

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 19 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26287090

研究課題名(和文) 極低温下での分子生成過程に現れる量子統計効果の研究

研究課題名(英文) Quantum statistical effects on a molecular formation in an ultracold temperature regime

研究代表者

向山 敬 (Mukaiyama, Takashi)

電気通信大学・レーザー新世代研究センター・准教授

研究者番号：70376490

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：我々は中性原子の $6\text{Li}$ と $40\text{Ca}^+$ の混合系において、1ミリケルビンから1ケルビンの温度領域における非弾性散乱の観測に成功し、生成された粒子の質量分析から電荷交換反応であることを突き止めた。本研究では $6\text{Li}$ を基底状態に、 $40\text{Ca}^+$ を基底状態または様々な励起状態に用意することで電荷交換反応断面積の内部状態依存性についても詳細に調べた。さらにイオンのマイクロモーションを積極的に利用することでイオンの運動エネルギーの制御を可能にし、その手法を用いて電荷交換反応の反応エネルギー依存性を詳細に調べた。本研究は極低温下におけるイオンと原子の間の化学反応過程の系統的な理解への重要なステップとなる成果である。

研究成果の概要(英文)：Charge-exchange collisions between ultracold  $6\text{Li}$  atoms and  $40\text{Ca}^+$  ions are observed in the temperature range of 1mK to 1K. The reaction product of the charge-exchange collision is identified via mass spectrometry. The cross sections of the charge-exchange collisions between  $6\text{Li}$  atoms in the ground state and  $40\text{Ca}^+$  ions in the ground and metastable excited states are determined. Deliberately excited ion micromotion is used to control collision energy of atoms and ions. The energy dependence of the charge-exchange collision cross section obeys the Langevin model in the temperature range of the current experiment, and the measured magnitude of the cross section is correlated to the internal state of the  $40\text{Ca}^+$  ions. Revealing the relationship between the charge-exchange collision cross sections and the interaction potentials is an important step toward the realization of the full quantum control of the chemical reactions at an ultralow-temperature regime.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：レーザー冷却 イオントラップ 原子気体 極低温化学反応

### 1. 研究開始当初の背景

通常、化学反応を起こす際に温度を上げれば反応速度が上げられることを我々は経験的に知っている。「温度を上げると反応速度が上がる」という法則はアレニウス則と呼ばれ、化学反応過程が系の温度と活性化エネルギーの比較から反応速度が議論できるという古典的な状況においてよく成り立つ。しかし、粒子の波動性が利いてくる低温領域では量子トンネリングの効果があり、必ずしも活性化エネルギーの壁を越えずとも、エネルギー障壁をトンネルすることで化学反応が進むと考えられる。実際、近年になり1ケルビンから数十ミリケルビン以下程度の温度領域については、化学反応レートが低温になるにつれて上昇するというアレニウス則に従わない振る舞いが観測され始めており、量子トンネリングによる化学反応速度が変化であると結論付けられている。ではミリケルビンよりもさらに低温の温度領域はどうであろうか。マイクロケルビンといった温度領域は、冷却原子気体系において量子縮退の実現や量子凝縮現象にともなう強相関物理現象が盛んに研究されている温度領域であり、レーザー冷却技術を発展させてきた我々にとってまさに得意な温度領域であるが、この温度領域における化学反応は未開拓となっている。

### 2. 研究の目的

本研究ではマイクロケルビン以下の極低温の温度領域での化学反応過程として、極低温に冷却された中性原子気体とイオンの混合系における分子生成過程を研究対象とする。イオンと中性原子の間の静電相互作用は距離の4乗に反比例する( $\sim r^{-4}$ )という距離依存性を持ち、van der Waals力( $\sim r^{-6}$ )よりも長距離力であり、束縛状態の大きさは100nmという大きなサイズスケールになる。これはトラップ中の原子気体の平均原子間距離と同じオーダーである。そのためイオンを中性原子気体に囲まれた環境で保持すると、中性原子間の衝突によって片方の中性原子がイオンによる束縛状態に落ち、もう片方の原子が束縛エネルギーをもらってトラップから飛び出すという過程が実験的に観測可能なレートで起こることが考えられる。このイオンに原子が束縛された分子状態は歴史的には超流動ヘリウムの系でイオンを注入することで生成されたスノーボール分子と呼ばれるものに対応するものであり、またその状態が冷却原子系で定量的に実現可能であるということは理論的に示されている。化学式でこの反応過程を本研究で用いるリチウム原子とカルシウムイオンの場合で表現すると、 $n$ 個のリチウム原子が束縛された分子イオンにリチウム原子がさらに束縛される過程は  $(\text{Li}_n\text{Ca})^+ + \text{Li} + \text{Li} \rightarrow (\text{Li}_{n+1}\text{Ca})^+ + \text{Li}$  と表される。極低温の温度領域では、このリ

チウム原子が束縛状態に落ちる過程がすでに束縛されている原子の存在の影響を受けると考え、これが量子統計効果である。中性原子としてボース粒子を選ぶと、すでに束縛されている  $n$  個の原子の存在により新たに束縛される原子が同じ状態に入るレートが  $n$  倍になる bosonic stimulation (ボース統計性による誘導効果) が見られる可能性があり、これは分子生成過程という化学反応の中に極低温でしか観測することができない量子統計効果が表れたことを意味する。また、中性原子としてフェルミ粒子を選ぶと、フェルミ粒子の場合にはパウリの排他原理により同一準位に2つ以上の原子が入れないことにより分子生成の速度はボース粒子と比べて格段に遅くなると考えられる。また束縛される原子の数もボース粒子の場合は制限がないのに対して、フェルミ粒子の場合には1つの束縛準位に1つずつしか原子が入ることができないために束縛できる原子数にも限界が見られるはずである。本研究では中性原子にリチウムという原子種を用いることで、レーザーの周波数を変えるだけでボース粒子である  ${}^7\text{Li}$  とフェルミ粒子である  ${}^6\text{Li}$  を実験の際に選択して利用することができる。そのため中性原子の量子統計性による分子生成過程の違いを比較することができる。またこの分子生成過程は原子間衝突によるものであり、中性原子は原子間の弾性散乱レートを磁場によって実験者が自在に制御できるというフェッシュバハ共鳴を利用することで分子生成レート自体を実験者がコントロールすることも可能であると考えられる。本研究で提案するマイクロケルビン以下の極低温のイオンと中性原子の生成と多原子分子の生成法は、分子の成長過程に量子統計性がどのように影響を与えるかを詳細に研究することが可能となる手法であり、現在の原子物理と量子化学の融合した研究を加速するものとなることが期待できる。

### 3. 研究の方法

本研究では中性原子とイオンのトラップを一つの真空チャンバーの中の別々の位置に配置し、冷却された中性原子を光ピンセットによって捕獲後にトラップ光の焦点を移動させることで原子集団をイオントラップの位置に輸送した。トラップ領域における装置の概略図を図1に示す。

まず中性原子については、研究開始当初は磁気光学トラップから光双極子トラップ(レーザー光の焦点に原子を捕獲するトラップ)に移行する効率が1%程度と低いために、最終的な冷却方法である蒸発冷却を行うことで原子の温度を下げて量子縮退近傍に到達するのがやっとで、それ以上の極低温領域に到達することが難しかった。移行効率が低い理由は、限られたレーザー光強度で十分な光双極子トラップのトラップ深さを実現するためにはレーザー光を小さく絞る必要が

あるが（スポットサイズ 30 ミクロン程度）、一方で磁気光学トラップ中の原子集団の大きさは 1 ミリ程度まで膨らんでおり、小さなビームでは磁気光学トラップ中の原子のほんの一部しか捕獲できないからである。そこで、磁気光学トラップから光双極子トラップに移行する際に、一度共振器によって光強度を増強させた光トラップを実現し、この光双極子トラップによって原子を捕獲することで磁気光学トラップ中の原子を効率よく捕獲する。共振器トラップではビームサイズ 300 ミクロン程度が実現でき、光強度も共振器による増強効果を利用することで実効的に 100 倍程度大きな光強度を持つレーザーを用意したのと同程度のトラップ深さを実現することができる。そして共振器を用いた光トラップの後には通常の光双極子トラップに移行するという方法を採用する。この手法は我々のグループの中性原子トラップの実験ですでに採用しており、全く同じ技術をイオン原子混合系を生成している装置にも導入して大幅な原子数の増大を目指す。これにより深い量子縮退の原子気体を生成する。ここで用いているレーザー光のみのトラップ手法は、冷却原子の実験で広く用いられている磁場トラップによる手法と比較すると必ずしも原子の捕獲効率は高くないが、磁場トラップでは磁場強度が強いほどエネルギーが高くなるような準位の原子しかトラップすることができない。その制約のために所望の原子準位の原子を必ずしも直接用意することが容易でない可能性がある。今回採用するレーザーのみによるトラップを用いた手

法は原子準位の選択は比較的自由度が高く、現在用いているフェルミ原子  $6\text{Li}$  だけでなくその後の研究で中性原子としてボース原子  $7\text{Li}$  をトラップする際にも比較的容易に原子種の切り替えを行うことができる。

一方イオントラップの方は通常のドップラー冷却の手法により 1 ミリケルビンというイオン温度を実現し、さらにその後サイドバンド冷却法と呼ばれる冷却法を採用してさらなる低温化を目指して研究を進めた。サイドバンド冷却とは、イオンが冷却光を吸収する際に調和ポテンシャル中の離散化された運動状態（振動状態）を一つ下り、光を放出する際には運動状態を変えないように実験条件を設定することで、イオンが光の吸収放出を繰り返しながら振動基底状態まで運動が冷却されていくという方法である。この手法は冷却に用いる遷移の自然幅が、調和ポテンシャルの振動状態のエネルギー間隔と光の反跳のエネルギーのどちらよりも十分小さいことが実験条件として要求され、 $^{40}\text{Ca}^+$  の場合には四重極遷移である  $2S_{1/2}-2D_{5/2}$  の遷移（遷移波長は 729nm、自然幅は 0.2Hz）を使用することで実現できる。この遷移を用いるには極めて安定なレーザーを使用する必要があり、このレーザーに関しては熱膨張係数の極めて小さい ULE（Ultra-low expansion）ガラスで作られる共振器に周波数安定化することによってレーザー線幅の狭窄化と周波数の長期安定度の確保を行った。さらに、イオンの温度を極限まで下げるためには浮遊電場の補正も重要になってくる。特にイオントラップ用の電極を保持している絶縁体部などが帯電すると余計な電場が発生し、イオンの位置がわずかにずれる。このずれが RF 電場による加熱効果を増大させることがよく知られている。我々はイオンの蛍光を観測しながらこの浮遊電場の補正を高い精度で行った。

#### 4. 研究成果

平成 26 年度は (1) 中性原子の原子数向上、(2) カルシウムイオンの冷却効率の向上、(3) 原子イオン間の非弾性散乱の観測、の 3 つの成果があった。(1) について、これまで磁気光学トラップから光双極子トラップに移行する効率が 1% 程度と低いために、最終的な冷却方法である蒸発冷却を行うことで原子の温度を下げて量子縮退近傍に到達するのがやっとで、それ以上の極低温領域に到達することが難しかった。我々は共振器によって光強度を増強させた光トラップを実現し、その共振器内の光強度の安定化と増大を行うことでトラップ原子数の増大に成功した。(2) については、これまでイオンのレーザー冷却効率を制限していたのがイオンをトラップするための振動電場によるイオンの加熱であった。振動電場による加熱があるとイオンの冷却光の蛍光強度が振動電場に同期して増減することを利用し、この蛍光強度の

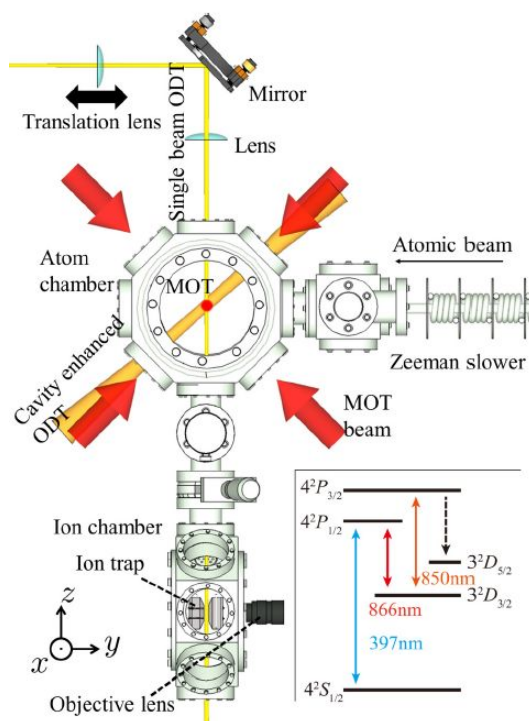


図 1 : 装置の概略図

増減をできるだけ小さくなるように補正電場を調整することで高い精度で浮遊電場の補正を行った。これによりイオン温度をレーザー冷却限界の1ミリケルビンまで安定的に冷却することができるようになった。(3)について、上記の改善を行った結果、イオンが安定的に1ミリケルビン程度の温度を実現できるようになり、リチウムの中性原子と混合した際に起こる非弾性散乱をミリケルビンの温度領域で観測することができるようになった。非弾性散乱が起こると、カルシウムイオンの蛍光が消失し、蛍光を飛ばさないイオンが観測される。平成26年度はこの非弾性散乱がリチウム原子からカルシウムイオンへの電荷の移動過程であることが突き止められた。図2に実験結果を示す。図2(a)(b)は電荷交換反応前後のイオンの蛍光画像である。電荷交換反応によりリチウム原子からカルシウムイオンに電荷が移ったことによりカルシウムイオンからの蛍光が消失したことがわかる。図2(c)はカルシウムイオンのエネルギー準位図、図2(d)はイオンの蛍光消失確率と保持時間の関係をプロットしたものを示す。イオンを基底状態に用意すると電荷交換反応は起きず、イオンからの蛍光の消失は起こらない(図2(d)の黒のデータ)。一方でカルシウムイオンを準安定励起状態に用意するとあるレートで傾向の消失が起こることがわかる。このデータから電荷反応の反応速度を定量的に決定することに成功し、非弾性散乱係数を決定した。電荷交換過程は化学反応の素過程の一つであり、本研究の最終目的である極低温での化学反応過程の観測の第一歩として重要な成果である。

平成27年度はそれまでに観測に成功していた原子イオン間の電荷交換衝突過程について、衝突エネルギー依存性の詳細な検証を行った。それまではイオンの持つ運動エ

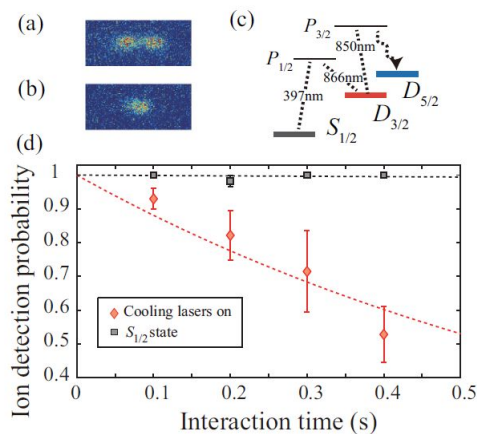


図2 電荷交換反応前(a)と後(b)のイオンの蛍光画像。(c)イオンのエネルギー準位図。(d)イオンの蛍光消失の確率と保持時間の関係。

ルギーとして1ミリケルビンという条件下での電荷交換衝突のみの観測を行っていたが、平成27年度にはイオン原子間の衝突エネルギーを1ミリケルビンから10ケルビンという4桁にわたる衝突エネルギーの領域において電荷交換衝突断面積の測定を行うことができた。衝突エネルギーの制御を行う際にはトラップ中のイオンに一樣電場を印加し、イオンの位置を精密に制御することでRF電場による加熱現象を誘起させるという手法を用いた。その際にイオンの運動エネルギーが蛍光スペクトルの変化をもたらす、スペクトル形状から高い精度で運動エネルギーを決定するという手法を開発することで、4桁という広いエネルギー領域にわたる測定を可能にした。この測定により上記のエネルギー領域で電荷交換衝突が古典的な衝突理論で予言できるエネルギー依存性を示していること、さらに原子イオン間の距離が非常に近い距離まで近づく衝突をした際

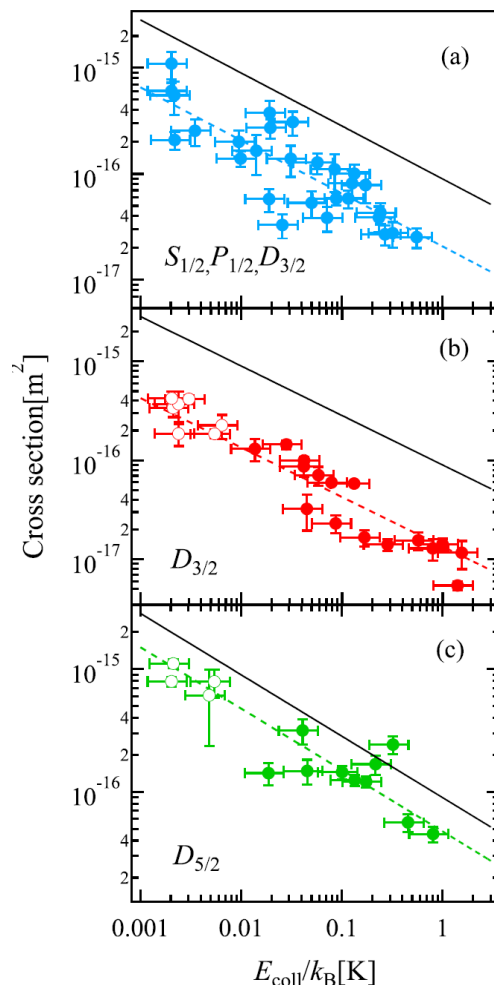


図3 電荷交換反応の反応断面積の衝突エネルギー依存性。イオンを基底状態(S状態)と励起状態(P,D状態)の混合状態に用意したとき(a)、イオンを励起状態のD<sub>3/2</sub>に用意したとき(b)、イオンを励起状態のD<sub>5/2</sub>に用意したとき(c)、の結果を表す。



にどのくらいの割合で電荷交換衝突と弾性衝突が起こるかという比率を実験的に決定することに成功した。今回測定した電荷交換衝突断面積の情報は我々が用いているカルシウムイオンとリチウム原子間の相互作用ポテンシャルを決定する際の基礎データとなるものであり、本研究の最終目的である極低温での化学反応過程の観測のターゲットである分子イオン生成を実現するためにも重要な基礎データを与える観測結果である。平成28年度はそれまでに観測に成功していた原子イオン間の電荷交換衝突過程について、衝突エネルギー依存性の詳細な検証を行った。それまではイオンの持つ運動エネルギーとして1ミリケルビンという条件下での電荷交換衝突のみの観測を行っていたが、

平成28年度にはイオン原子間の衝突エネルギーを1ミリケルビン以下の領域に拡張して実験を進めた。特に衝突エネルギーの制御を行う際にはトラップ中のイオンに一樣電場を印加し、イオンの位置を精密に制御することでRF電場による加熱現象を誘起させるという手法を用いた。その際にイオンの運動エネルギーが蛍光スペクトルの変化をもたらし、スペクトル形状から高い精度で運動エネルギーを決定するという手法を開発した。この測定により電荷交換衝突が古典的な衝突理論で予言できるエネルギー依存性を示しており、さらに散乱断面積がイオンの内部状態に強く依存すること、そして非弾性散乱レートとして原子イオン間の距離が非常に近い距離まで近づく衝突をした際にどのくらいの割合で電荷交換衝突と弾性衝突が起こるかという比率を実験的に決定した(図3)。さらにその非弾性散乱断面積のイオン内部状態依存性を理解するために理論研究者との共同研究を開始した。実際理論グループの計算結果と実験による測定結果を突き合わせることで、非弾性散乱がどのエネルギー準位を経由して起こっているかを突き止めることができ、さらに散乱断面積の大きさについても定性的に理解することができるようになった。

また、衝突エネルギーのさらなる低温化についても重要な進展があった。我々は通常のレーザー冷却により1ミリケルビン程度までイオンを冷却した後、サイドバンド冷却により更なる低温化を行った。サイドバンド冷却はイオンを小さな領域に閉じ込めた上でさらに狭線幅のレーザーを用いて冷却をすることになる。今年度は強い閉じ込めを実現するためのトラップ装置の設計と開発を行い、同時に狭線幅の遷移の励起のためのレーザーの準備を行った。トラップ装置の改良により強いイオンの閉じ込めを実現し、狭線幅のレーザーを用いてサイドバンド冷却をすることに成功した。今回用いるサイドバンド冷却法における冷却効率、様々な実験条件(予備冷却における到達温度、イオンの閉じ込め強さ、冷却光のパルス照射パターンな

ど)に依存しており、個々の実験パラメータを変化させながらイオンの最終到達温度の測定を繰り返すことで最適化を行い、25マイクロケルビンという温度領域(ほぼ振動基底状態)へとイオンを冷却することができた。

さらに今年度は単一イオンと原子気体とを弾性散乱により衝突させたときの振る舞いについて詳細に調べた。比較的温度の高いイオンと温度の低い中性原子が衝突すると熱交換が起こり、イオンの温度を下げるができる可能性がある。これは共同冷却と呼ばれる冷却手法であり、レーザーを用いずにイオンを冷却する手法として注目されている技術である。我々は今年度の研究によりイオンの温度が中性原子と混合させると下がること、さらに中性原子の原子密度が高いほどその低温化が顕著であることを実験的に観測することに成功した。これはイオンの共同冷却を実現するうえでの極めて重要なステップである。

## 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4件)

- (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”, *Physical Review A* 95, 032709 (2017).  
査読有
- (2) M. Waseem, Z. Zhang, J. Yoshida, K. Hattori, T. Saito, T. Mukaiyama, “Creation of p-wave Feshbach molecules in the selected angular momentum states using an optical lattice”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 49, 204001 (2016).  
査読有
- (3) Y. Miake, T. Mukaiyama, K. O'Hara and S. Gensemer, “A self-injected, diode-pumped, solid-state ring laser for laser cooling of Li atoms”, *Review of Scientific Instruments* 86, 043113 (2015).  
査読有
- (4) S. Haze, R. Saito, M. Fujinaga, and T. Mukaiyama, “Charge exchange collisions

between ultracold fermionic lithium atoms and calcium ions”, Physical Review A 91, 032709 (2015). 査読有

〔学会発表〕(計 29 件)

- (1) 向山敬 “ 極低温原子・イオン系で探求する凝縮系物理と低温衝突過程 ”, 原子衝突学会セミナー, 2017 年 3 月 27 日, 日本大学(東京)【招待講演】

その他 28 件

〔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：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

向山 敬 (MUKAIYAMA TAKASHI)

電気通信大学・レーザー新世代研究センター・准教授

研究者番号：70376490