

②

学位申請論文

飽和ヘリウムバッファーガスを封入した  
低温アルカリ原子気体セルの実現と光ポンピング

京都大学大学院 理学研究科  
物理学・宇宙物理学専攻

畠山 温

2001年

## 要旨

本研究では、液体ヘリウム温度（約 2 K）におけるアルカリ原子気体セル（本研究では主に Rb 原子気体セル）を実現した。この研究は、近年盛んに行われている低温ヘリウム中に注入した原子・分子の研究の一つといえるが、達成された低温セルはこれまでにないまったく新しい実験環境である。特にユニークな点は、原子物理学の実験において室温以上の温度で極めてよくもちいられるアルカリ金属気体セルを、液体ヘリウム温度で実現したことである。

この低温セルは、壁が超流動のヘリウム膜で覆われており、気相には高密度の飽和ヘリウムガスが液体ヘリウムとの平衡状態で存在している。そのヘリウムガスの中に、本研究で見出した光誘起原子脱離法によって Rb 原子（典型的密度  $10^8 \text{ cm}^{-3}$ ）をローディングすると、その気体 Rb 原子は、2 cm 程度の大きさのセル中で、10 秒程度の寿命をもって存在する。このセルの実現により、液体ヘリウム温度のヘリウムガス中でのさまざまな新しい実験が可能になる。その中でもっとも注目すべき実験は、本研究で明らかにした非常に長い偏極スピンの緩和時間に関するものであろう。本研究では光ポンピングによって Rb 原子を偏極し、その電子スピン緩和時間を測定した。その結果、Rb 原子の損失を起こさないプロセス（例えば Rb-He 衝突）に対しては、その緩和時間は気体 Rb 原子の寿命（約 10 秒）よりはるかに長いことが明らかになった。おおよそ見積もられた緩和時間は 60 秒で、これはこれまで実現されていたアルカリ原子の緩和時間が 1 秒のオーダーであったことを考えると、革新的な成果であるといえる。

低温セル実現のかぎとなった光誘起原子脱離ローディング法には、注目すべき特徴がある。比較的弱い cw レーザー光の照射で、みためは Rb 金属で覆われていないガラスセルの壁から、多くの Rb 原子が脱離する。さらにこの方法は、セル中のヘリウムが超流動になる温度以下で非常に効率が良い。こうした現象も含めたこの低温セルの物理、つまりどのようなメカニズムで気体 Rb 原子がローディングされ、どのようなメカニズムで失われていくのかを、本研究では明らかにした。そのメカニズムは次のとおりである：セルに光が照射されることによって、セル壁面上の Rb クラスターから Rb 原子は脱離し、壁際のヘリウムガス中に放出される。一方、この壁での凝縮が気体 Rb 原子の最大の損失原因であり、このままでは Rb 原子はすぐに失われてしまう。しかし、光の照射により壁面上のヘリウム膜が熱せられ、熱せられたヘリウムが壁をつたっての超流動流による供給を受けながら連続的な蒸発をすることによって、セル中のヘリウムガスに流れ（超流動駆動ヘリウムガス流）を引き起こす。この流れにのって、脱離した Rb 原子は高密度のヘリウムガス中へ効率良く輸送される。そして Rb 原子がいったんセル中に輸送されると、この高密度のヘリウムガスのために Rb 原子の壁への移動が抑えられ、気体 Rb 原子の長い寿命が達成されるのである。

# 目次

<b>1</b>	<b>序論</b>	<b>1</b>
1.1	本研究の背景	1
1.1.1	低温ヘリウム環境下における原子・分子の研究	1
1.1.2	気体セル中の原子気体の光ポンピング	2
1.2	本研究の成果と意義	3
1.3	本論文の内容と構成	4
<b>2</b>	<b>基本的な実験方法</b>	<b>6</b>
2.1	サンプルセルの作り方	6
2.2	気体アルカリ原子を冷却したセルにローディングし、観測する手順	8
2.3	原子密度の見積もり	11
2.4	セルに照射されるレーザー光のパワーと、セルの温度について	14
<b>3</b>	<b>光誘起原子脱離によるセルのローディング</b>	<b>16</b>
3.1	実験結果	16
3.1.1	超流動転移温度上下での Rb 原子のローディング	17
3.1.2	セル中に Rb 原子がローディングされていく様子	18
3.1.3	ローディング効率の減少	20
3.1.4	ローディング光パワー依存性	20
3.1.5	ローディング光波長依存性	22
3.1.6	Rb 金属によるセル壁面の汚れの影響	22
3.2	議論：原子の源	24
3.3	議論：超流動の役割	27
3.3.1	拡散のみによる Rb 原子のローディング	27
3.3.2	実験的検証	29
3.3.3	ローディング効率のパワー依存性の解釈	30
3.4	レーザーアブレーションによるローディングとの比較	31
3.5	まとめ	33
3.6	付節：さまざまな条件下での Rb 原子ローディングの様子	35

<b>4</b>	<b>低温気体 Rb 原子の減少プロセス</b>	<b>39</b>
4.1	実験結果	39
4.1.1	気体 Rb 原子密度依存性	39
4.1.2	セルサイズ依存性	40
4.1.3	温度依存性	40
4.1.4	長寿命セル	42
4.1.5	ヘリウムガスの流れの Rb 原子減少への影響	43
4.2	考察	44
4.2.1	拡散係数の計算	44
4.2.2	セル中の拡散の計算	46
4.2.3	二原子分子化による減少	47
4.2.4	セル表面での Rb 原子損失	48
4.2.5	スケーリング則	50
4.3	まとめ	51
<b>5</b>	<b>低温気体 Rb 原子の光ポンピングとスピン緩和時間の測定</b>	<b>53</b>
5.1	背景	53
5.1.1	スピン緩和時間を長くする工夫	53
5.1.2	ヘリウム原子とアルカリ原子との衝突によるスピン緩和	54
5.1.3	本実験の目的	54
5.2	実験方法	55
5.3	実験結果	58
5.4	考察とまとめ	61
5.5	付節：室温での Rb 原子密度の測定	63
<b>6</b>	<b>結論</b>	<b>65</b>
A	スピン回転相互作用の定性的説明	67

# 第 1 章

## 序論

### 1.1 本研究の背景

この節では、本研究の背景となる二つの研究、つまり低温ヘリウム環境下における原子・分子の研究と、気体セルをもちいた光ポンピングの研究の、歴史的な流れを述べる。

#### 1.1.1 低温ヘリウム環境下における原子・分子の研究

低温ヘリウム環境下における原子・分子の研究は、1990年代に入りさかんに行われるようになり、原子・分子物理学と低温物理学の境界領域に新しい研究分野をきりひらいている [1]。この研究の魅力は次にあげる三つに分類することができる。

第一には、低温のヘリウムをもちいて、様々な原子分子のサンプルを冷却することができるということである。冷却したサンプルは動きが遅くなるため、高精度の観測が可能になり、さらにはサンプルの運動や内部状態の高度な制御も可能になる。このような冷却サンプルをもちいることの意義の最も良い例の一つとして、中性原子のレーザー冷却・トラッピング [2] の実現後の膨大な研究成果をあげることができるだろう。

第二に、低温のヘリウムはサンプルに対する摂動が非常に小さく、媒質から影響の少ない理想的な環境で実験が可能であるということである。これは、以前から盛んに研究されてきた、ヘリウム以外の希ガス固体マトリックスをもちいた低温での分光の場合 [3] と非常に異なる特徴である。希ガス固体マトリックス中の分光では、マトリックスからのさまざまな摂動は避けられないひとつの大きな問題であった。

第三に、ヘリウムが低温で示すユニークな性質（例えば超流動）を原子・分子をプローブとして微視的に研究する可能性を与えてくれることや、その性質が原子・分子物理学において今までにない新しい実験環境を提供するということである。

これらの特徴をよく示してるこれまでの研究例をいくつかあげる。まず一つめは、1997年に報告された、磁気トラップのバッファーガスローディング (Buffer-gas loading) である [4]。これは、低温ヘリウムガスとの衝突により冷却した原子・分子を磁気トラップ中へ導入する方法である。この方法は、大きい常磁性を示す原子・分子であれば、それらの内部構造に関わら

ず冷却・トラップすることを可能にした。今までレーザー冷却・トラッピングが適用できるサンプルは、原子の、しかもごく限られたものだけであったので、このバッファーガスローディングの実現は画期的であった。

次の例は、ヘリウムクラスターを用いた単離分光法 (helium cluster isolation spectroscopy) である。液体ヘリウムの微粒子ビームにサンプルの原子・分子を捕獲させ、それをレーザー分光する方法 [5] であり、90 年代の初めから始まった研究は、今やたいへんなひろがりを見せている。特に、ヘリウムクラスター中の分子の回転スペクトルが、自由空間中の場合とほぼ同様にはっきりと分離して観測されることは、これまで行われてきた他の固体マトリックス中の分光では得られなかった特徴で、注目に値する [6]。この特徴は、分子、特に不安定な分子を冷却して高分解能分光をするという、この方法の有用な応用に直接結び付いている。また、この観測されたヘリウムクラスター中での自由な分子の回転は、約 0.4 K のヘリウムクラスターの超流動に起因するものであることが示されている [7]。これは、有限な量子系における、巨視的量子効果である超流動の研究として非常に注目されている。

最後の例としてスピンに関連する研究をあげる。サンプル原子のスピン緩和に対して低温ヘリウムの影響が非常に少ないことを利用して、スピン関連の実験がいくつも行われている。先駆的な実験は、1994 年に私たちの研究室で、光ポンピングをもちいて、液体ヘリウム中に注入したアルカリ原子 (Rb, Cs) の偏極に成功した実験である [8]。その後、この研究は、Weis らのグループによる、固体ヘリウム中に閉じ込めた Cs 原子をもちいた、原子の永久双極子モーメント (atomic EDM) の探索実験に続いている [9, 10]。また、ヘリウムクラスター中に、スピン 5 重項状態のナトリウム三原子分子 ( $\text{Na}_3$ ) を形成し、分光する研究も行われている [11]。

### 1.1.2 気体セル中の原子気体の光ポンピング

気体セルは、ガラスなどでできた容器 (セル) にサンプルとなる気体を封入したものである。その取り扱いの容易さや、一度用意すれば同じ条件で何度も実験ができる便利さなどから、原子・分子物理学の非常に基本的なサンプルの形態である。特に、原子物理学の主要な研究対象であるアルカリ原子 (単純な電子構造や、実験用のレーザー光源の用意しやすさといった利点を持つ) の金属は融点が低く (例えば Rb は  $39^\circ\text{C}$ )、室温付近で光学的な観測が十分可能な原子密度を持つ蒸気が得られるため、この気体セル (あるいは蒸気セルとも呼ぶ) を使ってよく研究されてきた。

光ポンピング [12] の研究も例外ではなく、1950 年代に光ポンピングが提唱されて以来 [18]、数多くの研究がアルカリ金属の蒸気セルをもちいて、室温以上の温度で行われてきた。

光ポンピングとは、広い意味では、原子による光の吸収と放出とにより、原子の内部状態を熱平衡時とは異なる状態にする方法のことをさすが、一般的には、狭義に、円偏光をもちいて原子のスピンを偏極する方法のことをさす。この光ポンピングのメカニズムは 1960 年代から 70 年代にかけて精力的に研究された。その一方で、光ポンピングで偏極した原子をもちい、

磁気共鳴などによって原子の物理量を精密測定するといった、さまざまな応用的広がりも見せている（例えば [16]）。また、この光ポンピングは、いわば原子の内部状態をコントロールする方法で、原子の運動をレーザーの輻射圧等で制御する方法とあわせて、現在の原子物理学の特徴の一つである原子の高度な制御技術の基礎になっている。

一方、近年では、希ガス原子の核スピンを、光ポンピングで偏極したアルカリ原子との衝突によって偏極するメカニズムの研究がさかんになっている [17]。これは、核偏極希ガスの幅広い応用、つまり、核偏極ターゲットなどの原子核物理学での応用から、磁気共鳴映像法 (Magnetic Resonance Imaging: MRI) などの医学的応用までの広範な応用の可能性に刺激されたものである。効率良い偏極をめざす研究の過程で、ヘリウムガスとの衝突（正確にはその時のスピン回転相互作用: spin-rotation interaction）によるアルカリ原子の電子スピンの緩和断面積に強い温度依存性があることが理論的に予想された [19]。温度が低くなるにつれて緩和断面積が小さくなる、つまり緩和しにくくなるというものである。この予想は、蒸気セルを用いて、室温以上の温度で実験的に証明された [20]。

上で述べたような蒸気セルでの実験は、室温より高い温度領域に限られている。なぜなら、温度を下げると蒸気圧が低くなり、観測する原子数が十分でなくなるからである。また、なんらかの方法で一時的に気相に原子を導入したとしても、それは冷たいセルの壁に衝突して、そこで凝縮しすぐに気相から失われてしまうからである。

## 1.2 本研究の成果と意義

本研究は、低温ヘリウム環境下での原子・分子という研究分野の中の一つといえるが、そのアイデアはまったく新しいものである。特にユニークな点は、低温ヘリウムの物性をうまく利用して、これまで室温以上の環境では極めて一般的だった原子気体セルを、液体ヘリウム温度で実現したことである。この低温セルは、壁が超流動のヘリウム膜で覆われており、気相には、高密度 ( $\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ) の飽和ヘリウムガスが、液体ヘリウムとの平衡状態で存在している。そして、そのヘリウムガス中に気体アルカリ原子が比較的長時間存在している。

本研究ではさらに、低温セルの実現の鍵となった光誘起原子脱離によるセルのローディング方法のメカニズムや、セル中にローディングした原子気体の性質（原子気体の損失プロセスや、光による励起や発光などの光学的特性）など、本研究で初めて実現された低温気体セルの全体像も明らかにした。これは、今後このセルをもちいた研究の基礎になる部分でもあり、重要度は高い。

もうひとつの成果は、このセル中でアルカリ原子気体を光ポンピングによって偏極することに成功し、その緩和時間が非常に長いことを明らかにしたことである。これは、低温ヘリウムのサンプルに対する摂動の弱さの良い例でもあり、室温以上において示されたヘリウムガスとの衝突によるスピン緩和レートの温度依存性（温度が低いほど緩和レートは小さくなる）を、極低温において示す結果でもある。この測定された緩和時間はこれまでの光ポンピングの歴史のなかでも群を抜いて長く、そのメカニズムの解明は非常に興味深いといえる。

このようなセルを実現した将来的な意義は次のようなものである。このセルで、これまでほとんど研究のされていない、液体ヘリウム表面とアルカリ原子の相互作用、低温ヘリウムガスとアルカリ原子との相互作用の研究が可能になる。アルカリ原子とヘリウム原子との相互作用は、非常に弱い、つまりポテンシャルの井戸が原子間距離の離れた位置 (6-8 Å) にあり、かつ浅い (~1 K 程度) というのが特徴であり [21]、それゆえにさまざまな興味をもたれている。このような浅いポテンシャルの井戸に起因する現象を調べるには、低エネルギー領域での実験が不可欠であり、このセルを用いて有用な結果を得ることができる可能性は十分ある。また、このアルカリ-ヘリウムの弱い相互作用は、アルカリ金属上のヘリウムの濡れ現象 [22] という、最近さかんに研究されている現象を引き起こす要因でもある。このセルは、これとは逆の、ヘリウム基盤上のアルカリ (つまり壁を覆うヘリウム膜表面にアルカリ原子・クラスターが吸着する) という系である。この系の性質を知るといって純粋な興味にくわえて、濡れ現象の視点からもおもしろい結果が期待できる。

またこのセルは、上で述べたように、アルカリ原子の電子スピン緩和時間が非常に長いという特徴をもっている。このような、今までにない長い緩和時間をもつ系が、これまでの膨大な実験の積み重ねのある気体セルをもちいて実現されたことは、今後の発展の可能性を非常に高いものにしている。特に私たちの研究室で注目しているのは、このセルを用いての EDM 探索実験である。なぜなら、今述べた長いスピン緩和時間に加え、高精度の EDM 測定実験に必要なもう一つの条件である高電場の印加も、高密度のヘリウムガスによって可能になるからである [23]。

### 1.3 本論文の内容と構成

本章に続く第 2 章では、基本的な実験方法について説明する。サンプルセルの作り方、冷却したセルにローディングした気体アルカリ原子を観測する方法、アルカリ原子密度の見積もり方などを述べる。

3 章では、気体アルカリ原子を低温セル中に導入するまったく新しい方法、つまり光誘起原子脱離ローディング法について述べる。この方法は、比較的弱い cw レーザーを、みためはまったくアルカリ金属で覆われていない透明なガラスの壁面を透過させるだけで、観測に十分な量のアルカリ原子がセル中にローディングされるという興味深い特徴をもっている。さらに注目すべき点は、このローディングの効率が、セル中のヘリウムの超流動転移温度以下で非常に良いということである。このような特徴をもつ光誘起原子脱離ローディング法のメカニズムを探るために行った、さまざまな実験の結果を述べる。その結果にもとづいて、このローディング法の性質を統一的に説明できるメカニズムを述べる。

4 章では、セル中にローディングされた気体アルカリ原子の寿命を決めている要因を実験的に明らかにする。そして、その原子損失プロセスについていくつかの考察を行う。

5 章では、セル中の気体アルカリ原子を光ポンピングで偏極し、その緩和時間を測定した実験について述べる。

なお本研究は、アルカリ金属の中で主に Rb をもちいて研究を行った。したがって、本論文では Rb についての議論が中心となる。他のアルカリ金属 (K, Cs) に対して行った実験の結果も適宜述べたい。

## 第 2 章

### 基本的な実験方法

この章では、基本的な実験の手順、つまり、サンプルセルの作り方と、低温でサンプルセルに気体アルカリ原子をローディングしその気体原子を観測する方法について述べる。また、原子密度の見積もり方など、一連の実験に共通して必要となる方法や知識についても述べる。

#### 2.1 サンプルセルの作り方

実験で使ったセルはパイレックスガラス（厚さ約 1 mm）でできている。セルの大きさは、セルを冷却するクライオスタットのサンプル槽や、セルを観測するためのサンプル槽の窓の大きさなどから、大きくてもせいぜい 3 cm 程度であった。使用したセルは、立方体、直方体、球形など様々な形をしているが、実験結果を説明するときに、それぞれのセルをもちいたかも述べる。

セルにアルカリ金属とヘリウムガスとを封じる手順は、典型的に次のようなものであった。まず、真空ポンプ（油拡散ポンプ）とヘリウムガスボンベとにつながっているガラス配管系にセルをつなぐ（図 2.1 参照）。そして、このガラス配管を  $10^{-6}$  torr 台まで排気する。この過程で、ガラス配管に漏れがないことを確認し、さらにガラス管をガスバーナーの炎で何度かあぶることにより、おおまかな脱ガスをする。その後、ガラス配管をヘリウムガスで大気圧まで満たし、ガラス管の端（図 2.1 の右上の端）を割る。そして、アルカリ金属のアンブル（アルカリ金属を小さなガラス容器にいれたもの）を割って、空気と反応しないようそこからすばやく入れる。その後ガラス管を封じ、真空ポンプで排気し  $10^{-6}$  torr 台に圧力が到達したのち、セルの入念な脱ガスのためのベークを始める。ベークは、おおよそ図 2.1 の斜線で囲んだ部分を、ヒーターのついた容器で覆い、容器中を 500 K 程度に温めることによって行う。ベークは半日から一日くらい続ける。ベークをやめたあと、アルカリ金属をガスバーナーの炎を使って温め、蒸発と凝縮を繰り返すことにより、セルの方向へ移動する。アルカリ金属は、セルとガラス配管とをつないでいるガラスの細管中に主に溜める。セル本体部分に入り、壁に吸着したアルカリ金属は、高圧のヘリウムガスが入った後では移動させることが困難になるので、ヘリウムガスを導入する前に、移動したい場所に動かしておく。その後、ヘリウムガス（純度

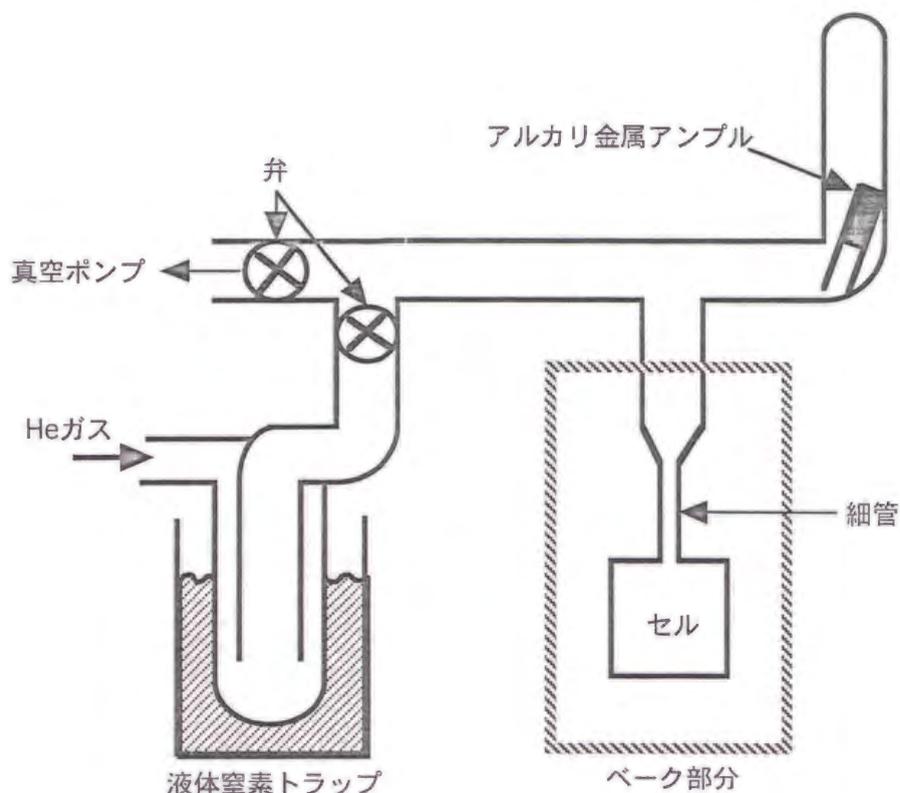


図 2.1: セルにアルカリ金属とヘリウムガスを封じるときの配管系

99.999%) を液体窒素トラップを通して導入する。そして、細管部分を炎であぶって融かし、切り離してセルを封じる。このとき、セル中のヘリウムガスの圧力は大気圧以下でなくてはセルを封じられないので、高密度のヘリウムガスをいれるために、セル本体を冷却する。本研究でよく用いられるセルは、液体窒素 (77 K) に浸して、730 torr のヘリウムガスを封じている。本論文では、特に注意しない場合には、セルにはヘリウムガスがこの程度封入されている。このようにして封じたヘリウムガスの密度は約  $9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  あり<sup>1</sup>、セルを冷却していくと約 1.9 K でヘリウムの液化が始まる。

いま述べた封じ切りセルは、一度用意するとサンプルの条件がほとんど変わらず、同じ条件で何度も実験をすることができるので、本研究で主にもちいた。この封じ切りセルのほかに、ヘリウムガスを外部から出し入れできる密度可変セルも本研究では作成した (図 2.2 参照)。このセルにヘリウムガスを導入する前には、ヘリウムガスを供給する配管中 (図 2.2 には示していない) は  $10^{-6}$  torr 台まで排気する。その後、ヘリウムガス (純度 99.999%) を、液体窒素で冷却したモレキュラーシーブをとおして純化したあと、セルに導入する。これとは逆に、ポンプをもちいてセル中のヘリウムガスを排気することもできる。このように、このセルでは

<sup>1</sup>セル中のヘリウムガスの密度を正確に知りたい場合は、室温においてセル中の気体アルカリ原子のスペクトル幅を測定し、文献値 [24] と比較した。

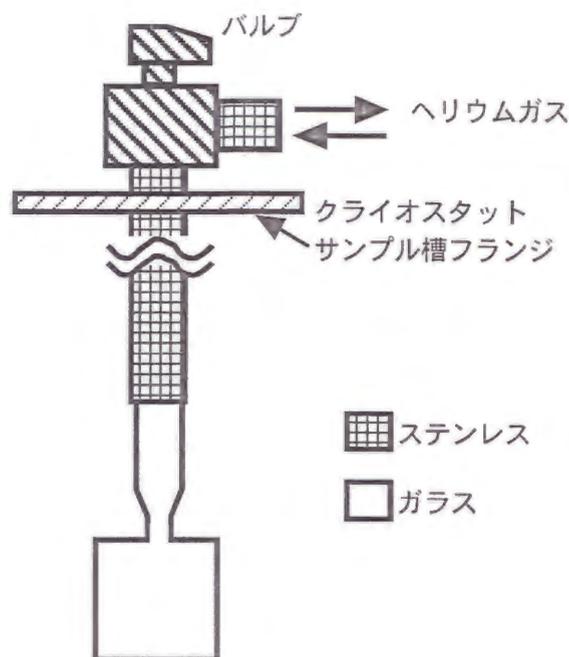


図 2.2: 密度可変セル

セル中のヘリウムガスの量を任意に調節することができる。ただし、ヘリウムガスの純化が上に述べた方法だけでは必ずしも十分ではなかったためか、同じサンプルに対して何度も繰り返して実験を行うことができないという短所があった。

## 2.2 気体アルカリ原子を冷却したセルにローディングし、観測する手順

図 2.3 に実験でもちいた金属製クライオスタットが示してある。クライオスタットには、窓が水平方向に 4 つ（隣り合う窓の角度が  $90^\circ$ ）、鉛直方向に下に 1 つ付いている。それぞれの窓につき、セルと外部との間には 3 枚の窓板がある。そのうち外側の 2 枚は、実験で主にもちいる  $700\text{ nm}$  から  $900\text{ nm}$  の波長の光に対する無反射コーティングが施してある。

セルはサンプル槽内に取り付けられる。サンプル槽は、クライオスタット中の液体ヘリウム槽からヘリウムを導入して冷却する。液体ヘリウム温度では、サンプル槽に液体ヘリウムをため、それにセルを浸して実験をおこなった。これは、セルの温度を空間的に均一に保つためと、レーザーの照射による温度上昇を最小限に抑えるためであり、とくに液体ヘリウムが超流動のとき有効である。液体ヘリウムは、サンプル槽をポンプで減圧することによって、 $1.3\text{ K}$  程度まで冷却することができる。液体ヘリウムの温度は、サンプル槽内にとりつけてあるクライオスタット付属の抵抗温度計で測定した。

セル中のヘリウムガスは、飽和蒸気圧に達すると液化を始める。液化が始まると、それまでほぼ一定だったヘリウムガスの密度はヘリウムの飽和蒸気圧に従って減少していく。ヘリウム

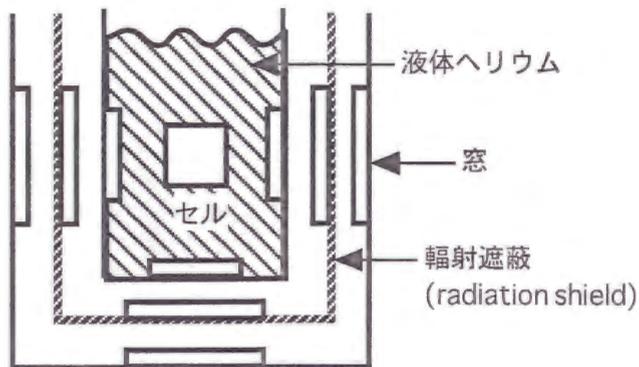


図 2.3: クライオスタット下部の断面図。サンプル槽（液体ヘリウムのたまっている槽）の内径は約 5 cm。一番内側の窓は直径 3 cm で外側の 2 枚は直径 5 cm。

の飽和蒸気圧は、低温での温度基準になっていて詳しくわかっている（たとえば [25]）。温度  $T$  におけるヘリウムガスの原子密度  $n$  は、その圧力  $P$  から第二ビリアル係数  $B$  までを含めた気体の状態方程式

$$P = nRT(1 + Bn) \tag{2.1}$$

から求めた。 $R$  は気体定数である。なお、第二ビリアル係数は実験的に求められた値

$$B = 23.05 - 421.17/T \quad (\text{cm}^3/\text{mole}) \tag{2.2}$$

をもちいた [26]。表 2.1 にいくつかの温度について結果をまとめてある。なお理想気体の状態方程式から計算した密度も載せているが、ずれはそれほど大きくない。

温度 (K)	飽和蒸気圧 (torr)	原子密度( $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) (式 (2.2) より)	原子密度( $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) (理想気体の式より)
1.3	1.18	0.884	0.880
1.4	2.12	1.47	1.46
1.5	3.54	2.30	2.28
1.6	5.60	3.43	3.38
1.7	8.46	4.90	4.81
1.8	12.3	6.76	6.59
1.85	14.6	7.84	7.63
1.9	17.2	9.04	8.77
2.0	23.5	11.8	11.3
2.1	31.1	14.9	14.3

表 2.1:  $^4\text{He}$  の飽和蒸気の圧力と原子密度

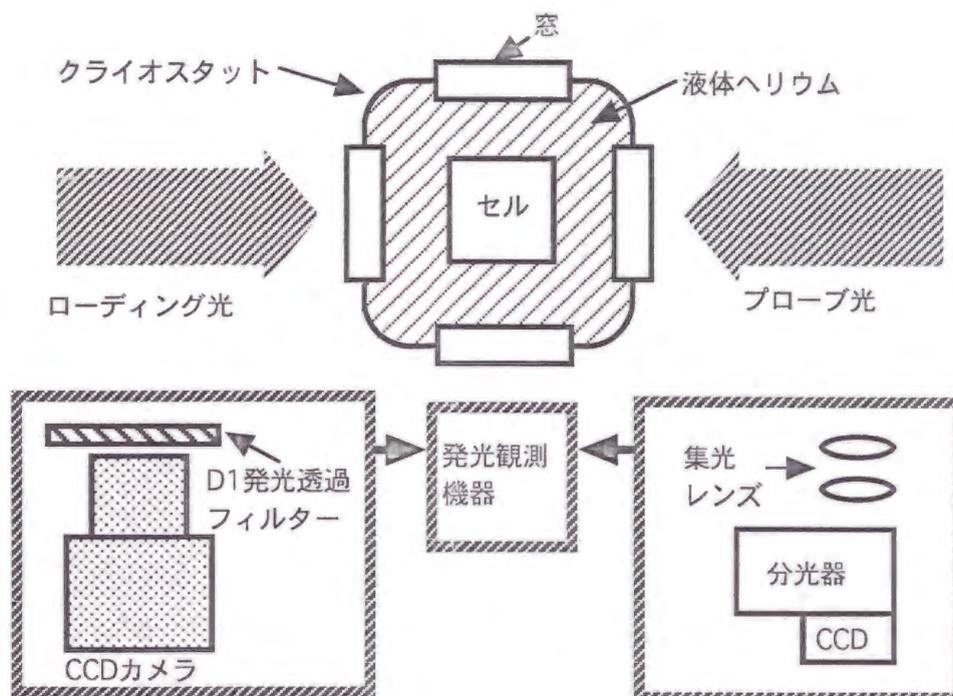


図 2.4: 気体アルカリ原子を光学的に観測する実験装置の模式図（上から見た図）。原子の発光の観測には、CCD カメラ（左）もしくは分光器（右）をもちいた。

冷却したセル中には、気体アルカリ原子は存在しない。気体アルカリ原子は、レーザー光をセルに照射することによって、セル中にローディングした。このローディング方法については次の章で詳しく述べる。

セル中のアルカリ原子の観測（図 2.4 参照）は光学的に以下のように行う。図 2.5 にこの観測に関する Rb のエネルギー準位と遷移が示されている。まず、 $D_2$  線に共鳴するプローブ光で原子を励起する。励起された原子のうち一部は、ヘリウムガスと衝突することによって、微細構造間の遷移を起こす。このようにして  $P_{1/2}$  状態になった原子からの  $D_1$  線の発光を観測する。これは、プローブ光の散乱によるバックグラウンドをさげ、S/N 比のよい観測をするために有効である。

原子の発光は次の二つの方法で、プローブ光に垂直な方向から観測した。一つめは、セル方向からの光を、 $D_1$  線のみを透過させる干渉フィルターを通したあと、CCD カメラ、もしくは増幅 CCD カメラ（Intensified CCD カメラ：ICCD カメラ）で検出する方法である。この方法では、セル全体の原子の発光を二次元的に捕らえることができ、原子密度の空間分布を知ることができる。本研究では、主にこの方法を用いた。もう一つは、セル方向からの光をレンズで集光し、分光器に入れて分光したあと、CCD 検出器で検出するというものである。この方法では、セルの一部分からの光しか集めることができないが、原子の発光のスペクトルを記録することができる。

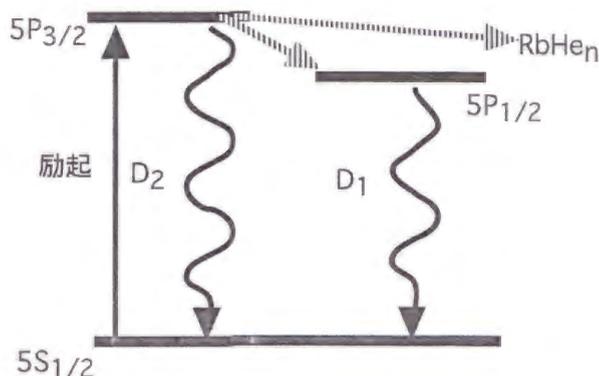


図 2.5: Rb 原子のエネルギー準位と遷移 (原子の観測に関する部分)

### 2.3 原子密度の見積もり

液体ヘリウム温度でセル中にローディングした気体アルカリ原子の密度は、得られた  $D_1$  線の発光強度を、室温のアルカリ金属蒸気に対して得られた  $D_1$  線の発光強度と比較することによって見積もった。この比較のためには、密度の基準となる室温での原子密度と、各温度での  $D_1$  発光の効率を知る必要がある。これらについて以下述べる。

基準となる、室温でのアルカリ金属蒸気の原子密度は、以下のようにして求めた。第一の方法は、良く知られている、アルカリ金属の飽和蒸気の原子密度を基準とするやり方である。温度  $T$  K での金属の飽和蒸気圧  $P$  torr は、4つのパラメーター  $A, B, C, D$  をもちいて、一般的に次の式で表される (例えば [27])。

$$\log_{10} P = A - \frac{B}{T} + CT + D \log_{10} T. \quad (2.3)$$

Rb 金属について、液化点 (312 K) 以下の温度に対して、二つの文献にある  $A, B, C, D$  の値をもちいて飽和蒸気圧を求め、理想気体の状態方程式から原子密度を計算して表 2.2 にのせた。文献 [27] のほうが文献 [28] より 25% 程度低い値を示している。このずれの原因は、どの実験データをもとにパラメータを求めたかであると考えられる。各実験ごとにデータにこの程度のずれがあるからである。本研究では、文献 [20] で実測値とよく一致すると確認している Killion の式 [29] に近い、文献 [28] の値にならう<sup>2</sup>。光学的に測定されたアルカリ原子の飽和蒸気密度に関しては文献 [30] を参照にされたい。

ここで気をつけなくてはいけないのは、アルカリ金属の蒸気セルは、かならずしも飽和蒸気に達しているわけではないということである。今回実験で使用したセルも、セルごとに原子密度はまちまちで、典型的には飽和蒸気密度の何十パーセントかの密度であった。飽和蒸気に近い原子密度を持つセルを作るには、不純物と反応していないような純粋なアルカリ金属を大量

<sup>2</sup>文献 [28] では 298 K 以上の温度に対してのパラメーターとして記載してあるが、この式は一般的に幅広い範囲にわたって成り立つので、本研究では 298 K 以下についてもこのパラメーターから求めた値を用いる。

式 (2.3) のパラメーター				
文献	A	B	C	D
[28]	7.738	4215		
[27]	-94.05	1961	-0.03772	42.58

原子密度 ( $10^{10} \text{ cm}^{-3}$ )							
文献	287 K	289 K	291 K	293 K	295 K	297 K	299 K
[28]	0.379	0.475	0.594	0.741	0.921	1.14	1.41
[27]	0.292	0.365	0.455	0.565	0.700	0.863	1.06

表 2.2: 室温での Rb 金属の飽和蒸気の原子密度

にセル中にいれる必要がある。そのようにして作成したセルの原子の発光を飽和蒸気からの発光とし、基準にした。

もう一つの方法は、プローブ光に対するアルカリ原子の吸収率を室温で測定し、そこから原子密度を求めるものである。これには次の関係式、すなわち、原子の、ある周波数  $\nu$  の光子に対する吸収断面積  $\sigma_0(\nu)$  が、ある遷移においてもつ次のような関係式をもちいる [24, 30]。

$$\int \sigma_0(\nu) d\nu = \pi r_0 c f. \quad (2.4)$$

ここで、 $r_0 = 2.82 \times 10^{-13} \text{ cm}$  は古典電子半径で、 $c$  は光速、 $f$  は遷移の振動子強度である。アルカリ原子の  $D$  線についてはこの振動子強度は正確にわかっている。また、吸収断面積のスペクトルは、プローブ光の周波数を  $D_2$  線を横切って掃引しながら  $D_1$  発光を記録することによって調べることができる。得られたスペクトルはよく知られているようにローレンツ型をしていた。これらの情報から、原子のある遷移に対する光子吸収断面積を求めることができるので、原子気体の光に対する吸収率を測定すれば、原子密度を直接求めることができる。

ただし、実験でもちいているセルはヘリウムガスの密度が高く、吸収線の幅が、圧力広がりのため非常に広がっている。したがって光が原子に吸収される効率は非常に低い。典型的な例として、吸収断面積がローレンツ型 (半値全幅 (FWHM) : 60 GHz) の Rb の  $D_2$  遷移 (振動子強度 0.67) の中心に、線幅が 60 GHz に比べ十分狭いレーザー光 (実験でもちいるプローブ光はこの条件を満たす) をあわせたとする。このとき、密度  $10^{10} \text{ cm}^{-3}$  の Rb 原子が 1 cm の間にプローブ光を吸収する割合は 0.1% のオーダーである。これを直接精度良く観測するのは困難である。

そこで、光吸収率は、気体アルカリ原子を光ポンピングでスピン偏極し、プローブ光の偏光を、光弾性変調器 (Photoelastic modulator: PEM) によって  $\sigma^+ \leftrightarrow \sigma^-$  と変調し、吸収量をロックイン検出することによって感度をあげて測定した。PEM による変調とロックイン検出の方法は、後の光ポンピングの章で詳しく述べるので、その時に室温の原子密度の見積もり方

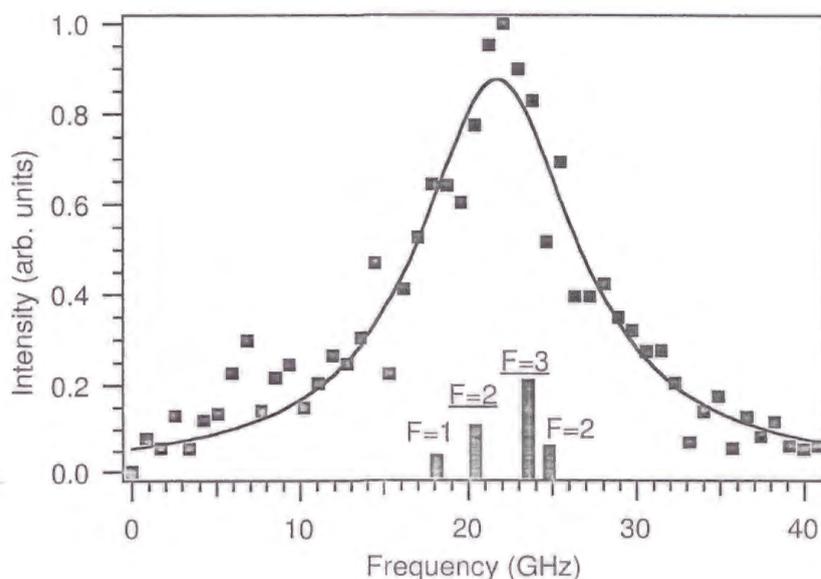


図 2.6: 1.85 K の飽和ヘリウムガス中での Rb 原子の  $D_2$  励起スペクトル。原子ローディング光を照射し終わって 10 秒後に測定した。データ（黒点）をローレンツ関数によりフィッティングした結果が実線で示してある。図中には、真空中の Rb 原子の基底状態からの吸収線の周波数の位置が示してある。F の値は基底状態の超微細構造の全角運動量を表し、下線がひいてあるものが  $^{85}\text{Rb}$ 、そうでないものが  $^{87}\text{Rb}$  である。棒線の長さはおおよそその吸収の強さを表す。なお周波数の絶対値は横軸の右方向が減る方向である。

も説明する。

このようにして求めた室温の原子密度と比較して低温での原子密度を決めるには、 $D_2$  励起効率と、 $D_1$  線で発光する割合とを、各温度で知る必要がある。励起効率は、 $D_2$  線励起スペクトル（光子吸収断面積）を測定すればわかる。スペクトルの幅は、295 K で約 60 GHz、1.85 K で約 12 GHz（図 2.6 参照）であった。つまり、スペクトルの中心に線幅の狭いレーザー光を同調したときの励起効率は 1.85 K のときが 295 K のときの約 5 倍であるといえる。

$D_1$  発光の割合は、分光器にとりつけた CCD 検出器で  $D_2$  線と  $D_1$  線の発光強度を同時に測り、それを比較することで求められる。ただし、 $D_2$  発光は、プローブ光の散乱光とスペクトルが重なっているため、良い S/N 比で測定するためには、プローブ光の散乱をできるだけ抑える工夫をする必要がある。測定された  $D_1$  発光と  $D_2$  発光の和に対する  $D_1$  発光の割合は、295 K で約 0.5、1.85 K で約 0.9 であった。つまり 1.85 K の方が  $D_1$  発光の割合が 1.8 倍程度多いことになる。

これらの二つを考慮して、本研究では、液体ヘリウム温度での気体原子の密度は、その温度での発光と同じ強さの  $D_1$  発光が室温で観測される室温の原子気体の密度の 10 分の 1 とした。ただし、液体ヘリウム温度でも、温度が変わると、特にセル中のヘリウムが液化した温度以下ではヘリウムガスの密度が大きく変わるので、励起スペクトルの線幅と  $D_1$  発光の割合も変わる。しかし、これらはお互いに打ち消し合う方向に変わる。つまりヘリウムガスの密度が下がると、線幅が狭くなって励起効率が上がる一方で  $D_1$  発光の割合が減る。低温では、 $D_1$

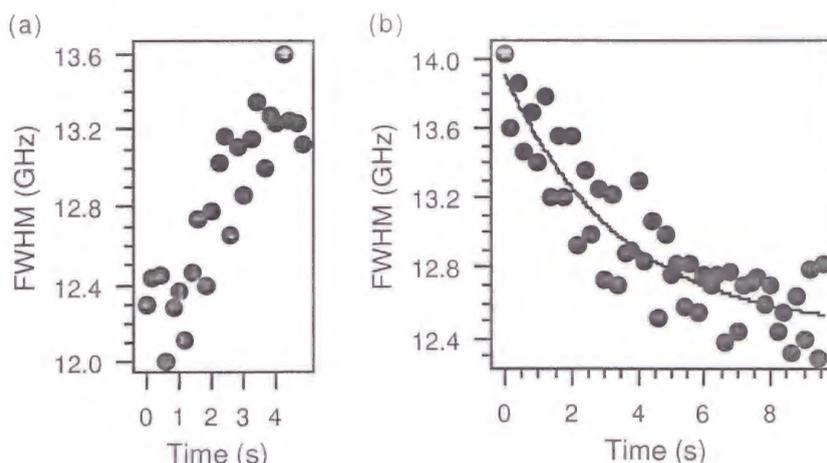


図 2.7: (a) 原子ローディング光を照射し始めたときの  $D_2$  励起スペクトル幅の増加と、(b) 原子ローディング光を 10 秒間照射してやめた後 (やめた時が 0 s) の  $D_2$  励起スペクトル幅の減少。温度は 1.84 K。セルは 1 辺 2 cm の立方体。ローディング光は波長 720 nm、パワー 180 mW で、セル全体に照射した。図 (b) 中の実線はデータを単一指数関数でフィッティングしたもので、減衰の時定数は約 3 s。(a) と (b) は連続して記録したものではないので、多少温度差がある可能性がある。

発光量が同じであれば原子密度もほぼ同じとしてよいことは、実験でおおよそ確認した。

この原子密度の見積もりには、基準となる室温での原子密度の見積もりや、励起効率、発光割合の見積もり由来して何十パーセントかの誤差がある。

なお、液体ヘリウム温度では、 $D_2$  線で励起した時、 $D_2$  線と  $D_1$  線に加えて、赤外領域に幅広いスペクトルをもつ発光が観測された。これは、これまでに低温ヘリウムガス中の銀原子の場合 [31] や、私たちの研究室で以前観測した液体ヘリウム中のアルカリ原子の場合と同様に、励起状態のアルカリ金属にヘリウム原子が接近し、Alkali-He<sub>n</sub> のような分子を形成して生じる発光だと考えられている。ただし、この発光をおこす原子の割合はせいぜい 10% 程度と見積もっており、今回のおおまかな原子密度の見積もりでは無視した。

最後に付け加えるが、この節で述べたような低温ヘリウムガスとアルカリ原子の衝突による現象は、それ自身が興味深い研究対象であり今後の研究の発展が期待される。

## 2.4 セルに照射されるレーザー光のパワーと、セルの温度について

クライオスタットの窓はそれぞれ三枚の窓板があるので、セルに実際に照射される光のパワーは、クライオスタット外部の値のおおよそ 90% 弱である。本論文で挙げる光のパワーは、実際にセルに加えられたパワーである。また、本研究で用いられるレーザー光は、特に述べない場合は、セル全体を覆うように広げられている。よって、その時の光の強度は、光が照射されるセル面の面積でパワーを割った値になる。例えば、180 mW のレーザー光を面積が 4 cm<sup>2</sup> のセル面全面に照射した時の強度は、45 mW/cm<sup>2</sup> である。

レーザー光の照射によって、セルの内部の温度は上昇する。例えば、180 mW のレーザー

光を 10 秒間セル全体に照射するという、典型的な原子ローディングプロセスでは、セル内部の温度は例えば 1.84 K から 1.87 K くらいまで、0.03 K 程度上昇する。この温度上昇は、セル中のヘリウムガス（液化したヘリウムと平衡状態にある）の圧力上昇から知ることができる。これは、温度が上がるとヘリウムの飽和蒸気圧が上がるためである。ヘリウムガスの圧力は、密度可変セルにとりつけた圧力計で直接測定するか、または、Rb 原子の励起スペクトルの圧力広がり幅を記録することで見積った（両方とも同様の結果を得た）。この励起スペクトル幅が、ローディング光を照射すると増加し、照射を止めると減少する様子が図 2.7 に示してある。線幅の変化がヘリウムガスの密度に比例するとすると、10% 程度の線幅の増加 (12.4 GHz→13.6 GHz) は、ヘリウムの飽和蒸気圧では 14.1 torr (1.84 K) から 15.6 torr (1.87 K) の増加に対応する。

本論文で述べられる温度は、セルを浸してある液体ヘリウムの温度であり、この温度は、測定中もほとんどかわらず一定である。ただし、各測定間で温度を正確に一定に保つことは困難である。さらにはクライオスタットに取り付けた温度計は徐々に狂ってしまい、頻繁に校正しているものの、必ずしも異なる日における実験の間では厳密に同じではない。それでも、本論文で示した温度の誤差は  $\pm 0.02$  K 程度であり、この程度の誤差は、本研究では本質的な問題にはならない。

## 第 3 章

### 光誘起原子脱離によるセルのローディング

本章では、本研究において初めて見出し、低温気体セルの実現のかぎとなった手法、つまり連続発振 (cw) レーザー光をもちいた光誘起原子脱離 (Light-induced atom desorption: LIAD) によるセルのローディングについて述べる。まずその特徴を調べた実験の結果をあげ、つづいてそれに基づきこの方法のメカニズムの考察を行う。

Rb 原子について主に述べるが、K、Cs 原子に対する結果も適宜付け加える。

#### 3.1 実験結果

LIAD ローディングは非常に単純かつ効率の良い方法である。2.1節で述べたような方法で準備したセルをクライオスタット中で冷却して、セルに cw レーザー光を照射するだけである。ただ、この方法には二つの興味深い特徴がある。

ひとつめは、比較的弱い cw レーザー光を (セル中の Rb 金属の固まりや Rb 膜に直接照射するのではなく) みためはまったく Rb で覆われていない透明なガラス壁に照射することにより、十分観測可能な量の Rb 原子 (典型的には密度  $10^8 \text{ cm}^{-3}$ ) が、セル中にローディングされることである。ふたつめは、この方法が、セル中のヘリウムが超流動状態になっているときに非常に有効であるということである。

この二つの大きな特徴をもつ LIAD ローディングのメカニズムの解明のために行った実験を、本節では述べる。実験はさまざまなセルに対して行った。得られた実験結果はどのセルに対するものでもほぼ定性的には一致したものであったが、多少のセル依存性があった。混乱をさけるために、この章では、典型的な結果を与えた一つのセル (一辺 2 cm の立方体セル、ヘリウムガスは  $T_c \sim 1.9 \text{ K}$  で液化する) についての結果を主に述べる (このセルをこの章では標準セルと呼ぶ)。他のセルについての結果を述べるときは、そのつどそのセルの説明を付け加える。

なお、特に注記しないかぎり、ローディング光はセルの横から、セル全体を覆うようにビーム径を広げて入射している。プローブ光 (パワー約 2 mW) も同様である。

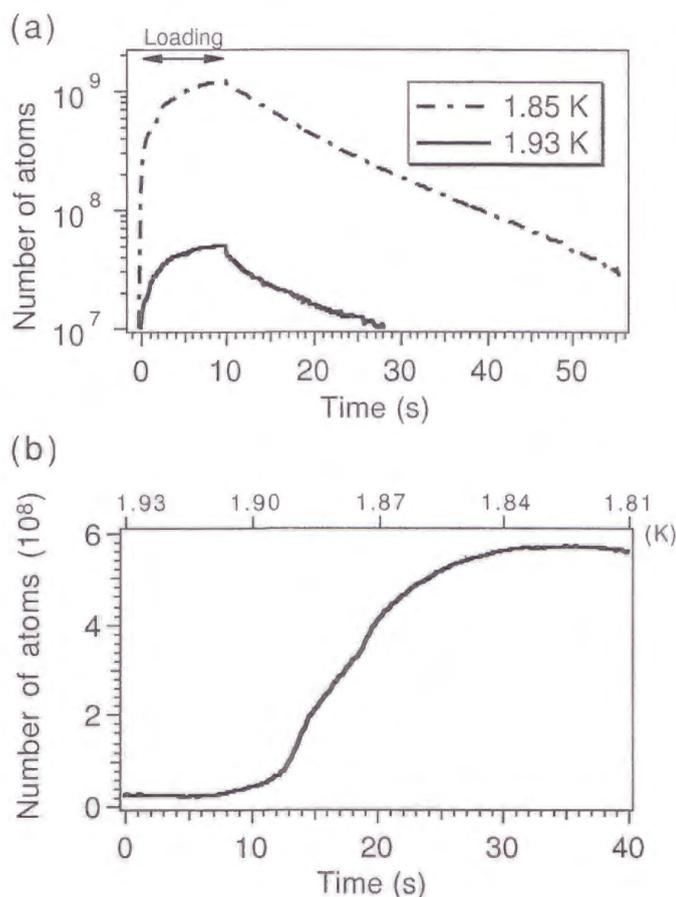


図 3.1: (a) ローディング光 (180 mW、720 nm) を図の 0 s から 10 秒間照射したときの、セル中の Rb 原子数の時間変化。(b) セルの温度を  $T_c \simeq 1.9$  K を横切って徐々に (10 秒間で約 0.03 K) 下げた時、セル中に存在する Rb 原子の数の時間変化。ローディング光 (180 mW、720 nm) は照射したままである。図の上の目盛りはセルのおおよその温度を示す。

### 3.1.1 超流動転移温度上下での Rb 原子のローディング

図 3.1 (a) に、 $T_c \sim 1.9$  K の上下の温度 (1.93 K と 1.85 K) において、ローディング光 (180 mW、720 nm) をセル全体に 10 秒間照射したときのセル中の Rb 原子数の時間変化が示してある。両方の温度において、ローディング光を照射した時刻  $t = 0$  s 直後から、Rb 原子がセル中に導入されているのがわかる。そして、10 秒たつと、Rb 原子数はほぼその最大値に近づく。ローディング光を切ると、気体 Rb 原子は減少していくが、その  $1/e$  寿命は約 10 秒である。この寿命を決めているのは、4章で述べるが、主にセル表面での気体 Rb 原子の損失であると考えている。

$T_c$  上下の温度での注目すべき違いは、ローディングされる原子数が著しく異なることである。本章では、ローディング光の 10 秒間の照射後にセル中に存在する Rb 原子数を  $N_{\text{Rb}}$  と表すが、この  $N_{\text{Rb}}$  は 1.85 K のほうが 1.95 K に比べ約 20 倍も大きい。

このローディング効率の  $T_c$  上下での大きな差異は、図 3.1 (b) でよりはっきりと見ることができる。この測定では、ローディング光を照射したまま、セルの温度を  $T_c$  を横切って徐々に下げていっている。  $T_c$  のあたりから、セルが急激に Rb 原子で満たされてくるのがわかる。そして  $T_c$  以下では、やはり最終的に  $T_c$  以上の温度と比べて約 20 倍の Rb 原子でセルが満たされている。

このようなローディング効率の劇的な差異は、セル中のヘリウムガスの量を変え、液化する温度を変えたセルについても観測された。例えば、封入するヘリウムガスの量を減らし、約 1.7 K で液化するようなセルでも、この変化は 1.7 K 付近で観測された。

上に述べた二つの場合では、ヘリウムガスの液化と超流動転移が近い温度で起きる [32] ので、どちらがローディング効率の大きな差異を引き起こす本質的原因であるかがわかりづらい。そこで、密度可変セルに大量のヘリウムガスを導入し、 $\lambda$  点 (2.17 K) 以上の温度でヘリウムガスの液化が起こるようにして実験を行った。その結果、ローディング効率の変化はヘリウムの液化点ではなく、超流動転移点である  $\lambda$  点付近で起こることがわかった。従って、このローディング効率の変化は、セル中のヘリウムの超流動性と深く結びついているといえる。

### 3.1.2 セル中に Rb 原子がローディングされていく様子

図 3.2 に、 $T_c$  以下 (1.85 K) において、セル中に Rb 原子がローディングされていく様子が示してある。図からわかるように、Rb 原子は、まずローディング光が照射されたセル壁面から脱離する (左上像)。その後、Rb 原子は壁を沿い、セルの下の角をまわって下部からセル中央に向かう流れにのり、セル中に満ちていくのがわかる (右上、左下像)。そして、10 秒後には、Rb 原子の密度はほぼ均一になる (右下像)。Rb 原子の密度約  $10^8 \text{ cm}^{-3}$  に比べ、ヘリウムガスの密度約  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  は非常に高いので、この流れはヘリウムガスの流れであると考えられる。この流れの速度は、ローディング光のパワーを増すことにより増加することがわかった。また、セルのまわりを取り囲んでいる液体ヘリウムの温度を、ローディングの最中に徐々に増加させることによっても、流れの速度を増加させることができた。これらの結果から、この流れはセルが温められることによって生じると推測できる。ただし、注意すべきことは、この流れは、セルの壁面が温められて生じる普通の熱対流とは逆向きに流れることである。この流れは  $T_c$  以下の温度に特有のものであり、セル中のヘリウムの超流動と関係していると思われる ( $T_c$  以上の温度での Rb 原子ローディングの様子は図 3.14 に示してある)。

ガスの流れのより詳細な理解にはさらに詳しい研究が必要であるが、この流れが Rb 原子のセル中へのローディングに重要な役割を果たすことは、3.3 節で述べる。

なお本章の最後に、付節として、さまざまな条件下において観測された Rb 原子のローディングの様子を表す画像をまとめてある。

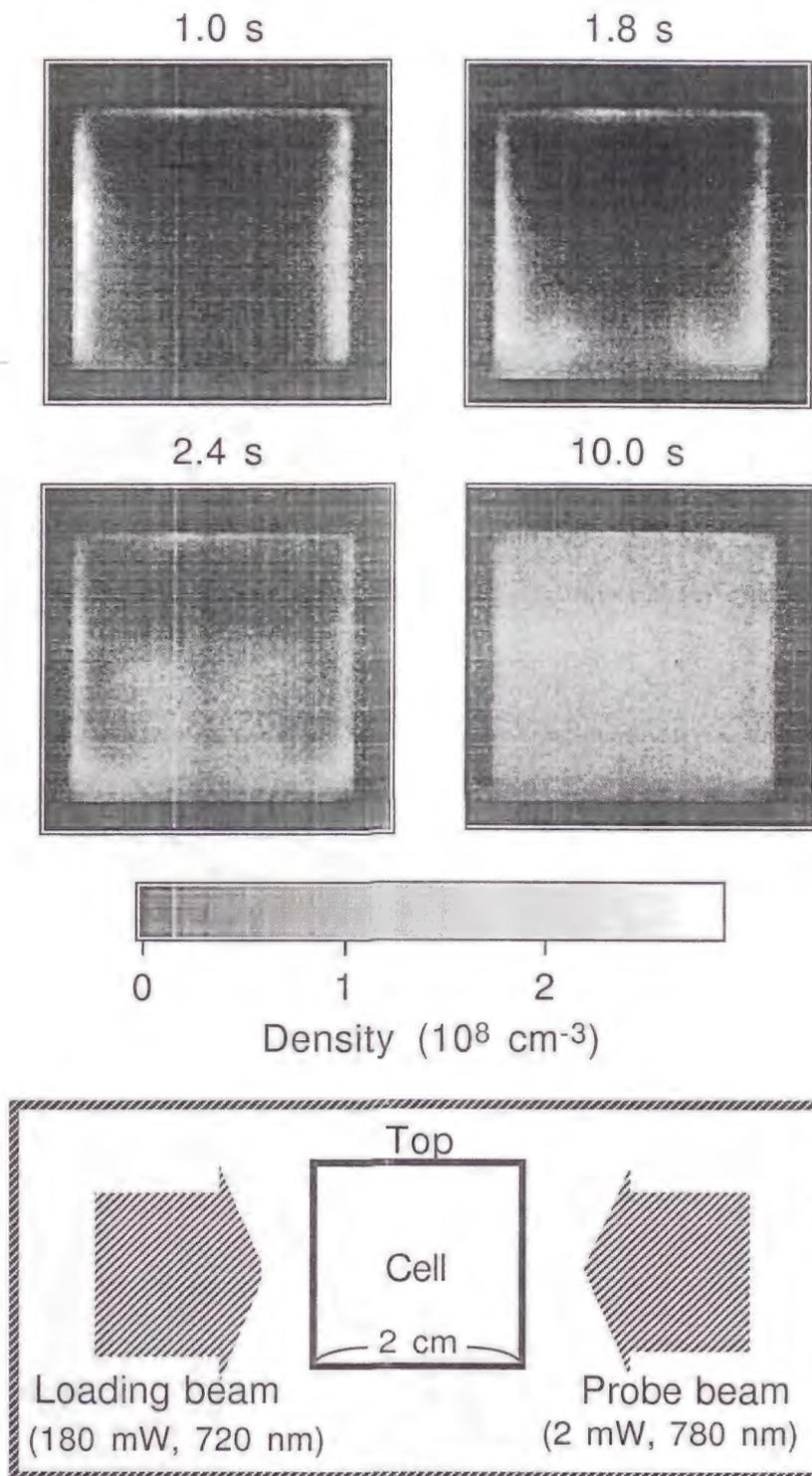


図 3.2: ローディング光を時刻 0 s に照射したときにセル中にローディングされていく Rb 原子の密度分布の像。温度は 1.85 K。ICCD カメラの露光時間は 1 枚の像につき 0.2 秒で、例えば左上の像に対しては 0.8 s から 1.0 s の間露光してある。下図: レーザー光の配置。

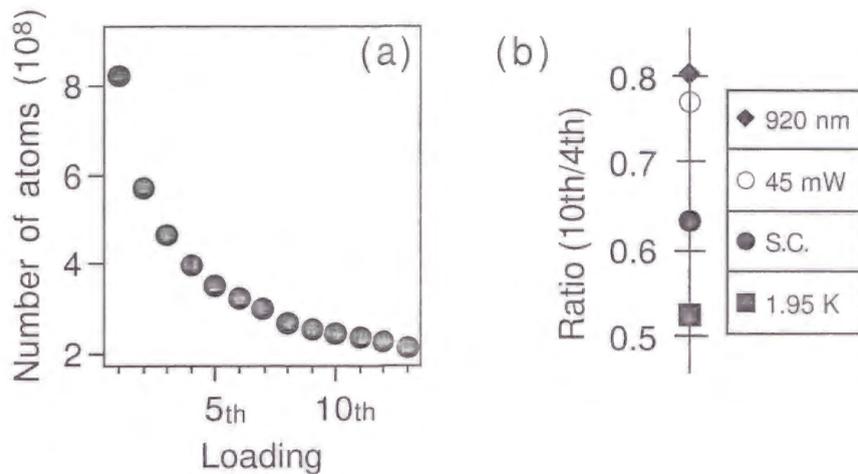


図 3.3: (a) 10 秒間でローディングされる Rb 原子の数 ( $N_{\text{Rb}}$ ) が、10 秒間のローディングを繰り返したときに減少していく様子。ローディング光はパワー 180 mW、波長 720 nm。温度は 1.85 K。(b) 10 回目のローディングで得られた  $N_{\text{Rb}}$  と 4 回目のローディングで得られた  $N_{\text{Rb}}$  の比。それぞれの測定は標準条件 (パワー 180 mW、波長 720 nm、温度 1.85 K (図中で S.C. と表されている)) のもとで行っている。5 回目から 9 回目までの 5 回のローディングは、さまざまな条件のもとで行っている。その条件と標準条件との違いが図中に示してある。

### 3.1.3 ローディング効率の減少

LIAD ローディングは非常に単純で効率のよい方法であるが、その効率はローディングを繰り返すにつれ、徐々に悪化する。図 3.3 (a) にその様子が示してある (なお、図 3.3 (b) は 3.3 節での議論の際にもちいる)。減少したローディング効率は、典型的にはセルを 200 K 以上に温め、再び冷却することによって回復できる。セルを温めるために、セルが設置されているクライオスタットのサンプル槽をそこにとりつけられているヒーターで温めるか方法か、セルをサンプル槽の最上部 (その温度は室温に近い) に持ち上げる方法か、いずれかをもちいた。温めたあと冷却するスピードも、ローディング効率に影響することも明らかになった。例えば、セルをサンプル槽の上部からいきなり液体ヘリウムに沈めるといったような急激な冷却では、たとえセルを高温で長い間保った場合でも、ローディング効率の復活は、緩やかに冷却した場合にくらべて十分ではなかった。本研究では、普通、1 時間くらいかけてセルを冷却した。

### 3.1.4 ローディング光パワー依存性

10 秒間にローディングされる Rb 原子の数  $N_{\text{Rb}}$  の、ローディング光パワー依存性を測定した。測定では、ローディングの繰り返しによる  $N_{\text{Rb}}$  の変化と、ローディング効率の回復のためのセルの過熱 / 冷却サイクルによる  $N_{\text{Rb}}$  の変化を除くために、以下のように測定を行った (この方法は次節の波長依存性の測定の際にもちいている)。

$N_{\text{Rb}}$  のパワー依存性は、あるパワーで得られた  $N_{\text{Rb}}$  に対する、他のパワーで得られた  $N_{\text{Rb}}$

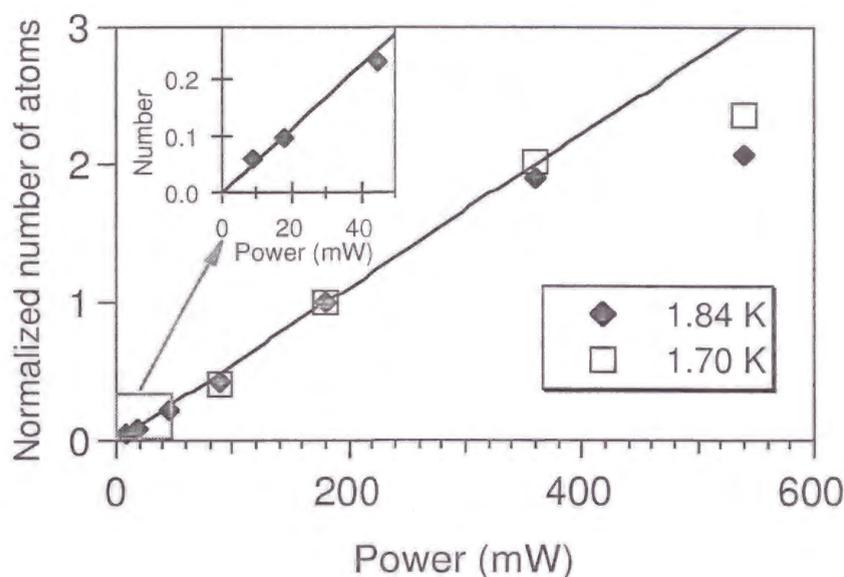


図 3.4: 10 秒間でローディングされた Rb 原子の数 ( $N_{\text{Rb}}$ ) のローディング光パワー依存性。1.84 K と 1.70 K で測定された。ローディング光の波長は 720 nm。  $N_{\text{Rb}}$  のそれぞれの値は、各温度での 180 mW に対する値で規格化されている。パワー約 360 mW までの直線的なパワー依存性を示すために、直線も描いてある。

の比という形で得た。この比を得るために、ローディング条件を交互に替えながら (例えば 45 mW  $\rightarrow$  180 mW  $\rightarrow$  45 mW  $\rightarrow$  ..... )  $N_{\text{Rb}}$  を測定した。このようにして測定された  $N_{\text{Rb}}$  の値のそれぞれは、その値が測定された前後に測定された値の平均と比較した。そして、ローディング効率を回復するためにセルを過熱 / 冷却し、今度は、ローディング条件を前回とは逆の順番で適用し (180 mW  $\rightarrow$  45 mW  $\rightarrow$  180 mW  $\rightarrow$  ..... )、同様の測定・解析を行い、さらには前回の結果との平均をとった。このような測定・解析を各パワーについて何度か繰り返した。得られた結果は十分再現性のあるものであった。

このようにして得られた  $N_{\text{Rb}}$  のパワー依存性が図 3.4 に示してある。  $N_{\text{Rb}}$  は約 360 mW まではパワーにおおよそ直線的に比例していることがわかる。ただし、さらに高パワーになると飽和的な振舞いを示している。このような高パワーのローディング光に対しては、Rb 原子がセルに満ちていく時の流れは、図 3.2 で見たようなきれいなはっきりとした流れとは異なり、乱雑な流れになることも観測された (図 3.15 参照)。この飽和の一つの説明としては、強いレーザー光の照射によってセルの温度が  $T_c$  を超えてしまったために、ローディング効率が下がってしまうからという仮説を上げることができる。しかし、この仮説は正しくない。なぜなら、セルの温度が  $T_c$  より十分低く、レーザー光の照射によっては  $T_c$  を超えないと思われる 1.70 K においても同様の飽和的振舞いが観測されているからである<sup>1</sup>。この飽和に関する

<sup>1</sup>セルを  $T_c$  よりわずかに低い温度に保ちレーザー光を照射すると、ローディング効率が明らかに下がることは確認された。これは、セルの温度が  $T_c$  を超えるためであると考えられる。

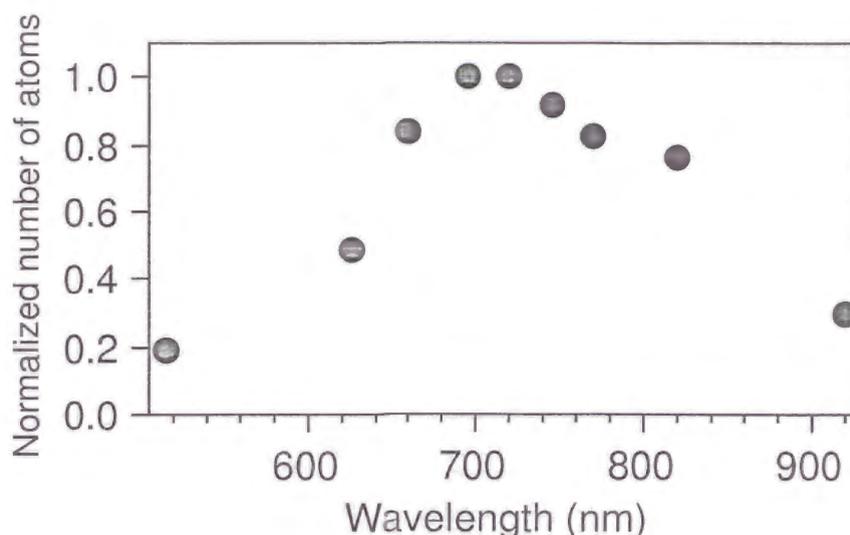


図 3.5: 10 秒間でローディングされた Rb 原子の数 ( $N_{\text{Rb}}$ ) のローディング光波長依存性。温度は 1.85 K。ローディング光のパワーは 110 mW。  $N_{\text{Rb}}$  の値は、ピークの値で規格化されている。

より深い考察は、3.3節で行う。

### 3.1.5 ローディング光波長依存性

10 秒間にローディングされる Rb 原子の数  $N_{\text{Rb}}$  の、ローディング光波長依存性が、図 3.5 に示してある。波長依存性は共鳴的な特徴を示しており、ピークの波長は約 710 nm で、幅は約 200 nm くらいある。

この波長依存性は、セルごとに多少（特に幅は）異なったが、そのピークの位置はおおよそ同じであった。図 3.6 に、図 3.5 に示した標準セルでの波長依存性ととともに、これまでに実現したなかで最もローディング効率の良いセルでの波長依存性が示してある（この高効率セルでの波長依存性のピーク値（標準セルの約 4 倍）を 1 と規格化してある）。標準セルに比べて、幅は狭くなっているが、ピークの位置はほぼ変わっていない。

また K のセルで波長依存性を測定した結果が図 3.7 に示してある。Rb のセルに比べ、ピークの波長がやや短波長側（ $\sim 10$  nm）により、形も全体的に短波長側に片寄っている。

この波長依存性の特徴は、3.2 章で議論するように、Rb 原子の源の重要な情報を与えてくれる。

### 3.1.6 Rb 金属によるセル壁面の汚れの影響

本章の最初に述べたが、LIAD ローディング法では、cw レーザーは見た目はまったく透明なセルの壁面に照射される。cw レーザーを肉眼で見える Rb 金属の固まりの表面に照射した

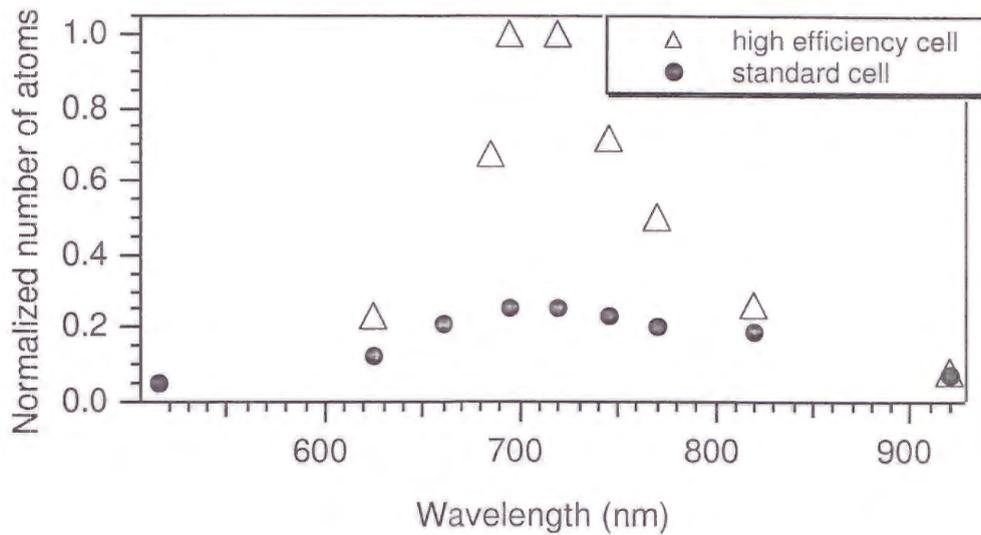


図 3.6: 標準セル (standard cell) と高効率セル (high efficiency cell) における、10 秒間でローディングされた Rb 原子の数 ( $N_{\text{Rb}}$ ) のローディング光波長依存性。温度は 1.85 K。ローディング光のパワーは 110 mW。  $N_{\text{Rb}}$  の値は、高効率セルでのピークの値で規格化されている。標準セルのデータは図 3.5 に示されたものと同じである。

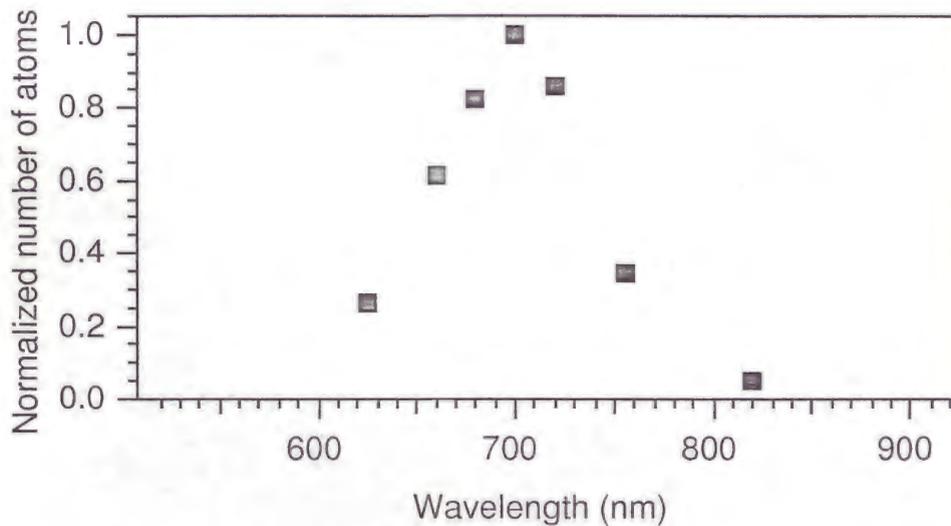


図 3.7: K セルにおいて、10 秒間でローディングされた K 原子の数のローディング光波長依存性。温度は 1.85 K。ローディング光のパワーは 110 mW。値は、ピーク値で規格化されている。

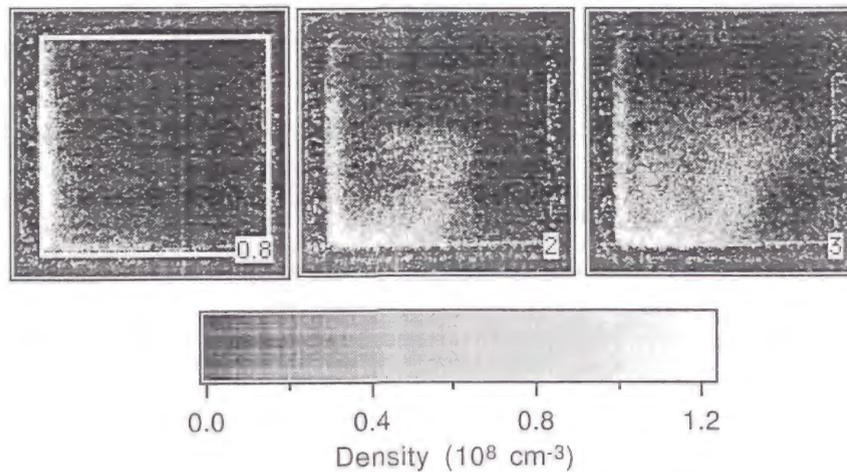


図 3.8: セルの一壁面（画像の右側の壁）が薄い Rb 膜で覆われたセルにおける Rb 原子のローディングの様子を表す画像。セルは一辺 2 cm の立方体で、その壁は左像に白線で示してある。Rb 膜は、垂直に入射した波長 700 nm の光の透過率を約 70% 下げる厚さである。ローディング光（波長 665 nm、パワー 180 mW）は時刻（像右下に示してある。単位は秒）0 s に照射されている。ICCD カメラの露光時間は 0.2 秒で、例えば左像に対しては 0.6 s から 0.8 s まで露光されている。温度は 1.85 K。

場合、原子のローディングは観測されなかった。たとえ、ようやく肉眼で認識できる程度の薄い Rb 膜<sup>2</sup>でも、原子のローディングは得られなかった（図 3.8 にそのローディングの様子が示してある。Rb 膜で覆われていない面からのみ原子が出ているのがわかる）。それだけでなく、Rb 金属の固まりをセル本体中に入れると、たとえセルの壁がみためは Rb 金属で覆われていなくても、ローディング効率が下がることがしばしばあった。これは、この状態では、セルの表面が（目に見えないくらい）非常に薄い膜で覆われてしまいやすいためかもしれない。現時点の知識では、Rb 金属がセル中に入り、セル壁面が汚されてしまっているようなセルでは、高いローディング効率は得られない。しかし、セル表面を火で入念にあぶって Rb 金属を取り除いたようなきれいなセルの壁面でも、高いローディング効率は得られない。

もうひとつ指摘しておく点は、実験でもちいたセルは、室温において、飽和 Rb 蒸気の原子密度に比べ低い Rb 原子密度を持つということである。さらにその Rb 原子密度の分布は空間的に均一でなく、Rb 金属表面に近いほうが密度が高く、むきだしのガラス表面に近いほうが低くなっていた。

### 3.2 議論：原子の源

本節では、Rb 原子の源が Rb クラスターであるという解釈を述べ、それに基づき、いくつかの実験事実を説明する。

<sup>2</sup>30 nm 程度までの厚さの Rb 膜は肉眼で認識できるはずである。なぜなら、文献 [33] の方法にならうと、可視光（波長 550 nm）が垂直に膜に入射したときの透過率が 80% 程度であると見積もられるからである。この見積もりには文献 [34] で報告されている屈折率をもちいた。

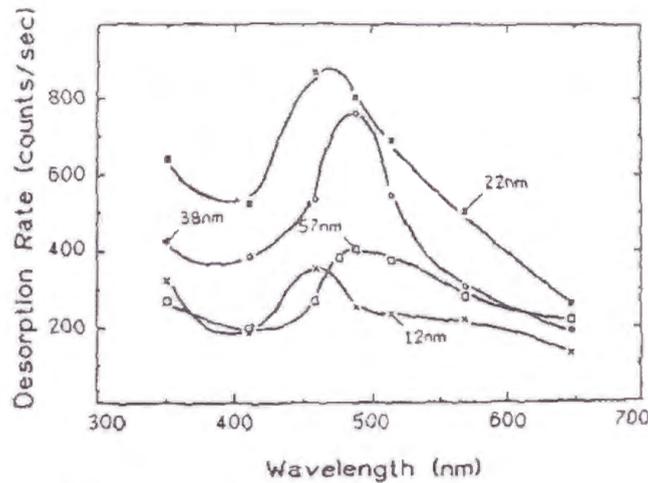


FIG. 3. Desorption rate of Na atoms detached from the surface of small Na particles as a function of wavelength for different particle sizes.

図 3.9: 文献 [35] で報告された、基盤上の Na 微粒子からの Na 原子の脱離レートの波長依存性。Na 微粒子サンプル集団の平均半径も示してある。

図 3.5 に示した  $N_{\text{Rb}}$  のローディング光波長依存性は、Rb 原子がセルの壁表面の Rb 微粒子 (クラスター) から脱離していることを示唆しているといえる。過去に、このような、基盤上のアルカリ金属 (Na, K) クラスター集団 (平均半径が 5 nm から 100 nm) からの、cw レーザー照射による原子の脱離が詳しく研究されている [35]。この研究によると、脱離レートのレーザー光波長依存性は、本研究の結果と似た、幅広い共鳴的な特徴を示す (図 3.9 参照)。この研究ではさらに、この波長依存性はクラスターのダイポール表面プラズモン共鳴で主に決まっていることを明らかにしている。このダイポール表面プラズモン共鳴がクラスター表面の電場の増大に寄与し、それに伴い表面での電場の吸収が増え原子の脱離をうながすのである。

球形金属クラスターのダイポール表面プラズモンの共鳴周波数  $\omega_1$  は、クラスターの半径に依存せず、次の式で与えられる [36]。

$$\omega_1 = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + 2\epsilon_m}} \quad (3.1)$$

ここで、 $\omega_p$  は金属の体積プラズマ周波数で、 $\epsilon_m$  はクラスターを囲んでいる媒質の誘電定数である。この  $\epsilon_m$  は、セル表面のクラスターに対しては、ガラスの誘電定数 ( $\approx 2$ ) とヘリウムの誘電定数 ( $\approx 1$ ) の間の値で近似できる [36]。これに従って、 $\hbar\omega_p = 3.4$  eV [37]、 $\epsilon_m = 1.4$  とすると、共鳴する波長として 710 nm を得る。これは図 3.5 で示した結果と良く一致している。

さらにここでは、過去に測定された Rb 金属と K 金属の誘電定数 [38]<sup>3</sup> をもちいて、波長依

<sup>3</sup> これは室温のサンプルに対して測定されたものである。低温では多少異なる可能性はある。また金属表面の粗

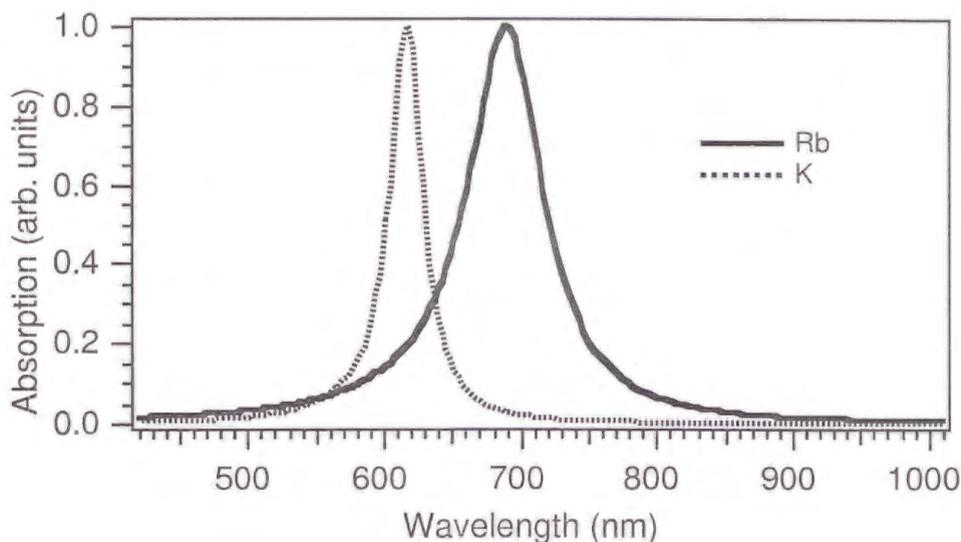


図 3.10: 式 (3.2) に従い計算された、Rb クラスタと K クラスタの表面プラズモン共鳴のダイポールモードでの光の吸収断面積。それぞれのピーク値で規格化してある。

存性のスペクトルを計算してみた（文献で報告されている値の間は適当に補完した）。金属クラスタの表面プラズモン共鳴のダイポールモードによる光の吸収断面積  $\sigma_{abs}$  は次のように書ける [36]。

$$\sigma_{abs}(\omega) \sim \omega \frac{\epsilon_2(\omega)}{(\epsilon_1(\omega) + 2\epsilon_m)^2 + \epsilon_2(\omega)^2}. \quad (3.2)$$

ここで  $\epsilon_1$ 、 $\epsilon_2$  はそれぞれ誘電定数の実部と虚部である。 $\epsilon_m = 1.4$  として計算した結果が図 3.10 に示してある。実験結果と比較すると、Rb の場合のピークの波長は実験値とほぼ一致し、K が Rb に比べ短波長側にシフトすることも定性的にはあっているといえる。実験値との定量的な一致にはいたっていない（特に実験では Rb と K の差異がそれほど明確ではない）が、文献 [35] の結果（図 3.9）をみてもわかるように、実際にはクラスタのサイズによって波長依存性がまちまちであることを考えると、十分納得できる結果であるといえる。

Rb 原子の源が Rb クラスタであるとする、前節で述べたローディング効率に関する実験結果のうち、Rb 金属によるセル表面の汚れに対する依存性とローディングの繰り返しに対する依存性は、以下のように説明できる。高いローディング効率を得るには、室温において、セルの表面が Rb 金属で飽和しておらず、Rb 金属が適度な大きさの島状に分布 [39] していることが大切であると考えられる。Rb 金属で覆われた壁は、たとえそれが非常に薄い Rb 膜であっても、LIAD ローディングには不向きであろう<sup>4</sup>。Rb 原子の脱離レートが依存する低温でのセル壁面の状態（例えば Rb クラスタのサイズ分布<sup>5</sup>）は、高温時のセル表面の状態とセルを冷却していく過程に依存すると推測できる。低温でローディングされた Rb 原子は、

さが測定値に影響しているとの指摘もある [39]。

<sup>4</sup> 薄膜に対しては、全反射減衰法 (Attenuated-total-reflection method) が有効かもしれない [40]。

<sup>5</sup> 文献 [35] によると、原子の脱離レートはクラスタのサイズにも共鳴的に依存し、そのピークの半径は K の場合約 50 nm である。

最終的にはセル壁面で凝縮してしまうはずであるが、LIAD ローディングに適した Rb クラスタは、低温では（少なくとも速やかには）再生されない。このことは、液体ヘリウム温度で2時間もセルを放置してもローディング効率が回復しないという実験事実が示している。また、ローディング光を照射する面を変えて Rb 原子をセル中にローディングし、それらが失われたあとでも、もともとローディング光を照射していた面からのローディング効率が回復しないことからわかる。セルを加熱し再び冷却するという過程で脱離効率が回復するのは、この過程で壁面上で Rb 原子・クラスタの拡散と再形成が起きるからであろう。

### 3.3 議論：超流動の役割

本節では、超流動転移温度以下でのローディング効率の著しい増大における超流動の役割は、超流動駆動ガス流による、脱離原子のセル中への効率良い輸送である、という解釈について議論する。

この輸送プロセスは次のようなものであると考えている。ヘリウムガスの流れがない場合は、セル表面から脱離した原子は、高密度ヘリウムガス中での遅い拡散のために、なかなかセル中に拡散し広がっていくことができない。そして、セルの表面で再び凝縮してしまう。しかし、超流動ヘリウム膜で覆われたセル壁面をレーザー光で加熱することにより、ヘリウム膜の連続的な蒸発が起きる（ヘリウムはセル底のバルク液体ヘリウムから壁をつたっての超流動流で供給される）。これによりヘリウムガスの流れ（超流動駆動ガス流）が起き、その流れが脱離した Rb 原子を効率良くセル中に輸送するのである。図 3.2 の流れはこの超流動駆動ガス流であると考えている。

なお、もしセルの温度が 1.85 K から 1.87 K まで上昇したとすると、蒸発するヘリウムガスの量は約  $3 \times 10^{19}$  個である。この量は、脱離する Rb 原子の量よりはるかに大きく、また 1.85 K の飽和ヘリウムガス（密度  $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ）中に流れを起こし、Rb を輸送するには十分な量であると言える。

#### 3.3.1 拡散のみによる Rb 原子のローディング

先に述べた輸送プロセスの描像を検証するために、この小節では、拡散のみによって Rb 原子がセル中に導入される極端な場合を考えてみる。

壁から脱離した Rb 原子はヘリウム原子との衝突によって熱平衡化される。脱離した Rb 原子がヘリウム原子と一度衝突することによる温度変化の平均  $\Delta T$  は、剛体球どうしの弾性衝突と仮定すると、次のようになる [41]。

$$\Delta T = -\frac{8}{3} \frac{mM}{(m+M)^2} (T - T_{\text{He}}). \quad (3.3)$$

ここで  $M$  と  $m$  はそれぞれ Rb 原子と He 原子の質量であり、 $T$  と  $T_{\text{He}}$  はそれぞれの温度である。この式に従うと、もし脱離 Rb 原子の初期温度を  $10^3$  K とすると [35]、それが熱平衡化されるには約  $10^2$  回のヘリウムガスとの衝突が必要である。Rb-He の衝突断面積を  $10^{-14} \text{ cm}^2$

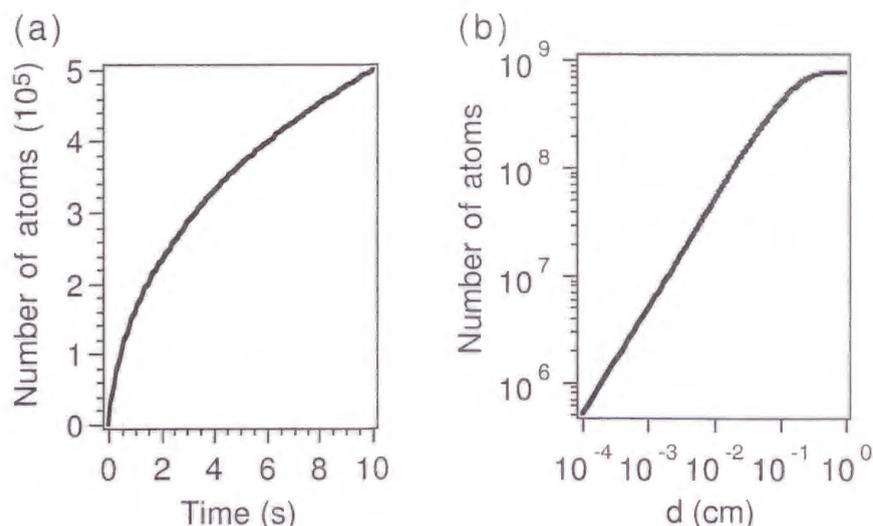


図 3.11: (a) 式 (3.8) から計算された、一辺 2 cm の立方体セル中の Rb 原子数。Rb 原子は平面状の原子源から、 $2.5 \times 10^7$  個 / (cm<sup>2</sup> s) の割合であふれてくる。この平面状原子源は、ある一つの壁から距離  $d = 10^{-4}$  cm だけ離れたところにある。セル表面での原子密度は 0 とした。拡散係数は  $3 \times 10^{-3}$  cm<sup>2</sup>/s とした。(b) (a) と同様の計算で得られた、時刻 10 s におけるセル中の原子数の  $d$  依存性。

とすると、密度  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup> のヘリウムガス中での Rb 原子の平均自由行程は  $10^{-6}$  cm になる。従って、壁から脱離した原子は、熱平衡に達する前にせいぜい壁から  $10^{-4}$  cm だけ離れられることになる。

このようにして熱平衡化された Rb 原子はセル中を拡散していく。拡散によってどれだけの Rb 原子がセル中に導入されるかを見積もるために、拡散問題を解析的に解いた。条件は以下のとおりである。セルは一辺  $l = 2$  cm の立方体である。Rb 原子はセルの壁に衝突すると必ず失われてしまうとする（つまりセル表面での原子密度を 0 とする）。一つの壁から原子が脱離し、壁からの距離  $d$  以内に熱平衡化されるプロセスは、壁から距離  $d$  の位置に、平面状の原子源があるとして近似する。この原子源からは原子が  $R_s = 2.5 \times 10^7$  個 / (cm<sup>2</sup> s) の割合でわき出ているとする。拡散係数は、4.2.1 節で計算される、1.85 K の飽和ヘリウムガス中の Rb 原子の拡散係数  $D = 3 \times 10^{-3}$  cm<sup>2</sup>/s とする。

具体的な計算は次のとおりである。立方体セルの一つの頂点が  $xyz$  座標の原点にあるとし、原点を含む 3 つの辺は  $x, y, z$  軸の正の方向にあり、長さは  $l$  である。原子密度  $n$  に関する拡散方程式

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \nabla^2 n \quad (3.4)$$

を、境界で  $n = 0$  の条件で解くと、一般解は次のようになる。

$$n(t) = \sum_{p,q,r=1}^{\infty} C_{p,q,r} \sin(\pi p x / l) \sin(\pi q y / l) \sin(\pi r z / l) \exp\left(-\frac{\pi^2(p^2 + q^2 + r^2)D}{l^2} t\right). \quad (3.5)$$

$C_{p,q,r}$  は初期条件で決まる係数で、次のように求める。まず、連続的に原子がわき出る場合で

はなく、時刻  $t = 0$  で原子が平面状 ( $n(t = 0) = A\delta(x - d)$ ) の空間分布をしている場合を考える。このときの係数  $C_{p,q,r}^0$  は

$$C_{p,q,r}^0 = (2/l)^3 \int \int \int_0^l n(t = 0) \sin(\pi px/l) \sin(\pi qy/l) \sin(\pi rz/l) dx dy dz \quad (3.6)$$

として求まる。式 (3.5) と式 (3.6) から、このときの原子密度の時間発展  $n(t)^0$  が決まる。続いて、連続的に原子がわき出ている条件を考える。このためには、上の場合と同様の初期密度分布であるが、時刻  $t = t'$  が拡散の時間原点の場合の原子密度  $n(t - t')^0$  を、時間について積分する。ただし  $A = R_s dt'$  と置き換える。

$$n(t) = \int_0^t n(t - t')^0 dt' \quad (3.7)$$

セル中の全原子数  $N(t)$  を求めるには  $n(t)$  を空間的に積分すればよい。このようにして計算された結果は次の式になる。

$$N(t) = \sum_{p,q,r=1}^{\infty} \frac{8l^4 R_s}{\pi^7 D p^2 q^2 r^2 (p^2 + q^2 + r^2)} \sin(\pi pd/l) (1 - (-1)^p) (1 - (-1)^q)^2 (1 - (-1)^r)^2 \times \left( 1 - \exp\left(-\frac{\pi^2 (p^2 + q^2 + r^2) D}{l^2} t\right) \right) \quad (3.8)$$

図 3.11 (a) に、このようにして計算した、セル中の Rb 原子数の時間変化が示してある (式 (3.8) の和は各  $p, q, r$  について 40 まで計算した。それ以上の項を含めてもわずかの違いしかない)。図からわかるように、原子源からわき出た原子数 (10 秒間で  $10^9$  個) のわずか 1/1000 以下の原子しかセル中にローディングされていない。残りの原子はすべて壁で失われてしまっている。この計算結果から、拡散のみでは、脱離した Rb 原子はセル中にほとんどローディングされないことがわかる。

しかし、もし超流動駆動ガス流のようなヘリウムガスの流れによって壁際から Rb 原子をセル中に送るようなプロセスがあれば、原子のローディング効率は上昇する。これは図 3.11 (b) にみることができる。平面状原子源の壁からの距離  $d$  を増加させると、セル中にローディングされる原子の数が増えていくことがわかる。このことから、超流動駆動ガス流が Rb 原子のローディング効率を著しく増加できることが示せたと言える。

### 3.3.2 実験的検証

上に述べた解釈をここでもう一度まとめる：超流動転移温度以下でのローディング効率の上昇は輸送効率の上昇によるものであり、原子の脱離レートの上昇によるものではない。そこで、超流動転移温度以下で脱離レートが急激に上昇しないという解釈を実験的に検証するために、次のような実験を行った。

図 3.3 (a) で述べた方法と同じような方法で、さまざまなローディング条件のもとでのローディングの繰り返しによる、ローディングされる原子数  $N_{\text{Rb}}$  の減少の様子を調べた。その結果が図 3.3 (b) である。標準条件 (180 mW, 720 nm, 1.85 K (図 3.3 (b) 中では S.C. と

略している) ) のもとでローディングを4回繰り返し、4回目のローディングで得られた原子数を記録した。その後、ローディング条件を変えて5回ローディングを行った。このときのローディング条件の標準条件からの違いが図 3.3 (b) 中に示してある。そして、再び標準条件下でローディングを行い (10 回目のローディング) 、得られた原子数を記録した。記録した原子数の値の比、つまり4回目と10回目に得られた原子数の値の比が図 3.3 (b) に示してある。

図 3.3 に示したこれらの実験結果は、上で述べた解釈を正当化するために次のようにもちいられる。図 3.3 (a) で見られるように、10 秒間のローディングで得られる原子数  $N_{\text{Rb}}$  は、ローディングを繰り返すと減少していくが、これは、セル表面の Rb クラスターが Rb 原子を放出するにつれ、Rb 原子の脱離レートが下がるためだと考えられる [35]。この考えに従うと、 $N_{\text{Rb}}$  の減少レートは、セル中にローディングされた原子数によるのではなく、脱離した原子数に依存すると仮定できる。この仮定の正しさは、図 3.3 (b) の上3つのデータから定性的に示せる。一番上のデータは、ローディング光の波長が 920 nm (標準条件 (波長 720 nm) に比べて共鳴の中心より離れた位置にある (図 3.5 参照) ) の場合である。二番目のデータは、ローディング光のパワーが 45 mW (標準条件 (パワー 180 mW) に比べて弱い) の場合である。どちらの場合もローディング効率は、図 3.4、3.5 で分かるように、標準条件より低く、この要因は原子の脱離レートが小さいためであると考えられる。このときは、仮定どおり、ローディングの繰り返しによる  $N_{\text{Rb}}$  の減少レートが標準条件に比べて小さいことが、図 3.3 (b) からわかる。

それに対して、図 3.3 (b) の一番下のデータは、1.95 K でのローディング効率の減少レートを表したものである。1.95 K でのローディング効率は 1.85 K での約 1/20 と非常に小さい (図 3.1) にも関わらず、 $N_{\text{Rb}}$  の減少レートは標準条件より大きい。つまり 1.95 K での脱離レートは 1.85 K より大きいことになる。従って、1.95 K におけるローディング効率の 1.85 K に比較しての著しい減少は、脱離効率の大幅な減少によるものではないと結論でき、先に述べた解釈と矛盾しないといえる。

ここでひとつふれておくべき実験結果がある。いま示した超流動転移温度上下 (1.85 K と 1.95 K) でのローディング効率の減少レートの差は、温度とともに連続的に変わるのではなく、超流動転移温度付近で不連続に変わっているということである。従って、上の解釈に従えば、原子脱離レートも超流動転移温度の上下で不連続に変わっている可能性があるということになる。この現象の理解にはまださらに研究が必要であるが、ローディング効率の 20 倍もの変化の主な要因が超流動駆動ガス流による輸送効率の変化であるという結論の変更を迫るものではないと思われる。

### 3.3.3 ローディング効率のパワー依存性の解釈

これまでの議論に基づいて、図 3.4 に示した、10 秒間のローディングで得られる Rb 原子の数  $N_{\text{Rb}}$  のパワー依存性についての説明を試みる。

文献 [35] で、4桁にも渡る広い範囲のレーザーパワーに対して、クラスターからの原子の脱離レートがパワーに比例することが示されている。この報告に基づく、図 3.4 に示されているレーザーパワーの増加にともなう  $N_{\text{Rb}}$  の増加は、おもに脱離レートの増加に起因するといえる。このことは、輸送効率はこのパワーの範囲ではパワーに依存しないことを示している。これは一見不思議である。なぜなら、ヘリウム膜の蒸発レートはある上限値（この上限はヘリウム膜がはい上がる流量の上限で決まる [32]）までは、レーザー光のパワーと共に増大するはずであるからである。ひとつの仮説としてあげられるのは、ヘリウム膜の蒸発レートは増大しているものの、すでに輸送効率は飽和してしまっているというものである。

レーザー光のパワーが増して、ヘリウム膜の蒸発レートが上限値に達し、さらに光のパワーを増すと、ヘリウム膜で覆われていたセルの壁面は乾いた状態になると考えられる。つまり、セル底のバルク液体ヘリウムからの超流動流によるヘリウムの供給が間に合わなくなり、壁全面をヘリウム膜で覆えなくなるからである。このことにより、Rb 原子の輸送効率が下がってしまい、従って  $N_{\text{Rb}}$  の飽和につながるものと考えられる。

この解釈を検証するために、数値的な評価を試みる。長さ 4 cm の辺（セルの一辺の長さ（2 cm）× レーザー光の照射される面の数（2））を通ってはい上がるヘリウム膜の超流動流レートの上限値を  $3 \times 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{s}$  ( $7 \times 10^{18}$  個/s) [32] とすると、このレートでははい上がるヘリウム膜を完全に蒸発するのに必要なパワーは、約 1 mW となる [32]。このパワーは、 $N_{\text{Rb}}$  の飽和が観測されるレーザー光のパワーの約数百分の 1 である。これはガラス壁面でのレーザー光の吸収率を考えると、道理にかなった値であるといえる<sup>6</sup>。この結果は、上に述べた、パワー依存性の振舞いの説明の正しさを支持するものである。しかし、輸送効率が飽和しているという仮説の検証も含め、さらなるガスの流れと輸送過程の研究が、より正確な輸送効率の理解の為に今後重要であるといえる。

### 3.4 レーザーアブレーションによるローディングとの比較

この節では、以前からよくもちいられているレーザーアブレーションによるローディング法について、本研究で初めて見出した LIAD ローディング法と比較しながら述べる。

レーザーアブレーション法、つまりレンズでフォーカスされた、ピークパワーの高いパルスレーザーをサンプル金属の表面に照射する方法は、低温ガス中 [31, 43] だけでなく、液体・固体ヘリウム中 [9, 44] に原子を注入するためにも幅広くもちいられてきた。本研究でも、セル中に入れた金属にパルスレーザーを直接照射したり、ガラス壁の表面に照射したりして、原子をローディングしてみた。このアブレーションローディングは、セルの温度や、金属の種類、ローディングの繰り返しなどといった条件に LIAD ローディングほど依存しなかった。そして、この方法は一時的に高密度の原子を得るためには非常に適した方法であった。しかし、ひとつの大きな欠点として、ローディングされる気体原子の性質（例えば気体原子の寿命）をく

<sup>6</sup>セルの加熱過程において、熱はセル中のヘリウムの蒸発にほとんど使われる。なぜなら、セル中の液体・気体ヘリウムやガラスセル自身の比熱は小さいからである [25, 32, 42]。

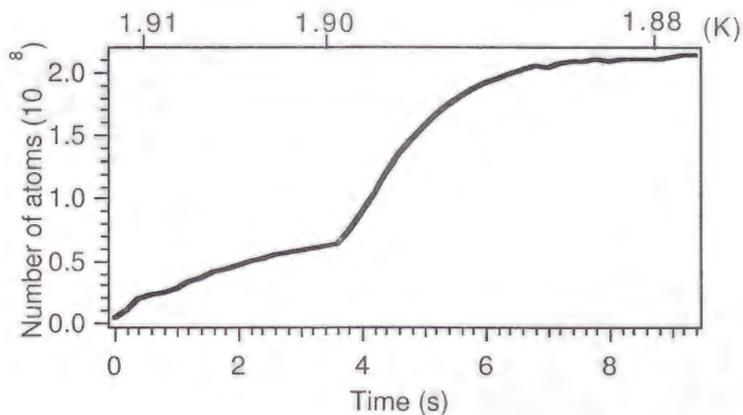
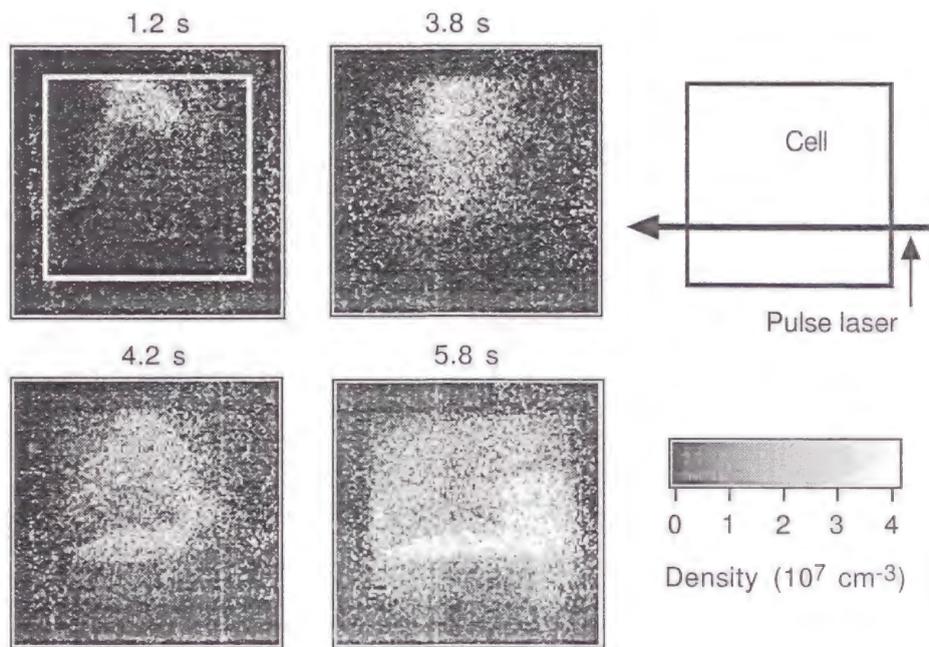


図 3.12: レーザーアブレーション法でローディングされた Rb 原子密度の時間変化を表す画像。セルの壁の位置が左上の画像中に白線で示してある。アブレーション用のパルスレーザー（波長 523 nm、パワー 150 mW、パルス幅 10 ns、繰り返し 1 kHz）はビーム径をレンズで絞り、右上の図のようにセルの壁面を透過させている。時刻 0 s において照射を開始し、続いてセルの温度を  $T_c \sim 1.9 \text{ K}$  を横切るように徐々に下げた。ICCD カメラの露光時間は 0.2 秒で、例えば左上像に対しては 1.0 s から 1.2 s の間露光した。下のグラフはセル中の原子数の時間変化を表す。図上の目盛りはセルのおおよその温度である。

りかえし再現することが難しいということがあげられる。例えば気体原子の寿命であるが、LIAD ローディングで得られた場合と同じくらいの原子密度 ( $10^8 \text{ cm}^{-3}$ ) の気体 Rb 原子の場合でも、その寿命は1 s未満から LIAD ローディングとほぼ同じくらい<sup>7</sup>までと、さまざまに揺らいだ (このような揺らぎは、パルスレーザーが照射される狭い表面領域の状態がさまざまであることによるようである。つまり、レーザー光を照射する場所を変えると、生成される Rb 原子気体の性質が変わってしまう)。原因の一つとして、原子ローディング時に生成される Rb のクラスターの量がまちまちである (そしてこのクラスターが Rb 原子を吸着してしまう) という可能性があげられる。実際に、アブレーションローディングの際は、きらきら光る散乱光を肉眼で観測することができ、大量のクラスターが生成されていると考えられる。他の要因としては、アブレーションにより生じるヘリウムガスの流れがさまざまに異なるという可能性もあげられる。

このような欠点をもつアブレーションローディング法であるが、この方法をもちいて、一つの重要な実験結果を得ることができた。これは、超流動転移温度以下でのローディング効率の劇的な変化が超流動駆動ガス流の発生による輸送効率の変化に起因するという解釈を支持するものである。この結果は図 3.12 に示してある。図には、原子密度の分布の時間変化を示す4つの画像とともに、セル中の原子数の時間変化を表すグラフも示してある。温度約 1.91 K において、時刻  $t = 0 \text{ s}$  にパルスレーザーを照射した。パルスレーザーは、ビーム径をレンズで絞り、図の右上に示してあるように、セルの壁を透過させている。左上像に示されているように、Rb 原子はレーザー光の照射された部分から上方に、普通の熱対流のように、上昇していくのがわかる。その後、セルの温度を徐々に下げ、 $T_c \sim 1.9 \text{ K}$  付近になると、Rb 原子が壁から勢い良く吹き出してくるようになり (右上、左下像)、セル中に Rb 原子がたくさん満ちてくる。Rb 原子の数はヘリウム原子の数に比べ圧倒的に少ないので、観測された Rb 原子の急激な噴出は、ヘリウムガスの流れを示しているといえる。この観測された流れは、壁のヘリウム膜が超流動状態になり、レーザー光で熱せられ、超流動流による供給を受けながら連続的に蒸発をすることによって生じたものと思われる。この実験事実は、超流動転移温度以下で、レーザー光の照射により超流動駆動ガス流が生じるということを示していると言える。

### 3.5 まとめ

本章では、LIAD ローディング法の特徴を述べ、さまざまな実験結果に従い、その現象を統一的に説明できる一つの方法を提案した。つまり、Rb 原子はセル表面の Rb クラスターからレーザー光の照射によって脱離し、その後、超流動駆動ヘリウムガス流にのって、高密度のヘリウムガス中に効率良く導入されるというものである。このメカニズムで、ローディング効率に関する次のような実験結果をよく説明することができた：超流動転移温度以下の高い効率；ローディングの繰り返しにともなう効率の減少と、セルの加熱 / 冷却による効

<sup>7</sup>ただし、LIAD ローディングより寿命が長くなることはなかった。

率の回復；ローディング光の波長に対する共鳴的な依存性；ローディング光のパワーに対する直線的な依存性と、高パワーでの飽和的振舞い；Rb 金属で覆われたセル壁面に対する低い効率。

今後は、さらに定量的な解釈をめざして研究が必要である。例えば、超高真空下で、清浄な基盤の上に、サイズのよくわかった Rb クラスタースンプルを用意して実験を行うことは、Rb 原子の脱離プロセスをさらに理解する上で重要である。また、超流動駆動ガス流をはじめとする、輸送プロセスの定量的理解も大切である。

最後に、Rb や K 金属以外に LIAD ローディングを試みたアルカリ金属である Cs についての結果を述べる。Rb や K セルの場合と同様の方法で Cs セルもいくつか準備し、LIAD ローディングを試みたが、現在のところ原子のローディングには成功していない。この不成功は、Cs 金属の表面がヘリウム膜で濡れない [22] という現象に関係している可能性がある。ただし、ヘリウム膜で濡れるようになる約 2 K 以上の温度でもローディングには成功しなかったことを述べておかななくてはならない。もうひとつ考えられる原因としては、Cs 金属は Rb や K に比べ融点が低く、室温においてセルの表面が Cs 膜で覆われやすいのではないかと、ということがあげられる。この点にも気を配って壁から Cs 金属を入念に取り除いたセルを準備したが、今のところ成功はしていない。

Cs 原子は、このセルの応用のひとつとして期待されている、原子の永久双極子モーメント検出実験での有望なサンプル候補の一つである。その観点からも、Cs 原子のローディングの成功が今後望まれる。

## 3.6 付節：さまざまな条件下での Rb 原子ローディングの様子

図 3.2 で見たような流れは、超流動膜の連続的な蒸発に駆動されるものだろうということを本章では述べたが、それ以上の詳細な理解にはまだ至っていない。この付節では、実験で観測されたさまざまな流れの像を載せたい。

共通する条件をまとめておく。セルは本章で主に述べた結果を得たある一つのセル（標準セル）である。一枚の画像に対する露光時間は 0.2 秒で、像中に記してある数字は、その像を撮り終わった時刻（秒）である（ローディング光の照射を開始した時刻が 0 s）。セルの壁は、はっきりしない場合、一番最初の像の中に白線で示してある。各画像に対するコメントも図のキャプションに含めた。

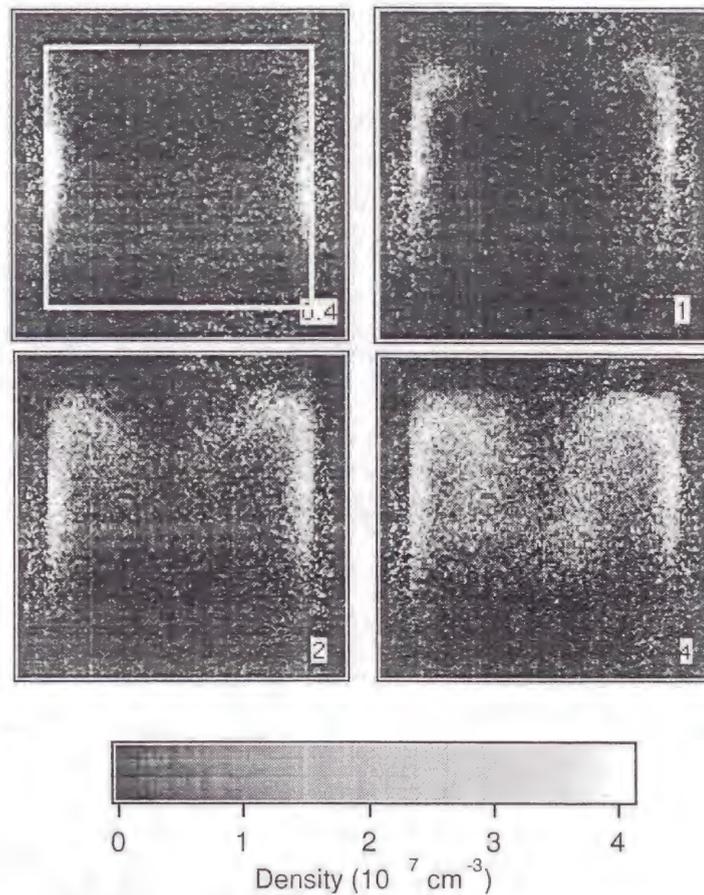


図 3.13: セルの温度を徐々に下げながらローディング光を照射して Rb 原子をローディングした様子。ローディング光は波長 720 nm、パワー 110 mW、ビーム径は約 1 cm でセルの中心部に照射している。温度は約 1.85 K から約 0.005 K/s の割合で下げている。図 3.2 とは流れの方向が全く逆になっていることがわかる。図 3.2 の場合は、この測定とは逆に、セルの温度はローディング光の照射によって徐々に上がっている。

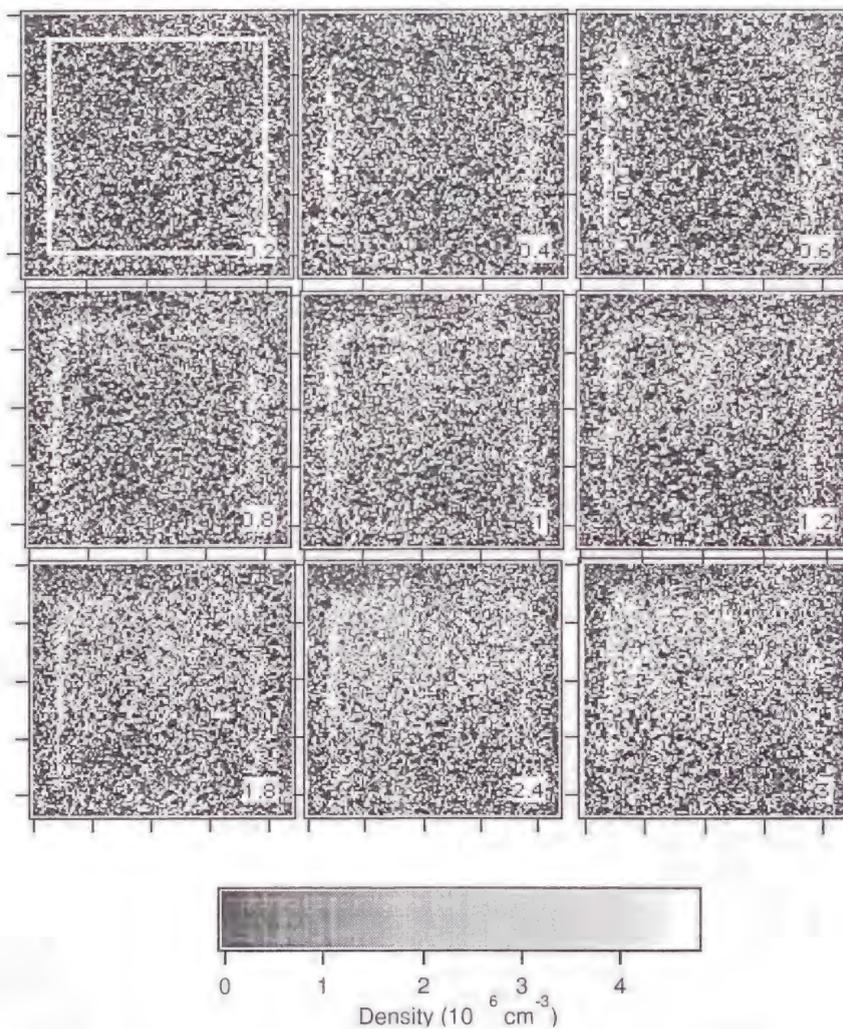


図 3.14:  $T_c$  以上 (1.95 K) における Rb 原子ローディングの様子。ローディング光の波長は 720 nm、パワーは 180 mW。照射された壁からわずかに Rb 原子が現れ、セルの上方に速やかに流れていくのがわかる。この様子は  $T_c$  以下の場合 (図 3.2) とは対照的である。

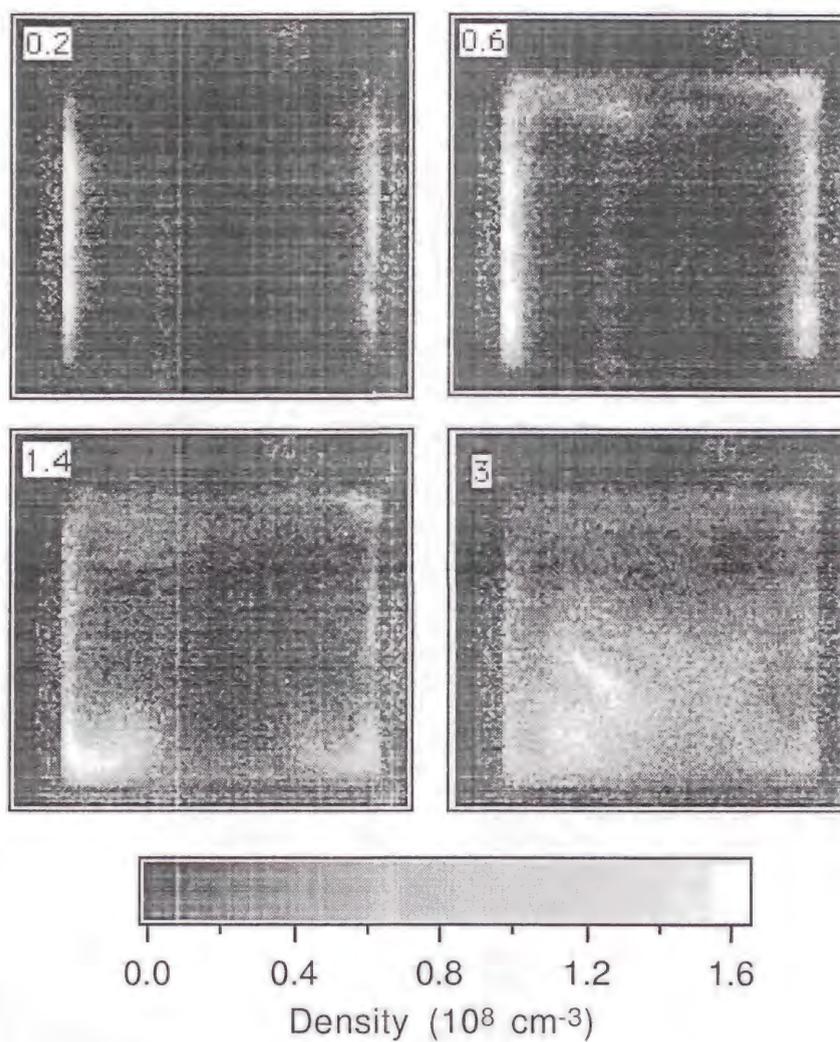


図 3.15: 高いパワーのローディング光 (720 nm、360 mW) を照射したときの Rb 原子ローディングの様子。温度は 1.85 K。180 mW の場合 (図 3.2) と比べると、まず最初に横の壁から出た原子が、セルの上方に速やかに流れているのがわかる (右上像)。また、セル中央部への流れははっきりしなくなる (右下像)。

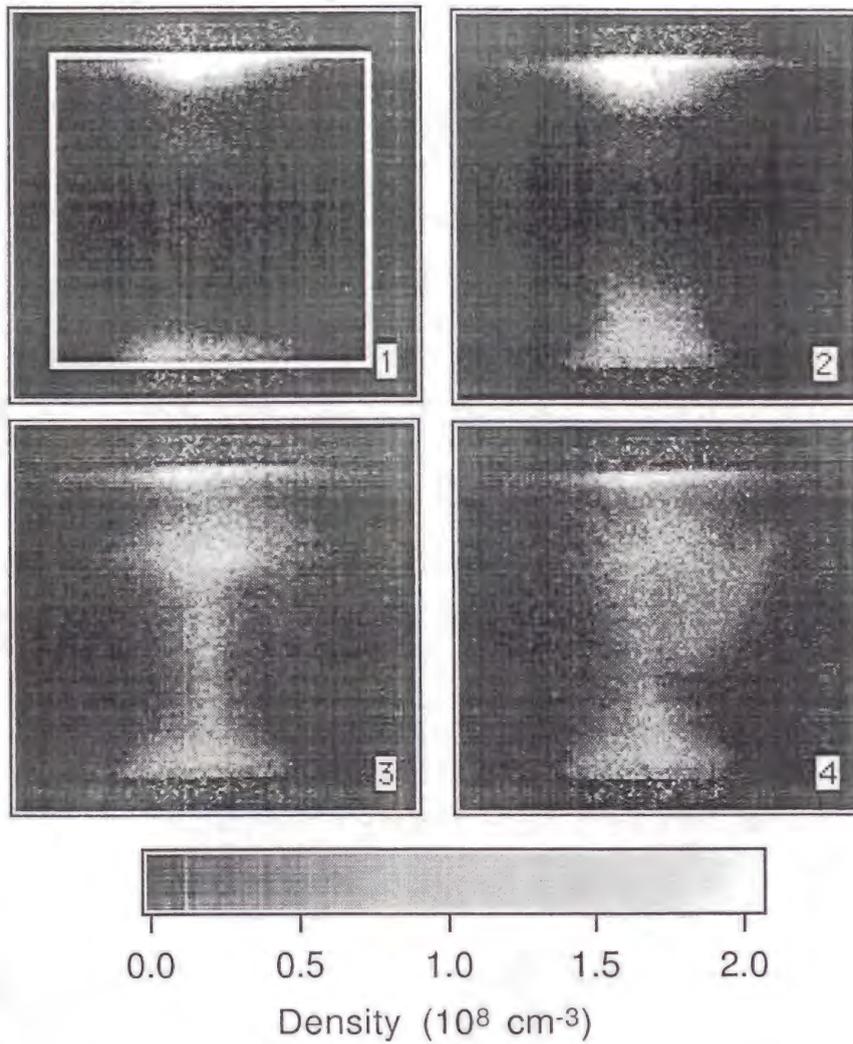


図 3.16: ローディング光 (665 nm、180 mW、ビームプロファイルは一辺約 1 cm の正方形) をセルの底から入射したときの Rb 原子ローディングの様子。温度は 1.85 K。この画像にはないが、光のあたった上の面から現れた Rb 原子が、横の壁をつたって下方に流れてくる場合もある。

## 第 4 章

### 低温気体 Rb 原子の減少プロセス

この章では、光誘起原子脱離法でセル中にローディングした気体 Rb 原子の寿命を決めている要因について述べる。

低温セル中で気体 Rb 原子が減少するプロセスは多様である。実験で観測している Rb 原子がお互いに衝突して二原子分子になる場合だけでなく、観測していない Rb 分子や Rb クラスターと Rb 原子が衝突した場合でも、気体 Rb 原子は失われてしまう。しかも、この損失は気相でもセル表面でも起こりうる。本研究の場合はセルの壁面での損失が気体 Rb 原子の減少の主な要因であることを、本章で述べる。

なお、特に注記しないかぎり、ローディング光はセルの横から、セル全体を覆うようにビーム径を広げて入射している。プローブ光（パワー約 2 mW）も同様である。

#### 4.1 実験結果

気体 Rb 原子減少の Rb 原子密度依存性、セルサイズ依存性、温度依存性について述べる。また、ローディング後もヘリウムガスの流れが存在し、それが気体 Rb 原子の減少に影響をおよぼしていることも述べる。

##### 4.1.1 気体 Rb 原子密度依存性

気体 Rb 原子の減少レートが、Rb 原子密度に依存するかどうかを調べた結果が図 4.1 に示してある。点線のデータ（初期密度（原子ローディング終了直後の密度） $1.8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ ）を記録した後、何度か原子のローディングを繰り返してローディング効率を下げ、実線のデータ（初期密度  $0.4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ ）を記録した（挿入図参照）。その二つのデータを、初期密度で規格化して比べると、図でわかるように、両者はきれいに一致する。つまり、気体 Rb 原子の減少レートは原子密度に依存していないことがわかる。この結果により、原子の減少プロセスのなかで、気相において Rb 原子どうしが結合して二原子分子をつくる過程は主でないといえる。

なお、本研究で得られた最高の原子密度  $10^9 \text{ cm}^{-3}$  でも、原子密度に対する依存性は観測さ

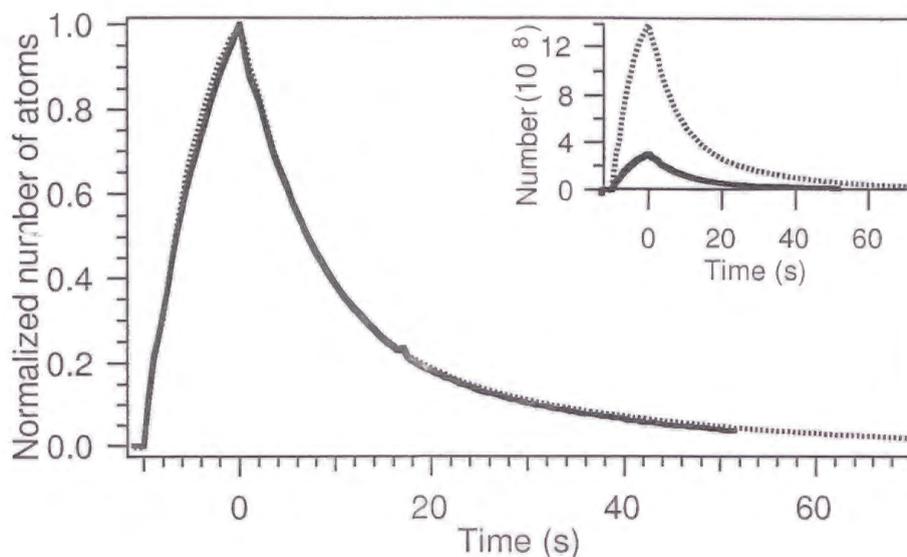


図 4.1: 初期原子密度に減少レートが依存しないことを示す図。測定された原子数の時間変化（挿入図）をローディング光（180 mW、720 nm）を 10 秒間照射して 0 s で切った時の原子数で規格化してある。セルは一辺 2 cm の立方体。温度は 1.85 K。

れなかった。

#### 4.1.2 セルサイズ依存性

直径の異なる 3 つの球形セル（直径 1 cm、2 cm、3 cm）をもちいて、気体 Rb 原子減少レートのセルサイズ依存性を調べた。図 4.2 で明らかなように、サイズが小さくなると、原子の減少レートが速くなる。この結果は、原子の損失がセルの表面で主に起こっていることを示唆しているといえる。

#### 4.1.3 温度依存性

図 4.3 に、一辺 2 cm の立方体における、各温度でのセル中の Rb 原子数の時間変化が示してある。ローディング光（180 mW、720 nm）を照射している時間は 10 秒間で、図の横軸の 0 s において照射をやめている。温度が下がるにつれ、原子数の減少が速くなっているのがわかる（挿入図も参照）。

この結果は、上で述べた、セル壁面での Rb 原子の損失が主な損失プロセスであるという解釈に基づいて説明できる。つまり温度が下がると、液化しているヘリウムと平衡状態にあるヘリウムガスの密度も、飽和蒸気圧の減少にしたがって急激に下がる。よって、Rb 原子の壁への拡散による移動時間が短くなり、寿命が短くなるといえる。

後で述べるように、セル中の Rb 原子の移動は、拡散によってだけでなく、Rb 原子がセル中にローディングされるときに起こるヘリウムガスの流れによっても起こる。ただし、この流れも温度が低くなると速くなることが観測されていて、上の解釈に矛盾しない。

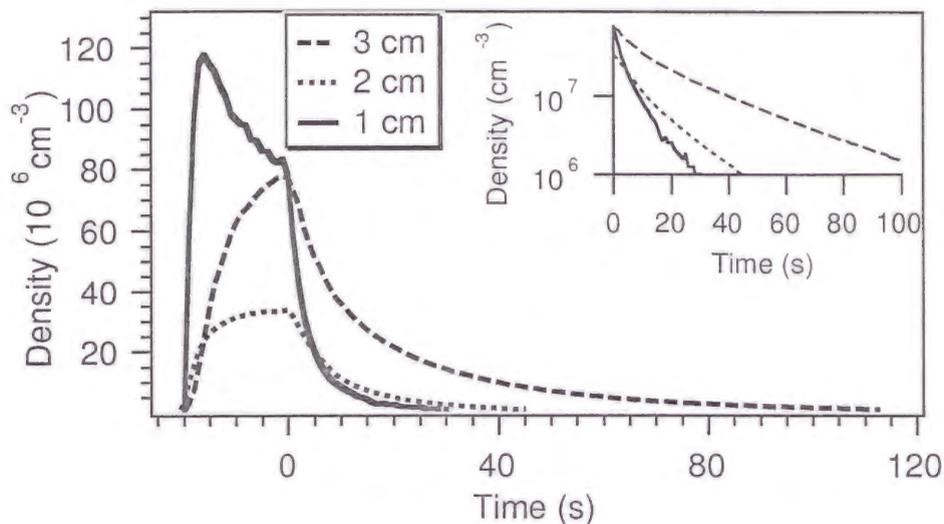


図 4.2: 球形セル (直径は図中に示してある) における Rb 原子平均密度の時間変化。ローディング光 (180 mW、720 nm) は -20 s から 0 s まで 20 秒間照射している。温度は 1.7 K。挿入図: Rb 原子密度をログスケールで表したグラフ。

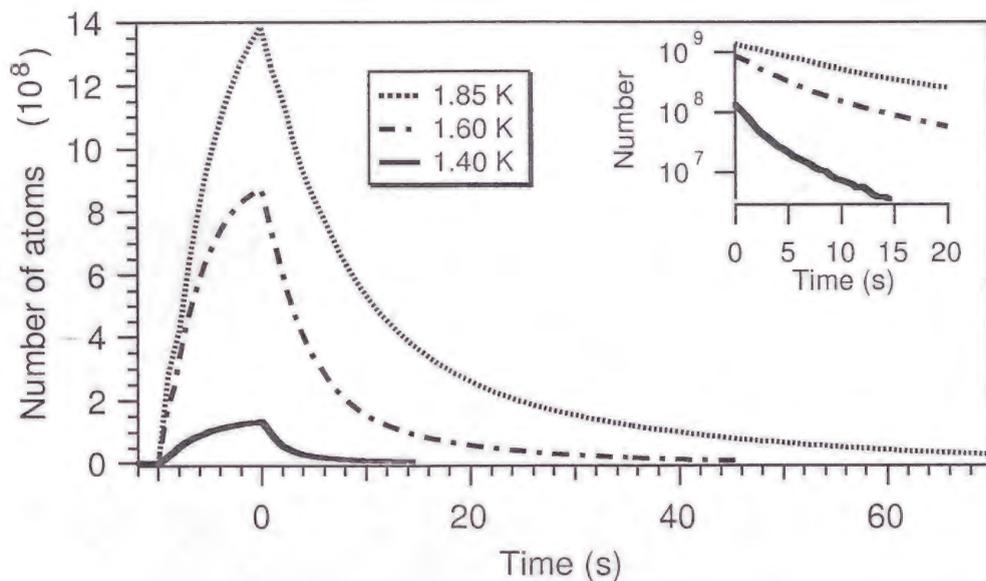


図 4.3: 各温度における Rb 原子数の時間変化。セルは一辺 2 cm の立方体。ローディング光 (180 mW、720 nm) は図の -10 s から 0 s まで照射している。挿入図: ローディング終了後初期の原子の減少 (縦軸はログスケール)。

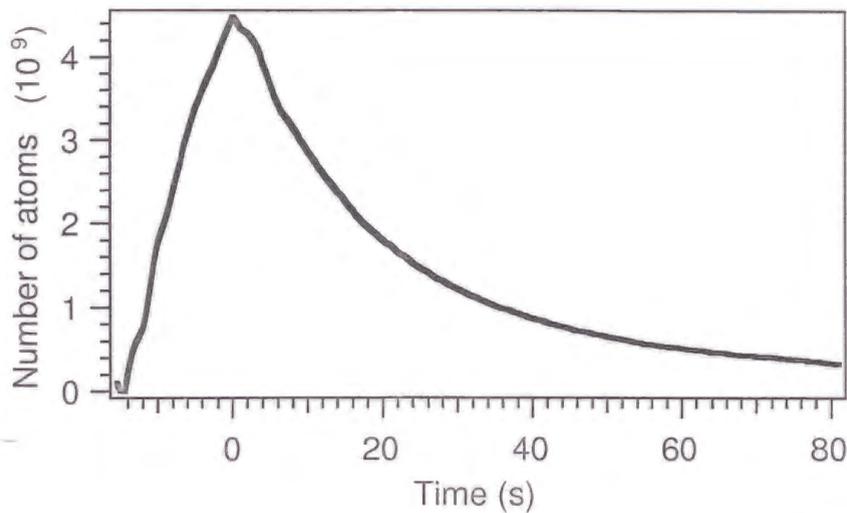


図 4.4: 直径 3 cm、長さ 3 cm の円筒形のセル中での気体 Rb 原子数の時間変化。ローディング光 (180 mW、720 nm) は約 15 秒間照射し、図の 0 s で切った。温度は 1.85 K。

このほかに図 4.3 をみると、10 秒間でローディングされる原子の数が、温度が下がると小さくなっているのもわかる。このローディング効率の温度依存性は本論文では議論しない<sup>1</sup>が、ローディング効率を下げている確実な一つの要因としては、温度が低くなると原子数の減少レートが速くなり、Rb 原子がセル中にたまりにくくなることがあげられる。

#### 4.1.4 長寿命セル

これまで示した実験結果より、気体 Rb 原子の寿命が長いセルを作るには、セルのサイズを大きくし、ヘリウムガスの密度をあげれば良いことが推測できる。

図 4.4 に、セルのサイズが大きい場合のデータが示してある。用いたセルは直径 3 cm、長さ 3 cm の円筒形で、図には 1.85 K における気体 Rb 原子の減少の様子が示してある。一辺 2 cm の立方体セルに比べるとおおよそ 2 倍くらい減少が遅くなっているのがわかる。

図 4.5 には、ヘリウムガスの密度を上げた場合のデータが示してある。セルは図左上に描いてあるようなひょうたん型で、斜線部分のみにローディング光を照射し、その部分のみの原子を観測した。このセルには室温で約 9 気圧のヘリウムガスが入っており<sup>2</sup>、ヘリウムガスの液化は約 2.3 K で起こる。従って、高い温度で、つまりヘリウムガスの密度の高い状態で、Rb 原子をローディングして、減少の様子をみる事ができる。図には 1.85 K と 2.1 K のデータが示してあるが、2.1 K のほうが、減少が遅いことがわかる。初期密度が  $1/e$  になる時間は約 70 s と非常に長い。

以上のとおり、気体 Rb 原子の寿命を長くするには、大きなセルと、高密度のヘリウムガス

<sup>1</sup>このあたりの議論には、各温度間での相対的な原子数の見積もりを正確に行うことが不可欠である。

<sup>2</sup>このセルにヘリウムガスを入れて封じ切る時は、低温ヘリウムガスをもちいてセルの温度を下げ、セル中のヘリウムガスを大気圧以下に保った。

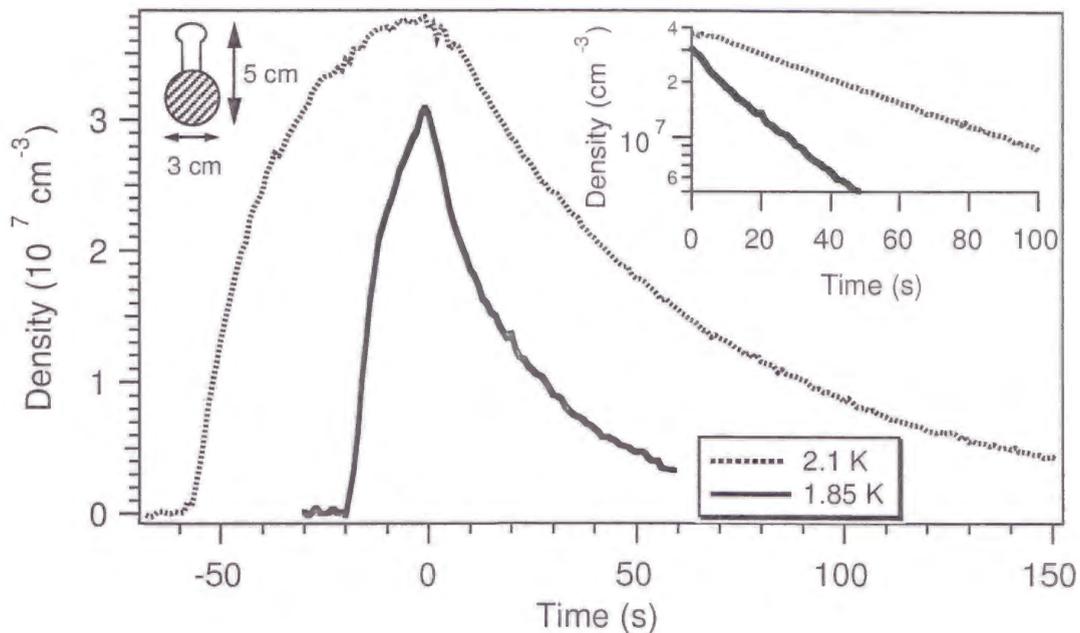


図 4.5: 図左上に描いてあるようなひょうたん型セルの斜線部分にローディング光を照射しローディングした Rb 原子の、斜線部分の原子密度の時間変化。セルには室温で約 9 気圧のヘリウムガスが封じられている。ローディング光 (180 mW, 750 nm) は 2.1 K の場合は 60 秒間、1.85 K の場合は 20 秒間照射して、図の 0 s で切った。挿入図: 原子密度をログスケールで表したグラフ。

をもちいれば良いことがわかる。

#### 4.1.5 ヘリウムガスの流れの Rb 原子減少への影響

この小節では、セル中での気体 Rb 原子の減少を考える際に、定量的解釈を最も困難にしている要因について述べる。それは、原子ローディング時に起きる、ヘリウムガスの流れである。この流れは、ローディング光を切った後も、しばらくの間続いていることが観測されている (10 秒程度は明らかに流れがあることが、CCD カメラで撮った Rb 原子密度の分布の像から容易にわかる)。このような流れが気体 Rb 原子の減少に影響を与えていることを良く示しているのが、図 4.6 である。直径 3 cm の球形セルに 20 秒間ローディング光を照射して、Rb 原子をローディングしている。Rb 原子は、図 3.2 に示した場合と同様に、レーザーの照射された横の壁から出て、ぐるりと下をまわってセルの底の中心部から上に向かい、セル中央に流れていく。このローディングをやめた直後の Rb 原子の分布を表しているのが、図 4.6 の左図である。この後、壁への拡散だけで Rb 原子が失われていくのであれば、この原子密度は壁ぎわから小さくなり、全体的に減っていくはずである。しかし、ローディング終了後 40 秒後の右図をみると、Rb 原子の減りかたは今考えたものとは違い、ローディング時に生成されたヘリウムガスの流れの跡が残ったようになっている。つまり、Rb 原子の減少は、Rb 原子の拡散による壁への移動だけでなく、ヘリウムガスの流れにのることによる壁への移動によっても起きているということがはっきりと示されている。

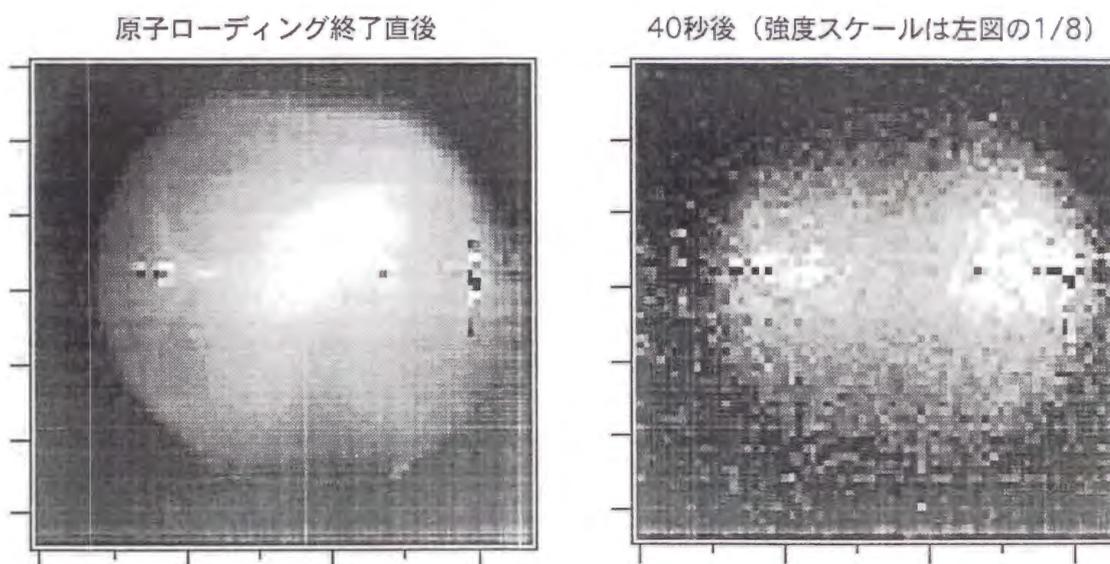


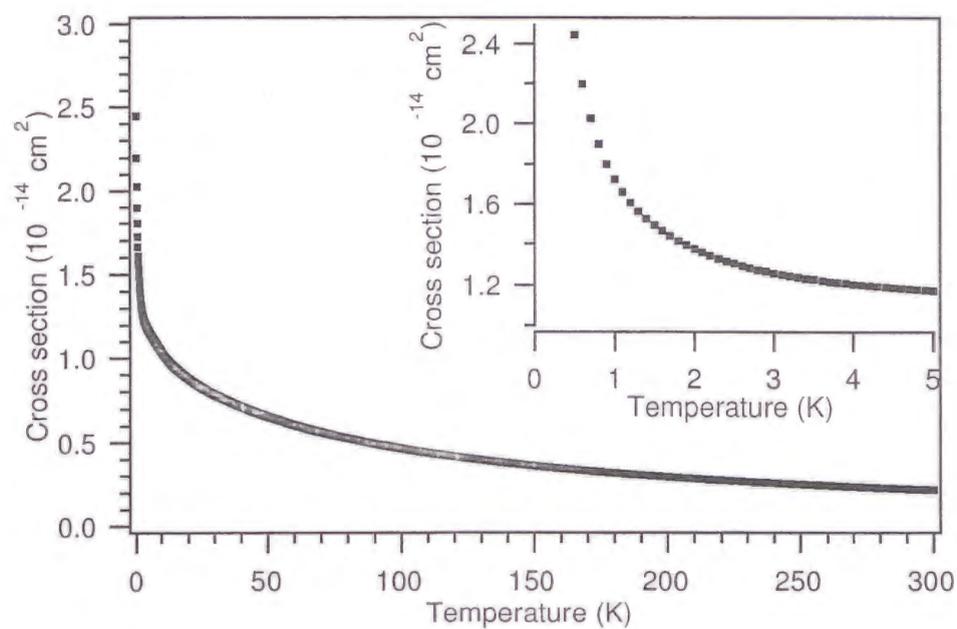
図 4.6: ローディング終了後の Rb 原子密度分布の変化。セルは直径 3 cm の球形。ローディング光 (180 mW、750 nm) を 20 秒間セル全体に照射した。温度は 1.85 K。右図は左図に比べ、発光強度 (= Rb 密度) スケールが 1/8 である。つまり 8 倍明るく像を表示している。

## 4.2 考察

実験事実から、気体 Rb 原子の損失はセル表面で主におこっていて、セルのサイズを大きくすることと、ヘリウムガスの密度を高くすることによって、気体 Rb 原子の寿命を延ばせることがわかった。しかし前節でみたようなセル中のヘリウムガスの流れのため、原子損失プロセスの定量的な解釈が困難になっている。原子減少プロセスの首尾一貫した理解にはさらなる研究が必要であるが、この節では、比較的解釈が容易な観点から、セル中の気体 Rb 原子の減少について考察する。この考察の際に注目すべき一つの点は、セル壁面を覆っているヘリウム膜が Rb 原子のセル表面での損失を遅くしているかどうかという点である。

### 4.2.1 拡散係数の計算

セル中での Rb 原子の拡散による壁への移動を考察するために、低温ヘリウムガス中での Rb 原子の拡散係数の計算を行った。この計算は、低温ヘリウムガス中での原子状水素の拡散係数の計算 [45] の方法に従っている (この文献での計算結果は、実験値をよく再現できている)。この方法に従うと、具体的に計算する必要のある量は、Rb-He の衝突の部分波の位相差である。部分波の位相差は、シュレディンガー方程式をルングクッタ法で数値的に解いて求めた。このためのプログラム (C 言語で記述) の確かさは、このプログラムで文献 [45] の計算値が再現できたことによって確認した。なお、Rb-He のペアポテンシャルは Patil によ

図 4.7: 計算された有効拡散断面積  $Q_D$ 

温度 (K)	$Q_D$ ( $10^{-14} \text{ cm}^2$ )	$D$ ( $10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ )
1.3	1.56	18.1
1.4	1.53	11.6
1.5	1.49	7.82
1.6	1.46	5.52
1.7	1.44	4.06
1.8	1.41	3.08
1.85	1.40	2.71
1.9	1.39	2.40
2.0	1.38	1.91
2.1	1.36	1.57

表 4.1: Rb 原子のヘリウムガスに対する有効拡散断面積  $Q_D$  と飽和ヘリウムガス中での拡散係数  $D$ 。

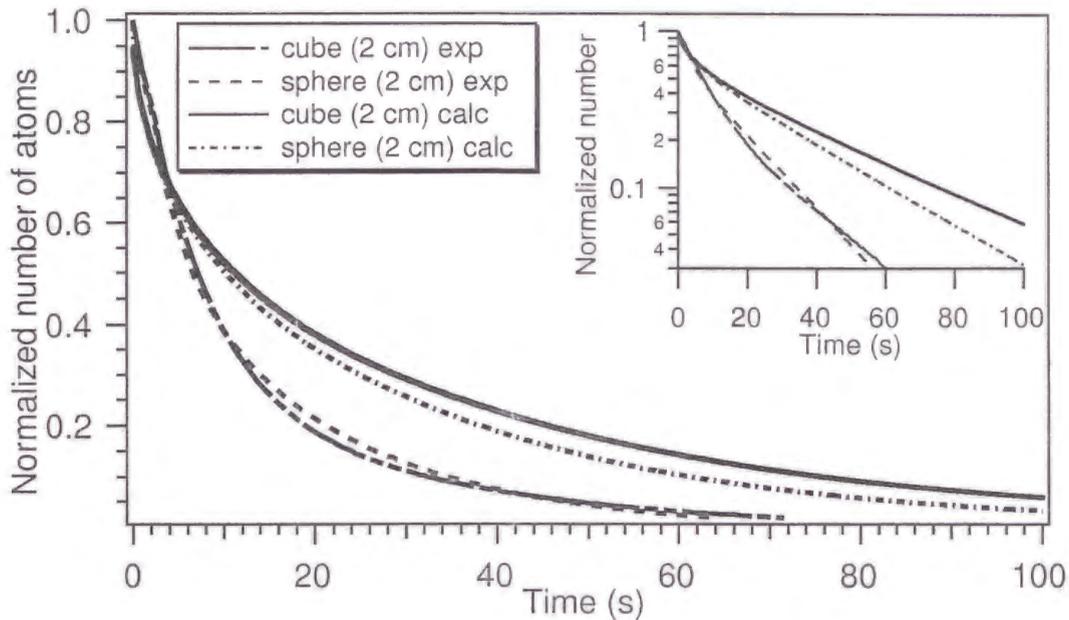


図 4.8: 気体 Rb 原子の減少について実験結果と計算結果の比較。cube (2 cm) は一辺 2 cm の立方体セルで、sphere (2 cm) は直径 2 cm の球形セル。exp が実験結果で、calc が計算結果。実験結果は 1.85 K の時のもので、図 4.2 と図 4.3 に載せたものと同じである。計算結果は、拡散係数  $D = 3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$  として、初期原子密度均一、壁での原子密度 0 として拡散方程式を解いて得られたものである。いずれも時刻  $t = 0 \text{ s}$  での原子数を 1 と規格化した。挿入図：原子数をログスケールで表したグラフ。

て計算されたもの [46] をもちいた<sup>3</sup>。

計算された有効拡散断面積  $Q_D$  と、飽和蒸気圧下での拡散係数  $D$  が図 4.7 と表 4.1 に示してある。この二つの量は次のような関係がある。

$$Q_D = \frac{3\pi v_{\text{RbHe}}}{32 n_{\text{He}} D} \quad (4.1)$$

ここで、 $v_{\text{RbHe}}$  は Rb-He の平均相対速度で、 $n_{\text{He}}$  はヘリウムガスの密度である。

室温のヘリウムガス中での Rb 原子の拡散係数は実験的に調べられている [13]。今回の計算結果はほぼその値を再現していて、計算の確からしさは高いといえる。

#### 4.2.2 セル中の拡散の計算

拡散によって壁に Rb 原子が移動し、そこで失われるというプロセスを考えるために、上で計算した拡散係数をもちいて、拡散の計算を行い、実験結果と比較した。拡散方程式を解く際の初期条件として、セル中均一な原子密度を仮定した。またセル壁面での境界条件として、原子密度を 0 とした。つまりこれは、壁面に衝突した原子は必ず何らかの過程で失われてしまうということである。

<sup>3</sup>12-6 Lennard-Jones ポテンシャル [47] をもちいて計算した場合も得られた結果はほぼ同じであった。

計算は、具体的には立方体と球形のセルについておこなった。一辺  $a$  の立方体セルが、時刻  $t = 0$  において密度 1 の均一な Rb 原子で満たされたときの、セル中全体の原子数  $N_{tot}$  の時間変化は、次のようになる。

$$N_{tot}(t) = \sum_{j,k,l=1}^{\infty} \frac{8a^3}{\pi^6} \frac{1}{(jkl)^2} ((1-(-1)^j)(1-(-1)^k)(1-(-1)^l))^2 \exp\left(-D\pi^2\left(\frac{j^2+k^2+l^2}{a^2}\right)t\right). \quad (4.2)$$

半径  $R$  の球形セルの場合は次のようになる。

$$N_{tot}(t) = \sum_{j=1}^{\infty} \frac{8R^3}{\pi} \frac{1}{j^2} \exp\left(\frac{-D\pi^2 j^2}{R^2} t\right). \quad (4.3)$$

一辺 2 cm の立方体セルと直径 2 cm の球形セル中での気体 Rb 原子の減少の実験データと、この拡散の計算結果を比較したのが図 4.8 である。図から明らかなように、計算結果は実験結果よりはるかに緩やかな減少曲線を与える。つまり、Rb 原子の壁での損失が壁を覆うヘリウム膜によって抑制されていない場合でも、拡散の遅さだけで、気体 Rb 原子の寿命の長さは十分に説明できるということである。

実験結果と計算結果のずれについて考える。原子減少を速めるプロセスのうち計算で考慮されていないものとしては、ヘリウムガスの流れによる壁への Rb 原子の速い輸送と、気相での、例えば Rb クラスタとの衝突によるロスが考えられる。逆に、計算よりも原子減少を遅くするのは、壁に衝突した原子が必ずしも失われない場合である。また、計算された拡散係数自体がずれている可能性もあり、今後なるべくひとつひとつのプロセスを分離して評価していくことが必要である。

#### 4.2.3 二原子分子化による減少

この小節では、具体的な原子損失プロセスを考えてみる。ただし、観測できていない Rb クラスタとの衝突による損失を考えるのは困難なので、ここでは、Rb 原子どうしの衝突のみを考える。

まず、気相における衝突による二原子分子化を考える。Rb 原子どうしが衝突して  $\text{Rb}_2$  をつくるためには、エネルギーと運動量の保存の要請から第三の粒子が必要である。本研究の場合、第三の粒子はヘリウム原子になる。ただし、本研究ではヘリウムガスの密度は高く ( $1.85 \text{ K}$  の飽和ヘリウム蒸気で密度は約  $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ )、Rb どうしが衝突している時間を  $10^{-10} \text{ s}$  (相互作用距離 ( $10^{-7} \text{ cm}$ ) / Rb-Rb 相対速度 ( $10^3 \text{ cm/s}$ )) と見積もると、その時間にヘリウムガスがそのペアに衝突する確率は 1 程度になる (ヘリウム密度 ( $10^{20} \text{ cm}^{-3}$ )  $\times$  衝突断面積 ( $10^{-14} \text{ cm}^2$ )  $\times$  Rb-He 相対速度 ( $10^4 \text{ cm/s}$ )  $\times$  衝突時間 ( $10^{-10} \text{ s}$ ))。したがって、Rb 原子どうしが衝突したときは必ず二原子分子を形成するとしてよい。このときの、Rb 原子の密度  $n_{\text{Rb}}$  の時間変化は、

$$\frac{dn_{\text{Rb}}}{dt} = -v_{\text{RbRb}}\sigma_{\text{RbRb}}n_{\text{Rb}}^2 \quad (4.4)$$

に従う。ここで  $v_{\text{RbRb}}$  は Rb-Rb の相対速度、 $\sigma_{\text{RbRb}}$  は Rb-Rb の衝突断面積である。これを解くと、

$$n_{\text{Rb}}(t) = \frac{n_{\text{Rb}}(0)}{1 + t/\tau_v} \quad (4.5)$$

となる。ただし、 $1/\tau_v = v_{\text{RbRb}}\sigma_{\text{RbRb}}n_{\text{Rb}}(0)$  である。 $v_{\text{RbRb}} = 10^3 \text{ cm/s}$ 、 $\sigma_{\text{RbRb}} = 10^{-14} \text{ cm}^2$ 、 $n_{\text{Rb}}(0) = 10^8 \text{ cm}^{-3}$  とすると、 $\tau_v = 1000 \text{ s}$  となり、これはセル中の気体 Rb 原子の寿命より十分長い。従って、実験結果で示されていたように、密度  $10^9 \text{ cm}^{-3}$  程度までは、気相での Rb 原子どうしの衝突による二原子分子生成による気体 Rb 原子の損失は無視できるといえる。

次にセル表面での気体 Rb 原子の二原子分子化を考える。セル表面は液体ヘリウムで覆われていて、そこに Rb 原子が気相との平衡状態で存在しているという状況を考える。その時の表面原子密度は  $n_{\text{Rb}}^s$  は<sup>4</sup>、

$$n_{\text{Rb}}^s = n_{\text{Rb}}\Lambda(T)\exp\left(\frac{E_b}{kT}\right) \quad (4.6)$$

となる [48]。ここで  $\Lambda = (2\pi\hbar^2/m_{\text{Rb}}kT)^{1/2}$  は熱的ドブロイ波長で、 $m_{\text{Rb}}$  は Rb 原子の質量、 $E_b$  は Rb 原子の液体ヘリウム表面への吸着エネルギー、 $k$  はボルツマン定数である。 $E_b/kT = 10$  とすると [47]、 $n_{\text{Rb}} = 1 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$  のとき、 $n_{\text{Rb}}^s \sim 3 \times 10^4 \text{ cm}^{-2}$  となる。

この表面密度のときの、表面での Rb-Rb の二体衝突による二原子分子の形成を考えてみる。先ほどの気相の場合と同じように、表面原子密度の時間変化は、

$$n_{\text{Rb}}^s(t) = \frac{n_{\text{Rb}}^s(0)}{1 + t/\tau_s}, \quad (1/\tau_s = v_{\text{RbRb}}^s l_{\text{RbRb}} n_{\text{Rb}}^s(0)) \quad (4.7)$$

となる。 $l_{\text{RbRb}}$  は Rb-Rb の“散乱長”、 $v_{\text{RbRb}}^s$  は表面での Rb-Rb 相対速度である。 $l_{\text{RbRb}} = 10^{-7} \text{ cm}$ 、 $v_{\text{RbRb}}^s = 10^3 \text{ cm/s}$ 、 $n_{\text{Rb}}^s(0) = 10^4 \text{ cm}^{-2}$  とすると、 $\tau_s = 1 \text{ s}$  となる。

#### 4.2.4 セル表面での Rb 原子損失

実験では、ヘリウム膜がセル表面を覆っているために Rb 原子の表面での損失が抑制されている効果があるかどうかは、明らかになっていない。むしろ、4.2.2節で見たように、その効果がないとしても原子の長寿命を説明できる。

この小節では、Rb 原子が一度の壁への衝突で必ずしも失われないような、一般的な場合を考えてみる。

表面での境界条件は次のように書くことができる [15, 49]。

$$\nabla_{\perp} n_{\text{Rb}} = -\mu n_{\text{Rb}} \quad \left(\mu = \frac{3\alpha}{2(2-\alpha)\lambda}\right). \quad (4.8)$$

ここで、 $\alpha$  は Rb 原子が壁に一度衝突した時に失われる確率で、 $\lambda$  は Rb 原子の平均自由行程である。 $\nabla_{\perp}$  は表面に垂直な方向への空間微分をさす（セルの外側に向く方向が正の向き

<sup>4</sup>Rb 原子は理想気体であるとし、表面の原子は気相よりエネルギーが  $E_b$  だけ低い理想二次元気体として扱った。

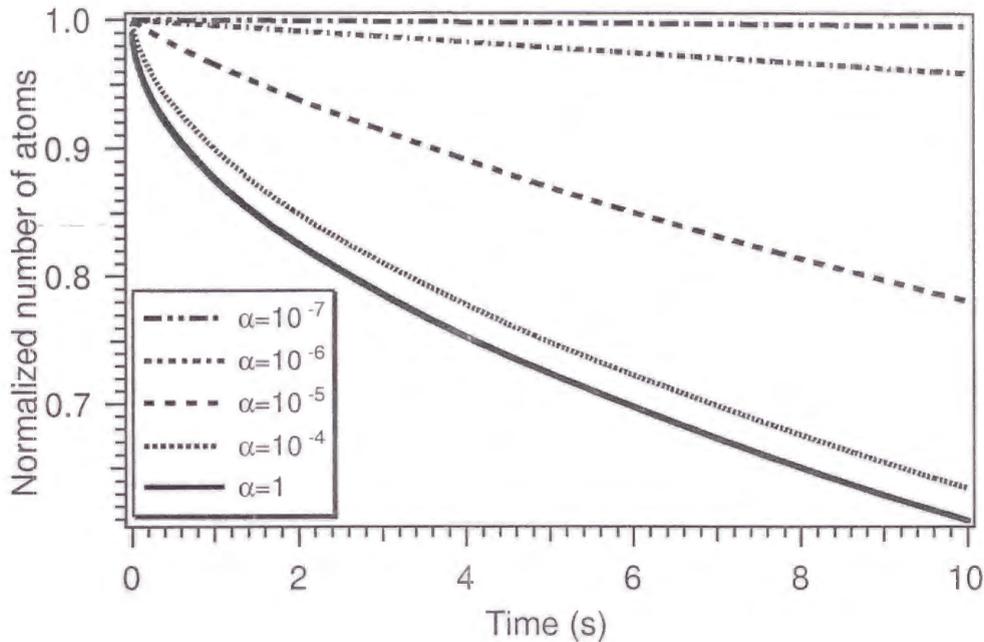


図 4.9: 一次元の拡散方程式を解いて得られた一次元セル (長さ 1 cm) 中の原子数の時間変化。初期密度は均一とし、境界条件は式 (4.8) とした。拡散係数は  $D = 3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ 。 $\alpha$  は Rb 原子が壁に衝突した時に失われる確率で、 $\alpha = 1$  が壁との一回の衝突で必ず原子が失われる場合である。

である)。  $\alpha = 1$  のときが、壁に一度 Rb 原子が衝突したら必ず失われてしまう場合で、4.2.2節で考察したのはこの場合である。セルの壁がむき出しの低温ガラス壁の場合はこれにあたる。ヘリウム膜が壁面を覆っている場合は、 $\alpha$  は 1 より小さくなる可能性があるが、それが観測している気相の気体 Rb 原子の減少を遅くする効果があるかどうかは、拡散係数とのかねあいで決まる。ヘリウムガスの密度が高く拡散が遅いと、一度 Rb 原子がセル表面に接近すると、壁際から離れる前に壁に何度も衝突してしまうためである。今回の実験結果のように、壁での損失レートの減少が気相 Rb 原子の減少の抑制として表れない条件は、

$$\mu R \gg 1 \quad (4.9)$$

である [15, 49]。  $R$  はセルの大きさを特徴づける長さである。今  $R \sim 1 \text{ cm}$ 、 $\lambda \sim 10^{-6} \text{ cm}$  (Fick の法則  $D = \lambda v_{\text{RbHe}}/3$  (例えば[50]) より。 Rb-He 衝突断面積を  $10^{-14} \text{ cm}^2$  とした場合でも同じ結果をえる。) なので、壁での損失レートの減少が表れない条件は  $\alpha \gg 10^{-6}$  である。

この様子は、図 4.9 に示した、一次元の拡散方程式の計算結果でよく理解できる<sup>5</sup>。  $\alpha = 1$  の場合が一度壁に衝突すると Rb 原子が失われてしまう場合である。  $\alpha$  が小さくなくても、 $\alpha = 10^{-4}$  まではその影響は気相の原子の減少にはほとんど現れない。

$\alpha = 10^{-4}$  の時の表面での Rb 原子の損失レートを見積もってみる。 4.2.3 節と同じ条件を

<sup>5</sup>この計算は文献 [51] の方法にしたがって数値的に行った。境界条件の数値的な取り入れ方は例えば [52] 参照。

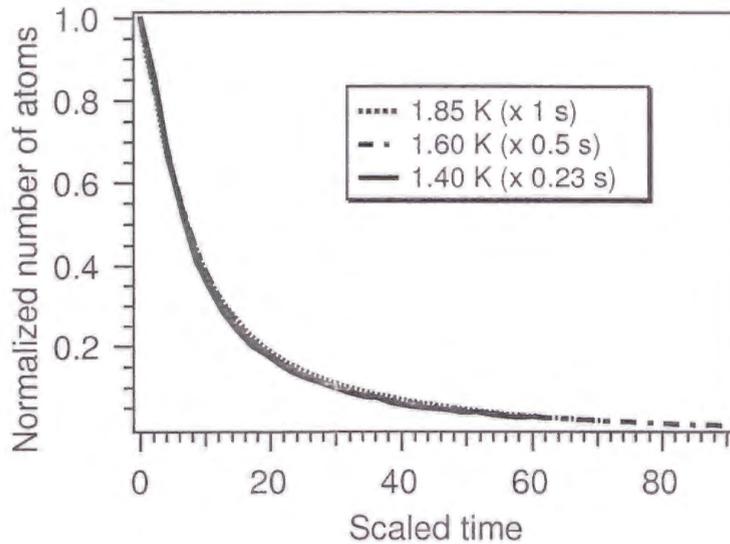


図 4.10: 各温度での Rb 原子の減少曲線を時間スケールを適当に替えることによって重ねあわせたグラフ。各データは図 4.3 に示したもので、ローディング終了時の時間  $t = 0$  での原子数を 1 と規格化している。実際の時間は横軸の scaled time に図注釈の秒数をかけた値。

考える。単位表面積に単位時間に衝突する Rb 原子数  $n_{\text{Rb}}v_{\text{Rb}}/4 \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  と、表面密度  $n_{\text{Rb}}^s \sim 10^4 \text{ cm}^{-2}$  より、Rb 原子の表面滞在時間は  $10^{-6} \text{ s}$  である。この滞在時間の間に原子が失われる確率が  $\alpha = 10^{-4}$  なので、表面に吸着した二次元原子気体の損失レートは  $10^2 \text{ s}^{-1}$  となる。これは、先に見積もった、表面での二原子分子化による損失レート  $1 \text{ s}^{-1}$  より大きい。つまり、ヘリウムの表面には Rb のクラスターなどが多数存在していて、その Rb クラスターに Rb 原子が吸着してしまうなどして損失レートが高くなっている可能性があるといえる。

#### 4.2.5 スケーリング則

これまでの議論では、Rb 原子の移動には拡散のみを考えていて、ヘリウムガスの流れを考慮していない。このガスの流れの定量的な考察は実際に難しいと考えられる。ただし、さまざまなセルの温度やサイズにおける Rb 原子減少のデータは、時間を適当にスケールすることで、かなりきれいに重なることが示されるので、一つの試みとしてこの節でそれを述べたい。

図 4.3 に示した各温度での Rb 原子の減少曲線を、時間スケールを適当に変えることによって重ね合わせた結果が、図 4.10 に示してある。図から分かるように、各温度での減少曲線はきれいに重なり合う。注目すべき点は、時間のスケールアップの比が、表 4.1 に示した各温度での拡散係数の比とほぼ同じであるということである。

ただし注意することは、直径 2 cm の球形セルをもちいて測定した各温度での原子減少データに対する同様の解析では、スケールアップの比は拡散係数の比に近かったものの、上の結果と

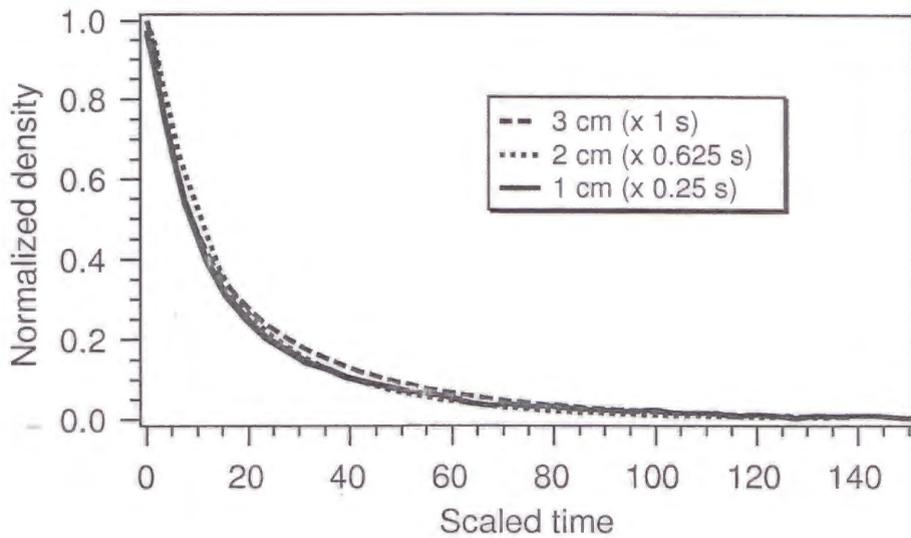


図 4.11: 各サイズの球形セルでの Rb 原子の減少曲線を時間スケールを適当に替えることによって重ねあわせたグラフ。各データは図 4.2 に示したもので、ローディング終了時の時間  $t = 0$  での原子数を 1 と規格化している。実際の時間は横軸の scaled time に図注釈の秒数をかけた値。

は多少違う結果を得たことである。これは、ガスの流れがセルの形に依存するためかもしれない。さらに注意深い研究の積み重ねが必要があると思われる。

図 4.11 には、図 4.2 に示した各セルサイズでの Rb 原子の減少曲線を、時間スケールを適当に変えることによって重ね合わせた結果が示してある。この場合も図から分かるように、各温度での減少曲線はおおよそ重ねあわすことができる。ただし、この場合の時間のスケージングは、拡散方程式の解の式 (4.3) から示唆されるようなサイズの 2 乗への比例ではなく、むしろサイズの 1 乗に比例しているといったほうが近い。

原子の減少プロセスは、ヘリウムガスの流れという定量的見積もりが難しいプロセスを含んでいるにも関わらず、いまみたように、簡単なスケージング則が当てはめられる可能性がある。このようなスケージング則が理解できれば、セルの設計をする際など、実用的にも非常に有用であるといえる。

### 4.3 まとめ

この章で述べた実験結果により、セル中での Rb 原子の損失は主にセル表面で起きていることが明らかにされた。そして、セルのサイズを大きくすることと、ヘリウムガスの密度を高くすることとにより、(Rb 原子の壁への移動が遅くなり) 気体 Rb 原子の寿命を長くすることが可能であることも示した。この事実は、今後このセルを使用したさまざまな実験を進める上で、非常に有用な点であるといえる。

減少メカニズムの定量的な理解には、さらなる研究が必要である。拡散係数の実験的な測定

はもっとも重要である<sup>6)</sup>。そして、ヘリウムガスの流れがおさまり、拡散で Rb 原子の移動が記述できるような状況で、さまざまなセルの大きさやヘリウム密度の条件で減少レートを調べることにより、セル表面や気相での損失プロセスを正確に知ることができると思われる。特に、この解析を通じて、液体ヘリウム表面と Rb 原子の相互作用の情報を得ることは興味深い。

ヘリウムガスの流れを取り扱うのは難しい可能性があるが、4.2.5節で示したような経験的なスケーリング則の観点からの一定の理解が期待でき、実用上も重要であるといえる。

---

<sup>6)</sup> これにより Rb-He ペアポテンシャルの正確な決定につながる情報を得られる可能性もある。

## 第 5 章

### 低温気体 Rb 原子の光ポンピングとスピン緩和時間の測定

本章では、低温 Rb 原子気体セル中での光ポンピング実験について述べる。まずこの研究の背景を述べ、続いて本研究で行った実験の方法と結果を説明する。付節では、室温において、偏極した気体 Rb 原子に対して原子密度を測定する方法を述べる。

#### 5.1 背景

##### 5.1.1 スピン緩和時間を長くする工夫

光ポンピングによって得られたスピンの偏極（本論文では以下原子の電子スピンについて述べる）は、外部からのさまざまな擾乱によって崩れていく。偏極が長く保たれること、つまり緩和時間が長いことは、偏極スピンに関する研究をするうえで重要なことが多い。例えば、緩和時間が長ければスピンの高偏極を達成することができるし、高分解能の磁気共鳴実験を行うことができる。長いスピン緩和時間が必要とされる具体的な実験の一例としては、私たちの研究室も注目している、原子の永久電子双極子モーメント探索実験がある。この実験ではスピンの才差運動を超精密測定する必要があるため、スピンの緩和時間が長く、長時間の観測が可能であることは、非常に重要な要素のひとつであるからである。

これまでもスピン緩和時間を長くしようという試みは数多くされてきた。光ポンピングの標準的な実験環境である、室温以上の温度でのアルカリ金属の蒸気セルでは、（蒸気の密度が低く、気体アルカリ原子どうしの衝突が頻繁でない場合は）緩和を起こす最大の要因はセル壁面と原子の衝突である。ガラス壁との一回の衝突で偏極はほぼ 100% 壊れてしまう [53]。これを抑える方法は二つ見い出されてきた。一つは、壁をシリコンやパラフィンなどでコーティングする方法である。 $10^4$  回くらいの壁との衝突でようやく偏極が壊れるくらいまで緩和を遅くすることができる [54]。もう一つはヘリウムなど、スピンの緩和を引き起こしにくいバッファーガスをセルにいれ、そのガスとの衝突を増やすかわりに壁との衝突回数を減らす方法である。例えば、Rb 原子が He 原子に衝突して偏極が壊れるには、 $10^8$  回くらいの衝突が必要である。

こうした方法で得られた緩和時間は気体アルカリ原子に対して 1 秒程度である。このよう

な方法は古くから確立されているが、現在でもスピンの長い緩和時間が必要なさまざまな実験によくもちいられている（例えば [55, 56, 57]）。

最近では、蒸気セル以外の方法で緩和時間が長い環境をつくる試みがなされている。1.1.1 節で述べた、低温ヘリウム環境をもちいる方法もその一つである。これまで緩和時間を測定した実験には、固体ヘリウム中の Cs 原子の実験があり、緩和時間はやはり 1 秒程度であった [9]。

ほかに有力な方法として、レーザー冷却した原子気体を光双極子トラップ (optical dipole trap) 中に閉じ込め、そこで長い緩和時間を達成しようという試みも行われている。これらの実験で、上に述べたのと同様な、偏極電子スピンの縦緩和時間を測定したものはないが、本質的に同じような量について比較的長い緩和時間が測定されている。例としては、Na 原子の 0-0 コヒーレンス時間<sup>1</sup> ( $\sim 4$  s) [58]、Cs 原子での超微細構造準位間の緩和時間 ( $\sim 10$  s) [59]、Cs 原子での一つの磁気副準位が占められた状態の緩和時間 ( $\sim 1$  s) [60] などがあげられる。

### 5.1.2 ヘリウム原子とアルカリ原子との衝突によるスピン緩和

アルカリ原子とヘリウム原子の衝突によるスピン緩和は、アルカリ原子の電子スピン  $\mathbf{S}$  とアルカリ-ヘリウム原子ペアの回転角運動量  $\mathbf{N}$  との結合、つまりスピン回転結合 (spin-rotation coupling)  $\gamma\mathbf{S}\cdot\mathbf{N}$  によって起こる [61, 62]。  $\gamma$  は結合係数で原子間距離  $R$  の関数である<sup>2</sup>。

文献 [19] では、アルカリ原子とヘリウム原子の組に対して  $\gamma(R)$  を計算し、それをもちいて、スピン回転相互作用によるアルカリ原子の電子スピン緩和の断面積を計算した。計算された緩和断面積は、これまでの実験結果とよく一致するものであった。この計算結果で注目すべき点は、緩和断面積の強い温度依存性である。温度が低くなると、緩和断面積が小さくなるのである（図 5.1 参照）。この理論的に予想された強い温度依存性は、室温以上の温度で蒸気セルをもちいて実験的に確認された [20]。

この実験結果は室温以上の温度でのものであり、また文献 [19] での計算も、古典的な衝突軌道をもちいて計算をしているので、低温領域まではそのまま拡張できない。しかし、これらの結果は、本研究によって可能になった温度数ケルビンの領域で、今までに実現されたことのないような非常に長い緩和時間が実現できる可能性を示している。

### 5.1.3 本実験の目的

本研究でも、スピンの緩和時間が著しく長くなることを期待して実験を行った。前章までの議論から、Rb どうしの衝突や Rb とセル壁面との衝突では気体 Rb 原子は失われてしまうと考えられるので、スピンの緩和は、気体 Rb 原子が存在している間は主に気相での Rb-He の

<sup>1</sup> 基底状態の二つの超微細準位の磁気量子数 0 の副準位間のコヒーレンス [13]。このコヒーレンスは磁場の不均一にあまり影響されない。

<sup>2</sup> このスピン回転結合についての解説は付章 A を参照されたい。

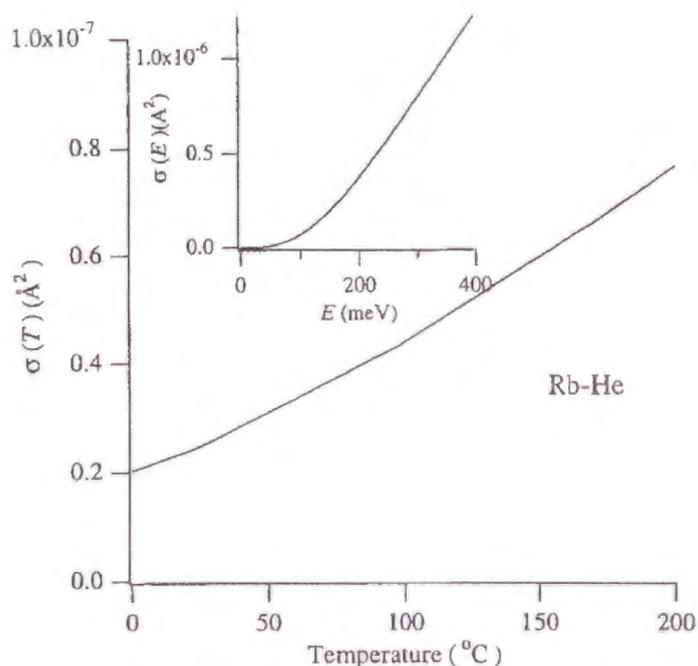


図 5.1: 計算された、Rb-He 衝突による Rb 原子の電子スピン緩和断面積 [19]。

衝突で起こると予想できる。つまり、本研究で実現した低温セルでは、Rb-He の衝突によるスピン緩和を測定することができる。

この実験からただちに次の結果が期待できる。まず、室温以上の温度で確認されたスピン緩和断面積の強い温度依存性が、そのまま低温領域まで拡張されるか、つまりそれによって低温でのスピン緩和が非常に遅いかどうか、を検証することができる。もう一つは、今まで定性的には言われてきたスピンの緩和に関しての低温ヘリウムの摂動の弱さを、Rb と He の二つの原子の衝突という非常に単純な系で、定量的に調べることができる。

これらのほかに、これまでの光ポンピングの歴史が示しているように、緩和メカニズムの詳細な研究から、原子とセル壁面との相互作用 [54] や、Rb-He の不安定分子 [63] などについての知見が得られる可能性も期待できる。1.2 節で触れたように、非常に弱いことで注目されている Rb-He のポテンシャルについての新しい情報が得られることも期待される。

## 5.2 実験方法

図 5.2 に光ポンピングとスピン緩和時間測定用のセットアップを示す。実験は、高い原子密度、長い原子気体寿命の得られる温度である 1.85 K で行った。もちいたセルは  $2 \times 2 \times 3$  cm の直方体のセルで、長い軸方向を光軸方向とした。

光ポンピングによる Rb 原子の偏極の方法は、一般的なもので単純である。ヘルムホルツコイルで約 3 G の定磁場を一方向 ( $z$  方向) にかけた。その磁場に平行に、 $D_1$  線に共鳴した円



$I_0$  に対する比は、吸収が小さいとき、

$$\frac{I}{I_0} = 1 - nl\sigma = 1 - nl\sigma_0(1 - 2s_z\langle S_z \rangle) \quad (5.2)$$

である。 $n$  は Rb の原子密度で、 $l$  はセル中をプローブ光が透過する長さである。

ただし、この吸収は 2.3 節で述べたように非常に小さく、直接精度よく観測するのは困難である。そこで、本研究では光弾性変調器 (photoelastic modulator: PEM) をもちいてプローブ光の偏光を変調し、変調された吸収信号をロックイン検出することで感度をあげ、吸収を測定した。

PEM は光弾性効果 (photoelastic effect)、つまり物質が力を受けて変形した際その変形に伴って複屈折性を示すという効果、を利用している。PEM は、結晶が一定周期 (本実験では 42 kHz) で一つの軸 (振動軸と呼ぶ) 方向に伸び縮みを繰り返すように動作する。その結晶を通過する光の偏光は、振動軸に対する入射光の偏光の角度や結晶の振動の大きさなどに依存して、さまざまに変調される。本実験では、PEM を透過した光が  $\sigma^+$  偏光と  $\sigma^-$  偏光の間を振動するようにするために、次のようにもちいた。

PEM は、プローブ光の波長 (795 nm) に対して、結晶の振動により引き起こされる光の位相のずれが最大  $\pi/2$  になるように設定する。直線偏光を、偏光面が結晶の振動軸 ( $y$  軸とする) に対して  $45^\circ$  の角度になるように、PEM に入射する (プローブ光の進行方向が  $-z$  軸)。

ここで、 $x$  軸、 $y$  軸方向の直線偏光を  $|x\rangle$ 、 $|y\rangle$  で表す。この時、 $\sigma^+$  偏光、 $\sigma^-$  偏光はそれぞれ  $|+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|x\rangle + i|y\rangle)$ 、 $|-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|x\rangle - i|y\rangle)$  と表される。また PEM を通過する前の光  $|E_{LP}\rangle$  と後の光  $|E_{PEM}\rangle$  はそれぞれ次のように表される<sup>3</sup>。

$$|E_{LP}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|x\rangle + |y\rangle) \quad (5.3)$$

$$|E_{PEM}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|x\rangle + \exp(i\frac{\pi}{2} \sin \Omega t)|y\rangle) \quad (5.4)$$

ここで  $\Omega$  は結晶の振動数である。光の偏光  $s_z$  は光子のスピン演算子  $\mathbf{s}$  の期待値  $s_z = \langle E_{PEM} | \mathbf{s} | E_{PEM} \rangle$  として計算できる。 $\langle + | \mathbf{s} | + \rangle = 1$ 、 $\langle - | \mathbf{s} | - \rangle = -1$  等をもちいると、

$$s_z = \sin\left(\frac{\pi}{2} \sin \Omega t\right) \quad (5.5)$$

となる。ここで、ベッセル関数  $J_n$  をもちいて、 $s_z$  は、

$$s_z = \sin\left(\frac{\pi}{2} \sin \Omega t\right) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n\left(\frac{\pi}{2}\right) \sin(n\Omega t) = \sum_{n=1,3,5,\dots}^{\infty} 2J_n\left(\frac{\pi}{2}\right) \sin(n\Omega t) \quad (5.6)$$

と表される。このなかで主要なのは  $n=1$  の項である ( $J_1(\frac{\pi}{2}) = 0.5668$ 、 $J_3(\frac{\pi}{2}) = 0.0690$ 、 $J_5(\frac{\pi}{2}) = 0.0022$  のように、高次の項の寄与は小さくなる)。よって、プローブ光の偏光は周波数  $\Omega$  で振動する成分が主である。図 5.3 に、偏光の時間変化の様子が示してある。以上よ

<sup>3</sup> このあたりの議論は例えば [64] などに詳しい。

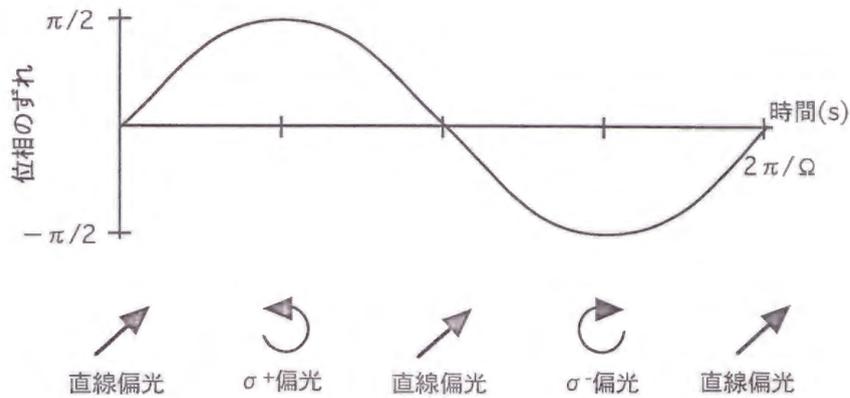


図 5.3: PEM によって生じるプローブ光の位相のずれと偏光との関係

り、式 (5.2) から、透過光の強度のなかでロックインで検出する周波数  $\Omega$  の成分は次式のように  $n\langle S_z \rangle$  に比例することがわかる。

$$\text{SIG}_{\text{Lock-in}} = AnI\sigma_0\langle S_z \rangle \quad (5.7)$$

ここで  $A$  はロックインの増幅度等で決まる係数である。つまりこの信号（偏極信号と呼ぶ）を測定すると電子スピンの偏極度と原子密度を測定することができる。

PEM とロックイン増幅器をもちいて測定精度をあげる方法は以上のとおりである。なお、実際の実験では、わずかではあるがさらに S/N 比を改善するために、オートバランスフォトダイオード (Auto-balanced photodiode: ABPD) をもちいた<sup>4</sup>。ABPD の動作原理は以下のようなものである。プローブ光と同じ光源からビームスプリッターで光を分けて、参照光として ABPD に REF ポートから入力する。この REF 入力信号をプローブ光の入力である SIG 入力信号から引き算をし、レーザー光源のノイズをキャンセルするのであるが、REF 入力信号は SIG 入力信号から引き算をする前に、引き算の差が 0 になるように適当に変倍される。オートバランスと言われるゆえんは、帰還回路を使ってある周波数以下の成分に対してこの変倍を自動的に行うためである。なおこの帰還周波数帯域の上限の周波数は、PEM の変調周波数 42 kHz より十分小さくした。

### 5.3 実験結果

プローブ光は正味では直線偏光であり、十分な S/N 比が得られる限り弱くしたものの、プローブ光が Rb 原子に照射されている間のスピン緩和は、プローブ光の吸収によって完全に決まってしまう。そこで、いったん光を完全に切っけし、しばらくのちに再び入射し、その

<sup>4</sup>なお、ABPD は普通のフォトダイオードとしても動作させることができるので、実験ではそのようなモードでも適宜もちいた。

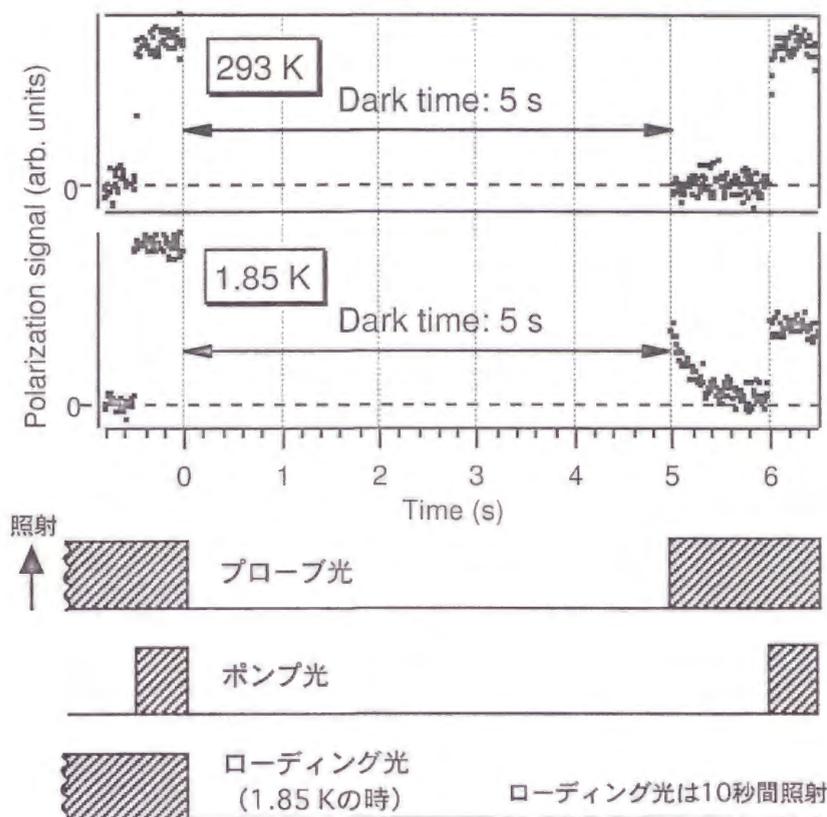


図 5.4: 測定された変極信号の時間変化の一例。両方の温度で縦軸のスケールは同じである。レーザー光の照射タイミングが下に示してある。

時の偏極の大きさを測定する“Relaxation in the dark”法 [65] をもちいて、緩和時間の測定をおこなった。

図 5.4 に、室温と 1.85 K とで観測した偏極信号が示してある。1.85 K の測定では、グラフの横軸の時間で  $-10$  s にローディング光が照射されていて、セル中に気体 Rb 原子をローディングしている。 $-0.5$  s のとき、ポンプ光が照射される。どちらの温度でもただちに原子が偏極されることが、セルに照射されているプローブ光の吸収をロックイン検出した偏極信号からわかる。その後 0 s のとき、プローブ光、ポンプ光を (1.85 K の場合はローディング光も) すべて切る。Rb 原子の吸収線に共鳴するレーザー光の迷光は、ほんのわずかの場合でも、今回測定する非常に遅いスピン緩和を速めてしまうので、十分気をつけて無いようにした。しばらくの暗闇時間 (Dark time. 図では 5 s 間) の後、プローブ光のみを入射する。室温では、スピンの緩和時間は 100 ms 程度のオーダーなので、偏極信号はまったく観測することができない。それに対して、1.85 K では、5 s 間の暗闇時間の後もはっきりと偏極信号が観測される。その偏極は、その後 1 s の間に、プローブ光の吸収によりほぼ崩れているのがわかる。なお、この減少レートは、見積もった光子の吸収レートとほぼ一致する。6 s のとき、再びポンピング光を入射すると、どちらの温度でも偏極が再びおこり、信号が復活する。この

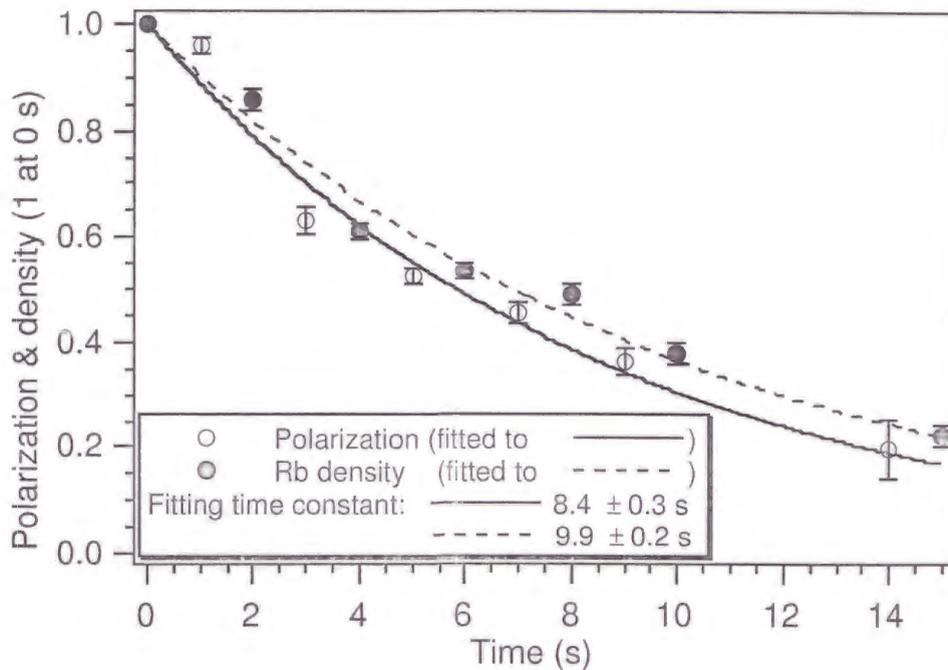


図 5.5: 偏極と原子数の減少

信号の大きさから原子の減少を知ることができる。1.85 K では 0 s のときと比べて半分くらいに原子数が減少しているのがわかる。室温ではもちろん原子数は減少しないので、偏極信号の大きさも変わらない。今述べた実験結果は、1.85 K では室温と比べてスピンの緩和が著しく遅くなっていることを、はっきりと示している。

このような測定を、暗闇時間をさまざまに変えながら、繰り返しておこなった。その結果をまとめたのが図 5.5 である。白丸が、ある暗闇時間のあと測定された偏極信号の大きさの減少を、黒丸が、それに引き続いて上記のように測定された原子数（原子密度）の減少をそれぞれ示している。それぞれ多数回の測定の平均であり、エラーバーはその平均の標準誤差である。図 5.5 を見ればわかるように、偏極信号の大きさの減少は、ほとんど原子数の減少に支配されている。つまり、気体原子数を減らさないプロセス、例えば Rb 原子と He 原子の衝突などによるスピン緩和レートは、気体原子の減少レートよりはるかに小さいということになる。

このスピン緩和レートをおおよそ見積もってみる。偏極信号の大きさの減少と原子数の減少をそれぞれ単一指数関数でフィティングすると、減衰時定数はそれぞれ  $8.4 \pm 0.3$  s、 $9.9 \pm 0.2$  s となった。この二つの時定数を比べると、原子数を減らさないプロセスに対するスピンの緩和時間は  $60 \pm 15$  s とおおよそ見積もられる。おおよかな見積もりであるが、この結果は、いままで実現されていたスピンの緩和時間が 1 s のオーダーだったことを考えると、非常に画期的であるといえる。

## 5.4 考察とまとめ

今回の実験は、Rb 原子の電子スピンの緩和に関して、低温ヘリウムガスの摂動が非常に小さいことを実証したものである。おおよそ見積もった 60 s という緩和時間は、これまで実現されていた緩和時間をはるかに上まわるものである。

観測された偏極信号の大きさは、ほぼ原子数の減少によって小さくなっている。気体 Rb 原子の寿命は、前章までにみてきたように、セルの大きさを大きくするなどして延ばすことができるので、それにともなって、偏極信号の減少も遅くすることができる。よって、このセルは潜在的により長いスピン緩和時間を達成する可能性を秘めており、長時間のスピン偏極が必要とされるような実験の有望な手段となりうると思われる。

1.85 K でのスピン緩和断面積のおおよそを見積もってみる。緩和時間を 10 s とすると、1.85 K での飽和蒸気のヘリウム密度  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  と Rb-He の平均相対速度  $10^4 \text{ cm/s}$  より、緩和断面積は  $10^{-25} \text{ cm}^2$  となる。これは文献 [19] で述べられている  $186^\circ\text{C}$  での緩和断面積  $10^{-23} \text{ cm}^2$  と比べ、二桁も小さくなっている。

結果のより定量的な解釈には、さらに今後、スピン緩和のメカニズムを調べるのが大切である。まず、この緩和が本当にヘリウムガスとの衝突によるものなのか、それとも今回は考えていない他の要因、例えば Rb 原子どうし、あるいは Rb クラスタやセル表面との相互作用によるものなのかを調べる必要がある。そのためには、さまざまなヘリウムの密度、Rb の密度、セルの大きさに対して測定を繰り返す必要がある。

さらに、衝突による緩和を定量的に解析するには、本来 Rb 原子の核スピンの影響を考慮しなくてはならない。核スピンと電子スピンの結合によって電子スピンの緩和が遅くなるからである。一般的に、光ポンピングの実験で観測する電子スピンの緩和は複数の異なる時定数を持つ指数関数の和で表される [13] が、Rb-He の衝突の際のスピン回転相互作用による緩和のみを考えると、核スピン  $I = 5/2$  の  $^{85}\text{Rb}$  と  $I = 3/2$  の  $^{87}\text{Rb}$  (天然存在比 72:28) に対して、それぞれ次式のようにになると期待できる [16, 54]。

$$\langle S_z \rangle = \frac{6}{17} \exp\left(-\frac{t}{T}\right) + \frac{5}{34} \exp\left(-\frac{t}{18T}\right) \quad ({}^{85}\text{Rb}) \quad (5.8)$$

$$\langle S_z \rangle = \frac{2}{7} \exp\left(-\frac{t}{T}\right) + \frac{3}{14} \exp\left(-\frac{t}{8T}\right) \quad ({}^{87}\text{Rb}) \quad (5.9)$$

ここで、 $1/T$  は衝突によって電子スピンの偏極が崩れるレートである<sup>5</sup>。なお、 $t = 0$  において電子スピンと核スピンは完全に偏極されている ( $\langle S_z \rangle = 1/2$ ,  $\langle I_z \rangle = I$ ) としている。

電子スピン緩和がこの式に従うかどうかを検証するには、今回のような測定を、初期の減少に対しては細かい時間スケールで、後期の減少については長い時間スケールで行う必要がある。そして、 $^{85}\text{Rb}$  と  $^{87}\text{Rb}$  の違いを比べることが大事になる。

<sup>5</sup> これまで文献 [19] などの結果として述べてきた、スピン回転相互作用による電子スピンの緩和レートはこの値をさす。なお 1970 年代初めころまでの文献では、電子スピンの緩和に関する核スピンの影響はほとんど考慮されていないので注意が必要である。

過去に行われた室温以上の温度でのスピン緩和メカニズムの研究は、さまざまな興味深い結果を与えてくれている。同様に、低温セルをもちいての今後の系統だった研究には、特に低温での Rb-He の相互作用についての知見を得るという観点から、その成果が期待される。

## 5.5 付節：室温での Rb 原子密度の測定

2.3節で触れた、PEM とロックインをもちいた室温での原子密度の求め方について、この節で述べる。

PEM をもちいてプローブ光の偏光を変調し、その吸収をロックイン検出すると、式 (5.7) に示されたように、その信号は原子密度と原子の電子スピンの偏極度に比例する。

$$\text{SIG}_{\text{lock-in}}(\nu) = Anl\sigma_0(\nu)\langle S_z \rangle \quad (5.10)$$

ここで  $\nu$  はプローブ光の周波数であり、プローブ光の線幅は原子の吸収スペクトルの幅より十分狭いとしている。得られた信号から、プローブ光の吸収率  $nl\sigma_0(\nu)\langle S_z \rangle$  を求め、さらに電子スピンの偏極度  $\langle S_z \rangle$  と光吸収断面積  $\sigma_0(\nu)$  を知れば、原子密度  $n$  が求められる。

検出機器の校正のために、つまりどれだけプローブ光が吸収されればどれだけの大きさの信号がでるかを知るために（つまり  $A$  を知るために）、次のようなことをおこなった。PEM の後に  $\lambda/4$  板を適当な結晶軸の角度で入れると、それを通過した後の光は

$$|E_{\lambda/4}\rangle = |x\rangle + \exp\left(i\left(\frac{\pi}{2}\sin\Omega t + \frac{\pi}{2}\right)\right)|y\rangle \quad (5.11)$$

となる。その後、PEM に入射する前の光の偏光方向と直交する方向に軸をもつ直線偏光板に光を通すと、その透過光強度は

$$\left|\left\langle\frac{1}{\sqrt{2}}(\langle x| - \langle y|)|E_{\lambda/4}\rangle\right|^2 = \frac{1}{2}\left(1 + \sin\left(\frac{\pi}{2}\sin\Omega t\right)\right) \quad (5.12)$$

となる。つまりこの強度は、偏極した気体 Rb 原子に PEM で変調したプローブ光を入射したときの吸収信号と同じ時間変化をする。ただしその振幅ははるかに大きいので、この振幅は直接フォトダイオードの出力をオシロスコープに入力してみることができる。その後で、この透過光強度をロックイン増幅した信号と比べることで、どれくらいの振幅の生信号が、この検出器系でどれだけの大きさに増幅された信号になっているかを知ることができる。

これをもとに、実際の原子密度測定実験でロックイン増幅後得られた信号の大きさから、生の吸収信号の大きさを見積もった。入射光強度の大きさ（ $\simeq$  透過光強度の大きさ）はフォトダイオードの生出力からわかるので、これと生の吸収信号の大きさから、偏極原子によるプローブ光の吸収率がわかる。

電子スピンの偏極度は次のようにして測定した。ポンピング光を入射して偏極させている気体 Rb 原子に対して、 $D_1$  線に共鳴するプローブ光を入射する。励起された原子の一部は、 $5P_{1/2}$  状態から  $5P_{3/2}$  状態へヘリウムガスとの衝突で移行したあと、 $D_2$  線を発光し、基底状態に戻る。この発光量は光の吸収量に比例する。この光の吸収量は、式 (5.1) のように、電子スピンの偏極度と光の偏光に依存する。したがって、プローブ光の偏光を直線偏光にした場合と円偏光にした場合との発光量を比べると、偏極度がわかる。 $D_1$  線に共鳴する 250 mW のポンプ光で偏極したときの偏極度は、ほぼ飽和していて（つまり、ポンプ光のパワーを上げても増加しない）、約 95% であった。

Rb の  $D_1$  遷移についての光子吸収断面積  $\sigma(\nu)$  は、文献 [24] で報告されている吸収スペクトルの情報から知ることができる (式 (2.4))。

以上から、室温での原子密度を求めることができる。

## 第 6 章

### 結論

本論文では、高密度のヘリウムバッファーガスを含んだアルカリ原子気体セルを、液体ヘリウム温度で実現することに成功したことを述べた。この実現自体が、原子物理学に全く新しい実験環境を提供するという意味で意義あるものである。特に、本論文で述べた、スピンの緩和時間が著しく遅いというこの環境の特徴は、今後のこの低温セルをもちいた研究の発展に期待を抱かせるものである。

このセルの実現だけでなく、実現に至った物理的メカニズムも本論文で述べたように興味深い特徴を持っており、その全体像を本論文では明らかにした。この低温セルはまったく新しい実験環境であるが、本研究によりその性質のおおまかな理解はほぼできたと言える。これも、今後の研究の発展の道筋をつけたという意味で、意義のあるものである。

ただ、このセルをもちいた研究はまだ始まったばかりである。本研究でもそうであったが、このまったく新しい実験環境には、思いもよらぬさまざまな現象がまだまだ隠されていると思われる。したがって、今後さらに注意深く実験を行い、その結果を十分に吟味し、定量的な理解に努めることが大切であると言える。

今後追求すべき点は、本論文で述べた中からもいくつかあげることができる。例えば、低温ヘリウムガス中でのアルカリ原子の光学的性質や拡散係数の測定、液体ヘリウム表面とアルカリ原子の相互作用の理解、LIAD ローディング時のガスの流れの定量的解釈、アルカリ原子脱離メカニズムのより深い追求、スピン緩和メカニズムの解明などがそれである。いずれもが基礎的かつ新しい研究対象であり、取り組む価値は十分にある。

本論文では触れなかったが、他にもこのセルをもちいた有望な研究がある。その中の一つに、 $^3\text{He}$  をセル中に入れて行う実験がある。特に  $^3\text{He}$  の核スピンを、偏極アルカリ原子とのスピン交換衝突により偏極するプロセスの研究は興味深い。この過程では、基底状態のアルカリ原子と  $^3\text{He}$  原子の不安定分子が、もし存在すれば、スピン移行に大きな役割を果たすので、この研究から Alkali- $^3\text{He}$  の非常に弱い結合状態の情報が得られるかもしれない。

また本研究室では、原子の EDM 測定のひとつの有望な手段としてこの低温セルを考えている。この研究の準備も着々と進んでいて、今後期待がもたれる。ただ、低温セルの物理に不明な点があると思われぬ測定誤差を生む可能性もあり、EDM 測定実験の準備に平行して、

上に述べたような課題の研究も進めていく必要があるであろう。

## 付録 A

### スピン回転相互作用の定性的説明

スピン回転相互作用  $\gamma \mathbf{S} \cdot \mathbf{N}$  は、スピン軌道相互作用に起因する。スピン軌道相互作用  $\xi \mathbf{S} \cdot \mathbf{L}$  は相対論的効果であり、Dirac 方程式から導き出すことができるが、直感的には、次のように説明できる。中心力ポテンシャル  $V(r)$  による電場  $\mathbf{E} (= \nabla V(r) = \frac{dV}{dr} \mathbf{r})$  中を速度  $\mathbf{v}$  で動く電子は、相対論的効果で  $\mathbf{E} \times \mathbf{v}$  に比例する磁場を感じる。ここで

$$\mathbf{E} \times \mathbf{v} \propto \mathbf{r} \times \mathbf{p} \propto \mathbf{L}$$

なので、この磁場が電子のスピン  $\mathbf{S}$  に働くことによる相互作用エネルギーは、 $\mathbf{S} \cdot \mathbf{L}$  に比例する。これがスピン軌道相互作用である。

アルカリ原子の基底状態は  $\mathbf{L} = 0$  なので、スピン軌道相互作用はない。重い希ガス原子がアルカリ原子と相対角運動量  $\mathbf{N}$  で衝突したとき、アルカリ原子の電子は希ガスのポテンシャルを感じ、上に述べたスピン軌道相互作用によって  $\mathbf{S} \cdot \mathbf{N}$  というスピン回転結合をおこす。この意味でこの結合は希ガスのコアに由来するといえる。このことは、スピン軌道相互作用の大きい重い希ガス原子ほどスピンの緩和が速いという結果と一致している [17]。

ヘリウムのような軽い希ガス原子の場合は希ガスのポテンシャルよりもアルカリ原子のコアのつくるポテンシャルのほうがきく。アルカリ原子は希ガスと衝突することによって、励起状態と多少状態が混じり、軌道角運動量をもった状態になる。これは希ガスとの衝突によって、アルカリ原子の電子が多少軌道角運動量  $\mathbf{L}$  を生じるといってもよい。そこでスピン軌道結合  $\mathbf{S} \cdot \mathbf{L}$  が起こる。この生じた軌道角運動量は  $\mathbf{N}$  によるので、スピン回転結合  $\mathbf{S} \cdot \mathbf{N}$  が起こることになる。この意味で、この結合はアルカリ原子のコアに由来するといえる。従って、スピン軌道相互作用の大きい重いアルカリ原子ほど、緩和が速い [17]。

スピン回転相互作用  $\gamma(R) \mathbf{S} \cdot \mathbf{N}$  によるスピン緩和の温度依存性をおおまかに考える。まず  $\mathbf{N}$  に関してである。温度が下がると  $\mathbf{N}$  ( $\propto$  相対速度  $v_r$ ) は小さくなるが、衝突の際の相互作用時間 ( $\propto 1/v_r$ ) が長くなるので、結果としてはスピン緩和レートの変化は引き起こさない。そこで、温度依存性を決めるのは係数  $\gamma(R)$  の部分である。  $\gamma(R)$  は原子間距離  $R$  が大きくなると急激に減少する関数である。緩和レートを主にきめるのは、原子が最接近して  $R$  が最小になる付近の  $\gamma(R)$  の値である。温度が変わったときにこれがどれだけ変化するかによって、

緩和レートの温度依存性が決まる。温度が下がると、衝突の際のエネルギーが下がるため、原子どうしが近づける距離は大きくなる方向へ変わる。ただし重い希ガス原子、例えば Xe 原子と Rb 原子のペアの場合、ポテンシャルの斥力部分の傾きが急なので、最近接距離  $R_0$  はあまり変わらない。その結果  $\gamma(R_0)$  の値もあまり変わらず、温度依存性が弱い。それに対して、He 原子と Rb 原子のペアの場合、ポテンシャルの斥力部分の傾きが緩やかで、温度が下がると最近接距離  $R_0$  が大きく変わり、その結果  $\gamma(R_0)$  の値が変わる。 $\gamma(R_0)$  は  $R_0$  が大きくなると小さくなるので、緩和レートはそれにしたがって小さくなる。これに加え、スピン回転相互作用がアルカリ原子のコアに由来する Rb-He ペアのほうが、希ガスのコアに由来する、例えば Rb-Xe ペアより、 $\gamma(R)$  の  $R$  依存性が強い [19] という事実も、この緩和レートの温度依存性を明確なものにしている。これが、スピン緩和レートの温度依存性のおおまかな説明である。

以上の議論について、詳しくは文献 [19, 66, 67] をみよ。

## 参考文献

- [1] バルクヘリウム中の原子・分子の研究に関するレビューとしては、藪崎努、木下俊哉、福田浩一、高橋義朗、応用物理 **63**、906 (1994); M. Takami, Comments At. Mol. Phys. **32**, 219 (1996); 高見道生、分光研究 **45**、222 (1996); B. Tabbert, H. Günther, and G. zu Putlitz, J. Low Temp. Phys. **109**, 653 (1997); S. I. Kanorsky and A. Weis, Adv. At. Mol. Opt. Phys. **38**, 87 (1997); E. B. Gordon and A. F. Shestakov, Fiz. Nizk. Temp. **26**, 5 (2000) [Sov. J. Low Temp. Phys. **26**, 1 (2000)]. ヘリウムクラスター単離分光法についてのレビューとしては、J. P. Toennies and A. F. Vilesov, Annu. Rev. Phys. Chem. **49**, 1 (1998); Y. Kwon, P. Huang, M. V. Patel, D. Blume, and K. B. Whaley, J. Chem. Phys. **113**, 6469 (2000). ヘリウムバッファーガスローディングについてのレビューとしては、R. deCarvalho, J. M. Doyle, B. Friedrich, T. Guillet, J. Kim, D. Patterson, and J. D. Weinstein, Eur. Phys. J. D **7**, 289 (1999).
- [2] レーザー冷却・トラッピング法の開発に対して、1997年にSteven Chu、Claude N. Cohen-Tannoudji、William D. Phillipsの三氏にノーベル物理学賞が贈られた。この三氏によるレビューが、Rev. Mod. Phys. **70**, 685-741 (1998)にある。
- [3] 例えば、*Low Temperature Molecular Spectroscopy*, edited by R. Fausto (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht/Boston/London, 1996).
- [4] J. Kim, B. Friedrich, D. P. Katz, D. Patterson, J. D. Weinstein, R. DeCarvalho, and J. M. Doyle, Phys. Rev. Lett. **78**, 3665 (1997).
- [5] S. Goyal, D. L. Schutt, and G. Scoles, Phys. Rev. Lett. **69**, 933 (1992).
- [6] M. Hartmann, R. E. Miller, J. P. Toennies, and A. Vilesov, Phys. Rev. Lett. **75**, 1566 (1995).
- [7] S. Grebenev, J. P. Toennies, and A. F. Vilesov, Science **279**, 2083 (1998).
- [8] T. Kinoshita, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, Phys. Rev. B **49**, 3648 (1994).
- [9] M. Arndt, S. I. Kanorsky, A. Weis, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **74**, 1359 (1995).

- [10] S. Lang, S. Kanorsky, T. Eichler, R. Müller-Siebert, T. W. Hänsch, and A. Weis, *Phys. Rev. A* **60**, 3367 (1999).
- [11] J. Higgins, W. E. Ernst, C. Callegari, J. Reho, K. K. Lehmann, and G. Scoles, *Phys. Rev. Lett* **77**, 4532 (1996).
- [12] 古いレビューとしては、[13, 14] や、その中であげられているもの。比較的新しいレビューとしては、[15, 16, 17]。
- [13] W. Happer, *Rev. Mod. Phys.* **44**, 169 (1972).
- [14] L. C. Balling, *Adv. Quantum Electron.* **3**, 102 (1975).
- [15] W. Happer and W. A. Van Wijngaarden, *Hyp. Int.* **38**, 435 (1987).
- [16] R. J. Knize, Z. Wu, and W. Happer, *Adv. At. Mol. Phys.* **24**, 223 (1988).
- [17] T. G. Walker and W. Happer, *Rev. Mod. Phys.* **69**, 629 (1997).
- [18] A. Kastler, *J. Phys. Radium* **11**, 225 (1950).
- [19] T. G. Walker, J. H. Thywissen, and W. Happer, *Phys. Rev. A* **56**, 2090 (1997).
- [20] A. Ben-Amar Baranga, S. Appelt, M. V. Romalis, C. J. Erickson, A. R. Young, G. D. Cates, and W. Happer, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2801 (1998).
- [21] U. Kleinekathöfer, M. Lewerenz, and M. Mladenović, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4717 (1999).
- [22] E. Cheng, M. W. Cole, J. Dupont-Roc, W. F. Saam, and J. Treiner, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 557 (1993).
- [23] J. Gerhold, *Cryogenics* **12**, 370 (1972).
- [24] M. V. Romalis, E. Miron, and G. D. Cates, *Phys. Rev. A* **56**, 4569 (1997).
- [25] 小林俊一、大塚洋一、低温技術 [第2版] (東京大学出版会、1987)。
- [26] W. E. Keller, *Phys. Rev.* **98**, 1571 (1955).
- [27] A. N. Nesmeyanov, *Vapor Pressure of the Chemical Elements* (Elsevier, Amsterdam, 1963).
- [28] *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, edited by David R. Lide (CRC Press, Boca Raton, Florida, 1993), 74th ed., pp. 4–124.
- [29] T. J. Killian, *Phys. Rev.* **27**, 578 (1926).

- [30] M. Rozwadowski and E. Lipworth, *J. Chem. Phys.* **43**, 2347 (1965); R. J. Hull and L. C. Bradley, *J. Opt. Soc. Am.* **57**, 11 (1967); A. Gallagher and E. L. Lewis, *J. Opt. Soc. Am.* **63**, 864 (1973); D. C. Thompson and G.-X. Xu, *Can. J. Phys.* **60**, 1496 (1982); B. Shirinzadeh and C. C. Wang, *Appl. Opt.* **22**, 3265 (1983).
- [31] Z. J. Jakubek, Q. Hui, and M. Takami, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 629 (1997).
- [32] J. Wilks, *The Properties of Liquid and Solid Helium* (Clarendon Press, Oxford, 1967).
- [33] O. S. Heavens, *Optical Properties of Thin Solid Films* (Butterworths Scientific Publications, London, 1955).
- [34] J. Monin and G.-A. Boutry, *Phys. Rev. B* **9**, 1309 (1974).
- [35] W. Hoheisel, M. Vollmer, and F. Träger, *Phys. Rev. B* **48**, 17463 (1993).
- [36] U. Kreibig and M. Vollmer, *Optical Properties of Metal Clusters* (Springer-Verlag, Berlin, 1995).
- [37] H. Raether, *Excitation of Plasmons and Interband Transitions by Electrons* (Springer Tracts in Modern Physics, Vol. 88, Springer-Verlag, Berlin, 1980).
- [38] N. V. Smith, *Phys. Rev.* **183**, 634 (1969); N. V. Smith, *Phys. Rev. B* **2**, 2840 (1970).
- [39] M. Rasigni and G. Rasigni, *J. Opt. Soc. Am.* **63**, 775 (1973); M. Rasigni, G. Rasigni, J. P. Gasparini, and R. Fraisse, *J. Appl. Phys.* **47**, 1757 (1976).
- [40] I. Lee, J. E. Parks II, T. A. Callcott, and E. T. Arakawa, *Phys. Rev. B* **39**, 8012 (1989).
- [41] A. M. Cravath, *Phys. Rev.* **36**, 248 (1930).
- [42] G. K. White, *Experimental Techniques in Low-Temperature Physics* (Clarendon Press, Oxford, 1987).
- [43] Y. Matsuo, T. Nakajima, T. Kobayashi, and M. Takami, *Phys. Rev. A* **59**, 2071 (1999).
- [44] A. Fujisaki, K. Sano, T. Kinoshita, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1039 (1993).
- [45] R. Jochemsen, A. J. Berlinsky, and W. N. Hardy, *Can. J. Phys.* **62**, 751 (1984).
- [46] S. H. Patil, *J. Chem. Phys.* **94**, 8089 (1991).

- [47] F. Ancilotto, E. Cheng, M. W. Cole, F. Toigo, *Z. Phys. B* **98**, 323 (1995).
- [48] T. J. Greytak and D. Kleppner, in *Les Houches, Session XXXVIII, 1982 — New Trends in Atomic Physics*, edited by G. Grynberg and R. Stora, (Elsevier, Amsterdam, 1984).
- [49] F. Masnou-Seeuws and M.-A. Bouchiat, *J. Phys. (Paris)* **28**, 406 (1967).
- [50] E. W. McDaniel, *Atomic Collisions — Electron and Photon Projectiles* (John Wiley & Sons, New York, 1989).
- [51] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery, *Numerical Recipes in C* [日本語版]、(丹慶勝市、奥村晴彦、佐藤俊郎、小林誠 訳、技術評論社、1993)。
- [52] G. D. Smith, *Numerical solution of partial differential equations* (Oxford University Press, London, 1965); J. Crank, *The Mathematics of Diffusion* (Clarendon Press, Oxford, 1975).
- [53] C. Cohen-Tannoudji and A. Kastler, in *Progress in Optics, Vol. 5*, edited by E. Wolf (North-Holland, Amsterdam, 1966).
- [54] M. A. Bouchiat and J. Brossel, *Phys. Rev.* **147**, 41 (1966).
- [55] S. A. Murthy, D. Krause, Jr., Z. L. Li, and L. R. Hunter, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 965 (1989).
- [56] D. Budker, D. F. Kimball, S. M. Rochester, and V. V. Yashchuk, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1767 (1999).
- [57] L. J. Wang, A. Kuzmich, and A. Dogariu, *Nature* **406**, 277 (2000).
- [58] N. Davidson, H. J. Lee, C. S. Adams, M. Kasevich, and S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1311 (1995).
- [59] T. Takekoshi and R. J. Knize, *Opt. Lett.* **21**, 77 (1996).
- [60] M. Zielonkowski, I. Manek, U. Moslener, P. Rosenbusch, and R. Grimm, *Europhys. Lett.* **44**, 700 (1998).
- [61] R. Bernheim, *J. Chem. Phys.* **36**, 135 (1962).
- [62] R. M. Harman, *Phys. Rev.* **136**, A1576 (1964).
- [63] C. C. Bouchiat, M. A. Bouchiat, and L. C. L. Pottier, *Phys. Rev.* **181**, 144 (1969); C. C. Bouchiat and M. A. Bouchiat, *Phys. Rev. A* **2**, 1274 (1970).

- [64] G. Baym, *Lectures on Quantum Mechanics* (Benjamin/Cummings, Reading, Massachusetts, 1969).
- [65] W. Fraunz, Phys. Rev. **115**, 850 (1959).
- [66] Z. Wu, T. G. Walker, and W. Happer, Phys. Rev. Lett. **85**, 1921 (1985).
- [67] T. G. Walker, Phys. Rev. A **40**, 4959 (1989).

## 謝辞

本研究は、私が4回生の後期に始めた実験がきっかけとなり、この博士論文をまとめるまでに発展したものです。この研究を始めるきっかけを与えてくださり御指導いただいた薮崎努教授に感謝いたします。ほぼ、わがままな私の思うがままに研究を進めさせていただいたのも、薮崎先生の温かい御指導と、薮崎研での恵まれた環境があればこそでした。このような環境で5年間研究に打ち込めたことは貴重な経験になると思います。ありがとうございました。高橋義朗助教授には、実験の具体的な進め方や物理の解釈に関して、しばしば相談にのっていただきました。感謝いたします。現姫路工業大学助教授の石川潔先生には、私がこの研究室に来た当初、半年少しにわたり、丁寧に実験のやり方を指導していただきました。感謝しております。今年度赴任された熊倉光孝助手には、最後の一年間だけでしたが、熱心に助言をいただきました。ありがとうございました。

同じテーマについて研究を共にした、曾和平博士、大江浩二君、大田豪一君、黒田直史君、原心平君、榎本勝成君、荒井純一君、前川卓英君、杉本真博君、西河宏晃君に感謝します。博士研究員として1年間本研究室に在籍した曾さん以外は、みんな私より下の学年の人で、とくにその人たちには、未熟な私のために苦勞をかけたことも多かっただろうと、申し訳なく思う点多々あります。研究計画がうまくなく、無駄をさせてしまったこともあったと思います。ただ、私にとっては、普段一緒に実験をし議論したのはこれらの人たちであり、これらの人たちのおかげがあってこの研究をここまでまとめることができた、心から思っています。特に、この論文で述べた拡散計算の数値計算を、興味をもって中心となり行ってくれた荒井君にはここで感謝したいです。物理学的なことだけでなく、研究の方針や研究の際の苦勞などについてざっくばらんに話すことができたことは、私の研究の支えとなりました。ありがとうございました。これらの人たちの大部分が物理学からもはや離れてしまっていますが、その人たちも、そうでない人たちももちろん、この研究室での経験がうまく生かされればと願っています。

過去この研究室で液体ヘリウム中の原子の研究を進めてきた先輩方、特に短い間でしたが直接指導していただいた木下俊哉氏、松浦徹氏、和田重明氏の力無くしてはこの論文をまとめることはできなかつたと思います。また、私が所属している間に一緒だった、この研究室のたくさんの方の他の院生・4回生にもお世話になりました。私はこの5年間のほとんどの時間を研究室で過ごしてしまったので、皆さんのおかげがあったからこそ、ここまで研究を進めて来ることができました。ありがとうございました。研究室に集まった学生の人たちは、自発的に楽し

く、かつ物理的に意義のある研究して欲しいと思います。必ずしも、教科書や論文、有名な物理学者の言うことが正しいわけではありません。自分で判断し、みんなで志気の高い良い雰囲気の研究室をつくって行ってください。期待しています。

研究室外の方々にもお世話になりました。米国のノースカロライナ州立大（当時プリンストン大）の Albert R. Young 氏は私のこの研究に興味を持ち、三回に渡り来日して、特に光ポンピングの実験を精力的に進めてくださいました。また、私たちがプリンストンを訪問した際にもお世話になりました。氏の指摘と尽力により、いくつもの研究上重要なステップのきっかけをつかむことができました。また、氏の物理に対する姿勢には学ぶことが多くありました。ありがとうございました。春日氏には、実験にかかせないセルを作るためにガラス細工のやり方を伝授していただきました。職人氣質の春日氏の助言からは得ることが多かったです。京大内の他の研究室、とくに低温研究室（特に水崎教授）、光物性研究室、不規則系研究室の方々には実験装置を貸していただいたり、議論にのっていただいたりしました。ありがとうございました。その他にも物理学に携わる多くのみなさんに、学内外を問わずお世話になりました。心から感謝いたします。

研究以外の普段の生活でつきあってくれた友人に感謝します。研究でぼけた頭をリフレッシュさせるのは、研究と関係のない人たちと話すのが一番でした。最近私はあまり飲まなくなりましたが、またいつでも飲みに行きましょう。

私の家族は、これまでの私の人生すべてにわたり、私の好きなようにやらせてくれ、いつも支えてくれました。感謝します。今後はあまり無茶は、おそくしないと思います。

この他にも大勢の方々のおかげでこの博士論文をまとめることができました。ありがとうございました。

最後になりましたが、私の大学院生活を経済面で支えていただいた、日本育英会と日本学術振興会に心から感謝いたします。

2001年1月5日

畠山 温