

Li原子-Ca⁺イオン混合系における 原子-イオン間非弾性散乱の研究

齋藤了一

化学反応は原子や分子が起こす身近な現象の一つであり、現在でも盛んに研究が行われている現象の一つである。その一つに絶対零度近傍における化学反応過程の研究があげられる。絶対零度近傍になると原子あるいは分子の量子力学的な波の性質が顕著になり、常温における化学反応と異なる振る舞いを示すことが予想されている。こうした絶対零度近傍における化学反応について研究を行える実験系として近年注目を浴びているのが原子-イオン混合系である。

原子-イオン混合系は絶対零度近傍まで冷却した中性原子気体とイオントラップ中に捕獲した原子イオンを同一実験系で捕獲し、空間的にオーバーラップさせることで両者を相互作用させる系のことを呼ぶ。この実験系はレーザー冷却技術をもとに構築されているため、量子的な性質が現れる温度領域いわゆる極低温領域での原子-イオン間の化学反応を観測出来得るという点に加え、中性原子あるいはイオンの単一内部状態を実験者自ら選別して反応を観測できるという点の二つの特徴を持つ。そこで本研究では原子-イオン間の散乱エネルギーおよび内部状態を制御して化学反応を含む非弾性散乱の観測を行った。非弾性散乱過程は散乱する原子の内部状態毎に特徴づけられると考えられるので散乱過程の理解といった興味はもちろん、内部状態を選択する化学反応過程の制御を行える可能性があるという観点からも興味深い。

実験に使用した原子-イオン混合系について記述する。本研究では中性リチウム (⁶Li) 原子気体とカルシウム (⁴⁰Ca⁺) イオンを採用して既存の実験技術を組み合わせることで構築した。高周波を用いて荷電粒子を捕獲するリニアパウルトラップによって光イオン化したカルシウムイオンを捕獲し、ドップラー冷却によって絶対零度近傍まで冷却した。一方の中性リチウム原子気体はリチウムの固体を熱して熱原子線を生成し、ゼーマン減速器を経て磁気光学トラップにて冷却および捕獲を行った。その後リチウム原子を光トラップに移行し、カルシウムイオンと相互作用させるために光ピンセット技術を用いて冷却されたりチウム原子集団をイオントラップ中の捕獲したイオンまで輸送した。混合された原子とイオンの散乱前後の状態の変化からどのような散乱過程を起きたかを検出した。リチウム原子は吸収撮像法にて観測し、カルシウムイオンは冷却光の散乱光を観測することで行った。

観測されたりチウム原子-カルシウムイオン間の非弾性散乱の一つに電荷交換散乱があげられる。この過程はリチウム原子に束縛された電子がカルシウムイオンに飛び移る現象であり、化学反応素過程の一つである。電荷交換散乱の詳細を検証するために散乱断面積のエネルギー依存性とカルシウムイオンの内部状態依存性を測定した。散乱断面

積のエネルギー依存性を測定するためには原子-イオン間の散乱エネルギーを制御する必要がある。そこでイオントラップ中に捕獲したカルシウムイオンの運動エネルギーを制御する手法を開発した。イオントラップ中のイオンの運動は永年運動とマイクロモーションに分離できる。永年運動はレーザー冷却によって冷却することができるが、マイクロモーションは捕獲に用いる高周波によって直接駆動されている運動でレーザー冷却することができない。通常、マイクロモーションは最小になるように高周波電場の鞍点でイオンを捕獲するが、外部電場を加えることで捕獲点と鞍点をずらすことで誘起することができる。マイクロモーションが増大したイオンが発する蛍光スペクトルはドップラー広がりとは異なり特徴的なスペクトル形状を呈する。このスペクトルを用いてマイクロモーションエネルギーを校正した。

また、一方のカルシウムイオンの内部状態はレーザー光ポンピングで選択した。カルシウムイオンの基底状態 $4^2S_{1/2}$ と励起状態 $4^2P_{1/2}$, $3^2D_{3/2}$, $3^2D_{5/2}$ について光トラップ中の基底状態 $2^2S_{1/2}$ のリチウム原子気体との混合時に選択した。

測定した散乱エネルギー $2 \text{ mK} \times k_B$ から $1.5 \text{ K} \times k_B$ の範囲で電荷交換断面積は散乱エネルギーの平方根に反比例することを見出した。これは電荷交換散乱のメカニズムがランジュバン散乱で説明できることを示す。ランジュバン散乱とは散乱する二粒子が内向きの螺旋軌道を描きつつ近接して散乱する過程のことを指す。電荷交換散乱は中性原子に束縛された電子がイオンに移る過程であるため、両者の原子核同士が近接する必要がある。そのためポテンシャルエネルギー曲線の古典的転回点まで粒子が近接すると考えられるランジュバン散乱に伴って電荷交換が起きると考えられる。ランジュバン散乱は古典的な散乱であるため、今回測定した散乱エネルギーの範囲では古典的な散乱過程で説明できることが明らかになった。

また、内部状態毎に異なる電荷交換断面積が測定され、カルシウムイオンの基底状態と励起状態で二桁程度の反応性の違いが観測された。この内部状態毎の反応性の違いを検証するため、共同研究により数値計算したポテンシャルエネルギー曲線と実験結果を比較した。カルシウムイオン D 状態の高反応性は状態間の結合に由来し、内部状態間の反応性の差がポテンシャルエネルギー曲線の状態間の結合の有無によって説明できることを明らかにした。このような内部状態毎の反応性の差、特に今回測定された基底状態の低反応性と励起状態の高反応性は本研究の主題である化学反応過程の制御について重要な示唆を与えている。すなわち、リチウム原子-カルシウムイオン間の反応を抑制させたときはカルシウムイオンを基底状態に準備し、逆に反応を促進させたい場合、レーザーを入射し励起状態にポンピングすれば良い。光による反応制御をリチウム原子-カルシウムイオン系で示した結果と言える。

ポテンシャルエネルギー曲線の状態間結合より、基底状態のリチウム原子と D 状態のカルシウムイオンについてスピン一重項の場合は状態変化散乱 (state-changing collision) が起こり、スピン三重項の場合は電荷交換散乱が起これると考えられた。そこでリチウム原子およびカルシウムイオンの磁気副準位を選別し、非弾性散乱を観測する実験を試み

た。リチウム原子およびカルシウムイオンについてレーザーを用いて任意の単一磁気副準位のみを選別し測定を行ったが、十分な非弾性散乱レートを実現することができず、観測には至らなかった。

以上のように本研究では内部状態による反応性の違いを見出し、それを個々の状態におけるポテンシャルエネルギー曲線から説明した。これは本来、散乱過程がそれぞれの状態ごとに理解されるべきであることを端的に示した結果と言える。本研究で得られた知見は非弾性散乱過程の理解に加え、実験者による散乱過程の制御手法の開発といった観点からも有益であると考えられる。