが広がる.

最後に式 (113) について考える.

先ほどと同様に $|X_{0i}| \gg |X_{1i}|$ の元ではイオンの位置である式 (103) は以下のように近似できる.

$$X_i(t) \approx X_{0i} \left\{ 1 + \frac{q_i}{2} \cos(\Omega_{\text{RF}}t) \right\} \quad (117)$$

この近似のもとで上式 (117) を微分することで余剰マイクロモーションの速度 v_i を

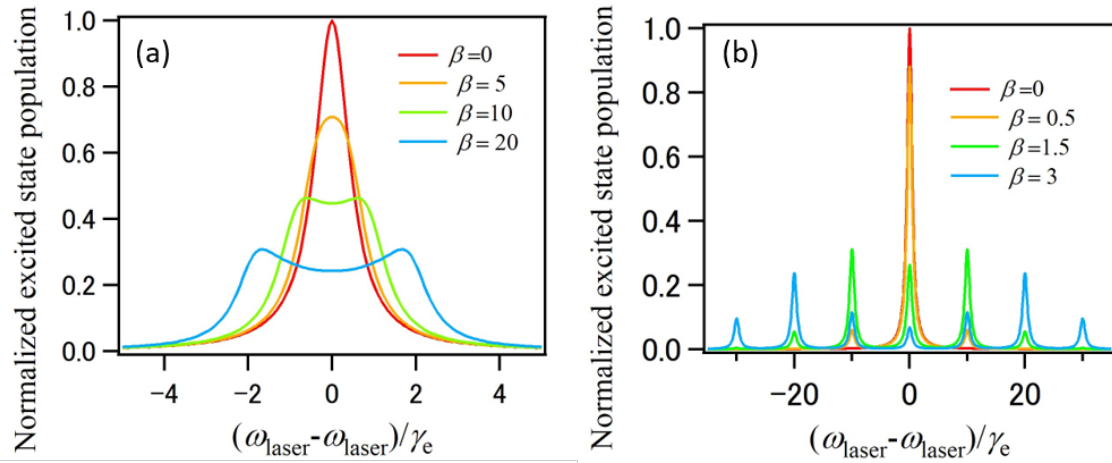


図 12 余剰マイクロモーションが存在するときのスペクトル．横軸は周波数であり，周波数を励起準位の自然幅で規格化した．縦軸は励起準位の存在確率であるが， $\beta = 0$ のときのピーク値で規格化した．異なる変調指数 β を用いて式 (116) を $n = -100$ から 100 までの値で足し上げ，描画した．(a) $\Omega_{\text{RF}}/\gamma_e = 0.1$ のときのスペクトル．自然幅の方が大きいと，サイドバンドがスペクトルに埋もれる． β が大きくなってもドップラー広がりではなく特徴的なピークを共鳴周波数と異なる点で持つ．(b) $\Omega_{\text{RF}}/\gamma_e = 10$ のときのスペクトル．自然幅が細いのでサイドバンドスペクトルを一つ一つ分離できる．変調指数 β が大きくなるにつれて，サイドバンドのピークが増加し，逆にキャリアスペクトルが減少する．さらに β が大きくなると 2 次以降のサイドバンドが増加する．

求めると

$$v_i(t) = \frac{dX_i}{dt} \approx v_{0i} \sin(\Omega_{\text{RF}}t) \quad (118)$$

となる．

ここで振幅 v_{0i} は

$$v_{0i} = -\frac{q_i X_{0i} \Omega_{\text{RF}}}{2} \quad (119)$$

である．

さて式 (113) に戻り，この式を再び内積の形で書くと

$$\beta = \left| \frac{1}{2} \sum_{i=x,y} (k_x, k_y) \cdot (q_x X_{0x}, q_y X_{0y}) \right| \quad (120)$$

となる．

式 (120) に式 (119) を $q_i X_{0i}$ について解いた上で代入すると

$$\beta = \left| \frac{\mathbf{k} \cdot \mathbf{v}_{0i}}{\Omega_{\text{RF}}} \right| \quad (121)$$

が得られる。

こうして変調指数 β がレーザー波数ベクトルと余剰マイクロモーションの速度の振幅の成分からなるベクトルの内積で表せることが示せた [104].

第4章

実験装置と手法

本章では実験に用いた装置について述べる。最初に導入として実験装置と実験の典型的なフローの概要を説明する。その後原子およびイオンの捕獲を行った真空装置、イオントラップ、各種レーザー及び光学系と周波数安定化装置、磁場を印加したコイル等の装置全般についての詳細を記す。また、それらの装置を使って得た基本的な実験結果や実験手法についても併せて記述する。

4.1 実験装置概要

本研究では絶対零度近傍まで冷却したリチウム原子とカルシウムイオンを混合し、両者の相互作用を研究した。リチウム原子気体およびカルシウムイオンは原子の吸収線に調整したレーザーを用いて絶対零度近傍まで冷却し、両者を同一空間上で捕獲、保持することで相互作用させ、相互作用前後の状態から散乱を検出した。原子の各吸収線に対して調整したレーザーシステムを波長ごとに準備し、また、原子およびイオンの実験は効率的に長時間捕獲、相互作用させるため超高真空中で行った。以上のように原子とイオンの混合実験はいくつかの技術的要素を複合的に組み合わせる必要がある、それに合わせて実験装置もいくつかの要素から構成されている。さらに本研究は原子とイオンの二つを対象としており、また原子とイオンの捕獲冷却技術は異なるため実験系はリチウム原子を捕獲、冷却する装置とカルシウムイオンを捕獲、冷却する装置に大別される。このような観点から以下に実験で使用した主要な装置と手法を項目ごとに簡潔に説明する。

原子オープン

リチウム冷却原子気体を生成するためにリチウム金属固体を熱して、リチウムの熱原子線を作り出し、それを冷却する手法をとった。質量数 6 のリチウム原子を濃縮した金属固体を真空チャンバー内に入れて、ヒーターを用いて約 500 °C に加熱した。生じたリチウム原子の蒸気を細管に通すことで熱原子線とし、出口には外部から制御可能なシャッターを取り付けて原子線の出射を制御した。

原子冷却光源

オープンから出射した熱原子線を冷却するためドップラー冷却を行ったが、使用したレーザーは発振波長 671 nm の色素レーザーを使用した。冷却遷移には D_2 線の $F = 3/2 \leftrightarrow F = 5/2$ の遷移を用いており、用途に応じてそれぞれの波長を音響光学素子 (AOM: Acoust-Optics Modulator) を用いて準備した。また、実験に必要なレーザーパワーを得るためにテーパアンプを用いて適宜増幅を行なった。

ゼーマン減速器

オープンから出た熱原子線はゼーマン減速器に入射する。この装置は原子線を一次元方向についてドップラー冷却を行う装置である。原子に対して常に効率の良い冷却ができるよう外部磁場によって共鳴シフトさせるゼーマン同調法を用いている。実際に用いたゼーマン減速器は 40 cm の細管に 10 個の 300 回巻きのコイルを作り電流を流すことで磁場を発生させた。

磁気光学トラップ

原子を捕獲・冷却する手法として磁気光学トラップ (MOT: Magnet Optical Trap) を用いた。以下では MOT と記す。四重極磁場と三軸六方向から入射させた冷却レーザーから構成される。磁場はチャンバーに配したコイル対を用いて発生させた。MOT は多数の原子を冷却・捕獲するために行なったが、ゼーマン減速器を通過した原子を効率よく捕獲するプロセスと捕獲された原子をより低温かつ高密度にするプロセスを段階的に踏んだ。二つ目のプロセスを CMOT (Compress MOT) と呼んでおり、磁場勾配とレーザー周波数を制御することで実現した。

光トラップ

MOT を経た原子は光トラップ (ODT: Optical Dipole Trap) に移行した。光トラップに原子を移す目的は主に二つあり、一つは原子集団に蒸発冷却を行うことでドップラー冷却限界以下の温度に冷却することを目的とした。もう一つは原子集団をイオントラップ中のイオンまで輸送して、原子気体とイオンを空間的にオーバーラップさせるためである。光トラップを用いた場合、原子の輸送は光トラップの焦点位置をずらすことで実現でき、簡便である。また我々は、より多くの原子集団を効率的にイオンと混合するために二段階の光トラップを用いた。一段階目は光共振器トラップ [107] であり、光共振器を使って共振器内の光強度を増幅し、深いトラップポテンシャルを実現してより多くの原子を捕まえることを目的としている。このレーザーには発振波長 1064 nm の DPSS レーザーを用いた。二段階目はシングルビームトラップであり、蒸発冷却および原子の輸送を行うために、1064 nm, 10 W のファイバーレーザーを原子に対して照射した。また原子集団の輸送は焦点位置を移動させるためにエアベアリングステージ上にレンズを設置して、レンズの位置を移動することで実現した。

イオントラップ

本研究では $^{40}\text{Ca}^+$ イオンを 3.1.3 にて述べたリニアパウルトラップと呼ばれるタイプのイオントラップを使用した。イオンチャンバー中央にこのイオントラップを据え付け、各電極に RF および静電圧を印加した。高周波については RF 増幅回路、あるいはヘリカル共振器を用いて発生させた。

イオントラップのそばに Ca 原子の小型原子源を取り付け、この原子源に電流を流すことで加熱し、Ca 原子気体を発生させた。この Ca 原子にレーザーを照射し、光イオン化した。光イオン化された Ca^+ イオンを捕獲し、ドップラー冷却を行った。

光イオン化光源

原子源から発生した Ca 原子をイオン化するためにレーザー光を用いた光イオン化を採用した。光イオン化はイオントラップに悪影響を及ぼしにくく、小数個のイオンの捕獲に向けた手法である。Ca 原子の最外殻電子の一つを二つのレーザーで連続状態まで励起することでイオン化した。具体的には 423 nm レーザーで Ca 原子の $4^1S_0 \leftrightarrow 4^1P_1$ 遷移を励起し、375 nm レーザー

で 4^1P_1 から連続状態まで励起することで光イオン化を行った。

イオン冷却光源

捕獲された $^{40}\text{Ca}^+$ イオンに対してドップラー冷却を行うことでドップラー冷却限界近傍までイオンの冷却を行った。 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンのドップラー冷却遷移として $4^2S_{1/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移を採用し、397 nm のレーザー光を照射した。397 nm 光は外部共振器型半導体レーザーから得た 794 nm 光を非線形光学結晶に照射することで得た。 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの $4^2P_{1/2}$ 準位は十分の一程度の割合で $3^2D_{3/2}$ 準位に緩和してしまう、効率的な冷却を行うために $3^2D_{3/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移に相当する 866 nm レーザー光を同時に照射した。このレーザー光は外部共振器型半導体レーザーによって得た。

光ポンピング・サイドバンド冷却光源

低温や極低温における非弾性散乱 (1.1 あるいは 1.2.4 を参照) を観測する場合、ドップラー冷却限界以下の冷却が必要である。そこでドップラー冷却限界以下のイオンの冷却手法としてよく知られたサイドバンド冷却を行った上で原子と混合する実験を進めた。

サイドバンド冷却には四重極遷移の $4^2S_{1/2} \leftrightarrow 3^2D_{5/2}$ を励起する 729 nm 光と冷却サイクルに戻すために $3^2D_{5/2} \leftrightarrow 4^2P_{3/2}$ 遷移を励起する 854 nm 光を用いた。

なお、729 nm 光は任意の $3^2D_{5/2}$ の磁気副準位への光ポンピングにも使用した。また磁気副準位を指定しない $3^2D_{5/2}$ への光ポンピングには 850 nm レーザー光を使用した。これらはすべて外部共振器型半導体レーザーを使用した。

以上のレーザーは本論文では主に光ポンピングに用いたため、以下では光ポンピングの立場から説明する。

4.2 実験手法概要

前節 4.1 では実験に用いた主要な装置や技術要素の概要を示した。本節ではこれらを踏まえ、原子-イオン混合系での典型的な実験の流れを示す。ここでは流れを重視して簡潔な説明を行い、具体的なセッティングやパラメータは本節より後に記述

する。

${}^6\text{Li}$ 原子- ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオン混合系の実験装置の全体像を図 13 に示した。この図をもとに以下に典型的な実験フローを箇条書きで示す。なお、この手順は実験のおおまかな流れを追ったものであり、厳密なタイミングを記したものではない。

1. イオントラップの各電極に適切な RF, 静電圧を加え, トラップポテンシャルを発生させる。Ca 原子源に電流を流して加熱し, Ca 原子気体を発生させる。光イオン化用の 423 nm, 375 nm レーザーおよびドップラー冷却光 397 nm, 866 nm レーザーを照射する。任意個数のイオンを捕獲した後, 原子源への電流を止め, 光イオン化レーザーを遮断する。
2. 原子シャッターを開き, 原子オープンから Li の熱原子線を出射させる。ゼーマン減速器の各コイルに適切な電流を流し, 磁場を発生させる。同時にゼーマン減速用のレーザーを入射し, 原子線を減速する。また磁気光学トラップ用のレーザーを入射し, コイル対に電流を流し四重極磁場を発生させて, MOT を用いて原子を冷却, 捕獲する。
3. 原子気体の温度を下げ, 密度を増加させるために MOT の磁場勾配, レーザー周波数を変化させて CMOT を行う。
4. MOT の周りに配した光共振器ミラーに発振波長 1064 nm の DPSS レーザーの出力を照射する。入射レーザーの波長に対して共振器が共鳴するようにフィードバック制御し, 光共振器内で光を増幅し, CMOT から光共振器トラップへ原子気体の移行を行う。
5. MOT に使用したコイル対に同方向に電流を流し, 300 G の均一磁場を発生させ, 光共振器トラップ内に捕獲された ${}^6\text{Li}$ 原子の基底状態の $|F = 1/2, m_F = 1/2\rangle$ と $|F = 1/2, m_F = -1/2\rangle$ 間の散乱断面積を増加させる。共振器トラップ中の原子に対してシングルビームトラップ用の発振波長 1064 nm のファイバーレーザーを照射する。共振を保ったまま入射するレーザー強度を減少させ, ポテンシャルを徐々に浅くする。こうした操作は一種の蒸発冷却を行って, より多数の低温原子集団をシングルビームトラップに捕獲するためである。以上のように光共振器トラップからシングルビームトラップに移行する。

6. シングルビームトラップの光学系中に配置したエアベアリングステージ上のレンズを移動させ，シングルビームトラップの焦点位置をイオントラップの中心まで動かす．焦点付近に捕獲された原子気体とイオントラップ中のイオンを空間的にオーバーラップする（図 13(b) を参照）．
7. 原子とイオンを相互作用させた後，リチウム原子気体あるいはイオントラップ中のイオンの状態を観測する．

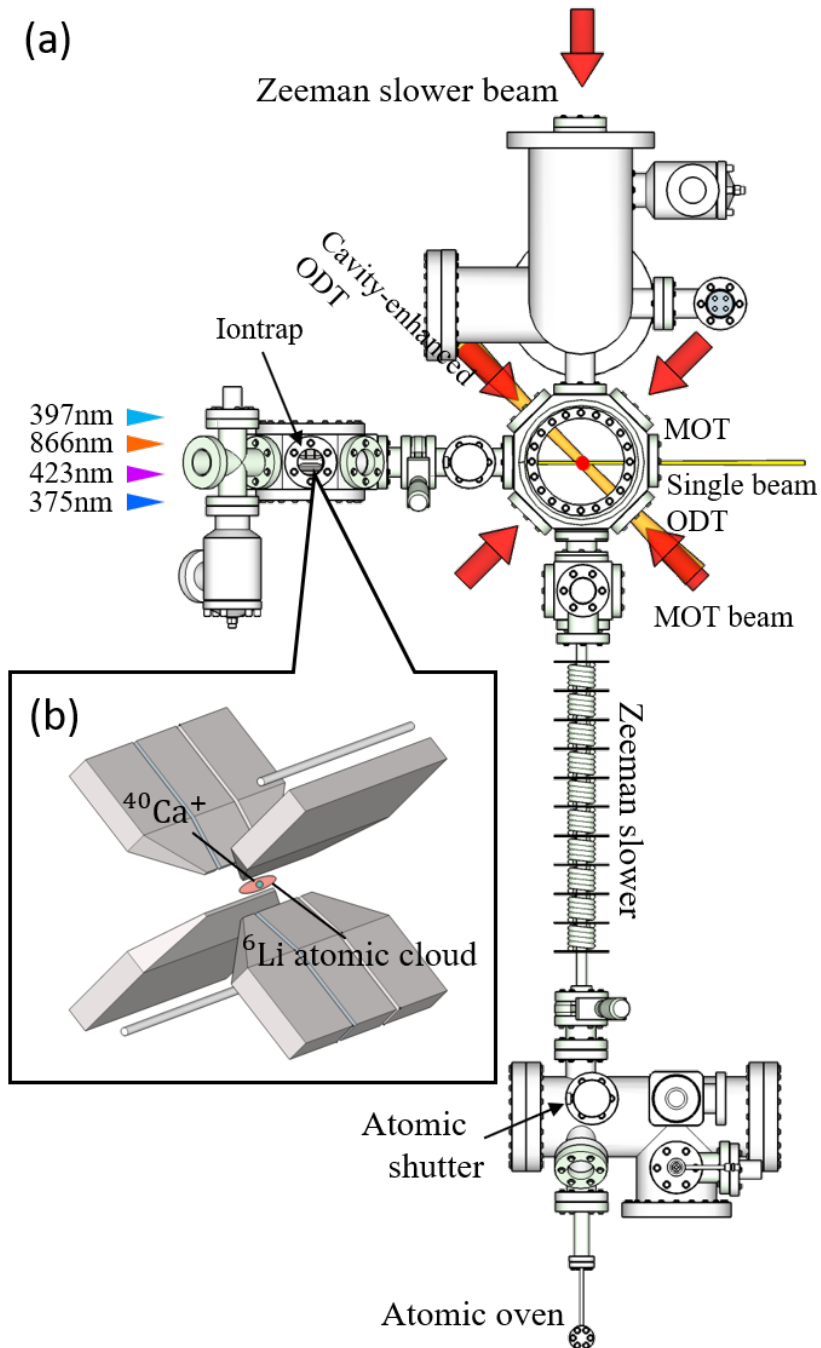


図 13 ${}^6\text{Li}$ 原子- ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオン混合系の実験装置. (a) 実験装置の全体像. イオントラップに対して光イオン化レーザーおよびドップラー冷却レーザーを照射し, Ca^+ イオンの生成と冷却を行った. 原子オーブンから出射した熱原子線はゼーマン減速器を通過し, MOT で捕獲, 冷却される. MOT から光トラップに移行し, 原子気体をイオンまで輸送し, 混合する. (b) 混合された ${}^6\text{Li}$ 原子気体と ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオンの模式図. 葉巻状の原子集団と単一から少数個のイオンが互いに散乱する.

4.3 真空装置

冷却リチウム原子気体は固体のリチウム原子を原子源としてオーブンで加熱し気化したものをレーザー技術によって冷却して生成した。最終的に光トラップ中に捕獲した原子気体とイオントラップ中のカルシウムイオンを同一空間上で保持し相互作用させる。実現した光トラップ中の原子密度から原子-イオン間の非弾性散乱過程を観測するには秒のオーダーが必要なため、その間原子気体を保持しなければならない。光トラップ中の原子気体は真空装置中の残留ガスとの衝突により失われていくため、 1×10^{-10} Torr 程度の真空度を実現する必要がある。本節では実験で用いた真空装置の全体像と真空排気の手法について記述する。各部の個別の働き、目的についてはそれぞれの節もしくは項にて述べる。

本研究はリチウム原子とカルシウムイオンを対象としているため真空チャンバーもそれぞれの用途により部位が分かれている。図 14 に実験に用いた真空装置を示した。主として原子を捕獲、冷却するための真空チャンバーは原子オーブン、ソースチャンバー、ゼーマン減速器、原子チャンバーに分かれる。原子チャンバーはさらに三つの部位、ゼーマン減速器に近いところからキューブ型のチャンバー、多角柱型のチャンバー、大型の土管型のチャンバーに分かれている。一方でカルシウムイオン用のチャンバーとしてイオンチャンバーが原子チャンバーより枝分かれして接続されている。

上記のように真空チャンバーは大気圧下から真空に引くためにソースチャンバー、土管型のチャンバー、イオンチャンバーの三か所にバルブをつけ、それぞれにターボ分子ポンプもしくはロータリーポンプを接続し排気を行った。また同時に到達真空度を向上させるためにチャンバー全体にヒーターを巻き付け全体が $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ になるようにベイキングを行い十日から二週間程度保持した。またソースチャンバー、キューブ型チャンバーの上部、土管型チャンバー上部、イオンチャンバーの各部位にそれぞれ 75 L/s 、 20 L/s 、 150 L/s 、 75 L/s の排気能力をもつイオンポンプを接続し定常的に排気し続けた。さらに土管型のチャンバーにはチタンサブリメーションポンプを配置してありイオンポンプで排気が困難な気体の除去を行った。最終的に常温で 6×10^{-11} Torr 程度の真空度を得ることに成功した。

本研究の真空装置はすべて一つに接続されているが、ソースチャンバーとゼーマン減速器の間、原子チャンバーとイオンチャンバーの間に真空ゲートバルブを取り

付けた。これはリチウム原子の補充，交換を行うとき，あるいはイオンチャンバー中のイオントラップを交換する際に全体の真空を破壊せずに必要最低限の真空排気を行うことで復帰を早めることを目的とした。

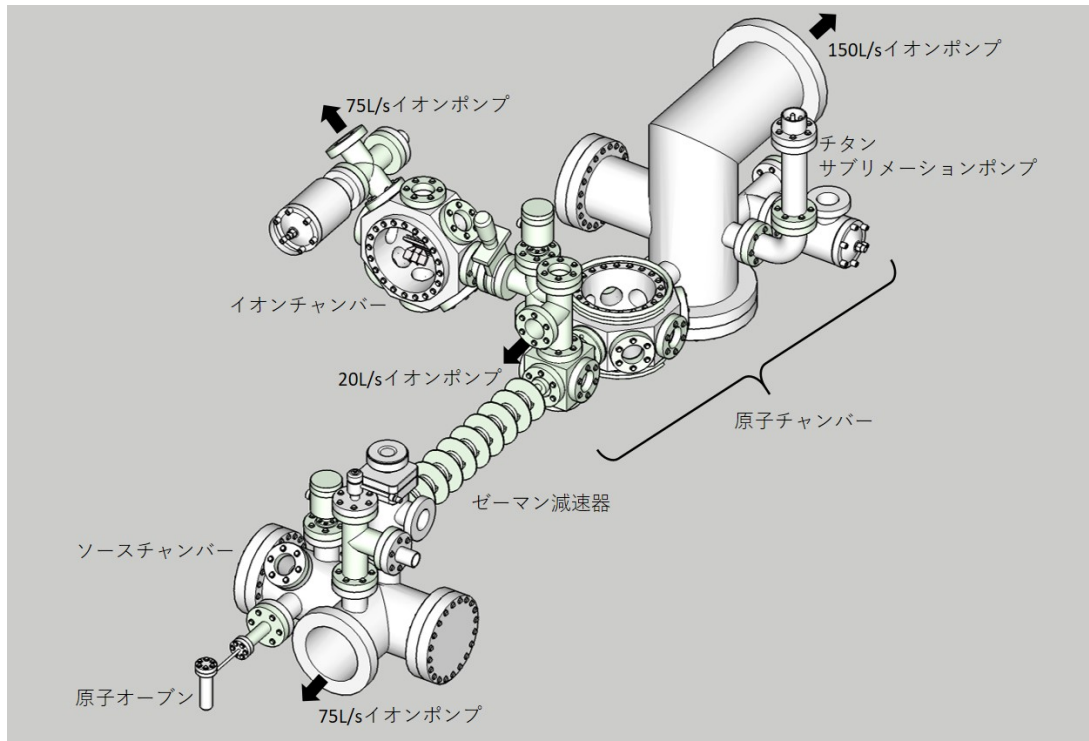


図 14 真空装置全体像。原子-イオン混合系はひとつながりの真空装置から構成されているが，各部位ごとに役割を持ち，原子やイオンの効率的な冷却や捕獲を行いつつも超高真空を保てるように設計された。真空装置は原子の捕獲，冷却を担う箇所とイオンの捕獲冷却を担う箇所に大別されている。この二つを明確に分離しているのはイオンの冷却光と原子の冷却光を入射できるスペースを十分に確保するためである。以前はイオントラップは現在の MOT を行う原子チャンバー内に置かれていた [32, 40]。イオンチャンバーは内部にイオントラップを安置している。原子の捕獲冷却する部分は，原子源である原子オープン，熱原子線のコントロールを担うソースチャンバー，熱原子線の冷却を行うゼーマン減速器，原子の MOT による捕獲を行う原子チャンバーに分かれる。十分な真空度を得るために，装置内にイオンポンプを分散させた。特にイオンチャンバーは原子チャンバーから枝分かれしているため，原子チャンバー側に配置したイオンポンプでの排気では十分ではない。そのためイオンチャンバー内での原子の寿命が短いという問題があったが，75 L/s のイオンポンプをつけることで大きく改善した。また，チタンサブレーションポンプを原子チャンバー取り付け，排気を行った。

4.4 リチウム原子の冷却

原子オープンより生じソースチャンバーを経由した熱原子線はゼーマン減速器と磁気光学トラップ (MOT) という二段階にわたって冷却される。ゼーマン減速器は熱原子線を伝播方向の一次元冷却を行う装置であり、ドップラー冷却を元 to 実現されるが、MOT に到る予備冷却として行った。その後、予備冷却された原子線を MOT で捕獲した。

本節では冷却手法であるゼーマン減速器 [108] および磁気光学トラップ (MOT) [23] の説明と実験に用いた装置について述べる。

4.4.1 原子線の生成

本実験では冷却したりチウム原子集団をカルシウムイオンと相互作用させたが、リチウム原子集団を得る手法としてリチウム金属固体を熱し、熱原子線を生じさせた。本節では特に実験に使用したりチウム原子と熱原子線の発生手法、制御方法について述べる。

原子オープン

本研究では絶対零度近傍まで冷却したりチウム原子気体を対象としているが、こうした原子気体を生成するために固体のリチウム原子を原子源として用いている。リチウム原子は質量数 6 と 7 の原子が自然界に安定に存在する。本研究ではフェルミ同位体である ${}^6\text{Li}$ を用いたが、この同位体の天然存在比は 7.5 % と低いため、その存在比を 95.5 % まで濃縮したりチウムを使用した。図 14 中の原子オープンにリチウムの固体を詰め、原子源とした。リチウム固体をつめた本体部分とそこから枝分かれしたノズル部分を独立したヒーターで各々温調した。本体部分とノズル部分はそれぞれ約 340 °C, 500 °C 程度まで加熱しリチウムの蒸気を得た。なおリチウムの融点は 181 °C, 沸点は 1347 °C である。ノズル部分をより高温にしたのは原子のつまりを防ぎ効率よくリチウム蒸気をソースチャンバーへと流出させるためである。ノズル部分は細く長く設計することで原子チャンバーへと向かう原子の立体角を制限するとともに真空度の悪化を防いでいる。原子を加熱するヒーターは実験中のみ動作させ、実験中以外ではリチウムの蒸気を抑えた。ヒーターの電源を切る際のノズル部分は細く詰まりやすいためヒーターの電源を切るのを遅らせた。この

動作を実現するためにヒーターの温調回路にタイマー回路を追加し、一時間程度遅らせて電源を切った。

ソースチャンバー

原子オープンから生じたリチウム原子は次にソースチャンバーに流入する。ソースチャンバー内に金属板を挿入し二室に分離し、金属板に穴をあけて二室をつなぐことでゼーマン減速器へとつながる真空装置の真空度悪化を防ぎ、ゼーマン減速器につながる立体角を制限した。

金属板に穿った穴の直後に短冊状の金属片を設置し、回転導入器に取り付け、原子線シャッターとした。原子線シャッターを開閉することで原子線の原子チャンバーへの流入を制御した。これも真空度の悪化を防ぐ措置である。なお原子線シャッターの開閉を自動制御にするため、ステッピングモーターで回転させる機構を設けた。ステッピングモーターのドライブ回路は TTL で動作し、コンピュータで制御可能にした。

ソースチャンバーの上部にはパージポートを設けた。原子を交換、補充するために真空を破壊する際に窒素ガスを導入するためのポートである。ソースチャンバー内を窒素ガスで充填し、陽圧にすることで外界の異物の侵入を防ぎ、再度真空を引きやすくするためである。

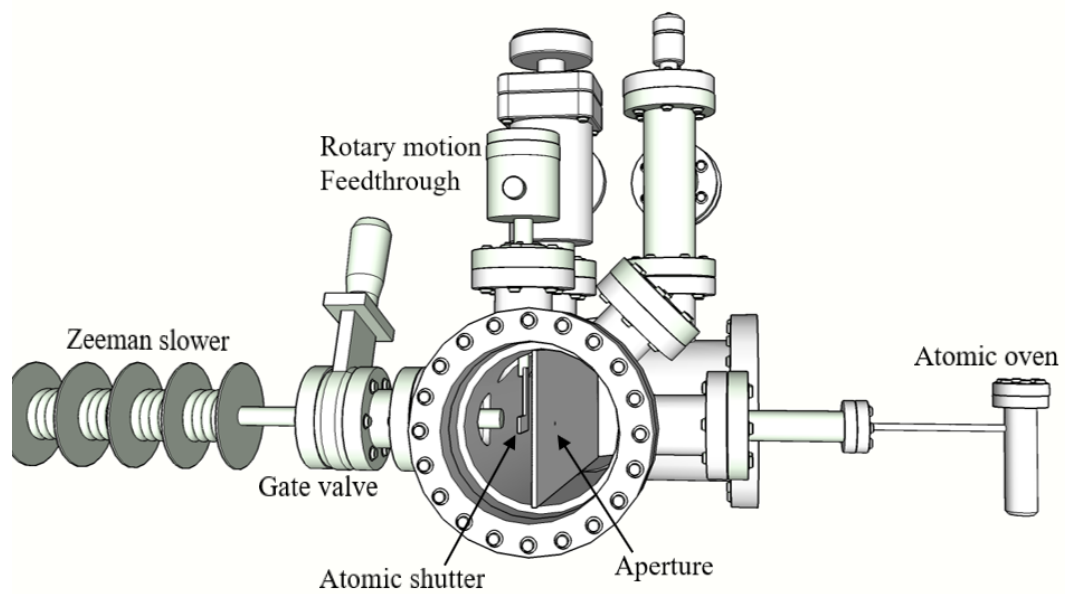


図 15 原子オーブンとソースチャンバーの配置. 原子オーブンから出た熱原子気体は細管を通りソースチャンバー中の開口部を通過する. 開口部の直後に回転導入器に接続された原子線シャッターを設けて原子線のゼーマン減速器への流入を制御した.

4.4.2 冷却光学系

光源

リチウム原子には多くの遷移が存在するが効率的に冷却を行うには適当なサイクリックな遷移を実現する必要がある。本研究ではリチウムの D_2 線を利用した。この遷移に対応する 671 nm の波長は色素レーザーで得た。色素レーザーは Coherent 社製の「99-21 RING LASER」リング共振器色素レーザーである。Coherent 社の「Verdii 10」から発生した 532 nm レーザーで色素 LD688 のフェノキシエタノール溶液を励起することで 671 nm 光を得た。励起光は 6 W 程度入射し、671 nm 光を 300-500 mW 程度得た。

飽和吸収分光

光源となる色素レーザーの発振周波数は常に揺れ動いており、安定的に原子の冷却を行うためには何らかの周波数基準にレーザー周波数を安定化する必要がある。周波数基準として代表的なものは原子の吸収線や長さが安定な光共振器が挙げられるが、本研究では ${}^6\text{Li}$ 原子の D_2 線を利用した。ここでは基準とした吸収線の分光方法について述べる。 D_2 線の自然幅は 6 MHz 程度であり、この吸収線を参照してレーザー周波数を安定化すればよい。しかしながら原子気体は温度分布が存在するため一つ一つの原子の吸収周波数がドップラー効果によってシフトし、全体のスペクトルは広がってしまう。このスペクトル広がりのことをドップラー広がりと呼ぶが、数百度のリチウム原子気体を想定するとドップラー幅は数百 MHz から数 GHz になってしまい、リチウム原子の微細構造スペクトルは埋もれてしまう。そこでドップラーフリー分光として飽和吸収分光を用いた。

典型的な飽和吸収分光は、飽和吸収分光の基本的な配置はガラスセルやチャンバー内に封入した原子や分子などの分光対象に対してレーザー光を対向して入射する。一般に入射した光の一方をポンプ光、もう一方をプローブ光と呼び、プローブ光はフォトダイオードなどで吸収を測定する光であるが、分岐して入射せずにポンプ光をガラスセルに透過させた後ミラーで反射させて再度入射させてプローブ光としてもよい。ガラスセル中の原子気体はマックスウェル・ボルツマン分布するため速度分布はガウス関数であり、レーザーを対向して入射しなければガウス関数型の吸収信号が得られる。共鳴周波数 ν_0 に対してレーザー周波数を掃引すると離調に

応じた速度の原子が共鳴する．ポンプ光とプローブ光は対向して入射しているため共鳴する原子はそれぞれの光で逆方向の速度ベクトルを持つ．このため，共鳴周波数以外では吸収が起きる原子の持つレーザー入射方向に対する速度成分はポンプ光とプローブ光で逆方向で，速度成分の絶対値は等しい．一方で共鳴周波数ではポンプ光，プローブ光ともにレーザー入射方向に対する速度を持たない原子が共鳴するため，ラムディップと呼ばれる自然幅の吸収信号の窪みが観測される．

飽和吸収分光の原理説明は上記の通りであるが，実際の ${}^6\text{Li}$ の D_2 線は基底状態が 228.2 MHz の超微細分裂を持ち，上準位の超微細分裂は自然幅より小さいため図 16 のように Λ 型の三準位系とみなすことができる．このような場合，それぞれの遷移の飽和吸収信号のみならず，二つの吸収信号の間にも信号が観測される． $|1\rangle$, $|2\rangle$ 準位の共鳴のちょうど中間に離調をとったとき，ポンプ光を吸収して $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ 遷移を起こすレーザー入射方向に対する速度成分を持った原子とプローブ光を吸収して $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ 遷移が起きるレーザー入射方向に対する速度成分を持った原子が持つレーザー入射方向に対する速度成分が同一となり，ポンプ光を吸収して $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ 遷移が起きるレーザー入射方向に対する速度成分を持った原子とプローブ光を吸収して $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ 遷移が起きる原子の持つレーザー入射方向に対する速度成分が同一となる．これによる信号のことをクロスオーバー信号と呼ぶ．以下に示すように安定化はこのクロスオーバーに対して行われた．なお，V 型準位でも同様のクロスオーバー信号は観測される．

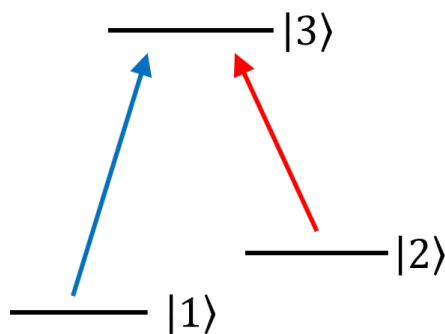


図 16 Λ 型三準位系.

周波数安定化システム

使用した色素レーザーは内部にある参照共振器に安定化されている。D₂ 線への安定化は参照共振器を上記のクロスオーバー信号に安定化することで実現した。以下に周波数安定化のために実際に構築したシステムを示す。

図 17 は実際に構築した実験系である。色素レーザーの出力の一部をシングルモードファイバーに入射し、出力端にて約 3 mW を得たものをリチウム原子で満たした真空チャンバーに入射し、飽和吸収分光を行った。使用したリチウム原子の冷却遷移は $|2^2S_{1/2}, F = 3/2\rangle \leftrightarrow |2^2P_{3/2}\rangle$ であるが、この安定化に使用した信号はこの遷移と $|2^2S_{1/2}, F = 1/2\rangle \leftrightarrow |2^2P_{3/2}\rangle$ 遷移のクロスオーバー信号である。さらに色素レーザーの出射波長が $|2^2S_{1/2}, F = 3/2\rangle \leftrightarrow |2^2P_{3/2}\rangle$ 遷移から -190 MHz ずらしたゼーマン減速に用いる周波数になるように構成した。また安定化のためのエラー信号は FM 分光法 [109] にて得た。具体的には 200 MHz の RF を入力した音響光学素子 (AOM) の -1 次光を二分岐し、一方を 208 MHz の RF で駆動した AOM の 1 次光を真空チャンバーの一方より入射し、もう一方は EOM で位相変調した上で真空チャンバーの逆側から入射した。また、ロックイン検出するため二つ目の AOM に入力した RF は 20 kHz の矩形波でチョップした。

光学系

本実験ではリチウム原子を次項以降に示すようレーザー冷却を行った。レーザー冷却にはリチウムの遷移周波数に合わせたレーザー光源が必要となる。またゼーマン減速器や磁気光学トラップ、原子集団の撮像にはそれぞれの遷移に合わせた周波数を準備する必要がある。本項では冷却に用いたレーザー光源および各用途毎に準備するために構成した光学系を示す。

色素レーザー光を原子の冷却に用いるにあたっては各用途にあわせてパワーと周波数を設定する必要がある。表 6 と図 18 に各用途に対する周波数と ⁶Li 原子の準位を示した。表中の周波数は ⁶Li 原子の $|2^2S_{1/2}, F = 3/2\rangle \rightarrow |2^2P_{3/2}, F' = 5/2\rangle$ 遷移に対する差を表示した。なおイメージングおよびイメージングリパンプ光は原子の撮像を行うための光であり、詳細は 4.6 に記した。また、MOT 光と MOT リパンプ光は磁気光学トラップに用いた光であり、その詳細は 4.4.4 にある。ゼーマン減速光はゼーマン減速器 4.4.3 に詳細を示した。本項ではこれらの光を生成するために実際に用いた光学系について記す。

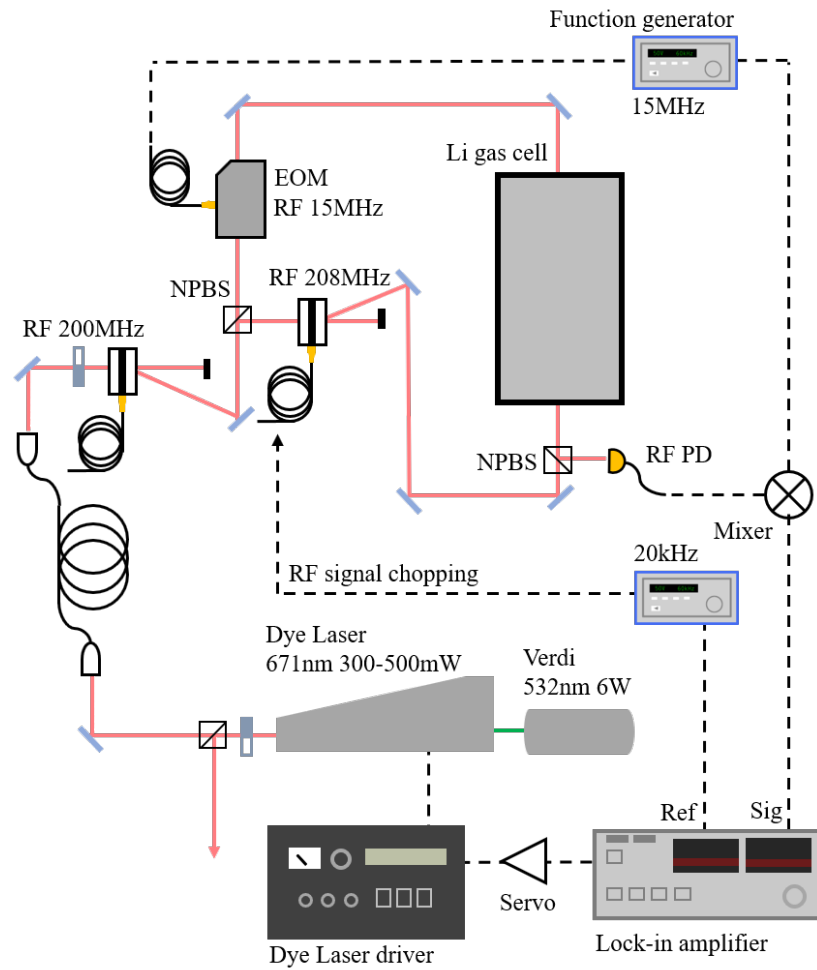


図 17 飽和吸収分光と周波数安定化の模式図。

表 6 実験に用いたレーザー光周波数． $|2^2S_{1/2}, F = 3/2\rangle \rightarrow |2^2P_{3/2}, F' = 5/2\rangle$ 遷移に対しての離調で表した．

用途	周波数
イメージング光	0 MHz
イメージングリパンプ光	+228 MHz
MOT 光	-30 MHz
MOT リパンプ光	+220 MHz
ゼーマン減速光	-190 MHz

表 6 を満たす各周波数を実現した光学系の概略を図 19 に示す．周波数安定化に記したように色素レーザーの発振周波数は $|2^2S_{1/2}, F = 3/2\rangle \leftrightarrow |2^2P_{3/2}, F' = 5/2\rangle$ 遷移に対して -190 MHz 離調をとって安定化されている．これを AOM を用いて周波数シフトさせ，テーパーアンプを用いて増幅した．

色素レーザーの出力の一部 $4\text{-}6$ mW をシングルモードファイバーに入射し，約 $3.5\text{-}5$ mW を出力端から得た．これを半導体レーザー（eagleyard Photonics 社製，「EYP-RWE-0670-00703-1000-SOT02-0000」）に入射して注入同期することで 25 mW の出力を得た．この半導体レーザーは Thorlabs 社製，「LD21」マウントで温調し，保持した．さらにこれを eagleyard Photonics 社製のテーパーアンプ「EYP-TAP-0670-00500-2003-CMT02-0000」に入射して，増幅し約 270 mW の出力を得た．このときの駆動電流は 970 mA 程度である．テーパーアンプは銅製のマウントに固定してペルチェ素子を用いて温調を行った．

増幅した光を分岐し各用途のために AOM を用いて周波数をシフトした．PBS を用いて二分岐した光の片方をイメージングすなわち原子の撮像光用に分け，一部を AOM に入射し，1 次回折光のダブルパスを構築した．このとき，AOM には 130 MHz の RF で駆動し， $+260$ MHz のシフトを実現した．また，このときの 0 次回折光の約 $100\text{-}150$ mW をゼーマン減速光とした．

色素レーザーより $+260$ MHz， $F = 3/2 \leftrightarrow F' = 5/2$ 遷移より $+70$ MHz 周波数シフトさせたレーザー光を別のテーパーアンプに入射して増幅した．このテーパーアンプも上に示したものと同様の仕様であるが，入射パワーを 53 mW，駆動電流を 1100 mA にすることで $270\text{-}400$ mW 程度の出力を得た．

テーパーアンプの出射光を 100 MHz の RF で駆動した AOM に入射し，約 $100\text{-}150$ mW 得た -1 次光回折光をシングルモードファイバーに入射し，MOT 光とした．この光は最終的に $F = 3/2 \leftrightarrow F' = 5/2$ 遷移に対して -30 MHz に調整されている．ファイバーの出射端の後に電気光学変調器（EOM: Electro-Optic Modulator）を設置し， 250 MHz の RF で駆動した．こうして発生したイメージング遷移から $+220$ MHz ずれたサイドバンドを磁気光学トラップの $|2^2S_{1/2}, F = 1/2\rangle$ に緩和した原子を再び冷却サイクルに戻すリパンプ光として用いた．なお，MOT 光と MOT リパンプ光の値は通常の MOT を行った時の値であり，後述する CMOT ではこの離調を変化させている．

一方で 0 次光は駆動 RF， 79 MHz の AOM の一次光を用いてダブルパスを構築し， $+158$ MHz の周波数シフトを行った．こうして $|F = 3/2\rangle \leftrightarrow |F' = 5/2\rangle$ 遷移

に対して +228 MHz の周波数シフトした光を得てこれをゼロ磁場下のイメージングを行う際のイメージングリポンプ光とした．これは MOT リポンプ光と同様に $|2^2S_{1/2}, F = 1/2\rangle$ に緩和した原子を $|2^2S_{1/2}, F = 3/2\rangle$ に戻す役割を持つ．

ゼロ磁場イメージングの際に使うイメージング光は最初のダブルパスの直前で PBS で分岐した光を 190 MHz の RF で駆動した AOM の +1 次光を取り出し，シングルモードファイバーに入射し典型的に 2 mW の出力を得た．これを $F = 3/2 \leftrightarrow F' = 5/2$ 遷移に共鳴した光をイメージング光とした．また 0 次光を適当な周波数の RF で駆動した AOM の回折光とりだし，高磁場イメージングに用いた．

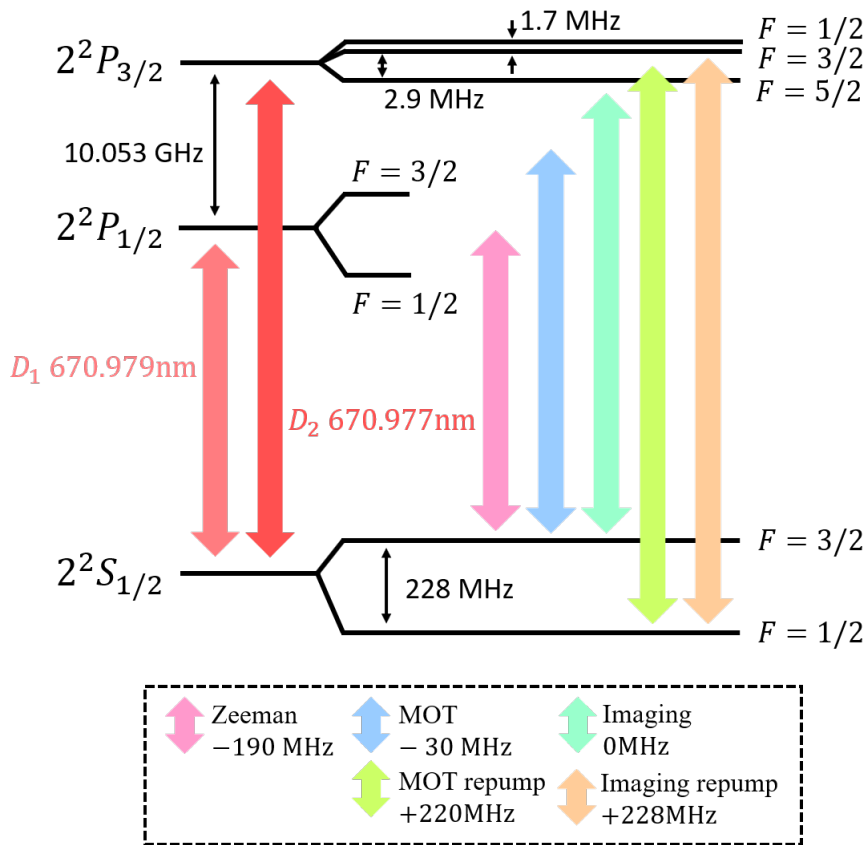


図 18 ${}^6\text{Li}$ 原子の準位と 671 nm レーザー周波数．文献 [110] を参考にした．

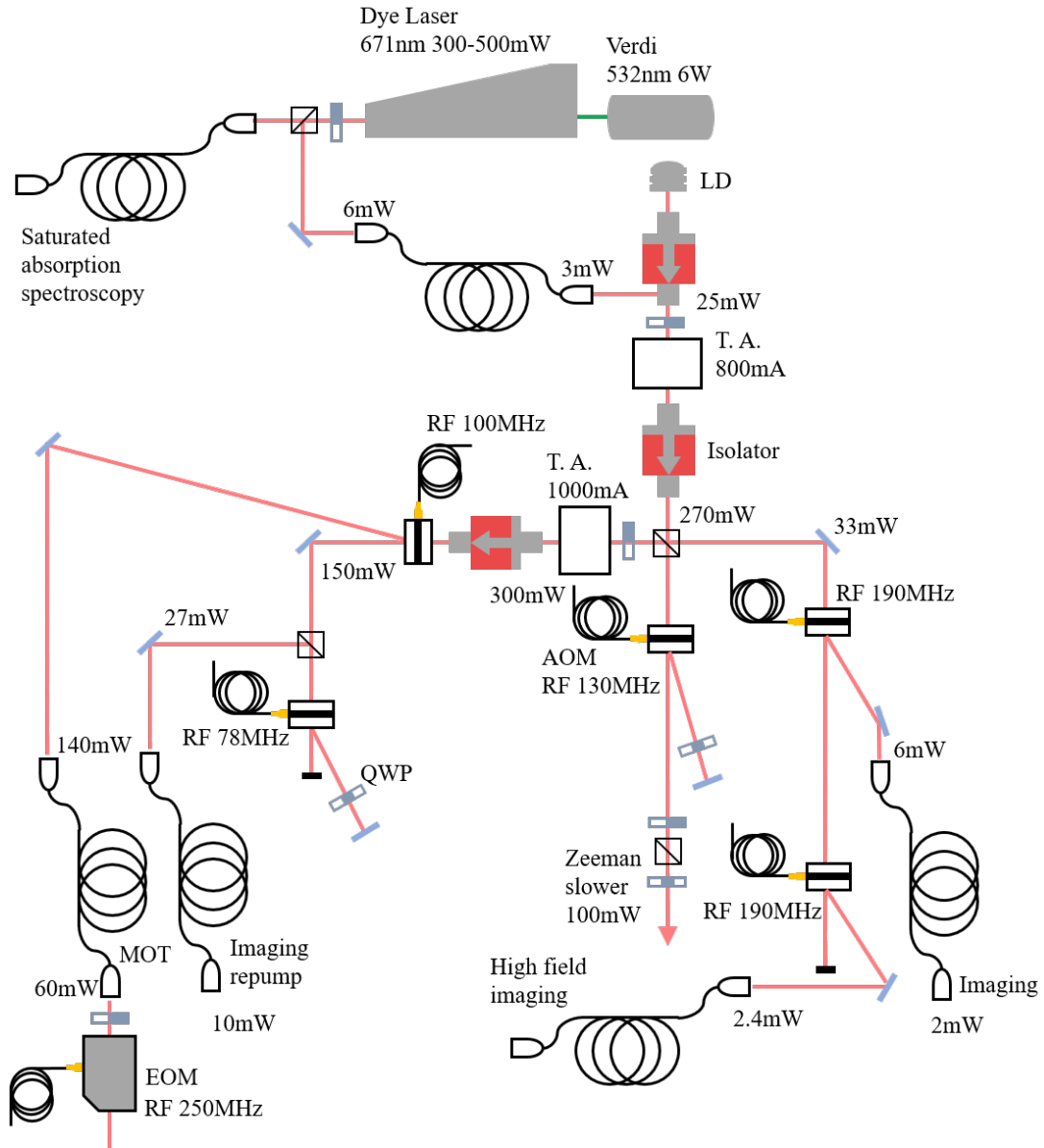


図 19 ^6Li 原子の冷却のための 671 nm レーザーシステム.

4.4.3 ゼーマン減速器

MOT へ到る予備冷却としてゼーマン減速器を用いてソースチャンバーから流出した原子線を冷却した。原子オーブンは約 500°C まで加熱しているのでソースチャンバーを通過する原子の平均速度 v_{av} は

$$v_{\text{av}} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{2k_{\text{B}}T}{m_{\text{atom}}} \right)^{\frac{1}{2}} \approx 1651[\text{m/s}] \quad (122)$$

と計算できる。ここで k_{B} はボルツマン定数、 m_{atom} は原子の質量、 T は原子集団の温度である。この温度の原子集団を直接、MOT で捕獲するには効率が悪いので、ゼーマン減速器を用いて予備的に原子集団を減速した。

実験ではソースチャンバーを経てゼーマン減速器に流入する原子線に対して対向して共鳴するレーザー光を入射する。このレーザー光による輻射圧によって原子集団は減速されるが、原子が減速されていくとドップラー効果により原子の共鳴周波数は次第にずれるため、徐々に冷却光は非共鳴となる。この共鳴シフトを磁場を印加しゼーマン効果を用いて補正する。適正な磁場を印加して効率よく減速を行う手法をゼーマン同調法と呼ぶ。

閉じた二準位系を持つ原子に対して波数 k の平面波を入射したときに原子が受ける輻射力 f_{Z} は

$$f_{\text{Z}} = \frac{\hbar k \Gamma'}{2} \frac{\frac{1}{2}}{\Omega_{\text{atom}}^2 + \frac{\Gamma'^2}{4\Omega_a^2} + \frac{1}{2}} \quad (123)$$

と表せる。ただし \hbar はディラック定数、 Γ' は二準位系の上準位の自然幅、 δ は二準位系に対する入射平面波の離調、 Ω_{atom} は二準位系のラビ周波数である。入射レーザーのパワーが十分に強いときを想定すると

$$\Omega_{\text{atom}} \gg \delta \quad (124)$$

$$\Omega_{\text{atom}} \gg \Gamma' \quad (125)$$

が成り立ち、すなわち

$$f_{\text{Z}} \approx \frac{\hbar k \Gamma'}{2} \quad (126)$$

と変形できる。ニュートンの運動方程式より加速度 a_m を求めると

$$a_m = \frac{\hbar k \Gamma'}{2m_{\text{atom}}} \quad (127)$$

以上より共鳴するレーザーを入射することで最大の加速度 a_m で原子を減速できることがわかる。

次に原子に印可すべき磁場について考察する。原子が z 軸方向へ初速度 v_0 にて飛来し位置 $z = 0$ を通過したとき対向するように共鳴光を入射し最大加速度 a_m で減速させる，速度 v は位置 z の関数として

$$v(z) = \sqrt{v_0^2 - 2a_m z} \quad (128)$$

と表せる。

上式 128 のように減速された場合，ドップラー効果によって共鳴周波数が変化する。このときのドップラーシフトは $\Delta\omega_D = kv(z)$ と書ける。

次に磁場 $B(z)$ を印加した時のゼーマンシフト $\Delta\omega_Z$ は

$$\Delta\omega_Z = \frac{g_L \mu_B m_F B(z)}{\hbar} \quad (129)$$

ただし g_L はランダウの g 因子， μ_B はボーア磁子， m_F は全角運動量 F の z 軸成分である。

ゼーマンシフトによってドップラーシフトを打ち消すので上の二式をつないで $v(z)$ について解き，式 (128) に代入し， $B(z)$ について整理すると

$$B(z) = B_0 \sqrt{1 - \alpha_Z z} \quad (130)$$

ただし

$$B_0 = \frac{\hbar k v_0}{(\Delta g_L m_F) \mu_B} \quad (131)$$

$$\alpha_Z = \frac{\hbar k \Gamma}{m_{\text{atom}} v_0} \quad (132)$$

である。

実験に用いたゼーマン減速器は 40 cm の長さの管を十の区間に区切りそれぞれに直径 2 mm 導線を 300 回巻きつけコイルを作った。それぞれのコイルに定電流を流し磁場を発生させた。直流電流源として松定プレシジョン社製「PR15-80」を用いて，各コイルへの電流の制御は回路を作成して行った。

ゼーマン減速器の原子線を通す管は二重構造になったものを使用した。中心部分は原子線が通過する部分であり，外側部分には冷却水を流し，コイルを水冷した。

4.4.4 磁気光学トラップ

ゼーマン減速器によって減速された原子線は原子チャンバーに流入し，磁気光学トラップにて捕獲・冷却される．磁気光学トラップはレーザー光によって原子集団を冷却するとともに不均一磁場を用いて空間位置に依存した復元力を発生させ原子を捕獲する装置である．ここでは磁気光学トラップの原理および実際の実験装置について述べる．

原子チャンバー

ゼーマン減速器を通過し，減速された原子線は原子チャンバーに流入する．前述のように原子チャンバーは三つの部分から成り立っている．原子線の上流側からキューブ型のチャンバー，八角柱型のチャンバー，大型の土管チャンバーである．

まず原子線はキューブ型のチャンバーに流入する．このチャンバーはゼーマン減速器と八角柱型のチャンバーに接続された部分以外の四面に ICF70 のビューポートフランジをとりつけ，光を四方向から入射可能にした．これは原子線の広がりを抑え磁気光学トラップへの原子のロード効率を上げるために行なった．詳細は以下の 4.4.5 に記した．なお上部の枝分かかれした部分には 20 L/s のイオンポンプを設置した．

次に八角柱型のチャンバーは MOT を行うために用意しており，上下に ICF152 のビューポートフランジを設置し，八面ある側面の三面はそれぞれ，キューブ型チャンバー，大型土管型チャンバー，イオンチャンバーに接続されている．残り五面は ICF70 のビューポートフランジを取り付けた．以上のビューポートからは MOT 用のレーザー光や原子を撮像するレーザー光，あるいは光トラップ用のレーザー光を入射した．

最後に大型チャンバーであるがこれは主として真空排気のために準備した．前述のように 150 L/s のイオンポンプ，ターボ分子ポンプ，ロータリーポンプ用ゲートバルブ，チタンサブレーションポンプを取り付けた．またゼーマン減速用の原子線に対向したレーザー光を入射するための ICF70 ビューポートをチャンバー下部に設けた（図 13 中の Zeeman slower beam 部分にビューポートが取り付けられている）．

4.4.5 原子線のコリメート

原子ソースからでた原子は細いノズルや小さい穴、あるいはゼーマン減速器の細管を通過するので立体角は大きく制限されており、原子線の伝播方向以外の二方向の速度成分は小さい。しかしながら原子線は少しずつ広がる。原子線の伝播方向以外の速度を冷却し、膨らみを抑えるほうがより効果的に原子を捕獲できる。そこでキューブ型のチャンバーで原子線の伝播方向以外の二方向の速度を抑え原子線を平行になるように補正した。図 20 に原子線をコリメートした時の光学系を示す。約 10 mW の 671 nm レーザー光をミラーで折り返すことにより二軸四方向から入射した。入射した光は磁気光学トラップに用いた光と同様の離調である。

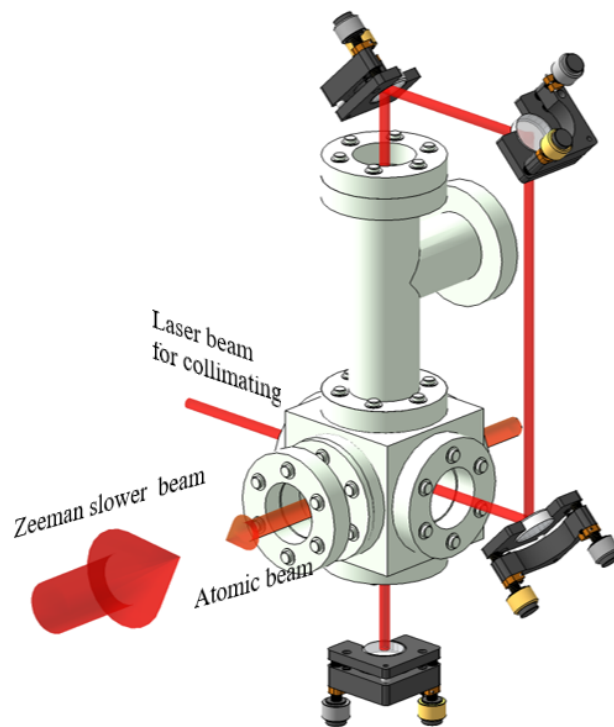


図 20 ${}^6\text{Li}$ 原子線のコリメート。ゼーマン減速器を通過した原子線に対して 4 方向から入射したレーザーを照射し、原子線の広がりを抑えて MOT へのローディング効率を上昇させた。原子線の伝搬先で MOT を行った。

磁気光学トラップの原理

磁気光学トラップ (MOT) とは 3 次元的に原子を冷却する手法であるオプティカルモラセスに四重極磁場を組み合わせることで原子に与える輻射圧に位置依存性を与えたトラップ手法である。

アンチヘルムホルツコイルによってつくられる四重極磁場はコイルの中心において最小で、中心から離れるほどに磁場は強くなる。すなわち、原子はコイルの中心から離れるほどに磁気副準位の分裂が大きくなる。この磁場中に存在する原子に対して 3 軸の 6 方向からレーザーを照射する。このとき、レーザー周波数は原子の共鳴線に対して負に離調することでドップラー冷却が行われる。ただし、MOT では入射レーザーを円偏光に設定しておき、偏光による遷移選択を用いる。すると中心から離れる原子ほど輻射圧を受けるため原子を閉じ込めることができる。原理に関しては例えば文献 [111, 112] に詳しい。

コイル構成

MOT は原子の共鳴周波数に対して調整されたレーザーに加えて四重極磁場が必要である。この四重極磁場は原子チャンバーの上下に準備したコイルペアに電流を流すことで実現した。さらに蒸発冷却の際には効率的な熱平衡化を行うため均一磁場を印加する必要がある。すなわちコイルペアは四重極磁場と均一磁場の両方を発生させるために用いた。

こうしたコイルに要求されるスペックを考えてみる。実験に必要な四重極磁場は 30 G/cm 程度の磁場勾配である。一方で均一磁場は蒸発冷却では 300 G 程度必要であり、本実験では行わなかったものの将来的に行いたいと考えているフェッシュバハ共鳴を考慮すると数百 G の磁場を印加できるスペックが望ましいと考えられる。少ない電流量で大きな磁場を発生させるためにはコイルペアの距離を小さくするほうが有利である。一方で均一磁場を印加するとき一般に用いられる手法としてヘルムホルツ配置があげられる。これは二つのコイルを同軸上にコイルの半径だけ離して配置し、電流を同方向に流す手法のことである。以上のような要素を考慮してコイルを設計した。

MOT を行った多角柱のチャンバーの高さを考慮し、コイル間距離は 13 cm とした。ヘルムホルツ配置を取るには直径 26 cm 程度のコイルを作る必要があるが、実験に用いたコイルは直径 25 cm とした。原子の磁場によるトラップの観点から考え

るとコイル間距離はむしろヘルムホルツ配置よりも近い方が有利である。しかしながら、多角柱チャンバーから枝分かれした他のチャンバーとの干渉の関係から今回はコイル間距離がヘルムホルツ配置から遠くなっている。

上記のような大きさのコイルは円筒形の太さ 6 mm の銅なまし管で作製した。これは内径 4 mm の穴が空いているが大電流を駆動した際、冷却水を流すためである。また電流の駆動は制御コンピュータで行えるようにした。しかし、冷却水を流さずに大電流を流し続けると危険なため、冷却水の配管途中にフローメーターを取り付け安全装置とした。銅なまし管は熱収縮チューブで覆って導通を防いだ上で 23 回巻いてコイルを作製した。

電流の制御

作製したコイルに電流を流すための駆動回路について記述する。実験では大電流を高速で ON/OFF したため、IGBT（絶縁ゲートバイポーラトランジスタ）を用いた。四重極磁場と均一磁場を一つのコイルペアで実現するために 4 つの IGBT を用意し、切り替えることでコイルに互いに逆向きの電流と同じ向きの電流を作り出し四重極磁場と均一磁場の発生を制御した。

MOT の光学配置

MOT に用いた光学系を示す。図 19 中の MOT 用ファイバーの出射をリポンプ光を発生させるために EOM で 250 MHz の変調を加え、図 21(b) に示すように 5 方向に分岐した。このうち一方向は前述の原子線をコリメートするために用い、一つはフォトディテクターに入射し、MOT 光の強度をモニターするために用いた。残り 3 つを MOT に使用した。図 21(a) は実際に構築した磁気光学トラップの配置を示す。(b) に示した①, ②, ③ の光を拡大した後、図 21(a) に示した 3 方向から入射し、それぞれを折り返すことで 6 方向からの入射を実現した。また、四分の一波長板（図中 QWP）を通過させ、各入射に要求される円偏光を作り出した。また図中の黒矢印はそれぞれのコイルに流した電流の方向を示す。

Compress MOT

通常 MOT は多数の原子を捕獲冷却することに重点を置いている。そのため、レーザー周波数を最も冷却効率の良い離調よりも負に離調し、磁場勾配を緩やかにしており、多数の原子を捕獲・冷却できるパラメータになっている。一方で Compress

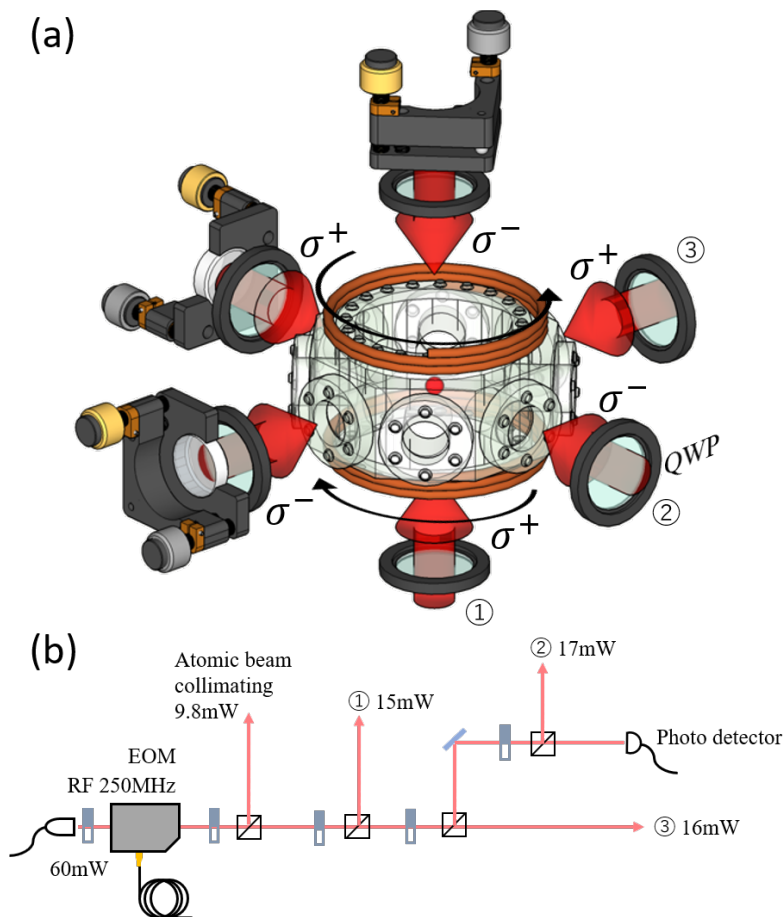


図 21 MOT の配置. (a)MOT に使った光の分岐. (b)MOT の配置. (a) 中の ①, ②, ③ のレーザーを拡大した上で各軸から入射した. 円偏光は四分の一波長板を使って制御した. 四重極磁場を発生させるため黒矢印のようにコイルに互いに逆向きの電流を流した. 八角柱のチャンバー中心部に冷却された原子が捕獲された.

MOT(CMOT) は原子の密度を上昇させ, 原子の温度をより低くすることに重点が置かれている.

CMOT では 20 ms 間に原子の冷却温度を下げるため MOT 光の離調を -30 MHz から -6 MHz へ近づけ, また磁場勾配を 20 G/cm から 38 G/cm まで上昇させた. こうして原子温度は下がり, 密度は上昇するが, MOT 光による加熱を回避するため, MOT 光の強度を下げた. また, EOM の変調周波数を変化させることでリポン

ブ光の調整も同時に行い，基底状態 $|S_{1/2}, F = 1/2\rangle$ の原子集団を光トラップに移行させた．

4.5 原子の光トラップ

磁気光学トラップを経た原子は光トラップに移行した後、保持し、光ピンセット技術によりイオントラップ中に捕獲したカルシウムイオンまで輸送した。実験に用いた光トラップは原子の共鳴周波数から大きく離調をとった高強度のレーザーを用いる FORT(Far-Off Resonance optical dipole Trap) と呼ばれる手法である。本研究ではこの FORT を二段階にわたって行った。一つは光共振器トラップ(Cavity-enhanced optical dipole trap)??であり、もう一つはシングルビームトラップ(Single beam optical dipole trap) である。光共振器トラップはトラップ用のレーザー光を光共振器で増幅することでトラップをより深く、トラップ体積をより大きくする目的で行った。トラップ体積を大きくすることで磁気光学トラップからの高い移行効率を望める。次に原子をシングルビームトラップに移行する、シングルビームトラップに捕獲する目的は二つ上げられ、一つは蒸発冷却を行いさらに原子の温度を下げることにあり、もう一つは原子集団をイオントラップ中のカルシウムイオンまで輸送する役目を担う。蒸発冷却とはドップラー冷却限界以下にまで原子を冷却する手法であり、本実験では数百ナノケルビンオーダーのフェルミ縮退したリチウム原子集団を生成することに成功した。また二つ目の原子の輸送についてはシングルビームトラップの光学系中のレンズを移動させて焦点位置をずらすことで実現した。このレンズはエアベアリングステージ上に設置し位置を滑らかに制御できるようにした。本節では以上のような光トラップの光源や光学系、実験手法について包括的に述べる。

4.5.1 光トラップの原理

光トラップは光双極子トラップ(ODT: Optical dipole trap) と呼ばれ、光の電場によって誘起される原子の分極に由来する双極子力を使ったトラップ技術のことを指す。以下に光トラップの原理について述べる。

原子の複素分極率を α_a とすると光電場 \mathbf{E}_{ODT} によって誘起される分極 \mathbf{p} は

$$\mathbf{p} = \alpha_a \mathbf{E}_{\text{ODT}} \quad (133)$$

この光電場によって生じる誘起双極子モーメント \mathbf{p} と光電場 \mathbf{E} 間の相互作用ポテ

ンシヤシャル U_{ODT} は光の周期で平均をとることで

$$U_{\text{ODT}} = -\frac{1}{2\epsilon_0 c} \text{Re}(\alpha_a) I \quad (134)$$

とかける．ただし光速を c , ϵ_0 を真空誘電率とした

ここで $I = 2\epsilon_0 |\mathbf{E}|^2$ は光強度である．すなわちポテンシャル U_{ODT} は光強度に比例することがわかる．

ポテンシャル U による力 f_{ODT} は

$$f_{\text{ODT}} = -\nabla U_{\text{ODT}} \quad (135)$$

との関係にある．この力 f_{ODT} を双極子力と呼ぶ．すなわち，双極子力は光強度の勾配に依存するため，焦点付近の光強度勾配によって原子を捕獲するポテンシャルが形成されることがわかる．以上が古典的にとらえた光トラップの原理である．光トラップの原理に関しては文献 [113] を参考にした．

4.5.2 光共振器トラップ

光共振器トラップの光源は発振波長 1064 nm の DPSS レーザー (Diode Pumped Solid State Laser: 半導体励起固体レーザー) を使用した．これは光学結晶 $Nd : YVO_4$ を発振波長 808 nm のレーザーで両側から励起して得た 1064 nm の光をボウタイ型の共振器で増幅し，レーザー発振を得る．励起用 LD に 23 A の電流を流し，9 W 程度の出力を得た．

DPSS レーザーの出力を AOM に入射し，高速でスイッチできるようにした．この回折光を MOT 中のリチウム原子集団を中心に据えるように配置した二枚の曲面をもったミラーで構成した共振器へ入射した．この共振器長が入射レーザーに対して共鳴するよう PDH 法 (Pound-Drever-Hall 法) [114] で安定化した．FM 分光法 [109] に依ってエラー信号を得るために EOM で位相変調した．その後アイソレーターを通過させ，表 7 に示した構成の共振器 (図 22) に入射させた．共振器の透過光はフォトディテクターで観測した．

共振器ミラーの反射光をアイソレーターからピックアップし，AOM で回折させ，フォトディテクターに入射した．このフォトディテクター信号と EOM の RF 信号を用いたエラー信号で共振器ミラーにとりつけたピエゾ素子を制御して共振器長を安定化した．共振器に DPSS レーザーの出力 6.5 W を入射し，共振器内パワーはおよそ 600 W であった．

表 7 共振器トラップの仕様

入射側ミラー反射率	98.3%
出射側ミラー反射率	99.99%
入射側ミラー曲率半径	400mm
出射側ミラー曲率半径	400mm
共振器長	430mm

図 22 に実際に原子をトラップした共振器トラップの配置を示す。

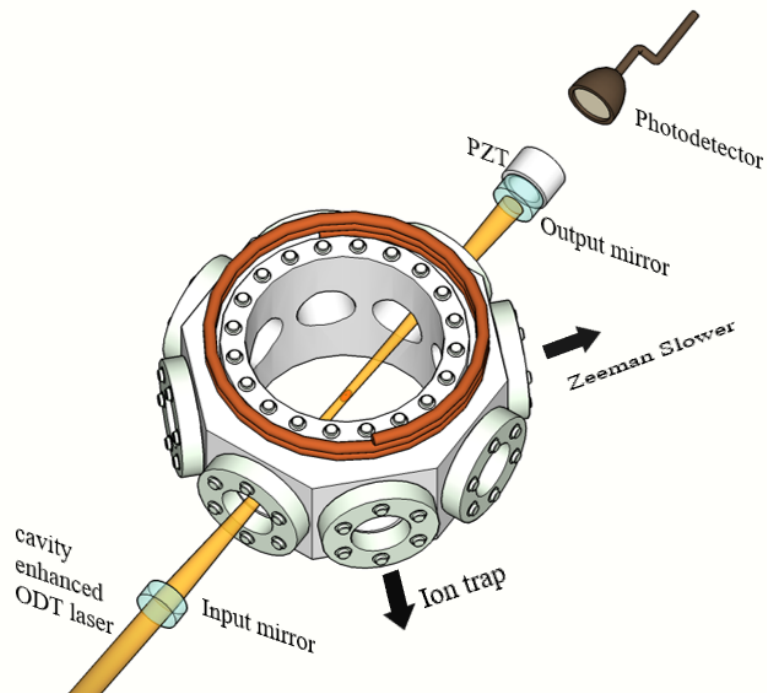


図 22 光共振器トラップの配置.

共振器トラップからシングルビームトラップに原子を移行する際、蒸発冷却を行い移行効率を上昇させた。ヘルムホルツ配置で 300 G の均一磁場を印加し、散乱断面積を上昇させ、共振器トラップのトラップ深さを 1 秒程度かけて浅くしていった (図 23 を参照)。共振器長を安定化したまま共振器トラップを浅くしていくために最初の AOM の回折効率を減少させて共振器に入射する光を減少させていき、同時に安定化のエラー信号を増加させるためにフォトディテクター前の AOM の回折効

率を上昇させた。

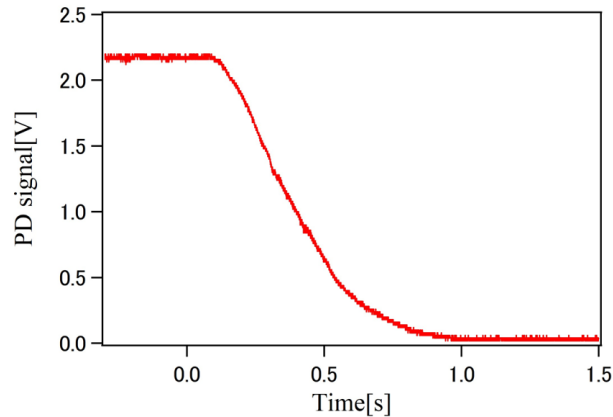


図 23 光共振器トラップのランプダウン．共振器長を入射レーザーに安定化したまま，光共振器トラップ用のレーザーの入射強度を減少させた．共振器内パワーを減少させる時間を横軸原点にとった．

4.5.3 シングルビームトラップ

エアベアリングステージ

シングルビームトラップで捕獲された原子は八角柱状のチャンバーの中心に捕獲されている．これをイオンと混合するためにイオントラップ中のカルシウムイオンまで輸送する必要がある．光トラップ中の原子はレーザーの焦点位置付近にトラップされているので焦点位置を移動させれば，原子気体も移動させることができる．焦点を位置を移動させるためにはレンズの位置をシフトさせればよい．

リチウム原子の初期位置とイオントラップの中心までは 40 cm 離れている．加えて，光トラップの焦点の大きさは数十 μm であり，イオンのサイズは数 μm 程度であることを考慮するとレンズの移動には高い精度が要求される．さらに移動時に振動があると光トラップ中の中性原子は加熱されてロスにつながるため，振動が極力抑えられることが望ましい．また中性原子とイオンの混合実験は何回も原子を輸送して測定を行うため再現性も重要なファクターとなる．

以上のような要求から AEROTECH 社の「ABL-15050-M-10-NC-LT50AS-SINGLE-CMS」を使用した．このステージは圧縮空気でステージを浮かせ空気膜を潤滑膜とする非接触可動式ステージである．非接触式のステージは移動時や停止時の振動が少なく，位置決め精度や再現性も高いため採用した．

焦点サイズが変わらない配置

原子集団を原子チャンバーの中心からイオントラップの中心まで運ぶとき、シングルビームトラップの焦点をシフトしたが、この際に焦点サイズが変化すると中性原子のトラップ周波数が変化してしまう。そこで焦点のサイズが変化しない光学配置を採用した。これは図 24 のようにチャンバー直前に配置したレンズペア間の距離がそれらのレンズの焦点距離に和になるように構成した。また、このレンズペアの前においたレンズをエアベアリングステージ上に置き位置をシフトさせた。この配置をとるとシフトさせるレンズの位置に関わらず焦点サイズは変化しない。

キャッツアイ配置

シングルビームトラップは光共振器トラップの中心を貫いて、かつ 40 cm 離れたイオントラップの中心を貫かなければならない。こうした系のアライメントを簡便する手法がキャッツアイ配置である。これはビームの焦点にミラーを置き、ビーム位置が焦点のあるミラーの動きに対して鈍感になることを利用した。図 24(a) のようにレンズのシフト前は手前の Mirror2 に焦点を結ぶようにし、シフト後は (b) のようにもう一つの Mirror1 に焦点を結ぶようにした。図 24(a) のように原子チャンバーの中心に焦点を結んでいるときは Mirror1 を動かすことでアライメントを行い、レンズをシフトさせイオントラップの中心に焦点を結んでいるときは Mirror2 を動かすことでアライメントした。

光学系

シングルビームトラップの光源には古河電工製ファイバーレーザー「ASF15R30」を用いた。発振波長は 1064nm である。20 W 程度の出力をシングルビームトラップのレーザーを高速にスイッチするため AOM を通過させ、その回折光を使用した。レンズを用いて適当なビームサイズに変更した後、エアベアリングステージ上のレンズを通し、上に記述した焦点サイズが変わらないように設定したレンズペアを通過させ原子に照射した。このとき、上述のキャッツアイ配置を満たすようにミラーを置いた。

またチャンバー直前のレンズ (図 24 中の焦点距離 f_1 のレンズ) は Newport 社製のアクチュエータを取り付け上下左右に駆動できるようにした。このレンズを上下左右させることで最終的なイオンとのオーバーラップ位置を微調できるようにした。

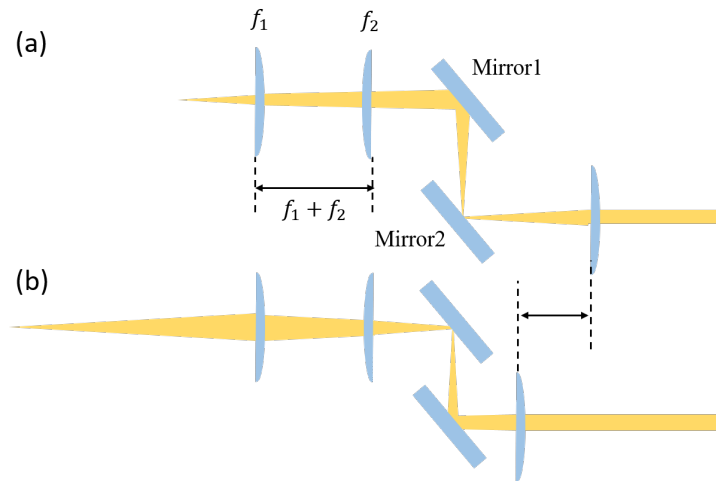


図 24 焦点距離が変わらない配置とキャッツアイ配置. (a) 原子の初期捕獲位置に焦点があるとき.. (b) イオントラップ中心まで焦点をシフトさせたとき.

原子の輸送

リチウム原子を輸送する際、原子への加熱は極力抑えつつも、バックグラウンドガスとの散乱によるロスの観点から短い時間で輸送することが望ましい。そこで実験では約 40 cm の焦点シフトを 20 cm のレンズシフトで実現できるように光学系を構築した。

また移動時の原子の加熱を抑えるために一定の加速度で速度を上昇させ、一定の速度に到達したら等速で原子を運び、また一定の加速度で減速させた。こうして加速時と停止時の原子の加熱を防いだ。この手法でシングルビームトラップ内の約 1 割の原子をイオントラップまで輸送した。

原子の移行効率と輸送効率

中性原子気体の捕獲は上記のように MOT、光共振器トラップ、シングルビームトラップと順次移行し、最終的にシングルビームトラップ中の原子を初期捕獲位置からイオントラップ中心まで輸送した。ここでは各捕獲手法による捕獲原子数について典型的な値を示す。また、原子集団の撮像画像も併せて示した。表 8 に原子数を図 25 に撮像画像を示した。(a) は共振器トラップの 1 ms TOF 画像である。また、シングルビームトラップについて (b) に輸送前の原子気体の 500 μ s TOF 画像と (c) に輸送後の原子気体のイオントラップ画像を示した。なお、原子の撮像手法と原子気

体の温度見積りについては 4.6 にて後述した。

表 8 Li 原子の原子数

手法	原子数
MOT	10^8
光共振器トラップ	10^7
シングルビームトラップ (輸送前)	10^5 - 10^6
シングルビームトラップ (輸送後)	10^4

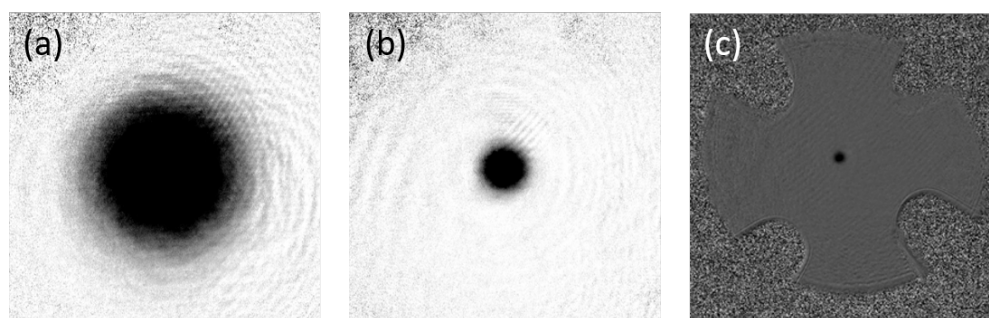


図 25 原子気体の吸収撮像イメージ. (a) 光共振器トラップ中の原子気体 1 msTOF 画像. (b) 原子チャンバーにおけるシングルビームトラップ中の原子気体 500 μ sTOF 画像. (c) イオントラップ中心におけるシングルビームトラップ中の原子気体イントラップ画像. 十字型の構造はイオントラップの電極による.

4.6 原子の撮像

4.6.1 撮像光学系

撮像手法

リチウム原子の撮像手法は吸収撮像法を用いた。吸収撮像では原子集団に対して共鳴光を照射し、共鳴光が原子集団によって吸収された影を像として得る。光の吸収像を使用するため、光の入射方向に対して積分した情報が得られる。本研究では吸収撮像で得られたイメージをもとに原子の撮像倍率、原子集団の温度、原子数、原子のトラップ周波数といった情報を得た。

本研究で行った吸収撮像によるイメージはカメラで撮影した三枚の像をもとに得た。この三枚の像は原子集団に共鳴光を入射したときの像、原子集団がないときに共鳴光を入射したときの像、共鳴光を入射していないときの像である。三枚目の像はバックグラウンドノイズに相当し、二枚目の像は共鳴光の強度分布を示している。そこで一枚目の原子の影の像から共鳴光の強度分布を差し引いたものを二枚目の強度分布から三枚目のバックグラウンドノイズを差し引いたもので割ることで原子の影となった箇所の透過強度を得た。

CCD カメラ

原子の撮像には CCD カメラ、Princeton Instruments 社製 PIXIS:512 及び PIXIS:1024 を使用した。カメラのフレームトランスファーモードを用いてリチウム原子の撮像を行った。表 9 に一素子のサイズと画像サイズを示した。

表 9 原子撮像に用いた CCD カメラの仕様

カメラ	一素子のサイズ	画像サイズ
PIXIS:512	$24\mu\text{m} \times 24\mu\text{m}$	512pixel \times 512pixel
PIXIS:1024	$13\mu\text{m} \times 13\mu\text{m}$	1024pixel \times 1024pixel

4.6.2 高磁場イメージング

磁場を印加すると原子の超微細構造が個々の磁気副準位に分裂する（詳細は??を参照）。高磁場下で磁気副準位の分裂が光で分離できるようになれば、それぞれの個別の磁気副準位を分離して原子を観測できる。ここでは、この高磁場でのイメージングについて記す。光トラップ中に存在する基底状態の $|S_{1/2}, F = 1/2\rangle$ は二つの磁気副準位 $|F = 1/2, m_F = 1/2\rangle$ と $|F = 1/2, m_F = -1/2\rangle$ に分裂する。図 26(a), (b) に $|F = 1/2, m_F = -1/2\rangle$ と $|F = 1/2, m_F = 1/2\rangle$ の高磁場イメージング結果を示す。図中横軸はコイルペアに流した電流値であり、コイルペアに流れる電流で均一磁場が発生する。縦軸は撮像された原子数である。(a) ではゼロ磁場でのイメージング光から -263.05 MHz 離調（色素レーザーから -73.05 MHz）をとったイメージング光で撮像した。一方で (b) はゼロ磁場からイメージング光から -337 MHz 離調（色素レーザーから -147 MHz）をとったイメージング光で撮像した。なお、このレーザー周波数と撮像原子数の測定からヘルムホルツコイルによって発生させた磁場を較正することができる。

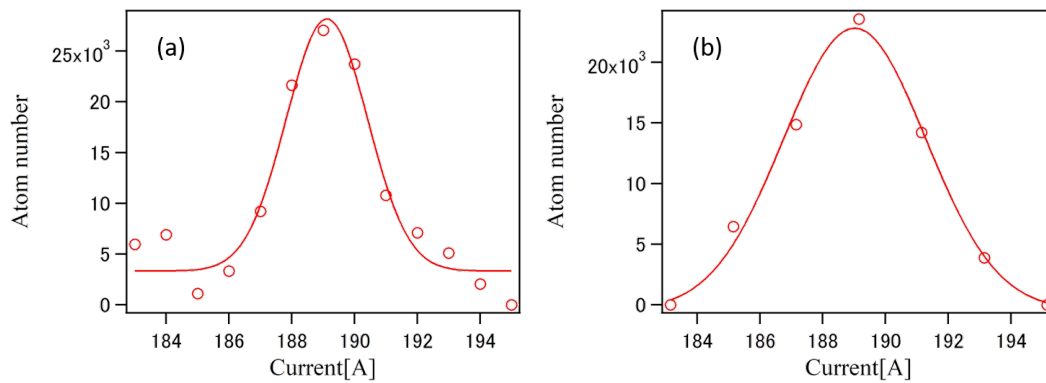


図 26 電流値に対する撮像された原子数。(a) $|F = 1/2, m_F = -1/2\rangle$ と (b) $|F = 1/2, m_F = 1/2\rangle$ の印加磁場に対する撮像原子数

4.6.3 撮像倍率の測定

吸収撮像では原子に対して共鳴な平行光を照射した後、レンズペアを用いて一度焦点を結んだ後再び平行光にしてカメラに入射した。このレンズペアの組み合わせで適当な撮像倍率に設定し、原子気体を観測しやすいようにした。この撮像倍率は

原子数の評価等に影響する．ここでは中世原子気体を用いた撮像倍率の測定手法と結果について述べる．

光トラップレーザーを切ってリチウム原子気体を拡散させると原子はそれぞれの速度で運動するため，原子気体は全体として広がっていく．一方で個々の原子は重力によって自由落下するため原子気体全体が拡散すると同時にその重心位置が重力方向にシフトする．このとき原子の自由落下による重心位置のシフトは撮像倍率によって本来の重力加速度からずれる．これを利用し，撮像倍率を測定した結果を図 27 に示した．図中横軸は原子の自由飛行時間を示し，縦軸は CCD カメラ上の原子気体の重心位置である．赤いデータ点は測定データを示し，赤線は自由落下の二次関数によるフィットである．この重力加速度のずれから撮像倍率は 1.57 倍と求められた．

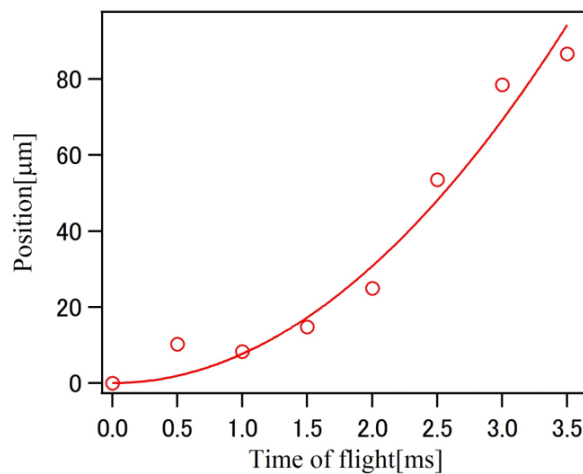


図 27 原子の撮像倍率の測定．横軸は原子の自由飛行時間．縦軸は原子気体の重心位置のカメラ上の位置．自由落下するため二次関数にしたがい位置がシフトする．フィット結果から得た加速度と重力加速度とのずれから撮像倍率を求めた．

4.6.4 原子気体の温度測定

古典気体の温度評価

中性原子気体の光トラップを切り，拡散させると原子はそれぞれの運動量で運動するため拡散後の原子気体の撮像結果は運動量分布となる．すなわち原子気体の拡散は原子気体の温度を反映する．これを利用して原子気体の温度を測定した．

原子気体が量子縮退領域に達しておらず，古典的な気体として捉えられるとき，

第 4 章 実験装置と手法

原子気体の運動量分布はマックスウェル・ボルツマン分布に従う．原子の飛行時間 t のときの吸収撮像した原子気体を一方向に積分したプロファイルの $1/\sqrt{e}$ 幅 σ は

$$\sigma(t) = \sqrt{\sigma^2(0) + (\sigma_v t)^2} \quad (136)$$

と書ける．このとき σ_v は

$$T = \frac{m_{\text{atom}} \sigma_v^2}{k_B} \quad (137)$$

の関係にあるため， σ_v を求めることで原子気体温度を得られる．以上は文献 [115] を参考にした．

式 (136) を利用することで原子気体の温度を測定した．以下にイオントラップまで輸送したシングルビームトラップ中の原子気体の温度測定結果を示す．図 28(b), (c) に示したように飛行時間を変化させて吸収撮像を行い，一方向に積分したプロファイルの $1/\sqrt{e}$ 幅を図 28(a) の縦軸に示し，横軸には飛行時間を示した．赤い実線は式 (136) によるフィット結果である．フィット結果より式 (137) を用いて原子気体温度は $6.1\mu\text{K}$ と測定された．

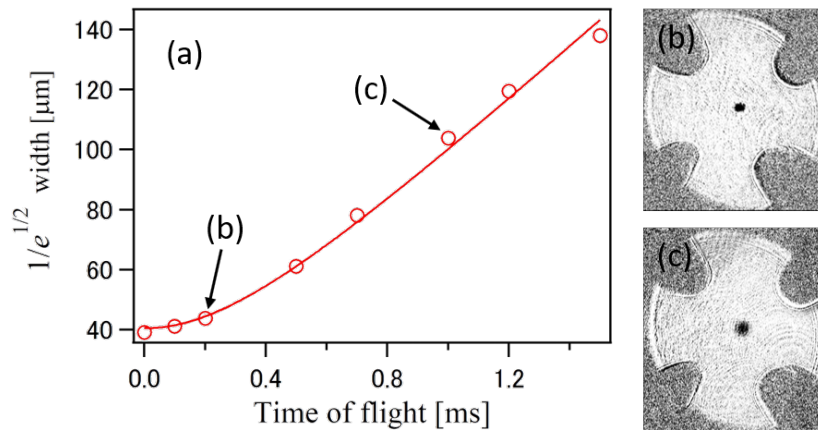


図 28 古典原子気体の温度測定．(a) 原子気体の運動量プロファイル $1/\sqrt{e}$ 幅の飛行時間依存性．(b),(c) 飛行時間 0.1 ms と 1 ms における原子の吸収イメージ．

トーマスフェルミ関数による評価

シングルビームトラップに捕獲したリチウム原子気体に対し，蒸発冷却を行い，温度を下げると原子気体は縮退領域に入る．縮退領域ではマックスウェル・ボルツマン分布が適用できないため温度評価にトーマスフェルミ関数によるフィット用い

て図 29 では $T/T_F = 0.61$ を得た。図中赤点は蒸発冷却後 6 msTOF の画像を一方方向に積分したプロファイルであり，実線はトーマスフェルミ関数によるフィッティングである。

蒸発冷却でおよそ 10 分の 1 の原子数まで減少させて $T/T_F < 1$ 原子気体を得ることができた。冷却効率が悪いのは軸方向のトラップ周波数が低く，熱平衡に到る時間が長いためであると思われる。原子数が大きく減ってしまったため，本研究では蒸発冷却せずに原子をイオントラップまで輸送した。

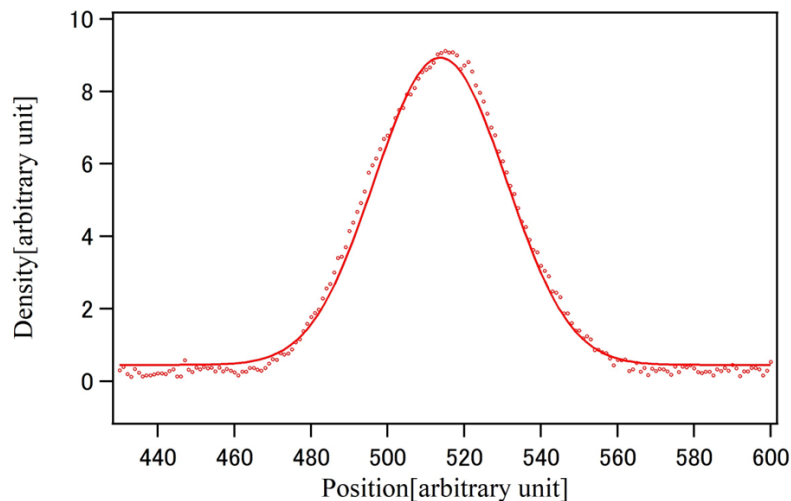


図 29 蒸発冷却後の原子気体の運動量分布のトーマスフェルミ関数フィット。

4.6.5 原子のトラップ周波数の測定

シングルビームトラップのトラップ周波数の測定手法と結果について述べる。中性原子のトラップ周波数は原子のトラップ深さや中性原子気体の密度分布の推定に用いた。

トラップ周波数の測定するためにリチウム原子気体の集団の運動モードを励起し，光トラップ中での原子気体の振動を吸収イメージから測定した。光トラップ中の原子の振動モードにはブリージングモードとスロッシングモードが存在する。ブリージングモードは原子集団の大きさが変化するモードであり，スロッシングモードは原子気体の重心が振動するモードである。

動径方向のトラップ周波数の測定は以下のように行った。トラップ光を一時的に遮断し，原子気体を一時的に拡散させた後再びトラップレーザーを入射し，原子気体

を再度捕獲した．すると光トラップ中の原子気体はブリージングモードで振動するため，この様子を軸方向から観察した．ブリージングモードで原子が振動する場合，原子の振動はトラップ周波数の二倍である．図 30(a), (b) にイオントラップ中心まで原子を輸送したときのトラップ周波数の測定結果を示す．この測定から動径方向の独立した二軸についてトラップ周波数 $(\omega_{\text{atom},x'}, \omega_{\text{atom},y'}) = 2\pi \times (671, 868)$ Hz が得られた．

軸方向のトラップ周波数はエアベアリングステージ上のレンズを動かして原子気体の運動を励起し，スロッシングモードを観測することで測定した．図 30(c) に原子チャンバーでの軸方向トラップ周波数の測定結果を示した．

一方，イオントラップまで原子を輸送したときの軸方向のトラップ周波数は光学系の都合上測定できなかったため，動径方向のトラップ周波数から計算した．

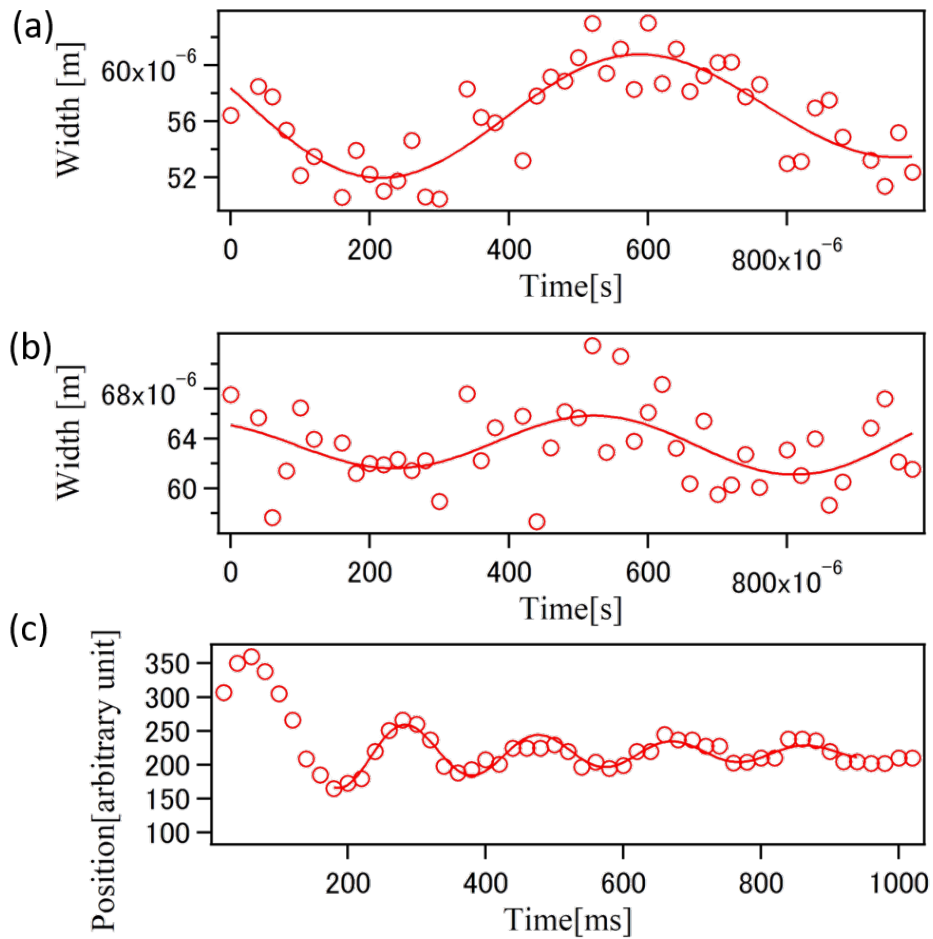


図 30 シングルビームトラップのトラップ周波数測定. (a), (b) イオントラップまで輸送した原子のシングルビームトラップの動径方向周波数の測定結果, 動径方向の独立した二軸のブリージングモードを観測した. (c) 原子チャンバーでのシングルビームトラップの軸方向トラップ周波数測定結果. 軸方向のスロッシングモードを観測した.

4.6.6 原子の寿命

光トラップ中の原子気体はバックグラウンドガスとの散乱で光トラップから失われる，すなわちロスする．そのため，光トラップ中で保持しているだけでも時間とともに数が減少していく．この原子気体の寿命はチャンバー内の真空度に依存する．原子数変化に伴う原子気体密度の変化はイオンとの散乱レートに影響するため原子とイオンの散乱を行う際に把握する必要がある．

図 31 にイオントラップの中心まで輸送したときの原子気体の寿命測定の結果を示す．実線は指数関数によるフィット結果であり，これよりイオンチャンバー内の原子の寿命は 8.1 秒と測定された．

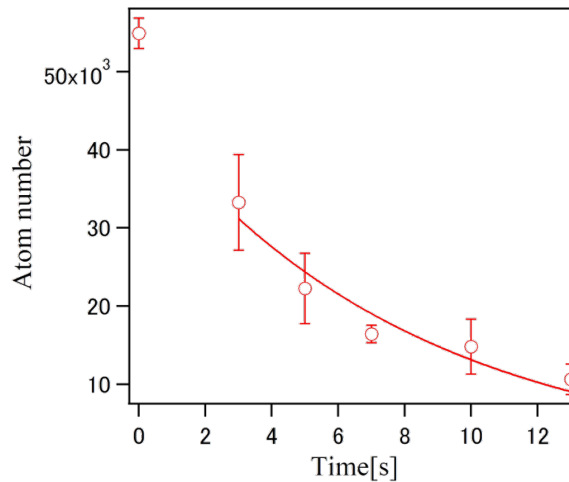


図 31 イオンチャンバーでの原子の寿命測定．横軸はシングルビームトラップの保持時間であり，縦軸は原子数である．

4.7 カルシウムイオンの捕獲と冷却

4.7.1 イオントラップ

イオンチャンバー

イオンチャンバーは原子チャンバーの八角柱型のチャンバーから枝分かれして取り付けられており、主な用途であるカルシウムイオンの捕獲・冷却に加えて原子とイオンの混合実験も本チャンバー内で実現した。イオンチャンバーは八角柱型で、その8つの側面のうち7面にはICF70のビューポートを取り付け、残り1面にはフィードスルーを取り付けイオントラップの電極の配線を行った。また、2つの底面にもビューポートを取り付けた。

原子チャンバーとイオンチャンバーの間は40 cm 離れており、その間には中性原子気体の撮像に用いた回転導入器にとりつけたミラーとゲートバルブが取り付けられている。イオントラップはしばしば交換することがあったためゲートバルブを締めて原子側の真空を破壊せずにイオントラップの交換を行えるようにした。

また原子チャンバーと40 cm 離れている関係でコンダクタンスが悪く、真空度が悪くなりやすかったためにイオンポンプを取り付けてイオンチャンバー内の排気を常に行った。

イオントラップの構成

カルシウムイオンの捕獲に用いたイオントラップはリニアパウルトラップを使用した。リニアパウルトラップの構造と性質については3.1.3に詳しく記述した。ここでは実際に実験に用いたイオントラップの構造と実際にトラップ条件について記述する。

実験に用いたイオントラップはリニアパウルトラップの中でも分割ブレード型リニアパウルトラップと呼ばれる構造を持つ。図32にトラップ電極の模式図を示した。以下ではブレード平行方向を軸方向(z 軸方向)と呼び、それに直交する方向を動径方向(x, y 軸方向)と呼ぶ。

分割ブレード型リニアパウルトラップにおいては4枚の向かい合った電極が双極面や円形ではなく板状の形をしている。向かい合ったブレード先端部分は丸みをもたせ、双極面に近づけている。また二枚一組のRF電極にはRFを印加し、動径方向の閉じ込めを行った。

第 4 章 実験装置と手法

一方で残りの向き合った二枚の電極はそれぞれ三分割されている．中央の一对の電極を GND 電極と呼んでおり，RF の GND に設定した．残りの二対はそれぞれ END1, END2 電極と呼んでおり，それぞれに静電圧を加え軸方向の閉じ込めを行った．

円柱状の一对の COMPENSATION 電極はマイクロモーションを補正するために取り付けられた電極であり，片方を接地し，もう一方に静電圧を加えてイオンのマイクロモーションの補正を行った．詳細は 4.9 にて後述する．

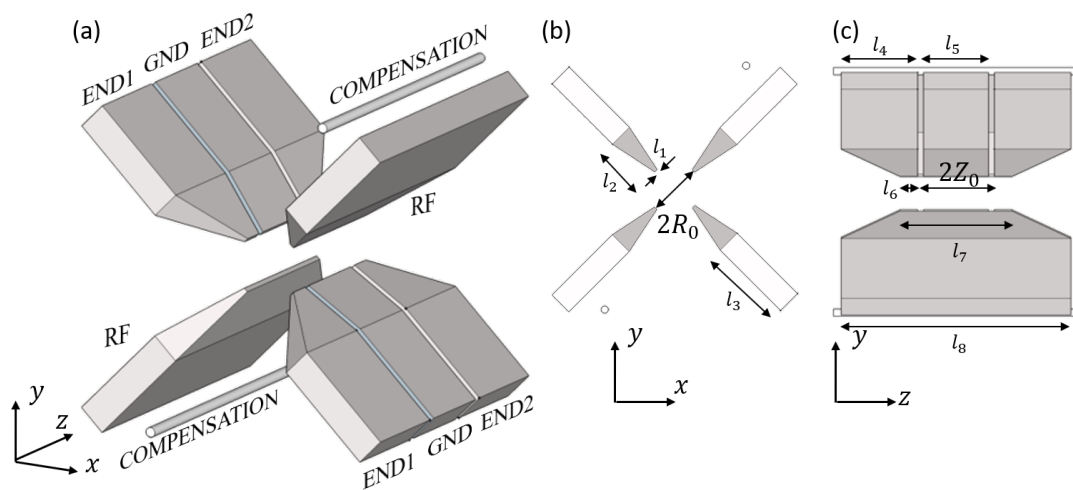


図 32 ブレード型リニアパウルトラップ．(a)5 対，合計 10 枚の電極から構成されている．RF 電極に RF を印加し，GND 電極は RF の GND に設定した．END1 と END2 電極対は軸方向の閉じ込めを担っており，それぞれ静電圧を印加した．COMPENSATION 電極対はマイクロモーションの補正に用いた電極である．(具体的な使用方法については 4.9)

本研究では寸法の異なる二つのブレード型リニアパウルトラップを用いた．片方はサイドバンド冷却用にラム・ディッケ領域にカルシウムイオンを閉じ込めるために設計されたため，もう一方に比べ電極間サイズが小さいという特徴を持つ．以下表 10 に電極のサイズを記した．表中ではサイズの異なるリニアパウルトラップをタイプ 1，タイプ 2 とそれぞれを呼称する．第 5 章の実験結果のうち 5.2 から 5.5 まではタイプ 1，5.6 はタイプ 2 のリニアパウルトラップを用いた．

表 10 ブレード型イオントラップの寸法

	タイプ 1	タイプ 2
R_0	1.3 mm	0.6 mm
Z_0	5 mm	3.4 mm
l_1	0.8 mm	0.8 mm
l_2	6 mm	6 mm
l_3	8 mm	8 mm
l_4	12.3 mm	13.3 mm
l_5	5 mm	3 mm
l_6	4.3 mm	5.3 mm
l_7	14 mm	14 mm
l_8	30 mm	30 mm

RF の発生と増幅

パウルトラップは高周波 (RF) 電場を用いてイオンの閉じ込めを行う。本研究では RF 発生に二つの手法を用いており一つは RF 増幅回路、もう一つはヘリカル共振器 [116] である。RF 増幅回路は上項 4.7.1 に記したイオントラップのうちタイプ 1 のイオントラップに対して使用した。一方のヘリカル共振器はタイプ 2 のイオントラップに対して用いた。以下に仕様について述べる。

RF 増幅回路はトロイダルコアに導線を巻き付けて自作したトロイダルコアトランスを使用した増幅回路であり、ファンクションジェネレータから出力した正弦波を増幅し、イオントラップの RF 電極に接続し RF 電場を発生させた。この増幅回路で増幅した RF 周波数は 3-5 MHz 程度であり、トランスの巻数比を変えることで共鳴周波数を調整できる。実験に用いた典型的な値として表 11 にまとめた。

タイプ 2 のトラップは Ca^+ のサイドバンド冷却を行うために準備されたトラップである。そのため RF の発生装置もサイドバンド冷却に必要なパラメータを満たす周波数や出力に合わせて設計した。

サイドバンド冷却を行うためにはイオンをラム-ディッケ領域まで閉じ込める必要がある。この領域ではイオンの運動が光の波長以下の領域に局在している。ラム-ディッケの基準を満たすための必要条件として以下の式 (138) で表されるラム-

ディッケパラメータ η が 1 より十分小さくなる必要がある。

$$\eta = \sqrt{\frac{E_{\text{recoil}}}{\hbar\omega}} \quad (138)$$

ただし、ここで反跳エネルギー E_{recoil} は

$$E_{\text{recoil}} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\text{ion}}} \quad (139)$$

である。ただし、 ω はイオントラップ周波数、 k はイオンの任意の準位間の緩和に伴い放射される光の波数（ここではサイドバンド冷却に用いる $S_{1/2} \leftrightarrow D_{5/2}$ 遷移）を示す。

式 (138) からわかるようにラム-ディッケパラメータが 1 より十分小さいとき、反跳エネルギーよりもイオンの振動状態の準位間エネルギーの方が十分大きいことを示す。これは、光の放出によって振動状態が変わらないことを示す。

サイドバンド冷却に用いる光の波長は $^{40}\text{Ca}^+$ の場合 729 nm であるためトラップ周波数を上昇させてラム-ディッケパラメータを小さくしなければならない。そこで $\eta = 0.098$ になるように $\omega = 2\pi \times 1$ MHz のトラップ周波数を実現することにした。このトラップ周波数を実現するためには式 (100) から印加すべき RF の振幅が求まるが、このとき留意しなければならないのは式 (101) で与えられる q パラメータも RF 振幅に比例するため、 q パラメータも同時に上昇してしまうことである。すなわち、ラム-ディッケパラメータを小さくするためには RF 電圧を上昇させる必要があるが、同時に q パラメータを小さくするために RF 周波数も上昇させる必要がある（イオントラップの安定条件については 3.1.2 を参照）。そこでヘリカル共振器を用いた RF の増幅を行った。

ヘリカル共振器は文献 [117] を参考に銅製のシールドの役割を果たす筒と二つの同軸上に配置された銅製のコイルから構築した。二つのコイルのうち小さいものをアンテナコイルと呼び、ファンクションジェネレータの正弦波を RF アンプで増幅した信号を入力した。もう一方のヘリカルコイルは増幅を行うためのコイルであり、出力端をイオントラップの RF 電極に接続した。イオンの捕獲に用いた典型的な値は表 11 に記述した。

表 11 RF 周波数と振幅の典型値

	タイプ 1	タイプ 2
RF 周波数 Ω_{RF}	$2\pi \times 4.8 \text{ MHz}$	$2\pi \times 24 \text{ MHz}$
RF 振幅 V_{RF}	44 V	200 V

4.7.2 イオンの生成

数万個から数百万個を捕獲するリチウム原子とは対照的にカルシウムイオンは数個から十数個といった小数個を捕獲するため、原子源や生成方法がリチウム原子と大きく異なる。また中性カルシウム原子を光イオン化することでカルシウムイオンを生成した。本節では熱カルシウムの生成から光イオン化光源、原子の光イオン化等を記述する。

本実験では質量数 40 のカルシウムの一価の正イオン、 $^{40}\text{Ca}^+$ を用いた。次項で詳述するカルシウム源には安定同位体が含まれた中性のカルシウム金属固体を用いたので選択的に ^{40}Ca 原子の電子をはぎとることでイオン化させる必要がある。そこでカルシウムのイオン化エネルギー相当以上のエネルギーを光で与える光イオン化を採用した。

図 33 に ^{40}Ca 原子の準位構造を示す。カルシウム原子の第一イオン化エネルギーは 6.12 eV であり、これを光の波長で表すと 203 nm となり光源を準備することが難しい。そこで $4^1S_0 \leftrightarrow 4^1P_1$ の遷移を 423 nm レーザーによって励起し、さらに連続状態まで 375 nm レーザーでエネルギーを与えることで、電子を取り去った。 4^1P_1 から連続状態までは 3.19 eV であり、イオン化するためには 389 nm 以下の波長の光を照射すればよい。

なお光イオン化以外にも電子線を照射してイオン化する方法がよく知られている。この手法は電子線がパッチポテンシャルを形成しやすく後述するマイクロモーションをイオンを捕獲するたびに補正する必要がある。散乱エネルギーを制御する必要がある本実験とは相性が悪いため採用していない。

光イオン化レーザーをイオントラップへ照射した光学系についてはここでは触れず、4.7 中で記述する。

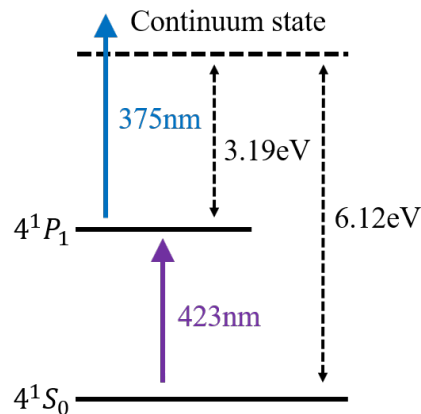


図 33 Ca 原子の準位.

カルシウム原子源

本研究では典型的に数個から十数個のカルシウムイオンをイオントラップ中に捕獲し、リチウム原子と相互作用させた。小数個のイオンを捕まえば事足りるため上記したリチウム原子オーブンのように大規模なオーブンは必要ない。むしろイオンは外部電場に敏感なため大量のカルシウム蒸気をイオントラップに吹き付けないことが求められる。そこで原子源には小型のオーブンをイオントラップの近くに配置し、カルシウムイオンをトラップする際のみ電流を流し、加熱して中性カルシウム原子の蒸気を得た。

実験に用いたカルシウム原子源は Alvac 社の metal vapor source である。この原子源には単体のカルシウム固体が封入されており、アルゴンガスを充填した後インジウムでシールされている。カルシウムには質量数 40, 42, 43, 44, 46, 48 の安定同位体が存在するが、使用した原子源はこれらの同位体を含む。本研究では質量数 40 の同位体の一価プラスイオンである $^{40}\text{Ca}^+$ を対象にした。 ^{40}Ca は存在比 96.9 % であり、同位体シフトにより光イオン化の周波数も異なるため実験に耐えるレベルで用いることができた。

図 34 が設置したカルシウム原子源とイオントラップの配置である。原子源の開口から漏れるカルシウムの蒸気がイオンチャンバー中に配置されたイオントラップの中央を通るように据え付けた。カルシウム原子がイオントラップに蒸着されないよう原子源の出射口とイオントラップ中央の間にピンホールを設けた。これはカルシウム原子がイオントラップ電極に付着し、光イオン化レーザーでイオン化される

と電場を生じる。これはパッチポテンシャルと呼ばれ、トラップ条件をゆるやかに変化させるためこれを防ぐために設置したものである。

カルシウム原子源はインジウムでシールされているため実際に使用するときにアクティベーションする必要がある。アクティベーションはベイキング時に原子源に電流を流すことで行った。ベイキング後、カルシウムイオンを捕獲する際は典型的に3 A 程度を原子源に流してカルシウム原子気体を得た。オープンに流す電流はイオントラップ条件や捕獲したいイオンの個数などによって変化させており、初めてイオンを捕獲するときなどイオントラップの条件が最適値から遠い場合は3.5-4.0 A 程度、トラップを最適条件に合わせた後は2.5-3.0 A 程度の電流をオープンに流し、特に単一イオンを捕獲する際は電流を流し始めてからイオンが捕獲されるまで1分程度になるような電流値で実験を行った。オープンの電流値は捕獲するイオン数の制御という観点からも重要だが、イオントラップへの蒸着を極力抑えるという点においても重要であり、この観点からはなるべく電流を下げる方が良い。しかしながら実験の都合上イオンのロード時間として許容できる範囲で実験を行った。

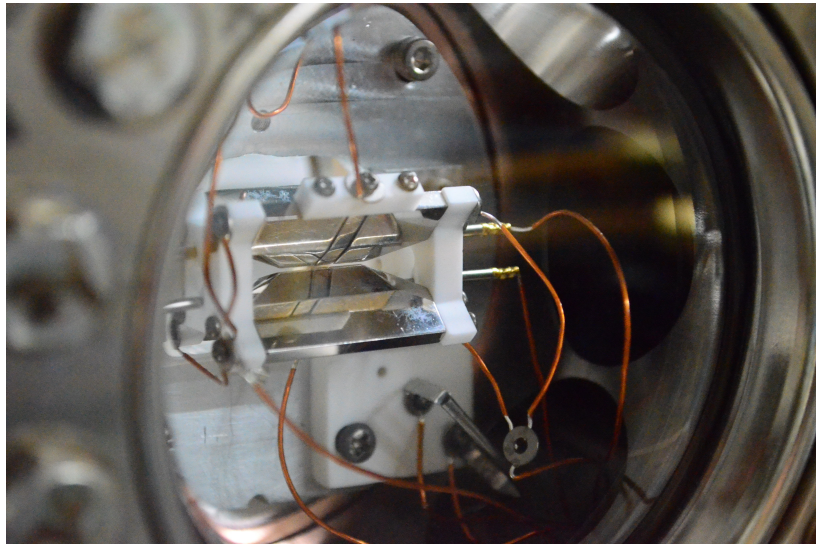


図 34 イオントラップと Ca 原子源の配置。中央が実験に用いたブレード型リニアパウルトラップ。中央下に見える筒が Ca 原子源であり、出射口がイオントラップの中央を向くように取り付けられた。図中に見えるオレンジ色の線はイオントラップの電極の配線である。

423 nm 光源

光イオン化の $4^1S_0 \leftrightarrow 4^1P_1$ 遷移励起用の 423 nm 光源として半導体レーザー NICHIA NDV4A16E を用いてリトロー型の外部共振器型半導体レーザーを構築した。回折格子はミラーマウントに設置し、ミラーマウントに取り付けたピエゾ素子で波長を微調できるようにした。半導体レーザーには Thorlabs 社製「LDC202C」半導体レーザーコントローラーを用いて約 60 mA で駆動し、9.5 mW の出力を得た。また発振周波数を安定化するため温調した。温調にはペルチェ素子を半導体レーザーと外部共振器の下に設置し Thorlabs 社製「TED200C」で行った。なお温度センサーとして AD590 を用いた。

図 35 に光源の光学系を記した。出射されたレーザー光はアイソレータ通過させたうえでファブリ・ペロー共振器と HighFinesse 社製の波長計にそれぞれ $550 \mu\text{W}$, $100 \mu\text{W}$ 入射させた。ファブリ・ペロー共振器でシングルモード発振していることを確認し、波長計にて周波数を確認、調整した。また 6.3 mW の光をマルチモードファイバーにカップリングさせイオントラップまで導いた。なおファイバー後の光学系は 4.7.3 に記した。

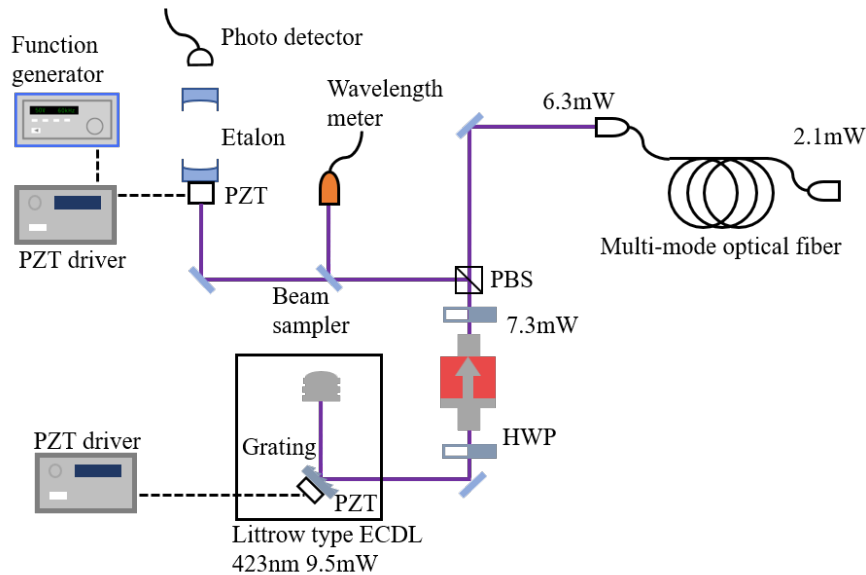


図 35 423 nm 光学系。リトロー型の ECDL の出射レーザーをマルチモードファイバーに入射してイオントラップへまで伝播させた。ファイバーの出射端から 2.1 mW の出力を得た。ファイバー後の光学系は 4.7.3 に示した。

カルシウム原子の $4^1S_0 \leftrightarrow 4^1P_1$ の遷移の自然幅は 35.4 MHz であるので正確な遷移周波数に調整するには何らかの基準をもとに調整する必要がある。さらにカルシウム原子源から噴き出したカルシウム原子は 423 nm の入射に対して斜めから対向する配置になっている (図 34 を参照) ため、ドップラーシフトによって共鳴周波数は大きくずれていると考えられる。そこでカルシウム原子に対してレーザーを照射した状態でレーザー周波数を掃引し、カルシウム原子からの蛍光が最も大きくなるように調整した。 $4^1S_0 \leftrightarrow 4^1P_1$ の蛍光を図 36 に示す。図中央のイオントラップのスリット部分の中心あたりに見える筋が $4^1S_0 \leftrightarrow 4^1P_1$ の蛍光である。

前述のように使用した原子源には同位体原子が含まれているが、そのほとんどが ^{40}Ca であるため最も蛍光が大きくなる波長が多数の ^{40}Ca を励起出来ていると考えた。しかしながら時として同位体原子が励起、イオン化され捕獲されることもあった。これら同位体は今回準備した冷却光ではレーザー冷却されず、加熱をもたらす等、実験において歓迎されるものではない。こういった事態をなるべく防ぐため、カルシウム原子の遷移周波数の同位体シフトを用いた。カルシウム原子の $4^1S_0 \leftrightarrow 4^1P_1$ 遷移は ^{40}Ca が最も長波長側にあり、質量数の増加とともに短波側にずれる [118]。また前述のように原子源とレーザー光の配置上、共鳴は全体的に短波側にドップラーシフトすると考えられるためレーザーを最も蛍光が大きくなる波長からわずかに長波長側にずらすことでほとんど ^{40}Ca のみに共鳴させることができると考えられる。実際、短波側にレーザーをずらすと同位体が捕獲される (冷却レーザーには共鳴しないため蛍光は発しないが、冷却された ^{40}Ca との散乱により共同冷却され捕捉できる) 確率があがり、長波側にずらすとほとんど見られることはなくなった。

375 nm 光源

423 nm 光源によって 4^1P_1 に励起されたカルシウム原子を連続状態にまで励起する光源として 375 nm を用いた。前述のように連続状態まで励起するためには 389 nm 以下の波長のレーザーを照射すればよいため外部共振器型半導体レーザーを構築する必要はない。そこで半導体レーザーである NICHIA NDU1113E をフリーランで使用した。電流を典型的に 56 mA 流し駆動し、640 μW の出力を得た。具体的な光学系については 4.7.3 に記す。

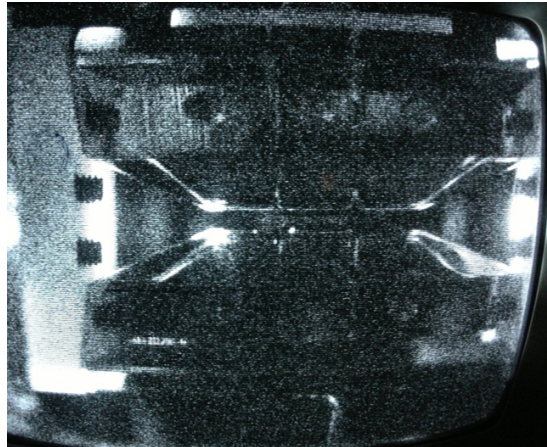


図 36 Ca 原子の $4^1S_0 \leftrightarrow 4^1P_1$ 蛍光. イオントラップのスリット中央の付近に見える筋が Ca 原子の蛍光である.

4.7.3 イオンの冷却

イオントラップのトラップ深さは非常に深く 1 万ケルビン程度 (4.7.1 中で示したタイプ 1 のイオントラップで $\omega = 2\pi \times 252$ kHz で計算) であるためカルシウム原子源から放出されたエネルギーの高いままの原子であっても光イオン化することで捕獲することが可能である. この高温のカルシウムイオンをドップラー冷却によって絶対零度近傍まで冷却した. 図 37 に $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの準位を示した. カルシウムイオンのドップラー冷却には 397 nm レーザーと 866 nm レーザーの二本を用いた. 397 nm レーザーは冷却遷移 $4^2S_{1/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 励起用である. 励起状態 $^2P_{1/2}$ は 10 分の 1 程度の確率で $3^2D_{3/2}$ へ脱励起する. $3^2D_{3/2}$ は準安定状態であり寿命が約 1 s であるため, この準位にいる間は冷却がすすまない. そこで $3^2D_{3/2}$ 準位にいるイオンを直ちに冷却遷移に戻し, 冷却サイクルをつくるために 866 nm レーザーでリポンピングした. 本節では冷却に用いたレーザー光源や光学系について記す.

冷却光源

カルシウムイオンの $4^2S_{1/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移を励起するためには 397 nm のレーザーを準備する必要があるが, 一般に半導体レーザーは近赤外や可視光の長波長側には多く発振可能な製品がある一方青色や紫外領域ではその数は乏しい. そこで 397 nm の倍の波長である 794 nm の外部共振器型半導体レーザーを準備し, これ

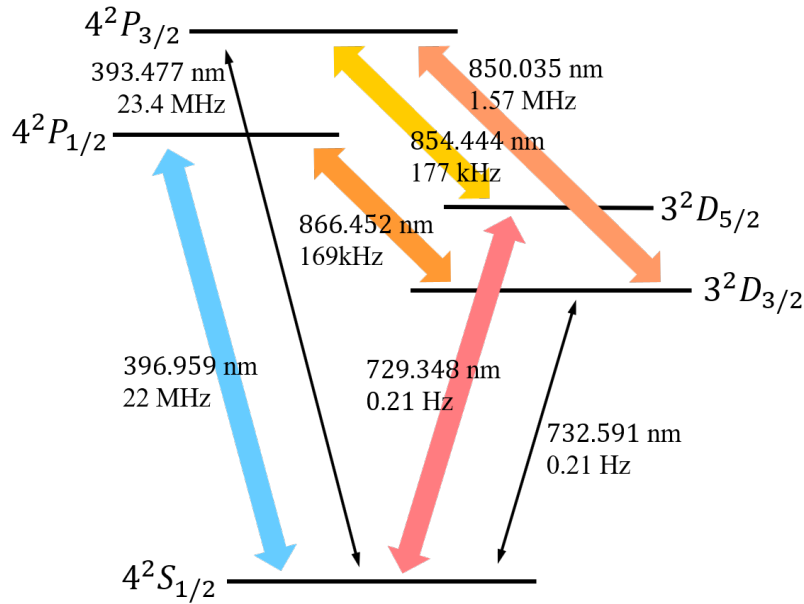


図 37 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの準位. 色付きの矢印は該当波長のレーザーを開発して照射した. 波長と自然幅は [119] を参照した.

を非線形結晶に入射することで第二高調波として 397 nm レーザー光を得る方針をとった.

基本波となる 794 nm のレーザーは干渉フィルター型の外部共振器型半導体レーザーを構築した. 半導体レーザーに 120-150 mA 程度の電流で駆動し, 30-45 mW の出力を得た. これらの光学系を図 38 に示した. 外部共振器型半導体レーザーの出力はアイソレーターを通過させた後, 一部を波長計とファブリ・ペロー共振器に入射した. また残りの 20 mW 程度をテーパアンプに入射し増幅した. テーパーアンプには典型的に 1200-1500 mA の電流を流し, 200-300 mW の出力を得た.

テーパアンプによって増幅した光を非線形結晶 BIBO に入射したが, そのまま入射しても十分な第二高調波を得ることはできない. そこでなるべく多くのパワーの 794 nm 光を結晶に入射するために共振器を構築し, レーザーパワーを光共振器内部で増幅することで多くの倍波を得られるようにした. 倍波共振器はボウタイ型を採用している. ボウタイ型共振器を採用したのはリング型の共振器であれば定在波がたたず, 進行波が共振器内部に存在するので, 空間的ホールバーニングが起これず効率的に高調波を得られるからだ. ボウタイ共振器は四枚のミラーから成り立っており, うち二枚は曲率がついており, 残り二枚は平面ミラーである. この曲率が

ついたミラーは結晶に基本波をしぼって照射するためである。

共振器を構成しても、ただそれだけではカルシウムイオンの共鳴周波数の半分に合わせる必要のある基本波に共鳴する共振器長にはならない。加えて機械的振動や空気の振動、温度変化による屈折率の変化や部品の伸び縮みがある以上共振器長を波長の程度のオーダーで常に維持し続けるのは不可能に近い。そこでリング共振器を構成するミラーの一つに piezo 素子を取り付け PDH 法 (Pound-Drever-Hall 法) [114] によって共振器長を制御した。その際にエラー信号は FM 分光法 [109] で得たが、そのためにはレーザー光に変調を加える必要がある。これはテーパアンプに電流変調を加えることで実現した。倍波共振器からの戻り光をフォトディテクターに入射し、エラー信号を得て、ロック回路によって piezo 素子にフィードバックした。こうして基本波 794 nm 光を 100-150 mW 入射することによって第二高調波 397 nm 光を 300 μ W-3 mW 程度得た。

397 nm 光は以上のように PDH 法により共振器長を安定化させることで定常的に得られるようになったが、外部からの振動によってこの安定化は容易に失われてしまう。一度安定化が外れると再度エラー信号に対してロックをかけなおす (安定化する) 必要があり、その間カルシウムイオンのレーザー冷却はできない。これは実験上の大きな制約になってしまうため、自動でロックをかけなおすロック回路を作製した。この回路は共振器を透過してくる基本波をフォトディテクターでモニターし、その出力が一定以下になると自動的に piezo 素子を掃引し、ロック点を探す仕組みである。詳しくは文献 [120] にある。

倍波共振器から出力された冷却光を AOM に入射し、 -1 次光を取り出し、シングルモードファイバーへカップルさせた。このファイバーを透過させた光をカルシウムイオンの冷却光として照射した。AOM を用いたのは冷却光を高速にスイッチし、サイドバンド冷却やカルシウム内部状態の光ポンプを容易に行うためである。一方 AOM の 0 次光を再度別の AOM に入射させ、その -1 次光を別のシングルモードファイバーに入射した。この光はサイドバンド冷却などでカルシウムイオンを特定の磁気副準位にポンプする際に用いるポンプ光として用いた。なお、二つの AOM は同じ RF 周波数で駆動し、同じ回折の次数を選んだが、これは冷却光とポンプ光が別の周波数にならないようにするためである。

最後に冷却光の周波数安定化について述べる。リチウム原子の飽和吸収分光 4.4.2 や光イオン化 4.7.2 においても述べたが、何らかの基準を用意して周波数を安定化する必要はある。カルシウムイオンに対して飽和吸収分光を行うのは十分な S/N を得

づらいのでファブリ・ペロー共振器を基準として長期安定度を得ることとした。具体的には 794 nm 光を長さ 7 cm のファブリ・ペロー共振器に入射して得られた透過信号にサイドオブフリンジ法にて安定化した。サイドオブフリンジ法とはスペクトルの中腹辺りをエラー信号として用いて安定化する手法である。ところでカルシウムイオンを捕獲・冷却する際は冷却光の周波数掃引を行う必要があるため、ファブリ・ペロー共振器にピエゾ素子を取り付け、このピエゾ素子に印加する電圧を掃引することで共振器長を変化させ、この共振器に安定化した基本波レーザーを掃引した。ファブリ・ペロー共振器のピエゾドライバーは制御コンピュータにも接続し、制御コンピュータから周波数の制御を行えるようにした。

共振器を基準に用いる時に必ず言えることだが、共振器長が外部の温度変化などで変化すると基準そのものがずれてしまう。そこで共振器長を安定化するためにアルミ製の金属箱で二重に囲って外側のアルミ箱をペルチェ素子で温調した。さらに全体を金属箱にいれ共振器を外部からの振動や気圧の急激な変化から守った。この金属箱には 794 nm 光に他に 866 nm 光, 854 nm 光用のファブリ・ペロー共振器も安置した。

一方で 794 nm 光の安定化に用いたファブリ・ペロー共振器は決して高精度なものではなく、上記のように外気の変化を受けにくい措置を講じても、数十秒から数分たつとゆっくりとイオンが発する蛍光が上下するのが観測できた。カルシウムイオンの $4^2S_{1/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移の自然幅は約 20 MHz であるから、数 MHz のシフトで冷却や蛍光に影響がでると考えられる。冷却光の 1 MHz の変化は基本波の 2 MHz の変化に対応する、これは共振器長の変化にして 0.4 nm 程度となる。するとアルミニウムで作ったファブリ・ペロー共振器では 200 μ K 程度の温度安定化を行わなければならない。しかし温調はせいぜい数十 mK 程度の安定化しかできない。実験中は制御コンピュータから共振器についたピエゾを制御して蛍光を見ながら周波数を調整した。

そこでより長期安定度を得るために、トランスファー共振器による安定化を行なった。この手法ではルビジウム原子の飽和吸収線に別のファブリ・ペロー共振器を安定化し、この共振器に対して 794 nm 光を安定化した。

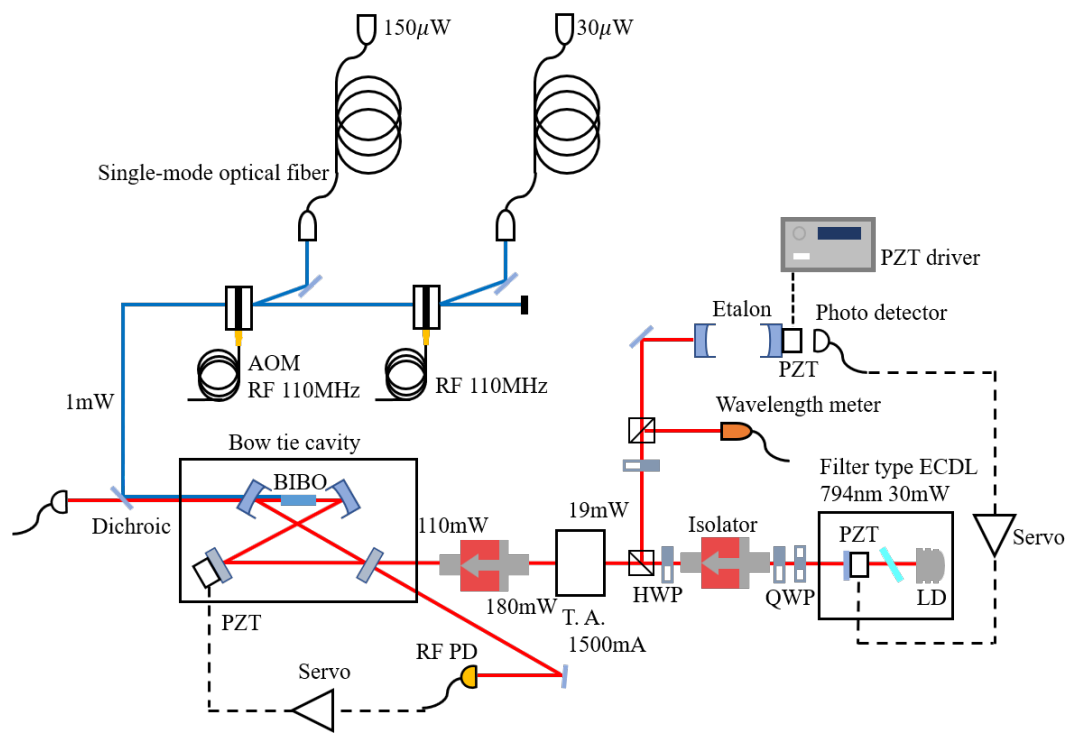


図 38 397 nm レーザー光学系.

リポンプ光源

準安定状態 $3^2D_{3/2}$ に緩和してしまったカルシウムイオンを冷却遷移に戻すため $3^2D_{3/2} \rightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移励起用の 866 nm をリットマン型の外部共振器型半導体レーザーで実現した。図 39 に光学系を示した。120-150 mA の電流で駆動したレーザーの 20-30 mW 程度得られた出力をアイソレーターを通過させ、一部は波長計に入射し発振波長の監視を行なった。また一部はファブリ・ペロー共振器に入射してシングルモード発振の確認とサイドオブフリンジ法での周波数安定化を行なった。残りは透過型の回折格子を通した後、音響光学素子を通過させ、+1 次光をシングルモードファイバーに入射した。

$3^2D_{3/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移の飽和吸収分光を行うには十分な信号を得ることが難しいため、866 nm 光はその都度、波長計の読みとカルシウムイオンの蛍光を頼りに共鳴周波数を探した。この際、リットマン型の外部共振器型半導体レーザーのピエゾ素子を駆動することで共鳴周波数を探索した。

サイドオブフリンジ法にて安定化を行ったファブリ・ペロー共振器は共振器長 7 cm で 4.7.3 に記した共振器と同様にアルミの二重箱に納め温調した。共振器にはピエゾ素子を取り付け共振器長を制御コンピュータから微調できるようにした。共振器のピエゾ素子を微調するとこの共振器に安定化された外部共振器型半導体レーザーのピエゾを調整することができる。こうして実験中にカルシウムイオンの冷却効率や状態が変化しないように、常に蛍光が一定になるように周波数の調整を行った。

回折格子を通したのは 866 nm 以外の波長成分を完全に切り捨てるためである。カルシウムイオンの $D_{5/2}$ 状態の寿命測定を行なった際に 866 nm のレーザーによって寿命が短くなる効果が見られた。これはレーザーに含まれた成分によって $D_{5/2} \leftrightarrow P_{3/2}$ の遷移を励起していたためだと思われる。こうした成分は $D_{5/2}$ 状態での原子-イオン散乱の実験や原子との混合による $D_{5/2}$ 状態の寿命変化を測定する実験、イオンのサイドバンド冷却において好ましくない結果をもたらすので気をつけるべき点である。

二つのファイバーに通したのは一方はイオントラップの軸方向の冷却に用いて、もう一方は動径方向の冷却に用いた。詳しくは次項 4.7.3 にて述べる。動径方向冷却のファイバーは 854 nm, 850 nm のレーザーのファイバーと共有した。偏向を用いて両者を重ねて入射している。

AOM は約 80 MHz の RF で駆動し，+1 次回折光を使った．AOM を用いたのは高速に光をスイッチするためである．光をスイッチによってカルシウムイオンを $3^2D_{3/2}$ 状態にポンプすることを目的とした．

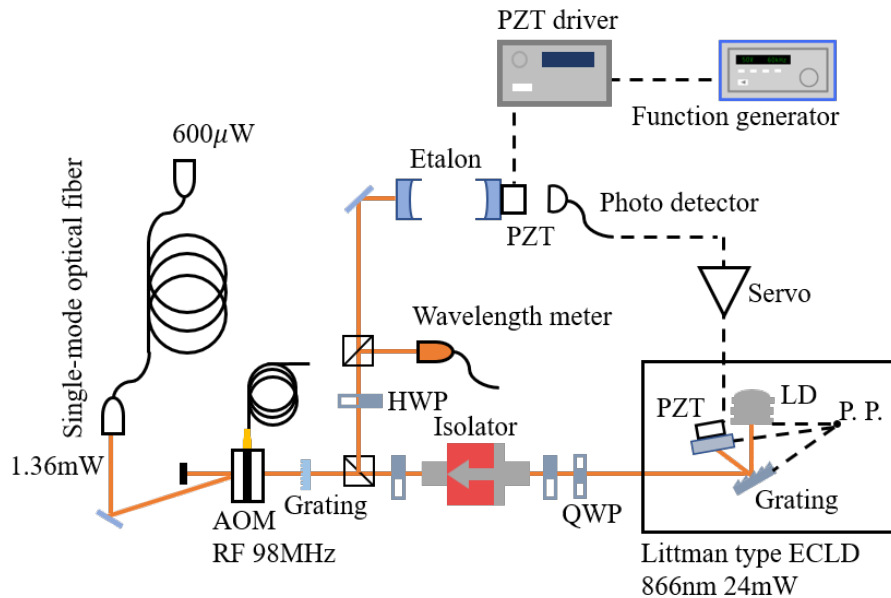


図 39 866 nm レーザー光学系.

光イオン化・冷却光学系

上では光イオン化あるいは冷却光レーザーや光学系について述べたが，ここではイオントラップ中のカルシウムイオンに対して照射するための光学系について述べる．4.10.2 に後述するサイドバンド冷却用の 729 nm レーザーの光学系も一部記述する．

カルシウムイオンは捕獲はイオントラップによって行われているため，MOT のように 3 軸 6 方向からレーザーを入射する必要はなく，1 軸 1 方向から入射すれば事足りる．そこで今回用いたリニアパウルトラップでは軸方向の光のアクセスが良いため，はじめイオンを捕獲する際には軸方向から冷却光を入射した．しかしイオンの軸方向と動径方向の運動のカップリングが悪いため軸方向と動径方向の両軸を冷却する必要があった．加えて 4.9.3 に記すマイクロモーションの補正ではレーザーの入射方向に感度を持つ手法を用いたため動径方向の x, y 軸いずれの方向からも冷却レーザーを入射する必要があった．以下に実際に構築した光学系の詳細を

記述する。

図 40 にイオントラップへ光イオン化光とドップラー冷却光またサイドバンド冷却光等を入射した光学系の模式図を示した。図中には実験中に頻繁に用いた軸方向冷却 (図中 axial cooling) と動径方向と軸方向を同時に冷却するために用いた冷却光の配置 (図中 radial cooling) について示した。

軸方向冷却について述べると偏波保持シングルモードファイバーから出射した 397, 866 nm レーザーとマルチモードファイバーから出射した 423 nm レーザーおよび半導体レーザーの出射光 375 nm をダイクロイックミラーと PBS (偏光ビームスプリッタ) にて重ね合わせイオントラップの軸を貫くように入射している。このとき、これらのレーザーはレンズでイオントラップに中心で焦点を結ぶようにした。

一方の動径方向の入射パスでは 397, 866, 850, 729, 854 nm のレーザーを入射した。397 nm のレーザーは PBS で分岐したものをダイクロイックミラーで別のファイバーから出射した 866 nm と 850, 854 nm のレーザーを重ねた。ただし、850 nm のレーザーは $D_{5/2}$ 準位にポンプするときのみ、854 nm レーザーはサイドバンド冷却を行うとき等のみ入射した (これらの光はファイバーの入射端側で重ね合わせた)。さらにサイドバンド冷却に使用する $S_{1/2} \leftrightarrow D_{5/2}$ 遷移を励起する 729 nm レーザーをダイクロイックミラーで重ね合わせて y - z 平面上を斜め方向からイオントラップのスリットを貫くように入射した。動径方向からの入射は斜めから入射したため、軸方向の冷却と動径方向の冷却を同時に効率的に行うことができるため、実験ではこの方向から冷却光を入射した。

またマイクロモーションの補正のために x 軸方向からも 397 nm レーザーを入射したが、このときは 866, 850, 854 nm レーザー用のファイバーの後にミラーを取り付け x - y 平面上を伝播させイオントラップのスリットを貫いた。

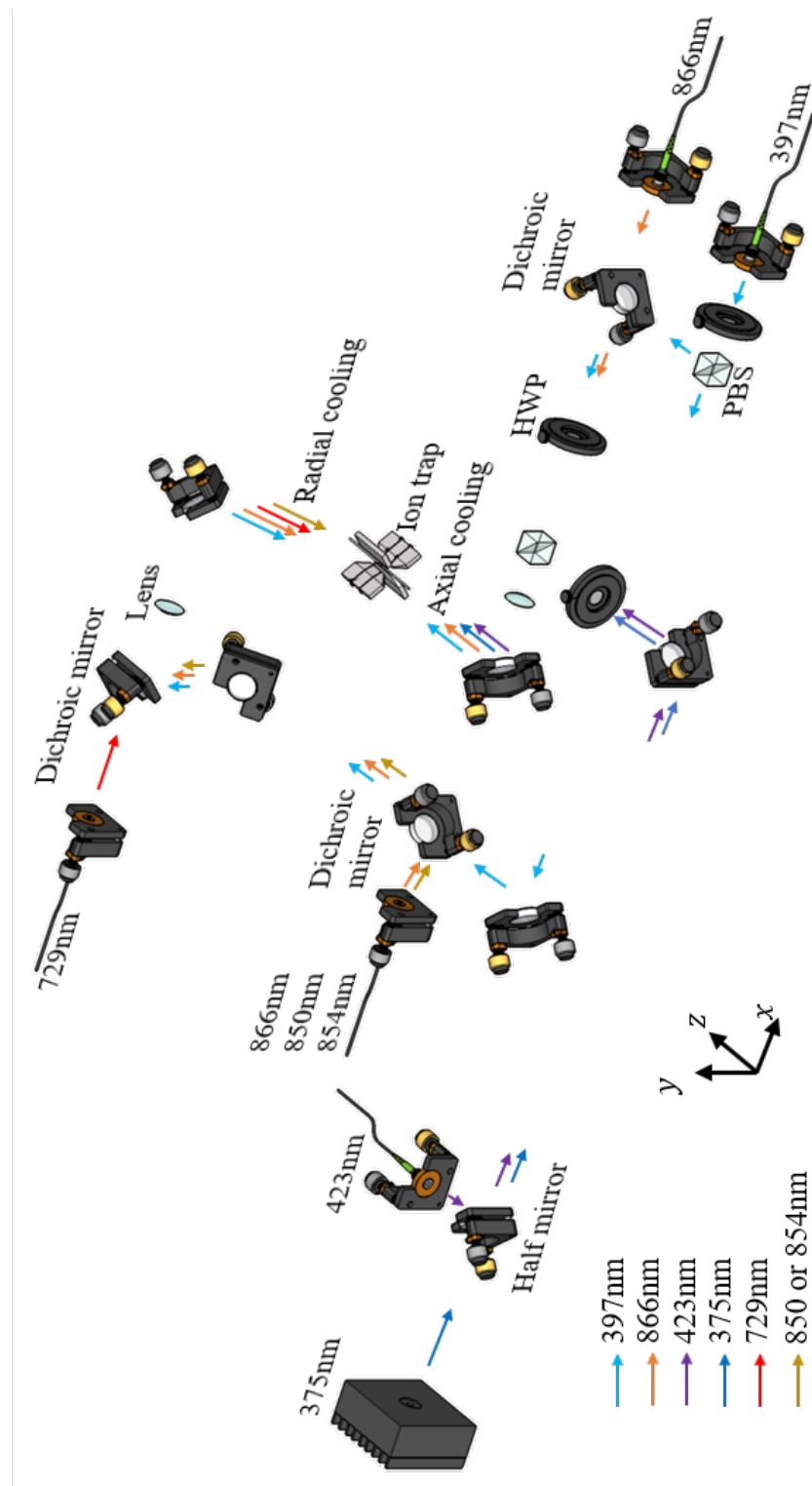


図 40 光イオン化・冷却光のイオンへの照射を行った光学系の模式図.

4.8 イオンの検出と撮像

4.8.1 イオンの検出と検出系

イオントラップに捕獲され、冷却光を照射したカルシウムイオンは $^2S_{1/2} \leftrightarrow ^2P_{1/2}$ 遷移の光を繰り返し吸収、放出する。この 397nm の蛍光を用いてカルシウムイオンの検出を行った。検出手法は二通り用いており、光電子増倍管 (PMT) と EMCCD カメラ (電子増倍 CCD カメラ) をそれぞれ使用した。ここではカルシウムイオンの検出の様子や撮像されたカルシウムイオンについて、その検出光学系を含めて述べる。

光電子増倍管

単一のカルシウムイオンが発する蛍光は非常に微弱であるため、高感度の光検出デバイスが必要となる。そこで光電子増倍管 (PMT: photomultiplier tube) を用いてカルシウムイオン蛍光の検出を行った。PMT とは光電効果を用いて光を電気信号に変換し検出する機構に加え、信号を増幅させることで検出感度を上げたものである。これは入射光によって放出された光電子 (外部光電効果) をダイノードへ導き二次電子を放出させ、これを繰り返すことで二次電子を増やし信号電流を増加させる機構による。実験では図 41 に示す浜松フォトニクス社製の PMT を用いた。また図にあるように PMT の受光部にアイリスとピンホールを取り付けた。これはイオンの蛍光以外の散乱光を遮断するためである。さらに本体はマイクロステージ上に据え付け細やかな位置調整を容易にした。

PMT は検出した光子をパルス状の電気信号として出力する。この PMT シグナルの数をフォトンカウンタによって計数し、カウント数に応じた電圧出力を得た。実験に使用したフォトンカウンタは Stanford Research System 社の SR400 Gated Photon Counter である。典型的に 100ms の間シグナルを計数し、フォトンカウント数 0 から 9999 回を D/A 変換し 0-10V で出力した。

EMCCD カメラ

PMT は蛍光量を高感度で測定できるが、イオンの正確な個数やイオン雲や結晶の広がりを知ることは難しい。そこで二次元的な蛍光の観測を行うために EMCCD カメラ (Electron Multiplying CCD camera, 電子増倍 CCD カメラ) を使用し

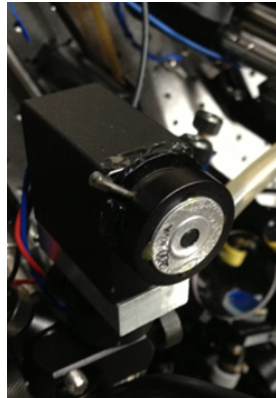


図 41 光電子増倍管. 受光部の前にアイリスとピンホールをつけ迷光を防いだ.

た. 上でも述べたようにイオンの蛍光は微弱で, 光の信号を増幅して観測することが望ましいので信号増幅機能を持つ EMCCD カメラが最適であったためである. 実験に用いたカメラは Princeton Instruments 社製の「ProEM-HS:512BX3」である. このカメラの撮像素子サイズは $512 \text{ pixel} \times 512 \text{ pixel}$ で一画素のサイズは $16 \mu\text{m} \times 16 \mu\text{m}$ である. 実験中は 256 倍の撮像ゲインで 0.5-10 秒程度露光して撮像した.

検出光学系

イオントラップ中の冷却された単一イオンはその温度と閉じ込めから数十マイクロメートルの領域に局在する. このようなイオンを直接上の受光素子で撮像するのは極めて困難なためイオン蛍光を対物レンズを通して拡大した像を光電子増倍管あるいは EMCCD カメラで観測した. 構築した撮像系を図 42 に示す.

シグマ光機社製の対物レンズ「SPHAL-5」をイオンチャンバーのビューポートの直近, イオントラップから 45 mm の位置に配置した. このレンズはワーキングディスタンス 45 mm, 開口数 0.13 である. 対物レンズを通過した蛍光をハーフミラーによって分岐し PMT と EMCCD カメラそれぞれに入射させた. 前述のようにイオン蛍光は非常に微弱なため蛍光以外の 397 nm, 866 nm 光あるいは光イオン化光である 423nm, 323nm 光といった散乱光に埋もれてしまいやすい. そこで 397 nm 付近の光のみを通過させる干渉フィルターを光電子増倍管あるいは EMCCD カメラの直前に設置した. これにより効果的に散乱光を取り除くことができたが, 光イオン化光は波長が 397 nm に近いいためバックグラウンドノイズとして検出された.

ハーフミラーの直前に置いたアイリスもカルシウムイオンが捕獲されているイオントラップ中心付近の光のみを取り出し、イオントラップ電極などでの散乱光を受光しないよう設置したものである。

上記のようにイオン蛍光は微弱なため撮像系のパスや受光機器は実験室の照明といった外部の光からも脆弱である。そこで機器パス全体を筒や布で完全に覆った。これらの措置を加え、迷光を防ぎカルシウムイオンの撮像系を構成した。

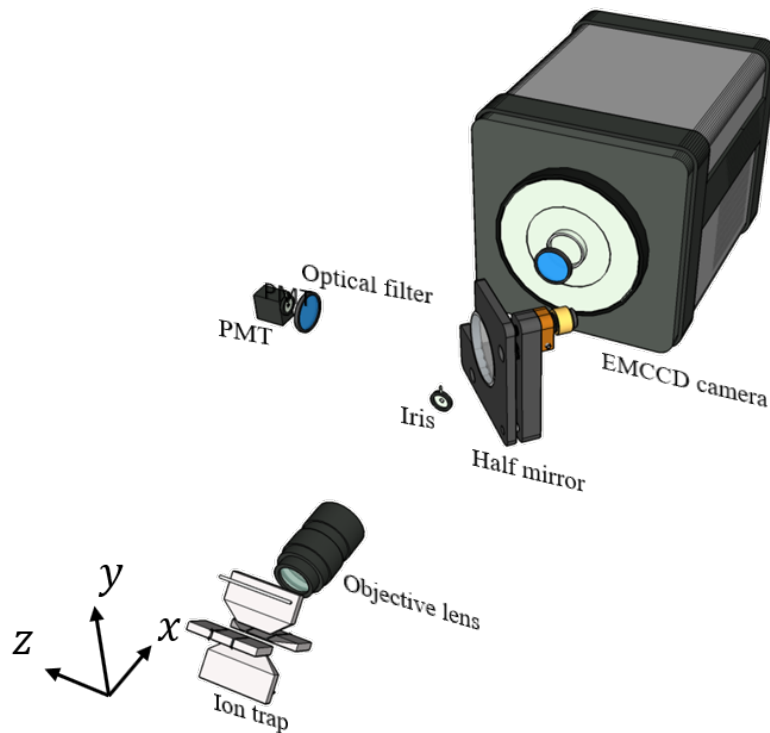


図 42 イオンの検出・撮像系の模式図。

イオンの観測

新たに設置したイオントラップを用いてカルシウムイオンを捕獲する際は、最適なトラップ条件が全くわからない状態である。そこで RF 電圧を上げ、トラップポテンシャルを深くして捕獲しやすいようにした。さらに冷却光を掃引しつつ共鳴周波数から大きく負に離調をとることで運動エネルギーの大きいイオンを検出しやすくした。

カルシウムイオンの検出方法としてはリパンプレーザーを遮断するとイオンの冷

却サイクルが正常に続かなくなるためイオンは蛍光を発しなくなる。これを利用してリポンプレーザーをスイッチしたときの蛍光の増減をカルシウムイオンの検出に用いた。

カルシウムイオンの捕獲が確認ができたなら RF の振幅を下げつつ、冷却光の離調を共鳴側に近づけていった。この後マイクロモーションの補正と呼ばれる作業を行い、カルシウムイオンの運動エネルギーを下げたがマイクロモーションの補正に関しては 4.9 にて後述する。

図 43 に EMCCD カメラで観測したイオンの蛍光画像を示す。図中のカルシウムイオンは一次元方向に並んでおり、この方向は閉じ込めの弱い軸方向 (z 軸) である。イオンは強力なクーロン斥力によって反発する。

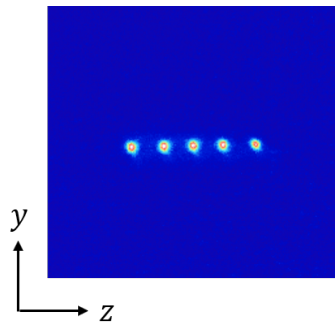


図 43 Ca^+ イオンの一次元鎖の蛍光画像。

4.8.2 トラップ周波数の測定

3.1.4 に示したようにイオンは近似的に調和ポテンシャルに捕獲されているとみなすことができる。この調和ポテンシャルのトラップ周波数は動径方向は式 (100)、軸方向は式 (92) のようにかける。ここではこのトラップ周波数の測定手法について述べる。

カルシウムイオンの運動を外部電場を用いて励起することでトラップ周波数を測定した。イオントラップ電極のいずれかに振動電圧を加えるとイオンのトラップポテンシャル全体がその信号の周波数で揺さぶられる。このときカルシウムイオンのトラップ周波数に外部電場の周波数が一致するとイオンの運動は共鳴的に励起されイオンの蛍光が減少する。すなわち、外部電場周波数を掃引し、そのときのカルシウムイオンの PMT 信号を観測することで測定を行った。

実際の測定は軸方向と動径方向のトラップ周波数測定で振動電圧を加える電極を変えた。軸方向の場合は END1 電極あるいは END2 電極に振動電圧を加え、動径方向の場合は GND 電極の片方に振動電圧を加えた。

図 44 に軸方向と動径方向の典型的なトラップ周波数測定結果を示した。縦軸は PMT のシグナルを光子カウンタで計数して D/A 変換した値であり、横軸は電極に加えた振動電圧の周波数である。プロットした点は測定データであり、実線はガウス関数によるフィッティングである。(a) は軸方向、(b) は動径方向のトラップ周波数であり、それぞれ $(\omega_z, \omega_r) = 2\pi \times (95, 252)$ kHz と測定された。

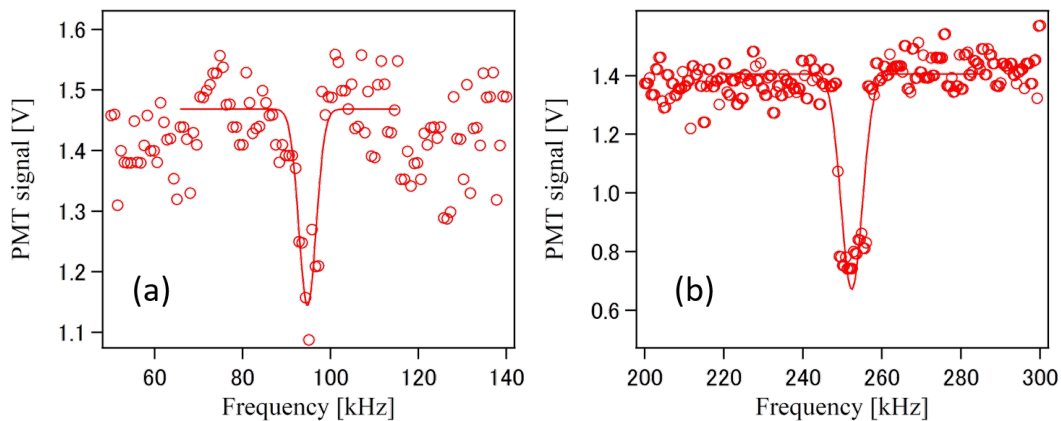


図 44 軸方向と動径方向のトラップ周波数測定。(a) 軸方向トラップ周波数。(b) 動径方向のトラップ周波数。

4.8.3 イオンの撮像倍率の較正

イオン結晶は一次元に配列していれば構成数を容易に数え上げることができるが、三次元状に配列するとその数を知ることは難しくなる。ましてや結晶化していないクラウド状のイオンの場合はさらに困難を極める。そこで撮像倍率を知ることで結晶やクラウドのサイズを測定して、それらを構成するイオン数を推定できる。

また撮像倍率がわかると、外部電場に対するイオンの応答をカメラから測定することができるので、マイクロモーションの補正 4.9 や、後述する散乱エネルギーの制御 5.3.2 においても有用となる。

EMCCD カメラで行ったカルシウムイオンの撮像倍率は擬調和ポテンシャルのトラップ周波数とイオンの間隔から算出した。以下に詳細を示す。

トラップ中に質量 m_{ion} のイオンが N 個捕獲されて、結晶化しているとする。このときの擬調和ポテンシャルのトラップ周波数を ω とすると配列した結晶化イオンの最も近接した粒子間の z 軸方向の距離を Δz_{min} とすると

$$\Delta z_{\text{min}} \approx 2.0 \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 m_{\text{ion}} \omega_z^2} \right) N^{-0.57} \quad (140)$$

とかける [121, 122]. ただし, e は素電荷であり, 今回は $^{40}\text{Ca}^+$ イオンのような一価のイオンを想定している. また ϵ_0 は真空の誘電率である. すなわちイオンの個数とトラップ周波数を測定できれば, 撮像したイオンの画像がからイオン間隔がわかるので, 撮像倍率を算出することができる.

式 (140) において注意しなければならないのは, Δz_{min} はイオンの間隔ならばどこのイオン同士でもよいわけではなく, 最短のイオン間距離を示しているを示していることである. つまり, 例えば調和ポテンシャル中のイオンの一次元鎖を考えたととき, イオン同士の斥力と調和ポテンシャルの勾配からイオンは等間隔にならばず, 調和ポテンシャルの底のイオン間隔は狭く, 外側に並ぶにしたがって間隔は広がっていくと考えられる. Δz_{min} はトラップ中心付近にいる最も距離の近い二粒子間の距離である. 以上の議論から察せられるようにイオンが一次元鎖ではなく, 三次元的な配列をもっているときは奥行方向の距離がわかりづらくなる上, 問題が複雑になる. そこで軸方向に並んだ二あるいは三個のイオンをトラップした状況で較正を行った. 二個のイオンならばもちろんイオン間の距離が Δz_{min} となり, 三個のイオンならば中心のイオンに対して線対称に配列するので中心のイオンとの距離が Δz_{min} である.

今回用いたリニアパウルトラップは軸方向の閉じ込めを弱くしたのでイオンは軸方向つまり z 軸方向に配列するので測定すべきトラップ周波数は軸方向の周波数 ω_z である. トラップ周波数は前述 4.8.2 したようにイオンの運動を外部電場で励起することで測定した. 以下に測定結果を示す. 図 45(b) に示したトラップした 2 個のイオンに対して上述のトラップ周波数の測定に示した手法で軸方向のトラップ周波数を測定すると図 45(a) に示したように $2\pi \times 74$ kHz であった. すなわち式 (140) より $\Delta z_{\text{min}} = 53.7 \mu\text{m}$ である. 一方で撮像画像の解析よりイオン間の距離は 34.42 pixel である. これから撮像画像の 1pixel = $1.56 \mu\text{m}$ となるが, 使用した EMCCD カメラの一素子のサイズは $16 \mu\text{m}$ (4.8.1 を参照) なので撮像倍率は 10.3 倍であった.

撮像倍率を測定する方法として他には, 実際に構築した光学系に対して長さの基

準になる定規などを撮影して、撮像された目盛りから較正する手法を用いた。

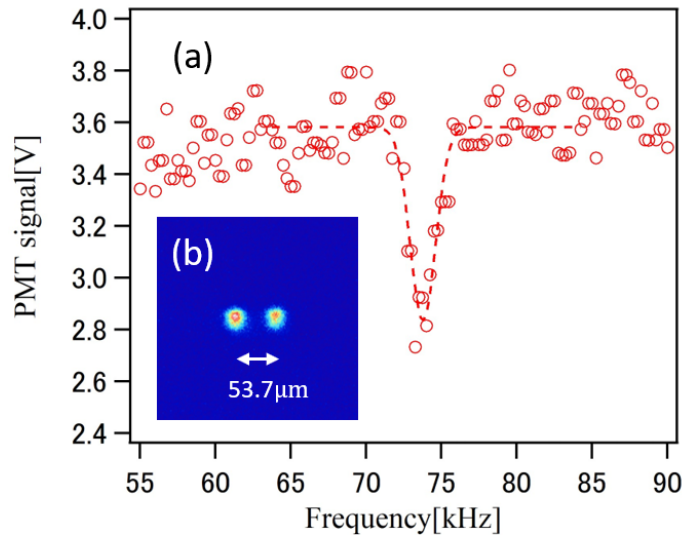


図 45 イオンの撮像倍率の測定. (a) 軸方向のトラップ周波数測定. 横軸は END 電極に加えた振動電圧の周波数であり, 縦軸は PMT によってイオンの蛍光である. (b) 測定に用いた 2 個の Ca^+ イオン. イオン間距離はカメラ上では 34.42 pixel である.

4.9 マイクロモーションの補正

パウルトラップ中のイオンは擬調和ポテンシャルによる永年運動と高周波によるマイクロモーションの二種類の運動をする. 永年運動はドップラー冷却により取り除けるが, 余剰マイクロモーションは取り除くことができない. マイクロモーションは RF 電場によって誘起された運動のためイオンの捕獲されている位置での RF 電場の振幅に大きく依存する. すなわちマイクロモーションは RF 電場の鞍点をもっとも小さいことがわかる. 原理的にはイオンが捕獲される擬調和ポテンシャルの中心と RF 電場の鞍点は一致するため, マイクロモーションに特別な注意を払う必要はないはずである. しかし, イオンは電場による影響を非常に受けやすいためパッチポテンシャルやイオントラップ構造の歪みなどに起因する意図しない電場によって容易にトラップ位置がずれてしまう. そこでイオンのマイクロモーションが最小になるように外部電場で補正する. 以下ではこのマイクロモーションの補正手法について述べる.

4.9.1 補正電極

リニアパウルトラップは動径方向の閉じ込みのみ RF 電場で行うため原理的にはマイクロモーションは動径方向のみに生じる。すなわちマイクロモーションを補正する電極も動径方向のみ補正するように取り付けた。動径方向の二軸について補正する必要があるため、一対一組の電極を二組用意した。一つは COMPENSATION 電極と呼んでいる電極対であり、もう一つは GND 電極対である (図 32 を参照)。二つの電極対はほぼ直交するように配置しており、動径方向の独立した二軸のマイクロモーションを補正しやすいようにした。図 46 のように電極対のうち片方は実験室のグラウンドに落とし、もう一つに電圧を印加することで補正電場を作り出した。GND 電極はイオンの捕獲位置から近いいため、典型的に数 V 程度の電圧を加えることでイオンの補正電場を生み出した。一方で COMPENSATION 電極はイオンの捕獲位置から遠く、しかも RF 電極が遮蔽するように近くにあるので数十-数百 V の電圧を加えた。なお実験室グラウンドに落とす電極と電圧を加える電極を適宜入れ替えることで正電圧のみの定電圧源でもマイクロモーションの補正が行うことができる。

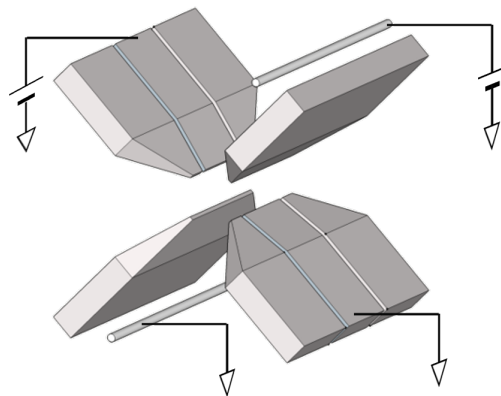


図 46 マイクロモーションの補正のための構成。GND 電極と COMPENSATION 電極の片方に電圧を印加し、もう一方は接地させる。電極間に生じる電場によってイオンの捕獲位置を補正する。

4.9.2 スペクトルによる補正

補正電極を用いて補正電場を生み出すことでマイクロモーションを補正するが、補正の基準が必要となる。マイクロモーションの補正は、パウルトラップにおいて避けて通れない課題であり、今までに様々な手法が提案されている。本項では最も単純な蛍光スペクトルを用いた補正について述べる。

3.2.3 に記したように余剰マイクロモーションが存在するとスペクトル変化する。トラップに用いた RF 周波数を表 11 に示した $2\pi \times 4.8$ MHz とする、一方で $S_{1/2} \leftrightarrow P_{1/2}$ 遷移の自然幅は約 20 MHz であるからスペクトル形状は図 12(a) に近い形状になる。余剰マイクロモーションが大きいとスペクトルは自然幅よりも太くなり、トップがつぶれた形になる。一方で余剰マイクロモーションが小さいと自然幅に近いローレンツ型になる。これを利用して蛍光スペクトルを観察しながらスペクトル形状が細くなるよう補正電極に加える電圧を制御した。

4.9.3 RF 光子相関法

蛍光スペクトルは補正の粗調には良い指標となるが、自然幅近くになるとスペクトルのパワー広がり気をつける必要があり、一見しただけでは変化がわかりにくくなるので補正においては必ずしも最善の手法とは言い難い。そこで、広く用いられているマイクロモーションの補正手段として RF 光子相関法 [98] を使用した。RF 光子相関法ではイオンに加えている RF の位相とイオンの蛍光が放出されるタイミングの相関をマイクロモーションの補正に用いる。以下では使用した機器、手法の原理、補正の結果等を示す。

TAC

RF 光子相関法では RF の位相と蛍光のタイミングの相関を取るなので二つの信号の時間差を測定する必要がある。そこで TAC を用いて測定を行った。TAC (Time to Amplitude Converter, 時間電圧変換器) とはスタートパルスとストップパルスの二つの信号の時間差に応じた電圧を出力するデバイスであり、実験では acam 社製の「AM-GPX」を用いた。

スタートパルスとして PMT のフォトンパルスを入力し、ストップパルスとして RF 信号の SYNC 信号を入力とした。原理的にはスタートパルスとストップパルス

の入力は逆にしても構わない。しかしながら、ストップパルスにフォトンパルスを用いると RF が何周期した後にストップパルスが入るか不確定であり、一つの測定ごとに時間のばらつきが大きくなり、解析がやや煩雑になる。一方でストップパルスに RF の SYNC 信号を用いれば、スタートパルスのフォトンパルスが入力されてから必ず RF の一周期以内にストップパルスが入り解析が容易となる。

信号の取得と相関ヒストグラムの作成

TAC 信号を元にヒストグラムを作り、補正に使用した。ここでは具体的な実験手順と相関ヒストグラムの作成方法について述べる。

イオントラップ中にイオンを一個から二、三個捕獲し、冷却する。このときのイオンの個数は少ない方が、イオン結晶の広がりによるマイクロモーションの影響が少なく理想的だが、イオン蛍光量とのトレードオフの関係である。冷却光は掃引せずに蛍光スペクトルの中腹あたりの離調に設定する。このとき離調が大きすぎると蛍光量が少なくなり S/N が悪くなり、離調が小さすぎると冷却効率が落ちてイオン温度が上昇し、予期せぬ信号が得られたり、イオン加熱されイオントラップからロスするため注意を要する。

TAC から得られる時間差信号を典型的に 3000 回を取得し、RF の一周期について取得回数をヒストグラムに起こした。

相関ヒストグラムとマイクロモーション

図 47(a), (b), (c) に典型的なヒストグラムを示した。横軸は信号の時間差を示し、縦軸は頻度を示す。また点は測定データ点を示し、実線は正弦関数によるフィットを示す。二つの信号の時間差はすなわち RF の位相と蛍光が発せられるタイミングの相関を示す。

イオンの冷却光は共鳴から負に離調がつけられているのでドップラー効果によりイオンの運動が冷却光の入射方向に向かって運動しているとき冷却光を吸収しやすくなり、逆方向に運動すると冷却光を吸収しにくくなる。このためマイクロモーションが大きいと、イオンの冷却光の吸収、放出のタイミングはマイクロモーションの影響を大きく受ける。つまりマイクロモーションが大きいほどヒストグラムの信号の振幅が大きくなり、マイクロモーションが補正されている点では相関が小さくなる。マイクロモーションが最も補正されている点はイオンの運動に対する RF の影響が最も小さいところである。つまり RF と蛍光の相関が最も見られない場所

がマイクロモーション補正点である。

図 47(a), (c) の信号は RF とイオンの冷却光の散乱のみに相関がみられるためマイクロモーションが大きい点である。また (a) と (c) では位相がおおよそ半周期ずれているが、これはマイクロモーションの補正点である RF 電場鞍点の逆側で測定しているため、マイクロモーションの位相が半周期ずれているためである。一方の (b) は相関がみられず、マイクロモーションの補正された点である。

図 47(d) に電極に加える電圧を変化させたときのヒストグラムの振幅の変化を示す。実線はフィッティングである。

図 47(d) のような測定を COMPENSATION 電極と GND 電極の各電圧におけるヒストグラム振幅から行い、補正点を探した。マイクロモーションは RF での閉じ込めを行っている x - y 方向に生じる。一方で前述のように RF 光子相関法のマイクロモーションに関する感度は冷却光の入射方向にのみ存在するので、 x , y 軸両方について補正するために二方向から冷却光を入射し、それぞれヒストグラムによる補正点の測定を行った。

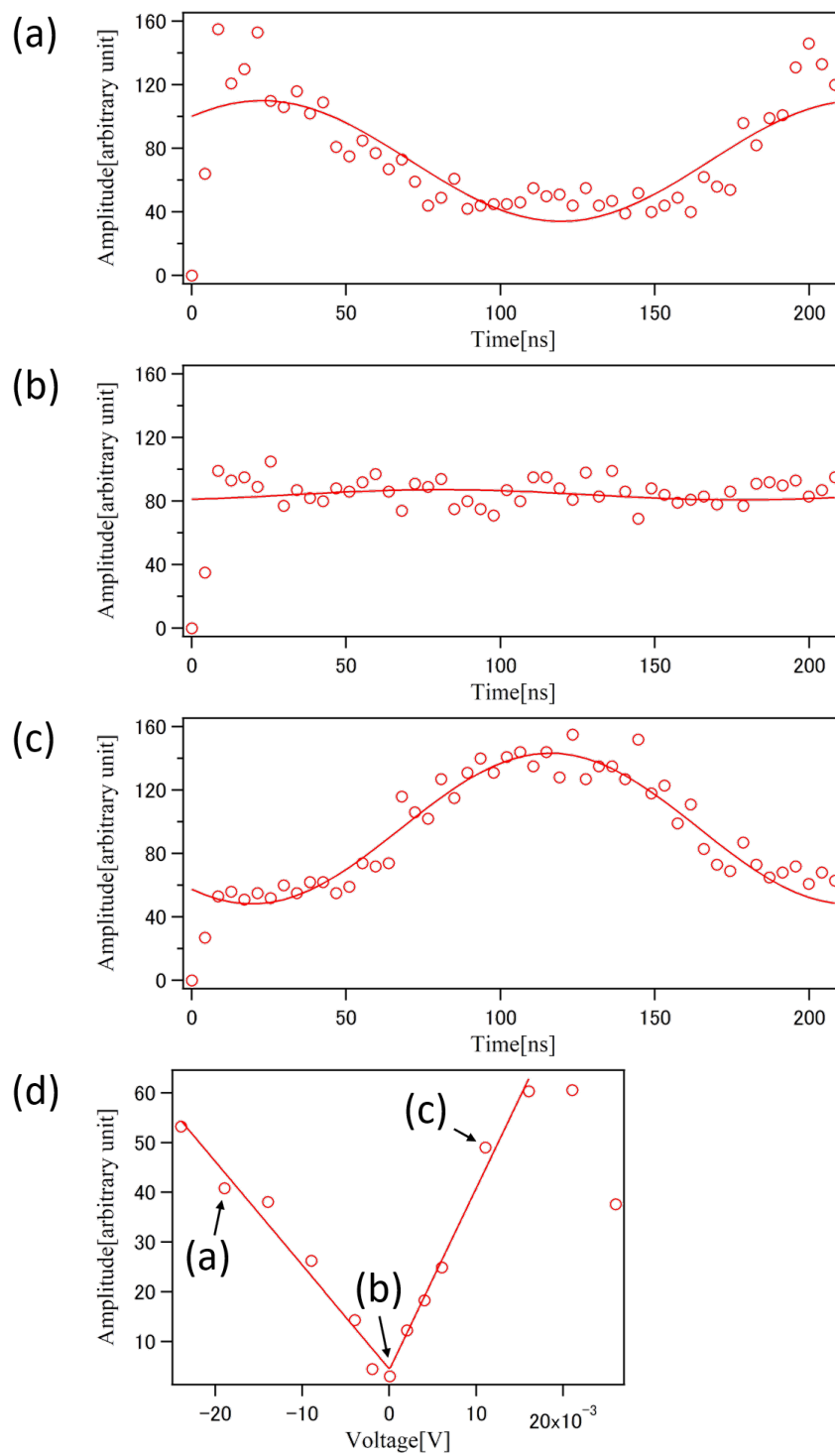


図 47 RF 光子相関ヒストグラム. (a), (b), (c) 各外部電場での RF 光子相関ヒストグラム. (d) ヒストグラムの振幅の外部電場による変化.

4.10 $D_{5/2}$ 状態へのポンピングとレーザー

本研究では Ca^+ イオンの内部状態を制御して非弾性散乱を測定した。その内部状態には $3^2D_{5/2}$ 状態も含まれる。ここでは $D_{5/2}$ にポンプするために使用したレーザーについて述べる。

$D_{5/2}$ へのポンピングは二通りの方法を用いた。一つは 850 nm のレーザーを用いて $3^2D_{3/2} \leftrightarrow 4^2P_{3/2}$ の遷移を励起し、 $P_{3/2}$ からの自然放出を利用した方法であり、もう一つは狭線幅の 729 nm のレーザーを用いて直接 $4^2S_{1/2} \leftrightarrow 3^2D_{5/2}$ の遷移を起こす方法である。前者は磁気副準位を指定せずにポンプする方法で後者は任意の磁気副準位にポンプする方法である。具体的なポンピング手法については第 5 章にて述べる。

4.10.1 850 nm レーザー

850 nm レーザーはリトロー型の外部共振器型半導体レーザーを構築して得た。図 48 に光学系を示す。レーザーの出力をアイソレーターに通した後三分岐し、一つは波長計で発振波長を観測し、別の一つはファブリ・ペロー共振器でシングルモード発振を確認した。残り一方は AOM に入射し、ダブルパスを構築して回折光をシングルモードファイバーにカップルさせた。AOM の回折光を用いたのは AOM を駆動する RF をスイッチすることでレーザーをスイッチするためである。このレーザーは外部の周波数基準に安定化せずに波長計を確認して ECDL 内のピエゾ素子を制御することで共鳴に合わせた。

この ECDL は半導体レーザーを取り替えることで発振波長 854 nm の ECDL に切り替えた。この 854 nm のレーザーはサイドバンド冷却に用いたレーザーである。

4.10.2 729 nm レーザー

四重極遷移である $S_{1/2} \leftrightarrow D_{5/2}$ 遷移は 0.2 Hz 程度の自然幅しか持たない。このため磁場を印加して $D_{5/2}$ 準位の磁気副準位を分離すると、狭線幅のレーザーを用いれば個別の磁気副準位にアクセスできる。

この遷移はサイドバンド冷却に用いられており、冷却用レーザーとして線幅 1 kHz

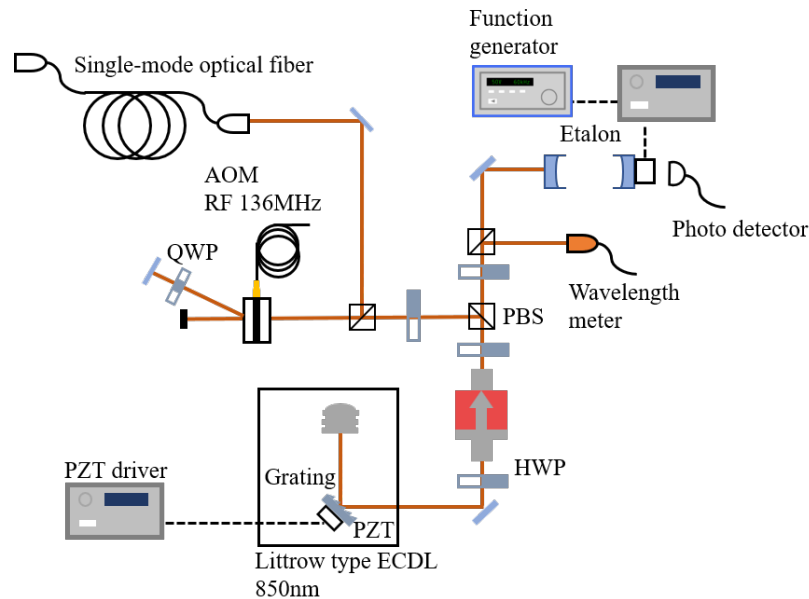


図 48 850 nm レーザー光学系.

程度の 729 nm レーザーを開発した。以下ではこのレーザーについて述べる。

図 49 に光学系を示した。レーザー光源は MogLabs 製の干渉フィルター型 ECDL である。レーザーの出力の一部を波長計に入射し発振波長の監視を行い、残りはテーパアンプに入射し増幅した。増幅後の光を二分岐し、片方は AOM でダブルパスを構成し、回折光をシングルモードファイバーに入射し、出射光をカルシウムイオンに照射した（ファイバー後は図 40 を参照）。もう一方も AOM の -1 次回折光をシングルモードファイバーに入射し、EOM で変調した後に ULE 共振器に入射した。この ULE 共振器を周波数基準として周波数を安定化およびレーザー線幅の狭窄化を行った。ULE 共振器には以下で詳しく説明する。

ULE 共振器とは熱膨張係数の非常に小さい ULE ガラスと呼ばれる素材を用いて作られたファブリ・ペロー共振器である。熱変化での伸び縮みが非常に小さいため、優れた周波数基準として用いることが可能である。イオンの $S_{1/2} \leftrightarrow D_{5/2}$ 遷移に直接安定化することは困難なため経時変化の少ないこの共振器を用いて周波数安定化を行った。この共振器はフィネス 10000 であり、この共振器でレーザーの線幅の狭窄化も併せて行っている。ULE 共振器に対する外乱を抑えるため図 50 のように真空チャンバーの中に入れ、真空にした。また温度を安定化するために二重の銅の箱の中に納め、外側の銅の箱をペルチェ素子で温調した。内箱および、ULE 共振器は

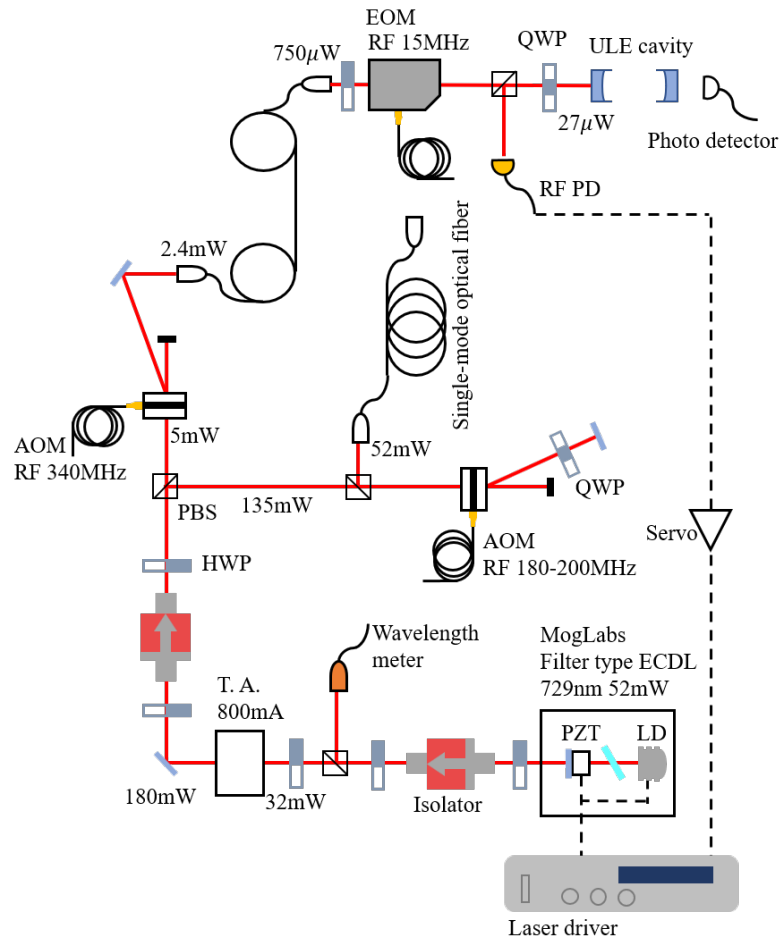


図 49 729 nm レーザー光学系.

熱輻射によって温度安定化される.

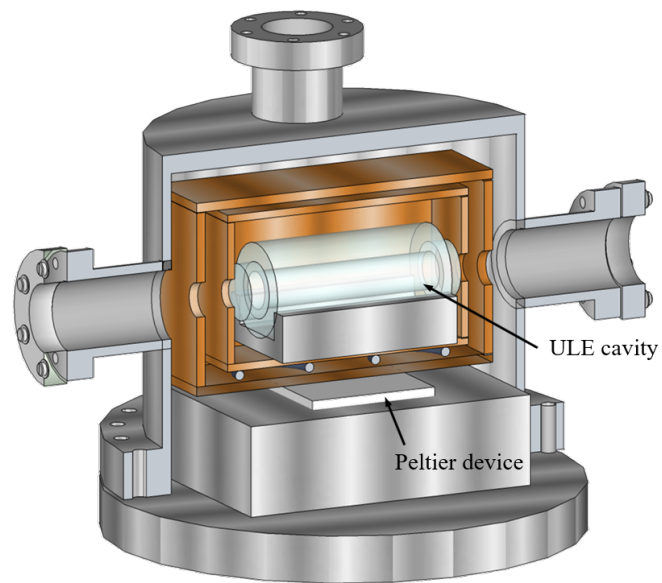


図 50 ULE 共振器の真空チャンバーと温度安定化システム.

第 5 章

内部状態選択による非弾性散乱の制御

5.1 概要

中性原子-イオン間の非弾性散乱の一つに電荷交換散乱 (表 4 参照) があげられる。この過程は Li 原子-Ca⁺ 間の場合, Li 原子に束縛された電子が Ca⁺ イオンに移動する散乱であり, 非弾性散乱の一つである。一般に化学反応はいくつかの単純な素過程と呼ばれる反応の組み合わせから構成されているが, 電荷交換散乱はその素過程の一つである。電荷交換散乱は中性原子-イオン系で広く観測されている散乱過程であり, 先行研究としては文献 [10, 11, 30, 31, 32, 33, 44, 52] があげられる。我々の用いた Li-Ca⁺ 系においても観測され, 参考論文である文献 [52] にて発表した。

非弾性散乱は散乱する粒子の内部状態ごとに特徴づけられるので電荷交換散乱においても内部状態ごとに反応性が異なることが予想される。そこで本研究における目的は中性原子とイオンの内部状態を制御して電荷交換散乱における内部状態ごとの反応性の違いを検証することにある。また, これをもとに内部状態を選択して非弾性散乱を制御する手法の開発を目指した。

以上のような目的のもと電荷交換散乱の特性を検証するために電荷交換断面積を測定したが, その実験の中で Ca⁺ イオンに対して大きく分けて二つの制御を行った。一つは任意の内部状態に準備するためにレーザー光ポンピングであり, もう一つは電荷交換断面積のエネルギー依存性を測定するために行った散乱エネルギーの制御である。これは Ca⁺ イオンの運動エネルギーを余剰マイクロモーションを利

用して制御する手法を開発して実現した。

上記の操作を行い、電荷交換断面積の内部状態依存性およびエネルギー依存性を測定した。この結果と共同研究による図 4 のポテンシャルエネルギー曲線と比較検討を加えることで、反応性の説明を試みた。

以下ではこの実験の手法と結果を中心に記す。具体的には、まず最初に光ポンピングの手法と実際に準備した内部状態について説明する。次に余剰マイクロモーション (3.2.1 を参照) を利用した散乱エネルギー制御方法の説明と結果を示す。その後、電荷交換散乱の検出と断面積の測定結果を記し、考察を加える。

5.2 内部状態の制御

電荷交換散乱を始めとする非弾性散乱は状態ごとに特徴付けられるので Li 原子、 Ca^+ イオンをそれぞれ特定の単一状態に準備して散乱を観測する。しかし中性原子やイオン内部状態にはスピン軌道相互作用による微細構造が存在し、それらの準位はさらに電子スピンと核スピンによる超微細構造に別れ、さらに超微細準位内にはそれぞれ磁気副準位が縮退している。単一状態同士の散乱を観測する場合、この磁気副準位の任意の状態を準備する必要があるが、本実験ではこうした測定に先駆ける実験としてそれぞれリチウム原子とカルシウムイオンの超微細準位と微細準位 (なお、 $^{40}\text{Ca}^+$ イオンは核スピンのゼロなので超微細構造をもたず、励起状態は微細構造のみを持つ) についての選別を行った。

シングルビームトラップ中の ^6Li 原子は基底状態の $|F = 1/2, m_F = 1/2\rangle$ と $|1/2, -1/2\rangle$ の準位の原子がほぼ同数捕獲されている。カルシウムイオンと混合した原子は以上の二つの状態である。

一方の Ca^+ イオンの状態は混合する際に光ポンピングで任意の状態に準備した。本実験では $4^2S_{1/2}$, $4^2P_{1/2}$, $3^2D_{3/2}$, $3^2D_{5/2}$ の 4 つの内部状態について測定した。それぞれの状態の準備方法について以下で述べる。図 51 に準備方法の模式図を示した。

5.2.1 基底状態と準安定状態へのポンピング

今回実現した中性原子-イオン混合系ではシングルビームトラップ中のリチウム原子気体のピーク密度はトラップ周波数の測定より $(4.8 \pm 0.3) \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ であった。この程度の原子密度の場合、電荷交換散乱を観測するには数百ミリ秒から秒の

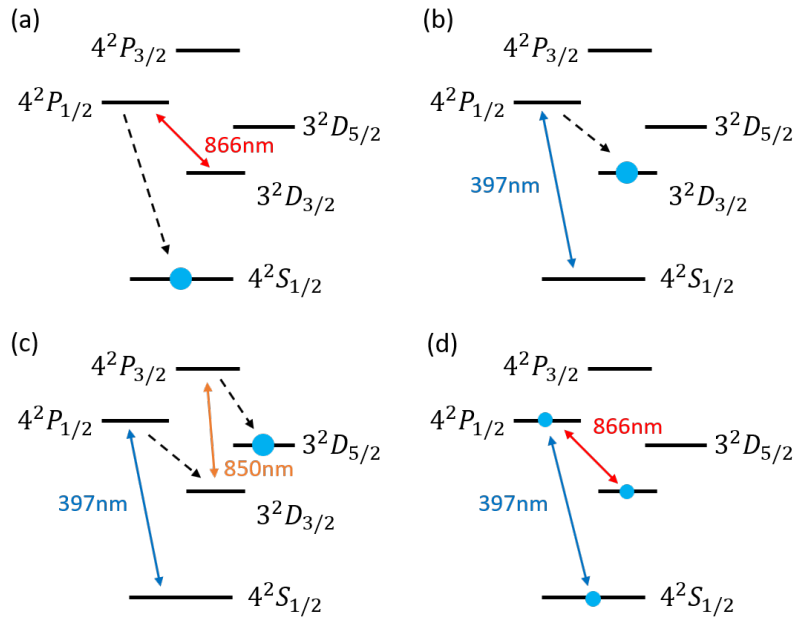


図 51 各状態への光ポンピング. (a) 基底状態 $4^2S_{1/2}$ (b) 準安定状態 $3^2D_{3/2}$, (c) 準安定状態 $3^2D_{5/2}$ (d) 励起状態 $4^2P_{1/2}$ 測定のための SPD 混合状態.

間, リチウム原子とカルシウムイオンを混合する必要がある [32]. 測定の対象とする準位の寿命がこのオーダー以上の場合, 光ポンピングした状態での電荷交換散乱の測定を行うことが可能である. ここではそうした長い寿命をもつ準位, 基底状態 $4^2S_{1/2}$ と準安定状態 $3^2D_{3/2}$, $3^2D_{5/2}$ へのポンピングについて述べる.

基底状態 $4^2S_{1/2}$

基底状態へのポンピングはドップラー冷却に使用する 397 nm の冷却レーザーと 866 nm のリポンプレーザーの照射のタイミングを制御することで実現した. 冷却用のレーザーを照射している場合, カルシウムイオンの状態は $4^2S_{1/2}$, $4^2P_{1/2}$, $3^2D_{3/2}$ の間をサイクルしている. 397 nm 冷却レーザーを遮断すると $4^2S_{1/2} \rightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移が起きなくなり, $4^2P_{1/2}$ 準位は直ちに基底状態に緩和する. しかし, 時に $3^2D_{3/2}$ に緩和する場合があるので 866 nm のリポンプレーザーを照射しておき $3^2D_{3/2}$ 状態から掃きだした. 図 51(a) を参照. すなわち実験では冷却レーザーを遮断し, その 20 ms にリポンプレーザーを遮断して基底状態へのポンピングを行った.

準安定状態 $3^2D_{3/2}$

$3^2D_{3/2}$ は準安定状態とよばれ寿命が約 1 秒である．866 nm のリポンプレーザーを遮断すると $3^2D_{3/2}$ に緩和したカルシウムイオンは冷却サイクルに戻ることはなくなるため， $3^2D_{3/2}$ に残り続ける．また，このとき図 51(b) のように冷却レーザーを照射し続けるとカルシウムイオンは $3^2D_{3/2}$ にポンプされる．以上のようにリポンプレーザーを冷却レーザーを遮断してリチウム原子気体と混合する 20 ms 前に遮断することで $3^2D_{3/2}$ 状態にポンピングした．

準安定状態 $3^2D_{5/2}$

$3^2D_{5/2}$ も準安定状態とよばれ約 1 秒の寿命を持つ． $3^2D_{5/2}$ へのポンピングは 850 nm のレーザーを照射し， $3^2D_{5/2} \leftrightarrow 4^2P_{3/2}$ の遷移を起こし， $4^2P_{3/2}$ から $3^2D_{5/2}$ への自然放出を利用してポンプした．このときリポンプレーザーは遮断した (図 51(c) 参照)．具体的にはリポンプレーザーを遮断すると同時に 850 nm のレーザーを 397 nm の冷却レーザーと共に 20 ms 照射してポンピングした．

5.2.2 励起状態 $4^2P_{1/2}$

励起状態 $4^2P_{1/2}$ の寿命は非常に短く 8 ns 程度である．この時間スケールでは単一の $4^2P_{1/2}$ 状態のみでの測定は不可能であるため，図 51(d) のように冷却レーザーとリポンプレーザーを照射し続けることで $4^2S_{1/2}$, $4^2P_{1/2}$, $3^2D_{3/2}$ の混合状態を実現し，リチウム原子との混合を行った．

それぞれの状態の占有確率比を 397 nm の冷却レーザーと 866 nm のリポンプレーザーの離調と強度から定まる遷移レートから推定した．冷却レーザーとリポンプレーザーによる遷移レートと各状態の緩和レートから各状態の占有分布比は $(p_S, p_P, p_D) = (0.42, 0.29, 0.29)$ と求められた．すなわち冷却レーザーとリポンプレーザーによる混合状態における測定結果にはそれぞれの状態が上の比だけ含まれていると考えて処理した．基底状態 $4^2S_{1/2}$ と準安定状態 $3^2D_{3/2}$ の測定は個別に行えるため，励起状態 $4^2P_{1/2}$ の寄与を抽出することが可能である．

5.3 原子イオン間散乱エネルギーの制御

本研究はリチウム原子-カルシウムイオン間の電荷交換散乱を対象に行ったが、散乱断面積のエネルギー依存性を測定するために両者の散乱エネルギーを変化させる必要がある。以下に具体的な手法について述べる。

5.3.1 原子イオン間の散乱エネルギー

二粒子間の平均散乱エネルギー E_{coll} は式 (9) に示したように二粒子の運動エネルギーによって記述できる。粒子 1, 2 をそれぞれカルシウムイオンとリチウム原子とし、それぞれの運動エネルギーと質量を E_{ion} と E_{atom} , m_{ion} と m_{atom} とすると式 (7) は、

$$E_{\text{coll}} = \mu \left(\frac{1}{m_{\text{ion}}} E_{\text{ion}} + \frac{1}{m_{\text{atom}}} E_{\text{atom}} \right) \quad (141)$$

ただし、換算質量 μ は

$$\mu = \frac{m_{\text{ion}} m_{\text{atom}}}{m_{\text{ion}} + m_{\text{atom}}} \quad (142)$$

である。次の段落ではもう少し具体的に実験の状況に則した散乱エネルギーを考えてみる。

本実験ではカルシウムイオンの運動エネルギーを制御することで散乱エネルギーを制御したが、このときの運動エネルギーは数十 $\text{mK} \times k_{\text{B}}$ から数 $\text{K} \times k_{\text{B}}$ 程度の範囲である。一方で原子気体の温度は $6 \mu\text{K}$ であった。すなわち原子の運動エネルギー E_{atom} に対してイオンの運動エネルギー E_{ion} の方が三桁以上大きく、

$$E_{\text{ion}} \gg E_{\text{atom}} \quad (143)$$

が成立する。

すなわち

$$E_{\text{coll}} \approx \frac{\mu}{m_{\text{ion}}} E_{\text{ion}} \quad (144)$$

が導ける。

つまり、散乱エネルギーはイオンの運動エネルギーに換算質量とイオン質量の比を乗じたものになる。ここでリチウム原子とカルシウムイオンの組み合わせの場合 $\mu/m_{\text{ion}} = 0.13$ となる。つまり $E_{\text{coll}} = 0.13 \times E_{\text{ion}}$ であるから、実現したイオンの運動エネルギーから約十分の一のエネルギーが散乱エネルギーとなる。

カルシウムイオンの運動エネルギーよりも散乱エネルギーが小さくなるのは、リチウム原子とカルシウムイオンの質量比による。換算質量は対象の二つ粒子のうち、質量が小さいものよりも小さくなる。つまり質量数 6 のリチウム原子により換算質量は小さくなり、一方でカルシウムイオンの質量数が 40 と大きいため、換算質量とイオン質量との比は小さくなる。この事実は我々の研究目的から考えると都合な事実である。我々は原子とイオン散乱における量子的な効果を観測を目指しているが、こういった効果は散乱エネルギーが減少していき、散乱の部分波が制限されていくに従って観測しやすくなるだろうと考えられる。つまり、我々の原子-イオン組み合わせでの s 波散乱閾エネルギー $10.6 \mu\text{K} \times k_B$ に到達するには散乱エネルギーを $82 \mu\text{K} \times k_B$ 程度まで減少させればよいことがわかる。

5.3.2 マイクロモーションによる散乱エネルギーの制御

散乱エネルギーの制御をカルシウムイオンのマイクロモーションエネルギーを変化させることで実現した。マイクロモーションは通常、極力抑えるべきものとして扱われるが、本実験ではあえてマイクロモーションを誘起することで散乱エネルギーを変化させた。本項ではマイクロモーションエネルギーの制御手法、評価手法について述べる。

マイクロモーションを誘起するためにはマイクロモーションを補正した時の逆を行えばよい。マイクロモーションの補正は 4.9 において記したように COMPENSATION 電極あるいは GND 電極に電圧を印加することで補正電場を生み出し、RF 電場が生み出す鞍点にイオンを導いた。つまりイオンの補正点において COMPENSATION 電極と GND 電極に加えている電圧を変化させれば、イオンは補正点からずれていくのでそれに従いマイクロモーションは誘起される。実験では GND 電極に電場を加えることによってマイクロモーションを誘起した。

イオンの運動エネルギー

式 (107) のようにイオントラップ中のイオンの運動エネルギーは永年運動エネルギーと外部電場が存在しないときのマイクロモーションエネルギーそして余剰マイクロモーションエネルギーの 3 つ要素から書けた。このうち永年運動エネルギーはレーザー冷却でほとんど取り除ける。しかしレーザー冷却の手法として用いたドップラー冷却は冷却限界が存在する。しかも冷却限界に達するにはレーザーの離調や

レーザーパワーといったパラメーターを注意深く選ばなければならない。そこでレーザー冷却によって永年運動エネルギーは E_{rsec} まで到達したとする。一方でマイクロモーションエネルギーはレーザー冷却で取り除くことはできないが、4.9 に記したマイクロモーションの補正を行うことで余剰マイクロモーションは取り除くことができる。しかし外部電場を制御してマイクロモーションの補正した際に補正点においても完全にマイクロモーションを取り除くことは難しく、使用した補正の指標にもよるが、一般に残留マイクロモーションが存在すると考えられる。そこで補正点における残留マイクロモーションエネルギー E_{rmm} とする。以上をもとにマイクロモーション補正点におけるレーザー冷却されたイオンの運動エネルギー E_{min} を考えてみると

$$E_{ion} |_{補正点} = E_{min} = E_{rsec} + E_{rmm} \quad (145)$$

と表現できる。

補正点でのイオンの運動エネルギーは以上の二要素からなり、 E_{min} で表す。

補正点でトラップし、冷却したイオンに対して外部電場を加え、マイクロモーションを誘起する。このときのイオンの運動エネルギーは

$$E_{ion} = E_{min} + E_{emm} \quad (146)$$

と書ける。

ここで E_{emm} が補正点からずらすことで生じた余剰マイクロモーションエネルギーである。

平均マイクロモーションエネルギー

誘起された余剰マイクロモーションエネルギー E_{emm} について記す。マイクロモーション補正点で捕獲していたカルシウムイオンに対して外部電場 \mathcal{E}_r を印加し、マイクロモーションを誘起したとする。このときイオントラップ動径方向の外部電場 \mathcal{E}_r が存在することによって生じるマイクロモーションの平均運動エネルギー E_{emm} は式 (107) の第三項を変形して

$$E_{emm} = \frac{4}{m_{ion}} \left(\frac{e\mathcal{E}_r}{q\Omega_{RF}} \right)^2 \quad (147)$$

と書ける [78, 98]。ただしパラメータ $a = 0$ とした。

ここで e は素電荷であり、今回は一価のイオンを想定している。 q , Ω_{RF} はそれぞれ

れイオントラップの q パラメーター, イオントラップの RF 角周波数を示す. 平均運動エネルギーとしているのは永年運動の周期での平均を示すからである. 上式 (147) より, 外部電場以外の値は既知であり (q パラメータは式 (101) より 4.8.2 の手法で測定したトラップ周波数から得た), マイクロモーションエネルギーは外部電場の二乗に比例することがわかる.

すなわちイオンの運動エネルギーは式 (146) を用いて

$$E_{\text{ion}} = E_{\text{min}} + \frac{4}{m_{\text{ion}}} \left(\frac{e\mathcal{E}_r}{q\Omega_{\text{RF}}} \right)^2 \quad (148)$$

と書ける.

以上より余剰マイクロモーション誘起した際の散乱エネルギーは式 (144) と式 (148) より

$$E_{\text{coll}} = \frac{\mu}{m_{\text{ion}}} \left\{ E_{\text{min}} + \frac{4}{m_{\text{ion}}} \left(\frac{e\mathcal{E}_r}{q\Omega_{\text{RF}}} \right)^2 \right\} \quad (149)$$

と導かれる.

外部電場の較正

外部電場はイオントラップの GND 電極間の距離と印加電圧で求めることができるが, イオントラップの機械的な歪や電場遮蔽の効果によって誤差が大きくなると予想される. そこで撮像したカルシウムイオンの位置変化から変換した. 以下に詳細を示す.

動径方向のトラップ角周波数 ω_r の調和ポテンシャルにカルシウムイオンが捕獲されていたとする. 動径方向に一様な外部電場 \mathcal{E}_r を加え, イオンの位置が r ずれたとすると力のつり合いより

$$m_{\text{ion}}\omega_r^2 r = e\mathcal{E}_r \quad (150)$$

外部電場 \mathcal{E}_r について解くと

$$\mathcal{E}_r = \frac{m_{\text{ion}}\omega_r^2}{e} r \quad (151)$$

またに示したようにトラップ角周波数 ω_r は q パラメーターを使って式 (100) のように表せたのでトラップ角周波数 ω_r は q パラメーターによって以下のように表せる. この式を用いれば, 式 (151) は

$$\mathcal{E}_r = \frac{m_{\text{ion}}q^2\Omega_{\text{RF}}^2}{8e} r \quad (152)$$

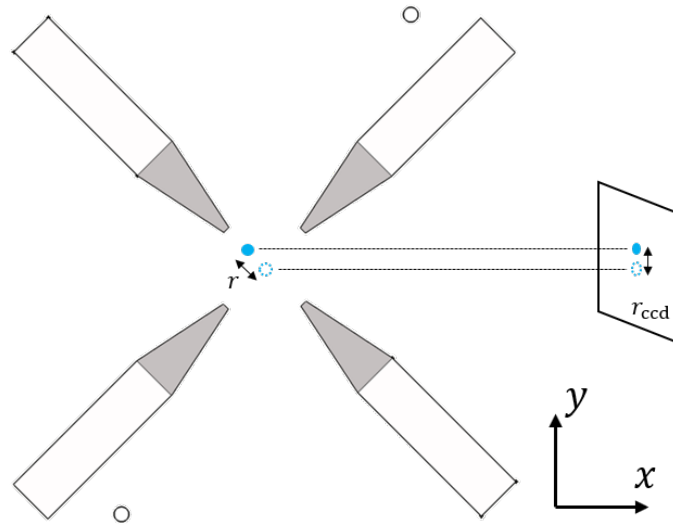


図 52 外部電場によるカルシウムイオンのシフトと撮像したカルシウムイオンのシフト．GND 電極にかかる電圧を変化したのでイオンのシフトは観測方向に対して 45° の角度を持つ．そのため EMCCD 上とイオンのシフトと実際のイオンの補正点からのシフトは式 (153) の関係にある．なお図中では省略したが，実際イオントラップと EMCCD のカメラの間には対物レンズを設置して拡大して撮像している．

となる．

式 (152) を使えば外部電場を補正点からのカルシウムイオンの移動距離によって較正できることがわかる．そこでカルシウムイオンの移動距離の測定方法について述べる．図 52 に軸方向からみたときのイオントラップとカメラの位置関係を示す．片方の GND 電極をにかかる電圧を変化させてカルシウムイオンの外部電場を変化させたとすると図 52 のように GND 電極対に平行の方向にシフトする．これを EMCCD カメラで撮像したとするとカルシウムイオンの補正点からの移動距離 r はカメラ上での位置シフト r_{ccd} は射影成分となるので

$$r_{\text{ccd}} = r \cos 45^\circ = \frac{r}{\sqrt{2}} \quad (153)$$

となる．

以上より式 (152) および式 (153) より撮像したカルシウムイオンの位置シフトから外部電場の較正を行った．

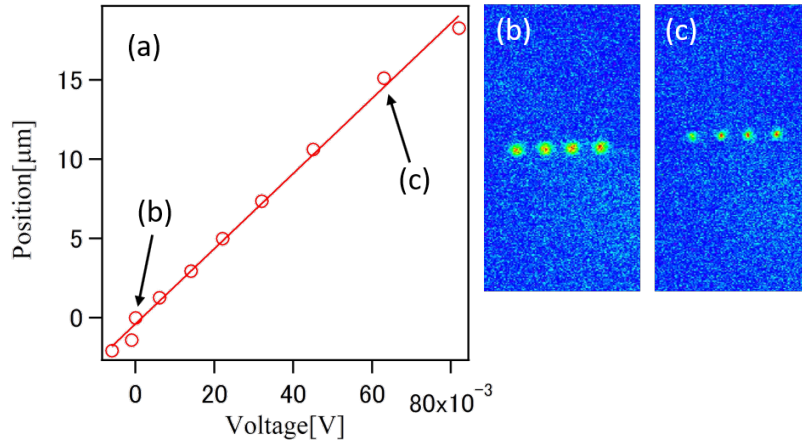


図 53 GND 電極に印加した電圧によるカルシウムイオン位置のシフト. (a)GND 電極の原点は補正点を示す. (b), (c) 補正点と 0.063 V でのカルシウムイオンの蛍光画像. GND 電極に印加した電圧によってカルシウムイオンの位置がシフトする. 実際のイオンのシフトは式 (153) で表される.

変調指数 β とイオンの運動エネルギー

本実験では誘起したマイクロモーションをカルシウムイオンの蛍光スペクトルから得られる変調指数 β を用いて測定した. ここでは変調指数とカルシウムイオンの運動エネルギーの関係について述べる.

式 (147) 中のマイクロモーションエネルギー E_{emm} について, マイクロモーションは RF 電場を加えている動径方向のみに生じるため, 動径方向の二軸 x , y 方向について分解することができる.

$$E_{\text{emm}} = E_x + E_y \quad (154)$$

ここで E_x と E_y はそれぞれ x 軸, y 軸のマイクロモーションエネルギーである. この x , y 軸の取り方は第 3 章における軸の取り方から変えて図 52 に準拠する. GND 電極に印加する電圧を変化させて図 52 のようにカルシウムイオンの位置をシフトさせたとき, x 軸と y 軸と同程度マイクロモーションが誘起されると考えられるので

$$E_x = E_y \quad (155)$$

が成立すると考えられる.

以下ではしばらく y 軸方向の運動について考える. y 軸方向のエネルギー E_y は y 方向の速さの二乗平均 $\langle v_y^2 \rangle$ を用いて

$$E_y = \frac{1}{2} m_{\text{ion}} \langle v_y^2 \rangle \quad (156)$$

と書ける.

ここでイオンのマイクロモーションの速度はイオントラップの RF で駆動されているので, y 軸方向の速度は振幅を v_{y0} とすると

$$v_y = v_{y0} \cos(\Omega t + \phi) \quad (157)$$

とかける [123]. ただし t は時間, ϕ は位相である.

式 (157) の二乗を RF 一周期について積分して平均を計算し, $\langle v_y^2 \rangle$ を求めると

$$\langle v_y^2 \rangle = \frac{v_{y0}^2}{2} \quad (158)$$

となる.

すなわち y 軸方向のエネルギーは

$$E_y = \frac{1}{4} m_{\text{ion}} \langle v_{y0}^2 \rangle \quad (159)$$

と表される.

ところで, 式 (116) 中に現れる変調指数 β について考える. この値はマイクロモーションの大きさを表した値であり, $\beta = 0$ ならば式 (116) は自然幅を持つスペクトルとなる. β が有限の値をとるとマイクロモーションによるサイドバンドが大きくなり, 線幅は太くなり, スペクトル形状は特徴的な形をとるようになる. このように変調指数はマイクロモーションの大きさを表す数値であるが, 式 (121) のように変調指数はマイクロモーションのによる速度と冷却光の波数ベクトルとの内積で表すことができた. 式 (157) 中の v_{y0} と冷却光の波数ベクトル \mathbf{k}_c を用いると変調指数 β は,

$$\beta = \left| \frac{\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{v}_{y0}}{\Omega} \right| = \left| \frac{k_c v_{y0} \cos \theta_c}{\Omega} \right| \quad (160)$$

とかける [98, 123]. ここで θ_c は図 54 に示すように冷却光伝播方向とイオン速度のなす角である. 式 (160) を v_y について解くと

$$v_{y0} = \frac{\beta \Omega}{k_c |\cos \theta_c|} \quad (161)$$

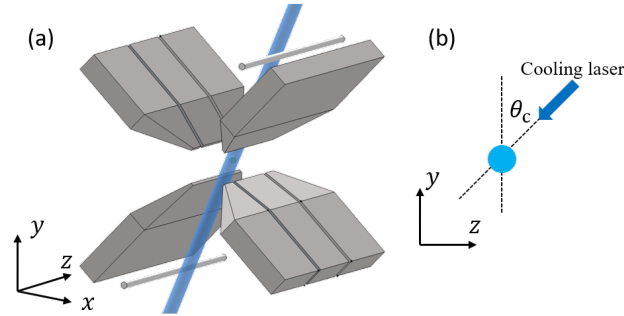


図 54 イオントラップと冷却光の入射方向. (a) イオントラップと冷却光の伝播方向を示した. 冷却光を斜めから入射することで動径方向と軸方向の両方の冷却を同時に行い効率化した. (b) カルシウムイオンと冷却光の関係, 冷却光は y 軸に対して角度 θ_c で入射している.

となる. 上式 (162) について二乗平均 $\langle v_{y_0}^2 \rangle$ をとると

$$\langle v_{y_0}^2 \rangle = \frac{\langle \beta \rangle^2 \Omega^2}{k_c^2 \cos^2 \theta_c} \quad (162)$$

ここで $\langle \beta \rangle$ は β の一周期での平均とする. この y 軸方向の速さの 2 乗平均 $\langle v_y \rangle$ を式 (159) に代入し, 式 (154) と式 (155) を使って整理するとマイクロモーションエネルギー E_{emm} は

$$E_{\text{emm}} = \frac{m_{\text{ion}} \Omega^2}{2k_c^2 \cos^2 \theta_c} \langle \beta \rangle^2 \quad (163)$$

と表すことができる.

こうしてマイクロモーションエネルギーを変調指数で表すことができた.

なお, 冷却光は図 54 に示したように y 軸に対して 45° に入射しているので $\cos \theta_c = \frac{1}{\sqrt{2}}$ である.

蛍光スペクトルによる評価

任意の捕獲点におけるイオンの平均運動エネルギーは式 (148) に示したように補正点におけるエネルギーと余剰マイクロモーションエネルギーによって表せる. また余剰マイクロモーションエネルギーは外部電場の二乗に比例する. 補正点におけるエネルギーと実際に誘起したマイクロモーションの外部電場二乗則を実験的に別の観点によって明らかにするため, カルシウムイオンの蛍光スペクトルを用いた評価を行った.

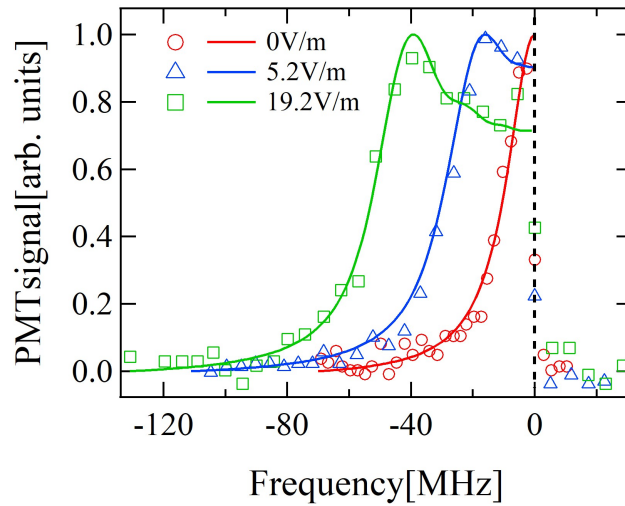


図 55 外部電場を変化させたときのイオンのスペクトル．スペクトルはピークの値で規格化した．赤，青，緑の点はそれぞれ 0 V/m, 5.2 V/m, 19.2 V/m の外部電場のときのスペクトルである．実線は式 (116) によるフィッティングである．

イオントラップ中にカルシウムイオンを捕獲し，レーザー冷却した上で GND 電極に加える電圧を変化させマイクロモーションエネルギーを誘起した．このとき，397 nm の冷却光の周波数を掃引し，カルシウムイオンの蛍光スペクトルを観測した．図 55 に得られた典型的な蛍光スペクトルを示す．それぞれ異なる外部電場を加えたときの蛍光スペクトルであり，赤のプロットは補正点でのスペクトル，青のプロットは外部電場を 5.2 V/m 印加したとき，緑のプロットは 19.2 V/m のときである．縦軸は PMT の光子パルスをもとに光子カウンタで計数し，カウント数に応じて D/A 変換された出力を規格化したものを示しており，カルシウムイオンの蛍光強度に対応している．なおバックグラウンドノイズは差し引いて示した．横軸は掃引した冷却光の周波数をしめしており，これは冷却光の周波数を安定化したファブリ・ペロー共振器の FSR を用いて較正したものである． $4^2S_{1/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移の共鳴中心を 0 MHz としているが，これはカルシウムイオンの蛍光が急激に落ちる点（図 55 中に点線を引いて示した）を共鳴とした．なぜなら，ドップラー冷却はレーザー周波数を共鳴に対して負に離調をとって冷却を行うものであり，周波数が共鳴に対して正になると加熱に転じ，急激に蛍光が落ちるためである．

得られた蛍光スペクトルは外部電場を大きくしていくに従ってスペクトル幅が大きくなり，共鳴点とは別の周波数においてピークがみられるようになる．これはマ

マイクロモーションが増大することにより、マイクロモーションサイドバンドが本来自然幅程度の太さのスペクトルの周りに大量に発生するためである。実験で使用した RF 周波数は $\Omega = 2\pi \times 4.8 \text{ MHz}$ であるから、マイクロモーションサイドバンドは 4.8 MHz 毎にたつと考えられる。これは $4^2S_{1/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移の自然幅の四分の一程度しかないため、サイドバンドは個別に見えずキャリア遷移に埋もれる。こうして図 55 のようなスペクトルが観測されたと考えられる。

3.2.3 に記したようにマイクロモーションが存在するときのイオンの蛍光スペクトルは式 (116) のように表され、図 12 に示したような特徴的な形を呈する。この式 (116) を用いて測定した蛍光スペクトルをフィットした。フィットした結果を図 55 中に実線として示した。このときフィッティングパラメータとして式 (116) 中の変調指数 β を用いた。フィッティングから得られた β は外部電場が 0 V/m, 5.2 V/m, 19.2 V/m のときについてそれぞれ 0.73, 5.0, 10 であった。

以上のように得られる変調指数を各外部電場ごとに典型的に 3, 4 個のスペクトルから得て平均した。これを式 (163) に代入しマイクロモーションエネルギーを算出した。

こうして評価したカルシウムイオンの運動エネルギー E_{ion} の外部電場依存性を図 56 に示す。縦軸はカルシウムイオンの運動エネルギーをボルツマン定数で割ったものであり、横軸は外部電場である。図の (a) はリニアスケールであり、(b) は縦軸を対数スケールで表示した。図中の点が各外部電場において測定したイオンのエネルギーであり、エラーバーは標準誤差を示す。

得られた測定点を式 (148) によってフィットした結果を実線に示した。このとき補正点でのエネルギー E_{min} のみをフリーパラメーターとし、 $E_{\text{min}}/k_B = 12 \text{ mK}$ が得られた。式 (148) 中の q パラメータは測定したトラップ周波数より式 (100) を使って算出した値であり、 $q = 0.15$ を代入した。

図 56 の測定値が示すようにカルシウムイオンの運動エネルギーは外部電場の二乗によく合致する。そこで本実験ではフィットから求めた補正点での運動エネルギー E_{min} と外部電場を用いて運動エネルギーを式 (148) から内挿した。以上のような手法を用いて中性原子-イオン間の散乱エネルギーを制御し、電荷交換断面積のエネルギー依存性を測定した。

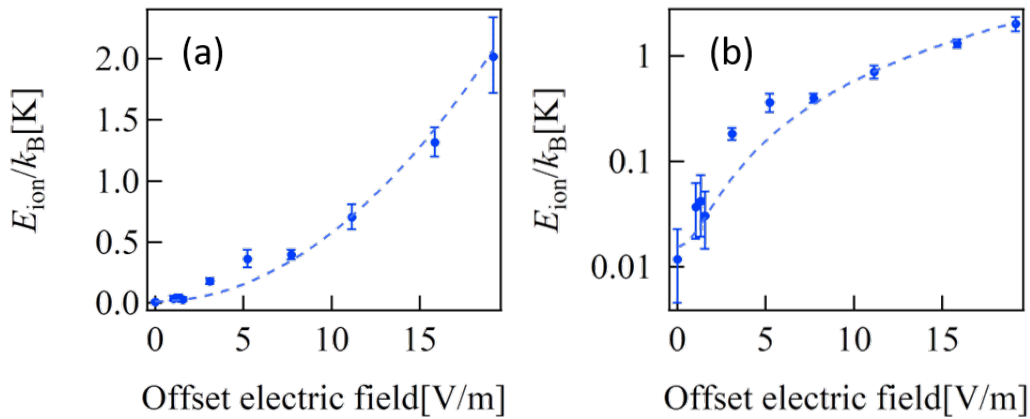


図 56 カルシウムイオンの運動エネルギーの外部電場依存性. 横軸はイオンに印加した外部電場であり, 縦軸はイオンの運動エネルギーを示した. (a) は縦軸を線形で (b) は対数スケールでそれぞれ示した. プロットはスペクトルの式 (116) によるフィットから測定した点である. 破線は式 (148) によるプロット点のフィットである. ただし, $q = 0.15$ 固定し, 補正点でのエネルギー E_{ion} のみをフリーパラメーターとした.

5.3.3 混合中の散乱エネルギーの変化

マイクロモーションによる過熱

5.3.2 に記したようにマイクロモーションを用いてリチウム原子とカルシウムイオンの散乱エネルギーを制御した. 電荷交換散乱を観測するためにリチウム原子とカルシウムイオンを典型的に 1 s 間混合したが, この間のカルシウムイオンの運動エネルギーの変化を考える.

5.2 に記したように本実験では内部状態の依存性を測定するため光ポンピングによってイオンの内部状態を操作した. このとき特に基底状態 $S_{1/2}$ と準安定状態 $D_{3/2}$, $D_{5/2}$ については原子との混合中にレーザー冷却光を入射することができないのでイオンの加熱が存在すると散乱エネルギーが測定中に変化してしまうことになる. 以下では冷却が存在しないときのカルシウムイオンの加熱について考える.

想定されるイオントラップ中のイオンの加熱は大きく二つあり, 一つがバックグラウンドガスとの衝突である. 真空装置内に残留ガスとの衝突はときにカルシウムイオンがトラップから外れてしまうこともあった. 頻繁におこる現象ではなく, カルシウムの原子源に流す電流をなるべく少なくすることでさらに抑えることができた.

もう一つはマイクロモーションに起因する加熱であり，イオントラップにおける加熱の主な原因であると考えられる．以下ではマイクロモーションに起因する加熱について記す．

イオン運動のうち永年運動は熱的な運動である一方でマイクロモーションは熱的な振動とは異なる特殊な運動である．RF によってイオンが振動するのがマイクロモーションであるが，RF の振動はコヒーレントな振動であるためにその RF によって引き起こされるイオンのマイクロモーションもやはりコヒーレントな運動となる．つまり，あるタイミングでイオンが RF によってエネルギーを与えられて加速したとしてもその半周期後にはイオンは RF によってエネルギーを奪われ減速する．これはいわゆるランダムな熱的運動とは異なる．すなわち原理的にはマイクロモーションの大きさにかかわらず，冷却を行わなくてもイオンの温度は時間とともに上昇しない，つまり加熱は存在しない．

しかし，一般にイオンの冷却を行わない場合，イオンの温度は時間とともに増大していき最終的にトラップからこぼれおちる．これはマイクロモーションと永年運動が何らかの原因として結合することで永年運動エネルギーが上昇するためであると考えられる．こうしたマイクロモーションと永年運動の結合は二つの原因が考えられる．一つは RF のノイズに起因し [124, 125]，もう一つはイオントラップ中に複数個のイオンが存在したときイオン同士の散乱によってマイクロモーションのコヒーレントな運動が乱されるために加熱になる [98, 125]．

RF のノイズはコヒーレントでない振動を引き起こすので，イオンの永年運動を増加させる原因となる．RF 電場のノイズのパワースペクトル密度 S_E とするとノイズによる過熱レート H は

$$H = \frac{e^2}{4m_{\text{ion}}k_B} S_E \quad (164)$$

と表せる．[125, 126]．RF ノイズによる加熱は現在までに多くのイオントラップについて検証されており，RF 電場のノイズのパワースペクトル密度とイオントラップの RF 電極の距離に依存することが知られている [125, 127]．そこで実験に用いたイオントラップの電極間距離から典型的な値として $S_E = 10^{-11} \text{ V}^2\text{m}^{-2}\text{Hz}^{-1}$ として計算すると過熱レートは $H = 70 \text{ mK/s}$ となった．この過熱レートの実験データへの取り扱いは後述の 5.4 にて記す．

なおイオントラップ中のイオンの加熱に関する詳細は例えば文献 [128] にある．

一方でイオン同士の散乱によって運動が乱されて，マイクロモーションと永年運

動が結合する効果については詳細な検討がされておらず，未解決な問題となっているため今回はこの効果については取り扱わなかった。

原子との散乱によるエネルギー変化

上ではマイクロモーションの加熱による散乱エネルギーの変化について議論したが，中性原子気体との混合による温度変化も考慮されるべき課題であると考えられる．混合系におけるイオンの温度変化の先行研究として ^{87}Rb と $^{88}\text{Sr}^+$ の系において中性原子とのランジュバン散乱によってストロンチウムイオンの温度が変化することを観測している [43]．この研究ではイオンの速度分布のマックスウェル・ボルツマン分布からのずれとイオンの加熱を報告している．一方で冷却に関しては，MOT 中の中性原子気体との衝突によってトラップしたイオンを冷却した成果も報告されている [42]．これは，MOT 中の中性原子気体と混合しないときに比べてイオンの捕獲時間が伸びていることを観測しており，今回の我々の系に比べ高温領域についての報告と言える．

中性原子-イオン間の弾性散乱によるエネルギーの授受を考えたとき，大きなエネルギー変化に関わるのはランジュバン散乱であると考えられる [43]．ランジュバン散乱は 2.3.2 に示したように粒子間距離が近接するので交換する運動エネルギーも大きくなると考えられるためである．一方でランジュバン散乱は後述するように電荷交換散乱をはじめとした非弾性散乱にも密接に関与している．つまり，混合中の中性原子との弾性散乱によるエネルギー変化を考えると，ランジュバン散乱過程における弾性散乱と非弾性散乱が起きる比を考慮する必要がある．こうした点は今後の研究の展開に密接に関わっているが，本研究では未解決の問題として取り扱った．

5.4 電荷交換断面積

ここでは実際に測定した各内部状態ごとの電荷交換断面積のエネルギー依存性について述べる．まず，電荷交換散乱の測定手法について参考論文 [32] で得られた結果を中心に述べる．次に実際の測定手順について説明する．その後，測定によって得られた結果から電荷交換断面積を求める手順を述べ，最後に測定した結果について議論する．

5.4.1 電荷交換散乱の検出

電荷交換散乱の検出方法について記す．参考論文 [32] において電荷交換散乱を観測した際，散乱過程の同定は質量分析と散乱確率の密度依存性に依った．ここではこの詳細を論じつつ，本実験での電荷交換散乱の検出方法を述べる．

参考論文 [32] において非弾性散乱を検出した際，イオントラップの質量分析を用いた．この質量分析とはイオントラップの電極にトラップとは別の振動電圧を加えてイオンを揺らすことで行われる（測定手法は 4.8.2 に示したトラップ周波数と同一）．

イオントラップ中のイオンは擬調和ポテンシャルと呼ばれる実効的な調和ポテンシャル中に捕獲されていると考えることができるため，外部から振動を加えるとトラップ周波数で共鳴的にイオンの振動が励起される．擬調和ポテンシャルは式 (100) あるいは式 (92) のように質量に依存するため，イオンの質量ごとに共鳴周波数は異なる．このとき，イオンは外部電場によって揺すられるので加熱が起きる．つまり， $^{40}\text{Ca}^+$ イオンのトラップ周波数で振動させれば，加熱により $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの蛍光が減少する．一方で非弾性散乱で生じた生成物イオンは蛍光を発しないが，外部振動電場によって加熱されると $^{40}\text{Ca}^+$ イオンとの散乱によって，やはり $^{40}\text{Ca}^+$ イオンの加熱が起きるため Ca^+ イオンの蛍光による観測が可能である．

2.3.1 で記したように生成物は Li^+ ， $(\text{LiCa})^+$ ， Li_2^+ （それぞれの質量数は 6，46，12 である）が想定される．参考論文 [32] における測定ではこのうち質量数 6 のイオンに対応する，すなわち $^6\text{Li}^+$ の信号のみ検出された．

3.1.2 で述べたようにイオンが安定に捕獲されるためには q パラメータは十分小さくなければならない（我々の実験系では a パラメータは常に無視できほど小さい）．つまり，上の質量分析の実験では生成物についても安定に捕獲されるようなパラメータを選ぶ必要がある．ここで q パラメータは式 (101) のように質量に依存するため，質量が小さいほど q パラメータが大きくなり， $^6\text{Li}^+$ については捕獲しにくいイオン種である．そこで参考論文の実験では生成した Li^+ イオンが捕獲しやすい周波数の高周波電場を用い，さらに Li^+ イオンがレーザー冷却 Ca^+ イオンとの弾性散乱によって共同冷却され，トラップされやすくなるように多数の Ca^+ イオンを捕獲して測定した．

一方で q パラメータを Li^+ イオンが捕獲されない条件にした上で捕獲イオン数が

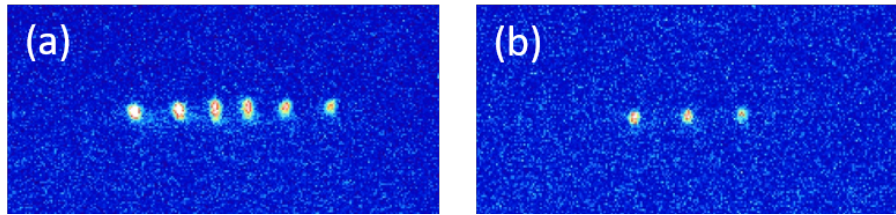


図 57 リチウム原子と混合前後のカルシウムイオン蛍光像. (a) はリチウム原子との混合前であり, (b) は混合後の様子である. 電荷交換散乱が三回起きたため, カルシウムイオンが3つロスした. 中性原子-イオン混合系では非弾性散乱や化学反応を単一レベルで検出可能である.

数えられる程度の少数個の Ca^+ イオンで観測すると Ca^+ イオンのロスが見られた. これは Li 原子との非弾性散乱によって Ca^+ イオンが別の生成物に変化し, 失われたためであると考えられる. これはイオントラップの捕獲ポテンシャルが1万ケルビン程度と非常に深く弾性散乱ではイオンはロスしえず, 非弾性散乱過程であっても非常に大きなエネルギーの放出が起きない限り捕獲され続けるからである. このカルシウムイオンのロス確率をリチウム原子密度を変えつつ測定するとロス確率はリチウム原子密度に比例した. これはすなわち Ca^+ イオンのロスは二体の散乱過程によって起きていると結論づけられる. 以上のような測定から参考論文 [32] では電荷交換散乱 ${}^6\text{Li} + {}^{40}\text{Ca}^+ \rightarrow {}^6\text{Li}^+ + {}^{40}\text{Ca}$ の観測を確認した.

本実験は関連論文の実験パラメータ (密度, 温度) と近い値を用いたので観測される Ca^+ イオンのロスは電荷交換散乱に起因するとした. また今回の実験では Ca^+ イオンのロスのみを測定したいので Li^+ イオンが安定にトラップされないようなトラップ条件で測定した. これは Li^+ イオンが捕獲されると加熱等の悪影響を及ぼす恐れがあるためだ. 最後に本実験において測定された典型的な Ca^+ イオンのロスを図 57 に示す. 図中 (a) はリチウム原子気体と混合前のカルシウムイオン列を示しており, 6 個のカルシウムイオンが捕獲されているのが見て取れる. 一方で (b) は原子との混合後のカルシウムイオン列であり, カルシウムイオンの数が減少している. この 3 個のカルシウムイオンのロスは電荷交換散乱によって Ca^+ イオンが中性 Ca 原子になったためである. 中性原子-イオン混合系では図 57 のように非弾性散乱を単一レベルで検出することが可能である. 以上のように電荷交換散乱を検出した.

5.4.2 ロス確率の測定

実験のおおまかな流れは 4.2 に記した実験概要と同一である．冷却した Ca^+ イオンに対して MOT, 光共振器トラップを経てシングルビームトラップにて捕獲した Li 原子気体を輸送し, 典型的に 1 秒間混合した．本実験では電荷交換散乱のエネルギー依存性を測定したが, 散乱エネルギーを制御するためにリチウム原子と混合する前に 5.3 の手法に従いイオンの余剰マイクロモーションを誘起した．また内部状態依存性を測定するためにリチウム原子とカルシウムイオンがオーバーラップする直前に 5.2 に記したイオンの内部状態制御を行い任意の内部状態に準備した．またカルシウムイオンは混合前後の状態を PMT および EMCCD カメラによって観測し, 原子気体は混合終了時に吸収撮像を行った．

以上の手順を繰り返し行い, 図 57 のようなりチウム原子気体との混合前後のカルシウムイオンの個数変化を繰り返し測定することでカルシウムイオンのロス確率を測定した．ロス確率は余剰マイクロモーションによって制御した各散乱エネルギーごとに典型的に 50 回の混合を行うことで測定した．

5.4.3 電荷交換レート

カルシウムイオンのロス確率の測定から電荷交換レートを算出した．以下にこの手順を説明する．各内部状態, 各散乱エネルギーで測定したカルシウムイオンのロス確率からそれぞれの内部状態での電荷交換レートをフィッティングにより求める．このフィッティング関数をレート方程式によって求めるが, カルシウムイオンの内部状態ごとに取り扱いがことなるため以下では内部状態ごとに記す．

基底状態 $4^2S_{1/2}$

カルシウムイオンの基底状態 $4^2S_{1/2}$ に関するレート方程式は基底状態の存在確率 N_S と電荷交換後の状態の存在確率 N_{CE} , 基底状態の電荷交換レート Γ_S を用いて以下のようにかける．

$$\frac{dN_S}{dt} = -\Gamma_S N_S \quad (165)$$

$$\frac{dN_{\text{CE}}}{dt} = \Gamma_S N_S \quad (166)$$

$$(167)$$

このレート方程式を以下の条件

$$N_S + N_{CE} = 1 \quad (168)$$

$$N_S(0) = 1 \quad (169)$$

$$N_{CE} = 0 \quad (170)$$

のもと解くと

$$N_S = e^{-\Gamma_S t} \quad (171)$$

が得られる。この関数を用いてフィットを行えばよい。

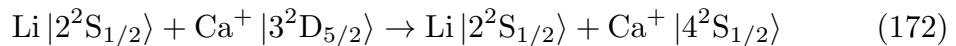
基底状態 $4^2S_{1/2}$ のカルシウムイオンのロスの測定を行ったが、ロス確率はバックグラウンドガスとの衝突でイオンがロスする確率と有意な差を見出すことはできなかった。つまり基底状態 $4^2S_{1/2}$ の反応性は非常に低く、現在の密度と混合時間では観測できなかったためと思われる。すなわちバックグラウンドガスによるロスレートが基底状態の電荷交換レートの上限を与えていると考えられる。バックグラウンドガスによるロスレートは非常に小さいため、これ以降では基底状態の電荷交換レート $\Gamma_S \approx 0$ として扱う。

準安定状態 $3^2D_{3/2}$ 及び $3^2D_{5/2}$

準安定状態のレート方程式は基底状態と異なり、基底状態への自然放出レート γ_{DS} を考慮しなければならない。ただし上で述べた通り基底状態の電荷交換レートは十分小さいとして無視する。

さらに原子と混合している間イオンにはシングルビームトラップの発振波長 1064 nm のレーザーが照射されている。このレーザー波長は $3^2D_{3/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ あるいは $3^2D_{5/2} \leftrightarrow 4^2P_{1/2}$ 遷移から大きく離調があるものの高強度なため励起が起きる。するとイオンは基底状態に緩和し、電荷交換しなくなると考えられる。この 1064 nm レーザーによる基底状態への緩和レートを γ_{IR} とする。

さらに本実験とは別の測定から $D_{5/2}$ の Ca^+ イオンと Li 原子間での以下の状態変化散乱が観測された [129]。



この散乱は励起状態にあったイオンが原子との散乱によって脱励起する過程である。この散乱でイオンが基底状態に落ちるレートを γ_q とする。すなわち図 58 に示した状態の変化が予想される。

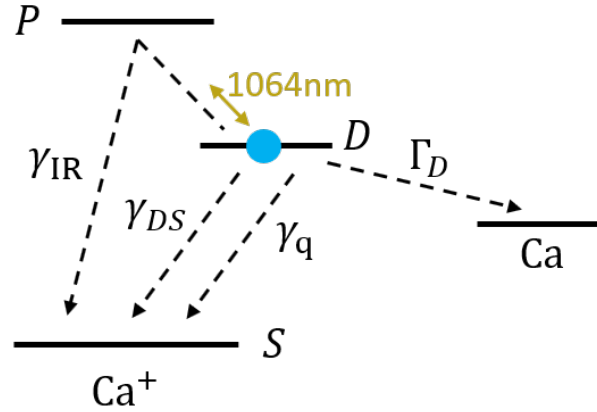


図 58 D 状態における緩和レートと電荷交換レート．図中では具体的な準位を示さなかったが， $D_{3/2}$ ， $D_{5/2}$ のいずれの場合も該当する． Γ_D は電荷交換レート， γ_{IR} は原子の光トラップの 1064 nm レーザー光で励起されることで基底状態に緩和するレート． γ_q は状態変化散乱レートである．

以上の現象を考慮にいれてレート方程式を立てると

$$\frac{dN_D}{dt} = -\gamma_s N_D - \gamma_q N_D - \gamma_{IR} N_D - \Gamma_D N_D \quad (173)$$

$$\frac{dN_S}{dt} = \gamma_s N_D + \gamma_q N_D + \gamma_{IR} N_D \quad (174)$$

$$\frac{dN_{CE}}{dt} = \Gamma_D N_D \quad (175)$$

となる．ただしここで N_D は D 状態の存在確率であり， Γ_D は D 状態 ($D_{3/2}$ あるいは $D_{5/2}$ 状態) の電荷交換レートである．

このレート方程式は以下の条件がつく

$$N_S + N_D + N_{CE} = 1 \quad (176)$$

$$N_S(0) = 0 \quad (177)$$

$$N_D(0) = 1 \quad (178)$$

$$N_{CE}(0) = 0 \quad (179)$$

この条件のもとでレート方程式を解くと

$$N_S = -\frac{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR}}{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D} e^{-(\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D)t} + \frac{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR}}{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D} \quad (180)$$

$$N_D = e^{-(\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D)t} \quad (181)$$

$$N_{CE} = - \frac{\Gamma_D}{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D} e^{-(\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D)t} + \frac{\Gamma_D}{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D} \quad (182)$$

と求められる。

リチウム原子気体との混合後、イオントラップ中のカルシウムイオンの観測確率は $N_S + N_D = 1 - N_{CE}$ で表されるのですなわちフィッティング関数は

$$N_S + N_D = \frac{\Gamma_D}{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D} e^{-(\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D)t} + \frac{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR}}{\gamma_{DS} + \gamma_q + \gamma_{IR} + \Gamma_D} \quad (183)$$

である。

式 (183) で $3^2D_{3/2}$ と $3^2D_{5/2}$ 状態のカルシウムイオンのロス確率の測定結果をフィットして電荷交換レートを算出したが、シングルビームトラップ用レーザーによる基底状態への緩和レート γ_{IR} および状態変化散乱レート γ_q については他の測定から得られた結果を利用した。これらの値は、 $3^2D_{5/2}$ 準位の寿命測定から得られており、 γ_{IR} はシングルビームトラップのレーザーを照射したときに $3^2D_{5/2}$ 準位の寿命よりはやく基底状態へ緩和することから測定されている。この測定に依ればレーザーの中心強度で $\gamma_{IR} = 0.11$ Hz であった。実際の解析では γ_{IR} はレーザー強度に比例するため、リチウム原子気体とカルシウムイオンのオーバーラップ位置から各測定での散乱レートを計算した。一方の状態変化散乱レート γ_q は、リチウム原子と混合した際に $3^2D_{5/2}$ 準位の寿命が短く測定されることから測定されており、その測定によれば、 $\gamma_q/n_a = 1.9 \times 10^{-15}$ m³/s であった [129]。ここで n_a はリチウム原子気体の密度である。

なお、 $3^2D_{3/2}$ の状態変化散乱レートは $3^2D_{5/2}$ と同程度であると仮定して同じ値を用いて解析を行った。

図 59 に外部電場を変化に対する $D_{3/2}$ 状態の Ca^+ イオンのロスレートを示す。横軸はカルシウムイオンに与えた外部電場であり、縦軸は上の手法で求めたカルシウムイオンのロスレートを示す。実線はリチウム原子気体の $1/e$ 幅を用いたガウス関数によるフィッティング結果である。

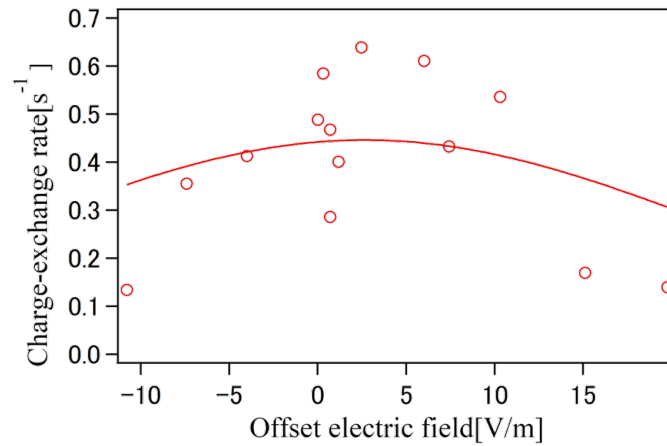


図 59 $D_{3/2}$ 状態の Ca^+ イオンロスレートの外部電場による変化.

$4^2S_{1/2}$, $4^2P_{1/2}$, $3^2D_{3/2}$ 混合状態

5.2 の内部状態の操作で記述したように寿命の短い $4^2P_{1/2}$ 状態のカルシウムイオンについての測定を行うために冷却レーザーとリポンレーザーを照射しつつリチウム原子気体とオーバーラップした. このときカルシウムイオンは $4^2S_{1/2}$, $4^2P_{1/2}$, $3^2D_{3/2}$ の混合状態である. この混合状態の電荷交換レート Γ_{SPD} を考えるとカルシウムイオンが観測される確率 N_{SPD} は $N_{SPD} = e^{-\Gamma_{SPD}t}$ とかける. この関数をフィッティングに使用し, 電荷交換レートを求めた.

5.4.4 電荷交換断面積のエネルギー依存性

上の 5.4.3 で述べた方法で得られた各状態の電荷交換レート Γ はリチウム原子の密度 n_a と散乱する 2 粒子の相対速度 v_{rel} , 電荷交換断面積 σ_{CE} を用いて以下のようにかける.

$$\sigma_{\text{CE}} = \frac{\Gamma}{n_a v_{\text{rel}}} \quad (184)$$

とかける.

式 (184) から電荷交換断面積を算出した結果を図 60 に示す. 図の横軸は散乱エネルギーを示し, 縦軸は電荷交換断面積である. (a), (b), (c) はそれぞれカルシウムイオンの内部状態が $4^2S_{1/2}$, $4^2P_{1/2}$, $3^2D_{3/2}$ 混合状態, $3^2D_{3/2}$, $3^2D_{5/2}$ 状態についての測定結果である. 図中に示した黒線は式 (32) に示したランジュバン散乱電面積

である。また、破線は $1/E_{\text{coll}}^{1/2}$ によるフィッティングである。フィッティング結果より電荷交換断面積のエネルギー依存性はランジュバン散乱断面積と同じ依存性を示すことが見て取れる。これは測定エネルギー領域で電荷交換散乱のメカニズムがランジュバン散乱で説明できることを示していると考えられる。電荷交換散乱は原子に束縛された電子がもう一方に飛び移る現象であるから散乱する2粒子の原子核が近接しなければ起こり得ない。その点ランジュバン散乱は2.3.2に記したように、粒子が内向きのスパイラルを描きつつ近接し、散乱する過程である。ランジュバン散乱の場合、古典的転回点まで粒子が近接するので電子が飛び移ることができると考えられる。今回測定した散乱エネルギー $k_B \times 0.002\text{--}3\text{ K}$ 程度の領域では古典的なランジュバン散乱によって説明できることがわかる。 s 波散乱閾温度は $10.6\ \mu\text{K}$ であるから100倍以上の散乱エネルギーでは妥当な結果と言える。

カルシウムイオンの $D_{3/2}$ と $D_{5/2}$ 状態の測定中は冷却光が照射されていないので5.3.3で議論した混合中のエネルギー変化を考慮する必要がある。混合中の1秒間にRFノイズに起因する過熱 70 mK よりもイオンの運動エネルギーが低い領域は図60(b), (c)の白抜きデータ点で示した。なお、このデータ点は上の $1/E_{\text{coll}}^{1/2}$ のフィッティングや以下に示す結果からも解析において除外した。

今回得られたエネルギー依存性には形状共鳴 (Shape resonance) が観測されなかった。形状共鳴とは原子-イオン間相互作用による引力ポテンシャルに対して外側に遠心力のポテンシャルが存在すると遠心力ポテンシャルの内側に準安定な束縛状態が形成される。散乱エネルギーがこの束縛状態のエネルギーに一致するときに一時的に準安定状態に束縛されるために生じる共鳴現象である (2.3.3を参照)。理論的な解析では図61示したように基底状態における放射性の電荷交換散乱あるいは分子生成において形状共鳴を確認している [130]。形状共鳴がみられなかった理由カルシウムはイオンがトラップされていることに起因していると考えられる。粒子線による反応の研究の場合、並進温度は高いものの、温度広がり狭い速度がよくフィルタリングされている。一方で中性原子-イオン混合系では到達温度は低いものの原子あるいはカルシウムイオンがトラップされているためトラップ内の運動は速度広がりを持つために共鳴が存在しても測定するとなまっていってしまう。以上が今回の測定で形状共鳴が観測されなかった理由と考えられる。

上記のようにカルシウムイオンがトラップされていることによる散乱エネルギーの広がりを図60中の横軸エラーとして示した。

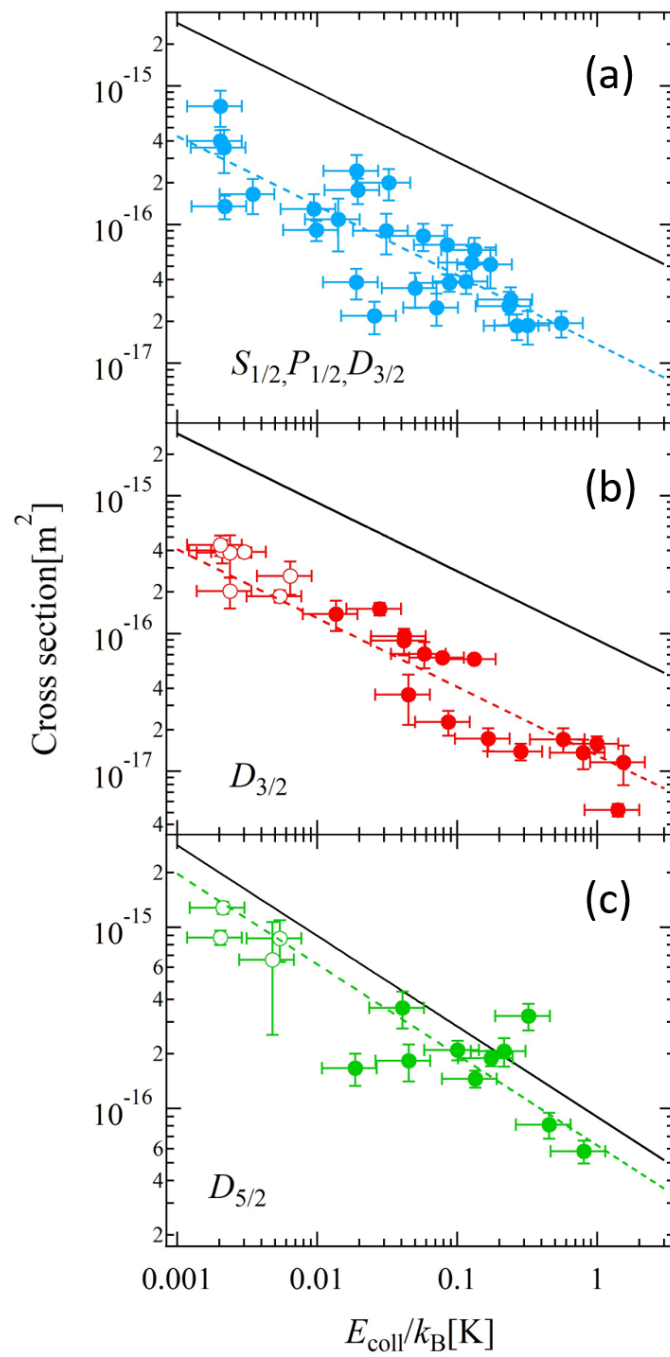


図 60 内部状態ごとの電荷交換断面積のエネルギー依存性.

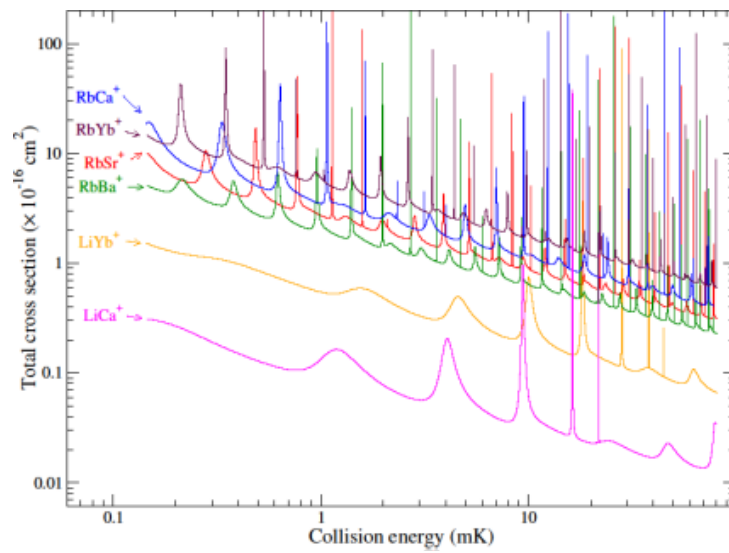


図 61 中性原子-イオン混合系における基底状態の放射性電荷交換散乱断面積と放射性分子生成断面積の和の散乱エネルギー依存性 [130]. Li-Ca⁺ 以外の系については文献 [131] にあるものと同一.

5.5 電荷交換断面積の内部状態依存性

5.5.1 電荷交換-ランジュバン断面積比

図 60 に示した電荷交換断面積はいずれもランジュバン断面積よりも低い値を示している。これはランジュバン散乱が起きた際に必ず電荷交換が起きるわけではなく、これが確率的な過程であることを示している。さらに内部状態ごとに電荷交換断面積の値は異なっているが、これは内部状態ごとの反応性の違いを示唆している。そこで各状態ごとの電荷交換断面積とランジュバン断面積の比を $A = \sigma_{CE}/\sigma_L$ とおき、各状態ごとに求めたものを表 12 に示した。この値は各状態の反応性を示している。なお、 $4^2P_{1/2}$ の値はで 5.2 述べた内部状態占有比を用いて $\sigma_{SPD} = p_S\sigma_S + p_P\sigma_P + p_D\sigma_D$ の関係から求めた。

この結果は MIT の Vuletić らのグループによる Yb-Yb⁺ 系の電荷交換散乱の測定結果 [30] とは対称的な結果と言える。当該論文では中性 Yb 原子と Yb⁺ イオンの同位体の組み合わせ $^{174}\text{Yb}-^{172}\text{Yb}^+$, $^{171}\text{Yb}-^{172}\text{Yb}^+$, $^{172}\text{Yb}-^{174}\text{Yb}^+$ について行われており、電荷交換前後のエネルギーがほぼ同じため共鳴電荷交換散乱となり、ランジュバン散乱断面積と電荷交換散乱断面積が一致した。

表 12 Ca⁺ イオンの内部状態ごとの係数 A

$^{40}\text{Ca}^+$ の内部状態	A
$4^2S_{1/2}$	$\lesssim 1 \times 10^{(-3)}$
$3^2D_{3/2}$	0.14 ± 0.02
$3^2D_{5/2}$	0.69 ± 0.12
$4^2S_{1/2}, 4^2P_{1/2}, 3^2D_{3/2}$ 混合状態	0.15 ± 0.02
$4^2P_{1/2}$	0.38 ± 0.11

5.5.2 電荷交換経路の特定

表 12 の結果を Olivier Dulieu らによって計算されたポテンシャルエネルギー曲線、図 4 と比較することで考察する。

基底状態 $4^2S_{1/2}$

Ca^+ イオンの基底状態における電荷交換散乱は我々が実現した原子密度では測定することが出来なかったため、断面積の上限を与えたのみである。つまり基底状態の反応性がほかの準位に比べ著しく低い。

図 62 にポテンシャルエネルギー曲線のうち基底状態のみを強調表示したものを示す（図 4 に示した Maurice Raoult, Humberto Da Silva Jr., Olivier Dulieu の計算によるポテンシャルエネルギー曲線と同一のものである）。赤線で表示したのが電荷交換前の $\text{Li}(2s) + \text{Ca}^+(4s)$ の状態であり、青線で表示したのが電荷交換後の $\text{Li}^+ + \text{Ca}(^1S)$ の状態のポテンシャルエネルギー曲線である（実線はスピン-重項状態、破線は三重項である）。このエントランスチャンネルは近接したエネルギー曲線が存在せず状態間の結合も見て取れないため反応性が低いと考えられる。このような場合、差分のエネルギーを光として放出する放射性電荷交換散乱によって遷移するが、放射性の電荷交換は非常に遷移確率が低い [130]（図 61 を参照）ために観測に至らなかったと考えられる。すなわち、このチャンネルでランジュバン散乱がおきても弾性散乱のみが起きると考えられる。

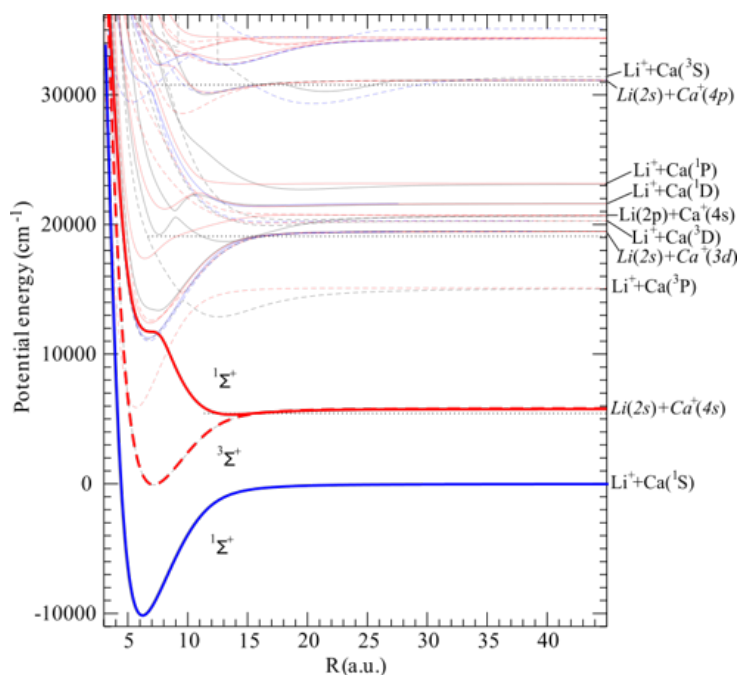


図 62 $\text{Li}(2s) + \text{Ca}^+(4s)$ のポテンシャルエネルギー曲線.

なお、この性質は非弾性散乱を起こしたくない共同冷却にとっては有利と言える。実際、Li-Ca⁺ 実験系共同冷却を行った文献 [58] では基底状態で共同冷却を試みた。

準安定状態 $3^2D_{3/2}, 3^2D_{5/2}$

カルシウムイオンの準安定状態 $3^2D_{3/2}$ と $3^2D_{5/2}$ の状態はいずれも高い反応性を示した。図 63 にポテンシャルエネルギー曲線のうちエントランスチャンネルである Li(2s) + Ca⁺(3d) の三重項状態と電荷交換後の状態である Li⁺ + Ca(³P) の三重項状態のみをそれぞれ赤線，青線強調表示したものを示す。この状態間には $9.69a_0$ の結合に起因する擬交差が存在する (a_0 はボーア半径である)。この擬交差による遷移確率 P_{LZ} はランダウ・ツェナーモデルによる計算により $P_{LZ} = 0.556$ と計算される。この値は D 状態の反応性の高さを説明する非常に大きい遷移確率であると言える。なぜなら、このチャンネルでランジュバン散乱が起きたとき、古典的な粒子が擬交差を通過するのは 2 回存在する。位相シフトの効果など他の影響をを完全に無視すれば、2 回の擬交差の通過によって電荷交換する確率は 0.494 となる。すなわち、 D 状態の反応性の高さはこの結合に起因していると考えられる。また遷移した状態 Li⁺ + Ca(³P) は最終的に Li⁺ + Ca(¹S) に緩和すると考えられる。

一方で $3^2D_{3/2}$ と $3^2D_{5/2}$ 間にも反応性の違いがみられた。このポテンシャルエネルギー曲線はスピン軌道相互作用を考慮していないためこの反応性の違いは説明できないが、スピン軌道相互作用が影響したポテンシャルエネルギーの変化が反応性に影響していると考えられる。

またこの結果は Basel 大学の S. Willitsch らのグループによる MOT 中の Rb 原子と Ca⁺ イオンの電荷交換散乱と大きく異なる結果を示している。当該論文では D 状態の反応性は低く、それを裏付けるようにポテンシャルエネルギー曲線に結合が存在しないことが報告された [33]。

励起状態 $4^2P_{1/2}$

励起状態 $4^2P_{1/2}$ は高い反応性を見せた、しかしながら、ポテンシャルエネルギー曲線上には状態間の結合は見受けられなかった。しかし、励起状態周辺は様々な状態が複雑に入り混じっているため、スピン軌道相互作用等を考慮にいたした場合、状態間の結合が見られるようになるかもしれない。今後も解析必要とされる状態であると言える。

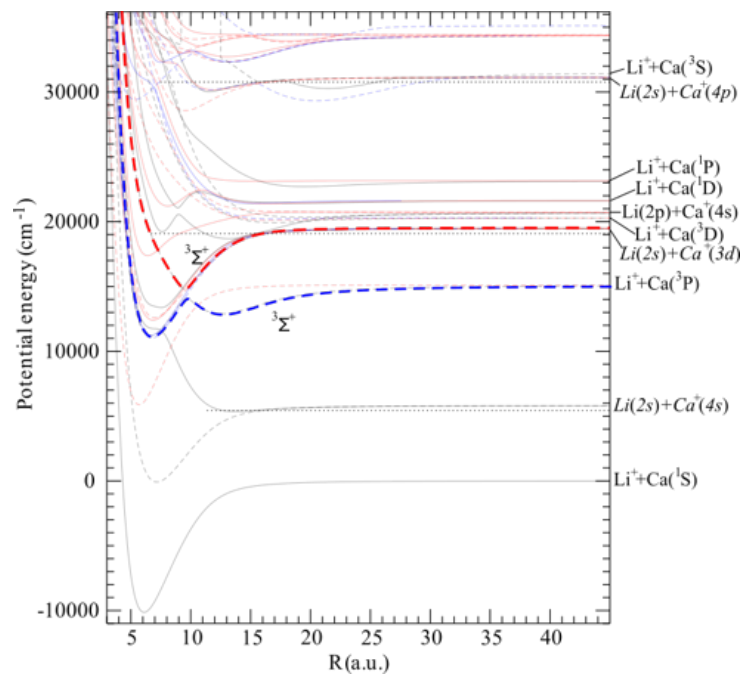


図 63 Li(2s) + Ca⁺(3d) のポテンシャルエネルギー曲線. 三重項状態のみ表示した.

5.6 非弾性散乱のスピン依存性

ここでは、上述した電荷交換断面積の測定に関する考察を続けるとともに別の実験として試みた電荷交換散乱を含めた非弾性散乱のスピン依存性に関わる研究について述べる。この研究は博士課程における研究の一環として行っていたが、結果を投稿論文にまとめるまでに至らなかったため、ここで簡潔に述べる。

5.6.1 D 状態のスピン依存性

計算したポテンシャルエネルギー曲線のうち $\text{Li}(2s) + \text{Ca}^+(3d)$ の状態にのみ注目する。図 64 において赤色破線で示したものは、そのうちのスピン三重項状態であり、図 63 にて示したものと同一である。もう一つピンク色の実線で示したのが一重項状態である。5.5.2 にて述べたように三重項状態には $\text{Li}^+ + \text{Ca}(^3D)$ の状態との擬交差が存在する。一方の一重項状態にも原子間距離 $8a_0$ あたりに擬交差を持つ。これは $\text{Li}(2s) + \text{Ca}^+(4s)$ チャンネルとの結合である。すなわち擬交差による遷移が起こった場合、励起状態 D のイオンが基底状態 $4s$ に緩和することを示している。つまり状態変化散乱 (state-changing collision) の経路を示していると考えられる。電荷交換散乱のレート方程式を解いた際に述べたように式 (172) で示した状態変化散乱が観測された [129] が、この散乱過程はこの擬交差によって起きたと考えられる。すなわち、スピン一重項では状態変化散乱、三重項では電荷交換散乱の経路となる擬交差が存在する。これはスピン状態を制御すれば、電荷交換あるいは状態変化散乱といった散乱過程を選択できる可能性があるというのがこの実験のモチベーションである。

実験では混合するリチウム原子とカルシウムイオンの磁気副準位を選別することでそれぞれリチウム原子とカルシウムイオンのアップスピンとダウンスピンを選択できる。実験的に準備できるスピンの組み合わせと非弾性散乱を以下表 13 にまとめた。

すなわち、リチウム原子とカルシウムイオン共にアップスピンあるいはダウンスピンを選べば電荷交換散乱のみが起きる。一方でリチウム原子とカルシウムイオンで互いに逆のスピン状態を選べば電荷交換散乱と状態変化散乱の両方が起きる。こうした手法で非弾性散乱のスピン状態依存性が観測できると考えられる。次項以降で

具体的なスピン状態の選択手法について述べる。

表 13 Li 原子と Ca^+ イオンの組み合わせによる $\text{Li}(2s) + \text{Ca}^+(3d)$ のスピン状態と非弾性散乱。

Li	Ca^+	$\text{Li} + \text{Ca}^+$	非弾性散乱
$ \uparrow\rangle_{\text{atom}}$	$ \uparrow\rangle_{\text{ion}}$	三重項	電荷交換散乱
$ \downarrow\rangle_{\text{atom}}$	$ \downarrow\rangle_{\text{ion}}$	三重項	電荷交換散乱
$ \uparrow\rangle_{\text{atom}}$	$ \downarrow\rangle_{\text{ion}}$	一重項と三重項の重ね合わせ	電荷交換散乱, 状態変化散乱
$ \downarrow\rangle_{\text{atom}}$	$ \uparrow\rangle_{\text{ion}}$	一重項と三重項の重ね合わせ	電荷交換散乱, 状態変化散乱

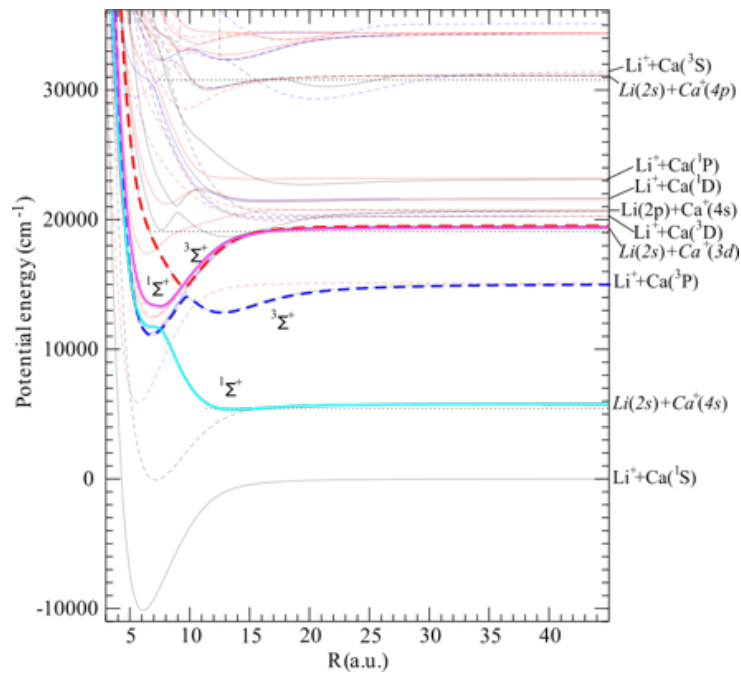


図 64 $\text{Li}(2s) + \text{Ca}^+(3d)$ のポテンシャルエネルギー曲線。赤破線が三重項状態、ピンク実線が一重項状態である。青破線および水色実線はそれぞれ擬交差を持つ終状態 $\text{Li}^+ + \text{Ca}(^3\text{P})$, $\text{Li}(2s) + \text{Ca}^+(4s)$ である。

5.6.2 Li 原子のスピンの偏極

リチウム原子のスピンの状態の選別方法について述べる。光トラップ中の原子気体は $2^1S_{1/2}$ の $|F = 1/2, m_F = 1/2\rangle$ と $|1/2, -1/2\rangle$ がおおよそ半分ずつ含まれている。このうち任意の片方状態のリチウム原子のみをカルシウムイオンと混合したいので片方のスピン状態のリチウム原子を選択的にトラップから除去した。

この手法は 4.6.2 に記した高磁場下のイメージング手法と同一のプロセスである。高磁場イメージングでは磁気副準位が光で選別できる程度に分裂する磁場を印加した状態で片方の成分にのみ共鳴する光を入射することで他方の成分とは無関係にリチウム原子の撮像を行った。このときリチウム原子気体の共鳴する成分は共鳴光によるキックで加熱され光トラップよりロスする。一方で他方の成分は加熱が起らないためトラップされ続ける。これを利用すれば任意の状態のみトラップすることが可能である。以下では原子の偏極に用いる光のことをブラスト光と呼ぶ。

上記の手法を用いた具体的な偏極化について議論する。異なる磁気副準位を分離するために 300 G 程度の磁場を印加した。この程度の均一磁場を実現するためには原子の MOT に用いたコイル程度 (4.4.4 参照) の規模が必要になる。本来この偏極化は原子を輸送した後に行うのが順当な手順であるが、この規模のコイルをイオンチャンバーに設置することはイオンの冷却光の入射パス等の兼ね合いから避けた。そこで原子の輸送後に偏極させるのではなく、輸送前に原子チャンバー内で MOT 用のコイルに対してアンチヘルムホルツ配置にて電流を流し、均一磁場を発生させた。

均一磁場 300 G を印加した原子チャンバー内のシングルビームトラップ中のリチウム原子に対してブラストレーザー光を $50 \mu\text{s}$ 照射した後、リチウム原子気体を輸送した。なおレーザー光の照射時間の最適化はブラスト光照射後の高磁場イメージングでリチウム原子が撮像されないこととブラスト光照射後に磁場を切り、ゼロ磁場イメージングによるリチウム原子数がブラスト光を照射しない場合に比べて半分程度に減少していることで確認した。またリチウム原子気体の輸送後のゼロ磁場イメージングでも原子数が半分になることを確認した。以上のようにリチウム原子の偏極化を行った。

本来、偏極化はシュテルン・ゲルラッハの実験で確認するのが最も良いと考えられるが、本実験系を用いたこれまでの実験ではシュテルン・ゲルラッハを観測する

ためには 3 ms 程度の飛行時間が必要であり、蒸発冷却なしではリチウム原子気体が拡散してしまい観測できなかつたため今回では用いながった。

この偏極化の問題点は完全にゼロ磁場になると磁気副準位が縮退してしまうため原子の偏極が失われてしまうという点である。しかしながら、磁場はベクトル量であるため、完全にゼロになる点が偶然できてしまうということは考えにくい。実験的にゼロ磁場を作りたい場合、それに応じた措置を取らねばならないことが一般的である。今回は輸送途中にリチウム原子の磁気副準位が縮退してしまうことを無視し、上のような方法をとった。

5.6.3 Ca^+ イオンのスピン偏極

この実験では偏極化を行うという点とカルシウムイオンの状態変化散乱を検出する点の二点を鑑みて、 Ca^+ イオンの $3^2D_{5/2}$ 準位の特定の磁気副準位を用いることにした。一つ目の点に関して、5.2 内部状態の制御では $D_{3/2}$ と $D_{5/2}$ へのポンピングは自然放出を用いている。この場合、特定の磁気副準位にポンプすることは難しい。そこで今回は 729 nm の狭線幅レーザーを用いて $S_{1/2} \rightarrow D_{5/2}$ の電気四重極遷移を直接励起して任意の磁気副準位のカルシウムイオンを得た。

以下に具体的な手法を述べる。具体的には図 65(a) にカルシウムイオンに照射した光の位置関係を (b) にポンピングの方法を示す。3.5 G の磁場を印加し、垂直方向から σ^+ 偏光の 397 nm の光を入射して $|4^2S_{1/2}, J = 1/2, m_J = -1/2\rangle \rightarrow |4^2P_{1/2}, 1/2, 1/2\rangle$ の遷移を励起した。自然放出は $|J = 1/2, m_J = 1/2\rangle$ および $|1/2, -1/2\rangle$ へ起きうるが、 σ^+ 397 nm 光は $|J = 1/2, m_J = 1/2\rangle$ を励起し得ないのでカルシウムイオンは $|J = 1/2, m_J = 1/2\rangle$ にポンピングされる。

σ^- 偏光を用いた場合は同様の原理で $|1/2, -1/2\rangle$ にポンピングされる。

基底状態の片方の磁気副準位にポンプしたカルシウムイオンを 729 nm のレーザーで任意の磁気副準位に励起させる。今回の実験では $|3^2D_{5/2}, J' = 5/2, m'_J = 5/2\rangle$ あるいは $|5/2, -5/2\rangle$ の両端の準位を使用した。電気四重極遷移の選択性から $|3^2D_{5/2}, 5/2, 5/2\rangle$ に準備する場合は、はじめに σ^+ 偏光で $|4^2S_{1/2}, 1/2, 1/2\rangle$ にポンプし、 $|3^2D_{5/2}, 5/2, -5/2\rangle$ に準備する場合は、 σ^- 偏光で $|4^2S_{1/2}, 1/2, -1/2\rangle$ にポンプした。確実に $3^2D_{5/2}$ に励起させたい場合、 π パルス照射することが理想的だが、周波数ドリフトのために安定して π パルス照射することができなかつたため、729 nm レーザーの照射強度を上げてパワーブロードニングさせ、 π パルスの

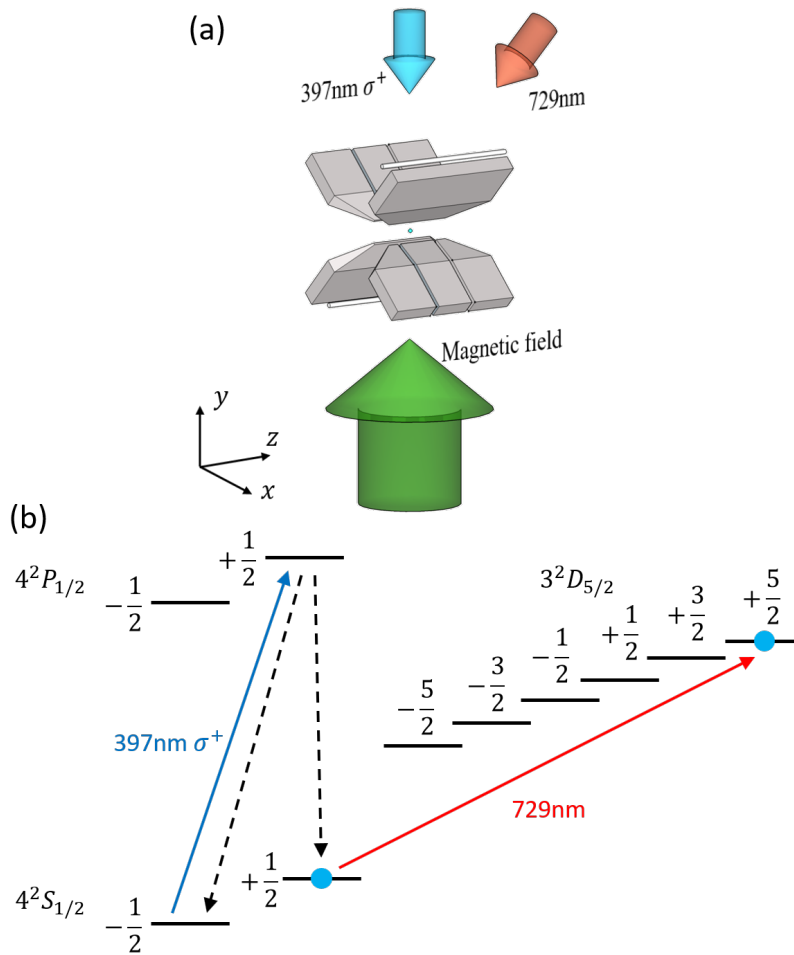
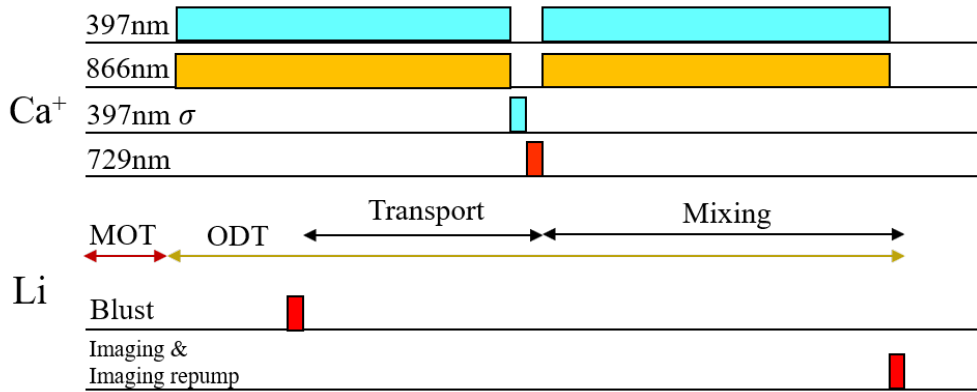


図 65 $|3^2D_{5/2}, J' = 5/2, m'_J = 5/2\rangle$ へのポンプ. (a) 磁場と光学配置. (b) Ca^+ イオンの準位. $|3^2D_{5/2}, J' = 5/2, m'_J = -5/2\rangle$ へポンプするとき は σ^- 偏光にし, 729 nm レーザーの周波数 $|J = 1/2, m_J = -1/2\rangle \rightarrow |J' = 5/2, m'_J = -5/2\rangle$ に対して共鳴するよう変えた.

数倍程度の時間, 今回の実験パラメータでは $50\ \mu\text{s}$ 照射し続け, 励起した. パワーブロードニングさせることで周波数ドリフトの影響を抑えたが, このとき隣接した別の磁気副準位のサイドバンドを励起しないよう留意した.

5.6.4 スピン依存性の検出手法

表 13 に示した実験的に準備できる 4 つのスピンの状態の組み合わせによって起きうる非弾性散乱過程が異なる. このうち状態変化散乱は三重項状態を選んだ場合は

図 66 $D_{5/2}$ 状態の寿命測定のためのタイミングチャート。

起きないため $D_{5/2}$ 状態の寿命を測定することで状態変化散乱の有無を検出し、非弾性散乱のスピン状態依存性を測定しようと試みた。以下では具体的な手法を述べる。

寿命測定

ここでは $D_{5/2}$ 状態の寿命測定手法について述べる。5.4.2 に示した測定手順に加えてリチウム原子とカルシウムイオンのスピン偏極化が必要となる。図 66 に実験フローを示した。カルシウムイオンはあらかじめ捕獲・冷却しておき、リチウム原子気体を輸送し、混合する直前に 397, 866 nm レーザーを切り、397 nm σ 偏光レーザー、729 nm レーザーを順次照射し、 $|5/2, 5/2\rangle$ あるいは $|5/2, -5/2\rangle$ の準位にポンプする。その後混合中は再び 397, 866 nm レーザーを照射し続ける。

一方のリチウム原子はイオントラップへの輸送前にブラスト光を当て偏極化する。

リチウム原子とカルシウムイオンの混合中、397, 866 nm レーザーを照射して、光電子増倍管でカルシウムイオンの蛍光を観測し続けた。729 nm 光によって $D_{5/2}$ に励起されたカルシウムイオンは冷却サイクルにのらないため、蛍光を発生することはない、一方で $D_{5/2}$ から緩和した場合は冷却サイクルにのり蛍光を発生し始める。カルシウムイオンが蛍光を発生しない時間、すなわち $D_{5/2}$ から緩和する時間を繰り返し測定することで寿命の測定を行った。図 67 にリチウム原子と混合しなかったときの寿命測定結果を示す。図 67(a) は典型的な $D_{5/2}$ からの緩和に伴う蛍光信号の観測を示す。横軸は原点は 729 nm レーザーを照射してカルシウムイオンを励起したタイミングである。励起されたイオンは蛍光を発生しなくなり、しばらくすると緩和し蛍光を再び発生し始める。(b) には (a) に示した測定を 97 回行い得られた

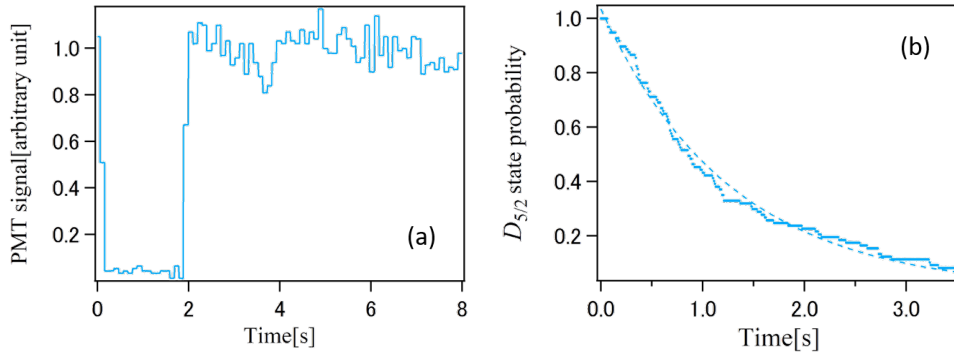


図 67 $|D_{5/2}, J' = 5/2, m'_J = -5/2\rangle$ 状態の寿命測定. (a) $D_{5/2}$ へのポンプと緩和に伴うカルシウムイオン蛍光の変化の典型例. 図中横軸 0 は 729 nm レーザーを照射したタイミングに対応する. (b) 原子と混合していないときの $|D_{5/2}, J' = 5/2, m'_J = -5/2\rangle$ 準位の存在確率時間依存性

$|D_{5/2}, J' = 5/2, m'_J = -5/2\rangle$ 準位の存在確率の時間変化を示した. 図中, 破線はフィッティング結果であり, 寿命は 1.3 s と測定された.

予想される測定結果

実際にリチウム原子と混合を行い寿命を測定することはできなかったため, 最後に予想される結果について議論する.

図 67(b) に示した結果はカルシウムイオン $D_{5/2}$ 状態の純粋な寿命を測定した. リチウム原子と混合した場合, 5.4.3 で述べたようにリチウム原子の光トラップレーザーによる励起によって寿命が短く観測される. この光トラップレーザーによる変化より有意に寿命が短く観測されたとき, 状態変化散乱によるものと考えられる. ただし, スピン三重項にした場合は, 光トラップレーザーを照射したときと同様の寿命になると考えられる.

一方で電荷交換散乱に関してはスピンの取り方に関わらず起きるが, $|\uparrow\rangle_{\text{atom}} |\uparrow\rangle_{\text{ion}}, |\downarrow\rangle_{\text{atom}} |\downarrow\rangle_{\text{ion}}$ の場合と $|\uparrow\rangle_{\text{atom}} |\downarrow\rangle_{\text{ion}}, |\downarrow\rangle_{\text{atom}} |\uparrow\rangle_{\text{ion}}$ の場合で三重項状態の存在比が異なるため電荷交換確率の変化が起きると考えられる.

第 6 章

まとめと展望

6.1 まとめ

本研究は内部状態を制御したレーザー冷却中性原子とイオンを用いて Li 原子と Ca^+ イオンの非弾性散乱に関する研究を行った。その中でも特に以下の 2 つの点について実験的研究を行った。

一つ目は Li- Ca^+ 系の電荷交換断面積の測定を行うことを中心に Li- Ca^+ 間の低温非弾性散乱の性質を調べた。これを遂行する上で Ca^+ イオンの内部状態をレーザーで制御して内部状態ごとの寄与を分離した。さらに Ca^+ イオンの余剰マイクロモーションを制御して散乱エネルギーを制御する手法を開発し、ミリケルビンからケルビン領域の散乱エネルギーにわたって散乱断面積のエネルギー依存性を一つの実験系で測定することに成功した。

また測定したエネルギー依存性より、測定エネルギー領域では電荷交換散乱がランジュバン散乱で説明できることを見出した。これは、この領域では中性原子-イオン散乱が古典的に説明できることを示している。本研究で測定した散乱エネルギーの下限は $2 \text{ mK} \times k_B$ であり、Li- Ca^+ 系の s 波散乱閾エネルギーは $10.6 \mu\text{K} \times k_B$ 程度であることから、今回の測定では s 波散乱が支配的になるエネルギー領域にあと 2 桁までせまったことを意味している。

また電荷交換断面積に内部状態ごとの反応性の違いを見出し、共同研究によるポテンシャルエネルギー曲線からそれらの説明を試みた。特に $3^2D_{3/2}$ と $3^2D_{5/2}$ の反応性の高さは状態間の結合に伴う擬交差が原因であることを説明した。

二つ目はスピン状態を選別した上で非弾性散乱過程を観測する実験を行った。こ

の実験は図 4 において $\text{Li}(2s) + \text{Ca}^+(\text{D})$ のポテンシャルエネルギー曲線が三重項状態と一重項状態で異なる状態との擬交差を持つという解析結果に端を発している。ポテンシャルエネルギー曲線によれば三重項状態では電荷交換散乱が一重項状態では状態変化散乱 (state-changing collision) がそれぞれ起きると予想された。そこでリチウム原子とカルシウムイオンの磁気副準位をそれぞれ選別した。リチウム原子は高磁場下で共鳴光を照射することで任意の準位の原子にエネルギーを与え、吹き飛ばすことで選別した。一方のイオンは四重極遷移を狭線幅のレーザーを使って励起し、直接任意の磁気副準位のイオンを準備した。これらのリチウム原子とカルシウムイオンの混合実験を行ったが、時間の都合上反応を観測するまでに至らなかった。

内部状態の制御による化学反応を含む非弾性散乱過程の制御という観点から本研究で得られた成果を振り返る。Li 原子- Ca^+ イオンの組み合わせの場合、特筆すべきは基底状態 $S_{1/2}$ の安定性と準安定状態 $D_{3/2}$, $D_{5/2}$ の反応性の高さにある。すなわち、基底状態の安定性は原子-イオン間で非弾性散乱を起こしたくない際に利用できる。具体的にはカルシウムイオンの共同冷却を行う際はイオンの加熱やロスになりうる非弾性散乱は極力抑えたいため、基底状態を利用することができる。実際に我々の実験系においてカルシウムイオンの温度がケルビン程度の領域において共同冷却が確認できた [58]。一方で非弾性散乱を起こしたい場合は、 $D_{3/2}$ あるいは $D_{5/2}$ に励起すればよい。 $D_{3/2}$ は 397 nm レーザーを照射することで、 $D_{5/2}$ は 397 nm と 850 nm のレーザーを同時に照射することで準備できるのでレーザーを電荷交換を起こすスイッチのように使えることを示唆している。

中性原子-イオン混合系は二つの異なる性質を持った手法とトラップ対象を組み合わせた系であるため自由度が高く、広い分野に応用できる可能性を秘めた系である。この中でも極低温における化学反応や化学反応の実験者による制御、量子シミュレーションといった今後の発展・解明が強く望まれる分野に密接に関わりを持つ。本研究で得られた成果はこうした研究を一步先へすすめると言え、中性原子-イオン間の非弾性散乱過程の理解を深めたという点だけでなく、極低温の中性原子、イオン制御技術の発展に貢献したと言える。

6.2 今後の展望と課題

ここでは、本研究で得られた成果を踏まえ、今後の研究展開について項目ごとに述べる。

s 波散乱閾温度以下での非弾性散乱の観測

中性原子-イオン混合系の特徴は本研究で測定したミリケルビンからケルビン領域の散乱エネルギーだけでなく、量子的な散乱領域まで到達可能だという点である。特に表 3 で示したように ${}^6\text{Li}-{}^{40}\text{Ca}^+$ 系は他の組み合わせに比べ高い *s* 波散乱閾温度を持つため、到達が容易な組み合わせである。

${}^6\text{Li}$ 原子気体は蒸発冷却を行った場合、数百 nK 程度まで冷却することができた。一方の ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオンについてはサイドバンド冷却を行い振動基底状態まで冷却することに成功しており、温度に換算すると数十 μK 程度であることを考慮すると十分 *s* 波散乱閾温度に到達し得る。

s 波散乱に到達したことをどのように観測するかは一つの大きな問題であるが、電荷交換断面積がランジュバンの依存性に従わず、頭打ちになることが予想されているので本研究で行ったようなエネルギー依存性の測定で確認可能であると考えられる。

このとき生じる技術的な問題点は混合中のカルシウムイオンの加熱である。カルシウムイオンはマイクロモーションが熱運動に変換されると加熱が起きるが、現在観測出来ている電荷交換レートでは加熱が無視できる時間スケールで測定はできない。そのため、イオントラップの RF ノイズの除去等で加熱レートを抑えること、中性原子密度を上げることが重要なファクターとなると考えられる。

分子生成と共同冷却

中性原子-イオン混合系の注目される反応過程の一つとして分子生成過程があげられるが、我々の実験系ではいまだに観測されていない。理論的予測 [130] によれば基底状態の放射性分子生成断面積は放射性電荷交換断面積と近い値をとるため、基底状態で電荷交換散乱を測定できる程度に原子密度を上げることができれば、分子生成過程を観測可能であると予想できる。

生成された分子イオンはイオントラップにて捕獲し、イオントラップ中のレー

ザー冷却 Ca^+ イオンとの散乱を利用して並進運動の共同冷却を行い、保持することは可能である。一方でイオン間距離は強力なイオン間の斥力相互作用により、イオン同士は近づかないため分子イオンの振動回転状態の冷却は困難であると考えられる。そこで再びチウム原子気体を分子イオンと混合することで振動状態あるいは回転状態の冷却を行う手法の開発は興味深い。振動回転状態の冷却は現在の冷却分子生成においても重要な課題であり、分子イオンの振動回転状態を用いた量子情報処理といった課題に近づく手法として大きな意味を持つ。

イオンプローブによる光格子中の原子操作手法の開発

本研究で得られたカルシウムイオンの内部状態制御による電荷交換反応性の変化を利用した応用として、光格子中の原子の操作プローブとしてイオンを使うことがあげられる。

光格子中の原子の状態や数は光格子中の中性原子を用いた量子シミュレーションにおいて重要な要素であり、現在では光を用いた操作あるいは検出手法が広く用いられている。一方で光の場合、隣接サイトへの影響が指摘されている。

振動基底状態まで冷却したイオンを用いれば、イオンの軌道はナノメートルオーダーになるため、光の波長以下の操作探針を作り出すことができる。このとき、原子状態の検出・操作に原子-イオン間の相互作用を利用する。例えば本研究で測定された基底状態と準安定状態の反応性の違いを利用し、イオンを基底状態のまま検出・操作したい原子のサイトまで外部電場を制御して移動させる。当該サイトまで移動したらイオンを励起させ原子と反応させることで状態の検出あるいは操作を行う。

こうした手法の開発には本研究のような原子-イオン間の散乱過程の詳細な測定が、その土台として重要である。

付録 A

外部共振器型半導体レーザー

本研究ではリチウム原子用，カルシウムイオン用として多数のレーザーを用いたが，その多くは外部共振器型半導体レーザー（ECDL：External Cavity Diode Laser）である．特にカルシウムイオンに用いたレーザーはほとんど外部共振器型半導体レーザーである．しかしながらそれぞれの構造は異なるため本節では使用した外部共振器型半導体レーザーの構造について述べる．それぞれの個別の光源については本節とは別に各項目にて後述する．表 14 に使用した外部共振器型半導体レーザーの波長とその構造をまとめた．

表 14 実験に使用した外部共振器型半導体レーザーの波長とその構造

波長	用途	構造
794nm	カルシウムイオン冷却光 397nm 光の基本波	干渉フィルタ型
866nm	カルシウムイオンリパンプ光	リットマン型
423nm	カルシウム原子イオン化光	リトロロー型
850nm	カルシウムイオン $3^2D_{3/2}-4^2P_{3/2}$ 遷移励起	リトロロー型
729nm	カルシウムイオン $4^2S_{1/2}-3^2D_{5/2}$ 遷移励起, サイドバンド冷却光源	干渉フィルタ型
854nm	カルシウムイオン $3^2D_{5/2}-4^2P_{3/2}$ 遷移励起. サイドバンド冷却光源	リトロロー型

A.1 原理

半導体レーザーは比較的小型で pn 接合に電流を注入して励起し、電子と正孔の再結合によって生じる光子を利用している。電流変調を行うことで簡便に出力の変調を行えるといった利点が存在する。一方で半導体レーザーを原子の冷却等に用いることを考えたとき、そのまま使うには十分なほど線幅は細くない上、波長の選択性が悪い。そこで半導体レーザーの外側に共振器を構築と波長選択機構を設けたものが外部共振型半導体レーザーである。回折格子をもちいるものでは外部共振器と波長選択性の両方が回折格子によって実現される。波長選択機構にバンドパスフィルタを用いるものは共振器は別にミラーによって構築する。半導体レーザーの広い利得を外部共振器のモードで選択される周波数に狭窄化、制限する。しかしながら、このままでは共振器モードで選ばれる多数の周波数が発振するためマルチモード発振となる。原子の冷却を考えた際は原子の共鳴に合致した特定の周波数のみが必要なためシングルモード発振させる必要がある。そこで波長選択機構によって特定の共振器モードのみ選び出すことで一つの共振器モードのみで発振が起こりシングルモード発振が実現できる。以上が外部共振器型半導体レーザーの原理である。

A.2 外部共振器型半導体レーザーの構造

ここでは実際に用いた外部共振器型半導体レーザーの構造について詳細を述べる。

A.2.1 リトロ型

外部共振器と波長選択性を回折格子によって実現するタイプの外部共振器型レーザーにリトロ型とリットマン型があるが、外部共振器の構成の仕方が異なる。

リトロ型は半導体レーザーからでた光を回折格子に入射し、回折光を再び半導体レーザーに戻す機構をとる。具体的に我々が作製したリトロ型外部共振器型半導体レーザーの典型的な設計を取り上げて解説する。半導体レーザーのレーザーの出射光をコリメートレンズに入射し、平行光とする。平行光となった光を回折格子に入射する、回折格子で回折された一次回折光を再び半導体レーザーに戻すように回折格子の角度を設計する。こうして一次回折光を戻すことで共振器が構成される。

レーザーの取り出しは回折格子における反射である。典型的に回折格子の一次回折効率を 10 – 20% 程度にして用いた。ただし、発振しにくい波長であった場合は光フィードバック量を増やして安定に発振できるようにした。上記のように発振波長は回折格子の角度で決まるため、ミラーマウントなどに回折格子を取り付けることで発振波長の粗調を行なった。波長の微調を行うためにミラーマウント、あるいは回折格子にピエゾ素子を取りつけた。

発振波長 λ と回折格子の角度について考える。回折格子の格子間隔を d として入射光と回折格子の法線のなす角度を θ_{in} 、 m 次回折光と回折格子のなす角度を θ_{dif} とすると回折格子の強め合いの条件式は

$$d(\sin \theta_{\text{in}} + \sin \theta_{\text{dif}}) = m\lambda \quad (185)$$

一次回折光が入射光と重なる条件は $\theta_{\text{in}} = \theta_{\text{dif}}$ となるときなので発振波長 λ は以下の式を満たすような入射角度 θ_{in} で実現できる。

$$2d \sin \theta_{\text{in}} = m\lambda \quad (186)$$

以上のようにリトロ型外部共振器型半導体レーザーを設計できる。

リトロ型の利点としては単純な構造をもつために外部からの振動に強く設計できる点が挙げられる。一方で発振波長を変化させるために回折格子の角度を変化させると出射の方向も変わってしまうためにレーザーの後段の光学系に対するアライメントが変化し、時には光学系を大きく変更せざるを得ないときがある。また回折格子の分解能はレーザーが照射されている回折格子の本数によって分解能を決定する。つまり半導体レーザーのコリメートレンズは重要な要素の一つである。

A.2.2 リットマン型

回折格子を用いる配置にもう一つリットマン型が挙げられる。リトロ型は回折光を直接、半導体レーザーに入射させたが、リットマン型では回折光をミラーで反射させて再び、回折格子に入射し、再度回折させた光を半導体レーザーに戻すことで共振器を構成したものである。二回、回折格子を通過するためリトロ型に比して線幅に優れる構造である。またミラーの角度を変化させたとき、共振器長のみが変化し、出射方向が変わらないという特徴を持つため、波長の掃引が容易である。一方で機械的振動に弱い構造になりやすいため設計に注意を払い、振動対策を行う

必要がある。

A.2.3 干渉フィルタ型

干渉フィルタ型 [132, 133] は回折格子による選択ではなく，干渉フィルタによる波長選択と外部共振器長で決まる発振波長で波長選択を行う機構である．共振器の中央におかれた干渉フィルタが上記の ECDL における回折格子の波長選択を担う，一方で回折格子と半導体レーザーで構成されていた共振器についてはアウトプットミラーと半導体レーザーで構成され共振器で決まるモードによっても波長が選択される．アウトプットミラーに焦点を結ぶキャッツアイ構造がとれるため振動に強いという利点を持つ．

付録 B

Li 原子と Ca^+ イオンの性質

本研究では ${}^6\text{Li}$ 原子と ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオンを用いたが，ここでは Li 原子と Ca^+ イオンの物理的な性質についてまとめる．

B.1 基本的性質

ここでは Li と Ca 原子あるいは Ca^+ イオンの基本的な物性や特徴について表を中心に簡潔に示す．

表 15 Li と Ca の密度，融点，沸点 [134].

原子種	密度 [g/cm^3] ($20\text{ }^\circ\text{C}$)	融点 [$^\circ\text{C}$]	沸点 [$^\circ\text{C}$]
Li	0.534	180.54	1347
Ca	1.55	842	1503

表 16 Li 原子の安定同位体 [134].

同位体	存在比 [%]	質量	核スピン
${}^6\text{Li}$	7.59	6.015122795	1
${}^7\text{Li}$	92.41	7.01600455	3/2

表 17 Ca 原子の安定同位体 [134].

同位体	存在比 [%]	質量	核スピン
⁴⁰ Ca	96.941	39.96259098	0
⁴² Ca	0.647	41.95861801	0
⁴³ Ca	0.135	42.9587666	7/2
⁴⁴ Ca	2.086	43.9554818	0
⁴⁶ Ca	0.004	43.9536926	0
⁴⁸ Ca	0.187	47.952534	0

B.2 エネルギー準位

B.2.1 微細構造

実験に用いた Li 原子および Ca^+ イオンともに希ガス型の電子配置の外側に価電子を一つ有する電子配置を持つ。中性 Li 原子が周期表 1 族であり、アルカリ原子に属しており、中性 Ca 原子が 2 族のアルカリ土類原子だからだ。表 18 に基底状態の電子配置を示した。

表 18 基底状態の電子配置.

原子	電子配置
Li	$1s^2 2s$
Ca	$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 4s^2$
Ca^+	$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 4s$

Li 原子の価電子の電子配置は基底状態 $2s$ ，第一励起状態 $2p$ と続くが，軌道角運動量子数 L が値を持つときはスピン軌道相互作用により，原子のエネルギー準位は微細構造準位に分裂する。これは Ca^+ イオンに関しても同様である。

図 68 に Li 原子のエネルギー準位を示した。 2P ， 2D のすべての準位は (b) に示したように分裂しており， $^2P_{1/2}$ と $^2P_{3/2}$ 準位の場合およそ 10 GHz である。アルカリ原子の最低の励起状態から基底状態への遷移に伴うスペクトル線のことを D 線と呼ぶが，特に図 68(b) の $^2P_{1/2}$ ， $^2P_{3/2}$ それぞれに由来する遷移を D_1 線， D_2 線と呼ぶ (図 18 参照)。

図 69 に Ca^+ イオンの微細準位を示した。 2P ， 2D ， 2F のすべての準位は分裂している。(b)，(c) には $^2P_{1/2}$ と $^2P_{3/2}$ の微細構造を $^2D_{3/2}$ と $^2D_{5/2}$ の微細構造をそれぞれ示した。これらの図は文献 [135] をもとに作製した。

スピン軌道相互作用のハミルトニアン \hat{H}_{so} は全電子スピン演算子 \hat{S} と全軌道角運動量演算子 \hat{L} を用いて

$$\hat{H}_{\text{so}} = \xi \hat{L} \cdot \hat{S} \quad (187)$$

とかける。

ここで \hat{S} , \hat{L} の合成スピンとして \hat{J} を定義する.

$$\hat{J} = \hat{L} + \hat{S} \quad (188)$$

これは電子スピンと軌道角運動量を結合させた電子系スピンである. 式 (188) の二乗より

$$\hat{J}^2 = \hat{L}^2 + 2\hat{L} \cdot \hat{S} + \hat{S}^2 \quad (189)$$

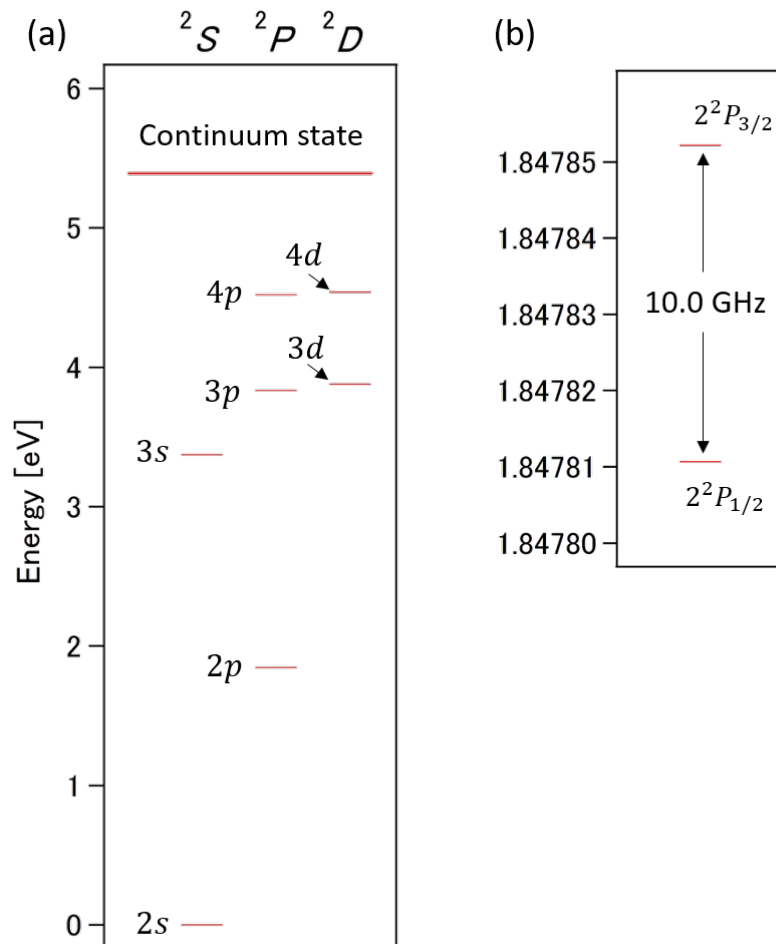


図 68 Li 原子の微細準位 [135]. (a) S, P, D の状態を基底状態のエネルギーを基準にして示した. (b) 2^2P 状態の微細構造.

となるので, 式 (187) は

$$\hat{H}_{\text{so}} = \frac{\xi}{2} (\hat{J}^2 - \hat{L}^2 - \hat{S}^2) \quad (190)$$

と書き換えられる.

さて新たに定義した角運動量の和の大きさの二乗の演算子 \hat{J}^2 とその z 軸方向の成分の演算子 \hat{J}_z の同時固有関数 $|J, m_J\rangle$ を考える. この状態は \hat{L}^2 と \hat{L}_z の同時固有関数 $|L, m_L\rangle$ と \hat{S}^2 と \hat{S}_z の同時固有関数 $|S, m_S\rangle$ の積の関数の線形結合で表すこと

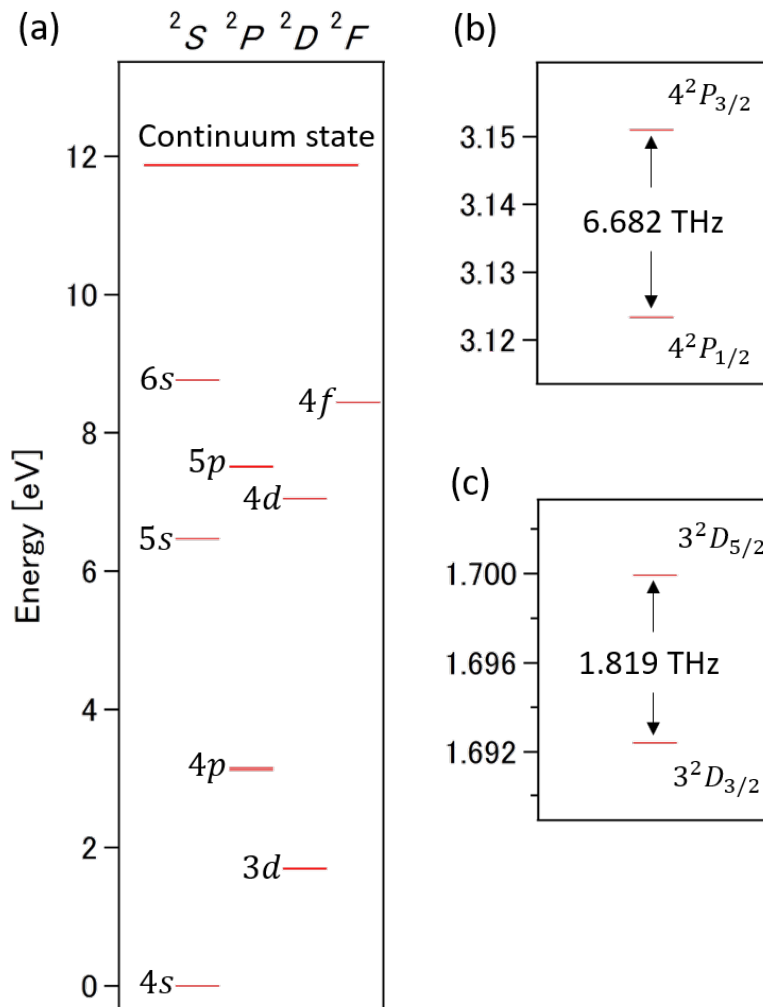


図 69 Ca^+ イオンの微細準位 [135]. (a) S, P, D, F 状態を基底状態のエネルギーを基準にして示した. (b), (c) 2^2P と 2^2D 状態の微細構造.

ができる。さらに \hat{H}_{so} は \hat{J}^2 および \hat{J}_z と可換であるから $|J, m_J\rangle$ は \hat{H}_{so} の固有状態である。すなわち

$$E_{\text{so}} = \langle J, m_J | \hat{H}_{\text{so}} | J, m_J \rangle = \frac{\hbar^2 \xi}{2} \{J(J+1) - L(L+1) - S(S+1)\} \quad (191)$$

と計算される。

以上より Li 原子, Ca⁺ イオンの P 状態は $L = 1$, $S = 1/2$ であるから $J = 3/2$ と $J = 1/2$ の状態が存在し,

$$E_{\text{so}} = \frac{\hbar^2 \xi}{2} \quad (J = 3/2) \quad (192)$$

$$E_{\text{so}} = -\hbar^2 \xi \quad (J = 1/2) \quad (193)$$

が得られる。以上は文献 [92, 111, 115] を参考にした。

B.2.2 超微細構造

表 16 に示したように ⁶Li 原子は核スピンを持つため電子スピンと核スピンの相互作用に由来する超微細構造を持つ。これは核スピンのゼロの ⁴⁰Ca⁺ イオンには当てはまらない。

超微細構造は核スピン \hat{I} と電子系の合成角運動量 \hat{J} の相互作用に起因する。この相互作用ハミルトニアンは以下のように書ける [136]。

$$\hat{H}_{\text{hf}} = hA_{\text{md}} \hat{I} \cdot \hat{J} + hB_{\text{eq}} \frac{6(\hat{I} \cdot \hat{J})^2 + 3\hat{I} \cdot \hat{J} - 2I(I-1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \quad (194)$$

ここで A_{md} は磁気双極子超微細定数 (magnetic dipole hyperfine constant), B_{eq} は電気四重極子超微細定数 (electric quadrupole hyperfine constant), h はプランク定数である。また, i は核スピン, j は電子系の合成角運動量の量子数である。

ここで合計の角運動量を示す演算子として

$$\hat{F} = \hat{I} + \hat{J} \quad (195)$$

を導入する。

$$\hat{F}^2 = \hat{I}^2 + 2\hat{I} \cdot \hat{J} + \hat{J}^2 \quad (196)$$

より式 (194) 中の $\hat{I} \cdot \hat{J}$ を書き換えることができ

$$\hat{H}_{\text{hf}} = \frac{hA_{\text{md}}}{2} \hat{\kappa} + hB_{\text{eq}} \frac{6\hat{\kappa}^2 + 3\hat{\kappa} - 2I(I-1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \quad (197)$$

表 19 ${}^6\text{Li}$ の磁気双極子超微細定数と電気四重極子超微細定数 [136].

State	A_{md} [MHz]	B_{eq} [MHz]
$2^2S_{1/2}$	152.1368407	
$2^2P_{1/2}$	17.375	
$2^2P_{3/2}$	-1.155	-0.10

となる。ただし,

$$\hat{\kappa} = \hat{\mathbf{F}}^2 - \hat{\mathbf{I}}^2 - \hat{\mathbf{J}}^2 \quad (198)$$

である

ここで先ほどの微細構造での処方と同様に $\hat{\mathbf{F}}^2$ と \hat{F}_z の同時固有関数 $|F, m_F\rangle$ を考えると相互作用エネルギーは

$$E_{\text{hf}} = \langle F, m_F | \hat{H}_{\text{hf}} | F, m_F \rangle = \frac{\hbar A_{\text{md}}}{2} \kappa + \hbar B_{\text{eq}} \frac{6\kappa^2 + 3\kappa - 2I(I-1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \quad (199)$$

と表される。ただし

$$\kappa = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1) \quad (200)$$

である。

以上は文献 [110, 111, 115] を参考にした。

${}^6\text{Li}$ の各準位における定数 A_{md} , B_{eq} の値は表 19 に示した。また ${}^6\text{Li}$ 原子の超微細準位は図 18 に示した。

B.2.3 静磁場下のエネルギー準位

磁場中の原子は原子の磁気双極子モーメントと磁場の相互作用によりエネルギーシフトが起きる。これはゼーマン効果と呼ばれる。外部磁場 \mathbf{B} 下でのハミルトニアン \hat{H}_B は、原子の磁気双極子モーメント $\hat{\boldsymbol{\mu}}_{\text{atom}}$ の相互作用ハミルトニアンを H_Z とすると

$$\hat{H}_B = \hat{H}_{\text{hf}} + \hat{H}_Z = \hat{H}_{\text{hf}} - \hat{\boldsymbol{\mu}}_{\text{atom}} \cdot \mathbf{B} \quad (201)$$

表 20 ⁶Li の g 因子 [136].

g_I		-0.0004476540
g_J	$2^2S_{1/2}$	2.0023010
g_J	$2^2P_{1/2}$	0.6668
g_J	$2^2P_{3/2}$	1.335

ここで磁気双極子モーメントは

$$\hat{\mu}_{\text{atom}} = -g_J\mu_B\hat{\mathbf{J}} - g_I\mu_B\hat{\mathbf{I}} \quad (202)$$

である。ここで g_J , g_I はそれぞれ電子系の合成スピンと核スピンのランデの g 因子である。表 20 に ⁶Li における g 因子の値 [136] を示した。また, μ_B はボーア磁子である。

この式 (201) のハミルトニアン固有値が外部磁場 \mathbf{B} が存在するときのエネルギーシフトを与える。このとき, 一般にハミルトニアン \hat{H}_B は \hat{F} と交換しないため $|F, m_F\rangle$ は固有状態ではない。一方で磁場の大きさによって良い量子数は変化するため, 以下では弱い磁場領域と強い磁場領域にわけて議論する。

弱い磁場下のゼーマン効果

ゼーマン効果によるエネルギーシフトが超微細分裂に比べて小さい磁場領域を想定する。すなわち, およそ $\mu_B B < hA_{\text{md}}$ の領域でのゼーマン効果について述べる。

$g_J \gg g_I$ が成立するため磁場が小さいときは式 (203) の第二項を無視できる。すなわち

$$\hat{\mu}_{\text{atom}} \approx -g_J\mu_B\hat{\mathbf{J}} \quad (203)$$

が成立する。

また, この領域では F , m_F が良い量子数であり, $|F, m_F\rangle$ を固有状態とみなせる。このときゼーマンエネルギー E_Z は

$$E_Z = g_F\mu_B B m_F \quad (204)$$

である。ただし, 磁場 \mathbf{B} の方向を量子化軸にとった。また, g_F は合成スピン F に

関する g 因子で以下の式で表される.

$$g_F = g_J \frac{F(F+1) - I(I+1) + J(J+1)}{2F(F+1)} + g_I \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)} \quad (205)$$

すなわちエネルギーは磁場に対して線形にふるまう.

強い磁場下のゼーマン効果

ゼーマン効果によるエネルギーシフトが超微細分裂に比べて大きくなる領域, $\mu_B B < hA_{\text{md}}$ について考える. ただし, $\mu_B B$ が微細構造の分裂よりは十分小さい程度に低磁場とする. この領域では \hat{J} と \hat{I} の結合が崩れ, F は良い量子数ではなくなる. 一方で m_J と m_I は良い量子数である. このときのハミルトニアン \hat{H}_B に対するエネルギー固有値 E_B は

$$E_B = hA_{\text{md}}m_Jm_I + g_J\mu_B Bm_J + g_I\mu_B Bm_I \quad (206)$$

となる.

さらに強磁場になり, $\mu_B B$ が微細構造の分裂と同程度からそれ以上になると \hat{L} と \hat{S} の結合が崩れる. このような領域はパッシェン-バック領域 [137] と呼ばれる.

以上は [111, 137] を参照した.

ゼーマン分裂の計算

上では式 (201) に示したハミルトニアンについて磁場 \mathbf{B} が弱い場合と強い場合に分けて近似式を導出した. ここでは式 (201) のハミルトニアンを対角化することでゼーマン分裂を得る. ハミルトニアン \hat{H}_B は \hat{F}_z と交換するため, m_F は変化しない. そこで同一の m_F について $m_F = m_J + m_I$ を満たす磁気量子数 $|m_J, m_I\rangle$ で行列要素を計算し, 対角化する. 本記述は文献 [111, 138] を参考にした.

ハミルトニアン \hat{H}_B を昇降演算子 \hat{J}_\pm, \hat{I}_\pm と角運動量の z 成分の演算子 \hat{J}_z, \hat{I}_z を用いて表現する.

$$\begin{aligned} \hat{H}_B = & hA_{\text{md}}P \\ & + hB_{\text{eq}} \frac{6Q + 3P - 2I(I-1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \\ & + g_J\mu_B B\hat{J}_z \\ & + g_I\mu_B B\hat{I}_z \end{aligned} \quad (207)$$

ただし、上式中の P , Q は

$$P = \hat{I}_z \hat{J}_z + \frac{1}{2} (\hat{I}_+ \hat{J}_- + \hat{I}_- \hat{J}_+) \quad (208)$$

$$\begin{aligned} Q = & \hat{I}_z^2 \hat{J}_z^2 \\ & + \frac{1}{2} (\hat{I}_+ \hat{I}_z \hat{J}_- \hat{J}_z + \hat{I}_- \hat{I}_z \hat{J}_+ \hat{J}_z + \hat{I}_z \hat{I}_+ \hat{J}_z \hat{J}_- + \hat{I}_z \hat{I}_- \hat{J}_z \hat{J}_+) \\ & + \frac{1}{4} (\hat{I}_+^2 \hat{J}_-^2 + \hat{I}_- \hat{I}_+ \hat{J}_+ \hat{J}_- + \hat{I}_+ \hat{I}_- \hat{J}_- \hat{J}_+ + \hat{I}_-^2 \hat{J}_+^2) \end{aligned} \quad (209)$$

で表される。

このハミルトニアンを用いて行列要素 $\langle m'_J, m'_I | \hat{H}_B | m_J, m_I \rangle$ を計算し、対角化する。以下では ⁶Li 原子の具体的な準位について行列要素を計算し、ゼーマン分裂を示す。

- 基底状態 $2^2S_{1/2}$ のゼーマン分裂

⁶Li 原子の基底状態の場合、 $J = 1/2$ のため $m_J = \pm 1/2$ であるから、 2×2 の行列を対角化すればよい ($2^2P_{1/2}$ も同様である)。ハミルトニアンの行列要素は以下のように表される。

$$\begin{aligned} & \begin{pmatrix} H_{11} & H_{12} \\ H_{21} & H_{22} \end{pmatrix} \\ = & \begin{pmatrix} \langle \pm \frac{1}{2}, m_F \mp \frac{1}{2} | \hat{H}_B | \pm \frac{1}{2}, m_F \mp \frac{1}{2} \rangle & \langle \pm \frac{1}{2}, m_F \mp \frac{1}{2} | \hat{H}_B | \mp \frac{1}{2}, m_F \pm \frac{1}{2} \rangle \\ \langle \mp \frac{1}{2}, m_F \pm \frac{1}{2} | \hat{H}_B | \pm \frac{1}{2}, m_F \mp \frac{1}{2} \rangle & \langle \mp \frac{1}{2}, m_F \pm \frac{1}{2} | \hat{H}_B | \mp \frac{1}{2}, m_F \pm \frac{1}{2} \rangle \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (210)$$

各々の行列要素は

$$H_{11} = -\frac{1}{4} h A_{\text{md}} + g_I \mu_B B m_F \pm \frac{1}{2} \{ h A_{\text{md}} m_F + (g_J - g_I) \mu_B B \} \quad (211)$$

$$H_{12} = H_{21} = \frac{1}{2} h A_{\text{md}} \sqrt{\left(I + \frac{1}{2}\right)^2 - m_F^2} \quad (212)$$

$$H_{22} = -\frac{1}{4} h A_{\text{md}} + g_I \mu_B B m_F \mp \frac{1}{2} \{ h A_{\text{md}} m_F + (g_J - g_I) \mu_B B \} \quad (213)$$

とまとめられる。

エネルギー固有値 E_B は以下の行列式

$$\begin{vmatrix} H_{11} - E_B & H_{12} \\ H_{21} & H_{22} - E_B \end{vmatrix} = 0 \quad (214)$$

より

$$E_B = \frac{H_{11} + H_{22} \pm \sqrt{(H_{11} + H_{22})^2 - 4(H_{11}H_{22} - H_{12}H_{21})}}{2} \quad (215)$$

と得られる.

ここで $I = 1$, $m_F = 3/2, 1/2, -1/2, -3/2$ であるから, それぞれ代入することでエネルギーを得ることができる. 結果を図 70 に示した.

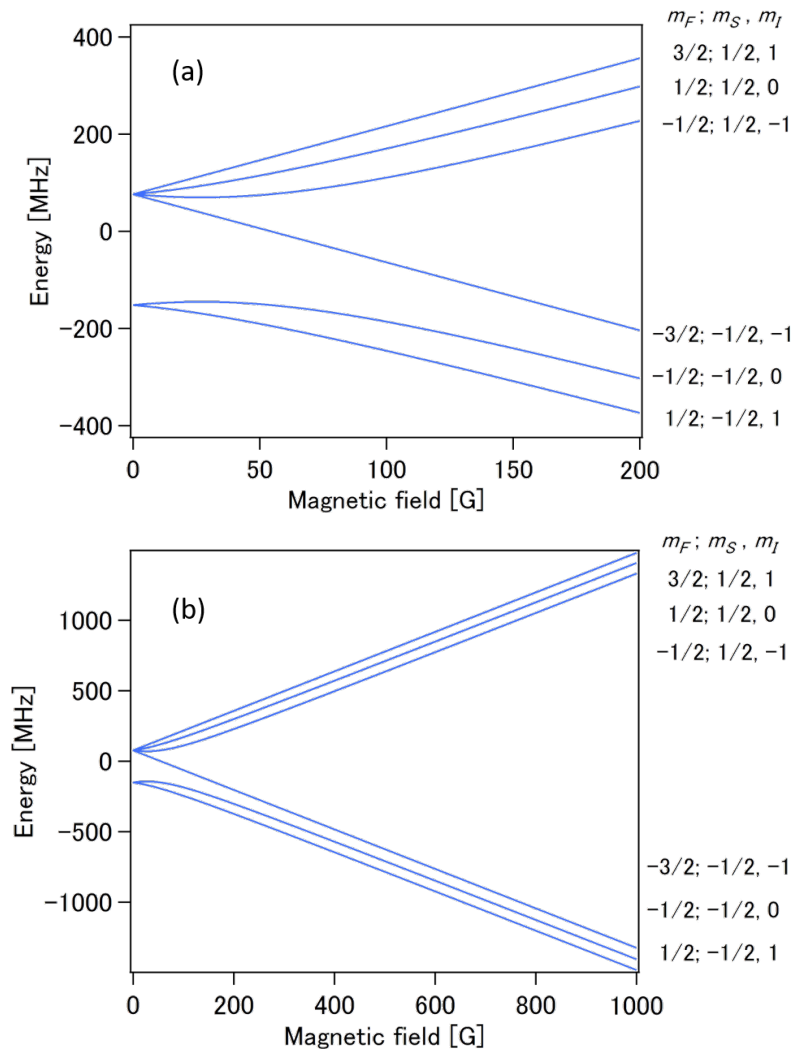


図 70 ${}^6\text{Li}$ 原子の基底状態 $2^2S_{1/2}$ のエネルギー準位の磁場依存性. (a)0-200 G, (b)0-1000 G の範囲でそれぞれ示した.

- 励起状態 $2^2P_{3/2}$ のゼーマン分裂

$2^2P_{3/2}$ の場合, $J = 3/2$ より 4×4 の行列の固有値問題である. 対角化する行列は

$$\begin{array}{cccccc}
 & & \frac{3}{2}, m_F - \frac{3}{2} & \frac{1}{2}, m_F - \frac{1}{2} & -\frac{1}{2}, m_F + \frac{1}{2} & -\frac{3}{2}, m_F + \frac{3}{2} \\
 & & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\
 \frac{3}{2}, m_F - \frac{3}{2} & \cdots & H_{11} & H_{12} & H_{13} & H_{14} \\
 \frac{1}{2}, m_F - \frac{1}{2} & \cdots & H_{21} & H_{22} & H_{23} & H_{24} \\
 -\frac{1}{2}, m_F + \frac{1}{2} & \cdots & H_{31} & H_{32} & H_{33} & H_{34} \\
 -\frac{3}{2}, m_F + \frac{3}{2} & \cdots & H_{41} & H_{42} & H_{43} & H_{44}
 \end{array} \tag{216}$$

と表される.

以下に各 m_F における行列要素を列挙すると

$m_F = 5/2$ のとき

$$H_{11} = \frac{3}{2}hA_{\text{md}} + \frac{3}{2}hB_{\text{eq}} + \frac{3}{2}g_J\mu_B B + g_I\mu_B B \tag{217}$$

$m_F = -5/2$ のとき

$$H_{44} = \frac{3}{2}hA_{\text{md}} + \frac{3}{2}hB_{\text{eq}} - \frac{3}{2}g_J\mu_B B - g_I\mu_B B \tag{218}$$

$m_F = 3/2$ のとき

$$H_{11} = \frac{3}{4}hB_{\text{eq}} + \frac{3}{2}g_J\mu_B B \tag{219}$$

$$H_{12} = H_{21} = \frac{\sqrt{6}}{2}hA_{\text{md}} + \frac{\sqrt{6}}{4}hB_{\text{eq}} \tag{220}$$

$$H_{22} = \frac{1}{2}hA_{\text{md}} + hB_{\text{eq}} + \frac{1}{2}g_J\mu_B B + g_I\mu_B B \tag{221}$$

$m_F = -3/2$ のとき

$$H_{33} = \frac{1}{2}hA_{\text{md}} + hB_{\text{eq}} - \frac{1}{2}g_J\mu_B B - g_I\mu_B B \tag{222}$$

$$H_{34} = H_{43} = \frac{\sqrt{6}}{2}hA_{\text{md}} + \frac{\sqrt{6}}{4}hB_{\text{eq}} \tag{223}$$

$$H_{44} = \frac{3}{4}hB_{\text{eq}} - \frac{3}{2}g_J\mu_B B \tag{224}$$

$m_F = 1/2$ のとき

$$H_{11} = -\frac{3}{2}hA_{\text{md}} + \frac{3}{2}hB_{\text{eq}} + \frac{3}{2}g_J\mu_B B - g_I\mu_B B \quad (225)$$

$$H_{12} = H_{21} = \frac{\sqrt{6}}{2}hA_{\text{md}} - \frac{\sqrt{6}}{4}hB_{\text{eq}} \quad (226)$$

$$H_{22} = \frac{7}{4}hB_{\text{eq}} + \frac{1}{2}g_J\mu_B B \quad (227)$$

$$H_{13} = H_{31} = \frac{\sqrt{3}}{2}hB_{\text{eq}} \quad (228)$$

$$H_{23} = H_{32} = \sqrt{2}hA_{\text{md}} \quad (229)$$

$$H_{33} = -\frac{1}{2}hA_{\text{md}} + hB_{\text{eq}} - \frac{1}{2}g_J\mu_B B + g_I\mu_B B \quad (230)$$

$m_F = -1/2$ のとき

$$H_{22} = -\frac{1}{2}hA_{\text{md}} + hB_{\text{eq}} + \frac{1}{2}g_J\mu_B B - g_I\mu_B B \quad (231)$$

$$H_{33} = \frac{7}{4}hB_{\text{eq}} - \frac{1}{2}g_J\mu_B B \quad (232)$$

$$H_{23} = H_{32} = \sqrt{2}hA_{\text{md}} \quad (233)$$

$$H_{24} = H_{42} = \frac{\sqrt{3}}{2}hB_{\text{eq}} \quad (234)$$

$$H_{34} = H_{43} = \frac{\sqrt{6}}{2}hA_{\text{md}} - \frac{\sqrt{6}}{4}hB_{\text{eq}} \quad (235)$$

$$H_{44} = -\frac{3}{2}hA_{\text{md}} + \frac{3}{2}hB_{\text{eq}} - \frac{3}{2}g_J\mu_B B + g_I\mu_B B \quad (236)$$

となる。

それぞれの m_F について行列を対角化し、得られたエネルギーの磁場依存性を図 71 に示した。

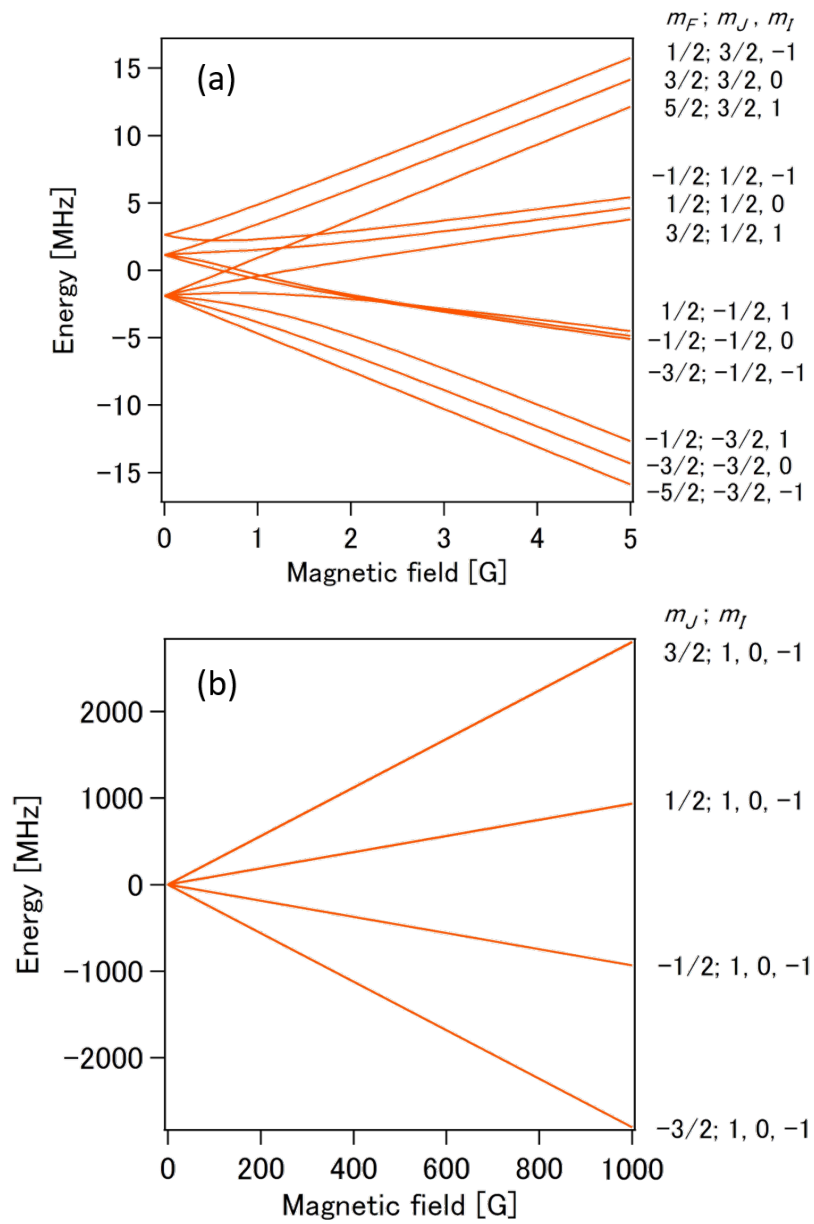


図 71 ${}^6\text{Li}$ 原子の励起状態 $2^2P_{3/2}$ のエネルギー準位の磁場依存性. (a)0-5 G, (b)0-1000 G の範囲でそれぞれ示した.

参考文献

- [1] D. A. McQuarrie and J. D. Simon. マッカーリサイモン物理化学（上）-分子論的アプローチ-. 東京化学同人, 1999. 千原秀昭, 江口太郎, 齋藤一弥（訳）.
- [2] Piergiorgio Casavecchia. Chemical reaction dynamics with molecular beams. *Reports on Progress in Physics*, Vol. 63, No. 3, p. 355, 2000.
- [3] Richard N Zare. Laser control of chemical reactions. *science*, Vol. 279, No. 5358, pp. 1875–1879, 1998.
- [4] Yuan-Pin Chang, Karol Długołęcki, Jochen Küpper, Daniel Rösch, Dieter Wild, and Stefan Willitsch. Specific chemical reactivities of spatially separated 3-aminophenol conformers with cold Ca^+ ions. *Science*, Vol. 342, No. 6154, pp. 98–101, 2013.
- [5] Alon B Henson, Sasha Gersten, Yuval Shagam, Julia Narevicius, and Edwardas Narevicius. Observation of resonances in Penning ionization reactions at sub-kelvin temperatures in merged beams. *Science*, Vol. 338, No. 6104, pp. 234–238, 2012.
- [6] Moritz Kirste, Xingan Wang, H Christian Schewe, Gerard Meijer, Kopin Liu, Ad van der Avoird, Liesbeth MC Janssen, Koos B Gubbels, Gerrit C Groenenboom, and Sebastiaan YT van de Meerakker. Quantum-state resolved bimolecular collisions of velocity-controlled OH with NO radicals. *Science*, Vol. 338, No. 6110, pp. 1060–1063, 2012.
- [7] Goulven Quemener and Paul S Julienne. Ultracold molecules under control! *Chemical Reviews*, Vol. 112, No. 9, pp. 4949–5011, 2012.
- [8] Lincoln D Carr, David DeMille, Roman V Krems, and Jun Ye. Cold and ultracold molecules: science, technology and applications. *New Journal of Physics*, Vol. 11, No. 5, p. 055049, 2009.

- [9] S Ospelkaus, K-K Ni, D Wang, MHG De Miranda, B Neyenhuis, G Quémener, PS Julienne, JL Bohn, DS Jin, and J Ye. Quantum-state controlled chemical reactions of ultracold potassium-rubidium molecules. *Science*, Vol. 327, No. 5967, pp. 853–857, 2010.
- [10] Lothar Ratschbacher, Christoph Zipkes, Carlo Sias, and Michael Köhl. Controlling chemical reactions of a single particle. *Nature Physics*, Vol. 8, pp. 649 EP –, Jul 2012.
- [11] T. Sikorsky, Z. Meir, R. Ben-shlomi, N. Akerman, and R. Ozeri. Spin controlled atom-ion inelastic collisions. *ArXiv e-prints*, September 2017.
- [12] Prateek Puri, Michael Mills, Christian Schneider, Ionel Simbotin, John A Montgomery, Robin Côté, Arthur G Suits, and Eric R Hudson. Synthesis of mixed hypermetallic oxide BaOCa⁺ from laser-cooled reagents in an atom-ion hybrid trap. *Science*, p. eaan4701, 2017.
- [13] Lowell S. Brown and Gerald Gabrielse. Geonium theory: Physics of a single electron or ion in a Penning trap. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 58, pp. 233–311, Jan 1986.
- [14] Hans G Dehmelt. Radiofrequency spectroscopy of stored ions i: Storage. *Advances in Atomic and Molecular Physics*, Vol. 3, pp. 53–72, 1968.
- [15] F. v. Busch and W. Paul. Über nichtlineare resonanzen im elektrischen massenfilter als folge von feldfehlern. *Zeitschrift für Physik*, Vol. 164, No. 5, pp. 588–594, 1961.
- [16] D Wineland and Hans Dehmelt. Proposed 1014 delta upsilon less than upsilon laser fluorescence spectroscopy on t1+ mono-ion oscillator iii. In *Bulletin of the American Physical Society*, Vol. 20, pp. 637–637. AMER INST PHYSICS CIRCULATION FULFILLMENT DIV, 500 SUNNYSIDE BLVD, WOODBURY, NY 11797-2999, 1975.
- [17] T.W. Hänsch and A.L. Schawlow. "Cooling of gases by laser radiation". *Optics Communications*, Vol. 13, No. 1, pp. 68 – 69, 1975.
- [18] D. J. Wineland, R. E. Drullinger, and F. L. Walls. Radiation-Pressure Cooling of Bound Resonant Absorbers. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 40, pp. 1639–1642, Jun 1978.
- [19] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, and H. Dehmelt. Optical-

-
- Sideband Cooling of Visible Atom Cloud Confined in Parabolic Well. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 41, pp. 233–236, Jul 1978.
- [20] F. Diedrich, J. C. Bergquist, Wayne M. Itano, and D. J. Wineland. Laser Cooling to the Zero-Point Energy of Motion. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 62, pp. 403–406, Jan 1989.
- [21] 占部伸二, 町田茂, 高柳英明. 現代物理最前線 3. 共立出版, 2000.
- [22] Steven Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, Alex Cable, and A. Ashkin. Three-dimensional viscous confinement and cooling of atoms by resonance radiation pressure. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 55, pp. 48–51, Jul 1985.
- [23] E. L. Raab, M. Prentiss, Alex Cable, Steven Chu, and D. E. Pritchard. Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 59, pp. 2631–2634, Dec 1987.
- [24] Harald F. Hess. Evaporative cooling of magnetically trapped and compressed spin-polarized hydrogen. *Phys. Rev. B*, Vol. 34, pp. 3476–3479, Sep 1986.
- [25] Naoto Masuhara, John M. Doyle, Jon C. Sandberg, Daniel Kleppner, Thomas J. Greytak, Harald F. Hess, and Greg P. Kochanski. Evaporative Cooling of Spin-Polarized Atomic Hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 61, pp. 935–938, Aug 1988.
- [26] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell. Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor. *Science*, Vol. 269, No. 5221, pp. 198–201, 1995.
- [27] K. B. Davis, M. O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle. Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 75, pp. 3969–3973, Nov 1995.
- [28] B. DeMarco and D. S. Jin. Onset of Fermi Degeneracy in a Trapped Atomic Gas. *Science*, Vol. 285, No. 5434, pp. 1703–1706, 1999.
- [29] Winthrop W. Smith, Oleg P. Makarov, and Jian Lin. Cold ionneutral collisions in a hybrid trap. *Journal of Modern Optics*, Vol. 52, No. 16, pp. 2253–2260, 2005.
- [30] Andrew T. Grier, Marko Cetina, Fedja Oručević, and Vladan Vuletić. Observation of Cold Collisions between Trapped Ions and Trapped Atoms.

- Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, p. 223201, Jun 2009.
- [31] Stefan Schmid, Arne Härter, and Johannes Hecker Denschlag. Dynamics of a Cold Trapped Ion in a Bose-Einstein Condensate. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 105, p. 133202, Sep 2010.
- [32] Shinsuke Haze, Ryoichi Saito, Munekazu Fujinaga, and Takashi Mukaiyama. Charge-exchange collisions between ultracold fermionic lithium atoms and calcium ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 91, p. 032709, Mar 2015.
- [33] Felix H. J. Hall, Mireille Aymar, Nadia Bouloufa-Maafa, Olivier Dulieu, and Stefan Willitsch. Light-Assisted Ion-Neutral Reactive Processes in the Cold Regime: Radiative Molecule Formation versus Charge Exchange. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 107, p. 243202, Dec 2011.
- [34] Felix H.J. Hall, Mireille Aymar, Maurice Raoult, Olivier Dulieu, and Stefan Willitsch. Light-assisted cold chemical reactions of barium ions with rubidium atoms. *Molecular Physics*, Vol. 111, No. 12-13, pp. 1683–1690, 2013.
- [35] Christoph Zipkes, Stefan Palzer, Lothar Ratschbacher, Carlo Sias, and Michael Köhl. Cold Heteronuclear Atom-Ion Collisions. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 105, p. 133201, Sep 2010.
- [36] Christoph Zipkes, Stefan Palzer, Carlo Sias, and Michael Khl. A trapped single ion inside a BoseEinstein condensate. *Nature*, Vol. 464, p. 388, 03 2010.
- [37] Wade G. Rellergert, Scott T. Sullivan, Svetlana Kotochigova, Alexander Petrov, Kuang Chen, Steven J. Schowalter, and Eric R. Hudson. Measurement of a Large Chemical Reaction Rate between Ultracold Closed-Shell ^{40}Ca Atoms and Open-Shell $^{174}\text{Yb}^+$ Ions Held in a Hybrid Atom-Ion Trap. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 107, p. 243201, Dec 2011.
- [38] Scott T. Sullivan, Wade G. Rellergert, Svetlana Kotochigova, and Eric R. Hudson. Role of Electronic Excitations in Ground-State-Forbidden Inelastic Collisions Between Ultracold Atoms and Ions. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 109, p. 223002, Nov 2012.
- [39] I. Sivarajah, D. S. Goodman, J. E. Wells, F. A. Narducci, and W. W.

-
- Smith. Evidence of sympathetic cooling of Na^+ ions by a Na magneto-optical trap in a hybrid trap. *Phys. Rev. A*, Vol. 86, p. 063419, Dec 2012.
- [40] Shinsuke Haze, Sousuke Hata, Munekazu Fujinaga, and Takashi Mukaiyama. Observation of elastic collisions between lithium atoms and calcium ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 87, p. 052715, May 2013.
- [41] K. Ravi, S. Lee, A. Sharma, G. Werth, and S. A. Rangwala. Combined ion and atom trap for low-temperature ion-atom physics. *Applied Physics B*, Vol. 107, No. 4, pp. 971–981, Jun 2012.
- [42] Sourav Dutta, Rahul Sawant, and S. A. Rangwala. Collisional Cooling of Light Ions by Cotrapped Heavy Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 118, p. 113401, Mar 2017.
- [43] Ziv Meir, Tomas Sikorsky, Ruti Ben-shlomi, Nitzan Akerman, Yehonatan Dallal, and Roei Ozeri. Dynamics of a Ground-State Cooled Ion Colliding with Ultracold Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 117, p. 243401, Dec 2016.
- [44] J. Joger, H. Furst, N. Ewald, T. Feldker, M. Tomza, and R. Gerritsma. Observation of collisions between cold Li atoms and Yb^+ ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 96, p. 030703, Sep 2017.
- [45] 寺島正秀, 馬場正昭, 松本吉泰. 現代物理化学. 化学同人, 2015.
- [46] M. Tomza, K. Jachymski, R. Gerritsma, A. Negretti, T. Calarco, Z. Idziaszek, and P. S. Julienne. Cold hybrid ion-atom systems. *ArXiv e-prints*, August 2017.
- [47] Arne Harter. *Two-Body and Three-Body Dynamics in Atom-Ion Experiments*. 博士論文, Ulm university, 2013.
- [48] R. Cote and A. Dalgarno. Ultracold atom-ion collisions. *Phys. Rev. A*, Vol. 62, p. 012709, Jun 2000.
- [49] P Langevin. A fundamental formula of kinetic theory. *Ann. Chim. Phys*, Vol. 5, No. 0365-1444, pp. 245–288, 1905.
- [50] Zbigniew Idziaszek, Tommaso Calarco, Paul S. Julienne, and Andrea Simoni. Quantum theory of ultracold atom-ion collisions. *Phys. Rev. A*, Vol. 79, p. 010702, Jan 2009.
- [51] Stefan Schmid. *Dynamics of a cold trapped ion in a Bose-Einstein condensate*. 博士論文, Ulm university, 2011.

-
- [52] R. Saito, S. Haze, M. Sasakawa, R. Nakai, M. Raoult, H. Da Silva, O. Dulieu, and T. Mukaiyama. Characterization of charge-exchange collisions between ultracold ${}^6\text{Li}$ atoms and ${}^{40}\text{Ca}^+$ ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 95, p. 032709, Mar 2017.
- [53] S. Inouye, M. R. Andrews, J. Stenger, H.-J. Miesner, D. M. Stamper-Kurn, and W. Ketterle. Observation of Feshbach resonances in a Bose-Einstein condensate. *Nature*, Vol. 392, pp. 151 EP –, Mar 1998. Article.
- [54] Cheng Chin, Rudolf Grimm, Paul Julienne, and Eite Tiesinga. Feshbach resonances in ultracold gases. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 82, pp. 1225–1286, Apr 2010.
- [55] Michał Tomza. Ultracold magnetically tunable interactions without radiative-charge-transfer losses between Ca^+ , Sr^+ , Ba^+ , and Yb^+ ions and Cr atoms. *Phys. Rev. A*, Vol. 92, p. 062701, Dec 2015.
- [56] R. Côté, V. Kharchenko, and M. D. Lukin. Mesoscopic Molecular Ions in Bose-Einstein Condensates. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 89, p. 093001, Aug 2002.
- [57] D. S. Goodman, I. Sivarajah, J. E. Wells, F. A. Narducci, and W. W. Smith. Ion-neutral-atom sympathetic cooling in a hybrid linear rf Paul and magneto-optical trap. *Phys. Rev. A*, Vol. 86, p. 033408, Sep 2012.
- [58] Shinsuke Haze, Mizuki Sasakawa, Ryoichi Saito, Ryosuke Nakai, and Takashi Mukaiyama. Cooling Dynamics of a Single Trapped Ion via Elastic Collisions with Small-Mass Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 120, p. 043401, Jan 2018.
- [59] Marko Cetina, Andrew T. Grier, and Vladan Vuletić. Micromotion-Induced Limit to Atom-Ion Sympathetic Cooling in Paul Traps. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 109, p. 253201, Dec 2012.
- [60] Christoph Zipkes, Lothar Ratschbacher, Carlo Sias, and Michael Khl. Kinetics of a single trapped ion in an ultracold buffer gas. *New Journal of Physics*, Vol. 13, No. 5, p. 053020, 2011.
- [61] Ralph G. DeVoe. Power-Law Distributions for a Trapped Ion Interacting with a Classical Buffer Gas. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, p. 063001, Feb 2009.

-
- [62] I. Rouse and S. Willitsch. Superstatistical Energy Distributions of an Ion in an Ultracold Buffer Gas. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 118, p. 143401, Apr 2017.
- [63] Bastian Höltkemeier, Pascal Weckesser, Henry López-Carrera, and Matthias Weidemüller. Buffer-Gas Cooling of a Single Ion in a Multi-pole Radio Frequency Trap Beyond the Critical Mass Ratio. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 116, p. 233003, Jun 2016.
- [64] K. Mølhave and M. Drewsen. Formation of translationally cold MgH^+ and MgD^+ molecules in an ion trap. *Phys. Rev. A*, Vol. 62, p. 011401, Jun 2000.
- [65] A. K. Hansen, O. O. Versolato, S. B. Klosowski, L. and Kristensen, A. Ginggell, M. Schwarz, A. Windberger, J. Ullrich, J. R. Crespo López-Urrutia, and M. Drewsen. Efficient rotational cooling of Coulomb-crystallized molecular ions by a helium buffer gas. *Nature*, Vol. 508, p. 76, 03 2014.
- [66] L. D. van Buuren, C. Sommer, M. Motsch, S. Pohle, M. Schenk, J. Bayerl, P. W. H. Pinkse, and G. Rempe. Electrostatic Extraction of Cold Molecules from a Cryogenic Reservoir. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, p. 033001, Jan 2009.
- [67] Eric R. Hudson. Method for producing ultracold molecular ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 79, p. 032716, Mar 2009.
- [68] Wade G. Rellergert, Scott T. Sullivan, Steven J. Schowalter, Svetlana Kotochigova, Kuang Chen, and Eric R. Hudson. Evidence for sympathetic vibrational cooling of translationally cold molecules. *Nature*, Vol. 495, pp. 490 EP –, Mar 2013.
- [69] K. Ravi, Seunghyun Lee, Arijit Sharma, G. Werth, and S. A. Rangwala. Cooling and stabilization by collisions in a mixed ion-atom system. *Nature Communications*, Vol. 3, pp. 1126 EP –, Oct 2012. Article.
- [70] S. Dutta and S. A. Rangwala. Cooling of trapped ions by resonant charge exchange. *ArXiv e-prints*, May 2017.
- [71] Amir Mahdian, Artjom Krüchow, and Hecker Denschlag, Johannes. Demonstration of swap cooling in homo-nuclear ion-atom collisions: one collision will do. In *2017 Cold Molecular Ions workshop: Spectroscopy*,

- Dynamics and Applications of Cold Molecular Ions*, p. 76, 2017.
- [72] U. Bissbort, D. Cocks, A. Negretti, Z. Idziaszek, T. Calarco, F. Schmidt-Kaler, W. Hofstetter, and R. Gerritsma. Emulating Solid-State Physics with a Hybrid System of Ultracold Ions and Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 111, p. 080501, Aug 2013.
- [73] Richard P. Feynman. ファインマン統計力学. 丸善出版株式会社, 2014. 田中新, 佐藤仁 (訳) .
- [74] Marco Koschorreck, Daniel Pertot, Enrico Vogt, Bernd Fröhlich, Michael Feld, and Michael Köhl. Attractive and repulsive Fermi polarons in two dimensions. *Nature*, Vol. 485, pp. 619 EP –, May 2012.
- [75] C. Kohstall, M. Zaccanti, M. Jag, A. Trenkwalder, P. Massignan, G. M. Bruun, F. Schreck, and R. Grimm. Metastability and coherence of repulsive polarons in a strongly interacting Fermi mixture. *Nature*, Vol. 485, pp. 615 EP –, May 2012.
- [76] André Schirotzek, Cheng-Hsun Wu, Ariel Sommer, and Martin W. Zwierlein. Observation of Fermi Polarons in a Tunable Fermi Liquid of Ultracold Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, p. 230402, Jun 2009.
- [77] D. M. Meekhof, C. Monroe, B. E. King, W. M. Itano, and D. J. Wineland. Generation of Nonclassical Motional States of a Trapped Atom. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 76, pp. 1796–1799, Mar 1996.
- [78] A. Härter, A. Krkow, A. Brunner, and J. Hecker Denschlag. Minimization of ion micromotion using ultracold atomic probes. *Applied Physics Letters*, Vol. 102, No. 22, p. 221115, 2013.
- [79] Rainer Blatt and David Wineland. Entangled states of trapped atomic ions. *Nature*, Vol. 453, pp. 1008 EP –, Jun 2008.
- [80] Christof Weitenberg, Manuel Endres, Jacob F. Sherson, Marc Cheneau, Peter Schauß, Takeshi Fukuhara, Immanuel Bloch, and Stefan Kuhr. Single-spin addressing in an atomic Mott insulator. *Nature*, Vol. 471, pp. 319 EP –, Mar 2011. Article.
- [81] T Manthey, T Niederprum, O Thomas, and H Ott. Dynamically probing ultracold lattice gases via Rydberg molecules. *New Journal of Physics*, Vol. 17, No. 10, p. 103024, 2015.

-
- [82] Nicolas Schlosser, Georges Reymond, Igor Protsenko, and Philippe Grangier. Sub-poissonian loading of single atoms in a microscopic dipole trap. *Nature*, Vol. 411, pp. 1024 EP –, Jun 2001.
- [83] Corinna Kollath, Michael Köhl, and Thierry Giamarchi. Scanning tunneling microscopy for ultracold atoms. *Phys. Rev. A*, Vol. 76, p. 063602, Dec 2007.
- [84] Gerd Binnig and Heinrich Rohrer. Scanning tunneling microscopy—from birth to adolescence. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 59, pp. 615–625, Jul 1987.
- [85] Hauke Doerk, Zbigniew Idziaszek, and Tommaso Calarco. Atom-ion quantum gate. *Phys. Rev. A*, Vol. 81, p. 012708, Jan 2010.
- [86] M. Aymar, R. Gurout, and O. Dulieu. Structure of the alkali-metal-atom + strontium molecular ions: Towards photoassociation and formation of cold molecular ions. *The Journal of Chemical Physics*, Vol. 135, No. 6, p. 064305, 2011.
- [87] Mireille Aymar and Olivier Dulieu. The electronic structure of the alkaline-earth-atom (Ca, Sr, Ba) hydride molecular ions. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, Vol. 45, No. 21, p. 215103, 2012.
- [88] L. Ratschbacher, C. Sias, L. Carcagni, J. M. Silver, C. Zipkes, and M. Köhl. Decoherence of a Single-Ion Qubit Immersed in a Spin-Polarized Atomic Bath. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 110, p. 160402, Apr 2013.
- [89] Artjom Krükow, Amir Mohammadi, Arne Härter, Johannes Hecker Denschlag, Jesús Pérez-Ríos, and Chris H. Greene. Energy Scaling of Cold Atom-Atom-Ion Three-Body Recombination. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 116, p. 193201, May 2016.
- [90] Artjom Krükow, Amir Mohammadi, Arne Härter, and Johannes Hecker Denschlag. Reactive two-body and three-body collisions of Ba^+ in an ultracold Rb gas. *Phys. Rev. A*, Vol. 94, p. 030701, Sep 2016.
- [91] 砂川重信. 量子力学. 岩波書店, 1991.
- [92] 江沢洋. 量子力学 (II). 裳華房, 2002.
- [93] John R. Taylor. *Scattering Theory: The Quantum Theory of Nonrelativistic Collisions*. Robert E. Krieger Publishing Company, 1983.
- [94] J. J. Sakurai. 現代の量子力学 (下). 吉岡書店, 1989. 桜井明夫 (訳).

-
- [95] 小野寺嘉孝. 物理のための応用数学. 裳華房, 1988.
- [96] Zbigniew Idziaszek, Andrea Simoni, Tommaso Calarco, and Paul S Julienne. Multichannel quantum-defect theory for ultracold atomion collisions. *New Journal of Physics*, Vol. 13, No. 8, p. 083005, 2011.
- [97] G. Breit and E. Wigner. Capture of Slow Neutrons. *Phys. Rev.*, Vol. 49, pp. 519–531, Apr 1936.
- [98] D. J. Berkeland, J. D. Miller, J. C. Bergquist, W. M. Itano, and D. J. Wineland. Minimization of ion micromotion in a Paul trap. *Journal of Applied Physics*, Vol. 83, No. 10, pp. 5025–5033, 1998.
- [99] D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, and D. Wineland. Quantum dynamics of single trapped ions. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 75, pp. 281–324, Mar 2003.
- [100] Marek Šašura and VLADIMÍR BUŽEK. Cold trapped ions as quantum information processors. *journal of modern optics*, Vol. 49, No. 10, pp. 1593–1647, 2002.
- [101] Wolfgang Paul. Electromagnetic traps for charged and neutral particles. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 62, pp. 531–540, Jul 1990.
- [102] Milton Abramowitz and Irene A. Stegun. *Handbook of Mathematical Functions Eith Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*. National Bureau of Standards, 1964.
- [103] Wayne M Itano, J C Bergquist, J J Bollinger, and D J Wineland. Cooling methods in ion traps. *Physica Scripta*, Vol. 1995, No. T59, p. 106, 1995.
- [104] R. Blümel, C. Kappler, W. Quint, and H. Walther. Chaos and order of laser-cooled ions in a Paul trap. *Phys. Rev. A*, Vol. 40, pp. 808–823, Jul 1989.
- [105] R. G. DeVoe, J. Hoffnagle, and R. G. Brewer. Role of laser damping in trapped ion crystals. *Phys. Rev. A*, Vol. 39, pp. 4362–4365, May 1989.
- [106] 霜田光一. レーザー物理入門. 岩波書店, 1983.
- [107] A. Mosk, S. Jochim, H. Moritz, Th. Elsässer, M. Weidemüller, and R. Grimm. Resonator-enhanced optical dipole trap for fermionic lithium atoms. *Opt. Lett.*, Vol. 26, No. 23, pp. 1837–1839, Dec 2001.
- [108] William D. Phillips and Harold Metcalf. Laser Deceleration of an Atomic Beam. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 48, pp. 596–599, Mar 1982.

-
- [109] G. C. Bjorklund, M. D. Levenson, W. Lenth, and C. Ortiz. Frequency modulation (fm) spectroscopy. *Applied Physics B*, Vol. 32, No. 3, pp. 145–152, Nov 1983.
- [110] M. E. Gehm. *Preparation of an optically-trapped degenerate Fermi gas of ^6Li : Finding the route to degeneracy*. PhD thesis, Duke University, 2003.
- [111] C. J. Foot. *Atomic Physics*. Oxford University Press Inc., 2005.
- [112] 久我隆弘. 朝倉物性物理シリーズ 3 量子光学. 朝倉書店, 2003.
- [113] R. Grimm, M. Weidemüller, and Y. B. Ovchinnikov. Optical Dipole Traps for Neutral Atoms. *Advances in Atomic Molecular and Optical Physics*, Vol. 42, pp. 95–170, 2000.
- [114] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Applied Physics B*, Vol. 31, No. 2, pp. 97–105, Jun 1983.
- [115] 鳥井寿夫. ルビジウム原子気体のボース・アインシュタイン凝縮体の生成および原子波干渉計への応用. 博士論文, 東京大学, 2000.
- [116] WW Macalpine and RO Schildknecht. Coaxial resonators with helical inner conductor. *Proceedings of the IRE*, Vol. 47, No. 12, pp. 2099–2105, 1959.
- [117] K. Deng, Y. L. Sun, W. H. Yuan, Z. T. Xu, J. Zhang, Z. H. Lu, and J. Luo. A modified model of helical resonator with predictable loaded resonant frequency and Q-factor. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 85, No. 10, p. 104706, 2014.
- [118] D. M. Lucas, A. Ramos, J. P. Home, M. J. McDonnell, S. Nakayama, J.-P. Stacey, S. C. Webster, D. N. Stacey, and A. M. Steane. Isotope-selective photoionization for calcium ion trapping. *Phys. Rev. A*, Vol. 69, p. 012711, Jan 2004.
- [119] NIST Atomic Spectra Database. <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>.
- [120] Shinsuke Haze, Sousuke Hata, Munekazu Fujinaga, and Takashi Mukaiyama. Note: Auto-relock system for a bow-tie cavity for second harmonic generation. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 84, No. 2, p. 026111, 2013.

-
- [121] A. Steane. The ion trap quantum information processor. *Applied Physics B*, Vol. 64, p. 623, Apr 1997.
- [122] M. Xaxura and V. Bužek. Cold trapped ions as quantum information processors. *Journal of Modern Optics*, Vol. 49, pp. 1593–1647, October 2002.
- [123] J. Keller, H. L. Partner, T. Burgermeister, and T. E. Mehlstübler. Precise determination of micromotion for trapped-ion optical clocks. *Journal of Applied Physics*, Vol. 118, No. 10, p. 104501, 2015.
- [124] D. J. Wineland, C. Monroe, W. M. Itano, D. Leibfried, B. E. King, and D. M. Meekhof. Experimental Issues in Coherent Quantum-State Manipulation of Trapped Atomic Ions. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.*, Vol. 103, pp. 260–328, May-June 1998.
- [125] M. Brownnutt, M. Kumph, P. Rabl, and R. Blatt. Ion-trap measurements of electric-field noise near surfaces. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 87, pp. 1419–1482, Dec 2015.
- [126] R. B. Blakestad, C. Ospelkaus, A. P. VanDevender, J. M. Amini, J. Britton, D. Leibfried, and D. J. Wineland. High-Fidelity Transport of Trapped-Ion Qubits through an **X**-Junction Trap Array. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, p. 153002, Apr 2009.
- [127] R. J. Epstein, S. Seidelin, D. Leibfried, J. H. Wesenberg, J. J. Bollinger, J. M. Amini, R. B. Blakestad, J. Britton, J. P. Home, W. M. Itano, J. D. Jost, E. Knill, C. Langer, R. Ozeri, N. Shiga, and D. J. Wineland. Simplified motional heating rate measurements of trapped ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 76, p. 033411, Sep 2007.
- [128] Q. A. Turchette, Kielpinski, B. E. King, D. Leibfried, D. M. Meekhof, C. J. Myatt, M. A. Rowe, C. A. Sackett, C. S. Wood, W. M. Itano, C. Monroe, and D. J. Wineland. Heating of trapped ions from the quantum ground state. *Phys. Rev. A*, Vol. 61, p. 063418, May 2000.
- [129] to be publish.
- [130] M. Raoult, H. Da Silva, and O. Dulieu. Private communication.
- [131] Humberto da Silva Jr, Maurice Raoult, Mireille Aymar, and Olivier Dulieu. Formation of molecular ions by radiative association of cold

-
- trapped atoms and ions. *New Journal of Physics*, Vol. 17, No. 4, p. 045015, 2015.
- [132] X. Baillard, A. Gauguet, S. Bize, P. Lemonde, Ph. Laurent, A. Clairon, and P. Rosenbusch. "Interference-filter-stabilized external-cavity diode lasers". *Optics Communications*, Vol. 266, No. 2, pp. 609 – 613, 2006.
- [133] Daniel J. Thompson and Robert E. Scholten. Narrow linewidth tunable external cavity diode laser using wide bandwidth filter. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 83, No. 2, p. 023107, 2012.
- [134] 自然科学研究機構国立天文台. 理科年表 平成 22 年. 丸善株式会社, 平成 21 年.
- [135] Handbook of Basic Atomic Spectroscopic Data. <https://www.nist.gov/pml/handbook-basic-atomic-spectroscopic-data>.
- [136] E. Arimondo, M. Inguscio, and P. Violino. Experimental determinations of the hyperfine structure in the alkali atoms. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 49, pp. 31–75, Jan 1977.
- [137] Lev Landau and Evgeny Lifshitz. ランダウ＝リフシッツ理論物理学教程 量子力学 2. 東京図書株式会社, 1970. 好村滋洋, 井上健男 (訳).
- [138] 平野功. 原子・光・磁気の解析—その成り立ちと発展の軌跡—. 技術堂出版株式会社, 2004.

学術発表一覧

関連論文

- [1] R. Saito, S. Haze, M. Sasakawa, R. Nakai, M. Raoult, H. Da Silva, O. Dulieu, and T. Mukaiyama. Characterization of charge-exchange collisions between ultracold ${}^6\text{Li}$ atoms and ${}^{40}\text{Ca}^+$ ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 95, p. 032709, Mar 2017.

参考論文

- [1] Shinsuke Haze, Ryoichi Saito, Munekazu Fujinaga, and Takashi Mukaiyama. Charge-exchange collisions between ultracold fermionic lithium atoms and calcium ions. *Phys. Rev. A*, Vol. 91, p. 032709, Mar 2015.
- [2] Shinsuke Haze, Mizuki Sasakawa, Ryoichi Saito, Ryosuke Nakai, and Takashi Mukaiyama. Cooling Dynamics of a Single Trapped Ion via Elastic Collisions with Small-Mass Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 120, p. 043401, Jan 2018.

国際会議発表

- [1] R. Saito, S. Haze, M. Sasakawa, R. Nakai, M. Raoult, H. Da Silva, Jr., O. Dulieu, T. Mukaiyama, “Characterization of charge-exchange collisions between ultracold ${}^6\text{Li}$ atoms and ${}^{40}\text{Ca}^+$ ions”, Cold Molecular Ions work-

- shop, Les Houches, フランス共和国, 5月2017年 (招待講演)
- [2] R. Saito, S. Haze, M. Sasakawa, R. Nakai, M. Raoult, H. Da Silva, Jr., O. Dulieu, T. Mukaiyama, “Characterization of charge-exchange collisions between ultracold ${}^6\text{Li}$ atoms and ${}^{40}\text{Ca}^+$ ions”, Internatinal Conference on Photonic Eletronic and Atomic Collisions, ケアンズ, オーストラリア, 7月2017年 (ポスター発表)
- [3] R. Saito, S. Haze, M. Sasakawa, R. Nakai, and T. Mukaiyama, “Toward Realization of Fermi superfluid overlapped with a periodic array of ultracold ions”, Internatinal Symposium on Neutron Star Matter, 東北大学, 11月2016年 (査読あり, 口頭発表)
- [4] R. Saito, S. Haze, M. Sasakawa, K. Kyuno and T. Mukaiyama, “Measurement of Chemical Reaction Cross Section between Li and Ca^+ in mK to K”, The Irago Conference, 愛知県田原市, 10月2015年 (ポスター発表)
- [5] R. Saito, S. Haze, M. Fujinaga, K. Kyuno and T. Mukaiyama, “Local density probing of atomic gas via cold Li- Ca^+ inelastic collisions in an atom-ion hybrid system”, 46th Annual Meeting of APS Division of Atomic, Moleculer and Optical Physics, コロンバス, アメリカ合衆国, 6月2015年 (ポスター発表)
- [6] R. Saito and T. Mukaiyama, “Inelastic collision between ultracold atoms and ions in a hybrid system”, Workshop on the intersection of cold-atomic and nuclear physics, APCTP 浦項 韓国, 5月2014年 (口頭発表)

国内会議発表

- [1] 齋藤了一, 土師慎祐, 笹川瑞樹, 中井良輔, M. Raoult, H. Da Silva, Jr., O. Dulieu, 向山敬, “リチウム原子-カルシウムイオン間の電荷交換散乱の特性評価”, 日本物理学会2016年秋季大会, 金沢大学, 9月2016年 (口頭発表)

-
- [2] 齋藤了一, 土師慎祐, 笹川瑞樹, 中井良輔, 向山敬, “原子-イオン間電荷交換散乱のエネルギー依存性”, 日本物理学会第 71 回年次大会, 東北学院大, 3 月 2016 年 (口頭発表)
- [3] 齋藤了一, 藤永宗和, 土師慎介, 向山敬 “冷却イオンを用いた原子気体の局所密度測定” 日本物理学会第 70 回年次大会, 早稲田大, 3 月 2015 年 (口頭発表)

謝辞

本研究は博士後期課程における研究をまとめたものです。本研究を進める上でお力添え、ご指導頂いたすべての方に深く感謝の意を表します。

本研究を遂行するにあたり、丁寧なご指導を賜りました向山敬教授に感謝の念が絶えません。修士課程から研究室に所属させていただき、魅力的で興味深い研究を行う機会を与えて頂いたばかりではなく、日々の活動での熱心で適切なお助言や国際会議での発表などの機会をこの博士前期課程から五年間で数多く頂きました。長時間に渡って行ったゼミはいい思い出ですし、研究に対する真摯な姿勢や他人につたえる発表の構成など多くのことを教えていただき、今後の糧とすることができました。また、昼食での会話は今でも楽しく思い出されます。

パリ 11 大学の Olivier Dulieu 教授をはじめとして Maurice Raoult 博士, Humberto Da Silva Jr. 博士には共同研究を通じて成果を発表できたことに深く感謝します。Olivier Dulieu 教授には、初めて DAMOP でお会いしたときから多くの議論を重ね、理論的な立場から有益な情報をいただきました。また招待講演の機会をいただき、同分野の研究者と直接議論し、理解を深める貴重な体験となりました。

中川賢一教授には日頃から暖かく見守っていただき、有益なお助言を賜りました。特に最後の一年間では、毎回ゼミに参加させていただきご指導賜りました。毎週異なる研究テーマに関する知見を深める機会となりました。深く感謝致します。

岸本哲夫准教授には合同論文紹介をはじめとして多くのご指導をいただきました。幅広く深い知識から生まれる実験への洞察は毎回深く感銘を受けました。特に最後の一年間では指導教員として大変お世話になりました。

博士後期課程の審査員を受けていただいた渡辺信一教授、斎藤弘樹教授にもこの場を借りて深く御礼の意を表したいと思います。渡辺教授には学部生のころに日々ご指導を賜っただけでなく、博士課程での研究にも格別な興味を持っていただき多くのご意見をいただきました。また斎藤教授には合同論文紹介の場においてもご指

謝辞

導をいただきました。審査員の先生方の貴重なご意見のもと博士論文を完成させることができました。

日々の研究を共に行い、多くの時間を熱心な指導に割いていただいた土師慎祐研究員には感謝の言葉が尽きません。博士前期課程のころから実験器具の使い方から研究の進め方まで数えきれないことを教えていただきました。日々楽しく生活できたのは、ほとんどの時間を共に過ごした土師氏と研究できたからにほかなりません。思い通りに研究が進まず悩んでいた時期も、期待された結果が得られて喜んだ日も常に苦楽を共にできたことに感謝します。

研究室同期の吉田純氏には励まし合い、楽しく議論する時間を共有してこれたことをここに感謝致します。同期の少ない博士後期課程で同じ研究室に同期の友人がいたことはこの上ない幸運であり、感謝の念が絶えません。吉田氏の深い物理的洞察や他人に自分の研究を伝える真摯な姿勢は常に驚かせされ刺激を受けました。

同じく同期で博士前期課程で共に研究を行った藤永宗和氏にも多くの刺激を受けました。在学中は結果や進捗について日々議論を深め、励ましあっただけでなく、修了後も常に気をかけていただき、支えていただきました。

松田優衣氏、三明祐大氏は学年こそ後輩でしたが、研究室には同年度に配属され、共に学んでいく仲間として切磋琢磨しました。ここに感謝の意を示します。

Muhammad Waseem 氏は数少ない博士後期過程の学生として多くを学ばせていただきました。氏の理論に関する知識をはじめとした幅広い造詣に刺激を受け、知見を広げることができました。英語でコミュニケーションを日常的に行えたのは得難い経験でしたし、研究だけでなくパキスタンの文化や日本の歴史について話し合うことで楽しい時間を過ごすことができました。

また張シキ氏、興野一樹氏、服部敬太氏、中井良輔氏、笹川瑞樹氏、齋藤勇仁氏、神山秀氏、田中凜太郎氏、鈴木槇悟氏には多くの刺激を受けました。

特に興野氏、中井氏、笹川氏、神山氏は同じグループとして活動し、共通の目標のもと邁進したことは昨日のことのように思い出されます。研究生活を通じて得た多くの仲間はかけがえのない財産です。この場を借りて御礼申し上げます。

レーザー新世代研究センターの皆様方、堀越宗一助教をはじめとした堀越グループの皆様には感謝の意を表します。堀越助教には中性子星の国際シンポジウムにて口頭発表させていただき、普段経験の少ない研究提案といった形の発表をさせていただきました。またレーザー新世代研究センターの丹治はるか准教授には合同論文紹介をはじめとしてご指導賜りました。

最後に常に支えて頂いた両親をはじめとした家族に深い感謝を表し、謝辞とさせていただきます。