

学位論文

準安定ヘリウム原子のレーザー冷却と
冷却原子の極低温イオン化衝突

熊倉 光孝

博士（理学）

総合研究大学院大学
数物科学研究科
構造分子科学専攻

平成11年度
(1999)

目 次

第 1 章	序論	1
§ 1. 1	He 原子のレーザー冷却・トラップ	1
1. 1. 1	特徴と意義	1
1. 1. 2	背景と現状	5
§ 1. 2	準安定 He 原子の極低温イオン化衝突	9
1. 2. 1	極低温原子衝突	10
1. 2. 2	準安定 He 原子の極低温イオン化衝突	13
§ 1. 3	本研究の目的	17
第 2 章	準安定 He 原子のレーザー冷却・トラップ	19
§ 2. 1	冷却・トラップの概要	19
§ 2. 2	実験と結果	26
2. 2. 1	レーザーシステム	26
2. 2. 2	準安定 He 原子線	26
2. 2. 3	レーザー減速	34
2. 2. 4	磁気光学トラップ (MOT)	35
§ 2. 3	考察	39
第 3 章	準安定 He 原子の極低温イオン化衝突	41
	— 概説および実験 —	
§ 3. 1	トラップ中での原子衝突	41
§ 3. 2	イオン化速度定数の測定	46
3. 2. 1	蛍光計測	46
3. 2. 2	イオン計測	51
§ 3. 3	測定結果に関する考察	54
第 4 章	準安定 He 原子の極低温イオン化衝突	59
	— 理論計算 —	
§ 4. 1	二体イオン化衝突の速度定数	59

§ 4. 2	極低温 $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突における イオン化速度定数の理論計算	61
4. 2. 1	極低温 $^4\text{He}(2s^3S_1) + ^4\text{He}(2s^3S_1)$ イオン化衝突 についての理論的考察	62
4. 2. 2	極低温 $^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + ^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ イオン化衝突についての理論的考察	67
4. 2. 3	極低温 $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ イオン化衝突速度定数 の計算	72
4. 2. 4	考察	76
§ 4. 3	トラップレーザー照射下での $\text{He} + \text{He}$ 衝突イオン化速度定数 の理論計算	81
4. 3. 1	トラップレーザー照射下での極低温 $\text{He} + \text{He}$ 衝突	81
4. 3. 2	$\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2p^3P_2)$ 衝突のイオン化速度定数の 理論計算	82
4. 3. 3	イオン化速度のレーザーによる増大効果	91
4. 3. 4	まとめ	92
第 5 章	総括	95
	参考文献	99
	謝辞	107

第 1 章

序論

本研究では、ヘリウム原子の量子統計性の異なる 2 つの同位体 ^4He と ^3He についてレーザー冷却・トラップを実現すると共に、得られた ^4He と ^3He の極低温原子気体中でのイオン化衝突を観測し、イオン化速度定数に於ける同位体差について研究を行った。ここでは、この He 原子のレーザー冷却の特徴と意義、そして冷却 He 原子の極低温イオン化衝突について説明する。

§ 1. 1 He 原子のレーザー冷却・トラップ

レーザーを用いた中性原子の冷却技術は、現在までに大きな進展を遂げ[1-5]、極低温原子衝突[6-9]や原子干渉計[10, 11]、極低温原子気体での Bose-Einstein 凝縮[12-16]、原子レーザーの実現[17-19]といった様々な新しい分野の研究を可能にしてきた。このレーザー冷却法は、より広範囲の原子への応用やより広い分野での活用など更なる発展が期待され、現在でも活発に応用研究が進められている。ここでは、本研究で行った He 原子のレーザー冷却の特徴と意義、そして現状について述べる。

1. 1. 1 特徴と意義

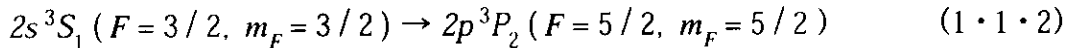
レーザー冷却法が 1975 年に提案された後[20, 21]、1979 年に Na 原子ビームの 1 次元的な減速[22, 23]が、更に 1985 年に同じく Na 原子で 3 次元的な冷却[24]が実現され、レーザー冷却により他の方法では達成困難な mK 以下の極低温にまで原子を冷却することが可能となった。このレーザー冷却法は、現在までに様々なアルカリ金属原子[2, 25-27]、アルカリ土類金属原子[28]、希ガス原子[29-31]に適用されてきたが、中でもレーザー冷却された極低温の He 原子は以下に述べるような興味深い特徴を持っている

ことから、応用実験に向けてより多くのHe原子をより高密度かつ低温で冷却・トラップすることが現在でも強く求められており、活発に研究が進められている[32-47]。

He原子には量子統計性の異なる2つの安定同位体 ^3He と ^4He があるが(^4He 原子は核スピンの0のボゾン、 ^3He 原子が核スピンの1/2のフェルミオン)、量子統計性の違いに加えて、 ^3He 原子においては超微細構造が存在するためにエネルギー準位構造も2つの同位体の間で異なっている。しかしながら、これら2つの同位体原子とも他の希ガス原子[29-31]と同様に、準安定励起状態($2s^3S_1$)においてレーザー冷却可能な原子である。すなわち、 ^4He 原子では、波長1083 nmの近赤外遷移



を、また ^3He 原子では、 ^4He 原子の場合と同等で波長もほぼ等しい遷移である



を利用して、レーザー冷却を行うことができる(以下、これらの遷移を「冷却遷移」と呼ぶ)(図1-1-1)。

これらの遷移の下準位である三重項準安定状態 $2s^3S_1$ は、基底状態への自然放出寿命が非常に長い(約7900秒)ため、光学遷移に関しては基底状態と同様に扱うことができる。しかしながら、この準安定状態 $2s^3S_1$ のHe原子(以下、 He^* 原子と記す)は基底状態に対して約19.8 eVという大きな励起エネルギーを持つため、トラップされた He^* 原子同士の極低温衝突により Penning イオン化過程



や結合性イオン化過程



が引き起こされる。このHeの衝突イオン化過程は常温でこれまでに詳しく研究されており[48]、衝突イオン化はほとんど(～93%) Penning イオン化過程によって引き起こされることや、100%に近い効率(～98%)でイオン化が起こることなどが知られている。したがって、Heの極低温イオン化衝突は、常温における衝突との比較の意味からも興味深い研究対象である。

極低温のHe原子には、この他にも多くの興味深い特徴があるが、その一つはHe原

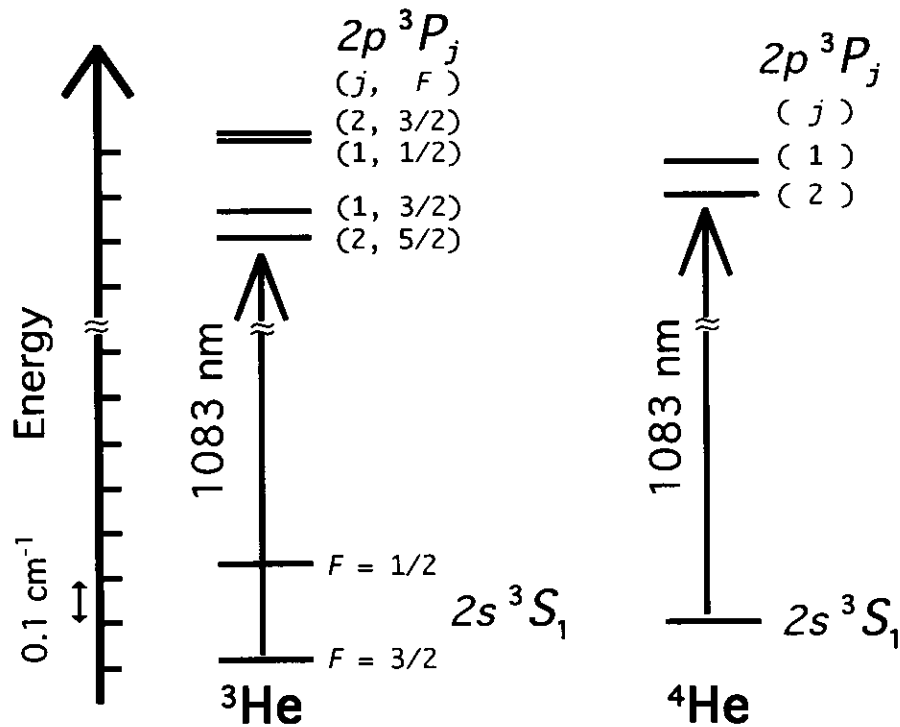


図 1-1-1 ^3He 、 ^4He 原子のレーザー冷却に用いられる光学遷移

子の質量が軽いことに起因するものである。たとえば、同一温度や同一速度で比較すると、水素原子以外の他の原子と比べて、より長い de Broglie 波長を実現できる。また、レーザー冷却によって到達可能と考えられる最低温度としては反跳限界温度（冷却遷移に共鳴する光エネルギーによって決まる温度）があるが、この反跳限界温度での原子の de Broglie 波長は冷却遷移の波長と同程度になるため、この波長が比較的長い He 原子では、他の原子に比べてより長い de Broglie 波長が実現できる可能性がある。この反跳限界温度よりも更に低い温度にまで冷却することは蒸発冷却法[49]などにより可能であるが、この方法では冷却時の原子数の損失も多いので、純粋にレーザーのみを用いた冷却で長い de Broglie 波長が得られることは応用上重要である。より長い de Broglie 波長が得られることは、将来、原子の波動性を利用した実験などでも重要な利点になると考えられる。

また、先に述べたように He では量子統計性の異なる同位体 ^4He と ^3He がレーザー冷却・トラップできるので、これらの極低温原子気体を用いて、原子衝突や原子の集団運動における量子統計性の違いによる効果が研究可能である。このような極低温での量子統計性の効果に関する研究は、これまで液体 He などの量子液体や固体水素などの量子固体について行われて来ている。しかし、レーザー冷却によって得られるような極低温原子気体では、それらに比べて原子間相互作用が小さいために、純粋に量子統計性による影響を観測できることが期待されるため、量子液体、量子固体との比較の上からも興味深い。しかしながら量子統計性の異なるいくつかの同位体がレーザー冷却されている原子は Li[26, 50]、Ne[51, 52]、Kr[53]、Xe[31, 54]、Ca[55]、Sr[55]などに未だ限られており、これらよりもっと質量が小さく単純な内部構造を持った He の同位体原子は、実験、理論の両面から、原子の量子統計性に関する研究に重要な役割を果たすことが期待される。

また、ボゾンである $^4\text{He}^*$ 原子は、他の希ガス原子の場合と異なり[53, 54]、スピン偏極させた極低温気体に於いて Bose-Einstein 凝縮が期待される原子でもある[56, 57]。このような極低温原子気体に於ける Bose-Einstein 凝縮は、現在までに Rb[12]、Na[13]、Li[14, 58]、H[59] で実現されているが、スピン偏極 $^4\text{He}^*$ 原子でも、100 Å 程度の正の長い散乱長が予想されているため[41] Bose-Einstein 凝縮実現の可能性は高く、その凝縮体そのものの研究や凝縮過程の研究などに興味を持たれる。

この他にも、レーザー冷却される準安定 He^* 原子の内部エネルギーは他の原子に比べて最も高く (19.8 eV)、基底状態の He 原子以外の全ての中性原子・分子をイオン化可能であるという特徴もある。この高い内部エネルギーを持った準安定原子は、極低温にまで冷却することにより光学的に運動を制御することも可能で、リソグラフィへの応用など工学的にも重要であると考えられる[60]。

極低温 He^* 原子気体にはこのような多くの特徴・利点があり、今後更に研究が進められると予想される原子の波動性や量子統計性などの量子力学的性質の基礎的研究やその応用に将来大きな役割を果たすと期待されるが、本研究で行ったこの He^* 原子のレーザー冷却・トラップはこうした将来の研究での要素技術として重要な成果であると考えられる。

1. 1. 2 背景と現状

He 原子のレーザー冷却・トラップは、これまでにいくつかのグループで、 ^4He 原子を対象に研究が行われてきた[34-36, 40-42, 45-47]。この ^4He 原子は 1991 年にレーザーによる減速[34]と磁気光学トラップ[61]への閉じ込め[35, 36]が実現されたが、He 原子の冷却・トラップには他の原子に比べて実験的な困難がいくつかあり、冷却原子を用いた応用研究が他の原子に比べて遅れていた。

その実験上の困難の一つは、原子の質量が小さいために、同一温度で比較すると他の原子の場合に比べて冷却前の初速が大きいことである。このため、レーザー冷却に要する距離（冷却長）が長く、原子の減速のためには原子線を用いた大型の装置が必要となる。したがって、Rb 原子などで行われたような原子蒸気セルを用いた簡便な方法[62]が適用できない。更に、後で述べる Zeeman 同調法[63]による減速においては、大きな Doppler シフトの補正のために大きな磁場が必要となる。原子の減速法としては周波数掃引法[22, 23]も可能であるが、広いレーザー周波数掃引範囲が必要な上、連続的に原子をトラップへ供給するには適しておらず、多数個の原子をトラップする目的には不向きである。

二つ目の困難は、冷却する原子が準安定状態であることであり、このことが、基底状態の原子の場合と同程度の低速で大強度の冷却前原子線を得ることを困難にしている。この準安定状態は放電励起[64]や電子衝撃励起[65]により生成することができるが、放電では大強度の原子線が得られる反面、原子の加熱が起り易く、原子の初速が大きくなってしまふ。一方、電子衝撃では原子の加熱を抑えることができるが、原子の励起効率が低く、大強度の準安定原子線を得ることが困難である。

更に、この準安定原子同士はトラップ中で高い効率で衝突イオン化を起こす[48]ので、多数の原子を高密度でトラップするためには、高い効率でトラップに減速原子を供給する工夫をしたり、衝突イオン化による原子の損失を抑制する必要がある。

この他にも冷却光が近赤外光であることも実験上の困難の一つとなっている。He 原子の冷却に用いる波長 1083nm の近赤外光は、可視光の場合と比べて 1 光子当たりの運

動量が小さく、軽い原子の減速の場合でも冷却長があまり短くならない。更にまた、トラップからの蛍光を観測する場合、この近赤外光における光電子増倍管やCCDカメラなどの検出効率は可視光に比べて1/10程度しか無く、少数個の原子のトラップでは蛍光検出による直接的な観測が困難である。このため、トラップ形状、密度などの精密な計測を行うにはより多くの原子を高密度でトラップすることが必要となる。

He原子のレーザー冷却・トラップに於けるこのような実験的困難の原因となっているHe原子の性質のいくつかは、前に述べたように、同時に、冷却He原子を応用する際の利点ともなっている。したがって、これらを克服してより多くの原子を高い密度でトラップし、冷却ヘリウム原子の応用を進めることが期待されて来たが、そのためには

- (1) 低速、大強度の準安定原子線を生成すること
- (2) 減速とトラップへの捕捉を効率良く行うこと
- (3) 効率的なトラップの観測
- (4) トラップロス的主要原因である衝突イオン化を抑制すること

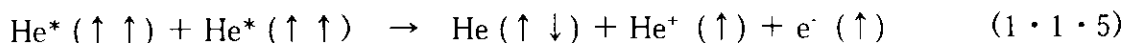
などの点が重要であり、これらに対してこれまでに以下のような努力がなされてきた。

(1) に関しては、他の希ガス原子の場合にも同様であるが、液体窒素温度での放電による低速大強度の準安定原子線源の開発[40, 66]や2次元的な光定在波を用いた準安定原子線のコリメーション[33, 40]の研究などがこれまでに行われ、応用されてきた。これらを効果的に組み合わせて、より低速より大強度の準安定原子線を製作することが現在でも重要である。

また、(2)と(3)に関しては、波長1083 nmの近赤外光のみによる通常のトラップ以外に、この近赤外光と共に $2p^3P_2 \rightarrow 2d^3D_3$ 遷移の可視光(波長588 nm)をトラップに併用した2重共鳴型トラップを利用することも試みられた[36, 38]。この2重共鳴型トラップでは近赤外の蛍光以外に可視の蛍光も放出されるので、感度の良いトラップの観測が可能である[36]。またこのトラップでは、可視光によるより大きな減速力や閉じ込めの力を原子に働かせることができるので[36, 38]、閉じ込め効率の良いトラップ法や冷却長を短くできる効率的な減速法としても応用が期待されており、詳細な理論研究も行われている[37, 39]。また、最近では、 $2s^3S_1 \rightarrow 3p^3P_2$ への389 nmの遷移

を用いて、近赤外の遷移に比べて約3倍大きな運動量を持った光子で減速を行うといった新規な減速法も報告されている[45]。この紫外の遷移を用いた減速では、近赤外の遷移を用いた場合に比べて Doppler シフトが大きい。したがって、Zeeman 同調法で Doppler シフトの補正を行う場合、より大きな磁場が必要となるため、磁場の代わりに電場を用いた Doppler 同調法を採用するなどの新しい試みが行われている。このように、He 原子の効率的な減速は現在でも重要な研究対象となっている。

(4) に関しては、冷却遷移の共鳴から大きく離調させたレーザー光を用いて He 原子のトラップを行い、これによりトラップのサイズを大きくして原子密度を小さくすることによって、トラップ原子同士のイオン化衝突を抑制してトラップ原子数を増大させる、といった試みがなされている[42, 47]。ごく最近この方法で、直径7 mm 程度の大きな磁気光学トラップに、アルカリ金属原子と同程度の約 10^9 個の He* 原子が閉じ込められたことが報告された[47]。しかし、この方法ではトラップ形状や原子密度分布の直接的な測定などが困難なことや、トラップのサイズが大きくトラップの磁場勾配が無視できないことなど、トラップ中の極低温気体の詳細な研究や原子線源としての利用などには適していない点もあり、ごく小さな領域に、より高密度で He* 原子を長時間トラップできる方法が今後も強く望まれる。そのような方法としては、衝突中のレーザー光吸収・放出による極低温イオン化衝突の制御[6-9]や、光格子による原子の孤立化による衝突イオン化の抑制[67]など、レーザー光を用いて衝突イオン化を抑制する方法が考えられる。しかしながら、通常行われているこれらの方法では、これまでの予備的実験や他の原子での例などから、一桁程度以下の密度の増大しか期待できないことが予想され、今後、これらの方法に於ける新規な手法の開発が望まれている。また、この他にイオン化を効果的に抑制する方法としては、He* 原子をスピン偏極させてトラップすることが考えられる。スピン偏極させた He* 原子同士の衝突では



のように電子スピンの保存されないため Penning イオン化が起こりにくいと考えられる。したがってスピン偏極させることによって衝突イオン化による原子の損失を抑制できることが期待される[56, 57]。He* 原子の場合には他の希ガス原子と異なり、イオン化に於けるこのような電子スピンの保存則がよく成立することが知られているが[68,

69]、この保存則によるイオン化の抑制の効果が実際に大きければ、他の原子のトラップ同様、多数の He^* 原子を高密度に閉じ込めることが可能となり、 ^4He 原子での Bose-Einstein 凝縮の実現も期待されて興味深い。

このように He 原子のレーザー減速・トラップは現在でも改良が進められつつある重要な研究対象であるが、本研究では、1.5 m 程度の長い冷却長を持った大型の超高真空実験装置を製作し、減圧液体窒素による冷却下 ($\sim 40\text{K}$) での放電により生成した低速・大強度の He^* 原子線[46]を、2次元の光定在波[33]でコリメートしてから、トラップ効率の良い磁気光学トラップ[61]に導いて、 He^* 原子の閉じ込めを行った。これにより、他のグループに比べて約 10 倍程大きい原子数密度で He 原子気体をトラップすることができ、トラップ中での He^* の極低温衝突の観測などの応用実験が可能となった。

この極低温 He^* 原子を用いた実験としては、これまでも反跳限界温度以下まで冷却した原子ビームの実現[43]やその運動のコントロール[44]、極低温原子衝突のレーザー制御の研究[42]などのような He 原子の特徴を活かした様々な研究もトラップの改良と同時に進められてきている。

一方、これまでの He 原子の冷却・トラップの実験は全て ^4He についてであり、 ^3He についてはレーザー冷却、トラップとも報告例が無く、 He 原子の冷却・トラップの特徴の一つである量子統計性の相違に関する研究は全く行われて来なかった。その主な理由は、 ^3He の自然存在比が $1.4 \times 10^{-4} \%$ と非常に小さいことから通常の He ガスを用いたのでは実験が不可能であり、その代わりに濃縮同位体ガスを用いることが避けられないためであると思われる。先に述べたように He 原子は冷却長が長いので Rb 原子[62]などのようにガスセル中で実験を行うことが難しく、原子線を減速に用いる必要がある。しかし、高価な ^3He の濃縮同位体ガスを原子線として消費し続けることは実際上困難であるため、実験を行うには同位体ガスの回収・再利用の機構が必要となる。

この他にも、 $^4\text{He}^*$ のレーザー冷却・トラップの場合と大きく異なる点はいくつか存在する。 ^3He 原子は $1/2$ の核スピンを持ち、核スピンの 0 である ^4He 原子と異なってエネルギー準位に超微細構造が存在する。このため、冷却遷移の上準位 $2p^3P_2$ ($F=5/2$) に近接する $2p^3P_1$ ($F=3/2$) 状態への非共鳴遷移により、冷却される $2s^3S_1$ ($F=3/2$) 状態とは異なる超微細構造準位 $2s^3S_1$ ($F=1/2$) 状態へ $^3\text{He}^*$ 原子が光ポンピングされ、

原子のレーザー冷却の過程が停止してしまう。したがって、一般には、超微細構造を持つ他の原子の場合と同様に、冷却用レーザーの他に、原子に冷却過程を繰り返させるための「リポンピングレーザー」[2]が必要となる。リポンピングレーザーは、 $2s^3S_1$ ($F=1/2$) 状態に移された ^3He 原子を光ポンピングにより再び $2s^3S_1$ ($F=3/2$) 状態へ戻し、連続的に冷却・トラップを行うために用いられるものである。このリポンピングレーザーには冷却遷移と異なった周波数のレーザー光が必要で、 ^3He 原子のレーザー減速・トラップには ^4He 原子に比べてより複雑なレーザーシステムが必要であると考えられていた。

更に、 ^3He 原子と ^4He 原子とではその質量が1.3倍と大きく異なるため、 ^4He 原子と同じ実験装置で ^3He 原子の減速・トラップが可能であるかは自明では無い。他の原子の場合には、原子質量の同位体比は小さく、原子の初期速度やレーザーによる減速度もほぼ同じで、同じ実験装置でレーザー周波数のみをわずかに変えることにより異なる同位体を選択的に減速・トラップすることができている[31, 51]。しかしながら He では同位体間の大きな質量比のために、原子の初速や減速度に於ける相違は無視できず、他の原子のように単にレーザー周波数を変えるだけでは減速することができない。

このように ^3He 原子のレーザー減速・トラップは ^4He 原子の場合に比べて実験的に更に複雑と考えられていたため、同位体間の比較が興味深いにも関わらず、これまで実現されて来なかったと思われる。このような背景のもとで、本研究では、 ^4He 原子と共に ^3He 原子を初めてレーザー冷却・トラップし、さらに、これらの極低温原子気体の量子統計性の相違に起因する現象を調べる実験の一つとして、これまで常温では観測困難であった原子衝突における量子統計対称性の効果についての研究を行った。

§ 1. 2 準安定 He 原子の極低温イオン化衝突

ここでは、これまでのレーザー冷却技術の発展により近年盛んに研究されるようになってきた極低温での原子衝突[6-9, 70]について概観し、本研究で調べた He 原子の極低温イオン化衝突について説明する。

1. 2. 1 極低温原子衝突

mK 以下という極低温での原子衝突は、レーザー冷却技術の発展によって研究可能となった新しい分野であるが、このような極低温原子衝突は、衝突エネルギーが非常に小さいために、常温での原子衝突と大きく異なった次のような特徴を持つ。

- (1) 衝突時間が長く、衝突中の原子対による光の吸収・放出が可能で、衝突を光学的に制御することができる。
- (2) 常温の衝突では問題とならない超微細構造などの小さな内部エネルギー差でも衝突全体に大きな影響を与え得る。
- (3) 衝突における遠心力障壁のために、非常に小さな角運動量を持った散乱部分波のみしか非弾性衝突に寄与しない。そのため、原子衝突の量子力学的側面が現れやすい。

以下に、これらの点についてその概略を説明する。

(1) の衝突中の光吸収・放出に関しては、これまでにアルカリ金属原子の衝突加熱や結合性イオン化によるトラップ損失[71, 72]あるいは希ガス原子の衝突イオン化[73, 74]などについて、衝突速度定数のレーザー光周波数依存性など、極低温原子衝突に対するレーザー光の影響が詳しく調べられてきた。

レーザー冷却後の極低温では、冷却原子の相対速度は常温に比べて非常に低速で数 m/s 程度またはそれ以下であり、衝突時間は数百 ns 程度以上となって冷却遷移の自然放出寿命に比べて長い時間となる。このため、衝突原子対は衝突中に光の吸収・放出が可能で、光による衝突の制御[73-75]や光結合分光 (PAS) と呼ばれる衝突中の原子対の光ポンピングによる分子の高励起状態や反応の分光学的研究[72, 76-79]など様々な興味深い応用がなされつつある。

本研究では He^* 原子の極低温イオン化衝突に対する近共鳴レーザー光の影響についても研究を行ったが、レーザー光が極低温原子衝突に影響を与える仕組みについて以下に概略を述べる (図 1-2-1 参照)。

近共鳴レーザー光が入射していない場合の冷却原子の衝突では、全ての原子は冷却

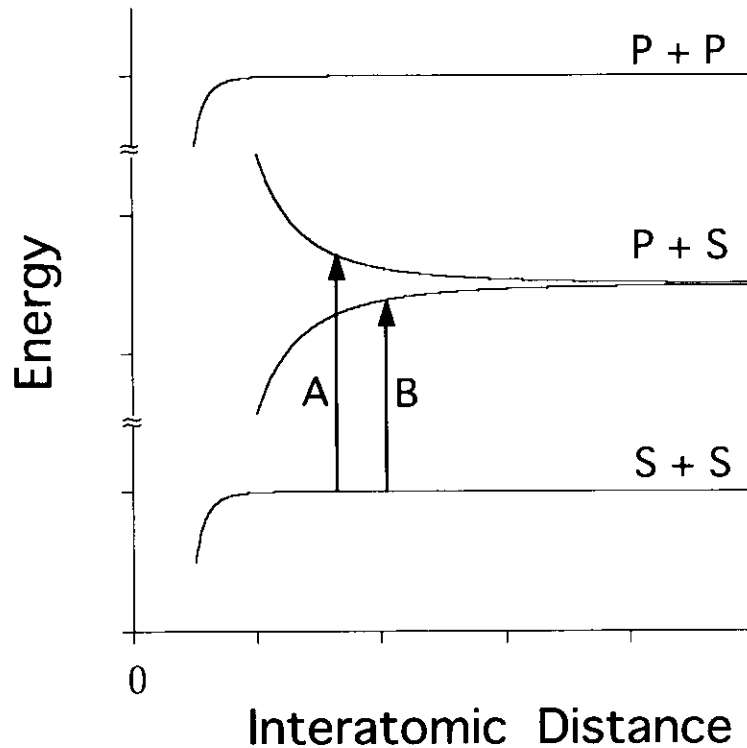


図 1 - 2 - 1 上準位原子 (P) と下準位原子 (S) による衝突ポテンシャル
A と B はそれぞれ正と負に離調したレーザーによる遷移を表わす。

遷移の下準位にあるため、衝突は全てこの下準位の原子同士の衝突であり、衝突原子同士の相互作用は主に引力的な近距離力である van der Waals 相互作用であると考えられる。一方、レーザー光照射下では、衝突原子の一部は冷却遷移の上準位に励起されるため、下準位にいる原子同士の衝突の他に、上準位にある原子同士の衝突、および下準位の原子と上準位の原子との衝突が同時に起こる。上準位にある原子同士の間の相互作用は下準位にある原子同士の場合と同様に主に van der Waals 相互作用であると考えられるが、上準位の原子と下準位の原子とは光学遷移可能な関係にあるので、極めて遠距離の相互作用である共鳴的双極子 - 双極子相互作用がこれら 2 原子間の主な相互作用となる。極低温でのレーザー場中の原子衝突では、衝突原子の相対速度が小さく衝突時間が長いため、衝突中に衝突原子対による近共鳴光の吸収・放出が可能で、これにより下準位原子同士や上準位原子同士の衝突チャンネルと、上準位原子 - 下準

位原子の衝突チャンネルとの間で、光学遷移が起こる。後者の上準位原子-下準位原子衝突の双極子-双極子相互作用による衝突ポテンシャルは、前者の上準位原子同士や下準位原子同士の場合の van der Waals 力による衝突ポテンシャルと異なり、引力的ポテンシャルと斥力的ポテンシャルの両方が存在し、また、より長い原子間距離まで強い力を衝突原子間に及ぼすことができる。そのため、原子の遷移の共鳴周波数よりも負に離調したレーザー光（図1-2-1のBに対応）を照射することにより、下準位原子同士による衝突原子対は引力的な上準位原子-下準位原子の衝突ポテンシャルにより強く励起され、この衝突を加速することが出来る。一方、共鳴周波数よりも正に離調したレーザー光（図1-2-1のAに対応）を照射した場合には、衝突原子対を斥力的な上準位原子-下準位原子衝突のポテンシャルに励起し、逆に衝突を抑制することが出来る。

このような原子衝突の光学的な制御は、常温の原子衝突では衝突中の光吸収・放出の確率が無視できる程小さいために不可能であり、これは極低温で始めて実験可能となった興味深い現象である。また、この光学的衝突制御の研究は、極低温原子衝突によるトラップからの原子の損失を最小限に押さえ、トラップ原子の高密度化、個数増大を図るためにも、実用上重要である。

次に、(2)の例としては、衝突加熱によるトラップ損失などがあげられる。これは、トラップされていた原子の内部エネルギー状態が衝突によって微細構造準位間や超微細構造準位間で移り変わり、その変化分のエネルギーにより冷却原子が加熱されトラップから失われるというもので、アルカリ金属原子[71, 80, 81]などについて詳しく調べられて来た。この衝突損失では加熱の量が原子の内部エネルギー変化量で決まるが、通常トラップのポテンシャルの深さが超微細構造準位間のエネルギー差と同程度またはそれ以下であるため、トラップされた原子の超微細構造の差によって損失速度に大きな差が観測されている。常温での原子衝突では、このような超微細構造準位間のエネルギー差などは衝突エネルギーに比べて非常に小さいために無視されて来たが、トラップ中の極低温での原子衝突では、このようなエネルギー差が衝突エネルギーやトラップの深さに比べて無視できなくなり、その影響が衝突全体に大きく現れるため、

原子衝突のより詳細な研究が可能となる。

最後に、(3) に関してであるが、常温の原子衝突では、大きな角運動量を持った多くの部分波が非弾性衝突に寄与するため、ある衝突径数を持った古典的粒子の衝突で原子衝突を近似することが比較的可能で、原子衝突の波動的な特性が現れにくかった。しかしながら極低温での非弾性原子衝突では、衝突エネルギーが小さいために、大きな角運動量を持った散乱部分波は高い遠心力障壁のために非弾性衝突に寄与することが出来ず、小さな角運動量を持った少数の部分波のみが非弾性衝突に寄与すると考えられる。このため、極低温では原子衝突の古典的な近似は不適切なものとなり、原子衝突の量子力学的側面が現れ易く、極低温での原子衝突は常温と大きく異なった様相を示すと期待される。またこの他にも、衝突の波数が小さいことにより、遠距離衝突ポテンシャルでのトンネリングの効果や微細なポテンシャル変化による共鳴効果など、常温では観測不可能であった原子衝突における量子力学的効果が顕著に観測されることも期待され、今後、この極低温原子衝突の研究により、原子衝突に於ける興味深い量子効果を実験的に明らかにすることができる可能性もある。

以上、ここでは極低温衝突の主な特徴について説明したが、これらの他にも、衝突エネルギーが小さく衝突時間が長いため、極低温衝突は遠距離ポテンシャルに敏感であるといった特徴もあり、これまで主に遠翼分光[82]などでしか行われてこなかった衝突の遠距離ポテンシャルの研究に対する有力な手段であると考えられる。こういった極低温衝突を利用した研究は、分子分光学などさまざまな広い分野で現在活発に行われているが[6-9]、これまで常温で実現困難であった新規な現象の観測が期待され、興味深い分野である。

1. 2. 2 準安定 He 原子の極低温イオン化衝突

前節で述べたような極低温衝突の特徴により、極低温での非弾性原子衝突は、常温の場合とは異なって、大きな同位体差が現れることが期待され興味深い。そこで本研究では He の極低温イオン化衝突を対象に、イオン化衝突に於ける速度定数の同位体差と、近共鳴レーザー光による速度定数増大効果及びその同位体差への影響について研

究を行った。

レーザー冷却・トラップされたHe原子は、§ 1. 1で述べたように、トラップ中で他の極低温のHe原子と衝突しイオン化を引き起こす。極低温での原子衝突は、前節で述べたように原子の冷却遷移に近共鳴するレーザー光により衝突が促進または抑制されるが、このようなレーザー光が入射していない場合は、冷却遷移の下準位にある原子同士の衝突



によるイオン化が起こる。このHeのイオン化衝突については常温や数Kの温度ではこれまで詳しく研究されて来ているが[48]、そのような高温では、大きな角運動量を持つ異なったパリティの多くの散乱部分波が衝突イオン化に寄与するため、イオン化速度定数には量子統計対称性の相違による顕著な同位体差は無く、原子質量の相違による小さな同位体差が予想されるだけである(4. 2. 4節に後述)。しかしながら、レーザー冷却で達成される極低温では、小さな角運動量を持った少数の散乱部分波のみしか衝突イオン化に寄与できないため、常温の場合と異なり量子統計対称性の相違に起因した同位体差が顕著に観測される可能性がある。

このような量子統計対称性の相違による原子衝突の同位体差に関しては、スピン偏極させた準安定Kr原子の極低温イオン化衝突についての研究が既に行われている。その研究では、 ^{83}Kr , ^{84}Kr の2種類の同位体について、p波の遠心力障壁の高さ(約80 μK)の約半分の温度40 μK で、イオン化速度定数のスピン偏極による変化が測定され、ボゾンである ^{84}Kr のイオン化速度定数が、フェルミオンである ^{83}Kr より約20%大きいという結果が得られている[53]。しかしながらこの研究で観測された同位体差は比較的小さなものであったため、より低い温度で期待される顕著な同位体差の観測が望まれていた。本研究ではこの量子統計対称性による同位体差について、He原子を用いて、p波の遠心力障壁の高さに対応する温度より十分低い温度での衝突に関して、実験的及び理論的に研究を進めてきたが、最近、本研究と同様な目的で準安定Xe原子に関する実験が同時期に行われた[54]。この研究では、p波の遠心力障壁の高さ(約38 μK)に比べ十分低い温度(約1/40)である1 μK でKr原子と同様の実験が行われ、Kr同様、原子をスピン偏極させた場合には、スピン偏極させなかった場合に比べてボゾンでは

約 50% イオン化速度定数が増大し、フェルミオンでは約半分に減少するという明確な結果が報告された。

He 原子の場合にも、極低温イオン化衝突における量子統計対称性の相違による同位体差が観測可能であると考えられるが、He 原子の特長として、Kr や Xe よりも質量がはるかに小さいために p 波の遠心力障壁の高さに対応する温度が非常に高い (約 10 mK [83]) という点があげられる。このため、通常の磁気光学トラップで容易に達成される温度 (≤ 1 mK) でも衝突イオン化を引き起こす散乱部分波はほぼ s 波だけとなり、Kr や Xe での研究例に比べて実験的にはるかに有利である。また、He 原子の衝突イオン化では、Kr や Xe の場合とは異なって 1. 1. 2 節で述べたようにスピン保存則が良く成り立つことが知られており [48, 68, 69]、そのため、同位体差が Kr や Xe の場合とは異なった現われ方をする可能性がある点にも非常に興味を持たれる。更に、He 原子は内部構造の比較的単純な原子で、その衝突の詳細な理論的取り扱いも比較的容易であると考えられることから、この He 原子での衝突イオン化の研究は、詳しい理論的研究との比較の上でも典型的な例の一つとして重要な役割を果たすことが期待される。

また、このスピン保存則による偏極 He 原子のイオン化の抑制については、イオン化速度が 5 桁以上小さくなるとする理論的予測 [56, 57] もあるが、実験的にはこれまで、He ガスセル中での放電電流に対するレーザー光入射時の光ポンピングによるスピン偏極の効果としてのみ測定されているだけであり、その実験精度も低い [68, 69]。したがって、極低温衝突でのイオン化速度定数の精密な測定は、このスピン偏極によるイオン化の抑制の効果を確認し、その程度を見積もる上でも重要なものである。この抑制の効果が大きければ、スピン偏極によりイオン化を顕著に抑制し、より多くの He 原子をより高密度に閉じ込めることが可能で、He 原子での Bose-Einstein 凝縮の実現も期待される。

一方、原子の冷却遷移に近共鳴するトラップレーザー光が入射している場合には、冷却遷移の上準位にも He 原子が励起されているので、(1.2.1) 式に示した $2s^3S_1$ 状態同士の衝突イオン化に加えて、



による衝突イオン化も起こり、また、衝突中の光吸収・放出によりこれら衝突チャンネル間での光学遷移も起こる。1. 2. 1節で述べたように、トラップに要するレーザー光のように原子の冷却遷移の共鳴中心から負に離調したレーザー光の場合では、一般に、レーザー光を入射しない場合に比べて衝突イオン化の速度定数が増大することが知られている。Heの極低温イオン化衝突に関しては、 ^4He 原子の場合について、これまでに1 mKの極低温でのレーザー光の影響が調べられており、トラップレーザーの入射により2桁程度イオン化速度が増大することが報告されている[35]。しかしながら最近、ほぼ同条件でそれとは1桁ほど小さいイオン化速度定数も新たに報告されており[42]、より信頼性のある実験結果が求められている。このようなイオン化速度定数のレーザーによる増大の効果は、Xe、Krなど他の希ガスの場合では1～2桁ほどであるが[31, 74]、より軽い原子であるHeではどのような大きさになるのかを確認し、その大きさを決める要因について詳細に考察することが必要である。

更に、この ^4He 原子のイオン化速度定数のレーザー光による増大については、そのレーザー周波数依存性なども最近詳しく調べられているが[42]、 ^3He 原子についてはトラップすら未だ行われていないため、極低温イオン化衝突に対するレーザーの影響についてはもちろん研究例が無く、 ^4He との比較においてどのような同位体差を示すかが興味深い。レーザー光による増大効果の同位体差については、これまでにXeの同位体 ^{131}Xe 、 ^{132}Xe 、 ^{136}Xe について100 μK でのイオン化速度の測定が行われ、その衝突イオン化速度のレーザーによる増大の効果にボソンとフェルミオンで約40%程度の差が報告されているが[31]、このようなレーザーによる増大効果の同位体差の原因については明らかにされてこなかった。その原因は、Xeのような電子状態の複雑な重い原子では、衝突ポテンシャルなどの計算に於いて精密かつ大規模な計算が必要で、詳細な理論研究が困難であったためと考えられるが、本研究で用いたHe原子では、電子状態が単純で理論的考察も比較的容易なため、このようなレーザーによる増大効果の同位体差の原因についても明らかにできると期待される。このようにHe原子同士の衝突イオン化という比較的単純な原子衝突の系で、同位体差やレーザーの効果について実験的、理論的考察を行うことは、極低温衝突の理解の上で重要なことであると考えられる。

§ 1. 3 本研究の目的

本研究の目的は、次のような項目にまとめられる。

- (1) ヘリウムの量子統計性の異なる2つの同位体、 ^4He と ^3He について、それぞれのレーザー冷却・トラップを実現すること
- (2) レーザー冷却で得られた極低温 He 原子気体を用いて、極低温イオン化衝突の速度定数を計測し、
 - (i) ^4He と ^3He の間の同位体差を観測すること
 - (ii) 冷却遷移に近共鳴なトラップレーザーによる衝突イオン化速度の増大効果を観測すると共に、この光学的に増強されたイオン化速度定数における同位体差を観測すること
- (3) トラップレーザーによる増強のある場合とない場合の両方に対して、イオン化速度定数の理論的計算を行い、それぞれの観測値との比較から、同位体差の原因と衝突イオン化の光学的増強の大きさを決めている要因について考察を行うこと

本論文では、まず第2章で、上記(1)のHe原子のレーザー冷却及び磁気光学トラップへの閉じ込めの実験を説明し、次に第3章で、(2)の極低温イオン化衝突に対する速度定数の計測とその結果を説明した後、第4章で(3)に挙げたそれぞれのイオン化速度定数に対する理論的計算を行い、実験結果と計算値の比較から同位体差や光学的増強の大きさの原因について考察を行う。

第 2 章

準安定He原子のレーザー冷却・トラップ

Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L1678 (1991)

Jpn. J. Appl. Phys. **31**, L276 (1992)

Appl. Phys. B in press

発表済み

この章では、本研究で行った準安定 He 原子の光学的減速および磁気光学トラップへの閉じ込めの実験、そしてそのトラップ特性について説明する。

§ 2. 1 冷却・トラップの概要

中性原子の並進運動温度のレーザー冷却の仕組みについては、これまでに詳しく研究され、様々な冷却法が提案、実現されているが[2, 3]、以下では本研究で He 原子につ

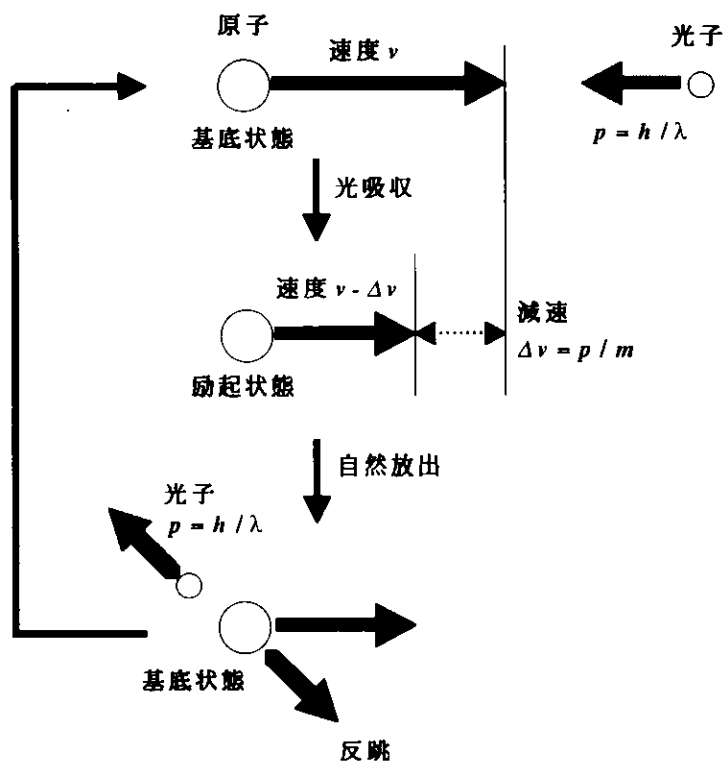


図 2-1-1 散乱力と原子の減速の概念図
 Δv は光吸収による原子の速度変化

いて行った冷却・トラップの概要を説明する。

原子を冷却するには、減速するための力を原子に及ぼす必要があるが、レーザー冷却では原子に力を与えるために、原子の光吸収・放出で生ずる散乱力[84, 85]を利用する。波長 λ の光子は運動量 $p = h/\lambda$ (h はプランク定数) を持ち、原子はこの光子 1 つの吸収あるいは放出により $h/(m\lambda)$ (m は原子の質量) の速度の反跳を受ける (図 2-1-1)。こ

の速度変化は常温の原子の速度に比べて小さいものであるが、光の吸収・放出を繰り返し行わせることにより、原子を大きく減速・加速することができる。光吸収により基底状態の原子は励起状態に遷移するが、この時、原子は吸収した光の進行方向に加速される。次に励起原子は自然放出により光を放出して基底状態に戻るが、この時、光の放出方向とは反対方向に反跳を受ける。この自然放出光は空間的に等方的に放出されるので、光の吸収・放出を繰り返し行わせると、自然放出による反跳は空間的に相殺され、その結果、主に光の吸収による力を原子に加えることができる。この散乱力の他に光が原子に及ぼす力としては、光電場の AC Stark 効果による双極子力[84, 85]などがあるが、このような保存力は原子の減速・加速には利用できず、冷却原子を空間的に閉じ込めるためのトラップなどに利用される[86]。

原子が繰り返し光吸収・放出を行うためには、冷却には「閉じた」光学遷移を用いる必要がある。すなわち、光の吸収によって励起状態に上がった原子が蛍光放出によって例外なく直ちに元の基底状態に戻るような遷移を用いる必要がある。 ^4He 原子の冷却では準安定状態である $2s^3S_1$ ($m=1$) から $2p^3P_2$ ($m=2$) への波長 1083 nm の近赤外遷移を、また ^3He 原子の冷却では ^4He 原子と同様な波長 1083 nm の $2s^3S_1$ ($F=3/2$, $m_F=3/2$) から $2p^3P_2$ ($F=5/2$, $m_F=5/2$) への遷移を用いる (図 1-1-1 参照)。これらの冷却遷移の下準位である $2s^3S_1$ 状態は、基底状態から 19.8 eV の励起エネルギーを持つ準安定状態であるが、自然放出寿命が 7900 秒で非常に長いため、本研究を通して光学遷移に関しては基底状態と同様に考えることが出来る。この 3 重項の準安定状態 $2s^3S_1$ を利用する理由は、基底状態からの遷移を冷却遷移として用いるには、最初の励起状態までの遷移波長が極端紫外域 (20.6 eV) にあって短かすぎるため、冷却に用いるレーザーの製作が困難であるからである。また、1 重項の準安定状態である $2s^1S_0$ 状態は自然放出寿命が短いため (0.02 秒)、トラップが短寿命になってしまう。

これらの冷却遷移の上準位である $2p^3P_2$ 状態の自然放出寿命は 98.75 ns で、遷移の自然幅は 1.6 MHz (半値全幅)、遷移の飽和強度は 0.16 mW/cm^2 である。また、1 光子当たりの反跳運動量は $6.1 \times 10^{-28} \text{ kgm/s}$ で、1 光子当たり ^4He 原子では 0.092 m/s 、 ^3He 原子では 0.123 m/s の速度変化に相当し、光強度が十分強く遷移が飽和している場合の光による加速度は、 ^4He 原子、 ^3He 原子でそれぞれ $4.7 \times 10^5 \text{ m/s}^2$ 、 $6.3 \times 10^5 \text{ m/s}^2$

となる。

原子の減速は、原子の進行方向と逆向きに進む光を照射し、その光の散乱力を利用して進行方向と逆向きの力を原子に与えることによって行われる[23]。原子に加わる力は、光周波数が原子の遷移に共鳴していて光吸収が効率的に行われる場合に最も強い。しかし、原子が減速されるにつれて Doppler 効果により見掛けの共鳴周波数が変化するので、原子を連続的に効率良く減速するためには、減速途中でも常に光の共鳴条件を保つ必要がある。そこでこの Doppler シフトを補正し減速中も連続的に共鳴を保つために、照射する光の周波数を減速に従って掃引する周波数掃引法[22, 23]や、磁場による Zeeman 効果によって原子の共鳴周波数を減速に従って変化させる Zeeman 同調法[63]が、原子の連続的減速に用いられる。

本研究では準安定 He 原子 (He* 原子) ビームに対向して周波数一定の減速レーザーを照射し、Zeeman 同調法により原子の減速を行った。冷却遷移の Zeeman シフトの磁場に対する傾きは⁴He、³He 共に 14 MHz/mT で、Doppler シフトは 0.92 MHz/(m/s) である。

例として常温 (300 K) の He 原子を考えると、その最確速度は約 1100 m/s 程度で、速度分布の幅は 700 m/s (半値半幅) である。したがって、Doppler シフトを打ち消して大部分の原子を冷却するためには約 130 mT の大きな最大磁場が必要であり、また、これらの原子をほぼ停止させるためには、光が十分強く冷却遷移が十分に飽和している場合でも、3.6 m 以上の長い冷却長が必要となる。より弱い強度の減速レーザーで連続的に減速を行うには更に長い冷却長となり、他の原子に比べて大型の実験装置が必要となる上、原子線の発散による原子線強度の損失も大きくなる。このようなことから、He 原子の減速では原子の初速を低く抑えることが非常に重要となる。

減速された低速原子は更に減速レーザー光を吸収しつづけることにより光の進行方向に加速されてしまうため、このままでは Doppler シフトが冷却遷移の自然幅の数倍程度に対応するような速度にまでしか冷却されない。そこで更に原子を冷却するために、Doppler 効果を利用した Doppler 冷却[24]、光定在波による空間的光強度分布を利用した誘導冷却[87]、光定在波の空間的な偏光状態分布を利用した偏光勾配冷却[88]など様々な冷却過程が利用される。本研究における He 原子のレーザー冷却では Doppler 冷却法

用いているので、以下では、この Doppler 冷却についてのみその概要を述べる。

Doppler 冷却では、冷却遷移の自然幅に比べて十分狭い周波数幅を持ち、かつ遷移の共鳴中心周波数よりもわずかに低周波側に離調した、同一強度の2つのレーザー光を相対向して原子に入射する（図2-1-2参照）。運動している原子から見るとこれら2つの光の Doppler シフトが異なり、原子の運動方向に対向して進む光は高周波側に、原子の運動方向と同じ方向に進む光は低周波側に Doppler シフトする。このため、原子に対向して進む光は、より共鳴に近くなり原子に与える散乱力は大きいが、一方、原子と同方向に進む光は、共鳴からより遠くなり原子に与える散乱力は小さくなる。このように、原子は、どちら向きに運動していても、進行方向と対向する光からより大きな力を受けて減速される。3次元的な冷却は、各方向への光強度が3次元的に一様

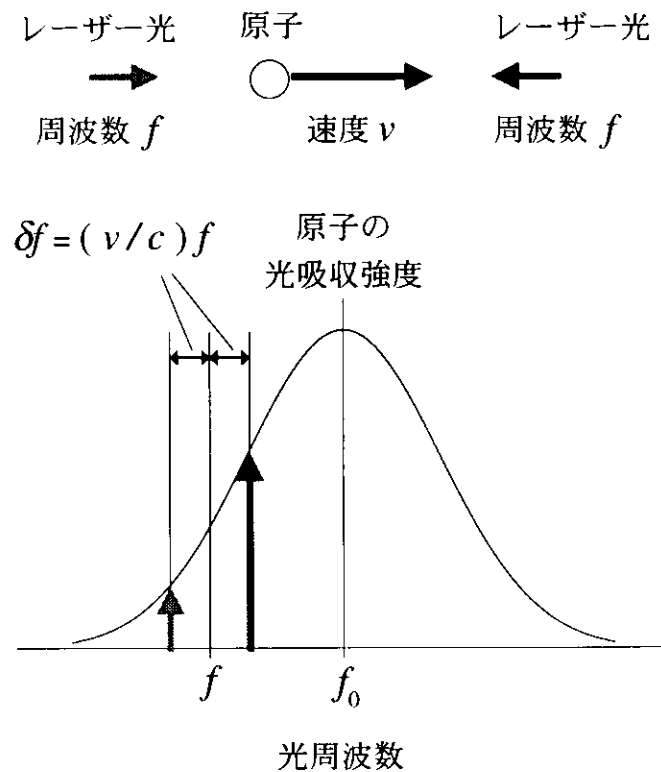


図2-1-2 Doppler 冷却の概念図

δf はそれぞれのレーザー光の Doppler シフトで
 c は光速である。

になるように光を入射することで、同様に行われる。この冷却の効率は Doppler シフトした2つの光の吸収量の差に比例するので、原子の速度が小さくなると、減速の力も小さくなる。一方、原子は常に光の吸収・放出を繰り返して、反跳によって速度が揺らいでいる。この速度の揺らぎが光による加熱に相当するが、この加熱と冷却の釣り合いによって Doppler 冷却での到達温度 T が決定され、光の周波数幅や誘導放出を無視すると、

$$T = \left(\frac{h\Gamma}{2k_B} \right) \frac{1 + I/I_0 + (\Delta/\Gamma)^2}{(\Delta/\Gamma)} \quad (2 \cdot 1 \cdot 1)$$

と表わされる[89, 90]。ここで h 、 k_B 、 Γ 、 Δ 、 I 、 I_0 はそれぞれ Planck 定数、Boltzmann 定数、冷却遷移の自然幅（半値半幅）、入射光の離調、全光強度、冷却遷移の飽和光強度である。この到達温度 T は、離調 Δ が自然幅 Γ に等しく、かつ I が I_0 に比べて十分小さい時に最低となり、その最低温度 T_L （Doppler 限界温度）は、

$$T_L = \frac{h\Gamma}{k_B} \quad (2 \cdot 1 \cdot 2)$$

となる。He 原子のレーザー冷却では、遷移の自然幅が 1.6 MHz（半値全幅）と狭いため、この Doppler 限界温度は約 40 μ K という極低温に相当する。

このような極低温の原子を真空中にトラップしておくためには、常にトラップ中心に向かう力を原子に及ぼしてやれば良い。このトラップの力を原子に加えるには、光電場[86]や磁場[91, 92]などによる空間的なポテンシャルの極小点を利用することができる。しかし、これらに比べてトラップポテンシャルが深く、かつ Doppler 冷却による原子の冷却過程が働く磁気光学トラップ（MOT）[61]が、多数の原子を効率良くトラップするために広く用いられており、本研究でも MOT を用いて He 原子のトラップを行った。以下ではこの MOT についてその概要を述べる。

MOT では、負に離調した円偏光のレーザー光と勾配を持った磁場を併用して、磁場が零となる位置に冷却した原子を閉じ込めることができる。原子の閉じ込めの力を説明する例として、一次元空間（ z 軸方向）で、冷却遷移の下準位の電子状態の角運動

量 j_L が 0 で上準位の電子状態の角運動量 j_U が 1 であるような原子が、直線的に変化する磁場 B ($B = b z$, $b < 0$) 中にある場合を考える (図 2-1-3)。この原子は、このような勾配を持った磁場中では、Zeeman 効果により上準位が 3 つの磁気副準位に分

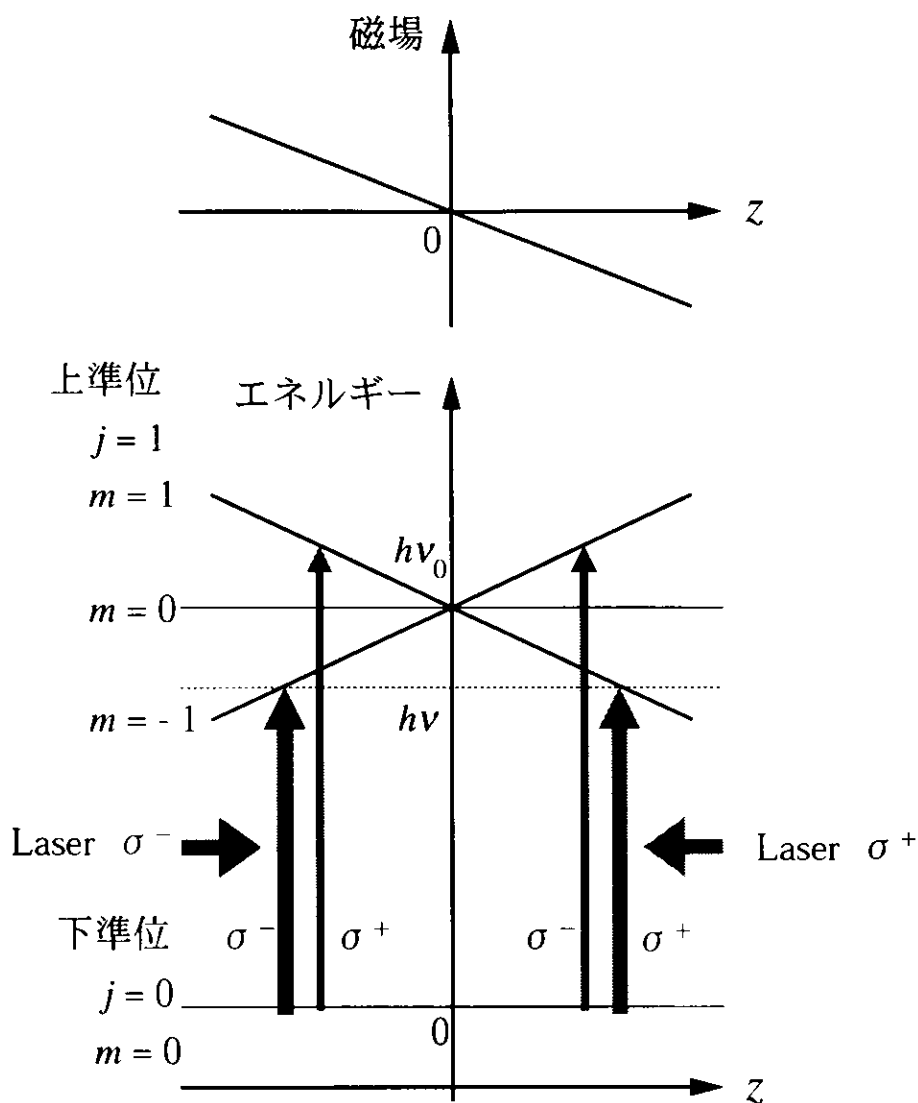


図 2-1-3 磁気光学トラップ (MOT) の概念図

ν , ν_0 はそれぞれレーザー光周波数、冷却遷移の共鳴中心周波数である ($\nu < \nu_0$)。一次元で上準位、下準位の電子状態の角運動量をそれぞれ 1, 0 とした場合の例を示す。

裂して、それぞれが異なるエネルギーの空間的傾き（磁気量子数 $m = 1, 0, -1$ の各磁気副準位に対してそれぞれ $b\mu, 0, -b\mu$ 、ここで μ は磁気双極子モーメントで正の定数とする）を持つ。一方、下準位は磁場の影響を受けないので、準位のエネルギーは空間的に変化しない。このため、磁場が0である点を境に、 $z > 0$ の側では σ^+ 遷移、 σ^- 遷移の各周波数がそれぞれ低周波側、高周波側にシフトするが、一方、 $z < 0$ の側では、逆に σ^- 遷移、 σ^+ 遷移の各周波数がそれぞれ低周波側、高周波側にシフトする。ここに $z > 0$ の側から σ^+ 遷移を起こすような円偏光で、そして $z < 0$ の側からは σ^- 遷移を起こすような円偏光で、共に同じだけ負に離調した強度が等しいレーザー光を相対向して入射してやる。すると $z > 0$ の側にある原子では $z > 0$ の側から入射したレーザー光が遷移の共鳴により近く、原子はこのレーザー光による $z = 0$ の原点に向かう力を主に受ける。一方、 $z < 0$ の側にある原子では、逆に $z < 0$ の側からのレーザー光が遷移の共鳴により近く、原子はこのレーザー光による力を主に受けるが、この力も原点に向かう力となっており、原子が原点のどちら側にあっても、常に原点に向かうトラップの力を原子に及ぼすことができる。また、このトラップで磁場0の原点付近に集められた原子は、Zeeman シフトの量も小さく、遷移の自然幅以下となるので、ここでは通常の Doppler 冷却が働き、原子を常に冷却することができる。

この例では、簡単のため、特定の原子の角運動量で考えたが、上準位の角運動量が下準位に比べて大きければ同様な共鳴周波数の空間的変化が起こるので、同じように原子に磁場0の点にトラップする力を及ぼすことができる。また、3次元的な MOT は、anti-Helmholtz コイルによる四重極磁場中に、負に離調した円偏光レーザー光を3次元的にトラップの力が釣合うように入射することで同様に行うことができる。レーザー光の入射の仕方としては、一般に等しい強さのレーザー光を互いに直交する3軸に沿ってそれぞれ逆向きに入射する方法（6ビーム型）[61]と、正四面体の各頂点方向からトラップの中心である正四面体の重心に向けて入射する方法（4ビーム型）[93]が用いられているが、このうち4ビーム型の MOT の方が原子のトラップ効率が良く、より多くの原子をトラップするのに適していることが知られている。本研究では、Zeeman 同調法により減速した He^* 原子をこの4ビーム型の MOT へ閉じ込めて、より原子個数の多い極低温 He^* 原子気体を得ることを試みた。

§ 2. 2 実験と結果

2. 2. 1 レーザーシステム

準安定状態 $2s^3S_1$ の He 原子 (He* 原子) のレーザー冷却には、 $2s^3S_1 \rightarrow 2p^3P_2$ の冷却遷移に近共鳴する波長 1083 nm のレーザー光を用いるが、このレーザー光は、利得媒質として $\text{La}_{1-x}\text{Nd}_x\text{MgAl}_{11}\text{O}_{19}$ (LNA) 結晶を用いた単一モード CW リングレーザー[94, 95]を2台製作し、それぞれを CW アルゴンイオンレーザーで励起することにより発生させた。1台のレーザーは He* 原子線の光学的コリメーション[33]に用いられ、もう1台は He* 原子の減速・トラップに用いられた。それぞれのレーザーの光周波数は、まず Fabry-Perot 型参照共振器の共鳴周波数にロックされ[96]、次に、この共振器の共鳴周波数は、放電により He ガスセル (He 圧力 \sim 300 mTorr) 中に生成した He* 原子の飽和吸収分光[97, 98]によって、冷却遷移の共鳴中心周波数にロックされた (図 2-2-1)。レーザー光周波数は、このガスセル中の He* 原子の共鳴周波数を、セルの周りに巻いたコイルによる磁場で Zeeman シフトさせることによって、100 MHz 以上の範囲にわたって制御することができた。この安定化されたレーザー光の周波数線幅はそれぞれ 0.5 MHz (半値全幅) 以下で、出力は 50 mW 以上であった。それぞれのレーザーの出力光は音響光学素子 (AOM) で個別に高速で ON・OFF できるようにされているが、AOM 透過後の周波数シフトを打ち消すために、周波数制御に用いられるレーザー光には同じ音響周波数の AOM であらかじめ周波数シフトさせたものを用いた。

2. 2. 2 準安定 He 原子線

レーザー冷却される He* 原子は、減圧した液体窒素 (\sim 40 K) によって冷却した He ガスを、真空槽への噴射ノズルと低温 He ガス中の電極との間の直流放電 (放電電流 \sim 10 mA) で励起して生成した[66](図 2-2-2)。生成された He* 原子は基底状態の He

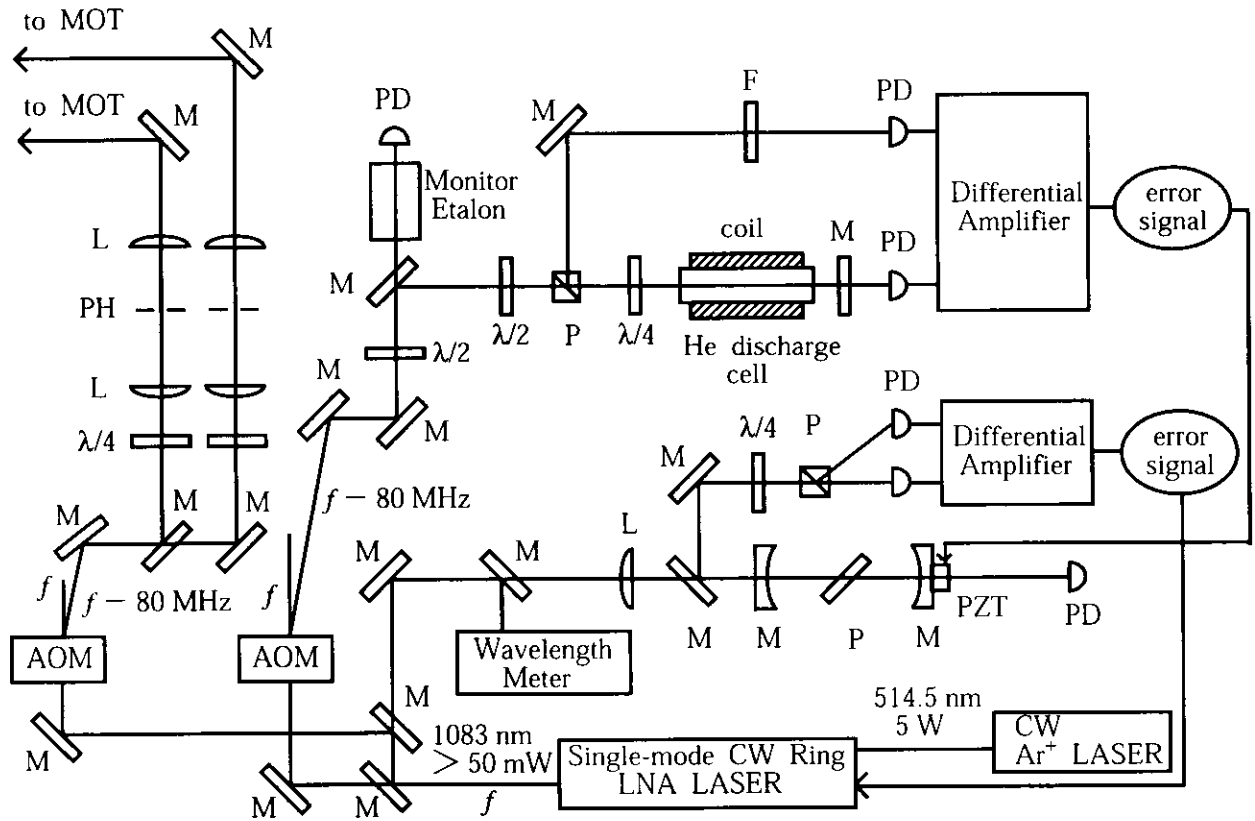


図 2-2-1 レーザーシステム

2台のLNAレーザーはほぼ同様な方法で、それぞれ個別に周波数制御された。ここに示したのはその1台分のレーザーシステムである。 f はレーザー周波数を、M、L、P、F、PD、PH、AOM、PZTはそれぞれミラー、レンズ、偏光子、フィルター、フォトダイオード検出器、ピンホール、音響光学素子、 piezo素子を表わす。また、 $\lambda/4$ 、 $\lambda/2$ はそれぞれ1/4波長板、1/2波長板である。

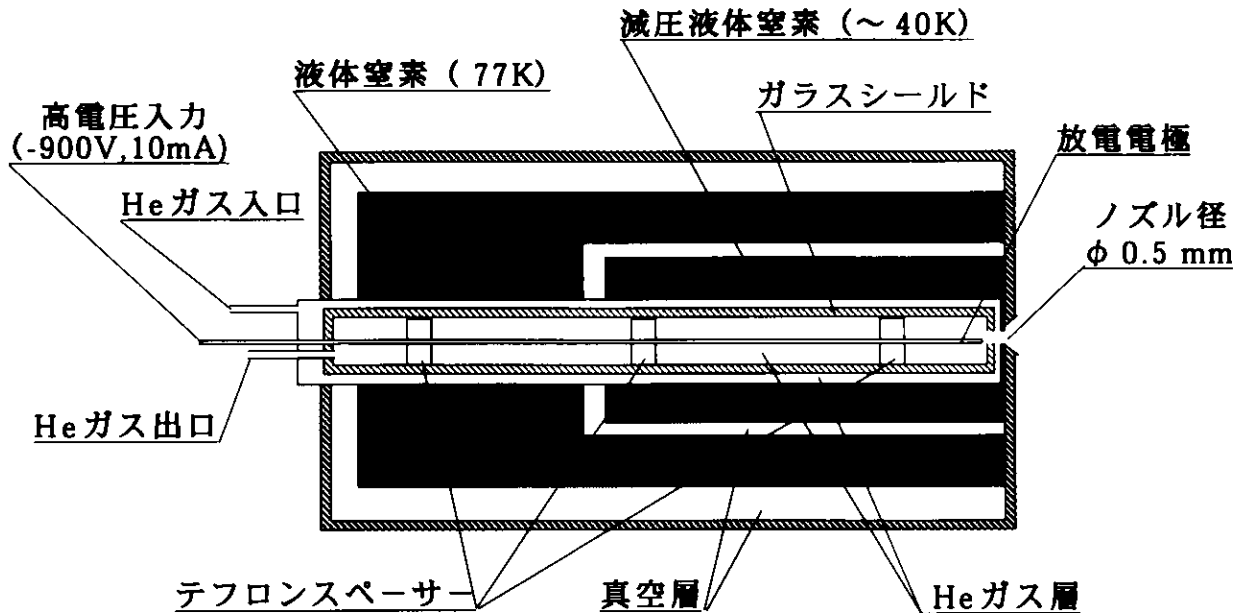


図 2-2-2 放電準安定 He 原子線源の模式図

He 原子はノズルと電極間の放電により励起される。
全体が真空槽中に入れられて用いられる。

原子と共にノズル ($\phi 0.5 \text{ mm}$) を通して真空槽に吹き出され (流速 $20 \text{ cm}^3 / \text{min}$)、その一部をスキマー ($\phi 0.5 \text{ mm}$) で切り出して He* 原子線とした。次にこの He* 原子線を、冷却遷移に近共鳴した 4 本のレーザービーム (レーザーパワー 10 mW 、離調 -3 MHz 、ビーム径約 2 cm (半値全幅)) から成る互いに直交する 2 組の定在波で、原子線の軸方向と直交する速度成分をレーザー冷却することによってコリメートし[33]、原子線の広がりを抑えて効率良く磁気光学トラップ (MOT)[61, 93]に導いた (図 2-2-3)。

この He* 原子線の生成は、 ^3He と ^4He のどちらの場合でも同じ装置を用いて同様に行われたが、 ^3He の場合には、スキマーで除かれて原子線として使用されずに真空ポンプで排気された ^3He ガスを、回収・精製して再利用した (回収率 $> 99.9\%$)。これは、 ^3He

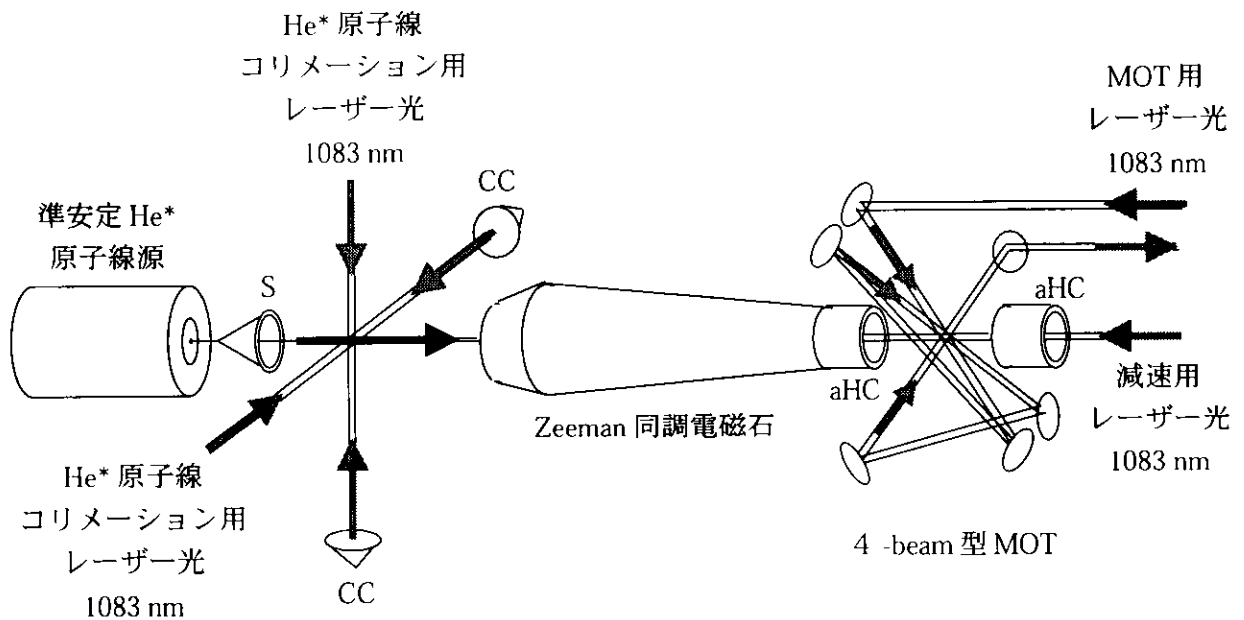


図 2-2-3 磁気光学トラップ (MOT) 実験装置

準安定 He 原子を放電で生成し、レーザーでコリメートしたのち Zeeman 同調法で減速し、4-beam 型 MOT に捕捉した。S、CC、aHC はそれぞれスキマー、コーナーキューブプリズム、anti-Helmholtz コイルである。

の自然存在比が $1.4 \times 10^{-4} \%$ と非常に小さいので、実験には通常の He ガスではなく高価な濃縮同位体ガス (純度 99.9999%) を使用しなければならなかったためである。この同位体ガスを原子線として連続的に真空槽に流し、排気して消費するのは実際的でない。同位体ガスを消費しないで済む方法としては、この他に、Rb など他の原子ではガスセルを用いた簡便な冷却方法 [62] も行われているが、He 原子を減速するためには長い減速長が必要なので、ガスセルを用いた実験も現実的でない。

真空ポンプの排気として回収された ^3He ガスには、真空槽内の残留ガス、真空ポンプからのオイルミスト、混入した大気などの不純物が含まれる。しかし、実験に用いられる He* 原子は高い電子励起エネルギーを持つため、ほとんど全ての不純物原子・分

子をイオン化して脱励起してしまうので、効率よく He^* 原子を生成するためには不純物をできるだけ取り除くことが非常に重要である。回収された ^3He ガスの精製は、以下のように行った (図 2-2-4)。まず、回収されたポンプの排気ガスは市販の活性炭によるオイルミストフィルターに通されて、大部分のオイルが取り除かれる。次に、このガスを液体窒素温度に冷却した細管に通して、残りのオイルや H_2O 、 O_2 、 CO_2 など 77 K よりも沸点の高い不純物を取り除く。この後、回収ガスはコンプレッサーで 3 気圧程度に加圧されて、液体窒素温度に冷却されたモレキュラーシーブに通される。加

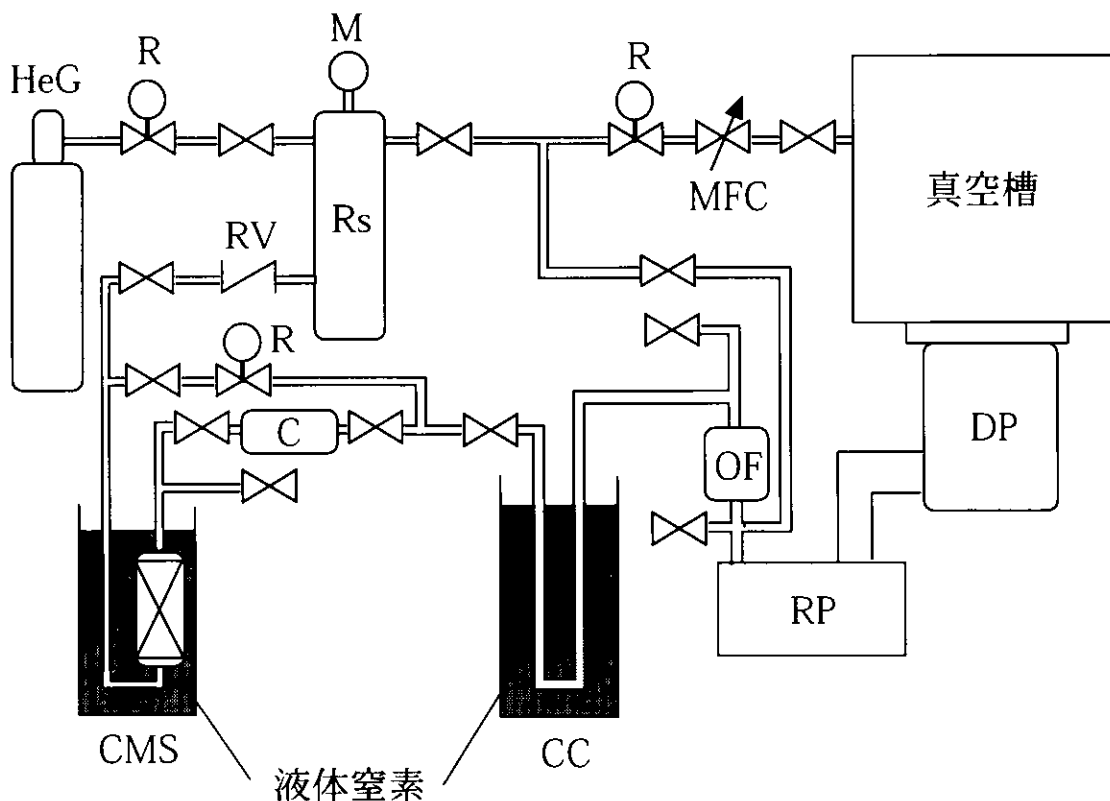


図 2-2-4 ^3He ガス回収・精製装置

真空槽から排気された He ガスは、真空ポンプから回収され、オイルミストフィルター (OF)、液体窒素温度の細管 (CC)、モレキュラーシーブ (CMS) を通って精製される。HeG、Rs、R、RV、M、MFC、C、DP、RP はそれぞれ純 He ガスボンベ、ガスリザーバー、減圧弁、逆圧弁、圧力計、マスフローコントローラー、コンプレッサー、拡散ポンプ、ロータリーポンプである。

圧することで N_2 ガスの沸点を77 Kより高くして、不純物として含まれる N_2 もできるだけ効果的に取り除く。このようにして精製した ^3He ガスは、放電を安定に行って定常的に一定の $^3\text{He}^*$ 原子を生成するように、流量コントローラーで背圧を制御してから再利用される。この回収・精製された ^3He ガスを用いた $^3\text{He}^*$ 原子線の強度は、99.9999%純度の ^3He ガスを利用した場合と同程度であった。

得られた原子線は主に基底状態のHe原子と He^* 原子から成るが、この他にも、放電により生成した準安定状態 $2s^1S_0$ のHe原子や He^+ などのイオンがこの原子線に含まれると考えられる。しかし、以下のような測定(図2-2-5)から、 $2s^1S_0$ 状態のHe原子や He^+ イオンのビーム強度は He^* 原子に比べて無視できるほど少ないことが確認された。この確認は、放電で生成した原子線を直接マイクロチャンネルプレート(MCP)検出器に入射させ、 $2s^3S_1$ 及び $2s^1S_0$ の準安定状態He原子と He^+ イオンから成る(基底状態の原子を除く)全原子線強度を検出することによって行った。MCPには原子線の入射側に負の高電圧(-2 kV)が印加されているので、 He^+ イオンを直接検出することが可能である。また、 $2s^3S_1$ や $2s^1S_0$ の準安定状態He原子は20 eV程度の高い

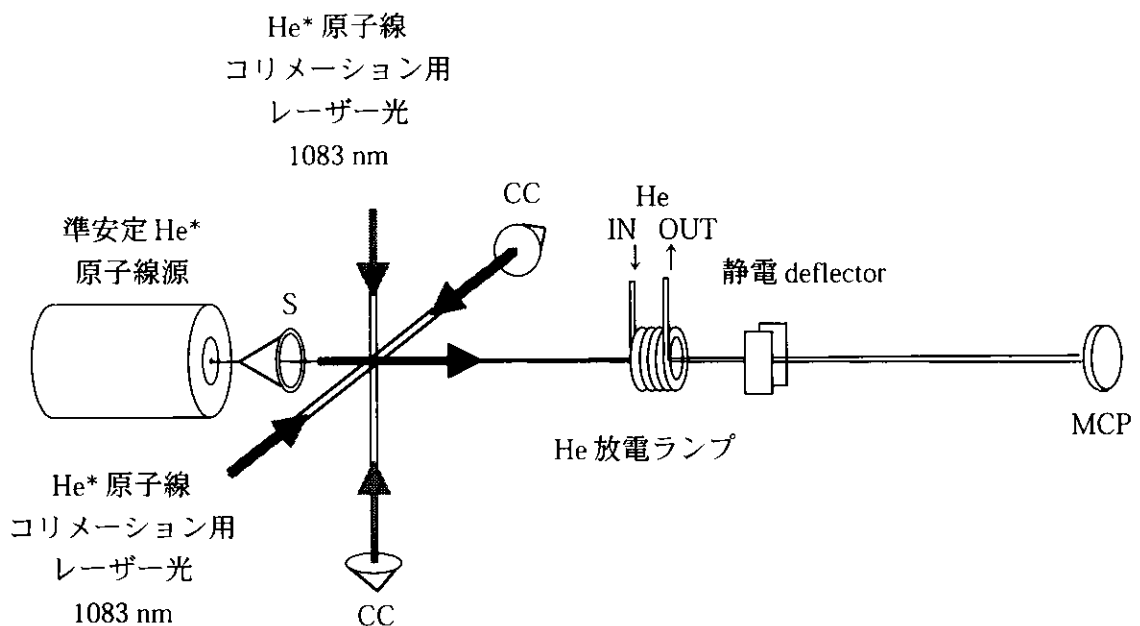


図2-2-5 原子線に含まれるイオン及び $\text{He}(2s^1S_0)$ 原子の成分の測定
S、CCはそれぞれスキマーとコーナーキューブプリズムである。

励起エネルギーを持つため、MCP で直接観測可能である。原子線中の He^+ イオンの量は、原子線を静電偏向器に通して He^+ イオンを除き、原子線強度における He^+ イオンの減少を観測することで測定した。また同様に、準安定状態 $2s^1S_0$ の He 原子の量は、原子線に He 放電ランプ[99]の光を照射して $2s^1S_0$ 状態の He 原子を $2p^1P_1$ 状態を経由して基底状態に脱励起させることにより、原子線強度における $2s^1S_0$ 原子成分の減少を観測することで測定した。その結果、どちらの場合も原子線強度の変化は確認されず、この原子線中の He^+ イオンや $2s^1S_0$ 準安定状態 He 原子の量は $2s^3S_1$ 状態の He 原子 (He^* 原子) に比べて無視できるほど小さいことが確認された。また、これらの他に原子線中に含まれる He 原子種としては、他のより高い励起状態にある He 原子が考えられるが、これらの状態の自然放出寿命はいずれも 1 ms 以下であるため、原子線がトラップ領域に達する前に脱励起しており、トラップされた原子への影響は無視できると考えられる。

He^* 原子線の強度の絶対値は、 He^* 原子線をステンレス板に当て、その衝撃によりステンレス表面から放出された電子数を計数することによって測定された[100]。 He^* 原子線源の放電電圧が 900 V、放電電流が 10 mA の時、2次元光定在波によるコリメーション後の He^* 原子線の強度は約 $1 \times 10^{14} \text{ str} \cdot \text{s}^{-1}$ で、コリメーションの前に比べて約 7 倍大きな強度であった (図 2-2-6)。

また、 He^* 原子の速度分布は、原子線源の放電を周期 20 Hz、パルス幅 0.1 ms でスイッチして He^* 原子線パルスを生成し、ノズルから 3.1 m 下流に置いた検出器までの飛行時間 (TOF) 分布を測定することによって観測した (図 2-2-7)。この放電のパルス幅 0.1 ms は He^* 原子の飛行時間に比べて十分小さい。図の飛行時間 $t = 0$ ms 近傍に見られる鋭いピークを持った信号は、He ガス中での放電によって発生した XUV 光による信号であり[64]、 He^* 原子の飛行開始時刻を示している。また、この信号の幅は、 He^* 原子の TOF 分布の時間の測定分解能の目安となるが、図 2-2-7に見られるように原子線の TOF 分布の幅より十分狭く、この TOF 分布が He^* 原子の速度分布を良く反映していることを示している。この TOF 分布から求めた He^* 原子の最確速度は ^4He と ^3He で、それぞれ 710 m/s と 850 m/s である。この He^* 原子の最確速度に於ける 1.2 倍程の同位体差は、原子の速度分布として Boltzmann 分布を仮定した場合に原子質量の

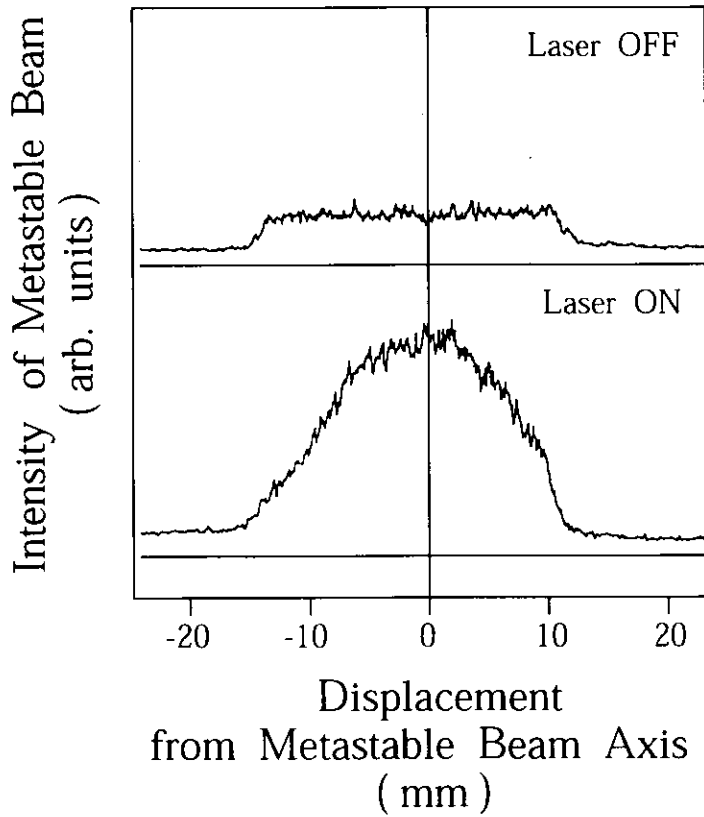


図 2-2-6 He*原子線のレーザー
コリメーション効果

原子線はノズルから0.95 m下流でコリメーションされ、直後に直径6 mmのスリットを通った後、その約3 m下流で検出された。検出器には幅2 mmのスリットを取り付け、原子線と垂直方向に走査して原子線の強度分布を測定した。上下の図はそれぞれコリメーションを行わなかった時と行った時の原子線強度分布で、レーザーコリメーションにより中心強度は約7倍増加している。なお、上図において左右が急に減少しているのは、原子線の通り道に置いたアイリスのためであり、実際の分布は上図に見られるものよりもはるかに広い幅を持っている。

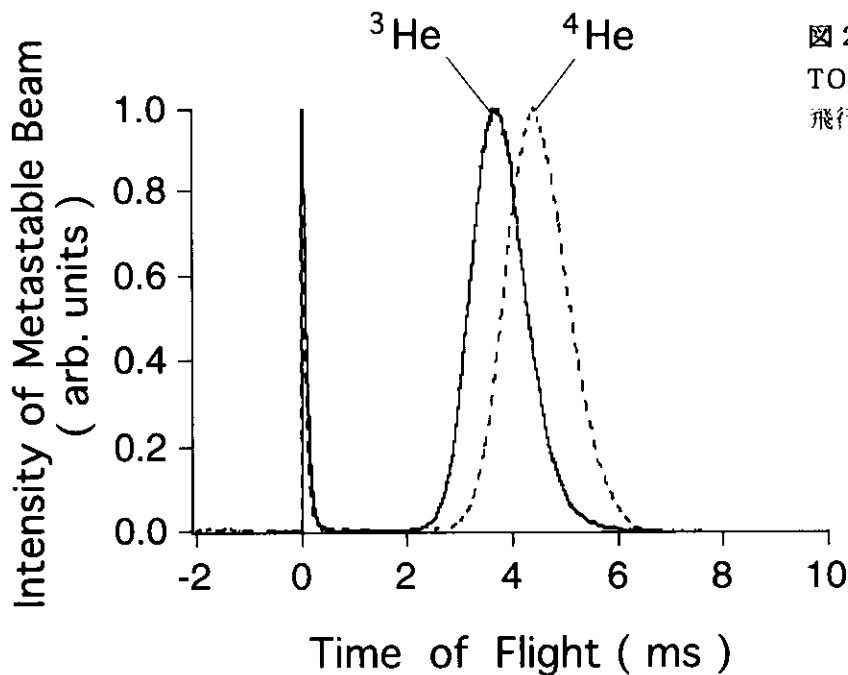


図 2-2-7 He*原子線の
TOF分布
飛行距離は3.1 mである。

相違から予想される比 $\sqrt{4/3}$ (~ 1.2) にほぼ一致しており、この速度分布の同位体差は主に原子の質量の違いによるものと考えられる。

2. 2. 3 レーザー減速

原子線中の He* 原子の減速は Zeeman 同調法[63]によって行った (図 2-2-3)。減速に用いられるレーザー光は MOT を構成する 4 本のレーザービームのうち的一本で、He* 原子線に対向して進行する円偏光ビームである。このレーザー光のパワー、離調は、それぞれ約 20 mW、 -5 MHz で、トラップ領域から 3 m 先の原子線源のノズルにかけて緩やかに集光された。ビーム径はトラップ領域で約 11 mm (半値全幅) で、ノズル上で約 1 mm (半値全幅) 程度である。この集光は、レーザーの波面を原子線の方に垂直に合わせることによって、減速による原子線の広がりを抑えるためである。

Zeeman 同調用の磁場は、22 個のコイルからなる全長約 1.5 m の電磁石によって発生した放物線的に減衰する磁場であり、これによって He* 原子は一定の加速度で連続的に減速された。同調磁場の最大値は $^4\text{He}^*$ 原子の場合には 54 mT で、840 m/s 以下の速度の $^4\text{He}^*$ 原子に同調可能であった[34]。この同調可能な最大速度は図 2-2-7 の TOF 分布で飛行時間 $t > 3.7$ ms に対応しており、 $^4\text{He}^*$ 原子の速度分布の大部分にこの磁場で同調可能である。 $^3\text{He}^*$ 原子の場合にも同じ同調コイルを用いて減速を行ったが、磁場の最大値は $^4\text{He}^*$ 原子の場合より約 20% 大きい 65 mT (同調可能な $^3\text{He}^*$ 原子の速度は 1.0×10^3 m/s 以下、図 2-2-7 の TOF 分布で飛行時間 $t > 3.1$ ms に対応) とした。これは、 $^3\text{He}^*$ 原子の最確速度が $^4\text{He}^*$ 原子に比べて約 20% 大きかったことにより、Doppler シフトを補正するには同様に約 20% 大きな磁場が必要であったためである。この最大磁場を大きくすることによって原子線に沿った各点における磁場の傾きも約 20% 大きくなる。そのため、Zeeman シフトの変化率がレーザーによる原子の減速率を上回ってしまい、その結果、減速が途中で停止してしまう可能性がある。しかし、 $^3\text{He}^*$ 原子の減速度は、レーザーの条件が同じであれば $^4\text{He}^*$ 原子に比べて質量比から $4/3$ 倍 (> 1.2) 大きいために、そのような減速の中断は起こらず、 $^3\text{He}^*$ 原子でも $^4\text{He}^*$ 原子同様に連続的に Doppler シフトを補正して減速することができた。

2. 2. 4 磁気光学トラップ (MOT)

減速された He* 原子は 4 ビーム型の磁気光学トラップ[93]に閉じ込められた (図 2-2-3)。この磁気光学トラップは一組の anti-Helmholtz コイルによって発生させた四重極磁場と、正四面体の各頂点方向からトラップ中心である正四面体の重心に入射させた 4 本の円偏光のレーザービームから構成されており、各レーザー光の偏光方向は磁場の向きに対して全て同じになるように設定される。4 本のレーザービームのうちの一つは He* 原子線と同軸に配置され、減速用のレーザービームとしても用いられた。トラップ中心での 4 本のレーザー光による全光強度は 30 mW/cm^2 で、各レーザー光の離調は全て同じ 5 MHz であった。トラップの四重極磁場は、2 組みの Helmholtz コイルで地磁気など外部磁場を打ち消して、トラップ中心が磁場 0 になるように調整された。トラップ中心での磁場の傾きは、原子線と同軸方向では 1.6 mT/cm 、直交する方向では 0.9 mT/cm であった。

トラップした He* 原子の個数と密度分布は、MOT からの波長 1083 nm の蛍光を 2 台の感度校正された CCD カメラで水平、鉛直両方向から観測することで測定した。それぞれの方向から観測されたトラップ像は図 2-2-8 のように等方的 2 次元ガウス分布によく一致しており、トラップ中の He* 原子の個数密度分布 $n(x, y, z)$ は等方的 3 次元ガウス分布

$$n(r) = n_0 \exp\left[-\left(\frac{r}{r_0}\right)^2\right] \quad (2 \cdot 2 \cdot 1)$$

でよく近似できると考えられる。ここで n_0 はピーク個数密度で、 r_0 は密度 n_0/e における半径である。上の式からトラップの体積 V は、

$$V = \pi^{\frac{3}{2}} r_0^3 \quad (2 \cdot 2 \cdot 2)$$

で表わされ、この体積 V とピーク個数密度 n_0 は、像のサイズ、カメラの感度、冷却遷

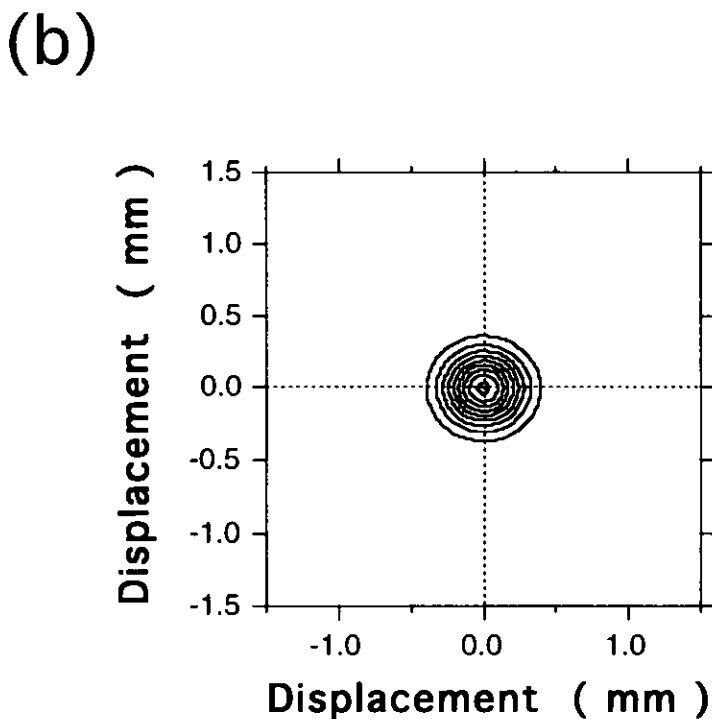
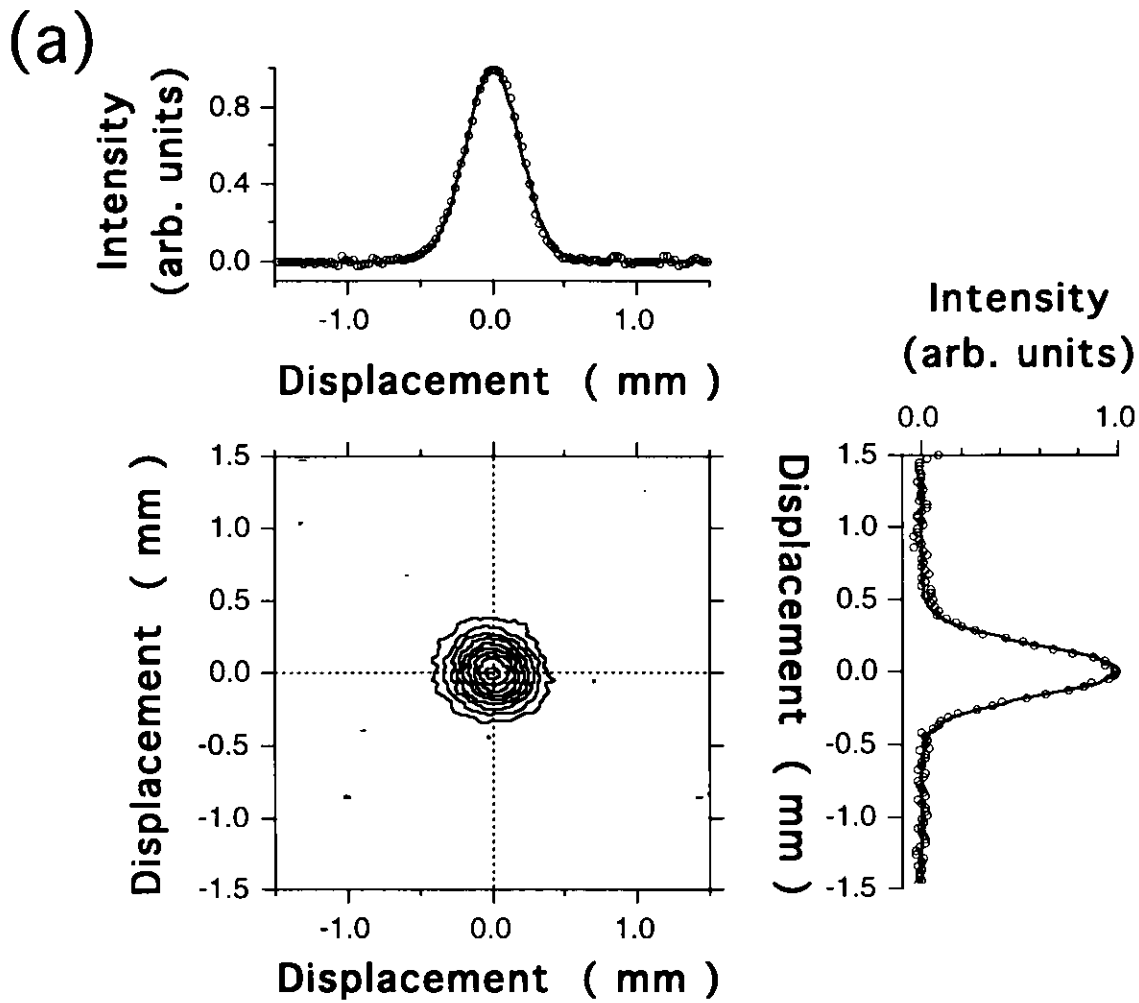


図 2-2-8 MOTの蛍光強度分布
 (a) が実測の2次元強度分布の等高線図で、それぞれ鉛直、水平方向の断面図を共に記してある。この2つの断面図で○は実測値、実線はガウス分布による最適化の結果である。(b) は観測された2次元分布に対する最適化の結果得られた2次元ガウス分布の等高線図である。

移の上準位にある原子の占有数などを考慮して、観測したトラップ像にこのガウス分布を最適化することによって求められた。像のサイズやカメラの感度は、冷却遷移に共鳴するレーザー光を用いて校正され、上準位の占有数（約 45%）はトラップ中心のレーザーパワーと離調から計算された。トラップ中の全 He^* 原子の個数は、CCD カメラで観測した全蛍光強度から求められ、さらに校正されたフォトダイオードでも蛍光を観測して確認された。

トラップされた He^* 原子の密度分布の幅（半値全幅）、全原子数、ピーク原子数密度、トラップの体積の典型的な値としては、背圧 3×10^{-7} Pa（ He 原子線を流さない場合の背圧は 5×10^{-8} Pa）で、それぞれ 0.4 mm、 10^5 個、 10^9 個/cm³、 8×10^{-5} cm³ であった。これらのトラップ特性は $^3\text{He}^*$ と $^4\text{He}^*$ においてほぼ同じ値であり、 He^* 原子線の初速の大きな違いに関わらず、両同位体について同じ実験装置を用いて同程度にトラップすることができた。

トラップした He^* 原子の温度は TOF 法によって計測された。定常的に He^* 原子をトラップした後に、MOT を構成する全てのレーザーと磁場を同時に遮断してトラップから He^* 原子を解放し、トラップ中心の鉛直下方 10cm のところに置いた MCP 検出器で、到達した He^* 原子を直接検出し、解放された原子がトラップから MCP 検出器まで飛行する TOF 分布（図 2-2-9）を測定した。測定された TOF 分布はトラップ中の原子

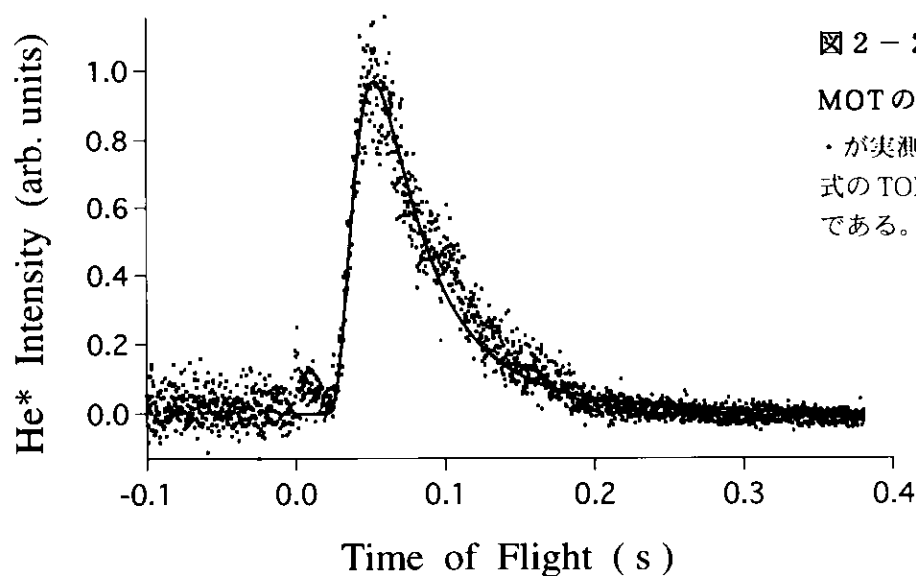


図 2-2-9 TOF 法による
MOT の温度測定 の例
・が実測値で、実線が (2・2・3)
式の TOF 分布を最適化した結果
である。

の速度分布を反映しているが、トラップ原子の速度分布に温度 T の 3 次元の Boltzmann 分布を仮定した場合、トラップから MCP 検出器までの飛行距離 (10 cm)、MCP 検出器の有効口径 (14 mm)、重力加速度 (9.8 m/s^2) をそれぞれ L 、 r 、 g とすると、温度 T で原子の最確速度 v_m を用いて、予想される TOF 分布 $F_{\text{tof}}(t)$ は

$$F_{\text{tof}}(t) \propto \exp\left[-\left(\frac{L - \frac{1}{2}gt^2}{v_m t}\right)^2\right] \left\{ 1 - \exp\left[-\left(\frac{r}{v_m t}\right)^2\right] \right\} \left(\frac{L}{t^2} - \frac{g}{2}\right) \quad (2 \cdot 2 \cdot 3)$$

と表わされる。ここで最確速度 v_m は、原子の質量 m 、Boltzmann 定数 k_B を用いて、

$$v_m = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad (2 \cdot 2 \cdot 4)$$

である。この Boltzmann 分布から予想される TOF 分布は、パラメータ v_m を最適化することにより測定された TOF 分布とよく一致し、トラップされた He^* 原子の温度 T は約 0.5 mK と求められた。このトラップ温度は、同様なレーザー条件下では、 $^3\text{He}^*$ と $^4\text{He}^*$ とでほぼ同じ値であった。

このように $^3\text{He}^*$ と $^4\text{He}^*$ の両方に対して、ほぼ同様のトラップ特性で MOT に閉じ込めることが出来たが、本研究では、 $^3\text{He}^*$ 原子を減速・トラップする際に 1. 1. 2 節で述べたようなリポンピングレーザーは一切使用しなかった。 $^3\text{He}^*$ 原子のレーザー冷却でも、エネルギー準位に超微細構造をもつ他の原子と同様に、冷却遷移を繰返すはずの原子の一部がトラップレーザー光による非共鳴な光ポンピングにより $2p^3P_1$ ($F = 3/2$) 状態を経由して $2s^3S_1$ ($F = 1/2$) 状態に移って冷却過程を行わなくなり、トラップから失われると考えられる。このような場合、他の原子では一般に、冷却から外れた原子を光ポンピングして再び冷却遷移に戻すリポンピングレーザーを用いて、原子の損失を防いでいる。しかしながら本研究で行ったトラップ実験条件下では、 $^3\text{He}^*$ 原子の非共鳴光ポンピングによる原子損失の速度は 1.1 s^{-1} と見積もられ[101]、本研究の原子密度に於いてはトラップ中のイオン化衝突による原子損失の速度 ($> 100 \text{ s}^{-1}$) に比べて十分小さいため (第3章参照)、非共鳴光ポンピングによる原子損失はイオン化

による原子損失に対して無視できると考えられる。このことが、本研究ではリポンピングレーザーを用いること無しに $^3\text{He}^*$ 原子を $^4\text{He}^*$ 原子と同様に減速・トラップすることができた理由であると考えられる。この非共鳴光ポンピングによる原子損失の速度については、第3章で述べるように、予想されたこの小さな原子損失速度が $^3\text{He}^*$ と $^4\text{He}^*$ のトラップ損失速度の差として実験的にも観測されており、リポンピングレーザーが実際上不要であることが確認されている。非共鳴光ポンピングによる原子損失の速度がこのような小さい値であるのは、 $^3\text{He}^*$ 原子の超微細構造準位間のエネルギー差が他の原子の場合に比べてはるかに大きい ($2p^3P_1 (F=3/2)$ と $2p^3P_2 (F=5/2)$ との間が 1.8 GHz) ためであると考えられる (図 1-1-1 参照)。

§ 2. 3 考察

量子統計性の異なる 2 種類の準安定状態 He 原子、 $^3\text{He}^*$ と $^4\text{He}^*$ について、MOT への閉じ込めを行った。それぞれの同位体について、約 10^5 個の原子を温度 0.5 mK にまでレーザー冷却し、体積 $8 \times 10^{-5} \text{ cm}^3$ 程度の領域に、He 原子としては大きな密度である約 10^9 個/cm³ でトラップすることができた。 $^3\text{He}^*$ 原子線の初速度が $^4\text{He}^*$ 原子線に比べて相当に大きいにもかかわらず、また、 $^3\text{He}^*$ 原子の減速・トラップにリポンピングレーザーを用いなかったにもかかわらず、これらの MOT のトラップ特性は両同位体でほぼ同じであった。

この MOT のサイズは、他の原子の MOT の一般的なサイズと同程度で、原子が閉じ込められている空間領域は、トラップ磁場 (磁場の傾き 0.9 ~ 1.6 mT/cm) による冷却遷移の Zeeman シフト (14 MHz/mT) がトラップレーザーの離調 (-5 MHz) より小さいような領域 (半径 4 ~ 2 mm) に比べて、十分狭い領域であった。また、このトラップ領域での冷却遷移の Zeeman シフトの大きさは 0.9 MHz 程度以下で、遷移の飽和幅 (~ 11 MHz) やトラップの温度 (~ 10 MHz に相当) に比べて十分小さく、トラップ中の原子に対する磁場の影響は無視できると考えられる。このことは、後に述べる衝突実験において重要な要素である。

トラップされた He* 原子の温度は、Doppler 限界の温度 40 μK に比べて 10 倍以上高い

が、これはトラップレーザーの強度が冷却遷移の飽和強度 0.16 mW/cm^2 に比べて 200 倍程度も大きかったためであると考えられる。この実験で得られたトラップ温度は、(2・1・1) 式から予想される温度 0.7 mK とほぼ一致している。He* 原子をより低温にまでレーザー冷却するためにはレーザー強度をできるだけ小さくする必要があるが、レーザー強度を減らした場合、He* 原子の減速度が小さくなり、より長い冷却長が減速に必要となる。本研究に於ける冷却長 (1.5 m) は他の原子に比べて非常に長いものであるが、今後、より低温にまで He* 原子を冷却するためには、更に長い冷却長をとってレーザー強度を下げる必要がある。また、冷却長をできるだけ短くする上では、He* 原子の初速をより小さくすることも必要であり、今後、更に大強度で低速な He* 原子線源を開発することが重要な課題である。

トラップされた原子の個数や密度について He* と他の原子で比較してみると、原子線の強度は同程度であるにもかかわらず、He* の場合、アルカリ金属原子などに比べて 2～3 桁少ない値となっている。これは、常温での衝突イオン化の研究[48]から良く知られているように、He* 原子同士の衝突ではイオン化が効率良く起こるため、トラップから大きな速度で原子が失われることが原因である。このトラップ原子の損失やその主な原因である極低温イオン化衝突については、第3章で詳しく議論する。

本研究において高密度で実現された $^4\text{He}^*$ 原子のトラップと本研究で初めて実現された $^3\text{He}^*$ 原子のトラップは、第1章で述べたように、量子統計性の相違に関する実験研究などで重要な役割を果たすことが期待され、今後、極低温での原子衝突や原子の集団運動の研究の対象として、また、極低温 He* 原子線源などへの応用における基盤技術として重要なものであると考えられる。

第3章

準安定He原子の極低温イオン化衝突

— 概説および実験 —

Phys. Rev. Lett. **82**, 2848 (1999) 発表済み

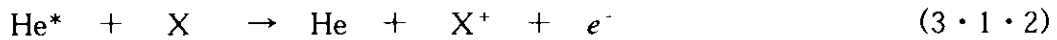
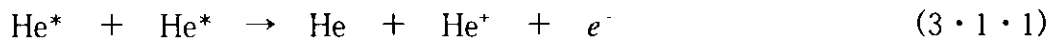
第2章で述べたように、極低温の $^4\text{He}^*$ 原子および $^3\text{He}^*$ 原子を磁気光学トラップ中に閉じ込めることができた。本研究ではさらにそれらの原子を利用して、 p 波の遠心力障壁 (^4He で10 mK、 ^3He で15 mK) より十分低い0.5 mKという極低温における $^4\text{He}^* + ^4\text{He}^*$ 及び $^3\text{He}^* + ^3\text{He}^*$ 衝突イオン化の速度定数を測定し、その同位体差についての研究を行った。また、これらのイオン化速度定数に対するレーザー光の影響についても測定を行い、レーザー光により促進された衝突イオン化における同位体差についても研究した。これらのイオン化速度定数は、トラップからの蛍光の観測によって測定したトラップ損失の速度や、生成イオンの計測によって測定したイオン化速度から実験的に求められ、それぞれに対する理論計算との比較から、観測された同位体差の原因とレーザーの影響を決めている要因について議論した。

この章では、トラップされた He^* 原子の衝突による損失やイオン化過程について説明した後、トラップ損失速度とイオン化速度の測定実験について述べる。

イオン化速度定数についての理論計算、およびその計算結果と実験結果との比較については次の第4章で述べる。

§ 3. 1 トラップ中での原子衝突

トラップ中に捕捉された He^* 原子は、トラップされた他の He^* 原子や、真空槽中の残留ガスの原子や分子（以下Xと表わす）と衝突を起こす。 He^* 原子は基底状態から19.8 eVの励起エネルギーをもつ準安定状態にあるため、他の He^* 原子（イオン化ポテンシャル4.8 eV）や基底状態のHe原子を除くほぼ全ての中性原子・分子をイオン化することができる。このため、トラップ中では2種類のPenningイオン化過程



と、結合性イオン化過程



が起こり、トラップからの He* 原子の脱離、すなわち「トラップ損失」を引き起こす [48]。また、これらのイオン化過程に加えて、極低温の He* 原子と常温の残留ガスの原子・分子との弾性衝突による He* 原子の加熱によっても、トラップ損失が引き起こされる。(³He においては、トラップレーザー光が入射している場合には 2. 2. 3 節で述べた非共鳴光ポンピングによってもトラップ損失が起こり得る。)

このような衝突によるトラップ損失は、冷却遷移に近共鳴するトラップレーザー光が極低温原子に照射されていない場合には、冷却遷移の下準位 $2s^3S_1$ にいる He 原子同士の衝突



および下準位 $2s^3S_1$ にいる He 原子と残留ガス中の原子・分子との衝突



によって引き起こされるが、トラップレーザー光が照射されている場合には、これらの衝突に加えて冷却遷移の上準位 $2p^3P_2$ の原子が関与する衝突



によっても引き起こされる。また、トラップレーザー光が照射されている場合には、この極低温 He 原子同士による衝突は、衝突時間が長いために衝突原子対による光吸収・放出が可能で、トラップレーザー光により大きく影響を受ける事が知られている [6-9]。したがって、極低温 He 原子のイオン化を含むトラップ損失およびそれらの速度定数は、トラップレーザー光が入射している場合とそうでない場合とで、大きく異なると考えられる。

トラップレーザー光が入射していない場合、極低温 He 原子気体中でのイオン化に対する現象論的速度方程式は、生成イオンの個数密度 i 、極低温 He 原子の個数密度 n 、一

次と二次のイオン化速度定数 α_i と k を用いて

$$\frac{di}{dt} = \alpha_i n + k n^2 \quad (3 \cdot 1 \cdot 9)$$

と表わされる。この式の二次の項は極低温 He 原子同士の衝突による Penning イオン化 (3・1・1) と結合性イオン化 (3・1・3) によるもので、一次の項は (3・1・2) 式のような極低温 He 原子と残留ガス中の原子・分子との衝突イオン化によるものである。同様にトラップ損失に対する現象論的速度方程式は、一次と二次のトラップ損失速度定数 α_n 、 β を用いて

$$\frac{dn}{dt} = -\alpha_n n - \beta n^2 \quad (3 \cdot 1 \cdot 10)$$

と表わされる。この式の二次の項は、すべて He 原子同士の衝突イオン化によって引き起こされるものであり、 k と β との間には

$$\beta = 2k \quad (3 \cdot 1 \cdot 11)$$

の関係がある。これは、1 個の He^+ または He_2^+ が生成される時、同時に 2 個の He 原子がトラップから失われることによるものである。また、一次の項で表わされるトラップ損失には、イオン化以外に極低温原子の加熱によって引き起こされるトラップ損失も含まれるため、トラップ損失速度定数 α_n はイオン化速度定数 α_i に比べて同じかまたは大きな値であると考えられる。

同様に、トラップレーザー光が入射している場合にも、これらの現象論的速度方程式でイオン化とトラップ損失を記述することができるが、この場合の速度定数はトラップレーザー光が入射していない場合と大きく異なると考えられるので、トラップレーザー光の影響を受けた速度定数 α_i 、 α_n 、 k 、 β をそれぞれ $\tilde{\alpha}_i$ 、 $\tilde{\alpha}_n$ 、 \tilde{k} 、 $\tilde{\beta}$ と記述して区別する。

速度定数 k 或いは \tilde{k} で記述される極低温イオン化衝突には、Penning イオン化 (3・1・1) と結合性イオン化 (3・1・3) の 2 つのイオン化過程が存在するが、トラップレーザー光の影響の無い場合、すなわち (3・1・4) 式で表わされるような衝突の場合には、この 2 つのイオン化過程の分岐比は Penning イオン化が約 95% 程度であることが知られており [48]、結合性イオン化を無視することができる。一方、トラップレーザー

電場 常時 ON (45V/cm)

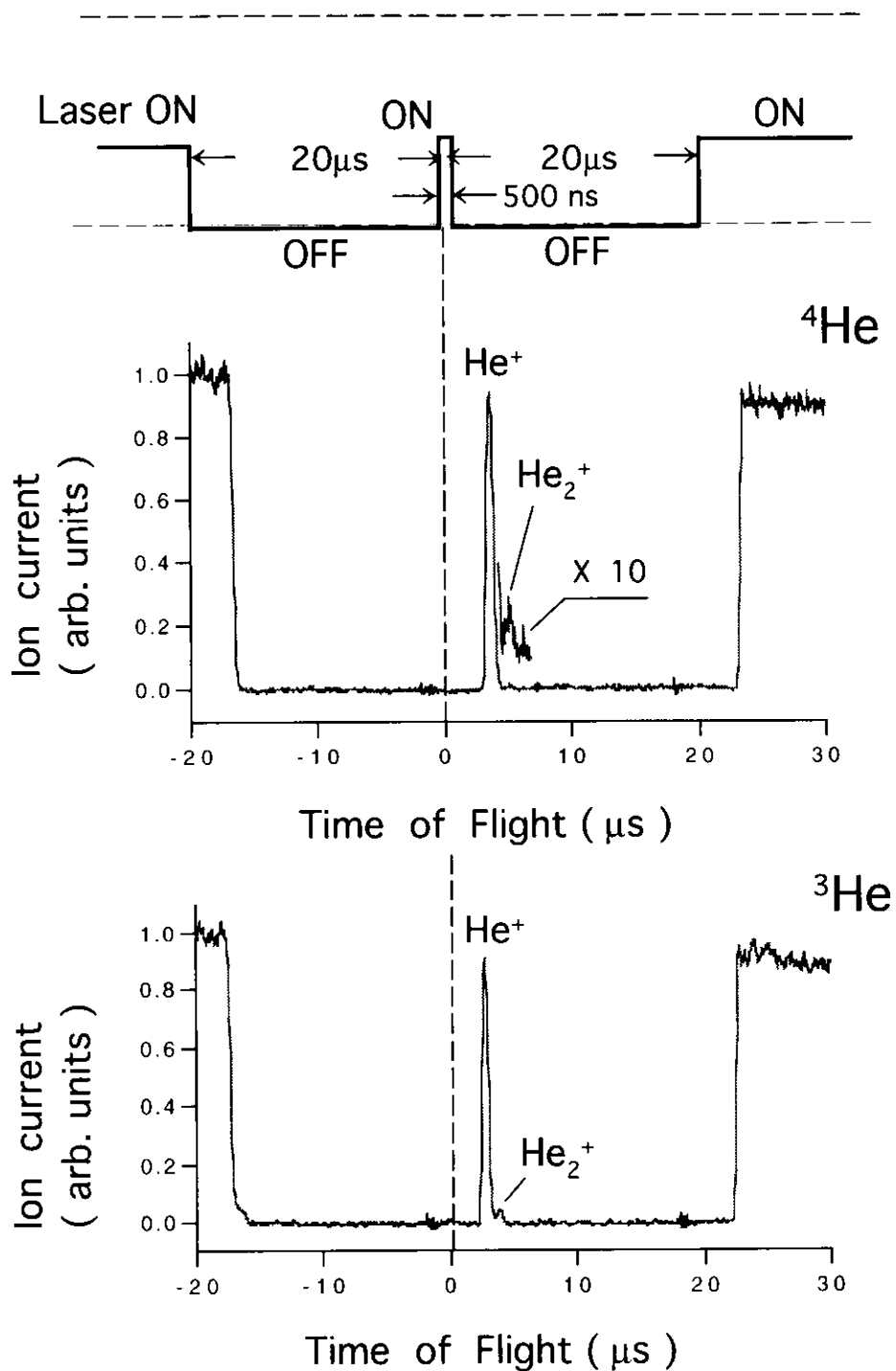


図 3-1-1 TOF法による生成イオンの質量分析

レーザー照射下での ${}^4\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ 衝突、 ${}^3\text{He}$ - ${}^3\text{He}$ 衝突における全イオン化過程に対する結合性イオン化への分岐比は、それぞれ約1.8%と4.5%と測定された。

光に影響されている場合については、以下に記述するように、生成イオンの質量分析を行ってイオン化過程の分岐比を求めたところ、両同位体について結合性イオン化への分岐比は5%以下で、トラップレーザー光に影響されていない場合と同様に、結合性イオン化過程を無視できることが分かった。

生成イオンの質量分析は次のようにして行った。トラップ中で生成したイオンを定常的に45 V/cmの電場で取り込み、MCP検出器で連続的に検出した。エネルギーと運動量の保存則から予想されるように、 He_2^+ はほぼトラップの温度程度の極低温のエネルギーを持って生成されるのに対し、 He^+ は電子励起エネルギーの一部を受け取り大きな運動エネルギーを持つことが可能で、両イオンの運動エネルギーが大きく異なると考えられる。したがって、イオンの取り込みに関しては十分な注意が払われねばならないが、イオンの軌道シミュレーションによって両イオンを全て取り込むのに十分なイオン取り込み電圧を決定して実験を行った。また、このことは、さらに高い取り込み電場を印加してもイオン検出強度が変わらないことによっても確認された。生成イオンの質量分析はトラップレーザー光のパルスを開始信号とする飛行時間 (TOF) 法によって行った。まず、 He^* 原子を定常的にトラップしてからトラップレーザーを全て同時に切り、その20 μs 後に再びトラップレーザーを500 nsの間パルス的に照射した。この500 nsに生成するイオンはトラップからMCP検出器まで飛行したのち検出され、トラップレーザーパルスから計ったイオンの飛行時間分布が測定された (図3-1-1)。トラップレーザーを照射していない期間にも、トラップされていた He^* 原子同士のイオン化衝突によって定常的にイオンが生成し検出されるが、§ 3. 2で述べるようにトラップレーザー照射下でのイオンの生成速度はレーザー照射していない場合に比べて30倍以上大きいため、主にトラップレーザー照射下で生成したイオンの質量分布がTOF分布として観測される。観測されたTOF分布には He_2^+ と He^+ の質量に対応する飛行時間に2つのピークが見られ、他に顕著な信号は見られなかった。 He_2^+ と He^+ 両者に対する検出器の感度が同じであると仮定して、それぞれのイオンの信号の面積から求めた全イオン化過程に対する結合性イオン化への分岐比は、 ^4He と ^3He でそれぞれ約1.8%と4.5%で、Penningイオン化に比べて無視できるほど小さかった。

このトラップレーザー光照射下での結合性イオン化への分岐比としては、最近⁴Heにおいて、16%という本研究に比べてかなり大きな測定値が Mastwijk らによって報告されている[42]。この分岐比の不一致の理由としては、イオンの軌跡のシミュレーション結果を用いた He₂⁺ と He⁺ の取込み効率に対する彼等の校正が不相当であることなどが考えられるが、いずれにしても、結合性イオン化への分岐比は Penning イオン化に比べて小さいので、イオン化速度定数 k や \tilde{k} として測定されるイオン化過程は主に極低温での Penning イオン化衝突によるものであるとみなすことができる。

§ 3. 2 イオン化速度定数の測定

He* 原子の極低温イオン化衝突に於ける同位体差とレーザー光の効果を観測するため、⁴He と ³He の両同位体について、トラップレーザー光照射時、非照射時のそれぞれの場合のイオン化速度定数を測定した。これらのイオン化速度定数は、(3・1・9) 式と (3・1・10) 式の数式であらわされるイオンの生成速度とトラップ原子数の減衰という異なった2つの方法で実験的に求めることができるが、まずトラップ原子数の減衰の観測による速度方程式 (3・1・10) を用いた速度定数の測定について説明し、次に生成イオンの直接観測による速度式 (3・1・9) を用いた速度定数の測定について述べる。

3. 2. 1 蛍光計測

トラップ中の極低温 He 原子の個数密度分布を 2. 2. 4 節で行ったように3次元ガウス分布 (2・2・1) で近似すると、全トラップ原子数 N の減衰に対する現象論的速度方程式は、個数密度の減衰に対する速度式 (3・1・10) を空間積分することにより、

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\alpha_n N(t) - \frac{\beta}{2\sqrt{2V}} \{N(t)\}^2 \quad (3 \cdot 2 \cdot 1)$$

と表わされ、全トラップ原子数 N の時間変化はこの速度式を積分して

$$N(t) = \frac{2\sqrt{2} \alpha_n N(0)}{\left[2\sqrt{2} \alpha_n + \beta \frac{N(0)}{V}\right] \exp(\alpha_n t) - \beta \frac{N(0)}{V}} \quad (3 \cdot 2 \cdot 2)$$

と求められる。これらの式はトラップレーザー光が入射していない場合の全トラップ原子数 N の時間変化を表わしているが、トラップレーザー光照射下での時間変化は速度定数 α_n 、 β をそれぞれ $\tilde{\alpha}_n$ 、 $\tilde{\beta}$ に置き換えることで同様に記述することができる。

全トラップ原子数 N の時間変化は、レンズで集光したトラップからの蛍光の一部を光電子増倍管や InGaAs-PIN フォトダイオードで検出することにより、蛍光の時間変化として観測した。トラップは第 2 章で述べた温度 0.5 mK、密度約 10^9 個/cm³ の MOT であり、そのトラップ径 (約 0.4 mm) はトラップレーザーのビーム径に比べて十分小さいので、トラップされた He 原子全体にわたって光強度はほぼ均一となっている。また、トラップ磁場が He 原子の蛍光効率に与える影響も、§ 2. 3 で述べたようにトラップ磁場による冷却遷移の Zeeman シフトの大きさがトラップレーザー光による飽和線幅に比べて十分小さいため、無視することができる。したがって、トラップからの蛍光強度は全トラップ原子数を良く近似していると考えられるので、全トラップ原子数の時間変化の式 (3・2・2) が蛍光減衰の時間変化に一致するように、最小自乗法によって速度定数を決定した。

トラップレーザー照射下での速度定数 $\tilde{\alpha}_n$ 、 $\tilde{\beta}$ は、連続的にトラップレーザー光を照射したまま時刻 $t=0$ で He* 原子線源の放電を切り He* 原子の MOT への供給を止めた後の蛍光減衰を観測することによって測定した。観測された蛍光減衰 (図 3-2-1) はパラメータ $\tilde{\alpha}_n$ 、 $\tilde{\beta} n_0(0)$ ($n_0(0)$ は初期ピーク原子数密度で、 $n_0(0) = N(0)/V$ である) の最適化によって (3・2・2) 式とよく一致し、これらのパラメータを数点のピーク原子数密度 $n_0(0)$ に対して測定した結果 (図 3-2-2) から速度定数 $\tilde{\alpha}_n$ 、 $\tilde{\beta}$ を求めた。得られた速度定数 $\tilde{\alpha}_n$ は、⁴He と ³He でそれぞれ $1.4 \pm 0.1 \text{ s}^{-1}$ 及び $2.8 \pm 0.2 \text{ s}^{-1}$ で、 $\tilde{\beta}$ は、それぞれ $(4.8 \pm 1.0) \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ と $(8.9 \pm 1.8) \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ である。

トラップレーザー非照射下での速度定数 α_n 、 β の測定は、次のようにして行った。定常的に He* 原子をトラップした後、時刻 $t=0$ で He* 原子の MOT への供給を止める

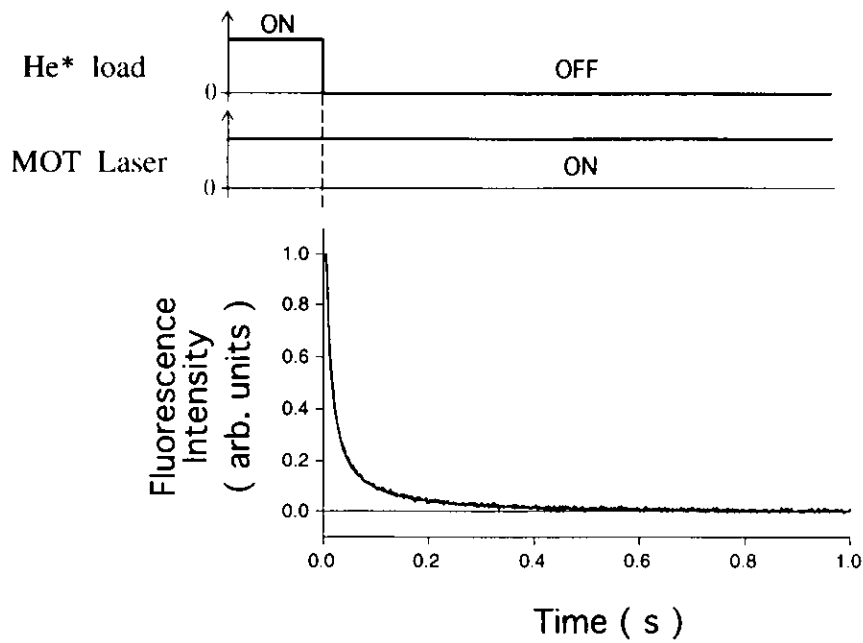


図 3-2-1 トラップレーザー光存在下に於ける MOT からの蛍光減衰
時刻 $t=0$ で He^* 原子の供給を止めた後の蛍光減衰で、これは ^3He での例である。 $t=0$ 付近では指数関数的減衰に比べて速い減衰となっている。実線は (3・1・12) 式を最小自乗法により実験データに一致させたものである。

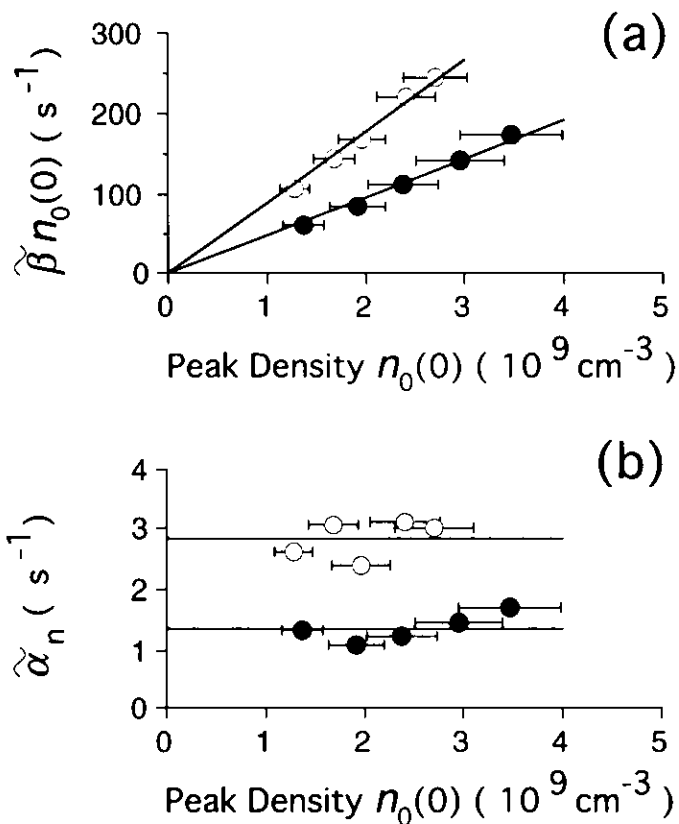


図 3-2-2 減衰速度 $\tilde{\alpha}_n$ 、 $\tilde{\beta} n_0(0)$ の初期ピーク原子数密度 $n_0(0)$ 依存性
(a)、(b) はそれぞれ $\tilde{\beta} n_0(0)$ 、 $\tilde{\alpha}_n$ の $n_0(0)$ 依存性を表わしており、○、● はそれぞれ ^3He と ^4He の場合の測定値である。実線は最小自乗近似による。

と同時に、連続的に照射していた全てのトラップレーザーを AOM でスイッチし、時間幅 $10\ \mu\text{s}$ 、周期 $100\ \mu\text{s}$ のパルス列にしてトラップに入射した (図 3-2-3)。このパルス列にしたトラップレーザー光は、全トラップ原子個数の時間変化を蛍光で観測するためのプローブであると同時に、極低温 He 原子に断続的にではあるが冷却とトラップの力を及ぼし、MOT のサイズや温度が変わってしまうことを防ぐ役割をしている。この $10\ \mu\text{s}$ のパルス幅は、トラップレーザー照射中のイオン化による全原子個数の変化が十分無視できるほど短い、しかし極低温 He 原子を冷却、捕捉しておける程度に十分長い。この時間内には光の吸収・放出の冷却サイクルが平均 5 回程度繰り返されると考えられるが、これが冷却、捕捉に十分長い時間であることは実験によっても確認した。また同様に、パルスとパルスの間の時間間隔 $90\ \mu\text{s}$ も、レーザー光の影響を除くた

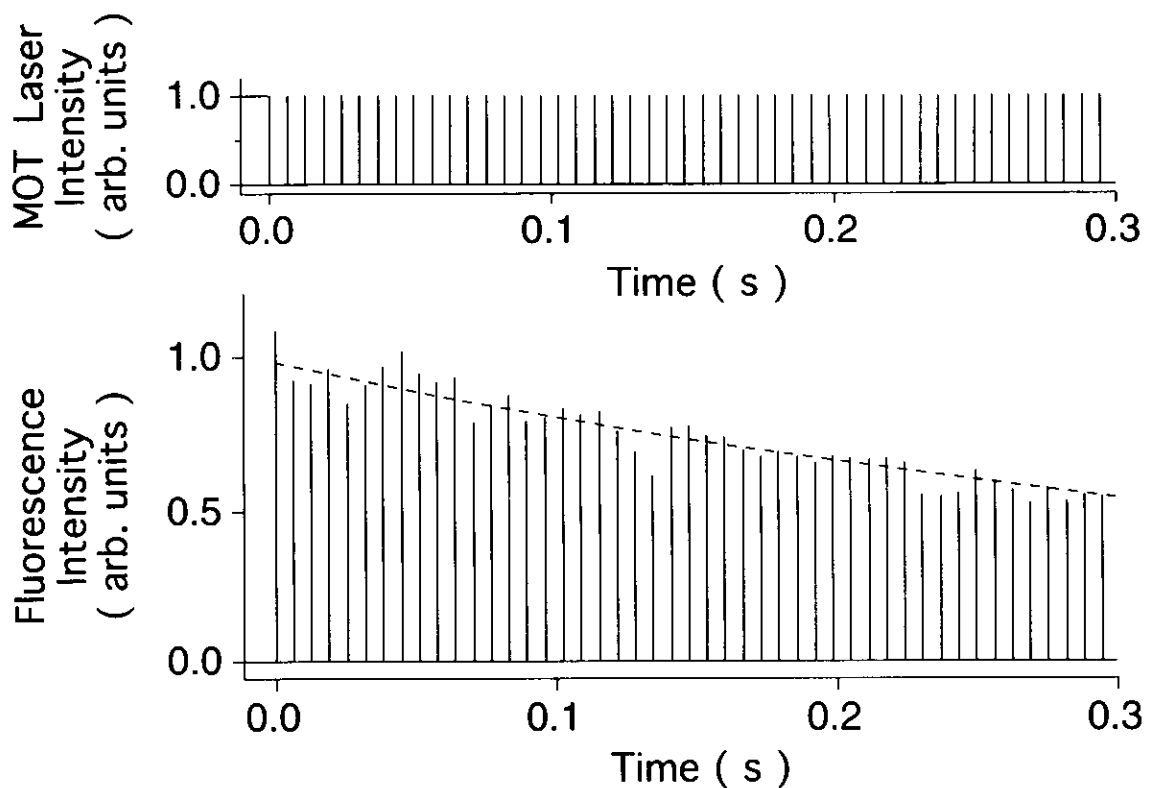


図 3-2-3 蛍光観測による速度定数 α_n 、 β の測定

時刻 $t=0$ で He^* 原子の生成を止めると同時に MOT レーザーを時間幅 $10\ \mu\text{s}$ 、繰返し $10\ \text{kHz}$ でスイッチし、MOT からの蛍光を観測した。簡単のため、図では全パルスの内 64 パルスに 1 パルスの割合で抜き出した結果を示してある。この蛍光減衰は ^3He での例であるが、指数関数的な減衰曲線 (破線) に良く一致している。

めできるだけ長く、しかし MOT の密度や温度が大きく変わらない程度に短いように選ばれている。トラップの温度 0.5 mK では、このパルス間隔の間の原子の移動距離は MOT の直径より短い約 0.13 mm 程度と見積もられ、トラップ密度の変化は小さいと考えられる。このようなパルス列でのレーザー光照射下では、トラップ原子数の減衰が主にレーザー光が入射していない場合のトラップ損失で決まっていて、レーザー光照射下のトラップ損失が無視できることは、速度式 (3・1・11) を用いたシミュレーションからも確認された。レーザー光の影響の少ない場合のトラップ損失速度の測定法としては、この方法の他にも単にトラップレーザー強度を小さくして蛍光減衰を測定する方法等も考えられるが、本実験のようなパルス列のトラップレーザー光を用いた方法では、強いトラップレーザー光による大きな蛍光の信号を SN 比よく観測することができ、また、レーザー光強度を弱めるよりもより効果的にレーザー光照射下でのトラップ損失の影響を除くことができるので、実験的に有利な方法であると考えられる。

図 3-2-3 に示すように、観測した蛍光パルス列の包絡線は指数関数的な減衰曲線によく一致し、準安定 He 原子同士の衝突イオン化によるトラップ損失速度 βn_0 は α_n に比べて無視できる程小さいと考えられる (このことは後に述べるイオン計測の結果からも確認される)。そこで、二次の項を無視した単純な指数関数によって蛍光パルス列の減衰を最小自乗近似して速度定数 α_n を求め、いくつかのピーク原子数密度 $n_0(0)$ に対するその平均値から速度定数 α_n を決定した (図 3-2-4)。得られた速度定数 α_n は、 ^4He と ^3He でそれぞれ $1.3 \pm 0.1 \text{ s}^{-1}$ 及び $1.9 \pm 0.1 \text{ s}^{-1}$ である。

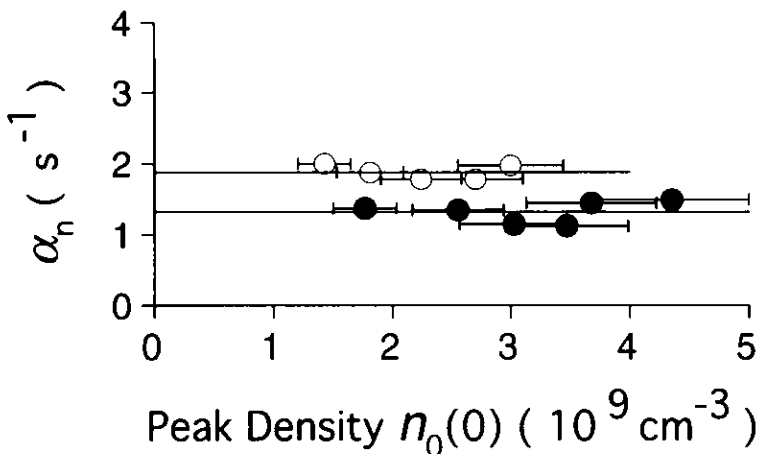


図 3-2-4 減衰速度 α_n の初期ピーク原子数密度 $n_0(0)$ 依存性
○、●はそれぞれ ^3He と ^4He の場合の測定値である。実線はそれぞれの速度に対する平均値である。

3. 2. 2 イオン計測

(3・2・1) 式を求めた場合と同様に、トラップ中の極低温 He 原子の個数密度分布を 3次元のガウス分布 (2・2・1) で近似すると、イオンの生成速度 (dI/dt) に対する現象論的速度方程式は、生成イオンの個数密度に対する速度式 (3・1・9) を空間積分することにより、

$$\frac{dI(t)}{dt} = V \alpha_i n_0(t) + \frac{V k}{2\sqrt{2}} \{n_0(t)\}^2 \quad (3 \cdot 2 \cdot 3)$$

と表わされる。この式はトラップレーザー光が入射していない場合のイオンの生成速度に対するものであるが、トラップレーザー光照射下での生成速度については速度定数 α_i 、 k をそれぞれ $\tilde{\alpha}_i$ 、 \tilde{k} に置き換えることで同様に記述することができる。

トラップ中で生成したイオンは 167 V/cm の静電場で取り込んだ後、2.8 keV の運動エネルギーまで加速してから直接 MCP 検出器で検出した。このイオン取り込み用静電場が生成したほぼ全ての He_2^+ と He^+ を取り込むのに十分強いことは、イオンの軌道のシミュレーションと共に実験からも確認した。また、この 2.8 keV の運動エネルギーでは、主な生成イオンである He^+ に対する MCP 検出器の検出効率が一定の高い値 (MCP の開口率に相当する約 36%) であることがこれまでに報告されており [102]、検出イオンの個数の校正を容易に行うことができる。

トラップレーザー光照射下と非照射下のそれぞれの場合でのイオンの生成速度を計測するために、AOM によって全てのトラップレーザー光を 20 Hz の繰り返しで 60 μs の間遮断し、2 台のパルスカウンター (それぞれカウンター A、カウンター B とする) を用いてレーザー光非照射期間と照射期間に生成したイオンをそれぞれ計測した (図 3-2-5)。レーザー光照射下での生成イオンの計測 (カウンター B) には、レーザー光の入射している期間である 49.94 ms の最後の 20 μs の間に検出したイオンの数を計測し、レーザー光非照射下での生成イオンの計測 (カウンター A) には、レーザー光を切った時点から 20 μs 経ってから、レーザー照射下と同様に 20 μs の間に検出したイオ

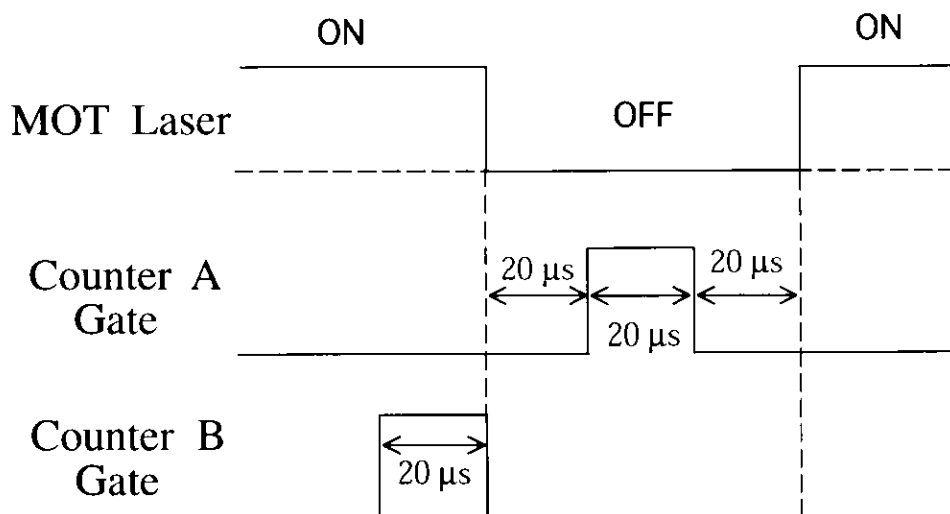


図 3-2-5 イオン計測のタイミングチャート

Counter A、Counter Bはそれぞれ MOT レーザー非照射時、照射時のイオンを計測する。この計数は 20 Hz で繰返され、各カウントは 1500 秒間に渡って積算された。

ンの数を計測した。この後者の測定においてレーザー光を切ってからイオンをカウントし始めるまでの $20 \mu\text{s}$ の期間は、冷却遷移の上準位である $2p^3P_2$ 状態の自然放出寿命 (98 ns) や AOM のスイッチ時間 ($< 1 \mu\text{s}$) に比べて十分長くしてあり、この待ち時間によって、MOT 中の He 原子がカウンター A の計測中にほぼ全て冷却遷移の下準位 $2s^3S_1$ 状態にあることが保証される。実際、この待ち時間の長さが、イオンの計数率がレーザー光照射下での値から非照射時の一定値に落ち着くのに十分長い時間であり、かつトラップした He^* 原子の個数密度の変化が無視できる程度には短い時間であることが、実験的に確認された。

MOT の磁場は測定中常に原子に加わっていたが、3. 2. 1 節で蛍光計測に関して述べたように、磁場による冷却遷移の Zeeman シフトの大きさ ($< 0.9 \text{ MHz}$) が原子の衝突エネルギー ($\sim 10 \text{ MHz}$) や冷却遷移の飽和線幅 ($\sim 11 \text{ MHz}$) に比べて十分小さいので、磁場の影響はこの場合も無視できる。

計測されたイオンのカウント数は、取込み時の加速電極間のイオンの透過率、MCP 検出器の量子効率、パルスカウンターのカウント効率などを考慮して校正し、イオン

化速度の絶対値を求めた。このイオン化速度は数点のピーク原子数密度 ($n_0(0)$) に対して測定され (図 3-2-6)、その密度依存性からイオン化速度定数が決定された。この決定は、(3・2・3) 式を図 3-2-6 の実験データに最小自乗近似することによってなされたが、その際、(3・2・3) 式の一次の項を無視した。その理由は、測定値があまり低密度の場合に対して得られていないために、一次の項を入れたまま最小自乗近似を行うと、得られる結果に大きな誤差を生むためである。実際、レーザー光照射時のイオン化速度の場合には、前節 3. 2. 1 で求めた速度定数 $\tilde{\alpha}_n$ 、 $\tilde{\beta}$ から、(3・1・13) 式の密度に関する一次の項は、本研究の実験条件では二次の項に比べて十分小さく無視することができることが分かる。また、レーザー光非照射時のイオン化速度とレーザー光照射時のイオン化速度との間には図 3-2-7 で示したように良い

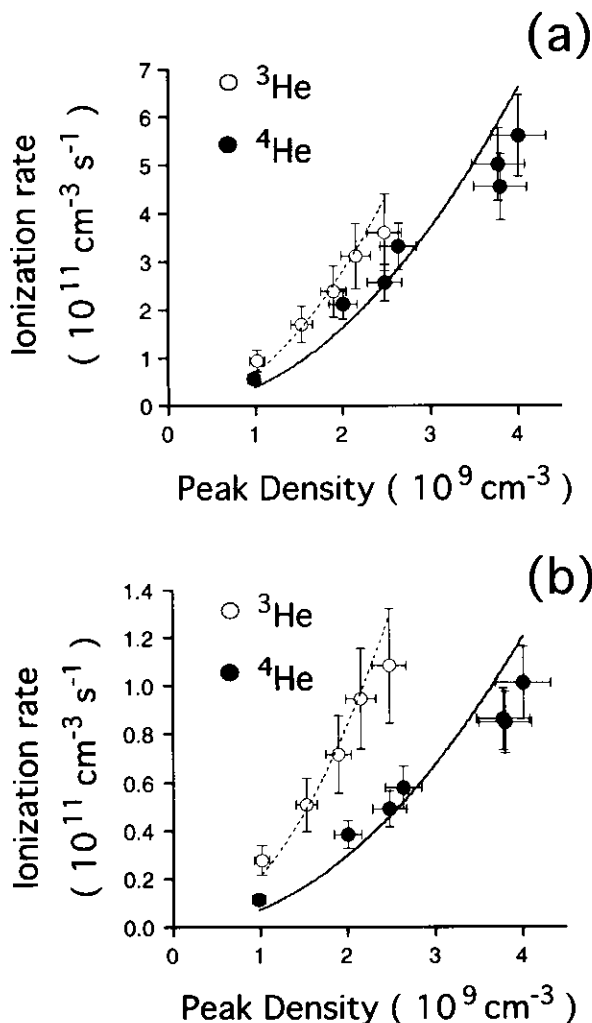


図 3-2-6 イオン計測によって得られたイオン化速度の密度依存性 (a)、(b) はそれぞれ MOT レーザー照射時、非照射時のイオン化速度に対するもので、実線と破線はそれぞれ ^3He と ^4He での測定値 \circ および \bullet に対して最小自乗近似された (3・2・3) 式の 2 次曲線である。(1 次項は無視した。)

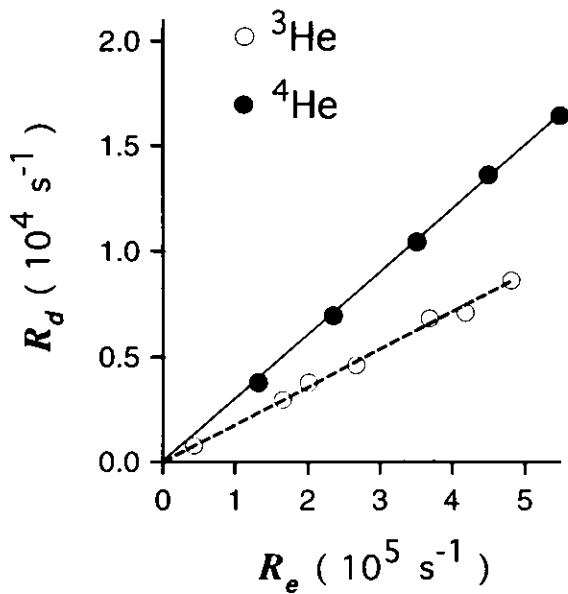


図3-2-7 MOTレーザー照射時と未照射時

のイオン化速度 R_e および R_d の相関

○および●は、 ^3He と ^4He それぞれについて数点の原子密度で得られた測定値を表わし、破線および実線はそれぞれの相関に対して最適化した直線である。 ^3He と ^4He の両方の場合とも、 R_e および R_d は良い比例関係にあることがわかる。

比例関係があることは、レーザー光非照射時においても照射時と同様に一次の項を無視することができることを示している。得られた速度定数 \tilde{k} は、 ^4He と ^3He で各々 $(2.1 \pm 0.6) \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ と $(3.5 \pm 1.3) \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ で、 k は各々 $(3.8 \pm 1.1) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ と $(1.1 \pm 0.4) \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ である。なお、一次の項を無視したことから、当然ながらこの測定では α_i や $\tilde{\alpha}_i$ は求めることはできなかった。

蛍光計測の場合には、 $\beta n_0(0)$ が α_n に比べて小さかったために二次の速度定数 β ($=2k$)を求めることができなかったが、イオン計測では \tilde{k} と k の両方を求めることができた。このことは、イオン生成の速度定数 α_i がトラップ原子の損失の速度定数 α_n に比べてかなり小さいことを示している。

§ 3. 3 測定結果に関する考察

実験から得られた速度定数を表3-3-1にまとめて示す。以下では、 ^4He の場合の速度定数 α_n 、 $\tilde{\alpha}_n$ 、 k 、 \tilde{k} をそれぞれ $^4\alpha_n$ 、 $^4\tilde{\alpha}_n$ 、 4k 、 $^4\tilde{k}$ と表わし、 ^3He 場合にはそれぞれ $^3\alpha_n$ 、 $^3\tilde{\alpha}_n$ 、 3k 、 $^3\tilde{k}$ と表わすこととする。

蛍光計測からは速度定数 α_n 、 $\tilde{\alpha}_n$ 、 \tilde{k} ($=\tilde{\beta}/2$)を、イオン計測からは k 、 \tilde{k} を独

表 3-3-1 トラップ損失およびイオン化の速度定数の実験値

同位体	速度定数				
	α_n (s ⁻¹)	$\tilde{\alpha}_n$ (s ⁻¹)	k (cm ³ s ⁻¹)	\tilde{k} (cm ³ s ⁻¹)	
⁴ He*	(1.3 ± 0.1) ^a	(1.4 ± 0.1) ^a	(3.8 ± 1.1) × 10 ⁻¹⁰ ^b	(2.4 ± 0.5) × 10 ⁻⁸ ^a	(2.1 ± 0.6) × 10 ⁻⁸ ^b
³ He*	(1.9 ± 0.1) ^a	(2.8 ± 0.2) ^a	(1.1 ± 0.4) × 10 ⁻⁹ ^b	(4.5 ± 0.9) × 10 ⁻⁸ ^a	(3.5 ± 1.3) × 10 ⁻⁸ ^b

^a は蛍光減衰測定により求めた速度定数。

^b はイオン計数測定により求めた速度定数。

なお、 $\beta = 2k$ 、 $\tilde{\beta} = 2\tilde{k}$ である。

立に求めることができたが、両方の計測法で測定可能であった \tilde{k} については、 ${}^4\tilde{k}$ と ${}^3\tilde{k}$ のいずれにおいても両方の計測で実験誤差内で同じ結果が得られており、この実験で行った計測値の校正法および求められた速度定数の絶対値に対する信頼性を確認することができた。

これらの速度定数に関しては、³He についての報告はこれまでに無いが、⁴He については Bardou らによる ${}^4\tilde{k} = 3.5 \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ (誤差因子約 4 倍)[35] と Mastwijk らによる ${}^4k = (2.7 \pm 1.2) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ 及び ${}^4\tilde{k} = (4.8 \pm 2) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ (He 原子の励起確率 0.5 を考慮してある)[42] が 1 mK の温度で報告されている。本研究で得られた 4k は、温度の違いを考慮すると Mastwijk らの値とよく一致している (原子の速度分布に Boltzmann 分布を仮定すると、Mastwijk らの測定値から 0.5 mK で予想される 4k は $\sqrt{2} \times (2.7 \pm 1.2) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s} = (3.8 \pm 1.7) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ である)。また、同様に ${}^4\tilde{k}$ に関する本研究の測定値は、Bardou らによる ${}^4\tilde{k}$ とよく一致する結果となっている。しかしながら、Mastwijk らによる ${}^4\tilde{k}$ は、温度の違いを考慮すると本研究の結果に比べて約 60 倍小さい値となっている。この大きな相違は、彼等の MOT サイズが、トラップレーザー光の離調が小さい時に実際より小さく見積もられていたことによるのではいかと考えられる。彼等はトラップ温度測定に用いた He* 原子の TOF 分布の結果とモデル計算とを比較して MOT の密度を求めており、本研究で行ったような MOT の原子数密度分布を光学的に直接観測するようなことは行っていない。MOT の形状や密度、温度は、トラップレーザー光の周波数が共鳴に近い程、レーザー光と磁場のミスアライメント及びレーザー強度や偏光の不均衡に敏感であり、本実験の場合と同様に共鳴に近

い場合には、離調が大きい時と比べてそれらが大きく変化している可能性が考えられる。この ${}^4\text{He}$ でのイオン化速度定数については、ごく最近、TolらによってBardouらやMastwijkらと同じ1 mKの温度での測定が行われ、本研究の速度定数を支持する結果が報告されている[47] (${}^4k = 1.3(2) \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ 及び ${}^4\tilde{k} = 6.5(2) \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ で、これらの値はトラップ温度を考慮すると本研究の測定値とほぼ一致している)。

得られたイオン化速度定数 k を同位体間で比較すると、 3k は 4k の約3倍であり、この測定では他の希ガス原子の場合とは異なりトラップ原子のスピンを偏極させなかったにも関わらず、質量、速度の比のみから予想される同位体比1.5(第4章で後述)に比べて約2倍の大きな同位体差のあることが分かった。また、この同位体差は、他の希ガス原子における結果[53, 54](ボゾンでの k がフェルミオンでの k より大きい)とは逆の大小関係となっており、興味深い結果である。

一方、トラップレーザー照射下のイオン化速度定数 \tilde{k} は、両原子の場合とも k よりも大きく増大しており、増大の大きさは、 ${}^4\text{He}$ と ${}^3\text{He}$ でそれぞれ55倍と32倍であった。これらのHeでの増大率は、Heの場合と同様に飽和強度より十分強いトラップレーザー光照射によって得られた ${}^{132}\text{Xe}$ での約20倍[31]や ${}^{83}\text{Kr}$ での約14倍[74]と同程度の値となっている。増大率は、 ${}^4\text{He}$ の場合が ${}^3\text{He}$ の場合に比べて1.7倍大きい。したがって、 \tilde{k} の絶対値自身については ${}^3\tilde{k}$ は ${}^4\tilde{k}$ の約1.7倍で、 k の場合と比べて小さな同位体差となっている。

これら k や \tilde{k} に於ける同位体差の原因やレーザー光による増大の効果の大きさについては、次の第4章でこれらのイオン化速度定数の理論計算を行うことによって議論する。

最後に、一次の速度定数 α_n に対するレーザー光の影響と同位体間の相違について考察する。得られた速度定数 α_n と $\tilde{\alpha}_n$ は、 ${}^4\text{He}$ の場合には両者がほぼ一致し、トラップレーザー光の影響は見られなかった。本研究の実験条件では、トラップレーザー光照射下のHe原子は約45%が冷却遷移の上準位 $2p^3P_2$ 状態にあると考えられる。したがって、レーザー光の影響が見られなかったことは、下準位 $2s^3S_1$ 状態と上準位 $2p^3P_2$ 状態の原子で残留ガスとの衝突によるトラップ損失があまりかわらないことを示しているといえる。一方、 ${}^3\text{He}$ の場合には、 ${}^3\alpha_n$ は ${}^4\alpha_n$ にほぼ一致し同位体間で明確な差はなかつ

たが、 ${}^3\tilde{\alpha}_n$ は ${}^3\alpha_n$ に比べて約 0.9 s^{-1} も大きな値となっている。このような ${}^3\tilde{\alpha}_n$ と ${}^3\alpha_n$ の差が超微細構造を持たない ${}^4\text{He}$ では見られないという事実と、2. 2. 4 節で見積もった近接超微細構造準位を経由する非共鳴の光ポンピングによる原子損失の速度 (1.1 s^{-1}) とほぼ一致するという事実は、この速度差が主にこの非共鳴光ポンピングによる原子損失によるものであることを示している。また、残留ガスとの衝突による原子の損失速度は両同位体でレーザー光の照射、非照射に関わらずほぼ同じであることも示している。このように ${}^3\text{He}$ の場合には、実際、非共鳴の光ポンピングによる原子損失が存在するが、速度定数 ${}^3\tilde{\alpha}_n$ で表わされる原子の損失は、本研究の原子密度においては ${}^4\tilde{\alpha}_n$ と同様にイオン化による原子の損失 ${}^3\tilde{k} n_0(0)$ や ${}^4\tilde{k} n_0(0)$ に比べて十分小さいため、リポンピングレーザーを用いること無しに、 ${}^4\text{He}$ 原子と同程度の個数および密度で ${}^3\text{He}$ 原子をトラップすることができたものと考えられる。

第 4 章

準安定 He 原子の極低温イオン化衝突

— 理論計算 —

Phys. Rev. Lett. **82**, 2848 (1999) 発表済み

本章では、前章において実験的に観測された極低温 0.5 mK での $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突イオン化速度定数 k の大きな同位体差 (${}^3k/{}^4k \sim 3$) や、それらの速度定数のトラップレーザー光による増大効果の大きさ (${}^3\tilde{k}/{}^3k$ と ${}^4\tilde{k}/{}^4k$) を決めている要因等を明らかにするために、 ${}^4\text{He}$ と ${}^3\text{He}$ それぞれについてイオン化速度定数 k および \tilde{k} の理論計算を行った。

まず初めに § 4. 1 で二体の衝突イオン化の速度定数に対する一般的な表式について述べた後、§ 4. 2 で 0.5 mK における $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突イオン化速度定数 3k および 4k の理論計算を行ってそれらの間の同位体差の原因を明らかにし、次に § 4. 3 で、トラップレーザー光照射下での衝突イオン化速度定数 ${}^3\tilde{k}$ および ${}^4\tilde{k}$ の計算を行ってトラップレーザー光による速度定数増大効果の大きさを決めている要因や \tilde{k} の同位体差について考察する。

§ 4. 1 二体イオン化衝突の速度定数

本研究の実験で観測された衝突イオン化は ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ や ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ という二体の衝突によるものであるが、このような二体衝突によるイオン化速度定数 k は一般にイオン化衝突断面積 σ 、衝突原子間の相対速度 u 、相対速度分布 $G(u)$ を用いて

$$k = c_0 \int \sigma u G(u) du \quad (4 \cdot 1 \cdot 1)$$

と表わされる[103]。ここで c_0 は同種原子の衝突の場合は 1/2、異種原子の場合は 1 の

定数である。一般に衝突問題では、原子間距離が無限大の時の個々の原子の内部状態の違いや相対運動の角運動量状態の違いによって区別される「始状態」に依存して様々に異なった現象が起こるが、そのそれぞれの始状態を「衝突チャンネル」と呼ぶ。(4・1・1) 式中の断面積 σ はそれらの衝突チャンネルのイオン化確率の総和から成るものであり、衝突のエネルギー $E (= 3k_B T / 2)$ 、衝突原子対の換算質量 μ 、各衝突チャンネルにおける原子対の占有率 $O(i)$ 、各衝突チャンネルにおいて両原子が無限大の原子間距離からイオン化が可能な近距離まで接近することのできる確率 $P_T(i, E)$ 、および各衝突チャンネルのイオン化確率 $P_I(i, E)$ を用いて、

$$\sigma = \frac{1}{c_0} \frac{h^2}{8\pi\mu E} \sum_{i \in \text{全衝突チャンネル}} O(i) P_T(i, E) P_I(i, E) \quad (4 \cdot 1 \cdot 2)$$

で表わされる。ここで、 i は衝突チャンネルを表すインデックスであり、式中の総和は、衝突原子対に固有の様々な対称性からの要請を満足する全ての衝突チャンネルにわたって行われる。

(4・1・2) 式中の衝突チャンネルの占有率 $O(i)$ は衝突する2つの原子の内部状態の相対的な配向の分布に依存するが、その配向分布が等方的であるときは各衝突チャンネルにおける原子対の占有率 $O(i)$ はすべて等しいと考えることができる。そのような場合は、2つの原子の内部状態の全縮退度を $g (= (\text{原子1の縮退度}) \times (\text{原子2の縮退度}))$ とすると (4・1・2) 式は、

$$\sigma = \frac{1}{c_0} \frac{h^2}{8\pi\mu E} \frac{1}{g} \sum_{i \in \text{全衝突チャンネル}} P_T(i, E) P_I(i, E) \quad (4 \cdot 1 \cdot 3)$$

と書くことができる。本研究の実験では、§ 2. 3 で述べたように、MOT 中の磁場変化による原子の空間的なエネルギー変化に比べて冷却遷移の飽和幅やトラップ原子の温度が十分大きいので、MOT 中の原子の運動や配向に対するトラップ磁場の影響を無視できる。さらに、MOT 中の原子では遷移強度の異なる σ^+ 、 σ^- 、 π の各遷移が起

こるが、トラップレーザー光の強度がこれらの遷移の飽和強度に比べて十分大きいため、原子の各磁気副準位の占有数はほぼ等しいと近似できる。これらのことから、本研究の実験条件の下では衝突する2原子間の相対的な配向は等方的であると考えられることができるので、本研究における衝突イオン化断面積の計算には(4・1・3)式を用いることができる。

(4・1・3)式の中の $P_T(i, E)$ は、各衝突チャンネルの衝突ポテンシャル上に存在し得るポテンシャル障壁の高さと衝突エネルギー E との関係から決まる。ポテンシャル障壁の高さが E よりも低い(またはポテンシャル障壁が無い)チャンネルに対しては $P_T(i, E) = 1$ であり、高いチャンネルに対する $P_T(i, E)$ はポテンシャル障壁をトンネリングして通り抜けて両原子が近づく確率に等しい。このトンネル確率が無視できる場合は、ポテンシャル障壁が E よりも低いようなチャンネルに対しては $P_T(i, E) = 1$ 、高いようなチャンネルに対しては $P_T(i, E) = 0$ となり、(4・1・3)式は

$$\sigma = \frac{1}{c_0} \frac{h^2}{8\pi\mu E} \frac{1}{g} \sum_{i \in \substack{\text{ポテンシャル障壁が} \\ E \text{ より低いチャンネル}}} P_T(i, E) \quad (4 \cdot 1 \cdot 4)$$

と書ける。このような場合は、ポテンシャル障壁が E よりも低いようなチャンネルのイオン化効率 $P_I(i, E)$ のみが分かればイオン化断面積を計算することができることになる。

§ 4. 2 極低温 $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突におけるイオン化速度定数の理論計算

この節では、まず4. 2. 1節で $^4\text{He}(2s^3S_1) + ^4\text{He}(2s^3S_1)$ 衝突イオン化について、次に4. 2. 2節で $^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + ^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ 衝突イオン化についてそれぞれ理論的考察を行い、4. 2. 3節でそれらの考察に基づいてそれぞれの衝突イオン化速度定数を求める。そして最後に4. 2. 4節で、これらの理論計算で得られた結果について議論する。

4. 2. 1 極低温 ${}^4\text{He}(2s\ {}^3S_1) + {}^4\text{He}(2s\ {}^3S_1)$ イオン化衝突についての理論的考察

${}^4\text{He}(2s\ {}^3S_1) + {}^4\text{He}(2s\ {}^3S_1)$ 衝突の場合は、衝突する2つの ${}^4\text{He}$ 原子は両方とも核スピン0、電子軌道角運動量0、電子スピン1の同じ状態であるため、十分大きな原子間距離では、衝突ポテンシャルを決めている主な原子間相互作用は遠心力と van der Waals 相互作用である。これらの相互作用に対するハミルトニアンは、原子間距離を r とすると、それぞれ

$$\hat{H}_c = c_c \frac{\hat{L}^2}{r^2} \quad (4 \cdot 2 \cdot 1)$$

$$\hat{H}_v = -\frac{c_v}{r^6} \quad (4 \cdot 2 \cdot 2)$$

と表わされ、これら2つの相互作用のバランスによっていわゆる遠心力障壁が衝突ポテンシャルに生ずる。ここで、 c_c 、 c_v はそれぞれ 2.5 GHz nm^2 、 $4.7 \times 10^5 \text{ MHz nm}^6$ [48, 83] なる定数である。 ${}^4\text{He}(2s\ {}^3S_1)$ 原子間の相互作用としてはこの他にスピン-スピン相互作用も存在するが、この相互作用の大きさは $13 \text{ MHz nm}^3 / r^3$ 程度であり、遠心力と van der Waals 力とで決まる遠心力障壁の近辺 ($r \sim$ 数 nm) やそれより大きな原子間距離ではこれら2つの相互作用に比べて無視することができる。このため、遠心力障壁の位置や高さは、遠心力と van der Waals 力とによって殆ど決まっている。また、原子対が数 Å の距離にまで接近した場合には原子間での電子の交換により化学的な結合力が働くが、このような力が働く原子間距離の領域は遠心力障壁の位置に比べて十分内側であり、ここでの議論に関係するような遠距離でのポテンシャルには影響しない。

このように遠心力と van der Waals 力が主要な相互作用である ${}^4\text{He}(2s\ {}^3S_1) + {}^4\text{He}(2s\ {}^3S_1)$ 衝突では、

- 1) 全粒子の座標の反転 \hat{i}
- 2) 原子核の交換 \hat{P}_N

- 3) 核スピンの交換 \hat{P}_s
- 4) 原子核の名前の交換 \hat{P}_{12}
- 5) 電子の座標の反転 \hat{i}_e

が原子間距離によらず全系に対して良い対称操作となる[104-108]。これらの間には

$$\hat{P}_{12} = \hat{P}_N \hat{P}_s \quad (4 \cdot 2 \cdot 3)$$

$$\hat{i}_e = \hat{i} \hat{P}_{12} \quad (4 \cdot 2 \cdot 4)$$

の関係があるため、独立な対称性としては3種類であり、衝突原子対を表わす波動関数はこれらの対称性の偶奇によって分類される。

原子間距離が非常に大きい場合、原子間相互作用は個々の原子内の相互作用に比べて無視できる程小さい。この場合、全系を記述する際には、個々の ^4He 原子の全角運動量 \hat{j}_a, \hat{j}_b の量子数 j_a, j_b ($2s^3S_1$ 状態では共に1) やそれらの和 $\hat{j} = \hat{j}_a + \hat{j}_b$ の量子数 j (0, 1, または2)、互いの相対運動の角運動量 \hat{L} の量子数 L (すなわち散乱部分波の次数で、0以上の整数)、全系の全角運動量 $\hat{J} = \hat{j} + \hat{L}$ の量子数 J 及びその空間射影 \hat{J}_M の量子数 M がすべて良い量子数となり (Hund's case(e)[109-115])、対称化した全系の波動関数 Ψ_{SS} は

$$\Psi_{SS} = | ((j_a j_b) j L) J M \rangle \quad (4 \cdot 2 \cdot 5)$$

で表わされる。この波動関数 Ψ_{SS} の対称性は、

$$\hat{i} \Psi_{SS} = (-1)^L \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 6)$$

$$\hat{P}_N \Psi_{SS} = (-1)^{j+L} \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 7)$$

$$\hat{P}_s \Psi_{SS} = \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 8)$$

$$\hat{P}_{12} \Psi_{SS} = (-1)^{j+L} \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 9)$$

$$\hat{i}_e \Psi_{SS} = (-1)^j \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 10)$$

となるが[110-114]、原子核がボゾンである ${}^4\text{He}$ 原子では、量子統計対称性の要請から全系は必ず原子核の交換 \hat{P}_N に対して対称であるため、 $j+L$ が偶数である波動関数のみが許される。このような遠距離では各衝突チャンネルのポテンシャルエネルギーはほぼ遠心力のみで決まっており、各チャンネルの電子状態による差は無視できる。

二つの原子が接近するにつれて、原子間にはまず反発的な遠心力 ($L \neq 0$ の場合) が次第に強く働き出し、さらに接近すると引力的な van der Waals 力が遠心力より強く働くようになる。この両者の大きさがバランスするところに遠心力障壁が存在する。

衝突原子対のイオン化は原子がさらに接近して化学的な結合力が大きいような原子間距離で起こるが、一般にこのような原子間距離の領域では、各角運動量の分子軸への結合が大きいため衝突原子対を分子として考えることが適切である[109]。しかしながら $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突では、原子対の全電子軌道角運動量が0であるために全電子スピン \hat{S} の分子軸への結合が弱いので、無限遠の時と同様に、 j (\hat{S} の量子数 S に等しい)、 L 、 J 、 M がこのような近距離まで衝突原子対の全系を表現する良い量子数となる (Hund's case(b) [105-107, 109])。このような短い原子間距離では、衝突原子対の電子状態は各 j によってエネルギーが大きくスプリットし、その電子状態は $j=0, 1, 2$ に対応してそれぞれ ${}^1\Sigma_g^+$ 、 ${}^3\Sigma_u^+$ 、 ${}^5\Sigma_g^+$ と表記される。これらの電子状態では、量子統計対称性からの要請によって、取り得る回転量子数 L に対して無限大の原子間距離の場合と同じ制限があり ($j+L$ が偶数)、それぞれ偶、奇、偶のパリティを持った回転状態のみが許される。

一般にはこれらの異なった電子状態 ${}^1\Sigma_g^+$ 、 ${}^3\Sigma_u^+$ 、 ${}^5\Sigma_g^+$ からのイオン化の効率は互いに異なることが予想されるが、 ${}^4\text{He}(2s^3S_1) + {}^4\text{He}(2s^3S_1)$ 衝突における主なイオン化過程である Penning イオン化については常温や数 K での実験結果や理論的考察から、イオン化効率のエネルギー依存性が無視できることや、 ${}^1\Sigma_g^+$ 、 ${}^3\Sigma_u^+$ 状態からのイオン化効率がほぼ1であるのに対して ${}^5\Sigma_g^+$ 状態からのイオン化効率はスピン保存則[116]によりほぼ0であることが知られている[48]。したがって本計算では、エネルギー依存性は無視して、 ${}^1\Sigma_g^+$ 、 ${}^3\Sigma_u^+$ からのイオン化効率は1、 ${}^5\Sigma_g^+$ からのイオン化効率は0であるとして計算を行う (回転量子数 L に対する依存性も無視する)。

上に述べたのはイオン化が起こるような小さな原子間距離でのイオン化効率について

であるが、それに対して、無限大の原子間距離での衝突チャンネルのうちどのチャンネルがイオン化可能かを知るためには、それらの衝突チャンネルとイオン化が起こるような原子間距離での電子状態 $^1\Sigma_g^+$ 、 $^3\Sigma_u^+$ 、 $^5\Sigma_g^+$ との相関が分からねばならない。この相関は断熱的な変化を仮定すると Wigner-Witmer の相関則[117]から求められるが、例として $L=0$ (s 波) と $L=1$ (p 波) の衝突チャンネルについてその相関図を図4-2-1に示す。量子統計対称性からの要請 ($j+L$ が偶数) により遠距離での $L=0$ の衝突チャンネルとしては $j=0, 2$ の電子状態のチャンネルのみが許されるが、これらのチャンネルは、図4-2-1に示したように、イオン化が起こるような近距離ではそれぞれ $^1\Sigma_g^+$ 、 $^5\Sigma_g^+$ 電子状態の $L=0$ の準位と相関を持つ。しかしながら、先に議論したように、これらの電子状態のうち $^1\Sigma_g^+$ のみが確率1でイオン化可能であり $^5\Sigma_g^+$ のイオン化確率は0であると仮定できるため、 $j=0, 2$ の2つの衝突チャンネルのうち確率1でイオン化可能なものは $j=0$ のチャンネルのみとなる。一方、 $L=1$ の衝突チャンネルは同じく量子統計対称性からの要請により $j=1$ の電子状態のみを持つことができるが、このチャンネルはイオン化が起こる原子間距離では $^3\Sigma_u^+$ 電子状態の $L=1$ の準位と相関を持つ。したがって、

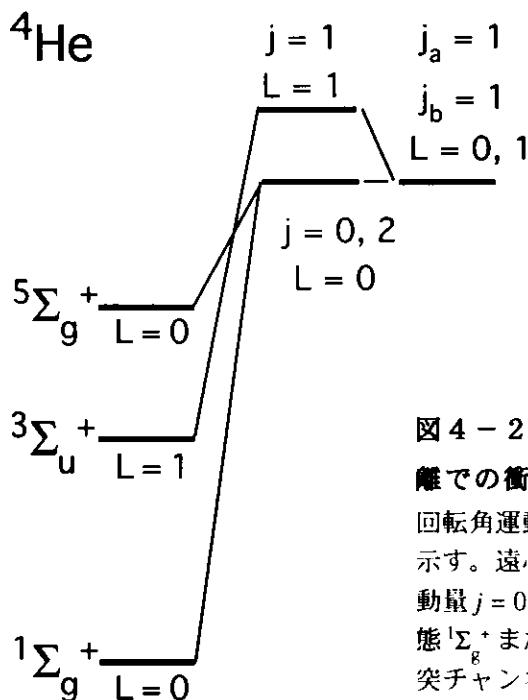


図4-2-1 $^4\text{He}(2s^3S_1) + ^4\text{He}(2s^3S_1)$ 原子対の遠距離での衝突チャンネルと近距離での電子状態の相関図
 回転角運動量 L が0と1である衝突チャンネルに対する例を示す。遠心力障壁のない $L=0$ のチャンネルは電子状態の角運動量 $j=0, 2$ の6つであるが、そのうちイオン化可能な電子状態 $^1\Sigma_g^+$ または $^3\Sigma_u^+$ に相関を持つのは角運動量 $j=0$ の1つの衝突チャンネルだけである。

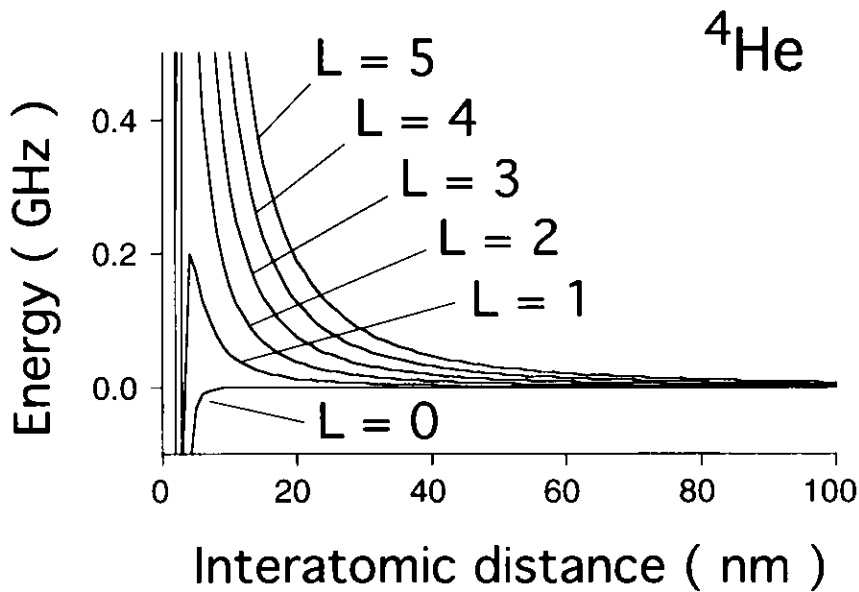


図4-2-2 ${}^4\text{He}(2s^3S_1) + {}^4\text{He}(2s^3S_1)$ 衝突におけるポテンシャルエネルギー曲線
 回転角運動量の量子数 L が0から5である衝突チャンネルに対する例を示す。 $L > 0$ では衝突エ
 ネルギー0.5 mK ($\sim 10\text{MHz}$) に比べてはるかに大きな遠心力障壁となっている。

$L = 1$ 、 $j = 1$ の衝突チャンネルは確率1でイオン化可能である。

最後に ${}^4\text{He}(2s^3S_1) + {}^4\text{He}(2s^3S_1)$ 衝突における衝突ポテンシャルについて考察する。計算によって得られた遠心力障壁近傍のポテンシャル曲線の例を図4-2-2に示す。遠心力と van der Waals 力が主に働くこのような原子間距離の領域では、先に述べた議論から分かるように各電子状態ごとの衝突ポテンシャルの違いは無視できるため、ポテンシャル曲線は2原子の相対運動の角運動量量子数 L (すなわち散乱部分波の次数) のみによってその振る舞いがほぼ決まっている。

図4-2-2からも分かるように、 $L \geq 1$ のチャンネルの衝突ポテンシャルには $L(L+1)$ の $3/2$ 乗に比例して高くなる遠心力障壁があり、最も低い $L = 1$ のチャンネルの場合でも本研究の実験で設定された衝突エネルギー0.5 mK ($\sim 10\text{MHz}$) よりはるかに高い10 mK ($\sim 200\text{MHz}$) 程度の高さを持つ。したがって、二つの原子が無限大の原子間距離からイオン化が起こるような近距離まで確率1で近づけるような衝突チャンネル

(つまり (4・1・3) 式で $P_T(i, E) = 1$ となるチャンネル) は $L = 0$ すなわち s 波のチャンネルのみである。他の $L \geq 1$ のすべてのチャンネルでは、衝突エネルギーよりはるかに高いポテンシャル障壁をトンネリングする僅かな確率でしかイオン化が起こる原子間距離まで近づくことができない。したがって、衝突エネルギー 0.5 mK の本研究の実験における衝突イオン化は、殆ど s 波のチャンネルのみで起っていると考えられる。

4. 2. 2 極低温 ${}^3\text{He}(2s^3S_1, F = 3/2) + {}^3\text{He}(2s^3S_1, F = 3/2)$ イオン化衝突についての理論的考察

${}^3\text{He}(2s^3S_1, F = 3/2) + {}^3\text{He}(2s^3S_1, F = 3/2)$ 衝突の場合は、 ${}^4\text{He}$ の場合と同様に遠距離での 2 つの ${}^3\text{He}$ 原子間の主たる相互作用は遠心力と van der Waals 力とによるものであるが、原子の量子統計対称性の違いから、 ${}^4\text{He}$ の場合とは逆に、原子核の交換 \hat{P}_N に対して反対称となる原子対だけが許される。また、 ${}^3\text{He}$ の場合には、衝突原子の核スピンの $1/2$ で超微細相互作用が存在するため、2 個の原子が化学的な結合の影響が無視できるような遠距離にある時とイオン化が起きるような領域まで近接している時 (一個の分子の状態) とでは衝突原子対を記述する良い量子数が異なってくる。

遠心力障壁の近辺やそれ以上の原子間距離では、van der Waals 力など 2 原子間の相互作用に比べて 1 原子内の超微細相互作用 ($2s^3S_1 (F = 3/2)$ と $2s^3S_1 (F = 1/2)$ のエネルギー差は 6.7 GHz [118]) の方が大きく、個々の ${}^3\text{He}$ 原子の核スピン角運動量 \hat{I}_a, \hat{I}_b (それらの量子数 I_a, I_b は共に $1/2$) と電子状態の角運動量 \hat{j}_a, \hat{j}_b (それらの量子数 j_a, j_b は共に 1) がそれぞれ結合して作られる各原子の全角運動量 \hat{F}_a, \hat{F}_b の量子数 F_a, F_b (共に $3/2$) や、それらの和 $\hat{F} = \hat{F}_a + \hat{F}_b$ の量子数 F (0, 1, 2 または 3) が衝突原子対の良い量子数となる (Hund's case(e) [109-115])。したがって原子対の波動関数 Ψ_{SS} は、

$$\Psi_{SS} = | ((F_a F_b) F L) J M \rangle \quad (4 \cdot 2 \cdot 11)$$

で良く記述できる。この原子間距離では超微細相互作用により電子状態と核スピンの

個々の原子内で結合しているため、 Ψ_{SS} は核スピンの反転 \hat{P}_s と電子状態の反転 \hat{i}_e に関しては良い対称性を持たないが、全粒子の座標の反転 \hat{i} と原子核の交換 \hat{P}_N に関しては良い対称性を持ち、それぞれ

$$\hat{i} \Psi_{SS} = (-1)^L \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 12)$$

$$\hat{P}_N \Psi_{SS} = (-1)^{F+L+1} \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 13)$$

となる。 ^3He の場合、量子統計対称性からの要請によって原子核の交換 \hat{P}_N に対して反対称である衝突チャンネルだけが許されるので、量子数としては $F+L$ が偶数となる組み合わせだけが許される。

一方、イオン化が起こるような近接した原子間距離では、2個の原子の電子状態間の相互作用が個々の原子内の超微細相互作用や遠心力に比べて非常に大きくなり、それぞれの原子の電子状態の角運動量 \hat{j}_a 、 \hat{j}_b (S 状態であるため、それぞれの電子スピンの等しい) が結合して作られる角運動量 \hat{j} が良い量子数 j を持つ (Hund's case(b) [105-107, 109])。この角運動量 \hat{j} は原子対の全電子スピン角運動量 \hat{S} に等しく、分子軸や回転に対する結合は弱い、核スピン \hat{I}_a 、 \hat{I}_b が結合して作られる全核スピン \hat{I} とは超微細相互作用により結合している。この全核スピン \hat{I} の分子軸や回転に対する結合もまた無視できる上に、この原子間距離では超微細相互作用と遠心力相互作用がほぼ同程度の大きさであることから、 \hat{j} と \hat{I} が結合した角運動量 \hat{F} が良い量子数 F を持つと考えられる。したがってこの場合の原子対の波動関数 Ψ_{SS} は

$$\Psi_{SS} = | ((j_a j_b) j (I_a I_b) I) F L) J M \rangle \quad (4 \cdot 2 \cdot 14)$$

で良く記述でき、その対称性はそれぞれ

$$\hat{i} \Psi_{SS} = (-1)^L \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 15)$$

$$\hat{P}_N \Psi_{SS} = (-1)^{j-I+L+1} \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 16)$$

$$\hat{P}_s \Psi_{SS} = (-1)^{1-J} \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 17)$$

$$\hat{P}_{12} \Psi_{SS} = (-1)^{j+L} \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 18)$$

$$\hat{j}_e \Psi_{SS} = (-1)^j \Psi_{SS} \quad (4 \cdot 2 \cdot 19)$$

で表わされ、核スピンの反転 \hat{P}_s と電子状態の反転 \hat{j}_e についても良い対称性を持っている。³He の衝突チャンネルに対しては、量子統計対称性からの要請により原子核の交換 \hat{P}_N に対して反対称であるものだけが許されるので、量子数としては $j-I+L$ が偶数となる組み合わせだけが許される。超微細相互作用が電子状態間の相互作用に比べて非常に小さいので、角運動量 $j=0, 1, 2$ に対する電子状態は⁴He の場合と同様な $^1\Sigma_g^+$ 、 $^3\Sigma_u^+$ 、 $^5\Sigma_g^+$ にそれぞれ対応し、 $^1\Sigma_g^+$ と $^5\Sigma_g^+$ では $I=0$ の時に偶数の L が、 $I=1$ の時に奇数の L が許される。一方、 $^3\Sigma_u^+$ ではこれとは逆に、 $I=0$ の時に奇数の L が、 $I=1$ の時に偶数の L が許される。

これらの電子状態からのイオン化効率については、超微細相互作用が電子状態間の相互作用に比べて非常に小さいのでイオン化においては殆ど⁴He の場合と同様に振る舞うと予想され、かつ⁴He の場合と同様にスピン保存則[116]が成り立つと考えられるので、本理論計算では⁴He の場合と全く同様に、 $^1\Sigma_g^+$ 、 $^3\Sigma_u^+$ 状態からは効率1でイオン化可能で $^5\Sigma_g^+$ 状態からのイオン化効率は0と仮定する（ここでもエネルギー依存性や回転角運動量量子数 L に対する依存性を無視する）。

無限大の原子間距離での衝突チャンネルのうちどのチャンネルがイオン化可能かは、⁴He の場合と同様、それらの衝突チャンネルとイオン化が起こるような原子間距離での電子状態 $^1\Sigma_g^+$ 、 $^3\Sigma_u^+$ 、 $^5\Sigma_g^+$ との相関によって決めることができる。これらの電子状態と衝突チャンネルとの相関は、⁴He の場合と同様に断熱的な変化を仮定すると Wigner-Witmer の相関則[117]から求められるが、例として $L=0$ (s 波) と $L=1$ (p 波) の衝突チャンネルについてその相関図を図4-2-3に示す。量子統計対称性からの要請 ($F+L$ が偶数) により、遠距離での s 波の衝突チャンネルとしては $F=0, 2$ のチャンネルのみが、 p 波の衝突チャンネルとしては $F=1, 3$ のチャンネルのみが許される。図4-2-3から分かるように、 s 波の $F=0, 2$ の衝突チャンネルはそれぞれ $^1\Sigma_g^+$ ($L=0, I=0$) 及び $^3\Sigma_u^+$ ($L=0, I=1$) に相関を持ち、 p 波の $F=1, 3$ の衝突チャンネルは

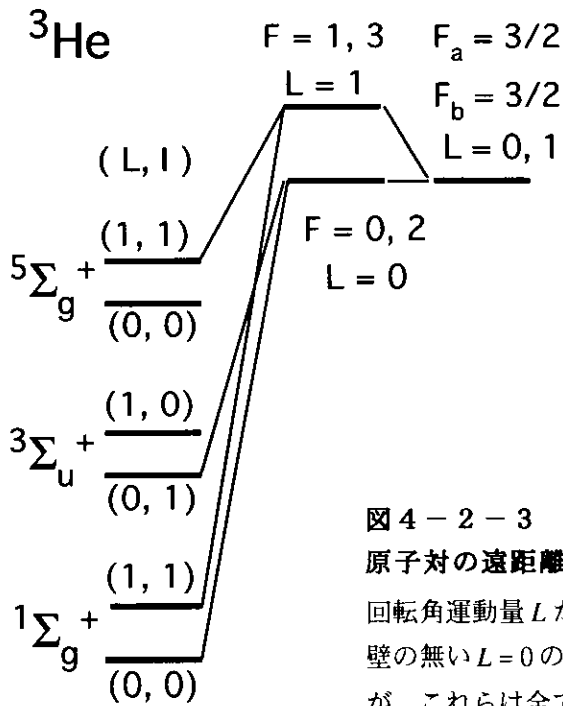


図4-2-3 ${}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + {}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ 原子対の遠距離での衝突チャンネルと近距離での電子状態の相関図
 回転角運動量 L が0と1の衝突チャンネルに対する例を示す。遠心力障壁の無い $L=0$ のチャンネルは電子状態の角運動量 $F=0, 2$ の6つであるが、これらは全てイオン化可能な電子状態 ${}^1\Sigma_g^+$ または ${}^3\Sigma_u^+$ に相関を持つ。

${}^1\Sigma_g^+(L=1, I=1)$ 及び ${}^5\Sigma_g^+(L=1, I=1)$ の両方に相関を持つ (ただし、 $F=1, 3$ のチャンネルと ${}^1\Sigma_g^+, {}^5\Sigma_g^+$ との間に対一の対応はつかない)。したがって上の仮定により、s波の衝突チャンネルでは $F=0, 2$ のいずれのチャンネルも効率1でイオン化可能である。一方、p波の衝突チャンネルでは $F=1, 3$ のチャンネルは3 : 7の割合で ${}^1\Sigma_g^+$ と ${}^5\Sigma_g^+$ に相関を持つため、 $F=1, 3$ のチャンネルからのイオン化効率は0.3となる。

最後に ${}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + {}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ 衝突における衝突ポテンシャルについて考察する。計算によって得られた遠心力障壁近傍の衝突ポテンシャル曲線を図4-2-4に示す。 ${}^3\text{He}$ の場合でも、遠心力障壁は van der Waals 力と遠心力で決まっており、角運動量 F による差は無視できる。なおこの計算では、van der Waals 力については、核スピンの存在による ${}^4\text{He}$ の場合との差は無視できる程小さいため、 ${}^4\text{He}$ の場合と同様に (4・2・2) 式で $c_v = 4.7 \times 10^5 \text{ MHz nm}^6$ とした。また、遠心力は原子質量の相違により ${}^4\text{He}$ の場合の $4/3$ 倍となるので、(4・2・1) 式で $c_c = 3.4 \text{ GHz nm}^2$ とした。

図4-2-4に見られるように、 ${}^4\text{He}$ の場合と同様 $L \geq 1$ のチャンネルの衝突ポテン

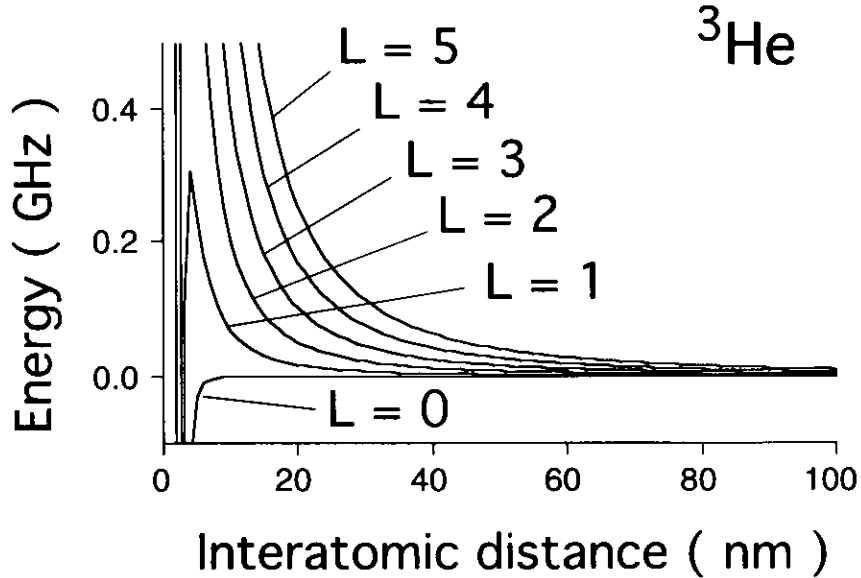


図 4-2-4 ${}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + {}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ 衝突におけるポテンシャルエネルギー曲線

回転角運動量 L が 0 から 5 までの衝突チャンネルに対する例を示す。 $L > 0$ では衝突エネルギー 0.5 mK ($\sim 10\text{MHz}$) に比べてはるかに大きな遠心力障壁となっている。

シャルには $L(L+1)$ の $3/2$ 乗に比例して高くなる遠心力障壁があり、しかも最も低い p 波 ($L=1$) の衝突チャンネルに対する遠心力障壁でもその高さは 15 mK ($\sim 300\text{MHz}$) 程度で、 ${}^4\text{He}$ の場合に比べてさらに 1.5 倍ほど高い。これらの障壁は実験の衝突エネルギー 0.5 mK に比べてはるかに高いため、二つの原子が無尽大の原子間距離からイオン化が起こるような近距離まで確率 1 で近づけるような衝突チャンネル (つまり $(4 \cdot 1 \cdot 3)$ 式で $P_T(i, E) = 1$ となるチャンネル) は s 波のチャンネルのみである。他の $L \geq 1$ のすべてのチャンネルでは、衝突エネルギーよりはるかに高いポテンシャル障壁をトンネリングする僅かな確率でしかイオン化可能な近距離まで近づくことができない。したがって、 ${}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + {}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ 衝突における衝突イオン化は、 ${}^4\text{He}(2s^3S_1) + {}^4\text{He}(2s^3S_1)$ 衝突の場合と同様、殆ど s 波のチャンネルのみで起っていると考えられる。

4. 2. 3 極低温 $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ イオン化衝突速度定数の計算

この節では、前節までの考察の結果を基にして、 $^4\text{He}(2s^3S_1) + ^4\text{He}(2s^3S_1)$ 衝突および $^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + ^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ 衝突における衝突イオン化速度定数を求める。

4. 2. 1 節と 4. 2. 2 節での議論で分かったように、本研究の実験において設定された 0.5 mK という極低温では、 $^4\text{He}(2s^3S_1) + ^4\text{He}(2s^3S_1)$ 衝突においても $^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + ^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ 衝突においても、 $L \geq 1$ のチャンネルの衝突ポテンシャルは衝突エネルギー E よりはるかに高いポテンシャル障壁を持つため、その障壁をトンネリングする僅かな確率でしかイオン化可能な近距離まで近づくことができない。そのためこの極低温では、遠心力障壁の無い s 波のチャンネルのみによって衝突イオン化が殆ど起こっていると考えられる。そこで、ここではひとまず、遠心力障壁が衝突エネルギー E より高いチャンネルにおけるトンネル効果の確率を完全に無視し、遠心力障壁が存在しない s 波のチャンネルのみがイオン化に寄与すると仮定して考えることにする。

このときイオン化断面積は (4.1.4) 式で与えられるが、(4.1.4) 式中のイオン化確率 $P_1(i, E)$ に関しては、4. 2. 1 節および 4. 2. 2 節で述べた仮定により、 $^4\text{He}(2s^3S_1) + ^4\text{He}(2s^3S_1)$ 、 $^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + ^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ どちらの衝突においても、衝突エネルギー E や角運動量 L に対する依存性を無視して

$$P_1(i, E) = \begin{cases} 1 & (\text{チャンネル } i \text{ が } ^1\Sigma_g^+, ^3\Sigma_u^+ \text{ に相関を持つ場合}) \\ 0 & (\text{チャンネル } i \text{ が } ^5\Sigma_g^+ \text{ に相関を持つ場合}) \end{cases} \quad (4.2.20)$$

とすることができる。このように各チャンネルのイオン化確率が 0 または 1 で与えられるときには、確率 1 でイオン化するチャンネル (以下「イオン化チャンネル」と呼ぶ) の個数

$$N_1 = \sum_{i \in \substack{\text{ポテンシャル障壁が} \\ E \text{より低いチャンネル}}} P_1(i, E) \quad (4 \cdot 2 \cdot 21)$$

を用いて (4・1・4) 式を

$$\sigma = \frac{1}{c_0} \frac{h^2}{8\pi\mu E} \frac{N_1}{g} \quad (4 \cdot 2 \cdot 22)$$

のように表わした方が直感的に分かりやすい。さらに、全イオン化チャンネルにおける原子対の占有率 $p_1 = N_1/g$ を用いると (4・2・22) 式は

$$\sigma = \frac{1}{c_0} \frac{h^2}{8\pi\mu E} p_1 \quad (4 \cdot 2 \cdot 23)$$

と書ける。

イオン化速度定数 k は (4・1・1) で与えられるが、MOTの温度測定で確認されたようにMOTの中の極低温He原子の相対速度分布 $G(u)$ は温度 T の Boltzmann 分布で近似できるので、(4・2・23) 式を (4・1・1) 式に代入して相対速度 u で積分すると

$$k = \left(\frac{h}{2\pi\mu} \right)^2 \sqrt{\frac{2\pi\mu}{k_B T}} p_1 \quad (4 \cdot 2 \cdot 24)$$

となる。

さて、4. 2. 1節での考察で分かったように、0.5 mKの ${}^4\text{He}(2s^3S_1) + {}^4\text{He}(2s^3S_1)$ 衝突においては、s波の衝突チャンネルのうち確率1でイオン化可能なものは $j=0$ のチャンネルのみである。したがって、イオン化チャンネル数は $N_1=1$ である。一方、 ${}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2) + {}^3\text{He}(2s^3S_1, F=3/2)$ 衝突では、4. 2. 2節で調べたように、s波の衝突チャンネルは $F=0, 2$ いずれのチャンネルも確率1でイオン化する。したがって、イオン化チャンネル数は $N_1=1+5=6$ であり、 ${}^4\text{He}$ の場合に比べて6倍である。すなわちこれは、同一温度の衝突であるにもかかわらずイオン化チャンネル数に6倍もの同位体差があることを意味する。

2つの原子の全縮態度 g は、 ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ 系で $3 \times 3 = 9$ 、 ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ 系で $4 \times 4 = 16$ である。したがって、全イオン化チャンネルにおける原子対の占有率 $p_1 (= N_1/g)$ はそれぞれ $1/9$ 、 $6/16$ となる（以下、それぞれ 4p_1 、 3p_1 と記す）。その比 ${}^3p_1 / {}^4p_1$ は 3.4 となり、 N_1 と同様に大きな同位体差のあることが分かる。この同位体差は、原子の質量や速度における違いとは無関係であり、それぞれの同位体種の量子統計対称性の違いに起因する原子対の内部状態の相違とイオン化におけるスピン保存則の結果生じた差である。

これらの 4p_1 、 3p_1 を (4・2・24) 式に代入して求めた 0.5 mK での衝突イオン化速度定数 k は、 ${}^4\text{He}$ 、 ${}^3\text{He}$ の場合に対してそれぞれ $2.0 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ 及び $1.0 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ となり（以下、それぞれ ${}^4k_{\text{SS}}$ 、 ${}^3k_{\text{SS}}$ とする）、これらの同位体比は ${}^3k_{\text{SS}} / {}^4k_{\text{SS}} = 5.2$ となって、やはり大きな同位体差があることが分かる（ ${}^4k_{\text{SS}}$ 、 ${}^3k_{\text{SS}}$ は、実験におけるトラップレーザー非照射の場合の速度定数 4k 、 3k にそれぞれ対応する）。この同位体差は、(4・2・24) 式でイオン化速度定数が一定温度では p_1 に比例し且つ原子質量の $3/2$ 乗に反比例していることから、 p_1 と換算質量の両方の同位体差に起因しているものであることが分かる。しかしながら、質量の同位体差に起因する比は 1.5 程度であり、これは量子統計対称性の相違によって引き起こされた p_1 の同位体差 (${}^3p_1 / {}^4p_1 = 3.4$) に比べて小さい。したがって、 ${}^3k_{\text{SS}}$ と ${}^4k_{\text{SS}}$ の同位体差の主な原因は、量子統計対称性の違いから生ずるイオン化チャンネル数の相違であると言える。

さて、ここまでの計算は、遠心力障壁が衝突エネルギーより高いイオン化チャンネルはイオン化に全く寄与しないと古典的な仮定に基いているが（その結果、s波のみを考えた）、極低温衝突では衝突原子対の相対速度が小さく、衝突の波数が常温に比べて長いため、遠心力障壁をトンネリングすることによる p 波以上の高次の部分波のイオン化への寄与を考慮しなければならない。そこで、このトンネル効果のイオン化への寄与を以下のように見積もった。

トンネル効果も考える場合は (4・1・3) 式を用いて断面積を計算せねばならないが、4・2・1節と4・2・2節で議論したように遠心力障壁付近の衝突ポテンシャルは殆ど量子数 L のみにしか依存しないので (4・1・3) 式は

$$\sigma = \frac{1}{c_0} \frac{h^2}{8\pi\mu E} \frac{1}{g} \sum_L (2L+1) P_T(L, E) \sum_{\gamma} P_1(L, \gamma, E) \quad (4 \cdot 2 \cdot 25)$$

と書ける。ここで、 $P_T(L, E)$ と $P_I(L, \gamma, E)$ はそれぞれ $P_T(i, E)$ と $P_I(i, E)$ のパラメータを書き換えたものであり、 γ は衝突原子対の L 以外の内部状態を表わす。 γ についての和は各 L に対して取り得るすべての内部状態にわたって行う。

(4・2・25) 式中、イオン化確率 $P_I(L, \gamma, E)$ に関しては (4・2・20) 式と同様に、 L と E への依存性を無視して

$$P_I(L, \gamma, E) = \begin{cases} 1 & (\gamma \text{ が } {}^1\Sigma_g^+, {}^3\Sigma_u^+ \text{ に相関を持つ場合}) \\ 0 & (\gamma \text{ が } {}^5\Sigma_g^+ \text{ に相関を持つ場合}) \end{cases} \quad (4 \cdot 2 \cdot 26)$$

と仮定できる。一方、遠心力障壁のトンネル確率 $P_T(L, E)$ は、以下に述べる簡単な量子力学的数値計算によって見積もった。衝突ポテンシャルに 3次元球対称ポテンシャル $U(r)$ を考えると 2原子間の相対運動の波動関数 $\Phi(r)$ は球面調和関数 $Y_L(\theta, \phi)$ を用いて

$$\Phi(r) = u(r) Y_L(\theta, \phi) / r \quad (4 \cdot 2 \cdot 27)$$

と表わされ、動径方向の波動関数 $u(r)$ は

$$\left\{ \frac{d^2}{dr^2} - \frac{L(L+1)}{r^2} + \frac{8\pi^2\mu(E-U)}{h^2} \right\} u(r) = 0 \quad (4 \cdot 2 \cdot 28)$$

の微分方程式をみたす[103]。ポテンシャル $U(r)$ としては、van der Waals ポテンシャルに、これまでに報告されている近距離でのポテンシャルの計算結果[48]を接続したものをを用いた。(4・2・28) 式を数値的に解く際の境界条件に関しては、イオン化の影響を取り入れるために衝突ポテンシャルが極小となる原子間距離に「吸収壁」が存在するとし、イオン化可能なチャンネルのイオン化効率が 1 であるとの仮定からこの「吸収壁」の吸収率を 1 とした。この数値計算から得られた波動関数によってトンネル確率 $P_T(L, E)$ が求められたが、それはトンネル確率の最も大きな p 波に対しても ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ 衝突で 0.0091、 ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ 衝突で 0.0039 の程度であった。 d 波以上のもっと高次の部分波

では、 p 波の場合に比べて遠心力障壁が更に高いため、それよりはるかに小さな確率である。

このようにして得られた $P_T(L, E)$ を用いて (4・2・25) 式から各部分波のイオン化速度定数 k への寄与を計算した結果、それは p 波の場合でも、 ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ 衝突に対してはトンネリングを無視した時の k を 8% 増やす程度、 ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ 衝突に対しては 0.6% 増やす程度であることが分かった。 d 波以上の高次の部分波のイオン化速度定数への寄与は p 波に比べて更に小さいので無視できる。 ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ 衝突におけるトンネリングの寄与が ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ 衝突の場合に比べて大きいのは、 ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ の方が ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ より遠心力障壁が低いことや、 ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ における s 波のイオン化チャンネル数が ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ の $1/6$ であること、そして量子統計性から許される p 波のイオン化チャンネル数に差があることによるものである。この p 波のトンネリングによるイオン化を考慮した場合のイオン化速度定数 ${}^4k_{\text{SS}}$ 、 ${}^3k_{\text{SS}}$ は表 4-2-1 に示したようにそれぞれ $2.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ 、 $1.0 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ となる。それらの比は ${}^3k_{\text{SS}}/{}^4k_{\text{SS}} = 4.7$ となり、トンネル効果は無視した場合よりも幾分小さくはなるが、依然大きな同位体差が存在することが分かる。

4. 2. 4 考察

表 4-2-1 を見ると分かるように、計算から求められたイオン化速度定数 ${}^4k_{\text{SS}}$ 、 ${}^3k_{\text{SS}}$ はそれぞれ実験値 4k 、 3k に相当に良く一致している。このことは、本理論計算の

表 4-2-1 0.5 mK での $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突によるイオン化速度定数の実験値と計算値の比較

同位体	イオン化速度定数	
	実験値 k (cm^3s^{-1})	計算値 k_{SS} (cm^3s^{-1})
${}^4\text{He}^*$	$(3.8 \pm 1.1) \times 10^{-10}$	2.2×10^{-10}
${}^3\text{He}^*$	$(1.1 \pm 0.4) \times 10^{-9}$	1.0×10^{-9}

手法や仮定が正しいことを示しているものと考えられる。また同時に、このことは、実験で観測された k における同位体差が主としてイオン化チャンネル数の差によって引き起こされていたものであることも示している。このイオン化チャンネル数の大きな相違は、極低温 0.5 mK での衝突イオン化がほとんど s 波のみによって引き起こされる、すなわち単一パリティの回転状態のみによるイオン化であるが故に、ボゾンである ^4He とフェルミオンである ^3He とにおいて量子統計対称性から許されるイオン化チャンネルの電子状態に大きな相違が生じることが原因である。

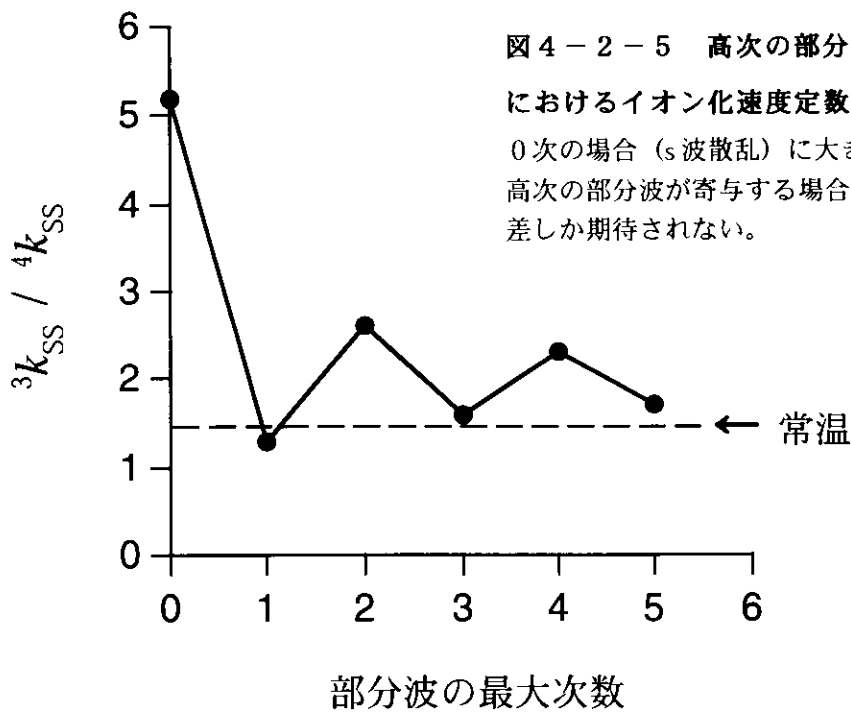
s 波のみ、すなわち単一パリティの回転状態だけしかイオン化に寄与しないのは、 p 波以上の高次の部分波に対する遠心力障壁が衝突エネルギーに比べて非常に高いため、 s 波しかエネルギー的にイオン化に寄与できないことによるものである。それに対して、偶・奇両方のパリティを持った多数の高次の部分波が寄与するようなイオン化衝突では、異なった対称性の電子状態が共にイオン化に寄与するために、このような量子統計対称性の相違による同位体差は顕著でなくなると考えられる。

そこでイオン化に寄与する部分波の最大次数の違いによるこの同位体差の変化を確かめるために、 s 波のみ ($L=0$)、 p 波まで ($L=0, 1$)、 d 波まで ($L=0, 1, 2$) というようにイオン化に寄与する部分波の最大次数を増やして行くと同位体比 $^3k_{SS}/^4k_{SS}$ がどう変化するかを調べてみた (これは、衝突エネルギーを 0 から徐々に上げていくことに相当している。ただし、トンネル効果を無視しているので $^3k_{SS}/^4k_{SS}$ の変化は連続的にはならない)。イオン化にスピン保存則が成り立つことを考慮すると、偶数次、奇数次の部分波のイオン化チャンネル数は $^4\text{He} + ^4\text{He}$ 衝突と $^3\text{He} + ^3\text{He}$ 衝突の場合に対してそれぞれ表 4-2-2 の様になり、それらのイオン化チャンネル数の合計から同位体比 $^3k_{SS}/^4k_{SS}$ は図 4-2-5 の様に計算される。この図が示すように、 s 波のみがイオン化に寄与する場合にはイオン化チャンネルの電子状態の相違により大きな同位体差が期待できるが、より高次の部分波が寄与する場合には対称性の異なる電子状態が共にイオン化に寄与するために s 波のみの場合に比べて小さな同位体差しか期待できない。

また、常温の時のように非常に大きな次数の部分波までイオン化に寄与する場合には、イオン化に寄与する部分波の最大次数 l_{\max} ($^4\text{He} + ^4\text{He}$, $^3\text{He} + ^3\text{He}$ の場合に対してそ

表 4-2-2 偶数次および奇数次の部分波に対するイオン化チャンネルの数

	⁴ He			³ He			
	(2N)-th 部分波		(2N+1)-th 部分波	(2N)-th 部分波		(2N+1)-th 部分波	
	<i>j</i> =0	<i>j</i> =2	<i>j</i> =1	<i>F</i> =0	<i>F</i> =2	<i>F</i> =1	<i>F</i> =3
衝突チャンネル数	4N+1	20N+5	12N+9	4N+1	20N+5	12N+9	28N+21
イオン化	可	不可	可	可	可	一部不可	
イオン化チャンネル数	4N+1		12N+9	24N+6		12N+9	



それぞれ ${}^4l_{\max}$ 、 ${}^3l_{\max}$ とする。 ${}^4l_{\max}$ 、 ${}^3l_{\max} \gg 1$) に関しては

$${}^3l_{\max} / {}^4l_{\max} \sim \sqrt{{}^3\mu / {}^4\mu} \quad (4 \cdot 2 \cdot 29)$$

となるが (${}^4\mu$ 、 ${}^3\mu$ はそれぞれ ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ 、 ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ 衝突系の換算質量)、全イオン化チャンネルにおける原子対の占有率 p_l の同位体比は、

$$\begin{aligned}
 {}^3p_1 / {}^4p_1 &= \{ (36/16) / (16/9) \} ({}^3l_{\max} / {}^4l_{\max})^2 \\
 &= (81/64) ({}^3\mu / {}^4\mu) \\
 &\sim 1
 \end{aligned}
 \tag{4 \cdot 2 \cdot 30}$$

となって、 p_1 は ${}^4\text{He} + {}^4\text{He}$ 衝突と ${}^3\text{He} + {}^3\text{He}$ 衝突とではほぼ等しくなる。このため、イオン化速度定数の同位体比 ${}^3k_{\text{SS}} / {}^4k_{\text{SS}}$ は質量と速度の比のみに起因して、 ${}^3k_{\text{SS}} / {}^4k_{\text{SS}} \sim ({}^4\mu / {}^3\mu)^{3/2} \sim 1.5$ という値になると予想され、大きな同位体差は期待されない。

以上に述べたような比較的低温でも高次の部分波を含んでいる衝突の場合や高温の極限での衝突の場合との比較対照からも、計算や実験で見出された大きな同位体差 (${}^3k_{\text{SS}} / {}^4k_{\text{SS}} \sim 4.7$, ${}^3k / {}^4k \sim 3$) は、0.5 mK という極低温での衝突イオン化が単一パリティの回転状態 (s 波のみ) によるイオン化であるために、原子の量子統計対称性の差が露わにイオン化チャンネル数の大きな差となって現れたものであることが分かる。

この観測や計算で得られた同位体差のもうひとつの特徴は、フェルミオンである ${}^3\text{He}$ の場合の方がボゾンである ${}^4\text{He}$ の場合に比べてイオン化速度定数が大きいことである。これは、スピン偏極させた Kr[53] や Xe[54] における実験結果や本研究と同様にスピン偏極させなかった場合に Kr や Xe で予想される結果 (この場合の速度定数の同位体差は、質量の同位体差が小さいので、イオン化チャンネルの占有数 p_1 の同位体差で主に決まっているが、 s 波のイオン化衝突では、個々の原子の全角運動量子数を J とすると、ボゾンで $p_1^{\text{boson}} = (J+1) / (2J+1)$ 、フェルミオンで $p_1^{\text{fermion}} = J / (2J+1)$ となり、その同位体比 $p_1^{\text{boson}} / p_1^{\text{fermion}} = (J+1) / J > 1$ となって必ずボズンの場合に速度定数は大きくなると考えられる。Kr と Xe の場合は $J=2$ であり、イオン化速度定数はボゾンの方が 1.5 倍大きいと予想される) とは逆の結果となっている。これは、He 原子が内部構造の単純な小さな原子であるためにスピン保存則[116]がイオン化において良く成立することに起因している。もしスピン保存則がイオン化の際に成立せず ${}^5\Sigma_g^+$ からイオン化が効率 1 で起こると仮定すると、 s 波のイオン化衝突では ${}^4\text{He}$ の場合のイオン化速度定数の計算値は実際の値よりも 6 倍大きくなると見積もられる。したがって、その同位体比は ${}^4k_{\text{SS}} / {}^3k_{\text{SS}} \sim 1.2$ となり (イオン化チャンネルの占有数の比自体は ${}^4p_1 / {}^3p_1 = 1.8$ となって比較的大きな相違が現われるが、He の場合は原子質量の同位体差が大きいため、速度

定数の比は Kr や Xe での予想値 1.5 より小さい値となる)、実際の観測結果とは逆に、Kr や Xe の場合と同様、ボゾンである ^4He の衝突イオン化速度の方が大きくなると考えられる。スピン保存則が成立しないと仮定した場合に予想されるこの 1.2 倍程度の同位体差は、スピン保存則が成立する場合の 4.7 倍に比べて顕著でなく、その観測も本研究で行ったような方法では実験誤差のために難しかったであろうと思われる。しかし、実際にはスピン保存則がイオン化において良く成り立つため、量子統計対称性の相違によって、フェルミオンの方が衝突イオン化速度が約 3 倍大きいという顕著な同位体差を容易に観測できたのである。

一方、Kr や Xe の場合にはイオン化においてスピン保存則が良く成立しないので、本研究と同様に原子をスピン偏極させない場合には、たとえ s 波のみのイオン化衝突でも 1.5 倍程度の同位体差しか期待できず、その観測は困難であったと予想される。そこで Kr や Xe の場合には、原子をスピン偏極させて、スピンの揃った電子状態を持つ衝突チャンネルによるイオン化のみを観測した結果、量子統計対称性の相違による大きな同位体差が観測されたのである[53, 54]。このようにスピンの揃った原子同士の衝突イオン化のみを観測するという事は、He の場合のようにスピンの揃った電子状態の衝突チャンネルによるイオン化がスピン保存則のために観測されないということと全く相補的である。この対照的な相違のために、本研究で測定された He におけるボゾンとフェルミオンの間のイオン化速度定数の大小関係が、スピン偏極 Kr や Xe の結果と逆になったものと考えられる。また、本研究では行われなかったが、スピン偏極された He 原子の場合には、スピン保存則のためにボゾンでもフェルミオンでもイオン化は起こらないと予想されるので、この場合にも He は Kr[53]や Xe[54]の結果とは全く異なると考えられる。

最後に、He のイオン化におけるスピン保存則の成立の程度について考察してみる。仮にスピン保存則が完全ではなく $^5\Sigma_g^+$ からのイオン化効率が ϵ であったとすると、 ^4He のイオン化速度定数 $^4k_{ss}$ は $(1 + 5\epsilon) \times 2.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ で与えられる。これを実験値 4k と比較すると $\epsilon \sim (15 \pm 10)\%$ 程度となり、この結果は、これまでに知られていたように He のイオン化においてスピン保存則がよく成り立つこと[48, 68, 69]を実験的に確認するものである。

§ 4. 3 トラップレーザー照射下での He + He 衝突イオン化速度定数の理論計算

この節ではトラップレーザー照射下での極低温 He + He イオン化衝突について理論的に考察する。初めに § 4. 3. 1 でトラップレーザー照射下での極低温 He + He イオン化衝突についての説明をした後、§ 4. 3. 2 でトラップレーザー照射下での主要な衝突過程である $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2p^3P_2)$ 衝突のイオン化速度定数を ^4He , ^3He 両同位体に対して理論計算で求める。その値を用いて、§ 4. 3. 3 でトラップレーザー照射下で増強されたイオン化速度定数 \tilde{k} を求め、速度定数の増大効果の大きさを決める要因やその同位体差について議論する。

4. 3. 1 トラップレーザー照射下での極低温 He + He 衝突

トラップレーザー照射下では、He 原子は冷却遷移の下準位である $2s^3S_1$ 状態の他に上準位である $2p^3P_2$ 状態にも励起されるため、 $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突 (S-S 衝突) によるイオン化に加えて $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2p^3P_2)$ 衝突 (S-P 衝突) と $\text{He}(2p^3P_2) + \text{He}(2p^3P_2)$ 衝突 (P-P 衝突) による衝突イオン化も同時に起こる。これらの内、S-S 衝突については既に § 4. 2 で説明したが、P-P 衝突の場合も、S-S 衝突と同様に遠心力障壁付近やそれより遠距離での衝突ポテンシャルは van der Waals 力と遠心力で主に決まっているため、そのイオン化断面積や速度定数は S-S 衝突と同程度であり、速度定数の大きな増大には繋がらないと考えられる。

一方、S-P 衝突では、遠距離での主な原子間相互作用は双極子-双極子相互作用と遠心力であるが、§ 1. 2 で述べたように、双極子-双極子相互作用は、van der Waals 力に比べてより遠距離まで大きな力を及ぼすことができるという点や、引力的な場合ばかりでなく斥力的な場合もあるという点において van der Waals 力と大きく異なっている。ただし、一般にトラップレーザー光の周波数は冷却遷移の共鳴周波数に対して常に負に離調しているため、S-P 原子対は主に引力的な双極子-双極子相互作用をする

状態にあると考えられる。このような引力的な双極子-双極子相互作用をする S - P 衝突の場合には、同じ次数の散乱部分波での S - S 衝突や P - P 衝突の場合に比べて遠心力障壁が非常に小さかったり、あるいは S - S 衝突や P - P 衝突なら高い遠心力障壁があるような高次の散乱部分波のチャンネルでも障壁が存在しないというようなことが起こる。このため、 S - P 衝突のイオン化速度定数は S - S 衝突や P - P 衝突に比べて大きな値となることが予想される。これに加えて、やはり § 1. 2 で述べたように、極低温衝突の場合には衝突時間が非常に長いために、 S - P 衝突のチャンネルと S - S 衝突や P - P 衝突のチャンネルとの間で光学遷移が起こり得る。このため、遠心力障壁が高すぎてイオン化不可能な S - S 衝突や P - P 衝突のチャンネルが、光学遷移によって S - P 衝突のチャンネルを経由することで遠心力障壁を回避してイオン化を起し、イオン化速度が増大することも予想される。

レーザー光照射によるイオン化速度定数の増大には以上のような原因が考えられるが、いずれの場合でも S - P 衝突の理論的考察が重要であるため、次の 4. 3. 2 節ではこの S - P 衝突についての考察を行い、さらに衝突中の光学遷移が無視できる場合の S - P 衝突によるイオン化速度定数を理論計算によって求める。

4. 3. 2 $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2p^3P_2)$ 衝突のイオン化速度定数の理論計算

S - P 衝突によるイオン化速度定数は、 S - S 衝突の場合と同様に (4.1.1) 式および (4.1.3) 式または (4.1.4) 式を用いて計算できるが、この場合においても各衝突チャンネルの衝突ポテンシャルを計算することが必須となる。 $\text{He}(2s^3S_1)$ と $\text{He}(2p^3P_2)$ の遠距離での相互作用は主に双極子-双極子相互作用と遠心力であり、 S - S 衝突の場合と同様に、スピンスピン相互作用や化学的な結合力は遠心障壁の高さや位置を求める上では無視することができる。また、双極子-双極子相互作用においては、衝突原子間の距離が冷却遷移 ($2s^3S_1 - 2p^3P_2$) の遷移波長程度以上の遠距離 (放射領域) では相対論的な補正が必要であることが知られているが[119-121]、0.5 mK 程度の衝突エネルギーで問題となるような遠心力障壁の存在する原子間距離は 50 ~ 200 nm 程度であ

り冷却遷移の波長 1083nm に比べて十分小さいため、この原子間距離の領域では相対論的な補正は無視できる。したがって、ここでの議論には通常の大極子-大極子相互作用のハミルトニアン

$$\hat{H}_{dd} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\hat{d} \cdot \hat{d} - 3\hat{d}_z^2}{r^3} \quad (4 \cdot 3 \cdot 1)$$

を考えれば十分である。ここで、 ϵ_0 は真空の誘電率、 r は原子間距離、 \hat{d} 、 \hat{d}_z はそれぞれ原子の大極子モーメントの演算子とその z 成分である。また、放射領域にある衝突原子対のポテンシャルエネルギーと孤立原子のエネルギーとの差は数 100 kHz 以下[119-121]であるため、本研究の衝突エネルギー (~ 10 MHz) では、放射領域でのポテンシャルが衝突に与える影響も無視できる。

上に述べたことから、遠距離での衝突ポテンシャルを決めるハミルトニアンは、(4・3・1) 式で表わされる大極子-大極子相互作用のハミルトニアンと、(4・2・1) 式で表わされる遠心力のハミルトニアン、そして孤立原子のハミルトニアン ($2s^3S_1$ 状態の He 原子では $H_{hf} = -6.6 S \cdot I$ GHz[118]、 $2p^3P_2$ 状態では $H_{hf} = -4.3 S \cdot I$ GHz[101, 122]) の和で表わされる。この全系のハミルトニアンにおいては、原子核間距離が非常に大きくて大極子-大極子相互作用が無視できる時以外は、個々の原子の電子状態や核スピンばかりでなく、原子対の電子状態の全角運動量 \hat{j} (^3He では全核スピン \hat{I} も含めた角運動量 $\hat{F} = \hat{j} + \hat{I}$) と回転角運動量 \hat{L} が混合するため (rotational-electronic coupling) これら全てが良い量子数を持たなくなっており、衝突中に保たれる良い量子数は全系の全角運動量 \hat{J} の量子数 J (及びその空間射影 \hat{J}_M の量子数 M) だけである。ただし、この場合も全系で保たれる対称性は S-S 衝突の場合と同様である。

衝突ポテンシャルの計算は、大極子-大極子相互作用と個々の原子の中の超微細相互作用が無視できて、 j と I とが良い量子数になっているような場合における対称化された全系の波動関数

$$\Psi_{SP} = (1/\sqrt{2}) \{ | ((j_S j_p) j (I_S I_p) I) F L) J M \rangle + (-1)^s | ((j_p j_S) j (I_p I_S) I) F L) J M \rangle \} \quad (4 \cdot 3 \cdot 2)$$

を基底関数として[110-115, 123-126]、それぞれの J -空間中で全系のハミルトニアンを対角化することによって行った。ここで、 s は 0 または 1 の定数、 j_s 、 j_p はそれぞれ He ($2s^3S_1$) と He ($2p^3P_2$) の電子状態の角運動量量子数、 I_s 、 I_p はそれぞれ He ($2s^3S_1$) と He ($2p^3P_2$) の核スピン量子数で、 ^3He では $I_s = I_p = 1/2$ 、 ^4He では $I_s = I_p = 0$ である。この波動関数 Ψ_{SP} の対称性は

$$\hat{i} \Psi_{SP} = (-1)^{L+1} \Psi_{SP} \quad (4 \cdot 3 \cdot 3)$$

$$\hat{P}_N \Psi_{SP} = (-1)^{j_s + j_p - j + I_s + I_p - l + L + s} \Psi_{SP} \quad (4 \cdot 3 \cdot 4)$$

$$\hat{P}_s \Psi_{SP} = (-1)^{I_s + I_p - l} \Psi_{SP} \quad (4 \cdot 3 \cdot 5)$$

$$\hat{P}_{12} \Psi_{SP} = (-1)^{j_s + j_p - j + L + s} \Psi_{SP} \quad (4 \cdot 3 \cdot 6)$$

$$\hat{i}_e \Psi_{SP} = (-1)^{j_s + j_p - j + s + 1} \Psi_{SP} \quad (4 \cdot 3 \cdot 7)$$

となるが[104-115, 127]、量子統計対称性からの要請により \hat{P}_N について ^4He では対称、 ^3He では反対称な波動関数のみが許される。

$J = 0 \sim 10$ について計算されたポテンシャルの内、 $^4\text{He} (2s^3S_1) + ^4\text{He} (2p^3P_2)$ 衝突と $^3\text{He} (2s^3S_1, F = 3/2) + ^3\text{He} (2p^3P_2, F = 5/2)$ 衝突に関するものをそれぞれ図 4-3-1 と図 4-3-2 に示す。これらの図に見られるように、 S - P 衝突では、遠距離まで強く働く引力的な双極子-双極子相互作用により、遠心力障壁が無いチャンネルや衝突エネルギー (0.5 mK ~ 10 MHz) よりも遠心力障壁の小さいチャンネルが多数存在する。 S - P 衝突では、たとえ 0.5 mK の極低温でもこれらの多くのチャンネルを經由してイオン化が引き起こされ得るため、イオン化速度定数が S - S 衝突に比べて大きく増加することが予想される。図 4-3-1 や図 4-3-2 に描かれたようなポテンシャル曲線から、遠心力障壁の高さが衝突エネルギーよりも低いような衝突チャンネルの数を求めると、それらは ^4He で 372、 ^3He で 476 である。これらのチャンネル数は、衝突エネルギーが § 4. 2 で考察した S - S 衝突と同じであるにもかかわらず、 ^4He と ^3He のどちらに対しても S - S 衝突の場合よりも 2 桁ほど大きくなっている。また、これらの衝突チャンネルは、0 から 6 までの回転量子数 L を持つチャンネルである。すなわち、 S - P 衝突では、 S - S 衝突の場合 ($L=0$ のみ) よりも遙かに大きな L を持つ多くのチャンネルがイ

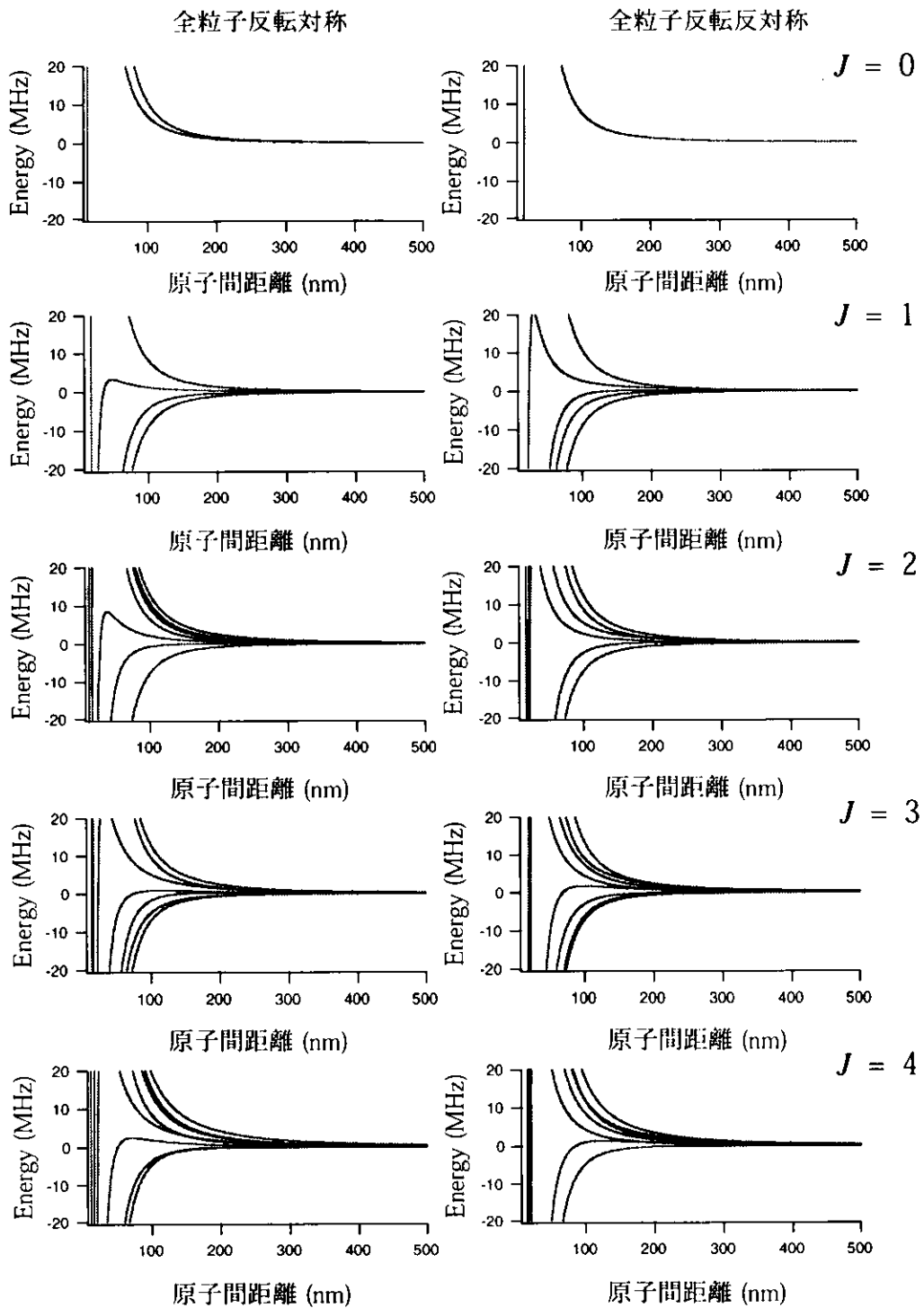


図 4-3-1 (1) ${}^4\text{He} (2s^3S_1) + {}^4\text{He} (2p^3P_2)$ 衝突での全角運動量 $J=0 \sim 4$ の衝突チャンネルに対するポテンシャル曲線

左列、右列の各図は、それぞれ全粒子反転の対称操作に対して対称、反対称な衝突チャンネルに対するポテンシャル曲線である。

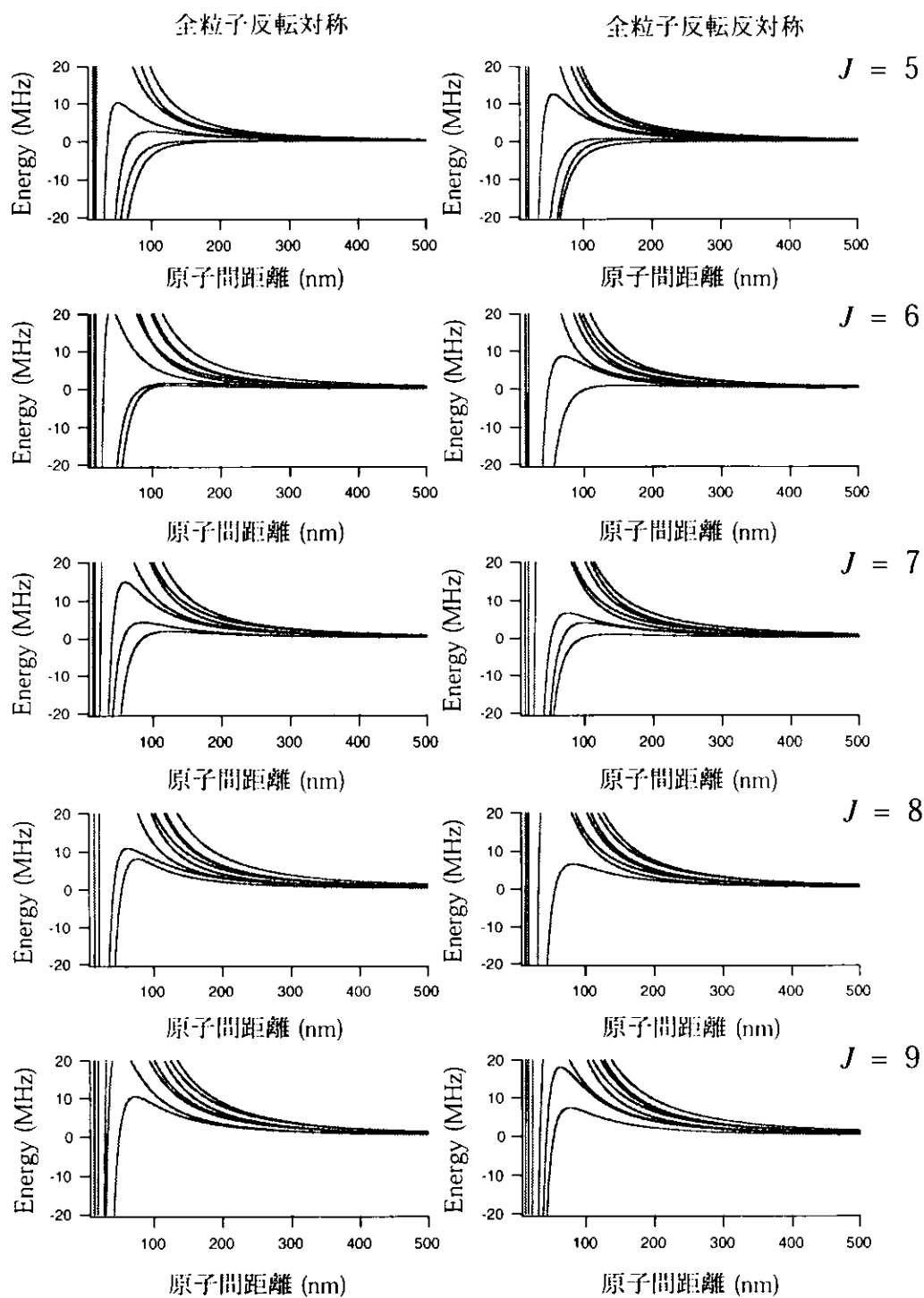


図 4-3-1 (2) ${}^4\text{He} (2s^3S_1) + {}^4\text{He} (2p^3P_2)$ 衝突での全角運動量 $J = 5 \sim 9$ の衝突チャンネルに対するポテンシャル曲線

左列、右列の各図は、それぞれ全粒子反転の対称操作に対して対称、反対称な衝突チャンネルに対するポテンシャル曲線である。

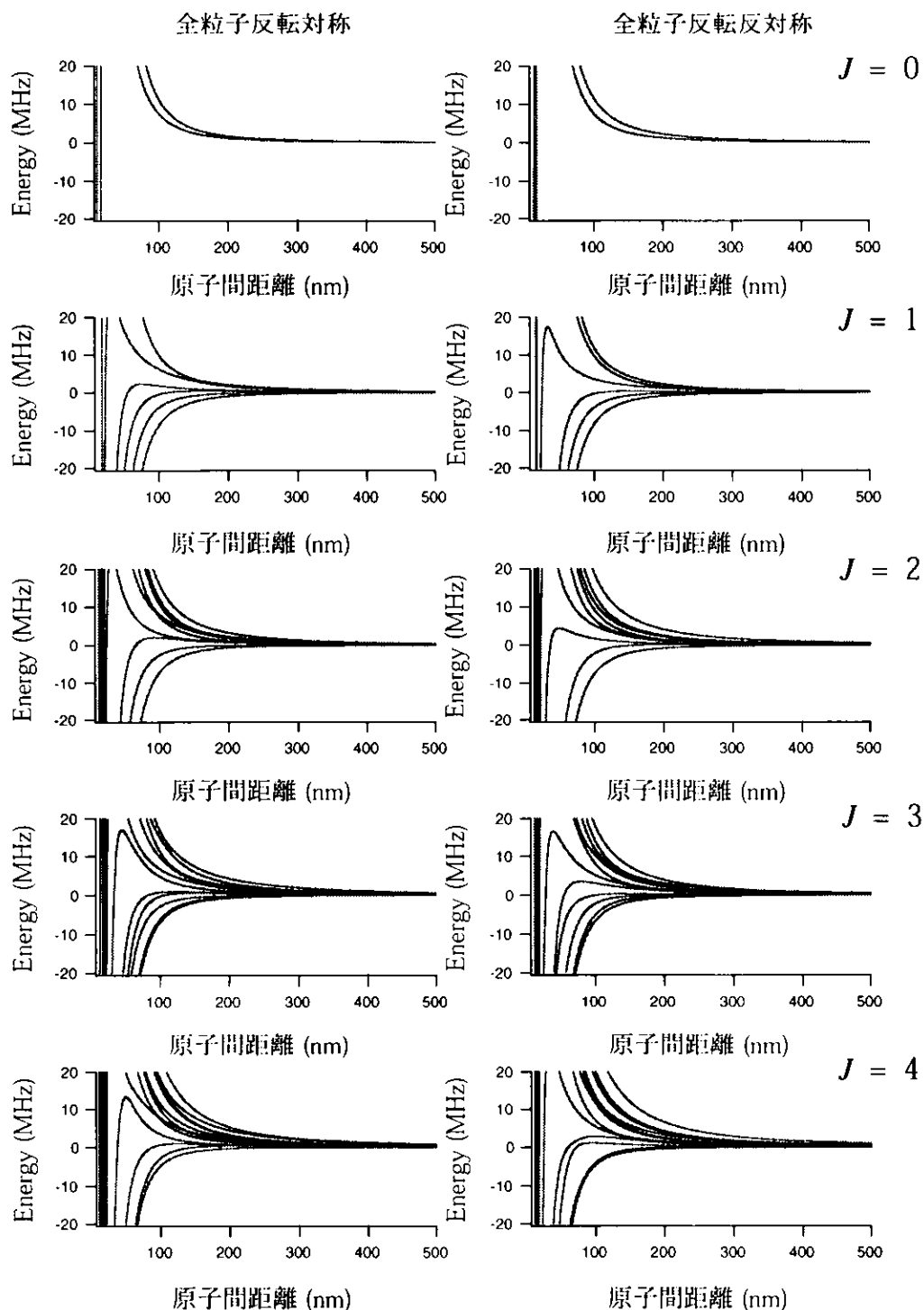


図 4-3-2 (1) ${}^3\text{He} (2s\,{}^3S_1, F = 3/2) + {}^3\text{He} (2p\,{}^3P_2, F = 5/2)$ 衝突での全角運動量 $J = 0 \sim 4$ の衝突チャンネルに対するポテンシャル曲線
 左列、右列の各図は、それぞれ全粒子反転の対称操作に対して対称、反対称な衝突チャンネルに対するポテンシャル曲線である。

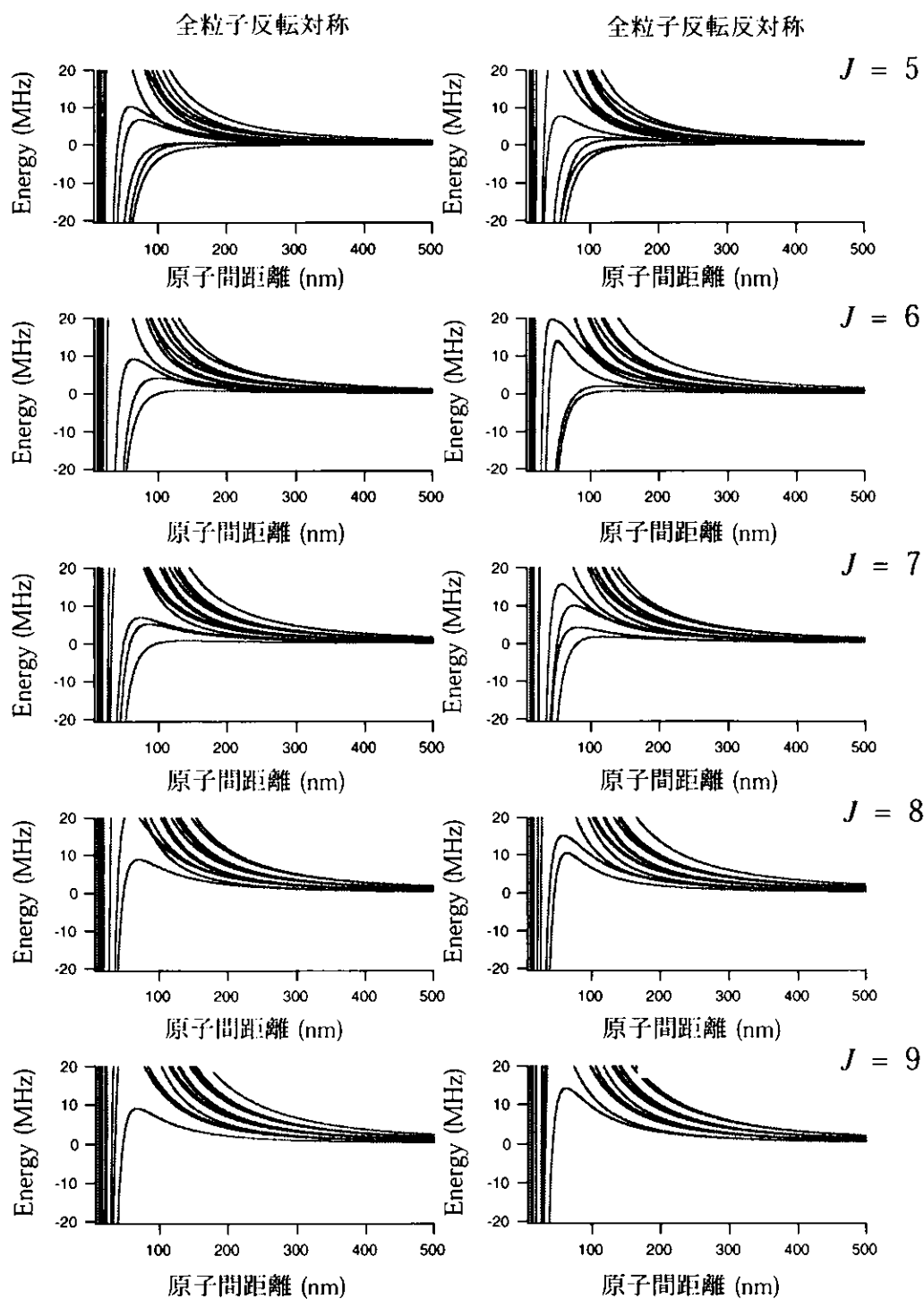


図 4-3-2 (2) ${}^3\text{He} (2s\,{}^3S_1, F=3/2) + {}^3\text{He} (2p\,{}^3P_2, F=5/2)$ 衝突での全角運動量 $J=5 \sim 9$ の衝突チャンネルに対するポテンシャル曲線
 左列、右列の各図は、それぞれ全粒子反転の対称操作に対して対称、反対称な衝突チャンネルに対するポテンシャル曲線である。

オン化に寄与し得ることが分かる。

遠心力障壁が衝突エネルギーよりも高いようなチャンネルにおけるトンネリングの確率を無視すると、上で求めた遠心力障壁の高さが衝突エネルギーよりも低いようなチャンネルの数から、(4・1・4) 式を用いてイオン化断面積を求めることが出来る。ここで、これらのチャンネルにおけるイオン化効率 $P_1(i, E)$ は、S-P 衝突が S-S 衝突に比べてエネルギー的により高い衝突であることから、S-S 衝突の場合と同様に 1 であると仮定する。S-S 衝突の場合と同様にこれらのチャンネルの中にはスピン保存則のためにイオン化不可能なチャンネルも存在すると考えられるが、ここではこのスピン保存則は考慮せず、これらのチャンネルが全て効率 1 でイオン化すると仮定して計算を行う。この場合 (4・1・4) 式で表されるイオン化断面積は、4. 2. 3 節で述べたものと同様の議論から、(4・2・21) 式で定義されたイオン化チャンネル数 N_1 を用いて (4・2・22) 式のように書ける。ただし、この場合は、イオン化確率 $P_1(i, E)$ に対する仮定は (4・2・20) ではなく、全てのチャンネル i に対して $P_1(i, E) = 1$ であり、したがってイオン化チャンネル数は

$$N_1 = \sum_{i \in \substack{\text{遠心力障壁が} \\ E \text{ より低いチャンネル}}} 1 \quad (4 \cdot 3 \cdot 8)$$

と書くことができる。なお、(4・2・22) 式は、4. 2. 3 節と同様に全イオン化チャンネルにおける原子対の占有率 $p_1 = N_1/g$ を用いると (4・2・23) 式のように表され、したがってイオン化速度定数の表式は、この場合も (4・2・24) 式となる。

各チャンネルのイオン化効率に関して上で述べたような仮定 (全てのチャンネル i に対して $P_1(i, E) = 1$) を用いざるを得なかったのは、イオン化が引き起こされるような小さな原子核間距離での He ($2s^3S_1$) + He ($2p^3P_2$) 衝突のポテンシャルの詳細が理論的にも実験的にも未だ不明であり、S-S 衝突の場合とは違って遠距離での衝突チャンネルとイオン化領域での電子状態との相関を決めることができないためである。小さな原子核間距離でのポテンシャル計算では化学的な結合力が重要であるが、He ($2s^3S_1$) + He ($2p^3P_2$) 系のように励起エネルギーが高い場合には精密な理論計算が困難で、これまでに信頼できる計算例は知られていない。また実験的にも、衝突原子対の励起エネ

ルギーが高いことやその寿命が短いことなどのために、基底状態や他の励起状態からの光励起や電子励起を利用した分光学的な方法をこの系に用いることは困難であり、詳しい電子状態に関する情報が得られていない。このような理由のため、*S-P*衝突では、どの衝突チャンネルがどの電子状態と相関を持つのかが未だ不明となっており、スピン保存則のためにイオン化しにくい電子状態と相関のある衝突チャンネルを特定することができないのが現状である。しかしながら、スピン多重度を考慮すると、スピン保存則を無視したことによるイオン化速度定数の計算値への影響は最大でも9/4だけ大きく見積もられる程度にすぎないと考えられるので、レーザー光照射による速度定数増大の大きさを見積もる上ではスピン保存則を無視したことの影響は比較的小さいと考えられる。

一方、より詳しい計算のためには *S-S*衝突の場合に行ったのと同じようにトンネル効果による衝突イオン化への寄与も考慮する必要があるが、上に述べたように、各チャンネルのイオン化効率の不確かさによって速度定数に2倍程度の不確かさが残るので、トンネル効果に関する詳しい計算はこの場合あまり意味を持たないと考えられる。したがって、この *S-P*衝突の計算ではトンネル効果を無視した計算結果を最終結果とすることとする。

さて、上に述べたイオン化効率に対する仮定に基づいて、イオン化チャンネル数 N_I (^4He では 372、 ^3He では 476) と2原子の内部状態の全縮退度 g (^4He では 15、 ^3He では 24) を (4・2・22) 式に代入して (4・2・24) 式から *S-P*衝突のイオン化速度定数 k_{SP} を求めると、 ^4He と ^3He の場合に対してそれぞれ $4.3 \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ 、 $5.0 \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ となる (以下、それぞれ $^4k_{SP}$ 、 $^3k_{SP}$ と記す)。この *S-P*衝突のイオン化速度定数 k_{SP} と *S-S*衝突でのイオン化速度定数 k_{SS} の比は $^4k_{SP}/^4k_{SS} = 195$ 、 $^3k_{SP}/^3k_{SS} = 50$ であり、両方の同位体においてイオン化速度定数に大きな増加のあることが計算上も示されたことになる。この *S-P*衝突での速度定数の大きな増加は、*S-S*衝突では主に *s*波による衝突イオン化であったのに対して、*S-P*衝突では遠距離まで作用する引力的な双極子-双極子相互作用のために0次から6次までの多数の散乱部分波がイオン化に寄与できることによるものであると考えられる。

一方、 k_{SS} には大きな同位体差 ($^3k_{SS}/^4k_{SS} \sim 4.7$) があつたにもかかわらず、 k_{SP} には

余り大きな同位体差が無い (${}^3k_{SP}/{}^4k_{SP} \sim 1.2$)。この比 ${}^3k_{SP}/{}^4k_{SP}$ は常温の S-S 衝突で期待されるイオン化速度定数の同位体比 1.5 と良く似た値となっており、たとえ極低温の衝突であっても S-P 衝突の場合には、常温での S-S 衝突の場合と同様に、偶・奇両パリティをもった多くの高次の部分波がイオン化に寄与するため、量子統計対称性の相違による電子状態の同位体差が相殺されてしまったことによるものと考えられる。

4. 3. 3 イオン化速度のレーザーによる増大効果

4. 3. 1 節で述べたように、トラップレーザー照射下では、S-S、S-P、P-P の 3 種類の衝突が起こるが、更にこれらの衝突チャンネル間で衝突中の光学遷移による原子対の占有率の移動が起こり得ると考えられる。しかしながら本研究の実験条件では、この衝突チャンネル間での光学遷移は、以下のような理由から実質的にはイオン化速度定数には影響しないと考えられる。

本研究で用いたトラップレーザーは、周波数の離調が -5 MHz と小さい上に、その強度は冷却遷移の飽和強度に比べて非常に大きいため、個々の孤立原子の遷移は十分に飽和しており、 $2p\ ^3P_2$ 状態の占有率が $2s\ ^3S_1$ 状態の占有率とほぼ同程度となっている。この実験条件下における孤立原子の冷却遷移の Rabi 周波数は 15 MHz 程度であるが、衝突原子対の S-S、S-P、P-P 各衝突チャンネル間の光学遷移の共鳴周波数 ω_p と孤立原子の共鳴周波数 ω_s との差 $|\omega_p - \omega_s|$ がこの Rabi 周波数と同程度になるのは 70 nm 程度の原子間距離の時である。したがって、原子間距離がこの 70 nm 以上の場合には衝突チャンネル間の遷移も孤立原子の場合同様に十分飽和していると考えられる。一方、衝突エネルギー 0.5 mK における二つの原子の相対速度は約 2 m/s (50 ns で 100 nm 変化する) であるが、衝突チャンネルの自然放出寿命が 49 ns (孤立原子の自然放出寿命 98 ns の半分) 以上であるため、約 100 nm 以下の原子間距離では衝突チャンネルからの自然放出を無視することができる。この 100 nm の原子間距離はチャンネル間の飽和が保たれている距離 70 nm よりも長いため、衝突過程全体を通して各チャンネルの占有率は無限遠の原子間距離の場合とあまり変わらないと考えられる。このことから、チャンネル間の占有率の移動は実質的には考慮する必要が無いものと考えられる。

このようにチャンネル間の光学遷移を考慮しなくても良い場合には、トラップ光照射時に対する (3・1・9) 式で定義されたイオン化速度定数 \tilde{k} は、S-S、S-P、P-P 衝突のイオン化速度定数 k_{SS} 、 k_{SP} 、 k_{PP} を用いて

$$\tilde{k} = k_{SS} \left(\frac{n_S}{n} \right)^2 + k_{SP} \left(\frac{n_S n_P}{n^2} \right) + k_{PP} \left(\frac{n_P}{n} \right)^2 \quad (4 \cdot 3 \cdot 9)$$

と表わすことができる。ここで n_S 、 n_P はそれぞれ $2s^3S_1$ 状態と $2p^3P_2$ 状態にいる He 原子の数密度である。本実験条件下では $n_S \sim n_P$ であり、かつ k_{SS} と k_{PP} は k_{SP} に比べて1桁以上小さいのでこの式の右辺の第1項と第3項は無視することができる。これらのことと4. 3. 2節で求めた k_{SP} を用いると、イオン化速度定数 \tilde{k} は (4・3・9) 式から ${}^4\text{He}$ と ${}^3\text{He}$ についてそれぞれ ${}^4\tilde{k} = 1.1 \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ 、 ${}^3\tilde{k} = 1.3 \times 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$ と計算される。

4. 3. 4 まとめ

トラップレーザー照射下でのイオン化速度定数 \tilde{k} の実験値と計算値を表4-3-1にまとめて示した。 ${}^4\text{He}$ 、 ${}^3\text{He}$ 両同位体においてこれらの計算値と実験値は誤差因子2～3倍程度で一致しており、トラップレーザー光によるイオン化速度定数の増大の効果を良く再現できているといえる。これは、双極子-双極子相互作用が主要な相互作用である S-P 衝突チャンネルにおける大きなイオン化速度定数 k_{SP} を反映したものである。

表4-3-1 トラップレーザー照射下でのイオン化速度定数 \tilde{k} の実験値と計算値の比較 (温度 0.5 mK)

同位体	イオン化速度定数 \tilde{k} ($\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$)	
	実験値	計算値
${}^4\text{He}^*$	$(2.1 \pm 0.6) \times 10^{-8}$	1.1×10^{-8}
${}^3\text{He}^*$	$(3.5 \pm 1.3) \times 10^{-8}$	1.3×10^{-8}

る。

実験値と計算値を比較すると、両同位体ともに計算値の方が小さい傾向にあるが、これは k_{SP} の計算においてトンネル効果を無視して遠心力障壁の高さが衝突エネルギーより低いチャンネルからのみイオン化が起こるとしたことが原因であるとも考えられる。実際には障壁のトンネリングによって 4. 3. 2 節の計算で求めたよりも多くの衝突チャンネルがイオン化に寄与していると考えられる。しかしその一方で、スピン保存則を無視して各チャンネルのイオン化確率をすべて 1 としたこと、計算値は正しい値よりも最大で 9/4 倍大きい可能性がある。したがって、より正確な計算のためにはトンネリングを考慮することと同時にイオン化領域における精密なポテンシャルのデータを知る必要があるが、これは現在のところ困難である。

トラップレーザー光によるイオン化速度定数の増大の程度は、実験値は ${}^3\tilde{k} / {}^3k = 32$ 、 ${}^4\tilde{k} / {}^4k = 55$ であるのに対して理論値は ${}^3\tilde{k} / {}^3k_{SS} = 13$ 、 ${}^4\tilde{k} / {}^4k_{SS} = 50$ で、 ${}^3\text{He}$ に関しては 3 倍弱の差があるが ${}^4\text{He}$ では良く一致しており、理論値は全体として実験結果を良く再現していると言える。このような速度定数の大きな増大は、S-S 衝突ではその相互作用が van der Waals 力であるために s 波のみによる少数のイオン化チャンネルを経由したイオン化が主であるのに対して、S-P 衝突ではその相互作用が遠距離力である双極子-双極子相互作用であるために、遠心力障壁が無いかまたは衝突エネルギーより小さいようなイオン化チャンネルが数多く存在し、それらがほとんどすべてイオン化に寄与しているためである。

\tilde{k} の同位体差については、実験値は ${}^3\tilde{k} / {}^4\tilde{k} \sim 1.7$ 、理論値は ${}^3\tilde{k} / {}^4\tilde{k} \sim 1.2$ で、これらは共にレーザー光の入射していない場合の k や k_{SS} に比べて小さな同位体差しか示していない。この小さな同位体差はイオン化速度定数 k_{SP} における小さな同位体差を反影したものであるが、このように S-S 衝突の場合に比べて小さな同位体差しか示さないのは、常温での S-S 衝突の場合と同様に偶・奇両方のパリティを持つ多くの部分波がイオン化に寄与しているために量子統計対称性によるイオン化チャンネルの電子状態の違いが相殺されて速度定数に現れなかったことによるものと考えられる。このように極低温でも偶・奇両パリティの高次の部分波がイオン化に寄与できるのは、S-P 衝突では遠距離力で引力的な双極子-双極子相互作用により高次の部分波にまでイオ

ン化チャンネルが数多く存在することによるものであり、van der Waals 力による高い遠心力障壁のために単一パリティの部分波 (s 波) しかイオン化に寄与しない S-S 衝突とは対照的である。

第 5 章

総括

レーザー冷却法によって得られるような極低温の He 原子気体は、原子の内部構造の単純さや質量の軽さのために原子気体での Bose-Einstein 凝縮 [56, 57] や原子波干渉 [10, 11] などの基礎的研究において重要な役割を果たすものと期待されるだけでなく、冷却された原子が高い励起エネルギーを持つ $2s^3S_1$ 準安定状態にあることから、エッチングへの利用 [60] など工学的応用に関しても興味深い研究対象である。He 原子のレーザートラップは、このような研究の対象として、また極低温 He 原子の応用における基盤技術として重要なものであると考えられるが、本研究ではこの He 原子の安定同位体である ^4He (核スピンの 0 のボゾン) と ^3He (核スピンの $1/2$ のフェルミオン) のそれぞれの原子種のレーザー冷却と磁気光学トラップ (MOT) への閉じ込めを試みた。その結果、これら 2 つの同位体原子について、ヘリウムのトラップとしては比較的高い原子数密度 ($\sim 10^9 \text{ cm}^{-3}$) の極低温原子気体 (温度 $\sim 0.5 \text{ mK}$ 、原子個数 $\sim 10^5$ 個) を実現することができた。

これらの同位体のうちで特に ^3He 原子のレーザー冷却・トラップは本研究において初めて実現されたものであるが、 ^4He 原子とは質量や初速が大きく異なるにも関わらず ^4He 原子と同様な実験装置で同程度の個数、密度、温度で ^3He 原子を冷却・トラップできることが明らかとなったことから、今後、これらの極低温 He 原子を用いて、量子統計性の相違などのような ^4He と ^3He の同位体差を利用した実験研究が活発に行われることが期待される。

そこで本研究では、これらの極低温 ^4He 、 ^3He 原子気体を用いて、極低温 He 原子同士のイオン化衝突における同位体差についても研究を行った。一般に極低温衝突では、衝突エネルギーが常温に比べて非常に小さいため、常温では問題とならないような小さなエネルギー差でも衝突全体に大きな影響を与えることや常温に比べて非常に小さな角運動量を持った散乱部分波しか非弾性衝突に寄与せず衝突の量子力学的側面が現れやすいことなど、原子衝突の振る舞いが常温の場合とは大きく異なることが期待さ

れるため、極低温衝突での同位体差の研究は大変興味深いものである。

He 原子の極低温気体中では、トラップレーザー光により原子が励起されていない場合には $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突によりイオン化が引き起こされる。 ^4He と ^3He のそれぞれの同位体についてこの衝突イオン化における速度定数 4k と 3k を測定したところ、これらの速度定数の間に $^3k/^4k \sim 3$ の同位体差が観測された。この同位体比は、質量の違いのみから生ずる同位体比 $^3k/^4k \sim 1.5$ (常温衝突の場合に相当) に比べて2倍ほども大きなものであることに加えて、フェルミオンである ^3He の方がボゾンである ^4He の場合よりも速度定数が大きいという点が Kr[53] や Xe[54] の場合とは逆の結果となっており、興味深い結果である。

また一般に、非弾性衝突 (この場合はイオン化) の速度定数は、極低温衝突では原子の遷移に近共鳴するレーザー光により大きく影響を受けることが知られているが、本研究では、MOT を形成しているトラップレーザーによって増強されたイオン化速度定数 \tilde{k} (^3He , ^4He での \tilde{k} をそれぞれ $^3\tilde{k}$, $^4\tilde{k}$ とする) についても計測を行い、 $^4\tilde{k}/^3\tilde{k} = 55$, $^3\tilde{k}/^4\tilde{k} = 32$ という速度定数のレーザーによる増大効果と、それら速度定数の同位体差 $^3\tilde{k}/^4\tilde{k} = 1.7$ が観測された。この同位体差 $^3\tilde{k}/^4\tilde{k}$ は $^3k/^4k$ に比べて小さいものであり、レーザー光で影響されていない場合に常温で予想される値 (~ 1.5) と同程度の同位体差であった。

これらのイオン化速度定数に観測された同位体差の原因とレーザー光による増大効果の大きさを決めている要因を理解する為、速度定数の理論計算を行った。計算からは実験とそれぞれほぼ一致する速度定数が得られたが、その結果、レーザー光が入射していない場合、すなわち $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突における衝突イオン化に観測された同位体差は、 ^3He と ^4He の量子統計対称性の相違により生じたものであり、また、同位体差の傾向が Kr[53] や Xe[54] の場合と逆となったのは、He の場合にはイオン化にスピン保存則[116]が良く成立している為であることが明らかとなった。

この $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突イオン化では、衝突エネルギーに比べて十分高い遠心力障壁により、ほとんど s 波のみの散乱によってイオン化が引き起こされる為、イオン化チャンネルは単一パリティの回転状態となっている。したがって、 ^3He と ^4He の量子統計対称性の相違により、s 波のイオン化チャンネルに許される電子状態が同位

体間でそれぞれ異なり、そのイオン化チャンネル数の相違が大きな同位体差を引き起こしている。一方、常温での衝突イオン化では、偶奇両方のパリティを持つ多数の高次の散乱部分波がイオン化に寄与するため、この同位体差は顕著でなくなってしまう、原子の質量と速度の相違だけによって決まっている1.5倍程度の同位体差にしかない。したがって、本研究で観測された大きな同位体差は、単一部分波（s波）のみによるイオン化が支配的な極低温で初めて顕著に観測可能となったものであるといえる。

また、本研究ではKr[53]やXe[54]での実験と異なり原子のスピン偏極を行っていないが、それにも関わらず大きな同位体差が観測されたのも、イオン化にスピン保存則[116]が良く成り立つ為であった。このスピン保存則が成立しないと仮定すると、Heの場合にもKrやXe同様に、ボゾンの方がフェルミオンよりイオン化速度定数が大きいと予想され、また、その場合にはKrやXe同様にスピン偏極を行わないと速度定数の同位体差が顕著ではないことも理論的に確認された。Heではこのスピン保存則が良く成り立つので2つの原子のスピンが揃った電子状態からはイオン化が起こらないという事実によって大きな同位体差が観測されたのであるが、これは、イオン化にスピン保存則が成立せず原子をスピン偏極させてその電子状態からのイオン化に大きな同位体差を観測しているKrやXeの実験の場合とは全く相補的で、このことがイオン化速度定数に対する量子統計対称性の影響がHeとXe, Krで逆になった理由であると考えられる。

一方、トラップレーザー光が入射している場合には、衝突イオン化は主としてHe($2s^3S_1$) + He($2p^3P_2$) 衝突のチャンネルを経由して起こり、したがって多くの高次の部分波がイオン化に寄与する為、主にs波のみによるイオン化であったHe($2s^3S_1$) + He($2s^3S_1$) 衝突に比べて大きくイオン化速度定数が増大していることがわかった。すなわち、He($2s^3S_1$) + He($2p^3P_2$) 衝突では、原子間に主に双極子-双極子相互作用と遠心力が働くが、遠距離力である双極子-双極子相互作用においては、遠心力障壁が無いが衝突エネルギーより小さいような高次の散乱部分波が多数存在し、これら多くの部分波がイオン化に寄与することができる。また、イオン化速度定数の同位体差は、このように偶と奇の両方のパリティを持つ多数の高次の部分波がイオン化に寄与する

ため、たとえ極低温の衝突であっても、常温の場合と同様に量子統計対称性の相違の影響があまり顕著なものではなくなることが示された。これは $\text{He}(2s^3S_1) + \text{He}(2s^3S_1)$ 衝突の場合とは全く対照的である。

このような極低温原子衝突の研究は、レーザー冷却法の発展により実験研究が可能となった新しい分野であり、現在活発に進められているが[6-9]、とりわけ極低温 ^4He 、 ^3He 原子気体の場合は、量子統計性が異なることや原子の単純な内部構造などの為、他の原子とは異なった興味深い現象の観測が期待され、今後も様々な分野で重要な研究対象となるであろうと考えられる。本研究は、そのような研究のうち、原子衝突に対する量子統計性の影響を調べた極低温 He 原子応用実験の興味深い一例であるといえる。また、本研究で得られたイオン化速度定数に関する実験結果は、極低温での He 原子間衝突に関する基礎的なデータであり、He 原子を用いた Bose-Einstein 凝縮[12-16]や原子波干渉[10, 11]などの研究に於いても必要となるもので、将来これらの研究を行う上でも重要なデータであると考えられる。

参考文献

- [1] *The Mechanical Effects of Light*, eds. P. Meystre and S. Stenholm, *J. Opt. Soc. Am. B* **2** (1985) No. 11.
- [2] *Laser Cooling and Trapping of Atoms*, eds. S. Chu and C. Wieman, *J. Opt. Soc. Am. B* **6** (1989) No. 11.
- [3] 清水富士夫, 応用物理 **60**, 864 (1991).
- [4] K. Sengstock and W. Ertmer, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **35**, 1 (1995).
- [5] C. E. Wieman, D. E. Pritchard, and D. J. Wineland, *Rev. Mod. Phys.* **71**, S253 (1999).
- [6] P. S. Julienne, A. M. Smith, and K. Burnett, *Adv. Mol. Opt. Phys.* **30**, 141 (1993).
- [7] T. Walker and P. Feng, *Adv. Mol. Opt. Phys.* **34**, 125 (1994).
- [8] J. Weiner, *Adv. Mol. Opt. Phys.* **35**, 45 (1995).
- [9] J. Weiner, V. S. Bagnato, S. Zilio, and P. S. Julienne, *Rev. Mod. Phys.* **71**, 1 (1999).
- [10] *Optics and Interferometry with Atoms*, eds. J. Mlynek, V. Balykin, and P. Meystre, *Appl. Phys. B* **54**, 319 (1992).
- [11] C. S. Adams, O. Carnal, and J. Mlynek, *Adv. Mol. Opt. Phys.* **34**, 1 (1994).
- [12] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell, *Science* **269**, 198 (1995).
- [13] K. B. Davis, M. -O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3969 (1995).
- [14] C. C. Bradley, C. A. Sackett, J. J. Tollett, and R. G. Hulet, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1687 (1995).

- [15] 上田正仁, 日本物理学会誌 **53**, 663 (1998).
- [16] F. Dalfovo, S. Giorgini, L. P. Pitaevskii, and S. Stringari, *Rev. Mod. Phys.* **71**, 463 (1999).
- [17] M. R. Andrews, C. G. Townsend, H. Miesner, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle, *Science* **275**, 637 (1997).
- [18] E. W. Hagley, L. Deng, M. Kozuma, J. Wen, K. Helmerson, S. L. Rolston, and W. D. Phillips, *Science* **283**, 1706 (1999).
- [19] U. Janicke and M. Wilkens, *Adv. Mol. Opt. Phys.* **41**, 262 (1999).
- [20] T. W. Hänsch and A. L. Schawlow, *Opt. Commun.* **13**, 68 (1975).
- [21] D. Wineland and H. Dehmelt, *Bull. Am. Phys. Soc.* **20**, 637 (1975).
- [22] V. I. Balykin, V. S. Letokhov, and V. I. Mushin, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **29**, 614 (1979) [*JETP Lett.* **29**, 560 (1979)].
- [23] V. I. Balykin, V. S. Letokhov, and V. I. Mushin, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **78**, 1376 (1980) [*Sov. Phys. JETP* **51**, 692 (1980)].
- [24] S. Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, A. Cable, and A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 48 (1985).
- [25] R. S. Williamson III and T. Walker, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 1393 (1995).
- [26] Z. Lin, K. Shimizu, M. Zhan, F. Shimizu, and H. Takuma, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L1324 (1991).
- [27] S. Grego, M. Colla, A. Fioretti, J. H. Müller, P. Verkerk, and E. Arimondo, *Opt. Commun.* **132**, 519 (1996).
- [28] T. Kurosu and F. Shimizu, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, 908 (1992).
- [29] F. Shimizu, K. Shimizu, and H. Takuma, *Chem. Phys.* **145**, 327 (1990).
- [30] H. Katori and F. Shimizu, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3545 (1993).
- [31] M. Walhout, U. Sterr, C. Orzel, M. Hoogerland, and S. L. Rolston, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 506 (1995).
- [32] H. Metcalf, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2206 (1989).

-
- [33] A. Aspect, N. Vansteenkiste, R. Kaiser, H. Haberland, and M. Karrais, *Chem. Phys.* **145**, 307 (1990).
- [34] N. Morita and M. Kumakura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L1678 (1991).
- [35] F. Bardou, O. Emile, J. -M. Courty, C. I. Westbrook, and A. Aspect, *Europhys. Lett.* **20**, 681 (1992).
- [36] M. Kumakura and N. Morita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L276 (1992).
- [37] M. Drewsen, *Phys. Rev. A* **51**, 1407 (1995).
- [38] W. Rooijackers, W. Hogervorst, and W. Vassen, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3348 (1995).
- [39] W. Rooijackers, W. Hogervorst, and W. Vassen, *Phys. Rev. A* **56**, 3083 (1997).
- [40] W. Rooijackers, W. Hogervorst, and W. Vassen, *Opt. Commun.* **123**, 321 (1996).
- [41] W. Rooijackers, W. Hogervorst, and W. Vassen, *Opt. Commun.* **135**, 149 (1997).
- [42] H. C. Mastwijk, M. van Rijnbach, J. W. Thomsen, P. van der Straten, and A. Niehaus, *Euro. Phys. J. D* **4**, 131 (1998).
- [43] J. Lawall, S. Kulin, B. Saubamea, N. Bigelow, M. Leduc, and C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4194 (1995).
- [44] S. Kulin, B. Saubamea, E. Peik, J. Lawall, T. W. Hijmans, M. Leduc, and C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4185 (1997).
- [45] R. Schumann, C. Schubert, U. Eichmann, R. Jung, and G. von Oppen, *Phys. Rev. A* **59**, 2120 (1999).
- [46] M. Kumakura and N. Morita, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2848 (1999).
- [47] P. J. J. Tol, N. Herschbach, E. A. Hessels, W. Hogervorst, and W. Vassen, *Phys. Rev. A* **60**, R761 (1999).
- [48] M. W. Müller, A. Merz, M. -W. Ruf, H. Hotop, W. Meyer, and M. Movre, *Z. Phys. D* **21**, 89 (1991).

- [49] W. Ketterle and N. J. van Druten, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **37**, 181 (1996).
- [50] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, J. M. Gerton, R. G. Hulet, R. Côté, and A. Dalgarno, *Phys. Rev. A* **55**, R3299 (1997).
- [51] F. Shimizu, K. Shimizu, and H. Takuma, *Phys. Rev. A* **29**, R2758 (1989).
- [52] M. Yasuda and F. Shimizu, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3090 (1996).
- [53] H. Katori, H. Kunugita, and T. Ido, *Phys. Rev. A* **52**, R4324 (1995).
- [54] C. Orzel, M. Walhout, U. Sterr, P. S. Julienne, and S. L. Rolston, *Phys. Rev. A* **59**, 1926 (1999).
- [55] T. Kurosu and F. Shimizu, *Jpn. J. Appl. Phys.* **29**, L2127 (1990).
- [56] G. V. Shlyapnikov, J. T. M. Walraven, U. M. Rahmanov, and M. W. Reynolds, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3247 (1994).
- [57] P. O. Fedichev, M. W. Reynolds, U. M. Rahmanov, and G. V. Shlyapnikov, *Phys. Rev. A* **53**, 1447 (1996).
- [58] C. A. Sackett, C. C. Bradley, M. Welling, and R. G. Hulet, *Appl. Phys. B* **65**, 433 (1997).
- [59] D. G. Fried, T. C. Killian, L. Willmann, D. Landhuis, S. C. Moss, D. Kleppner, and T. J. Greytak, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3811 (1998).
- [60] K. S. Johnson, J. H. Thywissen, N. H. Dekker, K. K. Berggren, A. P. Chu, R. Younkin, and M. Prentiss, *Science* **280**, 1583 (1998).
- [61] E. L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, and D. E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2631 (1987).
- [62] C. Monroe, W. Swann, H. Robinson, and C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1571 (1990).
- [63] W. D. Phillips and H. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 596 (1982).
- [64] D. W. Fahey, W. F. Parks, and L. D. Scheerer, *J. Phys. E* **13**, 381 (1980).
- [65] B. Brutschy and H. Haberland, *J. Phys. E* **10**, 90 (1977).

-
- [66] J. Kawanaka, M. Hagiuda, K. Shimizu, F. Shimizu, and H. Takuma, *Appl. Phys. B* **56**, 21 (1993).
- [67] J. Lawall, C. Orzel, and S. L. Rolston, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 480 (1998).
- [68] L. D. Scheerer and L. A. Riseberg, *Phys. Lett. A* **33**, 325 (1970).
- [69] J. C. Hill, L. L. Hatfield, N. D. Stockwell, and G. K. Walters, *Phys. Rev. A* **5**, 189 (1972).
- [70] K. -A. Suominen, *J. Phys. B* **29**, 5981 (1996).
- [71] M. J. Holland, K. -A. Suominen, and K. Burnett, *Phys. Rev. A* **50**, 1513 (1994).
- [72] M. Machholm, A. Giusti-Suzor, and F. H. Mies, *Phys. Rev. A* **50**, 5025 (1994).
- [73] K. -A. Suominen, K. Burnett, P. S. Julienne, M. Walhout, U. Sterr, C. Orzel, M. Hoogerland, and S. L. Rolston, *Phys. Rev. A* **53**, 1678 (1996).
- [74] H. Katori and F. Shimizu, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2555 (1994).
- [75] S. C. Zilio, L. Marcassa, S. Muniz, R. Horowicz, V. Bagnato, R. Napolitano, J. Weiner, and P. S. Julienne, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2033 (1996).
- [76] P. A. Molenaar, P. van der Straten, and H. G. M. Heideman, **77**, 1460 (1996).
- [77] J. J. Blangé, J. M. Zijlstra, A. Amelink, X. Urbain, H. Rudolph, P. van der Straten, H. C. W. Beijerinck, and H. G. M. Heideman, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3089 (1997).
- [78] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, H. T. C. Stoof, and R. G. Hulet, *Phys. Rev. A* **53**, 3092 (1996).
- [79] C. J. Williams and P. S. Julienne, *J. Chem. Phys.* **101**, 2634 (1994).
- [80] J. Kawanaka, K. Shimizu, H. Takuma, and F. Shimizu, *Phys. Rev. A* **48**, R883 (1993).

-
- [81] N. W. M. Ritchie, E. R. I. Abraham, Y. Y. Xiao, C. C. Bradley, and G. Hulet, and P. S. Julienne, *Phys. Rev. A* **51**, R890 (1995).
- [82] P. S. Julienne and F. H. Mies, *Phys. Rev. A* **34**, 3792 (1986).
- [83] P. S. Julienne and F. H. Mies, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2257 (1989).
- [84] D. J. Wineland and W. M. Itano, *Phys. Rev. A* **20**, 1521 (1979).
- [85] P. Gordon and A. Ashkin, *Phys. Rev. A* **21**, 1606 (1980).
- [86] S. Chu, J. E. Bjorkholm, A. Ashkin, and A. Cable, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 314 (1986).
- [87] A. Aspect, J. Dalibard, A. Heidmann, C. Salomon, and C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1688 (1986).
- [88] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2023 (1989).
- [89] P. D. Lett, R. N. Watts, C. I. Westbrook, W. D. Phillips, P. L. Gould, and H. J. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 169 (1988).
- [90] P. L. Gould, P. D. Lett, and W. D. Phillips, in *Laser Spectroscopy VIII*, proceedings of the Eighth International Conference, Åre, Sweden, 1987, edited by W. Persson and S. Svanberg (Springer, Berlin Heidelberg 1987) p. 64.
- [91] A. L. Migdall, J. V. Prodan, W. D. Phillips, T. H. Bergeman, and H. J. Metcalf, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 2596 (1985).
- [92] E. A. Cornell, C. Monroe, and C. E. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2439 (1991).
- [93] F. Shimizu, K. Shimizu, and H. Takuma, *Opt. Lett.* **16**, 339 (1991).
- [94] L. D. Schearer, M. Leduc, D. Vivien, A-M. Lejus, J. Thery, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-22**, 713 (1986).
- [95] N. Vansteenkiste, C. Gerz, R. Kaiser, L. Hollberg, C. Salomon, A. Aspect, *J. Phys. (Paris) II* **1**, 1407 (1991).
- [96] T. W. Hänsch and B. Couillaud, *Opt. Commun.* **35**, 441 (1980).
- [97] 清水忠雄, *分光研究* **28**, 41 (1979).

-
- [98] D. C. Gerstenberger, E. L. Latush, and G. J. Collins, *Opt. Commun.* **31**, 28 (1979).
- [99] H. Hotop, A. Niehaus, and A. L. Schmeltekopf, *Z. Phys.* **229**, 1 (1969).
- [100] F. B. Dunning, A. C. H. Smith, and R. F. Stebbings, *J. Phys. B* **4**, 1683 (1971).
- [101] P. J. Nacher and M. Leduc, *J. Phys. (Paris)* **46**, 2057 (1985).
- [102] K. Tobita, H. Takeuchi, H. Kimura, Y. Kusama, and M. Nemoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **26**, 509 (1987).
- [103] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë, *Quantum Mechanics* (Hermann, Paris, 1977).
- [104] R. N. Zare, *Angular Momentum* (John Wiley & Sons, New York, 1988).
- [105] M. Mizushima, *The Theory of Rotating Diatomic Molecules* (John Wiley & Sons, New York, 1975).
- [106] P. R. Bunker, *Molecular Symmetry and Spectroscopy* (Academic Press, New York, 1979).
- [107] B. R. Judd, *Angular Momentum Theory for Diatomic Molecules* (Academic Press, New York, 1975).
- [108] M. Larsson, *Physica Scripta* **23**, 835 (1981).
- [109] G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure I. Spectra of Diatomic Molecules* (Van Nostrand Reinhold, New York, 1950).
- [110] F. H. Mies, *Phys. Rev. A* **7**, 942 (1973).
- [111] F. H. Mies, W. J. Stevens, and M. Krauss, *J. Mol. Spectrosc.* **72**, 303 (1978).
- [112] P. S. Julienne, *Phys. Rev. A* **26**, 3299, (1982).
- [113] P. S. Julienne and F. H. Mies, *Phys. Rev. A* **30**, 831 (1984).
- [114] S. J. Singer, K. F. Freed, and Y. B. Band, *J. Chem. Phys.* **79**, 6060 (1983).
- [115] J. B. Delos, *Rev. Mod. Phys.* **53**, 287 (1981).

- [116] E. Wigner, *Gott. Nachr.* 375 (1927).
- [117] E. Wigner and E. E. Witmer, *Z. Phys.* **51**, 859 (1928).
- [118] S. D. Rosner and F. M. Pipkin, *Phys. Rev. A* **1**, 571 (1970).
- [119] M. J. Stephen, *J. Chem. Phys.* **40**, 669 (1964).
- [120] E. A. Power, *J. Chem. Phys.* **46**, 4297 (1967).
- [121] W. J. Meath, *J. Chem. Phys.* **48**, 227 (1968).
- [122] J. D. Prestage, E. A. Hinds, and F. M. J. Pichanick, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 828 (1983).
- [123] R. S. Mulliken, *Phys. Rev.* **120**, 1674 (1960).
- [124] T. Y. Chang, *Rev. Mod. Phys.* **39**, 911 (1967).
- [125] E. I. Dashevskaya, A. I. Voronin, and E. E. Nikitin, *Can. J. Phys.* **47**, 1237 (1969).
- [126] B. Bussery and M. Aubert-Frécon, *J. Chem. Phys.* **82**, 3224 (1985).
- [127] I. Røeggen, *Theoret. Chim. Acta (Berl.)* **21**, 398 (1971).

謝辞

本研究を行うにあたり終始御指導戴きました分子科学研究所助教授森田紀夫先生に深く感謝致します。森田先生には実験室の立ち上げから装置の製作、実験の進め方から理論的考察に至るまで、本研究を通して貴重な御教示を戴きました。これらに際しての困難を克服できたのは、森田先生の的確な御指示や適切な御助言、そして様々な局面での叱咤、激励によるもので、本研究を行う上で森田先生から戴いた御支援は不可欠でした。ここに厚く御礼申し上げます。

分子科学研究所藤井朱鳥助手（現東北大学）、森脇喜紀助手には研究上の様々な議論を始め、研究生活に於いても様々な御協力と御援助を戴き、ひとかたならぬお世話になりました。深く感謝致します。

京都大学名誉教授志田忠正先生には京都大学在籍中に御指導、御教示戴き、その後著者が分子科学研究所に移った後も、度々御激励を戴きました。ここに深く感謝致します。

京都大学助教授百瀬孝昌先生には様々な御助言、御指導を戴き、ひとかたならぬお世話になりました。また、本論文をまとめる上でも、度々御激励を戴きました。ここに深く感謝致します。

分子科学研究所松下道雄助手、尾関博之助手（現宇宙開発事業団）、奥西みさき助手（現東北大学）には多くの御助言、御議論を戴きました。分子分光学に関する有益な御教示は本研究の理論的考察に不可欠なものでした。また、研究生活に於いても様々な形で御協力、御援助を戴きました。深く感謝致します。

分子科学研究所装置開発室の皆様には、実験装置の設計、製作、改良にあたり大変お世話になりました。技術的な御指導ばかりでなく、ほぼ自由に工作室を使用させて戴いた環境や研究生活に対する御助言は本研究を進める上で大変貴重なものでした。厚く感謝致します。

分子科学研究所レーザーセンターおよび物質開発センターの皆様には本研究で使用した実験機器や寒剤に関して様々な便宜をはかって戴きました。深く感謝致します。

分子科学研究所施設系技官の皆様には様々な形で御援助戴き、本研究を進める上で、大きな力となりました。厚く御礼申し上げます。

分子科学研究所助教授鈴木俊法先生には、研究を進める上で様々な御助言、御激励を戴くとともに、公私に渡りお世話になりました。深く感謝致します。

分子科学研究所分子構造研究系の皆様には、研究生活において様々な御援助、御協力を戴きました。また、名前は挙げませんが、京都大学や分子科学研究所での諸先生、諸先輩、友人、後輩諸賢の御指導、御助言により本研究は支えられてきました。ここに深く感謝致します。

最後になりましたが、父母そして妻の理解と励ましに深く感謝致します。