

令和 5 年 5 月 19 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03805

研究課題名（和文）冷却原子研究の支援のためのイッテルビウム二原子分子の分光研究

研究課題名（英文）Spectroscopy of Yb₂ to support ultracold atom studies

研究代表者

榎本 勝成（Enomoto, Katsunari）

富山大学・学術研究部理学系・准教授

研究者番号：50452090

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：イッテルビウムの二原子分子(Yb₂)について調べるために、高温のYb蒸気を用いたレーザー分光を行い、光会合（基底状態の原子対が光励起によって励起状態の分子になること）とそれに伴う前期解離が起きていることを確認した。蛍光の時間分布などから、前期解離によって解離した原子の状態を決定することができた。この解離プロセスの判明により、従来うまく説明できていなかった極低温Yb原子の光会合分光の線幅の振る舞いが、説明できるようになった。また、バッファーガス冷却法に基づく分子分光法を確立するため、Pb0をサンプルとしたレーザー分光研究も進めた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

イッテルビウム原子(Yb)はレーザー冷却法に基づく量子シミュレータや原子時計などに利用されており、その二原子分子を理解することは、原子の衝突特性などの理解につながる。本研究を通じて、Ybの1S0-1P1遷移近傍の分子状態の解離ダイナミクスについて、特に理解が深まった。また、Pb0の分光研究を通じて、バッファーガス冷却法による分子分光の特徴や優位性などの理解が深まった。

研究成果の概要（英文）：To investigate Yb₂ molecules, we performed laser spectroscopy for hot Yb vapors, and found that photoassociation followed by predissociation occurred. The predissociation process was identified from a time profile of fluorescence, and this process can explain well a behavior of photoassociation linewidth previously observed for a ultracold Yb atoms. To establish a molecular spectroscopy method based on buffer-gas cooling, we also performed laser spectroscopy of Pb0.

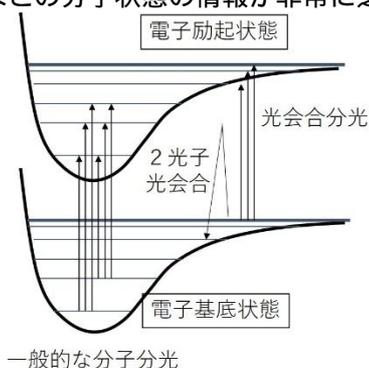
研究分野：原子分子物理学

キーワード：分子分光 イッテルビウム 光会合 前期解離 バッファーガス冷却

1. 研究開始当初の背景

レーザー冷却法による極低温原子気体の研究は、その優れた操作性と可視性などにより、精密測定や量子多体系の研究に用いられ、加速度的に発展している。特に Yb や Sr などのアルカリ土類(様)原子を用いた研究では日本が世界をリードしており、宇宙年齢と比べて1秒も狂わない精度の次世代原子時計や、光定在波(光格子)に捕捉された原子系で固体物性をシミュレートする量子シミュレータへと応用されている。アルカリ土類原子の特長は、時計遷移と呼ばれる非常に線幅の狭い電子遷移を持っていることであり、これが原子時計や凝縮系物性の分光学的調査などの応用を可能にしている。さらには光会合(photoassociation、図1)で得られる二原子分子の状態などの様々な状態も利用して、多様な研究が行われている。

その一方で、特に Yb に関しては、原子間ポテンシャル曲線などの分子状態の情報が非常に乏しい状況である。これは、Yb₂ の電子基底状態の束縛エネルギーが小さく、分子ビームの生成が難しいことや、重くて同位体が多いため振動回転構造が分解しにくいなどの理由で、実験面で敬遠されてきたことと、電子数が多く第一原理計算が困難で、理論的にも難しい系であるためである。実際に、榎本(代表者)らが中心に行ってきた極低温 Yb 原子の光会合分光という、特殊な手法による分光実験だけが行われていて、それが理論計算を牽引しているという珍しい状況にある。光会合分光だけでは解離極限付近の情報しか得られないため、原子衝突の詳細がわからず、深い振動状態(例えば振動基底状態)の分子も利用できないといった面で、極低温 Yb 原子を用いた量子シミュレータ研究の障害になっている。



一般的な分子分光

図1：2原子分子の分光法

2. 研究の目的

本研究では、一般的な分光法(図1)でイッテルビウムの二原子分子(Yb₂)の可視領域の電子遷移分光を行い、原子間ポテンシャルなどの分子状態の特性を調べ、冷却 Yb 原子の研究に有用な知見を提供する。分子線オープンで得られる高温 Yb₂ 分子や、レーザーアブレーション法とヘリウムバッファガス冷却法で得られる低温 Yb₂ 分子を用いる2種類の手法で、パルスレーザー及び連続発振レーザーによる電子遷移分光を行い、電子基底状態及び可視領域の電子励起状態の振動回転準位や遷移強度を調べる。また、第一原理計算による電子状態の計算も進め、実験結果との比較を通じて重原子分子の計算方法の確立に寄与する。これらの実験・理論研究により電子状態の性質や状態間の相互作用を定量的に解明し、極低温 Yb 原子を用いた研究において効率的に利用できる分子状態の提案や、準安定状態原子の非弾性衝突断面積などの理論計算を行う。

3. 研究の方法

Yb は 400 程度に加熱することで原子線が得られ、さらに 100 ほど加熱することで原子に混ざって Yb₂ 分子も得られると期待できる。本研究ではまず、ステンレス製のるつぼに Yb 金属片を入れてシープヒーターで加熱し、直径 1 mm の穴から真空中に Yb 蒸気のビームを噴出させた。蒸気ビームにパルス色素レーザーを照射し、その蛍光を分光器を通して波長分解し、光電子増倍管で検出した(図2(a,b))。

励起レーザーの波長として、395~450 nm、580~640 nm の範囲を調べたところ、原子の ¹S₀-¹P₁ 遷移(399 nm)の付近に、幅の広い連続的な励起スペクトルが観測された(図3)。この励起スペクトルについて集中的に調べ、その起源について、蛍光の時間分布などから同定していった。

その後、るつぼを改造して、希ガスなどの不活性ガスに Yb 蒸気を巻き込ませて、超音速ジェットの要領で、ある程度の冷えた Yb₂ 分子を得ることを試したが、ガスラインに溶融金属が詰まる等のトラブルが多く、あまり良い結果は得られなかった。そのため、図2(c)で示すような、レーザーアブレーション法とヘリウムバッファガス冷却法による低温 Yb₂ 分子の生成を行うため、その装置の立ち上げを進めている。こちらは次年度以降も研究を継続して行っていく。また、ヘリウムバッファガス冷却法によるレーザー分光法の確立のため、別の既存のバッファガス冷却式の分光システムを用いて、PbO 分子の高精度レーザー分光も進めた。

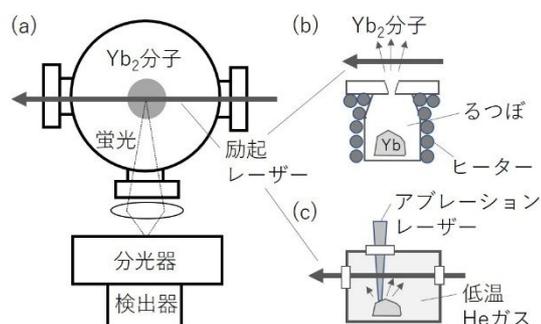


図2：(a)分光装置概略。(b)分子線オープン。(c)バッファガス冷却。

4. 研究成果

(1) 高温 Yb 蒸気の光会合：

図3は Yb 蒸気の励起スペクトルである。鋭い原子の共鳴線 ($^1S_0-^1P_1$ 及び Rydberg 状態への2光子遷移)に加え、高温(760 K)の場合では、 $^1S_0-^1P_1$ 遷移の長波長側に幅広いスペクトル成分があることがわかる。この励起スペクトルは 556 nm (原子の $^1S_0-^3P_1$ 遷移に相当、図4)の蛍光を観測した際のものであり、単なる Yb 原子の $^1S_0-^1P_1$ 遷移励起の裾というのでは説明がつかず、分子の状態が関連している。

鋭い原子の共鳴線と、この幅広いスペクトル成分について、るつぼの温度に対する依存性を調べたところ、幅広い成分の方が温度上昇とともに急激に増加していた。このことに加え、るつぼのノズルからの距離についての依存性から、幅広い成分の強度は観測地点での原子密度の2乗に比例していることがわかり、光会合によって Yb₂ 分子が生成していることがわかった。つまり、 1S_0 状態にある原子対が、パルスレーザー照射で $^1S_0-^1P_1$ 遷移に漸近する $A0_u^+$ の分子状態に遷移し、その後の緩和プロセスによって 3P_1 状態の原子が生成されているのである(図4)。

緩和プロセスについては、蛍光の時間分布から、図5のような前期解離 (pre-dissociation、ポテンシャル交差などにより束縛性の電子状態から解離性の電子状態に移ること)を含むプロセスであることがわかった。各状態からの自然放出レート Γ, κ_2, γ は既知であり、蛍光の時間分布はこれらを用いたレート方程式の解でうまく説明でき、 $A0_u^+$ の分子状態からの前期解離の先行は $^1S_0+^3D_2$ 状態であることが判明した。

このように前期解離プロセスが判明したことで、過去の極低温 Yb 原子の光会合分光で見られていた、共鳴線幅の急激な変化もうまく説明できることがわかった(図6)。本研究より前までは、 $A0_u^+$ 分子状態の前期解離は核間距離が短いところ(図5の点線部)で起こっているという説が有力であったが、その場合、期待される共鳴線幅の増加は、 $^1S_0-^1P_1$ 遷移からの離調 E_v に概ね比例することが予測され、観測されていた振る舞いとは合わなかった。これに対し、本研究で判明した $^1S_0+^3D_2$ 状態への解離は核間距離がかなり長いところ(約 11 Å にあるポテンシャル交差)で起こることになり、この場合は離調に対して図6のように線幅は振動するように変化することが理論的に導かれ、観測された線幅の急激な増大を再現している。

この他、光会合の励起スペクトルを計算し、観測された励起スペクトルを良く再現することができた。高温での実験なので、角運動量子数 J が 300 程度までの部分波が、スペクトルに寄与することになる。また、漏れ出し原子線の熱的な速度分布から、同じ方向に飛んでいく原子対の相対速度の分布を導出して、励起スペクトルを計算する必要がある。

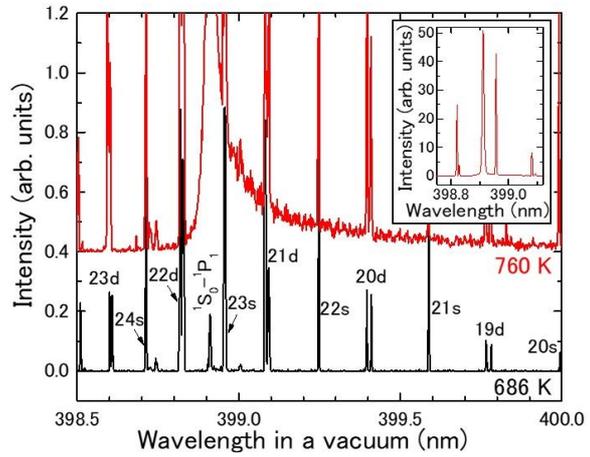


図3：高温 Yb 蒸気の励起スペクトル。

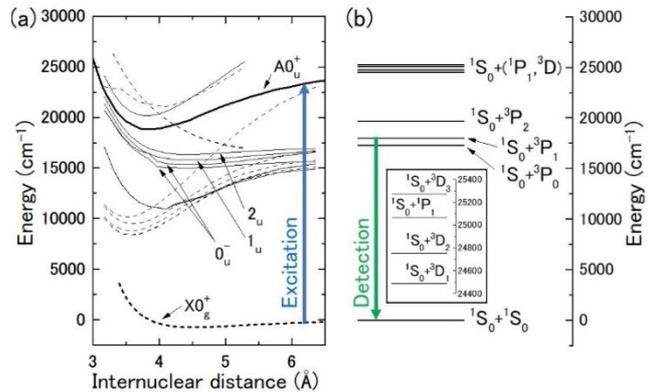


図4：(a) Yb₂ の各電子状態のポテンシャル曲線。(b) Yb 原子のエネルギー準位。

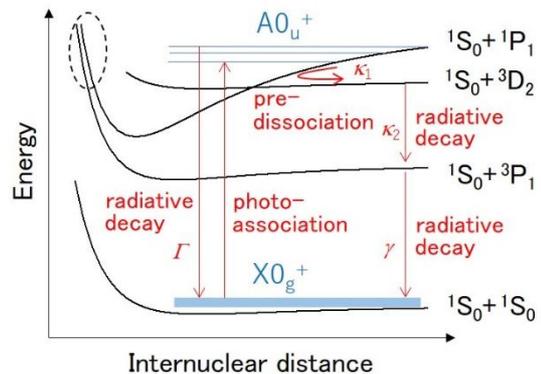


図5：光会合に伴う緩和プロセスの概念図。

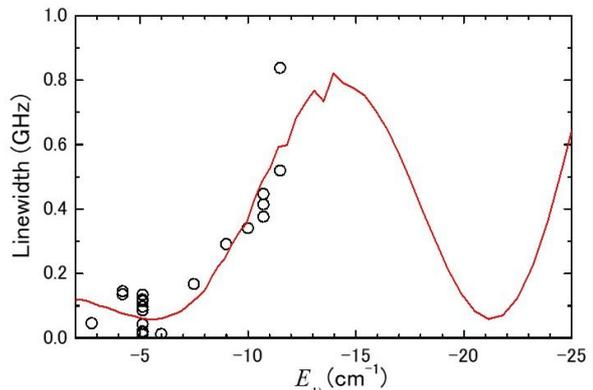


図6：極低温 Yb 原子の光会合の共鳴線幅(黒丸)と、モデルポテンシャルによる計算(赤線)。

(2) 低温 PbO 分子の高精度レーザー分光：
 低温ヘリウムガス中において、パルスレーザー照射による固体 PbO のアブレーションにより PbO 分子を生成し、400-450 nm の範囲で XO^+ 状態から $A0^+$, $C0^+$ 状態への遷移についてレーザー分光を行った。既知の原子の共鳴線によって較正された超低膨張エタロンを周波数参照とすることで、10 MHz 程度の精度で PbO の共鳴周波数を決定した。これを基に、 $A0^+$, $C0^+$ 状態のポテンシャル曲線を精度よく決定することができた (図 7)。

この PbO をサンプルとしたヘリウムバッファガス冷却の実験から得られた一般的知見として、回転緩和は十分速いに対し、振動緩和は遅く、本研究の例では 1 ms 程度もかかる、ということである。図 8 は 77 K のヘリウムガス中において、レーザーアブレーション後の XO^+ 電子基底状態の各振動状態にある PbO 分子の量を表している。分子は拡散によって 2 ms 程度で失われていくが、振動緩和はその時間と同程度であることがわかる。

このことから、低温ヘリウムガス環境を使うことで、回転状態の分布を狭くすることができながら、振動励起状態からの遷移もある程度見ることができることがわかる。このことは、振動・回転間隔の狭い Yb_2 のような重い分子の測定を行っていく上で、非常に有利である。

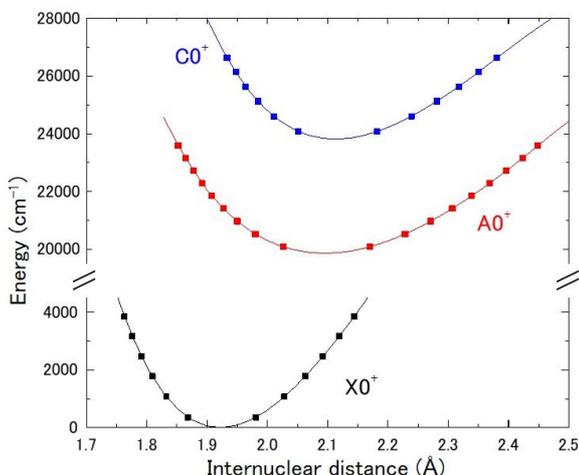


図 7 : PbO のポテンシャル曲線。

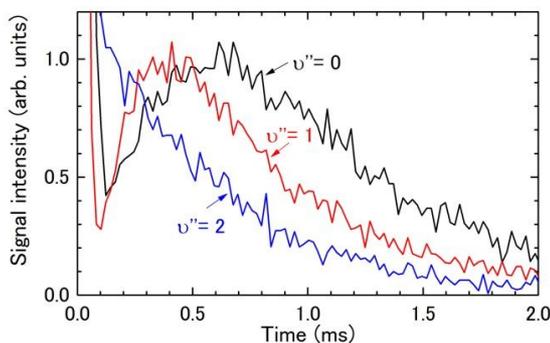


図 8 : 電子基底状態の各振動状態の分布の時間変化。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Katsunari Enomoto, Ryota Takabatake, Takehiro Suzuki, Yosuke Takasu, Yoshiro Takahashi, and Masaaki Baba	4. 巻 104
2. 論文標題 Free-bound excitation and predissociation of ytterbium dimers near the 1S0 - 1P1 atomic transition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 13118
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.104.013118	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katsunari Enomoto, Ai Nakano, Takehiro Suzuki, Kaori Kobayashi, Yuiki Takahashi, Yuki Miyamoto, and Masaaki Baba	4. 巻 390
2. 論文標題 High-resolution spectroscopy of the X0+ A0+, C0+ transitions of Pb0 in 22300-25100 cm-1	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Spectroscopy	6. 最初と最後の頁 111713
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jms.2022.111713	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 榎本勝成
2. 発表標題 バッファースガス冷却とPb0分子の高精度分光
3. 学会等名 冷却分子・精密分光シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石元孝佳
2. 発表標題 気相・吸着分子のH/D同位体効果に関する精密量子化学計算
3. 学会等名 冷却分子・精密分光シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 榎本勝成
2. 発表標題 青色半導体レーザーと超低膨張エタロンを用いた分子分光
3. 学会等名 第2回新方式精密計測による物理・工学的変革を目指す回路技術調査専門委員会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 東條太一, 中野愛, 中野嘉保, 丸橋直生, 丸山浩司, 南大介, 榎本勝成
2. 発表標題 PbOのB1(v' =4)状態の摂動の解析と新たな $\nu = 1$ の状態の測定
3. 学会等名 日本物理学会北陸支部
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 榎本勝成, 高島涼汰, 鈴木雄大, 高須洋介, 高橋義朗, 馬場正昭
2. 発表標題 高温Yb蒸気の光会合による前期解離プロセスの解明
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 中野愛, 松本仁千翔, 草野航, 下地巧真, 小林かおり, 馬場正昭, 榎本勝成
2. 発表標題 PbO分子の402 nm帯の高分解能分光とホットバンドの観測
3. 学会等名 日本物理学会北陸支部
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 草野航, 下地巧真, 中野愛, 松本仁千翔, 小林かおり, 馬場正昭, 榎本勝成
2. 発表標題 光会合によるYb ₂ 分子の生成と前期解離の観測
3. 学会等名 日本物理学会北陸支部
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Enomoto, T. Suzuki, M. Baba
2. 発表標題 High-resolution laser spectroscopy of lead oxide (PbO) in 400-450 nm
3. 学会等名 International Symposium on Molecular Spectroscopy (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鈴木雄大, 高島涼汰, 馬場正昭, 榎本勝成
2. 発表標題 前期解離を用いたYb ₂ 分子のレーザー分光
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Enomoto, T. Suzuki, M. Baba
2. 発表標題 High temperature photoassociation of ytterbium atoms at 399 nm
3. 学会等名 The 5th Asian Workshop on Molecular Spectroscopy (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Ishimoto, H. Sakagami, M. Tachikawa
2. 発表標題 H/D isotope effect of CH ₄ /CD ₄ adsorption on Rh(111) surface using combined plane wave and localized basis sets method
3. 学会等名 The 5th Asian Workshop on Molecular Spectroscopy (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Enomoto, S. Shiraishi, R. Takabatake, T. Suzuki, K. Kobayashi, M. Baba
2. 発表標題 High-Resolution Laser Spectroscopy of Lead Oxide (PbO)
3. 学会等名 International Symposium on Molecular Spectroscopy 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

富山大学理学部物理学科電波物理学研究室 https://www.sci.u-toyama.ac.jp/phys/4ken/
--

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	石元 孝佳 (Ishimoto Takayoshi) (50543435)	広島大学・先進理工系科学研究科(工)・教授 (15401)	

6. 研究組織（つづき）

	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	馬場 正昭 (Baba Masaaki) (80189729)	京都大学・理学研究科・名誉教授 (14301)	

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	California Institute of Technology			