

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 28 日現在

機関番号：63903

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25810014

研究課題名(和文) 極低温イオンペア分子の超高速光会合

研究課題名(英文) Ultrafast photoassociation of ultracold ion-pair molecules

研究代表者

武井 宣幸 (Takei, Nobuyuki)

分子科学研究所・光分子科学研究領域・助教

研究者番号：20531841

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：レーザー冷却された極低温ルビジウム原子集団に対する光会合過程を利用してイオンペア分子ポテンシャル中に励起する分子振動波束のダイナミクスを実時間観測、および制御するための実験装置の開発に成功した。原子集団の密度を上げて光会合効率を向上させるために光双極子トラップを導入し、磁気光学トラップ中のものに比べ密度を2桁増加させることに成功した。原子集団の捕獲・冷却シーケンスと波束励起用ピコ秒パルスレーザーの照射タイミングを完全に同期させる制御システムを開発した。遅延をつけたプローブ用パルスレーザーによるイオン化を使い波束ダイナミクスをイオン信号として検出するための高効率イオン観測装置を構築した。

研究成果の概要(英文)：We have succeeded in preparing the experimental setup for real-time observation and control of wave-packet dynamics excited in the ion-pair molecules which are formed through ultrafast photoassociation of laser-cooled rubidium atoms. In order to improve the efficiency of the photoassociation process, we introduced an optical dipole trap of atoms so that the density of the atomic ensemble was successfully increased by two-orders of magnitude compared to that in the previously-used magneto-optical trap. We developed a timing control system to synchronize the loading and cooling sequence of atoms with the irradiation timing of ps laser pulses which excite the wave-packets. We also developed an ion detection system with high efficiency to observe the wave-packet dynamics through the ionization of the wave-packet using another ps probe pulses.

研究分野：量子光学

キーワード：光会合 量子光学 冷却原子 レーザー冷却 コヒーレント制御

## 1. 研究開始当初の背景

近年、極低温までレーザー冷却された原子気体集団に対する研究が盛んに行われ、基礎物理定数の超精密測定に基づく物理法則の検証、量子コンピュータのスケーリング、新たな物性の探索、化学反応の制御など様々な分野において革新的な進歩をもたらしてきた。分子集団の冷却が達成された場合には、その豊かな自由度から、より一層の発展が期待される。よって、極低温まで冷却された高密度な安定分子気体、あるいは最低基底状態にある分子気体を実現することは、物理分野と化学分野の両方において大きな展望を開くと考えられる。極低温分子を生成するには大きく分けて2つの方法がある。1つは、振動・回転準位の基底状態にある既存の安定分子について、その並進運動を冷却するものであり、1mK 程度まで冷却したという報告がなされている。 $\mu\text{K}$  あるいはそれ以下まで冷却された分子を形成するには、もう1つの方法である冷却原子を会合する手段が有効である。その実現には、レーザー光を用いた光会合あるいはフェッシュバハ共鳴を利用した磁場による会合が精力的に研究されてきた。これらの手法によって生成された分子集団は電子基底状態にはあるものの高い振動エネルギーを持つため、その振動基底状態へと遷移させる必要があり、これまでにその遷移方法について様々な研究が行われてきた。代表的な実験はアメリカ JILA の D. Jin と J. Ye らの研究グループにより行われた。彼女らはフェッシュバハ共鳴によって生成された KRb 分子について、高い振動準位から最低振動準位へと誘導ラマン過程を使った断熱的かつコヒーレントに移行する方法で、大きな位相空間密度をもつ分子の最低基底状態を達成した(K.-K. Ni et al, Science 322, 231 (2008).)。

我々はこれまでに、これらに代わる新たなアプローチとして、光会合過程に対して超高速化学で培われたコヒーレント制御技術を適用し、最低基底状態の分子を生成することを研究してきた。既存の光会合実験の多くは狭帯域の連続波レーザーを用いて行われてきたが、我々は超短光パルスレーザーを使用する。これを冷却原子集団に照射すると、光会合により励起状態に分子が生成される。パルスレーザーの広帯域性から複数の振動準位のコヒーレントな重ね合わせ状態(以降、波束と呼ぶ)が生成され、この波束は励起状態のポテンシャル中を原子核間距離に対して振動する。照射する光パルスを整形することで任意の振動波束を合成することができる。我々のアプローチは、その波束の振動ダイナミクスを利用して、ある核間距離に波束が到達した際に適切なタイミングで別の光パルスを照射することで波束を最低基底状態へとコヒーレントに遷移させるといったものである。これによって、振動波束の形と2

発目の照射パルスのタイミングという2つの観点から、基底状態と励起状態間の遷移確率を制御できると考えた。この考えに基づいて、我々を含め、3つのグループが研究を進めてきた。あとの2つはドイツ Heidelberg 大学の Weidemüller グループとイギリス Oxford 大学の Walmsley グループであるが、まだ励起状態における波束ダイナミクスを観測したという報告はない。

## 2. 研究の目的

既存の連続波レーザーによる光会合実験と我々のようにパルスレーザーを用いた光会合実験に共通の難点の一つが、基底状態と励起状態間の小さなフランクコンドン因子である。我々のコヒーレント制御からのアプローチでは、波束のダイナミクスを利用することでフランクコンドン因子を制御しようと考えたわけである。しかしながら、全ての光会合実験がそうであるように、第一励起状態に光会合する限りにおいて大きなフランクコンドン因子は望めない。それは分子ポテンシャルの形状に由来する。我々が扱うルビジウム(Rb)原子からなる同核二原子分子の場合、基底状態は核間距離を  $R$  とすると長距離においては  $R^{-3}$  で変化する。励起状態は  $R^{-6}$  で変化する。故に、光会合が起きるような長距離において励起状態の波動関数の存在確率が小さく、フランクコンドン因子も小さくなる。他の原子からなる同核分子、あるいは異核分子の場合も  $R^{-3}$  あるいは  $R^{-6}$  の依存性であり、同様にフランクコンドン因子が小さい。そこで本研究では、これを克服するために、 $R^{-1}$  のクーロンポテンシャル依存性をもつ長距離イオンペア分子への光会合を行う。この手段は Ban らにより、Europhys. Lett. 66, 485 (2004).において、オープン中の高温  $\text{Rb}_2$  分子を分光した際に議論されているが、実験はまだ実現されていない。本研究では、前述の超高速コヒーレント制御を利用した方法でこのような長距離イオンペア分子を生成し、さらに基底状態へと遷移させる計画である。

## 3. 研究の方法

本研究で標的とする長距離イオンペア分子は純粋なイオンペア分子 ( $\text{Rb}^+\text{-Rb}^-$ ) ではなく次のような分子を考える。 $\text{Rb}_2$  分子には大きな核間距離の極限において様々な原子準位に漸近するポテンシャルが多数存在するが、それらとイオンペア分子 ( $\text{Rb}^+\text{-Rb}^-$ ) のクーロンポテンシャルが交差する際の avoided crossing により、それらの交差周辺に複数の束縛ポテンシャルが形成される。それらの固有状態はイオンペア分子 ( $\text{Rb}^+\text{-Rb}^-$ ) の特性を反映した長距離分子となる。本研究では、このような分子をイオンペア分子と呼び、パルスレーザーを用いた光会合により、

これを生成することを目指す。

対象は磁気光学トラップ中に捕獲された冷却  $^{87}\text{Rb}$  原子集団である。これに対してまずナノ秒パルスレーザーを用いた光会合およびイオン化を通じ、 $\text{Rb}_2$  分子のイオンペアポテンシャルにおける各振動状態の同定を行う。具体的に本研究で注目するイオンペアポテンシャルは(8) $0_{u^+}$ 状態と(6) $0_{u^+}$ 状態である。これらは、 $\text{Rb}^+\text{-Rb}^-$  (1S)クーロンポテンシャルと通常の  $\text{Rb}_2$  分子のポテンシャルが交差した周辺に形成される。(8) $0_{u^+}$ 状態では束縛ポテンシャルの内側の転回点が 25 ボーア半径程度、(6) $0_{u^+}$ 状態でも 15 ボーア半径程度となり、長距離離れた分子が形成されることになる。本研究ではこれら長距離分子の振動準位を分光することから研究を始める。波長域は(8) $0_{u^+}$ 状態に対しては 418nm 付近、(6) $0_{u^+}$ 状態に対しては 469nm 付近と分かっている。

次に  $\text{Rb}_2$  分子のイオンペアポテンシャルにおける振動波束の形成と制御を行う。前述の振動準位の同定を終えたところで、ピコ秒パルスレーザーの照射による光会合を行い、振動波束を形成する。波束の検出には、別のピコ秒パルスを用いたイオン化を行う。光会合パルスとイオン化パルスの間の遅延時間を変化させることで、振動波束のダイナミクスを観測する。この波束ダイナミクスを理解したところで、最低基底状態へのコヒーレント遷移の実験に移行する。波束がある核間距離に到達した際に適切なタイミングで別の光パルスを照射し、このコヒーレント遷移を実行する。

#### 4. 研究成果

当初計画していたイオンペア分子ポテンシャル中への光会合実験を行うまでには至らなかったが、以下に示すように、その実現に必要な現有実験装置の大幅な改善を行うことができた。特にピコ秒パルスレーザーと同期した高密度の冷却  $\text{Rb}$  原子集団の実現、および高効率のイオン観測装置の構築を行うことができた。これらの大きな改善の成功により、この実験装置を活用することで、今後イオンペア分子への光会合の実現、および振動波束ダイナミクス制御への展開が期待できる。

まず、当初の計画ではナノ秒パルスレーザーを用いてイオンペア分子ポテンシャル中に分子を光会合し、それをイオン化することで励起状態中の分子振動状態を同定する予定であった。この同定のため、あるいは今後の振動波束ダイナミクスの観測のためには分子イオンを検出する観測装置を改善し、より高い効率で分子イオン信号を得る必要が生じたため、その改善と評価を行った。この評価には既に光会合実験に成功していた 5S-5P ポテンシャルに漸近する分子の光会合を使用した。対象となる冷却  $\text{Rb}$  原子は真空

チャンバー内の磁気光学トラップ中に準備した。このトラップ用および光会合・イオン化用のレーザー光のアクセスを確保しつつ、トラップ近傍に多数のイオン電極を配置し生成された分子イオンを高効率で検出するためには、電極の構造、および電極全体が印加電圧に対して示す時間応答を見直して再設計する必要が生じ、これを行った。併せてイオン信号のデータ集録用に電圧分解能が 12 ビットの高分解能デジタルオシロスコープを新たに導入し、より微弱な構造のイオン信号を測ることができるようになった。このような高効率のイオン観測装置を用いることで、生成した分子の信号を捉えることができるようになることを期待できる。

次に、光会合過程における分子の生成効率を上げるため、分子の元になる冷却  $\text{Rb}$  原子集団の密度を向上させることに成功した。当初は磁気光学トラップ中に準備した原子集団を使用していたが、新たに光双極子トラップを導入することで冷却  $\text{Rb}$  原子集団の密度を 2 桁近く増加させることができた。これによって分子の生成効率が 4 桁近く向上すると期待できる。また、このような高密度の原子集団を準備するにあたり、蒸発冷却を含めた原子の捕獲・冷却シーケンスに数秒必要となった。一方、ピコ秒パルスレーザーの繰り返し周波数は 1kHz である。これら時間スケールの異なる 2 つのシステムを完全に同期させるため、光パルスの切り出しを含めた独自のタイミング制御システムを構築した。この制御技術により、蒸発冷却直後に密度が最大になった適切なタイミングでピコ秒パルスを一発（あるいは一対）だけ原子集団に照射することが可能となった。このようにして準備した高密度  $\text{Rb}$  原子集団を利用することで、評価に用いた 5S-5P ポテンシャル中に光会合過程を通じて冷却  $\text{Rb}_2$  分子を安定して生成できるようになった。

本研究では超高速コヒーレント制御技術を利用することで、長距離イオンペア分子への光会合過程を介した最低基底状態分子の生成を目指した。しかしながら、長距離イオンペア分子 ( $\text{Rb}^+\text{-Rb}^-$ ) それ自体も非常に興味深い研究対象である。なぜならこの分子は、リュードベリ状態にある  $\text{Rb}$  原子の最外殻電子をアニオンに置き換えたものと見做すことができるからである。そのため、この分子はしばしば heavy Rydberg states とも呼ばれ、非常に長い長距離振動や特大の双極子モーメントなど特異な性質を示す。このように、長距離イオンペア分子 ( $\text{Rb}^+\text{-Rb}^-$ ) の研究は、リュードベリ原子の物理という観点からも重要な意味を持つと考えている。

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0件)

〔学会発表〕(計1件)

Christian Sommer, Nobuyuki Takei, Haruka Goto, Hisashi Chiba, Christiane P. Koch, and Kenji Ohmori

“Enhanced pump-probe detection of photoassociated ultracold Rubidium molecules via strong spin-orbit interaction”

A Peter Wall Colloquium Abroad and The 73rd Okazaki Conference on “Coherent and Incoherent Wave Packet Dynamics”

2013年11月1日

Okazaki Conference Center, Okazaki, Aichi, Japan

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

取得状況(計0件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

[http://groups.ims.ac.jp/organization/ohmori\\_g/index.html](http://groups.ims.ac.jp/organization/ohmori_g/index.html)

6. 研究組織

(1)研究代表者

武井 宣幸 (Takei, Nobuyuki)

分子科学研究所・光分子科学研究領域・助教  
研究者番号: 20531841

(2)研究分担者

(なし)

(3)連携研究者

(なし)