

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H01229

研究課題名(和文)カイラル分子におけるパリティ非保存観測に向けた極低温気相多原子分子生成技術の確立

研究課題名(英文)Producing ultra-cold polyatomic molecules for observing the parity violation in chiral molecules

研究代表者

宮本 祐樹 (Miyamoto, Yuki)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・研究准教授

研究者番号：00559586

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：本課題では、三原子分子であるCaOH分子のバッファーガス冷却および高精度分光を行った。これによりCaOHのバッファーガスセル内の温度の評価などを行うとともに、これまでより高い精度で分光定数を決定した。さらにより大きな分子であるフタロシアニン分子をバッファーガス冷却により冷却し高分解能分光も行い、回転構造を観測することに成功した。これは大型分子も高分解能分光可能であることを示す重要な成果である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

我々の最終目標はパリティ対称性の破れに由来するカイラル分子鏡像異性体間のエネルギー差を測定することにより、新物理に至る手がかりをつかむことである。この極小のエネルギー差を観測するためには、冷却分子の高精度分光技術が必須である。本課題ではバッファーガス冷却した分子の吸収を狭線幅の連続波レーザーで高精度に測定した。これはパリティ対称性の破れの観測に向けた分光システム構築の第一歩となる。さらに本研究ではこれまで難しかった大型分子の回転構造の観測にも成功し、高分解能分光により、機能性分子をはじめとした大型分子の量子状態をより詳細に調べる可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：In this project, we performed buffer gas cooling and high-precision spectroscopy of the triatomic molecule CaOH. The temperature of CaOH in the buffer gas cell was evaluated, and the spectroscopic constants were determined with higher precision than before. Furthermore, we succeeded in observing the rotational structure of a larger molecule, phthalocyanine, by cooling it with buffer gas and performing high-resolution spectroscopy. This is an important achievement that shows that high-resolution spectroscopy is possible even for large molecules.

研究分野：分子科学

キーワード：極低温分子 パリティ対称性の破れ カイラル分子

1. 研究開始当初の背景

ヒッグス粒子の発見により素粒子物理の標準理論はひとまずの完成をみた。一方で、物質優勢宇宙の起源など標準理論では説明できない事象があることも良く知られており、標準模型を超えた物理(Physics Beyond the Standard Model; BSM)の探索は今後の物理学における主要課題である。BSM への手がかりを得るには標準理論の破れを実験的・定量的に測定する必要がある。現在、世界中で様々な手法、規模で研究が行われているが、確実な破綻を示す実験結果は今のところ報告されていない。

一方で、20世紀末に始まるレーザー光を用いた極低温気相原子の生成、およびその量子状態制御技術の確立により、原子物理学は大きな発展をみせた。原子間相互作用の小さい気相のまま極低温まで冷却された原子集団と最先端のレーザー技術は、高度にコントロール可能な「量子的な実験場」を提供し、ボーズ・アインシュタイン凝縮の実現をはじめとする多くの成果をもたらしてきた。そして現在、新しい「実験場」として冷却気相分子系が注目されている。これは分子に原子とは異なる以下の特徴があるためである。

回転・振動運動による豊かな内部量子状態

中心対称性に限らない多彩な空間対称性(直線分子・対称こま分子など)

これらの性質により冷却分子系は原子系とは異なった「実験場」を提供することができる。そのため量子シミュレーションや量子コンピュータといった量子情報分野や、物質波化学(極低温化学)などへの応用が期待されており、活発に研究が進められている。

2. 研究の目的

我々の究極的な目的は、冷却された気相カイラル分子を用いて素粒子物理の標準模型を超えた新物理を探索することである。次世代の実験ツールとして注目されている冷却分子系をBSM探索に用いる提案は近年続々となされている。最も著名な例は、冷却分子を用いた電子の電気双極子モーメントを測定する実験であり、すでに目覚ましい成果が得られている[Nature 562, 355-360 (2018)]。その他にも微細構造定数をはじめとした物理定数の恒常性測定[Phys. Rev. Lett. 96, 143004 (2006)]や、暗黒物質探索に用いる提案[Phys. Rev. A 103, 043313 (2021)]がなされている。それらの実験原理はすべて冷却することで狭線幅化した分子の量子状態を高精度で測定するということである。そのなかでも特にカイラル分子によるパリティ非保存測定を目指している。

電弱相互作用においてパリティ対称性が破れていることは良く知られている。しかし、その破れの大きさを決める弱混合角(ワインバーグ角)の大きさは、特に低エネルギー領域において高い精度では決定されていない。低エネルギー領域で精度良く弱混合角を決めることができれば、BSMへの有力な足掛かりとなる可能性がある。この低エネルギー領域の弱混合角を決定する手法としてカイラル分子を用いた実験が提案されている。パリティが保存されていれば、鏡像異性体間の内部エネルギー構造は完全に一致するはずであるが、パリティ対称性の破れのために、異なるエネルギー構造を持つことが予想されている。計算からそのエネルギー差はHz~mHz程度と予想されているが、この値は状態のエネルギー($\sim eV$)に比べて非常に小さく、従来の分子分光的手法で観測することは困難であった。これは室温の分子を対象とすると、(高次の)ドップラー効果や相互作用時間からくるエネルギーの不定性のために精度が制限されるためである。対象分子を極低温にまで冷却し、ほぼ静止させることで初めてこのような実験が可能となるのである。

このように分子を用いてBSMを探索するには、分子を極低温まで冷却したうえで、超高精度で分光する必要がある。原子より構造が複雑な分子の冷却技術は未だ発展途上であり、分子冷却技術と超高精度分光システムとを発展的に結合させることこそが本研究の目標である。

極低温分子生成の技術は、近年、二原子分子に対して目覚ましい成果が得られた。しかし、カイラル分子のような多原子分子(カイラル分子は4原子以上からなる)を極低温に冷却する技術は確立されていない。分子を構成する原子の数が増えると、振動・回転といった分子の内部自由度が劇的に増加し、電子状態のポテンシャル面も複雑な多次元形状になるため、従来の原子冷却技術(レーザー冷却)を適用するのが難しくなる。レーザー分光技術が確立している現状では多原子分子の冷却こそがカイラル分子パリティ非保存観測の最大のポイントであり、冷却が達成されれば、上記のような先端的レーザーによるドップラーフリー分光を行うことで「エネルギー差」を測ることが出来ると期待される。一足飛びにカイラル分子の冷却を行うのは困難であるので、本課題ではまず三原子分子を具体的な目標としていた。しかし、2021年度にハーバード大学のグループによりCaOH分子のレーザー冷却が報告された。そこで我々は研究をさらに進めるため「CaOH分子の高精度分光」「より大きな分子の高精度分光」という新たな目標に向け研究を行った。

3. 研究の方法

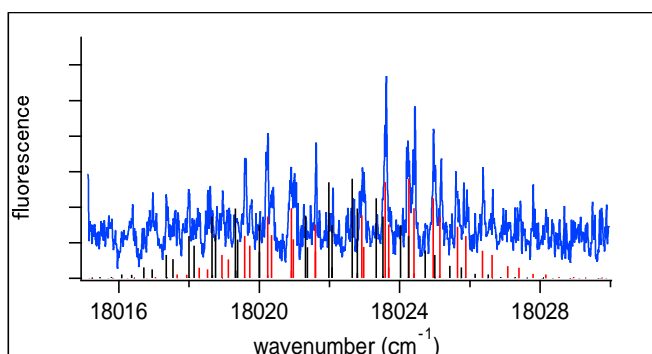
当初、本課題は(i)冷却対象分子の生成・(ii)予備冷却・(iii)レーザー冷却・(iv)測定と評価の4段階に分けて行う予定であったが、上述のようにレーザー冷却が報告されたことにより、予備冷却法であるバッファガス冷却により冷却された分子の高精度分光を行った。

本課題では冷却対象分子として一水酸化カルシウム(CaOH)分子を採用した。この三原子分子は遷移強度、緩和分岐比においてレーザー冷却に有利な電子状態を持ち、本課題の対象分子として最適である。分子生成にはパルスレーザー(532 nm)によるレーザーアブレーションを用いる。予備冷却には、ヘリウムバッファガス冷却を用いる。アブレーションにより生成したCaOH分子を、電気冷凍機で~4 Kまで冷却されたヘリウムガスと衝突させることにより冷却する手法である。

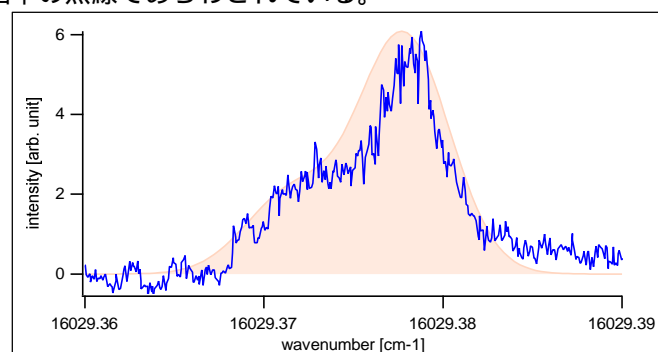
計画では予備冷却後にレーザー冷却を行う予定であったが、上述の通り目的を変更し、バッファガスセル内でのCaOH分子の高精度分光を行った。バッファガスセルに狭線幅レーザーを導入する窓を設置し、冷却されたCaOH分子の吸収(A-X遷移)を測定することにより分光を行った。さらにより大きな分子の分光もおこなった。

4. 研究成果

本課題では実験装置を一から立ち上げた。最初の二年間において真空系やバッファガスセルなどのテストを行い、アブレーションによるCaOH分子の生成を質量分析計およびパルスレーザーを用いたB-X遷移のレーザー誘起蛍光観測によって確認した。測定されたレーザー誘起蛍光スペクトルを右図に示す。青線が実験結果のスペクトルである。分子の回転構造によるスペクトル線が見えている。アブレーションで生成される分子量はその実験条件により大きく揺らぐため、蛍光量の定量的な議論は難しいが、回転線の強度比から、分子の回転温度はおおよそ10 K程度であると見積もることができ、バッファガス冷却が行われていることがわかる。赤線は回転温度10 Kを仮定したシミュレーション結果である。さらにスペクトルには、基底状態の振動状態が励起された状態からの遷移であるホットバンドも観測された。ボルツマン分布を仮定すると10 Kでは振動励起状態にはほとんど分子はいないはずであるので、振動温度は回転温度より冷却されにくいことがわかる。ホットバンドのシミュレーション結果は図中の黒線であらわされている。

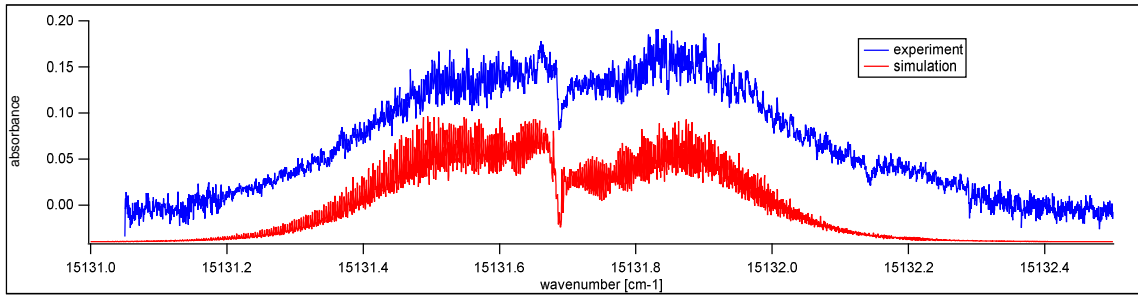


対象分子が生成され、さらに冷却も行われていることが分かったため、狭線幅レーザーによるA-X遷移の吸収分光を行った。観測された吸収線の例を右図に示す。青線が観測されたスペクトル、赤い領域がシミュレーションにより得られたスペクトルである。図中のスペクトルはX状態の回転・スピン相互作用を反映し、二本に分裂している。スペクトル幅はドップラー幅により決まっており、並進温度を見積もることができる。シミュレーションより並進温度は20 K以下であることが示された。またレーザーの周波数を、ヨウ素分子のドップラーフリー分光を用いて校正することにより、実験誤差50 MHz程度で遷移周波数を決定することができた。具体的にはこれまで未観測であった27本の遷移を含む30本以上の遷移を高い精度で観測し、これによりCaOH分子の分光定数をより高い精度で決定した。この結果については現在論文準備中である。CaOHは宇宙空間に存在することが示唆されており、本研究によりより精度の高い分光定数が得られたことは星間空間でのCaOH分子の同定などに役立つ可能性がある。CaOH分子の高精度分光に成功したことは、パリティ対称性の破れの観測に向けた分光システム構築の第一歩となる。



本課題では、さらに大きな分子の冷却およびその高精度分光を試みた。カイラル分子は最低でも4原子以上からなり、またより大きな分子の冷却が可能になれば、対象となる分子種は飛躍的に増えるため、どの程度の大きさの分子までバッファガス冷却が可能であるかということは、重要な観点である。

そこで我々はフタロシアニンという分子の冷却および高分解能分光を行った。フタロシアニンは色素の一種であり、質量数は500を超える高分解能分光の対象分子としては非常に大型な分子である。フタロシアニンもCaOH分子と同様にレーザーアブレーションによりセル中に生成した。下図に観測された吸収スペクトルを示す。遷移は基底電子状態と最低励起状態間の遷移で



あり、振動状態はどちらも基底状態である。青線が実験により得られたスペクトル、赤線が回転温度・並進温度をどちらも 5K と仮定したシミュレーション結果である。これから質量数 500 を超えるような分子でも十分にバッファガス冷却できることがわかった。これは今後の冷却分子研究における対象分子を拡大する重要な成果である。

さらに驚くべきことに、観測されたスペクトルには回転構造に由来する構造がみてとれる(図中の振動しているような構造)。一般に大きな分子は回転エネルギーが小さくなるため、回転構造を観測するのが難しい。しかし本研究では並進温度が十分に冷却できていたことと、アブレーションによる分子生成が高効率であり高い信号雑音比が得られたため、回転に由来する構造を観測することができた。可視領域のスペクトルでここまで大きな分子の回転構造が分解されたことはこれまでない。フタロシアニンやポルフィリンなどの機能性分子と似た構造を持つ分子であり、本研究成果はそのような機能性分子が高分解能分光の標的となりえることを示している。回転構造の測定により、大きな分子の量子状態によりこれまで以上に詳細な情報が得られるため、大きな分子の量子科学計算や分子設計に役立つものと期待できる。この成果についても論文準備中である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高橋唯基, 桃原怜央, 岩國加奈, 久間晋, 宮本祐樹
2. 発表標題 バッファガス冷却された多原子分子源の研究開発
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋唯基, 桃原怜央, 岩國加奈, 久間晋, 榎本勝成, 馬場正昭, 宮本祐樹
2. 発表標題 バッファガス冷却されたCaOH分子の分光
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮本祐樹, 高橋唯基, 平本綾美, 岩國加奈, 久間晋, 榎本勝成, 馬場正昭
2. 発表標題 バッファガス冷却されたCaOH分子のAX遷移高分解能分光
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	久間 晋 (Kuma Susumu) (50600045)	国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・専任研究員 (82401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
米国	カリフォルニア工科大学			