

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20340105

研究課題名(和文) 極低温原子・分子の同時トラップー分子の共同冷却実験ー

研究課題名(英文) Simultaneous trapping of dipolar molecules and atoms:
Sympathetic cooling of molecules

研究代表者

森脇 喜紀(MORIWAKI YOSHIKI)

富山大学・理工学研究部(理学)・教授

研究者番号：90270470

研究成果の概要(和文)：

ヘリウムクライスタットとさらにバッファーガスを用いた分子冷却装置を作成し、レーザーアブレーションによる固体からの分子の生成シグナルが確認された。四重極電場シュタルク速度セクターを製作し、常温のND₃分子から数K程度 of 速度成分のみを選択的に真空容器に導くことに成功した。超伝導マイクロ波共振器を作成し、Q値を3x10⁵まで高めることができた。これらにより、分子の冷却・トラップの実現が研究の射程内に入ってきたといえる。

研究成果の概要(英文)：

We have constructed a helium cryostat with a collision chamber in which molecules are cooled through collisions with cold He gas, and we have confirmed signals from cold molecules laser-ablated from a solid sample. We have constructed quadrupole Stark molecular selector and demonstrated that the cold ND₃ molecules about a couple of Kelvin are selected and guided from ND₃ gas at room temperature. We have constructed a superconductive microwave resonator with a Q-factor of 3x10⁵. With these results our research is promising for the realization of cooling and trapping of molecules by use of microwave.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	6,700,000	2,010,000	8,710,000
2009年度	6,800,000	2,040,000	8,840,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：原子・分子・量子エレクトロニクス，冷却分子，レーザー分光，マイクロ波分光

1. 研究開始当初の背景

この20年ほどの間に行われてきたレーザー冷却，磁気光学・磁場・光トラップ，蒸発冷却などの急速な技術的進展により原子を極低温まで冷却することが可能になっている。これにより，次世代の時間標準と目される16桁もの高い精度での原子遷移周波数の測定や，

原子のボース・アインシュタイン凝縮(BEC)・フェルミ縮退等の様々な物性的研究，フェッシュバハ共鳴を用いた散乱長の制御などが，次々と実現されてきた。一方，分子は振動や回転などの多様なエネルギー準位構造があるために，励起と緩和を効率的に繰り返すことが不可能であり，強力な冷却手段あるレーザ

一冷却法の適用には困難がある。そのため極低温分子の生成は原子に比べて遅れていた。1998年に Doyle 等が希釈冷凍機で冷却された³He ガスとの衝突により CaH ラジカル分子を 300 mK まで冷却した後 3 T の磁場を用いて空間内に閉じこめることに成功し、これを機に中性分子の冷却・空間捕捉への新たな挑戦が始まった。

分子を極低温まで冷却し空間捕捉することにより、(1) 分子の BEC, (2) Doppler 効果を受けない超精密分子分光, 周波数標準, (3) 対称性の破れの検出, 電子の永久双極子モーメントの測定 (CP 対称性の破れ), 鏡像異性体分子のエネルギー差の測定 (パリティの非保存), (4) 極低温分子衝突, 外場により制御された化学反応, (5) 量子コンピューター等様々な実験の実現や測定精度の大幅な向上が可能となり, 多岐の分野にわたって物理学の長足の進展が期待される。

極性分子の運動制御は, 分子と外場との相互相互作用によって行うことができる。外場によって分子の準位 (例えば回転準位) は混合しエネルギー準位は互いに反発する。その結果, 外場の増大とともにエネルギーが (a) 大きくなる, あるいは (b) 小さくなる準位が生じる。前者を low-field-seeker (LFS), 後者を high-field-seeker (HFS) という。分子の基底状態は常に HFS である。一方, アーンショウの定理により自由空間内には静電磁場は極大をとることができない。そのため, 静電磁場では分子の基底状態での空間捕捉は原理的に不可能である。これまでに開発された方法の多くは静電磁場を利用しており, 並進温度はサブ K まで冷却されてはいるものの, 内部状態は基底状態以外のさまざまな状態に分布している。そのため他の分子と非弾性衝突を起し, 並進運動が過熱されトラップ領域から失われるなどの問題があった。その上, 内部状態分布の広がりや精密測定のス/N において不利であり, 化学反応などの衝突実験においても単一の始状態の指定は不可欠である。

2. 研究の目的

分子の空間捕捉法として, マイクロ波定在波トラップが有用であると考えられる。マイクロ波定在波では空間内に場の極大があり, そこに基底状態の分子が閉じ込められる。マイクロ波を分子の回転遷移 $J=0 \rightarrow 1$ に近共鳴させることにより, Stark シフトが増大しポテンシャルは深くなる。このようにして内部状態が基底状態のまま分子を冷却・空間捕捉する方法を開発する。極低温原子と同時捕捉して共同冷却により mK 程度まで分子を冷却する。極低温での分子-原子の弾性・非弾性衝突レートなどを測定する。

3. 研究の方法

液体ヘリウムクライオスタットを用いた低温分子線源の開発, (2) 四重極シュタルク速度セクターの開発, (3) マイクロ波減速器, および, マイクロ波トラップのためのマイクロ波超伝導共振器の開発, (4) Rb の MOT の作成, (5) 分子イオントラップとその分光の物理的意義の提案, の手順で研究を進めた。具体的には研究成果の項で述べる。

4. 研究成果

(1) 液体ヘリウムクライオスタットを用いた低温分子線源の開発

液体ヘリウム温度のヘリウムガスとの衝突により冷却された気体分子を泉源として取り出すためのクライオスタット付き真空容器を開発した (図 1)。6L の液体ヘリウム層と 4L の液体窒素層を備えている。液体ヘリウム層は真空ポンプによるポンピングにより 2K 程度まで冷却できる。液体ヘリウム層下部に衝突チャンバー等を熱的に接触させて設置し, その内部で固体サンプルをレーザーアブレーションすることにより目的の気体分子を生成する。これらの分子は He クライオスタットにより冷却された低温のヘリウムガスと衝突して冷却され, 衝突チャンバーに穿った穴から真空容器内に自由膨張する。同時に真空中へ放出される He ガスを吸着するために, 約 120cm² の銅板面に活性炭を敷き詰めてある。また, ヘリウム温度の銅板で全体が遮蔽されている。この真空容器には, レーザー導入や分子を光学的に検出するための光学窓をもうけ, また, 外部からヘリウムガスや冷却対象分子を導入するための細管, 分子出入射穴の凍結防止用ヒーター, 活性炭活性化のためのヒーター, 及び温度測定用の電流導入端子等を備えている。



図 1 ヘリウムクライオスタット

分子生成実験の前にまず, 原子を用いて予備実験を行った。ヘリウム層下に取り付けた衝突チャンバー中で Rb 金属片を NdYAG レーザー (SH, 532 nm) パルスを用いてレーザーアブレーションし, 生成された Pb 原子を低温 He ガスにより冷却し, He ガスとともに真空中へ流出させる実験を行った。生成された Rb 原子

線を 780nm のレーザーにより吸収分光測定し、アブレーションレーザーパルスあたり 10^{10} 個程度の原子が取り出せることが分かった。また、ドップラースペクトルの測定により、原子線の温度はバッファガスの温度まで冷却されていることが確認された。

PbO 分子は電気双極子モーメントが大きく (4.8D), また回転定数が適度に小さい ($B=9.2\text{GHz}$) ために、シュタルク速度セレクション, 近共鳴によるマイクロ波減速・トラップに適している。また, PbO の $X(v=0)-B\Sigma(v=5)$ 準位間遷移は, 406nm に吸収線があるが, その緩和(発光)は振動準位間の遷移確率により, 460nm で最もよく起こる。このことから, レーザー誘起蛍光法が分子検出に適用できる。そこで, PbO 分子の空間分布, 速度分布, 内部状態分布を調べるために, LD を用いた 406nm 分光計を開発した。405nm 波長帯の市販品の LD を用い, リットマン配置の外部共振器 (ECLD) とした。温度制御により 404nm-407nm の範囲での発光が可能で, 回折格子の角度調整と LD 電流を同時制御することにより, モードポップフリーで 8GHz の連続波長が可変な光源が得られた。

一酸化鉛ペレットをレーザーアブレーションして生成された PbO 分子の 406nm 帯の $J=1 \rightarrow 2$ 遷移の吸収を, アブレーションレーザーパルスエネルギーやバッファガス圧を様々に変えたうえで, 観測することができた。このスペクトルはまだ見え始めたところであるので, ガス圧やアブレーション方法などについて今後最適化していく。また, 固体の PbO を 700°C まで加熱して PbO 分子を生成してレーザー分光することを試みたが, 用いた石英セルと PbO が反応して十分な PbO 分子が得られないばかりでなく, 光学窓が汚れるという結果に終わった。PbO 分光においては, 窓面の保護のためのバッファガスや側壁にアルミナ管などを使う必要があると考えられる。

He 温度のチャンバー内で PbO ペレットのレーザーアブレーションにより生成され冷却された PbO 分子の分子線を生成する条件を調べるために, 分子に比べ検出が容易な Rb 原子を標的として, 低温原子線生成について調べた。NdYAG レーザー (SH, 532 nm) パルスを用いたアブレーションにより生成された Rb 原子が, 気体分子との衝突によりほぼチャンバー温度にまで冷却されるが, チャンバー外への取り出し量がまだ十分に確保できていない。ノズルの大きさと低温ガス流量の最適化が必要である。さらに, 一酸化鉛ペレットをレーザーアブレーションして生成された PbO 分子を低温 He ガスにより冷却し, He ガスとともに真空中へ流出させる実験を行った。He ガス層の冷却や, 真空層での活性炭による He ガス吸着ポンプの作動条件などを調べた。質量分析器により検出された PbO 分子の生成量が小さく,

He 温度室のガス圧や, ペレットの形成方法等についてさらに詳細に調べ, 生成される PbO 分子量を増大させる必要がある。

(2) 四重極シュタルク速度セレクターの開発

平行に配置された 4 本の電極ロッドの対角の 2 対に $\pm V$ の電圧をかけることにより, 四重極電場を作り, この電場によるシュタルク効果により分子を 2 次元的に閉じ込める力を使って分子を電極に沿ってガイドする。これによりガイドできる分子は, シュタルク効果により電場とともにエネルギーが大きくなる状態 (LFS) の分子である。電極を曲率半径 R で曲げておくと, これに沿って速度 v で移動する分子には v^2/R に比例する遠心力が作用し, これがシュタルク効果による閉じ込め力より分子はガイドから外れる。このように電極に曲率 R の部分を設けることにより, 分子の低速度セレクターとして利用することができる。

このような四重極電場を用いたシュタルク速度セレクターを開発するために, 有限要素法を用いて 4 本の電極の内部, 電極の継ぎ目, 曲線部, 電極端などでの電場解析を行った (図 2)。また, 得られた電場をもとに, 一酸化鉛, ND_3 分子など比較的大きい電気双極子を持ちシュタルク効果が大きく作用する分子について, 速度セレクターのモンテカルロシミュレーションを行った。すなわち, セレクターに導入する分子の温度 T に対して, セレクター入り口での分子の初期位置, 速度が統計的な分布を持つように乱数で与え, 電極の 90° の曲線部を通過する分子の割合を求めた。 $R=25\text{mm}$, PbO の $J=1$ 回転状態について, $T=4.2, 77, 300\text{K}$ でのシミュレーション結果を表 1 に示す。PbO の $J=1$ 状態のシュタルクシフトには, 上状態 ($J=2$) との混合が起こり, 反発されて, 6GHz 程度の最大値 (電場: $2 \times 10^6\text{V/m}$) が存在する。これは, 2 つの状態間 ($J=1$ と 2) のエネルギー間隔が約 40GHz と小さいためである。そのため, 電極に印加する電圧を高くしていくと, 電極内部での分子のシュタルクシフトの最大値は周辺から次第に電極中心方向へと移動する。これは, ガイドが電圧とともに空間的に狭くなることを意味するので, セレクターのガイド効率は電圧 V に対して極大をもつ。一方, ND_3 の回転準位のエネルギー間隔は大きいので, 20kV/mm 程度の電場ではシュタルク効果による回転準位の混合は小さく, 極大は現れない。ガイドされる分子速度は電圧 V に比例し, 分子の速度分布は低速領域では軸方向速度 v_z に比例するので, ガイド効率は電圧 V の 2 乗で大きくなることなどがモデル計算により予想できた。

我々が作成したシュタルクセレクターの概略を図 3 に示す。四重極電極は, 直径 3mm のステンレス丸棒を間隔 1mm で互いに平行にな

るように数カ所で樹脂製の絶縁体により支え

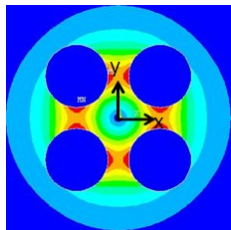


図 2 4本の円柱型電極に対角に±5kVを印加した場合に作られる電場強度

られている。電極は隔壁により隔てられた3室からなる真空容器に納められている。電極には曲率半径 $R=25\text{mm}$ の90度の湾曲部が2カ所あり、それぞれ第一、第二真空容器に位置している。電極の全長は0.65mである。真空容器の3室は、それぞれ独立に排気速度500L/s, 300L/s, 500L/sのターボ分子ポンプにより、 2×10^{-8} , 1×10^{-8} , 1×10^{-9} Torr程度の真空まで差動排気される。隔壁に開けられている分子ガイド用の穴の大きさは 20mm^2 程度である。

真空容器の第一室は、ヘリウムクライスタ

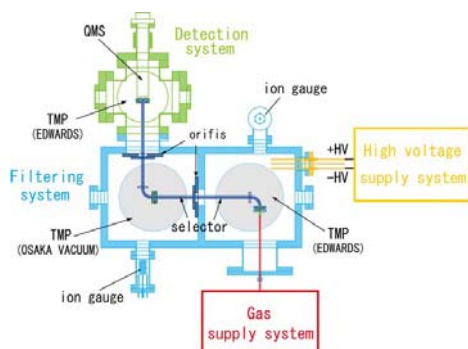


図 3 Stark速度セレクトターの概略図

ットに接続しPbOなどの低温分子をガイドすることができるようになってきている。しかし、現在クライスタットからの分子供給は最適化調整中であるので、第一室に室温気体分子を導入して、そのうち低速度分子のみを選択してガイドする実験を行った。気体分子として ND_3 を用いた。正三角錐型分子である ND_3 は、N原子が3個のD原子の作る面を行き来する反転振動がほぼ縮退しているために、小さな電場からシュタルクシフトが1次で働くという特徴をもつ。約100ccのバッファ容器で数Torr程度の気圧に調整された ND_3 を微量流量調整バルブと細管を通して、第一室の四重電極入り口に導く。

真空容器第3室には、四重電極の出口があり、その正面に近接して配置された残留ガス分析器(四重極型質量分析器)により、ガイドされた分子が検出される。残留ガス分析器の対象質量数は ND_3 に対して20amuであり、またバックグラウンドとして10amuを設定し

た。

信号の検出方法は以下の通りである：流量調整バルブを調整して ND_3 ガスを第一室の圧力P1まで導入する。対角の電極2本の組に対してそれぞれ±4.5kVまでの電圧±Vを印加し、一定時間Tの間残留ガス分析器の信号を積算し、また、電圧 $V=0$ として一定時間の間信号を積算する。このようにして測定された、速度選択された ND_3 の検出信号を図4に示す電圧±Vが印加されたとき、電圧 $V=0$ の場合の検出信号の差が、ガイドされた分子の量に比例する量であり、シュタルクガイドが適切に作動していることが確認された。このシュタルクセレクトターの $V=4.5\text{kV}$ の場合の流量(コンダクタンス)は $3 \times 10^9/\text{s}$ と見積もられた。また、ガイドされた分子の量の電圧Vへの依存性は、先行のモデル計算により説明できた。モデル計算によると、ガイドされた分子の温度は数Kである。

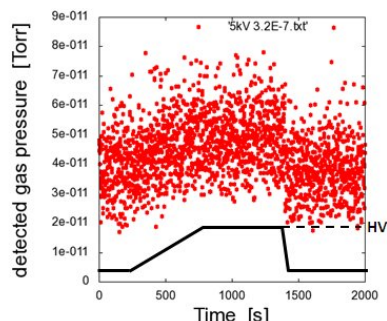


図 4 $V=\pm 4.5\text{kV}$ の場合に検出されたシグナル(赤点)。電極印加電圧の時間変化を黒線で示した。

ガイドされた分子の温度を実験的に測定するには、電場のスイッチングによる飛行時間の測定が有効である。また、ガイドに導入する分子を予め冷却することにより流量が大幅に増加することが期待できる。また、シュタルクセレクトターは差動排気ができるため、ヘリウムクライスタットで生成された分子からヘリウムバッファガスを取り除くのにも有効な手段となる。シュタルク速度セレクトターの研究は独マックスプランク研究所が先行している。国内では、東工大、上智大でパルス型ノズルを用いた研究がある。我々の研究では、次に述べるマイクロ波減速器と組み合わせた減速・トラップあるいは、原子トラップ、イオントラップを組み合わせた衝突・反応などの研究へ広がりを持たせる点が特徴となる。

(3) マイクロ波減速器、および、マイクロ波トラップのためのマイクロ波超伝導共振器の開発

マイクロ波減速器は研究分担者・榎本等が手法を考案したものである。振動電場は空間内で極地をとることができ、分子の遷移周波数と近共鳴な周波数のマイクロ波を用いることにより、シュタルク効果は1次で効くので、

分子に大きな力を作用させることができる。また、マイクロ波の離調の符号により HFS, LFS の選択が可能であるが、特に基底状態 (HFS) を制御できるのが特徴である。マイクロ波定在波の電場を作るシュタルクポテンシャルを分子が常に上らせるようにマイクロ波の on-off スwitching のタイミングを取り、分子の速度を減速させる。分子の失うエネルギーは、ポテンシャルを高さと進行方向の定在波の腹の個数 (p) で決まる。また、マイクロ波の定在波を分子収束器 (凸レンズ) としても利用できる。

マイクロ波電場を空間中でできるだけ強くするため、内径 12.7mm、長さ 113mm の銅製の円筒型マイクロ波共振器を作成した (図 5)。発信器からのマイクロ波は、ループアンテナにより共振器にカップルさせ、その反射波強度を測定することにより共鳴周波数が記録される。本共振器には、分子の遷移周波数と近共鳴させる 13-20GHz の範囲に TE_{mnp} , TM_{mnp} モードの複数の共振周波数がある。共振器の表面を流れる電流のジュール熱が共振器の主な損失となるため、銅製共振器内面に超伝導材として SnPb のコーティングを施した。常温での Q 値は 5000 程度であるが、温度の低下とともに Q は大きくなり、液体ヘリウム温度まで冷却した場合には Q 値は急激に増加し $Q=3 \times 10^5$ がえられた。共振器が超伝導状態となったためと考えられる。

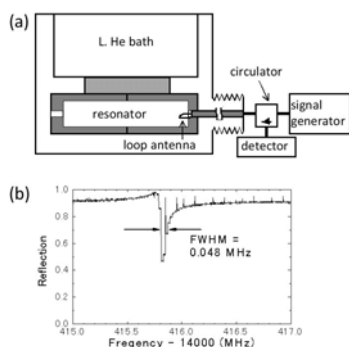


図 5 (a) 実験装置概略図, (b) 超伝導共振器からの反射波の波長依存性。

この後さらに、超伝導体材の選択、低温化、共振器-アンテナ接続の最適化などにより Q 値を高める。これによって、大きな双極子モーメントを持つ分子遷移については、定在波 1 つで 0.1K 程度のシュタルクポテンシャルが見積もられる。これに加えて、長い共振器を作り腹数 (p) を増やすことにより、10K 程度までの減速能力を実現できると期待される。マイクロ波による分子の減速、捕捉は国内外を問わずまだ実現されていないが、我々の研究グループが最も実現に近づいたといえよう。

(4) Rb の MOT の作成

多くの Rb 原子をトラップするためにはト

ラップレーザーのビーム径を大きくすることが有効である。そのために高出力パワーレーザーとしてテーパレーザーを作成した。リッジ側出力に対して回折格子をリットロー配置およびリットマン配置で組み、その出力をモニター、周波数ロックに用いた。その結果 500mW 程度の安定な出力が得られた。回折格子の 1 次回折効率がこの出力を制限しており、効率が低い回折格子が入手できればさらに出力の向上が可能である。TOF 法を用いて MOT の温度測定を行いほぼドップラー限界まで冷却できていることが確認された。

(5) 分子イオントラップとその分光の物理的意義の提案

イオントラップされた低温分子イオンと中性原子との衝突による低温中性分子の生成について検討した。トラップされたイオンと中性分子との衝突による低温分子イオンの生成、およびそれらのエネルギー状態や遷移双極子等を求め、分光方法について検討した。

低温分子を生成しさらに空間的に閉じ込めて精密測定をすることが本研究の 1 つの目的である。分子イオンについては、イオントラップ法が熟しており、また、レーザー冷却可能なイオンとの衝突による共同冷却法があるにも関わらず、研究対象としてあまり注目されていなかった。我々は、アルカリ土類類似イオン X^+ から、 $X^+ + H_2 \rightarrow XH^+ + H$ 型の反応により生成される XH^+ 分子イオンについて、外部電場・磁場あるいはプローブ光の影響を受けにくい狭い遷移がないか検討し、基底状態の回転振動遷移 (v, J) = (0, 0) \rightarrow (1, 0) 遷移がその候補となることを示した。この遷移を精密測定し、原子の遷移と比較することにより、電子陽子質量比の時間的変化に関する検証実験に用いることができることを提案した。

また、実験において Ca^+ イオントラップした真空容器内に H_2 , D_2 ガスを導入し、イオン分子衝突によって CaH^+ 及び CaD^+ 分子イオンが生成され、かつトラップされることが、トラップされたイオンを取り出しその質量スペクトルを測定することにより確認できた。これまでに実験的に CaH^+ 分子のスペクトルが測定されていないため、今後、そのスペクトルの測定が重要な課題となる。また、我々の研究発表とともに、イオントラップ中の低温分子イオン分光への関心は欧米でも高まり複数の研究グループが類似の XH^+ についての研究を始めている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

(1) M. Kajita, A. Abe, M. Hada, and Y.

Moriwaki,
Estimated accuracies of pure XH^+ (X: even isotopes of group II atoms) vibrational transition frequencies: Toward the test of the variance in m_p/m_e ,
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 44, 025402 (2011).

(2) M. Kajita and Y. Moriwaki,
Proposed detection of variation in m_p/m_e using a vibrational transition frequency of a CaH^+ ion,
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42, 154022-1--6 (2009).

(3) M. Kajita,
Combination of accurate atomic and molecular frequencies for sensitive detection of the m_p/m_e variance,
Phys. Rev. A, 78, 024101-1--3 (2008).

[学会発表] (計 22 件)

(1) M. Kajita, A. Abe, and Y. Moriwaki,
PRECISE MEASUREMENT OF VIBRATIONAL TRANSITION FREQUENCIES OF MOLECULAR IONS, Asia Pacific Radio Science Conference (AP-RASC'10), September 22--26, 2010, Toyama.

(2) K. Enomoto, Y. Moriwaki, W. Hardy, O. Nourbakhsh, P. Djuricauin, and T. Momose,
Control of translational motion of polar molecules by using superconducting microwave resonators, Proceedings of 4th international workshop on Fundamental Physics Using Atoms 2010, 56--59.

(3) M. Kajita, A. Abe, and Y. Moriwaki,
Proposed detection of the variance in m_p/m_e via the precise measurement of vibrational transition frequencies of XH^+ ($X=^{24}Mg$, ^{40}Ca , ^{64}Zn , and ^{114}Cd),
International Conference on Atomic Physics 2010 (ICAP2010), July 25--31, 2010, Cairns, Tropical North Queensland, Australia.

(4) M. Kajita and Y. Moriwaki,
Detection of variance in m_p/m_e using molecular vibrational transition frequencies,
Colorado Cold Molecule Workshop, July 16, 2009, University of Colorado, USA.

(5) Y. Moriwaki, K. Enomoto, F. Matsushima, and M. Kajita,
Trapping of Ca^+ ions toward the precision

measurement of vibrational transitions of CaH^+ molecules,
International Conference on Laser Spectroscopy 2009, Hokaido, Japan, June 7-12, 2009.

(6) M. Kajita,
Variance Measurement of m_p/m_e Using Cold Molecules,
International Conference on Precision Physics of Simple Atomic System, July 22, 2008, University of Windsor, Windsor, Canada.

[その他]
ホームページ等
<http://www.sci.u-toyama.ac.jp/phys/5ken/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者
森脇 喜紀 (MORIWAKI YOSHIKI)
富山大学・理工学研究部(理学)・教授
研究者番号: 90270470

(2) 研究分担者
榎本 勝成 (ENOMOTO KATSUNARI)
富山大学・理工学研究部(理学)・准教授
研究者番号: 50452090

梶田 雅稔 (KAJITA MASATOSHI)
情報通信研究機構・新世代ネットワーク研究センター・主任研究員
研究者番号: 50359030

松島 房和 (MATSUSHIMA FUSAKAZU)
富山大学・理工学研究部(理学)・教授
研究者番号: 40142236

小林 かおり (KOBAYASHI KAORI)
富山大学・理工学研究部(理学)・准教授
研究者番号: 80397166