

(UBC物理¹, UBC化学²) Eric Vyskocil¹, 久間 晋², ○百瀬 孝昌^{1,2}

【序】我々はこれまで、数ケルビン以下の低温領域での化学反応を観測するために、固体パラ水素結晶や超流動ヘリウム液滴中に捕捉した分子を対象に研究を行い、非アレーニウスの温度応答をするトンネル反応[1]等の低温特有の現象を研究してきた。しかし、さらに極低温(<100mK)下で、かつ環境との相互作用の無い状態で素反応等を研究する場合、孤立分子系での極低温の実現が不可欠となる。内部温度及び相対並進温度に対しては、超音速分子線の利用により1 K以下の低温が比較的容易に得られるが、実験室系での並進温度の冷却は容易ではない。光との相互作用時間に拘束されない、超高分解能精密分光などを行うためには、実験室系に対する絶対並進運動の冷却が望まれる。原子に対しては、すでに磁気光学的相互作用を用いてnKまでの冷却が実現され、ボーズ・アインシュタイン凝縮を始めとした超低温原子の物理的性質の解明が進行している。一方、原子で成功したレーザー冷却の手法は室温程度の分子には直接応用できない。これは分子が本質的に持つ振動回転の多様な内部状態のために、閉じた光励起・脱励起過程を多数回繰り返すことが不可能なためである。そのため、Stark電場[2]、バッファーガス[3]、光定在波[4]による室温分子の減速や、回転分子線源を用いた機械的な低速分子発生[5]、あるいはStark電場による低速分子の選別[6,7]など全く異なる手法の冷却が提案・検討され100mK程度の温度がようやく達成されている。今後、分子の量子性が顕著な物理・化学的新規現象の観測を行うためには、光の力を用いた分子運動の精密制御[8]が必要であるが、そのためには光冷却開始時に10mK程度の冷却分子集団の生成が必要であり、予備冷却手法のさらなる発展が現段階で望まれている。

我々はここ数年、10mK程度の予備冷却分子集団の生成法開発の一環として、Rempeらの速度フィルターの手法[6]を発展させた六極子電場を用いた低速分子選別の装置開発に取り組んでいる。今回、多様な分子の冷却を可能にするため、レーザーアブレーションと低温原子との衝突冷却を用いた分子線源を装置に組み込み、CaF分子の低速分子選別を行ったので報告する。

【実験】室温でもボルツマン分布に従って一定量の極低温の分子が存在する。この極低温の分子だけをStark効果によってとらえますが、Stark場による低速分子選別法である。従来の研究[6,7]では、四極子電場による分子選別が行われているが、我々の装置では六極子場を採用している[9]。六極子の利点は、そのポテンシャルの特性により低速分子が場の中心に存在する確率が増えるため、四極子に比べて分子の透過率が上昇することが予測されるためである。今回の実験は、図1で示した六極子電極により、図の平面内の速度成分の選別を行い、進行方向に対しては、電極(場)を直角に曲げることにより行った。電極間電位差約10kVとした六極子電極内を分子は進み、曲率R=75 mmの電極によって2回曲げられることで低速分子選別と背景気体からの隔離が行われる。電極の全長は1 mである。

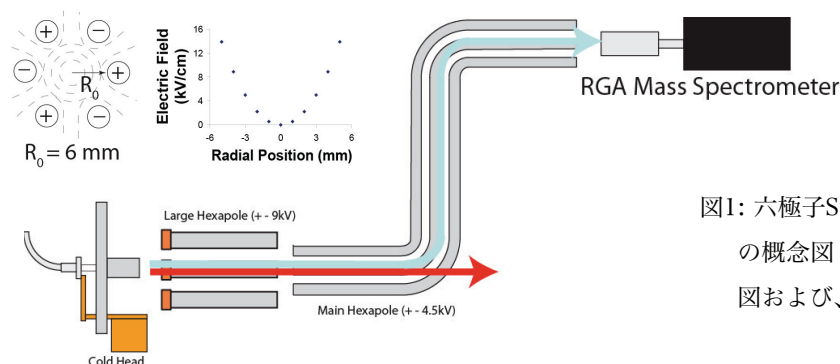


図1: 六極子Stark場による低速分子選別装置の概念図。(左上)六極子電極の断面図および、断面方向の電場。

分子の導入には、レーザーアブレーションと低温原子との衝突冷却を用いた分子線源を新たに用いた（図2）。サンプルとしてはフッ化カルシウムの基盤をNd:YAGレーザーの倍波でレーザーアブレーションしたときに生成するCaF分子を用いた。アブレーションで生成したCaFは内部状態・並進運動とも高い温度を持つが、これを冷却したノズルから粘性流条件で噴出したパルス状の低温ヘリウムガスと衝突させることで低温状態の密度分布を増やし、その後、六極子電場により速度選別した。低温パルスノズルは超流動ヘリウム液滴用に開発したもの（開口1mm）[10]を流用し、今回は40Kの温度に保った。ノズルの開閉は0.5Hzでおこなっている。

速度選別された分子は、電極の末端近傍に設置した四重極質量分析器（RGA200, SRS）でイオン化観測した。検出はCaFの質量に対応する成分のみ積算し、ノズルから検出器までの飛行時間と信号強度との関係を測定した。装置全体はターボポンプによる三段の差動排気により、観測領域で分子導入時に 10^{-9} Torrの高真空を得ている。

【結果と考察】パルスノズルを50msあけ、ノズル開始時から10ms後にアブレーションレーザー（532nm、10mJ）を照射したところ、高電場印加（HV ON）時にStark場により曲げられたCaF分子が、飛行時間300msにピークを持つ形で観測された。図3に、測定された飛行時間分布から得られた速度分布を示す。速度分布に変換する際、 $dt \propto -dv/v^2$ を考慮する必要があるが、観測された数密度を流速に変換し、さらにイオン化検出器の検出効率が分子の速度に反比例することを加味すると、ヤコビアンに現れる $1/v^2$ の効果は相殺され消える。図3に示されたように今回の実験では最確速度4.5m/s、温度換算で70mKのCaFの低速分子流が生成できている。現在、共鳴多光子イオン化を用いた高感度検出、およびこの低速分子流を用いたCaF電子状態の超高分解能分光を試みている。

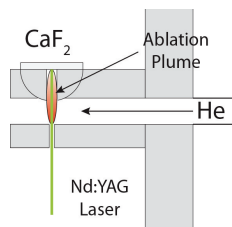


図2: レーザーアブレーション用パルスノズルの概念図。

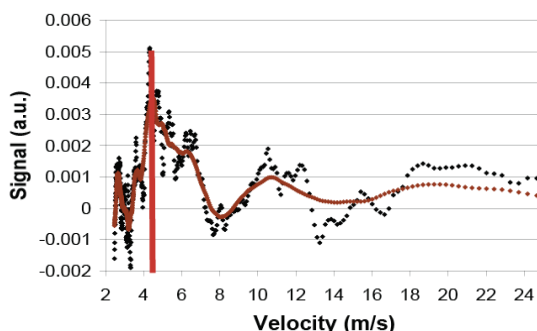


図3: 飛行時間分布から得られたCaFの速度分布（黒点）。赤線は、信号のRFノイズをフーリエ変換で取り除いたもの。

【参照】

- [1] T. Momose, M. Fushitani, H. Hoshina, Int. Rev. Phys. Chem. **24**, 533 (2005).
- [2] S.Y.T. van de Meerakker, N. Vanhaecke, G. Meijer, Annu. Rev. Phys. Chem. **57**, 159 (2006).
- [3] S.E. Maxwell他, Phys. Rev. Lett. **95**, 173201 (2005).
- [4] R. Fulton, A.I. Bishop, M.N. Shneider, and P.F. Barker, Nature Phys. **2**, 465 (2006).
- [5] M. Gupta, D. Herschbach, J. Phys. Chem. **A105**, 1626 (2001).
- [6] T. Rieger, T. Junglen, S. A. Rangwala, G. Rempe, and P. W. H. Pinkse, Phys. Rev. **A73**, 061402 (2006).
- [7] H. Tsuji, Y. Okuda, T. Sekiguchi, H. Kanamori, Chem. Phys. Lett. **436**, 331 (2007).
- [8] S. Kuma, T. Momose New J. Phys. **11**, 055023 (2009).
- [9] 安藤, 久間, 坪内, 百瀬, 第1回分子科学討論会 4C12 (2007).
- [10] M. N. Slipchenko他, Rev. Sci. Instru. **73**, 3600 (2002).